ISSN 1738-1142

Volume 9(1) 2011

Abstracts of Proceedings of the Korean Radioactive Waste Society Spring 2011

한국방사성폐기물학회 학술논문요약집

- 2011년 봄 -

- 일시 : 2011. 5. 12(목)~13(금)
- 장소 : 문경 STX 리조트
- 주최 : 한국방사성폐기물학회
- 후원 : 삼성물산(주), 한국필터시험원

사단법인 한국방사성폐기물학회

빈 면

목 차

제1 분과 사용후핵연료 수송저장 및 정책 (ORAL) 좌장 : 정성환 · 윤정현

09:00 사용후핵연료-운송/저장시스템 연동 응답 및 건전성 평가 체계에 관한 연구 …… 21
이성기 · 남윤석 · 김순기 · 최기성 · 조창석 [한전원자력연료]

09:20 사용후핵연료 저장조 저장용량 증가에 대한 열수력 평가 …… 23
정성환 · 김민철 · 최종락 [한수원㈜ 원자력발전기술원]

09:40 중수로 사용후핵연료 운반용기의 개념설정 및 열안전성 평가 …… 25
이주찬 · 방경식 · 서중석 · 서기석 [한국원자력연구원]
김범인 · 최병일 [한국방사성폐기물관리공단]

10:00 Kerosene과 Jet 연료를 사용한 화염온도 평가 …… 27
방경식 · 이주찬 · 김기영 · 서중석 · 서기석 [한국원자력연구원]
김형진 · 윤정현 [한국방사성폐기물관리공단]

10:40 후쿠시마 원전 4호기 사용후핵연료 저장조 및 핵연료 온도 예측 …… 29
인왕기 · 최종원 · 구양현 [한국원자력연구원]

11:00 사용후핵연료 저장수조에서 사용후핵연료 피복관의 산화에 의한 수소발생 …… 31
박주영 · 박광헌 · 김소영 [경희대학교]

11:20 항공기 충돌조건을 고려한 직립용기의 고속충돌 해석 및 시험평가 …… 33
이상훈 · 방경식 · 최우석 · 김기영 · 전재언 · 서기석 [한국원자력연구원]

11:40 사용후핵연료 수송저장기술 특허자료 조사분석 …… 35
노성기 · 김은가 · 조성수 [대덕원자력포럼]

제1 분과 사용후핵연료 수송저장 및 정책 (POSTER)

P0101 중수로 사용후핵연료 총방사능량 평가를 위한 다중계산코드 개발 및 예비평가 … 39
육대식 · 이윤근 [한국원자력안전기술원], 이상철[한국과학기술원]

P0102 건식저장 시 사용후핵연료 건전성에 대한 미국과 일본의 평가방법 및 기준 분석 … 41
국동학 · 양용식 · 권형문 · 장정남 · 최종원 [한국원자력연구원]

P0103 사용후핵연료 건식저장 구조재료 장기열화평가 방법론 개발 ····· 43
이영호 · 김형규 · 최종원 [한국원자력연구원]

P0104 PCTRAN Analysis of Spent Fuel Pool at Fukushima Unit 4 ····· 45
Li-Chi Cliff Po [Micro-Simulation Technology], Juyoul Kim [FNC Technology]

P0105 사용후핵연료 수송방안 분석 평가 체계 구축 ····· 47
성기열 · 윤정현 · 김태만 · 김형진 [한국방사성폐기물관리공단], 이수홍 [㈜에네시스]

P0106 국내 BUC적용 타당성 평가를 위한 사용후핵연료 타입별 핵임계특성 분석 ····· 49
김태만 · 윤정현 · 박주완 [한국방사성폐기물관리공단]

P0107 중간저장시설 확률론적 안전성평가 도구 SSAT 개발 및 활용 ····· 51
정종태 · 황미정 · 최인길 [한국원자력연구원, 김형진 · 윤정현 [한국방사성폐기물관리공단]

P0108 국내 사용후 핵연료의 육상수송에 관한 고찰 ····· 53
권기현 · 김병태 · 최영구 · 김대환 · 홍지식 · 임유경 · 김기홍 [선광원자력안전㈜]
한병섭 · 이수홍 [㈜에네시스]

P0109 사용후핵연료 건식저장시설 주요 안전특성의 정량적 참고치 ····· 55
채경선 · 박병목 · 신경욱 · 박장순 · 전상환 [세안기술㈜]

P0110 중저준위방사성폐기물관리비용 산정방안 ····· 57
이상진 · 박성재 [한국방사성폐기물관리공단]

P0111 누적효과를 고려한 사용후핵연료 수송사고 시험모델 평가 ····· 59
김형진 · 윤정현 [한국방사성폐기물관리공단], 최우석 · 서기석 [한국원자력연구원]

P0112 MCNPX를 이용한 사용후핵연료 연소도측정용 CZT 검출기 설계 ····· 61
박준식 · 이태훈 · 신희성 · 김호동 · 박세환 [한국원자력연구원], 김용균 [한양대학교]

P0113 사용후핵연료 건식저장 시스템 내 콘크리트 구조재료의 장기 내구성에 주요 영향을 미치는 열화 메카니즘 분석 ····· 63
김진섭 · 이경수 · 최종원 · 권상기 [한국원자력연구원], 조계춘 [한국과학기술원]

P0114 밀봉용기 내부의 부수로 핵연료집합체 열해석 모델 검토 ····· 65
차정훈 · 한순규 · 김성진 · 황대현 [한국원자력연구원], 김상녕 [경희대학교]
최경우 [한국원자력안전기술원]

P0115 PWR 사용후핵연료 집합체 연료봉 인출 방식 분석 ····· 67
김영환 · 박근일 · 이정원 · 이영순 · 이도연 · 김수성 [한국원자력연구원]

P0116 사용후핵연료 장기저장의 경제적 효과 ····· 69
김성기 · 고원일 · 최희주 [한국원자력연구원]

제2분과 핵연료주기 기술 (ORAL) 좌장 : 정의창 · 안도희

09:00 레이저 분광을 이용한 LiCl-KCl 용융염 내 Nd^{3+}-chloride 화학종 규명 연구 ··· 73
정의창 · 배상은 · 배인애 · 박용준 · 송규석 [한국원자력연구원]

09:20 An Approach to Develop Regulatory Requirements of Nuclear Energy Systems in the Area of Proliferation Resistance ····· 75
H. L. Chang, E. Haas and W. I. Ko [KAERI]

09:40 Melting & Casting Evaluation of Volatile Surrogate U-Zr-Mn Fuel Slugs for SFR ····· 77
Ki-Hwan Kim, Hyung-Tae Kim, Young-Mo Ko, Yoon-Myung Woo, Chong-Tak Lee, Seok-Jin Oh, Sun-Ki Kim and Chan-Bock Lee [KAERI]

10:00 양극 내 금속 형태에 따른 전해정련 수율 영향 ····· 79
박성빈 · 황성찬 · 이성재 · 강영호 · 최세영 · 성기찬 · 김정국 · 이한수 [한국원자력연구원]

10:40 물질전달 율속의 전극반응 모델링 ····· 81
김광락 · 김택진 · 심준보 · 강권호 · 안도희 [한국원자력연구원]
박재영 · 최성열 · 황일순 [서울대학교]

11:00 SFR 금속핵연료의 기계적 특성 평가 ····· 83
김선기 · 이종탁 · 오석진 · 고영모 · 김기환 · 우윤명 · 이찬복 [한국원자력연구원]

11:20 고주파 유도용해 U-Zr-Mn의 망간 휘발성 고찰 ····· 85
오석진 · 장세정 · 김기환 · 이종탁 · 이찬복 [한국원자력연구원]

11:40 기준 파이로 시설 미계량물질(MUF) 측정 불확도 모델 ····· 87
한보영 · 박세환 · 송대용 · 신희성 · 안성규 · 이태훈 · 김호동 [한국원자력연구원]

제2분과 핵연료주기 기술 (POSTER)

P0201 소형 ZrCo 및 DU 베드 수소흡탈장 시스템 설치 및 검사 ····· 91
구대서 · 정동유 · 이지성 · 정흥석 [한국원자력연구원]

P0202 Automatic Gamma Dose Rate Calculation for Radionuclides using MCNPX and ORIGEN-S ····· 93
Yos Sitompul and Shin Hee Sung [KAERI]

P0203 LiCl-KCl 공융염 hybrid 재생공정 발생 란탄계 폐기물의 세라믹 고화체 제조 … 95
안병길 · 박환서 · 김환영 · 조용준 [한국원자력연구원]

P0204 이온선택성 전극에 의한 표준 AgI 중 I-의 정량 …… 97
최계천 · 송병철 · 한선호 · 손세철 · 박용준 · 송규석 [한국원자력연구원]

P0205 우라늄 수지상 제거용 자동화 LCC assembly 장치개발 …… 99
김시형 · 백승우 · 윤달성 · 김택진 · 심준보 · 김광락 · 정재후 · 안도희 [한국원자력연구원]

P0206 사용후핵연료 밀도시험 및 평가 …… 101
이형권 · 김도식 · 서항석 · 황용화 · 권형문 · 장정남 · 손영준 [한국원자력연구원]

P0207 백금족 원소 측정을 위한 고방사성 세슘 제거 방법 연구 …… 103
최광순 · 김정석 · 김영복 · 이창헌 · 박용준 · 송규석 [한국원자력연구원]

P0208 Pyro-SFR Nuclear Fuel Cycle with Different Conversion Ratios …… 105
Fanxing Gao [UST], Byung Heung Park and Won Il Ko [KAERI]

P0209 PIE시설의 HVAC 시스템의 진동특성 …… 107
황용화 · 이형권 · 서항석 · 장정남 · 김도식 · 류우석 [한국원자력연구원]

P0210 우라늄전착물 잔류염 분리장치 특성 조사 및 장치개선 …… 109
권상운 · 박기민 · 이한수 · 김정국 [한국원자력연구원]

P0211 UO_2-Gd_2O_3 사용후핵연료의 결정구조변화 …… 111
박양순 · 서항석 · 하영경 · 송규석 [한국원자력연구원]

P0212 조사후 환형 UO_2 소결체의 1700°C 고온가열 미세조직 변화 …… 113
김대호 · 방제건 · 김선기 · 양용식 · 구양현 · 권형문 [한국원자력연구원]

P0213 사용후 UO_2 소결체의 고온산화에 따른 미세조직변화 …… 115
김대호 · 방제건 · 김선기 · 양용식 · 구양현 [한국원자력연구원]

P0214 U 전착물 연계 이송장치 제작 및 성능 평가 시험 …… 117
이성호 · 최세영 · 박기민 · 이한수 · 김정국 [한국원자력연구원]

P0215 잔류 핵분열생성기체의 정량적 추출을 위한 조사핵연료 조각 시료의 불활성기체 융해 평가 …… 119
박순달 · 김정석 · 하영경 · 송규석 [한국원자력연구원]

P0216 Pu 동위원소 비 측정에 미치는 U 동중원소 영향 및 이의 보정 …… 121
전영신 · 김정석 · 한선호 · 하영경 · 송규석 [한국원자력연구원]

P0217 조사후 핵연료봉 Tube core drilling machine 개발 ····· 123
서항석 · 김도식 · 전용범 · 이형권 · 권형문 · 황용화 [한국원자력연구원]

P0218 PRIDE 원격취급 서보조작기 기구부 성능 개선 ····· 125
이종광 · 박병석 · 이효직 · 유승남 · 김기호 · 김호동 [한국원자력연구원]

P0219 우라늄 전착물의 잉곳제조 특성 ····· 127
조춘호 · 강희석 · 김정국 [한국원자력연구원]

P0220 사용후핵연료 내 Pu/U 핵종비 정량 분석을 위한 계측장치 최적설계 ····· 129
이상화 · 배진형 · 정진영 · 황주호 · 허균영 [경희대학교]

P0221 개량형 Cd 증류장치 제작 및 시운전 ····· 131
김경량 · 김광락 · 윤달성 · 김지용 · 박대엽 · 김택진 · 김시형 · 정재후 · 백승우 · 심준보
안도희 [한국원자력연구원]

P0222 다공성 도가니를 이용한 수지상 전착 특성 연구 ····· 133
윤달성 · 백승우 · 김택진 · 김시형 · 김광락 · 심준보 · 정재후 · 안도희 [한국원자력연구원]

P0223 RAR 공정 lab-scale 장치 시험 ····· 135
김지용 · 심준보 · 박대엽 · 윤달성 · 김경량 · 김택진 · 김시형 · 백승우 · 안도희 [한국원자력연구원]

P0224 전해제련공정을 위한 불활성 양극 장치 개발 ····· 137
김택진 · 박대엽 · 윤달성 · 심준보 · 김시형 · 백승우 · 김광락 · 정재후 · 안도희 [한국원자력연구원]

P0225 자유낙하 방식을 이용한 염회수용 도가니로부터 회수된 염의 탈착 특성 ····· 139
박기민 · 권상운 · 최세영 · 김정국 [한국원자력연구원]

P0226 결정화공정을 이용한 LiCl염폐기물 처리기술 ····· 141
조용준 · 손성모 · 이태교 · 은희철 · 김인태 · 이한수 [한국원자력연구원]

P0227 Determination of Plutonium Contribution to the Total Burnup of a Spent Nuclear Fuel by Mass Spectrometric Measurements of Uranium and Ruthenium ····· 143
Jung Suk Kim, Young Shin Jeon, Kwang June Park, Soon Dal Park, Sun Ho Han and Yong Joon Park [KAERI]

P0228 UCl_3 제조반응시 염소공급관의 열적 특성 연구 ····· 145
우문식 · 강희석 · 최세영 · 김정국 · 이한수 [한국원자력연구원]

P0229 LiCl-KCl과 삼염화우라늄 공융염의 액상 이송 및 펠렛제조 경험 ····· 147
강희석 · 우문식 · 최세영 · 김정국 · 이한수 [한국원자력연구원]

P0230 조사표적용 Mo-99 target 제조공정 개발 ····· 149
심문수 · 이종현 [충남대학교 녹색에너지기술전문대학원], 김창규 · 지철구 [한국원자력연구원]

P0231 핵물질 측정을 위한 LIBS 실험의 최적화 조건 분석 ····· 151
김연실 · 한보영 · 정정환 · 신희성 · 김호동 [한국원자력연구원]

P0232 PRIDE 원격 운전/유지보수용 천정이동 양팔 서보조작기의 모듈화 설계 ····· 153
박병석 · 이효직 · 이종광 · 유승남 · 김기호 · 김호동 [한국원자력연구원]

P0233 Pyroprocess 공정장치의 배치 및 원격 취급성 분석 ····· 155
김성현 · 유승남 · 김기호 [한국원자력연구원]

P0234 감마선을 이용한 우라늄 농축도 분석시 차폐체 영향 평가 분석 ····· 157
박세환 · 엄성호 · 신희성 · 김호동 · 박준식 [한국원자력연구원], 김용균 [한양대학교]

P0235 PRIDE(PyRoprocess Integrated inactive DEmonstration facility) 핵물질 계량 및 감시정보 시스템의 모의 전산프로그램 모듈화 ····· 159
최선수 · 송대용 · 신희성 · 오종명 · 김호동 [한국원자력연구원]

P0236 란탄족 원소를 이용한 LiCl-KCl/Bi 계에서의 환원추출 군분리 연구 ····· 161
배주동 · 황일순 [서울대학교], 박병기 [순천향대학교]

P0237 RAR 공정 전해회수 방식 개량 및 산화제 감축 방안 ····· 163
심준보 · 김지용 · 박대엽 · 김택진 · 김시형 · 백승우 · 정재후 · 김광락 · 이한수 · 안도희 [한국원자력연구원]

P0238 고-액 분리법을 이용한 액체카드뮴전극 처리 기술 ····· 165
박대엽 · 윤달성 · 김지용 · 김경량 · 김택진 · 김시형 · 심준보 · 백승우 · 김광락 · 정재후 · 안도희
[한국원자력연구원]

P0239 LiCl 염폐기물 처리시 유동해석에 의한 분리효율 예측 ····· 167
류홍열 · 김승현 · 송인건 · 이종현 [충남대학교]

P0240 회전형 휘발성 산화장치이용 그래늘형 원료입자 제조 실험 ····· 169
이재원 · 윤여완 · 신진명 · 이정원 · 박장진 · 박근일 [한국원자력연구원]

P0241 사용후핵연료 집합체에 대한 외부면 연소도 감마스캐닝을 위한 검출장치 설계 및 소프트웨어 개발 ····· 171
엄성호 · 박세환 · 오종명 · 권인찬 · 권형문 · 정경채 · 조문성 · 신희성 [한국원자력연구원]

P0242 4가지 전처리공정에 있어 핵분열생성물 거동특성 분석 ····· 173
박장진 · 신진명 · 이재원 · 나상호 · 박근일 [한국원자력연구원]

P0243 Thermal Cycle에 의한 니켈계 구조재료의 부식거동 ····· 175
조수행 · 이경현 · 홍순석 · 오승철 · 허진목 · 이한수 [한국원자력연구원]

P0244 LiCl 용융염 내 Sr, Cs 농도변화에 대한 Li_2O 용해도 변화 측정 연구 ····· 177
김대현 · 배상은 · 김종윤 · 박용준 · 송규석 [한국원자력연구원]

P0245 저연소도에서 Am에 의한 SFR 금속연료 헬륨방출 평가 ····· 179
이병운 · 천진식 · 김준환 · 이찬복 [한국원자력연구원]

P0246 Lab. scale 전해정련장치에서의 primary, secondary 전류밀도 분포 비교 ····· 181
김승현 · 류홍열 · 이종헌 [충남대학교 녹색에너지기술전문대학원],
박성빈 · 김정국 · 이한수 [한국원자력연구원]

제3분과 방사성폐기물 처리 및 제염해체 (ORAL) 좌장 : 최광섭 · 최영구

09:00 폐기된 라듐(Ra-226)선원 안전조치 ····· 185
최광섭 · 한은덕 · 이정돈 · 정진우 [한국방사성폐기물관리공단]

09:20 우라늄을 함유한 유기폐액 자체처분을 위한 실험 ····· 187
김재건 · 김현권 · 김병래 · 박근택 [고려검사㈜]

09:40 산 분해를 이용한 셀룰로오스계 방사성폐기물의 감량 실험 ····· 189
윤기훈 · 조윤주 · 민병혁 · 최홍주 · 송정호 · 신진성 · 박현균 [케이엔디티앤아이]

10:00 증기발생기 전열관의 건식분사 제염기술 개발 ····· 191
김대환 · 김병태 · 최영구 · 권기현 · 홍지식 · 임유경 · 김기홍 [선광원자력안전㈜]
이근우 · 최왕규 · 민병연 [한국원자력연구원]

10:40 파라핀 안정화 드럼 처리를 위한 분리 장치 개발 ····· 193
최영구 · 김병태 · 권기현 · 김대환 [선광원자력안전㈜]

11:00 Towards the Mathematical Modeling of Cold Cap During Vitrification of Nuclear Waste ····· 195
Pavel Hrma and R.Pokorny [POSTCH]

11:20 복합제염장치를 이용한 금속방사성폐기물 제염 고찰 ····· 197
홍용호 · 이경호 · 제환경 · 김민수 · 김희경 · 최은석 [㈜액트]

11:40 석탄회필터와 칼슘필터를 이용한 세슘과 레늄의 포집 ····· 199
신진명 · 박장진 · 이재원 · 나상호 · 박근일 [한국원자력연구원]

제3분과 방사성폐기물 처리 및 제염해체 (POSTER)

P0301 핫셀용 충격시험기 시편이송장치 및 온도조절장치 개선 후 정확도 및 불확도 시험… 203
주용선 · 김길수 · 백승제 · 유병옥 · 김도식 · 김기하 · 안상복 · 류우석 [한국원자력연구원]

P0302 고품위우라늄 혼합물의 탄산염 산화침출 거동 …… 205
이일희 · 임재관 · 성새름 · 최은경 · 현준택 · 정동용 · 양한범 · 김광욱 [한국원자력연구원]

P0303 고품위우라늄 혼합물의 질산 용해 특성 …… 207
이일희 · 임재관 · 성새름 · 최은경 · 현준택 · 정동용 · 양한범 · 김광욱 [한국원자력연구원]

P0304 액체폐기물 성상별 수질정화를 위한 최적의 전처리 공정 …… 209
이손동 · 이일환 · 윤영호 · 서장수 [한수원㈜원자력교육원]

P0305 철재 방사성폐기물 자체처분을 위한 RESRAD-RECYCLE 코드 고찰 …… 211
조현태 · 이상태 · 김창환 · 김효철 · 이의동 [하나검사기술㈜]

P0306 규제해제를 위한 페드럼의 제염과 압축감용처리 …… 213
강일식 · 이범철 · 손종식 · 김태국 · 홍대석 · 곽경길 · 류우석 [한국원자력연구원]

P0307 Pyro-silica 기조 겔 제염제의 제염 특성 …… 215
김창기 · 정종헌 · 최병선 · 문제권 · 원휘준 · 이근우 [한국원자력연구원]

P0308 원격 광용발 제어 시스템 제작 및 성능 시험 …… 217
원휘준 · 정선희 · 최병선 · 정종헌 · 문제권 · 이근우 [한국원자력연구원]

P0309 우라닐-과산화수소 용액계 조건에 따른 동적 UO_4 침전 거동 특성 변화 …… 219
김광욱 · 성새름 · 현준택 · 최은경 · 정동용 · 양한범 · 이일희 · 이근우 [한국원자력연구원]

P0310 Eu^{3+} 및 Ce^{4+}로 오염된 알루미늄 시편에 대한 파장별 광용발 제염특성 …… 221
정선희 · 원휘준 · 최병선 · 문제권 · 정종헌 · 이근우 [한국원자력연구원]

P0311 방사선관리구역 작업복의 오염현황 및 폐기물 관리방안 …… 223
박병목 · 김명민 · 김동훈 · 채경선 · 신경욱 [세안기술㈜], 정택민 · 배성범 [한국수력원자력㈜]

P0312 실제규모 동전기토양제염장치 개선 및 효율실증 …… 225
김계남 · 손동빈 · 박혜민 · 김기홍 · 김완석 · 박진호 · 정운수 · 이기원 · 문제권 [한국원자력연구원]

P0313 방사성원소가 함유된 폐윤활유 정제처리장치 전처리공정 …… 227
홍지식 · 김병태 · 최영구 · 김대환 · 권기현 · 임유경 · 김기홍 · 채양묵 · 임형석 [선광원자력안전㈜]

P0314 Fly Ash 필터 유리조성의 전기전도도 특성 평가 …… 229
이상우 · 조현제 · 김천우 [한수원㈜원자력발전기술원]

P0315 양이온교환수지를 이용한 코발트, 스트론튬, 세슘 제거: 칼럼실험 ····· 231
이윤지 · 박연진 · 신원식 · 최상준 [경북대학교]

P0316 방사선관리구역 개선작업복의 유리화 타당성 분석 ····· 233
박윤규 · 박승철 · 김천우 [한수원㈜원자력발전기술원]

P0317 알루미늄 금속폐기물 유리화 타당성 연구 ····· 235
조현제 · 김지연 · 김천우 [한수원㈜원자력발전기술원]

P0318 배기체 폐필터 유리화 타당성 연구 ····· 237
조현제 · 김지연 · 김천우 [한수원㈜원자력발전기술원]

P0319 우라늄 석회침전물의 탄산염계 용해액으로부터 UO_4 침전 ····· 239
정동용 · 최은경 · 양한범 · 이일희 · 김광욱 [한국원자력연구원]

P0320 가상사고조건의 연속적인 측면하중하에서의 금속겸용용기의 누적효과 평가 해석 241
최우석 · 이상훈 · 서기석 [한국원자력연구원], 김형진 · 윤정현 [한국방사성폐기물관리공단]

P0321 폐 피복관의 염소화 반응 거동 모사 ····· 243
전민구 · 이재원 · 강권호 · 박근일 · 이창화 · 양재환 · 허철민 [한국원자력연구원]

P0322 Fly ash를 첨가한 인산세라믹의 제조 및 특성평가 ····· 245
양재환 · 이창화 · 허철민 · 전민구 · 강권호 [한국원자력연구원]

P0323 방사성 토양 세척기술(Soil washing) 최적조건개발 ····· 247
손동빈 · 김계남 · 박혜민 · 이기원 · 정운수 · 문제권 [한국원자력연구원],
김기홍 [선광원자력안전㈜]

P0324 우라늄 잔류물질 장기저장을 위한 예비조사 ····· 249
최윤동 · 최휘경 · 이규일 · 황두성 · 문제권 [한국원자력연구원]

P0325 Ag(II)를 매개체로 사용하는 전기화학적 매개산화에 의한 NOx 제거 ····· 251
이민우 · 양희철 · 이근우 · 최왕규 [한국원자력연구원]

P0326 우라늄 함유 TBP-dodecane 폐유기용제의 열분해 및 인의 휘발거동 ····· 253
홍순재 · 양희철 · 최왕규 · 이근우 [한국원자력연구원]

P0327 원자력시설 해체공정 위험성 리스크 정량적 평가 모델 ····· 255
정관성 · 이근우 [한국원자력연구원]

P0328 알파/베타 오염도 원격측정 장비 제어를 위한 2차원 레이저 스캐너 오차 저감 연구 257
김성균 · 최영수 · 정경민 · 서범경 · 이근우 [한국원자력연구원]

P0329 사용후핵연료 파이로프로세스 발생 공융염폐기물내 순수 공융염 회수 기술에 관한 연구 ····· 259
이태교 · 황택성 [충남대학교], 조용준 · 은희철 · 손성모 · 김인태 · 이한수 [한국원자력연구원]

P0330 친수성 한외여과막을 이용한 전기여과 특성 평가 ····· 261
박정순 · 최왕규 · 이근우 [한국원자력연구원]

P0331 희토류 침전물 함유 LiCl-KCl 공융염 재생을 위한 감압휘발/응축회수공정 개선 연구 ··· 263
은희철 · 조용준 · 손성모 · 김인태 · 이한수 [한국원자력연구원], 이태교 [충남대학교]

P0332 동전기 토양세척폐액 처리기술개발 ····· 265
김기홍 · 이건우 · 김병태 [선광원자력안전㈜]
김계남 · 손동빈 · 박혜민 · 김완석 · 이기원 · 문제권 [한국원자력연구원]

P0333 대면적 오염 핵종 제거용 poly(vinyl alcohol)/ethylhexyl acrylate latex strippable 유기소재 제조 ····· 267
황호상 · 서범경 · 이근우 [한국원자력연구원]

P0334 슬래그폐기물 안정화처리를 위한 슬래그 특성 연구 ····· 269
최휘경 · 황두성 · 최윤동 · 이규일 · 문제권 [한국원자력연구원]

P0335 칼슘필터를 이용한 혼합핵종의 포집특성 ····· 271
신진명 · 박장진 · 이재원 · 나상호 · 박근일 [한국원자력연구원]

P0336 우라늄잔류물질저장시설 관리를 위한 전산체계개발 ····· 273
황두성 · 최윤동 · 이규일 · 문제권 [한국원자력연구원]

P0337 수조콘크리트의 방사화재고량 평가에 관한 연구 ····· 275
홍상범 · 조동건 · 정경환 · 이기원 · 문제권 [한국원자력연구원]

P0338 감손우라늄을 함유한 촉매로부터 우라늄 분리연구 ····· 277
성진현 · 정성기 · 박광헌 [경희대학교]

P0339 마이크로버블을 이용한 제염장치 개발 및 성능평가 ····· 279
전종선 · 박상규 · 이상헌 · 이상철 · 김위수 · 한병섭 [㈜에네시스]

P0340 고방사성 오염도 원격 측정용 센서 제조 및 1차원 레이저를 이용한 제어 기술 개발 281
이보람 · 서범경 · 이근우 [한국원자력연구원]

P0341 NF_3 플라즈마를 이용한 인코넬 모재 위 코발트 산화막의 식각반응 연구 ····· 283
김경민 · 채산 · 전상환 · 김용수 [한양대학교]

P0342 Application of Micro-coprecipitation Method to Alpha Source Preparation for Measuring Alpha Nuclides····· 285
Myung Ho Lee, Jong Ho Park, Se Jin Oh, Byung Chul Song and Kyuseok Song [KAERI]

P0343 Fe 함유 우라늄폐기물의 산용해 및 침전법에 의한 U/Fe 상호분리····· 287
양한범 · 이일희 · 정동용 · 최은경 · 김광욱 [한국원자력연구원]

P0344 사용후연료집합체 구조재 폐기물 처리방안 최적화 ····· 289
나상호 · 박창제 · 양재환 · 강권호 · 박근일 [한국원자력연구원]

제4분과 방사성폐기물 처분 및 부지특성 (ORAL) 좌장 : 엄우용 · 강철형

09:00 처분용기 개선에 따른 CANDU 사용후핵연료 처분효율 향상 ····· 293
이종열 · 조동건 · 국동학 · 이민수 · 최희주 [한국원자력연구원]

09:20 파이로 폐기물 중 I-129의 처분 안전성에 미치는 영향 평가 ····· 295
강철형 · 정종태 [한국원자력연구원]

09:40 철과 마그네타이트에 의한 Se-75의 이동저지 영향 ····· 297
김승수 · 민제호 · 이승엽 · 백민훈 [한국원자력연구원]

10:00 Acoustic Emission 모니터링 데이터의 Time-Frequency 기법 적용을 통한 처분장 현장암반에서의 소음원 위치추정 분석 ····· 299
김진섭 · 이경수 · 권상기 [한국원자력연구원], 조계춘 [한국과학기술원]

10:40 사용후핵연료 처분을 위한 국외 부지선정 프로그램에 관한 고찰 ····· 301
정재열 · 정해룡 · 김현주 · 김민정 [한국방사성폐기물관리공단]

11:00 Analytical Modeling of the Pseudo-Colloid Migration with the Band Release Boundary Condition in the Fractured Porous Media····· 303
Mi-Seon Jeong [UST], Chul-Hyung Kang and Yongsoo Hwang [KAERI]

11:20 선량대방사능 환산 프로그램 개선····· 305
김태욱 · 이나라 · 강기두 [한수원㈜원자력발전기술원]

11:40 Sorption and transport behavior of radioactive iodine ····· 307
Wooyong Um [POSTCH]

제4분과 방사성폐기물 처분 및 부지특성 (POSTER)

P0401 확률론적 처분안전성평가에 필요한 입력자료들의 통계처리 방안 ····· 311
박정균 · 정종태 [한국원자력연구원]

P0402 A-KRS 처분 시스템 핵종 유출 시나리오 비교 평가 ····· 313
이연명 · 정종태 · 최종원 [한국원자력연구원]

P0403 방사성폐기물 척도인자의 주기적 검증 방안 ····· 315
김태욱 · 이나라 · 강기두 [한수원㈜원자력발전기술원]

P0404 파이로 공정 세라믹폐기물 수직 처분공 주변 열 해석 ····· 317
최희주 · 이종열 · 김현아 [한국원자력연구원]

P0405 온도 구배를 가진 불포화 매질에서의 음이온 핵종 이동 모사 ····· 319
조원진 · 이재완 · 권상기 [한국원자력연구원]

P0406 Iron Metal에 의한 Selenite 화학종 변화 ····· 321
민제호 · 배기서 [충남대학교], 김승수 · 백민훈 · 최종원 [한국원자력연구원]

P0407 고준위폐기물 처분기술 특허동향 분석 연구 ····· 323
김은가 · 류건중 · 조성수 · 서인석 [(사)대덕원자력포럼]

P0408 배경 단열이 반영된 단열 암반에서의 지하수내 용존 물질의 이동 양상 분석 ····· 325
고낙열 · 지성훈 [한국원자력연구원]

P0409 미생물에 의한 4가 우라늄 콜로이드 생성 및 지구환경적 의미 ····· 327
이승엽 · 오종민 · 백민훈 · 최종원 [한국원자력연구원]

P0410 Considering the effect of water pressure at the analysis of a hydraulic test in a fractured rock ····· 329
S. -H. Ji, Y. K. Koh and J. W. Choi [KAERI]

P0411 한국원자력연구원 내 지하처분연구시설에서의 암반손상대 평가에 관한 연구 ····· 331
이창수 · 전석원 [서울대학교], 권상기 [한국원자력연구원]

P0412 단열대 도출 정량화를 위한 통계적 기법의 활용 ····· 333
박경우 · 배대석 · 김건영 · 김경수 [한국원자력연구원]

P0413 KURT 시설 부지 내 DB-2 시추공에서의 암반 투수성 평가 ····· 335
김경수 · 박경우 [한국원자력연구원]

P0414 KURT 시설 부지조건에서 심지층 처분시설 입지 후보영역 도출 ····· 337
김경수 · 박경우 · 최희주 [한국원자력연구원]

P0415 사용후핵연료 수송저장용기 차폐 해석 ····· 339
김연화 · 손정희 · 이상철 · 전종선 · 한병섭 [㈜에네시스]

P0416 해외 처분시설 Safety Case 구축과 검토 현황 ····· 341
서은진 · 정찬우 · 박진용 · 정해용 · 정승영 · 이윤근 [한국원자력안전기술원]

P0417 공학적 규모의 완충재 THMC 거동 실증실험 : 음이온 이동 ····· 343
이재완 · 조원진 · 임진규 · 권상기 [한국원자력연구원]

P0418 유동성 단열이 slug test의 oscillation response에 미치는 영향 ····· 345
이항복 · 지성훈 · 고용권 · 최종원 [한국원자력연구원]

P0419 고준위방사성폐기물 심층처분시설에 관한 일반기준 개발 ····· 347
정찬우 · 서은진 · 박진용 · 정해용 · 김병수 · 정승영 [한국원자력안전기술원]

P0420 중 · 저준위 방폐장 종합개발을 위한 안전성평가 고려사항 ····· 349
정찬우 · 서은진 · 박진용 · 정해용 · 김용재 · 이윤근 [한국원자력안전기술원]

P0421 공학적방벽 열화평가를 위한 지화학 모델링 검증 고찰 ····· 351
김건영 · 류지훈 · 고용권 [한국원자력연구원], 정해룡 [한국방사성폐기물관리공단]

P0422 공학적방벽의 열화평가를 위한 콘크리트-지하수 반응체계 분석 ····· 353
류지훈 · 김건영 · 고용권 · 최종원 [한국원자력연구원], 박주완 [한국방사성폐기물관리공단]

P0423 중저준위 방사성폐기물 내 ^{59}Ni 및 ^{63}Ni의 방사능 측정 방법에 대한 고찰 ····· 355
송병철 · 김영복 · 이창헌 · 한선호 · 이명호 · 송규석 [한국원자력연구원]

P0424 KURT 황산염박테리아에 의한 우라늄 환원 및 중금속 원소들의 영향 ····· 357
오종민 · 이승엽 · 백민훈 [한국원자력연구원]

P0425 Acoustic Emission기법을 활용한 KURT 무결암의 손상기준 및 균열패턴 분석 ··· 359
이경수 · 김진섭 · 권상기 [한국원자력연구원]

P0426 디스크형 완충재 블록의 물성 분석 ····· 361
임진규 · 이재완 · 조원진 · 권상기 [한국원자력연구원]

P0427 고준위폐기물 처분형태에 따른 처분장 내 대기온도 예측에 관한 수치해석 연구 ··· 363
윤찬훈 · 권상기 [한국원자력연구원], 김진 [인하대학교]

P0428 KAERI-SDB를 이용한 우라늄의 수착특성 평가 ····· 365
이재광 · 백민훈 · 이태엽 [한국원자력연구원]

P0429 물리 검층 및 수리 실험을 이용한 장심도 관정에서의 수리 영역 구분 ····· 367
이대형 · 지성훈 · 박경우 · 고용권 [한국원자력연구원], 여인욱 [전남대학교]

P0430 심지층 처분용기 전단시험모듈의 개발 ····· 369
이민수 · 최희주 · 최종원 [한국원자력연구원]

제5분과 방사선 안전 환경 및 기타 (ORAL)

좌장 : 황원태 · 연제원

09:00 도시환경에서 방사능오염 표면의 중요도 분석 ····· 373
황원태 · 정효준 · 김은한 · 한문희 · 김인규 [한국원자력연구원]

09:20 사용후핵연료 수송방안분석 프로그램 DB설계 ····· 375
이상헌 · 이수홍 · 한병섭 [㈜에네시스], 성기열 · 윤정현 [한국방사성폐기물관리공단]

09:40 방사성 물질로 인한 상수 오염 유효선량평가 ····· 377
정효준 · 황원태 · 김은한 · 한문희 [한국원자력연구원]

10:00 핵연료 크러드 현장분석 기술개발을 위한 Ni-Cr-Fe 혼합산화물 제조 및 화학 특성 분석 ····· 379
정상혁 · 연제원 · 정의창 · 윤명희 · 송규석 [한국원자력연구원], 강용 [충남대학교]

10:40 아스팔트 표면에서의 공간감마선량률 이상치 측정 및 인공핵종 검출 ····· 381
정진욱 · 국성도 · 임준 · 김우곤 [경주시월성원전 · 방폐장환경감시센터]

11:00 True Flow Velocity Identification in Sampling Airborne Radioactive Materials from the Stacks and Ducts of Nuclear Facilities ····· 383
Sunhaeng Kang and Charnyoun Park [KFTL]

11:20 B(U)형 동위원소 전용운반용기 설계 ····· 385
임성규 · 강한묵 · 장용준 · 김동현 · 안창석 · 장동철 [한일원자력㈜]

11:40 방사능재난시 지방자치단체 방재계획 수립에 관한 연구 ····· 387
김광철 · 김승평 · 나만균 · 염유선 · 염정민 [조선대학교]

제5분과 방사선 안전 환경 및 기타 (POSTER)

P0501 삼중수소 붕괴열에 의한 열량계 내 열전달 전산해석 ····· 391
송규민 · 고병욱 · 이계우 · 손순환 [한전전력연구원]
장민호 · 윤세훈 · 강현구 · 조승연 · 정기정 [국가핵융합연구소], 정홍석 [한국원자력연구원]

P0502 이온전리함을 이용한 저준위감마선조사장치 최고측정능력(BMC) 산출 ····· 393
서장수 [한수원㈜원자력교육원], 하석호 [한국표준과학연구원]
원유호 [한수원㈜원자력발전기술원]

P0503 우선순위(PI) 기법을 활용한 방사성물질 누설 가능성 평가····· 395
양양희 · 손순환 · 이갑복 · 손욱 [한전전력연구원]

P0504 고리원전 주변 해양확산 특성 연구 ····· 397
이갑복 · 양양희 [한전전력연구원]

P0505 지중동물의 방사성동위원소 전이계수 측정····· 399
전인 · 임광묵 · 최용호 · 금동권 · 박두원 [한국원자력연구원]

P0506 금속환원법과 전해정련법을 이용한 Zircon원광으로부터 원자로급 Zr 제조 기술··· 401
박경태, Li Hui, Nersysan. H. Hayk, 이종헌 [충남대학교]

P0507 열중성자/감마선 동시측정을 위한 일체형 광섬유 방사선 센서에 대한 연구 ····· 403
한기택 · 장경원 · 유욱재 · 서정기 · 문진수 · 이봉수 [건국대학교], 문주현 [동국대학교]
김신 [제주대학교], 박병기 [순천향대학교]

P0508 울진부지 액 · 기체 방사성폐기물 배출량 평가 ····· 405
손중권 · 김민철 · 강기두 [한수원㈜원자력발전기술원]

P0509 저준위 감마선조사장치 조사시간 오차 감소방안 ····· 407
원유호 · 조문형 · 고종현 [한수원㈜원자력발전기술원]

P0510 VISTA-ITL을 이용한 정지냉각계통(RCS) 흡입관 파단모의 시험····· 409
민병연 · 박현식 · 신용철 · 최남현 · 이성재 [한국원자력연구원]

P0511 저선량 측정시 GM tube의 상대오차 및 분산계수 평가····· 411
조문형 · 원유호 · 맹성준 [한수원㈜원자력발전기술원]

P0512 지리정보시스템을 활용한 사용후핵연료 운반경로분석····· 413
김민경 · 이수홍 · 한병섭 [㈜에네시스], 이석규 · 노영화 [지오스캔]

P0513 고기능성 PVA 방호용품의 특징 및 원전 적용성 ····· 415
홍성준 · 강덕원 · 이봉도 · 김효철 · 김명호 · 배홍익 [하나검사기술㈜]

P0514 PVA 재질을 이용한 방사선작업자용 덧대기 방호용품의 활용성 향상 ····· 417
강덕원 · 이봉도 · 홍성준 · 김효철 [하나검사기술㈜]

P0515 FTL 및 하나로 배수조의 액체 방사성폐기물 핵종 분석 ····· 419
최호영 · 이문 · 한재삼 · 조성환 · 김민수 · 허순옥 · 안국훈 [한국원자력연구원]

P0516 방사성동위원소 생산에 따른 발생 폐기물 관리방안 ····· 421
심호섭 · 김완태 · 구본철 · 김우란 [한국원자력안전기술원]

P0517 물리적방호에서의 핵심구역파악 예비분석 ····· 423
최영 · 김길유 · 정우식 · 박희성 · 신희성 · 김호동 [한국원자력연구원]

제1분과

사용후핵연료 수송저장 및 정책 (Oral)

빈 면

사용후핵연료-운송/저장 시스템 연동 응답 및 건전성 평가 체계에 관한 연구

이성기, 남윤석, 김순기, 최기성, 조창석
한전원자력연료, 대전광역시 유성구 대덕대로 1047
skilee@knfc.co.kr

1. 서론

국내 사용후핵연료 처리와 관련해서는 정부 정책이 현재 유보 상태이지만 사용후핵연료 중간저장이 여러 처리 옵션과 결부되어 유력한 시나리오로 논의되고 있다. 따라서 중간 저장과 관련하여 일반적이고 공통 핵심 요소 기술 개발에 대한 연구가 요구되고 있으며, 이 중 하나가 사용후핵연료 건전성 평가 기술이다. 그러나 현재까지 사용후핵연료 건전성 자체에 대한 심도 있고 체계적인 연구수행 사례가 국내에는 없었으며, 이에 대한 기술개발이 시급한 실정에 있다.

따라서 본 연구에서는 사용후핵연료 구조 건전성 평가관련 해외 방법론 등을 분석하여 이 분야 연구의 수행 당위성 및 근거 등을 파악하고, 아울러 국내 장전된 사용후핵연료에 설계 및 연소 특성에 관한 고찰을 통하여 장기 건식저장 측면에서 사용후핵연료 구조 건전성 평가 수행체계를 제안하고자 한다.

2. 본론

2.1 사용후핵연료 구조건전성 국외 평가 체계

해외 여러 유수의 사용후핵연료 저장 및 운송 시스템 관련 사업자 및 국책 연구기관들은 고유 건전성 평가 체계를 구축, 사용후핵연료 건전성 및 용기 최적 설계에 활용하고 있다. 여기서 평가의 수행 근거로 수송 규제 요건(10CFR71)에서는 정상운전조건에서 사용후핵연료 건전성이, 저장 규제 요건(10CFR72)에서는 저장후 회수성이 반드시 보장되어야 한다는 것이다. 이외 여러 세부 요건에서는 사용후핵연료 구조 건전성을 직간접적으로 요구한 것을 평가의 수행 근거로 삼고 있다.

먼저 미전력연구원에서는 통상 한 용기에 여러 종류의 사용후핵연료가 수용됨을 고려하여, 시간과 비용 저감 차원에서 대표핵연료선정을 위한 여러 가지 구조 응답 특성 평가를 수행한다. 그리고 최종 선정된 대표 사용후핵연료와 캐스크 시스템에 대한 상세 모델링을 통하여 상호 응답 특성을 파악하고, 최종적으로 피복관 건정성 여부를 평가한다. 특히, 정상 및 가상 조건 아래 캐스크 및 이 내부구조물과 사용후핵연료와 상호작용 등을 고려하여 연계 평가의 중요성을 강조하고 있다. 또한 사용후핵연료가 원자로에서 조사 등 여러 가지 운전 이력을 겪으면서 발생한 재질 특성의 열화와 연료봉 및 핵연료 구조 변형 (휨 및 비틀림)과 같은 사용후연료 초기조건도 반영하여 보수적인 평가를 내놓고 있다. 최종적으로 연료봉 건전성이 유지되는 임계 낙하 높이를 산출하여 캐스크 시스템 자체의 성능평가를 수행하고 있다.

한편 미 샌디아 국립연구소에서는 앞서 언급한 방법론과 유사한 평가 방법론을 사용 있는데, 먼저 사용후핵연료-캐스크, 연료봉에 상세 모델링을 통하여 결정론적으로 피복관 응력을 평가하고, 아울러 이 응력대비 연료봉 손상 기준을 통계 처리하여 확률론적 방법으로 건전성평가를 수행하고 있다. 특히, 손상 연료 수용성 등을 포함하여 평가를 수행한 것이 특징이다. 미국 인허가 규제기관인 NRC 경우도 사업자들이 신청한 인허가 내용에 대한 검증 및 기술적 배경 제공 차원에서 최근 이슈화 되고 있는 고연소연도 사용후핵연료에 대한 운송중 낙하조건에서 구조건전성 및 연료봉 응답 거동을 평가하였다. 그림 1에서 보듯이 사용후핵연료 재료 및 구조 특성 등을 고려한 세부적인 모사를 통하여 최종 연료봉 건전성을 평가하였다[1].

2.2 사용후핵연료-캐스크 연동 응답 메카니즘

통상 사용후핵연료는 운송 또는 저장 캐스크 내에서 체류 기간 동안 여러 정상 및 가상 사고 환경에 놓이게 된다. 이 중 대표 항목 중 하나가 운송용기 낙하이며, 캐스크-사용후핵연료 응답 거동을 설명하기 위해서 강성도가 다른 스프링(가변 스프링 피치)을 이용하여 개념적으로 그림 2와 같

이 나타내었다. 여러 낙하 모드(횡방향, 축방향, 경사방향)에서 최초 충격 전달부분은 충격 완충기 영역이며, 이 부분이 완전 붕괴시 스폰지 현상에 의해 강성이 급격히 증가하여 캐스크와 내부구조물(캐니스터)로 충격력이 순차적으로 전달된다. 이 때 캐스크와 내부구조물은 자체 강성이 커서 강체 거동을 하며, 변형이 있더라도 미량이다. 한편 사용후핵연료는 캐스크 내부와 약 1 cm 정도의 간극을 유지하고 있는데, 내부구조물 변형에 의한 형상 간섭 영향과 충격 응답으로 인한 반작용 거동으로 인해 내부 구조물과 2차, 3차 충격모드가 형성 된다. 모드별 다소 차이가 있겠지만, 하중 경로는 사용후핵연료 최외곽에 위치하고 있는 지지격자로 전달되어 지지격자 스프링 및 연료봉과 비선형 상호작용 결과 또는 지지격자에 의해 지지되지 않는 부분에 대한 굽힘 변형량 등에 따라 피복관 건전성 유지여부가 결정된다. 이러한 시스템 구조 응답시 사용후핵연료 변형(휨, 뒤틀림 등), 재료열화 등이 반영됨으로서 평가 결과의 보수성을 보장 하면서, 정밀한 응답 결과를 얻을 수 있다.

2.3 캐스크-연료 연계 건전성평가 체계 수립

현재 국내 운전중인 17개 경수로 원전에는 그동안 다양한 설계특성을 갖는 사용후핵연료가 장전되어 왔으며, 동일 사용후핵연료라도 운전이력 및 적용된 재료 특성에 따라 그림3에서 보는 여러 구조변형 인자로 인해 다양한 물리적 상태를 유지하고 있다. 따라서 국내 역시 비용과 시간저감 차원에서 용기시스템 개발시 우선 대표 사용후핵연료를 선정하는 평가가 필요하며, 이 대표 사용후핵연료에 대한 세부평가를 통하여 건전성에 영향을 주는 캐스크 시스템의 중요 변수들에 대한 최적설계를 수행하여야 한다. 또한 피복관에 대한 열화특성 및 사용후핵연료 주요 구조부품인 지지격자, 골격체의 등에 조사후 특성을 확인하기 위해 시험 및 해석 방법론을 정립할 필요가 있다.

3. 결론

현재까지 국내에서는 사용후핵연료 건전성 평가 관련한 체계적 평가 기술이 없으며, 이에 해외 사례와 국내 사용후핵연료 특성 등을 고려하여 관련 평가 수행에 대한 정성적이고 개념적 체계를 제시하였다. 향후 이에 대한 기술개발 및 규제요건이 정립될 필요가 있다.

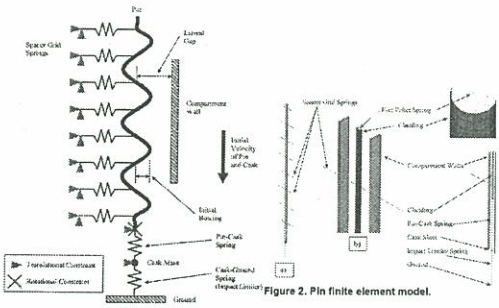


Fig. 1. Structural Integrity Modeling of SNF[2]

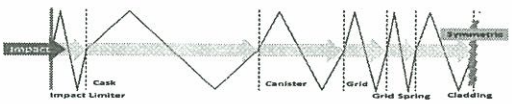


Fig. 2. Response Concept of Cask-SNF

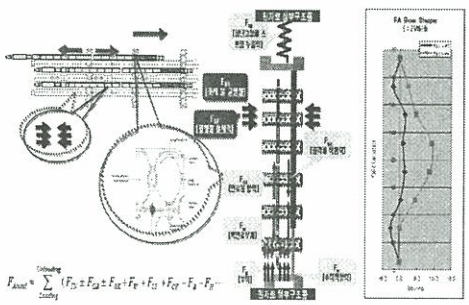


Fig. 3. Free Body Diagram of Fuel Behavior

4. 감사의 글

본 연구는 지식경제부 방폐물관리기술개발 사업비 후원으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

5. 참고문헌

[1] S. K. Lee et al, "건식저장의 사용후핵연료 구조변형평가", KAERI/CM-1399/2010, KEPCO NF, 2011.

[2] D. T. Tang et al, "High Burn-up SNF Structural Response When Subjected to a Hypothetical Impact Accident", PATRAM 2004.

사용후핵연료 저장조 저장용량 증가에 대한 열수력 평가

정성환, 김민철, 최종락
한국수력원자력(주) 원자력발전기술원, 대전시 유성구 장동 25-1
shchung@khnp.co.kr

1. 서론

원전의 사용후핵연료 저장용량을 확충하기 위하여 기존 사용후핵연료 습식저장조에 조밀저장대를 추가 설치하는 경우에 대하여 국내외 관련규정의 기술기준에 따라 열수력 해석을 수행하여 건전성을 평가하였다. 여기서는 영광5,6호기 및 울진5,6호기 사용후핵연료 저장조의 조밀저장대 758셀을 추가 설치하는 것에 대하여 고찰하였다.

2. 본론

2.1 사용후핵연료 저장조 현황

영광5,6호기 및 울진5,6호기의 사용후핵연료 저장조는 모든 호기가 동일하게 영역-I 250셀 및 영역-II 450셀의 저장대가 설치되어 총 700셀의 저장용량을 구비하고 있으며, 영역-II 저장대는 중성자흡수재를 사용한 조밀저장대이다. 또한, 영역-II에 474셀의 조밀저장대를 추가 설치할 수 있도록 인허가를 받았다(Fig. 1 참조).

사용후핵연료 관리에 대한 정책지연에 대비하여 원전의 사용후핵연료 저장용량을 확충하여야만 하므로 영광5,6호기 및 울진5,6호기 저장조의 저장용량을 최대한 확장하고자 저장조 공간을 최대한 활용하고 기존저장대의 재배치를 통하여 초기 인허가 저장용량 474셀을 초과하여 총 758셀을 추가 설치한다.(Fig. 2 참조)

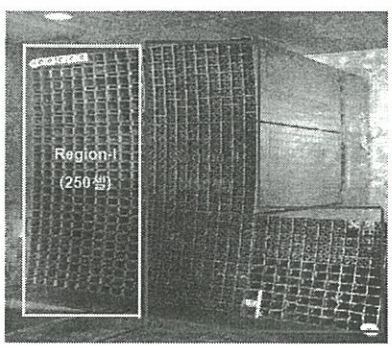
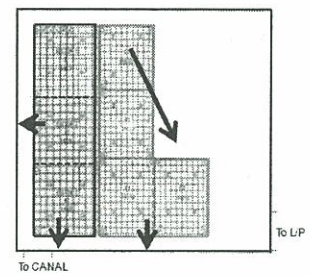
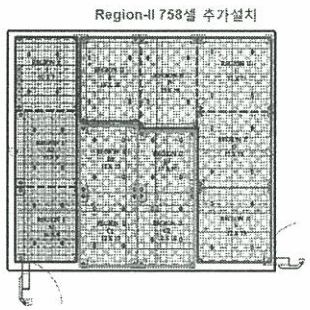


Fig. 1. Existing spent nuclear fuel racks



(a) existing racks



(b) new racks

Fig. 2. Arrangement of new spent nuclear fuel racks

2.2 기술기준

사용후핵연료 저장대 추가설치로 인하여 기존 저장조 냉각계통의 냉각성능에 대한 건전성을 재평가하여야 하는데, 미국 10 CFR 50 Appendix A의 General Design Criteria 61[1]에 따르면 예상되는 저장조의 운전 및 사고 조건에 대하여 잔열제거능력을 구비하고 사고 시 냉각수 감소를 방지하여야 한다고 규정하고 있다.

상세요건으로는 저장조의 포괄온도가 정상조건에 대하여 허용온도(영광5,6 60°C, 울진5,6 49°C) 이하, 재장전조건 및 비정상조건에 대하여 60°C 이하이어야 하며, 비상조건에 대하여 저장조 수면온도는 국부비등이 없어야 하고 냉각기능 상실 후 연료상부 3m 수위까지 도달시간을 평가하여야 한다. 또한, 저장조 국부온도는 포화온도 115°C이하, 연료의 피복재 온도는 허용치인 344°C 이하이어야 한다. 정상조건은 냉각계통 1개가 가동하고

저장연료와 1회 재장전노심, 재장전조건은 냉각계통 1개 가동 및 저장연료와 1회 전 노심, 비정상조건은 냉각계통 2개 가동 및 저장연료, 1회 재장전노심과 1회 전 노심을 고려하고, 비상조건은 냉각계통의 기능이 상실되고 저장연료, 1회 재장전노심 및 1회 전 노심을 고려한다.

2.3 열수력 전산해석

기술기준에 따른 각 조건에 대하여 상용전산해석프로그램인 FLUENT 코드 및 WINSTEAM 코드를 이용하여 저장조 포괄온도, 비등온도 도달시간, 저장조 국부온도 및 연료의 피복재 온도 등을 계산하였다.

저장수 포괄온도 및 비등온도 도달시간 해석에 대하여 배출되는 연료는 일시에 저장조로 이동하고, 저장연료와 이송되는 연료는 원자로에서 최대로 연소되며, 냉각계통 기능 상실은 저장조 냉각수가 최대온도일 때 발생하며, 저장조 주변온도는 40°C로 가정하였다. 저장조 국부온도 및 연료의 피복재 온도 계산은 저장대 상부의 개방구가 50% 막혀있고 배출연료는 붕괴열이 높은 것을 한 곳에 집중 배치하는 것으로 가정하였다.

2.4 해석결과 및 평가

정상, 재장전, 비정상 및 비상 조건을 기준으로 해석한 결과에 대하여(Fig. 3 참조) 저장조 냉각수의 최대포괄온도, 비등온도 도달시간, 연료상부 3m 수위 도달시간, 저장조 최대국부온도 및 연료의 최대피복재온도를 Table 1~Table 4에 각각 나타내었다.

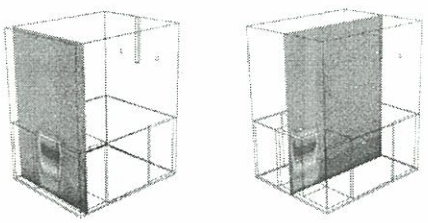


Fig. 3. Thermal hydraulic analysis

Table 1. Bulk temperature of the pool

구 분	최대포괄온도 (℃)	최대온도 도달시간(h)	허용온도(℃)	
정 상	47.9	159	영광	60
			울진	49
재장전	59.0	194	60	
비정상	51.6	484.5	60	

Table 2. Reaching time to boiling temperature

구 분	비등온도 도달시간(h)	연료상부 3m 도달시간(h)	냉각계통 복구시간(h)
정 상	8	59	8
재장전	3	32.5	8
비정상	2.5	22	8

Table 3. Local temperature of the pool

구 분	최대포괄온도 (℃)주	최대국부온도 (℃)	허용국부온도 (℃)
재장전	60	69	115
비정상	60	69	115
비 상	100	114	115

주) 보수적으로 계산치보다 높은 허용치 적용

Table 4. Fuel cladding temperature

구 분	최대국부온도 (℃)	최대피복재온도 (℃)	허용피복재온도 (℃)
재장전	69	80	344
비정상	69	81	344
비 상	114	127	344

사용후핵연료 저장조의 최대포괄온도는 각 조건에 대하여 영광5,6호기 및 울진5,6호기 각각의 허용온도 이하이므로 건전성을 유지하는 것으로 나타났다. 사용후핵연료 저장조의 냉각수가 증발하여 상부로부터 3m 수위에 도달하는 시간 이전에 저장조 냉각계통의 복구가 가능한 것으로 나타났다. 사용후핵연료 저장조의 최대국부온도 및 연료의 최대피복재온도 역시 각 조건에 대하여 허용치인 115°C와 344°C 이하로 관련 기술기준을 만족하여 저장조는 건전성을 유지하는 것으로 나타났다.

3. 결론

영광5,6호기 및 울진5,6호기의 사용후핵연료 저장조에 총 758셀의 신규 조밀저장대를 추가 설치하는 경우에 대하여 상용전산코드를 이용하여 열수력 해석을 수행하여 건전성을 평가하였는데, 조밀저장대를 추가 설치하여도 사용후핵연료 저장조는 관련규정의 기술기준을 모두 만족시키어 건전성을 충분히 유지하는 것으로 평가되었다.

4. 참고문헌

[1] US 10 CFR Part 50, Appendix A General Design Criteria for NPPs, 2010

중수로 사용후핵연료 운반용기의 개념설정 및 열안전성 평가

이주찬, 방경식, 서중석, 서기석, 김범인*, 최병일*
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
*한국방사성폐기물관리공단, 경북 경주시 북성로 89
sjclee@kaeri.re.kr

1. 서론

국내에서는 총 30만 다발 이상의 중수로 사용후핵연료가 월성원전의 습식저장조 및 건식저장시설에서 임시저장 관리되고 있다. 월성원전에서는 습식저장조에서 건식저장시설까지 사용후핵연료의 소내운반을 위하여 HI-STAR 63[1] 운반용기를 개발하여 사용하고 있다. HI-STAR 63 운반용기는 60다발의 연료를 장전하는 바스켓 2개를 운반할 수 있다. 따라서 중수로 사용후핵연료를 중간저장시설 또는 처분시설로 운반하기 위하여 안전성 및 운반 효율성을 갖는 대용량 운반용기의 개발이 필요하다. 본 연구에서는 5개의 바스켓(300다발)을 운반할 수 있는 대용량 중수로 사용후핵연료 운반용기의 개념설정 및 열전달 안전성을 평가하였다.

2. 본론

2.1 운반용기의 개념설정

운반용기의 기준연료는 기존의 HI-STAR 63 운반용기와 월성원전의 건식저장시설 설계에서 적용된 연료와 같은 연소도 7,800 MWd/tU, 냉각기간 6년으로 설정하였다.

그림 1은 운반용기의 개념도를 보여주고 있다. 운반용기는 원통형 구조를 가지며, 5개의 연료 바스켓이 장전되는 운반용기 본체와 상하부의 충격완충체로 구성된다. 바스켓에는 중심부로부터 원주방향으로 6, 12, 18, 24개씩의 중수로 연료다발을 배열하여 1개의 바스켓에는 총 60개의 연료다발이 장전된다. 따라서 5단 바스켓 운반용기의 용량은 중수로 사용후핵연료 300다발이다.

운반용기 본체와 밀봉덮개 사이에는 2개의 O-Ring을 장착하여 밀봉을 유지한다. O-ring은 Fluoro-carbon rubber 계열의 viton O-ring으로서 사용온도 범위는 -40 ~ 250 ℃이다. 운반용기의 본체는 탄소강이고, 운반용기의 상하부에는 충격완충체가 설치된다. 충격완충체는 스테인리스강 케이싱 내부에 발사우드를 채워 넣는 구조이다. 충격완충체는 낙하사고조건에서 충격흡수를 하며, 화재사고조건에서 운반용기의 상하 방향으로 단열 기능을 한다.

바스켓은 직경이 1,067 mm, 높이가 557 mm이며, 운반용기의 내부 치수는 5단 바스켓의 적재공간을 고려하여 직경 1,090 mm, 높이 2,800 mm로 설계하였다. 운반용기의 차폐체는 두께 230 mm의 탄소강이다. 60다발의 연료를 포함한 바스켓 1개의 중량은 1,950 kg이므로 5단의 바스켓의 중량은 9,750 kg이고, 충격완충체를 포함한 운반용기의 총 중량은 42.9톤이다.

2.2 열전달해석 조건 및 방법

중수로 사용후핵연료 운반용기는 B형 운반물로 구분되며, 국내·외 운반용기 관련 법규[2, 3]에서 규정하고 있는 정상운반조건 및 운반사고조건에서 안전성이 유지되어야 한다. 정상운반조건은 대기온도 38 ℃, 최대 붕괴열 및 최대 일사량을 고려하였고 운반사고조건은 대기온도 38 ℃의 정상조건 하에서 800 ℃ 화재가 30분 동안 진행된 후 자연 냉각조건이다.

운반용기의 형상은 원통형 구조이며, 열해석 모델은 그림 2와 같이 2차원 축대칭 모델을 사용하였다. 사용후핵연료 1다발의 붕괴열은 6.3 W이며, 총 붕괴열은 1,890 W로 고려하였다. 운반용기 내부의 핵연료 바스켓에는 60개의 연료다발이 일정한 간격으로 배열되며, 연료 다발을 전체를 3차원 모델링은 전산용량의 한계로 인하여 거의 불가능하다. 따라서 바스켓 내부의 모델링은 균질화 모델과 유효열전도도를 고려하여 2차원으로 모델링하였다.

중수로 사용후핵연료 운반용기 내부로부터 발생된 열은 내부 공간의 공기에 의한 대류 및 복사, 용기 본체를 통한 열전도, 용기 표면에서의 대류 및 복사열전달을 통하여 외부로 전달된다. 열해석을 위한 전산 프로그램은 범용 열 유동해석 코드인 FLUENT 코드를 사용하였다.

2.3 열전달해석 결과

표 1은 정상운반 및 화재사고조건에 대한 열해석 결과를 보여주며, 그림 3은 과도시간에 따른 운반용기의 온도분포를 나타난다. 일사량을 고려하지 않은 경우 운반용기의 표면온도는 법규에서 규정하는 허용온도인 85 ℃보다 낮은 67 ℃로 나타났다.

핵연료의 온도는 800 ℃, 30분 화재 이후에도 온도가 상승하지 않고 초기온도와 같은 193 ℃를 유지하였다. 바스켓의 온도는 정상조건에서 158 ℃, 화재사고조건에서 최대 175 ℃까지 상승하지만 ASME Sec.III의 제한치인 427 ℃보다 훨씬 낮게 나타났다. 용기 본체의 온도는 화재사고조건에서 최대 518 ℃까지 상승하지만 이온도는 외부표면에서의 온도이고 격납경계를 이루는 용기본체 내벽의 온도는 최대 215 ℃로 계산되어 ASME Sec..III에서 제한하는 허용치인 371 ℃보다 낮다. 중수로 사용후핵연료 운반용기의 격납경계를 이루는 O-ring의 온도는 최대 130 ℃까지 상승하지만 Viton O-ring의 허용온도가 250 ℃이므로 운반용기의 격납 건전성이 충분될 것이다.

3. 결론

본 연구에서는 5개의 바스켓을 운반할 수 있는 중수로 사용후핵연료 운반용의 개념설정 및 열안전성을 평가하였다. 열 안전성 평가 결과 정상운반 및 운반사고에서 열적 건전성이 충분히 되는 것으로 나타났다. 본 연구 결과는 향후 중수로 사용후핵연료의 중간저장 또는 처분용 운반용기의 설계 및 인허가를 위한 기본 자료로 활용될 수 있을 것이다.

4. 감사의 글

본 논문은 한국방사성폐기물관리공단의 위탁과제로 수행된 연구결과입니다.

5. 참고문헌

[1] Holtec Int., "Safety Analysis Report on the Hi-Star 63 Package", Holtec Report No. HI-2073777, 2009.

[2] 교육과학기술부 고시 제 2009-37호, "방사성물질 등의 포장 및 운반에 관한 규정", 2009.

[3] IAEA Safety Standard Series No. TS-R-1, "Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material", 2005.

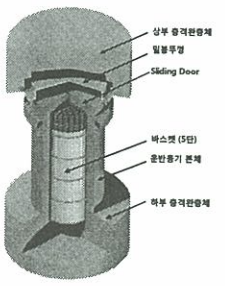


Fig. 1. Transport cask

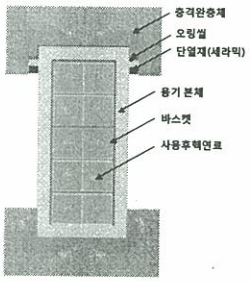
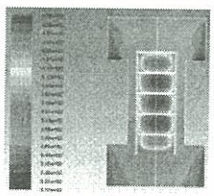
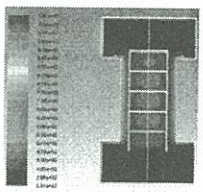


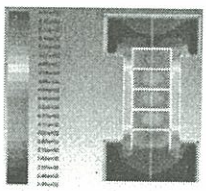
Fig. 2. Analysis Model



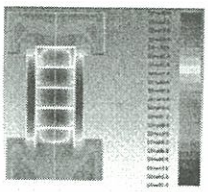
(a) Time = 0.5 h



(b) Time =1.0 h



(c) Time = 2.0 h



(d) Time = 4.0 h

Fig. 3. Temperature contours for fire condition

Table 1. Thermal analysis results for normal and fire accident conditions

Location	Calculated temperatures (℃)							
	Normal	Fire phase		Post fire (t>0.5 h)				Max.
		0.25	0.5	1.0	2.0	4.0	6.0	
Fuel bundle	193	193	193	193	193	193	193	193
Fuel basket	158	158	158	158	173	175	170	175
O-ring seal	82	83	91	113	125	128	130	130
Cask body(inside)	90	108	164	215	209	192	177	215
Cask body	93	408	518	231	209	192	177	518
Cask surface	91	799	799	230	206	189	174	799

Kerosene과 Jet 연료를 사용한 화염온도 평가

방경식, 이주찬, 김기영, 서중석, 서기석, 김형진*, 윤정현*
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
*한국방사성폐기물관리공단, 대전시 유성구 대덕대로 1045
nksbang@kaeri.re.kr

1. 서론

Baltimore의 Howard Street railroad tunnel에서 2001년 7월 18일 발생한 화재사고 이후 미국의 NRC 주관으로 CNWRA 및 PNNL에서 TN-68 · HI-STAR 100 · LWT Cask를 대상으로 과도화재에 대한 평가를 수행하였으며, 2001년 9월 11일 발생한 항공기 테러 이후 Nevada 대학의 Greiner 및 SNL의 Lopez 등은 Jet 연료를 사용한 화재사고에 대한 연구들을 활발히 수행하고 있다. 본 논문에서는 차량의 충돌에 따른 Kerosene 누출에 따른 화재와 항공기 충돌에 따른 Jet 연료의 누출에 따른 격실 화재에서의 화염온도를 평가하기 위해 격실조건에서 화원으로 Kerosene과 Jet-A-1을 사용하여 열 시험을 수행하였다.

2. 열 시험

2.1 시험시설

열 시험을 수행하기 위한 시험시설은 10 cm 두께의 경량 콘크리트를 사용하여 4 m(W) × 4 m(L) × 4 m(H) 크기의 격실로 제작되었으며, 격실의 정면과 후면에 40 cm(H) × 70 cm(W) ~ 50 cm(H) × 80 cm(W) 로 크기를 조절할 수 있도록 개구부를 제작하였으며, 지붕에는 굴뚝의 효과를 나타내기 위해 30 cm 직경의 구멍을 내었으며, 격실 내의 화염온도를 측정하기 위해 ungrounded, inconnel-sheathed, K-type 열전대를 격실 내부의 바닥으로부터 80 cm, 200 cm 및 320 cm 높이에 각 21개씩 총 63개를 설치하였다.

2.2 열 시험

격실에서 발생하는 열전달현상은 상층부는 화원으로부터 질량과 에너지를 공급받아 인접한 벽면으로 전도와 복사에 의해, 격실 하층부로는 복사에 의해, 그리고 개구부로는 대류에 의해 에너지를 전달하게 된다.

열 시험에 사용한 화원은 Kerosene과 일반 항공기에 사용하는 Jet-A-1 두 종류를 적용하여 각각 시험조건을 바꾸며 3번씩 시험을 수행하였다.

Test-1은 격실에 Kerosene 350 ℓ를 채우고 개구부의 크기를 50 cm(H) × 80 cm(W)로 적용하여 수행되었다. 이 연료량은 4 m × 3.5 m 크기의 pool에서 화재시험을 수행할 시 10분간 연소할 수 있는 량으로 격실화재 시 약 20분 정도 연소할 것을 기대하였으나 상부 평균 약 561 °C의 온도가 약 2시간 정도 지속되었다. Test-2에서는 화염온도를 좀 더 높이기 위해 개구부의 크기는 50 cm(H) × 80 cm(W)를 적용하고 격실의 지붕에 굴뚝 효과를 내기 위해 설계한 30 cm 직경의 홀을 열고 Kerosene 50 ℓ를 격실에 채운 후 수행되었다. 시험결과 성염시간은 약 15분 지속되었으며, 상부에서 화염 평균온도는 약 675 °C로 측정되었다. Test-3은 개구부의 크기는 40 cm(H) × 70 cm(W)를 적용하고 격실 지붕의 30 cm 직경의 홀을 열고 격실에 Kerosene 50 ℓ를 채운 후 수행되었다. 시험결과 성염시간은 약 24분 지속되었으며, 상부에서 화염 평균온도는 약 611 °C로 측정되었다.

Test-4는 Jet-A-1 50 ℓ를 격실에 채우고 개구부의 크기를 50 cm(H) × 80 cm(W)로 적용하여 수행되었다. 시험결과 성염시간은 약 15분 지속되었으며, 상부에서 화염 평균온도는 약 618 °C로 측정되었다. Test-5는 50 cm(H) × 80 cm(W)를 적용하고 격실의 지붕의 30 cm 직경의 홀을 열고 Jet-A-1 50 ℓ를 격실에 채운 후 수행되었다. 시험결과 성염시간은 약 12분 지속되었으며, 상부에서 화염 평균온도는 약 692 °C로 측정되었다. Test-6는 개구부의 크기는 40 cm(H) × 70 cm(W)를 적용하고 격실 지붕의 30 cm 직경의 홀을 열고 격실에 Jet-A-1 50 ℓ를 채운 후 수행되었다. 시험결과 성염시간은 약 17분 지속되었으며, 상부에서 화염 평균온도는 약 646 °C로 측정되었다.

2.3 열 방출속도 및 연료 소모량

격실 화재에서 화염의 온도에 영향을 미치는

중요한 요소는 열 방출속도이다. 격실에서의 화재 시 열 방출속도는 유효 연소열을 사용하여 아래의 식으로부터 계산할 수 있다.

$$\dot{Q} = \dot{m} \triangle H_c = k_0 A_0 \sqrt{H_0} \triangle H_c$$

여기서, $\dot{Q}$는 열 방출속도(kW), 는 질량 연소유속(kg/m^2 · s), k_0는 유효 연소율$\dot{m}$ 상수(kg/s · m$^{5/2}$), A_0는 연료 표면적(m^2), H_0는 개구부 높이(m)이며, $\triangle H_c$: 유효 연소열(3,000 kJ/kg)이다.

표 2는 화원으로 Kerosene과 Jet-A-1을 사용했을 때 계산된 열 방출속도와 그에 따른 연료 소모량을 보여주고 있다. 여기에서, Kerosene의 유효 연소열은 43,200 kJ/kg을 적용하였고[1], Jet-A-1의 유효 연소열은 한재섭의 논문[2]에서 (주) SK로부터 ASTM 방법에 따라 수행한 품질검증 결과에서 산출된 43,333 kJ/kg을 적용하였다. 일반 연료의 유효 연소율 상수는 0.5 ~ 0.8 kg/s · m$^{5/2}$ 정도를 나타내고 있으며, Kerosene의 유효 연소율 상수는 0.7 kg/s · m$^{5/2}$을 적용하였다. 한재섭의 논문에서 Jet-A-1은 단일 연료액적의 연소와 관련 액적크기와 상관없이 일정한 유효 연소율 상수는 0.915 kg/s · m$^{5/2}$을 유지하였다고 하였다. 따라서, Jet-A-1의 유효 연소율 상수는 0.915 kg/s · m$^{5/2}$을 적용하였다.

표 2에서 보면 연료 소모율이 Kerosene보다 Jet-A-1이 큼을 알 수 있다. 따라서, Jet-A-1의 연소 시간이 Kerosene보다 짧았으며, 그에 따라 Jer-A-1에서의 화염온도가 높게 측정되었음을 알 수 있다. 개구부의 크기에 따른 연료 소모율은 개구부의 크기가 클 경우 작은 경우보다 큼을 알 수 있다. 따라서, 역시 개구부의 크기가 클 경우 화염온도가 높게 측정되었음을 알 수 있다.

격실에서의 화재시험에서 연료는 50 ℓ를 사용하였다. 그러나, 표 2에서 보면 연료 소모량은 약 40 ℓ 정도였다. 이것은 성염 상태에서 소모된 량으로 화재 성장기와 쇠퇴기의 연료 소모량을 계산하면 비슷하게 소모되었을 것으로 판단된다.

격실화재 시험결과 화염의 성염온도는 점진적으로 증가하는 것으로 나타났다. NUREG-1805[3]에 따르면, 격실화재에서 화염의 온도는 8시간에 이를 때까지 점진적으로 증가하여 화염의 온도가 1,260 °C에 도달한다고 나타내고 있다.

3. 결 론

i) Kerosene보다 Jet-A-1의 연료 소모율이 크게 나타났다. 따라서, Jet-A-1의 연소 시간이 Kerosene보다 짧았으며, 그에 따라 Jet-A-1에서의 화염온도가 높게 측정되었다.

ii) 연료 소모율은 개구부의 크기가 클 경우 작은 경우보다 크게 나타났다. 따라서, 개구부의 크기가 클 경우 화염온도가 높게 측정되었다.

iii) 격실에서 화재 시 화염의 성염온도는 점진적으로 증가하는 것으로 나타났다.

4. 참고문헌

[1] James G. Quintiere, Principles of fire behavior, Delmar Thomson Learning, 1998.

[2] 한재섭 외, 액적간격이 고정액적의 연소율상수에 미치는 영향에 관한 연구, 한국추진공학회지, Vol.6, pp 47~54, 2002.

[3] NUREG-1805, Fire Dynamics Tools, U.S. NRC Washington, DC, October 2004.

Table 1. 성염온도 및 유지시간

연료종류	개구부 (cm^2)	성염온도 (°C)	성염시간 (min.)	연료량 (litter)
Kerosene	80 × 50	561	120	350
	80×50+굴뚝	675	15	50
	70×40+굴뚝	611	24	50
Jet A-1	80 × 50	618	16	50
	80×50+굴뚝	692	12	50
	70×40+굴뚝	646	17	50

Table 2. 열 방출속도 및 연료 소모량

	Kerosene		Jet-A-1	
	Test-2	Test-3	Test-5	Test-6
열 방출속도(kJ/s)	1485	1040	1941	1360
질량 연소유속(kg/s)	0.495	0.347	0.647	0.453
연료 소모율(kg/s)	0.035	0.025	0.045	0.031
연소 시간(s)	930	1380	720	1020
소모량(Litter)	40.1	41.7	40.5	40.2

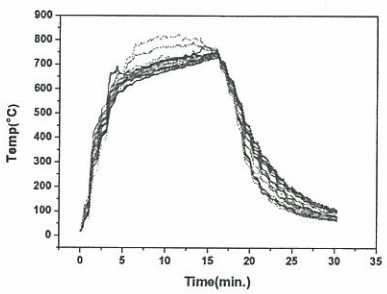


Fig. 1. Test-4의 상부 화염온도

후쿠시마 원전 4호기 사용후핵연료 저장조 및 핵연료 온도 예측

인왕기, 최종원, 구양현
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
wkin@kaeri.re.kr

1. 개요

가압경수로(PWR)와 비등경수로(BWR)의 핵연료는 원자로 정지후 부분교체 및 재장전을 위해 발전소 부지내 저장조에 보관된다. 사용후핵연료 저장수조는 원자력발전소 설계 특성에 따라 다르지만 공통적으로 격납용기 외부에 위치한다. Fig. 1은 일본 후쿠시마 원전 4호기와 유사한 BWR 원자로 건물의 단면을 보여주는 것으로 사용후핵연료 저장조는 격납용기 외부에 원자로보다 높은 곳에 설치되어 있다.

후쿠시마 원자로와 같은 BWR 사용후핵연료 저장조의 크기는 약 16000 m^3 (폭 12m, 길이 12m, 깊이 12m) 이다. 사용후핵연료에서 발생하는 붕괴열(Decay Heat)의 냉각 및 방사능 차폐를 위해 약 15000톤의 물이 저장조에 채워져 있다. 정상상태 조건에서 사용후핵연료 저장조의 수온은 40-50 ℃를 유지하고 있다. 그러나 외부 테러 공격이나 지진에 의해 저장조의 냉각수가 완전 상실된 경우 핵연료가 공기중에 노출되어 핵연료가 손상될 수 있다. 이는 핵연료 피복관의 온도가 높아지면(약 1800 ℃) 지르코늄 화재가 발생하기 때문이다. US NRC 보고서[1]에 따르면 지진으로 인해 BWR 사용후핵연료 저장조 화재가 발생할 확률은 원자로 수명동안 6.5×10^{-4} - 4×10^{-11} 으로 평가되었다.

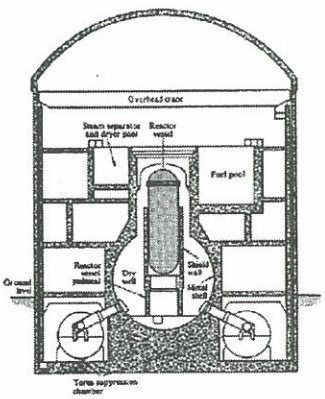


Fig. 1. Schematic view of a GE Mark I BWR plant

최근 후쿠시마 4호기 사용후핵연료 저장조의 핵연료가 일부 손상된 것으로 나타났다. 이는 2011년 3월 11일에 발생한 규모 8.0의 지진과 해일(Tsunami)로 인해 사용후핵연료 저장조의 냉각기능이 일부 상실되었기 때문인 것으로 예측된다.

본 연구에서는 후쿠시마 4호기 사용후핵연료 저장조의 냉각기능 상실사고시 저장조 내부 온도 및 핵연료 피복관 온도를 예측하였다.

2. 저장조 및 핵연료 온도 예측

2.1 저장조 온도예측

사용후핵연료 저장수조에 보관되어 있는 핵연료에서 발생하는 붕괴열은 핵연료와 냉각수 사이의 자연대류 열전달 및 수면에서 공기와의 열전달 과정을 통해 냉각된다. 즉, 저장조의 수온은 사용후핵연료에서 발생하는 붕괴열(Q_{decay})과 외부로 방출되는 열에너지(Q_{loss})의 평형 관계식을 사용하여 계산할 수 있다.

$$(Q_{decay} - Q_{loss})\triangle t = M_{water} C_{p,water} \triangle T_{water} \cdots\cdots (1)$$

여기서 M_{water} = 저장조 물의 질량
$C_{p,water}$ = 물의 정압비열
$\triangle T_{water}$ = 저장조 냉각수 온도 상승치

저장조의 냉각기능이 정상일 경우에는 저장조 내부에 추가로 축적되는 열에너지가 없으므로 저장조 냉각수의 온도는 일정하게 유지된다. 그러나 저장조의 냉각기능 상실사고시에는 외부로 방출되는 열에너지가 감소하므로 냉각수 온도는 올라간다. 만일 저장조 냉각기능이 20% 저하될 경우 후쿠시마 4호기의 저장조 수온은 시간당 약 0.2-0.3 ℃ 상승하여 약 10일 후에는 포화온도(100 ℃)에 도달하여 냉각수 증발이 시작된다.

사용후핵연료 저장조의 냉각기능이 완전 상실된 경우 저장조 수온은 포화온도까지 급속히 증가한다. 저장조 냉각수가 완전히 증발하는데 걸리

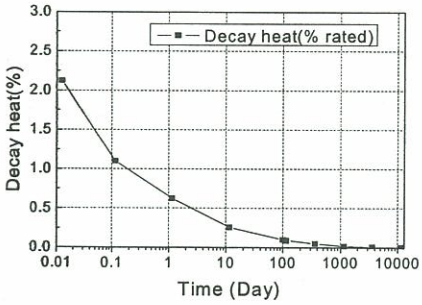


Fig. 2. Decay heat after reactor trip

는 시간은 다음과 같이 예측할 수 있다.

$$Q_{decay}\Delta t = M_{water}(C_{p,water}\Delta T_{water} + h_{fg}) \cdots\cdots (2)$$

여기서 h_{fg} = 냉각수 증발잠열

후쿠시마 4호기 저장조의 경우 원자로 정지후 약 100일이 지난 핵연료를 보관중이므로 붕괴열이 정격열출력(약 2300 MWt)의 0.1%이다(Fig. 2). 따라서 냉각수가 완전히 증발하기 까지는 약 18일이 소요될 것으로 예측된다.

2.2 사용후핵연료 피복관 온도 예측

저장조에 보관중인 사용후핵연료의 피복관과 냉각수 사이에는 자연대류 열전달이 발생한다. 따라서 피복관 온도를 예측하기 위해서는 다음과 같은 관계식을 이용한다.

$$q''_{decay} = h_{fc}(T_{wall} - T_{water}) \cdots\cdots (3)$$

여기서 h_{fc}는 자연대류 열전달 계수로 McAdams의 상관식[2]을 이용한다.

$$Nu_L = \frac{hL}{k_{water}} = 0.15 Ra_L^{0.333} \cdots\cdots (4)$$

Figure 3는 후쿠시마 4호기 사용후핵연료 저장조의 냉각성능이 감소된 경우 예측된 냉각수 온도 및 핵연료 피복관 온도 변화를 보여준다. 사용후핵연료 저장조 냉각능력이 저하되면 냉각수 온도가 상승하고 핵연료 피복관 온도도 함께 증가한다. 만일 저장조 냉각수 상실사고 또는 냉각수의 증발로 인해 핵연료가 공기에 노출되는 경우에는 공기온도가 시간당 약 50 ℃ 상승하여 2일

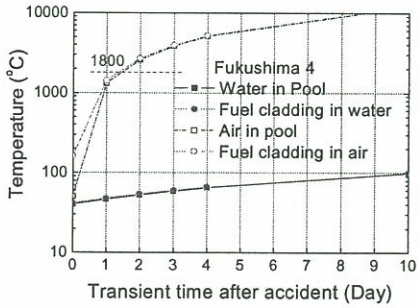


Fig. 3. Coolant and fuel cladding temperatures in spent-fuel pool

이내에 지르코늄 피복관 화재 발생이 가능한 온도(1800 ℃)까지 상승할 것으로 예상된다. 핵연료 피복관과 냉각수의 온도 차이는 크지 않은데 이는 붕괴열이 작기 때문이다.

3. 결론

일본 후쿠시마 원전 4호기 사용후핵연료 저장조의 냉각성능 상실사고시 냉각수 온도와 핵연료 피복관 온도를 예측하였다. 저장조 냉각성능이 20% 감소하면 저장조 수온은 약 10일 후에 포화온도까지 상승하여 냉각수 증발이 시작된다. 만일 저장조 냉각수 상실사고가 발생하여 사용후핵연료가 공기중에 노출되는 경우에는 1일 이내에 지르코늄 피복관 화재가 발생 가능한 온도까지 피복관 온도가 증가할 것으로 예상된다.

4. 감사의 글

본 연구는 원자력기술개발사업 및 방사성폐기물관리기술개발사업의 지원으로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

5. 참고문헌

[1] V. L. Sailor et al., Severe Accidents in Spent Fuel Pools in Support of Generic Safety Issue 82, NUREG/CR-4982, BNL, July 1987.

[2] W. H. McAdams, Heat Transmission, 3rd edition, New York, McGraw-Hill, 1954.

사용후핵연료 저장수조에서 사용후핵연료 피복관의 산화에 의한 수소 발생

박주영, 박광헌, 김소영
경희대학교, 경기도 용인시 기흥구 서천동 1
kpark@khu.ac.kr

1. 서론

2011년 3월 11일 일본 동북부 센다이 근방 해저에서 진도 9.0의 강한 지진이 일어나 최고 20m 높이의 쓰나미가 동북부 해안지방을 덮치게 되었다. 지진 발생 직전 후쿠시마 제 1 원자력 발전소의 총6호기의 원자로 중 1, 2, 3호기는 운전 중에 있었고 4, 5, 6 호기는 점검 등의 이유로 가동 중지되어 있었다. 지진발생 직후 자동적으로 1, 2, 3호기는 가동정지 되었다. 그러나 잠시 후 밀려온 수십 미터 높이의 쓰나미에 의해 응급전원을 제공하는 디젤발전기가 멈춰졌고 원자로 내 잔열 제거 시스템이 제 기능을 못하게 되었다. 또한 전력 차단은 4호기의 사용 후 핵연료 저장 수조의 냉각시스템을 정지시켜 사용 후 핵연료들이 더 이상 냉각되지 못하여 수조 안의 물이 비등하기 시작하였고 공기 중으로 노출된 사용 후 핵연료는 수증기와 반응하여 수소를 생성하였다. 결국 수소 폭발로 인해 원자로 건물 옥상 외벽이 파괴되는 결과를 가져오게 되었다.

본 연구에서는 후쿠시마 원전(BWR형태)의 사용 후 핵연료의 붕괴열로 부터 저장 수조의 수위변화에 따른 연료봉 표면 온도를 찾고 이 온도에서 피복관의 수증기와의 반응에 의해 얼마 만큼의 수소가 발생 할 수 있는가를 알아내어 사용 후 핵연료의 안전성을 분석하는 것을 목표로 하였다.

2. 본론

BWR 의 Burn up이 40000 MWD/MT(Full extended burn up)일 경우 노심 정지 후 5주 후에는 연료봉의 출력이 정지 직후의 0.3% 가량으로 줄어들게 되는데 그 값은 약 36770.W/Ton 이다.

A(t*)는 사용 후 핵연료 저장 수조의 물이 끓어 수위가 내려감에 따라 공기 중으로 노출되는 겉 표면의 넓이를 나타낸다. (r=0.615Cm, L=406Cm)

$$A(t^*) = 2\pi rL \times t^* \quad \cdots\cdots (1)$$

t*가 커짐에 따라 공기 중으로 노출되는 사용 후 핵 연료봉 겉 표면의 넓이는 증가한다.

$$t^* = \frac{t}{t_f} \quad \cdots\cdots (2)$$

t는 수조가 마르기 시작한 후 지나간 시간이며 t*는 무차원 수로서 0<t*<1 의 범위의 수를 갖는다.

$$t_f = \frac{L}{V} \quad \cdots\cdots (3)$$

t_f 는 사용 후 핵연료 수조의 물이 마르기 시작한 후 다 마르기 까지 걸리는 시간을 나타낸다.
(V : 사용 후 핵연료 저장고의 수위가 내려가는 속력)

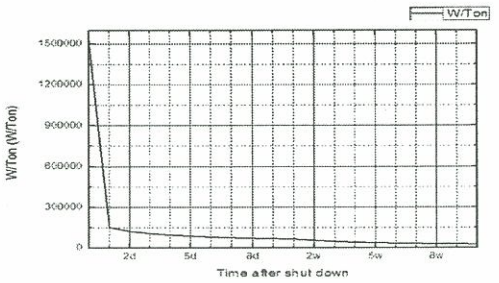


Fig. 1. Decayl heat after Shut-down for BWR nuclear fuel

노심 정지 5주 후의 Decay Heat으로 부터 도출되는 Heat source를 이용하여 Comsol 프로그램을 사용하면 복사열전달계수와 사용 후 핵연료 저장 수조의 수위에 따른 공기 중으로 노출된 사용 후 핵 연료봉의 온도는 다음과 같다.

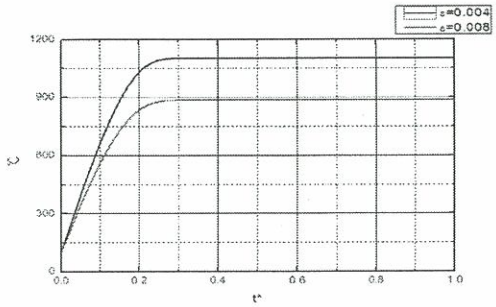


Fig. 2. Exposed fuel cladding Average Temp. change according to t*

물의 수위는 수조 안에 저장되어 있는 사용 후 핵연료의 높이를 10분할하여 측정 하였다. 프로그램 수행 결과 물과 접촉되어 있지 않은 부분의 온도는 높은 온도로 (ε=0.004 의 경우 1104℃, ε=0.008 의 경우 886℃) 일정하게 유지되고 있는 모습을 발견할 수 있었다.

δ_t^2 은 $(g/cm^2)^2/sec$ 로서 단위시간당 Zr cladding에 대한 단위면적당 O_2 소모량의 값을 (소모량의 제곱 : δ_t^2) 나타낸다.

$$\frac{\delta_t^2}{2} = 0.1811 \times e^{\frac{-39940}{1.98 \times T(K)}} \quad \cdots\cdots (4)$$

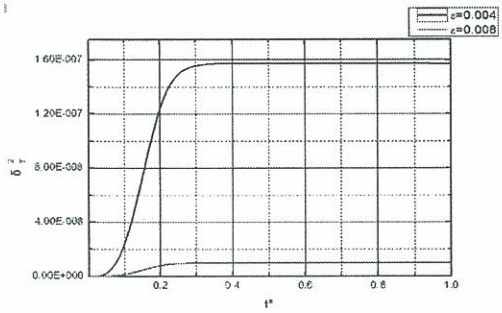


Fig. 3. δ_t^2 ($(g/cm^2)^2/sec$)according to t*

그러므로 이로부터 사용 후 핵 연료봉의 cladding과 결합하여 소모된 O_2 의 총합(총합의 제곱: M^2 (g^2)) 을 유도할 수 있는데 아래와 같은 수식으로 유도된다.

$$M^2[g^2] = \int A^2 \delta_t^2 \, dt \quad \cdots\cdots (5)$$

$dt = t_f dt^*$ 이므로

$$= (2\pi rL)^2 t_f \int \delta_t^2 (t^*)^2 dt^* \quad \cdots\cdots (6)$$

위 식의 결과는 t_f 를 어떤 값으로 하느냐에 따라 그 값이 변화하게 된다. O_2의 소모량을 알면 아래 화학식으로 H_2의 발생량을 계산 할 수 있다.

$$Zr + 2H_2O(g) \rightarrow ZrO_2 + 2H_2\uparrow \quad \cdots\cdots (7)$$

Zr은 고온상태에서 수증기와 만나게 되면 Zr이 산소 원자와 결합하여 Zr Oxide가 되며 수소 기체를 발생 시킨다. 이때 수소의 발생량을 계산해보면 저장되어 있는 사용 후 핵연료 하나당 아래와 같은 수소를 발생시킴을 알 수 있다.

$$H_2\ generated(L) = \sqrt{M^2} \times \frac{4g}{32g} \times \frac{22.4L}{2g} \quad \cdots\cdots (8)$$

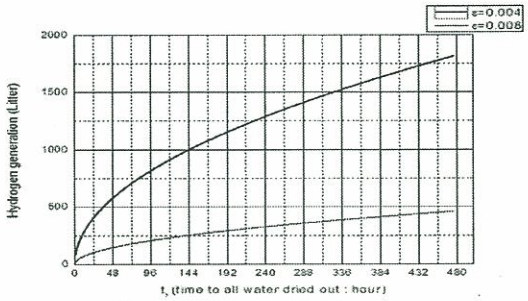


Fig. 4. Generation of Hydorgen (H^2/spent fuel rod)

3. 결론

BWR의 사용 후 핵연료는 아직 많은 양의 잔열을 방출할 수 있고, 이 열 에너지는 반드시 냉각 시스템에 의하여 냉각이 필요하다. 후쿠시마 제1원전 4호기에서와 같이 냉각이 안될 경우 물은 비등하여 핵연료 봉이 공기 중으로 드러나면서 수증기와 반응하게 된다. 노출된 사용 후 핵연료봉은 수증기/공기의 혼합기체와 반응할 정도로 높은 온도까지 올라가며 이로 인해 피복관의 주성분인 Zr은 공기 중의 수증기와 만나 산화되며 수소를 발생시킨다. 수면위로 노출된 핵연료는 복사열에 의한 열전도가 주된 냉각 형태로 보고, 수위에 따른 노출된 핵연료의 온도를 구하였다. 이 온도분포를 근거로 시간대별 수소발생량을 유추하였다. 수소가스는 복사열전달 계수(Geometry factor)가 작아 피복관의 온도가 높을수록, 그리고 수위가 천천히 내려갈수록 수소가스발생이 높고 이를 정량화하는 계산체계를 구축하였다.

4. 감사의 글

본 연구는 연구재단의 지원에 의해 수행되었습니다. (Grant code: 2010-0017505)

5. 참고문헌

[1] R.E. Pawel,*J.V. Cathcart,* and R.A.McKee. The kinetics of Oxidation of Zircaloy-4 in Steam at High Temperatures.

항공기 충돌조건을 고려한 직립용기의 고속충돌 해석 및 시험평가

이상훈, 방경식, 최우석, 김기영, 전재언, 서기석
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
shlee1222@kaeri.re.kr

1. 서론

원전을 비롯하여 유해한 물질을 다량 보유하고 있는 위험시설에 대한 항공기 충돌 안전성 평가의 필요성은 1960년대부터 인식되어 왔으나 9.11 테러사건 이후 항공기 운항 중에 발생하는 사고 외에 테러 목적의 항공기 납치에 의한 충돌의 위험성이 대두되면서 보다 엄격한 안전성 평가 및 설계 기준의 필요성이 제기되어 왔다. 미국, 독일, 일본 등 선진국들은 원전건물 뿐 아니라 사용후 핵연료의 수송/저장시스템에도 항공기 충돌에 대비한 설계기준을 적용하고 안전성을 해석적, 시험적으로 검증하는 노력을 지속적으로 해오고 있다.[1,2]

국내에서는 원전의 방호건물 등의 항공기충돌 안전성 평가를 해석적으로 수행해오고 있으나 이를 시험적으로 검증한 사례는 보고된 바 없다. 본 논문에서는 현재 방사성폐기물관리기술개발사업의 일환으로 개발 중인 금속수송저장겸용용기를 대상으로 하여 항공기 충돌에 대한 안전성 해석 평가를 수행하고 이를 시험적으로 검증한 연구결과에 관하여 기술하고자 한다. 금속수송저장겸용용기는 현재 개발 중인 모델이기 때문에 본 연구에서는 상기 시스템의 안전여부의 평가보다는 전산해석을 통한 안전성 평가체계를 구축하고 이를 시험적으로 검증하고자 하는 노력을 기울였다.

2장에서는 연구대상이 된 시스템 및 고려된 항공기충돌 시나리오에 대하여 기술하고 3장에서는 전산해석을 통한 평가결과를, 4장에서는 시험평가를 수행한 내용을 기술한다.

2. 대상 시스템 및 충돌조건

2.1 금속수송저장겸용용기

본 연구에서 고려한 시스템은 현재 (주)코네스코퍼레이션에서 개발 중인 금속수송저장겸용용기로서 사용후핵연료 바스켓이 장입된 후 용접으로 밀봉되는 캐니스터와 외부 캐스크로 구성되는 시스템이다. 해석 및 시험평가를 위하여 상기 시스템의 1/3 스케일 모델이 설계, 제작되었고 제작의 용이성을 위하여 사용후핵연료 바스켓 등 일부 설계는 아래 그림과 같이 단순화되었다.

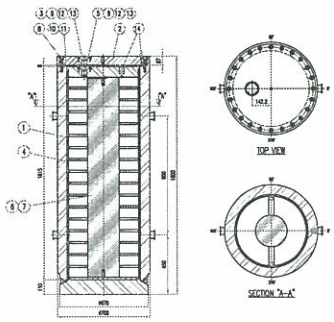


Fig. 1. 1/3 scale model of dual purpose metal cask

상기 모델의 캐스크 및 더미하중은 탄소강 재질이며 캐니스터는 스테인리스강으로 만들어진다. 모델의 총 무게는 3578 kg이다.

2.2 충돌조건 선정

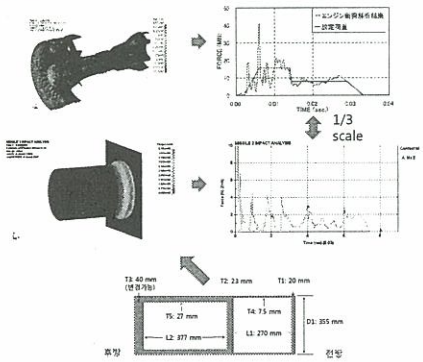


Fig. 2. Design of simplified missile

본 연구에서는 민항기 Boeing 747이 별도의 방호건물 없이 콘크리트패드 위에 직립해 있는 금속겸용용기의 상단을 직접 타격하는 충돌시나리오를 산정하였다. 충돌속도는 150 m/s[1]로 선정되었으며 항공기 구조에서 가장 강성이 큰 엔진이 직격하는 가혹한 조건을 선정하였다. Boeing 747의 엔진 GE CF6-80C2를 모사하기 우하여

CRIEPI에서 제시한 의 충돌하중 시간이력곡선[2] 및 상사성 이론을 바탕으로 유사한 충돌특성을 가지는 단순화된 발사체를 설계하였다. 이 발사체는 무게 167 kg, 직경 355 mm의 원통형 구조를 가지며 탄소강 재질로 만들어졌다.

3. 안전성 해석평가

안전성 해석평가는 2단계로 이루어졌다. 단순화된 유한요소모델을 사용하여 용기의 충돌 이후 거동을 평가하였고 상세 유한요소모델을 사용하여 충돌직후의 구조응답을 평가하였다. 초기해석결과 용기는 발사체와 충돌 이후 무게중심을 중심으로 회전을 하면서 후방으로 날아가는 거동이 예측되었다. 상세해석에서는 용기의 격납경계를 포함한 주요부위의 변형률과 용기뚜껑 상단에서의 가속도를 계산하였다. 해석에는 유한요소해석코드 LS-DYNA가 활용되었다. 고속충돌 시 재료의 변형률속도 의존성을 고려하기 위하여 각 재질에 대하여 수행한 동적재료물성시험 데이터가 활용되었다.

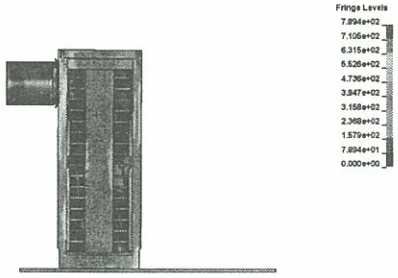


Fig. 3. Stress Contour (2.5 ms after impact)

4. 안전성 시험평가 및 해석검증

안전성 시험평가는 국방과학연구소 종합시험단에서 수행되었다. 발사체는 Counter Mass Gun을 활용하여 발사되었고 측정된 충돌속도는 148 m/s였다.



Fig. 4. Firing of Counte Mass Gun

그림 5와 같이 시뮬레이션에서 예측된 바와 같은 거동이 관측되었다. 각 계측지점에서의 가속도 및 변형률을 비교한 결과 역시 전산해석의 결과가 시험결과와 잘 일치하고 있음을 보이고 있다.

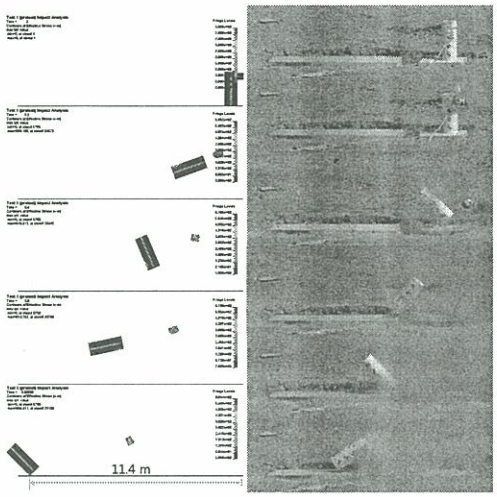


Fig. 5. Behavior of Cask after impact

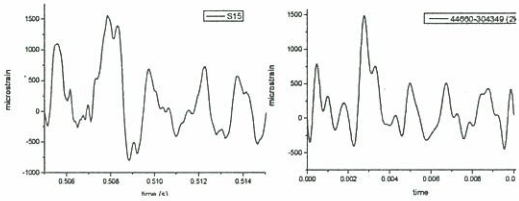


Fig. 6. Comparison of strain history (test-simulation)

5. 결 론

이상과 같이 금속겸용기의 항공기충돌조건을 고려한 안전성 해석 및 시험평가를 수행하였다. 구현된 전산해석체계를 통하여 보수적이며 정확한 구조안전성평가를 수행할 수 있음을 보였으며 추후 실제 시스템의 평가에 활용하기 위한 기반을 마련하였다.

6. 참고문헌

[1] NEI, "Deterring terrorism: Aircraft crash impact analyses demonstrate nuclear power plant's structural strength," NEI, 2002

[2] K Shirai et al. "Safety analysis of dual purpose metal cask subject to impulsive load due to aircraft engine crash," Journal of Power and Energy Systems, Vol. 3, pp. 72-82

사용후핵연료 수송저장기술 특허자료 조사분석

노성기, 김은가, 조성수
대덕원자력포럼, 대전 유성구 대덕대로 1045
roseunggy@hanmail.net

1. 서론

사용 후(또는 조사 후)핵연료(형질변경이 아닐 경우)의 안전한 수송·저장비용은 후행 핵연료 주기 비(장기저장·관리비, 수송비, 포장비 및 처분비)의 약 13.6-17.6 %[1]를 점하고 있다.

미국, 일본, 독일, 영국, 프랑스 등 원자력 선진국에서는 그 수요가 한창이던 1970년대부터 2000년대 초까지 관련기술의 연구·개발과 특허출원이 활발하였으나 2000년대 후반기부터 다소 정체상태를 유지하고 있다. 우리나라에서는 1990년대 중반기부터 특허출원건수가 증가하고 있는 추세이나 자국인에 비해 외국인의 국내 특허출원비율이 높은 상황이다.

앞서 논의한바와 같이 후행핵연료 주기비용에서 수송·저장비용의 점유율을 무시할 수 없을 뿐만 아니라 외국인의 국내특허등록비율의 상승추세를 그대로 방치하면 앞으로 경제적 불이익을 감내하지 않을 수 없을 것이다. 이를 효과적으로 방어하기 위해서는 기술개발 및 국내·외 특허획득활동을 적극적으로 펼쳐야 한다.

따라서 본 연구에서는 국내·외 관련특허(대부분 사용 후 핵연료에 대한)자료를 수집·분석하여 앞으로 추진해야할 연구·개발방향을 제시하는데 그 목적을 두었다.

본 연구에서는 1973년부터 2010년 3월까지 사용 후 핵연료 수송·저장에 대한 우리나라 공개특허, 미국 등록특허, 일본 공개특허, 유럽연합 공개특허, PCT
(patent Cooperation Treaty) 공개특허 등을 분석대상으로 삼았다.

2. 분석범위

1973년부터 2010년 3월까지의 출원 또는 등록특허를 분석대상으로 삼았다.

(spent and nuclear fuel and transport and storage)라는 주요 검색어를 입력하여 WIPS에서 미국, 일본, 유럽연합 및 PCT의 특허를 검색한 결과 2186건이었고 우리나라에서의 특허는 205건이었다. 이 중 분석대상기술과 관련이 없는 특허를 제외한 611건(이 중 우리나라에서는 31건)을 발췌하여 심층 분석을 하였다.

3. 특허동향분석

수송·저장기술을 캐스크(수송용, 저장용, 수송·저장 겸용), 저장시설(건식, 습식) 및 공용(바스켓, 취급기구, 운전 및 유지보수, 중성자 흡수재, 핵연료봉 밀집, 및 감시 및 측정기)로 분류하였다.

우리나라, 미국, 일본, 유럽연합, PCT 및 기타의 특허 점유건수는 각각 31, 212, 203, 93, 및 33이다. 출원인의 국적별 특허점유율을 보면 우리나라, 미국, 일본 및 유럽연합은 각기 53 %, 65 %, 95 % 및 46 %이다.

그림1에 연도별·국가별 특허출원건수의 변화를 나타내었다. 미국에서는 1970년대 초부터 1980년대 초까지 급격히 증가하다가 1980년대 중반에 급격히 감소한 후 다시 2000년대 초까지 최대로 증가한 다음 최근까지 감소하는 추세를 보이고 있다.

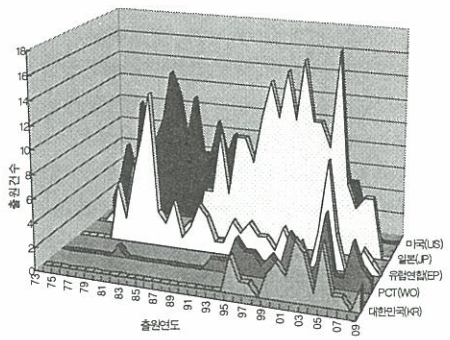


Fig. 1. annual & nation-wise number of patents

일본에서는 1970년대 초부터 1980년대 후반까지 특허출원건수가 미미하였으나 그 이후 1990년대 후반까지 급격히 증가하여 2000년대 초까지 변화를 보이지 않다가 그 후 감소하는 추세에 있다.

한편 우리나라에서 1990년대 중반부터 특허출원건수가 증가하고 있으나 원자력 선진국에 비해 저조한 편이다.

미국 등록특허에서 국가별 기술수준순위를 분석하였다.[2] 이 때 특허등록건수 3건 이상인 국가만을 분석대상으로 삼았는데 그 이하인 경우 영향력지수 값 및 기술력지수 값이 비정상적으로 큰 값을 나타내기 때문이다. 미국 및 독일은 연도 구간별로 차이는 있지만 영향력지수 및 기술력지수에서 각각 1 및 2위를 점하고 있다. 한편 유사도 분석을 통해 우리나라에서 우선적으로 고려할 수 있는 사용 후 핵연료의 수송기술, 저장기술 및 수송·저장겸용기술에 대한 기존 외국특허(미국)를 분석하고 회피대상방안을 도출하였다. 기존 특허장벽을 극복하기가 용이하지 않을 것이나 구조설계의 진보성을 입증한다면 신규특허를 획득하는 것이 가능할 것이다.

4. 결 론

1973년부터 2010년 3월까지 전 세계에서 출원한 사용 후 핵연료 수송·저장기술에 대한 특허자료를 분석하여 다음과 같은 결론을 도출하였다.

1) 미국은 1970년대 초반에 특허출원을 하고 관련기술에 대한 기술력과 시장 장악력을 확보하고 있다.

2) 일본은 미국이나 유럽연합에 비해 본격적으로 특허출원을 시작한 시기가 늦었으나 미국에서의 특허출원건수 대비 단 9건만 적다.

3) 현재 미국이나 유럽연합의 특허출원은 정체상태이나 일본의 특허출원은 활발하다.

4) 1990년대 중반에야 우리나라에서 특허출원을 시작했기 때문에 지금까지 확보한 특허건수는 비록 적지만 최근 꾸준히 증가추세에 있다. 그러나 자국인의 특허권 확보율을 제고시킬 필요가 있다.

5) 국가별로 추구하는 핵연료주기 정책에 따라 관련기술을 특화하는 연구·개발을 추진한다. 예컨대, 미국은 사용 후 핵연료의 직접처분을 고려하기 때문에 수송·저장·처분 겸용 캐스크(MPC)의 개발이 필요하겠지만 사용 후 핵연료의 재활용 정책을 추구한다면 MPC의 개발을 재고하게 된다는 것이다.

5. 감사의 글

본 연구는 한국원자연구원의 수탁과제로 수행한 연구과제인 "우리나라 원자력 환경에 적합한 고준위 폐기물 관리기술 선행조사·분석연구" 결과의 일부이다.

6. 참고문헌

[1] 고원일, 사적통신(2010.9).

[2] "핵연료주기 시스템 엔지니어링기술개발 특허동향." 한국특허청(2006).

제1분과

사용후핵연료 수송저장 및 정책 (Poster)

빈 면

중수로 사용후핵연료 총방사능량 평가를 위한 다중계산코드 개발 및 예비평가

육대식, 이상철*, 이윤근
한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 구성동 19번지
*한국과학기술원, 대전광역시 유성구 구성동 373-1
dsyook@kins.re.kr

1. 서론

현재 국내 원전에서는 호기간 사용후핵연료 이송, 연구목적의 원자력연구원으로의 사용후핵연료 운반 및 월성 부지에서의 조밀건식저장시설로의 중수로 사용후핵연료 운반 작업 등이 이루어지고 있다. 이러한 운반 작업시는 관련 기술기준에 의해 운반내용물의 최대 방사능량을 사전에 평가하여 운반서류에 기술하도록 되어 있다. 경수로와 달리 중수로 사용후핵연료는 1회에 평균 60다발에서 최대 120다발까지 운반을 하기 때문에 최대방사능량 평가를 위해서는 120다발 모두의 방사능량 평가가 필요하며, 이를 위해서 ORIGEN-ARP 전산코드를 활용한 사용후핵연료 방사능량 다중 계산을 수행할 수 있는 전산 코드를 개발하였다.

2. 본론

2.1 ARP 다중계산 코드 개발

SCALE 코드에서 포함되어있는 ORIGEN-ARP [1]는 기본적으로 핵연료 1다발에 대한 선원항 및 열발생율 등을 평가 할 수 있으며, 여러 입력 파일을 동시에 평가할 수 있는 배치 모드도 지원을 하고 있다. 이러한 특징을 고려하여 본 연구에서는 사용후핵연료의 기본 입력 자료를 활용하여 자동으로 ORIGEN-ARP 입력 파일 및 배치 파일을 생성할 수 있는 전산코드를 개발하였다. 개발된 전산 코드는 생성된 입력 파일 및 배치 파일을 그림 1에서와 같이 SCALE driver를 활용하여 각 개개의 다중 출력 파일을 생성하고 그 중에서 필요한 결과 정보를 포함한 요약파일까지 생성하는 기능을 포함하고 있다. 이러한 기능은 C프로그램의 오토매크로 함수 기능을 활용하였다.

2.2 계산 검증을 위한 표준 사용후핵연료 선정

개발된 코드는 사용후핵연료 운반 및 저장 평가를 위한 선원항 평가, 방사능량 평가 및 열발생률 평가 등에 사용 될 수 있다. 본 연구에서는 개발된 코드의 검증을 위하여 월성 조밀건식저장시설로의 사용후핵연료 운반에 활용되고 있는 HI-STAR 63의 방사능량 평가 자료를 이용하여 평가하였다. HI-STAR 63 안전성분석보고서 [2]에서는 대상 핵연료를 평균연소도 7,800MWD/MTU, 초기 농축도 0.711 w/o, 냉각기간 6년 이상인 핵연료로 산정하고 있다. 본 연구에서는 이러한 조건을 근간으로 계산 결과의 신뢰성 및 선형성 확인을 위하여 동일 조건에서 평균연소도 7,800MWD/MTU의 핵종별 방사능량 비교 평가 및 연소도 분포를 3,100 ~ 13,100 MWD/MTU로 가정하여 120다발에 대한 ARP 다중 계산을 수행하였다.

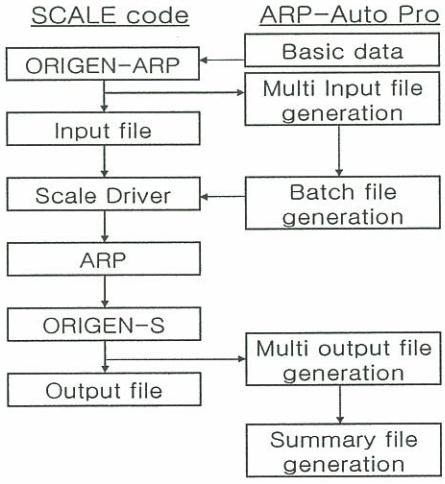


Fig. 1. The procedure of ARP Auto program using ORIGEN-ARP

2.3 평가결과

ARP 다중계산 코드의 신뢰성을 확인하기 위하여 7,800 MWD/MTU의 주요핵종별 방사능량 계산 결과를 HI-STAR 63 방사능량 평가 결과와 비교하여 그 결과를 표 1에 나타내었다. HI-STAR 63 안전성분석보고서에서는 SCALE 4.4 코드 package 내의 선원항 평가 코드인 ORIGEN-S 와 SAS2H 모듈을

통해 계산이 수행된 것이며, 본 연구에서 사용된 전산 코드는 SCALE 5.1 코드내의 ORIGEN-ARP를 활용하여 계산된 것이다. 그러나 계산 모듈 자체는 동일한 것이기 때문에 결과에서 나타난 상대오차는 ARP 코드 내의 반응단면적 라이브러리의 개선에 따른 오차인 것으로 추측된다.

Table 1. The comparison of radioactivities between HI-STAR 63 SAR and ARP-auto program (unit : Bq)

nuclide	HI-STAR 63 SAR	ARP-auto	relative error
sr89	3.493E+01	3.477E+01	0.454%
sr90	1.092E+13	1.094E+13	0.229%
y90	1.092E+13	1.094E+13	0.229%
ru103	1.162E-02	1.168E-02	0.531%
ru106	2.431E+12	2.483E+12	2.098%
cs134	1.332E+12	1.295E+12	2.857%
cs137	1.606E+13	1.622E+13	0.999%
ce144	1.702E+12	1.713E+12	0.642%
pm147	1.058E+13	1.041E+13	1.652%
pu238	5.772E+10	5.832E+10	1.029%
pu239	1.154E+11	1.136E+11	1.620%
pu240	1.721E+11	1.682E+11	2.289%
pu241	1.203E+13	1.408E+13	14.59%
cm242	2.823E+08	3.452E+08	18.21%
cm244	9.990E+09	1.021E+10	2.155%

ARP 다중계산 코드를 활용하여 중수로 사용후핵연료 120다발의 전체 방사능량을 평가한 계산결과는 그림 2와 같다. 평균 연소도는 7,555 MWD/MTU로 계산되었으며 각각의 연소도에 따른 방사능량은 연소도의 변화에 따라 선형적으로 평가되어 산출되었음을 확인할 수 있었다. 또한, 120다발 핵연료의 총방사능량은 1.04E16 Bq으로써 사용후핵연료 운반 작업시 관련 기술기준에 의해 운반내용물의 최대 방사능량 평가에 금번 연구에서 개발한 코드의 적용이 가능함을 확인하였다.

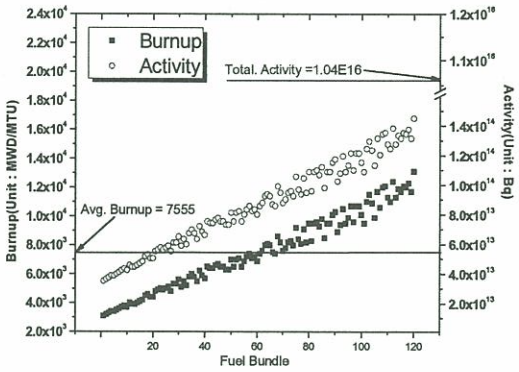


Fig. 2. Correlation between burnup and activity of CANDU SNF bundles

3. 결론

본 연구에서는 사용후핵연료 선원항 평가 등에 널리 사용되고 있는 ORIGEN-ARP를 이용하여 대량의 사용후핵연료 방사능량을 평가할 수 있는 ARP 다중계산 전산코드를 개발하였다. 이를 통해서 각각의 핵연료 다발의 핵종별 방사능량 및 대량의 사용후핵연료 다발 총 방사능량 계산이 가능함을 확인하였다. 개발된 ARP 다중계산코드는 사용후핵연료 운반 및 사용후핵연료 중간 저장시설 선원항 평가등의 연구에 활용 될 수 있을 것으로 기대된다.

4. 감사의 글

본 연구는 2010년도 지식경제부 재원으로 한국에너지 기술평가원의 지원을 받아 수행한 연구과제입니다.

5. 참고문헌

[1] ORIGEN-ARP: Automatic Rapid Processing for Spent fuel Depletion, Decay, and Source term analysis, ORNL/TM-2005/39.

[2] Safety analysis report on the HI-STAR 63 package, Holtec International, page 4.2-13.

건식저장 시 사용후핵연료 건전성에 대한 미국과 일본의 평가방법 및 기준 분석

국동학, 양용식, 권형문, 장정남, 최종원
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
syskook@kaeri.re.kr

1. 서론

국내의 누적되는 PWR 사용후핵연료 문제를 근시일내에 해결할 수 있는 사용후핵연료 건식저장 연구가 최근들어 활발히 진행되고 있다[1]. 건식저장의 궁극의 목표는 시설의 운전 종료시에 사용후핵연료를 저장시스템으로부터 다시 인출하였을 때, 원래의 상태를 그대로 유지하는 건전성 확보이므로, 이에 대한 평가 방법 및 기준 설정은 매우 중요하다. 따라서, 건식저장에 가장 앞선 미국과 최근 들어 활발히 건식저장을 진행하려는 일본의 사용후핵연료 건전성 평가 방법 및 기준을 비교 분석함으로써, 우리나라가 취해야할 방향설정에 참고하고자 하였다.

2. 본론

건식저장 시 시스템 내부 온도는 사용후핵연료의 건전성을 위협하는 여러 열화기구들을 활성화시키는 가장 핵심적인 인자이며, 이와 연계된 봉내압에 의한 HS[1] 역시 최근들어 매우 중요한 인자로 평가되고 있다.

2.1 미국의 평가방법과 기준

미국은 1970~80년대 약 1,200개의 핵연료봉 시험을 바탕(CSFM[2] 프로그램)으로 피복관의 건식저장 허용 온도를 설정하였으며, 1985년부터 시작한 상용 시스템에 곧바로 적용하였다. 이후 표1과 같이 연소도 증가 및 수송과정에 대한 중요도가 높아지면서 추가적인 제한사항들을 도출하여 적용해왔다. 최근 수정 발간된 심사자규제지침[8]은 이와같은 이력을 모두 반영하고 또한 각 평가항목들에 대한 위험도 등급을 상중하로 나누어 평가의 우선 순위를 구분하였다.

정상운전 상태에서는 Creep에의해 피복관이 변형되는 제한치를 핵심적으로 적용하고 있으며, 수송과정에 대해서는 Vacuum Drying 과정에서 생성될 수 있는 HR[3] 발생을 억제하기 하기 위한 제한치를 적용하고 있다.

미국은 20여년의 경험을 바탕으로 지르코늄 계열 피복관의 정상상태 최대허용온도를 400℃로 획일화시켜서 운전 마진을 높게 설정한 만큼, hair line crack이나 pinhole 등의 사소한 결함을 갖고 있는 사용후핵연료에 대해서도 몇 단계의 FGR[4] 레벨로 구분하고 저장을 허용한다.

또한 저장시스템 제작회사가 정부로부터 General License에 대한 CoC[5]를 받기 위해서는 위의 기준에 대한 사용후핵연료 건전성을 독자적으로 증명해야한다.

Table 1. 정상운전상태에 대한 미국의 기준 변화

연도	주요 내용	비고
1980s	• MATL[6] 적용	냉각기간별, 재료별, 연소도별 다양한 온도 기준 적용 [2]
1997	• DCCG[7] 고려	[3]
1999	• DCCG 배제 • 고연소 정의: 45GWd/MtU 이상	[4]
2000	• Creep strain 제한치: 1% 이하	[5]
2002	• Creep이 가장 중요 • 수송시 HR 고려	400℃ 기준 및 65 ℃ 이내의 TC[8] 제한 [6]
2003	• 저연소도의 경우 온도 대신 HS 제한치 선택 사용 가능	[7] HS < 90 MPa
2010	• ISG 시리즈 반영 • Risk Inform base • 지르코늄 피복관은 400℃ 단일 기준	연소도 60 GWd/MtU까지 인허가 [8]

2.2 일본의 평가방법과 기준

1) Hoop Stress
2) Commercial Spent Fuel Management
3) Hydride Re-orientation
4) Fission Gas Release
5) Certificate of Compliance
6) Maximum Allowable Temperature Limit
7) DCCG: Diffusion-Controlled Cavity Growth
8) Thermal Cycling

일본은 미국 기준을 참조로 하고 CRIEPI를 중심으로 약 20여년간 건식저장 건전성 시험 데이터를 생산하여 이를 바탕으로 1990년대 중반부터 작은 규모[9]로 건식저장을 수행하였으며, 2000년대 들어 JNES[10]를 중심으로 건전성 시험 데이터를 생산하여 이를 바탕으로 2012년 운영을 시작하려는 5,000 MtU 규모의 무츠저장시설을 준비 중에 있다. 최근들어 건식저장 기간이 자주 변경되는 미국과 달리 사용후핵연료 재처리가 국가 정책인 일본은 건식저장 운영 목표기간을 50년으로 한정하였다.

JNES는 10년간 Creep 시험, Hydride Effect 시험(HR시험, 기계적특성시험), 조사손상회복 시험을 수행하였으며, HR이 전혀 일어나지 않은 피복관에서도 피복관의 연성이 감소하는 현상을 발견함으로써, 미국처럼 HR이 일어나지 않는 단일한 기준을 설정하는 것보다 피복관의 기계적성질이 열화되지 않는 보다 엄격한 기준을 제시하였다. 이러한 기본 방침에 따라 일본은 아래 그림1과 같이 대상 핵연료 피복관의 종류별, 연소도별로 온도기준과 HS의 제한치를 동시에 적용하도록 하였으며, 이는 저장시스템 운영마진의 폭을 줄이는 결과로 나타난다.

그러나, 미국과 달리 일본은 저장대상 사용후핵연료는 아무런 결함을 갖고 있지 않도록 제한하고 있으며, 규제기관에서 다양한 조건의 실험을 바탕으로 엄격한 규제기준을 설정한 만큼, 저장시스템 제작회사는 사용후핵연료 건전성을 독자적으로 증명할 필요가 없다.

Cladding Type		Threshold of No Ductility Degradation Affected by Hydride Reorientation	
		Temperature (℃)	Hoop Stress (MPa)
BWR (RX)	40GWd/t No Liner	≦200	≦70
	50GWd/t with Liner	≦300	≦70
	55GWd/t with Liner	≦300	≦70
PWR (SR)	39GWd/t	≦275	≦100
	48GWd/t	≦275	≦100
	55GWd/t MDA	≦250	≦90
	55GWd/t ZIRLO	≦250	≦90

2.3 우리나라의 방향에 대한 제언

미국과 일본에 비해서 원자력 발전이 각각 20, 10여년 뒤늦은 우리나라는 사용후핵연료 건식저장에 대한 필요성, 연구, 산업화가 같은 기간만큼 차이를 두고 있다. 일본이 미국의 기준을 참조하고 시험 자료를 생산하여 건식저장에 대한 자신만의 필요성에 따라 독자적인 저장기준을 설정하고 고유한 상용 저장시스템을 개발한 과정을 우리는 참조할 필요가 있다.

선진국과의 차이를 빠른 시일내에 줄일 필요가 있는 우리로서는 우선 국내 사용후핵연료에 대한 시험자료를 생산하여 기존 선진국들의 평가방법 및 기준에 부합되는 지 여부를 판단하고, Capacity Factor등이 높은 국산 핵연료만의 특징적인 부분에 대한 재해석과 사용후핵연료의 관리정책, 저장기간, 저장 대상 핵연료 범위(연소도, 손상정도, 냉각기간, 집합체 종류)를 고려한 고유 저장기준을 설정하는 것이 필요하다. 이와같은 과정은 독자적인 상용 저장시스템을 개발하는 데 가장 필수적인 과정이며, 향후 저장시스템의 수출까지 목표를 확장할 경우에는 그 필요성은 더욱 커진다.

3. 결론

건식저장 선진국인 미국과 일본의 사용후핵연료 건전성 평가방법과 기준을 참조하고 국산 연료에 대한 시험자료를 확보하여, 우리 고유의 저장기준 및 저장시스템을 개발하여야 한다.

4. 감사의 글

본 연구는 2010년도 지식경제부의 재원으로 한국에너지 기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다. (No.2009T100200031)

5. 참고문헌

[1] SF 수송/저장 시스템 상용화 기술개발, 지경부
[2] PNL-6189, 1987
[3] NUREG-1536, 1997
[4] Interim Staff Guide-11
[5] Interim Staff Guide-11 Revision 1
[6] Interim Staff Guide-11 Revision 2
[7] Interim Staff Guide-11 Revision 3
[8] NUREG-1536 R1, 2010

9) 후쿠시마 & 토카이 원전 내 금속캐스크
10) Japan Nuclear Energy Safety Organization

사용후핵연료 건식저장 구조재료 장기열화평가 방법론 개발

이영호, 김형규, 최종원
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
leeyh@kaeri.re.kr

1. 서론

국내 가동 중 원자력발전소에서 발생하는 사용후핵연료는 수년내에 포화에 이르거나 조밀렉 설치로 여유를 가지더라도 습식저장고의 한정된 용량으로 인해 이를 대체할 수 있는 건식저장시설의 도입이 시급하다. 최근 발생한 후쿠시마 원전사고와 같이 습식저장고내 냉각재 상실 사고가 발생할 경우 중대사고로 이어질 수 있음을 확인하였고 많은 위험을 가진 조밀렉 설치에 대한 재검토가 필요하다. 이와는 대조적으로 후쿠시마 원전내에서 가동중인 건식저장 시설에 대한 피해보고가 올라오지 않고 있으며, 사용후핵연료가 저장되어 있는 건식저장 구조물은 지진, 홍수 및 해일 등의 외부환경의 급격한 변화에도 안전성을 유지할 수 있음을 증명하였다. 건식저장 시설을 50년 이상 안전한 저장을 위해서는 저장시설 중 중요한 구조재료 및 부품에 대한 장기열화 평가 모델이 개발되어야 한다. 그러나 현재까지 사용후핵연료 처리를 위한 건식저장 방식을 국가차원에서 정책적으로 명확히 결정하지 못하고 있기 때문에 대표적인 구조재료인 캐니스터의 열화평가 모델 개발을 위한 방법론을 개발하고자 한다. 본 연구에서는 이를 위하여 캐니스터 열화현상에 대한 문헌조사를 수행하였으며, 적용된 재질 및 부품에 대한 환경열화를 평가할 수 있는 모델을 분석하여 장기열화평가 개발을 위한 방법을 제시하고자 한다.

2. 캐니스터 열화기구

2.1 서론

건식저장의 주요 구조물중의 하나인 캐니스터는 내부의 고온 및 고방사선 환경과 외부의 대기환경하에서 내부의 붕괴열을 외부로 전단하는 역할을 한다[1]. 건식저장 시설이 발전소내 부지에 설치될 가능성이 높고 대부분의 발전소가 해안가에 위치해 있으므로 해수의 염분에 의한 부식성 분위기가 형성되는 것으로 예측할 수 있다. 따라서 기계 구조적인 열화현상보다는 부식에 의한 열화현상을 평가하는 것이 타당할 것으로 보인다.

2.2 외부환경 및 부식거동

캐니스터의 외벽은 내부 붕괴열로 인해 고온상태를 유지하고 있으며 장기간 저장조건에서는 서서히 감소하게 되어 고온 부식에 노출되어 있다. 특히 상술한 바와 같이 특정 조건하에서 염분의 유입가능성이 있어 장기 건전성 측면에서는 부식저항성을 평가해야 한다. 특히 캐니스터는 직경이 설계에 따라 다르지만 대략 5 m, 두께가 20 mm 정도이므로 이를 제작하기 위해서는 반드시 용접부가 존재하여 일반적으로 사용되는 스테인레스강의 경우, 용접부 주변의 열영향부가 존재하게 되어 내부식성이 감소한다. 캐니스터에서 발생할 수 있는 부식거동은 일반부식, 틈부식, 응력부식균열(Stress Corrosion Cracking, SCC) 및 Galvanic 부식 등으로 요약할 수 있다.

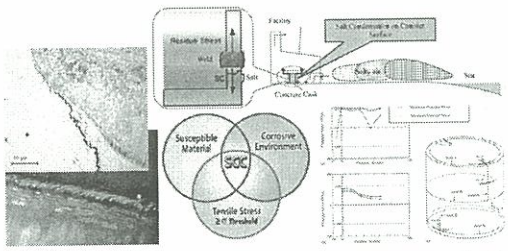


Fig. 1. Summary of canister SCC mechanism [2,3]

2.3 부식거동 요약

일반부식은 표면 전체에 걸쳐 일정한 속도로 균일하게 발생하는 부식으로 설명할 수 있으며 스테인레스 강의 경우 Cr과 Mo이 내식성을 가지는 보호피막을 형성하므로 매우 낮은 부식속도를 보이는 것으로 알려져 있어 큰 영향이 없으나 탄소강이 적용되는 내외부 쉘에서는 충분히 검토되어야 한다. 틈부식은 국부적으로 내식성을 가진 산화피막이 제거될 때 틈 내부의 농도차이로 인해 부식이 가속화되는 현상이며 용접부내 불균일한 곳 혹은 볼트 등의 틈새에서 발생이 가능하다. SCC는 스테인레스강에서 매우 잘 알려진 부식열화기구로 캐니스터의 환경조건과 매우 잘 일치하는 것으로 조사되었다. SCC는 예민화된 재질, 부

식환경 및 응력조건이 모두 만족될 때 발생하며 그림 1과 같이 캐니스터의 용접부, 잔류응력과 열팽창에 의한 인장응력, 그리고 해수에 의한 염분 유입 등을 고려해볼 때 캐니스터의 건전성을 위협하는 가장 중요한 열화기구로 생각된다. Galvanic 부식은 이종금속간 부식전위의 차이로 인해 한쪽 재질에서 발생하는 부식현상으로 구조재료인 스테인레스 강과 탄소강이 접촉할 때 탄소강에서 우선적으로 부식이 발생할 수 있다.

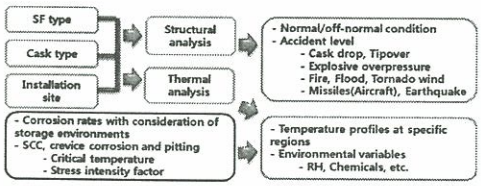


Fig. 2. Procedure of degradation mechanism evaluation method

2.4 장기열화평가 방법론

현재까지 국내 저장환경조건에서 캐니스터의 열화거동은 SCC가 중요한 지배인자로 판단되며 이를 고려한 장기저장 열화평가 방법을 그림 2에 요약하였다. 우선 캐니스터 냉각을 위해 유입되는 공기에 포함되어 있는 평균 염분의 농도를 건식저장 시설이 위치할 장소를 고려하여 분석해야하며 시간에 따른 내부 붕괴열의 변화와 이에 따른 캐니스터 외벽의 온도변화를 산출해야 한다. 이것은 특정 온도조건에서 염분의 농도에 따라 외벽의 불균일한 지점, 특히 용접부에서 응축이 가능하기 때문이다. 또한 유사환경조건하에서 SCC의 균열전파속도에 대한 문헌조사를 수행하여 가장 유사한 값을 적용시킬 수 있다. 선행연구에 따르면 캐니스터의 부식수명(T_{scc})는 캐니스터 외벽의 온도가 100도 이하까지 냉각되는 시간(T_c)과 SCC 균열이 생성되는 시간(T_i) 및 균열전파시간(T_p)로 규정하고 있으나 이것은 환경조건을 명확히 고려하지 않고 있다[3]. 특히, 상대적으로 습도 및 염분이 높은 국내 저장조건에서는 다소 고온에서 캐니스터 외벽의 응축이 가능하므로 T_c가 다소 낮은 값을 보일 수 있다. 또한 T_p의 적용을 위해서는 저장환경 조건하에서 캐니스터의 영향을 잘 모사한 실험결과가 반드시 수행되어야 한다[4].

국내에서 적용될 건식저장 시설의 형태는 현재까지 국가적 차원에서 결정된 것은 명확히 없다. 향후, 국내 자체로 건식저장 시설을 개발하거나 혹은 국외 상용시설을 도입하더라도 국내 적합성 여부는 반드시 수행되어야 한다. 결국 어떠한 방식으로 결정되더라도 적용되는 재질 및 부품의 국내 적용성 분석 및 평가 모델의 개발이 선행되어야 할 것으로 생각된다.

3. 결론

건식저장 시스템에 적용되는 캐니스터의 장기열화거동에 대한 조사와 국내 저장조건을 고려해볼 때 캐니스터 자체의 응력부식균열이 매우 중요하며 이를 평가하기 위한 방법론을 제시하였다. 이를 위해서는 실제 저장조건하에서의 적용 재질에 대한 실험결과가 반드시 필요하며 향후 건식저장시설 상용화에 대한 충분한 대비가 필요하다.

4. 감사의 글

본 연구는 2011년도 지식경제부의 재원으로 한국에너지 기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다.

5. 참고문헌

[1] J. Tani et al., "Stress corrosion crasking of stainless-steel canister for concrete cask storage of spent fuel", Journal of nuclear materials, Vol.379, pp. 42-47, 2008.

[2] J. Saejusa et al., "Topics of research and development on concrete cask storage of spent nuclear fuel", Nuclear engineering and design, Vol.238, pp. 1168-1174, 2008.

[3] A. Kosaki, "Evaluation method of corrosion lifetime of conventional stainless steel canister under oceanic air environment", Nuclear engineering and design, Vol.238, pp. 1233-1240, 2008.

[4] Y. Toshima et al.. "Long-term exposure test for external stress corrosion crasking on austenitic stainless steels in coastal areas", Corrosion 2000, Paper No. 00456, 2000.

PCTRAN Analysis of Spent Fuel Pool at Fukushima Unit 4

Li-Chi Cliff Po, Juyoul Kim*
Micro-Simulation Technology, 10 Navajo Court, Montville, NJ 07045, USA
*FNC Technology, Seoul National University, Seoul 151-742, Korea
gracemi@fnctech.com

1. Introduction

The earthquake and tsunami has caused instant loss of offsite power. The scale-9 shock far exceeds plant design limit of scale 7.5 so it also disabled all onsite diesel generators. A complete station blackout (SBO) is thus the initiating event. Fukushima Daiichi Unit 1 is a GE BWR-3 rated 460/1380 MW (electric/thermal). Units 2 to 5 are BWR4 rated at 784/2381 MW. There are two external recirculation pumps. Jet pumps inside the reactor downcomer enhance the core flow for better efficiency. They all have Mark I (steel liner plus concrete drywell and torus-shaped suppression pool) containments. The emergency core cooling systems contain passive Reactor Coolant Isolation Cooling (RSIC) and Core Spray (CS) systems. Their respective turbines are driven by steam extraction following Main Steam Isolation Valves (MSIV) closure. Centrifugal pumps draw water from the condensate storage tank initially. When the tank inventory is exhausted, water source can be switched to the suppression pool for extended period. On the active side, the diesel generator-powered High Pressure Coolant Injection (HPCI) turns on low reactor water level. It extracts water from the condensate or suppression pool as well. When the reactor pressure is lowered, low-pressure coolant injection (LPCI) system provides large flow to reflood the core. Fig. 1 is the PCTRAN mimic during full-power steady state operation. During the March 11 event, the RCIC and CS lines were either destroyed by the earthquake or soon exhausted their water supply. Since no onsite AC power available, HPCI and LPCI were never initiated. When the core water lowered to expose the core, clad damage and hydrogen generation was observed. The operators decided to depressurize the reactor vessel by opening the Safety Relief Valves. Coolant was further boiled off from the reactor to expose more fuels. Sea water was used to cool the core. A mixture of steam, hydrogen and fission gas pressurized the primary containment (i.e. the drywell and suppression pool). Since BWR4's containment is typically inerted below 4% of oxygen content, in principle there is no chance for hydrogen explosion regardless of the hydrogen concentration. However, because the containment pressure might have exceeded its 4-atmosphere design pressure, leakage from the pressure boundary cracks might have occurred. The gas mixture then filled the external Reactor Building. Detonation condition has reached and then explosions occurred. These happened at Units 1, 3 and 4. The Reactor Building roof is an ordinary structure so it was blown off. Later water spray on top of the Reactor Buildings by either helicopters or fire engines had limited effect since water has difficulties to reach the damaged core. All above sequence of events can be simulated by PCTRAN/BWR with quantitative accuracy.

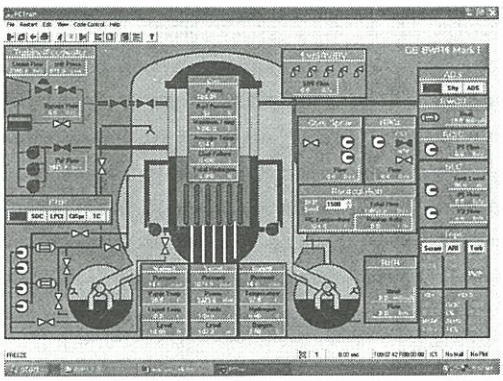


Fig. 1. PCTRAN BWR Mark I Mimic

2. Spent Fuel Pool Accident Simulator

Another significant event is loss of cooling/coolant at Fukushima Unit 4's spent fuel pool that has caused clad oxidation and radiological release. Micro-Simulation has another simulation product "SFP". Until now, spent fuel pool safety was overlooked and an independent hardened cooling system is necessary now. Shown below in Fig. 2 is SFP software's main mimic during normal operation. The pool is filled with freshly unloaded and previous cycles' discharged fuels. Their combined decay heat is removed by the cooling systems.

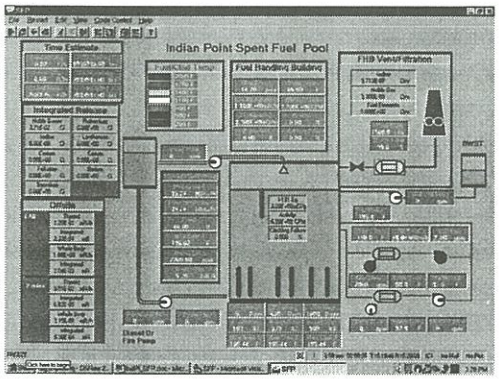


Fig. 2. Spent Fuel Pool Accident Simulator

Upon a loss of cooling or coolant event, the pool may heat up to boiling. Continued boiling exposes top of the fuels. Heatup of the exposed fuel may turn into cladding oxidation and radiological gas release. Scale of a pool's radiological inventory could be even more serious than a plant's, because a pool contains much more assemblies than a core. Since cracks can be developed at bottom of the pool – especially for Mark I and II containment the pool is located high above ground. A supplemental system should be a spray from atop of the pool with its own water storage and lines for outside makeup. Its piping and power supply should be independent and hardened to assure effectiveness in adversity. So, one of the lessons learned from Fukushima spent fuel pool release is: Every nuclear power plant in the world (both PWR and BWR) should add a hardened spray cooling system. Iodine and noble gases release source term is used by another MST program "RadPuff" for radiological dose dispersion projection. Mostly southeast wind prevailed in the next couple days so the plume was projected into the northwest direction.

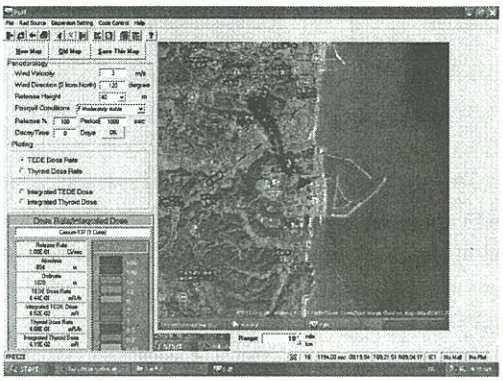


Fig. 3. RadPuff projection of dose dispersion following radiological release

3. Conclusion

The Fukushima event was unprecedented because it exceeded historical maximum for earthquakes. The succeeding tsunami aggregated the damage that knocked out crucial piping of passive emergency cooling systems and disabled all diesel generators. Given the initiating conditions PCTRAN is able to reproduce the plant behavior and radiological consequence. PWR is more resilient than BWR because of its steam generator secondary water inventory and size of containment. This gives larger margin to core damage and containment failure. Further review is still necessary to improve safety level. Spent fuel pool safety has been overlooked. A hardened and independent top spray system is necessary for all nuclear power plants.

4. Reference

[1] L. C. Po and J. Kim, "PCTRAN/KSNP1000 – A PC-based Simulator for KSNP1000", Trans of the Korean Nuclear Spring Mtg *Pyeongchang,* Korea, May 27-28, 2010.

[2] L. C. Po and J. Kim, "PCTRAN/APR1400 – A PC-based Simulator for APR1400", Trans of the Korean Nuclear Autumn Mtg *Jeju,* Korea, October 21-22, 2010.

사용후핵연료 수송방안 분석 평가 체계 구축

성기열, 윤정현, 김태만, 김형진, 이수홍*
한국방사성폐기물관리공단, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
*(주)에네시스, 대전광역시 유성구 구암동 328
sskyein@krmc.or.kr

1. 서론

사용후핵연료의 소외수송은 안전성에 대한 대국민 신뢰도를 확보해야할 뿐만 아니라, 방사성폐기물기금의 효율적인 운용을 위하여 기술성, 안전성, 경제성을 고려한 최적의 수송방안 수립이 필수적이다. 이를 위하여, 원전에서 발생하는 사용후핵연료를 중간저장 시설까지 효율적으로 수송하기 위한 수송시스템 분석과 가상의 수송경로에 대한 수송 시나리오 평가기술 개발이 필요하며, 이를 위해서는 수송방안 분석절차 및 방법론, 수송 시나리오 구축 방법 및 평가기술, 수송방안 DB 등의 기술 개발이 이루어져야 한다.

본 연구를 통하여 국내외 수송방안 평가 관련 프로그램을 참조하여 우리나라의 환경조건을 반영한 수송방안 분석 평가 체계(프로그램)를 개발하였다.

2. 본론

사용후핵연료 수송방안 분석 평가 체계는 요구사항분석-설계-프로그래밍-테스트-검증-유지보수 등의 단계를 통해 개발되었다.

2.1 소프트웨어 요구사항 분석

사용후핵연료 수송방안 분석 평가 체계는 시스템 기본기능, 물량산정, 인프라 설정, Logistic 설정, 시나리오 설정 및 비용평가로 구성된다.

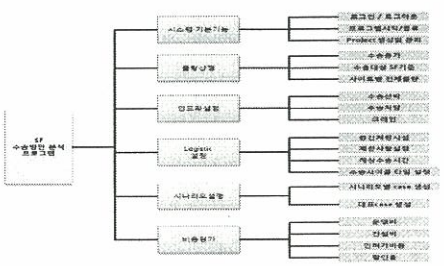


Fig. 1. 프로그램 기능 구성도 및 세부항목

소프트웨어 요구사항 분석에서는 각 기능별 프로그램 요구사항 및 연계사항을 정의하였다.

2.2 각 기능별 프로그램

2.2.1 사용후핵연료 물량산정

사용후핵연료 물량산정은 한수원(주)에서 작성한 2008년 12월말 기준 사용후핵연료 DB 자료를 활용하였다. 전체 물량은 11,121 다발로서, 관련자료 타입은 엑셀형태를 DB로 변환하여 적용하였으며, 사용자가 설정한 조건에 대해서 내부 명령문을 이용하여 물량을 뽑아 낼 수 있도록 개발되었다. 수송용기는 국내외에서 현재까지 개발된 수송용기 제원을 DB화 하여 사용자가 원하는 용기 형태를 프로그램에서 불러오기 할 수 있도록 구성하였다.



Fig. 2. 물량산정내 수송용기 항목 화면

2.2.2 인프라 설정

인프라 설정항목은 수송선박, 수송차량 및 선하역장비로 구성된다. 수송선박은 사용후핵연료 수송 전용인 INF-2 및 INF-3 등급으로 구분하였다. 또한, 승무원수, 최대 수송용기 적재량, 운항거리, 항해속력, 선박건조비, 적재 및 하역방식을 입력할 수 있도록 프로그램밍 하였다. 수송차량은 원전부지 및 중간저장시설에서 필요한 수량과 단가를 입력할 수 있도록 하였고, 적재하역 방식은 Lo와 Ro를 모두 고려하여 복합적으로 선택할 수 있

으며 각 방식을 선택하면 활성화 될 수 있도록 하였다.

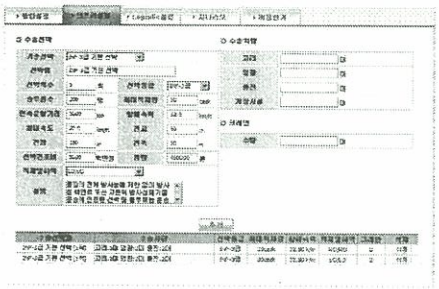


Fig. 3. 인프라 설정 화면

2.2.3 Logistic 설정

수송방안 분석을 위한 Logistic을 설정하기 위해서는 중간저장 시설의 위치, 중간저장 시설의 위치에 따른 수송선박의 항해 스케줄 등이 결정되어야 한다. 이를 위해 Logistic 설정 세부항목을 중간저장 시설, 제한사항 설정, 해상수송 거리로 구성하였다.

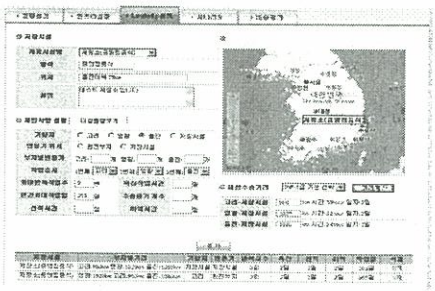


Fig. 4. Logistic 설정 화면

2.2.4 시나리오 생성

본 연구에서 개발된 프로그램에서는 사용자가 사용후핵연료 수송물량을 산정하고, 수송용기와 선박, 차량 등의 인프라를 설정하고, 중간저장시설의 위치 선정, 중간저장시설과 발전소간 거리, 운행시간, 일자를 도출하고, 제한설정을 하게 된다. 여기까지가 사용자가 생성한 프로젝트의 시나리오가 된다. 아울러, 각각의 시나리오는 수송사이클 타임 생성에 의해서 다양한 케이스를 얻을 수 있다. 생성된 시나리오의 수에 타임 생성에 의한 케이스를 수를 곱하게 되면 엄청난 양의 시나리오가 생성된다. 따라서, 프로그램에서는 최적운항일수를 최소화하는 케이스만을 선택할 수 있도록 하였다.

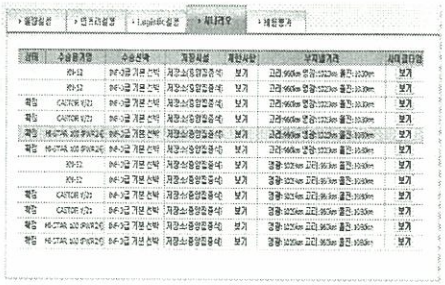


Fig. 5. 시나리오 생성 화면

2.2.5 비용평가

생성된 시나리오 자료를 토대로 시나리오별 비용평가를 위한 항목들을 구성하였다. 비용평가 화면에서는 구성된 시나리오별 수송용기, 수송선박, 관련시설 및 장비, 사용자 정의, 인건비, 운영비 및 유지보수 비용을 입력할 수 있다.

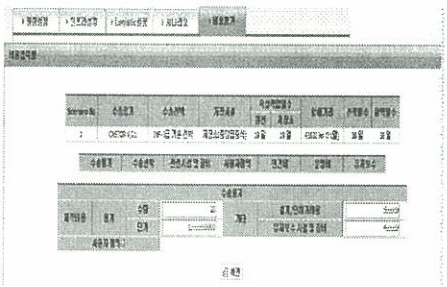


Fig. 6. 비용평가 화면

3. 결론

본 연구에서는 국내 사용후핵연료 수송여건에 적합한 최적의 수송방안을 도출하기 위한 분석 체계를 개발하였다. 향후, 개발된 프로그램을 이용하여, 다양한 국내 수송 시나리오에 대한 비용평가를 통해 최적의 수송방안을 도출할 수 있으리라 판단된다.

4. 감사의 글

본 연구는 지식경제부에서 시행한 방사성폐기물 관리기술개발사업의 지원을 받아 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

5. 참고문헌

[1] "사용후핵연료 수송물량 및 수송비용 분석 프로그램 개발", 한국원자력연구원, 2008.

국내 BUC적용 타당성 평가를 위한 사용후핵연료 타입별 핵임계 특성 분석

김태만, 윤정현, 박주완
한국방사성폐기물관리공단, 대전시 유성구 대덕대로 1045
tmkim@krmc.or.kr

1. 서론

세계적으로 사용후핵연료 관리 기술개발에 있어 연소도이득효과(Burnup Credit)의 적용은 저장시설과 수송시스템의 핵임계 여유도 확보로 인한 설계 및 운용 비용감소를 목적으로 많은 국가에서 활발히 기술개발중이다. 특히 BUC를 적용한 수송용기의 설계를 위해서는 일반적인 핵설계와는 다르게 장전대상 사용후핵연료의 설계특성 및 운전이력을 바탕으로 임계해석을 수행하여야 한다. 본 연구에서는 국내 BUC적용의 타당성평가를 위한 수송용기의 평가대상 핵연료의 핵임계특성 분석을 통하여 주요 고려사항을 도출하고자 한다.

2. 본론

2.1 BUC적용 평가대상연료 선정

BUC 적용 평가대상연료를 선정하기 위해 국내 16기의 경수로형 원전에서 발생된 사용후핵연료의 설계특성, 연소이력 및 연소계산 기초자료인 원전 운전이력을 바탕으로 한다.[1][2][3]

일반적으로 사용후핵연료 수송·저장용기 설계에 있어, 장전대상 핵연료 타입 선정에 따른 핵반응도 변화 및 선정된 핵연료의 Active Fuel Length는 중요한 설계변수가 된다. 국내 16기의 경수로형 원전에서 발생된 사용후핵연료는 총 3가지(14×14, 16×16, 17×17) 타입이 존재하며, Active Fuel Length를 기준으로 크게 WH Type(L=365.8㎝)과 CE Type(L=381.0㎝) 연료로 구분된다. 따라서 설계기준연료 타입 선정을 목적으로 다음의 가정을 설정하여 농축도별 핵임계도 평가를 수행하였으며, 평가결과를 그림 제시하였다.

가. 타입별 분석에서 핵임계도가 비교적 높은 WH 17 Type에 대한 평가만 수행
나. 사용후핵연료의 냉각기간은 10년 적용
다. 최대핵반응도를 유도하기 위해, 신연료/ 단일 무한배열/ 침수조건을 고려하여 모델링

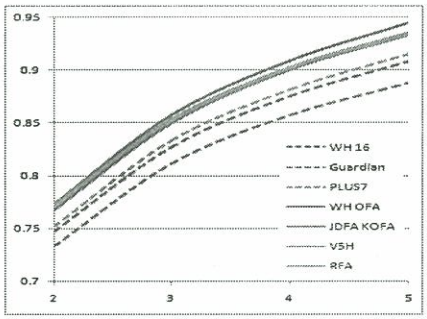


Fig. 1. Criticalities of Nuclear Fuel(Fresh)

WH 17 Type의 PWR 연료의 경우 16 Type에 비하여 펠렛의 단면적이 작고, 우라늄 양이 적은 WH OFA가 전 우라늄 농축도 구간에 걸쳐 최대 핵반응도를 보이는 것으로 나타났다. 이는 신연료에 대한 핵임계도는 핵분열성물질 U-235의 면적밀도에 비례함을 알 수 있다. 본 핵반응 경향성은 신연료를 기준으로 도출된 것으로, 상대적으로 우라늄 양이 많은 RFA의 경우 연소 후 U-238의 중성자흡수반응에 따른 PU-239의 생성증가로 인해 신연료일 때의 최대핵반응도를 갖는 WH OFA보다 연소 후 핵반응도는 클 것으로 예측된다. 따라서 추후 평가모델 설계기준연료 선정에 사용될 17 Type 대상연료를 WH OFA과 RFA로 한정하였다.

2.2 평가모델 설계기준연료 선정

평가대상연료 중 설계기준연료를 선정하기 위해서 SCALE 5.1 전산코드의 SAS2H 모듈을 사용하여 평가대상연료별 노심운전이력에 대한 핵반응단면적 라이브러리 생성한 후 SCALE 5.1 전산코드의 ORIGEN-S 모듈을 실행하여 농축도 2w/o ~ 5w/o 구간과 연소도 30 ~ 60 GWD/MTU 구간 및 냉각기간 10년 구간에 대해 노심내 연소된 사용후핵연료의 선원항을 산출하였다. 이와 같이 계산된 핵종 데이터를 기초로 참고문헌[4]에 따라, 부반응도를 유도하는 Fission Product를 제외한 양반응도를 유도하는 9개의 주요Actinde 핵종(^{234}U, ^{235}U, ^{238}U, ^{239}Pu, ^{240}Pu, ^{241}Pu, ^{242}Pu,

^{241}Am, ^{16}O)에 대한 연소도-농축도-냉각기간별 질량분율를 산출하였다.

설계기준연료 선정을 위한 임계해석은 몬테카를로법을 적용하여 복잡한 3차원 기하학적 구조에 대해서도 실제경우와 유사한 유효증배계수 계산을 가능하게 하는 KENO V.a 코드와 경수로 시스템에 적합한 ENDF/B-V 기반의 44군 라이브러리를 선택하여 수행하였다. 또한 해석결과의 수렴성을 확보하기 위해, 최소 1,000주기(주기당 최소 4,000개 생성)를 적용하였다.[5][6][7]

일반적으로 핵연료집합체는 표준 규격의 피복관 직경을 갖는 핵연료봉과 연소도 제어물질이 포함된 구조물로 구성되어 있으나, 보수성을 확보하고자 다음과 같은 가정조건을 반영하여 평가대상연료별 가상 핵연료집합체를 대상으로 연소도 임계해석을 수행하였으며, 그 결과를 그림에 제시하였다.

가. 핵연료집합체의 안내관에 존재하는 연소도 제어봉 및 핵연료집합체의 지지격자는 무시함

나. 안내관,계측관 내부 영역 및 핵연료봉의 펠렛-피복관 사이의 간극이 물로 충수됨

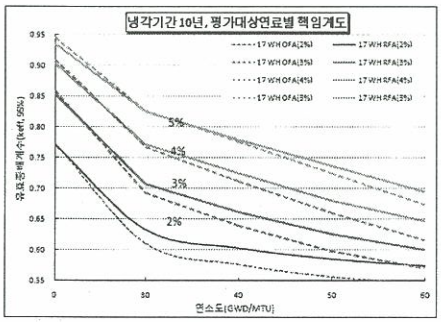


Fig. 2. Criticalities of Spent Fuel

3. 결론

임계해석 결과 농축도-연소도-냉각기간에 걸쳐 WH 17 Type RFA 연료가 최대 핵반응도를 갖는 것으로 평가되었다. 사용후핵연료의 연소이력를 활용하여 BUC적용 용기의 설계기준연료를 선정할 때 RFA가 대부분의 구간에서 최대 핵반응도를 나타내지만, 고농축-저연소도 구간에서는 OFA가 다소 높게 나타났으며(신연료 경향과 유사), 향후 실적용을 위한 정량적인 핵임계평가에서는 본 사항에 대한 반영이 검토되어야 한다.

4. 감사의 글

본 연구는 지식경제부의 방폐물관리기술개발 중장기기획과제의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] 한국수력원자력(주), "고리 1, 2, 3/4호기 최종 안전성분석보고서"

[2] 한국수력원자력, "영광 1/2, 3/4, 5/6호기 최종 안전성분석보고서"

[3] 한국수력원자력, "울진 1/2, 3/4, 5/6호기 최종 안전성분석보고서"

[4] Computational Benchmark for Estimation of Reactivity Margin from FPs and Minor Actinides in PWR BUC, NUREG/CR-6747, 2000

[5] SCALE: A Modular Code System for Performing Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluation, ORNL/TM-2005/39, 1.2006.

[6] KENO-Va: An Improved Monte Carlo Criticality Program with Supergrouping, L. M. Petrie and N. F. Landers, ORNL/TM-2005/39, Version 5, Sect. F11, 2005.

[7] Experience with the SCALE Criticality Safety Cross-Section Libraries, NUREG/CR-6686, Oak Ridge National Laboratory, 2000.

중간저장시설 확률론적 안전성평가 도구 SSAT 개발 및 활용

정종태, 황미정, 최인길, 김형진*, 윤정현*
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
*한국방사성폐기물관리공단, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
jtjeong@kaeri.re.kr

1. 서론

현재 국내에서는 원자력발전소 운영으로 인해 발생하는 사용후핵연료는 발전소 내에 임시 저장되어 있다. 사용후핵연료 발생양은 계속 증가하며 각 발전소의 저장용량은 부지별로 차이는 있지만 포화에 이를 것으로 예상되고 있다. 이러한 문제를 해결하기 위한 대안으로 사용후핵연료를 임시 저장하기 위한 연구가 진행되고 있다. 사용후핵연료 중간저장시설을 설계하고 운영하는데 있어서 최우선적으로 고려해야할 사항은 안전성 확보이다. 본 연구에서는 사용후핵연료 중간저장 시설의 안전성을 평가하기 위해 개발한 확률론적 안전성 평가 도구를 소개하고 활용 방안을 제안하는데 그 목적이 있다.

2. 본론

2.1 확률론적 안전성 평가 프로그램 개요

확률론적 안전성 평가(PSA, Probabilistic Safety Assessment) 기법은 원자력발전소의 안전성을 평가하기 위해 활발하게 활용되고 있으며 규제기관에서도 후행핵연료주기 시설의 안전성 평가 방법론으로 사건수목 방법론을 제안하였다. 확률론적 안전성 평가는 원자력발전소의 안전성평가 뿐만 아니라 방사성폐기물 처분장, 사용후핵연료 중간저장 시설 또는 다른 산업 분야에서도 안전성평가를 위한 수단으로 널리 활용되고 있다. 일반적으로 확률론적 안전성 평가는 자료 수집, 초기사건 선정, 사건수목 분석, 고장수목 분석, 결말분석으로 이루어져 있다. 사용후핵연료 중간저장 시설의 확률론적 안전성평가를 위해 운영재해도 분석 방법론을 이용한 초기사건 선정 모듈, 사건수목 및 고장수목 분석 모듈, 결말분석 모듈로 구성된 프로그램인 SSAT 1.0(Systematic Safety Assessment Tool)을 개발하였으며 이 프로그램의 초기화면은 그림 1과 같다.

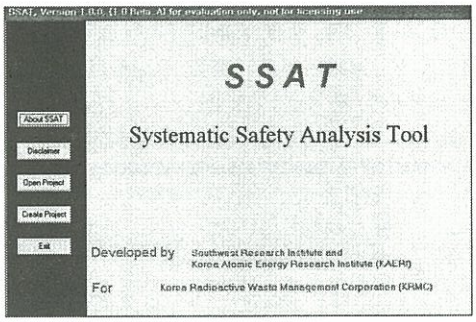


Fig. 1. The open screen of the SSAT 1.0

2.2 초기사건 선정 모듈

확률론적 안전성 평가를 위한 초기사건은 내부사건과 외부사건으로 구분한다. 외부사건은 일반적인 외부사건 목록을 작성하여 제시하고 사용자가 전문가적인 근거를 통하여 분석이 필요한 외부사건을 선정할 수 있다.

내부사건에 의한 초기사건 선정을 위해서 FMEA (Failure Modes and Effects Analysis), What If, Energy Method 방법론을 활용하여 고장 모드, 고장 원인, 고장 영향 및 부가적인 정보를 입력하고 이를 분석이 필요한 초기사건으로 선정하는 근거를 제시하는 화면을 구성하여 내부사건을 선정할 수 있다. 이 중 대표적인 FMEA 분석을 위한 화면은 그림 2와 같다.

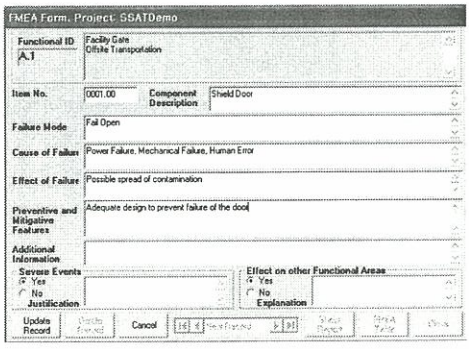


Fig. 2. Example of FMEA Form

2.3 사건수목 및 고장수목 분석 모듈

사건수목 및 고장수목 분석 모듈은 한국원자력연구원에서 개발하여 원자력발전소의 확률론적 안전성평가를 위해 이용되고 있는 AIMS-PSA를 이용하였다. SSAT의 주 메뉴 화면에서 운영재해도 분석을 통해 분석이 필요한 초기사건을 선정한 이후에 Freq.Analysis 메뉴에서 사건수목과 고장수목 구성을 한다. 이후에 AIMS-PSA 메뉴를 클릭하면 그림 3과 같은 AIMS-PSA 실행화면이 나타난다. 이 AIMS 프로그램을 이용하여 사건수목 및 고장수목 분석을 수행한다.

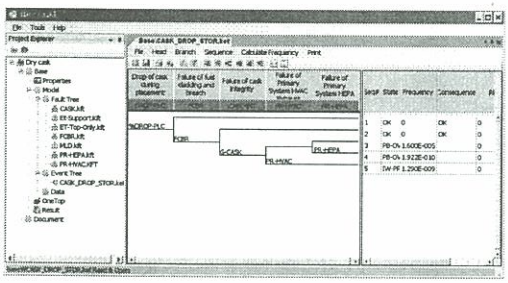


Fig. 3. Sample screen of AIMS Execution

2.4 결말 분석 모듈

결말 분석 모듈은 사건수목 및 고장수목 분석을 통해 구성된 사고 시나리오 중 방사성 물질이 발생하는 사고 시나리오에 대해 작업자 및 일반 대중에 대한 방사선 피폭선량을 평가하는 모듈이다. 피폭선량 평가는 결정론적과 확률론적 평가가 가능하며 대표적인 결정론적, 확률론적 피폭선량 평가 결과는 각각 그림 4와 5에 도시된 바와 같다.

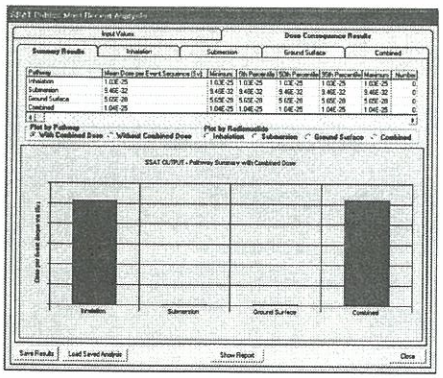


Fig. 4. Deterministic Exposure Dose Result

2.5 분석 지원 모듈

분석 지원 모듈로는 Perform, SW Reliability, Checklist, Failure Rate, Image 등이 있다. Perform 메뉴는 결과를 요약하여 보여주는 메뉴이다. SW Reliability 메뉴는 운영에 필요한 소프트웨어의 신뢰도 자료 입력 메뉴이다. Failure Rate는 시스템이나 부품의 신뢰도 자료와 참고문헌을 입력할 수 있는 메뉴이다. Image 메뉴는 확률론적 안전성평가를 위해 필요한 설계자료, 도면, 기타 필요한 모든 그림 파일을 저장하고 활용할 수 있도록 도와주는 메뉴이다.

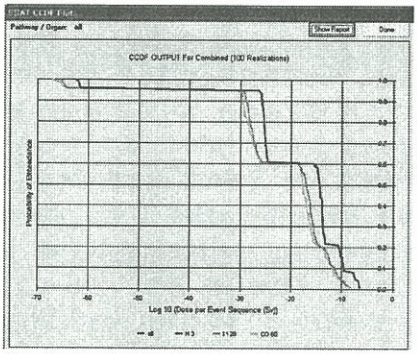


Fig. 5. CCDF Plot of Exposure Dose Result

3. 결론

사용후핵연료 중간저장 시설의 확률론적 안전성평가를 위한 프로그램 SSAT 1.0을 개발하였다. 이 프로그램은 향후 사용후핵연료 중간저장 시설의 기본설계가 이루어지면 설계 자료를 활용한 실제적인 안전성평가에 활용되며 결과는 안전 목표 만족여부를 확인하는데 활용되며 이를 통한 설계개선이나 안전성에 중요한 시스템, 구조물, 부품들을 확인하는데 유용하게 활용할 수 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 지식경제부의 방폐물관리기술개발 중장기 기획과제의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] 한국방사성폐기물학회, 2009년 추계학술발표회 논문요약집, pp.481-482, 2011.

[2] S. H. Han et al., "PSA Integration Analysis Software AIMS", AIMS-EzASQ 1.0, 2005.

국내 사용후 핵연료의 육상수송에 관한 고찰

권기현, 김병태, 최영구, 김대환, 홍지식, 임유경, 김기홍, 한병섭*, 이수홍*
선광원자력안전(주), 대전광역시 대덕구 신일동 1683-4
*(주)에네시스, 대전광역시 유성구 구암동 328
forever99k2@gmail.com

1. 서론

각 원전에서 발생한 사용후 핵연료를 처분장, 중간저장시설 등으로 안전하게 수송하기 위해서는 각각의 운송 경로에 대한 안전성 평가를 통해 운반 안전성을 확보해야 한다. 이러한 운반 안전성을 확보하기 위해서는 예상 경로에서의 사고분석, 사고확률 등 운반과 관련된 DB 구축과 방사선 안전성 확보방안을 수립하여, 사용후 핵연료 수송과정에서의 신뢰성을 확보해야 한다.

본 논문에서는 도로와 철도를 이용한 국내 사용후 핵연료 육상수송의 타당성을 검토하였다.

2. 본론

2.1 도로

대표적 육상 운송수단인 도로는 2009년 기준으로 고속도로 총길이 3,211km(민자 포함 3,447km)로 한반도 남북 총길이(1,100km)의 3배이며, 고속도로 총 부지면적은 8,151만평으로 여의도(254만평)의 33배이다. 고속도로 이외에도 많은 도로가 있으며, 국가경제에 끼치는 영향은 연간 약 139조원으로 분석되고 있다. 이와 같이 발달된 국내 도로망은 각 원전까지 도로가 연결되어 있으며, 사용후 핵연료의 수송을 도로로 이용할 경우, 기존 시설 이용에 따른 별도의 건설이 필요 없기 때문에 비용적인 측면에서 가장 유리한 운송수단으로 판단이 된다. 하지만 사용후 핵연료를 싣기 위한 트럭의 경우 CASK의 크기와 중량 그리고 CASK와 사용후 핵연료를 싣는 차폐 트럭의 총중량 등의 문제로 도로운행에 제약이 따른다.

2.1.1 국내 도로교통법

국내 도로교통법은 도로법, 도로법 시행령, 도로법 시행규칙에 따라 운행을 하고 있다. 도로의 종류와 등급은 도로법 '제8조'에 명시되어 있다.

[도로법]
제8조(도로의 종류와 등급)
도로의 종류는 다음 각 호와 같고, 그 등급은 다음에 열거한 순위에 따른다.
1. 고속국도
2. 일반국도
3. 특별시도(特別市道)·광역시도(廣域市道)
4. 지방도
5. 시도(市道)
6. 군도(郡道)
7. 구도(區道)

수송차량 또는 화물차량이 도로를 이용하기 위해서는 국내 도로교통법에 제시된 법규 내에서 운행을 해야만 한다. 도로교통법에는 '운행제한 차량'을 명시하고 있으며, 그 내용은 다음과 같다.

- 차량의 축하중 10톤을 초과한 차량
- 차량의 총중량이 40톤을 초과한 차량
- 적재물을 포함한 차량의 길이가 16.7m를 초과한 차량
- 적재물을 포함한 차량의 폭이 2.5m를 초과한 차량
- 적재물을 포함한 차량의 높이가 4.2m를 초과한 차량

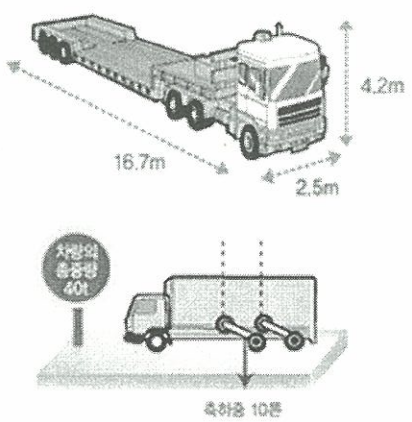


Fig. 1. Shuttle vehicle restrictions

2.1.2 사용후 핵연료 수송용기 및 차량

국내 사용후 핵연료를 수송하기 위한 운반용기, 수송차량 등에 대한 육상수송 방안이 현재 결정된 사항은 없지만, 사용후 핵연료 자체에서 발생되는 강한 방사선과 열을 차폐해야하기 때문에 전용 수송용기(CASK)에 넣어 수송이 이루어져야 한다. 수송용기는 매우 두꺼운 차폐재를 이용하여 제작이 되며, 이러한 차폐 조건을 만족하기 위해 사용되는 수송용기의 경우, 사용후 핵연료와 수송용기의 총중량이 100톤을 상회하며, 이러한 중량의 사용후 핵연료(CASK 포함)를 운반하기 위해서는 특수 제작된 차량이 필요하게 된다. 프랑스의 경우 프랑스 원자력발전소에서 재처리 공장으로 사용후 핵연료를 수송하기 위해 사용되는 차량의 사양은 길이 24m, 높이 4.7m, 최대 적재 중량 175톤의 규모로 제작이 된다.(Fig. 2. 참조)

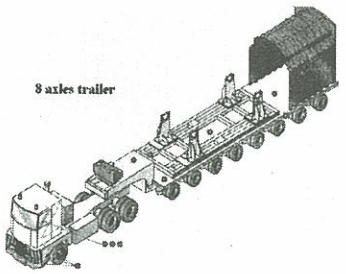


Fig. 2. France's spent fuel transport vehicle

프랑스의 8축용 수송차량을 국내에서 사용할 경우, 차량 사양은 도로교통법의 운행제한차량의 모든 기준을 초과하기 때문에 차량운행을 할 수가 없으며, 차량 총중량을 120톤으로 가정하면 각 축하중은 약 15톤으로 이는 운행차량의 축하중이 15톤일 때 승용차 39만대가 통행하는 도로파손과 같다. 따라서 국내 도로교통법에 명시된 운행 제한차량의 사양을 만족하는 차량으로 제작하거나, 도로교통법에 명시된 '운행제한차량의 운행허가 신청'을 통하여 운행을 해야 하지만, 막대한 도로파손의 영향과 고방사능 핵물질의 민간지역 경유라는 문제로 인해 운행허가가 어려울 것으로 예상이 된다.

2.2 철도

대량 화물수송의 대표적인 운송방식인 철도를 각 원전에서 가장 가까운 거리의 철로로 연결하여 사용후 핵연료를 수송할 경우, 그에 따른 건설비용과 기간을 산출하였다.

2.2.1 일반철도 건설비용

고리, 울진, 영광 각 원전에서 최소거리에 위치한 철로로 건설을 할 경우, 원전지역이 해안가에 위치하므로 연약구간으로 가정하여 km당 철도 건설비용을 산출하였다.(Table. 1, 2. 참조)

Table 1. Common rail construction costs per km(unit:억원/km)

공 종			단 선 일반부	부분합계
노반	토 공	연약구간	79	177.5
	정거장	2홈2선	79	
	- 궤 도		7	
	- 전 력		3.3	
	- 신 호		4.3	
	- 통 신		4.9	
건물	일반철도	지상	58	58

Table 2. The estimated cost for railway construction

구분	철도건설 최소거리	예상 건설비용
고리원전	1.4 km	306.5억원
울진원전	30 km	5,383.0억원
영광원전	37 km	6,625.5억원

2.2.2 건설기간

'철도건설 표준공정기간'에 따르면 원전물질 수송이라는 사안으로 인해 철도건설 지역 주민들과의 마찰 및 협상을 배제한다고 하여도 기본계획에서 시운전까지 12년이라는 기간이 소요된다.

3. 결론

국내의 대표적인 육상수송 방식인 도로와 철도를 사용하여 사용후 핵연료를 수송 할 경우 그에 따른 타당성을 분석하였다. 도로의 경우 운행차량의 문제점이 있으며, 철도의 경우 막대한 건설비용과 장기간의 건설이 필요함을 파악할 수 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 지식경제부에서 시행한 지식경제 기술혁신사업의 지원을 받아 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

5. 참고문헌

[1] 한국도로공사(http://www.ex.co.kr/)
[2] 2008년도 예비타당성조사 연구보고서 도로·철도 부문 사업의 예비타당성조사 표준지침 수정·보완 연구(제5판)

사용후핵연료 건식저장시설 주요 안전특성의 정량적 참고치

채경선, 박병목, 신경욱, 박장순, 전상환
세안기술(주), 서울시 금천구 가산동 481-10 벽산디지털밸리2차 910호
gschae7@sae-an.co.kr

1. 서론

사용후핵연료를 안전하게 취급하고 저장할 수 있는 방사선차폐능력을 유지하고, 사용후핵연료의 임계를 효율적으로 방지하며, 사용후핵연료가 붕괴열 등으로 인하여 용융되는 것을 방지할 수 있는 냉각능력을 유지할 것, 해일·회오리바람·태풍·홍수·폭설·폭우 또는 지진 등의 자연현상에 의한 손괴로 인하여 일반인에게 방사선에 의한 장해가 발생하지 않도록 할 것, 화재 또는 폭발 등이 발생한 경우에도 안전성을 유지, 방사선사고에 의한 방사성물질의 유출로 주변환경 및 일반인에 대한 방사성물질의 오염 또는 방사선피폭을 방지해야 한다는 것을 내용으로 하고 있는 방사선안전관리등의 기술기준에 관한 규칙[1] 제67조에 정하는 사용후핵연료 중간저장시설의 구조 및 설비에 관한 기술기준은 사용후핵연료 건식저장시설이 갖춰야할 전체적인 안전성기준을 요약하고 있다. 뿐만 아니라 사용후핵연료 인도규정[2]에서도 사용후핵연료의 기계적건전성, 열적영향, 냉각, 핵임계안전 및 선량제한 등에 대해 정성적 기준으로 명확하게 정의하고 있다. 해외사례[3~6]를 보더라도 안전성관련 기준들은 대부분 정성적인데 이것은 사용후핵연료 건식저장 방식, 설계특성 등의 제반요소가 사용후핵연료의 연소도, 냉각기간, 용기에 보관될 사용후핵연료량, 구조재료의 선택, 형태 및 크기, 중량 등에 따라 다양해질 수 있기 때문일 것이다. 국내·외 상용화되어 사용중인 운반, 저장 또는 겸용목적의 건식저장용기는 약 120여종이상이며 다양한 설계특성을 갖고 있다.

월성부지내에 중수로형 사용후핵연료를 건식저장하고 있는 국내에서도 경수로형 사용후핵연료를 건식저장할 목표로 연구개발이 진행중이며, 사용후핵연료 가동이력 등의 특성에 적합한 국내 고유모델의 건식저장시스템이 개발될 것으로 예상된다. 본 고에서는 사용후핵연료 건식저장용기의 주요 안전성요건이 정량적으로 평가되어 상용화된 특성을 조사하였다.

2. 본론

2.1 방사선안전성

원자력관계법규는 작업자 및 일반인에게 방사선피폭상의 영향이 미치지 않도록 하는 차폐기능 등 방사선안전성과 관련해서는 정량적으로 명확히 규정하고 있다. 국외의 경우도 유사한데, 원자력법시행령 제2조에 정의한 선량한도를 초과하지 않아야하며, 방사선방호등에 관한 기준고시 제16조에 정의한 건식저장시설의 제한구역경계에서 기체상 및 액체상 방출률을 제한하고, 건식저장시설이 원자력관계시설 부지내 설치될 경우 유효선량은 년간 0.25mSv, 갑상선 등가선량은 년간 0.75 mSv로 제한하고 있다. 제13조에서는 차폐벽 및 차폐물에 대해 방사선작업종사자와 일반인의 선량한도를 각각 초과하지 않고 주간 방사선량률한도(1mSv/week 및 0.1mSv/week)를 정하고 있다. 원자로시설등의 기술기준에 관한 규칙 제33조, 방사선안전관리등의 기술기준에 관한 규칙 제93조 및 제94조에서는 사용후핵연료를 넣은 용기표면에서의 방사선량률(2mSv/h, 1m지점은 0.1mSv/h)과 표면오염도 기준을 정하고 있다.

2.2 핵임계안전성

사용후핵연료는 취급, 운반시에 핵임계사고의 방지등 핵임계안전이 유지될 수 있도록 포장되어야 하며, 운반시에는 핵임계안전지수 50을 초과하지 않도록 해야 하고, 저장시에는 시설의 예상 수명기간동안 임계조건에 도달하지 않도록 핵임계방지기능을 유지할 수 있도록 하고 있다. Table 1. 에서 처럼 상용화된 대다수의 건식저장용기는 핵임계안전을 위해 유효증배계수(Keff)가 0.95를, 사고조건에서도 0.98을 초과하지 않도록 하고 있다.

2.3 열적안전성

캐스크에 장입된 핵연료집합체와 캐스크를 구성하는 기기의 건전성 유지를 위해 사용후핵연료가 방출하는 붕괴열을 일정한 수준 이내로 제거하는 기능에 대해서는 붕괴열 등으로 인하여 용융되는

것을 방지할 수 있는 냉각능력을 유지해야 하는데 사용후핵연료 인도규정고시에서는 별도협의가 없는 한 최소 5년 이상의 냉각기간이 경과한 사용후핵연료를 건식저장하도록 규정하고 있고, 미국의 안전심사지침인 NUREG-1567에서는 연소도 45GWD/MTU이하 5년이상 냉각한 사용후핵연료의 피복관 온도를 정상조건에서 380℃이하(10년 냉각기준은 340℃이하), 사고상태에서 570℃이하로 제한하고 있으나, 최근 임시규제지침(ISG-11)을 반영한 NUREG-1567 개정안에서는 지르코늄 합금 기반의 피복관 온도를 정상상태에서 400℃ 이하로 제한하고 있다.

Table 1. Design characteristics with respect to Concrete & Metal type Dry storage

Type	Concrete Type		Metal Type	
Model	HI-STORM 100	MAGNA-STOR	HI-STAR 100	NAC-MPC
# of Assembly	24	37	24	36
Max.Enrichment (w/o)	5	5	5	5
Max.Burnup (GWD/MTU)	68.2	60	42.1	36
Min.Cooling (year)	3	4	5	8
Max.Heat Load (kW)	28	35.5	26	12.5
Criticality (Keff <)	0.95	0.95	0.95	0.95
Temperature(℃) (Clad, Max)	380	379	380	380
(Concrete,Max)	149	149	-	-
(Accident,Max)	570	570	570	649

2.4 격납(기계적) 건전성

사용후핵연료내의 방사성물질을 적절하게 가두어 두는 격납기능으로서 사고시를 포함한 해일·회오리바람·태풍·홍수·폭설·폭우 또는 지진 등의 자연현상에 의한 손괴 등으로 인하여 일반인에게 방사선에 의한 장해가 발생하지 않도록 해야한다는 것은 어떤 사유로든 방사성물질이 유출되지 않아야 한다는 것으로 귀결될 수 있다. 상용화된 대다수의 건식저장용기는 이러한 사고조건을 가정한 건전성 입증시험 절차를 거쳐 안전성을 입증하고 있는데 정상, 비정상, 사고조건 및 자연재해 상황에서 건식저장용기의 낙하, 살수, 파열, 관통, 화재 및 침수시험 등을 포함한다.

국내에서도 경수로형 사용후핵연료 소내운반을 위해 개발된 KSC-4 및 KN-12 운반용기의 안전성 입증을 위해 한국원자력연구원내 안전성입증시험시설을 건설, 입증시험을 수행한 바 있고, KN-18운반용기의 1/3축소모델에 대한 기계적시험과 침수시험, 1/8모델에 대한 화재시험을 수행하는 등 축소모델에 대한 안전성입증시험기술을 보유하고 있다. 최근 들어 사회적수용성면에서 파급효과가 큰 것으로 나타난 원형규모시험에 대한 관심이 증가하고 있는 것은 사실이지만, NRC에서도 인허가 절차상 원형규모시험을 요구하고 있지 않고, 축소규모 입증시험일지라도 기술적으로 그 타당성과 원형규모 실현성이 검증되어 있어서 막대한 예산과 장기간 소요되는 원형규모 입증시험은 신중할 필요가 있다.

3. 결론

국민의 건강과 환경에 부당한 위해를 유발하지 않고 사용후핵연료를 적절하게 인수, 취급, 저장하고 필요시 회수할 수 있는 기능을 보장하는 것을 목적으로 하는 사용후핵연료 건식저장 기술의 자립은 사용후핵연료 관리정책에 유연성을 제공할 수 있고, 향후 회수재활용 할 수 있다면 에너지 안보까지 기대해볼만하다. 이를 위해서는 국내사용후핵연료 특성 및 이력 등에 관한 데이터베이스 확보가 필연적이며 이에 적합한 설계특성을 결정하고 독자적 건식저장체계를 구축해야 할 것이다.

4. 감사의 글

본 연구는 지식경제부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행중인 연구과제입니다.(No.2009171020001A-12-3-020)

5. 참고문헌

[1] "방사선안전관리 등의 기술기준에 관한 규칙", 교육과학기술부령 제24호, 2009.

[2] "사용후핵연료 인도규정고시", 교육과학기술부 고시 제2009-37호, 2009.

[3] "Licensing requirements for the Independent storage of SNF, ---", 10CFR Part72, USNRC.

[4] "Packaging and Transportation of Radioactive Material", 10CFR part71, USNRC.

[5] "Design Criteria for --- (Dry Storage Type)", ANSI/ANS 57.9, 1982 (R2000).

[6] "Standard Review Plan for ---", NUREG-1536, Rev1A, 2010.

중저준위방사성폐기물관리비용 산정 방안

이상진, 박성재
한국방사성폐기물관리공단, 경북 경주시 북부동 116-3
voids@krmc.or.kr

1. 서론

경주 방사성폐기물처분장 준공에 앞선 우선 사용에 따른 방사성 폐기물 드럼 반입이 본격화 됨에 따라, 이에 따른 드럼 반입시 부과되는 중저준위방사성폐기물관리비용에 대한 산정 기준 및 방법에 대한 검토가 필요하다. 특히, 방사성폐기물관리법 제14조에서는 방사성폐기물발생자가 방사성폐기물을 방사성폐기물관리사업자에게 인도할 때 관리비용을 납부하도록 규정하고 있으며, 동법 시행령 제5조에서는 관리비용 산정 기준을 매 2년마다 지식경제부 장관에게 검토하도록 규정하고 있다. 본 논문은 중저준위 방사성폐기물관리비용 산정을 하기 위하여 외국 방사성폐기물처분장을 운영하고 있는 국가에서 부과하고 있는 관리비용 산정 기준을 검토 분석하고 국내 현실에 부합된 관리 비용 산정 방안을 제시하는데 그 목적이 있다.

2. 본론

2.1 해외 방사성폐기물관리 비용 산정 현황

2.1.1 미국

1971년부터 인허가를 받아 운영 중인 반웰 처분장은 사우스캐롤라이나 예산심의위원회에서 처분시설 운영자가 방사성폐기물 발생자로부터 회수할 수 있는 최대처분비용(Maximum disposal rate)을 결정하여 고시한다. 이 비용은 매년 전년도 비용에 생산자 물가지수를 반영하여 변경하며 이의 기초자료인 운영비용은 공공서비스위원회(Public Service Commission)에서 승인한다.

처분시설 운영자는 고시된 최대처분비용을 기준으로 이를 초과하지 않는 범위 내에서 폐기물발생자와 협의하여 구체적인 관리비용을 산정한다.

2008년 7월1일부터 적용되는 최대처분비용에 의한 관리비용 부과기준은 다음 식과 같다.

$$\text{관리비용} = \textit{Weight Charges} + \textit{Surcharges} \quad \cdots\cdots (1)$$

여기서 Weight charges는 Base weight charge에 Dose multiplier on base weight charge를 곱한 값에 Biological Wastes을 더해서 구해진다. 또한, Surcharges는 Millicurie surcharges, Irradiated Hardware Charges Special Nuclear Material surcharges 등으로 구성된다.

워싱턴주 리치랜드에 소재한 U.S. Ecology 처분장의 관리비용은 매년 워싱턴 공공요금위원회(Washington Utilities & Transportation Commission)에서 정해놓은 최대수익마진(25%)과 방사성폐기물 추정발생량에 기초하여 결정된다.

유타주 클리브에 위치한 EnergySolutions Clive Operations 처분장의 관리비용은 정기적으로 남서부 저준위방사성폐기물 위원회(Southwestern LLRW commission)에서 결정된다. 관리비용은 부피를 기준으로 산정하고 있으며 상대적으로 다른 처분시설에 비해 단순한 편이다. 2007년 말 현재 고시된 관리비용 요율은 다음과 같다.

① 40 ft^3 이하: \$55
② 41 ~ 40,000 ^{3}: \$1.35/ft^3
③ 40,000 ft^3 이상: \$54,000 + 40,000 ft^3 초과 분 × \$0.1/ft^3

이상과 같이 미국의 각 처분시설별 관리비용은 약간의 차이가 있으나, 기본적으로 부피, 중량 등을 고려한 기본요금과 방사성폐기물 특성을 고려한 할증금으로 구분할 수 있다. 기본요금은 방사성폐기물 처분을 위해 경상적으로 발생하는 변동비나 고정비를 회수하기 위한 것이라면, 할증금은 특정 방사성폐기물을 처분하기 위해 발생하는 비용에 대해 각 사례별로 부과하는 요금이다. 다만, 미국 상용처분시설은 영리법인의 특성을 고려하여 관리비용에 일정수준의 마진이 포함되어 있다.

2.1.2 프랑스

프랑스의 ANDRA에서 운영하고 있는 처분시설도 미국의 상용처분시설과 유사한 방법으로 관리비용을 부과하고 있으며 방사성폐기물별로 β 및

β-r 핵종은 반감기를 기준으로, C-14는 방사능을 기준으로 각각의 기준을 초과할 경우 특별 회수 기준을 적용하여 할증금을 부과하고 있다.

2.1.3 일본

일본 원자력발전소에서 발생하는 저준위방사성폐기물 처분은 JNFL에서 수행하고 있다. JNFL은 원전사업자들과 협의하여 연초에 연간 방사성폐기물 반입계획을 세워 고시하고, 원전사업자 역시 동일한 내용을 고시한다. 처분 비용은 JNFL에 반입하는 폐기물의 양에 비례하며, 해당 단가는 원전사업자와 JNFL간의 협상을 통해 확정된다. 처분단가는 총비용을 처분 용량으로 나누어서 산출하며, 총비용은 크게 건설비, 운영비, 해체철거비 로 구분되며, 건설비에 건설 중 이자 비용이 포함되어 있다.

$$\text{처분단가} = \frac{(\text{건설비} + \text{운영비} + \text{해체철거비})}{\text{처분용량}} \quad \cdots\cdots (2)$$

2.1.4 우리나라

현행 우리나라 중저준위방사성폐기물관리비용의 산정 기준은 처분장의 건설에서 폐쇄까지 총 이용기간 동안 발생하는 총비용을 회수할 목적으로 총비용을 공통시설 및 처분시설 건설비용, 처분시설 운용비용 그리고 폐쇄비용으로 구분하여 각 비용을 그에 대응되는 처분예상드럼수로 배분하여 단가를 산정하고 있다.

$$\text{관리비용} = \frac{\text{공통시설건설비}}{\text{80만드럼}} + \frac{\text{동굴처분시설건설비}}{\text{10만드럼}} + \frac{\text{처분시설운영비}}{\text{13,000드럼}} + \frac{\text{폐쇄비용}}{\text{드럼}} \quad \cdots\cdots (3)$$

식(3)에 의하면 처분 대상 방사성폐기물의 방사능 등을 고려하지 않고 총비용을 공통시설 및 처분시설 건설비용, 처분시설 운영비용 그리고 폐쇄비용으로 구분하여 각 비용을 그에 대응되는 처분예상드럼수로 배분하여 단가를 산정하며, 방사성폐기물 특성을 고려한 할증금이나 건설비용 조달에 수반되는 건설이자 등에 대해 고려되지 않고 있는 것이 외국 사례와의 커다란 차이점이다.

2.2 중저준위방사성폐기물관리비용 산정 방안

중저준위방사성폐기물관리비용을 산정하는 기본 방향은 처분시설에 대한 전체 사업기간 동안 발생하는 총비용을 적시에 회수함으로써 방사성폐기물과 처분시설을 안정적으로 관리하는데 있다.

특히 식(4)에는 초기 건설비 조달에 따른 발생 가능한 금융비용이 반영되어 있지 않아 이에 대한 개선이 필요하며 이를 반영한 개정 산식을 제시하면 다음과 같다.

$$\text{관리비용} = \frac{\text{공통시설건설비}}{\text{80만드럼}} + \frac{\text{동굴처분시설건설비}}{\text{10만드럼}} + \frac{\text{처분시설운영비}}{\text{13,000드럼}} + \frac{\text{폐쇄비용}}{\text{드럼}} + \text{금융비용} \quad \cdots\cdots (4)$$

식(4)의 금융비용은 처분장 건설을 위해 방사성폐기물관리기금의 사용후핵연료관리계정에서 중저준위방사성폐기물관리계정으로 전입되는 총 조달액의 이자비용을 관리비용에 반영하여야 하며, 처분장 운영기간 동안 반입되는 방사성폐기물의 관리비용으로 회수하여야 한다.

3. 결론

국내 실정에 적합한 중저준위방사성폐기물관리비용을 산정하기 위하여 해외 주요국 산정기준과 비교한 결과 방사성폐기물 특성과 금융비용을 고려하지 않고 산정한 것이 외국 사례와의 커다란 차이가 있는 것으로 나타났다.

이에 금융비용을 산출하여 중저준위방사성폐기물관리비용을 산정할 수 있는 산식을 개발하여 반입되는 드럼에 이를 반영하여 처분시설 건설 및 운영 관련 비용을 회수할 수 있는 방안을 제시하였다. 하지만 방사성폐기물 특성을 고려할 수 있는 관리비용 산정 방안에 대해서 추가로 연구할 필요가 있다.

4. 참고문헌

[1] 한국방사성폐기물학회, 2008년 추계학술발표회 논문요약집, pp86-87, 2008.

[2] Atlantic Interstate Low-Level Radioactive Waste Compact Implementation Act.

[3] Uniform Schedule of Maximum Disposal Rates for Atlantic Compact Regional Waste, 2009.

[4] Chapter 81.108 RCW, Low-Level radioactive waste sites, Washington state Legislature.

누적효과를 고려한 사용후핵연료 수송사고 시험모델 평가

김형진, 윤정현, 최우석*, 서기석*
한국방사성폐기물관리공단, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
*한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
hjkim@krmc.or.kr

1. 서론

사용후핵연료 수송용기 관련 국내법규는 가상사고조건하에서 용기의 안전성 확보를 요구한다. 가상사고조건에는 Fig. 1. 과 같이 낙하, 파열, 화재, 침수가 있으며, 원칙적으로 연속적으로 수행되어야 한다.

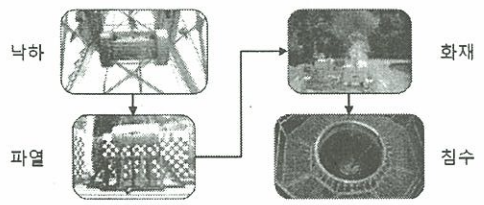


Fig. 1. Hypothetical accident conditions

국내에서는 축소모델 및 슬라이스 모델을 각각 사용하여 낙하/화재시험을 수행하였다. 즉 별도의 모델을 사용함으로서 각각의 시험결과가 누적되는 시험은 수행하지 않았으며, 해석 또한 각각을 독립적으로 수행하였다. 이는 해석기법상 각 단계간의 결과값 전달이 용이하지 않은 이유 때문이었다.

본 연구에서는 누적효과를 반영한 시험을 통해 실제 용기의 손상 경향 및 원형시험모델의 시험시 고려사항을 알아보고자 한다.

2. 본론

2.1 예비시험모델 설계 및 시험조건 선정

2.1.1 시험모델 설계

누적효과를 잘 모사하기 위하여 일반운반용기(충격완충제, 차폐재등을 갖추고 있는 용기)가 아닌 원통형 쉘 구조물을 선정하였다. 이러한 조건에 의하여 제작된 시험모델의 형상은 Fig. 2. 와 같다.

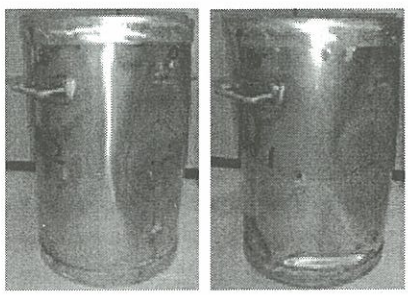

Fig. 2. Test model

2.1.2 시험조건 선정

사고조건의 연속적인 시험 수행 시 누적되는 효과를 평가하기 위하여 2가지의 시험조건을 선정하였다. 첫 번째는 시험모델을 이용하여 파열시험만을 수행하였고, 두 번째는 낙하시험 이후 파열시험을 순차적으로 수행하였다. 낙하시험은 수직낙하 시험이며, 파열시험은 수평낙하시험으로 선정하였다.

2.1.3 시험결과

Fig. 3. 은 낙하시험 이후 변형된 용기의 형상을 나타낸다. 우측은 수직낙하시험 없이 수평파열시험만을 수행한 경우이며, 좌측은 수직낙하시험 이후 수평파열시험을 연속적으로 수행한 경우이다. 그림에서 볼 수 있는 것처럼 누적효과를 반영한 시험의 경우 수직낙하시험에서 발생한 소성 변형


Fig. 3. Deformation after drop test

이 파열시험 이후에도 남아 있음을 알 수 있다.

또한 변형이 넓게 분포되어 있음을 볼 수 있다. 이는 수직낙하시험 이후 용기에 잔류응력이 남아 있어 추가적인 충격에 대하여 변형이 더 크게 진행하는 것으로 판단된다.

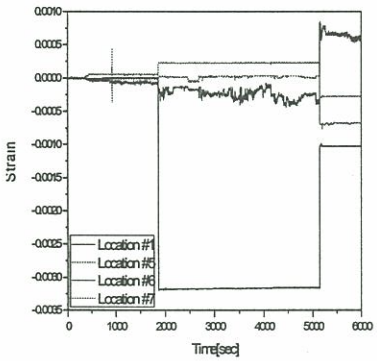


Fig. 4. Strain rate applied to sequential test

Fig. 4. 은 낙하시험 후 파열시험을 연속적으로 수행했을 때 시험 전체 시간구간에 대한 변형율 이력이다. 약 1800초 부근에서 낙하시험, 5200초 부근에서 파열시험이 각각 수행되었으며, 시험 수행에 따라 소성변형률이 다른 값으로 변화함을 알 수 있다.

시험결과를 통해 이전단계에서 누적된 손상을 고려하면 용기는 더 큰 손상을 입는다. 그러나 충격을 받는 지점에 따라 낙하와 파열에 의해 발생한 응력의 방향이 달라 최종응력이 감소되는 경우도 발생함을 알 수 있다.

2.2 본시험모델 설계

2.2.1 시험모델 설계

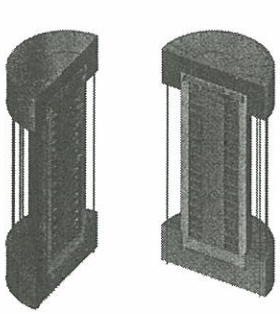


Fig. 5. Analysis model(1/3 scale model)

본 시험모델의 전산해석 모델링은 Fig. 5.와 같다. 예비시험모델과 달리 충격완충제, 캐니스터,캐스크로 이루어져 있으며, 완충재 재질은 발사우드를 사용하였다. 수송/저장 겸용 금속용기이며, 사용된 주요재질을 다음과 같다.

- 캐니스터(Canister) : A240 Type 304
- 캐스크(Cask) : A516 Gr. 70
- 내부 충격 완충재질 : Balsa wood

2.2.2 시험조건 및 시험결과

시험조건은 수평낙하시험 후 수평파열시험을 연속적으로 수행하는 것으로 선정하였으며, 시험 전체 시간구간에 대한 변형율 이력은 Fig. 6.과 같다.

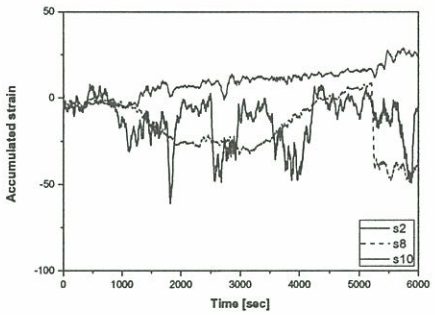


Fig. 6. Strain rate applied to sequential test(cask body)

수평낙하시험은 1200초, 수평파열시험은 5200초에서 수행되었다. 예비시험의 결과와 비교해 보면 충격완충제가 잘 설계된 수송용기에서 누적되는 손상은 크지 않다고 판단된다. 그러나 충격완충제 방향으로 낙하 이후 수직파열시험을 수행하는 경우는 누적손상이 최대가 되므로, 누적효과를 고려해 볼 수 있을 것이다.

3. 결론

누적효과를 고려한 사용후핵연료 수송용기 평가체계 구축을 위한 예비시험 및 본시험을 수행하였다. 연속된 낙하 시험의 유형에 따라 누적되는 손상은 크지 않을 수 있지만, 용기에 최대 손상을 주는 누적시험과 저장용기에 대해서 발생하는 사고조건에 대한 누적효과는 고려할 필요가 있을 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

[1] KRMC, "사용후핵연료 수송/저장 핵심 설계기술 개발 1단계 평가보고서", 2011.

MCNPX를 이용한 사용후핵연료 연소도측정용 CZT 검출기 설계

박준식, 이태훈, 신희성, 김호동, 김용균*, 박세환
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
*한양대학교, 서울시 성동구 행당동 한양대학교
ex-spark@kaeri.re.kr

1. 서론

핵연료의 저장시설 및 수송용기 설계 시 우선적으로 고려해야 할 요소는 핵임계 안전성이다. 사용 후 인출된 핵연료 내부의 핵종 구성은 필연적으로 처음 새연료와 비교하여 상당한 차이를 가지게 되므로 연소도 효과(burnup credit)를 고려한 핵임계 해석을 통한 저장 및 수송용기의 최적화가 필요하다. 사용후핵연료의 연소도를 추정하기 위하여 주로 사용되고 있는 지표 중 한 가지는 핵연료 내부에 생성되는 Cs-134, Cs-137 핵종비이며 이 핵종의 양을 감마선 에너지 분광분석법을 이용하여 측정하게 된다.

사용후핵연료에서 발생되는 감마선 에너지 분광에 사용되는 검출기로 Cadmium Zinc Telluride(CZT) 반도체 검출기를 고려할 수 있으며 에너지 분해능은 HPGe 검출기보다 떨어지나 에너지 갭의 간격이 크기 때문에 따로 냉각장치를 구현할 필요 없이 상온에서 사용할 수 있다는 이점이 있다. 본 연구에서는 집합체 외면에서 감마선 검출을 위한 CZT 검출기 설계를 MCNPX 시뮬레이션 통하여 수행하였다.

2. 본론

사용된 CZT 검출기와 차폐체의 구성은 아래 그림과 같다.

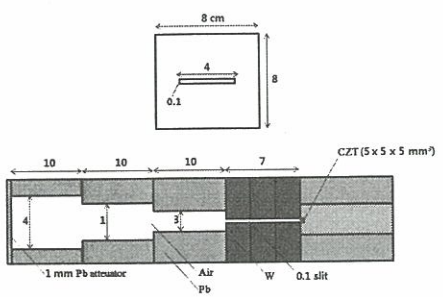


Fig. 1. Dimension of the CZT crystal and surrounding shielding materials.

이 때 검출기를 계수율이 가장 높을 것으로 예상되는 지점인 핵연료집합체 축방향의 중심에 위치시키고 검출기와 핵연료집합체와의 거리 및 텅스텐 블록의 길이 변화에 따른 계수율 변화를 MCNPX 시뮬레이션 코드를 사용하여 계산하였다.

2.1 Source term 계산

14×14 핵연료집합체를 대상으로 균질한 UO_2로 이루어진 $20\,cm \times 20\,cm \times 360\,cm$ 크기의 cell을 선원체적으로 고려하였다. 방출되는 감마선원의 에너지분포를 SCALE 6 전산해석 코드를 사용하여 계산하였으며 3.199 wt%의 ^{235}U의 농축도를 가진 UO_2 핵연료집합체가 3-cycle 과정을 거쳐 인출된 후의 잔류핵종으로부터 방출되는 감마선의 에너지 분포를 MCNPX 시뮬레이션의 선원항으로 사용하였다. 사용후핵연료의 냉각기간은 29년이었으며 사용된 감마선의 에너지 분포를 Fig. 2에 나타내었다.

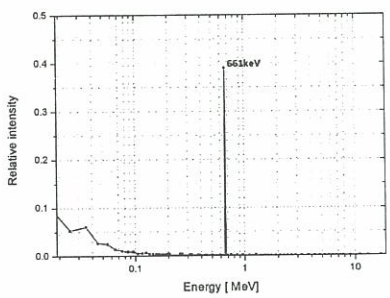


Fig. 2. Gamma energy distribution of the fuel assembly used in the simulation. (Burnup : 32000 MWD/MTU).

선원에서 발생된 입자가 체적 내에서 일으키는 상호작용으로 인한 계산시간을 최소화하기 위하여 선원 체적을 둘러싸고 있는 표면에 대한 fluence tally 계산을 수행 후 얻은 에너지 분포를 사용하여 체적선원을 면선원으로 대체하였다.

2.2 Count rate 평가

선원으로부터 방출된 감마선은 대부분 CZT 결정에 도달하기 전에, 주변의 물과 CZT 결정을 둘러싸고 있는 납 및 텅스텐 차폐체와의 산란반응 등으로 인하여 감쇄된다. CZT 결정까지 도달하는 입자 수가 극히 적기 때문에 낮은 오차의 pulse height tally 계산을 수행하기 위하여 슬릿과 평행한 선상에 위치하여 있는 핵연료집합체 영역에서 매우 작은 각도로 방출된 입자만이 슬릿을 지나 CZT 결정에 도달한다고 가정하였다. 이를 검증하기 위하여 사용된 면선원을 mesh 형태로 분할하여 각 구역에서의 기여 정도를 평가하였고 이를 바탕으로 입자가 방출되는 영역과 방출각도를 제한하였으며 계산 후 보상해주었다. 또한 슬릿 내부 영역에 진입한 입자의 track 수를 기준으로 splitting 기술을 적용하였다. 검출기와 선원 사이의 거리가 40 cm일 때 텅스텐 블록의 길이를 변화시켜 가며 얻은 에너지 661 keV 근처 영역에서의 계수율을 Fig. 3 에 나타내었다. 이 때 적용된 핵연료집합체의 activity는 $1.8\times10^{16}\,\gamma/s$ 이다.

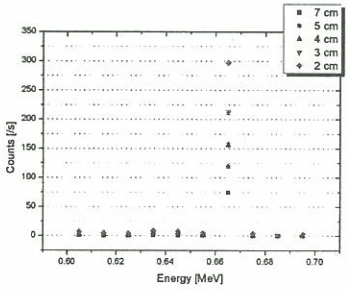


Fig. 3. Change of a count rate with respect to the change with a length of the tungsten block.

검출기과 핵연료집합체 사이의 거리를 변화시켜가며 얻은 계수율의 변화를 Fig. 4에 보였다.

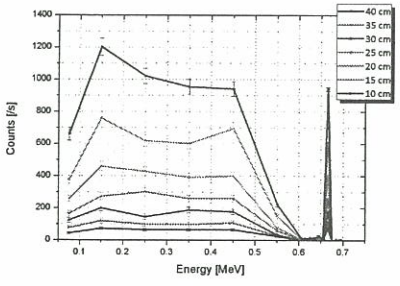


Fig. 4. Change of a count rate with respect to the change of the distance between the detector and the fuel assembly. (Burnup : 32000 MWD/MTU)

슬릿을 지나지 않고 차폐체를 직접 통과하여 결정까지 도달하는 감마선의 경우, detector tally card를 사용하여 CZT 결정 주변의 감마선 flux 도출 후 다시 동일한 환경 하에 있는 CZT 결정에 대한 pulse height tally를 계산하는 방식으로 평가하였다.

3. 결론

본 연구를 통하여 여러 연소도를 갖는 핵연료집합체의 감마선 계수율을 예측할 수 있었으며 향후 수행될 수조 시설 내 사용후핵연료의 연소도 측정 실험에서의 알맞은 감마선 검출기 거리 및 차폐체의 형태 결정 시 활용될 것으로 기대된다. 또한 더 세부적으로 구현된 핵연료집합체에 대한 감마선 및 중성자 연소도 평가 시뮬레이션이 이루어질 계획이다.

4. 감사의 글

This work has been carried out under the nuclear R&D program of the Ministry of Education, Science and Technology (MEST) of Korea, and research project (2009T100100650) from KETEP, Ministry of Knowledge Economy. This work was also partly supported by the Korea Research Foundation Grant funded by the Korean Government(MOEHRD, Basic Research Promotion Fund) (KRF-2008-313-D01255).

5. 참고문헌

[1] W. S. Charlton, D. Strohmeyer, A. Stafford, S. Saavedra, A. S. Hoover, C. Rudy, "The Use of Self-Induced XRF to Quantify the Pu Content in PWR Spent Nuclear Fuel," Proceedings of 31st Annual Meeting of European Safeguards R&D Association (2009).

[2] D. T. Vo, "Comparison of portable detectors for uranium enrichment measurements," Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 276(3), (2008).

사용후핵연료 건식저장 시스템 내 콘크리트 구조재료의 장기 내구성에 주요 영향을 미치는 열화 메카니즘 분석

김진섭, 이경수, 최종원, 권상기, 조계춘*
한국원자력연구원, 대전 유성구 대덕대로 1045
*한국과학기술원, 대전 유성구 과학로 335
kverity@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료의 건식저장이라는 관점에서 콘크리트 캐스크 방식에 대한 관심이 증대되고 있으며, 혹여 금속캐스크 저장방식이 국가 정책으로 채택된다 할지라도 최소한 건식저장 캐스크 기초 및 구조물 시설보호 등을 위해 콘크리트의 사용을 배제할 수 없다. 따라서 장기 운영에 따른 콘크리트 구조재료의 열화거동에 대한 충분한 이해가 필요하다. 현재 미국을 중심으로 20년 상용운전 수명이 완료된 건식저장 시스템을 대상으로 사용수명 연장에 관한 연구 및 기술적 타당성 분석이 진행 중에 있다.

따라서 본 연구에서는 건식저장 시스템의 사용수명 연장에 따른 콘크리트 구조재료의 장기 열화거동에 영향을 미치는 주요 메카니즘을 분석하였다.

2. 건식저장 콘크리트의 주요 장기 열화요인

건식저장 시스템의 구성요소 중 콘크리트 캐스크의 재료적 거동에 영향을 미치는 주요 인자는 1) 방사선으로 인한 손상과, 2) 핵연료 자체의 고열로 인한 열적 손상, 그리고 3) 유해한 화학적 물질의 유입으로 인한 손상을 들 수 있다.

일반적으로 ISFSI (independent spent fuel storage installation)의 콘크리트 구조물은 주로 철근콘크리트가 사용된다. 이때, 사용되는 주요 시멘트로는 Type II Portland Cement가 주로 사용되는데, 이는 본 시멘트가 수화열이 낮고 내황산염 저항성이 크기 때문이다. ASTM(2010), Ghosh et al.(2010), Naus(2007) 등은 건식저장 시스템의 사용수명 연장 시, 철근콘크리트 구조물의 내구성에 열화를 초래할 수 있는 주요 메카니즘은 1) 동결융해, 2) 칼슘 용출, 3) 침식용 화학물질의 유입, 4) 온도 상승, 5) 크립, 6) 방사화, 7) 수축(shrinkage), 8) 철근부식 등이라고 보고한 바 있다.

3. 온도상승으로 인한 영향

콘크리트가 높은 온도조건에 노출되게 되면 콘크리트의 물성은 내부에 존재하는 함수량과 공극률(porosity)에 의존하게 된다. 이러한 환경에의 장기노출은 수분손실을 유발하여 결국 콘크리트의 압축강도와 탄성계수 그리고 크립저항과 열전도 등의 물성저하를 초래하게 된다.

일반적으로 콘크리트의 온도가 65℃ 이내이면 콘크리트의 강도저하는 그리 크지 않은 것으로 알려져 있다. 또한 콘크리트 캐스크 벽체 내의 최대 온도제한은 95℃ 이하이어야 하며, 온도경사는 콘크리트 균열방지를 위해 60℃ 이하가 되도록 설정하고 있다. 건식저장 시스템에서는 일반적으로 정상 가동시 대부분의 온도가 95℃ 이내에서 운전이 되며, 낙반과 균열이 발생하기 시작하는 온도인 149℃ 이상의 조건에 노출되는 경우는 매우 드물다. 따라서 콘크리트의 국부적인 영역에서 149℃ 이상의 고온노출로 인한 열화현상 발생은 크게 고려대상이 아니다.

4. 방사화에 의한 영향

콘크리트에 대한 방사화의 영향은 크게 두가지 메카니즘이 작용한다. 하나는 방사화로 인한 물질과의 상호작용으로 재료적 특성이 변하는 것이다. 이 같은 손상은 재료의 결합을 끊을 수 있고 재료의 취성화를 유발하기도 한다. 두 번째 가능한 원인으로는 방사화 에너지 흡수로 인한 국부적인 온도상승이다.

방사선량의 경우 입사 에너지가 10^{10} MeV/㎠.sec 이하일 경우에는 핵반응으로 인한 가열을 무시할 수 있으며, 콘크리트가 10^{19} neutron/㎠ 혹은 10^{10} rad를 초과하는 감마선량에 노출된다면 콘크리트의 압축강도 및 탄성계수가 감소하는 경향을 보이고, 콘크리트 자체의 부피가 현저히 증가하는 현상이 발견된다.

방사선에 의한 손상은 콘크리트 배합에 크게 영향을 받으며, 압축강도의 감소 보다는 인장강도의 감소가 더 큰 경향이 있다. 일반적으로 콘크리트의 방사화에 대한 저항성은 골재 자체의 방사선 저항성에 비례하여 크게 된다. 또한 방사선 조사시 온도상승으로 인한 콘크리트의 열화는 상대적으로 미미한 것으로 알려져 있다. 방사선 조사시 온도상승으로 인한 수분손실로 인해 콘크리트에 균열을 유발한다는 점을 제외하고 고유 방사선 차폐특성에는 큰 영향을 미치지 않는다. 따라서 콘크리트 온도가 65℃ 이내로 유지된다면 이에 대한 고려는 크게 필요 없을 것으로 판단된다.

5. 동결융해

동결융해로 인한 콘크리트의 균열발생은 콘크리트 내부의 공극이 물로 포화되었을 때, 이의 동결시 부피가 팽창하는 현상으로 인해 발생한다. 보통 콘크리트 표면에 균열발생이 발생하며 이 자체로는 크게 강도저감에 영향이 없지만, 균열로 인한 콘크리트 투수계수의 증가로 인해 염소이온 등의 유해물질의 이동속도가 증대되어 피해가 발생할 수 있다. 미국의 경우 ACI 318-08, ACI 349-09, ACI 301-05에 따라 콘크리트의 사용을 규정하고 있으며, AE제의 첨가가 동결융해에 저항성이 큰 것으로 알려져 있다.

6. 칼슘 침출

칼슘 침출은 콘크리트 자체의 공극률과 투수계수의 함수로써 장기 화학적 열화거동에 영향을 미치는 주요 인자 중의 하나이다. 시멘트 내의 칼슘이온이 수분과의 반응으로 유출되면 콘크리트 내부의 투수계수가 증가하고, 염해의 침입이나 탄산화 등과 같은 유해한 화학적 열화메카니즘이 발생하게 된다.

칼슘 침출은 콘크리트의 강도와 강성과 같은 역학적 물성에 저하를 초래할 수 있으며, 콘크리트 내부의 pH를 떨어뜨려 부식의 확률을 증대시키는 요인이 된다.

7. 크립

콘크리트의 크립은 시간의 경과에 따라 일정 응력이 지속적으로 유지되기 때문에 발생한다. 이로 인한 균열은 주로 골재와 시멘트 페이스트 사이에 발생하게 되며 보통 육안으로는 보이지 않는 특징이 있다. 일반적으로 건식저장 시스템은 기초를 제외한 대부분의 벽체가 큰 하중을 견디는 시스템이 아니고, 또한 콘크리트의 크립현상이 시간 경과에 따라 지수함수적으로 감소하는 특징을 보이므로 장기 거동의 분석에 있어서는 크게 영향을 미치지 않을 것으로 평가된다.

8. 수축

콘크리트는 워커빌리티를 증대시키기 위해 보통 수화하는데 필요 이상의 수분이 공급되며, 이는 콘크리트 내부에 수축을 유발하여 균열을 발생시킨다. 일반 콘크리트의 건조수축(drying shrinkage)과 자가수축(autogenous shrinkage)은 타설후 약 30년 이내에 종료가 되며, 초기 1년 이내에 최종 수축의 약 90% 그리고 5년 이내에 95%가 발생하는 것으로 알려져 있다. 따라서 콘크리트 타설 후 초기에 주의를 기울인다면 건식저장 시스템의 장기 열화거동에는 크게 영향을 미치지 않을 것으로 판단된다.

9. 철근 부식

콘크리트 내부의 철근은 전기화학적 작용에 의하여 부식이 발생하며, 이는 부피팽창을 유발하여 콘크리트에 균열을 초래한다. 초기의 초 염기성 상태(>pH 12.5)가 탄산화와 유해물질의 침입 등으로 인해 철근 표면의 부통태 피막이 파괴되고, pH 8 이하가 되면 부식이 발생할 수 있다.

탄산화 작용이 일어나려면 수분이 존재해야 하므로 상대습도가 40% 이하이면 이산화탄소가 콘크리트 내부로 침입할 수 없다. 반대로 상대습도가 90% 이상에서는 콘크리트 내부의 공극이 이미 수분으로 채워져 있어 이산화탄소가 역시 들어갈 수가 없다.

부식은 탄산화가 철근이 배근된 위치까지 진행되었을 때 발생하며, 이는 물/시멘트 비를 감소시키고, 피복두께를 증가시킴으로써 어느 정도 방지가 가능하다. 콘크리트의 부식은 건식저장 시스템의 장기 운영에 따른 열화거동에 영향을 미치는 주요 인자 중의 하나이며, 특히 사용수명 연장과 관련하여 중요한 의미를 지닌다.

10. 감사의 글

이 연구는 2010년도 지식경제부의 재원으로 한국 에너지 기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구과제입니다(77611-10).

밀봉용기 내부의 부수로 핵연료집합체 열해석 모델 검토

차정훈, 한순규, 김성진, 황대현, 김상녕*, 최경우**
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
*경희대학교, 경기도 용인시 기흥구 서천 1동
**한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 과학로 34
chajh@kaeri.re.kr

1. 서론

국내의 원자력발전소 운전경력은 2011년 현재 30년에 다다르고 있으며, 현재 국내 원자력발전소에서 발생하는 사용후핵연료는 대부분 발전소 내부의 임시저장조에 습식 저장되어 있다. 사용후핵연료를 최종처분하기 위한 처분장 건설은 오랜 기간이 필요할 것으로 예상되며 발전소 내부의 임시저장용량은 가까운 기간 내에 포화될 것으로 예상된다. 이에 국내에는 최종처분까지 사용후핵연료를 장기간 중간저장하기 위해 건식저장 방식이 활용될 것으로 예상된다. 건식저장 방식은 사용후핵연료를 불활성 기체로 충진된 저장용기 내에 저장하는 방식으로 이미 여러 나라에서 건설/운영되고 있으며 그 효용성이 입증된 기술이다. 이러한 장기건식저장 기술은 다른 분야의 선진기술과 마찬가지로 대부분 대외비로 취급되거나 특허에 보호되어 있어 향후 건식저장 기술의 국산화가 이루어지지 않을 경우 기존 외국계 회사의 시장지배로 인한 국부의 유출은 막대할 것으로 예상된다. 사용후핵연료 장기건식 기술의 개발과정에서 열해석 분야는 인허가 및 사업시행에 있어 중요한 평가기준으로 작용한다. 장기건식 시스템의 열해석은 범용 CFD 코드가 이용되고 있으며 국외 인허가에서 는 핵연료집합체를 균질하게 가정하는 열해석 방법론이 광범위하게 사용되고 있다. 본 연구에서는 균질모델과 부수로 모델을 이용한 열해석 방법론의 차이점을 비교하고 검토하였다.

2. 본론

2.1 열해석 방법론 비교

균질모델 열해석 방법론은 사용후핵연료 집합체를 균질하다고 가정한 모델을 사용후하는 방법으로 Wooten-Epstein[1], MIT 방법론[2]을 이용하여 유효열전도도를 구하여 핵연료 집합체 피복관의 온도를 예측하는 방법이다. 이러한 방법은 현재 인허가에서 광범위하게 사용되고 있다. 균질모델의 장점은 해석 모델을 충분히 단순화 시켜 핵연료집합체의 피복관 온도를 용이하게 예측할 수 있다는 것이다. 반면 핵연료 집합체의 복잡한 형상을 균질 모델로 예측하고 있기 때문에 모델 자체의 불확실성을 가지고 있다. 부수로 모델은 핵연료 집합체를 봉 단위로 모델링 하므로써 모델의 불확실성을 낮추고 있으나 이를 CFD로 모사하기 위해서는 하드웨어적인 비용을 크게 요구하게 된다.

2.2 CFD 열해석 수행

본 연구에서는 핵연료 집합체 1개가 밀봉된 용기에 저장되어 있다고 가정하고 집합체를 균질모델과 부수로 모델을 ANSYS-CFX 12.1 코드로 계산한 후 계산결과의 보수성과 열적 특성의 차이점을 비교하였다. 핵연료 집합체는 현재 APR-1400 에서 사용되는 16×16 핵연료 모델을 기준으로 하였다. 용기 내부는 헬륨 gas가 2기압으로 채워져 있으며 집합체의 총 열량은 938.8 W로 가정하였다[3]. 계산결과 균질모델의 피복재온도가 봉대봉 모델의 피복재 최대온도보다 보수적이었다. 그림 1은 균질모델과 부수로 모델의 중앙단면 온도 분포를 보여주고 있다. 균질모델에 비해 부수로 모델은 중앙의 온도가 주변 집합체 봉들에 비해 낮은걸 볼 수 있는데 이는 부수로 모델과 같은 경우 안내관에 의해 열원의 밀집도가 균질모델보다 떨어지기 때문으로 분석된다. 그림 2는 두 모델의 수평단면의 온도분포로 안내관의 위치를 확인할 수 있다. 또한 수평 온도분포가 균질모델에 비해 부수로의 모델은 균일한 것을 확인할 수 있었다.

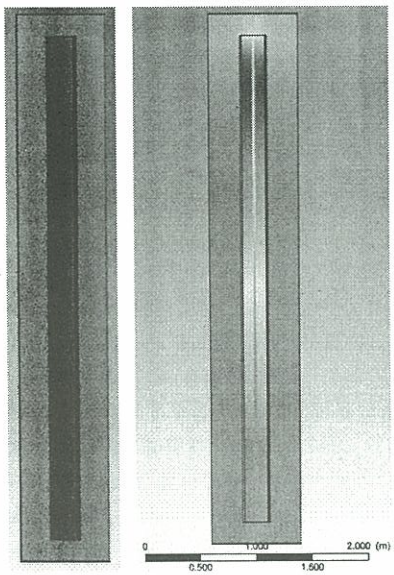


Fig. 1. Axial temperature distribution

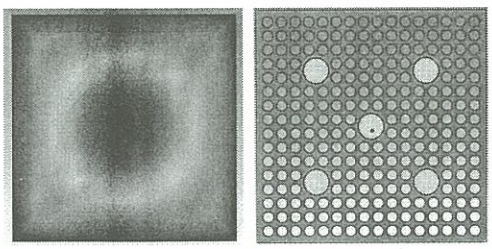


Fig. 2. Temperature distribution of cross-sections

3. 결론

본 연구에서는 건식저장 용기 내부의 CFD 열해석을 수행하기 위해 이용되는 균질 모델의 보수성을 검토하고 균질 모델과 부수로 모델이 보여주는 열적 차이점을 비교하고자 하였다. 가상의 밀봉된 공간에 저장된 핵연료집합체의 온도분포를 균질 모델과 부수로 모델로 계산을 한 결과 균질 모델의 계산결과가 보수적인 것으로 나타났으며 이는 균질모델에서 대류에 의한 영향이 부수로 모델보다 적용되지 않기 때문인 것으로 파악된다. 따라서 기존에 저장 또는 수송 용기의 인허가에서 광범위하게 사용되고 있는 균질모델은 핵연료 집합체 피복재의 온도를 부수로 모델보다 보수적으로 예측할 것으로 예상된다. 부수로 모델의 경우 균질모델에서 크게 고려하지 않는 대류에 의한 효과가 핵연료 집합체의 온도를 효과적으로 낮추고 있음을 보여주고 있다. 따라서 보다 정확한 부수로 모델을 통한 열해석은 저장밀집도 향상에 기여할 것으로 예상된다.

4. 참고문헌

[1] R.O. Wooten and H.M. Epstein, Heat transfer from a parallel rod fuel element in a shipping container, Unpublished report, Battelle Memorial Institute, 1963.

[2] R.D. Manteufel and N.E. Todreas, Effective thermal conductivity and edge conductance model for a spent fuel assembly, Nuclear Technol., Vol. 105, pp421-440, 1994.

[3] 김상녕, 차정훈, 사용후핵연료 장기건식저장에 따른 열적 안전성 해석 기법개발, KINS/HR-852, KINS, 2008.

PWR 사용후핵연료 집합체 연료봉 인출 방식 분석

김영환, 박근일, 이정원, 이영순, 이도연, 김수성
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
yhkim3@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로 전해환원 공정의 전처리를 위해서는 사용후핵연료 집합체 해체, 연료봉 인출, 인출연료봉 절단을 하는 기계적 전처리가 선행되어야 한다. 일반적으로 전처리공정은 습식방식 과 건식방식에 따라 연료봉의 인출유무가 결정된다. 건식공정인 파이로 공정은 건식공정으로서 기계적전처리의 후속공정과 연계하여 효율적인 측면에서 분석이 선행되어야 한다. 따라서 본 연구는 고효율 전처리공정의 설계를 위해서 단위공정의 일부인 PWR 사용후핵연료봉 인출방식의 타당성을 분석하였다. 이를 위해서 사용후핵연료 집합체 전체와 인출 후 밀집된 연료봉의 절단력과 원형 도를 비교 분석하였다. 또한 연료봉 인출을 위한 기술적 방법을 비교하였다. 이를 위해 영상처리로 인출하는 비전 방식과 지그를 이용한 기계적 방식을 분석하였다. 후속공정인 탈피복 공정을 고려하여 반응효율, 공급원료 순도, 생산효율, 기계적 탈피복의 유무, 장소의 제한성 그리고 절단면 형상 등의 측면에서 연료봉 인출방식 선정기준을 마련하였다. 사용후 핵연료 인출방식의 분석을 통하여 상기 분석결과들은 사용후핵연료 핵연료주기 건식공정의 전처리 공정 설계에 활용할 수 있다.

2. 본론

2.1 SF 집합체 와 인출 연료봉

SF 집합체에서 핵연료봉을 인출하기 위해서 집합체 절단과 인출 후 밀집연료봉 절단의 원형도와 절단력을 비교하였다. 이 분석의 목적은 기계적 탈피복을 고려했을 때 연료봉의 절단 단면의 형상이 원형도를 유지해야 하는 조건(원형도 90% 이상)을 충족하는지와 연료봉을 절단했을 경우 집합체 절단과 인출 후 밀집연료봉의 소요되는 효율적인 절단력을 비교하고자하는 것이다. 그림 1에서 집합체를 경사절단 하는 힘은 식 1과 같다.

$$P_{A-1} = P_A \cdot \cos\theta \quad \cdots\cdots (1)$$

그림 2에서 밀집연료봉을 수직 절단하는 힘은 식 2와 같다.

$$P_C = \frac{\tau \cdot \pi \cdot (d_2^2 - d_1^2)}{4} \quad \cdots\cdots (2)$$

여기서 $P_C = P_A$ 이고, $Cos\ \theta$에서 $\theta < 90^o$ 이면 식 3과 같다.

$$\therefore P_C > P_{A-1} \quad (3)$$

그림 1에서 연료봉 단면형상은 연료봉 처짐 량, 즉 $\zeta = L \cdot \tan\alpha$만큼 기울어져 절단되므로 연료봉 단면 형상이 찌그러진다. 따라서 동일한 절단 힘을 가했을 때, 집합체를 경사절단 하는 힘이 집합체를 수직 절단하는 힘보다 작고, δ 만큼 기울어져 절단되므로 집합체 절단 방식은 연료봉 형상이 찌그러진다. 집합체 절단과 인출 후 밀집연료봉 절단의 원형도와 절단력 비교결과 집합체 절단 보다 인출 후 밀집연료봉 절단 방식이 절단을 위한 힘이 효율적이고 사용후 핵연료 로드컷(Rod-cuts)의 원형도가 우수하다.

[P_A : 집합체 수직 절단 힘, P_{A-1} : 집합체 경사절단 힘, P_C : 밀집연료봉을 수직 절단하는 힘, d_2 : 연료봉 외경, d_1 : 연료봉 내경, δ : 연료봉 처짐 량, α : 연료봉 처짐 각 , θ : 절단 경사각]

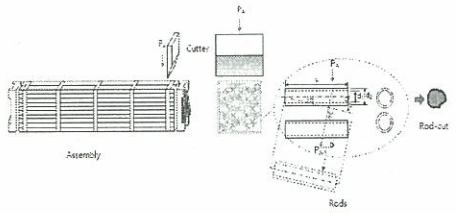


Fig. 1. PWR SF assembly cutting for decladding

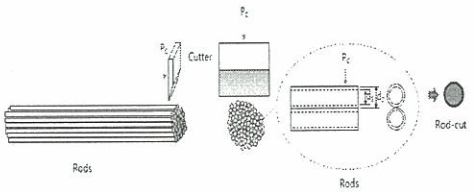


Fig. 2. Consolidated rods cutting after extraction for decladding

2.2 인출기술의 방법적 비교

SF 집합체로부터 연료봉을 인출하는 기술로 영상처리방식인 비전방식(VISION)과 기계적 구조로 이루어진 기계식 연료봉 인출방식(JIG)을 비교하였다(그림 3, 그림 4). 표 1에서 보면 비전방식이 집합체 종류별로 인출할 수 있는 포괄적인 기능을 가지고 있으나, 다중 연료봉 인출 시 연료봉간의 간격이 작으므로 콜릿(collet) 부분의 설계가 어려움이 있으며, 정밀한 제어방식이 요구되는 센서 등이 방사선환경에서 취약하다. 그러나 비전방식 보다 기계식 연료봉 인출방식이 구조적으로 간단하고 방사선환경에서 고장률이 적다. 또한 다중 연료봉을 인출할 때 연료봉들을 잡을 수 있는 구조가 단순하다. 따라서 기계식 연료봉 인출방식이 비전방식보다 연료봉 인출방식으로 양호하다.

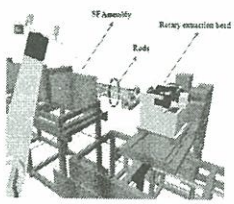


Fig. 3. Vision method

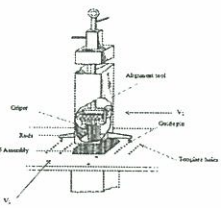


Fig. 4. Jig method

Table 1. Comparison of vision and jig methods for rod extraction

내용	VISION 방식(영상처리)	JIG 방식(기계식)
장점	- 너트소켓은 교체주기 길음. - 집합체 종류별로 인출할 수 있는 포괄적 기능을 가짐 - 비정상 연료봉 발생 시 다른 물과 함께 인출 등의 취급이 가능함	- 단순한 기계적 방법에 의한 인출로 구조가 간단함 - 고장률이 낮음 - 차폐 구조를 필요 없음 - 필요 공간이 작음 - 다중 연료봉을 인출할 때 연료봉들을 잡을 수 있는 구조가 단순함.
단점	- 정밀한 제어방식이 요구됨 - 센서 등이 취약함. - 방사선 차폐구조재가 요소별로 많이 필요함 - 장치의 고장률이 높음 - 필요 공간이 큼 - 다중 연료봉 인출 콜릿 설계가 어려움	- 지그를 일정한 주기로 교체하여야 함 - 집합체별로 지그를 제작하여야 함

2.3 인출장치의 선정기준

SF 집합체로부터 연료봉을 인출하는 방식의 타당성 기준을 그림 5에 나타내었다. 후속공정에 미치는 인자로는 반응효율, 공급물질의 순도, 생산량, 기계적 탈피복장치의 사용유무, 핫셀공간의 제한유무 그리고 절단단면의 형상정도이다. 따라서 후속공정을 고려한 인출장치의 필요성 요건으로는 후속공정의 반응효율이 높게 요구되거나, 후속공정의 로드컷 공급물질 순도가 높게 요구되거나, 후속공정의 생산량이 높게 요구되거나, 기계적 탈피복 장치가 필요하고 후속공정의 장치크기가 제한이 있는 경우 그리고 후속공정에서 로드컷의 단면 원형유지도가 높게 요구되는 경우이다. 또한 후속공정을 고려한 인출장치의 불필요성 요건으로는 후속공정의 반응효율이 낮게 요구되거나, 후속공정의 로드컷 공급물질 순도가 낮게 요구되거나, 후속공정의 생산량이 낮게 요구되거나, 기계적 탈피복 장치가 요구되지 않고 장치크기가 제한을 받지 않을 때, 그리고 후속공정에서 로드컷의 단면 원형유지도가 낮게 요구될 때 이다.

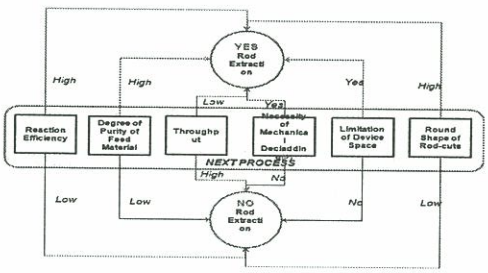


Fig. 5. Reference diagram for rod extraction selection

3. 결론

PWR 사용후핵연료 집합체 연료봉 인출방식의 타당성 분석을 위해서 집합체 절단과 인출 후 밀집연료봉 절단방식, 그리고 비전방식과 기계적 인출방식을 분석하였다. 그 결과, 집합체 절단 보다 인출 후 밀집연료봉 절단 방식이 절단을 위한 힘이 효율적이고 사용후핵연료 로드컷(Rod-cuts)의 원형도가 우수하였다. 기술적 방법에서 기계식 연료봉 인출방식이 비전방식보다 연료봉 인출방식으로 양호하였다. 또한 후속공정인 탈피복 공정을 고려하여 연료봉 인출방식 선정기준을 마련하였다. 이상과 같은 SF 집합체 연료봉 인출방식 분석결과는 PRIDE의 전처리 시설에 적용될 SF 연료봉 인출장치의 설계에 활용될 수 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부가 시행한 원자력 중장기 연구사업의 일환으로 수행하였습니다.

5. 참고문헌

[1] B. D. Cul, "Advanced head-end processing of spent fuel," 2004 American Nuclear Society Winter Meeting, Washington DC, Nov., 16, 2004.

사용후핵연료 장기저장의 경제적 효과

김성기, 고원일, 최희주
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
sgkim1@kaeri.re.kr

1. 요약

본 논문은 사용후핵연료의 장기저장으로 인하여 발생할 처분지연에 대한 경제적 효과를 분석하였다. 분석 결과, 사용후핵연료 장기저장을 통하여 고준위방사성폐기물의 지하처분장 건설을 190년 지연시킬 경우, 2040년에 처분장을 건설할 경우와 비교하여 약 1/3의 비용이 소요되는 것으로 계산되었다. 이러한 결과는 경수로핵연료 2만톤과 CANDU 1만6천톤을 처분하는 것을 가정하여 순전히 경제적인 관점에서 산출된 결과이다.

2. 서론

일반적으로 사용후핵연료의 후행핵연료 주기는 직접처분과 재처리로 구분하지만[1] 사용후핵연료 처분장 건설지연을 고려하면 장기저장 후 처분하는 대안을 추가할 수 있다.

본 논문의 연구목적은 파이로 처리 전까지의 사용후핵연료 장기저장에 대한 세가지의 시나리오를 가정하여 사용후핵연료의 처분지연에 대한 비용효과를 분석하는 것이다. 즉, 사용후핵연료를 현재로부터 30년, 90년, 190년 후에 처분을 한다고 가정하는 세가지의 시나리오에 대한 투자비용을 분석하는 것이다.

3. 본론

3.1 장기저장 비용과 처분비용의 관계

후행핵연료주기 대안에 대한 경제성을 분석할 때, 항상 사용후핵연료의 장기저장비용과 처분비용을 함께 고려해야 한다[2]. 왜냐하면 중간저장에 의한 장기저장비용과 처분비용은 서로 밀접하게 관련되어 있기 때문이다. 예를들면, 중간저장기간이 증가 되면 고준위폐기물 처분장의 건설이 지연되게 되므로 중간저장비용은 증가하고 처분장 건설비용은 화폐의 시간가치의 영향 등으로 감소하게 되어 장기저장비용과 처분장 건설비용은 서로 상충관계가 존재할 수 있다. 따라서 장기저장비용과 처분비용을 따로 분리하여 경제성을 판단하는 것은 잘못된 것이며, 어떤 하나의 대안에 대하여 장기저장비용과 처분비용을 합산하여 경제성을 판단해야 올바른 의사결정을 할 수 있다.

3.2 비용산정

3.2.1 비용산정 조건 및 방법

비용산정 조건은 크게 기술적 조건과 경제적 조건으로 구분할 수 있다. 여기서 기술적 조건이란 중간저장 및 장기저장시설에 대한 설계 요구사항을 만족시키기 위한 조건들이며 경제적 조건은 비용산정을 위하여 사용된 평가방법 및 매개변수들과 관련된 조건들이다. 본 논문에서는 각 시설의 단가 및 물량을 산출하여 소요되는 비용을 bottom up 방식으로 합산하여 계산하였다.

처분장 건설투자비는 식 (1)과 같이 준공시점의 미래가치로 표현할 수 있다.

$$FC = \sum_{i=1}^{T} C_i (1+r)^{T-i} \quad \cdots\cdots (1)$$

여기서, C_i=투자비, r=명목이자율, T=준공년도

그런데 명목이자율은 Fisher 효과에 의해 식(2)와 같다.

$$r = (1+I_f)(1+\hat{r}) - 1 \quad \cdots\cdots (2)$$

여기서, $\hat{r}$= 실질이자율, I_f=물가상승률

따라서 실질이자율은 식 (3)과 같다.

$$\hat{r} = \frac{(1+r)}{(1+I_f)} - 1 \quad \cdots\cdots (3)$$

그러므로 실질이자율은 명목이자율을 물가상승률로 deflate 시킨 것이다.

따라서 (2)식을 (1)식에 대입하면 식 (4)와 같이 물가상승률과 투자자본비용을 고려한 미래가치를 구할 수 있다.

$$FC = \sum_{i=1}^{T} C_i (1+\hat{r})^{T-i} (1+I_f)^{T-i} \quad \cdots\cdots\cdots\cdots (4)$$

일반적으로 식 (4)를 이용하여 산정된 미래가치 금액을 적정할인률로 할인하려 현재가치로 환산한다. 본 논문에서는 2009년말 물가기준으로 모든 비용을 불변가로 산정하였다.

결국 처분장 건설지연으로 인한 비용효과는 식 (5)와 같이 표현할 수 있다.

$$\triangle C_{deferral} = (C_{IS}^{t} + C_{DD}^{t}) - (C_{IS}^{t+k} + C_{DD}^{t+k}) \quad \cdots (5)$$

여기서, C_{IS}^{t} =중간저장비, C_{DD}^{t} =처분비

k=지연기간

3.2.2 비용산정 결과

투자비의 비용감소 효과를 파악하기 위하여 크게 3가지 시나리오를 상정하였다. 즉, 2041년, 2101년, 2201 년에 고준위폐기물 처분장을 건설하는 시나리오이다. 따라서 현재로부터 처분장 건설 착공시점까지의 기간이 처분장 건설지연 기간이 된다. 예를들면, 첫번째 시나리오인 2041년은 현재로부터 처분장 건설지연이 30년이며 2101년은 90년이 된다.

각 시나리오에 대한 비용산정 결과는 표 1과 같다. 표 1에서와 같이, 2201년에 처분장을 건설할 경우가 2041년에 건설하는 경우에 비해 총비용이 약 1/3로 감소되는 것으로 계산되었다.

4. 결론

2201년에 고준위폐기물 처분장을 건설할 경우, 투자비용이 1/3로 감소되는 이유는 화폐의 시간가치 때문이며, 기술적인 관점에서 장기저장으로 인한 방사성폐기물의 붕괴열 감소로 인한 차폐시설 등의 시설 설계요건이 완화될 수 있기 때문에 건설투자비가 감소될 것으로 판단된다. 그러나 장기저장 방안은 IAEA 등이 주장하는 "오염자 부담원칙"을 위배할 수 있다[3]. 즉, 우리 세대에 발생된 방사성폐기물은 우리가 처분해야 하며 이에 대한 비용부담을 다음 세대에 전가시킬 수 없다는 원칙을 위배한다.

Table 1. 투자비 비용산정 결과

(실질할인률: 2.06%)

Component	Present Cost(MEUR)		
	Construct Facility by 2041	Construct Facility by 2101	Construct Facility by 2201
Storage to 2040	492	492	492
Storage 2041 to 2100	Not applicable	985	985
Storage 2101 to 2200	Not applicable	Not applicable	16
Construction	3928	653	89
Total	4420	2130	1582

또한 장기저장이 발전소 내에 임시저장시설에서 이루어지는 것으로 가정한 것은 발전소 수명기간이 지난 후에도 발전소에 사용후핵연료가 남게 되는 모순이 존재한다. 그러나 사용후핵연료 처분지연에 대한 각 시나리오의 비용효과를 산정하기 위해 이러한 한계점은 무시하였다.

5. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력중장기 연구개발비의 지원으로 수행하였습니다.

6. 참고문헌

[1] Koji Nagano, 2008, An assessment of spent nuclear fuel storage demands under uncertainty, Nuclear Engineering and Design 238 (2008) 1175 - 1180.

[2] Salomon Levy, 2009, Interim storage of power reactor spent nuclear fuel (SNF) and its potential application to SNF separations and closed fuel cycle, Nuclear Engineering and Design 239 (2009) 2209 - 2211.

[3] A.T. Silva, M. Mattar Neto, R.P. Mourao, L.L. Silva, C.C. Lopes, M.C.C. Silva, 2008, Options for the interim storage of IEA-R1 research reactor spent fuels, Progress in Nuclear Energy 50 (2008) 836-844.

제2분과

핵연료주기 기술 (Oral)

빈 면

레이저 분광을 이용한 LiCl-KCl 용융염 내 Nd^{3+}-chloride 화학종 규명 연구

정의창, 배상은, 배인애, 박용준, 송규석
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
ecjung@kaeri.re.kr

1. 서론

고온의 용융염 매질에 녹아 있는 란탄족 및 악티늄족 원소의 열화학적 안정도(thermochemical stability)는 사용후핵연료 재활용을 위한 고온전해분리공정(pyroprocessing)에 영향을 주는 요소이다. 열화학적 안정도는 이들 원소들이 포함된 염화 착물(chloride complex)의 종류와 용융 온도 등의 조건에 따라 달라진다. 따라서 전체 공정의 성능을 정확하게 파악하기 위해서는 고온 조건에서 염화 착물을 대상으로 하는 화학종 규명(chemical speciation) 연구가 필요하다.

현재까지는 염화 착물 화학종을 규명하기 위해 라만 분광학(Raman spectroscopy)과 자외선-가시광선 파장 영역의 흡수 스펙트럼을 측정하는 흡수 분광학(UV-Visible absorption spectroscopy)이 주로 이용되었다 [1-10]. 라만 분광학을 이용한 연구에서는 란탄염($LnCl_3$)의 농도가 비교적 낮은 고온 용융염 조건에서 팔면체(octahedral) 구조의 $LnCl_6^{3-}$ 착물(complex) 화학종이 존재한다는 것을 보고하였다 [1-6]. 흡수 분광학을 이용한 연구에서는 용융염의 온도가 증가함에 따라 $LnCl_6^{3-}$ 착물의 팔면체 대칭 구조의 뒤틀림(distortion) 현상을 관측하였고, 염 매질의 종류에 따라 뒤틀림 정도가 다르다는 것을 보고하였다[7-10].

원자 및 분자 분광학 분야에서는 나노초 또는 그 이하의 시간 폭을 가진 펄스 레이저 광원을 사용하는 시간분해 레이저 형광 분광학(TRLFS, Time-Resolved Laser Fluorescence Spectroscopy) 기술을 이용할 경우에 흡수 분광학에 비해 100배 이상 우수한 감도의 형광 스펙트럼을 얻을 수 있다고 알려져 있다. 또한 스펙트럼의 변화뿐만 아니라 형광수명(fluorescence lifetime)의 변화를 비교해 화학종을 구분할 수 있다는 장점을 가지고 있다. 그럼에도 불구하고 현재까지 TRLFS 기술을 이용한 고온 용융염 연구 사례가 보고된 것은 극히 드물며, 최근 들어 한국원자력연구원과 KAIST를 중심으로 TRLFS 기술을 이용한 고온 용융염 내 란탄족 원소 연구결과가 발표되기 시작하였다 [11,12].

이 논문에서는 TRLFS 기술을 이용하여 LiCl-KCl 공융 용융염 매질에 녹아 있는 네오디뮴(Nd) 원소의 시간분해 형광 스펙트럼을 조사한 결과를 정리하였다. 특히 $LnCl_6^{3-}$ 착물의 팔면체 대칭이 뒤틀릴 경우에 관측되는 형광 스펙트럼 및 형광수명의 특징적인 양상에 대해 보고한다.

2. 본론

2.1 실험

용융염 형광 실험을 수행하기 위한 glove box, 고온 로(furnace) 및 TRLFS 실험 장치는 참고문헌 [11]에서 설명한 것과 동일하다. 형광을 발생시키기 위해 Nd:YAG 레이저(Quantel, Brilliant)의 제 3 고조파(355 nm) 및 제 2 고조파(532 nm) 펄스를 광원으로 이용하였다. 레이저 펄스의 에너지는 ~10 mJ, 펄스폭은 ~6 ns, 반복률은 10 Hz이다. 레이저빔이 진행하는 방향에서 직각 방향으로 방출되는 형광을 광섬유로 전송하여 300 mm 초점길이의 분광계(Acton Research Corp., SpectraPro-2300i)에 입사시켰다. 분광계 출력부에 설치한 광증배관(photomultiplier tube, Hamamatsu Photonics, R928)에서 검출된 형광을 광자 계수기(photon counter)와 오실로스코프를 각각 이용하여 형광 스펙트럼 및 형광수명을 측정하였다. $NdCl_3$의 농도 및 용융염 온도를 각각 0.01-2.0 wt.%와 370-550 °C 범위에서 변화시키며 실험을 수행하였다.

2.2 결과 및 논의

그림 1에 355 nm와 532 nm 파장의 레이저 펄스를 입사시킬 때 측정한 Nd^{3+} 화학종의 형광 스펙트럼을 각각 나타내었다. 그림에서 별표(*) 부호로 표시한 것과 같이 355 nm 파장을 입사시킬 때 관측되는 361, 387, 416, 454 nm 파장 위치의 형광과 아라비아 숫자로 표시한 532, 589, 750, 810 nm 파장에서의 형광이 두드러짐을 알 수 있다.

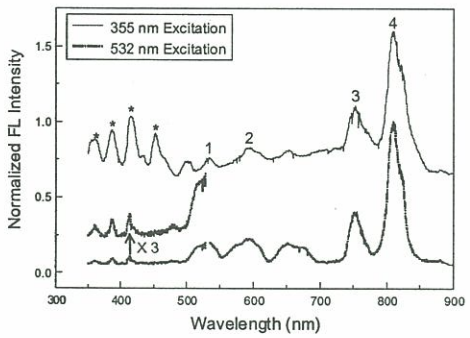


Fig. 1. Fluorescence spectra of Nd^{3+} ($NdCl_3$ 0.25 wt.%) measured at a temperature of 405 °C. The upper and lower traces represent the spectra measured with the excitation wavelength of 355 nm and 532 nm, respectively.

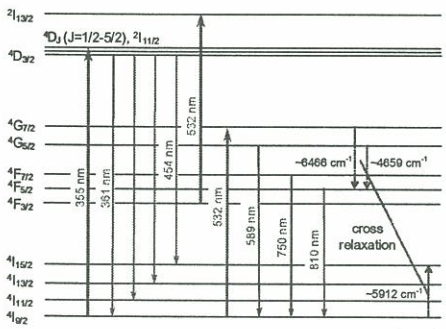


Fig. 2. A partial energy diagram of Nd^{3+} with labelled transition that correspond to observed fluorescence lines.

그림 2에 관측된 형광 파장에 대응하는 Nd^{3+} 이온의 에너지 준위를 나타내었다. $NdCl_3$의 농도와 용융 온도를 변화시킴에 따라 달라지는 589 nm, 750 nm, 810 nm 파장의 형광 세기 및 형광 수명을 분석한 결과, 그림 2에서 점선으로 나타낸 것과 같은 교차 완화 에너지 전달(cross-relaxation energy transfer) 현상 효과를 확인하였다.

특히, 750 nm 파장 위치에서 측정한 형광 파형은 아래 식 (1)에서 보인 것과 같이 두 성분의 형광수명을 가지고 있다는 것을 확인하였다.

$$I = I_0 + A_1 e^{-t/\tau_1} + A_2 e^{-t/\tau_2} \quad \cdots\cdots\cdots\cdots (1)$$

일반적으로 염 매질(donor)에 흡수된 에너지가 란탄족 원소(acceptor)로 전달될 경우에 식 (1)과 같은 두 성분의 형광수명이 나타날 수 있다. 그러나 실험에 사용한 KCl-LiCl 공융 용융염 매질은 532 nm 파장 영역에서 흡수가 없으므로 이러한 에너지 전달 효과가 750 nm 파장에서 관측된 두 성분 형광수명의 직접적인 원인이 될 수는 없다. 따라서 이 실험에서 관측된 두 성분의 형광수명은 용융염 매질 내에 형광수명이 서로 다른 두 화학종이 존재하기 때문인 것으로 생각할 수 있다. $NdCl_3$의 농도와 용융 온도에 따라 변화하는 형광세기 및 형광수명을 분석한 결과를 바탕으로 용융염 내에 존재하는 서로 다른 두 란탄족 원소 기반 화학종의 존재를 입증하였다.

3. 결론

$NdCl_3$ 농도 및 용융염 매질 온도 변화에 따른 Nd^{3+} 원소의 형광 특성을 조사한 결과, 팔면체 대칭을 유지하고 있는 $NdCl_6^{3-}$ 및 팔면체 대칭이 뒤틀린 $NdCl_6^{3-}$ 화학종이 동시에 존재한다는 사실을 밝혔다.

4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

5. 참고문헌

[1] G.N. Papatheodorou, J. Chem. Phys. Vol. 66, pp. 2893, 1977.
[2] J. Mochinaga, M. Ikeda, K. Igarashi, K. Fukushima, Y. Iwadate, J. Alloys Comp. Vol. 193, pp. 36, 1993.
[3] E.A. Pavlatou, P.A. Madden, M. Wilson, J. Chem. Phys. vol. 107, pp. 10446, 199746.
[4] G.M. Photiadis, B. Borresen, G.N. Papatheodorou, J. Chem. Soc., Faraday Trans., Vol. 94, pp. 2605, 1998.
[5] K. Fukushima, H. Yamoto, Y. Iwadate, J. Alloys Comp. Vol. 290, pp. 114, 1999.
[6] W.J. Glover, P.A. Madden, J. Chem. Phys. Vol. 121, pp. 7293, 2004.
[7] T. Fujii, H. Moriyama, H. Yamana, J. Alloys Comp. Vol. 351, pp. L6, 2003.
[8] T. Fujii, T. Nagai, N. Sato, O. Shirai, H. Yamana, J. Alloys Comp. Vol. 393, L1, 2005
[9] A. Chrissanthopoulos, G.N. Papatheodorou, J. Molecular Structure, Vol. 782, pp. 130, 2006.
[10]T. Fujii, T. Nagai, A. Uehara, H. Yamana, J. Alloys Comp. Vol. 441, pp. L10, 2007.
[11]E.C. Jung, S.-E. Bae, W. Cha, I.A. Bae, Y.J. Park, K. Song, Chem. Phys. Lett. Vol. 501, pp. 300, 2011.
[12]B.Y. Kim, D.H. Lee, J.Y. Lee, J.-I. Yun, Electrochem. Commun. Vol. 12, pp. 1005, 2010.

An Approach to Develop Regulatory Requirements of Nuclear Energy Systems in the Area of Proliferation Resistance

H.L. Chang, E. Haas, and W.I. Ko
Korea Atomic Energy Research Institute, 1045 Daeduk-daero, Yuseong, Daejeon, Korea 305-600
hlchang@kaeri.re.kr

1. Introduction

The objective of the INPRO collaborative project, ROK1, "Proliferation Resistance: Acquisition/Diversion Pathway Analysis (PRADA)" was to further contribute to the completion of the INPRO methodology in the area of proliferation resistance (PR methodology), which is to assess proliferation resistance and to provide guidance to improve the proliferation resistance of the innovative nuclear energy system (INS) [1]. Following the PRADA project, Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI) is currently developing potential regulatory requirements in the licensing process of nuclear energy systems which should comply with the Basic Principle (BP) of the INPRO PR methodology [2]. This paper presents general concepts and fundamentals that should be considered in the regulatory requirements for the licensing process of nuclear energy systems.

2. Concepts and Fundamentals of Proliferation Resistance

Proliferation Resistance (PR) is that characteristic of a nuclear energy system (NES) that impedes the diversion or undeclared production of nuclear material, or misuse of technology, by States in order to acquire nuclear weapons or other nuclear explosive devices [3]. The degree of proliferation resistance results from a combination of, inter alia, technical design features, operational modalities, institutional arrangements and safeguards measures. Observing proliferation resistance in the licensing process of INSs does not mean that it prevents technologies that have been proven to be safe, secure and economical (following the INPRO definition of sustainability) but to assure that the system will "continue to be an unattractive means to acquire fissile material for a nuclear weapons program". Regulatory requirements on PR in the licensing process of INSs are part of States' commitment to non-proliferation, and should answer fundamental questions about commonly used criteria such as:

- Nuclear material attractiveness: can the nuclear material in the NES be easily used in a nuclear weapons program? (suitability for a nuclear explosive device, effort and difficulty of further processing required to get material in a weapon usable form, material availability, etc.);
- Nuclear technology attractiveness, can the NES be misused for the production of nuclear material that could be easily used in a nuclear weapons program?
- Difficulty and detectability of diversion/misuse: does design and operation of the NES facilitate the implementation of IAEA safeguards? Can the NES be safeguarded effectively and efficiently by the safeguards authorities (accountability, amenability for C/S measures and other monitoring, transparency of design and processes, etc.)?
- Optimization of design: does design and operation of the NES provide cost-efficient PR both to the facility operator and the safeguards authorities and compatibility with other design considerations as safety, security, and operation?
- Institutional arrangements: do institutional structural arrangements like multinational ownership or commercial arrangements that control access to and use of nuclear material support facility and enterprise undertaking to PR?

3. INPRO Requirements for Proliferation Resistance

The INPRO PR methodology provides a framework for the qualitative evaluation of the proliferation resistance of nuclear reactors and fuel cycles at State-level, NES level, and facility level, including specific pathway level [1]. The INPRO method is structured in a hierarchical order:

- Basic principles (BP)
- User requirements (UR) and
- Criteria (CR), each consisting of one or more indicator(s) and an acceptance limit(s).

The highest level in the INPRO structure is the **Basic Principle**, *"Proliferation resistance intrinsic features and extrinsic measures shall be implemented throughout the full life cycle for innovative nuclear energy systems to help ensure that INSs will continue to be an unattractive means to acquire fissile material for a nuclear weapons program. Both intrinsic features and extrinsic measures are essential, and neither can be considered sufficient by itself."* The Basic Principle is a statement of a general goal that is to be achieved in INS and provides broad guidance for the development of an INS (or a design feature thereof).

The second level in the INPRO hierarchy is called a **User Requirement (UR)**. URs are the conditions that should be met to achieve users' acceptance of a given INS, i.e., the user requirements define the means of achieving the goal set out in the basic principle. All user requirements of a basic principle should be fulfilled to achieve a sustainable INS. The INPRO URs set out measures to be taken by technology developers or designers, by owners/operators of nuclear facilities, and by the State to ensure fulfilment of the basic principle(s) to which they relate.

Finally, a **Criterion (CR)** (or more than one) is required to enable the INPRO assessor to determine

whether and how well a given user requirement is being met by a given INS. An INPRO criterion consists of an **Indicator (IN)** and an **Acceptance Limit (AL)**. Indicators may be based on a single parameter, an aggregate variable, or a status statement. The Acceptance Criteria allow to answer the fundamental PR related questions and show strengths and weaknesses regarding proliferation resistance of an INS.

To achieve the general goal of proliferation resistance in an INS, INPRO methodology asks via 5 user requirements, namely:

- the **State** to establish a sufficient legal framework, e.g., NPT, comprehensive safeguard agreement, body of law, regulatory body, etc. (UR1);
- the **designer** to keep the attractiveness of nuclear material (NM) acceptably low (UR2); make diversion of NM difficult and detectable (UR3); incorporate multiple barriers (UR4); and to optimize costs (UR5) of multiple proliferation resistance features and measures, including safeguards.

4. Responsibilities for Establishing Regulatory Requirements on PR in NES Licensing

To minimize the proliferation concerns associated with NESs, proliferation resistance intrinsic features and extrinsic measures shall be implemented throughout the full life cycle for INSs, from initial planning, design, and operation to the decommissioning stage.

The government establishes State's commitments, obligations and policies regarding non-proliferation and is responsible for its implementation. The government legislates observance of proliferation resistance requirements in the design and operation of NESs. The government also supports the nuclear industry in establishing institutional structural arrangements (e.g. multinational ownership) that are capable to enhance proliferation resistance. The government assigns for deployment of an NES the responsibility for the early consideration of proliferation resistance to the nuclear industry and the regulatory body, as designated by the government.

The regulatory body is responsible for establishing regulatory requirements for the licensing process (design, operation, and maintenance) of NESs, in line with State's commitments, obligations and policies regarding non-proliferation. The regulatory body will examine, as part of the licensing process, whether fundamentals of proliferation resistance have been observed in design and operation of an NES by examining the answers to fundamental questions about commonly used criteria as described in Section 2, to be provided by the nuclear industry. The regulatory body is also the interface between the nuclear industry and the international safeguards authority (IAEA) in safeguards implementation related aspects of proliferation resistance.

The developer/designer/operator shall consider the proliferation resistance as soon as sufficient technical information is available in the development of a new INS. This should be no later than the conceptual stage and could begin as early as fundamental design concepts are discussed. Early consideration provides opportunity for the design to be guided, in part, by proliferation resistance, before significant design decisions are finalized. A developer/designer/operator shall include a PR/safeguards expert in the design team from the very beginning.

The process of how to take proliferation resistance aspects in design and operation of the NES into account should be documented based on the technical codes and standards. The result should be described by answering the fundamental questions about commonly used criteria for PR as described in Section 2 for proliferation resistance, whereby showing strengths and weaknesses regarding PR of the system. Considerations on proliferation resistance shall also follow the Safeguards-by-Design concept. Starting from the basic technical and operational characteristics of the planned NES, operational needs, safeguards requirements and its impact on the facility design are to be determined.

Determining safeguards requirements and its impact on the facility design and operation would require a diversion pathway analysis, which includes potential/ plausible diversion and misuse scenarios, potential concealment strategies of the host State and safeguards tools and measures to cover those scenarios. Based on this, it must be shown that safeguards goals can be met effectively and efficiently.

5. Conclusion

A preliminary study on the regulatory requirements in the licensing process of nuclear energy systems has been carried out. The study indicates that reasonable guidelines can be developed based on the concepts, principles and fundamentals of proliferation resistance.

6. REFERENCES

[1] H.L. Chang and W.I. Ko, Final Report of the INPRO Collaborative Project, "Proliferation Resistance: Acquisition/Diversion Pathway Analysis," Korea Atomic Energy Research Institute, November 2010 (to be published as an official IAEA document).

[2] International Atomic Energy Agency, Guidance for the Application of an Assessment Methodology for Innovative Nuclear Energy Systems, INPRO Manual– Proliferation Resistance, IAEA-TECDOC-1575 Rev.1, November 2008.

[3] International Atomic Energy Agency, Proliferation Resistance Fundamentals for Future Nuclear Energy Systems, IAEA STR-332, IAEA Department of Safeguards, IAEA, Vienna (2002).

Melting & Casting Evaluation of Volatile Surrogate U-Zr-Mn Fuel Slugs for SFR

Ki-Hwan Kim, Hyung-Tae Kim, Young-Mo Ko, Yoon-Myung Woo, Chong-Tak LEE,
Seok-Jin Oh, Sun-Ki Kim, and Chan-Bock Lee
Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Deogjin-dong, Yuseong-gu, Daejeon, 305-353, Korea
khkim2@kaeri.re.kr

1. Introduction

The reference fuel for the Korean sodium-cooled fast reactor (SFR) being developed by the Korean Atomic Energy Research Institute (KAERI) is a metallic alloy. Metallic fuel has been studied and is also considered a leading candidate for advanced driver and transmutation fuels under the Fuel Cycle Research and Development (FCRD) program, formerly the Advanced Fuel Cycle Initiative (AFCI) program. The fabrication process for SFR fuel is composed of (1) fuel slug casting, (2) loading and fabrication of the fuel rods, and (3) fabrication of the final fuel assemblies. Fuel slug casting is the dominant source of fuel losses and recycled streams in this fabrication process. These losses and waste streams result in lowering the productivity and economic efficiency of fuel production. Losses occur during mold and crucible interactions, crucible coating infiltration, fuel particle adherence to the mold material and in the case of volatile element-bearing alloys volatilization, in particular, Am. To increase the productivity and efficiency of the fuel fabrication process waste streams must be minimized and fuel losses quantified and reduced to lower levels. Volatile species can be retained through the use of cover gas over pressure, covered crucibles, and short cycle times. In this study, the fabrication method of volatile surrogate U-Zr-Mn fuel slugs for SFR was evaluated in view of the soundness of the fuel slugs and the fuel losses.

2. Experimental Procedure

The elemental lumps of depleted uranium (DU), zirconium, and manganese were used to fabricate U-10wt.%Zr-5wt.%Mn alloy fuel slugs. Graphite crucibles coated with Y_2O_3 and quartz molds coated with ZO_2 was used. The weights of the melting & casting parts and the fuel material before and after melting were measured using an electronic balance. After fabricating a considerable amount of fuel slugs in the casting furnace, the fuel loss in the crucible assembly and the mold assembly have been evaluated quantitatively. After evaluation, the soundness, chemical and microstructural characteristics of the cast fuel slugs were also identified and analyzed.

3. Results and Discussion

The typical material balance in the crucible assembly and the mold assembly after melting and casting of fuel slugs are shown in Table 1. A considerable amount of dross and melt residue remained in the crucible after melting and casting; however, most charged materials were recovered after melting and casting of the fuel slugs.

Table 1. Typical material balance after melting and casting of fuel slugs.

	Melting/casting part	Weight (g)	Fraction (%)
Before melting/ casting	Crucible	1,122.2	100
After melting/ casting	Crucible assembly	67.9	6.1
	Mold assembly	1037.3	92.4

The volatile surrogate U-Zr-Mn fuel slugs were melted and cast with the gravity casting furnace under Ar atmosphere, as shown in Fig. 1. The metal fuel slug had the diameter of 5mm and the length of about 270mm. The alloy composition and the density of the metal fuel slugs were shown in Table 2. It was seen that losses of both of these

volatile elements can be effectively controlled to below detectable levels using modest argon overpressures [1-2]. Based on these results there is a high level of confidence that Am losses will also be effectively controlled by application of a modest amount of overpressure.

Scanning electron micrographs of the volatile surrogate U-Zr-Mn alloys melted and cast under vacuum and 760 torr Ar atmosphere were shown in Fig. 2. There were more dendrite dispersion phases compared with U-Zr casting slugs, irrespective of atmospheric pressure. A considerable amount of Mn element was contained in periphery of dendritic dispersions, and eutectic dispersions of 1~2μm in size. The amount of eutectic matrix melted under Ar atmosphere showed much more than melted under vacuum. It means that the U-Zr-Mn alloy melted under Ar atmosphere has higher Mn content than the U-Zr-Mn alloy melted under vacuum.

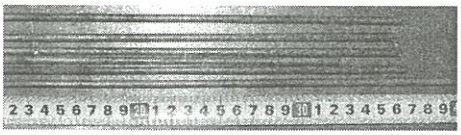
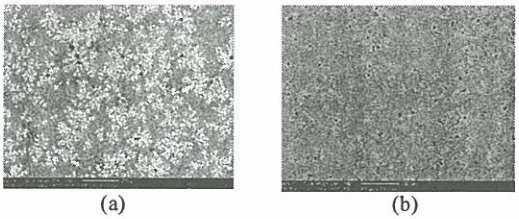


Fig. 1. Typical volatile surrogate U-Zr-Mn fuel slugs, fabricated with the gravity casting furnace under Ar atmosphere.

Table 2. The alloy composition and the density of U-10Zr-5Mn fuel slugs.

Pouring temperature	Zr(wt.%)	Mn(wt.%)	Density(g/cm^3)
1550°C	10.6	5.2	15.6
1650°C	11.9	4.9	16.2



(a) (b)

Fig. 2. Scanning electron micrographs of the volatile surrogate U-Zr-Mn alloys melted and cast under vacuum (a) and Ar atmosphere of 760 torr (b).

4. Summary

The fabrication method of volatile surrogate U-Zr-Mn fuel slugs for SFR was evaluated in view of the soundness of the fuel slugs and the fuel losses. The material balance in the crucible assembly, and the mold assembly after gravity casting of fuel slugs was evaluated quantatively. After evaluation, the chemical and the microstructural characteristics of the cast fuel slugs were also identified and analyzed.

5. Acknowledges

This study was supported the National Nuclear R&D Program of the Ministry of Science and Technology (MOST) of Korea.

6. References

[1] C.L. Trybus, J.E. Sanki, S.P. Henslee, Journal of Nuclear Materials, Vol.204, pp.50, 1993.

[2] R.S. Fielding and D.L. Porter, Proc. of Annual Meeting of American Nuclear Society, pp.859-860, 2010.

양극 내 금속 형태에 따른 전해정련 수율 영향

박성빈, 황성찬, 이성재, 강영호, 최세영, 성기찬, 김정국, 이한수
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
sbpark@kaeri.re.kr

1. 서론

산화물 사용후핵연료를 처리하는 대안공정으로 파이로프로세스에 대한 연구가 미국 및 일본의 여러 연구소에서 활발하게 진행되고 있으며 한국원자력연구원 또한 핵확산저항성이 우수한 장점으로 인해 집중적으로 연구를 진행하고 있다. 전해정련공정(Electrorefining process)은 파이로프로세스의 핵심공정 중 하나로 사용후핵연료의 약 93wt%정도를 차지하는 우라늄을 처리하는 중요한 공정이다 [1]. 전해정련반응기는 LiCl-KCl-UCl_3 공융용염을 매질로 이용하여 전기화학적으로 양극 내 금속 혼합물에서 음극으로 순수한 우라늄을 회수는 장치이다. 전해정련공정의 우라늄 회수 수율은 인가되는 전류량에 의해 결정되므로 수율을 높이기 위해서는 인가전류를 높여야 하나 양극의 cut-off 전위에 의해 인가전류는 제한되어진다. 한편, 전류는 양극의 표면적에 비례하므로 양극의 면적을 최대한 확보하는 것이 중요하다. 따라서 양극에 채워지는 금속전환체의 형태에 따라 양극 표면적이 달라지므로 전해정련의 수율에 영향을 미침을 알 수 있다. 이번 연구에서는 양극에 채워지는 원료 물질의 형태에 따라 전해정련 공정에 미치는 영향과 그 특성을 알아보고자 하였다.

2. 실험방법

본 실험에 사용된 20kgU/batch 규모의 고효율 전해정련 실험 장치는 Fig. 1과 같다. 전해정련장치는 금속 우라늄이 적재되는 양극과 우라늄이 전착되는 음극으로 구성되어 있으며 반응 매질로는 LiCl-KCl 용융염을 사용한다. 초기 정련운전을 위해 LiCl-KCl 용융염에 약 6% 농도의 UCl_3를 유지하도록 하며 조업온도는 500 ℃이다. 양극은 환형 형태로 반응기 외벽에 가까이 위치하며 4개의 카트리지 타입으로 설계하여 전극면적을 증대시키면서 교체가 용이하도록 하였다. 본 연구를 위해 반응기 내에 장입되는 원료를 직경 10mm, 길이 10mm인 펠렛 형태의 금속과 전해정련에 의해 생성된 덴드라이트 형태인 우라늄전착물을 이용하여 양극 내 채워지는 충진밀도 및 그에 따른 전해정련 특성 실험을 수행하였다.

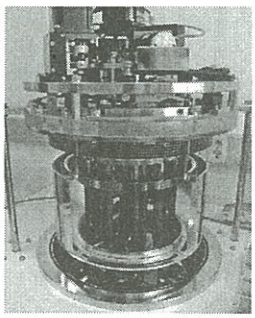


Fig. 1. High-throughput electrorefiner.

3. 결과 및 고찰

3.1 양극 내 금속 형태에 따른 전류-전위 곡선

양극에 채워지는 금속의 형태 및 크기에 따라 양극 충전밀도가 변하게 되며 또한 그 표면적이 달라지게 된다. 이번 연구에서는 직경 10mm, 길이 10mm인 금속펠렛과 전해정련을 통해 전착된 우라늄 덴드라이트를 각각 양극에 충전하여 전류-전위곡선을 측정하여 최대인가전류를 고찰하였다. 특히 우라늄 덴드라이트를 충전한 경우 우라늄 덴드라이트를 탭핑에 의해 충전한 것과 강제적으로 충전한 것을 정련실험을 수행하여 그 결과를 비교하였다. Fig.2는 금속펠렛을 장입한 것과 우라늄 덴드라이트를 장입했을 때의 전류-전위곡선을 측정한 결과를 나타낸다. 같은 양극 부피에 금속펠렛과 우라늄 덴드라이트를 채웠을 경우 각각 32와 6.6kg이였다. 이 때 충전밀도는 각각 8.2와 1.7 g/cm^3이다. 충전밀도가 줄어들면서 양극 표면적이 감소하여 전류-전위곡선이 우측으로 이동하여 최대인가전류가 감소함을 확인할 수 있었다. 그리고 Fig.2에서 보는 바와 같이 우라늄 덴드라이트를 강제 충전시켜 충전밀도를 증가시

켰을 경우 전류-전위곡선이 금속펠렛을 충전했을 때와 유사하거나 같은 양극전위에 대해 오히려 높은 전류를 나타냄을 확인하였다. 이로부터 충분한 양극 표면적이 확보되었음을 알 수 있다. 따라서 입자가 작을 경우 충전밀도를 증가시킬 수 있는 방안이 필요하다. 충전밀도가 낮을 경우 최대인가전류가 감소하여 수율이 낮아지며 같은 수율을 위해서는 자주 양극을 교체해야 하기 때문에 수율 측면에서 불리함을 알 수 있다.

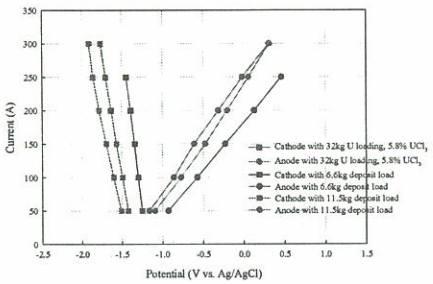


Fig. 2. Current-potential curves with respect to the anode material.

3.2 양극 내 금속 형태에 따른 전해정련 실험

양극에 우라늄 덴드라이트를 탭핑에 의해 충전한 경우와 강제적으로 충전한 경우에 대해 일정 전류 200A를 인가하여 각각 3회, 4회 전해정련 실험을 수행하였다. 그 결과를 각각 Fig.3과 Fig.4에 나타내었다. 우라늄 덴드라이트를 탭핑에 의해 충전한 경우, Fig.3에서 보는 바와 같이 정전류 정련실험을 거듭할수록 양극전위가 증가함을 알 수 있다. 양극 표면적이 급속도로 감소하기 때문이다. 반면 Fig.4에서 보는 바와 같이 강제적으로 충전한 경우 4회에 걸쳐 정련실험을 수행하였지만 양극전위가 거의 변화지 않음을 관찰할 수 있었다. 양극전위를 유지할 수 있는 충분한 표면적이 확보되었기 때문이다. 입자가 작을 경우 충전밀도가 충분히 확보될 경우 양극 전위 측면에서 유리함을 알 수 있다. 하지만 양극용해 기준 전류효율을 보면 금속펠렛 경우의 약 80%인데 반해 우라늄 덴드라이트 경우 탭핑 충전과 강제 충전의 경우 각각 136, 117% 임을 알 수 있었다. 이로부터 양극 내 우라늄 덴드라이트의 입자가 작아서 양극 바스켓의 메쉬 사이로 빠져 나갔음을 알 수 있다. 따라서 양극 내 충전하는 입자의 크기가 작을 경우 충전밀도를 증가시켜야 할 뿐 아니라 양극 바스켓에서 빠져 나오지 않도록 충분히 제어할 수 있는 방안이 필요함을 확인할 수 있다.

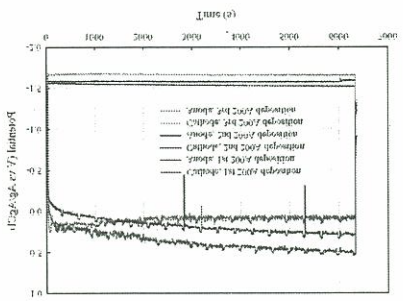


Fig. 3. Electrorefining of U with U deposit in anode basket by tapping

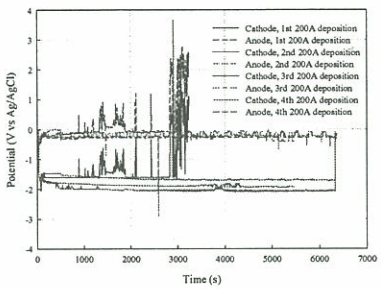


Fig. 4. Electrorefining of U with U deposit in anode basket by forced packing.

4. 결론

양극 내 충전되는 금속 형태에 따라 전류-전위 곡선을 측정하여 충전 밀도 및 양극 표면적 변화에 따른 최대인가전류를 확인하였고 전해정련 실험 진행에 따른 양극전위 변화를 고찰하였다. 양극 내 충전 물질의 입자가 작을수록 전해정련 수율 향상을 위해 충전밀도를 높이며 입자가 양극을 빠져나가지 않도록 하는 방안이 필요함을 확인할 수 있었다.

5. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부에서 주관하는 원자력중장기계획사업의 일환으로 수행하였습니다.

6. 참고문헌

[1] J. J. Laidler et al., Prog. Nucl. Energy, 31, pp.131-140 (1997).

물질전달 율속의 전극반응 모델링

김광락, 박재영*, 최성열*, 김택진, 심준보, 강권호, 안도희, 황일순*
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
*서울대학교, 서울특별시 관악구 관악로 599
krkim1@kaeri.re.kr

1. 서론

고온의 용융염 전해질을 사용하는 전기화학반응기의 전해거동을 예측하는 전산모델 개발이 파이로프로세싱 실험, 시스템 설계 그리고 운전개선을 위한 효율적인 접근방법으로 중요하다. 용융염 전기화학반응기 성능에 대한 수학적 모델의 목적은 전해 성능을 제한하는 문제점을 파악하며, 셀의 스케일업 성능을 예측하는 것이다. 이러한 목적으로 전해셀의 구조와 운전조건 등의 전해변수가 단위 전해셀의 성능에 미치는 영향과 예측을 위한 연구가 진행되어 왔다 [1].

여러 가지 변수의 영향들을 직접 실험하지 않고 예측 가능한 방법으로 상용의 전산유체역학(CFD) 소프트웨어 패키지에 전기화학모델을 연계하여 가시적인 결과와 표현이 가능하다. 지금까지 다중물리해석을 기반으로한 전지 및 부식분야의 전기화학 특성예측을 위한 모사연구가 활발히 진행되고 있으나 용융염 전해분리 분야에서의 연구사례는 제한적이다 [1].

본 연구에서는 마주보는 Planar 전극사이로 용융염 전해질의 유동조건이 형성되는 모형에서 물리적 유동영역을 설정하고 전산유체역학 기반에서 물질전달과 전기화학 모델을 커플링하는 접근 방법을 제시하였다. 정전류 인가조건의 전극계면에서 이온의 물질전달이 확산과 대류에 의해 제한되는 분극현상과 전해특성을 모사하였다.

2. 본론

2.1 이론

용융염(LiCl-KCl) 전해질은 전단력에 민감한 연속체로써 전해셀 구조의 영역 내에서 난류흐름의 영향이 물질전달에 영향을 미치게 된다. CFD 소프트웨어에서는 유동을 모사하는 모멘텀 및 연속방정식이 기본 전산모델의 체계로 되어있다. 3차원의 국부 유속(v)과 커플링된 비압축성 전해질 유체에서 이온의 전달방정식을 이온농도(C), 동적 확산계수(D_c) 그리고 질량소스(S_c)항으로 나타낼 수 있다.

$$\rho\frac{\partial C}{\partial t}+\rho\nabla\cdot(vC)=\rho\nabla\cdot(D_c\nabla C)+S_c \quad \cdots\cdots (1)$$

전해질내 이온이 전착되는 전해제련 계에서는 이온의 소스를 전체 전해질 영역으로 그리고 이온이 전착으로 소모되는 음극 표면에서는 싱크 영역으로 경계조건을 설정할 수 있다. 전극 면을 통하여 전류인가(i_{App})에 의한 페러데이법칙에 의한 평균 물질 플럭스는 (2)식으로 표현된다.

$$S_c=\pm\frac{i_{App}}{nF} \quad \cdots\cdots (2)$$

전극표면에서는 전극반응의 활성화 및 농도분극이 동시에 고려된 전극반응 속도 식으로 일반화된 Butler-Volmer 방정식[2]에 의해 국부 전극과 전압과 연관지울 수 있으며, 전하이동 과정의 속도와 전극전위의 관계가 비선형적임을 나타낸다.

2.2 전기장 모델

전기장 모델은 음극전착을 해석대상으로 하여 양극은 임의의 기준전압을 가정하고, 음극 계면의 Helmholtz 이중층 모형 내부에서 정의한 활성화 과전위와 농도분극에 의한 국부 전류밀도를 도출하는 혼합 경계조건을 이용하였다 (Fig. 1).

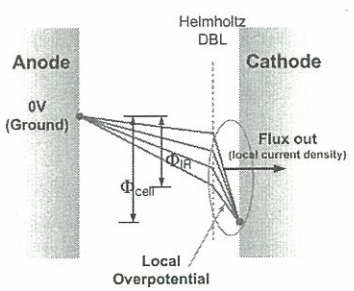


Fig. 1. Mixed boundary conditions for modeling

전해셀의 전위차는 벌크 전해질에서의 저항전위차와 전극과전압으로 구성된다. 전해셀내 용융염 전해질의 유동장 영역을 설정하여 격자화하고, 전극면을 포함한 유동마찰(No slip)의 경계조건이 적용되는 면을 프리즘 격자로 처리하여 전기장 모사를 위한 도메인을 설정하였다. 특히, 전극 면에서는 미세 격자계를 적용하여 충분히 국부 계면에서 소모되는 이온의 농도구배 정보를 도출할 수 있게 하였다.

2.3 결과 및 토론

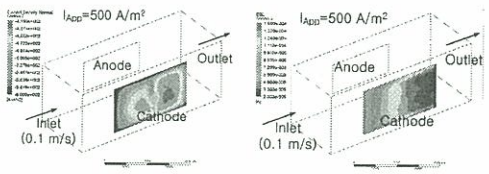
모델링은 수렴시간을 고려하여 전극면적이 다른 마주보는 2개의 Planar 전극 사이로 500℃의 용융염(LiCl-KCl) 전해질이 일정 유속으로 통과하는 단순한 채널형 전해제련 모형을 대상으로 하였다. 셀에 유입되는 우라늄의 이온농도(C_0)는 일정함을 가정하였고, 전류인가에 의해 이중 일부 이온들이 패러데이 전하량만큼 음극에 전착(환원)되는 전극반응을 가정하였다. Table 1은 모델링을 위한 전해셀 조건과 사용된 전기화학 파라메타를 나타내었다.

Table 1. Cell conditions and electrochemical parameters for modeling

Cell conditions and electrochemical parameters	Values
Inlet uranium ion concentration (C_0)	500 mol/m^3
Inlet electrolyte velocity (v)	0.1~1.0 m/s
Applied current density (I_{App})	100~500 A/m^2
Exchange current density (I_0)	5×10^{-4} A/m^2 *
Electrical conductivity of electrolyte (κ)	200 S/m

* Assumed value

CFD 전산 플랫폼에서 전해질의 전단응력수송(SST) 모델에 의한 유동현상과 이온확산 및 대류를 통한 전류 플럭스를 전극반응과 연계하여 전기화학모델을 커플링할 수 있었다. Fig. 2(a)는 음극면에서 물질전달의 영향이 고려된 국부 전류밀도 분포를 나타내었다. 전극에서의 국부 전류밀도는 전착속도 분포를 예측할 수 있는 것으로써, 이상적인 전해조건은 물질전달의 제한을 최소화 하여 균일한 전착분포를 얻는 것이 바람직하다. Fig. 2(b)은 음극면의 확산층 두께 분포를 보여주고 있으며, 전극면을 통해 20~150 ㎛의 분포를 보여주고 있다. Fig. 3은 전극계면에서 이온의 농도분포와 대류와 확산에 의해 전극 쪽으로 전달되는 물질 플럭스 분포를 나타내었다. 확산층 영역에서 대류에 의한 물질전달의 영향은 미미함을 알 수 있었다.



(a) (b)

Fig. 2. Local current density (a) and diffusion boundary layer thickness distributions (b) at the cathode

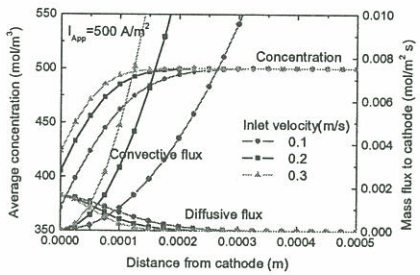


Fig. 3. Concentration profiles and convective diffusion flux at the cathode

3. 결론

용융염 전해질을 사용하는 간단한 채널형 전기화학반응기 모형을 대상으로 CFD 기반에서 전극반응 모델을 커플링하는 방법을 제시하고, 전기장 해석을 위한 전산모델을 마련하였다. 수립된 모델로써 정전류 전해 운전조건에서 물질전달이 전해특성에 미치는 영향을 해석할 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.

SFR 금속핵연료의 기계적 특성 평가

김선기, 이종탁, 오석진, 고영모, 김기환, 우윤명, 이찬복
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
kimsk@kaeri.re.kr

1. 서론

U-Pu-Zr와 같은 금속핵연료는 1980년대 이후로 소듐냉각고속로(Sodium-cooled Fast Reactor; SFR)의 핵연료로서 고려되어 minor actinides를 제어하고 고방사선 준위를 낮추기 위한 핵연료 주기와 연계하여 연구가 수행되고 있다. 금속핵연료는 미국 Hanford에서 가동되던 Pu 생산 원자로, 실험증식로(Experimental Breeder Reactor; EBR)와 영국의 Dounreay Fast Reactor (DFR) 등 초기 원자로의 핵연료로서 사용되었었다[1-3].

그러나 본 연구에서는 국내에서 Pu을 취급할 수 없으므로 Pu을 배제한 U-Zr 금속 핵연료 및 U-Zr-Ce 금속 핵연료를 제조하여 그 물성을 시험 평가하고 있다. 국내 제조 금속핵연료의 물성 평가는 핵연료성능에 지대한 영향을 미치므로 이에 대한 정확한 물성 평가 DB는 핵연료성능 모델링 및 추후 코드개발에 필수적인 자료로 활용될 수 있다. 그러나 전세계적으로 이러한 금속핵연료에 대한 기계적 특성 관련 물성에 대한 시험자료가 국내외 적으로 매우 부족한 것이 현실이다.

이에 본 연구에서는 본 연구원에서 제조된 연료심에 대한 기계적 물성을 평가하고자 인장시험을 수행하였으며, 이를 토대로 항복강도, 최대인장강도와 같은 기계적 강도와 연신율을 통해 연성을 평가하였다.

2. 본론

본 연구에서 개발하고 있는 금속핵연료의 기계적 물성을 평가하기 위해, U-5Zr, U-15Zr, U-10Zr-2Ce, U-10Zr-4Ce, U-10Zr-6Ce의 2원계 합금 연료 및 3원계 합금 연료를 대상으로 상온에서 인장특성을 평가하였다. 먼저, Figure 1은 핫셀내에 설치한 인장시험용 실험장치이며, 인장시험 후 판단된 시편의 모습을 보여주고 있다.

먼저 2원계 금속연료심의 기계적 특성을 살펴보면, Figure 2에서 보는 바와 같이, U-15Zr 금속연료심의 기계적 강도와 연성이 모두 U-5Zr 금속연료심에 비해 매우 높게 나타나고 있음을 알 수 있다. 따라서 각 곡선의 면적을 대비해 볼 때, U-15Zr 금속연료심의 인성(toughness) 또한, U-5Zr 금속연료심의 인성에 비해 매우 높음을 알 수 있다.

다음으로 3원계 금속연료심의 기계적 특성을 살펴보면, U-10Zr-2Ce 금속연료심의 경우 응력-변형 곡선에서 보는 바와 같이, 약 465 MPa의 응력에서 파단이 발생하였으며, 이 때 변형은 약 1.1% 정도로서 거의 변형 없이 파단이 발생하였다. 또한, U-10Zr-4Ce 금속연료심의 경우에는 응력-변형 곡선에서 보는 바와 같이, 약 505 MPa의 응력에서 파단이 발생하였으며, 이 때 변형은 약 1.3% 정도로서 낮은 변형량에서 파단이 발생하였다. 마지막으로 U-10Zr-6Ce 금속연료심의 경우에는 응력-변형 곡선에서 보는 바와 같이, 약 430 MPa의 응력에서 파단이 발생하였으며, 이 때 변형은 약 1.0% 정도로서 앞서 연료심들과 마찬가지로 파단 전 변형이 거의 없이 매우 낮은 변형량에서 파단이 발생하였다.

본 연구에서 수행한 기계적 특성시험 결과를 Table 1에 요약 정리하였다. 본 연구의 금속핵연료는 특성 상 매우 brittle한 재료로서 모든 시편들이 인장강도 지점에서 파단이 발생하므로 균일연신율(uniform elongation; UE) 및 총연신율(total elongation; TE)의 구분이 불가능한 특성을 보여주었으며, 취성이 매우 큰 재료라 연신율이 너무 작아서 항복(yielding) 없이 파단이 발생한다고 판단된다. 따라서 항복강도를 따로 도출하는 것은 무의미하고 최대인장강도와 유사한 값을 갖는다고 평가할 수 있다.

3. 결론

소듐냉각고속로 금속핵연료심의 기계적 특성을 평가하기 위하여 U-Zr 2원계 합금과 U-Zr-Ce 3원계 합금을 주조공정을 통해 제조하였으며, 제조 핵연료심에 대한 기계적 특성으로서 최대인장강도와 연신율을 평가하였다.

본 연구에서 나타난 주요 결과를 정리하면 다음과 같다.

첫째, 주조공정으로 제조된 5종의 금속핵연료심 모두 파단 시 변형이 거의 발생하지 않았으며, 인장응력 방향에 수직인 방향으로 파단이 발생함으로써 매우 취한(brittle)한 금속의 재질임을 보여주었다.

둘째, U-15Zr 금속연료심의 기계적 강도와 연성이 모두 U-5Zr 금속연료심에 비해 매우 높게 나타났으며, U-15Zr 금속연료심의 인성(toughness) 또한, U-5Zr 금속연료심의 인성에 비해 매우 높은 것으로 평가되었다.

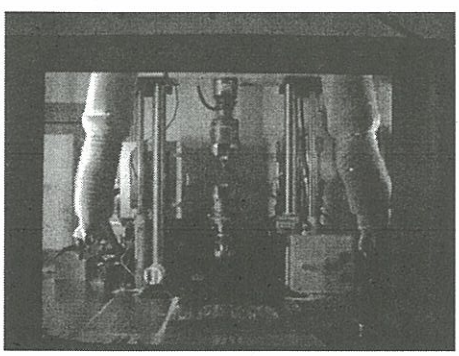
셋째, U-10Zr-2Ce과 U-10Zr-6Ce 금속연료심의 기계적 강도와 연성거의 유사함을 알 수 있다. 그러나 U-10Zr-4Ce 금속연료심의 기계적 강도와 연성은 이들 U-10Zr-2Ce과 U-10Zr-6Ce 금속연료심의 기계적 강도와 연성보다 다소 높게 나타났으나, 그 차이는 크지 않았으며, Zr에 비해 Ce의 합금 영향은 크지 않은 것으로 보인다.

4. 참고문헌

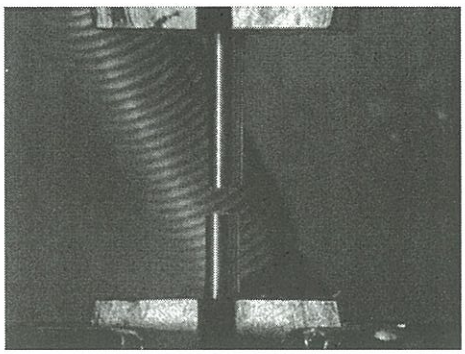
[1] L. C. Walters, B. R. Seidel, and J. H. Kittel, *Nuclear Technology,* **65**, 179-185 (1984).

[2] J. H. Kittel, B. R. T. Frost, J. P. Mustellier, K. Q. Bagley, G. C. Crittenden, and J. V. Dievoet, *Journal of Nuclear Materials,* **204**, 1-8 (1993).

[3] L. C. Walters and J. H. Kittel, *Nuclear Technology,* **48**, 273-278 (1980).



(a)



(b)

Fig. 1. Experimental apparatus installed in a Hot cell for mechanical test of SFR metallic fuels (a) experimental apparatus, (b) fractured specimen

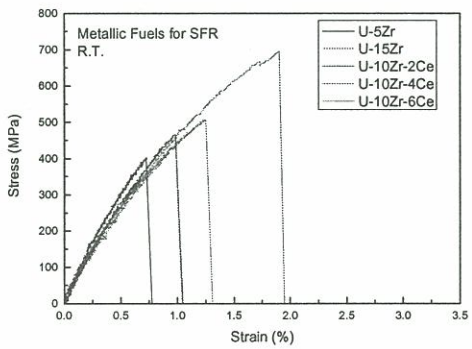


Fig. 2. Comparison of stress-strain curve of between U-Zr binary metallic fuels and U-Zr-Ce ternary metallic fuels

Table 1. UTS and elongation data of SFR metallic fuels

Metallic Fuel	Test Temp.	UTS (MPa)	Elong. (%)
U-5Zr	R.T.	401.81	0.727
U-15Zr	R.T.	696.00	1.927
U-10Zr-2Ce	R.T.	465.11	0.988
U-10Zr-4Ce	R.T.	505.66	1.265
U-10Zr-6Ce	R.T.	431.08	0.981

고주파 유도용해 U-Zr-Mn의 망간 휘발성 고찰

오석진, 장세정, 김기환, 이종탁, 이찬복
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
sjoh@kaeri.re.kr

1. 서론

휘발성 원소를 함유한 SFR 합금 연료제조는 휘발원소 방지기술이 오래 전부터 부각되고 있다. 기존 연료심 제조에서는 휘발물질 원소를 목표조성보다 초과하여 휘발조성을 맞추어 진공 용해주조를 실시하였었다. 하지만 휘발성 물질을 함유한 방사성 물질의 확대 오염 및 폐기물 발생 증가에 따라 진공상태에서 금속 연료심 합금 제조에는 적합하지 않다. SFR 핵연료 및 사용 후 핵연료 TRU의 재활용 측면에서 연료심 합금 제조 시 Am의 증기압이 높기 때문에 상당한 양이 휘발되어 오염시키므로 Am 휘발성이 큰 문제를 일으킨다. 본 연구에서는 TRU 내 존재하는 Am 휘발거동에 대한 기초연구로써, Am과 유사한 휘발거동을 갖는 Mn을 대체물질로 선정하였다. 연료심 용해주조는 고주파유도용해로(Vacuum Induction Melting)를 이용하여 휘발 방지를 하고자 불활성 분위기에서 온도와 압력조건을 달리하여 용해하였다. 기존 진공에서 실시한 결과와 비교하기 위하여 화학분석으로 Mn 휘발 양을 측정하고 미세조직 및 결정구조를 관찰하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

휘발방지 대체물질 원소로 선정된 Mn을 첨가하여 U-10Zr-2Mn 합금 목표조성으로 제조하였다. 용해 순수금속 장입 순서는 도가니 하단부에 Zr, 중앙에 Mn, 상부에 U Lump 순으로 장입을 시행하였다. 가열 및 승온 속도는 용융 전 1000℃까지 1.0×10^{-3} torr 진공상태로 30℃/min 실시하고, 이후 Ar 분위기 0.8기압, 1.0기압에서 각각 15℃/min로 1500℃까지 용해하여 하부 중력주조 방식에 의한 주형에 출탕하였다. 그림 1은 진공유도용해장치 사진이다. 제조한 금속 연료심은 Ø10 × L300mm로 각각 상, 중, 하 부위별 Button 형태의 시편을 채취하여 조성분석, 밀도측정을 실시하였다. 결정구조 X선 회절장치(XRD;X-ray Diffraction)로 4° /min, $20 \leq 2\Theta \leq 120$ 측정하고, SEM(Scanning Electron Microscope)과 EDS(Energy Dispersive Spectroscope)를 이용하여 미세구조를 관찰하였다.

2.2 고찰 및 결과

Mn은 1200℃~1500℃ 구간에서는 Am과 유사한 증기압을 나타내는 것으로 알려져 있다. 그러므로 용해주조 연료심 제조에서 Am 휘발량을 비교하기위하여 대체물질로 2wt.%Mn을 첨가하였다. C.L.Trybus 논문에 의한 U-Zr-Mn 3원계 합금 사출주조법에 의한 연료심 제조 휘발원소 대체물질 Mn의 첨가로 Pu과 Minor Actinide를 함유한 연료심의 증기압은 대략 일치하는 것으로 보고되었다. Minor Actinide 연료 전체 증기압은 U-20Pu-10Zr-2.1Am-1.3Np 합금 연료 1500℃에서 ~43Pa(0.3torr)로 알려져 있는데 이는 U과 Zr의 증기압이 1500℃에서 Pu보다 3~4.5배 낮으므로 근본적으로 minor actinide 함유 연료 전체 증기압에는 영향이 없는 것으로 알려져 있다. 본 실험에서 사용한 연료심은 고찰에서 언급하였듯이 휘발 증기압을 고려하여 0.8 기압 Ar 분위기에서 진공유도용해를 실시하여 화학분석한 결과는 약 10%의 휘발량을 보였으며 1.0기압(대기압; 760 torr)에서는 휘발 손실량이 없었다. 미국 및 일본 등 해외에서는 Mn 휘발손실을 40%까지 된다는 보고가 있었지만 이는 진공중에서 실시한 손실률이다. 그러나, 본 실험 결과로 보면 TRU-Zr 합금 연료 제조시 Am 휘발방지 대책으로 용해주조시 압력을 760 torr(대기압) 이상 유지한다면 즉, 온도와 압력 조건을 달리하면 휘발량은 줄일 수 있을 것으로 보여진다. 또한, 진공유도용해 연료심의 길이가 300mm이었지만 상중하 위치별 커다란 조성 차이가 없는 것으로 보아 건전한 연료심이 제조 되었음을 알 수 있었다. 그림 2는 1.0기압(대기압)조건, 그림 3은 0.8기압조건에서 제조한 U-10Zr-2Mn 합금 연료심 미세조직관찰 분석결과 사진이다. 그림 2에서 흰색 부위의 α-U 기지 내에 검은색 부위의 Mn_2Zr 상 및 회색 부위의 UZrMn 화합물로 형성된 것을 확인하였다. 시편

위별 밀도 측정과 XRD 측정결과도 커다란 차이가 나지 않는 건전한 연료심을 제조하였다. 압력 차이에 따른 미세조직 차이점이 존재하는 것으로 보아 향후 실험은 용해 가열온도, 가열유지 시간, 압력을 변화시켜 휘발원소 휘발량과 미세조직 거동 및 상변화를 관찰하고자 한다.

3. 결론

0.8기압(약 600torr) Ar 분위기에서 제조한 연료심은 Mn의 높은 증기압으로 인해 화학분석결과 약 10%정도 휘발량이 발생되었음을 알 수 있었다. 이러한 결과로 보아 핵연료 제조공정상 용해주조시 압력을 높여야 되며 휘발증기압 곡선에 따라 가열온도는 낮을수록 휘발거동이 건전한 금속연료심 제조를 수행할 수 있을 것으로 판단된다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부 중장기 연구과제의 일환으로 작성되었으며 연구지원에 감사드립니다.

5. 참고문헌

[1] C. L. Trybus, J. E. Sanki, S. P. Henslee, Journal of Nuclear Materials, Vol.204, pp.50-55, 1993.

[2] F. H. Ellinger, K. A. Johnson, V. O. Struebing Journal of Nuclear Materials, Vol.20, pp.83-86, 1966.

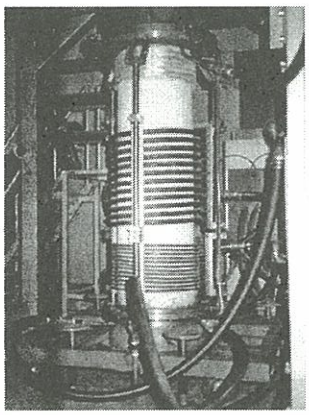


Fig. 1. Vacuum Induction Melting System

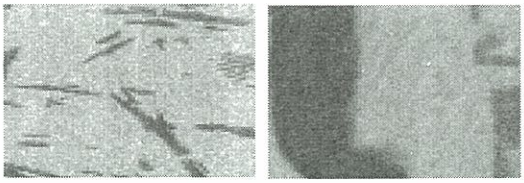


Fig. 2. Microstructure of U-10Zr-2Mn(1.0atm;760torr)

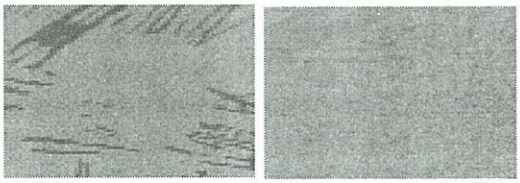


Fig. 3. Microstructure of U-10Zr-2Mn(0.8atm;600torr)

기준 파이로 시설 미계량물질(MUF) 측정 불확도 모델

한보영, 박세환, 송대용, 신희성, 안성규, 이태훈, 김호동
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 대덕대로 1045
byhan@kaeri.re.kr

1. 서론

본 연구는 기준 파이로 시설의 안전조치를 이행하기 위한 핵물질 계량 측정 시스템을 이용하여 핵물질 계량 측정 시 발생하는 측정불확도로부터 파이로 공정 물질 수지 구역 안에서 발생되는 미계량물질의 불확도 모델을 제시한다. 기준 파이로 시설은 공학규모의 10tHM 사용후핵연료를 처리할 수 있는 시설로써 개념연구를 통해 선정된 물질수지구역(MBA)와 주요측정지점(KMP)에 대한 정보를 사용한다 [1]. 주요 파이로 공정을 포함하고 있는 MBA-2 구역을 하나의 자동화된 공정처럼 생각하고 MBA-2안에서 계량관리는 공정흐름에 방해하지 않기 위해 최소화하는 모델을 설명한다. Fig. 1은 계량관리관점에서 핵물질흐름도를 간략히 표시하였다.

2. 본론

2.1 기준파이로 시설 안전조치 계량 방안

Fig.1에서 주요 파이로공정 셀 안에서 발생되는 미계량물질의 양은 식 (1)과 같이 정의된다.

$$MUF_i = x_{in} - (x_U + x_{TRU} + x_W) + d_i \quad \cdots\cdots (1)$$

여기서 MUF_i은 미계량물질로 파이로공정 안에서 발생하는 총 hold-up과 process loss을 포함하고, x_{in} 은 총 반입 핵물질 양, x_U는 총 반출되는 U ingot의 핵물질 양, x_{TRU}는 총 반출되는 U/TRU의 핵물질 양, 그리고 x_W는 총 반출되는 폐기물에 포함된 핵물질 양을 말하며 y_i는 셀 안에서 재고측정(inventory taking)때 측정된 양을 말한다. 각 측정값은 그 측정 방법에 따라 측정오차를 가지며 MUF값은 각 측정오차들로부터 전파된 통계적인 불확도를 가진다. 이를 미계량물질의 불확도라 부르고 σ_{MUF} 로 표기할 것이다. 측정 불확도는 독립적인 두 종류의 오차로 분류되는데 그 특징에 따라 랜덤오차(random error)와 계통오차(systematic error)로 나눈다. Fig. 1에서 보는 바와 같이 계량관리 모델은 MBA-2 안에는 처리되지 못하고 순환되는 미량의 핵물질을 측정하는 KMP가 존재하고 MBA-1에 Input Accountancy Tank안에 균질화 공정 후 SF 분말을 저장하는 곳으로 input 양을 측정하는 inventory가 있다. MBA-1과 MBA-2 사이 경로에는 격납/감시 시스템을 설치하여 이동간의 전용을 감시하고 동일한 물질 이동을 증명하므로 SRD (Shipper and Receiver Difference)가 발생하지 않는 것으로 간주한다. 또한 MBA-2로부터 반출되는 U과 U/TRU ingot 그리고 폐기물 역시 두 MBA 이동간에 SRD가 존재하지 않고 MBA-3에서 반출되는 물질은 형태에 따라 3개의 KMP에서 계량 측정된다.

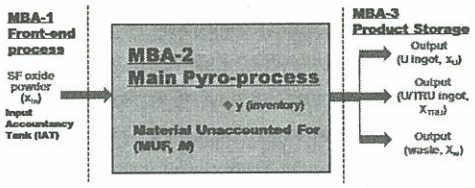


Fig. 1. Schematic of the simplest safeguards accountancy model

2.2 핵물질 계량관리를 위한 측정 오차 분석

2.2.1 균질한 SF 분말에 대한 Pu 측정 (IAT/MBA-1)

측정 대상의 SF 분말은 측정을 위해 n개의 균등한 item으로 나누고 r개 샘플을 수집하여 피동형 중성자 검출기와 감마검출기를 이용한 비파괴검사를 수행한다. 식 (2)에서처럼 저울을 통한 총 SF 무게(W)와 비파괴검사를 통한 Pu 성분비(P)를 곱하여 해당 총 Pu 무게를 측정한다. 식 (3)은 측정에서 발생되는 오차와 샘플링으로부터 예상되는 Pu 측정에 대한 불확도를 보여준다.

$$x_{\mathrm{in}} = W \times P \quad \cdots\cdots (2)$$

$$\sigma^2_{x_{in}} = (x_{in})^2 \left[\left(\frac{\delta^2_\epsilon}{n} + \frac{1}{r}(\delta^2_{c_r} + \delta^2_{f_r} + \delta^2_{s_r}) \right) + \left(\frac{\delta^2_\eta}{n}\left(1 + \frac{2}{n}\sum_{\substack{i=1 \\ i<j}}^{n-1} \rho_{ij}\right) + \delta^2_{c_s} + \delta^2_{f_s} + \delta^2_{s_s} \right) \right] \quad (3)$$

2.2.2 U ingot에서 Pu 측정 (전수검사)

측정 대상인 U ingot안에 포함된 Pu 양을 측정하

기 위해 총 U ingot을 m개의 균등한 item으로 나누고 파이로공정 셀을 나오는 모든 item을 피동형 중성자 검출기를 이용하여 Cm-244의 양(C)을 측정하고 균질화 분말에서 구한 Pu/Cm 비율(f)을 이용한다.

$$x_U = C \times f \quad \cdots\cdots (4)$$

$$\sigma^2_{x_U} = (x_U)^2 \left[\left(\frac{1}{C^2} \sum_{i=1}^{m} c_i^2 \delta_\omega^2 \right) + \delta_{f_r}^2 + \delta_{f_s}^2 + \frac{\delta_\mu^2}{C^2} \left(\sum_{i=1}^{m} c_i^2 + 2 \sum_{\substack{i=1 \\ i<j}}^{m-1} c_i c_j \pi_{ij} \right) \right]$$

2.2.3 U/TRU ingot에서 Pu 측정 (전수검사)

측정 대상인 U/TRU ingot의 경우 하나의 item이 전체 sample을 대표한다. 파이로공정 셀을 나오는 U/TRU ingot을 피동형 중성자 검출기를 이용하여 Cm-244의 양을 측정하고 U ingot에서와 마찬가지로 Pu/Cm 비율이 공정 중 변하지 특성을 적용한다.

$$\sigma^2_{x_{TRU}} = (x_{TRU})^2 \left[\left(\delta_\xi^2 \right) + \left(\delta_\gamma^2 + \delta_{f_r}^2 + \delta_{f_s}^2 \right) \right] \quad \cdots\cdots (5)$$

2.2.4 폐기물에서 Pu 측정 (전수검사)

폐기물의 경우 포함된 핵물질 양이 극미하기 때문에 계량관리 필요성이 적지만 여기서는 측정을 가정하고 하나의 item이 전체 sample을 대표하여 전수검사를 한다. U/TRU ingot에서와 같이 파이로공정 셀을 나오는 폐기물을 중성자 검출기를 이용하여 Cm-244의 양을 측정한다.

$$\sigma^2_{x_W} = (x_W)^2 \left[\left(\delta_\theta^2 \right) + \left(\delta_\kappa^2 + \delta_{f_r}^2 + \delta_{f_s}^2 \right) \right] \quad \cdots\cdots (6)$$

2.2.5 파이로 공정 셀 안 inventory에서 Pu 측정 (전수검사)

파이로 공정에서 순환되는 핵물질의 계량관리는 하나의 item이 전체 sample을 대표하는 전수검사를 가정으로 한다. 현재 적용되는 방법은 피동형 중성자 검출기를 이용하여 Cm-244의 양을 측정하며, 측정대상물질이 염과 함께 혼재되어 있는 핵물질이기 때문에 구체적인 방법은 폐기물에서의 측정방법과 동일할 것으로 예상한다.

$$\sigma^2_{y_i} = (y_i)^2 \left[\left(\delta_\tau^2 \right) + \left(\delta_v^2 + \delta_{f_r}^2 + \delta_{f_s}^2 \right) \right] \quad \cdots\cdots (7)$$

2.3 미계량물질(MUF) 측정 불확도 모델

각 주요측정지점에서 측정값과 측정오차들을 예측하였고 이 측정값들의 대수적 합산을 통해 한 물질수지주기에서 미계량물질(MUF)을 결정하는 계산모델을 제시한다. 본 연구를 위해 개념 설계된 파이로시설은 공정 가동 중에 하나의 캠페인 단위로 구분이 가능하며 캠페인 간의 독립성이 유지되는 것으로 가정하고 있다[2]. 한 캠페인 주기로 물질계량 관리가 이루어지며, 예측되는 미계량물질의 불확도는 식 (8)과 같다

$$\sigma^2_{MUF_i} = \sigma^2_{x_{in}} + \sigma^2_U + \sigma^2_{TRU} + \sigma^2_W + \sigma^2_{y_{i-1}-y_i} \quad \cdots\cdots (8)$$

총 물질 수지 기간(연간 처리량 기준)에서 미계량물질(MUF) 결정은 연간 총 q개의 캠페인(campaign)이 처리되고 현재 캠페인 ending inventory의 값은 다음 캠페인에 beginning inventory 값으로 사용되기 때문에 발생하는 correlation effect를 고려하여야 한다. 이를 위해 총 미계량물질 계산식 (9)를 얻을 수 있다.

$$MUF = MUF_1 + MUF_2 + \cdots + MUF_q \quad \cdots\cdots (9)$$

$$= \sum_{i=1}^{q} \left[x_{in} - (x_U + x_{TRU} + x_W) \right]_i + y_0 - y_q$$

Table 1. MUF 불확도 계산식에서 사용된 첨자들

첨자	내 용
δ	상대적 랜덤, 계통 오차
s	샘플링 오차 변수
c	Cm-244 측정오차 변수
f	Pu/Cm-244 측정오차 변수
ρ_{ij}	SF 분말의 무게 측정 시 상관관계 계수
π_{ij}	NDA 분석 측정 시 상관관계 계수

3. 결론

본 연구를 통해서 기준파이로시설의 측정방법에서 발생할 수 있는 미계량물질 양과 불확도를 예측할 수 있는 모델을 제시하였다. 예측된 미계량물질 불확도는 기준파이로시설의 계량관리측면에서 안전조치성과 시설의 총 연간 처리량, 그리고 사찰활동의 주기를 결정하는 중요한 요소로 작용할 것이다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었다.

5. 참고문헌

[1] 한국방사성폐기물학회, 2010년 춘계학술발표회 논문요약집, pp.209-210, 2010.

[2] 김호동 외 7명, "기준파이로시설에 대한 핵물질 계량관리 시스템 설정", KAERI/TR-4294, 2011.

제2분과

핵연료주기 기술 (Poster)

빈 면

소형 ZrCo 및 DU 베드 수소흡탈장 시스템 설치 및 검사

구대서, 정동유, 이지성, 정홍석
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
ndskoo@kaeri.re.kr

1. 서론

삼중수소는 중수로형 원전 방사성폐기물이며 한편으로는 핵융합반응의 소중한 연료물질이다. 핵융합반응에 사용되는 삼중수소 저장·공급용기는 흡탈장 기능이 필요하다[1]. 삼중수소 저장재는 ZrCo 합금금속 및 우라늄을 사용하여 삼중수소 흡탈장 성능실험을 수행하여 그 기초 특성연구가 진행 되었다[2-4].

본 연구는 소형 ZrCo 및 DU베드 수소흡탈장 특성을 비교하기 위하여 수소흡탈장 측정시스템을 설치하였다. 소형 ZrCo 및 DU베드 저장용기의 안전 및 품질보증을 위하여 내압검사 및 헬륨리크검사를 수행하고, 소형 ZrCo 및 DU베드 수소흡탈장 시스템의 기밀성을 확인하였다.

2. 본론

2.1 소형 베드 수소흡탈장 시스템 설치

Fig. 1은 소형 ZrCo 및 DU베드 수소흡탈장 시스템을 나타낸 것이다. 이 시스템은 각 베드를 선택하여 수소흡탈장 특성실험을 할 수 있도록 하였다. 각 소형베드는 1차용기와 그것을 보호하고 냉각용 헬륨을 공급하고 배기하고 고진공화할 수 있는 2차용기로 구성된다. 각 위치의 온도정보를 제공하기 위하여 1차용기 내에 온도센서 2개 및 2차 용기에 온도센서 1개를 설치하였다. 1차용기 내 저장재의 수소 탈장을 위하여 1차용기 외벽에 케이블 히터2개(총용량 12kW)를 설치하였다. 수소탈장을 위하여 dry pump설치하고 소형 베드 진공시스템의 진공화를 위하여 로터리 및 TMP(turbo molecular pump)를 설치하였다.

2.2 소형베드 내압검사

Fig. 1은 소형 ZrCo 및 DU베드 수소흡탈장 시스템에 내압검사를 나타낸 것이다. 압력게이지 2개를 사용하여 한 개는 1차 용기배관에 설치하고 다른 한 개는 2차 용기배관에 설치하였다.

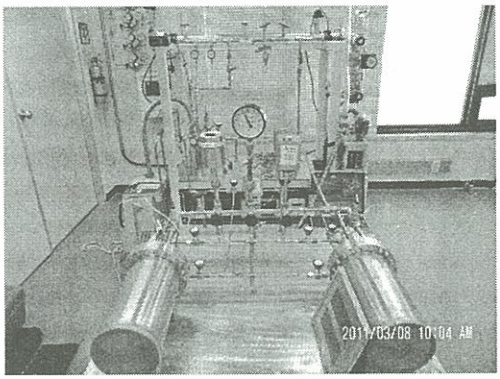


Fig. 1. A photograph of small ZrCo and Du beds

각 압력게이지에 알곤개스 4 bar를 채우고 먼저 소형 베드 1차 용기 배관 연결부, 소형베드 1차용기 배관 용접부(온도센서, 수소인렛 배관)에 대하여 버블검사(bubble test)를 수행하였다. 1차 압력게이지에 리크가 없음이 확인되면 같은 절차로 2차 용기 배관 연결부, 소형베드 2차용기 배관 용접부(온도센서, 수소아웃렛 배관)에 대하여 버블검사(bubble test)를 수행하여 압력게이지를 통하여 리크여부를 확인하였다.

소형 ZrCo 및 DU베드 수소흡탈장 시스템 1차 및 2차 배관에 알곤개스 4 bar 채워 1시간 동안 압력변화 없음을 확인하여, 소형 ZrCo 및 DU베드 수소흡탈장 시스템의 내압검사를 완료하였다.

2.3 소형베드 헬륨리크 검사

소형베드 헬륨리크검사는 헬륨리크 디텍터(Leybold, Inficon UL200)를 사용하여 다음의 검사절차로 수행하였다(그림2). 첫째 헬륨리크 디텍터를 수소탱크 및 노트북 PC에 연결하여 각각 전원을 공급한다. 둘째 헬륨리크 디텍터를 작동시키면 진공 및 turbo pump가 가동하여 측정모드로 진행한다. 셋째 측정모드에서 백그라운드(leak rate)값이 기준치(1.0×10^{-9} Pa·m^3/s) 이하까지 도달하도록 기다린다.

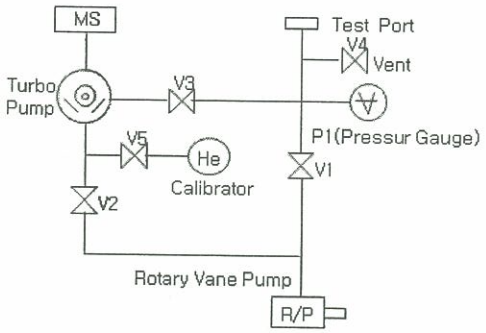


Fig. 2. A schematic diagram of helium leak detector

넷째 헬륨 리크율이 기준치에 도달하면 헬륨개스를 1차용기 배관연결부, 압력센서 연결부, 소형베드 CF 플랜지 연결부 및 소형베드 TC 용접부, 히터선 용접부, 수소개스 공급배관 용접부에 뿌려 헬륨리크 검사를 수행한다(그림3).

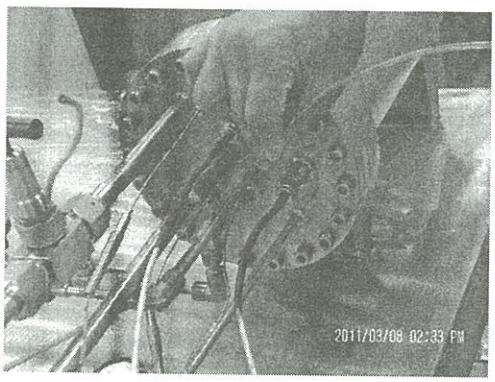


Fig. 3. Helium leak test of cable heater connector.

같은 절차로 2차용기 배관부, 압력센서 연결부 및 소형베드 TC 용접부, 수소개스 배기배관 용접부 검사를 수행한다.

그림 4는 소형 ZrCo 및 DU베드 수소흡탈장 시스템에 대한 헬륨리크검사 결과를 나타낸 것이다. 노랑색과 빨강색은 임의 지시치인 경고 및 불량선인데 측정치 녹색선은 경고 및 불량선 이하 헬륨리크율을 유지함으로써 삼중수소 저장공급용기 품질보증 기준치 1.0×10^{-9} Pa·m^3/s 요건을 잘 만족하였다.

3. 결론

소형 ZrCo 및 DU베드 소흡탈장 측정시스템을 설치하였다. 소형 ZrCo 및 DU베드 저장용기의

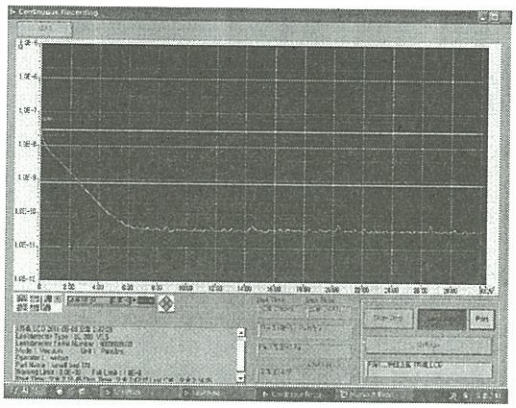


Fig. 4. Result of helium leak tests.

안전과 품질보증을 위하여 내압검사 및 헬륨리크 검사를 수행하였다. 삼중수소 저장공급용기 품질보증 기준치 1.0×10^{-9} Pa·m^3/s 요건을 잘 만족하였으며, 소형 ZrCo 및 DU베드 수소흡탈장 시스템의 기밀성을 확인하였다.

4. 감사의 글

본 논문은 교육과학기술부의 국제핵융합실험로(ITER) 공동개발사업 지원으로 작성되었음

5. 참고문헌

[1] Hongsuk Chung et al., ITER Tritium SDS Design Verification, KAERI/RR-2879/2007 (2008).

[2] Myunghwa Shim et al., "Experimental Study on the Delivery Rate and Recovery Rate of ZrCo Hydride for ITER Application", Fusion Science and Technology, Vol. 54, pp. 27-30, July 2008.

[3] T. Tanabe et al.," Recovery of Hydrogen Isotopes Using a Uranium Bed," J. of the Less - Common Metals, Vol. 89, pp. 393-398 (1983).

[4] W. T. Shmayda and P. Mayer, " Uranium Beds for Temporary Tritium Storage," J. of the Less - Common Metals, Vol. 104, pp. 239-250 (1984).

Automatic Gamma Dose Rate Calculation for Radionuclides using MCNPX and ORIGEN-S

Yos Sitompul, Shin Hee Sung
Korea Atomic Energy Research Institute, 1045 Daedok-daero, Yuseong-gu, Daejeon 305-353, Korea
yossitompul@kaeri.re.kr

1. Introduction

Gamma dose rate is sometimes necessary to be calculated in many applications. In the pyroprocessing activity, gamma dose rate is calculated for designing the facility with consideration of the personnel's safety. The spent fuel that is processed in the pyroprocessing facility contains a lot of radionuclides and formed in many configurations [1]. Because of that, the calculation can be messy and frail. Simple and robust method to handle the situation is needed. Herein in this paper, the difficulty is handled using the automatic processing using MCNPX and ORIGEN-S code [2, 3]. Gamma dose rate can be calculated for many configurations by using MCNPX code and many radioisotopes can be calculated by using ORIGEN-S code.

2. Method

Gamma dose rate from radionuclides is commonly calculated by using the gamma dose rate constants ($R \cdot m^2 \cdot h^{-1} \cdot C^{-1}$) for each radionuclide. Their values are usually listed in a radioisotopes handbook [4, 5, 6]. However for complicated composition and configuration, it is messy and frail to calculate the dose rate using the value from the handbook. MCNPX and ORIGEN-S code were used to get the dose rate for each radionuclide in this paper.

MCNPX code based on monte carlo method was known for its capability to calculate gamma dose rate for any configuration, including mass, density, geometry, nuclide composition, source, detector and dose function. The source definition in MCNPX can cover wide range of particles, geometry, and energy. Although MCNPX can use discrete gamma energy in the source definition, it is difficult to input all gamma energy from each radioisotopes by handmade. ORIGEN-S code was used to generate the gamma energy spectrum and source strength for each radionuclide. ORIGEN-S has the capability to apply discrete energy data and allows gamma spectra to be calculated in any energy specified group using histogram gamma energy. When the data from the library are converted to multi group yields, the gamma intensities are adjusted to conserve gamma energy release rate. The adjusted group intensity is shown in Eq. 1 [3].

$$I_g = I_a \, (E_a/E_g) \quad (1)$$

where
I_a = actual photon intensity,
E_a = actual photon energy (MeV),
E_g = mean energy of the group (MeV), and,
I_g = group photon intensity (photons per disintegration).

The method was programmed using C++ language. The program's flowchart is shown in Fig. 1. At the beginning, a radionuclide list was given to the program as an input. The list can be also taken from the depletion calculation from the ORIGEN-S. The program calls the ORIGEN-S to produce the gamma energy spectrum and source strength from the list. The spectrum and source strength are produced by a decay calculation using decay time of 10^{-9} s. The gamma spectrum is stored and used as an input for dose rate calculation by MCNPX. MCNPX can do point or volumetric source in the dose rate calculation. The dose rate was calculated using F2 tally which is the flux on a surface and was multiplied by FM card with the source strength. Flux was converted to dose rate using ICRP60 (1990) dose function.

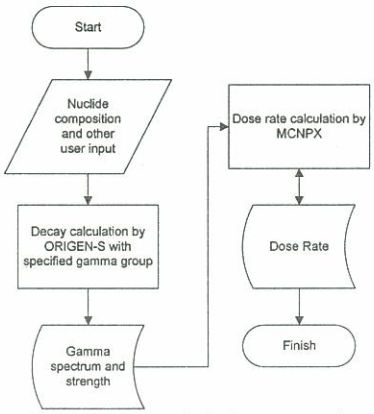


Fig. 1. Gamma dose rate calculation program flowchart

The first dose rate calculation was done for standard gamma sources which are mostly consist of two gamma discrete energy. The calculation performed to show the comparison of the MCNPX simulation with radioisotopes handbook data when the gamma discrete energy from the book was used. In the second dose rate calculation, gamma spectrum and strength calculated by ORIGEN-S were used for the standard gamma sources. The energy structures that were used are the built-in gamma ORIGEN-S gamma structures which are 18 groups SCALE and 47 groups ENDF6. The comparison with the reference is provided. The effect of energy structures that were used in ORIGEN-S to the dose rate was studied using the third dose rate calculation for some actinides. The calculation was performed to determine which group structure should be used for the dose rate calculation. For notice, all calculations were performed using point source.

3. Results

The comparison of the MCNPX simulation result and the reference for standard gamma sources is shown in Table 1. The result shows that MCNPX has a good agreement with the reference with the maximum

difference of 8.36% at Au198 case. The MCNPX calculation can be use well using the gamma discrete energy that is provided.

Table 1. First dose rate calculation

Source	Half Life	Gamma Energy (Mev)	R·m²·h⁻¹·C⁻¹		
			Reference	MCNPX	% Difference
Au198	2.696 d	0.412 - 96% 0.676 - 1.1% 1.088 - 0.23%	0.24000	0.22148	-8.36
Ba137m	2.551 m	0.662 - 90%	0.34000	0.33875	-0.37
Co60	5.271 y	1.173 - 100% 1.332 - 100%	1.29500	1.26470	-2.40
Na22	2.602 y	1.275 - 100% 0.511 - 180%	1.19000	1.13890	-4.49
Cl38	37.3 m	1.642 - 33% 2.168 - 44%	0.68000	0.67261	-1.10
Na24	15.02 h	1.369 - 100% 2.754 - 100%	1.83000	1.79260	-2.09

In the second dose rate calculation, shown in Table 2, the built-in gamma spectrums from ORIGEN-S were used and Table 2 shows that it can be use well in the dose rate calculation by MCNPX. The maximum difference is 18.89% for 18group SCALE and 24.90% for 47 groups ENDF6. The result shows that the specified group matters for the dose rate calculation of each nuclide. For some nuclides, the energy structure is suitable and not for the other. For this reason, we study the effect using the third dose rate calculation.

Table 2. Second dose rate calculation

Source	R·m²·h⁻¹·C⁻¹				
	Reference	18GrpSCALE		47GrpENDF6	
		Value	% Difference	Value	% Difference
Au198	0.24000	0.24374	1.53	0.26546	9.59
Ba137m	0.34000	0.34192	0.56	0.33572	-1.27
Co60	1.29500	1.26740	-2.18	1.28160	-1.05
Na22	1.19000	1.21060	1.70	1.21450	2.02
Cl38	0.68000	0.83836	18.89	0.90542	24.90
Na24	1.83000	1.81690	-0.72	1.85900	1.56

The dose rate value of each radionuclide is converged to a certain value when the number of group is increased. This is because the mean gamma energy within group comes closer to the true gamma discrete energy of the radionuclides. The built-in gamma spectrum from the ORIGEN-S uses a log scale so that the higher energy has wider energy range within group. This is suitable for many radionuclides that have many discrete energy at low energy and little discrete energy at higher energy. The energy group in ORIGEN-S was modified with higher number of group with linear division from 10 keV to 10 MeV. The result is shown in Fig. 2. The graph shows that using 10000 groups, which is equal 1 keV width/group, is enough to get the accuracy that is needed.

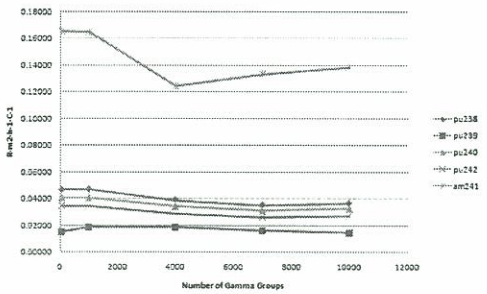


Fig. 2. Dose rate convergence from the third calculation.

4. Conclusions

Gamma dose rate calculation using MCNPX and ORIGEN code was performed and studied. The result shows good agreement with the reference. The calculation was done using point source and can be extended to volumetric source with self shielding effect. 10000 groups linear energy structure is used and shows good accuracy for any radionuclides because it equally divides the gamma energy range into groups.

5. ACKNOWLEDGEMENT

This work has been carried out under the Nuclear R&D Program of the Korea Ministry of Science and Technology (MOST).

6. REFERENCES

[1] S. D. Herrmann and S. X. Li, Separation and Recovery of Uranium Metal from Spent Light Water Reactor Fuel via Electrolytic Reduction and Electrorefining, Nuclear technology, Vol. 171, pg. 247-265, 2010.
[2] B. P. Denise, MCNPXTM User's Manual Version 2.5.0, LA-CP-05-0369, 2005.
[3] L. C. Gauld, O. W. Hermann, R. M. Westfall, ORIGEN-S: Scale System Module to Calculate Fuel Depletion ..., Oak Ridge National Laboratory, 2009.
[4] C. M. Lederer and V. S Shierly, Table of Isotopes, 7th ed. J. Willey & Son, Inc., New York (1978)
[5] NCRP report No. 58 (1978).

LiCl-KCl 공융염 hybrid 재생공정 발생 란탄계 폐기물의 세라믹 고화체 제조

안병길, 박환서, 김환영, 조용준
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
bgan@kaeri.re.kr

1. 서론

사용 후 핵연료의 재활용 및 처분 부피 절감을 위해서 용융염을 사용하는 건식공정(pyrochemical process 혹은 pyroprocessing)은 2차 방사성폐기물의 발생량이 적고 공정이 간단할 뿐만 아니라, 핵 확산에 대한 저항성이 매우 크다는 장점이 있기 때문에 미래의 핵주기 기술로서 주목받고 있다. 건식 공정 중 전해 정련 공정에서 발생되는 폐 용융염 내에는 방사성 희토류(Nd, Ce, Y 및 La) 염화물이 존재하며, 이를 제거함으로서 재사용이 가능하다. 재생 공정에 적용되는 방법으로 산소 분산방법에 의해 희토류(RE, Rare Earth) 염화물을 산화물을 침전 분리한 후 잔류물을 감압 증류하여 공융염을 회수하고 최종적으로 희토류 산화물 형태의 폐기물이 발생되며, 이들 희토류 산화물에 대한 고화체 제조 연구를 위한 다양한 연구를 수행하여 ZIT 세라믹 고화매질을 개발하였다. 산소분산 방법은 용기 부식 등의 문제점이 있으므로, 새로운 hybrid 공융염 재생 공정을 개발하였다. 이러한 재생공정은 LiCl-KCl 폐용융염에 Li_3PO_4 및 K_3PO_4를 LiCl-KCl 조성비를 유지할 수 있는 당량으로 투입하여 희토류 염화물을 RE-phosphate로 침전 회수하고, 잔존 희토류 염화물은 산소 분산 방법에 의해 RE oxide/oxychloride 혼합물로 침전되며 잔류물을 감압 증류함으로서 분말상의 RE-phosphate와 RE-oxide/oxy chloride로 구성된 새로운 희토류 폐기물이 발생된다. 이들 분말상의 희토류 폐기물은 처분 환경에서 장기간 건전성을 유지할 수 있는 안정한 고화체로 제조 되어야 한다. 본 연구에서는 희토류 산화물 대상으로 개발된 ZIT 고화매질을 상기 폐기물 고화에 적합하도록 구성 성분비를 조절하여 제조공정이 단순한 분말 소결 공정에 의해 장기간 건전성을 유지할 수 있는 안정한 고화체를 제조하기 위한 방향 설정, 고화체 제조 및 제조된 고화체의 물리.화학적 특성을 평가함으로서 최종 처분에 적합한 고화체 제조 조건을 확보하고자 한다.

2. 본론

2.1 실험 방법

monazite계 세라믹 고화체 제조를 위해서 phosphate 화합물 원료는 $CaHPO_4$(CHP)를 합성하여 사용하였다. Binding matrix의 제조는 ZnO와 TiO_2를 기본물질로 하여 내구성이 우수한 zinc titanite(ZNT) 세라믹을 제조하였으며 XRD 분석으로 확인 하였다. 부가적 binding matrix로는 SiO_2 및 B_2O_3를 사용하였다.

hybrid 공정의 조업 조건에 따라 발생되는 폐기물 특성 변화에 대비한 실험으로서 70wt%의 $REPO_4$와 30 wt%의 RE oxide/oxy chloride로 구성된 hybrid 재생 공정 폐기물의 함량 변화에 대한 ZIT 고화체 특성을 실험하였다. hybrid 공정에서 발생된 희토류 폐기물에 대한 XRD 분석결과를 그림 1에 나타내었다. 실험 조건은 일정 조성비를 갖는 ZIT 고화매질을 이용하여 희토류 폐기물의 함량(20~40 wt%) 변화(표 1)에 따른 고화체 특성을 조사하였다. 제조 방법은 시편 당 약 40g의 혼합물을 graphite 도가니에 넣은 후 질소 분위기에서 10℃/min의 승온 속도로 1100℃에서 4시간 동안 고상 소결하였다.

ZIT 매질 조성;
ZNT/ CHP/ SiO_2/ B_2O_3=70/ 7.5/ 10/ 12.5

Table 1. hybrid 공정폐기물[$REPO_4$(70wt%)+RE oxide /oxy chloride(30wt%)] 고화체 제조 조성

No.	ZIT(g)	Waste (g)	Loading (wt%)	CHP contents (g)	CHP 이론량 (g)	CHP(%)
1	100	25.0	20.0	7.5	5.6	133.3
2	100	33.3	25.0	7.5	7.5	100.0
3	100	42.9	30.0	7.5	9.6	77.8
4	100	53.8	35.0	7.5	12.1	61.9
5	100	66.7	40.0	7.5	15.0	50.0

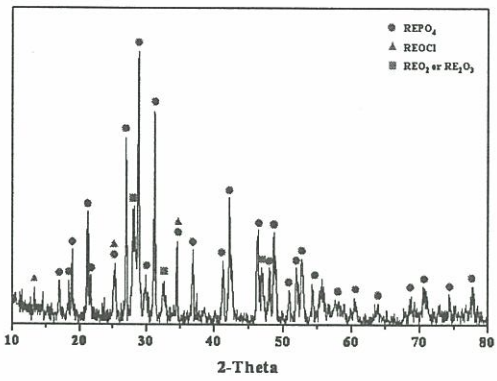


Fig. 1. XRD patterns of RE-waste from hybrid regeneration process

2.2 실험 결과

실험결과 얻어진 고화체 사진(그림 2)을 보면 monolithic한 고화체가 형성되었으며 폐기물 함량이 증가 할수록 macro pore가 많이 형성되었으며, 희토류 폐기물 내 RE-oxide/oxy-chloride를 RE-monazite로 치환하는데 필요한 CHP 이론량에 대한 실제 첨가량이 감소할수록 macro pore 형성이 많았다. 이러한 결과는 hybride 공정 발생 폐기물 내에 미 반응물들이 ZIT matrix의 softening 온도인 약 950℃에서 분해되면서 발생된 가스가 고화체 외부로 방출되지 못해서 macro pore가 형성된다고 판단된다.

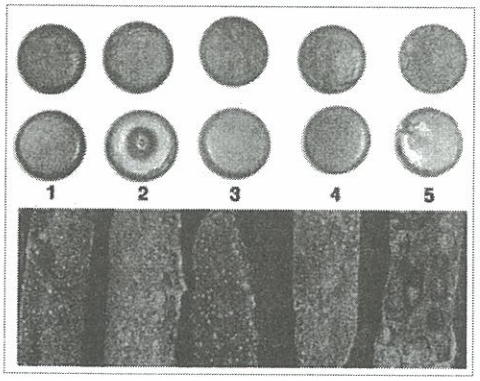


Fig. 2. Photograph of ZIT ceramic wasteforms of rare earth waste generated from hybride LiCl-KCl molten salt regeneration process according to waste loading(No. 1 20wt%, No. 2. 25wt%, No. 3. 30wt%, No.4 35wt%, No.5; 40wt%).

제조된 고화 시편에 대한 XRD 분석결과를 그림 3에 나타내었으며, 30wt% 이상의 고화체는 희토류-모나자이트와 산화물로 구성되어 있음을 알 수 있다.

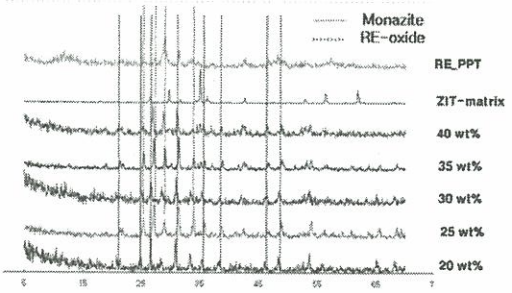


Fig. 3. XRD patterns of ZIT ceramic wasteforms

3. 결론

전해정련 공정에서 발생되는 폐 용융염의 재활용을 위해 hybrid 재생공정 발생 폐기물인 미 분말상의 RE phosphate 및 RE oxide/oxy chloride 혼합물을 처분 환경에 적합한 고화체로 제조하기 위한 연구를 수행하였다. 그 결과 미 반응물에 의한 고화체 내부에 macro pore가 다수 발생되는 현상을 보였다. 이러한 단점을 보완하기 위해서 ZIT 고화매질의 softening 온도 이하에서 탈염소 반응을 유도할 수 있는 첨가물인 $AlPO_4$ 등의 물질을 ZIT 매질에 첨가하여 안정된 고화체를 제조하는 연구를 진행 중이다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

이온 선택성 전극에 의한 표준 AgI 중 I-의 정량

최계천, 송병철, 한선호, 손세철, 박용준, 송규석
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
nkcchoi@kaeri.re.kr

1. 서론

요오드제거에 사용되는 Zeolite 중 13 X-분자체 (molecular sieve) zeolite는 무기 흡착체 중에서 가장 우수한 것으로 알려져 있다. 특히 AgX (99% exchanged)는 섭씨 500도 이상의 고온에서도 요오드에 대한 흡착성능이 우수하며, 유기 요오드에 대한 AgX의 흡착성능은 활성탄에 비해 최소 20배 이상 높고, 고온의 조건에서도 비연소성으로서 요오드의 흡착효율에 영향을 주지 않기 때문에 사용후핵연료 재활용 시설의 배출기체 제어에 유용하게 적용할 수 있다.

본 연구에서는 사용후핵연료의 고온 산화 (voloxidation) 시 배출 기체에 함유된 요오드의 흡착 제거를 위해 사용되고 있는 Ag-exchanged-zeolite의 무기흡착체에 흡착된 AgI 중 I의 분리 및 정량을 위하여 표준 AgI-zeolite를 제조하였다. 음이온수지에 무기체 중의 요오드를 흡착시킨 후 칼럼용리방법으로 분리하였으며, 이온 선택성 전극으로 용리액중의 비방사성요오드를 정량하여 AgI-zeolite 농도를 결정하였다.

2. 본론

2.1 실험

^{129}I의 흡착을 위해 사용된 음이온 수지는 Bio rad 사 음이온 교환수지(AG 1x2, 50-100 mesh)를 사용하였다. KIO_3, KI는 순도 99.9%, $CHCl_3$는 99.5%의 Aldrich 사 제품을 사용하였고, 환원제로서 $NH_2OH \cdot HCl$와 역 추출제로서 $NaHSO_3$ 등은 사용하였다. 화학적 회수율을 결정하기 위한 요오드 측정에는 Iodide 이온선택성 전극(1800, WTW GmbHM, germany)을 이용하였다. 방사선 요오드의 계측에는 저에너지 감마선 분광분석기(Coaxial type, HPGe detector (GMX60-83, AMETEK ORTEC)를 이용하였다.

2.2 요오드 흡착 및 분리

시료로부터 요오드의 분리 후 추출된 용액을 음이온교환 수지 2.5 g, KI(1000 ug/mL) 1.0 mL, pH 7 phosphate 완충용액 20 mL 를 가한다음 12 시간 흡착시킨다. 이것을 지름 ϕ= 0.8 cm 폴리에칠렌 칼럼에 충진시키고 20 mL의 증류수를 2회에 걸쳐 씻어준 다음, 0.2 M $NaNO_3$와 2.0 M $NaNO_3$를 가하여 분리하였다.

3. 결론

3.1 이온선택성 전극에 의한 요오드 측정

이온 선택성 전극을 이용하여 I^-의 표준검정곡선을 작성하였다. 요오드의 분리 및 측량 과정에서 Cl^-, Br^-, $SO3^{2-}$ 등의 방해이온에 대한 영향을 측정한 결과 측정농도의 1 x 10^3 배까지는 영향을 주지 않았다.

3.2 AgI 중 I^- 의 분리

I^- 와 IO_3^-, Cl^-, Br^-, F^- 이온들의 음이온 수지에 대한 친화력의 차이를 이용하여 I^- 종을 분리하였다. I^-는 음이온 수지에 강한 흡착력을 가진 반면에 IO_3^-, Cl^-과 Br^- 등 기타 할로겐 원소는 상대적으로 약한 흡착력을 가진다. 칼럼에 0.2 M $NaNO_3$를 가하여 용리시켜 친화력이 강한 I^- 를 수지에 흡착시키고 친화력이 약한 IO_3^- 및 기타 음이온은 용리액으로 포집하여 분리하였다. 수지에 흡착되어 있는 I^- 를 2.0 M $NaNO_3$ 로 용출시켜 분리하였다. 비이커에 포집된 용액에 산을 가하여 pH를 2로 조절하여 용액속의 IO_3^-를 I^- 로 전환시킨 다음 새로운 음이온 칼럼에 충진하고 0.2 M $NaNO_3$를 가하여 수지에 함유된 음이온을 제거한다. 용리액은 버리고 칼럼의 수지에 흡착되어 있는 I^- (IO_3^-로서)를 2.0 M $NaNO_3$ 로 용출시켜 초기용액과 합한 후 추출 및 역추출하여 측정하였다. 그림 1에 분리과정을 나타내었다.

3.3 AgI중 I 의 정량

추출용액에 $AgNO_3$를 가하여 AgI 침전물을 만든 다음 AgI ppt를 50ml 원심분리관으로 옮기고 2000rpm으로 5분간 원심분리 후 침전물을 저온 건조하여 무게를 측정하여 화학수율을 결정하였다. 저에너지 감마 분광기(Low energy gamma spectroscopy)를 이용하여 방사성 요오드를 계측하였으며 표준 AgI-zeolite 에 대한 방사성 요오드의 회수율은 88.9 %를 나타내었다.

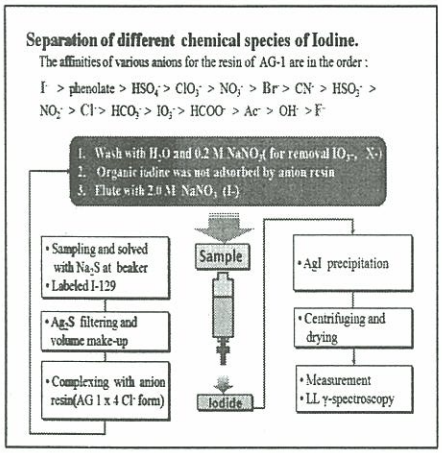


Fig. 1. Chemical separation procedure for AgI-zeolite in iodide by column elution method

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

5. 참고문헌

[1] A. G. Evans," Effect of service aging on iodine retention of activated charcoal" ERA report CONF-760822, Aug. 1976.

[2] R. A. Lorenz, S. R. Manning and W. J. Martin, "The behaviour of highly radioactive iodine on charcoal in moist air" ERDA Report CONF-760822, Aug. 1976.

우라늄 수지상 제거용 자동화 LCC assembly 장치 개발

김시형, 백승우, 윤달성, 김택진, 심준보, 김광락, 정재후, 안도희
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
exodus@kaeri.re.kr

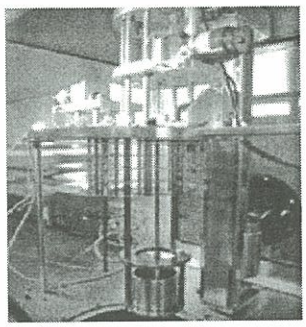
1. 서론

사용후핵연료를 처리하기 위하여 개발된 파이로 건식처리 공정(pyroprocess)의 핵심기술인 전해제련(electrowinning) 공정은 우라늄(U), 초우라늄(TRU) 및 각종 핵분열생성물이 혼합되어 있는 500℃의 LiCl-KCl 용융염으로부터 전기화학적 방법에 의하여 액체카드뮴 음극(LCC : Liquid Cadmium Cathode)으로 U 와 TRU 원소를 공회수(co-deposition)하는 기술이다. 전해제련 공정에서 LCC로 U와 TRU를 공회수 할 때 가장 큰 문제점은 전착되는 U가 LCC 계면에서 수지상(dendrite) 형태로 성장하여 계면을 덮게 되는 경우로서, 이후부터는 U만 주로 회수되고 TRU가 공회수 되지 않기 때문에 전해제련 조업을 더 이상 진행할 수 없게 된다는 점이다. 이러한 이유 때문에 전해제련 공정을 개발하는 각 나라에서는 U 수지상의 성장을 억제하기 위하여 각 나라별로 고유의 LCC assembly 구조를 개발하였다 [1-2]. 한국에서도 파이로 건식처리 공정을 성공적으로 수행하기 위해서는 U 수지상 성장을 효과적으로 억제할 수 있는 LCC assembly를 독자적으로 개발 및 구축할 필요성이 대두되었다.

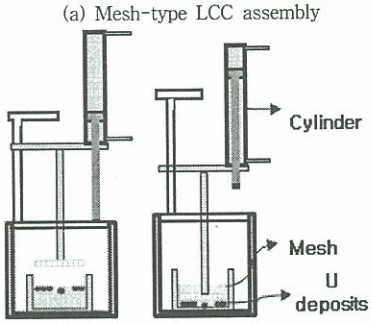
2. 본론

2.1 Mesh-type LCC assembly 구성

Fig. 1은 자동화 운전되는 mesh형 LCC assembly가 설치된 전해제련 장치 및 작동과정을 보여주는 그림이다. 자동화 운전되는 mesh가 우라늄 금속 수지상이 생성되는 카드뮴 표면을 누르면, 우라늄 금속 수지상은 하강하는 mesh의 격자판(grid)에 의해 카드뮴 내부로 침전되고, 반면에 액체로 된 카드뮴은 mesh의 구멍(opening) 사이로 통과된다. 그리고, mesh가 하강하여 Cd를 담고 있는 도가니 바닥에 닿아도 도가니와 mesh의 충돌에 의한 파손이 발생하지 않도록 완충기술을 적용하였다. 이와 같은 과정으로 카드뮴 표면에 성장되는 우라늄 수지상을 카드뮴 내부로 침전시켜 전해제련 공정 중에 용융염과 카드뮴이 계속 접촉될 수 있게 해주면, 악티늄족 회수량을 크게 증가시킬 수 있다.



(a) Mesh-type LCC assembly



(b) Schematic diagram showing LCC operation

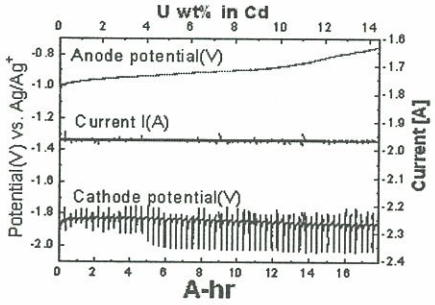
Fig. 1. Automatic LCC assembly

2.2 LCC assembly 이용한 U 전착 성능시험

Fig. 2는 mesh를 이용하여 LCC 전착을 수행하는 동안에 양극(anode)과 음극(cathode)의 전위변화 및 도가니에서의 우라늄 수지상 생성여부를 확인한 결과이다. 500℃의 LiCl-KCl-4wt%UCl_3 용융염을 50 rpm으로 교반하면서, 100 mA/cm^2의 정전류로 액체카드뮴으로 우라늄 전착실험을 수행하였다. 약 300g의 카드뮴을 담는 음극도가니의 내경과 높이는 50mm와 45mm이고, mesh의 직경은 45mm 이었다. Mesh는 매 10분마다 1 회식 카드뮴 표면을 눌러주었다.

Fig. 2(a)에서 나타나는 음극전위의 진폭은 10분마다 운전되는 STS-mesh가 카드뮴과 접촉할 때 발생

하는 것이고, mesh가 카드뮴에서 분리된 후의 음극 전위가 상승하지 않고 일정하게 유지되는 것은 우라늄 수지상이 계속 제거되고 있음을 보여주는 것이다. 우라늄 수지상이 제거되지 못하여 카드뮴 표면에서 성장하면 전위는 상승하는 경향을 나타낸다. 전착공정이 종료된 후 도가니를 들어 올려서 우라늄 수지상이 카드뮴 내부에 침전되어 있음을 육안으로 확인하였다. 당 연구에서 개발한 mesh형 LCC 구조를 이용하여 우라늄 수지상의 성장없이 14wt%U/Cd까지 전착할 수 있었다.



(a) Change in anode and cathode potential



(b) No U dendrite growth out of crucible



(c) U deposits in the Cd cathode

Fig. 2. Deposition result using mesh-type LCC assembly [14wt%U/Cd]

3. 결론

우라늄 수지상을 효과적으로 제거할 수 있고, 또한 도가니와의 충돌에 의한 파손이 발생하지 않도록 완충기술을 적용한 자동화 운전용 mesh형 LCC assembly를 자체적으로 개발하였다. 이 장치를 이용하여 우라늄 수지상의 성장 없이 14wt%U/Cd까지 전착할 수 있었다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] J. E. Battles, K. M. Myles, J. J. Laidler and D. W. Green, "Integral Fast Reactor Pyrochemical Process", Argonne National Laboratory Technical Report 1993, ANL-94/15 (1994).

[2] N. Kondo, T. Koyama, M. Iizuka and H. Tanaka, "액상 카드뮴 음극에서의 수지상 우라늄 발생 억제 조건에 대한 연구검토", CRIEPI Report, T95029(1996).

사용후핵연료 밀도시험 및 평가

이형권, 김도식, 서항석, 황용화, 권형문, 장정남, 손영준
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
nhklee1@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료 소결체의 밀도시험은 핵연료의 거동을 파악하기 위한 조사후시험 중의 하나이다.

원자로내에서 연소중인 핵연료의 소결체는 연소도가 증가함에 따라 밀도값이 변화한다. 연소초기에는 소결체가 고밀화(densification)되었다가 연소도가 증가하면서 소결체는 다시 팽윤(swelling)이 되면서 밀도가 변화하게 된다.

조사후시험은 핵연료을 대상으로 수행하기 때문에 핫셀(hot cell)이란 장소에서 시험을 수행하게 된다. 그러므로 시험데이터의 신뢰성을 확보하기 위해서는 일반실험실보다는 많은 제약이 따른다.

특히, 안전성이 요구되는 원자로 연소되는 핵연료 에 대한 시험은 신뢰성과 정확성이 보장되는 시험데이터를 생산하는 것이 가장 중요하다. 신뢰성과 정확성이 확보된 시험을 수행하기 위해서는 숙련된 시험자뿐만 아니라 유효화된 시험규격에 의하여 소급성의 확보된 시험장비로 시험을 수행하여야 된다. 조사후시험시설에서는 핵연료 소결체 밀도시험에 대한 신뢰성을 확보하기 위하여 매년 자체적으로 시험장비에 현장교정을 수행하며, 각각의 시험마다 시험에 대한 불확도을 추정하고 있다.

2. 본론

2.1 시험

2.1.1 시험 장비

핵연료 소결체에 대한 밀도시험 장비는 전기식지시저울, 유체온도계, 온·습도계, 분동 등이 있다. 조사후시험시설에서는 시험장비의 소급성을 확보하기 위해서 유체온도계와 온·습도계는 매년 새로 구매하고 국가공인 교정기관에서 교정하여 사용하고 있다. 전기식지시저울의 경우는 장비가 고가이고 핫셀에서 교체가 곤란하므로 "전기식지시저울의 표준교정절차(KASTO 02-04-1030-075)"규격에 의하여 자체적으로 현장교정 절차를 수립하여 장비의 교정을 수행하고 있다. 전기식지시저울의 주요 교정항목은 표준분동을 사용한 감도시험, 진직성시험 및 정밀도 시험 등이다.

2.1.2 시험

밀도시험은 KS A 0602 (5항) 및 ASTM B-311의 유효화된 규격에 의해서 자체 시험절차를 수립하여 수행하고 있다.

핵연료 소결체 밀도시험을 수행하기 위해서는 핵연료 피복관과 소결체를 분리하여 시험을 수행하게 된다. 핵연료 피복관과 소결체의 분리는 연소도가 높을 수록 잘 분리가 되지 않아 피복관을 길이 방향으로 절단하여 시편을 채취한다. 그러나 고연소도 시편은 소결체의 균열(crack)이 많아 밀도시료로 채취할 수 있는 양이 적어 시료의 대표성이 부족한 경우도 간혹 생기기도 한다.

채취된 밀도시편은 바스켓에 담아 그 무게를 측정하고, 다시 톨루엔속에서 무게를 측정하여 밀도시험값을 산출하게 된다.

$$D_s = \frac{m}{v_s} = \frac{(w_2 - w_1)\cdot d'}{(w_2 - w_1) - (w_4 - w_3)} \quad \cdots\cdots(1)$$

D_s : 시료의 밀도(g/cm^3)
w_1 : 공기중 시료바스켓 무게(g)
w_2 : 공기중 시료바스켓 +시료무게(g)
w_3 : 유체속에서 시료바스켓 무게(g)
w_4 : 유체속에서 시료바스켓 + 시료무게(g)
d' : 유체의 밀도(g/cm^3)

2.1.3 밀도시험 불확도 추정

밀도시험의 불확도 추정은 시험장비, 시험자, 환경, 대기압, 중력 등 여러 가지 요인이 있으나 불확도 산출규정에 불확도의 영향이 미미한 요인의 제외하고 반복측정, 장비교정, 유체 및 유체의 온도 등에 한하여 불확도를 추정하였다.

2.1.3.1 불확도 산출

2.1.3.1.1 반복시험 표준불확도

공기 중에서 시료바스켓 무게와 시료바스켓에 시료를 넣은 무게 그리고 유체속에서 시료바스켓 무게와 유체속에서 시료를 넣은 상태로 각각 5회씩 반복측정하고 전기식저시저울 교정불확도와 합성하여 각 항목에 대한 불확도를 산출하였다.

- 공기중 접시무게에 대한 표준불확도

$u(w_1) = \sqrt{0.024^2 + 0.059^2} = 0.064$ ㎎

- 공기중 시료와 접시무게에 대한 표준불확도

$u(w_2) = \sqrt{0.037^2 + 0.059^2} = 0.007$ ㎎

- 유체내 접시무게에 대한 표준불확도

$u(w_3) = \sqrt{0.020^2 + 0.059^2} = 0.062$ ㎎

- 유체내 시료와 접시무게에 대한 표준불확도

$u(w_4) = \sqrt{0.045^2 + 0.059^2} = 0.074$ ㎎

2.1.3.1.2 유체의 밀도에 대한 불확도 산출

유체의 밀도에 대한 불확도는 온도 변화에 따른 식을 검정선으로 가정하고 최소자승법을 이용하여 기울기와 절편을 구하여 산출하였다.

$$u_c(d') = \sqrt{0.001\,50^2 + 0.036\,72^2} = 0.037 \text{ ㎎/cm}^3$$

2.1.3.1.3 감도계수 산출

불확도 각요인에 대한 감도계수는 식 (1)을 편미분하여 각각의 감도계수를 산출하였다.

- $C_{w_1} = \frac{\partial D_s}{\partial w_1} = 25.614\,056 \text{ cm}^{-3}$
- $C_{w_2} = \frac{\partial D_s}{\partial w_2} = -25.614\,056 \text{ cm}^{-3}$
- $C_{w_3} = \frac{\partial D_s}{\partial w_3} = -27.995\,561 \text{ cm}^{-3}$
- $C_{w_4} = \frac{\partial D_s}{\partial w_4} = 27.995\,561 \text{ cm}^{-3}$
- $C_{d'} = \frac{\partial D_s}{\partial d'} = 11.755\,411$

2.1.3.1.4 합성불확도 산출

시험에 대한 합성불확도는 오차전파법칙을 이용하여 산출하였다.

$$u_c^2(D_s) = \sum C_{w_i}^2 \cdot u(w_i)^2 + C_{d'}^2 \cdot u(d')^2 = 0.003\,7 \text{ /cm}^3$$

2.1.3.1.5 유효자유도 산출

유효자유도(ν_{eff})는 Welch-Satterwaite 공식을 이용하여 산출하였다.

$$\nu_{eff} = \frac{u_c^4(D_s)}{\sum_{i=1}^{n} \frac{C_{w_i}^4 \cdot u^4(w_i)}{\nu_{w_i}} + \frac{C_{d'}^4 \cdot u^4(d')}{\nu_{d'}}} = 203$$

2.1.3.1.6 확장불확도 산출

$$U(D_s) = u_c(D_s) \times k = 0.0074 \text{ g/cm}^3$$

2.1.3.1.7 시험값 표기

$-(10.166\,3 \pm 0.007\,4)$ g/cm^3

3. 결론

사용후 핵연료에 대한 밀도시험을 수행하였다. 시험의 신뢰도을 제고하고 시험정밀도를 향상시키기 위해여 무게측정과 온도계측을 반복적으로 수행하였다. 또한 시험데이터에 대한 불확도를 추정함으로서 데이터를 제공하는 고객에게 신뢰성을 확보할 수 있었다.

균열이 많은 고연소도의 핵연료의 경우 간혹 대표시료의 채취가 어려워짐에 따라 향후 시료를 채취하는 방법을 개선하거나 시험방법을 변경하는 방안이 필요하다.

백금족 원소 측정을 위한 고방사성 세슘 제거 방법 연구

최광순, 김정석, 김영복, 이창헌, 박용준, 송규석
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
nkschoi@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료 이용 재가공 핵심기술 개발과제는 I 및 Tc과 같은 장반감기 핵종이나 Cs 같은 고방열 및 고방사능 핵종 그리고 Mo, Rh, Ru 및 Tc과 같은 전해정련 공정에 부담을 주는 원소를 제거할 목적으로 고도전처리산화공정에 대한 연구를 수행하고 있다. 사용후핵연료를 고온에서 산화시킬 때 휘발성 핵종을 포집하기 위하여 3 종류의 필터 즉 fly ash 필터, 칼슘 필터 및 AgX 필터를 앞의 순서로 조합하여 사용하고 있다. Fly ash 필터는 Cs을, 칼슘 필터는 Mo, Rh, Ru 및 Tc을 그리고 AgX 필터는 I를 포집하기 위하여 사용하였다.

본 연구팀은 칼슘 필터로 포집한 Mo, Rh, Ru 및 Tc을 감마, 베타 및 ICP-AES로 측정하기 위하여 칼슘필터를 용액화하는 방법을 확립한바있다. 즉, 시료 0.05 g을 마이크로파용해장치와 혼합산 (염산-질산-불산)을 부피비로 4:1:0.3 비율로 13.25 mL을 사용하여 투명한 용액으로 만들었다. 따라서 사용후핵연료 중 Mo, Rh, Ru 및 Tc 같은 휘발성핵종을 포집한 칼슘 필터를 이미 확립한 앞의 방법을 적용하여 용해하려고 하였으나, 시료의 방사능이 300 mSv/hr로 너무 높아 glove box 나 후드에서 취급할 수 없었다. 따라서 화학핫셀 안에서 칼슘 필터를 환류장치와 1:1 질산을 사용하여 침출하였다.

침출한 용액을 감마분광기로 측정한 결과 Cs-134 및 Cs-137만 검출되고 다른 핵종은 검출되지 않았으나, 침출한 칼슘 필터를 증류하여 응축된 용액을 감마분광기로 측정한 결과 Ru-106이 검출되었다. 그러나 침출한 용액을 ICP-AES로 측정한 결과 Mo만 검출되었고 Ru은 검출되지 않았다.

본 연구는 사용후핵연료를 취급하여 방사능의 대부분을 세슘이 차지할 경우 감도가 좋은 감마분광기로 백금족 원소의 방사성 핵종을 측정할 때 스펙트럼 간섭을 일으키는 세슘의 제거 방법을 조사하였다. Ammonium phosphotungstate는 세슘 제거에 우수한 것으로 알려져 있으며, 본 연구의 공동저자는 실리카겔에 ammonium phospho-tungstate를 분산시켜 무기이온교환체를 제조하여 세슘이온의 흡착특성을 발표하였으므로[1], 이 무기이온교환체를 사용하여 세슘의 제거율과 Mo, Pd, Rh, Re 및 Ru의 흡착률을 실험한 다음 방사성 시료에 적용 가능성을 확인하고자 하였다.

2. 본론

2.1 실험

실리카겔에 ammonium phosphotungstate을 분산시켜 제조한 무기이온교환체 중의 ammonium phosphotungstate $\{(NH_4)_3PW_{12}O_{40}\}$의 함량은 11%이며, 입자 크기는 100~200 메쉬의 것을 사용하였다. 모의 용액의 조성은 다음과 같이 제조하였다. Cs 1000 mg/L 그리고 Mo, Pd, Re, Rh 및 Ru 각각의 농도는 10 mg/L으로 0.5 M 염산 매질이었다. 무기이온교환체의 무게를 각각 0.1, 0.3, 0.5 및 0.7 g 달아 20 mL 바이알에 넣고 혼합표준용액 1 mL 및 0.5 M 염산 9 mL을 가한 다음 교반기로 30분 동안 흔들어 주었다. 무기이온교환체의 입자 크기가 미세하므로 무기이온교환체가 가라앉은 다음 고체와 액체를 분리할 때 이 무기이온교환체의 입자가 용액으로 이동하는 것을 방지하기 위하여 0.45 μm 크기의 membrane 필터로 용액만 걸러서 ICP-AES 및 AAS로 측정하였다.

2.2 결과 및 논의

세슘 1000 μg은 7.52 micromole이며, 무기이온교환체 0.1, 0.3, 0.5 및 0.7 g 중의 $(NH_4)_3PW_{12}O_{40}$는 각각 3.75, 11.25, 18.75 및 26.25 micromole이다. $(NH_4)_3PW_{12}O_{40}$의 양이 세슘 양보다 작은 0.1 g의 경우, 세슘의 제거율은 97.04%이었으며, 세슘 양보다 많은 0.3, 0.5 및 0.7 g의 경우 세슘의 제거율은 각각 99.97, 99.98 및 99.99%이었다. 한편 Pd, Rh, Re 및 Ru의 흡착률은 표 1과 같이 무기이온교환체의 양과 상관없이 4개 원소 모두 거의 흡착되지 않았다. 한편 무기이온교환체의 양이

0.1 g인 경우 몰리브덴의 흡착률은 88.5%이었으며, 0.3, 0.5 및 0.7 g의 경우 흡착률은 무게 증가와 상관없이 모두 90% 이상이었다. 반면에 무기이온교환체의 양이 0.1, 0.3, 0.5 및 0.7 g으로 증가할수록 용출되는 텅스텐의 양은 41, 500, 940 및 1510 μg으로 증가하였다. 요약하면 ammonium phosphotungstate의 양이 세슘 양보다 많으면 세슘은 99.9% 이상 제거되는 반면에 Pd, Rh, Re 및 Ru는 거의 흡착되지 않았으며, Mo는 비교적 잘 흡착되었다.

비방사성 용액으로 예비 실험한 결과 세슘은 ammonium phosphotungstate에 잘 흡착되는 반면에 Pd, Rh, Re 및 Ru는 거의 흡착되지 않았으므로 방사성시료에 적용하였다. 무기이온교환체 0.1 g을 바이알에 넣고 방사선량률이 수 mSv/hr인 용액 1 mL와 0.5 M 염산 19 mL를 혼합한 다음 30분 동안 흔들어 주었다. 입자가 가라앉은 다음 0.45 μm 크기의 멤브레인 필터로 거르고 취한 것과 거르지 않고 취한 각각의 용액을 감마분광기로 측정하였다. 그 결과 세슘 제거 전의 Cs-134 및 Cs-137의 방사능은 각각 6.66×10^7 및 7.85×10^8 Bq/mL이었다. 무기이온교환체로 세슘을 제거한 다음 여과 유무에 따른 제거율은 각각 99.5%와 98.4%이었다. 또한 여과하지 않은 것을 기준으로 여과하였을 때 세슘의 방사능 세기는 68.6% 감소하였다. 한편 세슘을 제거하기 전에 감마분광기로 검출되지 않았던 침출용액 중의 Ru-106 핵종도 세슘을 제거한 다음 그림 1과 같이 검출할 수 있었다.

Table 1. Removal percentage of the several elements by inorganic ion exchanger

Inorganic ion exchanger (g)	Removal (%)				
	Cs	Pd	Re	Rh	Ru
0.1	97.04	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5
0.3	99.97	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5
0.5	99.98	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5
0.7	99.99	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5

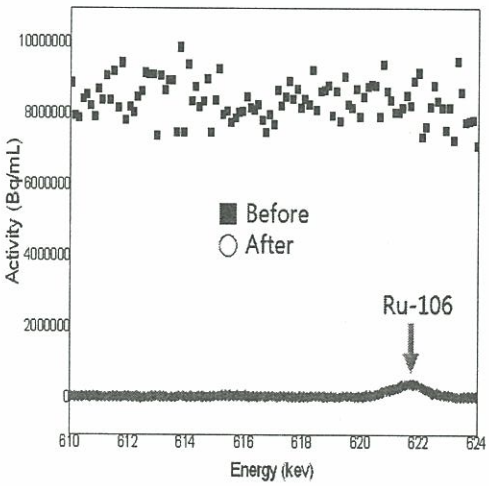


Fig. 1. Gamma spectra of leachate of calcium filter before and after removal of cesium

3. 결론

본 연구에서는 감도가 좋은 감마분광기로 Ru-106 방사성핵종을 계측할 때 세슘에 의한 스펙트럼 간섭을 피하기 위하여 세슘을 선택적으로 제거하는 방법을 확립하였다. 무기이온교환체로 세슘을 제거한 다음 용액의 감마선을 측정할 때 세슘을 흡착한 입자의 방사능 세기가 높으므로 미세한 입자가 용액으로 이동하는 것을 방지하기 위하여 여과하여야 한다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 출연금 주요사업의 일환으로 수행하였습니다.

5. 참고문헌

[1] 이창헌 외, NH_4PW-실리카겔 무기이온교환체의 제조와 세슘이온의 흡착특성, 대한화학회지, 39(7), 543-551, 1995.

Pyro-SFR Nuclear Fuel Cycle with Different Conversion Ratios

Fanxing Gao, Byung Heung Park*, Won Il Ko*
University of Science & Technology, 761 Gajungro, Yuseong-Gu, Daejeon, KOREA
*Korea Atomic Energy Research Institute, 1045 Daedeokdaero, Yuseung-gu, Daejon KOREA
nwiko@kaeri.re.kr

1. Introduction

Which type of reactor to adopt determines which of nuclear fuel cycle to deploy. Which nuclear fuel cycle option to deploy is of great importance in the sustainability of nuclear power. SFR fuel cycle employing pyroprocessing (named as Pyro-SFR Cycle) is one promising fuel cycle option in the near future. Conversion ratio (CR) is a key characteristic to be considered while selecting a SFR. With regard to non-proliferation, only burner and break-even reactor with a CR less or equal to 1 are studied. Totally, 3 different CR, 0.35, 0.7 and 1 are evaluated. Uranium resource utilization and radioactive waste generation are essential criteria in nuclear fuel cycle system analysis, which considerably affects the future development of nuclear power in Korea. 100 percent dependence on uranium import and a large population with small territory is two special characteristics of ROK, which makes the uranium utilization and waste management pretty important. In this study, particularly the resource utilization efficiency and waste generation with regard to the promising advanced fuel cycle option was evaluated.

2. Method and NFC option

2.1 Method

One is equilibrium model and the other is dynamic model. Equilibrium model focus on the batch study with the assumptions that the whole system is in a steady state and mass flow as well as the electricity production all through the fuel cycle is in equilibrium state, which calculates the electricity production within a certain period and associated material flow to obtain several criteria for assessment of the sustainability of nuclear power, e.g., resource utilization, waste generation, environment affects. Dynamic model takes the time factor into consideration to simulate the actual cases. Compared with the dynamic analysis model, the outcome of equilibrium model is more theoretical which may offer relatively clear and direct comparisons, especially with regard to the large uncertainty of the development of the pyro-technology evaluated. In this study equilibrium model was built to calculate the material flow on a batch basis. Characteristics of the reference reactors are listed in Table 1.

2.2 Main components of nuclear fuel cycle

A fast reactor utilizes fast neutrons of which higher energy can burn both U-235 and transuranic elements (TURs). This aspect makes it possible to transmute the TRUs and extract energy at the same time. The spent PWR fuels would be processed to obtain TRU-bearing fuels for the fast reactors, while U partitioned from the spent PWR fuel would be disposed of as low and intermediate level radioactive wastes (HLW). The pyroprocessing has been developed to treat the spent oxide fuels discharged from PWRs and recycle metallic components containing TRUs for SFRs. The metal fueled SFR using alloys of Actinides-Zirconium (AcZr) has a high potential for recycling actinides by being integrated with the pyroprocessing. The TRU fuel after burning in the fast reactors would be repeatedly processed by the pyroprocessing and the recovered TRUs would be recycled into the fast reactors to close a fuel cycle as described in Fig 1. It should be notified that the reactor data and fuel composition after irradiation are mainly from a simple conceptual study by Origen. 2. 1.

Table 1. Characteristics of the reference reactors.

Reactor Parameters	CR=0.35	CR=0.70	CR=1.00
Electric power (MWe)	600	600	600
Thermal efficiency (%)	39.4	39.4	39.4
Thermal power (MWt)	1,522.8	1,522.8	1,522.8
Load factor	0.85	0.85	0.85
Cycle length (full power day)	250	304	550
Enrichment (%)	75	30	17
No. of batches	8	5	3
Burnup (GWd/tHM)	265.5	131.3	100.1

Table 2. Reference Fuel composition of SFR with different CRs

		BOC	EOC
CR=0.35	U	2.50E+05	2.15E+05
	Pu	6.58E+05	3.53E+05
	TRU	7.50E+05	3.98E+05
CR=0.70	U	7.00E+05	6.23E+05
	Pu	2.63E+05	2.15E+05
	TRU	3.00E+05	2.44E+05
CR=1.00	U	8.30E+05	7.31E+05
	Pu	1.49E+05	1.51E+05
	TRU	1.70E+05	1.68E+05

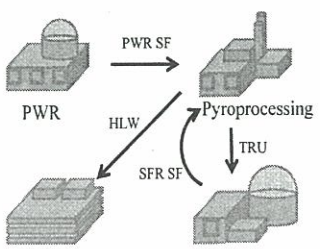


Fig. 1. Pyro-SFR Recycling

3. Results and Discussion

3.1 Uranium utilization

As shown in Fig. 2, the analysis of the three nuclear fuel cycle options revealed that the fuel cycle with the least CR requires the largest amount of uranium resources, while the Pyro-SFR Recycling with CR=1.0 consumes the least. SFR cycle with higher CR requires less uranium representing that the recycling options efficiently utilize the uranium resource and would therefore be economically competitive over the lower CR cycle with the increase of uranium price.

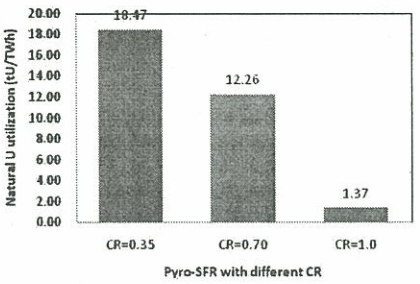


Fig. 2. Comparison of uranium requirements with nuclear fuel cycle options

3.2 Waste categorization

LILW-SL mainly comes from the reactor operation. The second contributor of LILW-SL is the back-end reprocessing. The Pyro-SFR introduces smaller amount of LILW-SL with regard to the ceramic form of waste used for fission products, such as Cs and Sr, decay storage, so the capacity of the near-surface disposal facility needed is the smallest among these four options. The capacity of geological disposal facility built for LILW-LL is determined by the volume of LILW-LL produced by each option. As listed in Table 3, setting the OT Cycle as the basis, the capacity of geological disposal facility for the Pyro-SFR Recycling was around 70%.

Almost all the HLW comes from the back-end of the fuel cycle. The analysis showed that the Pyro-SFR Recycling option produces the smallest amount of HLW since high heat generating elements such as Cs and Sr are selectively separated as LILW-SL for decay storage and TRUs are recovered to be used as fuel in the SFR by the pyroprocess. The waste containing Cs and Sr will be transferred into ceramic form for decay storage for around 300 years by surface disposal as LILW-SL. The removal of Cs, Sr, and TRUs from the HLW stream enables the volume of the HLW to be the smallest among the considered fuel cycle options.

Table 3. Radioactive waste generations

		CR=0.35	CR=0.70	CR=1.0
LILW-SL	Volume (m^3/TWh)	11.02	10.76	10.30
LILW-LL	Volume (m^3/TWh)	1.59	1.19	0.48
HLW	Volume (m^3/TWh)	0.07	0.05	0.03

4. Conclusion

In this study, the Pyro-SFR Recycling with 3 CRs was quantitatively investigated for nuclear energy policy development in ROK by employing the idealized equilibrium material flows focusing on the uranium utilization and radioactive waste generation.

CR has a great importance in nuclear fuel cycle with regard to uranium utilization and waste generation. On the whole, the volumes of LILW generated in Pyro-SFR Recycling with different CR differ considerably. Higher CR Pyro-SFR Recycling shows clear advantages in controlling HLW generation and uranium utilization. However, it should be notified that the proliferation resistance, technology availability have not been included in this study, which may provide a quite different picture.

5. References

[1] Ko, W.I., et al., 2001. Economic analysis on direct of spent pressurized water reactor fuel in CANDU reactors(IV) – DUPIC fuel cycle cost. Nuclear Technology 134, 167–186.

[2] OECD/NEA, 2009. Uranium 2009: Resources, production and demand.

[3] World Nuclear Association, 2009. Waste management in the nuclear fuel cycle, available at http://www.world-nuclear.org/info/inf04.html, updated June 2009.

PIE 시설의 HVAC 시스템의 진동특성

황용화, 이형권, 서항석, 장정남, 김도식, 류우석
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동 150-1)
hyh@kaeri.re.kr

1. 서론

PIE 시설 내 공기순환을 위해 설치되어 있는 Air Ventilation 시스템은 진동과 소음의 발생원이 되고 있다. 이 같은 진동현상은 핫셀(Hot Cell) 내에 설치되어 있는 측정 장치에 전달되어 정확한 실험결과를 얻는데 지장을 초래하며, 소음은 핫셀 내의 작업환경을 저해시키는 요인이 되고 있다. 그러므로 핫셀 주위의 진동현상을 측정, 분석하여 정밀기기의 설치조건을 보완하고 작업환경을 저해하는 소음원을 규명하기 위한 기초자료로 사용하고자 하였다.

2. 측정방법

2.1 진동측정방법

현재 시설 내의 진동은 주로 HVAC 시스템의 회전기기류에서 발생되며 이로 인한 건물 및 구조물의 진동은 비교적 진폭이 작으나 wide band의 주파수 성분을 갖는 랜덤(random)파의 특성을 갖는다. 이러한 랜덤진동은 시간 또는 주파수에 대한 평균을 취한다고 해도 이는 특정한 주파수로서 그 특성을 정의할 수 없기 때문에 측정주파수 범위내의 모든 주파수에서 진폭을 자승한 평균 값(Total Spectrum Root Mean Square Level, TSRMSL)로서 그 크기가 정의된다.

$$\text{TSRMSL} = \sqrt{\Sigma_{i=o}^{N} (Amplitute\ at\ frequency\ i)^2}$$

n= frequency span(100Hz)

본 측정에서는 가속도변환기(accelerometer)로부터 측정되는 진동을 레코더(recorder)에 기록하여 다시 스펙트럼분석기(spectrum analyzer)로서 분석하였다.

2.2 소음측정방법

진동원에 의하여 발생된 소음은 매개체(gas, solid)를 통해 전달되어 건물 내의 작업환경을 저해시키는 요인이 되고 있다. 소리의 크기 단위는 파스칼(pascal), 측정단위는 데시벨(dB)이 사용되고 있다. 20μpa과 100 Pa사이의 척도(scale)를 사용이 편리하도록 상대적인 값에 상용 log를 취하여 데시벨로 표시하였다. 측정위치는 공간의 중앙부위에서 측정하였으며, 측정조건은 전 부하 운전, 반 부하 운전, 완전중지 상태 등 3개의 운전조건에서 측정하도록 하였다.

3. 측정결과

3.1 진동측정

스펙트럼분석기에 의해 분석된 결과는 각 주파수별로 상대적인 진폭단위인 데시벨 값을 전압단위(mV)로 환산하였다. 평균값은 증폭기(conditioning amplifier) 및 레코더의 증폭비로 가속도 단위로 환산하였다. 3개의 운전조건에서 측정된 가속도 평균값은 대부분의 경우 전 부하운전(full operation) 조건 시 진폭이 약간 크게 나타났다. 급기팬 베어링의 스펙트럼 중 25 또는 25.625Hz을 제외한 위치에서 27.125Hz, 41.625Hz에서 비교적 큰 피크(peak)가 있었으며, 측정된 3개의 지점을 제외하고는 스펙트럼 상에 특이한 점은 나타나지 않았다.

3.1.1 급기팬 주위의 진동.

급기팬 베어링에서 측정 분석된 스펙트럼은 팬의 회전수에 해당하는 29.75Hz와 이의 배음(harmonics)에 해당하는 59.5Hz에서 피크가 측정되었다. 이 주파수를 제외하고도 비교적 작은 피크들이 있었으나 전반적으로 이들 주파수들을 제외하고는 랜덤 노이즈(noise)의 특성을 갖고 있었다. 급기팬의 베드(bed)는 강철 빔으로 지지되고 콘크리트 바닥에는 진동흡수기(air mount)가 설치되어 있어, 콘크리트바닥에서의 진폭은 베어링에서보다 약 10배 정도로 작아 진동흡수기가 큰 효과가 있음을 알 수 있었다.

3.1.2 핫셀 바닥의 진동

핫셀 제어실 바닥에서 측정된 진동 스펙트럼은 급기팬의 회전수에 해당하는 주파수와 함께 다른 회전 기기들의 회전수에 해당하는 주파수에서도 피크가 나타났다. 반 부하운전(half operation) 및 완전중지(all stop) 상태에서는 인접한 주파수들과 비슷한 진폭으로 식별이 곤란하였다. 이 주파수는 배기팬의 회전수에 해당하는 것과 거의 비슷하지만, 진동원이 배기팬이라고 생각되지는 않았다. 또한, 모든 조건에서 거의 일정한 크기를 갖고 나타나는 27.125Hz의 진동원을 판명할 수 없었다. 29.625Hz 주파수에서도 전 부하 및 반 부하운전 시 진폭이 크게 차이나지 않는 것으로 보아 급기팬의 운전 회전수에 해당하는 주파수의 진동에 큰 영향을 주지 않는 것으로 추측되었다. 위에서 언급한 회전 기기들의 회전수에 해당하는 주파수들을 제외하고도 제어실 바닥이 건물 또는 제어실의 고유한 특성으로 보이는 38, 56Hz주위의 주파수 그룹으로 진동하는 것으로 측정되었다. 이 주파수특성은 회전 기기들로 부터 나온 랜덤 진동하중을 구조물이 받아 그 자체의 고유한 특성으로 진동하는 것으로 볼 수 있었으며, 이 주파수 스펙트럼이 뚜렷한 피크를 나타내지 않는 것은 감쇄가 비교적 크고, 상대적으로 입력되는 랜덤 노이즈의 진동이 커서 복합적인 스펙트럼을 나타내는 것으로 생각되었다.

3.1.3 현미경 스테이지(stage) 레일 및 구조물의 진동

현미경이 스테이지 구조물은 레일을 따라 전후로 이송된다. 그러므로 현미경 스테이지 구조물을 가진시키는 진동하중은 레일로부터 롤러를 통하여 전달된다. 진동측정은 레일 및 현미경의 베드 위에서 측정하였다. 현미경 스테이지 구조물을 가진시키는 입력하중으로 볼 수 있는 레일 위에서의 스펙트럼은 배기팬의 회전수에 해당하는 29.75Hz에서 피크를 나타냈으며, 핫셀 바닥에서와 같이 진동원이 불분명한 27.125와 41.625Hz에서 피크가 나타났다. 회전기기의 회전 주파수를 제외하고는 전체적인 주파수 성분이 급기팬 베어링에서와 유사하며 특정한 진동특성은 없었다. 레일에서의 랜덤 진동하중은 롤러를 통하여 현미경 스테이지 구조물로 전달되어 구조물의 입력하중이 되며, 측정위치에서의 각 운전조건에 따른 진동 스펙트럼은 진동원을 알 수 없는 27.125Hz와 41.625Hz에서 회전기기의 진동특성으로 보이는 피크들이 나타나고 있었다. 이러한 진동은 현미경 화면을 흔들리게 하는 직접적인 원인으로 현미경 구조물에서 가진되는 자체진동을 포함한 주파수들 주위에서 구조물이 고유진동수를 갖고 있는 것으로 생각되었다. 전 부하 및 완전중지 상태의 조건에서 평균값을 보면 레일보다 다른 지점에서의 평균값이 크며 위로 올라 갈수록 값이 상승하여 레일 위에서의 진동이 구조물의 고유진동수와 공진하여 증폭되는 것으로 추측되었다. 다만 반 부하운전 상태에서는 이와 다른 경향을 띠고 있었는데 이것은 위의 경우와 다르게 현미경 베드에 방진패드를 끼워 경계조건이 바뀌어 진동이 흡수되었기 때문으로 추측된다.

3.2 소음측정결과

시설 내부의 소음허용 기준치는 명확치 않으나 운전 시 급기측은 3m 거리에서 80dB 이하, 일반지역은 55~65dB 이하로 되어 있다. 이것과 측정된 결과와 비교하여 볼 때 시설 내의 소음은 일반사무실과 비교해 약간 큰 것임을 알 수 있다.

3. 결론

1) 급기팬의 베어링 및 베드에서 비교적 큰 진동이 측정되어 회전축의 회전평형, 베드 구조물의 적절한 보강작업 및 방진재의 추가구성으로 진동원을 줄일 수 있었다.

2) 시설 내 소음은 비교적 크게 나타나 사무실 공간에는 공기덕트에 소음흡수장치를 추가 구성하였다.

3) 랜덤 진동하중을 받은 구조물은 자체의 고유진동수 주위에서 공진되어 큰 진폭으로 진도하는 것으로 현미경 스테이지 베드 또는 롤러 하단에 진동흡수장치를 삽입하는 것이 좀 더 효과적일 것으로 생각되었다.

우라늄전착물 잔류염 분리장치 특성 조사 및 장치개선

권상운, 박기민, 이한수, 김정국
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
swkwon@kaeri.re.kr

1. 서론

일반적으로 파이로프로세스는 용융염 매질에서 전기화학적으로 분리하는 공정이 중심이 되며, 전해환원, 전해정련 및 전해제련 등의 단위공정들로 구성된다. 파이로프로세스의 원리는 우라늄, 희토류 원소, TRU 원소 및 귀금속 등으로 구성된 잉곳형태의 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, 회수된 우라늄 전착물은 덴드라이트 형상의 작은 크기이며, 많은 양의 공융염이 함유되어 있다. 회수된 우라늄은 우라늄 잉곳으로 제조하여 핵연료의 성분 조정 등의 목적으로 재사용시까지 보관한다. 따라서 잉곳제조 전에 우라늄전착물에 남아 있는 공융염을 제거하여야 한다. 공융염 제거에는 진공증류의 방법이 보통 사용되나 전해정련에서 발생한 우라늄 전착물의 공융염을 모두 진공증류하기 위해서는 고온에서 장시간 조업해야하는 어려움이 있다.

본 연구에서는 공융염을 액체상태에서 분리하는 공정(고-액 분리)을 통한 일부 분리 단계를 진공증류 공정에 결합하여 진공증류 공정을 보완하는 장치를 제작하고, 염분리 실험을 통하여 염분리장치의 특성을 조사하고 장치를 개선하였다.

2. 본론

미국, 일본 등에서는 전해정련과정에서 발생한 우라늄 전착물로부터 공융염을 제거하기 위해 캐소드 프로세서(Cathode Processor)라 불리는 진공증류탑을 공학규모 장치로 개발하여 사용하고 있다[3]. 이 장치는 탑 상부에 우라늄 전착물을 넣고 외부에 설치된 히터를 이용하여 가열하며, 공냉식으로 냉각되는 하부 응축부위에 공융염 회수도가니를 두어 증발된 공융염을 응축 회수하게 된다. 이 장치는 회분식으로 운전되며, 함유된 공융염 전량을 진공증류하게 되어 많은 열량이 소모되고, 단위 시간당 처리 속도를 올리기 위해서는 증발 단면적이 커져야 하거나 공융염의 증기압이 높은 고온에서 조업되어야 한다. 또 이 방법은 고온에서 운전하게 되어 고온 구조재가 필요 하여 제작비도 비싸진다.

본 연구에서는 증류탑 내에서 진동식 혹은 불활성 기체를 이용한 거름망을 이용하여 미리 액체 상태로 우라늄전착물중의 공융염을 분리하고, 미분리된 공융염은 진공증류에 의해 추가로 분리하기 위한 실험장치를 제작하였다(그림 1). 또 염분리실험을 통하여 장치특성을 조사하고, 이를 토대로 장치를 개선하여 분리 효율 향상을 도모하였다.

증류탑의 증발 영역은 상부 플랜지의 히터 assembly와 탑 내벽까지의 간격을 줄이고, heat shield의 구조를 바꾸어 탑 상부의 염응축이 없어졌다.

응축부 온도 범위에 따른 염회수율 측정 실험을 수행하였으며, 응축조 온도분포에 따랄 염회수율이 달라짐을 발견하였다.

한편 응축 영역에서는 그림 2에서와 같이 액화된 염이 흐른 흔적이 발견되어 이 영역에서 액체상태로 바뀜을 확인하였고, 그 설치하여 회수용기에 액체염이 모두 모일 수 있도록 그림 3에서처럼 flow guide를 설치하였다.

3. 결론

전해정련공정에서 발생한 우라늄전착물에 함유된 공융염 분리공정인 진공증류공정을 보완하기 위하여 진공증류 공정을 보완하는 장치를 제작하고, 염분리 실험을 통하여 염분리장치의 특성을 조사하였다. 또 장치 및 운전방법의 개선을 통하여 염회수율을 향상시켰다.

4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 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] B. R. Westphal, Distillation Modelling for a Uranium Refining Process, Report ANL/TD/CP-87031, INL, ID, USA (1996).

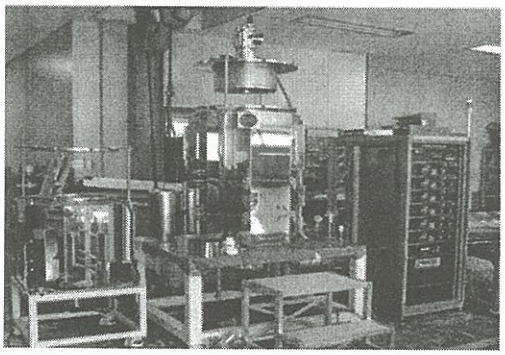


Fig. 1. Photograph of salt separation system

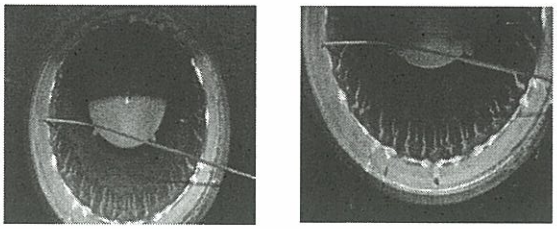


Fig. 2. Photograph of inner part of condensing zone

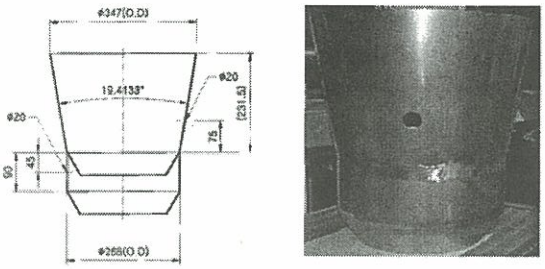


Fig. 3. Flow guide for the increase of salt recovery rate

UO_2-Gd_2O_3 사용후핵연료의 결정구조변화

박양순, 서항석, 하영경, 송규석
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 대덕대로 1045
nyspark@kaeri.re.kr

1. 서론

원자로의 초과 반응도를 제어하기 위하여 제어재(control materials)로 가연성 독물질(burnable poison) 등이 사용된다. 가장 널리 사용되고 있는 가연성 독물질은 Gd_2O_3로 중성자 흡수단면적이 매우 커서 탁월한 제어효과를 얻을 수 있는 장점이 있다. 반면에 Gd_2O_3는 UO_2 핵연료와 혼합하였을 때 열전도도가 나빠지며 반응도 제어효과의 조절이 자유롭지 못한 단점이 있다. 그러므로 반응도 제어효과를 다양하게 조절하기위한 연구가 진행되고 있다. 즉, Gd_2O_3를 UO_2와 균질하게 혼합하여 소결체를 제조하기 위한 연구 [1], 가연성 독봉의 설계에 대한 연구 [2], 제조한 소결체의 조사특성에 대한 연구 [3] 등이 진행되어오고 있다. 그러나 가연성 독물질이 포함된 사용후핵연료의 경방향에 대한 특성 연구는 많지 않다.

본 연구에서는 연소도가 41 GWd/tU인 UO_2 - 5.98 wt% Gd_2O_3 사용후핵연료 펠렛의 반경방향에 대하여 미세 간격별로 X-선 회절패턴을 측정하여 결정구조 변화를 분석하였다.

2. 본론

2.1 실험

측정에 사용된 시료는 평균연소도가 41 GWd/tU인 경수로 UO_2 - 5.98 wt% Gd_2O_3 사용후핵연료이다. 시료의 경방향에 대한 micro-XRD 측정을 위하여 피복관을 포함한 사용후핵연료 펠렛의 수직 절단면을 취하여 5(w) x 3(l) x 0.5(t) mm 크기로 시편을 준비하였다. Micro-XRD 시스템의 시료홀더에 맞게 30(ϕ) x 20(h) mm 크기로 에폭시레진 몰딩한 후 시편표면을 연마하여 사용하였다(그림 1. 참조).

측정에 사용된 micro-XRD는 상용 XRD(모델 : D8 Advance, 제조사 : BRUKER-AXS)를 연구목적에 맞게 실험실에서 개조한 것으로 Cu tube와 NaI(Tl) scintillation counter 검출기가 장착되어있다. X-선 방출 슬릿의 폭을 50 μm (길이 : 4 mm)로 조절하고 측정시간/step(2Θ)을 30초/0.01°로 하여 시편의 경방향을 따라 25 - 500 μm 간격별 X-선 회절패턴을 측정하였다.

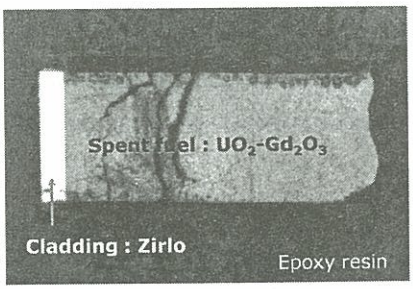


Fig. 1. Prepared UO_2 - Gd_2O_3 (5.98 wt%) spent fuel specimen. (Spent fuel discharged from Kori-3 PWR reactor, burn-up : 41 GWd/tU)

2.2 UO_2 - 5.98 wt% Gd_2O_3 사용후핵연료의 반경방향 결정구조변화

UO_2-Gd_2O_3 사용후핵연료의 rim 특성을 관찰하기 위하여 micro-XRD를 사용하여 핵연료 펠렛의 단면에 대하여 간격별 X-선 회절패턴을 측정하였다. 측정결과, X-선 회절패턴은 UO_2의 cubic 상을 나타냈다. 간격별로 측정한 X-선 회절패턴으로부터 UO_2의 격자상수 값을 구하여 그림 2에 나타냈다. 그림 2에 보이는 바와 같이 격자상수 값들은 모두 547.0 pm 이하로 유사한 연소도를 갖고 Gd을 포함하지 않은 UO_2 사용후핵연료의 격자상수 값(548.5 pm 이하)보다 낮은 경향을 나타냈다 [4]. 이것은 Gd 원소가 UO_2의 격자크기를 감소시키는데 기여했기 때문으로 판단된다 [5]. Zirlo 피복관과 인접해 있는 rim 부위에서 격자상

수 값이 감소하는 경향을 나타냈다. 즉, UO_2 - Gd_2O_3 사용후핵연료도 UO_2 핵연료와 마찬가지로 재결정화로 인한 rim 특성을 나타내는 것으로 판단된다. 이때 rim의 두께는 약 100 μm 이하로 관찰되었다.

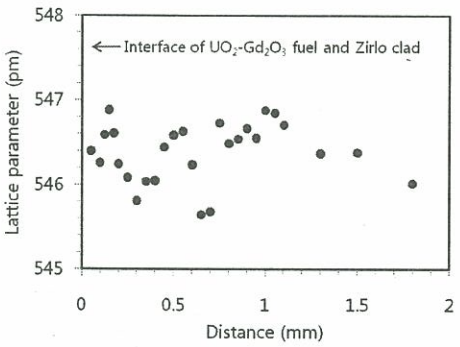


Fig. 2. Changes in lattice parameter from the interface with Zirlo clad to the center of UO_2-Gd_2O_3 spent fuel

3. 결론

UO_2 - Gd_2O_3 (5.98 wt%) 사용후핵연료의 rim에서 재결정화 특성을 관찰할 수 있었다. 그러나 핵연료의 반경방향에 대한 뚜렷한 경향성을 확인하는 것은 어려웠다. 차후에 SEM을 활용하여 rim 영역과 FCCI 영역을 포함한 사용후핵연료의 반경방향에 대한 조직변화를 관찰하고자 한다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] K. W. Kang, K. S. Kim, K. W. Song, J. H. Yang, Y. H. Jung, Journal of the Korean Nuclear Society Vol. 32, No. 6, pp. 559-565, 2000.

[2] 이대진, 김명현, 송근우, 정연호, 한국에너지공학회 2002 추계학술발표회 논문집, pp. 71-79, 2002.

[3] M. Hirai, J. H. Davies, R. Williamson, Journal of Nuclear Materials, Vol. 226, pp. 238-251, 1995.

[4] Y. S. Park, H. S. Seo, Y. K. Ha, K. Song, Transactions of the Korean Nuclear Society 2009 Autumn Meeting, pp. 207-208, 2009.

[5] J. G. Kim, Y. K. Ha, S. D. Park, K. Y. Jee, W. H. Kim, Journal of Nuclear Materials, Vol. 297, pp. 327-331, 2001.

조사후 환형 UO_2 소결체의 1700℃ 고온가열 미세조직변화

김대호, 방제건, 김선기, 양용식, 구양현, 권형문
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
kdh@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에서는 원자력연구개발 중장기계획사업의 일환으로 수행중인 초고연소도 고성능 핵연료 과제에서 고출력의 이중냉각 환형핵연료가 개발 중에 있다. 이중냉각 환형 UO_2 핵연료는 기존의 상용 경수로 핵연료에 비해 넓은 열전달 면적과 얇은 소결체 두께의 형상으로 출력밀도 20%이상의 열출력 향상과 핵연료의 온도가 30% 이상 낮아지는 저온의 특성을 갖고 있는 핵연료이다. 이중냉각 환형핵연료의 특징으로 소결체의 변형을 최소화하고 핵분열기체를 현격하게 적게 방출하여 봉내압 등의 안전성이 확보되며, 핵연료의 안전성 기준이 되는 핵연료 용융온도의 충분한 여유를 확보함으로써 안전하고 경제성이 향상되는 고출력의 초고연소도 핵연료이다. 하나로 연구로를 이용한 이중냉각의 환형 UO_2 소결체의 초기연소특성을 검증하기 위해 조사시험이 2008년 11월부터 2009년 4월말까지 EFPD 93.81에 걸쳐 실시되었고, 한국원자력연구원 조사후시험시설(PIEF)을 이용한 일련의 조사후시험이 진행되었다. 초기연소거동 중 고밀화와 팽윤에 의한 소결체의 변위를 관심으로 집중적인 조사후시험 평가가 진행되었고, 본 1700℃가열시험을 통한 저연소도에서의 환형 UO_2 소결체의 안전성을 평가 하였다. 가열시험을 통해 환형 UO_2 소결체의 핵분열기체 방출거동이 평가되었고, 전자주사현미경을 통한 미세조직의 변화를 관찰하였다. 이는 최적의 소결체 제조조건을 확보하는데 활용될 예정이다.

2. 본 론

2.1 가열시편 및 시험 조건

2.1.1 가열시편

연구로에서 조사된 이중냉각 환형 UO_2 소결체는 표 1.과 같이 90%TD, 93%TD, 96%TD, 98%TD 및 98%(L)TD의 5종류이며, 연소도는 8,120 MWd /MTU와 10,900MWd/MTU 두 종류이다. 가열시험에 사용된 소결체는 8,120 MWd/MTU의 평균연소도를 갖는 90%, 93%, 96%이며, 10,900 MWd/MTU의 평균연소도를 갖는 98%, 98L%이다. 여기서 98L% 소결체는 환형 피복관의 Gap 간격을 줄여 소결체의 Stress 변화를 관찰하기위해 두께가 약간 증가시킨 소결체이다. 가열시편은 두께가 2mm정도임을 감안하여 그림 1.와 같이 횡방향의 전부위를 사용하였으며 약 200mg 정도 소결체 고형체 형태를 사용하였다.

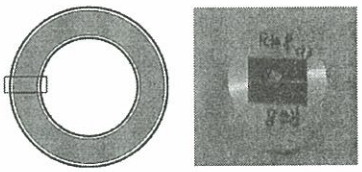


Fig. 1. 환형 UO_2 소결체의 가열시편 및 가열후 SEM 시편

Table 1. 시험 소결체 재료 및 제원

구 분	제 원	비 고
분말 및 농축도	IDR 2.67%	
밀 도	90, 93, 96, 98 %	96%는 상용
외 경 내 경 길 이	14.62 mm 10.28 mm 10.16 mm	
결정립 크기	5 ㎛m 이상	상용
O/U 비	2.0±0.01	
불순물 농도	상용소결체 기준시방 기준	

2.1.2 가열시험 조건 및 방법

한국원자력연구원 사용후시험시설(PIEF) 9405 Hotcell에 설치되어 있는 사용후 핵연료 고온가열시험장비(Post-irradiation Annealing Apparatus, PIA)를 이용하여, 조사후 환형 UO_2 소결체 5종류에 대한 1700℃ 연속 가열시험을 실시하였다. 연속가열을 통하여 온도에 따른 실시간 핵분열기체 방출거동을 분석하고, 과도조건에서의 이중냉각 환형 UO_2 핵연료 특성자료를 생산하였다. 가열시험조건은 1700℃까지 분당 10℃/min으로 상승시켜 10분간 1700℃에서 온도유지 후 분당 20℃/min씩 1000℃까지 일정한 하강유지 후 상온까지 냉각하면서 Kr-85를 측정하였다. 분위기 조절을 위하여 분당 150 ㎖/min의 Helium 불활성가스 분위기를 유지하였다. 실시간 방출되는 Kr-85는 FHT8000의 베타계측기를 이용하여 60 sec 간격으로 측정하고 이와 병행하여 동시에 NaL 감마계측기로 측정하였다. 측정된 핵분열기체 Kr-85는 시편의 조사전 밀도와 결정립크기를 기준으로 조사후 밀도변화와 결정립크기변화를 고려하여 방출거동을 평가하였다. 가열시험 이후 그림 1.과 같이 SEM 시편을 제작하여 미세조직을 관찰하였다. 가열시험후 미세조직은 조사후 시편과 비교하여 조직의 특성을 KR-85 방출거동과 비교평가하였다,

2.2 고온 가열시험 결과

2.2.1 가열시편의 Kr-85 방출거동

고온가열시험시 방출된 Kr-85의 실시간 방출거동은 소결체의 제조시 밀도와 조사후 밀도평가 및 결정

립 성장을 반영하여 초기연소도를 갖는 특성을 비교하였다. 실제 소결체의 제조시 밀도와 조사후 밀도에 차이가 발생하였으며, 이는 open porosity의 correction factor를 반영하지 않아 발생한 차이를 평가되었다. 조사후 결정립 크기의 경우 제조시 시편의 결정립크기보다 성장하였다. 이는 가열시험시 Kr-85의 발출거동에 영향을 미치게 한다.

Table 2. 가열시편의 밀도, 결정립크기 및 Kr-85방출량

Specimen	조사후 밀도	결정립크기		Kr-85 방출량	BU MWd/kgU
		조사전	조사후		
90%TD	981	2.70	3.32	146 %	8.12
93%TD	98.1	2.90	2.25	162 %	8.12
96%TD	96.1	8.6	10.60	100 %	8.12
98%TD	97.9	8.7	11.41	88 %	10.90
98%TD(L)	97.9	8.7	12.49	112 %	10.90

시편의 1700℃ 연속가열시 90%밀도를 갖는 시편의 경우 Kr-85의 방출은 약 1200℃에서 시작되었으며, 93%밀도 시편은 약 1300℃에서 급격한 방출거동을 보였다. 96%, 98% 및 98%L의 밀도시편은 약 1500℃에서 급격한 KR-85의 방출거동을 보였다. Kr-85의 방출량은 표 2.와 같이 96% TD의 밀도시편을 100% 기준으로 각각의 방출결과를 보였다. 시험결과 98%TD 밀도를 갖는 시편의 Kr-85 방출량은 88%로 과도시 작은 방출량을 보임으로써 안정된 방출거동을 보였다. 또한, 핵분열기체의 방출속도는 밀도가 낮은 시편의 경우 높은 밀도 시편에 비해 빠른 방출거동을 보이며 밀도가 높은 시편이 안정된 방출속도를 보임으로써 밀도가 낮은 시편보다 안정적인 연소거동을 보일 것으로 판단된다. 그림 2.는 각 시편별 조사후 환형 UO_2 소결체 각 시편의 Kr-85 방출거동 결과이다.

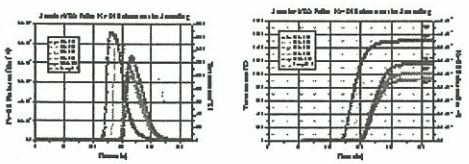


Fig. 2. 조사후 환형 UO_2 소결체 시편의 Kr-85 방출거동

2.2.2 가열시편의 미세조직 변화

사용후 소결체의 가열후 미세조직의 변화를 통하여 결정립성장의 정도 평가와 결정립 표면에서의 핵분열기체 방출 메카니즘을 예측할 수 있다. 이는 핵연료의 과도조건에서 온도상승으로 인한 소결체의 변화를 확인할 수 있으며 핵분열기체의 방출경로 등의 연구에 적용된다.

그림 3.은 조사후 각 시편의 거시조직과 가열시험의 미세조직이다. 90%와 93% 밀도시편은 가열후 미세조직이 유사한 모양을 갖으며 결정립간의 공간이 상당히 크게 나타나 있다. 이는 사고시 소결체의 열적 팽윤으로 인하여 핵연료의 안전성을 저해할 수 있다. 반면 밀도가 높은 소결체의 경우 결정립의 결속력이 강하게 나타내고 있으나 상대적인 Stress를 받은 98L% 밀도 시편의 경우 결정립 크기의 변화가 일정하지 않고 약간의 Crack Phase가 나타났다.

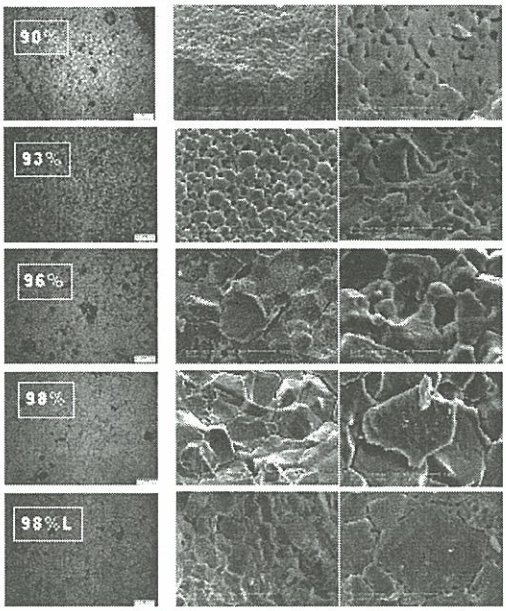


Fig. 3. 조사후 환형 UO_2 소결체 시편의 조사후 거시조직 및 가열후 미세조직

3. 결 론

이중냉각의 환형 UO_2 소결체는 초고연소도 고성능의 핵연료 적용을 위해 원천기술개발 차원에서 연구개발 중에 있다. 환형 UO_2 소결체는 얇은 링의 형태로 되어있어 구조적 변형이 없도록 안정적인 노내 연소거동이 필요하다. 저연소도 조사후 환형 UO_2 소결체의 1700℃ 연속 가열시험을 통하여 각 시편별 핵분열기체의 방출거동과 미세조직의 변화관찰 등의 안전성 평가를 수행하였다. 시험결과 핵분열기체 Kr-85의 온도에 따른 연속적인 방출거동은 명료하고 급격한 방출거동을 확인할 수 있었으며, 98%TD 밀도시편이 핵분열기체 방출량 및 방출속도 등에서 안정적인 연소거동을 확인하였다. 또한, 전자주사현미경을 통한 미세조직의 변화에서도 결정립의 성장과 핵분열기체의 방출경로 및 가열에 의한 조직변화 등에서 안정적인 결과를 확인하였다. 이후 30,000 MWd/MTU의 중간 연소도 조사시험을 통하여 이중냉각의 환형 UO_2 핵연료의 상용성을 확인할 예정이다.

4. 참고문헌

[1] 김대호 외,. 고연소도 UO_2 사용후 핵연료의 고온가열시험특성, 한국방사성폐기물학회 2007년 추계학술발표회.

[2] 김대호 외,. 이중냉각 조사후 환형 UO2 소결체의 고온가열시험특성, 한국방사성폐기물학회 2010년 추계학술발표회.

사용후 UO_2 소결체의 고온산화에 따른 미세조직변화

김대호, 방제건, 김선기, 양용식, 구양현
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
kdh@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에서는 원자력연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행중인 핵연료 연소성능 평가 기술개발과제에서는 사용후 핵연료의 안전성 평가를 위한 연구가 수행 중에 있다. 일본 후쿠시마 원전의 사용후 핵연료 저장조 냉각수 유출사고에 따른 사용후 UO_2 핵연료의 거동이 초미의 관심사로 대두되고 있다. 사용후 저장조의 냉각수 유출은 사용후 핵연료의 붕괴열에 의한 고온증기로 인해 Zircaloy 피복관의 급속한 산화를 초래하고 수소발생과 피복관의 파손으로 UO_2 소결체의 외부유출이 발생할 수 있다. 공기 중에 노출된 UO_2 소결체는 고온의 분위기에서 급격한 산화거동을 보이게 되며 소결체의 건전성이 훼손되게 된다. 노출된 UO_2 소결체는 연속적인 산화를 거쳐 공기 중에 비산하게 되어 주위의 오염이 불가피하게 된다. 일반적으로 사용후 UO_2 소결체는 U_4O_9을 거쳐 U_3O_8으로 완전 산화과정을 격게 된다. 사용후 UO_2 소결체는 핵분열생성물 등의 화합물을 구성하게 되어 연소도에 따른 산화거동이 다르게 나타난다. 한국원자력연구원에서는 사용후 핵연료의 안전성 평가를 위하여 고온의 UO_2 소결체 산화시험이 수행되었다. 연소도에 따른 UO_2 소결체의 고온가열 산화시험을 통하여 핵분열기체 방출과 미세조직의 특성변화를 개괄적으로 평가하였다.

2. 본론

2.1 고온가열 산화시험 시편 및 시험 조건

2.1.1 고온가열 산화시편

고온가열 산화시험에 사용된 시편은 고연소도, 중간연소도 및 저연소도 UO_2 소결체를 사용하였다. 고연소도 UO_2 소결체는 울진 2호기에서 연소된 K23 핵연료를 사용하였으며, 중간연소도 UO_2 소결체는 하나로에서 조사된 큰결정립 UO_2 소결체를 사용하였다. 저연소도 UO_2 소결체는 하나로에서 조사된 이중냉각 환형 UO_2 소결체가 사용되었다. 사용된 시편의 양은 고형체의 형태로 표 1.과 같다. 고연소도 및 중간연소도 사용후 소결체의 시편은 소결체 1개 단면을 기준으로 외곽부, 중간부 및 중심부로 구분하여 산화시험이 진행되었으나, 본 논문에서는 사고시 실제 사용후 UO_2 소결체의 외곽부가 우선적인 영향을 받게되므로 외곽부에 국한하여 제시한다.

Table 1. 고온가열 산화시험 시편

구 분	연소도 (MWd/MTU)	산화 부위	시편양 (mg)	조사조건
고연소도	65,000	외곽부	150	울진 2호기
중간연소도	33,600	외곽부	290	하나로
저연소도	10,900	전부위	290	하나로

2.1.2 고온가열 산화시험 조건 및 방법

한국원자력연구원 사용후시험시설(PIEF) 9405 Hotcell에 설치되어 있는 사용후 핵연료 고온가열 시험장비(Post-irradiation Annealing Apparatus, PIA)를 이용하여, 사용후 UO_2 소결체의 고온가열 산화 시험이 수행되었다. 울진 2호기 K23 고연소도 핵연료 소결체의 rim이 포함한 외곽부 시편을 이용하여 분당 10℃/min씩 500℃까지 상승시켜 500℃에서 4시간 유지시키며 산화시험을 실시하였다. 이때 사용된 분위기는 분당 100 ㎖/min의 Helium 불활성가스와 분당 50 ㎖/min의 표준공기 분위기를 유지하였다. 표 2.는 연소도별 고온가열 산화시험조건이다.

Table 2. 고온가열 산화시험 조건

구 분	적용온도 (℃)	Holding Time	Helium ㎖/min	STD㎖/ min-Air	비고 (밀도)
고연소도	500/600	3hr/3hr	50	100	96%
중간연소도	500	5 hr	100	100	96%
저연소도	450	4 hr	100	50	96%

각 시편별 고온가열 산화시험 시 시간에 따른 Kr-85의 방출거동을 실시간 측정하였다. 실시간 방출되는 Kr-85는 FHT8000의 베타계측기를 이용하여 60 sec 간격으로 측정하고 이와 병행하여 동시에 NaL 감마계측기로 측정하였다. 산화 가

열시험 후 전자주사현미경을 통한 미세조직의 변화를 관찰하였다.

2.2 고온가열 산화시험 결과

2.2.1 고온가열 산화시편의 Kr-85 방출거동

사용후 UO_2 소결체의 산화거동은 U_4O_9에서 U_3O_8으로 변화하고 이때 OU ratio는 $UO_{2.25}$에서 $UO_{2.6667}$로 변화한다. 비조사 UO_2 소결체의 경우 U_3O_7에서 U_3O_8로 변환하며, 완전한 U_3O_8으로 변환시 산화 Weight Gain은 3.96%이다. 고온가열 산화시험시 산소의 포텐셜은 산화에 큰영향을 주지 않는다. 그림1.은 연소도에 따른 일반적인 산화거동을 나타낸다. 다양한 산소함량의 TGA를 통한 산화시험 시에도 지배적인 영향을 미치지 않았다. 사용후 UO_2 소결체의 산화시 방출되는 Kr-85는 결정립경계가 우선하고 이후 결정립 표면과 Matrix에서 방출하게 된다. 시간에 따른 Kr-85의 실시간 방출거동은 그림 2.과 같이 각 시편별 방출거동을 확인하였다.

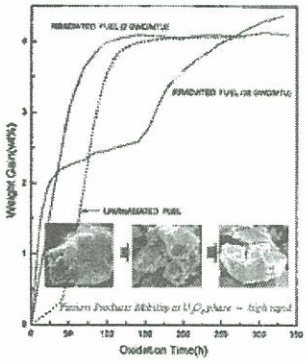


Fig. 1. UO_2 소결체의 연소도별 산화거동

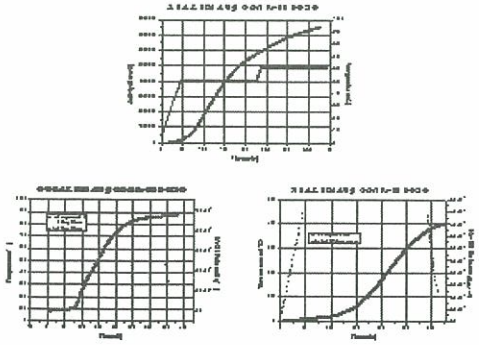
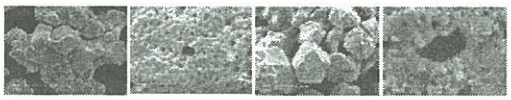


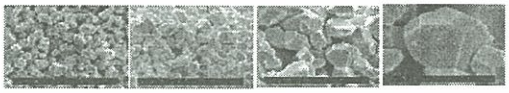
Fig. 2. 사용후 UO_2 소결체 시편의 고온 산화시 Kr-85 방출거동

2.2.2 고온가열 산화시편의 미세조직 변화

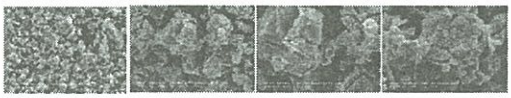
사용후 UO_2 소결체의 고온 산화후 미세조직의 변화를 통하여 사고시 산화에 따른 결정립의 변화정도를 관찰하였다. 대부분 결정립은 5 ~ 10㎛ 정도의 결정립크기를 보였으며 결정립의 분리된 형상과 표면이 산화되는 팝콘현상이 보인다. 고연소도 UO_2 소결체 산화시 고연소도에 따라 생성된 핵분열생성물에 의해 안정화된 U_4O_9의 중간 형태가 화합물을 구성함으로서 산화거동을 지연시키는 현상이 발생하며 미조사 UO_2와는 산화거동이 다르게 나타났다. 저연소도의 소결체 경우 아주 작은 형태의 산화입자로 분리되었으며 이는 U_3O_8으로의 변환이 쉽게 진행되었다. 그림 3.은 연소도에 따른 고온가열 산화후 미세조직 사진이다.



a) 고연소도 고온 산화후 미세조직 사진



b) 중간연소도 고온 산화후 미세조직 사진



c) 저연소도 고온 산화후 미세조직 사진

Fig. 3. 조사후 UO_2 소결체 시편의 연소도별 고온 산화 미세조직

3. 결론

일본 후쿠시마 원전의 사용후 핵연료 저장조 냉각수 상실사고로 인해 사용후 핵연료의 안전성 평가가 원자력계의 관심사로 대두되고 있다. 사용후 UO_2 소결체의 고온가열 산화시험이 연소도별로 개략적인 평가연구가 수행되었다. 사용후 UO_2 소결체의 연소도별 고온 산화특성이 다르게 나타나고 있다. 고연소도 소결체의 경우 산화거동이보이지 않는 rim이 형성되어 있고 저연소도에 비해 결정립내의 산화지연성이 보인다. 일반적으로 사고시 산화에 의한 소결체는 결정립경계를 우선적으로 산화되는 특성을 보이게 된다. 반면 저연소도의 소결체 경우 산화정도가 급격하게 진행되어 아주 작은 입자로 분리되는 것을 확인할 수 있었다. 이후 사용후 UO_2 소결체의 사고시 산화에 따른 안전성 평가가 집중적으로 연구될 전망이다. 본 산화시험을 통하여 개략적인 개략적인 사용후 소결체의 연소도별 고온 산화특성을 평가하였다.

4. 참고문헌

[1] 김대호 외,. 고연소도 큰결정립 UO_2 사용후 핵연료의 고온산화시험 특성, 한국방사성폐기물학회 2008년 춘계학술발표회.

U 전착물 연계 이송장치 제작 및 성능 평가 시험

이성호, 최세영, 박기민, 이한수, 김정국
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
shlee6@kaeri.re.kr

1. 서론

전해정련공정에서 회수되는 U-전착물은 30%정도의 Salt를 포함하고 있어 전해정련공정내 염증류 공정에서 염증류시킨 후 U의 재활용 및 중간 저장을 위해, 잉곳주조 공정에서 U 잉곳을 제조한다. 전해 정련 단위공정 장치간 연계는 우선, PRIDE 시설의 2층 Ar cell 내 설치되는 전해정련 장치와 염증류장치간의 U-전착물 이송을 위한 원격 운전성을 고려하여 전해정련 반응후 약 30 wt %의 염(LiCl-KCl eutetctic)을 포함하는 U-전착물을 염증류장치로 이송하는 U-전착물 연계 이송 장치가 필요하다.

본 연구에서는 전해정련 반응기 하부에 모여진 우라늄 전착물을 용융염 (LiCl-KCl)을 분리하기 위한 염증류 장치로 이동하기 하기 위하여 제작되는 U-전착물 연계 이송 실험 장치를 제작하였고, U-전착물 Surrogate를 이용한 성능 시험을 수행하였다.

2. 본론

2.1 연계 이송 장치 설계 및 제작

전해정련반응기 하부에 모인 U-전착물을 염증류 장치 상부 feeder(약 2.1m)로 이동하는 연계 이송 방법은 전해정련 반응후 반응기 하부에 모여지는 U-전착물을 연계 이송장치 Inversion Lift 하단 Bucket에 이동 및 장입함 후, U-전착물 이송 Lift 를 이용하여 U-전착물 중간 저장조인 Scale Hopper Tank에 이동한다. Scale Hopper에는 U-전착물을 단순 계량할 수 있는 설비가 부착되어 있어 염증류 장치로 U-전착물을 이송하기 전에 운전자가 항상 U-전착물의 중량을 Ar cell 외부 Control pannel를 통해 감지할 수 있도록 설계하였다. 그 후, Magnetic feeder를 이용하여 염증류장치 상단에 있는 Feeder로 U-전착물을 정량적으로 이동 및 주입할 수 있도록 설계하였다.

U-전착물 연계 이송 장치 제작은 (주) 일동 아이엠씨에서 제작하였고, U-전착물 이송장치는 Inversion lift, 전착물을 양을 계량할 수 있는 Load cell hopper 및 magnetic feeder로 구성 되어있다. 제작된 U-전착물 이송 장치 및 Magnetic feeder 사진은 그림 1 및 그림 2에 각각 나타내었다.

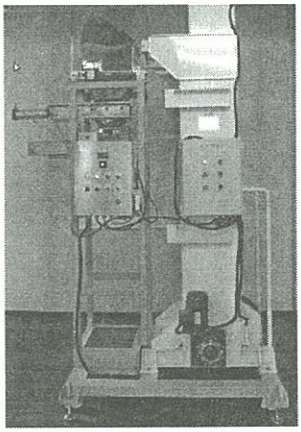


Fig. 1. U-deposit transpotation apparatus

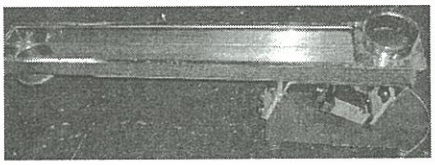


Fig. 2. Photograph of magnetic feeder

2.2 연계 이송 장치 성능 시험

그림 1의 U-전착물 연계 이송장치의 성능시험을 수행하였다. 장치 성능시험을 위해 일정양의 U- 전착물 Surrogate를 장치 Inversion Lift 이송 설비 하단 Bucket에 주입시킨 후, 전착물 이송 Lift를 이용하여 전착물 중간 저장조인 Scale Hopper Tank에 이동시킨다. Scale Hopper에는 U 전착물을 단순 계량할 수 있는 설비가 부착되어 있어,

Scale Hopper에 이송된 U 전착물의 중량을 계량한 후 그림 2에 나타낸 Magnetic feeder를 이용하여 U 전착물을 이동시켜 U-전착물 연계 이송장치의 성능을 평가하였다. 장치의 성능시험을 위해 U-전착물을 모사하기 위해 S.S Wire Scrape을 뭉쳐 만든 그림-3에 나타낸 U-전착물 Surrogate를 이용하였다.



Fig. 3. U-전착물 Surrogate

3. 결론

본 연구에서는 전해정련 반응기 하부에 모여진 우라늄 전착물을 용융염 (LiCl-KCl)을 분리하기 위한 염증류 장치로 이동하기 하기 위하여 전해정련 반응기에서 발생하는 U-전착물을 염증류 장치로 이송하는 U-전착물 연계이송 장치를 설계 및 제작 완료하였고, U-전착물 Surrogate를 이용하여 U-전착물 연계 이송장치의 성능시험 수행하여 연계 이송장치의 선능을 확인하였고, 연계 이송 장치의 성능 평가 자료 확보하였다. 전해정련 반응기와 염증류장치간 연계 Interface 검토를 수행함으로 전해정련 단위공정장치간 연계성 운전체계를 구축하였다.

잔류 핵분열생성기체의 정량적 추출을 위한 조사핵연료 조각 시료의 불활성기체융해평가

박순달, 김정석, 하영경, 송규석
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 대덕대로 1045
nsdpark@kaeri.re.kr

1. 서론

조사핵연료 내 핵분열생성기체의 잔류거동에 관한 정량적 평가를 위해서는 조사핵연료를 완전히 용해하고 이때 방출되는 기체를 정량적으로 포집, 측정해야 한다. 조사핵연료와 같은 고방사성 시료는 핫셀에서 원격 취급해야 하며 실험 후 발생되는 폐기물의 처리 등을 고려하여 실험을 계획해야 한다[1]. 이와 같은 고방사성 시료 취급의 특성을 고려하여 조사핵연료 내 잔류 핵분열생성기체 측정을 위한 시료 용해법으로 산을 사용하지 않은 불활성기체융해법을 개발하였다[2]. 이 방법은 상용 원소분석기의 전극로를 이용할 수 있는 장점이 있으며, 시료 용해 시 부식성 off gas 발생이 없고, UO_2 소결체를 2-3분 이내에 어떤 합금 형태로 완전히 용해 할 수 있는 장점이 있다.

본 연구에서는 고연소 핵연료봉의 임의 위치에서 채취한 조사핵연료 조각 시료를 금속조연제와 함께 용해하고 그 용해상태를 평가하였다.

2. 본론

2.1 조사핵연료 용해

집합체 운전연소도 약 56 GWd/tU의 조사핵연료봉 임의 위치에서 조사핵연료 조각 시료를 취하였다. 시편의 용해에는 조사피복관의 수소분석을 위해 핫셀에 설치되어 있는 전극로(LECO EF-500)를 이용하였다. 조사핵연료 조각 시료 약 0.05 g을 주석 1.0 g, 니켈 1.0 g과 함께 전극로 용해전류 850 A, 용해시간 120초, 유량 450 cc/min 헬륨분위기의 흑연 도가니에서 용해하였다. 이때 방출되는 기체를 기체포집병(1030.59Cm^3)에 120초간 포집하여 포집기체량, 잔류 핵분열생성기체의 조성 및 동위원소 분포를 측정하고 조사핵연료 내 잔류 핵분열생성기체 농도를 계산하였다.

2.2 용해물의 미세분석

조사핵연료 용해 후 생성된 용해물을 회수하여 에폭시 수지로 마운팅 하고 시편 표면을 거울상으로 연마하였다. 용해물의 용해상태 평가에는 고방사성 시료의 미세분석이 가능한 차폐형전자탐침미세분석기(Shielded Electron Probe Micro Analyzer(EPMA) CAMECA XR-50R)를 사용하였다. 이 장비는 쳄버 내에 방사성 시료가 존재할 때 고에너지 감마선으로부터 기기 및 운전자를 보호할 수 있도록 장치되어 있다.

이 장비를 이용하여 용해물의 Backscattering electron image(BEI), U, Ni, Sn의 elemental mapping 및 line scan profile(LSP)을 측정하였다. 또한 용해물의 산소 함유 및 제논 잔류 여부를 확인 하였다.

2.3 용해물의 미세분석결과

연소도 약 56 GWd/tU인 조사핵연료 조각 시료 약 0.05 g을 주석 1.0 g, 니켈 1.0 g과 함께 헬륨분위기의 흑연도가니에서 850 A로 120초간 용해 후 생성된 용해물은 그림 1과 같이 작은 단추 모양으로 흑연도가니 내에 분리되어 있었다.

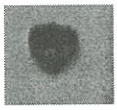


Fig. 1. A melt of an irradiated oxide fuel fragment, which was fused with 1.0 g tin and 1.0 g nickel fluxes at 850 A for 120 seconds.

그림 2는 용해물의 backscattering electron image(BEI) 및 U, Ni, Sn의 원소분포 사진이다. 용해물의 secondary electron image(SEI)를 관찰한 결과 전형적인 equi-axied polygonal 모양의 UO_2 결정립이 발견되지 않았으며 SEI가 선명하지 못해 조직관찰이 용이하지 않았다. 이것은 용해물이 고방사성이며 UO_2 결정립 같은 선명한 결정상이 존재하지 않기 때문일 것이다. 따라서 BEI로 용해물의 모양을 관찰하였다. 그림 2에서 보는 바와 같이 Ni, Sn은 전체적으로 균일하게 분포되어 있지만 U는 편석 되어 있

음을 알 수 있다.

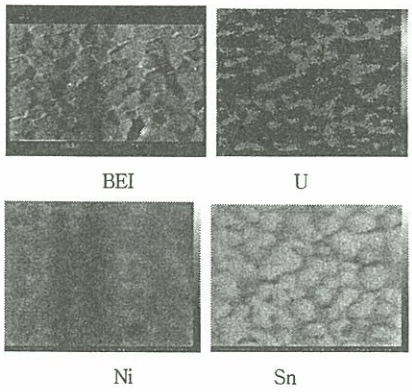


Fig. 2. A backscattering electron image(BEI) and elemental mapping images of U, Ni, and Sn for the melt.

그림 3은 융해물의 임의 위치의 3737 μm 범위에 대한 산소의 line scan profile 결과이다. 그림 3에서 보는 바와 같이 융해물에서 산소가 검출되지 않음을 알 수 있다.

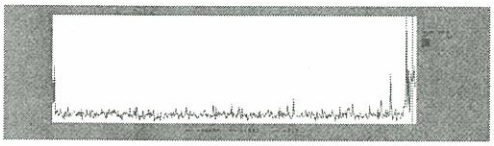


Fig. 3. Oxygen line scan profile over 3737 μm of the melt.

그림 4는 융해물 임의 위치의 4000배 BEI 사진이다. 그림 4에서 보는 바와 같이 높은 배율에서도 UO_2 소결체의 전형적인 equi-axied poly diagonal 모양의 결정립을 확인 할 수 없다. 따라서 UO_2의 산소가 흑연도가니의 탄소와 고온의 불활성기체분위기에서 반응하여 CO로 휘발되었을 것으로 추정된다.



Fig. 4. Backscattering electron image(BEI) of the melt at magnification of 4000.

그림 5는 융해물 임의 위치의 37 μm 범위에 대한 BEI 사진 및 Ni, Sn, U의 line scan profile(LSP) 분석결과이다. 그림 5에서 보는 바와 같이 U은 매우 분산된 편석 현상을 보이며 U 농도가 높은 곳에서 Sn의 농도가 감소되는 것으로 나타났다. 그러나 Ni의 농도는 영향을 받지 않은 것으로 보인다. 이것은 U의 함량이 낮은 원인도 있겠지만 UO_2, Ni, Sn이 고온에서 어떤 기계적인 교반 없이 짧은 시간 융해되었기 때문인 것으로 생각된다.

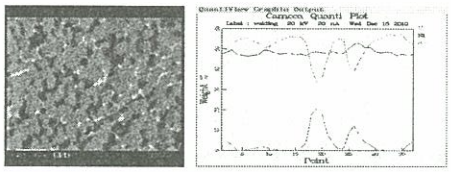


Fig. 5. Line scan profile(LSP) over 37 μm of the melt.

3. 결론

조사핵연료 조각 시료를 과잉의 금속 조연제와 함께 850 A(약 2600-2800°C)에서 120초간 융해한 결과 UO_2 소결체가 U-Ni-Sn의 intermetallic alloy 형태로 깨끗하게 융해되었으며 이때 잔류 핵분열기체가 완전히 추출된 것으로 확인되었다.

4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국과학재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

5. 참고문헌

[1] S. D. Park, Y. S. Park J. G. Kim, Y-K. Ha, K. Song, Fabrication and installation of radiation shielded spent fuel fusion system KAERI/TR-4008/2010, 2010.

[2] S. D. Park, Y. S. Park, H. K. Ha, K. Song, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, DOI:10.1007/S10967-011-1047-5. 2011.

Pu 동위원소 비 측정에 미치는 U 동중원소 영향 및 이의 보정

전영신, 김정석, 한선호, 하영경, 송규석
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
ysjeon@kaeri.re.kr

1. 서론

^{238}Pu 동위원소 비 측정에서 우라늄 영향을 완전히 배제한 측정은 쉽지 않은데 이는 플루토늄을 분리하는 과정에서 분리가 완전히 안 된 우라늄 및 질량분석에 사용되는 필라멘트와 시약에 불순물로 들어있는 우라늄(^{238}U)이 ^{238}Pu에 동중원소영향을 미치기 때문이며 항상 부의오차(positive error)를 갖게 된다. 따라서 측정하고자 하는 플루토늄시료에 동위원소조성을 알고 있는 우라늄(^{233}U spike)을 넣어 우라늄과 플루토늄을 UO^+ 와 Pu^+상태로 각각 동시에 측정하고 측정결과로부터 우라늄영향을 빼주는 방법으로 ^{238}U 영향을 보정하는 실험을 하였다. 열 이온화 질량분석에 사용되는 시약 및 필라멘트에 대하여 우라늄 검출실험 및 바탕값 영향을 알아보았다. 본 실험에서 우라늄을 완전히 제거할 수 없음을 알 수 있으며 우라늄으로 약 50 pg이 검출되었다. 따라서 ^{238}Pu 측정에 영향을 크게 미칠 수 있음을 알 수 있다. 국제비교시험(REIMEP-16A)에 사용한 플루토늄시료, $^{238/239}$Pu=0.00006696에 적용한 결과 보정하지 않은 $^{238/239}$Pu 측정값은 0.0006851로 10배 정도 큰 값이 얻어졌으나 ^{233}U을 넣어 측정하고 이를 보정한 값은 0.0000966 ± 0.0000122이었다. 그러나 reference 값과 30% 정도 큰 값이 얻어졌는데 이는 극히 작은 량을 측정하는데서 오는 오차임을 알 수 있다.

2. 본론

Re 필라멘트 불순물로부터 오는 영향을 알아보기 위해 자장을 변화시키는 방법으로 우라늄, 플루토늄질량(m/z)영역을 SEM 검출기를 이용 스켄하였다. 또한 필라멘트에 가해주는 필라멘트 온도에 따른 영향을 실험하였다. 플루토늄 동위원소비 측정 시 우라늄동중원소 영향을 보정하기위한 실험에서 우라늄은 IRMM-040a(uranium ^{233}U spike, ^{233}U이 98.042%, ^{238}U 경우 0.8042%, 그리고 ^{234}U, ^{235}U 동위원소들이 조금씩 들어있음)를 이용하였고, 플루토늄은 IRMM주관 플루토늄 동위원소 비 측정 국제 비교시험에 사용했던 시료(REIMEP-16, A)를 이용하였다.

3. 결론

REIMEP-16A,플루토늄시료에 IRMM-040a를 섞어 238/239 비(U/Pu)를 측정한 결과 Fig. 1에 보인 것처럼 우라늄이 시간에 따라 점차 줄어드는 것을 볼 수 있는데 이는 플루토늄 보다 우라늄이 쉽게 휘발되어 줄어들기 때문이다. 그러나 Fig. 2에 보인 241/239(Pu/Pu))측정에서는 시간에 따른 비의 변화가 거의 없음을 알 수 있다. 플루토늄시료(REIMEP-16, A)에 ^{233}U spike 용액을 섞어 $^{233}U^{16}O^+$(m/z; 249)와 $^{238}U^{16}O^+$(m/z; 254)를 그리고 $^{240/239}$Pu 비를 동시에 측정한 결과를 table 1에 보였다.

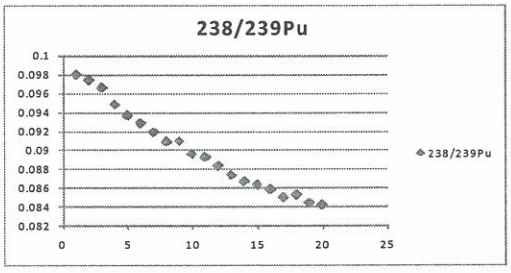


Fig. 1. Trend of peak intensity depend on measuring time($^{238/239}$Pu)

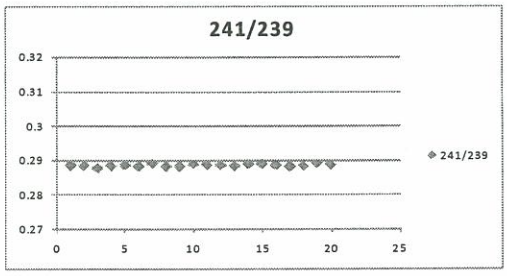


Fig. 2. Trend of peak intensity depend on measuring time($^{241/239}$Pu)

결과에서 보듯이 우라늄 $^{238/233}$U과 $^{238/239}$Pu 비 측정을 같은 필라멘트에서 동시에 측정하여도 $^{238/233}$U 비 측정에 문제가 되지 않음을 알 수 있다. 그러나 M/Z, 238/239 측정에서 ^{233}U spike 중에 들어있는 ^{238}U 및 바탕값 ^{238}U 영향으로 약 100배정도 큰 값을 보였다.

Table 1. Result of Pu isotopic ratio for mixed REIMEP-16-A, Pu sample and IRMM-040a, U-233 spike.

Isotope ratio	Ref. Value	Meas. Value
$^{238/233}$U(m/z:254/249)	0.008202	0.008499
$^{238/239}$Pu	0.00006696	0.007179

$^{238/239}$Pu로부터 측정된 값 중에는 ^{233}U spike 중에 들어있는 ^{238}U 과 바탕 값으로 들어있는 ^{238}U, 그리고 ^{238}Pu이 포함된 값이다. 따라서 ^{233}U , ^{239}Pu 및 ^{238}U 을 동시에 측정하여 총 얻어진 ^{238}Pu intensity(mV)로부터 우라늄이 영향을 미친 값을 빼주는 방법으로 보정하였으며 이를 Fig. 3 및 table 2에 보였다.

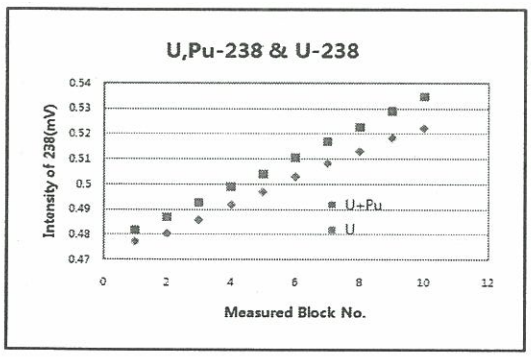


Fig. 3. Difference of intensity in 238(U+Pu and Pu-238)

Table 2. Result of corrected Pu isotopic ratio

Isotope ratio	Ref. Value	Meas. Value	Corr. value
$^{238/239}$Pu	0.00006696	0.0006851	0.0000966

REIMEP-16 A, 플루토늄 시료에 들어있는 ^{238}Pu/^{239}Pu 비가 6.6 x 10^{-5} 범위에 있는 극히 작은 값으로 정밀한 실험을 한다하여도 사용되는 필라멘트, 시약, 초자, 질량분석기의 소스오염 등으로 정확한 값을 얻기가 쉽지 않다. 보정하지 않은 $^{238/239}$Pu 측정값은 0.0006851로 10배 정도 큰 값이 얻어졌으나 ^{233}U 을 넣어 측정하고 이를 보정한 값은 0.0000966±0.0000122이었다. 그러나 reference 값, 0.00006696과 30% 정도 큰 값이 얻어졌는데 이는 극히 작은 량을 측정하는데서 오는 오차임을 알 수 있다. 그러나 사용 후 핵연료 중 $^{238/239}$Pu 동위원소 비는 약 0.03정도 되므로 훨씬 근접한 보정 값을 얻을 수 있을 것으로 보며 이와 관련 추가 보충실험이 필요하다.

4. 참고문헌

[1] D. Alamelu, P. S. Khodade, P. M. Shah, S. K. Aggarwal, *International Journal of Mass Spectrometry*, 239, 51-56. 2004.

[2] 전영신, 박용준, 조기수, 한선호, 송규석, *Analytical Science & Technology*, Vol. 21, No. 6, 487-494, 2008.

조사후 핵연료봉 Tube core drilling machine 개발

서항석, 김도식, 전용범, 이형권, 권형문, 황용화
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
nhsseo@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원내 조사후 연료 시험시설은 국내 상용원자력발전소에서 조사된 핵연료를 시험/평가 할 수 있는 국내 유일한 시험시설이다. 국내 원자력발전소에서 연소한 조사후 핵연료의 성능 및 건전성을 평가하고 고방사성 원자력 재료의 특성시험을 수행함으로서 고연소도, 고성능 핵연료의 성능평가 분석과 핵연료 및 원자력재료의 건전성 검증시험 결과를 제공한다. 따라서 고연소도 조사후 핵연료 Assembly에 대한 구조부품 조사 성능기술개발의 일환으로 조사후 핵연료 피복관에 대한 기계적 특성시험을 수행하기 위하여 본 장치를 개발하게 되었다. 본 장치는 핫셀 내부에 설치하여 원격조종기에 의해 운영 되므로 모든 기능을 원격조종기 운전에 적합하게 제작하였다.

2. 본론

핵연료봉 피복관은 중성자 조사를 받으면 피복관의 기계적 성질이 약화 된다. 이런 피복관 기계적 성질의 변화는 피복관의 안전성에 영향을 미치므로 피복관의 기계적 건전성 확인을 위한 시험이 필요하다. 피복관의 기계적 시험을 위해서는 우선 피복관(Clading)과 소결체(Pellet)을 분리 하여야 하는데 소결체는 원자로에서 조사가 되면서 팽윤현상(swelling)에 의해 피복관과 접촉이 일어나고 고압과 고온에 의한 화학반응에 의해서 피복관과 서로 고착하게 된다. 따라서 피복관 과 소결체가 견고하게 본딩(bonding)되어 있는 상태의 핵연료봉을 피본관 손상을 최소화 하면서 피복관과 소결체를 안전하게 제거할 수 있는 핵연료봉 Tube core drilling machine을 개발하게 되었다. 소결체를 파쇄 하는 구동모터는 출력 900W에 회전속도 400RPM의 구동모터를 사용하였으며 드릴비트는 초경합금, ϕ 6.5mm,길이65mm를 사용하였다. 구동모터에 소재를 고정하고 드릴비트는 고정된 상태에서 피삭재(연료봉)가 회전하면서 천공되는 방식으로 소결체를 파쇄 하였다. 또한 드릴비트부분에 소결체를 파쇄 할 때 발생되는 드릴칩이 분산되지 않도록 원형 투명아크릴 하우징을 제작 후 드릴비트를 하우징 속에 고정하여 칩의 비산을 방지 하였다. 장비의 뒷 부분은 스프링을 부착하여 복원력에 의해 feedback 되게 하였으며 핫셀 내부에 설치되어 있는 Incell crane의 성능을 고려하여 50kg이 넘지 않도록 무게의 조정을 위해 알루미늄으로 제작하였다. Fig.1의 왼쪽사진은 제작 완료된 사진이며 가운데 사진은 핫셀 내부에 설치한 후 연료봉을 장비에 장착하고 천공을 시작하기 전 사진이다. 오른쪽 사진은 길이 65mm의 연료봉을 천공을 마친 사진이다.

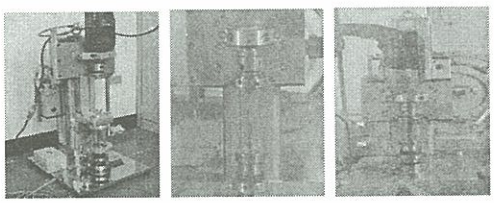


Fig. 1. Tube core drilling machine

3. 결론

고방사성 핵연료인 고리2호기 W93-B06핵연료봉에 대한 피복관의 기계특성시험시편을 제작하기 위하여 제작한 장비를 핫셀 내부에 설치하고 시편 제작을 하였다. 길이 60mm에 직경6.5mm 의 연료봉을 천공하는데 약 4시간의 시간이 소요되었으며 천공 방법은 원격조종기로 5초간 시편에 강하게 힘을 가한 후 3초간 정지 하는 방법으로 작업을 수행 하였다. 냉각수로는 물을 사용 하였으며 가열된 드릴비트에 냉각수가 흐르지 않게 조금씩 뿌려주면서 천공을 하였다. 천공을 마친 시편은 피복관 내부에 약 1mm의 두께로 붙어있는 소결체를 제거하기 위하여 온도 90도의 화학

용액(질산1 : 물1)에 시편을 넣어서 피복관 내부에 붙어있는 소결체를 완전히 용해시킨다. 용해시간은 약 10분정도 소요되며 용해된 시편은 물로 깨끗이 세척 후 에탄올 용액으로 다시 세척한다. 세척을 마친 시편은 드라이어로 건조시키면 시편제작이 완료 된다. Fig2의 왼쪽사진은 천공을 마친 사진이며 가운데 사진은 천공할 때 발생된 파쇄된 칩을 모은 소결체이다. 오른쪽 사진은 천공 후 용해하여 시편제작이 완료된 사진이다.

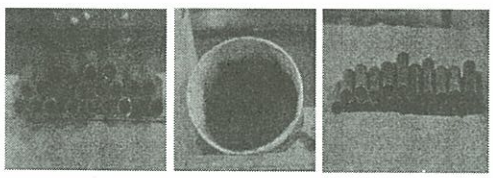


Fig. 2. Photographs after puncture of fuel cladding & dissolution of pellet

PRIDE 원격취급 서보조작기 기구부 성능 개선

이종광, 박병석, 이효직, 유승남, 김기호, 김호동
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
leejk@kaeri.re.kr

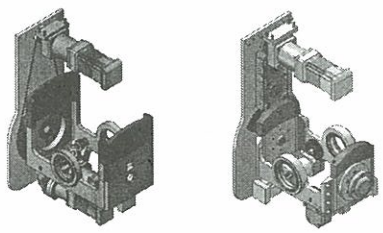
1. 서론

Pyroprocess 기술을 종합적으로 평가하기 위한 공학규모 파이로 일관공정 연구시설인 PRIDE 시설이 구축되고 있다. PRIDE 시설은 완전 기밀형 아르곤 셀로 작업자의 직접적인 접근이 불가능하므로 모든 공정운전 및 장치 유지보수 작업들을 마스터-슬레이브 원격조작에 의해 수행하여야 한다. PRIDE 시설의 개념설계 단계에서 공정장치의 유지보수를 위해 단위 모듈의 최대 중량을 25 kgf로 설정하고 복잡한 조작이 가능하도록 양팔형 서보조작기 프로토타입을 개발하였다[1]. 프로토타입 조작기의 운전시험 과정에서 도출된 문제점들을 해결하는 개량 설계를 통해 서보조작기의 완성도를 높였으며 시운전 검증을 거쳐 금년 말에 PRIDE 시설에 설치할 예정이다. 본 논문에서는 양팔 서보조작기의 개량 과정에서 수행한 기구 메커니즘 개량 및 내구성 개선에 대한 주요 내용들을 요약하였다.

2. 서보조작기 기구부 개량 설계

2.1 상부팔 피치 구동부

상부팔 피치(pitch) 운동(1축)시 최대 팔길이 약 1.6 m에서 25 kgf의 하중을 정적으로 받는 경우 약 400 Nm의 부하 토크가 발생되며 가속시 수배 더 증가하게 된다. 이러한 큰 부하가 작용하는 1축 동력전달 방식을 와이어-풀리 구조에서 기어(슬레이브)/벨트(마스터) 구조로 개선하여 와이어 탄성, 변형, 손상 등의 문제점을 근본적으로 차단하여 내구성을 크게 향상시켰다.

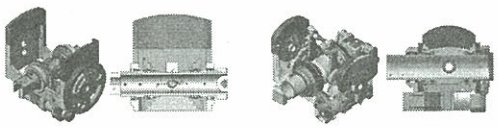


(a) prototype (b) improved design

Fig. 1. Shoulder pitch motion joint

2.2 차동 구동부

상부팔 롤(roll) 및 하부팔 피치 운동은 차동방식(differential)의 동력전달로 두 개의 모터로 동시에 두 축을 제어한다. 개량형에서는 일체형 설계/제작으로 결합부 조립시 발생하는 오차의 영향을 최소화하였으며, 축 취약부를 테이퍼 형으로 보강하였다. 또한 1축과 마찬가지로 프로토타입에 적용된 풀리-와이어 구조를 기어(슬레이브)/벨트(마스터) 구조로 개선하여 내고장성을 증대시켰다.

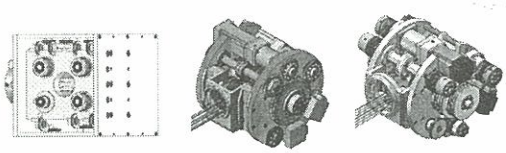


(a) prototype (b) improved design

Fig. 2. Differential drive joint

2.3 구동부 모듈

구동부 모듈은 그리퍼의 4자유도 운동(roll, pitch, yaw, grip)의 동력을 7줄의 와이어 케이블로 전달하는 4개의 서보모터가 모듈 형태로 구성된 것으로, 상부팔 피치 운동에 대한 균형질량의 역할도 담당한다. 설치 공간을 최소화하고 조립/분해성을 향상시키기 위해 곡률반경이 큰 풀리를 중앙에 배치하고 그 주위에 원주방향으로 구동부를 배치하되 이중 축 방식으로 풀리와 구동부를 연결하는 새로운 구조를 적용하였다. 또한 다수의 아이들 풀리를 사용하는 프로토타입의 경우 공간 제약으로 동력전달 케이블의 곡률반경을 크게 확보하지 못한 반면에 개량형에서는 중앙 풀리에서 큰 곡률반경을 확보할 수 있었다. 이에 따라 절단강도를 90% 이상 추가 확보하고, 케이블 단면적에 비례하는 케이블 강성을 약 80% 증대시켰다.

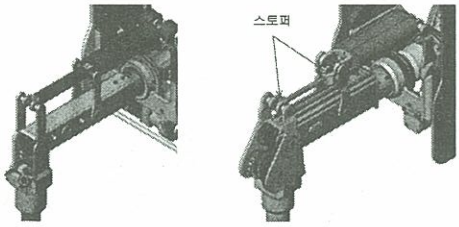


(a) prototype (b) improved slave/master design

Fig. 3. Drive module

2.4 링크 암(link arm)

상부팔(upper arm)은 쇼울더 조인트와 엘보우 조인트를 연결하는 링크로 굽힘 저항성을 키우기 위해 rib로 보강하였으며, shoulder joint block에 부착되는 결합부 보강을 통해 강성 및 구조 안전성을 증대시켰다. 또한 하부팔 피치 운동을 위한 링크 구조를 기계적 스토퍼로 활용함으로써 동작 영역을 안정적으로 제한하였다. 또한 balancing weight를 프로토타입의 원형 대신에 타원 형상으로 변경하여 공간대비 무게 효율을 증대시켰으며, 동력전달 풀리와 베어링 용량을 키움으로써 와이어 내구성 및 설치 안정성을 향상시켰다.

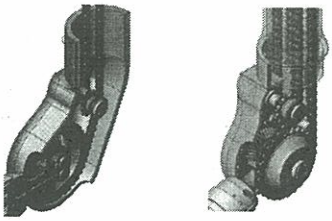


(a) prototype (b) improved design

Fig. 4. Upper arm link

2.5 손목 조인트

손목 조인트는 그리퍼의 2자유도 운동(roll 및 pitch)을 위한 차동방식 조인트로서 베벨기어 측면에 스프라켓을 설치하고 이를 구동풀리에서 출발하는 와이어와 연결된 체인을 통해 동작시키게 된다. 체인의 허용장력을 프로토타입 대비 약 3.4배 증가시켜 내구 안전성을 추가 확보하였으며, 아이들 스프라켓 지지부를 기존 볼 베어링에서 니들베어링으로 변경하여 안정성을 증대시켰다.



(a) prototype (b) improved design

Fig. 5. Wrist joint

3. 서보조작기 개량 제작

개량 설계된 3D 모델에 대해 취급물 하중, 장치와의 접촉 및 외부 충돌 등 다양한 상황에서 동력전달계 및 기구부의 충분한 내구성을 확보하기 위해 다물체 동역학 및 구조물 유연체 해석 모델을 개발하여 예상 가능한 운전 조건에서 구조 동해석을 수행하였다. 또한 조작기 링크 구조와 유사한 1축 실험장치를 구성하고 최대 시험 부하의 60%인 15 kgf의 관절 연속운동 내구시험을 통해 케이블 동력전달계의 운전 안전성을 확보하였다.

Fig. 6은 구조/동해석 및 내구성 검증 시험 결과를 반영하고, 무게 균형 분석 등을 추가로 수행하여 제작된 개량형 마스터-슬레이브 양팔 서보조작기를 보여준다. 현재 공정장치 원격취급성 검증 목업에 설치하여 제어시스템과 연결하여 시운전을 수행하면서 운전 성능평가를 진행하고 있다.

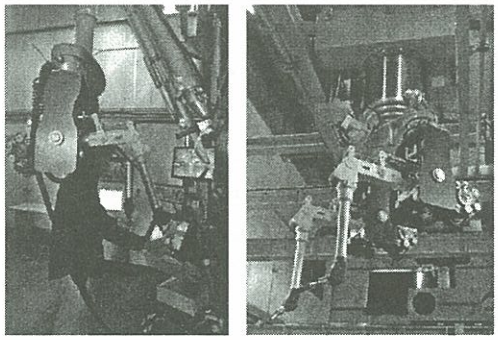


Fig. 6. Master-slave dual arm servo-manipulator

4. 결론

본 논문에서는 PRIDE 공정장치의 원격 운전 및 유지보수를 위해 제작된 마스터-슬레이브 양팔 서보조작기 프로토타입의 전반적인 개량 설계에 대해 다뤘다. 개량 설계, 구조동해석 및 축소 모델에 대한 내구성 검증 시험을 통해 개량된 양팔 서보조작기의 충분한 내구성을 확보하였으며 시운전 검증을 거쳐 금년도 말에 PRIDE 시설에 설치할 예정이다.

5. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

6. 참고문헌

[1] 이종광, 박병석, 윤광호, 이효직, 김기호, PRIDE 시설 원격 운전/유지보수용 양팔 서보조작기 제작, 한국방사성폐기물학회 춘계학술발표회 논문요약집, pp.261-262, 2009.

우라늄 전착물의 잉곳제조 특성

조춘호, 강희석, 김정국
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
ex-kaeri@kaeri.re.kr

1. 서론

건식 사용후핵연료 처리 공정은 경수로 산화물 사용후핵연료의 환원공정 및 전해정련 공정을 걸쳐서 순수한 우라늄과 TRU 등 연료물질을 회수하여 향후 핵연료로 재활용하는 기술이다. 따라서 잉곳제조는 정련공정 가운데 최종적으로 우라늄 전착물을 잉곳으로 제조하는 주조 공정에 해당된다.[1],[2] 본 연구는 염증류된 우라늄 전착물을 용해하기에 앞서 우선 비슷한 융점을 갖고 있는 Cu의 주조를 소개하고 이어서 DU(Depleted Uranium)와 우라늄 전착물을 혼합한 원료의 용해 공정에 대한 특성들을 소개하고자 한다.

2. 본론

2.1 잉곳주조장치의 특성

Lab-Scale의 장치이지만 우라늄을 녹이기 위해서는 적어도 1300℃ 이상의 온도가 필요하기 때문에 고주파 유도가열 방식이 본 장비에 적용되었다.[3] 미국의 INL에서는 Batch 형태로 전착물을 단일 도가니에 넣고 용해한 후, 도가니의 냉각 공정을 걸쳐서 한 번에 우라늄 잉곳이 1개 생산되도록 되었으며, 도가니에 잉곳이 융착되는 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 정면도 사진으로서 제어반, 진공챔버, 글로브박스, Antecamber, 흑연도가니, 진공펌프, 주형도가니 등으로 구성되었다.

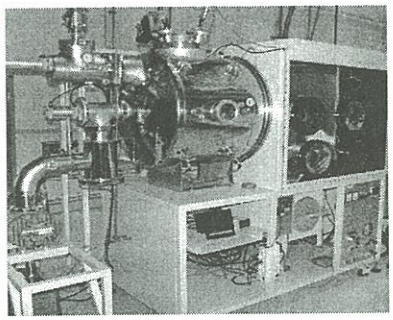


Fig. 1. Photograph of an ingot casting equipment

2.2 우라늄 전착물의 용해

일반적으로는 순수 우라늄 전착물을 갖고 주조를 해야 하지만 전착물의 특성상 감손우라늄과 우라늄 전착물과의 비율을 1:1로 하여 용해 시험을 수행하였다. 또한, 이후 감손우라늄을 전착물의 양 보다 4배 이상 증가시켜 추가 용해 시험도 병행하였다. Fig. 2는 실험에 사용된 우라늄과 전착물의 모습으로 우라늄에 비해 다소 전착물이 공정 중 일부 오염으로 약간 산화된 모습을 볼 수 있다.

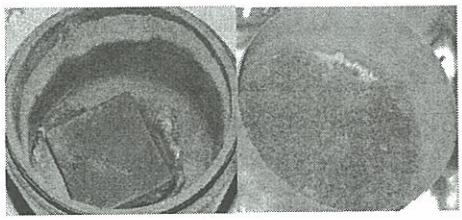


Fig. 2. Photograph of depleted uranium and uranium deposits

한편 실험은 우라늄 전착물을 용해하기 위하여 고주파유도로가 사용되었으며, 사용 출력은 최대 15kW로 1400℃까지 승온 시키는데 약 50min 정

도가 소요되었다. 또한, 용해로의 챔버내 분위기는 10^{-2}torr의 진공을 유지한 후 10torr의 Ar분위기에서 주조시험이 수행되었다.

Fig. 3은 우라늄과 전착물의 용해 실험 후 용해 도가니 내부의 모습으로 전착물이 잘 녹지 않고 실험 전 장입된 그대로의 분말 형태로 남아있는 모습을 볼 수 있다.

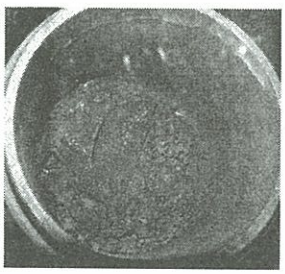


Fig. 3. Photograph of inside crucible after the melting experiment

3. 결론

이와 같이 본 연구에서는 우라늄 전착물의 용해 시험에 대한 일부 연구를 수행한 결과로써 공정 중 전착물의 산화 등으로 잉곳이 제조되지는 못했지만 최적의 공정 조건을 현재 확립하는 중이며, 이후 추가적인 연구를 계속 수행함으로써 최종적으로 원하는 잉곳으로 주조하기 위해 노력을 기울이고 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부에서 주관하는 원자력 중장기개발 사업의 일환으로 수행하였습니다.

5. 참고문헌

[1] 유재형, 이병직, 이한수, 김응호, "고온전해분리 기술의 개요 및 기존 핵연료주기 대체 기술로서의 적합성 검토", 한국방사성폐기물 학회지, 5(4), pp. 283-295 (2007).
[2] 유재형, 홍권표, 이한수, "사용후핵연료 파이로처리공정 실증시설의 개념설계 연구", 한국방사성폐기물 학회지, 6(3), pp. 233-244 (2008).
[3] 이윤상, 외 "Lab. scale 우라늄 전착물 잉곳제조 장치 제작 및 시운전 경험", 2009년 한국방사성폐기물학회 춘계학술발표회.

사용후핵연료 내 Pu/U 핵종비 정량 분석을 위한 계측장치 최적설계

이상화, 배진형, 정진영, 황주호, 허균영
경희대학교, 경기도 용인시 기흥구 서천동 1번지
guitar87@naver.com

1. 서론

재처리 공정에서 가장 중요한 문제 중 하나가 사용후핵연료내에 존재하는 Pu을 계량화하는 것이다. 오늘날 가장 많이 사용되고 있는 재처리 공정은 PUREX 시스템으로 Pu-239를 대량추출 할 수 있다. 그에 반하여 Pyroprocessing은 순수 Pu을 분리 할 수 없어 핵확산 금지 조약의 목적에 부합된다. 하지만 현재 플루토늄 계량기술은 PUREX 공정에 맞추어져 있으므로 차세대 재처리 공정인 Pyro 공정에서의 계량기술개발이 필요하다.

사용후핵연료내에 존재하는 핵분열생성물이 많은 양의 강한 감마선을 방출하므로 Pu의 감마선을 측정하는데 어려움이 있다. 하지만 사용후핵연료내에서 Pu와 U의 X-Ray Fluorescence(XRF)가 유발되어 K x-ray가 발생하는데 이 방사선으로 Pu과 U의 핵종비를 결정 할 수 있다.[1] 사용후핵연료 내에는 U 96%, Pu 1%로 U의 양이 상대적으로 많아 Pu의 x-ray 계측시 U의 x-ray로 인하여 간섭을 받아 계측이 어렵다. 그러나 Pu의 $K_{\alpha 1}$ x-ray(103.7 keV)는 U의 x-ray와 비교적 잘 구분이 되어있어 최적화 된 계측기 시스템을 이용하여 계측이 가능하다. 따라서 본 연구에서 Pu의 $K_{\alpha 1}$ x-ray를 계측 할 수 있는 최적의 검출기 시스템을 몬테카를로 방법론의 컴퓨터 코드를 이용하여 설계하였다.

2. 본론

2.1 계측기 시스템

시스템 설계 대상으로는 한국원자력연구원에서 사용 중에 있는 감마선 계측기를 선택하였다. 검출기 모델은 EGPC-20로 동축 P형 HPGe 검출기이다. 이 검출기는 hot cell 안에서 원격조종으로 제어되고 있다. 이 시스템에는 선원 받침대가 수직으로 이동이 가능하여 검출기와 선원 사이의 거리는 410~980 mm까지 조정 가능하다. 또한 시준기는 1차와 2차 시준기, 두 개로 이루어져 있다.

2.2 시뮬레이션

계측기 시스템 시뮬레이션에는 몬테카를로 코드인 Monte Carlo N-particle(MCNP) 코드를 사용하였다.[2]

먼저 계측기의 기하학적 구조에 관한 시뮬레이션을 진행하였다. 그 결과는 Fig. 1.에 Visual Editor로 모사되어있다.

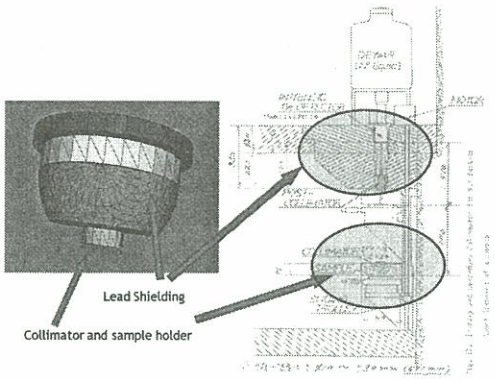


Fig. 1. Design of HPGe and simulated detector by MCNP

선원의 디자인은 Fig. 2.에 나와 있다. Fig. 2.에는 실린더 형태의 시편의 단면도 이다. Void로 설정한 공간은 F2 tally를 적용하기 위해 실제 시편에는 없는 공간을 임의로 생성하였다.

계산 시에는 광자를 고려하여 계산하였고 구성 물질 재료에 대한 성분과 물리량의 정보는 문헌조사를 통하여 자료 수집 후 입력하였다.

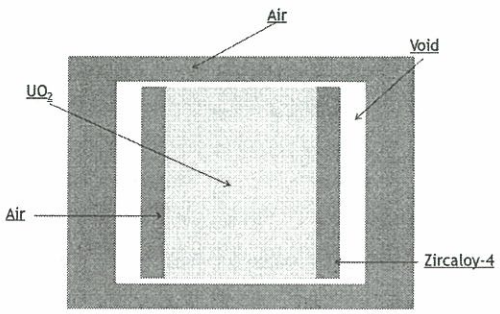


Fig. 2. Design of spent fuel source

Tally는 F2와 F8을 사용하였다. F8은 계측된 방사선의 파고 스펙트럼을 보기 위하여 사용 되었고 F2는 사용후핵연료 시편 표면에서의 표면 플러스를 측정하여 선원에서 계측기로 이동하는 방사선을 미리 측정하여 시뮬레이션 된 선원에 문제가 있는지 알아보기 위하여 사용 되었다. 그리고 이력수는 20억으로 설정하여 상대오차를 5% 이내로 만들었다.

2.3 결과 비교 분석 방법

98.44 keV를 갖는 U의 $K_{\alpha 1}$ x-ray는 비슷한 에너지 영역의 피크들과 비교하여 상대적 효율이 높으므로 이 피크를 기준으로 설정하였다. 이 피크를 이용하여 103.7 keV x-ray와의 비율을 K로 정하여 K값이 작은 경우를 선택하였다.

$$K = \frac{\text{count number of U } K_{\alpha 1}\, x-ray}{\text{count number of Pu } K_{\alpha 1}\, x-ray} \quad \cdots\cdots (1)$$

2.4 MCNP 시뮬레이션 결과

모의모사는 사전 계산을 통해 수십 가지 경우의 수로 축소하여 계산 하였다. 그 결과 시준기의 재료로는 스테인리스강(type-431)의 K값이 4.5405로 납이나 로제합금 보다 작게 나왔다. 시준기의 종류로는 다공 시준기가 단공과 slit형 시준기에 비하여 K 값이 평균 1.0000 낮은 3.8235로 가장 낮았다. 시준기 구멍의 크기로는 반경 0.45 cm가 적합할 것으로 판단했다. Fig. 4.에서 보듯이 다른 반경에 비해서 반경이 0.45 cm일 때 K 값이 가장 낮게 나왔다.

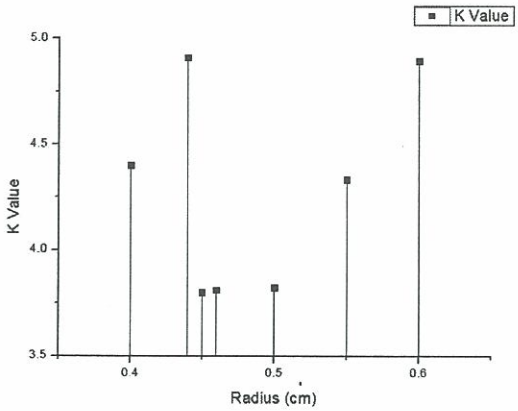


Fig. 3. K value for each radius

K값이 가장 작은 경우를 종합하여 스테인리스강으로 된 반경 0.45 cm의 다공 시준기로 모의 모사한 결과는 Fig. 4.에 나와 있다.

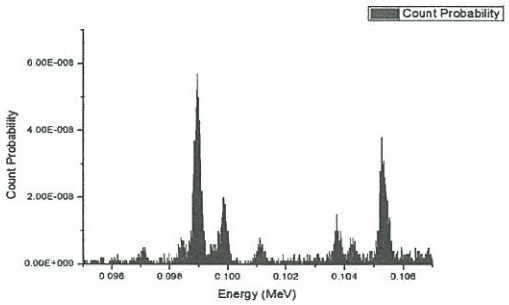


Fig. 4. Pulse height using optimized system

3. 결론

본 연구에서는 사용후핵연료 내 Pu의 $K_{\alpha 1}$ x-ray 계측을 위한 계측 시스템을 최적화 하였다. 본 연구결과를 바탕으로 Pu $K_{\alpha 1}$ x-ray(103.7 keV) 피크의 계측이 가능 할 것으로 보인다. 본 연구를 통하여 유사 핵연료주기 공정의 안전조치 및 품질관리, 품질보증 등의 기술에 적용가능하고 차세대 관리공정의 반입물질이 되는 사용후핵연료의 특수 핵물질 계량관리에 활용 될 수 있을 것으로 판단된다. 현재는 외국의 기술에 의존하고 있는 반면에 본 연구에서 최적설계 한 계측기 시스템으로 XRF를 계량 기술로 사용하면 향후 외국기술 수준에 근접할 것으로 판단된다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부 원자력기술개발사업 및 원자력인력양성 과제의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] D. Reilly, N. Ensslin, and H. Smith, Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials, United States Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC, NUREG/CR-5550, 1991.

[2] D. B. Pelowitz, et al. "MCNPX2.7A Extensions", LA-UR-08-07182, Los Alamos National Laboratory, 2008.

개량형 Cd 증류장치 제작 및 시운전

김경량, 김광락, 윤달성, 김지용, 박대엽, 김택진, 김시형, 정재후, 백승우, 심준보, 안도희
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동 150-1)
blueikr@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료 건식처리공정(pyroprocess)은 전처리공정(pretreatment), 전해환원공정(electroreduction), 전해정련공정(electrorefining), 전해제련공정(eldctrowinning)등으로 구성되어 있다[1]. 전해제련공정은 전해정련공정 이후 LiCl-KCl 용융염의 잔류하는 U, TRU 원소를 회수하는 공정이며, 액체카드뮴음극(LCC: Liquid Cadmium Cathode)를 이용하여 U, TRU를 동시에 회수함으로 파이로프로세스의 핵확산 저항성의 입증하는 핵심공정이다. 전해제련공정에서 용융염 내 잔류 U, TRU의 회수가 완료되면 LCC는 카드뮴 증류 공정으로 보내지고, 이때 회수된 actinide와 카드뮴은 증기압 차이에 의하여 분리된다[2].

본 연구에서는 기존의 카드뮴 증류장치를 이용하여 카드뮴 증류를 시행할 경우에 발생되는 카드뮴 증기가 응축조를 통과하여 장치 내부벽면에 응축되는 문제점[2]을 해결하고자 개량형 카드뮴 증류장치를 Lab-scale로 제작하고 이를 활용하여 PRIDE(PyRoprocess Intergrated inactive DEmonstration facility) 시설에 적용함과 동시에 장치의 효율성 극대화를 목적으로 장치를 개발 · 제작하였다. 개량형 카드뮴 증류장치를 이용하여 최적의 가열 조건 도출에 따른 카드뮴의 증류거동과 장치의 성능 평가를 시행할 예정이다.

2. 본론

본 연구에 사용된 개량형 카드뮴 증류장치는 Fig. 1에 나타낸 것과 같은 형태로 이루어져 있다. 개량형 카드뮴 증류장치의 내부 구조는 Fig. 2에 나타낸 것과 같이 크게 휘발부와 응축부로 구분이 되어있고 이 밖에 전기로, 냉각기, 필터, 진공펌프 등으로 구성되어 있다. 전기로는 총 5개 구역으로 나누어져 있으며 1구역에서는 1,200 ℃, 2구역은 1,000 ℃, 3구역 800 ℃, 4구역 600 ℃, 5구역 400 ℃로 가열할 수 있는 구조로 설계되었다. 압력은 0.000 ~ 10 torr까지 측정이 가능하다. chamber 내부의 온도 측정을 목적으로 총 6개의 온도 센서가 chamber 내부에 위치한다. 휘발부와 응축부의 하단에 냉각수 라인이 위치하며, 사용목적에 따라 휘발부 부분에 냉각수 유입 유·무를 조절할 수 있는 구조로 설계하였다.

카드뮴 증류 실험 시 일정한 감압조건의 유지를 목적으로 진공펌프를 설치하였으며, Lab-view 소프트웨어를 이용하여 증류장치 각 부분의 온도, 압력 값을 PC상에서 확인이 가능하도록 나타내게 하였다. 장치의 측면에 필터를 설치하여 운전상에 발생할 수 있는 카드뮴 함유 분진을 여과하는 과정을 거쳐 대기 중으로 방출하는 방식으로 위험요소를 제거하였다.

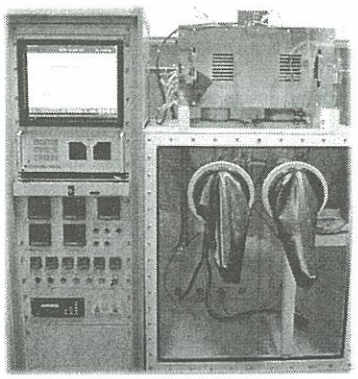


Fig. 1. Cadmium distillation equipment.

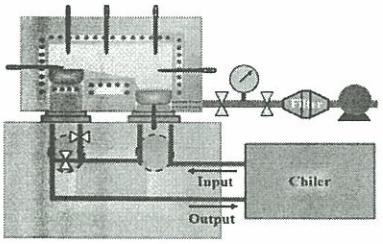


Fig. 2. Experimental for cadmium distillation.

3. 결론

본 연구에서는 기존의 카드뮴 증류 장치를 개선하여 Lab-scale 형태의 개량형 카드뮴 증류 장치를 제작하고, 이를 이용하여 장치의 전반적인 성능평가를 목적으로 시운전을 시행하였다. Fig. 3과 Fig. 4에서 보는것와 같이 각각의 blank test 결과에서는 온도제어의 경우 heater와 chamber 내부에 온도분포가 초기 의도에 부합되도록 작동하였으나, 장치의 진공 유지 부분에서는 동일한 조건에서 다소 다른 경향성을 보여 보완이 필요하다고 사료되어진다. 향후 본 장치를 보완하고 이를 이용하여 카드뮴 금속의 증발 실험 및 salt를 추가하여 증류 거동에 관련한 연구를 진행할 계획이다.

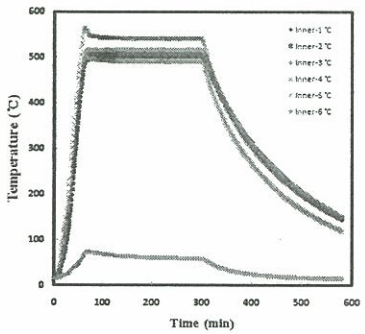


Fig. 3. Changes of inner temperature in cadmium distillation equipment.

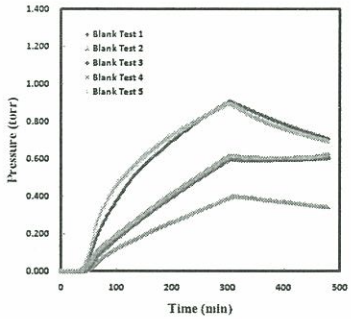


Fig. 4. Pressure changes of inner space in regard to the temperature changes.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] H. C. Eun, Y. Z. Cho, T. K. Lee, H. C. Yang, I. T. Kim, H. S. Kim, J. Radioanal Nucl. Chem., 8(2), 103-104, 2009.

[2] J. Y. Kim, S. W. Kwon, K. R. Kim, S. W. Paek, J. B. Shim, S. H. Kim, Y. J. Jung, D. H. Ahn, J. Radioanal Nucl. Chem.,7(2), 331-332, 2009.

다공성 도가니를 이용한 수지상 전착 특성 연구

윤달성, 백승우, 김택진, 김시형, 김광락, 심준보, 정재후, 안도희
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
yds0127@kaeri.re.kr

1. 서론

전해제련공정은 전해정련 공정 이후 LiCl-KCl 염에 잔류하는 우라늄과 악티나이드 원소들을 액체카드뮴음극(LCC, Liquid Cadmium Cathode)을 이용하여 회수하는 공정이다. 액체카드뮴을 사용하면, 음극 계면에서 우라늄과 악티나이드 원소들이 전착되는 전위가 매우 가까워 동시에 전착/회수 할 수 있으므로 핵확산 저항성이 큰 장점을 가지고 있다. 그러나 액체 카드뮴 음극을 이용하여 우라늄과 악티나이드 원소들을 회수 할 경우, 액체음극 계면에서 수지상 우라늄이 발생하여 음극도가니 외부로 성장한다. 이때 성장한 우라늄 수지상(uranium dendrite)이 고체음극으로 작용하여 우라늄 전착만 계속 진행되며, 다른 악티나이드 원소의 전착/회수를 방해한다. 이러한 현상의 문제를 해결하기 위해 보다 효율적인 액체음극 구조개발을 위한 연구와 실험이 활발히 진행되고 있다. 본 연구에서는 새로운 형태의 액체음극 구조를 개발하기 위해 다공성 도가니를 고안하였으며, 먼저 수용액상에서 수지상 금속의 전착특성을 알아보았다. 수용액상의 전해시험 장치에서는 우라늄과 카드뮴 대신 아연과 수은을 각각 양극과 음극재료로 사용하였으며, 또한 LiCl-KCl 용융염 대신 황산 수용액을 전해질로 사용하였다.

2. 실험 및 결과

본 연구를 위하여 제작 된 실험 장치는 Fig. 1 (a)과 같으며, 주요 구성품은 투명한 아크릴 전해조, 99.5% 순도의 아연 양극(anode), 99.9%의 수은 음극, 직경 1 mm의 백금 기준전극(reference electrode) 등이다. 음극도가니는 Fig. 1 (b)와 같이 전해질이 잘 통과하고 액체수은은 통과하지 않는 공극률이 약 30%인 다공성 마그네시아 도가니(MgO curcible ID: 3 cm)를 사용하였다.

전해질로 황산아연 1몰을 준비하였으며, 다공성 도가니에 500 g의 수은을 장입하여 황산아연 전해질과 같은 수위를 유지하였다. 전극 계면에서는 식 1의 전극반응이 일어나며, 음극계면은 다공성 도가니 옆면의 기공을 통하여 형성된다. 따라서 기존의 액체음극 계면 위로 성장하는 금속 수지상을 억제할 수 있을 것으로 기대 하였다.

$$Zn^{2+} + 2e^{-} \leftrightarrow Zn(s) \quad \cdots\cdots (1)$$

-150 mA의 일정한 전류를 인가하여 전착 시험을 수행 하였으며, 초기 전위는 -2.35 V였으며 3시간 전착하는 동안 음극 전위가 매우 안정한 것을 알 수 있었다(Fig. 2). 그러나 3시간이 지나면서 음극전위가 급격히 커지는 것을 관찰 하였는데 이는 도가니의 기공을 통하여 물질전달이 원활히 되지 않기 때문으로 생각 된다. 5시간 전착 후 액체 음극에 전착 된 수지상을 확인 한 결과, Fig. 3 (a)와 같이 다공성 도가니 외부로 수지상이 성장하는 것을 관찰 하였다. 도가니의 기공에서 생성된 금속 수지상이 액체음극 안쪽으로 들어가지 못하고 기공을 통하여 외부 통로로 성장한 것으로 생각된다. Fig. 3 (b, c)의 음극도가니 내부를 관찰한 결과, 전착 된 금속 아연의 일부는 밀도 차에 의해 액체 수은 표면에 떠 있었으며, 다공성 도가니 내부 벽면을 따라 붙어 있었다.

이와 같이 도가니의 기공을 통하여 수지상이 성장하는 것을 보완하기 위하여 공극률이 매우 작은 마그네시아 도가니(Fig. 4)를 이용하여 전해실험을 수행 하였으나 이온 교환이 활발하지 않아 Fig. 5와 같이 음극전위가 급격히 커지는 것을 확인하였다.

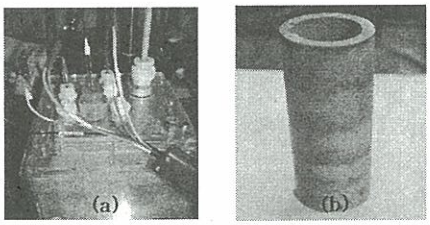


Fig. 1 . Scheme of the electrolysis cell (a) and cathode crucible (b)

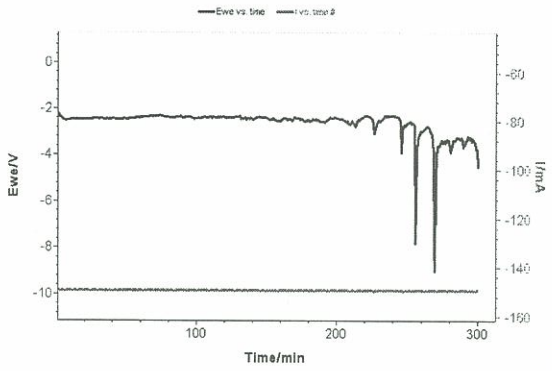


Fig. 2. Cathode potential & current curve

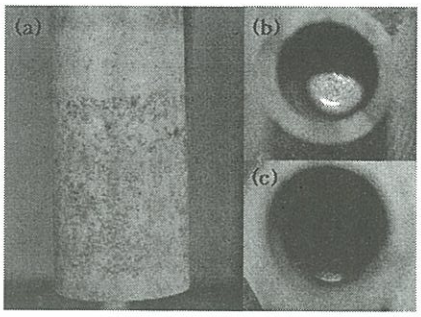


Fig. 3. Porous cathode crucible: (a) exterior sruface, (b) liquid cathode surface, (c) interior surface



Fig. 4. Porous cathode crucible : under 10% porosity

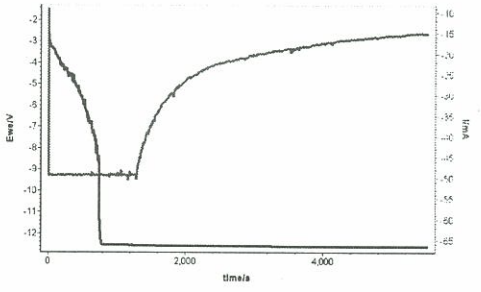


Fig. 5. Cathode potential & current curve

3. 결론

본 연구에서는 새로운 형태의 액체음극구조를 개발하기 위해 다공성 음극도가니를 선정하여 금속 수지상의 전착 특성을 알아보았다. 도가니의 기공으로 아연 이온이 통과하면서 액체음극 내부에서 수지상이 생성되어, 기존의 액체음극 계면에서 수지상이 도가니 밖으로 생성/성장하는 것을 억제할 것으로 기대하였다. 그러나 도가니의 기공을 따라 금속 수지상이 성장하여 도가니 외부로 나오는 것을 관찰 하였으며, 이때 도가니의 기공을 통해 성장한 수지상이 계속적으로 고체 음극 역할을 할 것으로 생각된다.

다공성 도가니 구조의 액체 음극을 전해 제련 공정에 적용하기 위해서는 본 연구의 기초 전착 실험 결과를 바탕으로 하여, 도가니의 공극률, 음극의 면적, 액체음극의 교반 등 다양한 연구가 앞으로 필요하다. 또한 다공성 도가니 음극구조를 전해 제련 공정에 적용 할 경우 액체 카드뮴 음극 위에 잔류하여 카드뮴 증류에 방해가 되는 LiCl-KCl 용융염을 특별한 추가 공정 없이 제거할 수 있어 카드뮴 증류 공정과의 연계 관점에서도 큰 장점을 가질 것으로 생각된다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

RAR 공정 lab-scale 장치 시험

김지용, 심준보, 박대엽, 윤달성, 김경량, 김택진, 김시형, 백승우, 안도희
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
kjy82@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력에너지는 자원문제를 해결하기 위한 친환경적인 에너지원으로 각광받고 있다. 그러나 이에 따른 부산물인 사용후핵연료의 처리문제도 함께 발생하고 있다. 이러한 문제점을 해결하기 위한 사용후핵연료 재활용기술의 하나로 검토되고 있는 파이로 프로세스는 기존의 처리기술에 비해 핵확산성이 상대적으로 높으며 경제적이라는 이유로 사용후핵연료를 환경 친화적으로 관리하기에 적합한 기술로 인식되고 있다. 파이로 프로세스의 전해제련 (electrowinning) 공정에서는 액체 카드뮴 음극 (Liquid Cadmium Cathode) 을 사용하여 전해정련 후 잔여 우라늄과 TRU를 함께 회수한다. 파이로 프로세스에서 발생하는 폐기물 내 악티늄족 원소를 최소화하기 위해서 이를 효과적으로 회수할 수 있는 RAR (Residual Actinides Recovery) 공정의 확립이 필요하다.

본 연구에서는 RAR 공정의 lab-scale 장치에서 특성 시험을 통해 RAR 공정의 조업조건에 따른 회수거동 및 예상치 못한 문제점 등을 파악하고자 하였다.

2. 본론

2.1 실험장치 및 방법

RAR 실험에 사용된 lab-scale 실험장치는 Fig.1에 나타내었다. 악티늄족 원소는 U를, RE원소는 Nd, Ce, La를 선정하고, 용융염의 농도는 각 0.2-0.4 wt%, 교반속도는 50-70 rpm, 전류밀도는 10-50 mA/cm^2 및 Mo봉과 glassy carbon 재료의 양극을 사용하였다. 산화추출 실험에서는 전해에 의해 LCC에 과량으로 동반 석출된 RE 금속을 용융염 속으로 재 용해시키기 위해 첨가하는 산화제의 양에 따른 U 잔류농도 변화를 측정하였고, 용융염 속에 넣는 $CdCl_2$의 양을 LCC에 동반 석출된 RE 총량의 50, 75, 95 %가 산화되도록 단계별로 증가시켜 RE 금속만이 선택적으로 산화추출하였다. 산화 추출된 RE 금속의 염화물 생성 변화량을 파악하고 CV 피크의 형태변화를 관찰하였다.



Fig. 1. Lab-scale RAR apparatus

2.2 결과 및 고찰

Lab-scale 장치에서 제 1차 RAR 실험을 수행하면서 몇 가지 문제점들이 파악되었다. Fig.2에서 보는 바와 같이 전해회수 단계에서 U 및 RE 3종의 대부분을 LCC에 회수된 것을 확인하였다. 그러나 전해 차수가 경과함에 따라 CV 그래프의 수평기준선이 점점 기울어져 나타났다. 이것은 용융염 속에 산소 또는 수분이 존재하기 때문이라고 생각된다. 또한 4차 전해단계 말기에 LCC 전위가 점차 증가함을 보였는데 전해 종료 후 교반기의 상부 날개에 전착물이 형성되었음을 확인하였으며, 이와 같은 현상은 알루미나로 제작된 교반날개에 전착물의 일부가 부착되어 전해과정에서 LCC와 통전되었기 때문에 일어난 것으로 판단된다. 후속단계로 이루어진 1-4차 산화추출과정에서 1차 산화 시에 검출되었던 $RECl_3$ 피크가 산화 차수가 경과함에 따라 증가하지 않고 오히려 감소되어 4차 단계에서는 모두 사라졌으며, 이는 이전 단계인 4차 전해에서 나타났던 용융염 속에 수분이 RE 염화물의 산화에 작용한 것으로 판단된다. 초기에는 없었던 수분의 증가 원인은 산화제로 첨가한 $CdCl_2$ 시약에 포함되었던 것으로 추정된다.

제 2차 RAR 실험은 선행실험 과정에서 겪었던 오류사항을 수정하여 진행하였다. 이 실험에서는

4차 산화 후에 RE 금속의 피크 이외에 U의 피크는 보이지 않았으며, RAR 공정 시험을 완료할 수 있었다.(Fig.3) 그러나 CV 그래프에서 수평기준선이 계속 기울어진 상태로 측정되었는데 이것은 실험에 사용하는 용융염 및 금속염화물의 시약을 사전에 충분히 건조 처리하는 것이 필수적임을 보여주는 결과이다. Lab-scale 장치에서 1-4차에 걸쳐 LCC 전해회수(16hr) 및 산화추출(36hr)을 진행하여 측정된 RAR 거동은 bench-scale 장치에서 얻은 결과와 유사함을 확인할 수 있었으며, 단지 규모가 확장됨에 따른 RAR 조업 시간이 약간 더 길어졌다. 한편 On-line CV 검출 결과 기중 및 용융염에서 수분 및 산소제어가 회수거동에 매우 민감함을 확인하였다. 용융염이 산화적 분위기일 때 금속염화물이 산화물로 쉽게 전환될 수 있어 이를 방지하기 위하여 사전에 확인할 수 있는 시스템의 확보가 공정 조업의 성공을 위해 필수적이다.

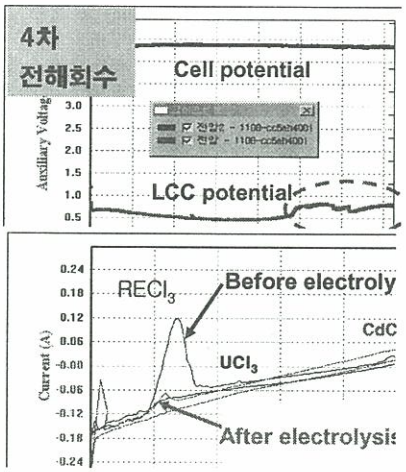


Fig. 2. (a) Monitoring of potential (b) CV result before/after electrolysis

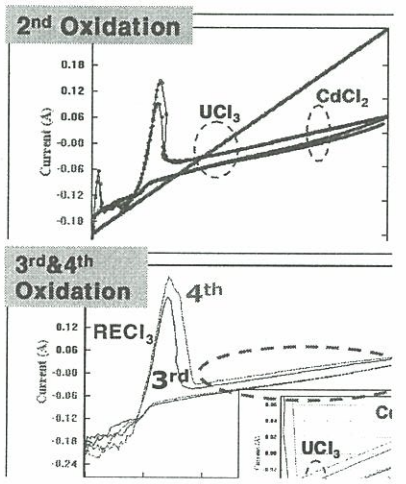


Fig. 3. (a) 2nd oxidation (b) 3rd/4th oxidation

3. 결론

RAR 공정의 Lab-scale 장치 시험 결과 소규모 장치 시험에서 얻은 RAR 거동과 유사하였다. RAR 장치의 On-line CV 검출 방법을 이용한 주기적인 모니터링 시험 결과 PRIDE 장치와 같은 규모가 확장된 시스템의 경우 Ar 분위기 및 용융염에서 수분과 산소의 농도 제어가 RAR 회수거동에 매우 민감함을 확인하였다. LiCl-KCl 공융염을 PRIDE 장치에서 대량으로 사용할 경우, 용융염 시약의 전처리 과정을 통해 승온시켜 충분히 수분을 제거하는 것이 매우 중요하다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

전해제련공정을 위한 불활성 양극 장치 개발

김택진, 박대엽, 윤달성, 심준보, 김시형, 백승우, 김광락, 정재후, 안도희
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동 150-1)
ktj@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로프로세스는 사용후핵연료를 처리하여 부피감용 뿐만 아니라 장수명 핵종의 핵변환을 통한 방사성 독성의 획기적 감소가 가능한 소듐냉각 고속로(SFR)의 연료로써 재활용이 가능하도록 하는 기술의 일련공정들이며 대표적으로 전해환원, 전해정련, 전해제련 및 염폐기물 처리공정으로 이루어져있다. 전해정련 공정의 후속 공정인 전해제련공정은 용융염 내에 잔류하는 우라늄을 포함한 플루토늄, 넵트늄, 아메리슘, 큐리움 등을 액체카드뮴음극(LCC, Liquid Cadimium Cathode)을 사용하여 회수한다. 액체카드뮴을 음극으로 사용하게 되면 악티나이드와 란탄족 원소의 전착 전위가 매우 유사하기 때문에 순수한 원소를 분리해서 회수가 불가능하므로 핵확산 저항성이 크다는 장점을 가지고 있다. 이 때 양극에서는 Cl_2 가스가 발생하게 되고 발생된 Cl_2 가스는 전해조 및 메탈로 이루어진 공정장치의 부식을 야기 할 수 있다는 위험성을 내포 하고 있다. 따라서 Cl_2 가스를 효과적으로 포집하여 장치에서 제거하는 것이 매우 중요하다. 또한, 공정 운전 중 양극이 파손 될 경우 전해조 바닥으로부터 회수가 매우 어렵다는 문제점도 가지고 있다. 이러한 문제점을 해결하여 전해제련 공정 효율성을 향상시키기 위해서 새로운 형태의 양극 장치를 개발하였다.

2. 본론

전해제련 공정운전 중 불활성 양극을 사용할 경우 부식을 야기하는 Cl_2 가스의 발생은 피할 수 없는 문제점이다. 따라서 발생된 Cl_2 가스를 효과적으로 포집하여 제거하기 위한 방안으로 Fig. 1. 과 같은 장치를 개발 하게 되었다. Fig. 1.에서 보는 바와 같이 다공성 세라믹 도가니 안에 복수의 카본 양극체를 패킹하고 다공형상의 스틸 지지체로 외면을 감싸 지지함으로써 다공성 세라믹 도가니의 파손 시 전해조 내부로 유출되지 않고 손쉽게 전해조 밖으로 회수가 가능하도록 설계하였다. 포집된 Cl_2 가스를 외부로 배출하기 위해서 스틸재질의 tube를 사용하여 전해조 밖으로 유도하는 통로를 다공형상의 스틸 지지체에 연결시켜 주었다. 또한, 복수의 카본 양극체와 전기적으로 연결시키기 위해서 상부에서 일정부분을 절연시킨 카본rod를 삽입하였다.

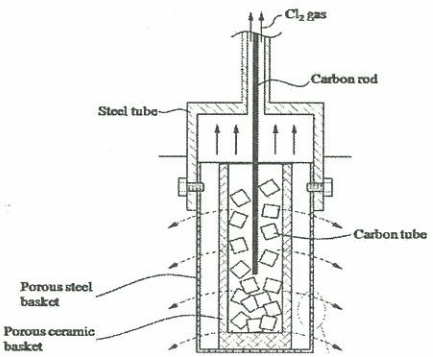
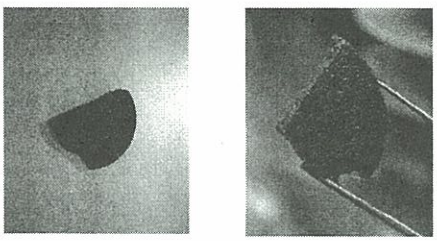


Fig. 1. Schematic diagram of a new inert anode

다공성 세라믹 도가니의 재료로써 일반적으로 많이 사용되는 마그네시아 도가니를 고려하였다. 그러나 마그네시아 도가니는 UCl_3가 존재하는 전해제련 공정 조건 하에서 사용할 경우 반응하여 용해되는 문제점이 발생하다고 보고가 되었다. 특히 Cl_2 가스가 발생하는 조건하에서는 반응이 더 잘 일어나는 것을 열역학 자료를 통해서 확인 하였다. 이러한 문제점으로 인해 다공성 세라믹 도가니로 마그네시아 재질은 적당하지 않다는 것을 확인 하였다. 대체 물질로써 SiC재질의 다공성 세라믹 도가니에 대한 전해제련 조건 하에서의 반응성 여부를 확인하기 위한 실험을 수행하였다. SiC 조각 일부를 취하여 전해제련 공정 조건과 같은 500 ℃ 의 UCl_3-LiCl-KCl 용융염에서 Cl_2 가스가 발생하는 양극쪽에 SiC 조각을 장입 한 후 8시간 동안

전기분해를 해 주었다. 그 결과 Fig. 2.에서 보는 바와 같이 SiC 조각에 변형이 일어나지 않음을 육안으로 확인 할 수 있었다.



(a) Before (b) After

Fig. 2. Test of SiC filter in UCl_3-LiCl-KCl molten salt at 773K

3. 결론

전해제련 공정 운전 중 불활성 양극을 사용할 경우 발생되는 Cl_2 가스를 효과적으로 포집할 수 있고 공정 조건 하에서도 건전성을 유지 할 수 있는 재료를 찾기 위한 실험을 수행하였다. 본 연구를 통하여 개발된 불활성 양극을 제작하여 설치하게 되면 기존에 제기 되었던 Cl_2 가스에 의한 부식 등의 문제점들을 해결할 수 있을 것이라고 기대한다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

자유낙하 방식을 이용한 염회수용 도가니로부터 회수된 염의 탈착 특성

박기민, 권상운, 최세영, 김정국
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150
kmpark1@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후 핵연료를 처리하는 파이로프로세스 중 전해정련 공정은 환원된 금속전환체로부터 순수한 우라늄을 회수함을 목적으로, 고체음극을 이용하여 전기·화학적 방법을 적용시켜 덴드라이트 형상의 우라늄 전착물을 생성한다[1]. 전해정련 공정에서 생성된 우라늄 전착물은 그 공정의 특성상 공융염을 함유하게 되며, 회수된 우라늄은 재사용할때까지 잉곳화하여 보관된다[2]. 순수한 우라늄의 잉곳화를 위해서는 우라늄 전착물에 남아있는 공융염을 제거하여야 한다. 현재 염 제거 방법에 관한 연구는 활발히 진행되고 있으며[3], 미국, 일본 등에서는 "Cathode Processor"라 불리는 진공증류탑을 공학규모 장치로 개발하여 사용하고 있다[4]. 이에 한국원자력연구원에서는 Fig. 1과 같은 수직형 염증류 실험장치를 제작하여 우라늄 전착물로부터 염을 효과적으로 증류 및 회수하는 연구를 진행 중에 있다. 또한 염의 회수부분에서 염 회수용 도가니와 회수된 염과의 탈착 및 회수에 있어 효율적인 방법연구가 병형되어 연구되고 있다. 따라서 본 연구에서는 도가니로부터 염의 효율적 탈착을 위하여 도가니의 형태, 크기, 도가니 주변의 온도의 영향에 따라 실험해 봄으로서 향후 염회수 도가니 제작의 기초 자료로 활용하고자 하였다.

2. 실험장치 및 방법

본 연구에 사용된 수직형 염증류 실험장치의 모식도는 Fig. 1에 나타내었다. 실험장치의 구성은 Load cell과 heater가 장착된 상부덮게, 염증발부(증발 도가니포함) 및 응축조가 포함된 반응기 본체, 염 회수 도가니를 넣을 수 있는 챔버로 구성되어 있다. 수직형 염증류 장치의 열원은 총 4개의 heater가 설치되어 있으며, 각각의 heater는 자연스런 열구배(slope)를 형성할 수 있도록 배치되어 있다. 도가니의 형태 및 크기의 실험은 도가니에 일정한 양의 염을 넣은 후 증발부의 온도를 약 400℃로 하여 액화시킨 후 서서히 냉각시켜 도가니와 염의 탈착 여부를 수행하였다. 또한 도가니 주변의 온도에 대한 영향은 증발부의 온도를 약 850℃로 하여 염을 증발시킨 후 챔버내의 온도를 약 40℃ 이하로 유지하여, 회수한 염과 도가니의 탈착성을 실험하였다. 모든 탈착성 실험은 Potential energy가 약 3.25 J을 가지는 높이에서 도가니를 자유낙하를 수행하였다. 반응기 내부의 온도는 대표적으로 Fig. 2에 나타내었다.

3. 결론

염회수용 도가니의 형태에 따른 탈착성 실험결과 도가니의 벽면이 수직인 형태는 3.25 J의 위치에너지를 가지는 높이에서 약 6회 자유낙하 시켰을 경우에 분리가 이루어 졌고, 도가니 바닥으로부터 상부까지 약 3°의 기울기를 가지는 형태의 도가니 경우 약 4회로 기울기를 가지는 도가니의 형태가 자유낙하 실험에서 더 유리한 결과를 보였다. 또한 동일한 기울기를 가지는 도가니 내부에 십자형태의 칸막이를 설치하였을 때 약 10회로 나타났다. 이러한 결과로 도가니의 벽면과 염의 접촉면에서 결합되는 힘 즉, 마찰력과 같은 힘의 파과율 부분에서 기울기를 가짐이 유리하고 염의 무게가 무거울수록 쉽게 분리되는 경향을 보였다. 실험결과는 Fig. 3에 수록하였다. Fig. 4은 도가니의 크기에 따른 실험결과를 보여주고 있다. 도가니의 크기에 따른 실험은 내경이 약 200 mm와 100 mm의 도가니 두 개를 각각 사용하여 실험한 결과 도가니의 내경이 클수록 염의 탈착율은 높게 나왔는데, 이는 도가니의 바닥면보다 벽면에서의 작용힘이 탈착에 주요 변수 요인임을 예측할 수 있었다. 도가니 주변의 온도에 대한 영향은 염회수 챔버의 온도가 약 50℃, 그리고 20℃에서 염을 회수한 다음 탈착실험을 수행하였을 때 온도가 낮을수록 탈착이 잘되는 경향을 보였다. 이러한 결과는 회수 챔버의 온도가 낮을수록 염회수 도가니 표면과 염의 표면에 대한 붙는 힘이 낮아짐을 보여준다. 지금까지의 결과로 볼

때 염회수 도가니는 하부와 상부의 기울기가 클수록, 내경이 클수록, 온도가 낮을수록 도가니와 염의 탈착이 용이한 것으로 나타났다.

4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 지원으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] 강영호, 황성찬, 안병길, 김응호, 유재형, J. Korean Ind. Eng. Cham. 15. 5. pp. 513-517, (2004).

[2] 이윤상, 외 "Lab. scale 우라늄 전착물 잉곳 제조 장치 제작 및 시운전 경험", 한국 방사성폐기물학회 춘계학술발표회 (2009).

[3] LILY L. WANG and TERRY C. WALLACE, SR, " Vacuum Evaporation of KCl-NaCl Salts: Part I. Thermodynamic Modeling of Vapor Pressures of solid and Liquid solutions", Metallurgical and Materials transactions B, Vol. 27B, pp. 141-146, (1996).

[4] B. R. Westphal, Distillation Modelling for a Uranium Refining Process, Report ANL/TD/CP-87031, INL, ID, USA (1996).

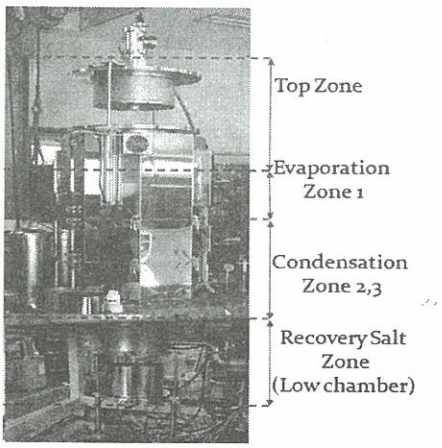


Fig. 1. Photograph of salt separation system

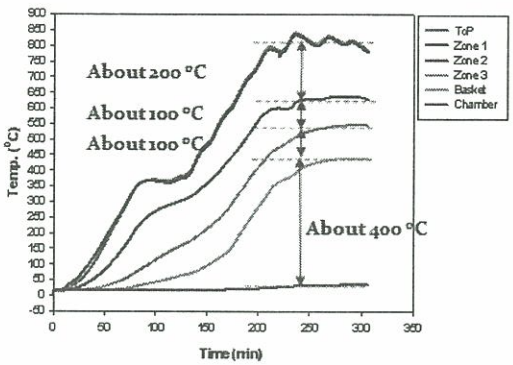
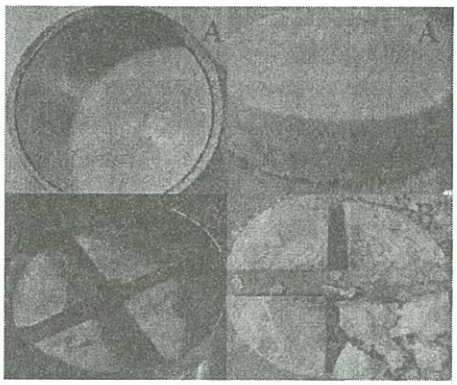
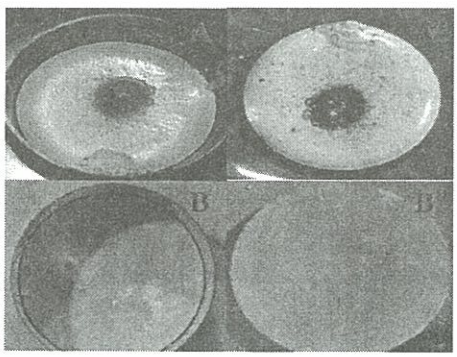


Fig. 2. Plots of temperature with time measured at different parts of separation system



A : Vertical form B : Cross form

Fig. 3. Salt separation experiments as a function of crucible shape



A : Interior diameter : 100 mm

B : Interior diameter : 200 mm

Fig. 4. Salt separation experiments as a function of crucible diameter

결정화공정을 이용한 LiCl염폐기물 처리기술

조용준, 손성모, 이태교, 은희철, 김인태, 이한수
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
jins305@kaeri.re.kr

1. 서론

사용 후 산화물 핵연료의 전해환원(electrolytic reduction) 공정은 사용 후 핵연료를 고온용융 LiCl계에서 Li_2O를 이용하여 산화물 핵연료를 금속으로 전환시킨다. 이러한 환원공정 중 사용후핵연료내 포함되어 있던 Cs 및 Sr과 같은 고방열성 1족 및 2족 핵종들은 염화물형태로 LiCl염내에 존재하게 된다. 따라서 전해환원 공정이 진행됨에 따라서 LiCl 염내에는 고방열성 핵종인 Cs 및 Sr이 축적되게 되며 이로 인한 발열로 인한 공정상의 어려움으로 인해 해 더 이상 LiCl의 사용이 불가능해지므로 계속적인 전해환원공정의 운전을 위해서는 새로운 LiCl염으로 교체를 해야 하고, 따라서 고방열성 핵종을 포함하고 있는 LiCl염이 폐기물로 발생하게 된다. LiCl 염 폐기물은 고방열성 핵종들을 포함하고 있고 물에 대한 용해도가 매우 크기 때문에 모두 안정한 형태로 고화처리 되어야 하므로 이로 이한 최종 처분대상 폐기물의 양이 크게 증가하게 된다. 따라서 LiCl 염 폐기물 내 포함되어 있는 I, II 족 고방열성 핵종을 분리한 후 분리된 고방열성 핵종만을 고화처리하고 나머지 정제된 LiCl염은 전해환원 공정에 재사용하는 방법을 사용한다면 기존의 단순한 "throw-away" 방법에 비하여 최종 처분에 대한 폐기물의 양을 획기적으로 줄일 수 있다. 따라서 본 연구에서는 경막형 용융결정화 방법을 이용하여 LiCl 염 폐기물 내 포함되어 있는 Sr, Ba을 분리하는 LiCl 염폐기물 정제에 대한 연구를 수행하였다.

2.실험장치 및 방법

본 실험에 사용한 경막결정화 장치는 크게 결정판 외부에 결정을 생성시키는 결정화로, 결정판 외부에 형성되어 있는 결정을 용융시켜 분리하는 용융로, 결정판 및 이동장치, 냉각공기 투입장치 그리고 온도변화 display계로 구성되어 있다(그림 1). 수분에 의한 공정장치의 부식을 최소화하기 위하여 수분이 20 ppm 미만으로 유지되는 glove box내에 모든 장치를 설치하였다. 결정화로와 용융로는 3개의 결정판으로 결정생성 및 결정분리 공정을 수행할 수 있으며 최대한으로 dead zone을 줄여 염분리 효율을 극대화하기 위하여 직사각형 구조로 이루어져 있다. 부식을 최소화하기 위하여 인코넬 600 재질을 이용하여 반응기를 제작하였다. 결정판에 주입되는 냉각공기 온도와 배출되는 온도를 측정하기 위하여 냉각공기투입구과 3개의 결정판 출구에 각각 TC를 설치하여 온도측정이 가능토록 하였다. 결정화공정중 온도변화는 온도신호를 data acquisition system을 이용하여 on-line으로 컴퓨터로 관찰할 수 있도록 하였다. 냉각용 공기로는 수분이 제거된 압축공기를 사용하였으며 각 결정판에 유입되는 유량을 조절하여 냉각정도 즉, 결정생성 속도를 조절하였다.

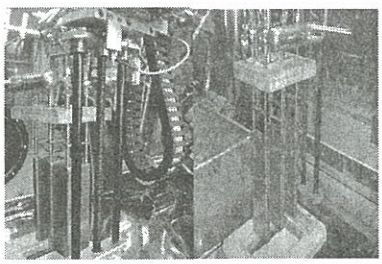


Fig. 1. 경막결정화 장치

3. 실험결과

열역학적 및 수학적 모델링을 통해 유추한 실험조건을 바탕으로 운전조건에 따른 결정생성 특성을 파악을 위한 실험을 수행하였다. 그림 2에 냉각공기 유량에 따른 결정판외벽온도 분포에 대한 모델링 결과를 나타내었는데 냉각공기 유량이 10 l/min일 경우 외벽의 온도가 605℃ 이상이 되어 결정생성 및 성장이 불가능하게 되고 냉각공기 유량이 40 l/min을 초과할 경우 결정판 외벽의 온도가 450℃ 이상이 되어 결정화의 최소온도인 500℃보다 작게 되어 순수한 LiCl결정이외에 다른

불순물 결정들이 생성되어 결정화공정을 통한 1, 2족 핵종의 분리/농축이 불가능하게 된다. 따라서 본 연구에서는 냉각공기 유량의 범위가 20~40 l/min이 적당할 것으로 예측되었다

그림 2의 모델결과를 보면 높은 핵종분리효율을 가지는 LiCl결정 생성을 위한 한계 유량은 약 30 l/min으로 나와 있으나 결정이 생성됨에 따라서 LiCl 결정에 의한 열전달 현상이 감소하여 실제 결정이 성장하는 결정계면과 용융염 사이의 온도는 모델값보다 상당히 높은 온도가 될 것으로 판단된다. 따라서 계속적인 결정성장을 위해서는 결정생성량이 적은 초기에는 낮은 유량을 사용하고 결정이 정장함에 따라서 높은 냉각공기 유량을 사용한다면 높은 결정수율과 상대적으로 우수한 핵종분리효율을 얻을 수 있게 된다. 그림 3은 2가지 결정공정 조작에 따른 결정생성 특성을 나타내었는데 그림에서 볼 수 있듯이 초기 낮은 냉각공기 증가율(0.54 l/mon)을 적용한 경우가 높은 냉각공기 증가율(6 l/min)을 적용한 경우보다 더 우월한 분리효율을 나타낸다는 것을 보여준다.

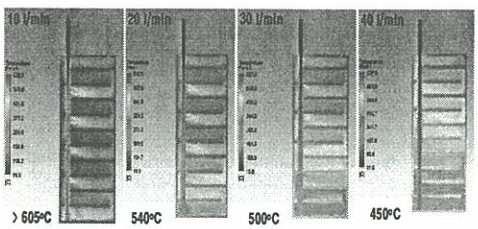


Fig. 2. CFX를 이용한 냉각공기유량에 따른 결정판 외벽온도 모델링 결과

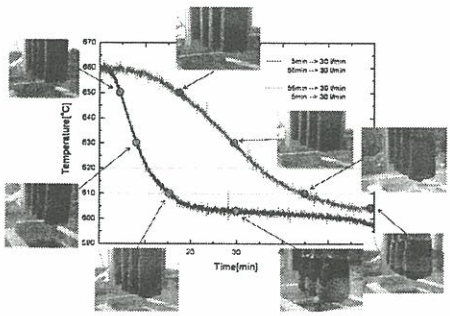
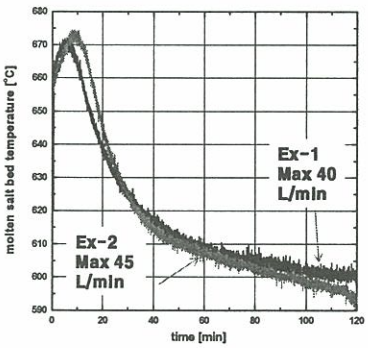


Fig. 3. 냉각공기 증가율에 따른 결정생성 특성

그림 4는 초기 결정이 생성되는 구간(60분, 0.5 l/min의 냉각공기유량 증가율, 최대 30 l/min 냉각공기유량)의 냉각조건을 동일 시 하고 이후 냉각공기 유량을 최대 40과 45 l/min으로 조업한 경우의 용융염 온도분포를 나타내었다. 그림에서 볼 수 있듯이 초기 결정 seed가 생성되는 구간에서의 온도분포는 거의 일정한 경향을 보였으나 45 l/min의 유량을 사용한 경우는 약 100분 경과 후 용융염층의 온도가 급격하게 변화하는 것을 볼 수 있는데 이는 상대적으로 강한 냉각강도로 인해 과결정이 형성되어 빠른 결정생성 flux로 인한 상대적으로 낮은 핵종분리효율을 가지게 된다.



	Flux [g/m2.sec]
Ex-1	0.02
Ex-2	0.05

Fig. 4. 조건에 따른 용융염층 온도변화 및 핵종분리효율

Determination of Plutonium Contribution to the Total Burnup of a Spent Nuclear Fuel by Mass Spectrometric Measurements of Uranium and Ruthenium

Jung Suk Kim, Young Shin Jeon, Kwang June Park, Soon Dal Park, Sun Ho Han, Yong Joon Park
Korea Atomic Energy Research Institute, 1045 Daedeok-daero, Yuseong-gu, Daejeon, 305-353, Korea,
njskim1@kaeri.re.kr

1. Introduction

In order to check the consistency of the post-irradiation analysis results, correlations between the parameters of the irradiated nuclear fuels such as the concentration of the heavy elements and fission products, ratios of their isotopes and burnup were established. These correlations can be used to identify the reactor fuels and to estimate the burnup and Pu production. A new approach was carried out with Ru isotopic ratio($^{101}Ru/^{104}Ru$) for the determination of Pu contribution to the total burnup of a spent nuclear fuel from a power reactor. The principle of this approach was based on the use of the difference in the fission yield ratios of the Ru fission products involved for the three main fissionable nuclides such as ^{235}U, ^{239}Pu, and ^{241}Pu.

In this work, to determine the contribution of Pu to the total burnup of the fuel, the following two independent methods have been applied: 1) by measuring the isotope ratios of the stable Ru fission products $^{101}Ru/^{104}Ru$, and 2) by determining the total burnup by Nd-148 method[1] and substracting partial(^{235}U) burnup[2,3], which is determined from the measured values of U isotope ratios.

2. Methods and Results

2.1 Fuel Dissolution and Sample Preparation

A spent fuel sample weighed exactly was placed in a dissolution flask of dissolution apparatus in hot cell. The fuel sample was refluxed for more than 16 hours in HNO_3(1+1) without a catalyst. This fuel solution was weighed and an aliquot was diluted with the HNO_3(1+1) with the aid of ORIGEN calculation for the estimation of nuclides content in the spent nuclear fuel.

2.2 Separation Procedure

Chemical separation of U, Pu and Nd for burnup determination was carried out for both of the unspiked and the spiked(^{233}U, ^{242}Pu and ^{150}Nd) sample solutions under the same experimental conditions in glove box without heavy shieldings[2]. The procedure using a distillation method, which is based on the volatility of RuO_4 was carried out in this work in order to separate Ru from the fuel solution[4]. The pure separation of Ru is identified by a series of preliminary experiments with the prepared solution, followed by chemical analysis of the ICP-AES and EPMA.

2.3 Determination of Isotopic Composition

The U, Pu and Nd fractions collected from the spiked and unspiked fuel samples. The Ru fraction in absorbtion solution were prepared for mass spectrometric determination. The isotopic compositions of U, Pu, Nd and Ru fractions were determined by using a mass spectrometer of the Finnigan MAT 262 type, respectively(Table 1).

2.4 Determination of Pu Contribution by Ru Isotope Method

Assuming that the total burnup of the fuel is the sum of partial contributions due to U and Pu, $F_U+F_{Pu}=100$,

$$R_{ij} = \frac{F_U Y^i_U + F_{Pu} Y^i_{Pu}}{F_U Y^j_U + F_{Pu} Y^j_{Pu}} \quad \cdots\cdots (1)$$

We finally obtain the following equation for Pu contribution, F_{Pu}, to the total burnup:

$$F_{Pu} = \frac{(R_{ij}\ Y^j_U - Y^i_U) \times 100}{Y^i_{Pu} - Y^i_U - R_{ij}(Y^j_{Pu} - Y^j_U)} \quad \cdots\cdots (2)$$

Where R_{ij} : atom ratio of ^{101}Ru to ^{104}Ru in the spent fuel sample

Y^i_U and Y^j_U : thermal fission yield of ^{101}Ru and ^{104}Ru for ^{235}U, respectively

Y^i_{Pu} and Y^j_{Pu} : weighted average thermal fission yield of ^{101}Ru and ^{104}Ru for ^{239}Pu and ^{241}Pu, respectively

Y values are calculated from the equation in reference[4] with the chemical analysis results for fissionable isotopes and their nuclear data[5]. The fission yields of Ru isotopes by thermal neutron used for calculation are shown in Table 2. Based on this equation(2), the calculated value of Pu contribution(%), F_{Pu} are presented in Table 3. In this case, it is ignored that the Pu contribution by the fast fission of ^{238}U.

Table 1. Isotopic Compositions of the Ru separated from a spent nuclear fuel sample

	Atom%					
	^{99}Ru	^{100}Ru	^{101}Ru	^{102}Ru	^{104}Ru	^{106}Ru
E*	0.312	9.939	32.45	33.91	23.39	-
C+	0.002	7.027	33.15	35.10	24.30	0.418

*measured experimentally by chemical method
+calculated by ORIGEN-ARP code for rod average

Table 2. Fission yield(%) of Ru Isotopes by thermal neutron(t)

Isotope	^{235}U(t)	^{239}Pu(t)	^{241}Pu(t)	W.A.F.Y*
^{101}Ru	5.1729	6.0192	6.2319	6.0792
^{104}Ru	1.8808	6.0948	7.1795	6.4006

*weighted average fission yield for ^{239}Pu and ^{241}Pu

2.5 Determination of Pu contribution by burnup difference method

Table 2 shows the Pu contribution(%) value by the burnup difference method, that is, {[(total burnup-^{235}U burnup)/total burnup] x100}. The total burnup of the fuel sample, F_t was determined from the analysis of ^{148}Nd, U and Pu(Nd-148 method) by the following equation:

$$F_t = \frac{N/Y}{N/Y+N(U)+N(Pu)} \times 100 \quad \cdots\cdots (3)$$

Where F_t : total burnup in atom% fission

N : number of atoms of the monitor Nd isotope in the spent fuel solution,

Y : effective fission yield of the monitor Nd isotope from the fissile elements,

N(U), N(Pu) : number of U and Pu atoms in the spent fuel solution, respectively

For the calculation of U contribution to the total burnup of the fuel sample, the fractional burnup due to a fission of ^{235}U, F_5 was calculated by the equation shown in references[2,3].

The results obtained by the Ru isotope ratio and the burnup difference method for determination of Pu contribution to the total burnup, are in a good agreement, within a deviation of 4.41%(Table 3).

Table 3. Determination of Pu contribution to the total burnup of a spent nuclear fuel

No. of Fissions per g-fuel	Total Burnup (GWD/MtU)	Pu Contribution(%)	
		Ru Isotope Ratio	Burnup Difference
1.330×10^{20}	57.5±0.2	47.83	45.72

3. Conclusions

The U and Ru isotope patterns provide information on the real irradiation characteristics which are necessary for evaluating a fuel's performance in a reactor. A comparison of the Pu contribution values determined independently provides a promising way to check on the validity of the results.

4. References

[1] Annual Book of ASTM Standards, 12.02, E321-96(Reapproved 2005), 2005.

[2] J. S. Kim et al., Journal of Nuclear Science and Technology, Vol.44, No.7, pp.1015-1023, 2007.

[3] J. S. Kim et al., Nuclear Engineering and Technology, Vol.38, No.3, pp.301-310, 2006.

[4] J. S. Kim et al., Abstracts of Proceedings of the Korean Radioactive Waste Society Autumn 2009, pp.178-179, 2009.

[5] T. R. England and B. F. Rider, Evaluation and Compilation of Fission Product Yields 1993, LA-UR-94-3106, 1994.

UCl_3 제조 반응시 염소공급관의 열적 특성 연구

우문식, 강희석, 최세영, 김정국, 이한수
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
mswoo@kaeri.re.kr

1. 서론

LiCl-KCl 용융염계에서 전기화학적 방법인 우라늄 전해정련시 전극 간 전위안정화 및 순수한 우라늄금속을 전착시키기 위하여 삼염화 우라늄(UCl_3)이 전해정련조의 LiCl-KCl salt 무게의 9wt%정도가 필요하다. UCl_3을 제조하기 위하여 아래 반응식처럼 1차적으로 카드뮴(Cd) 금속을 염소가스(Cl_2)와 반응시켜 이염화 카드뮴($CdCl_2$)를 제조하고, 제조된 CdCl2를 우라늄금속과 반응시켜 UCl_3을 제조한다.[1] 이 두 반응은 하나의 반응기내에서 동시에 일어나며, 발생되는 카드뮴 금속은 비중차에 의해 반응기 하단으로 이동하여 다시 염소화반응을 거치게 된다. 이때 내부 온도가 600℃인 반응기에서 염소화 반응을 위한 염소가스를 카드뮴 층에 공급하기 위하여 스테인레스 스틸(STS) 공급관을 사용하였다. 그 결과 염소 공급시 공급관의 부식과 막힘 현상이 자주 발생하였고 부식에 대한 문제점을 해결하기 위하여 외경 3mm인 Quartz 튜브를 사용하였다. 공급관의 막힘 현상은 공급되는 염소의 온도가 salt의 용융점이하일 때 공급관 노즐 끝단에서 salt가 응고되어 일어날 수 있다. 그리고 염소화 반응시 반응기의 위치에 따른 온도구배가 있어 염소 공급관의 설치 위치에 따른 염소가스의 가열 온도 차이가 있을 수 있다. 본 연구는 제작된 반응기 위치에 따른 염소 공급관 노즐 끝단에서의 가열된 염소의 온도를 비교하여 노즐의 막힘현상에 대한 열적 특성을 검토하였다.

- 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. 반응기는 내경이 80mm이고 높이는 250mm이고 반응기 내부 하단은 원추형으로 제작되어 용융된 카드뮴이 반응기 중앙하부로 모이도록 하였다.

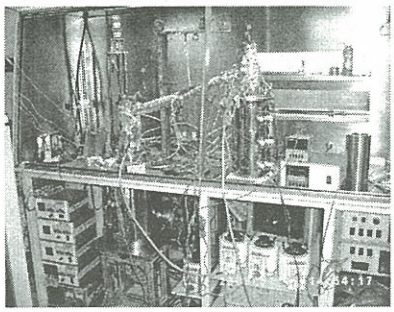


Fig. 1. UCl_3 production equipments

시약은 Cd 금속 및 LiCl-KCl salt 그리고 우라늄 금속를 각각 787g, 537g, 1,300g를 주입하여 600℃에서 제조하였다. 반응기 중앙에 위치하는 염소 공급관은 내경7mm, 길이 550mm인 STS관과 1/4 인치 STS관 내부에 외경 3mm인 Quartz 관을 삽입하여 사용하였다. 염소가스 공급속도는 기체유량계를 사용하여 300~400ml/min으로 공급하였다. 그리고 UCl_3 제조 반응시 반응기 중앙과 벽쪽의 위치별 온도를 열전대를 이용하여 측정하였고, 제조된 UCl3 salt의 열적 특성을 파악하기 위하여 TG-DTA를 측정하였다.

2.2 실험 결과

염소 공급관으로 염소가스를 반응기 중앙으로 공급하며 염소화 반응을 수행한 결과 반응 시작 후 약 30분후에는 공급관 내부가 salt로 막혀 염소가스를 공급할 수 없었다. 그러나 공급관을 반응기 벽으로부터 1cm 떨어진 곳에 설치하여 염소화 반응을 수행한 결과 막힘 현상이 없었다. 이유는 염소공급관의 위치에 따른 온도를 측정한 결과 그림 2와 같고, 그림에서 벽쪽에 염소 공급관의 온도가 중앙부분 보다 온도가 높아 염소가스의 온도가 높게 가열 된 것으로 생각된다.

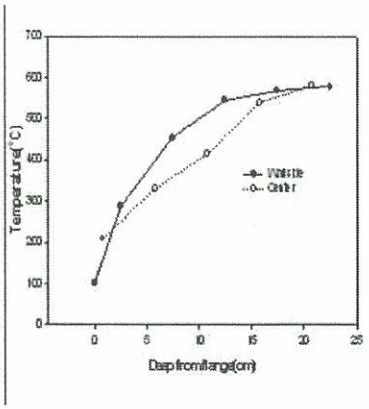


Fig. 2. Temperature with deep from flange

그리고 제조된 LiCl-KCl-UCl3 salt의 TG-DTA 열분석 결과 그림 3과 같이 530℃에서 salt용융이 완결됨을 확인 하였다. 따라서 염소공급관 노즐의 끝단에서 염소의 온도가 최소한 530℃를 유지하도록 가열할 필요가 있다.

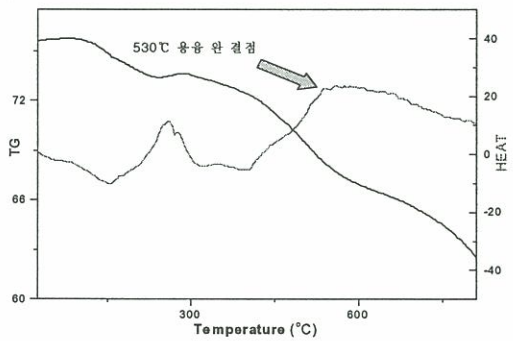


Fig. 3. LiCl-KCl-UCl_3 TG-DTA (400~530℃)

3. 결론

UCl_3 제조를 위한 염소반응시 염소 공급관은 Quartz을 사용하고 공급되는 염소가스의 온도를 530℃ 이상으로 가열함으로서 공급관의 막힘 현상과 공급관의 부식 문제점을 해결할 수 있었다. 그러나 염소공급관의 파손을 방지하기 위하여 외부보호관으로 사용하는 STS관의 부식방지를 위한 방안을 모색할 필요가 있음을 확인하였다.

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 과 삼염화우라늄 공융염의 액상 이송 및 펠렛 제조 경험

강희석, 우문식, 최세영, 김정국, 이한수
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
hskang1@kaeri.re.kr

1. 서론

원자로 운전 후 사용후핵연료의 93% 정도를 차지하고 있는 다량의 U 및 TRU 금속의 회수를 위한 여러 방법 중 한국원자력연구원이 채택한 건식의 고온용융염 전해정련 조에서 사용되는 전해액은 고온에서 액상으로 유지되는 LiCl-KCl 용융염이다. 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. 초기 salt 용액 내 우라늄 이온의 공급을 위해 한국원자력연구원에서는 고가의 $CdCl_2$를 대신하여 상대적으로 저렴한 Cd의 염소화반응을 거쳐 제조된 $CdCl_2$를 산화제로 사용하여 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 분리시켜야하는 어려움이 있었다. 따라서 LiCl-KCl-UCl_3 용융염의 제조반응 직후 용융온도에서 펠렛 제조 장치까지 액체 상태로 이송한 다음 펠렛 제조 장치에서 미리 크기와 모양이 정해진 몰드를 이용하여 냉각 후 펠렛 형태로 고화시킬 필요성이 있었다. 본 연구에서는 LiCl-KCl-UCl_3 용융염 제조반응 후 용융온도에서의 용융염의 이송 및 펠렛 제조실험의 경험을 정리하였다.

2. 내용 및 결과

2.1 LiCl-KCl-UCl_3 제조 반응

상용의 UCl_3 또는 LiCl-KCl-UCl_3 용융염의 확보가 곤란하므로 직접 제조해야만 하였다. 한국원자력연구원에서는 여러 가지 LiCl-KCl-UCl_3 용융염 제조 방법 중 우라늄 금속과 $CdCl_2$ 산화제를 반응시켜 얻는 방법으로서

$$2U + 3CdCl_2 \rightleftharpoons 2UCl_3 + 3Cd \quad \cdots\cdots (1)$$

의 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 경제성에 문제가 있으며, UCl_3를 제조하기 위해 사용된 산화제($CdCl_2$)의 반응 후 잔유물로 남는 Cd 금속은 방사능 물질에 오염된 폐기물로 남게 되는 문제점이 있기 때문에

$$Cd + Cl_2(g) \rightleftharpoons CdCl_2 \quad \cdots\cdots (2)$$

의 반응을 이용하여 상대적으로 저렴한 Cd의 염소화반응을 거쳐 제조된 $CdCl_2$를 산화제로 사용하는 제조장치를 제작하여 LiCl-KCl-UCl_3 용융염의 제조실험을 수행하였다.

2.2 용융염 이송 및 펠렛제조장치

LiCl-KCl-UCl_3 용융염의 제조반응 직후 LiCl-KCl-UCl_3 용융염 이송 및 펠렛 제조실험을 위해 그림 1과 같은 개념의 실험장치를 제작하였다. 장치의 구조는 그림에 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 450℃ 이상의 고온에서 수행되는 점을 고려하여 장치의 내부는 모두 내부식성을 갖는 스테인레스 스틸(STS-316L) 재질을 사용하였다. 이송관의 외부는 450℃ 이상의 고온을 유지하기 위해 반응기 및 펠렛제조장치 내부로 삽입되는 부분은 튜브히터로, 외부로 노출되는 부분은 처음부터 끝부분까지 히터로 감아서 제작하였다. 용융염 펠렛 제조장치 내부는 그림 2(a)에서 나타낸 바와 같이 펠렛 제조용 몰드를 설치하였다. 몰드의 재질은 STS316, OD 90㎜, T 3㎜, H 250㎜의 크기로 제작하였으며, 그림 2(b)에서 보인 바와 같이 몰드 내부는 펠렛의 제조 크기를 조절하

기 위한 격벽(STS316)을 설치하였다. 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 열전대 및 온도조절기를 설치하였다. 한국원자력연구원에서의 감압식에 의한 이전 경험[1]에 의해 ⑦번 위치의 고온 밸브는 고온의 용융염에 노출시 조작성과 내구성에 많은 문제가 발생하여 밸브가 없는 유니온으로 대체하였으며, 감압식에 비해 이송 장치가 좀 더 단순한 가압식에 의한 용융염 이송을 추구하였다.

2.3 $LiCl-KCl-UCl_3$ 용융염 이송 및 펠렛 제조

제작된 용융염 이송 및 펠렛 제조장치를 $LiCl-KCl-UCl_3$ 용융염 제조장치에 연결하고 용융염의 이송 및 펠렛 제조실험을 수행하였다. 이 실험은 고온에서 용융 및 용기 내 압력 조절에 의해 액체상태의 용융염을 고온에서 이송해야 하므로 실험장치 중 이송관의 주요 부분은 그림 1과 같이 열전대를 설치하여 실험 수행 내내 이송관의 온도를 감시 및 조절하였다. 실험조건은 $LiCl-KCl-UCl_3$ 용융염 제조반응기 내부를 용융염 제조 온도인 600℃로 유지하고 이송관의 내부 및 외부의 온도보정 실험을 수행하였다. 펠렛 제조장치 내부는 90℃로 유지하여 용융염 이송 후 고화시 펠렛제조 몰드로부터 $LiCl-KCl-UCl_3$ 염의 탈착이 용이할 수 있도록 하였으며[1], UCl_3 제조반응기에 알곤 가스를 3~5bar로 가압하여 용융염의 이송실험을 수행하였다. $LiCl-KCl-UCl_3$ 용융염의 이송이 확인된 후 펠렛 제조장치 내부의 온도를 상온으로 냉각시킨 다음 그림 3(a),(b)와 같은 용융염 펠렛의 제조결과를 확인할 수 있었다. 작업자의 안전을 고려한 LiCl-KCl 용융염의 이송 실험을 수행하였고, 그 경험을 바탕으로 $LiCl-KCl-UCl_3$ 용융염 이송실험도 수행하였다. 위 실험결과에 기초하여 펠렛제조장치에서 격벽의 형태만 변경시킨다면 원하는 모양의 원하는 크기로 이송 후 펠렛 제조가 가능함을 확인하였다. 또한 가압식에 의한 용융염 이송 경험은 이전의 한국원자력연구원에서 감압식 이송장치로 경험한 장치의 복잡성으로 결과되는 여러 부위에서의 문제점들을 줄일 수 있었으며, 이송관을 모듈화함으로서 이송관에서의 문제 발생 시 신속한 대체가 가능하여 이송실험 중 발생하는 여러 문제들에 대하여 신속하게 대처할 수 있음을 확인하였다.

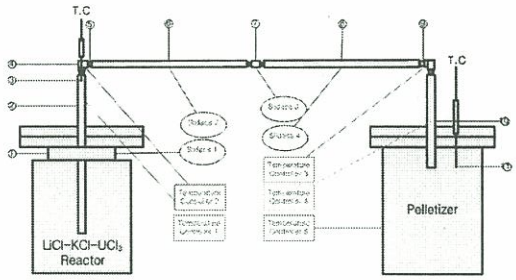
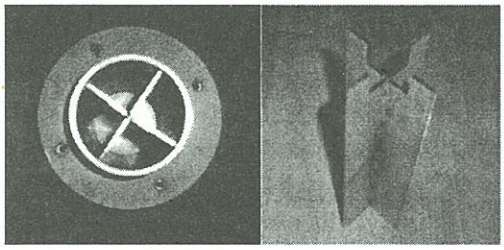
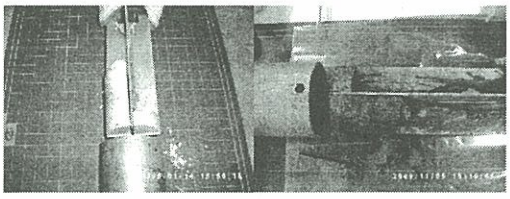


Fig. 1. Schematic diagram of $LiCl-KCl-UCl_3$ molten salt transfer and pelletizer



(a) (b)

Fig. 2. $LiCl-KCl-UCl_3$ eutectic salt (a)pelletizing mold and (b)partition



(a) (b)

Fig. 3. Transferred pellets of (a)LiCl-KCl and (b)$LiCl-KCl-UCl_3$ eutectic molten salt

3. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

4. 참고문헌

[1] 서중석 외 "사용후핵연료 차세대관리공정 개발", KAERI/RR-2773/2006 (2006)

조사표적용 Mo-99 target 제조공정 개발

심문수, 김창규*, 지철구*, 이종현
충남대학교 녹색에너지기술전문대학원, 대전광역시 유성구 궁동 220
*한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
sunbie1@naver.com

1. 서론

Mo-99은 Tc-99m의 모원소이며, 주로 방사성동위원소 U-235의 핵분열생성물에서 추출하여 제작한다[1]. Tc-99m은 방사성동위원소 관련 의약품 중에서 가장 많이 쓰이는 데, 암 진단 및 치료가 주목적이다. 간이나 폐, 심장진단에 사용되며 특히 암의 영상진단에 유효하다. 따라서 소위 핵의학 분야에서 80%의 활용률을 차지한다. Tc-99m은 생산체계의 불안요소 때문에 꾸준한 수요증가에도, 공급에 차질을 빚고 있는 실정이다. 이는 기존의 주요 공급처인 NRU, HFR연구로의 노후화로 인해 Tc-99m의 생산이 중단되는 경우가 발생했기 때문이다.

또한 2004년 이후, 미국을 중심으로한 RERTR 프로그램의 일환으로 Mo-99제조원료를 고농축우라늄(이하 HEU)에서 저농축우라늄(이하 LEU)으로의 전환을 추진하고 있다[2]. 미국 ANL은 고농축 U합금 또는 산화물 대신, 순수 저농축 U금속 박판을 사용하여 Mo-99을 추출하는 Cintichem process를 개발하였다[3]. 그러나 Cintichem process는 열간압연과 열처리의 반복을 통해 LEU금속 박판을 제조하기 때문에 생산성과 경제성이 떨어지고, 따라서 상용화하기에 다소 거리가 있다[4].

위의 문제점을 해결하기 위해, KAERI에서는 Roll주조법으로 Mo-99조사표적의 제작을 개발하였다. Roll주조법은 U용탕을 고속으로 회전하는 Roll표면에 낙하시켜 급속응고를 통해 직접 박판을 생산한다. 그러므로 기존공정의 열간압연 및 다수의 열처리과정 등을 생략할 수 있다. 생산성이 높고 저렴한 가격으로 박판의 공급이 가능하기 때문에 상용화기술로도 적합하다.

2. 본론

2.1 박판주조장비 제작

KAERI에서는 기존장치보다 수율이 높은 새로운 박판제조장치 개발을 2008년부터 시작하였다. 모의재료인 Cu로 박판을 제조하고, 2010년에 KAERI로 장치를 이전하여 실제 U박판제조실험을 수행한 결과 많은 요구사항이 반영되어 장비개선이 이루어졌다.

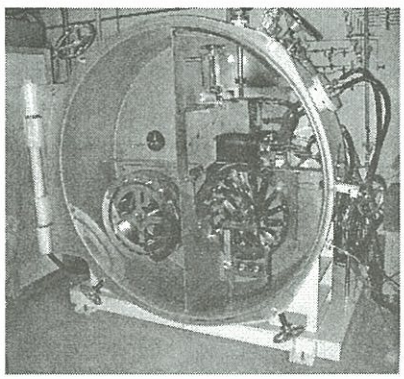


Fig. 1. New Equipment to manufacture the U foil

2.2 박판제조실험 수행결과

2010년 장비가 제작업체에서 KAERI로 인도되어, DU를 사용하여 박판주조실험을 20차례 이상 수행하였고, 박판을 제조하는데 성공하였다. Roll주조로 만든 박판은 wheel-side표면은 대체로 양호하였으나, air-side표면은 매우 거칠었다. 이러한 두께 불균일 현상은 target제조시 몇몇 문제점을 야기할 수 있다.

공정의 주요변수중 하나인 main wheel의 회전속도를 고속으로 했을 때, 박판의 거동이 불안하여 감기지 않는 문제를 개선하였다.

3. 결론

main wheel의 재질을 열전도성이 낮은 재료를 사용하였을 때는 용탕이 뭉치거나, 쪼개지는 현상을 발견할 수 있었다. main wheel의 재질은 열전도성이 좋은 Cu가 적합하다고 판단된다. 용탕의 낙하 위치를 좌측에서 반대방향으로 하는 것이

박판제조에 용이했다. 2nd roll은 부하가 많이 걸리고 박판의 상부에 충분한 압력을 가하지 못하였다. 2nd roll을 제거한 후 건전한 박판을 얻을 수 있었다. 새로운 박판주조장비는 박판의 연성을 향상시키고, 용탕의 공급을 원활히 하여 박판 수율을 높이는 결과를 가져왔다. 또한 권선기의 제작을 통해서 박판의 연속주조와 건전한 회수를 가능하게 하였다.

4. 참고문헌

[1] Chris Whipple et al, "Medical Isotope Production without Highly enrichment Uranium", The national Academies Press 500 Fifth street.

[2] DOE. 1996b. "Medical Isotopes Production Protect:Molybdenum-99 and Related Isotopes", Record of Decision, September 1996. Medical isotope EIS.

[3] Vandegrift, G. 2005 "Facts and Myths Concerning ^{99}Mo Product ion with HEU and LEU Targets", Boston, MA, November6-10.

[4] K. H. Kim, et al. "Development of the Fabrication Technology of Wide Uranium Foils for Mo-99 Irradiation Target by Cooling-roll Casting Method" Presentation at the 2004 International RERTR Meeting, Vienna, Austria, November 7-12.

핵물질 측정을 위한 LIBS 실험의 최적화 조건 분석

김연실, 한보영, 정정환, 신희성, 김호동
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
ysk01@kaeri.re.kr

1. 서론

LIBS(Laser Induced Plasma Spectroscopy)는 고출력 레이저를 시료 표면에 조사하고, 이로 인해 국소적인 표면에서 생성되는 플라즈마를 집광하여 시료의 성분을 정성적, 정량적으로 분석하는 기술이다. 이것은 짧은 분석 시간이 소요되며, 실시간으로 측정이 가능하며 원격으로 처리가 가능하기 때문에 방사선 환경에서 사용이 가능한 장점이 있다[1]. 본 연구는 현재 핵물질 측정을 위한 목적으로 실험 시 발생할 수 있는 실험의 오차를 최소화 하고자 본 실험에 들어가기 전 필요한 실험의 최적화를 위한 조건을 분석하고 있는 과정이며, 본 연구에서는 여러 가지 조건들 중, 샘플과 플라즈마의 집광렌즈(L2) 사이의 각도, 샘플과 렌즈(L1)사의의 거리(d2) 에 따른 발광 신호[2]를 측정하여 이들이 실험에 미치는 영향을 확인하였다.

2. 본론

2.1 실험 조건

실험을 위해 1064 nm의 Nd;YAg 레이저를 사용하였다. 레이저의 펄스폭은 6-8 ns이며, 반복률은 20 Hz이다. 25 mJ의 레이저 펄스 에너지를 사용하였으며, 포커싱 길이가 100 mm인 렌즈(L1)로 레이저빔을 집광시켰다. 레이저와 렌즈(L1) 사이 거리(d1)은 100 mm, 샘플과 집광렌즈(L2) 사이의 거리는 렌즈의 포커싱길이인 75 mm로 고정하였다. 사용한 표준 시료인 BAS(Bureau of Analysed Sample) 463의 성분은 표 1과 같다.

Table 1. Composition of BAS 463

C(%)	Si(%)	Mn(%)	P(%)	S(%)	Cr(%)	Ni(%)
0.088	0.51	0.77	0.015	0.017	18.30	9.65

그림 1은 LIBS 실험을 위한 구상도이다. 아래와 같이 파이버로 연결된 렌즈(L2 & L3)를 통해 생성된 플라즈마를 집광하였다. 이러한 시그널은 분해능($\lambda/\triangle\lambda$)이 20000(FWHM)인 ESAWIN 4000 모델의 분광기를 통해 분석된다. 검출영역은 190 nm부터 420 nm 이며, 이를 위해 Gate Width는 4 μs 와, Gate delay를 1 μs 로 지정해 주었다.

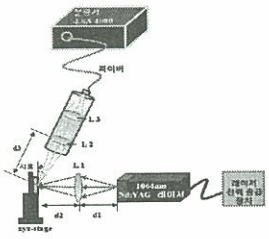


Fig. 1. Schematic diagram of LIBS experiment

첫 번째 실험은 각도(θ)에 따른 시그널의 변화를 보는 실험으로써 그림 1과 같이 d2 를 117 mm 로 고정하고, 샘플과 집광렌즈 사이의 각도(θ)를 10~60 °까지 10 ° 간격으로 변화시켜 주면서 시그널에 주는 영향을 확인해 보았다.

두 번째 실험은 첫번째 실험에서 최적화된 각도를 고정하고, d2 를 렌즈의 포커싱 길이인 100 mm를 기준으로 83 mm부터 147 mm 까지 변화시켜 주었을 때 나타나는 시그널의 크기를 비교하였다.

2.2 결과 및 분석

2.2.1 각도의 크기에 따른 시그널 비교

그림 2는 샘플과 집광렌즈 사이의 각도를 변화시켜 주었을 때, 샘플에 포함되어 있는 성분들을 나타낸 스펙트럼이다. 이론적으로는 샘플과 집광렌즈 사이의 거리가 렌즈의 포커싱 거리와 같다면, 이들이 이루는 각도와 무관하게 시그널의 크기는 일정해야 한다. 하지만 그림 2와 같이 각도에 따라 시그널의 차이가 나타났다.

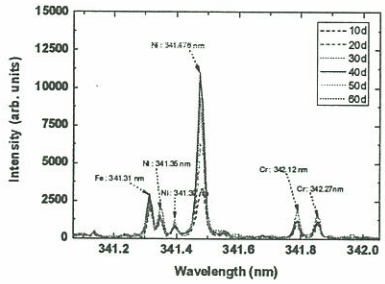


Fig. 2. Emission spectrum of Ni measured from the region of wavelength for each degree between sample and collecting lens(L2)

같은 각도로 각각 5번씩 실험을 반복하였으며, 그림 3과 같이 Ni의 형광밴드인 341.476 nm에서의 시그널의 크기를 이용하여 실험적인 상대오차를 통해 신뢰구간을 얻었다.

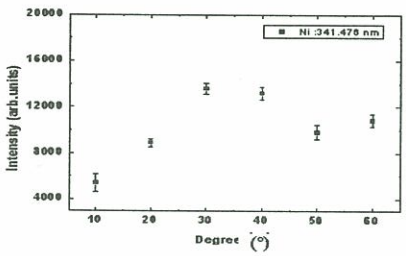


Fig. 3. Signal intensity with Standard deviation versus degree for six degree cases

6각도가 0° 에서 30° 까지는 샘플 홀더에 의해 집광렌즈에 도달하는 플라즈마의 양이 적어 측정되지 않거나 다른 각도에 비해 상대적으로 작은 시그널이 측정된 것을 확인할 수 있다. 30° 에서 40° 까지 시그널이 가장 잘 측정 되었으며, 이것의 상대오차는 각각 3.5 %, 4.1 % 로 신뢰할 만한 결과이다. 그리고 50° 에서 60° 의 시그널이 작아지는 것은, 각도가 커지면서 사방으로 방사되는 플라즈마를 집광할 때에 사용하는 렌즈(L2)와 레이저빔을 집광하는 렌즈(L1)에 의해 일부가 차단되어 감소했을 것으로 예측된다.

2.2.2 d2의 거리에 따른 시그널 비교

샘플과 집광렌즈(L2) 사이의 각도를 첫번째 실험에서 시그널이 가장 잘 측정된 40° 로 고정하고, d2 를 변화시켜 주었을 때, 측정되는 시그널의 크기를 비교하였다.

그림 4와 같이 d2 가 렌즈의 포커싱 길이에 비해 짧거나 길어질수록 시그널의 크기가 감소함을 확인 할 수 있었다. 그리고 L1의 포커싱 길이인 100 mm을 중심으로 4 mm 안팎으로 초점이탈 한 경우 최적의 시그널을 측정할 있었다.

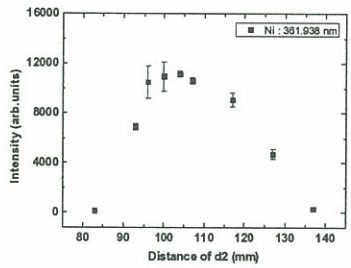


Fig. 4. Signal intensity with Standard deviation versus distance of d2 for nine distance cases

3. 결론

핵물질 측정을 위한 LIBS 실험의 최적화 조건 중 샘플과 플라즈마를 집광하는 렌즈(L2)사이의 각도와, 렌즈(L1)과 샘플 사이의 거리(d2)를 측정하였다. 그 결과 각도가 40° 일 때, d2 가 렌즈의 포커싱 길이를 중심으로 약 4mm 가감된 위치에서 가장 큰 시그널을 측정 할 수 있었다. 향후 플라즈마 발광 신호의 오차에 영향을 줄 수 있는 분위기, 샘플 표면 효과, 광섬유케이블, 압력 및 볼쯔만 온도 등의 특성분석을 할 계획이다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] Handbook of laser-induced breakdown spectroscopy, David A.Cremers and Leon J.Radziemski, John Wiley &Sons,Ltd, p.171-194.

[2] The effects of sampling geometry on elemental emissions in laser-induced breakdown spectroscopy, Multari, R.A., L.E.Foster, Applied Spectroscopy. 50. 1483-1499.

PRIDE 원격 운전/유지보수용 천정이동 양팔 서보조작기의 모듈화 설계

박병석, 이효직, 이종광, 유승남, 김기호, 김호동
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
nbspark@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료 건식처리공정인 Pyroprocess 기술을 종합적으로 평가하기 위한 PRIDE (PyRoprocess Integrated DEmonstration) 시설의 알곤 셀에 놓이는 공정장치들의 운전 및 유지보수를 위해 셀 전면에는 34조의 벽고정형 기계식 원격 조작기(manipulator)가 설치되며, 셀 내부에는 공간이동이 가능한 천정이동 양팔 서보조작기 시스템이 설치된다. 본 논문에서는 개발 중인 천정이동 양팔 서보조작기 시스템의 유지보수를 고려한 모듈화 설계에 대해 소개한다.

2. 본론

2.1 PRIDE 원격 운전/유지보수용 천정이동 양팔 서보조작기 시스템 개발 현황

그림 1은 PRIDE 천정이동 양팔 서보조작기 시스템의 개략도를 보여준다. 천정이동장치 및 제어시스템을 제외하고는 서보조작기의 기계적 구조는 기계식 마스터-슬레이브 조작기와 유사하다.

3차원적으로 이동이 가능한 천정이동장치는 기계식 조작기에 비해 서보조작기의 작업영역을 크게 증가시킨다. 또한, 서보조작기는 기계식 조작기에 비해 작업자의 피로를 크게 줄일 수 있다. 기계식 조작기는 슬레이브 조작기가 취급하는 무게를 그대로 작업자에게 전달하지만, 서보조작기는 작업자에게 슬레이브 조작기가 취급하는 무게를 전혀 느끼지 못하게 할 수 있기 때문이다.

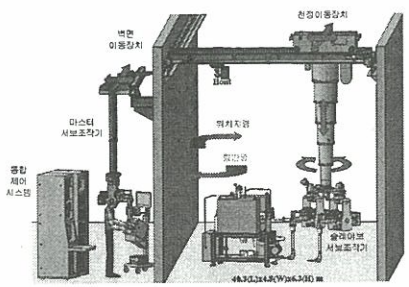


Fig. 1. A outline drawing of the bridge transported dual-arm servo-manipulator system for the PRIDE facility

2010년까지 천정이동 양팔 서보조작기 시스템의 시제품 개발을 완료하였으며, 또한 PRIDE에 설치할 마스터-슬레이브 양팔 서보조작기 제작을 완료하였다. 현재는 이의 천정이동 장치를 제작 중에 있으며, 2011년 후반기에 PRIDE 시설에 설치를 완료할 예정이다.

천정이동 양팔 서보조작기 시스템은 알곤 셀에 설치되어 사용되기 때문에 운전 중 고장이 발생하여 보수가 필요하거나, 부품의 수명이 다하여 교체가 필요할 경우 셀 내 또는 셀 밖에서 작업이 이루어져야 한다. 따라서 주요부에 대해 셀 밖으로의 원격 이동 및 셀 내에서의 원격 교체가 가능하도록 모듈화 설계를 하였다. 아래에 이의 내용에 대해 기술한다.

2.2 슬레이브 조작기 모듈화

천정이동장치의 텔레스코픽 튜브 말단 회전판에 부착되는 슬레이브 조작기를 기계식 조작기로 탈/부착 할 수 있도록 그림 2와 같이 모듈화 하였다. 탈/부착 시 조작기의 전원 및 신호도 동시에 접속/분리가 된다.

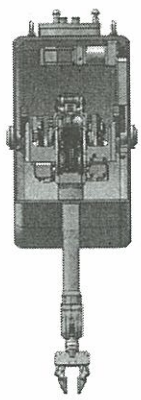


Fig. 2. Slave servo-manipulator module

2.3 트롤리 시스템 모듈화

조작기를 제외한 텔레스코픽 튜브를 갖는 트롤리 시스템 이하를 그림 3에서 보는 바와 같이 모듈화 하였다. 또한, 전선 케이블을 트롤리로부터

탈/부착 할 수 있도록 모듈화 하였다. 이들은 크레인을 사용하여 취급되며, 전선 케이블이 탈/부착 될 때 트롤리 이하의 전원 및 신호도 동시에 접속/분리가 된다.

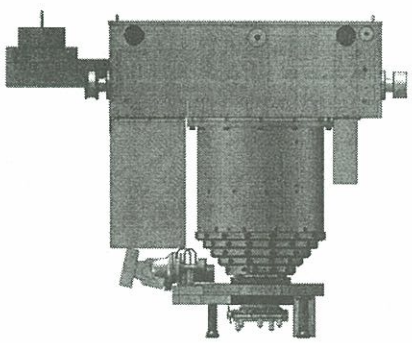


Fig. 3. Trolley module

2.4 카메라 시스템 모듈화

2.4.1 조작기 카메라 시스템 모듈화

조작기 회전판에 부착된 3개의 카메라는 조작기 전방의 시각 정보를 작업자에게 전송하여 작업자의 운전을 돕게 되는데, 고장 시 교체를 위해 각각을 독립적으로 크레인을 사용하여 탈/부착 할 수 있도록 모듈화 하였다. 탈/부착 시 카메라의 전원 및 신호도 동시에 접속/분리가 된다.

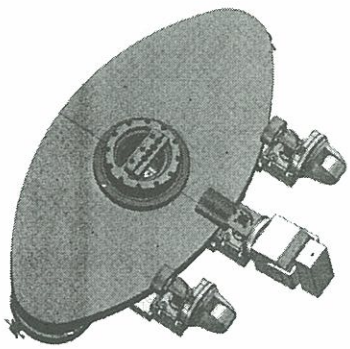


Fig. 4. Camera module

2.4.2 거더 카메라 시스템 모듈화

거더에 부착된 2개의 카메라는 셀내 시각 정보를 작업자에게 전송하여 작업자의 운전을 돕게 되는데, 고장 시 교체를 위해 각각을 독립적으로 크레인을 사용하여 탈/부착 할 수 있도록 모듈화 하였다. 탈/부착 시 카메라의 전원 및 신호도 동시에 접속/분리가 된다.

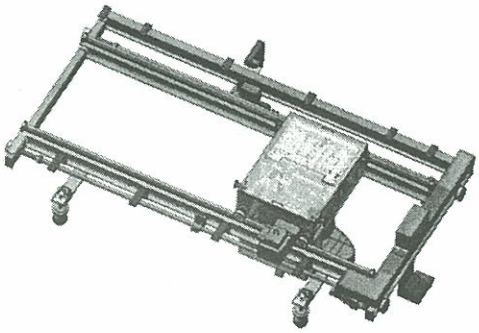


Fig. 5. Girder camera module

3. 결론

본 연구에서 개발 중인 천정이동 양팔 서보조작기 시스템은 2011년에 PRIDE 시설에 설치하여 성능 시험을 수행할 예정이며, 2012년부터는 PRIDE 시설의 원격 운전 및 유지보수에 활용할 예정이다.

4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

5. 참고문헌

[1] J. K. Lee, B. S. Park, H. J. Lee, K. H. Kim, H. D. Kim, "Master-Slave Servo Manipulator System for the PRIDE Facility", CAPRI 2010, pp. 1-5, 2010.

[2] 이효직, 이종광, 박병석, 김기호, 김호동, "원자력시설에서 원격취급작업을 위한 천정이동장치의 개발", ICROS 2010, pp. 186-188, 2010.

[3] 박병석, 이종광, 이효직, 김기호, 김호동, "PRIDE 원격 운전/유지보수용 천정이동 양팔 서보조작기 시스템 개발 현황", 한국방사성폐기물학회, 2009년 추계학술발표회 논문요약집, pp. 388-389, 2009.

Pyroprocess 공정장치의 배치 및 원격 취급성 분석

김성현, 유승남, 김기호
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
hyun@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에서는 고온에서 전기화학적인 방법으로 사용후 핵연료 속의 각종 핵물질을 분리 및 정제하는 파이로 프로세스 기술을 개발하고 있다. 현재 이 기술을 구현하기 위해 공학규모의 pyroprocess 공정을 일괄공정으로 실험하기 위한 파이로 종합시험시설(PRIDE : PyRoprocess Integrated DEmonstration Facility)을 건설 중에 있다. 파이로 프로세스는 고온에서 전기화학적인 방법으로 사용후 핵연료 속의 각종 핵물질을 분리 및 정제하는 기술이다. 이 공정은 전해환원, 전해정련, 전해제련 및 염 폐기물의 주요 공정으로 구성되어 있다.

원자력 시설에서는 방사성 물질을 취급하며, 작업자는 방사선에 피폭될 수 있다. 작업자의 안전한 운전을 위하여 방사성물질을 취급하는 장치는 작업자와의 물리적으로 격리하는 장소에 설치된다. 밀폐된 장소는 핫셀이라 부르며, 여기에 설치된 모든 공정장치들은 원격으로 운전 및 유지보수 작업을 수행하여야 한다.

핫셀에서는 MSM, BDSM, 크레인 등과 같은 원격 취급 장비가 설치되며, 이 장비를 이용하여 셀 내에서 이루어지는 모든 작업을 원격으로 수행하여야 한다. 원격작업을 위해서는 셀 내에 설치되는 모든 공정장치들은 원격작업이 이루어 질 수 있도록 설계/제작되어야 한다. 원격작업 수행의 신뢰성을 확보를 위해 동일 조건을 갖은 목업에서 장치를 미리 원격작업을 수행함으로써, 원격작업의 가능성을 점검하고 수정사항을 도출하여 장치를 수정한다. 설계단계에서부터 디지털 목업을 이용한 원격 취급성 검증을 장치 제작 전에 수행함으로써 제작 후에 발생할 수 있는 문제점을 개선할 수 있다. 디지털 목업을 이용한 검증작업은 제작기간의 단축 및 예산절감을 이점을 갖는다.

본 연구에서는 3차원 설계기술을 활용하여 PRIDE 가상 목업을 구축하고 장치의 제작 전에 원격 취급 장비의 원격 접근성을 검증하고자 한다. 또한 공정 장치의 원격 접근성을 분석하여 공정장치의 배치 위치를 선정하였다.

2. 본론

2.1 PRIDE 시설

파이로 종합시험시설은 파이로 프로세스의 일관공정을 실증위한 단일 셀로 구성된 목업 시설이다. 이 목업은 아르곤 분위기의 목업으로써 내부크기는 40(L) x 4.8(W) x 6.4(H)m 의 크기를 갖는다. 파이로 프로세스는 사용후 핵연료 속의 각종 핵물질을 분리 및 정제하는 기술로, 이 기술은 4 개의 주요 공정(전해환원, 전해정련, 전해 제련, 염 폐기물)으로 이루어져 있다. 파이로 종합시험시설에는 12개의 공정장치가 설치될 예정이다. 파이로 종합시험시설은 2011년 까지 건설될 예정이며 크레인, 17조의 원격조정기 및 천정이동형 양팔형 서보조작기가 설치될 예정이다. 그림 1은 파이로 종합시험시설에 설치될 공정장치 및 원격 취급 장비가 배치된 시설 도면이다.

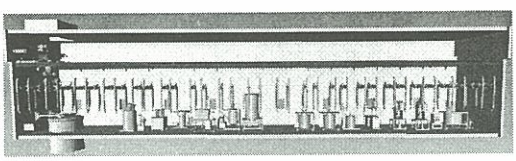


Fig. 1. PRIDE 시설의 배치도

2.2 PRIDE 디지털 목업 구축

본 연구에서 디지털 목업을 구축에 사용되는 3차원 모델은 시뮬레이션을 목적으로 제작된 형상데이터의 속성을 갖는다. 이는 일반적인 저작도구인 3차원 CAD와는 많은 차이점을 갖는다. 3차원 CAD 데이터 모델은 기하학적 형상데이터를 중요시 하지만 시뮬레이션을 위해서는 모델의 기구학적 구조에 따라 동작을 하기 위해서는 형상데이터, 관절 정보 및 계층 구조의 데이터 구조를 갖는다. 디지털 목업에 사용된 공정장치나 원격 취급 장비는 3차원 CAD의 형상 데이터를 이용하여 시뮬레이션을 이용한 데이터 구조를 갖는 모

델을 생성하였다. 이 형상데이터는 실측 크기의 모델이다. 구성된 모델들은 회전과 이동에 관한 기구학적인 특성 및 동작의 범위라는 속성을 부여하여 동작하는 장치의 모델을 완성하였다. 완성된 모델은 PRIDE 가상 시뮬레이터를 사용하여 원격 접근성 분석을 수행한다. 시뮬레이터의 모델 입력 및 목업 입력 모듈을 이용하여 PRIDE 디지털 목업을 구성하였다. 구성된 목업에서 원격 접근성을 분석하기 위해 외부 입력장치(haptic, joystick, 3D mouse)를 이용하여 원격 취급 장비를 시뮬레이션을 구현하였다.

2.3 원격 접근성 분석

2.3.1 원격 취급 장비의 작업영역

파이로 공정에 사용될 원격조정기는 셀의 크기와 설치될 공정장치가 작업영역 안에 있는지가 원격조정기의 규격을 결정하는 주요 요건이 된다. 원격조정기는 작업높이(operating height)에 따라 셀 내의 작업가능 요건을 만족하기 때문에 셀 바닥까지 도달하는 조건으로 Wallishmiller 사의 A110을 선정하였다. 원격조정기는 설치위치는 3.05m이고, tong이 셀 바닥까지 도달하며 최대 도달거리는 3.353 m 이다. 공정장치를 조작할 수 있는 높이는 원격조정기의 작업영역과 작업자의 시야에 따른 밀접한 관계를 갖는다. 또한 원격 조정기의 작업영역에 따라 설치될 공정장치의 높이 및 설치 위치가 선택될 수 있다. 그림 2는 원격조정기의 작업영역에 따라 셀 앞에서 설치될 수 있는 공정장치의 최대 높이를 보여준다.

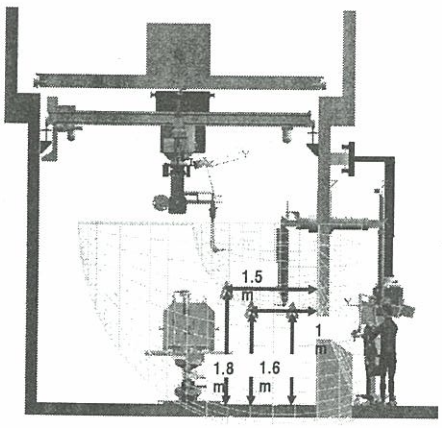


Fig. 2. 원격 조정기의 작업영역

2.3.2 공정장치의 원격 접근성 분석

PRIDE 목업에서 수행되는 첫 번째 공정은 전해환원공정이다. 전해환원공정에 사용되는 장치는 전해환원장치와 cathode processor 장치이다. 장치 제작을 위해 모델링된 장치를 디지털 목업에 그림 2에 보는바와 같이 원격조정기의 작업영역에 따라 장치를 배치하였다. 전해환원공정에 사용되는 장치들의 높이는 1.8 m 이상이기 때문에 장치를 셀 앞쪽에서 1.5 m이 떨어진 위치에 설치하였다. 원격 접근성에 대한 분석은 장치의 운전 절차 및 유지보수 절차에 대한 시나리오 구성하고, 이를 이용하여 원격으로 접근이 필요한 지점을 선정하였다. 외부 입력장치(haptic)를 이용하여 현재 배치된 공간에서 원격조정기를 동작시켜 접근 지점에 대한 접근성 및 충돌 가능성을 분석하고 작업지점에 대한 작업자 시야 확보성을 분석하였다.

3. 결론

파이로 종합시험시설, 공정장치 및 원격 취급 장비의 설계도를 이용하여 3차원 모델링을 하여 시뮬레이터에서 가상공간의 PRIDE 디지털 목업을 구축하였다. 가상 원격조정기의 작업영역분석하고 이를 이용하여 3차원 모델링된 공정장치를 원격조정기의 작업영역 안에 배치하였다. 배치된 공정장치는 원격조정정기의 시뮬레이션 동작을 이용하여 전해환원공정의 장치 운전 및 유지보수 지점에 대한 접근성 분석을 수행하였다. 이 분석 결과를 토대로 장치 제작 전에 공정장치의 원격 운전에 대한 문제점을 도출하여 원격에 대한 설계 오류를 수정한 공정장치 제작에 반영토록 하였다.

4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

5. 참고문헌

[1] V. E. Whisker, and et al., "Using immersive virtual reality to develop and evaluate NPP construction schedule", 2003 American Nuclear Society, 2003.

감마선을 이용한 우라늄 농축도 분석시 차폐체 영향 평가 분석

박세환, 엄성호, 신희성, 김호동, 박준식, 김용균*
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
*한양대학교, 서울시 성동구 왕십리로 222
ex-spark@kaeri.re.kr

1. 서론

시료의 동위원소 비를 구하고자 할 경우 널리 쓰이고 있는 방법은 감마선 에너지 스펙트럼 분석법이다. 우라늄이나 플루토늄 비를 구할 경우 HPGe 검출기를 이용하여 감마선 에너지 스펙트럼을 측정하고 이를 분석하는 프로그램으로 FRAM (Fixed energy Response function Analysis with Multiple effeciencies)이나, MGA (Multi-Group Analysis)가 쓰이고 있다. 이 경우 감마선 측정 조건에 따라서 분석 오차가 달라진다고 알려져 있다. HPGe 검출기는 검출기 동작을 위하여 냉각 장치를 필요로 하며, 이러한 단점을 극복하기 위하여 에너지 분해능이 비교적 높은 CZT (Cadmium Zinc Telluride) 검출기나 $LaBr_3$ 검출기를 이용한 감마선 에너지 측정 및 핵물질 분석이 이루어지고 있다.

PRIDE (PyRoprocess Integrated inactive DEmonstration facility)에서 파이로 공정에 대하여 NU를 대상으로 한 연구를 계획하고 있다. 이러한 농축도가 낮은 우라늄에 대하여 동위원소비를 결정할 경우, 측정 조건에 따른 오차 분석이 필요하다. 특히, 측정 대상 물질이 차폐체로 둘러싸인 경우 차폐체에 의한 감마선 분석 오차를 평가할 필요가 있다. 본 연구에서는 농축도가 낮은 우라늄 시료 (NU, LEU)를 대상으로 HPGe 검출기를 이용하여 대상 시료가 차폐체에 둘러 싸인 경우 측정 시간, 측정 장치 구조 등을 변화시키면서 우라늄 농축도 측정 변화를 분석하였다. 또한 CZT, $LaBr_3$ 검출기를 이용하여 감마선 에너지 스펙트럼을 측정하고, 차폐체의 두께에 따른 농축도 측정 오차에 대한 연구를 수행하였다.

2. 본론

2.1 실험

천연 우라늄 시료 (NU) 3 kg에서 발생하는 감마선을 HPGe 검출기를 이용하여 측정하였다. 검출기에서 발생한 신호는 Spectroscopic Amplifier, MCA를 거쳐서 PC에 저장하였다. 측정 시간을 20 분, 40 분, 1 시간으로 변화시키면서 측정을 수행하였다. 또한 시료와 검출기 사이에 차폐체를 두고 에너지 스펙트럼의 변화를 측정하였다. 차폐체의 두께는 1 mm, 2 mm, 3 mm, 4 mm, 5 mm로 변화하였다. 검출기 주변에 흡수체에 있는 경우 감마선 분석 오차 변화를 얻기 위하여 흡수체가 없는 경우, 중성자 계수기 (INVS; Inventory Sample Neutron Coincidence counter)내에 감마선 검출기가 있는 경우, 감마선 검출기 주변에 납 차폐체가 있는 경우 에너지 스펙트럼을 측정하였다. 검출기 주변을 차폐체가 있는 경우 낮은 에너지 영역의 백그라운드가 낮아지며, 특히 U-235에서 발생하는 186 keV 영역의 백그라운드가 낮아짐이 관측되었다.

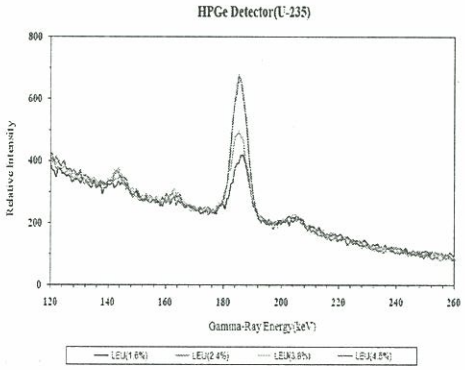


Fig. 1. CZT 검출기로 측정한 우라늄 스펙트럼상에서 농축도에 따른 186 keV 감마선 변화

측정된 감마선 에너지 스펙트럼은 FRAM 4.2를 이용하여 분석하였다. SUS 5 mm 이내에서 1시간 천연 우라늄 에너지 스펙트럼을 측정하고 농축도를 분석한 경우 3 % 미만의 분석 오차를 보였으며, 알려준 우라늄 농축도에 대하여 5 % 미만의 차이를 보였다. 또한 검출기 주변을 차폐체를 둔 경우 오차가 감소하는 경향을 보임을 확인할 수 있었다.

CZT 검출기를 이용하여 LEU 시료에 대하여 감마

선 에너지 스펙트럼을 측정하였다. CZT 검출기를 이용하여 동일한 천연 우라늄 시료를 대상으로 감마선 에너지 스펙트럼을 측정하였다. 시료와 검출기 사이에 SUS 차폐체가 위치한 경우 차폐체에 의한 분석 오차에 대하여 연구하였다. 이 경우 차폐체에 의한 186 keV 감마선 감쇄가 발생하며, 이로 인한 분석 오차 발생을 관측할 수 있었다.

3. 결론

핵물질의 동위언소비를 구할 수 있는 방법으로 널리 쓰이는 것은 감마선 스펙트럼 분석이다. 이 경우 분석 대상 시료가 일정한 용기가 담긴 경우 용기에 의한 차폐 효과로 인한 분석 오차에 연구가 필요하다. 본 연구에서는 HPGe 검출기, CZT 검출기를 이용하여 다양한 차폐체가 있는 경우 차폐체에 의한 우라늄 농축도 분석 오차에 대한 데이터를 얻었다. 5 mm 이하의 SUS 차폐체가 우라늄 시료를 감싼 경우 5 % 미만의 오차가 관측되었다. 또한 측정 시간, 검출기 주변 차폐체를 변화하여 분석 오차를 줄일 수 있는 결과를 얻었다.

4. 감사의 글

본 연구는 원자력 연구 개발 사업 및 2009년도 지식경제부의 재원으로 한국에너지 기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제(과제번호 : 2009T100100650)의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] Duc T. Vo, Gamma-ray Isotopic Measurements with FRAM LA-UR-06-5545.

[2] PC/FRAM Manual LA-UR-03-1623.

[3] 엄성호외 5인, "사용후핵연료 및 우라늄 시료에 대한 감마측정을 하여 FRAM 코드에 적용하기 위한 시험", 한국방사성폐기물학회, 춘계학술발표회 논문요약집, pp.438-439, 2009.

[4] Duc T. Vo. Gamma-Spectrometry and Neutron Measurements for Safeguards, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 276, No,3(2008) 693-698.

PRIDE(PyRoprocess Integrated inactive DEmonstration facility) 핵물질 계량 및 감시정보 시스템의 모의 전산프로그램 모듈화

최선수, 송대용, 신희성, 오종명, 김호동
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045번지
css12@kaeri.re.kr

1. 서론

PRIDE는 ESPF(Engineering Scale Pyroprocess Facility)와 동일한 규모의 공학시설로써, ESPF의 필수설계자료 생산 및 설계 최적화를 위한 시설이다. PRIDE는 공정 관점에서 볼 때 사용하는 핵물질, 즉 사용후핵연료 대신 천연우라늄(Natural Uranium)을 사용하는 것이 ESPF와 다르기 때문에 ESPF와 같은 강화된 안전조치가 요구되지는 않는다. 그러나 PRIDE는 파이로 기술을 검증하기 위한 시설이므로 이러한 점을 고려한 안전조치 시스템 개발이 필요하다.

본 연구는 기존에 개발해온 PRIDE 핵물질 계량 및 감시정보 시스템의 전산 프로그램을 모듈화 하여 프로그램을 기능별로 독립시키는데 목적이 있다. 이를 통해 필요한 데이터만을 선택적으로 확인 및 관리를 할 수 있으며, 추후에 프로그램 개발 시에 기능별 프로그램 재사용을 용의하게 하였다.

2. 본론

2.1 모듈화의 필요성

모듈화작업을 통하여 전체 프로그램을 세분화함으로써 프로그램이 가진 기능을 파악하기 쉬우며, 나아가 프로그램 수정, 기능 추가 및 삭제 등의 작업을 좀 더 쉽고 편리하게 해줄 수 있다. PRIDE는 아직 완공되지 않은 시설이므로 시스템의 추가 및 변경이 불가피하다. 따라서 그에 따른 전산 프로그램의 수정도 필요하게 된다. 따라서 전산 프로그램이 모듈화 되지 않는다면, 기능이 추가되거나 삭제될 때마다 방대한 양의 프로그램 코딩을 일일이 살펴야하는 번거로운 작업을 해야 한다. 따라서 보다 효율적인 전산 프로그램의 개발을 위해 장비별, 기능별 모듈화를 실시하였다.

2.2 장비별 모듈화

핵물질 감시 시스템에 사용되는 감시 및 계량 데이터는 중성자, 감마, 전류, 전압, 온도, 무게, 영상 데이터로 총 7가지이다. 따라서 각 센서에 대한 각종 DAQ 장비들이 필요하다. 중성자, 감마의 경우는 Counter card를 통해 중성자, 감마의 피크의 개수를 세는 방식이고, 전압, 전류, 전압, 온도는 각각의 센서를 통해 나오는 출력 전압을 고유물리 값으로 변환시켜주는 DAQ card를 사용하였다. 무게는 디지털 저울을 serial 카드에 연결하여 취득하게 되며, 카메라는 카메라 전용카드를 이용하였다. 이렇게 여러 장비별로 전산 프로그램을 모듈화 해줌으로써, 어떠한 장비들로부터 데이터를 받는지 한눈에 알 수 있으며, 각 장비별로 수정이 필요할 경우 즉시 찾아 수정할 수 있는 장점을 가지게 된다.

Fig. 1의 빨간색 상자 안을 보면 앞에서 언급한 장비별로 모듈화 된 모습을 볼 수 있으며, 나머지 모듈들도 기능별로 정리가 되어있음을 알 수 있다.

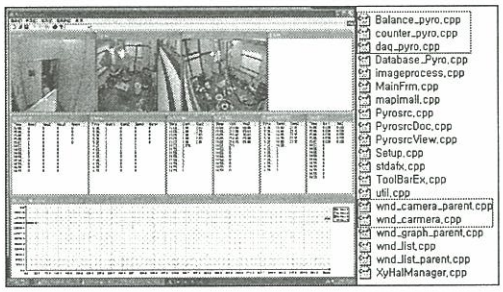


Fig. 1. 장비별 기능별 모듈화 모습 과 프로그램 실행화면

2.3 중성자, 감마 모듈화

장비별 모듈화에서 좀 더 세분화하기 위해 취득되는 센서 데이터에 따라 모듈화를 수행하였다. 앞에서 언급한 것과 같이 counter card를 통해 중성자와 감마 데이터를 얻게 된다. 감마 데이터와 중성자 데이터를 모듈화 하여 감마 검출기와 중성자 검출기를 완전하게 개별화시킴으로써 각각

의 데이터의 추가 및 삭제에도 독립적이고 간편화되었다. Fig. 2는 중성자 모듈의 실행 모습이고, Fig. 3은 감마 모듈의 실행 모습이며, Fig. 4는 중성자와 감마 모듈을 결합하여 실행한 모습이다.

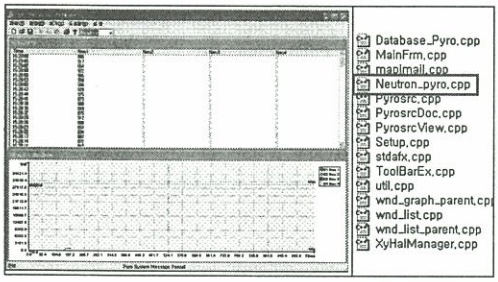


Fig. 2. 중성자 모듈화의 실행 모습

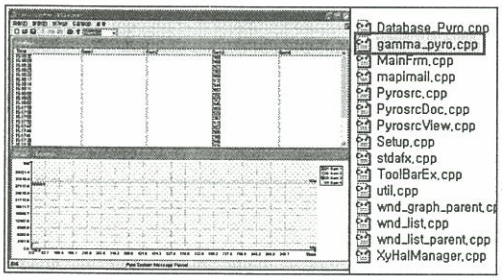


Fig. 3. 감마 모듈화의 실행 모습

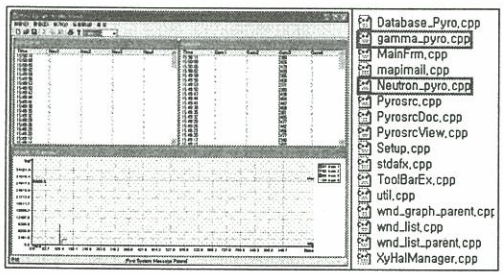


Fig. 4. 감마 모듈과 중성자 모듈이 결합된 모습

이처럼 프로그램에서 중성자 데이터만을 취득하려면 중성자 모듈만 사용할 수 있으며, 감마 데이터만을 취득하려면 감마 모듈만을 사용할 수 있다. 또한 두 데이터를 모두 취득해야 한다면 두 모듈을 함께 사용할 수 있다. 그만큼 프로그램의 개발 편의성과 모듈 재사용성이 향상 되었다.

3. 결론

본 연구를 통하여 기존에 개발해온 전산 프로그램을 모듈화 하였고, 이를 통해 프로그램의 개발 편의성 향상, 모듈화에 따른 기능 파악의 간편화, 모듈의 조합 및 재사용이 간편화 되었다. 현재 온도, 전압, 전류의 경우 모듈화 과정에서 callback 함수의 중복사용 문제로 인해 부분적으로 모듈화가 이루어지지 못했지만, 이런 부분을 모두 모듈화 한다면 프로그램을 더욱 세분화하고, 기능을 파악하기 쉬우며, 차후 좀 더 손쉽게 개선을 할 수 있을 것으로 판단된다. 앞으로 실행화면의 모듈화와 간략화를 이루고 모든 데이터별로 모듈화를 이루어 PRIDE의 완성 후 안전조치 시스템이 효과적이고, 손쉽게 구축될 수 있도록 하겠다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] 송대용, 정정환, 신희성, 김호동, 안성규, ACPF 핵물질 감시시스템의 성능 개선, 2009 춘계한국방사성폐기물학회, pp. 1-2, 2009.

[2] 최호성 MFC 윈도우 프로그래밍, FREELEC, pp. 1-1248, 2009.

란탄족 원소를 이용한 LiCl-KCl/Bi 계에서의 환원추출 군분리 연구

배주동, 박병기*, 황일순
서울대학교, 서울시 관악구 대학동 서울대학교 공과대학 31-1동 401호, 151-742
*순천향대학교, 충남 아산시 신창면 읍내리 순천향대학교 공과대학 9122호, 336-885
jd32@snu.ac.kr

1. 서론

사용후핵연료의 독성과 부피를 감소시키고 제4세대 원전인 고속로의 연료로서 재활용하기 위해 파이로프로세스(Pyroprocess)에 대한 연구가 국내외에서 활발히 이루어지고 있다. 한국원자력연구원을 중심으로 연구되고 있는 파이로프로세스는 핵연료봉 해체 및 절단, 피복관 분리, 전해환원, 전해정련, 전해제련 등의 주요 요소공정으로 이루어져 있으며, 이 공정들을 통해 최종적으로 배출되는 폐기물의 부피 및 독성을 약 1000배 감소시키는 것을 목표로 하고 있다.[1] 본 연구에서는 기존에 개발된 주요요소공정에 더해 잔류악티늄족 회수(Residual Actinide Recovery, RAR) 공정을 추가함으로써 사용후핵연료를 중저준위화할 수 있는 PyroGreen이라 명명된 사용후핵연료 관리개념을 도입하고, RAR 공정 개발을 위한 실험을 진행하였다.[2] Ce, La, Y, Cs의 4가지 란탄족 원소를 이용하여, LiCl-KCl/Bi 계에서 환원추출 실험을 수행하였으며 그 결과를 기존문헌 결과와 비교하였다.

2. 본론

2.1 실험준비 및 절차

본 연구는 산소와 수분 농도가 1 ppm 이하로 유지되는 글로브박스 내에서 이루어졌으며, Sigma aldrich로부터 구매한 순도 99.999% 이상의 시약을 사용하였다. 환원제로 사용되는 Li은 실험전에 Li-Bi(Li 약 1wt%)의 합금 형태로 미리 제조하여정량 후, 실험에 사용하였다.

실험은 LiCl-KCl, Bi, $CeCl_3$, $LaCl_3$, YCl_3, CsCl를 정량하여 실험셀에 넣은 후, 약 4번에 걸쳐 Li-Bi을 추가하고 반응시킴으로써 각 Li-Bi의 추가량에 따른 농도변화를 측정하였다. Li-Bi 추가 후 약 4시간동안 교반을 시키며 반응을 시켰으며, 반응 후에는 용융염과 액체금속 간의 완전한 분리가 이루어지도록 하기 위해 2시간이 지난 후 샘플을 채취하였다. 각 단계마다 약 50mg 내외의 용융염을 채취하여 ICP-MS법으로 농도를 분석하였다.

2.2 실험결과 및 논의

Figure 1은 ICP-MS 분석 결과에 의해 얻어진 용융염내의 Ce, La, Cs, Y의 농도를 처음 농도에 대한 백분율로 계산하여, 추가한 Li-Bi합금의 양에 따른 변화를 나타낸 것이다. 추가된 Li-Bi의 양이 증가함에 따라, Ce-La-Y-Cs 순으로 용융염에서의 농도가 줄어드는 것을 확인할 수 있다. 이와 같은 경향성은 기존 문헌의 결과와 잘 일치한다.

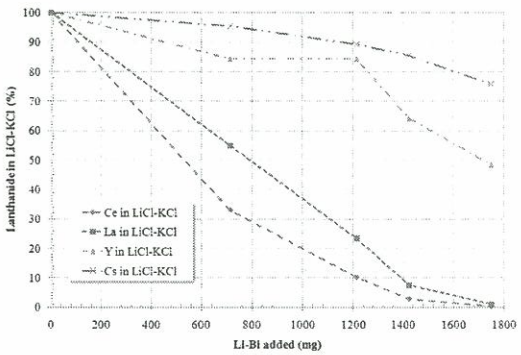


Fig. 1. Changes of lanthanide concentration in molten salt vs. added Li-Bi

Figure 2는 Ce의 분배계수에 대한 Ce, La, Y, Cs 각 원소의 분배계수를 나타낸 것이다. Ce-La 그리고 Y-Cs 간의 차이에 비해 La-Y 간의 차이가 더 큰 것을 확인할 수 있으며, 이 차이를 이용하여 Cs-Y/La-Ce 간의 군분리가 가능하다. 하지만 기존문헌의 결과와는 달리, Ce의 분배계수에 대한 Y의 분배계수 값의 기울기가 Ce, La과 같이 1이 아닌 Cs과 유사한 값을 가짐을 확인할 수 있었다. 이렇게 기존 문헌과 다른 결과의 원인으로는 두가지를 생각해 볼 수 있는데, 우선 $Y^{3+} \rightarrow Y^0$

의 단단계 환원이 아니라 $Y^{3+} \rightarrow Y^{2+} \rightarrow Y^{0}$의 2단계 환원반응이 일어날 가능성이다. 두 번째는 각 단계의 반응이 완전히 평형상태에 이르지 않았을 가능성이다. Table 1에는 Ce의 분배계수를 기준으로 계산한 분리지수(Separation Fator)를 나타내었는데 Y의 경우 기존 CRIEPI 실험 결과에 비해 작은 값을 가짐을 알 수 있다.[3] 이로 미루어 볼 때, Y의 분배계수 기울기가 기존문헌 측정값과 일치하지 않는 것은 반응이 완전히 평형상태에 이르지 않았기 때문이라고 판단할 수 있다. 따라서 반응시간을 더욱 증가시킨 조건으로 실험을 수행하였으며, 농도분석 결과를 이번 학회에서 발표할 예정이다.

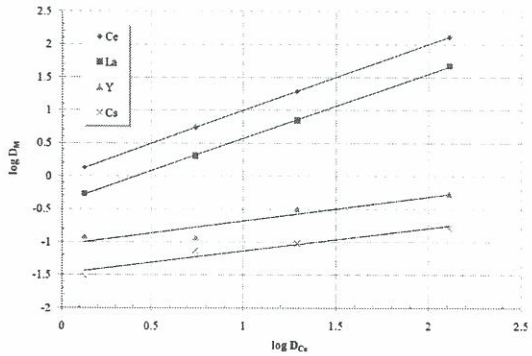


Fig. 2. Calculated Distribution coefficient of Cs, Y, La, Ce vs. D_{Ce}

Table 1. Measured separation factor of lanthanide elements in LiCl-KCl/Bi system

	This study (LiCl-KCl/Bi)	M.Kurata et. al., 1995 (LiCl-KCl/Bi)	M.Kurata et. al., 1995 (LiCl-KCl/Cd)
Ce	1	1	1
La	2.76	3.03	2.63
Y	240.92	707.86	109.09
Cs	803.75	-	-

3. 결론

사용후핵연료의 중저준위화를 위해 기존 파이로프로세스 공정의 일부로서 추가할 수 있는 RAR공정의 연구개발을 위해, LiCl-KCl/Bi 계에서의 환원추출 실험을 수행하였다. 추가한 Li의 양에 따른 란탄족 원소들의 환원경향성에서 기존 문헌과 같은 결과를 확인할 수 있었다. 하지만 Y의 분배계수 및 La-Y 사이의 분리지수 차이에 있어서는 기존 문헌값과 차이를 보였으며, 이를 보완하기 위한 실험을 수행하였다. 보완 실험결과는 학회에서 발표될 예정이다.

4. 감사의 글

본 연구는 기초원자력연구소(Basic Atomic Energy Research Institute, BAERI) 사업(Program code: E009-00-78190)을 통한 지식경제부의 재정적 지원에 의해 이루어졌습니다.

5. 참고문헌

[1] E. H. Kim, "Current status on development of P&T in KOREA", 9th IEMPT, NIMES, France, September, 2006.

[2] H. O. Nam, et. al., "All the Spent Nuclear Wastes to Low and Intermediate Level Wastes: PyroGreen", Proceedings of Global 2009, Paris, France, 2009.

[3] M. Kurata, et. al., "Distribution behavior of uranium, neptunium, rare-earth elements (Y, La, Ce, Nd, Sm, Eu, Gd) and alkaline-earth metals (Sr,Ba) between molten LiC1-KCl eutectic salt and liquid cadmium or bismuth", Journal of Nuclear Materials, Vol. 227, p.110-121, 1995.

RAR 공정 전해회수 방식 개량 및 산화제 감축 방안

심준보, 김지용, 박대엽, 김택진, 김시형, 백승우, 정재후, 김광락, 이한수, 안도희
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
njbshim@kaeri.re.kr

1. 서론

국내 원전에서 나오는 사용후핵연료의 감용 및 미래 원자력시스템의 구축에 필수적인 파이로 공정(Pyroprocessing)의 연구개발이 한국원자력연구원에서 원자력 중장기 과제로 수행되고 있다. 파이로 공정의 경제성 제고 및 안전성 확보를 위해서 고준위폐기물에 포함되어 처분장으로 보내는 악티늄족 원소의 양을 최소화 시켜 주는 기술이 반드시 확보되어야 한다. 따라서 전해제련 단계에서 나오는 폐 용융염을 처리하여 고화체를 제조하기 전에 폐 용융염으로부터 악티늄족 원소를 충분히 회수(Residual Actinides Recovery; RAR)하여 악티늄족의 잔류농도를 0.01 wt% 이하로 감축시키는 방법의 확립은 파이로 공정의 성공을 위해 매우 중요하다. 이를 위해 한국원자력연구원에서는 LCC 전해 및 $CdCl_2$ 산화제를 활용하는 고유 개념의 RAR 공정을 개발하였으며 기술의 확립을 위해 여러 가지 실험을 진행하고 있다.

본 논문에서는 LiCl-KCl 공융염 속에서 액체 Cd 음극으로 구성된 RAR 공정의 LCC 전해회수 단계에서 정전류 전해방식으로 잔류 악티늄족 원소를 100 ppm 이하까지 낮출 때, 용융염에서 U 및 RE 금속이 고갈됨에 따라 용융염 전해질이 분해되고 Li 금속이 생성되어 RE금속 산화 단계에서 첨가하는 $CdCl_2$ 산화제를 소모시키기 때문에 LCC 전해회수 시에 발생하는 RE 금속의 과잉 전착 및 Li 금속의 생성을 제어하여 공정 효율을 개선할 수 있는 방안을 검토하였다.

2. 본론

2.1 전해회수 방식 개량 및 산화제 감축 방안

LCC 전해회수 시 Li 금속의 생성을 억제하는 방법으로 전해가 진행됨에 따라 금속 농도가 낮아지면 전류밀도를 단계적으로 낮추면서 금속전착 전류효율이 가급적 100 %로 유지되도록 전해회수하는 운전방식을 선택하였다 (Fig. 1).

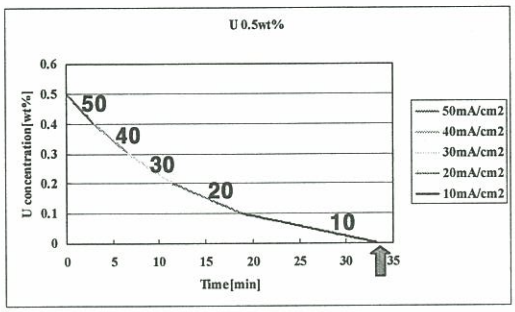


Fig. 1. Current decreasing electrolysis method

2.2 실험 장치 및 방법

용융염 준비는 먼저 LiCl-KCl 용융염 내에서 UCl_3의 농도를 0.5 wt%가 형성되도록 준비한 후, $NdCl_3$ 및 $LaCl_3$를 각각 1.0 wt%가 되도록 충분히 건조한 순도 4N 시약을 첨가하였다. 용융염 속에 순도 5N의 Cd 잉곳 2개 (212.95 g)를 넣고 용융시켜 LCC를 준비하였다. 전해회수 방식은 순차적으로 전류밀도를 일정 시간 간격으로 단계별로 낮추면서 50→40→30→20→10 mA/㎠에서 각 단계에서 전해 시간을 6→8→10→12→32 분씩 나누어 전해회수를 진행하였다. 전해 시간의 결정은 LCC에 Nd 및 La 금속이 U과 함께 전착될 수 있기 때문에 U의 단계별 전해시간의 2배로 하였다. 용융염 및 LCC의 교반속도는 60 rpm로 고정하였으며 용융염의 변화를 on-line 감시하기 위해 전해회수 전·후에 Cyclic Voltammetry (CV) 기법으로 측정하여 UCl_3 및 $RECl_3$가 전착에 의한 감소되는 상태변화를 확인하였다.

2.3 실험 결과 및 고찰

2.3.1 단계별 전류량 강하 방식 전해회수 결과

잔류 악티늄족 원소의 전해회수 조업은 Li 금속의 생성을 억제시키고 LCC에서 RE 금속의 전착량을 감축시켜 궁극적으로 RE 금속의 산화 단계에서 과잉 소모될 $CdCl_2$ 산화제의 절감을 통해 RAR 공정의 조업시간 단축 및 효율 증대를 달성할 목적으로 단계별로 전류밀도를 점차 낮추어

가능한 한 전류효율을 높게 유지시키는 방식으로 전해를 진행하였다. Fig. 2~3에 전류밀도를 낮춰가며 1차~5차까지 단계별로 전해 실험하면서 얻은 전해 전·후의 CV측정 결과의 일부를 나타내었다. 1차 전해 시에는 RE 및 U의 피크가 함께 감소하였다 (Fig. 2). 2차~5차에 걸친 전해 단계에서는 RE의 피크는 큰 변화가 없었으나 -1.7 V~-1.6 V 영역에 있는 U의 피크는 단계가 지남에 따라 점점 더 감소함을 보여주었다. 이 결과로부터 Li금속의 생성을 억제시키기 위한 단계별 전류강하 방식의 전해 조업이 효과적임을 확인할 수 있었으며, 또한 RE 금속의 공전착 양도 크게 감소시킬 수 있음을 CV 피크를 통해 확인할 수 있었다. 이 CV 결과는 앞서 진행된 RAR 전해회수 실험에서 일정 전류밀도를 사용하는 전해에서 얻었던 RE금속의 피크가 단계별로 크게 감소되는 CV측정 결과와는 큰 차이를 보여준다.

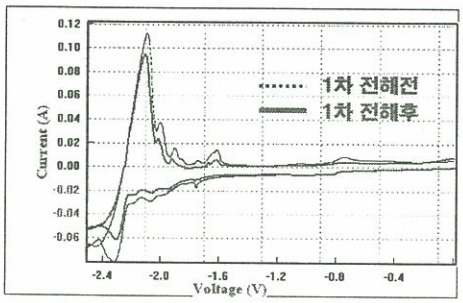


Fig. 2. CV results, 1st step electrolysis

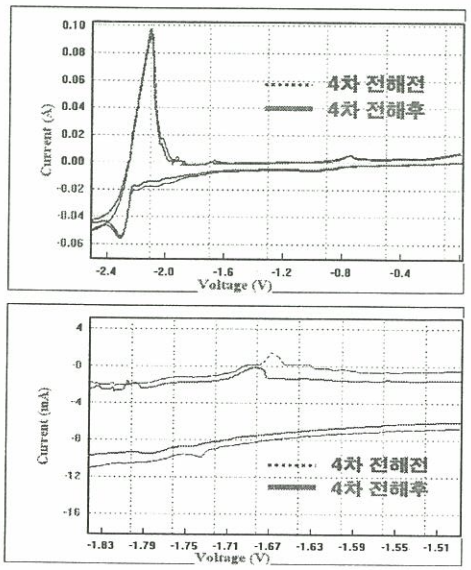


Fig. 3. CV results, 4th step electrolysis

2.3.2 전류량 강하 전해회수에서 전위 거동

Fig. 4는 단계별로 전류강하 전해 시 4차/5차 전해에서 얻은 전류 및 전위 값을 연속해서 측정한 결과이며 LCC 음극 및 Glassy Carbon (GC) 양극에서의 전류-전압 분극거동을 확인할 수 있는 자료다. 그런데 Fig. 4에서 볼 수 있듯이 4차/5차 단계의 전해회수를 비교할 때 LCC전위 값이 5차가 4차보다 낮게 측정되는 역전 현상을 확인할 수 있었다. 이는 전류-전압 분극거동의 일반적인 특성을 보여주는 V자 형태의 Plot에서 벗어나는 결과이다. 그와 같은 현상이 발생되는 원인은 단계별로 전류밀도를 낮추는 전해 방식으로 인해 용융염에서 RE 금속의 동반 전착이 적어지면서 U가 선택적으로 제거되었기 때문에 일어나는 것으로 판단된다.

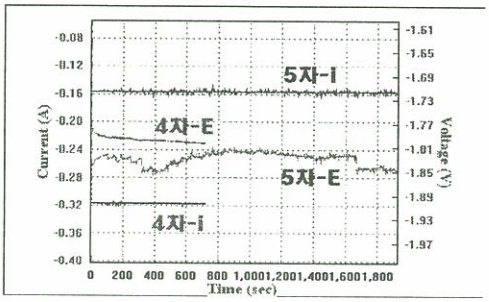


Fig. 4. I-P monitoring, 4th/5th steps electrolysis

3. 결론

RAR 공정 산화추출 단계에서 용융염에 첨가하는 $CdCl_2$ 산화제의 양을 감축시키는 방안을 도출하였다. LCC 전해회수 단계에서 전류밀도 30 mA/㎠의 정전류로 전해하면 종료 시점에서 금속이온의 농도가 희박해져 과잉으로 공급되는 전하량에 의해 생성되는 Li 금속이 산화제의 비효율적 소모의 원인임을 확인하였다. LCC 전해회수 조업을 과전류 공급기간의 단축 및 단계별로 전류밀도를 감축시키는 방식으로 개선하였다. RAR 공정 장치의 전해회수 조업방식 개량을 통해 조업시간 단축 및 공정 효율을 한층 더 높여줄 수 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

고-액 분리법을 이용한 액체카드뮴전극 처리 기술

박대엽, 윤달성, 김지용, 김경량, 김택진, 김시형, 심준보, 백승우, 김광락, 정재후, 안도희
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동 150-1)
dypark@kaeri.re.kr

1. 서론

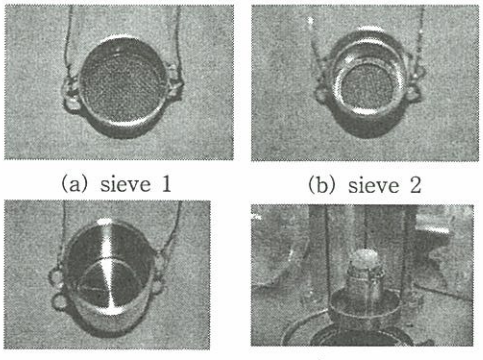
한국원자력연구원에서는 사용후핵연료의 부피감용과 차세대 원자력 시스템인 소듐 냉각 고속로(SFR)용 연료를 만들기 위해 파이로 공정(Pyroprocessing)을 개발하고 있다. 파이로 공정의 주요기술의 하나인 전해제련은 공융염(LiCl-KCl)중의 잔류 U와 TRU(Np, Pu, Am, Cm)를 액체 카드뮴음극(LCC)을 사용하여 혼합물 상태로 회수하는 공정과 U와 TRU를 카드뮴으로부터 분리하는 카드뮴 증류공정으로 이루어져 있다.

본 연구는 전해제련공정을 통해 회수된 U와 TRU을 카드뮴증류공정으로 보내기 전에 LCC도가니로부터 LiCl-KCl을 최대한 분리하여 증류공정의 효율을 높이기 위해 수행되었다.

2. 본론

2.1 실험장치 및 재료

도가니에 섞여있는 모의 U, TRU, LiCl-KCl 공융염 및 카드뮴을 순차적으로 분리하기 위해 Fig. 1과 같은 장치를 제작하였다.



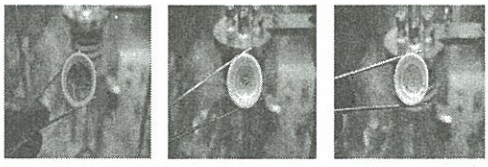
(a) sieve 1 (b) sieve 2
(c) basket (d) assembly
Fig. 1. Tools of Experiment

전체 실험장치는 스테인리스 스틸로 된 2개의 sieve와 1개의 basket으로 된 Fig. 1의 처리장치와 온도를 조절할수 있는 가열로로 되어 있다. 처리장치의 구성품들은 단계적으로 적재되며 상단의 첫 번째 sieve(Fig. 1(a))는 회수된 우라늄을 분리하기 위한 것이며 두번째 sieve(Fig. 1(b))는 LiCl-KCl 공융염을 분리하기 위한 것이다. 하단부의 스틸 basket(Fig. 1(c))은 카드뮴 회수를 위해 준비하였다.

본 연구에서는 99.95% 카드뮴과 99.99+% LiCl-KCl을 사용하였으며 실제 우라늄 대신 우라늄 덴드라이트를 표현하기 위해 금속 wire를 적당한 길이로 끊어 사용하였다.

2.2 실험방법

Fig. 2(a)는 알루미나 도가니에 카드뮴만을 녹여 준비한 것이고, Fig. 2.(b)는 LiCl-KCl 공융염과 카드뮴을 같이 넣어 녹여서 준비한 것이며, Fig. 2(c)는 LiCl-KCl 공융염과 카드뮴 그리고 금속 wire를 같이 넣고 녹여서 준비한 것이다.



(a) (b) (c)
Fig. 2. Crucible for experiment

이와 같이 준비된 도가니를 뒤집어 Fig 1(d)와 같이 조립한 후 카드뮴과 LiCl-KCl이 녹을 수 있도록 500℃로 가열하였다. 카드뮴과 LiCl-KCl이 녹아 첫 번째 sieve를 통과하게 되면 금속 wire만 sieve 위에 남은 것을 확인한 후 도가니와 첫 번째 sieve를 제거하였다. 남은 카드뮴과 LiCl-KCl을 분리하기 위해 가열로의 온도를 조절하여 고(LiCl-KCl)-액(카드뮴)상태가 되도록 하였다. 카드뮴의 녹는점은 326 ℃이고 LiCl-KCl의 녹는점은 353 ℃이므로 이 사이의 온도를 설정하

여 두 물질상이 고-액 상태로 됐을 때 2번째 sieve를 들어올려 LiCl-KCl를 걷어내어 두 물질을 분리하였다.

2.2.1 mesh 사이즈 선택

카드뮴은 원활하게 통과하고 우라늄 모사체는 통과하지 못하는 sieve의 mesh 사이즈를 선택하기위해 1 mm, 2 mm, 3 mm 크기의 opening을 갖는 mesh를 준비하였다. Fig. 2(a)와 같이 도가니에 카드뮴만 담은 상태에서 온도를 500℃로 가열하여 카드뮴을 녹인 후 카드뮴이 sieve를 통과하여 원활하게 내려가는지 확인하는 실험을 수행하였다. 2 mm, 3mm의 크기 mesh에서는 카드뮴이 통과하여 내려가는 것을 확인할 수 있었으나 1 mm의 mesh 에서는 카드뮴의 표면장력 때문에 통과하지 못하고 sieve 위에 남아 있는 것을 확인하였다.

2.2.2 카드뮴과 LiCl-KCl 분리 온도 설정

본 실험에서는 첫 번째 sieve를 제거한 후 남은 카드뮴과 LiCl-KCl을 고-액 분리하기 위해서 두 물질의 녹는 점을 고려하여 카드뮴은 액체 상태로 LiCl-KCl은 고체 상태로 공존할 수 있는 온도조건을 찾는 것이 매우 중요하다. 카드뮴의 녹는점은 326 ℃이고 LiCl-KCl의 녹는점은 353 ℃ 이am로 약 30℃의 온도차이가 있음을 확인하였다. 실험 조건으로 330 ℃, 340 ℃ 그리고 350 ℃의 온도조건 하에서 두 물질이 다른 상으로 존재하는 온도를 측정해 보았다. 330 ℃에서는 두 물질이 고체상으로 존재하였고, 350 ℃에서는 두 물질 모두 액체상으로 존재하기 때문에 상분리가 확실히 되지 않는다는 것을 확인하였다. 340 ℃ 온도조건 하에서는 액체 상태의 카드뮴과 고체 상태의 LiCl-KCl로 확실히 분리 되어 두 번째 sieve에 굳어있는 LiCl-KCl를 Fig. 3와 같이 sieve를 들어냄으로써 손쉽게 액체 카드뮴과 분리할 수 있었다.

3. 결론

본 연구에서는 도가니에 섞여있는 모의 U, TRU, LiCl-KCl 공융염 및 카드뮴을 순차적으로 분리하기 위해 장치를 제작하고, 각 물질을 분리하기 위한 온도조건을 확인하였다. 카드뮴은 sieve의 mesh 크기가 2mm이상에서 통과하는 것을 확인하였으며 좀 더 안정한 처리를 위해 3mm 이상의 크기를 사용하는 편이 적당한 것으로 판단된다. 카드뮴과 LiCl-KCl이 340 ℃에서 고체-액체 상태로 나누어져 분리가 용이한 것을 확인하였다. 본 연구에서 제작된 장치를 이용하여 진행한 실험을 통해 우리늄 덴드라이트, 카드뮴, LiCl-KCl 공융염을 각각 분리하였다.

이것으로 LCC전해제련 다음 공정인 TRU 석출물 증류공정에서의 공정조건 설정 및 카드뮴 및 LiCl-KCl 공융염의 처리 과정이 용이할 것으로 판단된다.

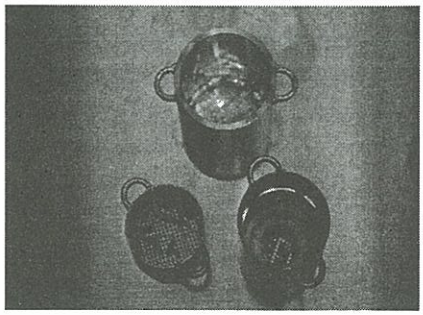


Fig. 3. Result of experiment

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

LiCl 염폐기물 처리시 유동해석에 의한 분리효율 예측

류홍열, 김승현, 송인건, 이종현
충남대학교, 대전광역시 유성구 대학로79
ryu@pyroprocessing.net

1. 서론

pyroprocessing 공정은 전해질로 고온의 용융염을 사용하는 전해질로 사용하는 전기화학적 분리공정이다. pyroprocessing공정의 첫단계인 전해환원의 경우 매우 안정한 LiCl 단일 염을 사용하는데 핵연료안에 포함된 Sr, Cs과 같은 Ⅰ,Ⅱ족의 고방열성 핵종은 Li보다 열역학 적으로 더욱 안정한 염을 형성하기 때문에 공정이 진행될수록 LiCl 염내에 축적된다. 축적된 Sr, Cs핵종은 계속해서 열을 방출하기 때문에 공정시 온도제어의 악영향을 미친다. 염에 축적된 Sr, Cs의 핵종을 분리하는 공정으로 제올라이트를 이용한 이온교환법이 연구되었으나, 제올라이트 이온교환법은 고온에서 제올라이트구조 붕괴로 인한 분리효율 감소와 첨가된 제올라이트 자체가 핵폐기물로 분리되어 현실적으로 공정에 적용하기가 힘든 기술이다[1]. 이를 대체하는 기술로 첨가제가 없는 고-액 분리의 일종인 결정화법이 주목받고 있고 한국원자력연구소에서도 결정화법에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다[2]. 하지만 이러한 연구들이 모두 실험 결과에 의존한 경험적인 연구들뿐, 상업적으로 가기위한 보다 정량적인 연구가 진행되고 있지 않다. 이에 본 연구에서는 결정화법의 일종인 Czochralski cystallization을 모델로 공정변수에 의한 결정의 순도변화를 예측하는 연구를 진행하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

Czochralski crystallization 공정시 분리된 결정의 순도는 Solution의 유동에 의존한다. 분리계수 k'는 식. 1.에 의해

$$k' = \frac{k}{k + (1-k)\exp^{-\frac{R\delta}{D_L}}} \quad \cdots\cdots (1)$$

이때 평형분리계수 k와 용액의 확산계수는 공정됨으로 R(Pulling rate)과 δ(boundary layer thickness)에 의존한다는 것을 알 수 있다. 이를 구형하기 위해 Fig. 1.과 같이 두 개의 domain을 가진 모델을 채택하였고 rotary domain가 회전할 때의 유체의 흐름을 계산하였다. 시스템의 계산한계를 방지하기 위해 fluid domain을 1rpm으로 회전시키고, rotary domain을 41, 61rpm으로 회전시켰다.

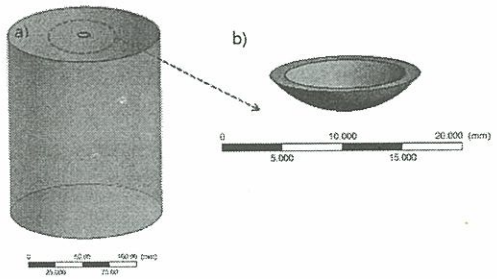


Fig. 1. 두개의 domain으로 이루어져있고, b)rotary domain에 영향에 의해 a) fluid domain이 영향을 받는다

2.2 실험결과

Fig. 2. 와같이 Rotation speed가 61rpm일 때 41rpm으로 회전할 때보다 더욱 높은 분리계수, 즉 높은 순도를 가지는 결정을 얻을 수 있을 것이라고 예상된다. 이 결과는 응고 과정시 molten LiCl salt의 교반이 결정의 순도에 큰 영향을 미친다는 연구와 잘 부합된다[3]. 또한 같은 결정에서 중심부와 표면에서의 분리도가 서로 다르다는 결론을 얻었다. 중심부의 분리계수가 1에 가까워짐으로서 이론적으로 거의 분리가 일어나지 않을 것이라 예상되며, 표면 쪽으로 갈수록 매우 높은 순도의 결정을 얻을 수 있다는 결론을 얻었다.

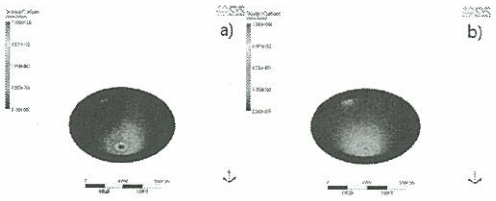


Fig. 2. a) 41rpm, b) 61rpm에 따른 분리계수의 변화

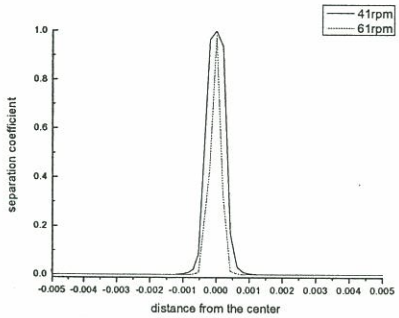


Fig. 3. 결정의 중심에서 거리에 따른 분리계수

3. 결론

본 연구는 Czchralski crystallization 공정에서 공정 변수와 분리계수를 알아 보기위해 상업유동해석 프로그램인 CFX 12를 이용하여 계산하였다. 그 결과 분리계수는 rotation speed에 따라 크게 변하며 회전속도가 빠를수록 순도가 높을 것이라 예상되며, 같은 결정 내에도 부위에 따라 순도차이가 있을수 있다는 결론을 얻었다.

4. 참고문헌

[1] Pereira C, Babcock BD, "Fission Product Removal from Molten Salt Using Zeolite," ANL/CMT/CP-87995, 1996.

[2] Yung-Zun Cho, Jin-Seok Jung, Han-Soo Lee, and In-Tae Kim, "Reuse Technology of LiCl Salt Waste Generated from Electrolytic Reduction Process of Spent Oxide Fuel", Journal of Korean Radioactive Waste Society, Vol.8, No. 1, pp. 57-63, Mar. 2010.

[3] Han-Soo LEE, Gyu-Hwan OH, Yoon-Sang LEE, In-Tae KIM, Eung-Ho KIM and Jong-Hyeon LEE "Concentrations of CsCl and $SrCl_2$ from a Simulated LiCl Salt Waste Generated by Pyroprocessing by using Czochralski Method", J. Nuclear Science and Technology, 46 (4) (2009) 392-397.

[4] S. M. Sze, VLSI Technology, McGraw Hill (1988).

회전형 휘발성 산화장치이용 그래뉼형 원료입자 제조 실험

이재원, 윤여완, 신진명, 이정원, 박장진, 박근일
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
njwlee@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 고온 휘발성 산화공정을 적용한 경우에 원료입자의 형태는 다공성 그래뉼형 및 펠렛형[2]으로 구분하여 연구중이다. 본 연구에서는 회전형 voloxidizer 및 200 g U_3O_8 분말을 이용하여 입자층의 운동형태, 열처리 온도 및 시간, voloxidizer의 회전속도에 따른 그래뉼 회수율과 특성을 분석하였다.

2. 실험

다공성 입자는 U_3O_8 분말 200 g를 휘발성 산화장치에 장입한 후에 반응 온도는 1150과 1200℃, 반응시간은 5에서 10시간, 회전속도는 1에서 5 rpm으로 하여 제조하였다. 열처리는 Ar분위기하에서 수행하였다. 최대 열처리 온도는 voloxidizer의 재질인 Inconel alloy 601의 융점을 고려하여 1200℃로 제한하였다. 열처리 생성 입자들의 입도는 회전방식의 회전체(Retsch사 AS400)를 이용하여 분석을 하였다. 밀도 및 기공율, 구형도, 파쇄강도등과 같은 그래뉼 특성을 측정하였다.

3. 결과 및 토의

Voloxidizer에 U_3O_8 분말 200 g를 장입한 후에 1~5 rpm으로 voloxidizer를 회전시키면서 상온에서의 U_3O_8 미세 입자층의 운동을 CCD 카메라로 관찰한 결과에 의하면 1~3 rpm에서는 slumping 운동 형태로 4~5 rpm에서는 rolling 운동 형태를 보였다. 초기 U_3O_8 미세 입자층의 운동 형태에 따른 입도 제어 및 특성을 분석하기 위해서 voloxidizer의 회전속도를 각각 2 rpm 및 5 rpm로 하여 1150℃에서 5시간동안 Ar 분위기하에서 열처리를 하였다. 열처리하여 얻은 입자층의 운동형태를 알아보기 위해 voloxidizer를 2~5 rpm으로 회전시키면서 입자층 유동을 관찰한 결과에 의하면 열처리시 적용했던 회전속도와는 관계없이 모두 slumping 운동 형태를 보였다. 열처리하여 얻은 입자층의 slumping 수는 2 rpm에서는 62 slumps/min로, 5 rpm에서는 89 slumps/min로 높았다. 그래뉼 회수율은 slumping 수가 낮은 2 rpm에서는 73%로 5 rpm에서의 61%보다 높았다.

Voloxidizer의 회전속도를 2 rpm으로 일정하게 하고 U_3O_8 분말의 열처리 온도 및 시간이 생성 입자의 입도 및 특성에 미치는 영향을 분석하였다. 열처리 조건은 1150~1200℃, 5~10 시간동안 Ar 분위기에서 수행하였다. Fig. 1은 평균입도가 10 ㎛인 U_3O_8 분말을 1200℃, 10시간동안 열처리하여 얻은 UO_{2+y} ($0.25 \leq y < 0.667$) 입자의 형상을 나타낸 사진으로 입자들은 대부분 1 mm 이상의 둥근 형태를 보였다.

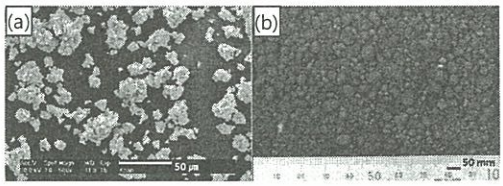


Fig. 1. Change of particle shape and size; (a) starting and (b) product

각 열처리 조건별로 얻어진 생성 입자들에 대해 입도분석을 하여 Fig. 2에 나타내었다. 생성 입자들은 주로 0.5~10 mm이며, 최대 분포를 보이는 입자크기는 2~5 mm였다. 최대 분포 입자 관점에서 보면 열처리 온도 및 시간의 증가에 따라서 그 함량이 증가하였다. 그리고 그래뉼 회수

율은 열처리 온도 및 시간이 증가함에 따라서 증가하였으며 1200℃에서는 80% 이상의 회수율을 보였으며 10시간동안 열처리한 경우 84.5%의 높은 회수율을 보였다. 1200℃에서 열처리 시간이 5에서 20시간으로 증가함에 따라서 밀도는 3.5에서 4.38 g/㎤ 까지 증가하였으며 기공율은 60에서 55.3%로 감소하였다. 구형도는 0.9 이상으로 높았으며 1200℃에서 10시간 열처리를 할 경우에 0.95로 가장 높았다.

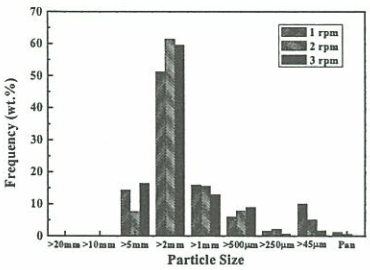


Fig. 2. Particle size distribution

회전속도가 입도 제어 및 특성에 미치는 영향을 분석하기 위해서 열처리 온도 및 시간을 각각 1200℃ 및 10 h로 일정하게 하고 voloxidizer의 회전속도를 1~3 rpm으로 변화시키면서 입도제어 실험을 하였다. 입도분석을 한 결과에 의하면 그래뉼 회수율은 voloxidizer 회전속도가 1에서 3 rpm으로 증가함에 따라서 81.5%에서 88.7%까지 증가하였다. 그러나 그래뉼의 밀도 및 파쇄강도는 2 rpm에서 제조된 경우에 각각 4.38 g/cm^3 및 17 N으로 가장 높았다.

4. 결론

회전형 voloxidizer 및 200 g U_3O_8 분말을 이용하여 입자층의 운동형태, 열처리 온도(1150~1200℃) 및 시간(5~10 h), voloxidizer의 회전속도(1~5 rpm)에 따른 그래뉼 회수율과 특성을 분석한 결과에 의하면 그래뉼 제조조건은 1200℃, 10 h, 2 rpm이 가장 좋았다.

5. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

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.

사용후핵연료 집합체에 대한 외부면 연소도 감마스캐닝을 위한 검출장치 설계 및 소프트웨어 개발

엄성호, 박세환, 오종명, 권인찬, 권형문, 정경채, 조문성, 신희성
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
eom@kaeri.re.kr

1. 서론

본 과제에서는 '사용후핵연료 연소도 효과적용을 위한 연소도분포 측정기술개발' 과제의 일환으로 1차년도(2009~2010년)부터 계속해서 조사후시험시설의 사용후핵연료 저장풀에서 사용후핵연료 집합체를 대상으로 제어봉 안내관에 검출기를 삽입하여 축방향으로 이동시키면서 내부 연소도 스캐닝 측정실험을 수행 완료 하였으며[1], 이어 2차년도(2010~2011년)에는 사용후핵연료 집합체 외부면(4면) 연소도 스캐닝 측정을 위해 검출장치 설계 및 제작되어 실험이 수행될 예정이다.

2. 장치 설계 및 소프트웨어 개발

본 측정장치는 사용후핵연료 집합체에 대한 감마선 분광분석 외부 측정시, 측정방법으로는 면측정법(side measurement method)으로 핵연료 집합체의 4 면에 대한 특성을 서로 비교할 수 있는 장점을 가지고 있다. 이 측정방법은 핵분열생성물의 분포를 확인하는 장치로서 감마선 검출기인 CZT(CdZnTe) 검출기와 Ion Chamber 검출기와 같은 적합한 다중파고 분석기(multi-channel analyzer)를 사용하여 우선적으로 감마스캐닝을 수행할 예정이다. 따라서 그림 1 에 제시된 자동화 장치는 조사후시험시설 저장풀의 카터에 설치하는 전제하에 설계되었다. 레일이 부착된 X-Y 테이블을 카터에 부착 시키고 검출기 이동대를 이 테이블에 설치함으로써, 실험을 수행하지 않을 경우에는 검출기 이동대 상단이 카터의 상단보다 아래에 위치 할 수 있도록 설계 제작된 수중(pool) 벽면의 거치대에 안착하여 갠트리(gantry)가 움직이는데 문제가 없도록 하였다. 그리고 테이블에 서보 스테핑 모터를 부착시키고, 파이프기어를 검출기 이동대에 연결하여 서보 스테핑 모터에 결합시키므로 상·하 이동을 모터에 의해서 제어할 수 있도록 하였다. 제어 판넬에서 검출기의 이동간격 및 정지시간 등을 지정할 수 있도록 하였다. 즉, 특정 지점에서 실험을 시작하여 지정된 간격으로 이동하면서 일정한 시간동안 측정을 할 수 있도록 설계하였다. 그리고 자동화 장치 설치에서는 스테핑 모터와 x-축 레일이 부착된 x-축 테이블을 카터에 고정시키고, 검출기가 이동대가 연결된 파이프 기어를 삽입하였다. 검출기 파이프 기어의 상부에는 부착시킨 전치증폭기(Pre-amplifier)의 함이 갠트리를 움직일 때 갠트리의 하단에 걸리지 않도록 설계함에 따라, 이로 인해 검출기가 이동할 수 있는 범위가 좁혀지는 불편함을 감수해야 했다. 전기장치 설치 및 프로그램 작성에서는 스테핑 모터를 제어하기 위한 PLC (Programmable Logic Controller) 판넬과 드라이브가 결합된 제어박스가 설치되었다[2~4]. 측정시간과 이동간격을 제어할 수 있도록 하였고, 카운터의 조작과 버턴으로 제어를 할 수 있도록 하였다. 기존에 설치된 집합체 내부 감마스캐닝 장치의 문제점은 스테핑 모터에서 반송하는 펄스가 측정장비에 영향을 미쳐 낮은 에너지 영역에서 노이즈가 다량 발생하는 것이었다. 이를 해결하기 위해 측정장비가 지정 위치에 도달하면 측정시간 동안은 스테핑 모터의 전원을 꺼지도록 전기장치를 변형 시켰다. 이렇게 함으로써 노이즈 문제는 해결되었지만 잦은 전원의 개폐로 인해 수명단축 혹은 고장 유발 원인이 되지 않을까 우려 된다. 또한 제어박스와 기존의 측정장치를 연계해서 제어해야 하는데, 이를 위해서는 제어 소프트웨어를 연결하여 통신으로 정보를 교환할 수 있도록 하는 작업이 필요하다. 즉, Ortec사 MAESTRO Programming Library 를 입수하여, 이 프로그램과 제어 소프트웨어를 연결하는 통합 프로그램을 개발하였다. 그러므로 본 프로그램의 전체 알고리즘은 서보 스테핑 모터 구동과 MCA (multi-channel analyzer)의 부분으로 결합되어있다. 그림 2 에 전체적인 알고리즘을 나타내었다. 따라서 본 프로그램은 사용후핵연료 집합체의 축방향 거리

별 감마선의 밀도를 연속측정을 실시함으로써 다량의 실험데이터 생산 및 다변의 측정조건을 실현하기 위해 제작되었다.

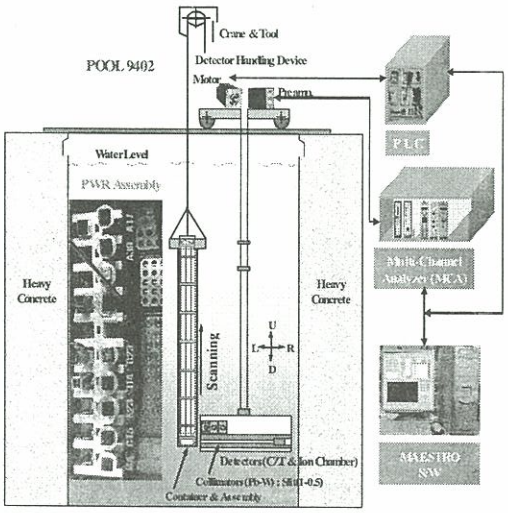


Fig. 1. 집합체 외부면에서 감마스캐닝 시스템 구성도

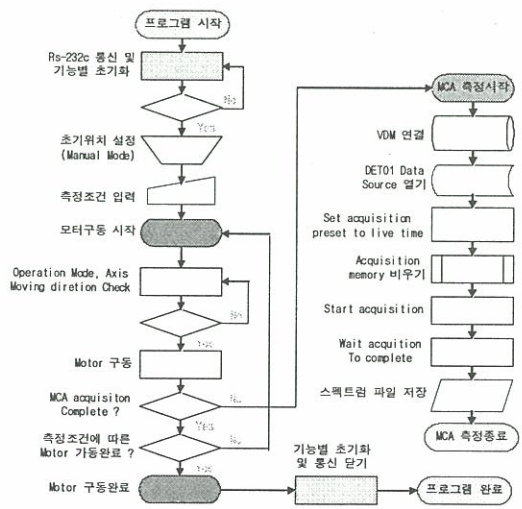


Fig. 2. 자동화 프로그램에 대한 전체 알고리즘

3. 결론

'사용후핵연료 연소도 효과적용을 위한 연소도 분포 측정기술개발' 과제 일환으로 집합체 외부면에서 소형 검출기의 감마선 검출기인 CZT 와 Ion Chamber 검출기를 사용하여 자동 제어프로그램으로 동시에 측정이 가능한 시스템으로 설계 및 제작된 장비를 이용하여 실험이 진행될 예정이다.

4. 감사의 글

본 연구는 원자력 중장기 연구 개발 사업 및 2009년도 지식경제부의 재원으로 한국에너지 기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제(과제번호 : 2009T100100650)의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] 엄성호외 8인, "사용후핵연료 집합체에 대한 내·외부의 연소도 측정", 한국방사성폐기물학회, 춘계학술발표회 논문요약집, pp.293-294, 2010.

[2] Mitsubishi 범용 PLC MELSEC-Q사용자 매뉴얼(상세편), 2001.

[3] Mitsubishi 범용 PLC Q 대응 시리얼 커뮤니케이션 모듈(기본편), 2001.

[4] Mitsubishi 범용 PLC Q 대응 시리얼 커뮤니케이션 모듈(응용편), 2001.

4가지 전처리공정에 있어 핵분열생성물 거동 특성 분석

박장진, 신진명, 이재원, 나상호, 박근일
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
jjpark@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원은 미국 INL연구소와 2007년부터 3년간 INERI과제로 사용후핵연료 고도 휘발성산화 공정 기술개발에 관하여 공동연구를 수행하였다[1, 2]. 이 연구의 일환으로, 전처리 공정별 핵분열생성물 거동특성을 분석하였다.

경수로 사용후핵연료 파이로공정은 크게 전처리 공정, 전해환원공정, 전해정련공정, 전해제련공정, 폐기물처리공정 등으로 이루어져 있다. 이 중 전처리 공정은 핵분열생성물을 제거하고, 제거된 핵분열생성물을 포집하며, 전해환원공정에 적합한 원료물질을 제조하는 중요한 공정이다.

본 연구에서는 각 전처리공정 중 제거되는 핵분열생성물 제거특성 분석을 위해 4가지 전처리 공정 경우를 고려하였다. rod-cut을 전해환원 원료물질로 이용하는 경우, 사용후핵연료 fragment를 전해환원 원료물질로 이용하는 경우, 고도 휘발성산화공정을 이용하는 경우, 저온 휘발성산화공정을 이용하는 경우 등이다.

각 경우에 대하여, 휘발성 핵분열생성물(Kr/Xe, H-3, C-14, I), 준휘발성 핵분열생성물(Cs, Tc, Rb, Ru 등)의 제거 특성과 제거 특성이 갖는 의미에 대하여 분석하였다.

2. 본론

2.1 본 연구에서 고려한 전처리공정

본 연구에서 생각하는 핵분열생성물에는 Kr, Xe, C-14, H-3 와 같은 휘발성핵종, Cs, Tc, I과 같은 준휘발성 핵종(I은 경우에 따라 휘발성핵종으로 분리되기도 함)이 포함된다. 본 공정에서 고려한 전처리 경우는 rod-cut 이용공정 경우, 사용후핵연료 fragment 이용 공정 경우, 고도 휘발성산화공정 경우, 저온 휘발성산화공정 경우 등 4가지 경우에 대하여 평가 하였다.

2.2 각 공정경우별 핵종 제거 특성분석

앞에서 설명한 4가지 경우에 있어 H-3, Kr, Xe, C-14 등 각 핵종별 제거 특성을 분석하여 표 1에 나타내었다.

2.3 각 핵종별 거동 특성 분석

2.3.1 세슘

세슘을 처리하는 기준 공정으로 INL세라믹 폐기물공정으로 하였다. INL 공정에서는 Cs, Sr, TRU, I 가 함유된 LiCl-KCl 염을 제올라이트와 섞어 sodalite 세라믹 형태로 제조한다. 이 폐기물은 고방열핵종(Cs, Sr), TRU를 함유하고 있어 고준위 폐기물로 분류된다. 고도 휘발성산화공정에서 제거할 경우 일정기간 저장후 class C 저준위폐기물이 된다. 뿐만 아니라, 고방열 Cs을 고도 휘발성산화공정에서 제거할 경우 전해환원공정의 LiCl 염의 사용횟수를 늘릴 수 있는 장점이 있다.

2.3.2 테크네튬

테크네튬을 처리하는 기준 공정으로 INL 금속폐기물공정으로 하였다. INL 공정에서는 Tc가 함유된 noble metal을 SUS 피복관, 지르코늄과 섞어 금속폐기물 형태로 제조한다. 이 폐기물은 고 방열핵종(Co-60), TRU를 함유하고 있어 고준위 폐기물로 분류된다. 고도 휘발성산화공정에서 Tc를 제거하여 선택적으로 Tc을 포집할 경우 이는 GTCC 폐기물이되나, 향후 소멸처리 기술이 도입된다면 GTCC폐기물은 저준위폐기물이 될 것이다.

2.3.3 요오드

요오드를 처리하는 기준 공정으로 INL세라믹 폐기물공정으로 하였다. INL 공정에서는 Cs, Sr, TRU, I 가 함유된 LiCl-KCl 염을 제올라이트와 섞어 sodalite 세라믹 형태로 제조한다. 이 폐기물은 고 방열핵종(Cs, Sr), TRU를 함유하고 있어 고준위 폐기물로 분류된다. 고도 휘발성산화공정에서 I를 제거하여 선택적으로 I을 포집할 경우 이는 GTCC 폐기물이되나, 향후 소멸처리 기술이 도입된다면 GTCC폐기물은 저준위폐기물이 될 것이다.

고도 휘발성산화공정에서 요오드를 제거하지 않는다면 요오드는 대부분 CsI 형태로 전해환원 염에 포함되어 현재 개발 중인 결정화법에의한 LiCl 회수에 막대한 지장을 줄 수 있다. 즉, CsI의 용융점 621℃이고 LiCl의 용융점은 610℃ 으로 매우 근접하여 결정화법으로 분리가 어려우리라 예상된다. 따라서 고도 휘발성산화공정에서 CsI의 제거는 반드시 필요하리라 생각된다.

2.3.4 Se, Te, I, Br

Se, Te, I, Br 4가지 핵종은 전해환원공정의 전극을 부식하는 핵종으로 고도 휘발성산화공정에서 이들 핵종을 제거해주면 전해환원공정 전극을 보호하는데 많은 도움을 줄 것이다. 고도 휘발성산화공정에서 I, Br은 99%이상, Se, Te은 50% 이상 제거가능하리라 본다.

3. 결론

본 논문에서는 rod-cut 이용공정 경우, 사용후핵연료 fragment 이용공정 경우, 고도 휘발성산화공정 경우, 저온 휘발성산화공정 경우 등 4가지 전처리 경우에 대하여 핵종 제거 특성, 이 핵종 제거 특성이 전공정에 미치는 영향에 대하여 분석하였다. 4가지 경우의 경우 고도 휘발성성 산화공정이 전해환원 염 사용횟수 증가, 염 폐기물 발생절감, 요오드 핵종 제거 효율성, 전해환원 전극 부식 방지 등에서 장점이 있어 4가지 경우 가장 우수한 것으로 분석 되었다.

Table 1. Fission product behaviour for each case

	rod-cut 이용공정	fragment 이용공정 경우	고도 휘발성산화공정 경우	저온 휘발성산화공정
H-3	대부분 전해환원 공정에서 휘발	대부분 전해환원 공정에서 휘발	100% 휘발	100% 휘발
Kr, Xe, C-14	대부분 전해환원 공정에서 휘발	대부분 전해환원 공정에서 휘발	100% 휘발	30% 정도휘발, 나머지는 전해환원 공정에서 휘발
Cs	대부분 전해환원 공정에서 염으로 이동	대부분 전해환원 공정에서 염으로 이동	95%이상 휘발	10% 미만, 나머지는 전해환원공정에서 염으로 이동
Tc	전해정련에서 제거해야함	전해정련에서 제거해야함	90%이상 휘발	1% 미만, 전해정련에서 제거해야함
I, Br	대부분 전해환원 공정에서 염으로 이동, 전극 부식	대부분 전해환원 공정에서 염으로 이동, 전극 부식	99%이상 휘발	1%미만, 전극 부식
Se, Te	대부분 전해환원 공정에서 염으로 이동,	대부분 전해환원 공정에서 염으로 이동	50% 정도 휘발	1% 미만, 전극 부식

4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

5. 참고문헌

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

[2] 박장진 등, "사용후핵연료 고도 휘발성 산화공정 기술개발", KAERI/RR-3212/2009, 한국원자력연구원, 2010.

Thermal Cycle에 의한 니켈계 구조재료의 부식거동

조수행, 이경현, 홍순석, 오승철, 허진목, 이한수
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
nshcho1@kaeri.re.kr

1. 서론

산화물 사용후핵연료의 전해환원공정은 고온 용융염 LiCl-Li_2O계에서 우라늄산화물을 전해환원하는 공정으로 음극에서 우라늄메탈로 환원되며, 양극에서 산소가 발생된다. 전해환원공정의 주요부분인 반응기는 열 하중에 고려되는 thermal cycle에 의해 화학적, 기계적 및 열적 측면에서 안정성을 만족시키는 구조재료로 설계되어야 한다. 본 연구에서는 전해환원공정장치에서 반응기 구조재료의 부식에 영향을 미치는 주요인자인 thermal cycle을 고찰하여 전해환원공정의 반응기 구조재료개발에 필요한 기초자료를 도출하고자 한다.

2. 본론

본 연구에서 사용한 Ni-Base 합금인 Inconel 600(73.7Ni-16.3Cr-8.15Fe-0.2Si-0.3Mn), Haynes 263(51.4Ni-20.0Cr-19.2Co-2.49Ti-5.8Mo), Inconel 625(65.3Ni-21.2Cr-0.7Fe-3.4Nb-8.6Mo)를 시편크기, 70mm(L)×15mm(W)×3mm (T)로 가공하여 사용하였다. Thermal cycle 의한 부식실험은 LiCl-1%Li_2O, 650℃에서 24시간 유지하고 공냉하여 48시간 유지를 1 cycle 주기로 12회 까지 수행하였다. 실험 종료 후 부식된 시편을 증류수에서 초음파 세척하였으며, 부식생성물의 분석, 미세조직 관찰을 위해 XRD, SEM과 EDS를 사용하여 분석하였다. Fig. 1은 thermal cycle에 의해 부식된 Haynes 263 시편의 표면부식층의 XRD 분석결과를 나타낸 것이며, Fig. 1에 의하면 열 반복의 증가에 따라 최외각층은 금속간화합물인 $FeNi_3$로 나타났다[1]. $LiCrO_2$ 산화물은 지속적으로 형성되었으며, 열 반복 횟수의 증가에 따라 부식층 직하에 Ti-산화물층이 형성되는 것으로 나타났다[2]. 이는 Fig. 2의 표면단면조직과 원소분포도의 결과에서도 알 수 있다. 내부부식은 국부부식형태로 나타났으며, 12 회 반복 때, 총 부식층의 깊이는 25㎛ 범위였다.

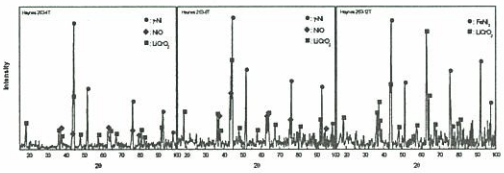


Fig. 1. XRD patterns of the surface of Haynes 263 specimen corroded at 650℃ up to 12 cycles

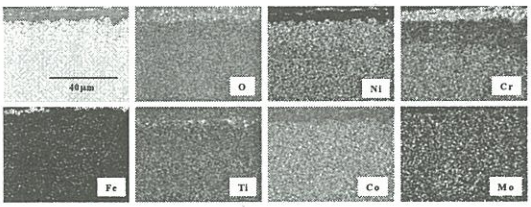


Fig. 2. Cross-sectional SEM image and elemental maps of Haynes 263 specimen corroded at 650℃ for 12 cycles

Fig. 3과 4는 thermal cycle에 의해 부식된 Inconel 600 시편의 표면부식층의 XRD 분석결과 및 단면조직과 원소분포도를 나타낸 것이다. Fig. 3과 4에 의하면 부식층에는 Haynes 263과 같이 금속간화합물의 형성은 없으나, $LiCrO_2$ 산화물층은 나타났다. 아울러, 내부부식은 입계부식의 형태로 진행하는 경향을 보였으며, 12 회 반복 때, 총 부식층의 깊이는 36㎛ 정도로 나타났다.

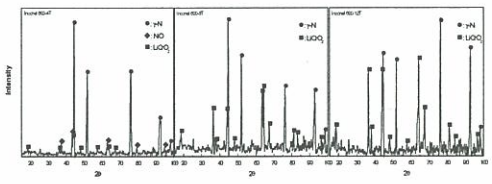


Fig. 3. XRD patterns of the surface of Inconel 600 specimen corroded at 650℃ up to 12 cycles

Fig. 5는 thermal cycle에 의해 부식된 Inconel 625 시편의 표면부식층의 XRD 분석결과를 나타낸 것이다. Fig. 5에 의하면 부식실험 초기에는 금속간화합물이 형성되었으나, 열 반복을 증가하

면 형성되지 않는 것으로 나타났다. Fig. 6은 thermal cycle에 의해 부식된 Inconel 625 시편의 표면단면조직과 원소분포도를 나타낸 것이다.

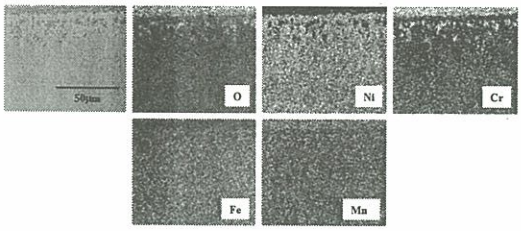


Fig. 4. Cross-sectional SEM image and elemental maps of Inconel 600 specimen corroded at 650℃ for 12 cycles

Fig. 5와 6에서 보는 바와 같이 $LiCrO_2$ 산화물이 형성되었으며, 내부부식층의 진행은 전면부식형태를 나타내었다. Haynes 263과 Inconel 600의 내부부식층의 진행과는 다른 경향을 나타내었다. 아울러, 12 회 반복 때, 총 부식층의 깊이는 약 81㎛로 나타났다.

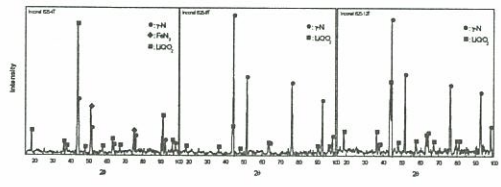


Fig. 5. XRD patterns of the surface of Inconel 625 specimen corroded at 650℃ up to 12 cycles

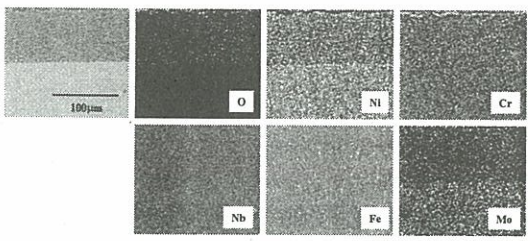


Fig. 6. Cross-sectional SEM image and elemental maps of Inconel 625 specimen corroded at 650℃ for 12 cycles

3. 결론

연구의 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

Haynes 263의 부식층은 연속적이고 조밀한 부식층을 형성하였으며, 부식층 직하에 Ti-산화물층을 나타내었다. 이로 인해 산소의 내부확산을 억제하는 역할로 부식층 깊이로 보아 Inconel 625와 600보다 부식속도가 낮게 나타나는 것으로 보이며, 또한 내부부식층이 국부부식 형태로 진행하는 경향에 의한 것으로 판단된다. Inconel 600의 부식층은 연속적인 Cr-산화물층으로 형성되었으며, 부식층 직하에 Fe-Ni고갈현상을 나타내었다. 내부부식층은 입계부식형태로 진행하는 것으로 나타났다. Inconel 625의 부식층은 얇은 Cr-산화물층으로 형성되었으며, 내부부식층은 전면부식형태로 진행하는 것으로 나타났다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

5. 참고문헌

[1] G. Cacciamani, J. De Keyzer, R. Ferro, U. E. Klotz, J. Lacaze and P. Wollants, Intermetallics 14, 1312(2006).

[2] S. H. Cho, J. M. Hur, C. S. Seo and S. W. Park, J. Alloys Compd., 452, 11(2008).

LiCl 용융염 내 Sr, Cs 농도변화에 대한 Li_2O 용해도 변화 측정 연구

김대현, 배상은, 김종윤, 박용준, 송규석
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
jparky@kaeri.re.kr

1. 서론

건식 파이로 공정은 전해환원, 전해정련, 전해제련 공정으로 나눌 수 있으며 용융염 전해환원 공정은 650℃, LiCl 용융염을 전해질로 사용하여, 환원전극 바스켓에 담겨 있는 산화물 사용후핵연료(U_3O_8)가 전해반응의 진행에 의해 금속 우라늄 인곳(Ingot)으로 변환시키는 공정이다. 이 전해환원 공정에서 세슘(Cs)과 스트론튬(Sr)과 같은 고방열 핵종을 용융염에 용해시켜 사용후핵연료로부터 분리함으로써 사용후핵연료의 체적 및 방사선 준위를 감소시키는 효과가 있다.

전해환원 반응은 Fig. 1에 나타낸 바와 같이 환원반응이 진행되는 음극에 산화우라늄 분말을 충진한 다음, 전위를 가해주면 용융염에 존재하는 리튬이온의 환원 및 이 때 발생하는 금속 리튬과 산화우라늄의 화학반응이 일어나 우라늄은 환원되어 금속이 되며, Li은 산화되어 산화리튬(Li_2O) 형태로 LiCl 용융염에 용해된다.

전해환원공정에서 반응초기에 일정 Li_2O 농도를 첨가하는데, 이는 고온 용융염 내 음극에서 일어나는 환원반응의 상대반응으로 양극에서는 산화반응이 일어나는데 고온 용융염 내 Li_2O가 없을 때 양극인 백금 전극의 산화해리 반응이 일어나 결국 값비싼 백금 전극의 손실을 초래하는 것을 방지하기 위함이다. 뿐만 아니라 염소기체 발생으로 인하여 용융염 내 염소기체 농도를 증가시켜 공정효율을 저하시키는 것을 예방하기 위함이다.

용융염 내에 생성된 산화리튬의 양을 정확히 측정하는 것은 진행 중인 공정 반응도를 측정하는 수단일 뿐만 아니라, 생성물인 금속우라늄 양을 어림할 수 있는 정보를 제공해준다. 또한 생성된 산화리튬의 양이 염화리튬 내의 용해도를 초과할 경우에는 환원된 금속과 함께 침전됨으로서 금속의 안정성에 영향을 미칠 수 있으며 일부 금속들을 다시 산화시킬 수 있다는 것이 보고된 바 있다.[4]

전해환원 공정이 진행됨에 따라 용융염 내에서는 Cs 및 Sr과 같은 고방열 핵종이 증가하게 된다. Simfuel을 이용한 실험에서 100시간의 공정시간 후에 용융염 내에 발생되는 Cs의 양은 약 400ppm 정도로 증가되었다[5]. 이와 같이 용융염 내에 Cs 또는 Sr의 농도가 증가하게 되면 Li_2O의 용해도의 변화가 예상된다. 650°C에서 LiCl에 대한 CsCl, $SrCl_2$의 용해도는 각각 47.1 및 37.8로 나타났으며, Li_2O의 용해도는 8.7 wt%로 알려져 있다[6]. 하지만 고온 용융염에 녹아있는 CsCl, $SrCl_2$와 같은 용질의 농도에 따른 Li_2O의 용해도에 대한 정보는 아직 미비하다. 본 연구에는 전해환원 공정 개발을 위해 필요한 고온 LiCl 용융염 내 CsCl, $SrCl_2$의 농도에 따른 Li_2O의 용해도 변화를 확인하였다.

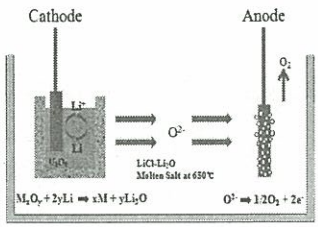


Fig. 1. Concept of an electrolytic reduction process of uranium oxide in a LiCl-Li_2O molten salt medium

2. 실험

LiCl 및 Li_2O를 다루는 모든 실험은 아르곤으로 채워진 글러브 박스에서 실험을 수행하였다 (H_2O<1ppm, O_2<2ppm). 글러브 박스 하단부에는 온도를 650℃로 유지할 수 있는 전기로를 부착하여 Li_2O 용해도 실험을 수행하였다. Li_2O 용해도 실험은 Fig. 2에 나타낸 것과 같이 유리질 탄소 용기와 튜브형태의 마그네시아 필터를 이용하였으며, 산염기적정법을 이용하여 용해도를 측정하였다.

Fig. 2에 보듯이, 유리질 탄소 용기에 LiCl 40g을 넣고 650℃까지 온도를 올린 후 과량의 Li_2O를 10g 가하였다. 시료가 완전히 용해되고 온도가 안정화되기 위해서 3시간을 방치시켜 둔 후, 마그네시아 필터를 용기 안에 넣고 온도가 일정하게 유지된 상태에서 마그네시아 필터 안에 있는 용융염 시료를 주사기로 이용하여 포집하였다.

Fig. 2에 나타낸 바와 같이 유리질 탄소용기를 2개를 장착함으로써 중탕 개념을 도입하여 시료의 온도를 일정하게 유지시켰다.

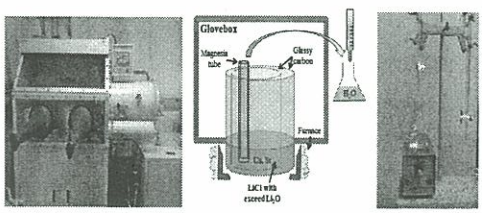


Fig. 2. Schematic drawing and photo of experimental apparatus for measuring Li_2O solubility

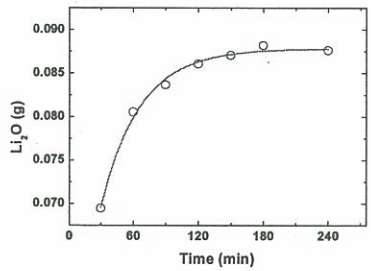


Fig. 3. Concentration changes of Li_2O as a function of time

3. 결과

3.1 Li_2O의 용해도

Fig. 3은 전기로에 들어있는 유리질 탄소에 Li_2O를 넣은 후 시간에 따라 녹아있는 Li_2O의 농도를 측정한 결과이다. Li_2O를 첨가한 후 초기 120분 동안은 Li_2O가 빨리 녹아들어가고 180분에 이르러 거의 일정해짐을 알 수 있다. 따라서, 고온 LiCl 용융염에 대한 Li_2O의 안정된 용해도 값을 얻기 위하여 180분 이상의 용해 시간을 기다린 후에 시료를 포집하여 측정하였다.

3.2 Sr, Cs 농도변화에 따른 Li_2O 용해도 변화

Fig. 4는 온도 안정화가 이루어지는 시점에서 시료를 포집하여 측정된 CsCl의 농도에 따른 Li_2O의 용해도를 나타내었다. CsCl 농도가 1 mol%일 때에는 CsCl가 없는 경우 Li_2O의 용해도인 11.6 mol%에 비해 용해도가 소량 감소하였으며 CsCl의 농도가 증가함에 따라 Li_2O의 용해도가 선형적으로 감소함을 알 수 있었다. 또한 고온 LiCl 용융염에 녹아있는 $SrCl_2$의 농도에 따른 Li_2O의 용해도를 측정하였으며 이 결과는 Cs의 경우와 반대로 선형적으로 증가함을 나타내었다.

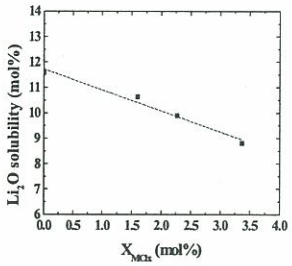


Fig. 4. Solubility changes of Li_2O as a function of salt content.

4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

5. 참고문헌

[1] B. H Park, I. W. Lee, C. S. Seo, "Electrolytic reduction behavior of U_3O_8 in a molten LiCl-Li_2O salt", Chem. Eng. Sci., 63, 3485-3492, 2008.

[2] S. M. Jeong, H. Shin, S. Hong, J. Hur, J. B. Do, H. S. Lee, "Electrochemical reduction behavior of U_3O_8 powder in a LiCl molten salt", Electrochim. Acta, 55, 1749-1755, 2010.

[3] S. Park, C. Seo, D. Kang, S. Kwon, S. Park, "Study of the electrolytic reduction of uranium oxide in LiCl-Li_2O molten salts with an intergrated cathode assembly", J. Kor. Radioact. Wast. Soc., 3(2), 105-112, 2005.

[4] W. H. Kim et. al., "Development of Advanced Spent Fuel Management Techmology", KAERI/RR-2133/2000, 2001.

[5] B. Park et. al., "Development of head-end pyrohemical reduction process for advanced oxide fuels", KAERI/RR-2939/2007, 2007.

[6] H. S. Lee et. al., "Development of volume reduction technolgy for PWR by pyroprocessing" KAERI/RR-3132/2009, 2009.

[7] Y. Kado, T. Goto, R. Hagiwara, "Dissolution behavior of lithium oxide in molten LiCl-KCl systems", J. Chem. Eng. Data, 53, 2816-2819, 2008.

[8] Y. Sakamura, "Solubility of Li_2O in molten LiCl-MClx (M=Na, K, Cs, Ca, Sr, or Ba) Binary systems", J. Elec. Soc., 157(9), E135-E139, 2010.

저연소도에서 Am에 의한 SFR 금속연료 헬륨방출 평가

이병운, 천진식, 김준환, 이찬복
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
bolee@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로프로세싱과 연계된 U-TRU-Zr 금속연료 및 U-Zr 금속연료는 소듐냉각고속로 (SFR)의 핵연료로 선정되어 개발되고 있다. U-TRU-Zr의 Am(아메리슘)은 노내에서 헬륨 기체를 생성하며, 생성된 헬륨은 연료봉 내의 플레넘 공간으로 방출되어 금속연료봉의 건전성에 영향을 미칠 수 있다. 본 논문에서는 SFR용 Am 함유 U-TRU-Zr 금속연료에서 Am에 의해 발생하는 헬륨가스 방출조건을 설정하고, 저연소도에서의 헬륨가스 방출 거동을 비교 평가하였다.

2. 저연소도에서 Am에 의한 헬륨방출 평가

2.1 개요

헬륨방출 거동 평가를 위하여 미국 INL의 AFC-1자료[1]를 분석한 결과, 방출 거동은 Am이 첨가되더라도 U-Pu-Zr의 핵분열기체방출 거동과 유사한 것으로 평가되었다. 이에 따라 MACSIS[2]에 헬륨 가스양을 포함시켜 핵분열기체 방출량을 계산하도록 하였으며[3], AFC-1 금속연료의 저연소도에서 헬륨방출을 예측하기 위하여 헬륨방출 요건을 설정하였다.

2.2 He 방출거동 모델

금속연료에서 핵분열 기체는 우선 연료 기지내에서 결정립계로 이동한 후, 결정립계에서 연료의 플레넘과 같은 빈 공간으로 방출된다. 또한 연료 심내에 잔류되어 있는 핵분열기체는 기포성장을 통하여 연료 팽윤을 일으키게 된다.

본 연구에서는 헬륨방출 거동도 핵분열기체 방출 거동과 동일하다고 가정하였다. 그림 1은 핵분열기체 방출 및 헬륨 방출 개념도이다. 헬륨 방출 거동은 결정립계 내부 및 결정립계 거동을 연계하여 모델링되었다.

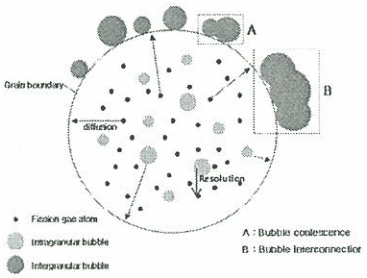


Fig. 1. Concept of He release model

결정립계 내부의 헬륨 방출모델에 대해서는 Booth의 고전적 확산 이론 및 Notley의 개념을 연계한 Speight 모델[4]을 적용하였다. 핵연료봉내 자유공간으로의 헬륨 방출을 계산하기 위해서는 먼저, 결정입계에서의 핵분열생성 기체원자들에 의해 형성되는 기포 생성/성장, 기체방출, 축적된 기포크기 분포도를 계산하고 여기서 입계면에서의 임계조건을 고려하여 헬륨 방출을 계산하였다.

2.3 결정립계의 헬륨가스 방출 조건

결정립계에서의 헬륨 가스의 기포크기 분포는 기존의 핵분열기체 분포보다 작다고 가정하였다. 따라서 헬륨 기포는 핵분열 기포보다 쉽게 확산된다. 연소도에 따라 헬륨 기포가 증가하고 임계에 도달하면 헬륨가스는 방출된다.

금속연료 미세구조 평가에 따르면 금속연료는 라미나 구조를 가지며 이 경우 결정립 반경은 약 1 μm로 고려된다. 이에 따라 금속연료에서는 헬륨가스 및 핵분열가스가 쉽게 방출된다고 평가된다. 기존의 금속연료 시험결과에 따르면 금속연료 팽윤이 10%에 도달하면 기공이 연결되므로, 이 경우 금속연료의 모든 유효 결정립 크기를 1 μm 이하로 가정하였다.

또한 Barn 이론에 의하여 팽윤이 33%에 도달하면 모든 기체가 방출되기 시작하므로 이 경우에는 유효 결정립 크기를 0.1 μm이하로 설정하였다. 이에 따라 본 연구에서는 다음과 같은 가정 및 조건이 헬륨 방출 모델에 입력되었으며, 그림

2에 헬륨가스 방출 계산흐름도를 나타내었다.

$$r_{He,i}^2 = \frac{1}{2} r_{FG,i}^2$$

$$D_s^{He} = D_s^{FG} \quad (D_b \propto \frac{D_s}{r^4} \text{ 인 경우})$$

$$E_t \le 1\mu m \quad (\Delta V > 10\% \text{ 인 경우})$$

$$E_t \le 0.1\mu m \quad (\Delta V > 33\% \text{ 인 경우}) \cdots\cdots (2)$$

여기서 $r_{He,i}^2$ i 크기의 헬륨가스 기포, $r_{FG,i}^2$ 는 i 크기의 핵분열가스 기포, D_s^{He} 는 헬륨 기포 확산계수, D_s^{FG} 는 핵분열기체 기포 확산계수, D_b 는 기포 확산계수, D_s 는 표면확산계수, E_t 는 결정립 유효두께, ΔV 는 팽윤.

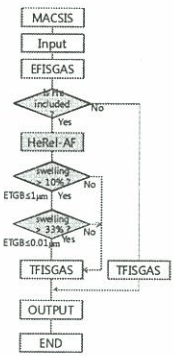


Fig. 2. Calculation flow for the helium gas release

2.4 헬륨방출 비교 평가

AFC-1B 및 AFC-1F 조사시험에서 저연소도에서의 헬륨방출 거동 및 핵분열가스 방출거동은 같은 거동을 보였으나, 핵분열 가스 방출률은 약 0-36% 그리고 헬륨방출은 그보다 낮은 0-15%의 방출률을 나타내었다.

그림 3에 측정값 및 본 연구에서 개발된 이론 모델에 의해 계산된 헬륨 방출율을 비교하였다. 실험결과에 따르면 어느 정도의 잠복기가 존재하며 약 6E20 f/cm^{3}의 연소도에서 헬륨방출의 증가가 시작되었다.

핵분열 가스 방출 모델에 의하면, 결정립계에서의 가스량이 임계값에 도달했을 때 방출이 시작된다. 본 연구에서는 헬륨기포 크기 분포가 핵분열가스 기포 크기의 약 절반정도로 가정하였으므로, 헬륨 방출을 위한 임계값에 도달하는 시간이 지연되었다.

그러나 헬륨 기포의 확산계수를 핵분열가스의 4배 정도로 고려하였으므로 고 연소도에서는 핵분열가스 방출률과 같거나 클 것으로 예상된다. 또한 그림 3에 나타난 것과 같이 만약 헬륨 기포의 확산계수를 핵분열 가스의 10배 정도로 고려한다면 4E20 f/cm^3 에서 방출이 시작되는 것을 알 수 있다.

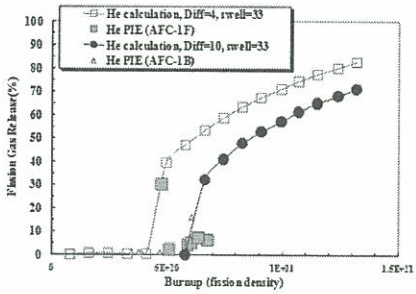


Fig. 3. Comparison with measured data and calculated results

비록 헬륨기포 분포 등의 자료가 아직 측정되지는 않았지만, 본 연구에서 개발된 헬륨방출 모델은 저연소도에서 낮은 방출률을 나타내는 헬륨 방출 거동을 잘 모사하며 AFC-1에서 측정된 시험자료와 일치하는 좋은 결과를 나타내는 것으로 평가되었다.

3. 결론

파이로프로세싱과 연계된 U-TRU-Zr 금속연료는 Am에 의해 헬륨이 생성되고 방출되는 영향을 고려하여야 한다. 이를 위하여 INL의 AFC-1 시험자료를 활용하여 핵분열기체 방출 자료를 분석하였으며, MACSIS 코드 내에 저연소도에서의 헬륨 방출 모델을 설치하고 비교한 결과, AFC-1에서 측정된 시험자료와 일치하는 좋은 결과를 나타내는 것으로 평가되었다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발사업의 일환으로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

5. 참고문헌

[1] Bruce Hilton et al., INL/EXT-05-00785, 2006
[2] W. Hwang, et al., Nucl. Tech. Vol.123, Aug. 1998.
[3] B. O. Lee, et al., 2010 Spring KRS Conference, May. 2010.
[4] R. J. White et al., JNM 118 (1983) 1-38.

Lab. scale 전해정련장치에서의 primary, secondary전류밀도 분포 비교

김승현, 류홍열, 이종현, 박성빈*, 김정국*, 이한수*
충남대학교 녹색에너지기술전문대학원, 대전광역시 유성구 대학로79
*한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045번지
ksh@pyroprocessing.net

1. 서론

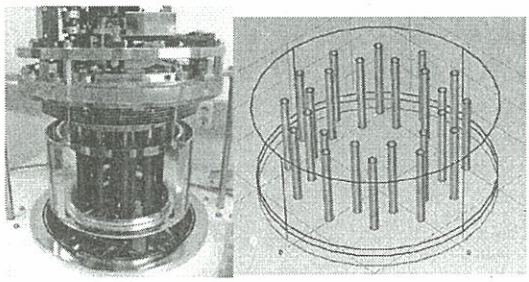
최근 지구 온난화와 화석연료의 고갈로 인해 미래 에너지원으로 원자력의 비중은 점차 증가될 것이다. 하지만 이와 더불어 부산물로 발생하는 사용후핵연료(spent fuel)의 발생 누적량 또한 기하급수적으로 증가할 것이다. 지속가능한 발전을 위해서는 이 사용후 핵연료의 안전하고 효율적인 처리 방안이 필요한데 그 대안으로 pyroprocessing기술이 대표적이다. pyroprocessing은 플루토늄을 따로 분리하지 않고 TRU (Np, Pu, Am, Cm 등)와 함께 회수하여 재활용하기 때문에 기존의 습식 재처리공정에 비해 핵확산 저항성(proliferation)이 매우 높게 평가되고 있다. 사용후 핵연료에 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 좁힘으로서 전기저항을 줄이며 음극의 배열을 달리하여 최적의 전기장을 발생시켜 효율성을 높이는 방법이 있다. 이러한 효율성 향상을 위해서는 많은 실험적인 노력이 필요한데 본 시뮬레이션을 통해 전해정련장치를 scale-up하는데 필요한 기초데이터 확보에 기여하며 최적의 전극 배열 형태를 예측하는데 도움을 줄 수 있다.

따라서 본 연구에서는 전기장 해석에 특화된 상업적 유동해석 코드인 Comsol 4.1의 batteries and fuelcell모듈을 이용하여 primary, secondary current density distribution 에 대해 알아보고 전기장 비교 분석을 통해 음극의 우라늄 전착에 관한 최적화(optimization)에 대하여 알아보고자 하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

Lab. scale전해정련반응기에서의 전기장 분포를 알아보기 위해 기존 2차원 해석과는 다른 3차원 모델해석이 이루어졌으며 primary, second current density distribution 비교 해석이 이루어졌다. 실제 실험장치와 전산해석 수행을 위한 값을 Fig.1에 나타내었다.



Cathode	value
cathode diameter, cm	2cm
cathode length, cm	20cm
total cathode area, cm^2	2818
Anode	**value**
total anode basket area, cm^2	3849
Parameters and thermodynamic data	**value**
exchange current density(A/m^2)	0.06
Tafel slope(mV)	524.71

Fig. 1. Lab. scale 전해정련장치와 제원

secondary current density distribution 모델의 경우 i_0(exchange current density) 값은 실제 실험식과 비교를(fig.2) 통하여 0.06A일 때 가장 유사한 분포를 보였다. 이 값을 전산해석에 이용하였다.

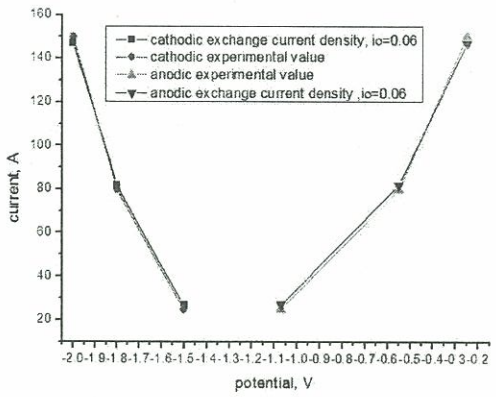


Fig. 2. 실제 실험값과 교환전류밀도 i_0=0.06 일때의 current-potential 거동

2.2 실험결과

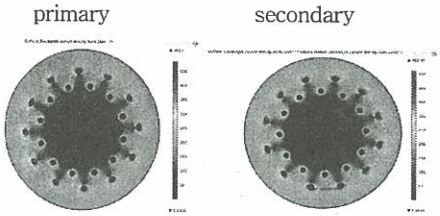


Fig. 3. 1차, 2차 전류밀도 분포 비교

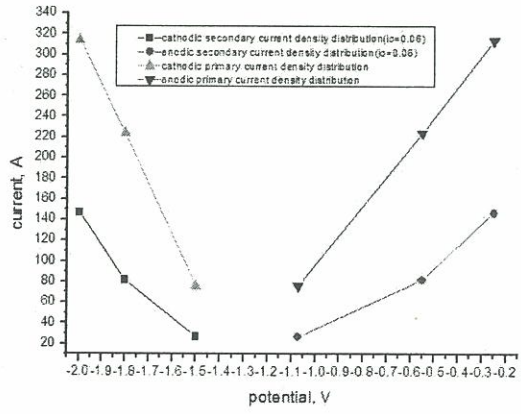


Fig. 4. primary, secondary모델에서의 current-potential 거동

양극(-0.5V)과 음극(-1.5V)에 전압을 가해 주었을 때 Fig.3과 같은 전류밀도 분포를 보였다. 두 모델 모두 음극 바깥쪽 열에서 가장 높은 전류밀도 분포를 보였고 secondary 모델은 primary모델과 비교했을 때 전극 표면에 생기는 과전압을 구현하여 상대적으로 낮은 전류밀도를 확인할 수 있었다. 전위에 따른 전류변화를 Fig.4에 나타내었다.

3. 결론

과전압(overpotential)을 고려한 해석을 바탕으로 Lab. scale 전해정련기의 음극에 대한 전류밀도 분포를 확인하였다. 실제 Lab. scale전해정련장치의 거동과 전산모사 결과 유사한 값을 얻음으로 추후 공학규모 전해정련장치로의 scale-up하는데 필요한 전착전위 데이터를 예측하는데 큰 의의가 있는 것으로 사료된다.

4. 감사의 글

본 연구는 한국연구재단 원자력연구개발사업의 기금을 지원받아 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

5. 참고문헌

[1] Three-dimensional multispecies current density simulation of molten-salt electro-refining , J. of Alloys and Compounds 503 (2010) 177 - 185.

[2] Modeling and analysis of a molten-salt electrolytic process for nuclear waste treatment, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 280, No.2 (2009) 401 - 404.

제3분과

방사성폐기물 처리 및 제염해체 (Oral)

빈 면

폐기된 라듐(Ra-226)선원 안전조치

최광섭, 한은덕, 이정돈, 정진우
한국방사성폐기물관리공단, 대전시 유성구 대덕대로 1045
choiks@krmc.or.kr

1. 서론

원자력발전과 방사성동위원소(RI ; Radioisotope)를 이용하는 과정에서 필연적으로 방사성폐기물이 발생된다. 한국방사성폐기물관리공단 RI관리팀에서 운영중인 RI폐기물 폐기시설에 저장관리중인 폐기된 라듐선원을 장기간 보관할 경우 α붕괴를 일으켜 라돈가스를 방출하게 된다. RI폐기시설내의 공기중 방사능농도를 개선시켜 방사선작업 종사자의 피폭 예방 및 저감화에 기여하고 추후 경주 방폐물처분장으로 이송시 운반요건을 충족시키고 RI폐기물 관리의 안전성을 위해 한국방사성폐기물관리공단 RI관리팀에서는 국내에 저장중인 폐기된 라듐선원을 누설사고 없이 성공적으로 안전조치작업을 수행하였다.

2. 본론

2.1 잘 쓰면 약이 되는 라듐

라듐(Ra-226)선원은 반감기가 1600년으로 길고 장기간 보관할 경우 α붕괴를 일으켜 딸 핵종으로 라돈가스를 방출하게 된다. 이 라돈가스는 2 ~ 3일이 지나면 다른 방사성원소로 붕괴되고, 붕괴된 원소가 대기의 먼지를 끌어들여 공기오염의 원인이 되기도 한다.

1988년 라듐을 발견한 퀴리부인은 암 치료에 사용할 것이라며 특허를 내자는 주변의 권유를 뿌리치고 라듐 분리기술을 모두에게 공개 했었다. 그 뒤로 라듐은 기적의 물질이라 불리며 치약과 물, 화장품 등에 포함되어 선풍적인 인기를 얻었다. 하지만 제대로 된 연구가 없었던 탓에 부작용이 발생하게 되었고 1931년 라듐의 시판이 금지되었다.

그로부터 80여년이 지난 지금 라듐은 전문적인 연구를 거치면서 우리생활에 유용한 물질로 자리 잡았다. 무엇보다 병원에서 암 진단 및 치료에 가장 널리 쓰이고 있다. 피부와 신경통, 피로회복 등에 좋다고 알려진 라돈 탕 또한 라듐성분이 들어 있는데 이와 같은 쓰임새만 봐도 라듐이 우리생활에 얼마나 많은 영향을 미치고 있는지 알 수 있다.

2.2 폐라듐 안전조치작업 절차

폐기된 라듐선원 안전처리 기술은 IAEA와 오스트리아 Seibersdorf 연구소가 공동으로 개발한 프로그램으로 국제적으로 인정된 기술이다. 1999년 IAEA로부터 기술전수를 받은 뒤 2000년부터 2004년까지 IAEA의 지원 하에 한국원자력연구원과 한국전력에서 동남아 4개국(태국, 미얀마, 싱가폴, 쿠웨이트)을 대상으로 안전조치를 수행했던 경험이 있다.

라듐선원의 안전조치 작업에 앞서 각종 필요장비를 설치 및 점검하고 안전성을 확인한 후 접수, 이동, 용접, 누설시험 구역 등 4개 작업구역을 설정하였다.

공단에서는 2010년 3월부터 안전처리 작업을 시작하여 총 478개의 선원중 이미 밀봉되었거나 더 이상 안전조치가 불가능한 선원 39개를 제외한 439개 선원에 대하여 자체인력만으로 안전조치 작업을 수행하였다.

먼저 RI이용기관으로부터 의뢰받은 선원증명서와 선원이 일치하는지를 확인하여 장기 저장 및 처분을 위해 선원의 규격, 방사능량, 형태, 수량 등의 정보를 보존하는 작업을 수행한다. 폐기된 라듐선원의 형태는 튜브, 침상, 원판, 분말형태로 선원이력에 대한 확인 작업을 먼저 시행한다. 원통형의 납 차폐용기는 9개의 작은 캡슐과 1개의 큰 캡슐을 넣을 수 있도록 제작되어 있는데 하나의 캡슐에 약 50 mg씩 분배하여 봉합 처리하여 납 차폐용기 한 개에 500mg 이내로 분배한다.

이 과정에서 발생할 수 있는 라돈가스는 후드와 필터를 통해 2차례 공기정화후 시설내 환기설비에 연결되어 있으므로 안전하다.

Table 1. Type of spent radium source

Type	Diameter (mm)	Length (mm)	Activity (mCi)	비 고
튜브	5.0 ~ 10.0	25 ~ 40	1.5 ~ 40	
침상	1.1 ~ 1.95	11 ~ 58	1 ~ 3	
원판	60	5	0.01	
분말	-	-	-	

분배과정을 거친 캡슐은 아르곤 용접을 통해 누설여부를 검사한다. 만약 누설이 감지되면 다시 용접을 실시한다. 10개의 캡슐에 담긴 라듐선원은 납 차폐용기로 포장되며 차폐용기 표면에는 방사능량과 수량 등의 정보와 위치를 기록한다. 아크용접을 통해 밀봉한 납 차폐용기는 콘크리트로 채워진 차폐드럼에 넣어 안전하게 관리한다. 이렇게 함으로서 다중 차폐기능을 강화하고 방사능 누설여부를 점검하는 등 안전성을 최우선으로 작업을 수행하였다. 안전조치작업 추진절차를 요약하면 아래와 같다.

항 목	내 역	비 고
	○ 장비설치 및 작업구역 설정 ○ 용기이송/해체 등	
	○ 선원의 방사능량 측정 ○ 캡슐에 방사선원 분배 (50mg 이하) 및 장입	
	○ 캡슐의 일련번호 부여 ○ 캡슐의 아르곤 용접	
	○ 밀봉된 캡슐의 누설시험	
	○ 밀봉된 캡슐을 납 차폐용기내 포장	
	○ 콘크리트 차폐드럼에 납 차폐용기를 넣음	

3. 결론

폐기된 라듐선원의 안전조치작업 수행결과 다음과 같은 커다란 의미를 갖고 있다.

첫째, 그동안 IAEA의 지원 아래 동남아시아에서 수행한 경험을 통해 익힌 기술력을 활용하여 공단 자체 인력으로 독자적으로 수행하였고, 향후 동남아 일부 국가들의 폐기된 라듐 안전조치작업을 수행해 줄 수 있는 능력을 갖추었다.

둘째, 비표준 용기(439개/24상자)로 관리하던 것을 200리터 표준용기 5드럼으로 안정화하여 RI폐기물 관리의 안전성 및 효율성에 큰 효과를 나타내었다.

셋째, RI폐기물 폐기시설내의 공기중 방사능 농도(Rn-222 가스 농도)를 개선시켜 세계기준의 기준값에 근접하게 되었다. 따라서 방사선 작업종사자의 피폭예방 및 저감화에 기여하여 세계적인 방사성폐기물관리 전담기관으로 거듭날 수 있는 발판을 마련하였다.

4. 참고문헌

[1] 한국방사성동위원소협회, "Radioisotope Handbook", p.19. 51. 76. (1980)

[2] 최병일 외, "Spent Radium Sources Conditioning Operation in Thailand", NETEC-RPT-01/2001.

[3] "Technical Manual for Conditioning of Spent Radium Sources", Internal IAEA Working Material, IAEA, Vienna(1998).

[4] "Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material", Safety Standards Series No. ST-1, IAEA, Vienna(1996).

우라늄을 함유한 유기폐액 자체처분을 위한 실험

김재건, 김현권, 김병래, 박근택
고려검사(주), 경상남도 김해시 삼계동 1416-3
viilovevii@naver.com

1. 서론

핵연료 가공시설에서는 원자력연료 생산을 하는 과정 속에서 많은 기계류 등을 사용하는데 기계의 사용과 함께 발생되는 것이 윤활유, 유압유 등의 폐오일이다. 본 실험은 원자력연료 가공시설에서 발생되는 폐오일을 자체처분 하기위한 우라늄 농도 저감을 목표로 실시되었다. 자체처분을 위한 피폭선량평가 결과 유도된 자체처분 제한치는 0.0786Bq/g이다.

2. 본론

2.1 실험방법

핵연료 가공시설에서 발생되는 방사성폐오일 내 우라늄저감 실험방법으로 일반산업용 폐오일 정제 방법인 황산백토 처리법, 이온정제법, 필터처리법, 그리고 핵연료 가공시설 내에서 일반적으로 사용하는 방사성 액체폐기물 처리 방법을 적용하여 실험해 보았지만 만족할만한 결과를 얻지 못하였다. 하지만 방사성 액체폐기물처리 방법에서 착안하여 우라늄 이온을 이온화 시켜 침전시키는 방법을 이용하여 다시 실험을 진행하였다. 우선, HNO_3, NaOH, HCl, NaOH 등의 산용액으로 우라늄을 이온화 시킨 뒤 알칼리계 용액을 투입하여 우라늄을 화합물 형태로 추출하려 하였다. 하지만 오일의 viscosity로 인해 우라늄은 쉽게 추출되지 않았다. 따라서, 폐오일을 일반 산이 아닌 황산을 통해 반응시켜 오일 내 불순물을 황산피치(Sulfuric acid pitch)로 침전시키면 우라늄 역시 함께 이온화되며 추출될 것이라는 가설을 세워 본 실험을 수행하였다. 실험에 있어서 폐오일의 점성이 가장 문제가 되었는데 이 부분은 온도변화를 통해 해결했다. 실험은 2가지로 나누어서 실시했다. 실험에서는 피폭선량평가 결과 유도된 자체처분 제한치 보다 낮은 0.05Bq/g로 기준치를 정했다. 첫번째 실험은 일정량의 방사성폐유를 같은 온도 조건에서의 질산과 황산의 배합 비율변화를 통해 산용액의 투입비율을 최적화 시키는 실험이었다. 두번째 실험은 일정량의 폐오일에 산을 투입하며 반응에 가장 적합한 온도를 찾는 실험이었다. 폐 오일 시료는 원자력연료 가공시설에서 발생된 폐 오일을 사용했다. 첫번째 실험에서, 시료는 200L 드럼에 보관중인 폐 오일을 교반기로 10분간 교반하여 채취했다. 이때, 폐오일 내 방사능농도는 3.3Bq/g이었다. 1,000ml의 beaker에 폐오일 시료를 500ml씩 넣고 가열교반기로 교반 및 가열했다. 교반속도는 300 rpm, 가열온도는 100℃로 했다. 폐 오일의 온도를 확인하고 일정량의 63% HNO_3이 투입된 폐유에 98% H_2SO_4를 투입하면서 변화를 지켜본 후 적정 황산량을 찾고, 일정량의 98% H_2SO_4이 투입된 폐유에 63% HNO_3을 투입 하면서 변화를 지켜봤다. 투입이 완료된 후 폐 오일은 상온에서 침전물을 형성한다. 침전 시간은 폐 오일의 온도가 상온이 되도록 24시간 동안 두었다. 침전이 완료된 후 폐 오일은 젤(gel) 상태의 침전물과 폐 오일로 분리되어 침전되었다. 폐유의 상등액을 marinelli beaker에 담아 감마핵종분석기로 측정하였다. 실험은 최적의 비율을 찾을 때까지 반복 하였다. 두 번째 실험에서 시료는 첫번째 실험과 같은 폐 오일을 사용하고 온도조건을 제외하고는 첫 실험과 동일하게 수행하였다. 이 실험에서는 폐 오일을 가열하지 않고 우선 폐오일에 63% HNO_3 및 98%의 H_2SO_4 를 투입하였을때 일어나는 발열반응에 따른 온도 변화를 살펴본 후 실험하였다. 방사성폐유는 온도가 약 50℃까지 상승하였으며 50℃에서부터 10℃ 단위로 올리면서 100℃까지 실험을 하였다. 침전 후 감마핵종분석의 방법으로 방사능농도를 측정하고 온도를 서서히 낮추면서 반복실험을 통해 적정온도를 찾아내었다.

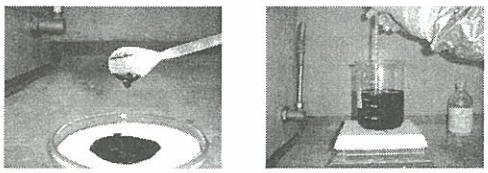


Fig. 1. 유기폐액 및 온도 측정

2.2 실험결과

첫번째 실험을 통해 얻은 데이터는 표.1 과 같다. 표.1에서 보듯이 63% HNO_3 20ml에 황산 30ml를 투입해 0.021Bq/g 결과를 얻었다. 98% H_2SO_4 30ml 에 대한 질산의 적정비율은 10ml 투입했을 때 0.0465Bq/g의 값을 얻을 수 있었다. 방사성 폐유 내에서의 우라늄저감의 최대 효율을 얻을 수 있는 비율은 63% HNO_3 10ml (2%vol), 98% H_2SO_4 30ml (6%vol)이라는 결과를 얻었다. 표.2에서는 적정 비율에 대한 온도변화에 따른 결과값이다. 폐 오일의 온도가 88℃에서 기준치값 미만 0.0489 Bq/g 값을 얻었다.

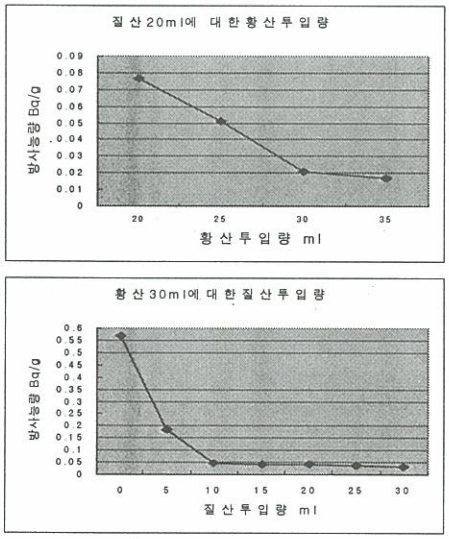


Fig. 2. 산의 적정비율에 따른 방사능량
(방사성 폐 오일 500ml,100℃에 대한 산의 비율)

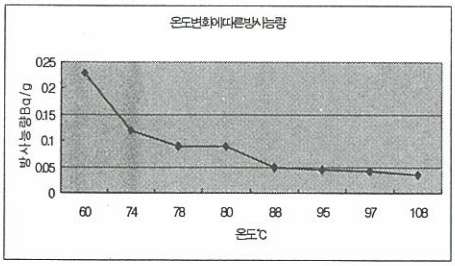


Fig. 3. 온도변화에 따른 방사능량
(방사성 폐 오일 500ml, HNO_3 10ml(2%vol), H_2SO_4 30ml (6%vol))

3. 결론

핵연료 가공시설에서 발생되는 폐 오일 내 우라늄 농도 저감을 위한 실험에서 산의 비율이 63% HNO_3 10ml(2%vol), 98% H_2SO_4 30ml (6%vol)의 비율로 투입하여 반응 시켰을 때 방사능 농도가 자체처분 제한치를 만족하는 결과값을 얻을 수 있었고, 가장 적정한 반응 온도값으로 88℃를 얻었다. 폐오일을 화학처리할 경우 2차폐기물인 침전물의 양은 실험 시료 부피의 1/10 수준으로 나타났다. 실험을 통해서 폐오일을 자체처분할 수 있다는 가능성을 확인했고, 다량의 폐오일도 Pilot Test 를 통한 추가 실험을 할 경우 충분히 처리할 수 있는 가능성을 확인할 수 있었다.

향후 2차폐기물 발생량을 최소화 및 침전물의 안정화 방안에 대한 추가 연구가 필요하다.

4. 참고문헌

[1] 물리 화학적 수처리 원리와 응용 - 곽종윤
[2] 석유화학공업 - 정기현
[3] 고분자 화학 - 김영백, 이후성

산 분해를 이용한 셀룰로오스계 방사성폐기물의 감량 실험

윤기훈, 조윤주, 민병혁, 최홍주, 송정호, 신진성, 박현균
케이엔디티앤아이, 서울특별시 금천구 가산동 685번지 가산디지털엠파이어 811호
kihoon98@kndt.co.kr

1. 서론

원자력 이용시설에서 방사선방호 등을 위해 사용하는 제염지 및 면류 방호복 등의 주 구성물질인 셀룰로오스는 $(C_6H_{10}O_5)n$의 화학식을 갖는 다당체로써 식물 세포벽의 주 구성성분이며, 주로 목재 펄프 또는 면화에서 추출된다. 셀룰로오스는 친수성을 갖고 있으나 물에는 용해되지 않으며, 열분해를 제외하고는 분해가 잘 이루어지지 않는 안정적인 특성을 가지고 있기 때문에, 셀룰로오스를 주 성분으로 하는 폐기물은 소각의 방법으로 처리/처분하는 것이 일반적이다. 하지만, 국내에서는 원자력시설에서 발생되는 가연성 고체방사성폐기물에 대해서는 방사선학적인 안전성의 이유로 소각을 지양하고 있으며, 방사성폐기물은 원자력시설의 운영에 따라 계속적으로 발생되기 때문에, 소각이 아닌 다른 방법을 통하여 방사성폐기물을 효과적으로 처리/처분하는 기술이 필요한 실정이다.

이에 따라, 소각 이외의 방법으로 폐기물을 제염 또는 감량처리 하는 방법에 대하여 국내외로 많은 연구가 진행되어 왔으며, 그 중 하나가 유기물상태인 고체 방사성폐기물을 고농도의 황산으로 탄화시킨 후, 질산을 첨가하여 최종적으로는 CO_2와 H_2O로 분해시키는 산 분해(Acid Digestion) 방법이다. 이러한 산 분해법은 폐기물 부피의 감량 측면에서는 효과적인 것으로 실험을 통해 알려져 있으나, 운전조건이 230~300℃으로 비교적 고온이기 때문에 분해과정 중 SOx, NOx등의 유해물질이 다량으로 발생되며, 질산 주입 후의 격렬한 산화반응으로 인하여 대량의 흄(Fume)과 열이 발생하므로 안전상의 문제로 인하여 대량의 처리가 어렵고, 공정 중 사용된 산 용액의 회수가 어렵다는 단점이 있다.

따라서, 본 연구에서는 상기와 같이 산 용액의 산화반응을 이용하여 폐기물을 분해하는 방법이 아닌, 황산의 가수분해 특성을 이용하여 100℃ 이하, 상압의 운전조건에서 고형상의 폐기물을 분해하는 실험을 수행하였으며, 그 결과 폐기물은 대부분 가용화되어 용액으로 이동하고 일부 잔류물만이 남게 되는 것을 확인하였다.

2. 본론

2.1 이론

유기물질이 진한 황산과 반응하게 되면 가수분해를 통해 탈수되며 탄화되는 것이 일반적이다. 하지만 셀룰로오스의 경우, 상압의 조건에서 일정한 농도의 황산과 반응시키면 불용성의 셀룰로오스는 가용화되며 물에 잘 녹는 글로코오스$(C_6H_{12}O_6)$로 전환된다. 단, 황산의 농도가 반응요구조건에 비하여 낮은 경우에는 반응은 이루어지지 않으며, 반응요구조건에 비하여 높은 경우에는 글루코오스의 과분해에 따라 푸르푸랄$(C_5H_4O_2)$ 등과 같은 비가용성 물질이 생성되는 한편, 유기물질이 탄화되는 과정에서 그 부피가 팽창되기 때문에 폐기물의 감량 측면에서는 오히려 부정적인 영향을 미칠 수 있으므로, 극히 좁은 영역(운전조건)에서만이 요구되는 반응이 일어난다. 또한, 제염지에 비하여 중합도 및 결정화도가 높은 면류의 경우가 분해 반응을 위한 황산농도 및 온도조건이 높은 것과 같이, 폐기물의 특성에 따라 가용화 및 가수분해가 시작되는 반응조건이 다를 수 있기 때문에, 각각의 폐기물 종별에 따른 반응조건을 파악하는 것이 중요하다.

2.2 실험방법

본 연구에서는 셀룰로오스계 방사성폐기물에 대한 최적의 분해·반응조건을 알아보기 위하여 원자력시설에서 사용하는 제염지, 방호복, 장갑 등을 대상 시료로 선정하였으며, 각각에 시료를 일정 농도의 황산과 반응시켜 질량감량실험을 수행하였다.

실험 절차는 다음과 같다.

1) 분쇄된 각각의 셀룰로오스 폐기물 1 g에 수분을 1 g 첨가하여 시료를 충분히 적신다.
2) 73~95 wt%의 황산을 15~20 g 첨가한다. (실험에 따라서 이 과정에서 질산을 소량 첨가한다.)
3) 폐기물 종별에 따라 상온에서 교반하거나, 가열하면서 교반한다.
4) 황산의 농도가 30 wt%가 되도록 H_2O를 첨가한 뒤 90 ℃로 1 시간 가열하며 교반한다.
5) P3(16~40 μm) 사이즈의 필터로 필터링한다.
6) 필터링 된 케이크를 건조 후 무게를 측정하여 초기 무게와 비교한다.

2.3 실험결과

실험 결과 제염지는 황산농도 70~80 %에서 가용화 되는 것으로 나타났으나, 면류장갑 및 방호복의 가용화에는 제염지의 경우에 비하여 보다 높은 황산농도와 온도조건을 필요로 하는 것으로 나타났다. 또한, 방호복 및 장갑의 경우, 고농도의 황산(95 wt% 이상)을 저농도(30 wt%)로 희석하는 과정에서 막대한 열이 발생하기 때문에, 온도 증가에 따른 반응도의 상승으로 인하여 시료가 급격히 탄화되어 질량감량에 부정적인 영향을 미치는 것으로 파악되었다. 또한, 가용화과정 중 추가적으로 질산을 소량 첨가하여 산화시키는 경우, 최종 잔류물에 대한 질량감량은 완전탄화시보다 우수한 것으로 나타났으나, 케이크 및 여액 내에 불안정한 질소화합물이 존재하고 있을 것으로 예상되므로, 이와 관련된 처리에 대해서는 추가적인 연구가 필요할 것으로 판단된다.

각각의 시료에 대한 실험조건 및 그 결과(감량비)는 다음과 같다.

Table 1. Experimental condition and Results

	1	2	3	4	5
Sample	Paper	Cloth	Cloth	Glove	Cloth
H_2SO_4 concentration	70%↑	70%↑	70%↑	95%↑	95%↑
Heating	×	×	90 ℃	90 ℃	90 ℃
Reaction	soluble	non	carbonized	carbonized	carbonized
HNO_3 addition	×	×	×	×	< 1g
Weight Reduction	2 %	-	73 %	49 %	24 %

2.4 고찰 및 향후 연구 방안

방호복이나 장갑과 같은 면류 폐기물의 경우, 가용화 상태의 용액 내 황산을 희석하는 과정에서 발생되는 발열반응으로 인하여 온도가 상승함에 따라 탄화가 진행되며, 이러한 탄화반응은 질량감량 측면에서 부정적인 역할을 하기 때문에, 탄화반응을 억제하기 위해서는 황산의 희석 과정 중의 효과적 Chilling이 이루어져야 할 것으로 보인다. 또한, 향후 실험에서는 Co/Cs 안정동위원소 및 천연우라늄 등을 추적자로 사용하여 고형 잔류물 및 액상으로의 방사성핵종 전이계수를 산출하는 실험 역시 진행할 예정이다.

3. 결 론

본 연구에서는 원자력시설에서 사용되는 제염지, 방호복 등과 같이 셀룰로오스를 그 주 성분으로 하는 방사성폐기물의 저감을 위하여 황산의 가수분해를 이용한 폐기물 저감 실험을 수행하였으며, 그 결과, 면(cotton) 물질의 처리에 대해서는 현재 시점에서는 아직 보완할 점이 상당수 존재하나, 제염지와 같은 종이류의 폐기물에 대해서는 당 처리방법에 의하여 그 수량이 상당량 저감될 수 있음을 확인하였다.

특히, 폐기물 내 오염원이 우라늄물질 등과 같이 황산 등에 용해가 가능한 경우에 대해서는, 방사성물질이 황산 및 물에 용해되어 액상으로 전이될 것으로 판단되므로, 당 공정 중 발생되는 2차폐기물(고형 잔류물) 내 방사능 또한 초기수량에 비교했을 때 획기적으로 저감될 수 있을 것으로 기대된다. 또한, 당 방법은 황산의 가수분해만을 이용하는 방식으로서 염(salt)을 발생시키지 않기 때문에, 이온교환막전기투석법(ED) 등을 통하여 여액 내 황산을 회수함으로써 재사용하는 것이 가능하다.

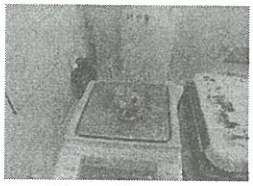


Fig. 1. Sampling



Fig. 2. Solubilization

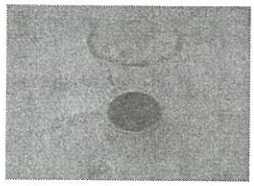


Fig. 3. Cake (Paper)

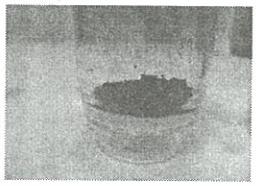


Fig. 4. Cake (Cloth)

4. 참고문헌

[1] U.S.DOE, "Acid Digestion of Organic Waste", Innovative Technology Summary Report, 1999.

[2] NEDO, "バイオマスエネルギー高効率轉換技術開發／セルロース系バイオマスを原料とする新規なエタノール醱酵技術等により燃料用エタノールを製造する技術の開發", 2006.

[3] NEDO, "バイオマス硫酸處理液の高度な硫酸再利用技術による實用型エタノール製造システム構築", 2008.

[4] U.S.Patent 3,957,676, "Chemical Digestion of Low Level Nuclear Solid Waste Materal", 1976.

증기발생기 전열관의 건식분사 제염기술 개발

김대환, 김병태, 최영구, 권기현, 홍지식, 임유경, 김기홍, 이근우*, 최왕규*, 민병연*
선광원자력안전(주), 서울특별시 구로구 구로5동 106-4 선경오피스텔2003호
*한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
kdhdd@hanmail.net

1. 서론

금속 방사성폐기물의 제염은 방사성핵종 및 오염의 형태가 다양하여 여러 가지 제염 방법들이 연구되어 왔다.

방사능에 오염된 금속폐기물 제염방법에는 먼저 물리적 방법과 화학적 방법으로 나눌 수 있으며, 물리적 방법으로 Brush, 초음파, 고압수, 진동, 플라즈마, Shot Blast 등을 이용한 제염방법이 있으며, 화학적인 방법으로는 화학 및 전해제염이 있다.

본 논문에서는 물리적 제염방법 중에서 Shot Blast를 이용한 건식분사장치를 이용한 금속 방사성폐기물의 제염에 대해 고찰하였다.

2. 본론

2.1 건식분사연마

Shot Blast는 주물(鑄物) 등 금속제품의 표면을 깨끗하게 마무리 손질을 하기 위해 연마재를 압축공기로 뿜어대는 공법이다. 이것에 의해 물품의 표면에 부착되어 있던 주물사, 녹 등을 떨어내고 미세한 요철면(凹凸面)으로 마무리 한다. 실제로 사용되는 분사방법에서는 압축공기를 사용하는 방법과 원심력을 사용하는 방법이 있다.

연마재로 사용하는 Bead의 종류로는 GLASS BEAD, CERAMIC BEAD, STAINLESS STEEL SHOT, STEEL SHOT, CUT WIRE SHOT 등이 있다.

이중에서 GLASS BEAD는 유리가 가지고 있는 우수한 화학적, 물리적 특성을 갖고 있어 칠, 비철 금속, 경연합금, 세라믹등의 부품생산시 발생하는 burr제거 및 금형 청소에 사용한다.

CERAMIC BEAD는 내구성(GLASS BEAD의 6~12배 수명 효과)이 좋고, 먼지 발생량이 적으며, 균일한 표면처리로 표면조도가 일정하며, 낮은 압력으로 동등한 Cleaning 효과를 얻을 수 있어 비용이 절감된다.

2.2 연마재 선정

흡착성이 매우 높은 페인트로 도장된 금속시편과 표면에 부식이 일어나 녹이 슨 금속류를 대상으로 연마재 종류별, 크기별로 실험을 진행하였다.

연마재 종류로는 stainless steel, Glass, Zirblast, Aluminum Oxide Bead 연마재 크기로는 #36~170을 사용하였고, 금속 형상별 시편은 Grating(격자형), 원형 파이프, 전등캡, Plate 및 Ring을 대상으로 실험하였다.

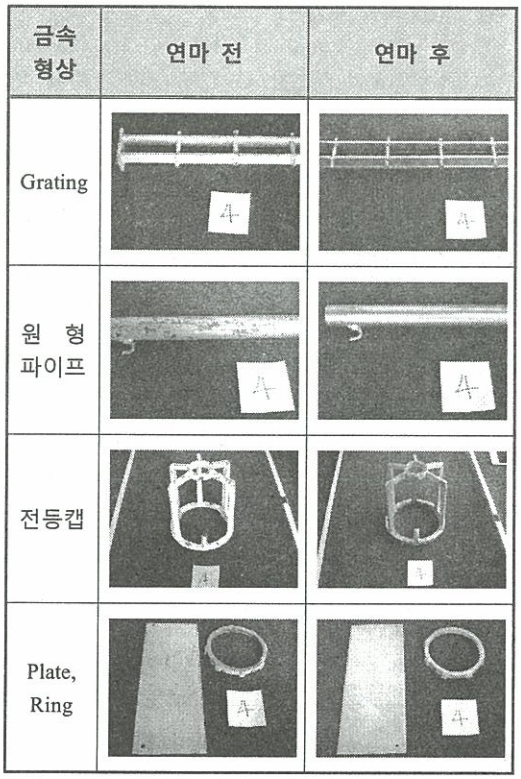


Fig. 1. Difference between before & after polishing

실험 결과 연마재 중 Stainless steel Bead는 사

이클론에 흡입이 잘 되지 않고 연마효율이 낮게 나타났다. Zirblast는 연마효율은 높게 나타났으나, 분사된 연마재가 벽이나 연마대상물에 붙어 연마정도를 확인하기 어려우며 분진도 많이 발생하여 최종적으로 선정된 연마재로는 Glass Bead #60~80, #60~120, Aluminum Oxide #80, #120 이다. 또한 같은 종류의 Glass Bead, Aluminum Oxide 연마재라 해도 입자 크기별로 사이클론의 흡입의 정도가 달랐으며 연마효과 역시 차이가 있었다. 무거운 연마재는 사이클론에 흡입이 잘 되지 않는 단점이 있으며, 가벼운 연마재는 연마효과가 떨어지고 분진이 많이 발생하는 단점이 있었다.

Glass Bead에 비해 Aluminum Oxide가 연마효과는 더 좋은 것으로 보이나 상대적으로 분진이 더 많이 발생하는 단점이 있어 두 연마재를 상호 보완하여 적절하게 사용해야 할 것으로 보인다.

2.3 건식분사제염

영광원전에서 인출한 증기발생기 전열관을 대상으로 제염실험을 하였다.

배관의 길이는 10m를 사용하였으며, 1m, 3m, 5m, 7m, 9m에 2cm의 시편을 넣어 3분, 6분, 7분40초의 분사시간에 따른 제염효율을 측정하였다.

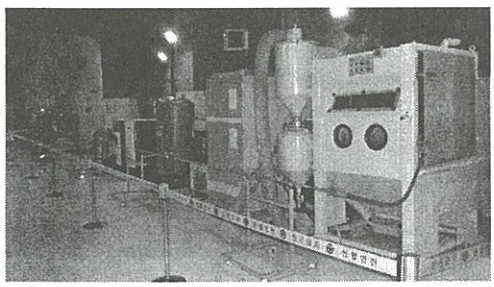


Fig. 2. Drying shoot decontamination equipment

2.4 건식분사제염 결과

Table 1. Decontamination coefficient with shooting distance

구분	1m	3m	5m	7m	9m
3분	5	5	6	10	15
6분	49	26	151	90	15,000
7분40초	179	117	610	837	-

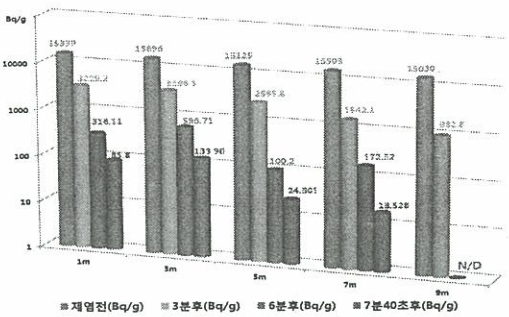


Fig. 3. Activity with decontamination

3. 결론

증기발생기 전열관을 대상으로 건식분사제염 실험을 하였는데, 10m 배관 중 분사거리가 멀어질수록 제염효과가 큰 것으로 나타났다. 이런 결과가 나타난 이유로는 첫 번째, 배관속에서 와류현상이 일어나 거리가 멀어질수록 더욱 큰 와류가 일어난 경우와 두 번째, 연마재포집장치 후방의 집진장치에서의 흡입력에 의해 배관 끝부분에서 흡입속도가 빨라진 이유라고 판단된다. 이를 통해서 증기발생기 제염공정에서 Shot Blast 장치를 이용하여 전열관을 제염하면 작업자의 피폭선량을 크게 저감 시킬 수 있을 것으로 생각된다.

4. 감사의 글

본 연구는 지식경제부의 전력산업연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

5. 참고문헌

[1] 한국원자력연구소 "방사성오염 금속폐기물의 재활용 연구" (1997).

[2] 한국방사성폐기물학회, 2008년 추계학술발표회 논문요약집, pp.57-58, 2008.

파라핀 안정화 드럼 처리를 위한 분리 장치 개발

최영구, 김병태, 권기현, 김대환
선광원자력안전(주), 대전시 대덕구 신일동 1683-4번지
choiyk09@gmail.com

1. 서론

원자력발전소를 운영하면서 발생되는 액체폐기물은 폐액증발기를 통하여 증발 된 후 안정화 과정을 거치게 된다. 파라핀 안정화의 경우, 제조과정에서 층 분리가 일어나 균질성 확보가 어렵고 내 침출 특성이 불량하여 중·저준위 방사성폐기물처분장 인수기준을 만족하지 못하고 있다. 따라서 한국수력원자력(주)는 파라핀을 대체할 새로운 농축폐액 건조분말 안정화 기술을 개발하기 위해서 노력하고 있다. 아울러 현재 각 원전에 저장되어 있는 약 3,600드럼의 파라핀안정화드럼을 분리 및 처리해서 최종적으로 방사성폐기물처분장으로 안전하게 인도하고자 한다.

본 연구의 목적은 현재 발전소에 저장되어 있는 파라핀 안정화 드럼을 처리하기 위해서 파라핀과 방사성 폐기물을 분리하고 분리된 파라핀을 자체처분 할 수 있도록 파라핀 안정화 드럼 처리를 위한 분리공정 및 장치를 개발하는데 있다.

2. 본론

2.1 파라핀 안정화 드럼 발생 현황

Table 1. The occurrence of paraffin drums

구분	고리1	고리2	울진1	울진2	영광1	영광2	합계
1995	19	38	8	-		27	92
1996	27	77	45	-	116	84	349
1997	26	46	64	-	53	69	258
1998	22	50	45	-	78	22	217
1999	22	54	36	78	31	43	264
2000	14	28	65	88	47	59	301
2001	8	67	49	60	50	17	251
2002	13	45	59	41	37	40	235
2003	14	9	70	51	59	60	263
2004	6	70	90	42	58	40	306
2005	8	48	24	28	28	53	189
2006	9	72	40	20	77	52	270
2007	1	39	46	33	12	9	140
2008	7	28	47	18	44	57	201
2009	7	30	31	21	47	35	171
2010	7	31	36	11	42	16	143
합계	210	732	755	491	779	683	3,650

파라핀 안정화는 폐기물 발생량 저감 차원에서 1995년부터 도입되었으며 새로운 대체 기술이 확보 되지 못한 상태여서 현재까지 발전소에서 진행되고 있다. 표1은 2011년 1월 기준으로 원전별 파라핀 안정화 드럼 발생현황을 나타낸다. 총 3,650드럼 중에서 고리, 울진, 영광에 각각 942드럼, 1,246드럼, 1,462드럼이 저장되어 있다.

2.2 농축폐액건조분말 방사능 농도

Table 2. Radioactivity of the dry powder radiowastes

핵종	농도(Bq/g)	비율(%)
Ag-110m	1.15E+00	0.20
Ce-144	2.11E+00	0.36
Co-57	6.16E+00	1.05
Co-58	3.56E+02	60.89
Co-60	5.47E+01	9.36
Cr-51	3.52E+00	0.60
Cs-134	3.07E+01	5.25
Cs-137	7.10E+01	12.14
Fe-59	1.08E+00	0.18
Mn-54	3.59E+01	6.14
Nb-94	1.21E-01	0.02
Nb-95	7.40E-01	0.13
Sb-125	2.07E+01	3.54
Zr-95	8.16E-01	0.14

파라핀 안정화 드럼의 폐기물 적재량은 붕산농축폐액건조분말과 파라핀의 비율이 질량비로 각각 70%와 30%로 이루어져 있고 붕산의 농도가 약 20,000ppm 이상에서 유지하도록 저장하였다. 파라핀 안정화 드럼 취급을 위해서 농축폐액건조분말의 방사선농도를 측정하였다. 표2는 고리1발전소에서 측정한 붕산 농축폐액 건조분말의 방사능농도를 나타낸다. Co-58이 주 핵종으로서 60% 이상 존재하고, Cs-137과 Co-60이 상당량 존재하고 있음을 알 수 있다.

2.3 분리 공정 개발

파라핀 안정화 드럼에 있는 파라핀 안정화체의 용해를 위해서 전기가열식 물중탕 용기에 파라핀 드럼을 넣고 용매를 첨가하면서 85℃의 온도로 가열한다. 용해된 파라핀과 방사성 폐기물을 분리시키기 위하여 적절한 용매를 주입하여 혼합하면 밀도차이에 의해서 층 분리가 일어나므로 용매층은 임시저장 용기에 저장하고, 파라핀 층은 깨끗한 물을 사용하여 세척한다. 그림1은 파라핀안정화 드럼처리를 위한 분리 및 안정화 공정도이다. 임시 저장된 용매 층은 증발기로 이송해서 용매를 증발시키고 방사성폐기물 분말은 새로운 안정화를 위해서 중간저장 용기에 저장된다. 증발기에서 증발된 용매는 응축해서 재사용될 수 있도록 설계하였다.

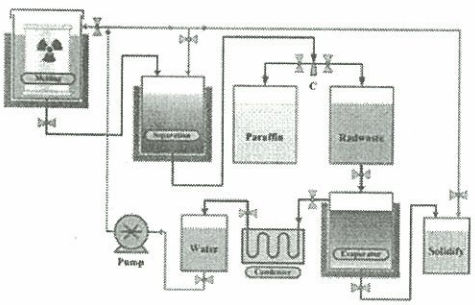


Fig. 1. Separation Processes of the paraffin drum

2.4 파라핀 분리

자체처분이 가능한 파라핀으로 분리하기 위해서 실험실 조건에서 모의 농축폐액을 사용하여 파라핀 안정화 생성물을 만들고 이것을 분리하여 파라핀의 방사성 오염도를 측정하였다. 100㎖ 파라핀용액에 8.2×10^{5}Bq/ℓ 방사능 농도를 첨가하여 모의시료를 만들었다. 파라핀 모의 시료를 분리한 후 파라핀에 존재하는 방사능이 자체처분 기준을 만족할 수 있는지를 알아보기 위해서 세척용액의 양에 따른 세척효과를 실험하였다.

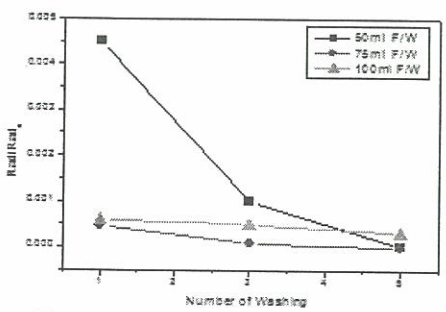


Fig. 2. Radioactivity of the cleaning solution

그림2는 분리된 파라핀의 세척 용액의 농도와 세척횟수에 따른 방사능 농도변화를 나타낸다. 세척용액의 농도는 각각 50㎖, 75㎖, 100㎖를 사용하여 실험했으며, 각각의 세척용액에 대해서 5회씩 세척을 수행하였다. 50㎖ 세척용액을 사용하여 파라핀을 세척할 경우 1회 세척할 경우 세척용액의 방사능 농도는 3,700Bq/ℓ를 나타냈으며 3회와 5회 세척할 경우 각각 820Bq/ℓ과 1Bq/ℓ를 나타내었다. 70㎖ 세척용액의 경우 1회, 3회, 5회 세척함에 따라서 세척용액의 방사능 농도는 각각 370Bq/ℓ, 70Bq/ℓ, 1Bq/ℓ를 나타내었다. 100㎖ 세척용액의 경우 1회, 3회, 5회 세척함에 따라서 세척용액의 방사능 농도는 각각 475Bq/ℓ, 400Bq/ℓ, 250Bq/ℓ를 나타내었다.

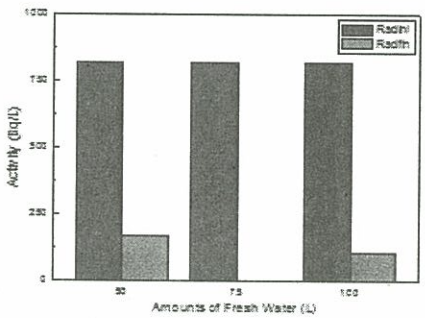


Fig. 3. Radioactivity of the paraffin

그림 3은 분리된 파라핀의 세척 후 방사능 농도를 측정한 값이다. 100㎖ 파라핀의 경우 75㎖ 세척용액을 사용하여 3회 정도 세척할 경우 자체처분 기준을 만족함을 알 수 있었다.

3. 결론

원전에 저장된 파라핀 안정화 드럼을 처리하기 위해서 파라핀과 농축폐액 건조분말의 분리를 위한 개념을 정립하고, 필요한 실험실 조건에서 기초적인 실험을 수행하였다. 파라핀과 농축폐액분말은 밀도 차이를 이용하여 분리하고자 하였으며 분리된 파라핀의 자체처분 기준을 만족할 만한 세척용액의 양과 세척 횟수를 결정하였다.

Towards the Mathematical Modeling of Cold Cap During Vitrification of Nuclear Waste

Pavel Hrma, R. Pokorny
Pohang University of Science and Technology, Nuclear Engineering Dept.,Pohang, Gyungbuk, Korea
pavelhrma@postech.ac.kr

Key words: Nuclear waste 핵폐기물, Vitrification 유리화, Glass melting 유리용융, Cold cap modeling 콜드캡 모델링, Melt foaming 용융거품

1. Introduction

Various factors impact the performance of glass processing during vitrification process in an all-electrical melter. One of the most significant, and also one of the least understood, is the process of batch melting. The cost and schedule of nuclear waste treatment is highly dependent on the rate of waste glass production. A better understanding of batch melting is thus of great importance. Studies are being conducted to develop a fundamental understanding of the glass conversion reactions, in particular those that strongly influence the rate of melting, and models are being developed to predict the impacts of composition and other key parameters on the melting rate.

In the simplest case, one can consider a steady vertical melting of a typical waste glass batch, floating on the surface of glass melt, the so-called "cold cap". In such a batch layer, various processes are taking place – water evaporation (slurry feed contains as high as 60% of water), gas evolution, the melting of salts, the formation of borate melt, reactions of borate melt with molten salts and with amorphous Fe_2O_3 and Al_2O_3, the formation of intermediate crystalline phases, the formation of a continuous glass-forming melt, the growth and collapse of primary foam, and the dissolution of residual solids. To this list, we also need to add the formation of secondary foam originating from molten glass, but accumulating on the bottom of the cold cap.

Little attention has been paid to the conversion process within the cold cap in the past because the heat transfer to the cold cap rather than the batch-to-glass conversion itself has been considered as rate-controlling. However, the melting becomes conversion-controlled if the heat flux to the batch blanket is high enough [1].

This study presents the latest developments in the mathematical modeling of the cold cap behavior during batch melting. As the first step, we have developed a preliminary one-dimensional (1D) model. To represent more fully the situation that exists in an all-electrical melter, our final goal is to develop a 3D model that will represent the melt-rate affecting processes more realistically.

2. Results and discussion

In the simplest melting situation considered in this study, a cold cap of uniform thickness rests on a pool of molten glass from which it receives a steady uniform heat flux. Thus, as the feed-to-glass conversion continues, the temperature, velocity, and extent of feed reactions are functions of the position along the vertical coordinate, and these variables do not change with time.

The version of the 1D model presented in this contribution describes the progress of feed melting reactions in a vertical direction with the constitutive equations and key parameters based on data obtained for a high-alumina high-level waste (HLW) melter feed that has been subjected to a thorough investigation [2-4]. The interfaces with glass melt and the plenum space of the melter are defined by simplified boundary conditions. The results of feed melting crucible studies, in addition to literature data, were used as input data for the model.

Using this model, we present the sensitivity analyses on the effects of key parameters on the cold-cap behavior. For example, Figure 1 displays the effect of upper heating on the temperature profile within the cold cap and shows that the thickness of the cold cap increases as the heat flux from above increases.

The model demonstrates that batch foaming (Figure 2) has a decisive influence on the melting rate and shows that understanding the behavior of the foam layer at the bottom of the cold cap and the heat transfer through it is crucial for a reliable prediction of the melting rate as a function of feed properties and melter conditions.

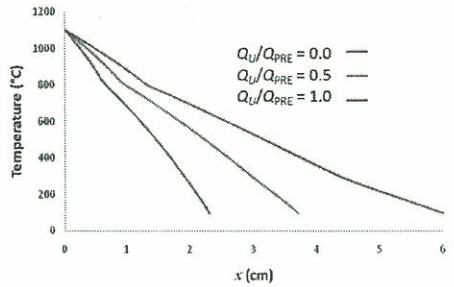


Fig. 1. Temperature profiles within the cold cap versus the intensity of upper heating (Q_U is the heat flux from above and Q_{PRE} is the heat flux needed for turning the melter-feed slurry to dry batch)

The objective of this contribution was to set a background for advanced modeling. Although the study is focused on a batch for waste vitrification, the authors hope that the outcome will also be relevant for commercial glass melting.

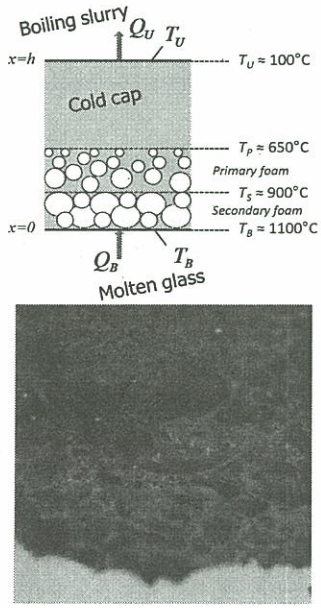


Fig. 2. Cold cap structure and a photograph of the cold cap bottom with the foam layer

3. Conclusions

1. A 1-D model of the cold cap is being developed to predict the impacts of key parameters on the waste glass melting rate.
2. Sensitivity analyses has been performed to quantify on the effects of key process parameters on the cold-cap behavior.
3. The model demonstrates that batch foaming has a decisive influence on the melting rate.

4. Acknowledgment

This research was supported by WCU(World Class University) program through the National Research Foundation of Korea funded by the Ministry of Education, Science and Technology (R31 - 30005).

5. References

[1] Hrma P. 1990. *Glastech. Ber.* 63K:360.
[2] Hrma P, MJ Schweiger, et al. 2010. *Ceramics – Silikáty* 54(3):193–211.
[3] Henager SH, P Hrma, et al. 2011. *J. Non-Cryst. Solids* 357:829–835.
[4] P. Hrma, J. Marcial, et al. 2011. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 357, 820-828.

복합제염장치를 이용한 금속방사성폐기물 제염 고찰

홍용호, 이경호, 제환경, 김민수, 김희경, 최은석
(주)액트, 대전시 유성구 관평동 705
hyh@actbest.cm

1. 서론

최근 방사성폐기물의 처리·처분에 대한 일반 국민들의 깊은 관심과 함께 사회·문화적으로도 매우 민감한 문제로 대두되고 있다. 우리나라의 경우 원자력이용시설에서 발생되는 방사성폐기물 중 금속 방사성폐기물은 이미 상당한 양에 이르고 있으며, 이를 처리하기 위해서 처리기술이 다양하게 연구 개발 되고 있지만 어느 하나의 제염장치에서 방사능 물질을 100% 제거할 수는 없었다. 또한, 화학제를 사용한 화학제염기술은 유기산 및 무기산 등 강산류를 사용하기 때문에 액상의 2차폐기물이 다량으로 발생되고 이를 중화처리 하는데 많은 처리비용이 들고 있다.

이러한 여러 가지 문제점들을 해결하기 위한 방법으로 다양한 제염장치를 복합적으로 구성하여 어느 하나의 제염처리가 아닌 복합 제염장치에 의한 제염처리를 순차적으로 거치면서 100%에 가까운 제염효과를 갖도록 하고 제염으로 인한 2차폐기물 발생량을 최대한 억제할 수 있는 복합제염장치를 개발하기 위한 실험을 실시하게 되었다.

2. 실험 및 결과

본 연구는 연구자석을 이용한 제염장치 및 초음파 제염에 대한 기초 성능실험을 통하여 제염방법을 결정하고 물과 에어를 통한 세정작업으로 인해 발생하는 2차폐기물 처리시 발생되는 문제점 등을 보완하여 설비를 구성한 후 이를 영광 2발전소 방사선안전팀의 도움을 받아 실증실험을 하게 되었다. 또한, 시편(자성연마재)의 크기 및 형상은 제염대상 물품의 재질 및 크기, 그 형상에 따라 달리 할 수 있으나 ∅0.15~∅2.5㎜×2~8㎜로 제작하는 것이 바람직하였고, 자성연마재의 경우 직경(∅)과 길이(㎜)가 클수록 연마력이 높으므로 스테인리스 스틸이나 강철은 0.5㎜ 이상 적용하고 티타늄이나 알루미늄, 황동, 아연 등 연한 재질은 0.5㎜이하를 선택하여 Test를 수행하였다.

가. 복합제염장치 구성

① 자기장제염부 : 자기력을 통한 자성연마재의 자전과 공전운동에 위해 상기 제염대상 물품을 제염처리
② 초음파제염부 : 초음파 세척하여 제염처리
③ 세정부 : 고압으로 분사되는 물과 에어를 통해 세척
④ 열풍건조부 : 세척된 제염대상 폐기물을 건조
⑤ 제염폐액 처리부 : 초음파 제염부로부터 배출된 제염폐액을 필터링 처리
⑥ 제어부 : 중앙컨트롤 장치

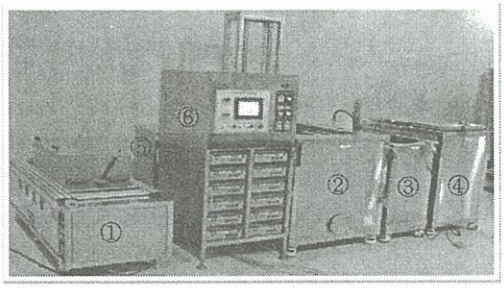


Fig. 1. 복합제염장치

나. 오염된 금속폐기물 시편

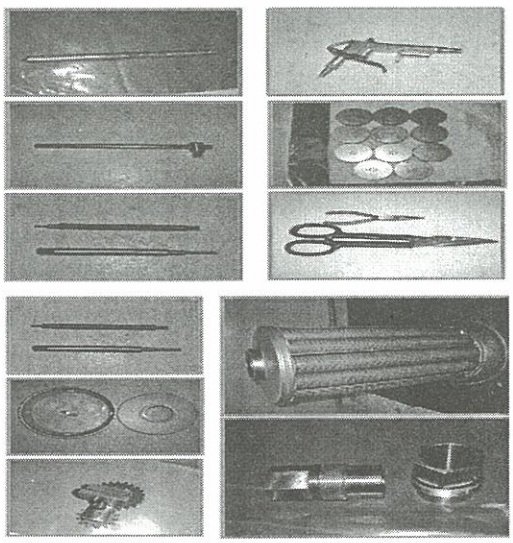


Fig. 2. 금속방사성폐기물

다. Test 사진

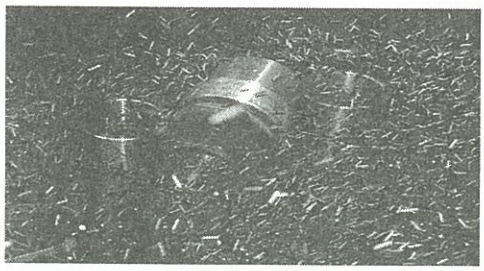


Fig. 3. 자성연마 입자의 운동상태

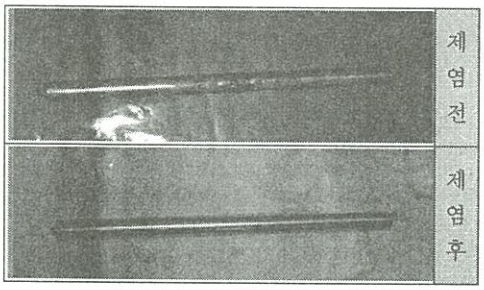


Fig. 4. 제염 전·후 시편

라. 제염 전·후 오염도 결과

No	시편명	크기	오염도(cps)			
			제염전	자기장(RPM)		초음파
				1500	1800	15분 제염
1	STS Pipe B-1	ϕ5×10 cm	450	44	-	BKG
2	STS Pipe B-2	ϕ5×10 cm	432	38	-	BKG
3	STS Pipe C-1	ϕ5×30 cm	780	34	-	BKG
4	STS Pipe D-1	ϕ5×10 cm	532	30	-	BKG
5	STS Pipe E-1	ϕ3×30 cm	810	48	-	BKG
6	Aluminum Cap-2	ϕ5 cm	487	28	-	BKG
7	STS 눈금자-1	30 cm	531	40	-	BKG
8	STS Pipe B-3	ϕ5×10 cm	1,210	-	28	BKG
9	STS Pipe B-4	ϕ5×10 cm	1,302	-	30	BKG
10	STS Pipe E-2	ϕ3×30 cm	1,352	-	38	BKG
11	STS 눈금자-2	20 cm	1,152	-	32	BKG
12	Pb 플레이트-1	10×10 cm	1,260	-	32	BKG
13	STS Pipe B-6	ϕ5×10 cm	442	38	-	BKG

▶ 제염시간 : 15분, 주파수 : 29 kHz,
전류 : 4 A, 물 온도 : 35 ℃, 제염제 : 150 g

▶ 백그라운드 : 24 cps

3. 결론

복합제염장치 설비를 구성하기 위해서는 각각의 장비가 갖는 특성을 파악하고 단점을 서로 보완할 수 있는 장비로 구성하였다. 자기장을 이용한 제염설비의 경우 자기력을 통한 자성연마재의 자전과 공전을 이용하여 제염대상 금속폐기물을 제염처리 하는데 오염된 표면과 미세한 틈이나 볼트의 홈에 붙어있는 고착성 오염도에 대한 제염효과는 아주 탁월하나 방사화된 금속폐기물의 오염은 완벽하게 제거하지 못했고, 초음파제염의 경우 표면에 오염도가 고착이 되었을 경우 제거하기 힘든 단점을 보였다. 이러한 장비들의 단점을 상호 보완하기 위해 자기장제염설비와 초음파제염설비를 복합적으로 구성하여 Test한 결과 유리성 및 고착성 오염을 거의 제거할 수 있었다. 또한, 초음파 제염설비로 2차 제염한 금속폐기물들에 전이될 수 있는 방사성입자를 추가로 제거하기 위해 높은 압력의 에어와 살수로 3차 제염을 하고 최종 마무리로 열풍으로 건조하였다. 이렇게 해서 최종 금속폐기물의 오염도를 거의 100% 제거가 되었음을 확인할 수 있었다. 또한, 고압 세척시 발생되는 다량의 제염폐액을 필터로 재순환시켜 계속 사용함으로써 제염후 발생할 수 있는 2차 폐기물량을 최대한 억제하도록 설비 구성을 마무리 하였다.

4. 감사의 글

Test에 도움을 주신 영광원자력본부 제2발전소 방사선안전팀과 협력업체 직원분들께 감사의 말씀을 드립니다.

석탄회필터와 칼슘필터를 이용한 세슘과 레늄의 포집

신진명, 박장진, 이재원, 나상호, 박근일
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
jjpark@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료를 재활용하기 위해서는 사용후핵연료 물질을 피복관으로 부터 분리하는 탈피복 공정, 탈피복된 사용후핵연료를 후속공정(습식인 경우 UREX 공정, 건식인 경우 Pyroprocessing 공정)에 적합한 원료물질로 제조하는 동시에 여러 가지 핵분열생성물을 제거하는 전처리 공정이 요구된다. Pyroprocess 공정의 전처리공정으로서 고도 휘발성 산화공정을 도입하면 기존 저온 휘발성 산화공정 채택 시 제거효과가 미미한 Cs, Tc, I, Ru, Te, Mo 등을 제거할 수 있다[1]. 또한, 상기 전처리공정으로부터 휘발되는 기체상 핵분열생성물을 안전하게 포집하는 배기체 처리 기술개발이 요구된다. 고도 휘발성 산화공정 중 휘발되는 핵종 중의 하나인 세슘(Cs^{137})은 반감기가 약 30년인 고방열 및 고방사능 핵종이며, 테크네튬(Tc^{99})은 반감기가 약 210,000인 장수명 핵종이다. 고도 휘발성 산화공정 중 휘발되는 세슘과 테크네튬을 분리 포집하지 않으면 세슘포집필터가 장기간 저장 후에도 저준위폐기물(Class C)이 안 되고 또한 세슘의 발열량으로 인해 많은 처분 면적이 필요하다. 따라서 현재 고도 휘발성 산화공정으로부터 휘발되는 세슘과 테크네튬을 분리할 수 있는 성능 개선 필터의 연구가 필요하다. 필터 성능 개선에 앞서 현재 배기체 처리장치에 이용하고 있는 기존의 석탄회필터와 칼슘필터의 세슘 및 레늄(테크네튬) 포집 및 분리효과를 확인하여 향후 필터의 개선 자료로 활용하고자 한다.

따라서 배기체 처리시스템에서 상압하 석탄회필터와 칼슘필터를 이용하여 각각 1000℃및 800℃의 포집온도에서 세슘과 레늄을 포집하였으며, 이에 대한 포집 특성 평가를 위해 포집 전·후의 무게, XRD, SEM-EDX, ICP를 사용하여 질량변화, 미세구조의 변화 및 성분분석 등을 측정하였다.

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 bactch 기준은 200 gHM 이었다. Tc는 인공 방사성 원소이기 때문에 surrogate로서 화학적 특성이 비슷한 Re(Aldrich Co. 99.9%)을 기체상 Tc의 공급원으로서 사용하였다. 레늄은 매우 높은 녹는점(>3180℃)을 가지며 환원분위기에서는 안정한 특성이 있다. 반면에 레늄은 많은 refractory metals 처럼 산소와 쉽게 반응을 하여 열열학적으로 안정한 $Re_2O_7(g)$, $ReO_3(g)$ 및 $Re_2O_6(g)$와 같은 레늄 산화물을 형성한다고 알려져 있다[2].

세슘과 레늄의 포집 실험은 배기체 처리시스템의 voloxidizer에서 세슘과 레늄 발생원을 기화시킨다. 기체상 세슘 및 레늄의 공급원으로 $CsNO_3$ 1.025g과 Re 0.206g을 사용하였다. 각 시약의 무게를 측정한 후 잘 혼합한 후 OTS 장치의 voloxidizer 안에 상기 시약을 alumina crucible 내부에 넣었다. 그런 다음 기화된 세슘과 레늄은 첫 번째 포집존에 장착한 석탄회필터(18mm(O.D) X 10mm (H)) 10단을 통과한 후 이어 두번째 포집존의 칼슘필터 (18mm(O.D) X 10mm(H)) 10단을 통과하여 제거된다. 각 필터의 포집온도는 석탄회필터의 경우 1000℃, 칼슘필터는 800℃이었다.

포집 온도 조건은 승온 1시간 후에 첫 번째 세슘포집 zone은 1000℃, 두 번째 레늄포집 zone은 800℃에 도달되도록 한 후 6시간 등온 시켰다. 각각의 포집 zone이 정해진 온도에 도달한 것을 확인한 후 voloxidizer의 온도를 1시간 동안 560℃에 도달되도록 한 후 3시간 등온 후 온도를 1시간 후에 1200℃에 도달되도록 한 후 1시간 등온 시켰다. Voloxidizer 가동 시작부터 공기를 0.5 L/min 유량으로 흘려보냈다.

Fig. 1에 세슘 및 레늄 포집 후의 석탄회필터와 칼슘필터의 모습을 나타내었다. 그림에 나타난 것처럼 석탄회필터 1~3단의 표면이 검갈 색으로

변하였다. 석탄회필터 1단, 3단 및 4단의 표면을 SEM으로 모양을 확인하고 EDX로 성분을 분석한 결과 필터 1단 및 3단의 경우 세슘이 44.3, 40.8wt.%로 나타났고 4단은 세슘이 검출되지 않았다. 또한 ICP로 필터 4단을 원소 분석한 결과 세슘이 검출되지 않았다. 따라서 석탄회필터 1~3단 내에서 기체상 세슘이 포집되었음을 알 수 있었다. 세슘 포집 후 석탄회필터 1단을 XRD로 분석한 결과 세슘은 pollucite ($CsAlSi_2O_6$) 형태로 포집되었음을 확인할 수 있었다. 반면에 필터 1단부터 10단 까지 석탄회필터에 레늄이 0.09부터 3.13wt.% 범위로 분석되었다. 이는 석탄회필터의 칼슘성분이 레늄과 반응한 것으로 판단된다.

Fig. 1에 레늄 포집 후 칼슘필터의 모습을 나타내었다. 그림에 나타난 것처럼 칼슘필터 1단의 표면이 검갈 색으로 변하였다. 무게분석을 통해 칼슘 필터 1단 내에 레늄이 전량 포집되었음을 확인할 수 있었다. 칼슘필터 1단 및 2단의 표면을 SEM으로 형상을 확인한 후 EDX로 화학적 성분을 분석한 결과 1단의 경우 레늄은 30.21 wt.%로 나타났고 2단은 레늄이 검출되지 않았다. 또한 ICP로 필터 2단을 원소 분석한 결과 레늄이 검출되지 않았다. 또한 레늄 포집 후 칼슘필터를 XRD로 분석한 결과 레늄은 calcium rhenium oxide hydrate ($Ca(ReO_4)_2 \cdot 2H_2O$) 상으로 포집되었다.

3. 결론

고온 휘발성산화공정에서 발생되는 세슘과 레늄(테크네튬)의 분리 포집을 위해 석탄회필터와 칼슘필터를 제조하여 이들의 포집특성 연구를 수행하였다. 그 결과 석탄회필터 3단 내에 세슘이 전량 포집된 반면에 아주 적은 양의 레늄이 10단에 걸쳐 포집되었다. 반면에 칼슘필터는 대분의 레늄이 필터 1단에 포집되었다. 따라서 현재 고도휘발성 산화공정으로부터 휘발되는 세슘과 테크네튬을 분리하여 포집하는 방법으로 기존의 석탄회필터와 칼슘필터의 분리성능을 향상시킨 개선필터의 연구개발이 요구된다.

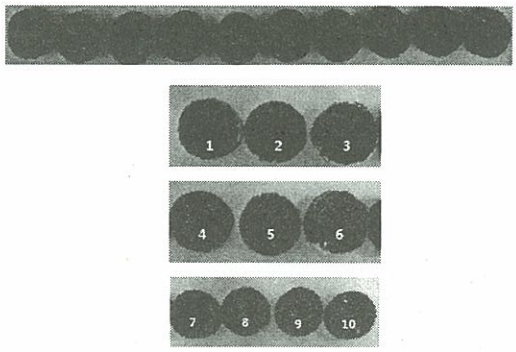
4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

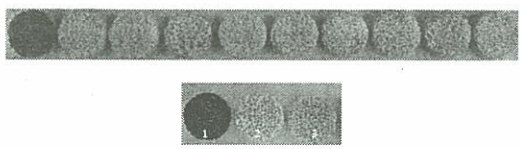
5. 참고문헌

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

[2] N .S. Jacobson, D. L. Myers, D. Zhu, and D. L. Humphery, "Rhenium/Oxygen interactions at elevated temperatures", Oxidation of Metals, 55, 471 (2001).



(a) 석탄회필터



(b) 칼슘필터

Fig. 1. 기체상 세슘과 레늄 포집 후 석탄회필터 및 칼슘필터의 외관

제3분과

방사성폐기물 처리 및 제염해체 (Poster)

빈 면

핫셀용 충격시험기 시편이송장치 및 온도조절장치 개선 후 정확도 및 불확도 시험

주용선, 김길수, 백승제, 유병옥, 김도식, 김기하, 안상복, 류우석
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
yschoo@kaeri.re.kr

1. 서론

조사재시험시설[1,2]에서는 1994년 시설의 정상 운전 이후 국내 상용원자력발전소 중에서 경수로형 압력용기(Light-Water Reactor's Pressurized Vessel)의 중성자 조사로 인한 재료의 조사취화(irradiation embrittlement) 정도를 확인하고, 안전성 및 건전성을 확보 및 검증하기 위해 ASTM E 2215-02[3]에서 규정하고 있는 시험 종류 중 충격시험을 수행해 왔다. 방사성물질로 오염되어 있는 핫셀 내부에 설치되어 있는 시험기기는 교정 검사원이 교정 및 검정을 위해 근접 거리에서 ASTM E 23-02[4]에서 요구하는 내용들을 점검해야 하지만, 현실적으로 핫셀 내부 출입이 곤란하여 직접교정 방법이 아닌 간접교정 방법 만으로 수행하고 있는 실정이다. 특히 충격시험치의 결과치에 막대한 영향을 줄 수 있는 충격시험기기의 앤빌(anvils), 충격시험시편 온도조절장치 및 시편이송장치를 교체 또는 보수를 하는 경우에는 간접교정을 통한 시험기기의 교정이 더욱 더 중요하다.

본 논문에서는 충격시험기기의 일부 부품의 노후화로 인한 앤빌 교체, 온도조절장치 내의 시편가이드의 교체 및 시편이송장치의 보완 후, 고에너지용 NIST-CRM(Certified Reference Ma- te-rial)으로는 시험기기의 불확도(uncertainty)를 점검하고, 고에너지용 JIS-CRM으로는 시험기기의 정확도(precision)를 확인하였다. 불확도는 ±1.53 J(0.7 %)이고, 정확도는 +2.74 %(한계치는 공칭값의 +5.0 % 임)이었다.

2. 실험 및 결과

2.1 시험기기의 개요 및 구성

경수로형 압력용기(Light Water Reactor's Pressurized Vessel)의 중성자 조사로 인한 재료의 조사취화 정도를 확인하기 위해 노심(reactor core)의 벨트라인(beltline)에 설치한 감시캡슐(surveillance capsule)을 이용하는데, 감시캡슐 내부에는 노심의 모재(base metal), 용접재(weld metal) 및 열영향부(heat affected zone) 재료로부터 제작한 표준형 충격시편, 인장시편 및 파괴인성시험용 CT시편을 담고 있다. 이들 중 표준형 충격시편들은 ASTM E 2215-02 및 ASTM E 23-02 규정에 의거하여 조사재시험시설의 M5a 핫셀 내부에 설치한 원격시험용 충격시험기로 수행한다.

본 장치는 Fig. 1과 같이 충격시험기 본체, 앤빌(anvils), 온도조절장치 및 시편이송장치로 구성한다. 충격시험기 본체는 최대 시험용량이 406 J인 Tinius-Olsen사의 제품이고, 온도조절장치 및 시편이송장치는 국내에서 자력으로 구축하였다[5]. 온도조절장치는 냉각/가열용 로, 전기히터, 솔레노이드 밸브(solenoid valve), 액체질소(LN_2), 온도조절용 콘트롤러(TIC) 등으로 구성하며, 설정온도를 +300 ℃ 부터 -150 ℃ 까지 조절할 수 있다. 시편이송장치는 냉각/가열용 로 중앙에서 온도조절을 완료한 충격시험편을 충격시험기 앤빌까지 이송하는 장치로써 시편이송용 핸들, 시편이송 바(bar) 등으로 구성한다.

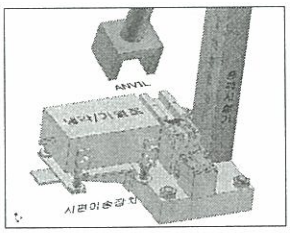


Fig. 1. Impact test system of IMEF (3-D)

2.2 시험기기 구성품의 교체 및 시험

충격시험기의 앤빌을 Fig. 2와 같이 교체하였고, 냉각/가열용 로 중앙에서 온도 조절을 완료한 시험편을 충격시험기의 앤빌 중앙부에 정확하게 위치함과 동시에 앤빌의 수직면과 100 % 접촉하도록 본 시스템을 개선 및 보완하였다. 압축공기 압력 0.2 MPa로 작동하는 모델 CU16-50D 실린더 2개는 충격시험기 앤빌과 시험편과의 100 % 접촉을 위해 사용하였고, 같은 사용압력의 모델

CU10-15D 실린더 1개는 충격시험편이 앤빌의 중앙부에 정확하게 위치하도록 하는 스토퍼(stopper) 기능을 하도록 각각 Fig. 2와 같이 설치하였다. 특히 온도조절이 완료한 시험편의 온도가 유지되도록 실린더 바의 끝부분을 테프론(Teflon)으로 설계하였다. 그리고 온도조절용 콘트롤러, 솔레노이드 밸브 및 냉각/가열용 로 내부의 시편가이드도 교체하였다.

시험기기 구성품의 교체 후 온도시험, 충격시험치의 정확도 및 불확도 시험을 수행하였다. 냉각/가열용 로 내부에서 온도 조절을 완료한 시험편을 충격시험기 앤빌로 방출한 시험편의 온도 변화 여부를 상온 이상 및 이하에서 각각 수행을 하였고, 섭씨 -50 ℃에서의 시험내용을 Fig. 3에 나타내었다. 그리고 충격시험치의 정확도 및 불확도 시험을 고에너지용 표준시편들로 수행하였고, 그 내용은 Table 1과 같다.



Fig. 2. Anvils of Impact test and specimen transferring system (plan view)

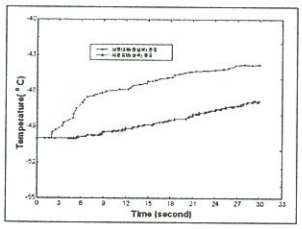


Fig. 3. Temperature holding time test after out of heating/cooling furnace (test temperature : -50.0 ℃)

3. 결 론

충격시험기기의 일부 부품의 노후화로 인한 앤빌 교체, 온도조절장치 내의 시편가이드의 교체 및 시편이송장치의 보완 후, 간접교정 방법으로 NIST용 CRM으로는 시험기기의 불확도(uncertainty)를 점검하고, JIS용 CRM으로는 시험기기의 정확도(precision)를 확인하였다. 불확도는 ±1.53 J(0.7 %)이고, 정확도는 +2.74 %이었으며, 정확도는 공칭값의 +5.0 %이내에 있다.

그리고 저에너지에 대한 충격시험기의 불확도 및 정확도를 측정하기 위해 저에너지용 NIST-CRM 및 JIS-CRM들로 각각 시험을 수행할 예정이다.

Table 1. Specimen test results of NIST-CRM

시편 ID	시험 온도 (℃)	충격 시험값 (J)	비고
HH120_0600	-42.5	106.79	1) NIST-CRM 2) 불확도 - ±1.53 J (0.7 %) - k=2, (신뢰수준 : 95%)
HH120_0636		105.70	
HH120_0637		106.59	
HH120_0638		109.27	

Table 2. Specimen test results of JIS-CRM

시편 ID	시험 온도 (℃)	충격 시험값 (J)	비고
M37_0362	0.0	100.2	1) JIS-CRM 2) 정확도 : 2.74 % - 평균값 : 99.9 J - 공칭값 : 97.25 J
M37_0279		100.6	
M37_0347		99.04	

4. 참고문헌

[1] 주용선 외, "하나로 조사 핵연료 및 재료용 무계장/계장 캡슐 조사후시험 현황", 하나로 심포지엄, 2004.

[2] 주용선 외, "하나로 OR 시험공에서 조사한 계장용 재료캡슐(07M-21K) 핫셀시험", 하나로 심포지엄, 2008.

[3] ASTM E 2215-02, "Standard Practice for Evaluation of Surveillance Capsules from Light-Water Moderated Nuclear Power Reactor Vessels", ASTM, 2002.

[4] ASTM E23-02, "Test Methods for Notched Bar Impact Testing of Metallic Materials", ASTM, 2002.

[5] 노성기외 5인, "장기저장 조사재료 특성시험연구", KAERI-NEMAC/RR -107-93, 과학기술처, 1993.

고품위우라늄 혼합물의 탄산염 산화침출 거동

이일희, 임재관, 성새름, 최은경, 현준택, 정동용, 양한범, 김광욱
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
nehlee@kaeri.re.kr

1. 서론

고품위우라늄 혼합물은 핵연료 제조에서 발생하는 UO_2 쪼가리 (대부분 산화물) 및 연삭 등에서 발생하는 찌꺼기 (금속물질, SiC) 등의 U 함량이 높은 U-스크랩 등을 의미한다. 본 연구는 고품위우라늄 혼합물 내 존재하는 불순물의 탄산염 산화침출 거동 및 불순물/U의 산화 공침출을 평가하여 U을 고수율로 회수하는 기술개발을 목적으로 한다. 전제조건으로는 실온에서의 조업이 가능해야 하며, U은 최대로 많이 침출시켜야 하고, 불순물은 최소로 침출시킬 수 있거나 또는 다량으로 침출될 경우는 최종 U의 회수 단계에서 불순물을 효과적으로 제거할 수가 있어야 한다.

2. 본론

2.1 실험

2.1.1. 고품위우라늄 혼합물 조성 및 제조

아래 Table은 U-스크랩 내 불순물원소의 성분 및 조성의 일례이며, 본연구는 Al, B, Ca, Cd, Fe Cd, Fe, Gd, Mg, Mo, Ni, Si Zn과 U 등의 12성분 산화물계와 기타 Al-금속, $Ca(OH)_2$, FeO(OH), SiC 등의 4성분 비산화물 계로 구분하여 수행하였다.

원 소 (ppm)	건식 연삭 찌꺼기	우라늄 스크랩 -1	우라늄 스크랩 -2
F	2	12	87
C	259	58	46
P	21.8	19.1	23.7
Na	14.5	12.2	12.1
K	11.9	10.6	14.7
Si	2.9	4.6	14
Ca	3.1	3.7	104.4
Cu	1.2	2.3	9.6
Fe	18	9.5	113.2
Cd	0.27	0.27	0.33
Mg	5.2	5	15.1
B	0.45	0.29	-
Ni	20.4	1.7	82.8
Cr	2	4.4	108.9
Al	20.6	3.6	114
Mn	1.5	2	11.3
Mo	6.2	2.9	113.8
Dy	0.1	0.05	-
Gd	0.14	0.1	-
Th	4.7	5.1	-

2.1.2. 실험 방법

모든 실험은 회분식으로 25±1℃에서 수행하였다. 12성분의 산화물계 및 4성분의 비산화물 계을 구성하는 각각의 원소를 화학저울로 0.1 g씩, U은 UO_2 2.2 g을 칭량하여 100 mL 탄산염 용액에 넣는다. 그리고 온도, 교반속도 및 시간조절이 가능한 다중 교반기를 이용하여, 400 rpm으로 2시간 동안 산화 침출한다. 그런 다음 원심분리기로 고액 분리한 후 침출액에 존재하는 금속이온의 농도를 분석하여 각 원소의 침출율을 측정한다.

2.1.3. 분석

불순물인 Al, B, Ca, Cd, Fe, Gd, Mg, Mo, Ni, Si, Zn 등과 U 은 ICP를 이용하여 각각의 농도를 분석하였으며, 용액 내 pH, H_2O_2 및 탄산염 농도는 각각 pH meter, RQflex 10 및 TOC를 이용하여 분석하였다. 그리고 각 원소의 침출율은 $D(\%) = W_M/W_{M,i} \times 100$ 식으로 계산하였으며, 여기서 $W_{M,i}$ 및 W_M는 각각 금속이온의 초기량(g) 및 침출액 내 함유된 금속이온의 량(g)를 의미한다.

2.2 결과 및 토의

Fig. 1은 각각 0.5M Na_2CO_3-xM H_2O_2 계에서 H_2O_2 농도 변화에 따른 10성분 산화물 계 및 4성분 비산화물 계에서의 각 원소의 침출율이다. 용액의 pH는 산화물 계에서는 10.4~11.0로 거의 변화가 없지만, 비산화물 계에서는 10.3~12.4로 다소 증가하고 있다. 침출원소로는 H_2O_2 농도 증가에 따라 B, Ca, Mo, Si 등의 산화물과 Al-금속, SiC 등이 침출되며, 기타 Al, Cd, Fe, Gd, Mg, Ni, Zn 등의 산화물과 $Ca(OH)_2$, FeO(OH) 수산화물은 1 ppm 이하로 거의 침출되지 않고 있다. 이는 탄산염 계에서의 이들 원소의 용해도가 낮은데 기인한다. 한편 U은 H_2O_2 농도 증가에 따라

증가하는 경향이지만 0.5M 이상에서는 거의 영향이 없다. 그리고 탄산염이 함유되지 않은, 1.0M H_2O_2 단독용액의 경우 탄산염 용액에서의 침출원소 중 B와 Ca는 각각 일부분이 침출되는 데 반하여, Mo, Si, U 및 기타 불침출 원소는 모두 침출되지 않았다.

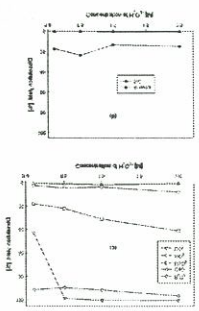


Fig. 1

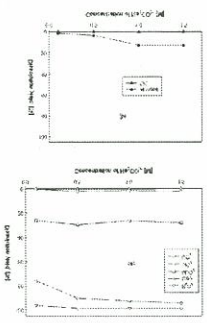


Fig. 2

Fig. 2는 각각 xM Na_2CO_3-1.0M H_2O_2 계에서 Na_2CO_3 농도 변화에 따른 각 원소의 침출율이다. 산화물 계 및 비산화물 계의 침출용액 내 pH 변화는 모두 10.4~11.0로 거의 비슷하였다. Na_2CO_3 농도 증가에 따라 B, Ca, Mo, Si, U 등의 산화물과 Al-금속, SiC 등이 침출되며, 기타 Al, Cd, Fe, Gd, Mg, Ni, Zn 등의 산화물과 FeO(OH), $Ca(OH)_2$는 1 ppm 이하로 거의 침출되지 않고 있다. 특이점으로는 Mo의 경우 2M H_2O_2에서는 최대 310 mg/L 까지 침출된데 반하여, Na_2CO_3 농도 변화에 대해서는 210±10 mg/L로 거의 변화가 없었다. 이는 탄산염 용액 내 H_2O_2의 농도가 일정한데 기인하며 Mo가 산화침출되고 있음을 보여주는 것이다. Fig. 3은 0.5M Na_2CO_3-1.0M H_2O_2 계에서 침출시간에 따른 각 원소의 침출율과 이때 분해 소모되는 H_2O_2의 농도비이다. 침출시간은 약 1시간 정도면 충분할 것 같고, B의 경우 1시간 경과 후 거의 대부분이 침출되고 있음을 알 수 있다. 침출시간 변화에 따른 산화물 계의 pH 변화는 10.6~10.9 이었고, 비산화물 계에서는 10.6~11.4 이었다. 한편 침출시간에 따른 H_2O_2의 농도 변화는 침출시간 증가에 따라 급격히 감소하며 4시간이 경과된 후에는 0.104 M 까지 감소된다. 이와 같은 H_2O_2 농도의 감소원인은 알카리 용액에서의 자체분해 및 탄산염 용액에서의 U (또는 Mo 등)의 산화제로서의 소모 등에 기인한다. Fig. 4는 온도 및 교반속도 변화에 따른 침출 불순물 원소인 B, Mo, Si 등의 산화물과 Al-금속의 침출농도이다. 온도를 50℃까지, 교반속도를 1,000 rpm 까지 증가시켜도 침출액의 농도변화 폭이 크지 않는 것으로 보아 온도 및 교반속도가 Na_2CO_3 탄산염 용액에 의한 침출에 미치는 영향은 미미한 것으로 보인다.

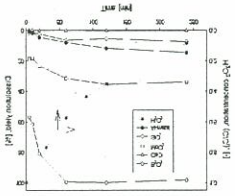


Fig. 3

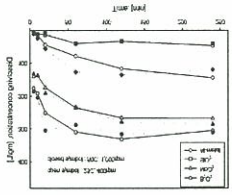


Fig. 4

3. 결 론

고품위우라늄 혼합물 내 함유되어 있는 불순물 원소와 U과의 효과적인 출을 위해서는 탄산염 용액의 농도 및 산화제 (H_2O_2)의 농도는 각각 0.5M 이상, 1.0M 정도가 좋을 것으로 보이며, 침출시간은 1시간 정도, 온도 및 교반속도는 각각 상온, 약 400 rpm 정도에서 그리고 용액 내 pH는 질산첨가 등의 전처리 과정 없이 약 pH 10~11 에서 수행하는 것이 적당할 것으로 보인다. 그리고 U과 불순물 원소와의 공침출을 감소하기 위해서는 $NaHCO_3$ 용액보다는 Na_2CO_3 용액을, 불순물의 침출량을 고려하지 않고 오로지 U의 침출시간 단축 및 침출량을 증가시키기 위해서는 $NaHCO_3$ 용액을 적용하는 것이 보다 효과적이다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발 중장기 계획사업 일환으로 수행된 연구결과입니다.

5. 참고문헌

[1] K. W. Kim, D. Y. Chung, H. B. Yang, J. K. Lim, E. H. Lee, K. C. Song and K. S. Song, Nucl. Tech., **166**, 170-179(2009).

[2] E. H. Lee, J. K. Lim, D. Y. Chung, H. B..Yang, J. H. Yoo and K. W. Kim, J. Radioanal. Nucl. Chem. 284(2), 387(2010).

[3] E. H. Lee, J. K. Lim, D. Y. Chung, H. B..Yang, and K. W. Kim,. J. Korean Radioactive waste Soc., 7(2). 93-100(2009).

고품위우라늄 혼합물의 질산용해 특성

이일희, 임재관, 성새름, 최은경, 현준택, 정동용, 양한범, 김광욱
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
nehlee@kaeri.re.kr

1. 서론

우라늄 혼합물로부터 U의 회수는 우라늄 혼합물의 효과적인 용해가 관건으로, U의 선택적 용해나 U/불순물을 함께 용해하는 일괄용해로 구별된다. 그러나 이에 관련한 연구는 근본적으로 이를 폐기물로 간주하였기 때문에 거의 수행되지 않았다. 본 연구는 일괄용해에 의해 고품위우라늄 혼합물부터 고수율로 U을 회수하는 기술개발을 목적으로 상온 질산용해에 의한 불순물의 용해특성 및 불순물/U의 공용해 등을 고찰한다.

2. 본론

2.1 실험

2.1.1. 고품위우라늄 혼합물 조성 및 제조

고품위우라늄 혼합물은 핵연료 제조/연삭 과정에서 발생하는 U 핵연료의 쪼가리와 이때 혼입되는 미량의 금속성분 (불순물) 등이 포함된 U의 함유량이 불순물보다 매우 큰 U-스크랩 등을 의미한다. 다음 표는 U-스크랩 내 함유되어 있는 불순물 원소의 성분 및 조성의 일례로서 전처리에 따라 조성이 매우 다양하게 구성되어 있다. 본 연구에서는 Al, B, Ca, Cd, Fe, Gd, Mg, Mo, Ni, Si Zn과 U 등의 12성분 산화물계와 기타 Al-금속, $Ca(OH)_2$, FeO(OH), SiC 등의 4성분 비산화물계로 구분하여 수행하였다.

2.1.2. 실험 방법

모든 실험은 회분식으로 25±1℃에서 수행하였다. 12성분의 산화물계 및 4성분의 비산화물 계을 구성하는 각각의 원소를 화학저울로 0.1 g씩, U은 UO_2 2.2 g을 칭량하여 100 mL 질산 용액에 넣는다. 그리고 온도, 교반속도 및 시간조절이 가능한 다중 교반기를 이용하여, 400 rpm으로 1시간 동안 용해한다. 그런 다음 원심분리기로 고액 분리한 후 용해액에 존재하는 금속이온의 농도를 분석하여 각 원소의 용해율을 측정한다.

2.1.3. 분석

불순물인 Al, B, Ca, Cd, Fe, Gd, Mg, Mo, Ni, Si, Zn 등과 U은 ICP를 이용하여 각각의 농도를 분석하였으며, 용액 내 pH는 pH meter 이용하여 분석하였다. 그리고 각 원소의 용해율은 $D(\%)= W_M/W_{M,i}$ x 100 식으로 계산하였으며, 여기서 $W_{M,i}$ 및 W_M는 각각 금속이온의 초기량(g) 및 용해액 내 함유된 금속이온의 량(g)를 의미한다.

원 소 (ppm)	건식 연삭 찌꺼기	우라늄 스크랩 -1	우라늄 스크랩 -2
F	2	12	87
C	259	58	46
P	21.8	19.1	23.7
Na	14.5	12.2	12.1
K	11.9	10.6	14.7
Si	2.9	4.6	14
Ca	3.1	3.7	104.4
Cu	1.2	2.3	9.6
Fe	18	9.5	113.2
Cd	0.27	0.27	0.33
Mg	5.2	5	15.1
B	0.45	0.29	-
Ni	20.4	1.7	82.8
Cr	2	4.4	108.9
Al	20.6	3.6	114
Mn	1.5	2	11.3
Mo	6.2	2.9	113.8
Dy	0.1	0.05	-
Gd	0.14	0.1	-
Th	4.7	5.1	-

2.2 결과 및 토의

Fig. 1은 질산농도 변화에 따른 10성분 산화물계 및 4성분 비산화물 계에서의 각 원소 용해율이다. 질산농도 증가에 따라 용해율이 증가되고 있으며, 질산농도 2M 이상의 경우 10성분 산화물계에서는 질산농도 증가에 따라 B (93~98%), Ca (>99%), Cd (>99%), Gd (>97%) 등은 거의 대부분이 용해되는 데 반해, Mo는 약 470~540 mg/L로 부분용해 되고 (61~72% 정도), 기타 Al (12 mg/L), Fe (2~8 mg/L), Ni (1 mg/L 이하), Si (8~10 mg/L)는 아주 미량 용해되고 있다. 반면에 4성분 비산화물 계의 경우는 질산농도 2M 이상에서 $Ca(OH)_2$는 540±20 mg/L로 거의 100% 용

해되지만, Al-금속은 부분적으로 용해되다가 8M 질산에서 거의 모두 용해되었고, 기타 FeO(OH) 및 SiC는 질산농도 증가에 영향없이 각각 5 ppm 이하로 거의 용해되지 않고 있다. 반면에 우라늄(UO_2 분말)은 용해시간 1시간에서는 질산농도에 관계없이 거의 용해되지 않고 있다. 그러나 용해시간 24시간이 경과된 경우에도 질산농도 2M 이하에서는 거의 용해되지 않았으나, 8M 질산에서는 약 80% 정도가 용해되었다. 이와 같은 U 산화물의 불용해성는 상온 용해에 기인하는 것 같으며, 완전용해를 위해서는 고산도 질산용액에서 용해온도를 증가시키거나 (80~90℃), 충분한 용해시간을 제공하면 가능할 것으로 보인다.

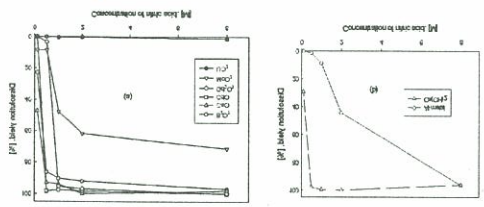


Fig. 1

그리고 본 그림에서는 나타내지 않았으나, 80℃, 8M HNO_3 에서 1시간 용해할 시 98% 이상의 우라늄이 용해되었으며, 4M 질산이나 6M 질산의 경우에도 80℃에서 2시간 이상 용해시키면 각각 93%, 96% 정도가 용해되었다. 이로부터 UO_2의 질산용해에서는 용해액의 농도 및 용해온도가 중요한 인자임을 알 수 있다.

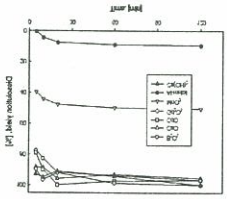


Fig. 2

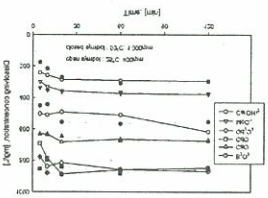


Fig. 3

그림 2는 1.0M 질산용액으로 용해할 경우 용해시간에 따른 B, Ca, Cd, Gd, Mo 등의 산화물과 Al-금속, $Ca(OH)_2$의 용해율을 나타내었으며, 그림 3은 온도 및 교반속도 증가에 따른 B, Ca, Cd, Gd, Mo 등의 산화물과 $Ca(OH)_2$의 용해농도를 각각 나타내었다. 용해시간은 산화물 계나 비산화물계 모두 약 30분 이상이면 가능할 것 같고, 온도를 50℃, 교반속도를 1,000 rpm 까지 증가시켜도 용해시간 30분 이상에서는 용해농도 변화가 실험 오차범위 내에 있는 것으로 보아, 본 실험 범위의 온도 및 교반속도에서는 온도 및 교반속도가 불순물 원소의 질산용해에 미치는 영향은 매우 미미할 것으로 보인다.

3. 결론

고품위우라늄 혼합물 내 함유된 U의 용해량 차원에서 보면 고농도 질산에 의한 용해가 양호하나, 이 경우 공존 불순물의 용해량이 대폭 증가될 것이고, 불순물의 용해량을 감소시키기 위하여 저농도 질산용해를 한다면 U의 용해량이 급격히 감소될 것으로 보인다. 그러므로 우라늄 (UO_2)을 어느 정도 효과적으로 용해하기 위해서는 고온, 고산도 및 장시간의 용해시간이 요구된다. 이외에도 고품위우라늄의 경우 궁극적으로는 함께 용해된 불순물로부터 이를 다시 회수하여야하는 데 불순물의 함량이 많으면 U 침전/회수 시 불순물과의 공침전 등으로 U의 정제 관점에서 많은 문제점을 야기시킬 수 있다. 그러나 질산 용해에서도 후속 U의 침전회수 공정에서 U과 공용해된 불순물 원소를 충분히 제거할 수 있다면 이의 용해법도 효과적일 수 있으므로 질산 용해액 대상 U의 침전회수가 요구되다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발 중장기 계획사업 일환으로 수행된 연구결과입니다.

5. 참고문헌

[1] K. W. Kim, D. Y. Chung, H. B. Yang, J. K. Lim, E. H. Lee, K. C. Song and K. S. Song, Nucl. Tech., **166**, 170-179(2009).

[2] E. H. Lee, J. K. Lim, D. Y. Chung, H. B..Yang, J. H. Yoo and K. W. Kim, J. Radioanal. Nucl. Chem. 284(2), 387(2010).

[3] K. W. Kim, Y. H. Kim, S. Y. Lee, E. H. Lee, K. C. Song and K. Song, Ind. Eng. Chem. Res. **48**. 2085-2092(2009).

액체폐기물 성상별 수질정화를 위한 최적의 전처리 공정

이손동, 이일환, 윤영호, 서장수
한수원(주) 원자력교육원, 울산광역시 울주군 서생면 신암리 991
lsd1021@khnp.co.kr

1. 서론

원자력발전소에서 발생되는 방사성 폐기물은 기체, 액체, 고체등 다양한 형태로 생성되어 생활환경에 부정적 요소로 작용하고 있다. 이에 발전소현장에서 방사성 폐기물 발생량을 줄이기 위해 다양한 처리기술을 적용하고 있다.

액체폐기물을 효과적으로 처리하기 위하여 세탁 및 제염폐수는 여과처리와 이온교환공정을, 바닥배수 및 기기배수는 여과처리와 증발농축공정으로 처리하고 있다. 특히, 바닥배수는 용존고형물의 농도가 매우 높기 때문에 적절한 전처리공정 없이 한외여과와 정밀여과를 적용할 경우 높은 여과기 차압이 발생되고 있다.

본 논문은 방사성 액체폐기물 처리의 전처리 여과과정에 유입수의 수질에 따라 활성탄 여과공정 또는 응집침전과 활성탄여과 병행 처리공정을 선택하여 수처리함으로서 공정별 압력차를 줄이고 전후단의 수두부하를 최소화하고 후처리되는 이온교환의 효율성을 높일 수 있는 방사성 액체폐기물 처리공정을 연구하였다.

2. 방사성 액체폐기물 성상

2.1 기기배수

순수용매(pH 6.8, 탁도 0 NTU, 전도도 0.08 ㎲/cm)에 morpholine(COD농도조절)과 붕산으로 pH 5.5, 탁도 6 NTU, 전도도 24.2 ㎲/cm, 화학적산소요구량(COD) 10 ppm (수온 20 ℃에서), 붕산수 8 ppm이 되도록 시료 4 L를 조제하였다.

2.2 바닥배수(상등수 기준)

clay(탁도형성), morpholine(COD농도조절), HCl(pH조절)로 pH 5.8, 탁도 100 NTU, 전도도 1,813 ㎲/cm, 화학적산소요구량(COD) 3,330 ppm (수온 20 ℃에서)되도록 시료 4 L를 조제하였다.

3. 측정 및 방법

활성탄은 탄화와 활성화 과정에서 분자크기 정도로 흡착능력을 배가시킨 것으로 기공(pore)의 내부면적이 활성탄 1 g당 1000 ㎡ 이상이 된다. 직경이 100~10000 nm의 대기공(macropore) 활성탄 흡착정도를 흡착등온식으로 관찰할 수 있다. 활성탄 여과기는 고탁도인 경우 여과기능이 여과기 전후단 압력차와 활성탄 세공오염으로 저하될 수 있다. 따라서 액체폐기물을 효과적으로 처리하기 위하여 수질의 상태에 따라 다음과 같이 수처리하였다. 활성탄 용기는 직경 10 cm 높이 45 cm의 원통형을 사용했다.

1단계실험, 탁도가 낮은 기기배수는 체류시간에 따른 활성탄 여과기 통과로 정화한다.

2단계실험, 탁도가 높은 바닥배수를 여과지 여과 및 증발증류한다.

3단계실험, 탁도가 높은 바닥배수를 응집침전 후 상등수는 조대활성탄여과처리한다.

이러한 절차에 따라 각 단계별 입구측 및 출구측 수질을 측정하여 처리공정 효과를 관찰하고 해당 공정의 처리효율을 계산하였다.

4. 결과 및 고찰

상기와 같은 절차에 따라 공정별 입·출구 수질변화는 처리형태에 따라 다양하게 나타났다.

4.1 저 탁도수 처리

1단계실험으로 탁도가 낮고 전도도가 낮은 기기배수를 1.5 L의 조대활성탄여과기에 체류시간 변화에 따른 활성탄 여과기의 출구수 수질변화는 [표 1]과 같다.

Table 1. 저탁도 기기배수 활성탄여과 처리수

체류시간 (분)	탁도 (NTU)	전도도 (㎲/cm)	COD (ppm)	pH
10	3.30	18.3	5.0	6.2
20	1.65	23.1	1.8	6.2
30	0.83	46.8	0.8	6.2
60	0.37	199.3	0.2	6.3
90	0.29	183.4	0.1	6.3

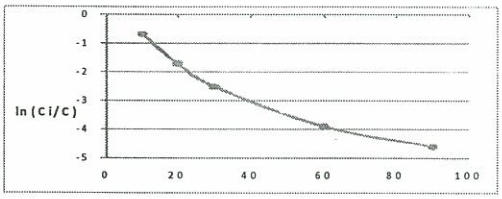


Fig. 1. 체류시간(분) 대비 농도변화

[표1]에서와 같이 저탁도의 기기배수는 활성탄 여과처리에서 체류시간에 따라 수소이온농도의 변화는 거의 없고, 전기전도도는 크게 증가함을 볼 수 있으며 탁도와 COD저감이 뚜렷하다. 전기전도도의 상승은 유기물의 흡착반응과정에서 방출되는 이온성 물질에 의한 것으로 예측된다. 화학적산소요구량의 변화는

초기 농도(C0) = 10 ppm, 수온 20 ℃, 대기압, morpholine 흡착능 52 %, 가정 : 활성탄 비중 1, 탈착률 0 %으로 하고

1차반응식 -dC/dt = kC ln(Ci/C) = -kt을 적용하여 도식하면 [그림1]과 같이 30 분정도 체류할 경우 COD 92 % 제거효율로 최적의 상태가 될 수 있음을 알 수 있다.

4.2 고 탁도수 처리

1) 2단계실험으로 탁도가 높은 바닥배수의 물리적 성상을 측정하기 위하여 고탁수 시료 300 ml를 0.45 ㎛여과지로 여과, 500 ml를 증발증류하였다.

Table 2. 고탁도 바닥배수 수질

		TDS (mg/kg)	탁도 (NTU)	전도도 (㎲/cm)	COD (ppm)	pH
원시료		-	100	1,813	3,300	5.8
0.45 ㎛ 여과	여과수		0.325	1,189	2,011	6.7
	여과물	8.7	-	-	-	-
증발 증류	증류수	0.6	5.64	721	267	7.3
	농축수	3.3	66	1,208	2,661	8.1

[표2]에서와 같이 고탁도 바닥배수는 총 부유성 고형물(TDS)중에 휘발성 고형물은 15 %정도이고, 고정형 고형물은 85 %정도이므로 응집침전할 경우 수중 고형물 제거가 용이할 수 있음을 알 수 있다. 또한 0.45 ㎛ 여과지 통과수의 탁도가 현저히 격감한 것은 수중에 단분자성과 이온성 물질이 적은 양으로 존재하므로 이온교환에 의한 정수처리 보다 응집침전에 의한 고분자성 물질이상의 고형물제거가 효과적임을 알 수 있다.

2) 3단계실험으로 탁도가 높은 바닥배수를 응집침전 후 상등수는 10.8 ml/sec의 유량으로 조대 활성탄 여과처리한다.

고탁도 시료 4 L를 황산알루미나, 가성소다와 폴리일렉트릭라이트로 응집침전 시킨다음 상등수와 침전물을 아래와 같이 분석하였다. 슬러지량은 시료 각 500 ml를 150 ℃에서 증발건조하여 무게를 측정하였다.

Table 3. 응집침전 처리수

		슬러지량	탁도 (NTU)	전도도 (㎲/cm)	COD (ppm)	pH
응집전		1.35 g/500ml	100	1,813	3,300	5.8
응집후	상등수	-	18	2,340	267	7.0
	침전물	1.48 g/500ml	-	-	-	-
상등수 활성탄여과			0.29	1,997	6	7.4

[표3]은 응집침전반응 전 후 수질변화를 나타낸 것이다. 응집침전 전후, 응집제처리로 인하여 전기전도도가 소폭 증가하고 침전슬러지가 (1.48-1.35)/1.35 × 100 % = 9.6 %정도 증가하였지만 응집침전 수처리공정만으로 82 % 탁도제거와 91.9 % COD 저감의 효과를 얻을 수 있다. 응집침전 상등수를 활성탄 여과기에 10.8 ml/sec의 빠른 유속에서도 거의 100 %에 가까운 흡착효과를 얻을 수 있다.

5. 결론

본 시험에서는 방사선 관리구역내의 액체폐기물 전처리 여과과정에 유입수의 상태에 따라 활성탄 여과공정 또는 응집침전과 활성탄 여과공정 병행 처리공정을 선택하여 수처리함으로서 공정별 수두부하를 최소화하고 후처리되는 이온교환의 효율성을 높일 수 있는 방사성 액체폐기물 처리공정 순서를 연구하였다.

저탁도 기기배수는 흡착반응 체류시간을 30 분정도의 활성탄여과기처리로 COD 90 %이상 제거효과를 얻을 수 있다.

고탁도 바닥배수는 응집침전반응으로 생성되는 슬러지량은 약 9 %정도 증가하지만 총 TDS중에 15 %휘발성 고형물 85 % 고정형 고형물이고 단분자성과 이온성 물질이 적으므로 응집침전이 효과적이다. 따라서 응집침전반응 후 활성탄여과처리 공정이 타당하다.

6. 참고문헌

[1] 2nd Ed, Werner Stumm& James J. Morgan, "Aquatic Chemistry", p620-661(1981).

[2] Kim, S. K. and Lee, S. H., "The Reduction of COD from Papermaking Wastewater by Fenton Oxidation," 562-565 (1997).

철재 방사성폐기물 자체처분을 위한 RESRAD-RECYCLE 코드 고찰

조현태, 이상태, 김창환, 김효철, 이의동
하나검사기술(주), 부산광역시 기장군 장안읍 고리216번지
amaworld@nate.com

1. 서론

원자력발전소에서 발생되는 철재 방사성폐기물은 교육과학기술부 고시 제2009-37호 "방사성폐기물의 자체처분에 관한 규정 고시" 및 원자력발전소 운영절차서에 따라 수집, 분류, 절단, 제염, 방사선량률 및 오염도 측정, 감마핵종분석, 전알파·전베타 방사능 측정, 선량평가를 수행하여 한국원자력안전기술원에 자체처분계획서를 제출, 검토 및 승인 후 최종 처분한다. 특히, 철재 방사성폐기물은 소각, 매립, 재활용의 자체처분 방법 중 재활용으로 자체처분하며, 자체처분시 선량을 평가하기 위해서는 RESRAD-RECYCLE 코드를 사용한다.

본 논문에서는 처분제한치 미만의 철재 방사성폐기물을 RESRAD-RECYCLE 코드로 선량평가시 그 운영방법에 따른 결과를 비교하여 RESRAD-RECYCLE 코드의 올바른 사용법 및 오류를 파악하고 자체처분 선량평가의 신뢰도를 높이고자 한다.

2. 본론

2.1 실험

RESRAD-RECYCLE 코드의 Scrap Inventory 창의 조건을 변경하면서 결과를 비교한다.

첫 번째, 처리량 입력 후 Adust Population for Throughput 버튼을 클릭했을 때 각 시나리오의 매개변수 값의 변경결과를 비교한다.

두 번째, 처리량 입력 후 Reset Population to Default 버튼을 클릭했을 때 각 시나리오의 매개변수 값의 변경결과를 비교한다.

세 번째, Throughput 입력필드에 처리량을 입력하고 곧바로 Done 버튼을 클릭했을 때 각 시나리오의 매개변수 값의 변경결과를 비교한다.

네 번째, Dilution Fraction for all scenarios의 값에 따른 각 시나리오의 선량평가 결과를 비교한다.

다섯 번째, Initial Decay Time for all scenarios의 값에 따른 각 시나리오의 선량평가 결과를 비교한다.

여섯 번째, 원전 주요핵종인 ^{60}Co 및 ^{137}Cs 따른 각 시나리오의 선량평가 결과를 비교한다.

일곱 번째. Fig.1 Scrap Inventory와 같은 조건을 입력하고 선량평가를 수행하여 결과를 출력한다.

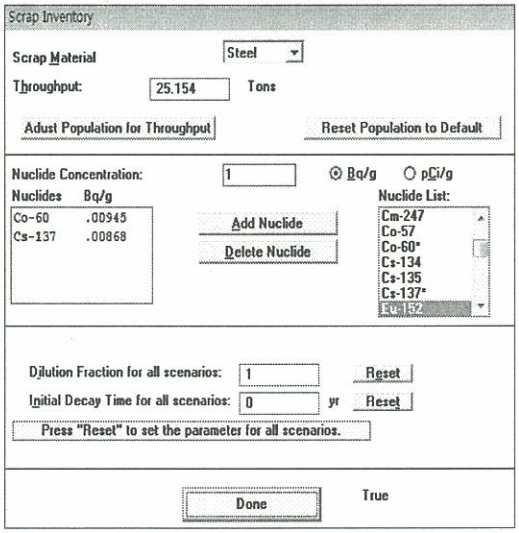


Fig. 1. Scrap Inventory

2.2 결과

RESRAD-RECYCLE 코드는 폐기물 처리량을 100 ton 으로 가정하여 개발된 프로그램으로 모든 시나리오의 매개변수는 이를 기초로 설정되어 있으며 조건에 따른 결과는 다음과 같다.

첫 번째, Throughput 입력필드에 처리량을 입력하고 Adust Population for Throughput(처리량에 따른 연간피폭시간 및 피폭자 수 조정)을 클릭하면 고철운반, 철강용융, 강괴운반, 초기가공, 최종가공, 생산품 유통(공작소작업자 제외) 시나리오의 연간피폭시간 매개변수 값은 처리량에 따라 선형적으로 변경되고 연간피폭시간이 2,000 시간 초과 시는 2,000 시간으로 고정되면서 피폭자 수가 선형적으로 변경된다. 그리고 소비재와 공공재, 공작소작업자 시나리오의 연간피폭시간 매개변수 값은 불변하고 피폭자 수만 변경된다. 제한적 재활용 및

재이용 시나리오의 연간피폭시간 및 피폭자 수의 매개변수 값은 처리량에 무관하게 불변한다.

두 번째, Throughput 입력필드에 처리량을 입력하고 [Reset Population to Default]을 클릭하면 모든 시나리오의 매개변수 값이 100 ton 의 폐기물처리량 매개변수 값으로 변경된다.

세 번째, Throughput 입력필드에 실제 처리량을 입력하고 곧바로 [Done] 버튼을 클릭하면 입력 처리물량은 Default 처리량인 100 ton 으로 불변하고 모든 시나리오 매개변수 값이 변경되지 않는 오류가 발생한다.

네 번째, Dilution Fraction for all scenarios 및 Initial Decay Time for all scenarios의 입력필드에 적합한 값을 입력하고 [Reset] 버튼을 클릭해야 입력 값이 제대로 적용되며 그렇지 않을 경우 재이용 시나리오의 매개변수 값인 Surface Transfer Fraction 값이 입력 값이 아닌 0.01로 나타나는 오류가 발생한다.

특히, ^{60}Co 및 ^{137}Cs의 두 핵종을 입력한 경우에 [Reset] 버튼을 클릭하고 선량평가한 결과는 연간 개인피폭선량이 Building Reuse 시나리오 때 최대로 나타나고, 그렇지 않을 경우 Room/Office로 재활용될 때 최대로 나타나는 오류가 발생한다.

한편, Dilution Fraction for all scenarios의 값을 변경하면 각 시나리오별 선량평가 결과는 변경입력 값에 비례하여 변경된다.

다섯 번째, Initial Decay Time for all scenarios의 값을 변경하면 각 시나리오별 선량평가 결과가 변경되며 입력 값을 증가 시 피폭선량은 감소하고 조건에 따라 감소폭이 달라진다.

여섯 번째, 폐기물의 방사성핵종을 ^{60}Co으로 한정하여 선량평가한 결과는 슬래그작업자 시나리오를 제외한 모든 시나리오에 대해 선량평가가 이루어지며, Room/Office로 재활용될 때 개인피폭선량이 최대가 된다.

^{137}Cs 으로 한정하여 선량평가한 결과는 38가지 시나리오 모두를 선택한 경우 그 중 15가지 시나리오만 선량평가가 이루어지며 Building Reuse로 재활용될 때 개인피폭선량이 최대가 된다.

^{60}Co 및 ^{137}Cs 을 동시에 입력하고 선량평가한 결과는 38가지 시나리오 모두를 선택한 경우 모든 시나리오에 대해 선량평가가 이루어지며Building Reuse로 재활용될 때 개인피폭선량이 최대가 된다.

일곱 번째, 38가지의 모든 시나리오를 선택한 후 폐기물 종류, 폐기물처리량, 방사성핵종 및 그 농도, Dilution Fraction, Initial Decay Time을 Fig.1 Scrap Inventory와 같이 입력한 후 선량평가했을 때의 결과는 Fig.2 Dose Calculation Report 와 같다.

(mSv 4 person-Sv)

Scenario	Individual Dose	Individual Rank	Collective Dose	Collective Rank	Cumulative Dose	Cumulative Rank
Scrap Delivery: Scrap Cutter	8.76E-05	35	2.63E-10	32	2.63E-10	55
Scrap Delivery: Scrap Loader	1.26E-04	30	2.60E-10	34	5.45E-10	35
Scrap Delivery: Scrap Truck Driver	1.04E-04	31	5.21E-10	26	5.21E-10	26
Scrap Smelting: Scrap Processor	5.90E-05	32	2.67E-10	31	2.67E-10	32
Scrap Smelting: Smelter Yard Worker	7.94E-04	17	7.94E-09	16	7.94E-09	16
Scrap Smelting: Smelter Loader	5.10E-04	26	1.55E-09	23	1.55E-09	24
Scrap Smelting: Furnance Operator	7.16E-04	19	2.16E-09	21	2.16E-09	22
Scrap Smelting: Baghouse Processor	4.40E-04	23	4.40E-10	28	4.40E-10	28
Scrap Smelting: Refinery Worker	6.74E-04	20	2.02E-09	22	2.02E-09	23
Scrap Smelting: Ingot Caster	2.32E-04	28	4.64E-10	27	4.64E-10	27
Scrap Smelting: Small Objects Caster	1.07E-03	10	2.14E-06	15	2.14E-06	15
Scrap Smelting: Slag Worker	3.71E-04	24	3.71E-10	29	3.71E-10	29
Ingot Delivery: Ingot Loader	1.25E-04	29	2.50E-10	33	2.50E-10	34
Ingot Delivery: Ingot Truck Driver	2.77E-04	27	1.38E-09	24	1.38E-09	25
Initial Fabrication: Storage Yard Worker	4.55E-04	21	4.55E-09	18	4.55E-09	18
Initial Fabrication: Sheet Maker	1.59E-05	36	2.38E-10	35	2.38E-10	36
Initial Fabrication: Coil Maker	7.76E-05	34	7.76E-11	37	7.76E-11	38
Final Fabrication: Sheet Handler	1.56E-05	37	3.13E-10	30	3.13E-10	31
Final Fabrication: Coil Handler	6.21E-05	33	3.11E-08	14	3.11E-08	14
Product Distribution: Product Loader	1.23E-03	16	2.80E-09	19	2.80E-09	20
Product Distribution: Product Truck Driver	4.43E-04	22	2.21E-09	20	2.21E-09	21
Product Distribution: Sheet Assembler	5.15E-04	25	6.30E-09	17	6.55E-09	17
Product Distribution: Warehouse Worker	5.33E-03	12	4.17E-08	13	4.17E-08	13
Consumer Product: Parking Lot	1.62E-02	8	3.83E-06	9	3.46E-06	10
Consumer Product: Room/Office	5.10E-01	3	4.86E-05	5	3.67E-04	5
Consumer Product: Appliance	1.36E-02	9	1.49E-05	6	8.84E-05	6
Consumer Product: Automobile	4.15E-01	5	8.51E-05	4	4.93E-04	4
Consumer Product: Office Furniture	2.56E-01	6	4.18E-04	2	2.46E-03	2
Consumer Product: Home Furniture	4.46E-01	4	6.76E-04	1	4.01E-03	1
Consumer Product: Frying Pan	8.84E-03	11	9.22E-06	8	5.46E-04	3
Public Product: Pavement	1.47E-03	15	3.76E-06	11	3.35E-05	11
Public Product: Building with Rebars	1.33E-01	7	5.49E-06	8	4.35E-05	9
Public Product: Bridge	2.15E-05	14	8.86E-06	7	7.04E-05	7
Controlled Products: Shield Block	7.22E-04	18	7.22E-10	25	4.28E-09	19
Controlled Products: Radwaste Container	5.36E-05	35	5.36E-11	38	3.17E-10	33
Reuse Product: Tool Reuse	6.78E-01	2	6.78E-07	12	5.45E-06	12
Reuse Product: Building Reuse	9.41E-01	1	9.77E-06	10	5.88E-05	8
Scrap Transportation: Public Exposure	0.05E900	38	1.14E-10	36	1.14E-10	37

Fig. 2. Dose Calculation Report

3. 결론

RESRAD-RECYCLE 코드를 이용한 선량평가 시 오류를 예방하고 올바른 결과를 얻기 위해서는 먼저 적절한 시나리오를 선택하여야 할 것이며, 또 하나는 Scrap Inventory를 다음과 같은 방법으로 운영하는 것이다. 첫 번째, 폐기물 종류 및 처리량 입력 후 처리량에 따른 연간피폭시간 및 피폭자 수 조정을 위해 [Adust Population for Throughput] 버튼을 클릭한다. 두 번째, 방사성핵종 및 농도를 입력한다. 세 번째, Dilution Fraction for all scenarios 및 Initial Decay Time for all scenarios 값을 입력 후 [Reset] 버튼을 클릭한다. 마지막으로 [Done] 버튼을 클릭한다.

위와 같은 방법으로 RESRAD-RECYCLE 코드를 운영한다면 프로그램 및 사용자에 따른 선량평가 오류를 예방하고 평가결과의 신뢰도를 높이는데 도움이 될 수 있을 것이라 사료된다.

4. 참고문헌

[1] RESRAD-RECYCLE 프로그램 도움말
[2] 방사성폐기물 규제해제요건 개발(KINS/RR-144).

규제해제를 위한 폐드럼의 제염과 압축감용처리

강일식, 이범철, 손종식, 김태국, 홍대석, 곽경길, 류우석
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
niskang@kaeri.re.kr

1. 서론

환경정비공사과정에서 발생된 방사능으로 미미하게 오염된 토양과 콘크리트폐기물은 주요핵종이 Co-60과 Cs-137이었다. 이중에서 방사능농도가 0.08 Bq/g이하인 폐기물은 자체처분이 수행되었으며 이들 폐기물을 포장한 공드럼을 재활용하거나 금속물의 자체처분을 위하여 고압수분사연마기에서 고압의 물을 분사하여 제염을 수행하였다. 제염 실시 전과 후에 드럼 내외부의 오염도를 측정하여 자체처분 여부를 판정하였으며, 드럼의 상태가 양호한 재활용 가능드럼은 외부를 도색하여 방사성폐기물을 수집하는 드럼으로 재사용하였으며 자체처분이 가능한 폐드럼은 압축감용하였다.

2. 본론

2.1 제염

방사성폐기물처리시설의 제염장에 설치되어 있는 고압수분사연마기의 제염액 순환배관을 일부 수정하여 제염을 수행하였다. 이때 발생되는 저준위 액체폐기물의 양을 줄이기 위하여 공드럼의 제염과정에서 발생된 제염액은 직접 배수탱크에 보내지 않고 드럼내부에서 탈착된 고체성분인 토사, 녹, 찌꺼기들을 액체필터에 의해서 여과하여 순환하면서 제염을 수행하였다. Ø 50mm, 길이 300mm인 화이버 그래스 재질의 여과필터는 메쉬번호가 100μ로서 Ø 230mm, 길이 350mm의 케이싱에 3개를 설치하였다.

2.1.1 제염설비

공드럼의 제염에는 제염액이 액체필터를 통과함으로 제염액의 원활한 순환을 위하여 별도의 제염제는 사용하지 않았다. 제염액으로 탈염수를 순환펌프에 의해 순환시키면서 분사노즐에서 4.5bar의 압축공기를 페달에 의해 필요시 공급하여 드럼의 내부에 제염액을 가압 분사시킨다. 제염액은 일정시간 사용한 후 오염도를 측정하여 오염도가 높으면 배수밸브를 열어 배수탱크로 보낸다. 제염시간은 드럼 1개당 5분 정도가 소요되었다.

2.1.2 운영

배기팬을 가동하여 작업장 주변으로 먼지의 확산을 방지한다. 제어반의 작동스윗치는 수동위치에 놓고 분사연마기 내부의 형광등을 켠다. 처리실의 호퍼에 제염액인 탈염수를 공급한다. 1차세척실에 회전테이블을 위치하고 그 위에 제염대상 공드럼을 세로로 눕혀 놓는다. 회전테이블을 처리실로 이송한다. 분사연마기의 모든 문을 닫아 외부 공기와의 흐름을 차단하며 1차세척실과 가압세척실 사이의 문을 닫는다. 순환 밸브를 열고 순환 펌프를 가동한다. 처리실의 Air Gun 페달을 밟아 1차세척실에 위치한 노즐을 통해 드럼 내부에 가압 분사하며 제염을 수행한다. 내부의 안개현상을 방지하기 위하여 건조기를 가동하며 처리실의 창문을 씻어낸다. 운전 보조자는 드럼을 상하 좌우로 돌려주어 드럼 내부 전체가 제염이 되도록 한다. 제염 후 회전테이블을 1차세척실까지 이송한다. 1차세척실의 문을 열고 드럼을 밖으로 꺼낸다. 제염이 완료되면 호퍼에 있는 제염액의 혼탁여부를 확인하여 별도 용기에 배수하고 샘플링하여 오염도를 계측한다. 펌프와 순환배관의 내부를 씻어낸 후 순환 펌프를 중지한다. 제염된 드럼 내외부의 물기를 제거한다. 제염과정에서 발생된 액체폐기물은 드럼당 약 2.5ℓ 정도이었으며 분석결과 오염이 되지 않았다. 제염액을 막분리하여 상등액은 자연증발처리시설로 이송하였으며 찌꺼기는 건조한 후 비가연성 고체폐기물로 수집포장하였다.

2.1.3 제염 결과

드럼에 수집한 폐기물은 환경정비공사 과정에서 발생된 토양 및 콘크리트이다. 이들 폐기물은 방사성 핵종과 농도를 분석하여 규제해제를 통해 자체처분한 것이다. 따라서 드럼에 담았던 폐기물이 오염이 되지 않은 상태에서 폐기물을 비닐로 포장하여 드럼과 직접 접촉하지 않은 상태로 보

관되었기 때문에 공드럼의 내외부 역시 오염이 되지 않았다. 제염전, 후 드럼의 내부와 외부 표면오염도는 Smear Test로 α, β를 측정하였다. 계측결과 오염이 되지 않은 것으로 확인되고 드럼 내외부의 상태가 양호한 공드럼은 재도색하여 방사성폐기물 수집용기로서 재활용 하였으며 폐드럼은 압축감용처리하여 규제기관에 금속폐기물의 자체처분을 신고하여 별도 처리한다.

2.2 압축감용처리

토양과 콘크리트폐기물을 자체처분한 후 남은 공드럼은 상기의 제염방법에 따라 제염하여 오염도를 확인하고 자체처분 대상 폐드럼은 부피를 감용하여 보관과 운반이 용이하도록 압축처리하였다.

2.2.1 압축설비

압축기는 방사성폐기물처리시설에 설치되어 있는 60톤 용량의 유압식이며, 10bar에서 200bar까지 최대 압축력을 임의로 조절 가능하게 되어있다. 드럼을 압축할 때 옆으로 튀어나오는 등의 불규칙하게 압축되어 재포장용 드럼에 포장할 수 없게 되는 사항을 방지하기 위해 압축시 일정한 형상을 유지하도록 슬리브를 추가하여 드럼이 슬리브 내에서 압축이 되도록 하였다. 드럼 압축기는 크게 본체, 도어부, 구동부 및 압축부로 구성된다. 본체는 격벽에 의해 밀폐되어 있으며, 내부에 드럼을 수용하는 공간을 가진다. 그리고 본체의 상부에는 외부와 연통되는 환기부가 설치되어, 드럼의 압축과정에서 발생하는 가스가 필터를 통해 여과된 후 외측으로 빠져나가도록 한다. 도어부는 드럼을 유출입하기 위해 개폐 가능하다. 구동부는 본체의 상단에서 상하 방향으로의 구동력을 제공하며 피스톤부를 구성된다. 이러한 피스톤부는 본체 외부에 설치된 유압부를 구동원으로 하여 유압을 공급받음으로써 상하 방향으로 이동하게 된다. 압축대상 드럼을 올려 놓고 압축부까지 이동할 수 있는 드럼카트와 압축기 전면과 내부의 바닥에는 드럼카트의 이동을 유도하는 레일이 설치되어 있다. 압축에 사용된 드럼은 높이 884mm, 직경 597mm 및 두께 1.2mm인 200ℓ용량이며 재질은 탄소강으로 이루어져 있다. 윤대는 3줄로 형성되어 있으며 볼트체결식 밴드로 뚜껑을 덮는 개방형용기이다. 국내 원자력발전소에서는 기존의 30톤 압축기로 1차 압축하여 생성된 폐기물드럼을 2,000톤 용량의 초고압압축기로 재압축하여 잡고체폐기물의 최종 발생량을 감소시키고 있다.

2.2.2 운영

배기팬을 가동하여 작업장 주변으로 기체폐기물의 확산을 방지한다. 리밋스윗치 및 비상정지버튼의 작동을 확인한다. 전원스윗치, 슬리브 상부 위치등, 해머상부 위치등, 도어닫힘 위치등을 ON하여 원위치 상태를 유지한다. 압축기가 원위치 상태에 있는 것이 확인이 되면 압축할 드럼을 넣고 자동운전 버튼을 누른다. 이때 먼저 드럼 보호용 슬리브가 하강하고 해머가 하강하면서 드럼을 압축한다. 미리 조절된 압축력까지 도달하면 압축이 완료된 것으로 인식하여 해머가 드럼을 누른 상태에서 슬리브가 상승하고 이어서 해머가 상승한다. 이와 같이 압축기가 순차적으로 1싸이클을 종료하면 압축실 도어를 열고 압축드럼을 꺼내고, 다시 압축할 드럼을 넣고 압축실 문을 닫는다. 압축감용 결과로서 높이 884mm의 200ℓ 공드럼을 압축하여 약 100mm로 축소되었다. 따라서 감용비는 약 1/9 정도이었다.

3. 결론

방사능으로 미미하게 오염된 공드럼을 방폐처리시설에 설치되어 있는 고압수분사기를 통하여 제염을 실시하고 오염도를 확인한 결과 측정기기의 배경값 이하이었으며 이들 공드럼을 보관과 운반이 용이하도록 압축감용처리하여 저장고의 적재공간을 확보하고 처분비를 절감 할 수 있었다. 이렇게 처리된 폐드럼은 자체처분을 위한 시나리오 수립 및 이에 따른 선량평가를 수행하였다. RESRAD-RECYCLE 3.10 코드에 의한 선량평가 결과 재활용 때의 개인 및 집단 선량이 각각 1.13E00 μSv/yr, 1.85E-04 man · Sv/yr로 평가되었으며 이러한 수치는 개인에 대한 연간 피폭방사선량 10 μSv, 집단에 대한 연간 총 피폭방사선량 1 man · Sv로 제시된 자체처분 기준을 만족하고 있는 것으로 평가되었다.

4. 참고문헌

[1] 김태국 등, 방사성폐기물처리시설 운영, 한국원자력연구원, KAERI/MR-506/2010, 2010.

[2] 홍대석 등, "폐드럼의 자체처분을 위한 시나리오 설정 및 선량평가", 대한방사선방어학회, 2010년 추계학술발표회 논문집, 2010.

Pyro-silica 기조 겔 제염제의 제염 특성

김창기, 정종헌, 최병선, 문제권, 원휘준, 이근우
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
nchjung@kaeri.re.kr

1. 서론

화학 제염기술은 화학적 용해나 산화·환원 반응에 의한 높은 제염 효과를 나타내는 반면 다량의 폐액을 발생함으로써 현장 제염기술로서 사용이 제한된다. 따라서 폐액 발생을 억제하면서 제염대상과 제염 매개체 사이의 접촉시간을 증가시켜서 기존 화학 제염기술이 갖는 제염능을 유지하면서 처리가 용이한 형태로 적은 양의 폐기물만이 발생하는 겔 화학제염 기술의 개발이 이루어졌다. 화학적으로 불활성이고 비표면적이 큰 미세 고체 형태의 점도성 겔화제로 구성된 점도성 제염용액을 사용한 겔 화학제염 기술은 경사지거나 수직한 대면적 표면의 현장제염을 가능하게 하며 특히 접촉시간 조절을 통한 재료 부식을 제어할 수 있고 스텐레스 강, 콘크리트 및 도막 표면 등의 다양한 모재에 형성된 오염을 해체없이 현장에서 제염할 수 있다 [1-3].

제염 화학제의 운반체로서 기능하는 겔화제는 제염 화학제와의 물리·화학적 적합성, 겔 화학제염제의 분사와 오염 표면에의 점착, 제염 후 폐기물의 완전 수거가 가능토록 건조 및 박리특성이 우수해야 한다.

본 연구에서는 고 방사능 시설에서의 내 방사능 안정성이 우수한 무기 겔 제염제의 유변학적 특성, 점착능 및 박리특성과 제염능을 조사하였다.

2. 본론

본 연구에서는 무기 겔 화학제염제의 제조 조건변화에 따른 제염제의 제염능, 유변학적 특성, 점착능, 건조 및 탈리 특성을 비교하여 최적화된 무기 겔 화학제염제의 제조 조건을 도출하고자 하였다.

겔화제는 주 점성제와 주 점성제의 함유농도를 낮추기 위한 점성조제를 혼합하여 제조하였다. 주 점성제로는 산성 매질에서 안정하고 Al에 비해 소량으로 동일한 유변학적 특성조절이 가능한 Si 중 습식 Si에 비해 겔화가 용이한 건식 Si (pyro Si)를 5-10 wt.%의 농도범위로 조절하여 실험에 사용하였다. 점성조제로는 화학적으로 안정하고 용해성 조절이 용이한 비이온성 점성조제 중 강산성 매질 내에서 CMC농도를 1/10 이상 감소시킬 수 있는 PEG계 점성조제로 tripropylene glycol dodecyl ether를 0.1-1.0 wt.% 농도범위에서 실험을 수행하였다.

0.5 M의 Ce(IV)을 고농도 질산 용액에 용해시켜 제조한 제염제에 겔화제를 첨가·혼합하여 무기 겔 제염제를 제조하였다.

SUS 304 시편을 Co-60와 Cs-137의 방사성 핵종으로 오염시킨 표면에 겔 제염제를 분사하여 일정 시간 제염 후 건조 및 탈리하여, 탈리된 건조겔과 건조겔이 제거된 시편 표면의 방사능 농도를 MCA로 측정하여 Co와 Cs 핵종의 제거율과 제염계수 (DF)를 산정하였다.

겔 제염제의 분사 전과 분사 후의 전단율을 각각 500/s와 1/s로 모사하여 주 점성제의 농도변화에 따른 겔 제염제의 유변 특성을 Fig. 1에 나타내었다. 이 결과로부터 6 wt.% 이상의 주 점성제 농도에서는 500/s의 높은 전단률 조건 하에서 500 cP 미만의 낮은 점도를 나타내어 분사가 용이하였으며, 1/s의 낮은 전단율에서는 6 wt.%와 7 wt.%의 주 점성제 농도 조건하에서는 각각 6,900 cP 및 7,800 cP의 높은 점도를 나타내어 적절한 표면점착 특성을 나타내었다. 경사면을 효과적으로 제염하기 위해서는 분사된 제염제가 제염 표면으로부터 흘러내림 없이 점착이 이루어져야 하므로 분사 후 겔 제염제의 빠른 점성회복이 필요하며 이러한 특성을 점성 회복시간으로 나타낼 수 있다. Fig. 1의 결과에서 알 수 있듯이 5-7 wt.% 겔 화학 제염제의 농도범위에서 점성 회복시간은 3초 이내를 나타내어 효과적인 Thixotropic 거동을 보임을 알 수 있다.

제염 후 방사성 오염 핵종이 함유된 겔 생성물의 건조 및 탈리 특성을 조사한 결과 주 점성제와 점성조제의 실험 농도범위 내에서 농도에 무관하게 6시간 이내에 완전 건조되었으며, Fig.

2에 표시된 건조 후 표면과 탈리 후 표면 사진으로부터 건조 후 표면이 2-3 mm의 균일한 균열 크기를 나타냄으로서 SUS 304 표면으로부터 겔 생성물이 효과적으로 탈리되어짐을 알 수 있다.

Fig. 3은 주 점성제의 농도변화에 따른 제염계수를 나타내었으며, 겔 형성제의 농도 증가에 따라서 Co와 Cs의 핵종 모두 제염계수가 증가하였으며, 6 wt.%의 겔 형성제 농도에서는 Co와 Cs의 제염계수가 각각 약 830, 720의 높은 제염 효과를 나타냄을 알 수 있었다.

3. 결론

기존 화학 제염이 갖는 높은 제염효과를 유지하면서 폐기물 발생을 저감할 수 있는 대면적의 현장 제염에 적용 가능한 겔 화학제염 기술개발의 일환으로서, Si 무기겔에 Ce(IV)염을 혼합한 겔 화학제염제의 겔화 및 제염 특성을 조사하였다.

6 wt.%의 pyro Si 주 점성제에 0.5 wt.% Tripropylene glycol dodecyl ether 점성조제를 혼합한 Ce 겔 제염제는 적절한 유변 및 건조·탈리 특성과 함께 Co와 Cs 핵종에 대해 제염계수 700 이상의 우수한 제염효과를 나타내었다.

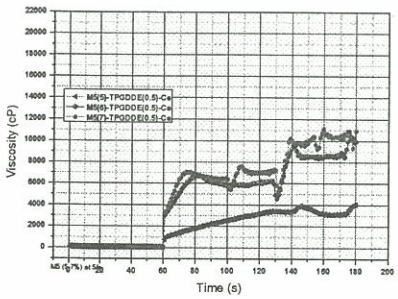


Fig. 1. 겔 화학제염제의 유변특성

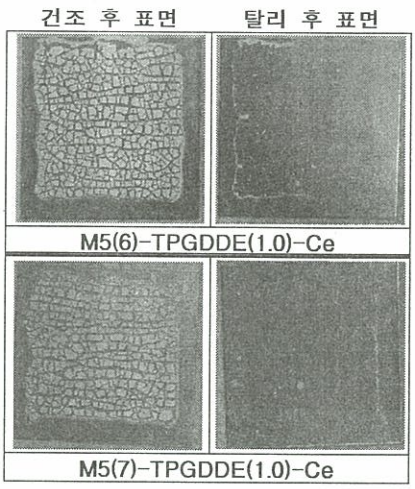


Fig. 2. 겔 화학제염 표면의 건조 및 탈리 후 사진

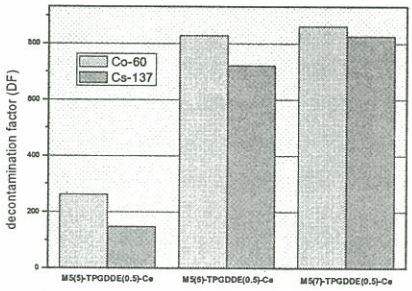


Fig. 3. 겔 화학제염제의 제염특성

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] S. Faure, "Innovative Processes for nuclear decontamination solids" Exchange meeting between KAERI-CEA, 2008.

[2] A. Purohit et. al., "Method for the decontamination of metallic surfaces" US 650407, 2003.

[3] G. Jean-Paul, et. al., "Gel decontamination et son utilisation pour la decontamination radioactive de surfaces" FR-A-2656949, 1990.

원격 광용발 제어 시스템 제작 및 성능 시험

원휘준, 정선희, 최병선, 정종헌, 문제권, 이근우
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
nhjwon@kaeri.re.kr

1. 서론

최근, 원자력 분야에서 방사능 오염을 제어하는 것뿐만 아니라 원자력 자체에 대한 안전성이 주요 관심사로 떠오르고 있다. 레이저를 사용하여 다양한 재료를 용발(ablation) 시키는 연구는 레이저 빔 형태의 광입자와 재료 사이의 상호작용을 기반으로 한다. 광 에너지, 레이저 파장, 펄스 폭등을 변화시킴에 의해 재료에 대한 성분 분석, 표면 처리 및 절단작업 등을 선별적으로 수행할 수 있다. 원자력 시설에 대해 광용발 제염기술은 다른 방법보다 그 성능이 우수한 것으로 보고되었다 [1]. 특히, 고 에너지와 극히 짧은 펄스폭의 레이저를 사용하면, 재료 표면에서 광 에너지의 흡수가 급격하게 진행되어 오염층만 순간적으로 증발하여 제거되는 현상이 나타난다. 그러나, 이 광 용발 제염법은 전 세계적으로 원자력 분야에의 적용이 초기 단계에 있다. 본 연구에서는 컴퓨터로 원격 제어되는 광용발 제염 시스템을 사용하였다. 이 시스템은 한국원자력연구원에서 직접 설계, 제작한 것이다. 본 연구의 목적은 이 제염시스템의 제어 성능을 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.

성능시험은 10 cm X 10cm X 0.1 cm 크기의 Type 304 stainless steel을 사용하였다.

2.2 제염시스템 개요

광 용발 제염 시스템은 크게 제염장치, 원격 제어장치, 컴퓨터로 구성된다. 제염장치는 레이저 발생장치, 파장 변경장치(harmonic generation), 레이저 전송장치와 레이저 노즐로 구성된다. 원격 제어장치는 광전송 장치의 레이저 노즐 지지대, 지지대 이송테이블, 정밀제어를 위한 servo motor 등으로 이루어져 있다.

2.3 실험 결과

2.3.1 레이저 노즐 지지대

광용발 제염시스템의 레이저 토치 지지대 사진을 그림 1에 나타내었다. 원격 제어 장치의 레이저 노즐 지지대는 광전송 장치 (articulate arm optics)의 노즐을 지지하며 이동시키는 장치이다. 보조 기체를 통과시키기 위한 호스는 노즐 부에 부착되어 있으며 광용발에 의해 발생된 제염 생성물 포집 라인은 노즐의 지지부인 레이저 토치에 연결되어 있다.

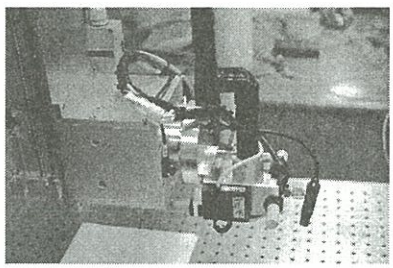


Fig. 1. Laser torch fixing equipment.

2.3.2 위치 이동

정밀 원격 거리 제어(z 방향 제어)를 위한 개요도를 그림 2에 도시하였다. 별도 레이저 센서에 의한 거리 측정을 통해 얻은 신호는 데이타 수집 장치를 통해 amplifier 에 도달되며 증폭된 신호는 A/D convertor를 지나 PID (process control for industry) 제어 장치를 통해 서보 모터로 전달된다. 이 servo motor는 0.1 mm/sec 의 정밀도로 시편과 노즐 사이의 거리를 6 cm 로 유지시키는 역할을 한다. 레이저 노즐 지지대의 토치는 노즐을 3차원으로 움직이게 해주며 90^0 범위 내에서 회전이 가능하다. 평면 이동 (X,Y축 방향 제어)은 LN (linear motion) 가이드에 의해 이루어지며 서버 모터에 의해 운전된다. 최대 이동속

도는 8 mm/sec이며 실험대 위에서 50 cm X 50 cm 의 거리를 이동할 수 있도록 제작되었으며 원하는 경로를 지정하면 지정된 경로를 따라 토치가 이동 된다.

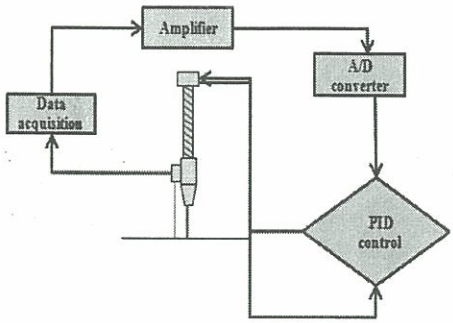


Fig. 2. Schematic diagram for the precision remote distance control

2.3.3 원격 제어 입력 창

변수 입력창에 대한 사진을 그림 3에 도시하였다. 입력창은 axis communication port (X, Y, Z 및 회전), 거리 측정 communication port (레이저 센서 왼쪽, 오른쪽 2개), jog mode, 축 변수 입력 모드, 속도 입력 창, 자동 변수 입력창, 토치의 속도 측정값을 보여주는 창 및 레이저 센서 활성화 창으로 구성된다.

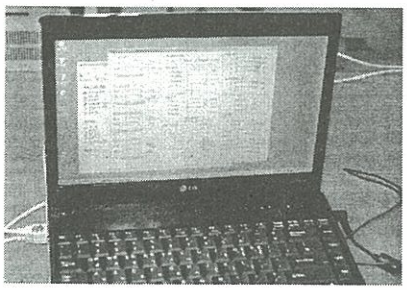


Fig. 3. Input parameter window for the operation of the fabricated remote laser decontamination system

2.3.4 성능 시험

제작된 원격 제어장치의 성능 실험은 세 종류 시편을 사용하였다 (3차원, 평면 및 벽면 모사 시편). Type 304 stainless steel 평면 시편에 적용시킨 결과를 그림 4에 나타내었다. 시편 표면의 오염물은 레이저 빔에 의해 선명하게 제거됨을 보여준다.

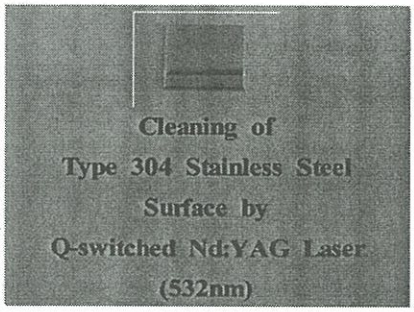


Fig. 4. Photograph showing the cleaning of surface by the fabricated remote control light ablation decontamina-tion system

3. 결론

고 방사선 장에서의 적용을 위해, 광 용발 제염 공정의 원격제어를 위한 연구가 수행되었다. 본 원격 제어에 의한 광용발 제염공정은 작업자 피폭을 최소한으로 줄인 가운데 적용할 수 있는 효과적인 기술임을 확인하였다. 외관을 단순화하고 보다 정밀하게 조절된 상태로 제염이 가능하도록 이 시스템에 대한 개선 연구가 수행 중이다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발 중장기 연구사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] H. J. Won, B. Byambatseren, J. K. Moon. C. H. Jung and K. W. Lee, "A Comparative Styudy on the Laser Removal of Cs^+ Ion from Type 304 Stainless Steel", *Korean J. Chem. Eng.*, Vol. 27, No. 6(2010).

우라닐-과산화수소 용액계 조건에 따른 동적 UO_4 침전 거동 특성 변화

김광욱, 성새름, 현준택, 최은경, 정동용, 양한범, 이일희, 이근우
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
nkwkim@kaeri.re.kr

1. 서 론

우라늄 과산화 수화물인 $UO_4 \cdot xH_2O$는 사용후핵연료의 처분 시 물의 방사화 분해에 의해 생성되는 과산화물의 작용에 의해 생성되는 것으로 알려졌고, 이는 산성의 우라닐 이온 용액에 과량으로 과산화수소를 첨가하여 합성시킬 수 있다. UO_4의 용해도는 pH 1~3에서 10^{-3}~10^{-5} M 정도로 매우 낮아 [1,2], UO_4 침전 방법은 우라늄 원광이나 우라늄 산화물 폐기물에서 우라늄을 회수하는데 사용될 수 있으며, 최근에는 사용후핵연료로부터 우라늄을 선택적으로 회수할 수 있는 탄산염-과산화수소 용액계을 이용하는 COL 공정에서 $UO_2(O_2)_xCO_{3y}^{-z}$ 착물 형태로 용해된 우라늄을 회수하는데 사용되는 기술로 제안되기도 하였다.[3] 그러나 아직 UO_4는 침전물의 정확한 침전 거동 특성에 대한 연구는 거의 없고, 특히 침전 용액 조건에 따른 침전물 크기, 형태 등의 동적 변화에 대한 연구는 전무한 상태이다.

본 연구에서는 다양한 UO_4 침전 기구 규명과 용액 조건 변화에 따른 UO_4 동적 침전 특성을 조사하였다.

2. 실 험

본 연구에서는 UO_4의 침전기구 규명과 동적 침전과정을 in-situ 방법으로 관찰하기 위하여 spectrophotometer 이용한 우라닐이온-과산화수소 용액의 325nm에서 흡광도의 측정과 0.1μm 이상을 측정할 수 있는 용액 순환형 입도 분석기 (Microtrac S3000)에 의한 입자 크기 변화를 동시에 측정하였고, 침전된 입자의 크기 및 성상을 평가하기 위하여 XRD 및 SEM을 사용하였다. 침전 수율을 평가하기 위해서는 침전 후 상등액 용액의 우라늄 농도를 Arsenazo III를 이용한 비색분석을 하였다. UO_4 침전물 거동 특성 변화를 보기 위한 용액의 조건으로 pH 1~4, 이온강도 0.1~1, 우라늄 농도 500~5,000 ppm, 및 과산화수소 농도 0.5~6 M로 변화시켜 실험을 수행하였다.

3. 결과 및 토의

Fig.1과 Fig.2에는 우라늄 농도 500 ppm, pH 1, 이온강도 0.5 M, H_2O_2 1 M인 용액 조건에서 UO_4 침전이 일어나는 과정의 용액의 흡광도 변화와 입자 크기 분포 변화가 나타나 있다. 침전 과정이 진행되면서 흡광도 스펙트럼은 350 nm에서 피크를 보이며 전체적 높아지고, 30분 경과부터는 UV 영역에서 심한 흔들림이 있고 이후 점차 전체 스펙트럼은 낮아지는 것을 볼 수 있다. 한편 in-situ 입도 크기 변화에서는 30분부터 입자가 분포가 측정이 되면서, 시간에 따라 평균 입자크기가 증가하다 100분 이후에는 입자 크기 분포 변화가 없이 일정하여 짐을 볼 수 있다. 이러한 결과로부터 시간에 따른 일정한 파장에서 UO_4 침전 용액의 흡광도와 평균 입자크기 변화를 관찰하면 정확하게 UO_4 침전 특성이 설명될 수 있다. Fig.3은 Fig.1과 Fig.2의 결과를 이용하여 UO_4 침전이 일어나는 시간에 따라 325nm에서 측정되는 흡광도와 이때 용액에 생성되는 평균입자 크기가 변화가 나타나 있다. 흡광도 변화 결과로부터 UO_4 침전은 일정한 초기 유도시간 이후 핵 생성과

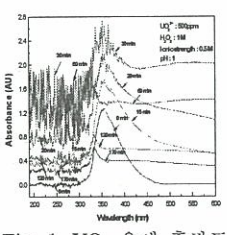


Fig. 1. UO_4 용액 흡광도

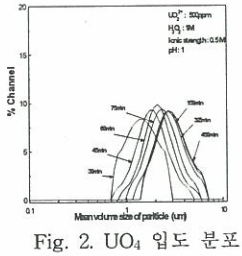


Fig. 2. UO_4 입도 분포

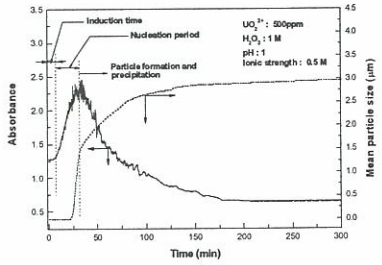


Fig. 3. UO_4 침전과정의 흡광도 및 입자크기 변화

핵 성장이 진행되면서 용액의 흡광도는 증가한다. 그러나 이 단계에서는 입자는 용액에 부유된 상태로 0.1μm 이상을 검출할 수 있는 입도 분석기에서는 검출이 되질 않을 만큼 매우 작은 상태이다. 그러나 입자가 더욱 성장하면서 침전물 입자로 침강되는 순간이 되면서 흡광도는 최고점에 이르고 이때부터 입자 분석기에 입자가 검출이 되고 이후 용액의 우라닐 이온이 모두 침전물로 가라앉으면서 용액의 흡광도는 크게 감소된다. 이러한 결과로부터 UO_4 침전 기구 및 침전속도 해석이 가능하다. Fig.4에는 Fig.3에서 50, 180, 250분에 생성된 침전물 SEM 결과가 나타나 있다. Fig.3의 입도 분석기에서 측정된 평균 입자 크기가 동일함을 볼 수 있고, 침전 시간이 진행됨에 따라 입자들의 aggregation이 진행됨을 볼 수 있다.



Fig. 4. Fig.3에서 시간에 따른 입자 SEM

Fig.5에는 pH 변화에 변화 시, UO_4 침전 과정 시간에 따른 용액의 흡광도 및 평균 입자크기 변화가 나타나 있다. pH가 낮아질수록 초기 침전 유도 시간이 길어지고 침전속도는 느려지며, 생성되는 침전물 입자 크기가 작아진다.

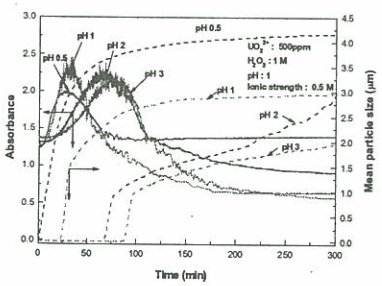


Fig. 5. pH에 따른 흡광도 및 입자크기 변화

Fig.6에는 용액의 이온강도 변화의 UO_4 침전 과정 시, 시간에 따른 용액의 흡광도 및 평균 입자크기 변화가 나타나 있다. 용액의 이온강도가 커질수록 초기 유도시간이 길어지며 일정시간 후 입자크기가 안정화되지 않고 시간에 따라 완만히 커지는 것을 관찰할 수 있다. 이것은 입자가 이온강도가 커질수록 aggregation이 과정이 진행되면서 점차 커지기 때문으로 입자의 morphology는 단일 입자들이 독립적으로 존재하지 않고 서로 결합된 형태임을 SEM에서 볼 수 있었다.

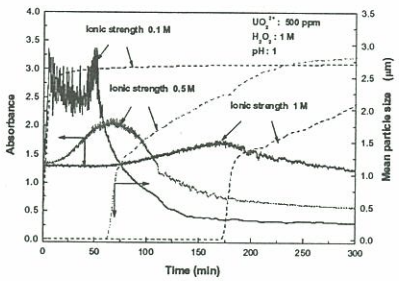


Fig. 6. 이온강도에 따른 흡광도 및 입자크기 변화

Fig.7에는 우라늄 농도에 변화 시, UO_4 침전 과정 시 시간에 따른 용액의 흡광도 및 평균 입자크기 변화가 나타나 있다. 우라늄 농도가 증가할수록 초기 유도시간이 매우 짧아지며 침전속도는 증가한다. 우라늄 농도가 500ppm이하에서는 침전 속도가 매우 느려지고, 입자크기는 1000ppm에서 최고치를 보이다 점차 줄어들고 고농도 우라늄 농도에서는 침전물 입자가 Fig.4와는 다르게 구형의 모양을 가졌다.

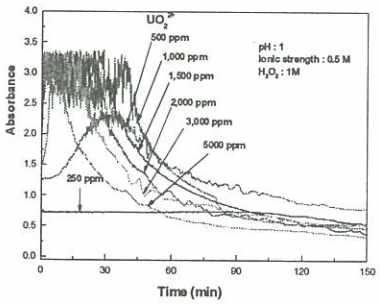


Fig. 7. 우라늄농도에 따른 흡광도

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발 중장기 계획사업 일환으로 수행된 연구결과입니다.

5. 참고문헌

[1] K.-A. H. Kutatko, K.B. Helean, A. N. Navrotsky, P.C. Burns, Science, **302** 1191-1193 (2003).

[2] G. Sattonnay, C. Ardois, C. Corbel, J.F. Lucchini, M.-F. Barthe, F. Garrido, D. Gosset,,J.Nucl.Mat., **288**, 11-19 (2001).

[3] K. W. Kim, D. Y. Chung, H. B. Yang, J. K. Lim, E. H. Lee, K. C. Song and K. S. Song, Nucl. Tech., **166**, 170-179 (2009).

Eu^{3+} 및 Ce^{4+}로 오염된 알루미늄 시편에 대한 파장별 광용발 제염특성

정선희, 원휘준, 최병선, 문제권, 정종헌, 이근우
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
nhjwon@kaeri.re.kr

1. 서론

광용발 제염 공정은 고 방사능 시설 내부의 개보수 및 해체에 필요한 고 효율 제염기술이다. 본 기술은 미국, 일본, 프랑스, 독일 , 러시아 등의 국가에서도 기술 개발이 활발하게 이루어지고 있으며 국내고유 제염기술 실용화에 이바지 할 것으로 기대하고 있다. 본 연구의 목적은 Eu^{3+}와 Ce^{4+}으로 오염된 알루미늄 시편을 대상으로 레이저의 자외선 영역(355 nm), 가시광선 영역(532 nm) 과 적외선 영역(1064 nm)인 파장에 따른 제염특성을 파악하는데 있다.

2. 본론

2.1 실험

알루미늄 시편 (0.7 mm × 0.7 mm)을 에탄올로 세척한 뒤 건조시킨다. 30분 동안 초음파세척기에 넣고 다시 건조시킨 후 Eu_2O_3와 CeO_2 용액을 이용하여 오염시킨다. 그 후 SEM (scanning electron microscopy JSM6300) 과 EMPA (Electron probe micro analyzer) 를 이용하여 시편표면을 분석하였다. 오염시킨 알루미늄 시편표면의 화학적조성은 Table 1에 수록하였다.

Table 1. 제염 전 알루미늄 시편 화학적 조성 (mole %)

	O	Al	Ag	Eu	Ce
Eu_2O_3	14.0	80.8	0.1	5.1	-
CeO_2	21.1	73.4	0.3	-	5.2

2.2 광용발 제염장치 개요

본 연구에서 사용한 광용발 제염장치는 프랑스 Quentel사에서 제작된 Brilliant b 모델로서 레이저 발생 장치, 파장 변경 장치 (harmonic generation) 레이저 전송장치 및 광용발 노즐로 구성된다. 파장 변경 장치는 fundamental (1064 nm), second harmonic (532 nm) 및 third harmonic (355 nm)로 구성되어 있어 파장변화가 가능하다. 본 장치의 반복율은 10Hz (1064, 532 and 355 nm), 펄스폭 6ns (1064 nm), 5ns (532, 355 nm)이며 원형렌즈 및 선형렌즈를 사용하였다. 레이저 노즐의 위치를 원격으로 조정하기 위해 XY방향 이송장치와 제염대상과 레이저의 거리를 조절하기 위한 Z축 방향 이송장치를 자체 제작하였다. 레이저 제염장치의 개요도를 그림 1에 나타내었다.

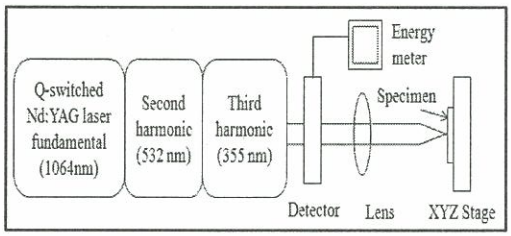


Fig. 1. 광용발 실험장치 개요도

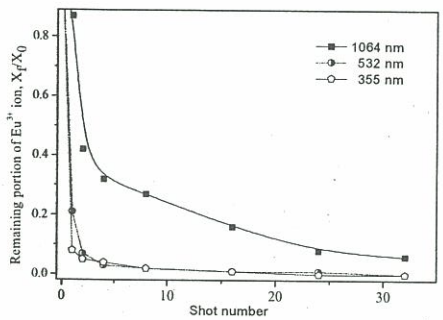
2.3 실험결과

오염된 알루미늄 시편을 각 레이저 파장에 따라 fluence를 고정시켜 조사시키면 레이저 접촉부분에 용융에 의한 crater가 형성되며, crater 내부를 EPMA로 분석하였다. Rafique 등이 2007년에 보고한 논문에 따르면 레이저의 제염효과는 레이저 접촉 부분에서 용융, 비등, 열확산 및 상 폭발 (phase explosion) 등에 기인한 것으로 설명하였다[1]. Table 2는 각 파장의 최적 제염조건 하에서 알루미늄 시편의 제거도를 수록한 것이다. 1064 nm에서 최적 fluence는 57.3 J/cm^2, 532 nm에서는 13.3 J/cm^2 이며 355 nm에서는 8.3 J/cm^2 이다.

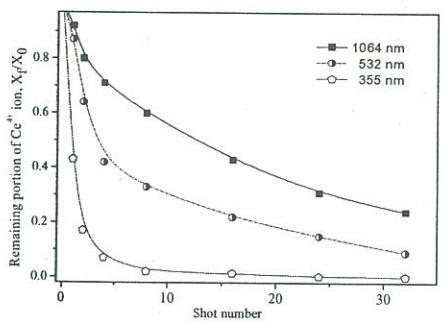
Table 2. 각 파장의 최적제염조건에서의 제거율

	1064nm (900mJ/pulse) Fluence:57.3J/cm^2 Shot number : 40	532nm (450mJ/pulse) Fluence:13.3J/cm^2 Shot number : 20	355nm (200mJ/pulse) Fluence:8.3J/cm^2 Shot number : 10
Eu^{3+}	98.5 %	92.1 %	92.9 %
Ce^{4+}	91.4 %	84.3 %	94.7 %

Table 2에서 보는 바와 같이 1064 nm, 532 nm 및 355 nm 파장에서 실험해본 결과 Ce^{4+}는 앞서 실험한 Cs^{2+}, Co^{2+} 경우와 마찬가지로 355 nm 파장에서 제거율이 높아지지만, Eu^{3+}은 1064 nm 에서 제거율이 높아지는 것을 파악하였다. Eu^{3+}는 Rafique 등이 주장했듯이, 긴 파장에서 열적증발 효과가 크기 때문에 제거율이 높아졌을 것으로 사료된다.



(a)



(b)

Fig. 2. 세 파장에서 레이저 조사횟수에 따른 오염된 알루미늄 시편의 제거도(fluence :12 J/cm^2)
(a) Eu^{3+} and (b) Ce^{4+} ions

그림 3은 오염시킨 알루미늄 시편을 fluence (12 J/cm^2) 와 레이저 조사 횟수를 같은 조건으로 하여 각 파장별로 Eu^{3+}과 Ce^{4+}의 제거정도를 나타낸 것이다. Eu^{3+}가 오염된 시편에서는 532 nm와 355 nm에서 조사 횟수 10 shot 이내에서 높은 제염정도를 보였고, 1064 nm에서는 잘 되지 않았으며, Ce^{4+}는 355 nm에서 제염도가 높을 것을 알 수 있다. 즉 fluence 가 12 J/cm^{2}이며 조사 횟수가 동일한 조건에서 제염도가 높은 파장은 355 nm > 532 nm > 1064 nm 순으로 나타났다. Dieter Bauerle는 nanosecond 레이저 용발은 thermal, mechanical 및 photochemical 효과에 의해 설명이 가능하다고 하였다[2]. 그러므로 일정조건에서는 자외선 영역인 355 nm 파장에서 photochemical 반응이 제염효과를 높인다고 예측할 수 있다.

3. 결론

Q-switched Nd:YAG 레이저 제염 실험은 인위적으로 Eu^{3+}와 Ce^{4+}를 알루미늄 시편에 오염시켜 수행하였다. 1064nm, 532nm, 355 nm 파장에서 실험한 결과 일정한 조건이라면 355 nm에서 Eu^{3+}와 Ce^{4+} 에 대한 높은 제염효과가 높은 것으로 나타났다. 현재 알루미늄 시편뿐만 아니라 스테인리스 강 type 304나 콘크리트 시편에도 적용시켜 실험을 수행중이다. 향후 레이저 광용발 제염장치를 사용한 제염기술 실증 연구를 계획하고 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] M. S. Rafique, R. M. Khaleeq-ur, T. Firdos, XRD and SEM Analysis of a Laser Irradiated Cadmium, Laser Physics, Vol. 17, No. 9, p.1138, 2007.

[2] Dieter Bauerle, Laser processing and Chemistry (Third edition), Springer, p. 226, 2000.

방사선관리구역 작업복의 오염현황 및 폐기물 관리 방안

박병목, 김명민, 김동훈, 채경선, 신경욱, 정택민*, 배성범*
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

원자력발전소 방사선관리구역내 설치된 기기, 배관, 펌프 등의 정비작업시 작업자의 인체오염을 방지하기 위해 Cotton, Nylon, Poly-Rayon 등의 재질로 된 작업복을 착용하고 있으며 사용 후 폐기기준의 오염도를 제외한 작업복은 세탁하여 재사용한다.

1회 사용 후 폐기하는 작업복으로는 비닐, 종이 및 PVA 작업복 등이 있는데 일반적으로 오염 발생이 당연시되는 작업에 주로 사용되어진다. 특히, 액상의 방사성물질을 취급하는 작업시에는 Cotton, Nylon, Poly-Rayon 등의 작업복 착용 후 비닐 작업복을 추가로 착용하여 정비 등의 작업을 수행 한다. 원자력발전소 또는 개봉 방사성동위원소를 취급하는 방사선관리구역에서는 오염이 당연시되는 작업 이외에도 착용한 작업복이 방사성물질에 의해 오염될 수 있으며 오염의 형태는 전체오염 또는 국부오염으로 발생한다. 국부오염 발생은 작업의 종류, 작업자의 습관 및 체형 등에 따라 국부오염의 위치나 방사성물질에 의한 오염도가 달라 질 수 있다.

전체오염 또는 국부오염 작업복을 함께 세탁할 경우 방사성물질이 세탁 전 오염되지 않았던 작업복 부위로 전이될 수 있는데 이러한 방사성물질의 오염을 본 실험에서 확인하였고, 작업복 세탁시 발생되는 세탁폐수의 방사성물질의 농도 관리를 위해 오염작업복의 주요핵종을 대상으로 핵종별 반감기 및 방사성물질 농도비율을 이용 보관기간을 산정해보았다.

2. 본론

2.1 실험 조건

방사선관리구역 작업복의 국부오염 실험을 작업자가 인지한다면 일상적인 작업 Pattern에서 벗어날 수 있을 것으로 예상하여 사전에 실험에 대한 내용을 통보하지 않고 통상적인 작업조건이 되도록 하였으며 그 외의 실험 조건은 아래와 같다.

① 1회 세탁시 세탁수량 : 최대 40벌로 한정
② 오염측정 방법 : 직접측정법
③ 국부오염 부위 설정 : 팔(오른쪽, 왼쪽), 다리(오른쪽, 왼쪽), 몸통(앞면, 등, 엉덩이)
④ 실험기간 : 2일(총 3차례 실시) - O/H 기간

2.2 평가기준

본 실험의 측정결과에 있어서 오염, 국부오염 및 오염전이 여부 등을 평가하는 측정값 기준은 아래와 같다.

① BKG 관리 : 100 cpm 이하
② 오염작업복 기준 : BKG 포함 300 cpm 이상
③ 국부오염 : 부위별 측정값이 Net 값 기준 200cpm 이상 격차가 1개 부위 이상인 경우
④ 오염전이 : 세탁 전 측정값과 세탁 후의 측정값이 동일부위에서 Net값 기준 100cpm 이상 증가한 경우

2.3 측정결과

위의 실험조건과 평가기준에 따라 총 155벌의 작업복에 대해 3차례로 나눠 오염작업복, 국부오염작업복 및 오염전이작업복을 오염도측정기로 측정한 결과 값을 Table 1 ~ Table 3에 나타내었다.

Table 1. The results before wash

구 분	1차실험	2차실험	3차실험	비율 평균
실험작업복	55벌	50벌	50벌	-
오염작업복	21벌 (38.18%)	34벌 (68.00%)	25벌 (50.00%)	52.06%
국부오염 작업복	11벌 (52.38%)	11벌 (32.35%)	8벌 (32.00%)	38.91% *

* 국부오염 작업복 비율 : 오염작업복 중의 발생 비율

Table 2. The results after wash

구 분	1차실험	2차실험	3차실험	비율 평균
실험작업복	55벌	50벌	50벌	-
오염작업복	18벌 (32.73%)	12벌 (24.00%)	12벌 (24.00%)	26.91%
국부오염 작업복	8벌 (44.44%)	2벌 (16.67%)	5벌 (41.67%)	34.26% *

Table 3. Contamination transfer by radioactive material

구 분	1차실험	2차실험	3차실험	비율 평균
오염작업복	55벌	50벌	50벌	-
오염전이 작업복	16벌 (29.09%)	4벌 (8.00%)	7벌 (14.00%)	17.03%

측정결과로부터 방사선관리구역내 작업 후 방사성물질에 의해 오염된 작업복은 52.06% 이며, 이 중 38.91%가 국부오염 되었다. 그리고 1회 세탁량을 40벌 기준으로 세탁할 경우 본 실험의 오염작업복 기준 값인 BKG 포함 300cpm 이상 작업복은 세탁 전에 비해 약 50% 감소하였다.

세탁 후 오염도는 감소하였으나 방사성물질의 오염전이는 작업복의 특정부위에서 다른 특정부위로 오염 전이됨을 확인 할 수 있었다.

2.4 폐기물 저감화 방안

폐기물 저감화를 위한 작업복의 오염관리 기술로서는 작업복의 오염도 준위별 보관 및 세탁방법, 오염전이 최소화방법, 오염핵종의 특성 등을 통한 세탁시기 결정이 주요한 역할을 하게 되는데, 여기서는 액체방사성폐기물 저감 및 오염전이를 줄일 수 있는 방법을 오염 핵종의 반감기를 고려하여 방사선관리구역 작업복의 보관기간을 결정하는 방안으로 검토하였다.

원자력발전소의 운전상태에 따라 생성되는 핵종은 변화 되어질 수 있으며, 방사선관리구역 작업복이 주로 오염되는 계획예방정비시 방사성핵종은 계획예방정비 초기 원자로건물 입자 시료의 핵종분석을 통해 대략적으로 확인이 가능함으로 이를 지표로 발생된 오염작업복의 보관기간을 결정 할 수 있다. 원자력발전소에서 큰 비중을 차지하는 핵종은 Co-58과 Co-60이므로 여기서는 Co-58과 Co-60의 비율을 50 : 50로 계산하였으며 그 결과는 다음과 같다.

$$A = A_0 \times e^{-\lambda t} \quad [\text{붕괴상수}(\lambda) = \frac{\ln 2}{t_{1/2}}] \cdots\cdots\cdots (1)$$

$$A(\%) = (50\% \times e^{-\lambda_a \times T}) + (50\% \times e^{-\lambda_b \times T}) \cdots\cdots (2)$$

[λa : ^{58}Co 붕괴상수, λb : ^{60}Co 붕괴상수, T : 보관기간]

Co-58의 반감기는 70.8일, Co-60의 반감기는 1923.55일 이므로 위 식에 의해 초기 방사능 값이 50% 감쇠하는 기간은 약 240일 이며 이기간은 Co-58의 초기 방사능 값이 9.54%, Co-60의 초기 방사능 값은 91.7% 되는 기간으로 반감기가 긴 Co-60로 인하여 240일 내외의 보관기간이 보관장소 및 방사능 감쇠의 효율측면에서 이득이 될 것으로 보이며, Co-58 및 Co-60 이외의 핵종이 존재하거나 존재 비율이 상이한 경우도 계산이 가능하므로 적정한 보관기간을 결정하면 폐기물 저감에 기여할 수 있을 것으로 보인다. 다음은 Co-58, Co-60 단일 핵종 및 Co-58+Co-60 복합핵종에 대한 핵종별 보관기간에 대한 방사능 감쇠율을 Table 4.에 나타내었다.

Table 4. Decay rate by the clothing storage periods

구 분	Co-58	Co-60	Co-58+Co-60
0 일	100	100	50+50=100
60 일	55.6	97.9	76.7
120 일	30.9	95.8	63.3
180 일	17.2	93.7	55.4
240 일	9.54	91.7	50.6
300 일	5.3	89.8	47.5
360 일	2.95	87.8	45.4

3. 결론

원자력발전소 또는 개봉 방사성동위원소를 사용하는 방사선관리구역내 작업복의 오염현황 및 오염 상태에 대해 조사하였다. 작업복의 오염폐기, 파손폐기, 오염전이 및 액체방사성폐기물의 관리 등과 관련하여 폐기물 저감화 목적상 다양하게 검토할 필요성이 있다. 본 실험의 결과를 활용함으로써 방사선관리구역 작업복 관리시스템 운영 측면에서도 작업복으로 인한 폐기물을 줄일 수 있을 것으로 사료되며, 향후 작업별 국부오염 Data, 세탁기용량대비 최적의 세탁수량, 세탁수의 온도 등의 변수에 대한 연구를 통해 작업복의 오염을 제거효율을 높일 수 있을 것으로 보이며, 오염된 작업복의 핵종별 반감기 및 방사성물질의 농도 등을 DB화한 오염작업복 관리프로그램을 개발하여 오염작업복 보관기간을 결정함으로써 오염작업복의 원활한 저장 공간 운영 및 액체방사성폐기물 배출관리 등에 도움이 될 것으로 기대된다.

4. 참고문헌

[1] 한국수력원자력(주), 2009 방사선안전관리 Workshop, pp.9, pp.52, 2009.

실제규모 동전기토양제염장치 개선 및 효율실증

김계남, 손동빈, 박혜민, 김기홍, 김완석, 박진호, 정운수, 이기원, 문제권
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
kimsum@kaeri.re.kr

1. 서론

한국의 원자력시설 주변 부지에서 굴착하여 보관 중인 방사성 오염토양으로부터 우라늄을 제거하기 위해 부지특성에 적합한 실제규모 동전기 복원장치를 개발하였고, 토양제염기간을 단축하기 위해 전처리공정으로 토양세척제염을 수행하여 토양으로부터 우라늄을 약 80% 제거하였다. 또한, 동전기 기술에 의해 토양으로부터 우라늄을 95% 이상 제거하기 위해 개발된 실제규모 520L 동전기장치를 제작하고 동전기제염실험이 수행하였다. 제작된 동전기 복원장치는 동전기토양셀 (120x120x18cm), 양극실 (120x115x13 cm), 음극실 (120x115x17.5 cm), 세정제 저장조 (60x40x40 cm), 장치지지대, 금속산화물 여과기, pH 조절조, Power Supply 등으로 구성된다. 이 지역은 매립토이며 수리전도도가 작고 토양의 pH는 5.6이었다. 또한 우라늄오염토양 입자크기에 따른 방사능 농도는 Fig. 1과 같이 입자의 크기가 작을수록 방사능농도는 높아졌다.

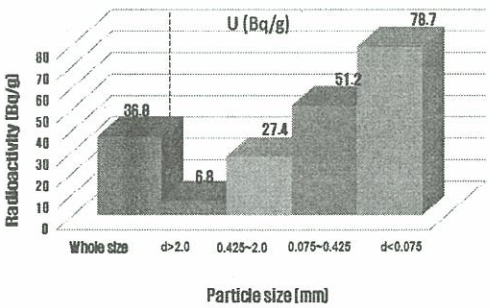


Fig. 1. Radioactivity versus size of a soil contaminated with uranium

한편, 동전기복원실험을 수행하는 동안 음극실 내의 금속산화물발생을 감소시키기 위하여 음극실 전해액을 순환시키고, 금속산화물 여과기를 부착하였으며 음극실내의 pH를 음극실의 pH를 1.0이하로 조정하였다. Fig. 2는 제작된 520 L규모 동전기토양제염장치이며, 연간 약 50개의 200L 드럼을 처리할 수 있다. Fig. 3은 세척된 우라늄

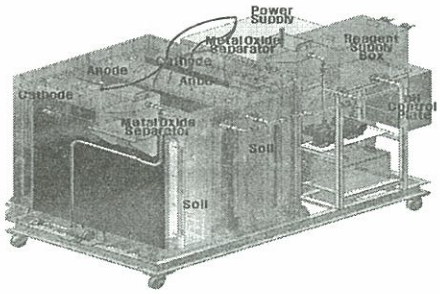


Fig. 2. 520L electrokinetic decontamination equipment

오염토양을 동전기토양제염장치 토양셀에 넣는 사진이며, Fig. 4는 가동 중인 동전기토양제염장치이며, 토양내의 우라늄 등의 금속이온들은 음극



Fig. 3. uranium soil input in a soil cell

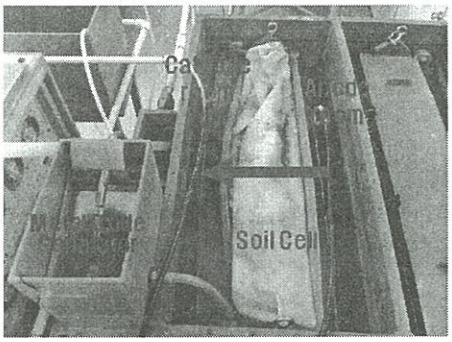


Fig. 4. electrokinetic decontamination operation

실로 이동한다. 제작된 실제규모 동전기 토양제염장치의 문제점을 다음과 같이 개선하였다. 먼저,

양극실의 전해액이 토양셀 양 끝 모서리를 통해 음극실로 누출되지 않도록 토양셀 고정 후 틈새를 실리콘으로 방수 처리하였고, 독립 여과포를 제작하여 여과포 내에 세척토양을 담고 여과포를 토양셀 내에 끼어 넣었다. 양극실 전해액을 자동 공급하기 위해 공급조의 높이를 음극실 전해액 수면이하로 낮추었고, 공급조 내에 pH 조절기를 설치하였다. 토양셀 PVC의 파쇄를 방지하기 위해 강화 PVC를 사용하여 다시 제작하였다.

본 연구에서는 제작된 동전기 토양제염장치의 문제점을 개선하고 개선된 장치의 제염효율을 실증하기 위한 실증제염실험을 수행했다.

2. 토양제염실험

제작된 실제규모 동전기토양제염장치는 1몰의 질산으로 세척한 토양을 사용하기 때문에 토양세척 시 80% 이상의 금속산화물이 제거되었고, 제작 된 장치의 음극실 폭이 17.5 cm로 파일럿장치보다 넓고, 기타 앞에서 설명한 것과 같이 장치를 개선하였기에 동전기 제염기간 동안 단지 미량의 금속산화물이 발생하였고 음전극판을 꺼내어 표면의 금속산화물을 세척하는 번거로운 작업을 하지 않아도 되었다. 또한, 금속산화물 여과기를 이용하여 0.075mm 이상의 금속산화물입자를 제거하였다. Table 1은 동전기 토양제염 시 시간경과에 따른 토양 내의 우라늄 제거효율을 나타낸다. 동전기장치 전해액으로는 질산 0.1 M이 사용되었다. 오염토양의 초기 방사능농도는 17.8 Bq/g이었고, 토양세척 후 3.8 Bq/g 이었다. 동전기 제염 5, 10, 15, 20일 경과 시 우라늄 제거효율은 87.6, 94.8, 96.7, 97.2 %로 증가하였다. 5일 경과 시 제거효율이 높은 것은 전처리 토양세척 시의 제거효율을 포함하였기 때문이다. 유럽에서의 우라늄 토양 자체처분을 위한 ^{238}U 기준농도가 약 0.4 Bq/g이므로 17.8 Bq/g을 0.4 Bq/g으로 저감하기 위해 필요한 시간을 제염실험을 통해 도출하였다.

동전기 토양셀에 흐르는 전류밀도는 약 20 mA/cm^{2}에 맞추었다. 그러나 초기에는 30 V의 전압 하에서도 전류밀도는 16 mA/cm^2 이었다. 그러나 제염시간이 경과됨에 따라 토양셀 내의 토양은 질산전해액으로 포화되어 전도체로 변해가며 압력이 감소하였다. 또한 20일간 발생된 전해폐액은 약 2.2 ml/g이었고, 동전기장치에서의 증발량은 약 10 ml/min이었다. 20일 경과 후 토양 내의 잔류 우라늄 농도 분포는 다음과 같다. 15일후 평균 잔류농도는 0.58 Bq/g이었다. 그러나 20일후 평균 잔류농도는 예측보다 약간 높은 0.5 Bq/g이었다. 이것은 동전기장치의 토양셀 부근의 제작이 잘못되어 음극실의 우라늄 오염 전해폐액이 양극실로 누출되어 양극실내의 전해액이 우라늄으로 오염되었기 때문에 예측했던 것처럼 0.4 Bq/g 이하로 떨어지지 않았다. 그러므로 토양칸막이가 완벽한 방수가 되도록 개선한 후 다시 제염실험을 수행하여 제염효율을 실증할 계획이다.

Table 1. Uranium removal efficiency and waste-solution volume along decontamination elapsed time

Agent (M)	Init. conc (Bq/g)	Elapse time (days)	Removal efficiency of U (%)	Electric current (mA/cm^2)	Volt (V)	Waste-solution volume (ml/g)
Nitric acid (0.1M)	17.8	0	78.7 (3.8)	16	30	
Nitric acid (0.1M)	17.8	5	87.6 (2.2)	19.5	24	
Nitric acid (0.1M)	17.8	10	94.8 (0.92)	19.5	17	
Nitric acid (0.1M)	17.8	15	96.7 (0.58)	19.5	15	
Nitric acid (0.1M)	17.8	20	97.2 (0.50)	19.5	13	2.2

3. 결론

음극전극판에 형성된 금속산화물을 제거할 수 있도록 동전기제염장치를 개선하였고, 초기에 17.8 Bq/g인 토양을 토양세척 후 20일간 동전기 토양제염 시 0.5 Bq/g 이었다.

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, C. H. Jung, U. S. Chung, "Development of electrokinetic-flushing equipment for a remediation of soil contaminated with radionuclides", Journal of the Korean Radioactive Waste Society, pp.1-9 (2008).

[2] G.N. Kim, W.K. Choi, C.H. Jung, J.K. Moon, Development of a washing system for soil contaminated with radionuclides around TRIGA reactors, J. Ind. Eng. Chem. 13 (2007) 406-413.

방사성원소가 함유된 폐윤활유 정제처리장치 전처리공정

홍지식, 김병태, 최영구, 김대환, 권기현, 임유경, 김기홍, 채양묵, 임형석
선광원자력안전(주), 대전광역시 대덕구 신일동 1683-4
planth73@yahoo.co.kr

1. 서론

지난 중소기업청 연구과제인 '방사성원소가 함유된 폐윤활유 재활용 기술 및 장치상용화'(S1056471)에 이어 삼중수소제거효율을 높이기 위한 방안으로 기존의 정제처리장치에 수분분리장치를 제작, 추가설치하여 원자력발전소에서 검증실험을 실시하였다.

2. 본론

2.1 기초실험

2.1.1 용매혼합 시 함량별, 시간별 변화관찰

윤활유 200㎖에 수분 0.5%, 용매를 0~30%씩 혼합하여 충분히 교반한 후 1시간마다 변화를 관찰하여 최적의 용매함량과 층분리 시간을 결정하는 실험을 진행하였다.

2.1.2 용매혼합 후 시간에 따른 수분함량변화 관찰

용매혼합 후 분리된 윤활유를 Lab scale장치에 적용하여 용매혼합 후 분리한 윤활유와 분리하지 않은 윤활유의 수분함량변화를 비교하였다.

2.2 현장실증실험

기초실험결과를 바탕으로 수분분리장치에서 현장검증실험을 실시하였다. 윤활유 200ℓ에 용매는 최소량을 사용하였고, 1시간이상 교반 후 충분한 시간을 유지하여 분리된 용매층과 윤활유층의 방사능을 측정하였다.

2.3 실험결과

2.3.1 기초실험결과

용매함량에 따른 수분함량은 별다른 상관관계를 나타내지 않았으며, 다만 시간으로 볼 때 저농도의 용매함량에서 6시간 후의 수분함량이 더 낮은 것으로 보인다.(Fig. 1.) 그리고, 용매혼합 후 분리된 윤활유를 Lab-Scale장비에 적용하였을 때 그렇지않은 윤활유보다 수분제거효과가 있음을 확인하였다.

2.3.2 현장실험 결과

실제 발전소 현장의 폐윤활유에 적용하였을 때 삼중수소제거효과가 있음을 확인하였고, 이를 1회, 2회, 3회 반복 처리하였을 때 점점 삼중수소농도가 감소함을 알 수 있었다.(Fig. 2, 3, Table. 1, 2)

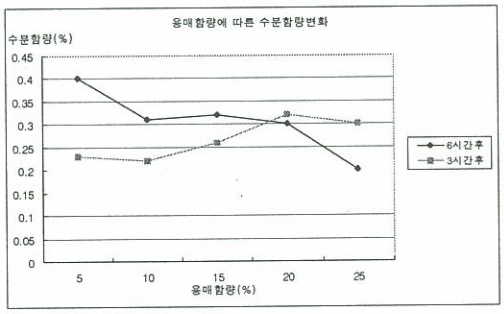


Fig. 1. Variety of moisture contents

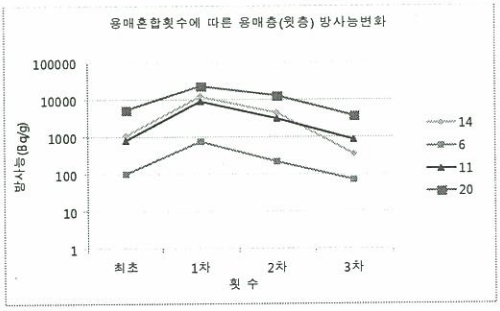


Fig. 2. Variety of radio activity(top)

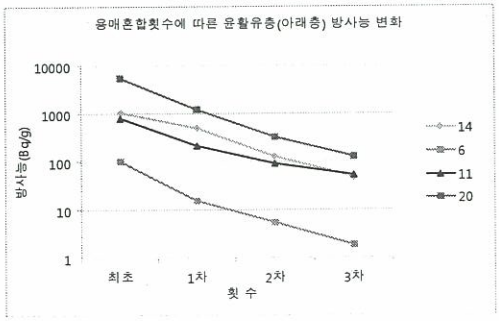


Fig. 3. Variety of radio activity(Bottom)

Table 1. Radio activity Data(I)

드럼 번호	최초 방사능 (Bq/g)	1차			2차			3차		
		위 (Bq/g)	아래 (Bq/g)	효율 (%)	위 (Bq/g)	아래 (Bq/g)	효율 (%)	위 (Bq/g)	아래 (Bq/g)	효율 (%)
W2-2009-RO-014	1,059	12,225	487	54	4,273	128	74	354	46.7	61

* 최초 ~ 3차 처리효율 : 95.9%

Table 2. Radio activity Data(Ⅱ)

드럼 번호	최초 방사능 (Bq/g)	1차			2차			3차		
		위 (Bq/g)	아래 (Bq/g)	효율 (%)	위 (Bq/g)	아래 (Bq/g)	효율 (%)	위 (Bq/g)	아래 (Bq/g)	효율 (%)
W2-2009-RO-006	100	1,059	15	85	129	5.37	64	72	1.88	65
W2-2009-RO-011	796	8,764	213	73	3,049	92	57	862	52.3	43
W2-2009-RO-020	5,352	22,300	1197	78	12,794	324	73	3,682	129	60

* 최초 ~ 3차 처리효율 : W2-2009-RO-006 : 98.1%
W2-2009-RO-006 : 93.4%
W2-2009-RO-006 : 97.5%

3. 결론

기초실험에서 용매혼합 시 수분 제거효과가 있음을 확인하였고, 이는 용매의 양과는 무관함을 알 수 있었다.

이를 토대로 200ℓ급 수분분리장치를 제작하여 원자력 발전소 현장의 폐윤활유에 대하여 검증실험을 실시하였고, 여기에서 삼중수소 제거효과가 있음을 확인하였다. 또한 용매혼합 후 분리횟수를 늘림에 따라 삼중수소 제거효율이 높아짐을 알 수 있었다.

4. 참고문헌

[1] Handbook of Organic Solvents, David R. Lide 20~30, 1995.

Fly Ash 필터 유리조성의 전기전도도 특성 평가

이상우, 조현제, 김천우
한국수력원자력(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 금병로 508
sang1@khnp.co.kr

1. 서론

파이로 프로세싱 전처리 과정에서 발생하는 배기체를 포집한 폐 필터를 유리화하기 위한 타당성 연구를 수행중에 있다. 유리화는 현재까지 개발된 기술 중 폐기물 고화체의 물리/화학적 특성에서 가장 우수한 것으로 평가되고 있으며, 2009년부터 중·저준위 방사성폐기물을 유리화하기 위한 상용설비가 울진원전에서 가동되어 폐기물 저감화에 기여하고 있다. 발생 폐 필터는 세라믹형태로 되어 있으며 사용후핵연료 집합체에서 발생하는 폐기물은 아니지만, 사용후핵연료의 탈피복공정에서 발생하는 Cs, Tc 등 장반감기 고방열 핵종 등이 있기 때문에 안정적인 고화처리가 요구되고 있다. 최근의 처분요건 강화 및 효과적인 저감화를 위한 다양한 고화방안이 연구되고 있으며 그 중에 유리화 방안이 하나의 대안으로 이용되고 있다[1].

본 연구에서는 비산재(Fly Ash) 포집 폐 필터의 유리화를 위한 기본단계로 유리조성을 개발하고 개발된 유리의 전기전도도 특성 분석을 통해 유리화 적용 타당성을 평가하는데 목적이 있다.

2. 본론

2.1 유리조성 개발

본 연구에 사용되는 비산재(Fly Ash) 포집 폐 필터를 B_2O_3, Na_2O, Li_2O 시약에 70 wt% loading 하고 Figure 1과 같은 GlassForm Computer Program을 이용하여 개발하였다.

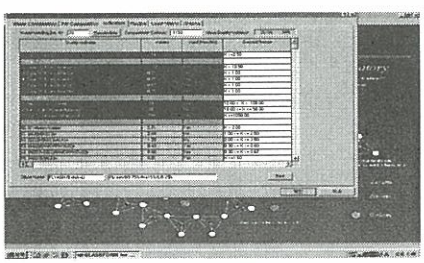


Fig. 1. GlassForm Computer Program

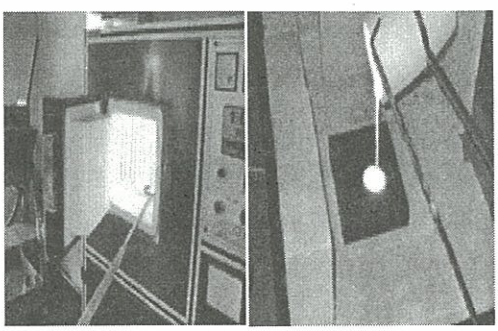
Fly Ash를 70 wt% loading 했을 경우의 주요 성분조성은 Table 1에 나타내었다.

Table 1. Glass Composition for Fly Ash

Oxide	Fly ash(70 wt% loading)
Al_2O_3	17.04
Na_2O	15.00
SiO_2	42.73
Others	25.23
SUM	100.00

2.2 유리 제조

Fly Ash 폐 필터 유리화를 위해 1,150 ℃ 환경에서 시약과 혼합하여 고온전기로 내에서 용융하여 유리화가 가능한지 여부를 평가하기 위해 유리 제조 실험을 수행하였다. 첫 번째로 Fly Ash 폐 필터와 B_2O_3, Na_2O, Li_2O 혼합 시약을 점토 도가니에 넣고 두 번째로 점토 도가니를 고온 전기로에 넣어서 1,150 ℃까지 온도를 올린다. 세 번째로 1,150 ℃에서 45분간 유지 시킨 후 꺼내서 혼합하고 다시 고온 전기로에 넣어서 1,150 ℃에서 15분간 유지시킨 후 pouring 하여 제조된 유리를 냉각시킨다. 고온전기로에서의 유리 제조 주요 과정을 Figure 2에 나타내었다.

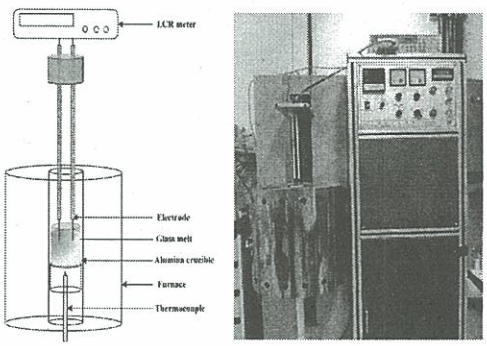


(a) 1,150 ℃ High Temp. Furnace (b) Pouring

Fig. 2. Glass melting of Fly Ash glass formulation

2.3 전기전도도 측정

유도가열식 저온용융로(Cold Crucible Induction Melter : CCIM)를 이용한 폐기물 유리화 시 유리용탕의 전기전도도는 CCIM 건전성을 유지하는 주요 인자 중 하나이다. 유리 용탕의 적절한 전기전도도는 유리화 시 폐기물 투입량 및 운전인자를 결정짓는 요소로서 CCIM 운전에 최적인 전기전도도는 0.1~1 S/cm 이다. Fly Ash 70 wt% 함유 유리용탕의 전기전도도 측정을 위해서 알루미나 도가니에 전기전도도를 측정하고자 하는 유리를 넣고 측정온도까지 온도를 맞춘 후 15 mm 간격으로 고정된 두개의 백금(Pt) 전극을 유리용탕 10 mm 깊이까지 삽입하였다. 여기에 주파수 1 kHz로 고정된 회로소자측정기(LCR meter)를 이용하여 용융유리의 저항을 측정하였고 이 값을 전기전도도로 환산하였다. 전기전도도 측정에 사용된 장비는 아래 Figure 3에 나타내었다.



(a) Conductivity cell (b) Apparatus of conductivity

Fig. 3. Configuration of conductivity measurement

3. 결과

온도 871~1,165 ℃ 범위에서 측정한 전기전도도 결과는 Figure 4와 같다. 유리의 전기전도도 그래프에서 보듯이 측정온도 구간에서 유리의 용탕상태의 전기전도도 요구치(0.1~1.0 S/cm)를 만족하였다.

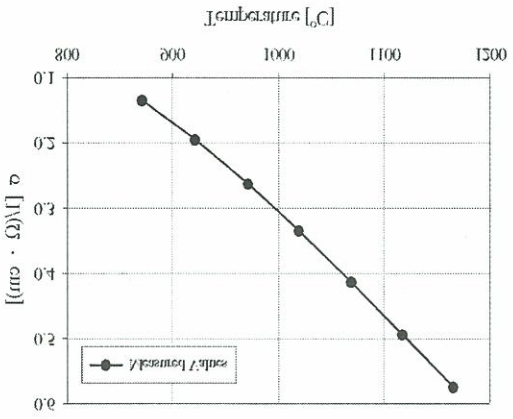


Fig. 4. Electrical conductivity of Fly Ash glass

4. 결론 및 고찰

유리조성 개발결과 Fly Ash 70 wt%를 loading 한 유리용탕의 경우 CCIM의 운전변수 중 가장 중요한 전기전도도를 만족 하는 것으로 분석되었다. 특별히 CCIM의 운전온도인 1,150 ℃ 내외에서 0.55 S/cm 로 최적의 값을 나타내고 있음을 알 수 있었다.

5. 감사의 글

본 연구는 한국원자력연구원의 수탁과제로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

6. 참고문헌

[1] 배기체 포집 폐 필터 처리방안 검토, 기술현황 분석보고서, KAERI/AR-848 (2010).

양이온교환수지를 이용한 코발트, 스트론튬, 세슘 제거: 칼럼실험

이윤지, 박연진, 신원식, 최상준
경북대학교, 대구광역시 북구 산격동 1370번지
yj1024@knu.ac.kr

1. 서론

코발트, 스트론튬, 세슘과 같은 방사성핵종을 포함한 저준위 방사성폐액은 원자력발전소의 운전으로 다량 발생한다[1]. 이러한 방사성핵종의 처리에는 공침, 응집, 이온교환, 용매추출, 분리막법이 적용된다[2]. 그중, 이온교환은 다른 방법에 비해 공정 및 장치가 간편하고 이온교환수지를 재사용할 수 있기 때문에 경제적이며, 점차 그 비율이 증가하고 있는 추세이다. 그러므로 설폰산 작용기를 가진 양이온교환수지(Amberjet^{TM} 1600H)를 택하여 연속식 칼럼 반응기를 이용하여 코발트, 스트론튬, 세슘의 처리 성능을 평가하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

본 연구에서는 높이 5.5 cm, 지름 2.5 cm의 유리 칼럼(ACE glass)을 이용하여 6g의 Amberjet^{TM} 1600H(Rohm and Hass Korea Co., Ltd)를 칼럼의 중간에 채운 후 칼럼 내 남은 부피는 glass bead(D: 1.5mm, Sigmund Lindner, germany)를 위, 아래에 충진하여 연속식 실험을 수행하였다. 이때 적용한 1 BV(bed volume)는 27 mL이다. 실험에서는 실제 방사성 폐액의 획득이 곤란하여 모의 용액을 제조하여 실시하였으며, 방사성 물질의 모사는 Aldrich Chemical사의 시약급 시약 $Sr(NO_3)_2$, $Co(NO_3)_2$, $CsNO_3$를 사용한 비방사성 동위원소로 이루어져 있다. 단일성분 흡착의 경우, 각 1 mM의 Co, Sr, Cs의 모의 용액을 제조하고, 다성분 흡착은 1 mM의 Co, Sr, Cs이 동시에 공존하는 모의 용액을 유입수로 적용하였다. 이때 0.05 M의 MES buffer(2-〔morpholino〕ethasulfonic acid, ACROS Organics, USA)를 이용하여 유입수의 pH는 5로 유지하였다. 또한 Co, Sr, Cs이 포함되지 않는 MES buffer 용액을 탈착액으로 이용하여 흡착 실험 후 유출수 내 중금속의 농도가 측정되지 않을 때까지 탈착을 수행하였다. 이 유입수를 충진된 칼럼에 상향(up-flow)으로 0.1 mL/min을 흘려보내 유출액을 샘플링 하였고 유출수 내의 Co, Sr, Cs의 농도는 ICP-OES(PerkinElmer Co., USA)로 분석하였다.

2.2 결과

연속식 단일성분 흡착 파과곡선은 Fig. 1에 나타내었다. Co의 경우, 파과점에 도달되는 시점(C_t/C_0=0.01)은 115 BV(52시간)이며, Sr은 149 BV(약 67시간)에 파과점에 이르렀다. Cs의 파과점은 177 BV(80시간)로 나타났다. 최대흡착량은 파과점을 기준으로 Cs은 0.73(mmol/g), Sr은 0.56(mmol/g), Co는 0.49(mmol/g)으로 나타났다.

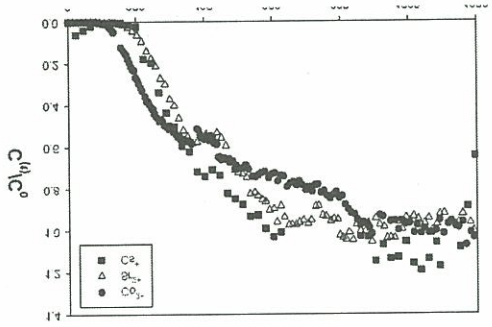


Fig. 1. Breakthrough curve for single-solute sorption of Co, Sr and Cs on Amberjet^{TM} 1600H

흡착실험이 종료된 후 Co, Sr, Cs의 단일성분 탈착을 평가하기 위하여 탈착실험을 수행하였다(Fig. 2). Amberjet^{TM} 1600H으로 부터 Co는 200 BV(90시간) 이후 탈착되지 않았고 Sr의 경우 250 BV(110시간) 이후 탈착되지 않았다. 그리고 Cs은 700 BV(315시간)로 Co와 Sr보다는 상대적으로 장시간 탈착되었다.

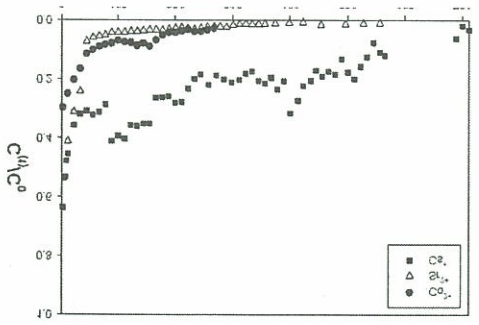


Fig. 2. Desorption curve for single solute desorption of Co, Sr and Cs onto Amberjet™ 1600H

연속흐름에서 Co, Sr, Cs이 동시에 함유된 다성분 용액으로 파과실험을 수행하였다(Fig. 3). Co와 Cs의 경우, 각각 106 BV(48시간), 88 BV(40시간)까지 유출수내의 중금속이 측정되지 않았으며, 그 이후에 급속히 유출농도가 증가하여 220 BV(100시간), 155 BV(70시간)에서 유출수 내의 농도가 약 1.5~2배 높게 나타나는 경향성을 보였다. Sr은 단일성분 흡착에서 제거율 99%를 달성하는데 149 BV(67시간)이 소요된 것과는 달리 다성분 연속 흡착에서는 102 BV(46시간)이 소모되어 Co, Cs과 같이 파과점 도달시점이 당겨졌다. 이는 다성분 용질계에서 용질들 간의 경쟁으로 단일성분 흡착에 비해 흡착능력이 감소한 것으로 보인다. 이러한 결과는 이성분 용질계에서 진행한 회분식 실험에서 Sr과 Co, Sr과 Cs의 경쟁으로 Sr의 최대흡착량이 더 높게 나타난 것을 바탕으로 설명할 수 있다. 수화이온 크기가 더 큰 Sr이

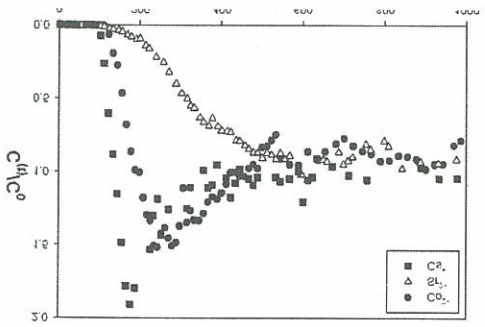


Fig. 3. Breakthrough curve for tri-solute competitive sorption of Co, Sr and Cs onto Amberjet™ 1600H

흡착제와 수용액의 경계면으로 접근할 때 수화효과에 대한 반발력이 커서 Co와 Cs보다 더 큰 흡착능을 가지는 것으로 추측된다. 이러한 이유로 기존에 흡착되어 있던 Co와 Cs이 용출되는 것으로 추측된다.

3. 결론

칼럼을 이용한 연속식 단일성분 흡착에서는 Co, Sr, Cs의 순으로 파과점에 도달하였으며 파과점을 기준으로 최대흡착량도 유사한 경향성을 보였다. 또한 Co, Sr, Cs의 탈착실험에서 Cs은 다른 방사성핵종보다 장시간 탈착되었다. 그리고 다성분 경쟁흡착실험을 통해 용질간의 경쟁으로 Co, Sr, Cs은 단일흡착 실험에 비해 파과점 도달시점과 최대흡착량이 감소하는 것을 알 수 있었다.

4. 감사의 글

본 연구는 한국연구재단(교육과학기술부)의 원자력 연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다(과제번호: M20706000036-07M0600-03610).

5. 참고문헌

[1] S. Inan, H. Tel and Y. Altas, Adsorption studies of strontium on hydrous zirconium dioxide, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry Vol. 267, pp. 615 - 621, 2006.

[2] A.D. Ebner, J.A. Ritter and T.D. Navratil, Adsorption of cesium, strontium and cobalt ions on magnetite and a magnetite-silica composite, Industrial & Engineering Chemistry Research Vol. 40, pp. 1615 - 1623, 2001.

방사선관리구역 개선작업복의 유리화 타당성 분석

박윤규, 박승철, 김천우
한국수력원자력(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 금병로 508
pyka@khnp.co.kr

1. 서론

울진 원자력발전소 방사성폐기물 유리화설비가 2009년 상업운전을 시작하여 가연성잡고체(작업복, 종이류, PE류, 고무류, 목재류 등) 처리를 하고 있다[1]. 현재 처리되고 있는 가연성잡고체 중 작업복은 향후 경량화 된 개선작업복으로 대체 착용이 검토되고 있으므로 이에 대한 유리화 특성 및 유리화 가능성 분석을 수행하였다. 본 논문의 분석 자료들은 경량화 작업복을 유리화 할 경우 추후 울진 원자력발전소 유리화설비 운영기초 자료로 활용될 예정이다.

2. 본론

2.1 개선작업복 특성 및 종류

개선작업복은 부착된 오염물질에 대한 99%의 보호막을 제공하면서도 편안함과 열 스트레스를 줄이고 사용기한이 길며 정화능력을 가진다. 방사선관리구역 내에서 피부오염과 방사능오염 확산 방지용으로 사용 예정인 개선작업복은 경량화 가운, 경량화 작업복, LS(Light & Soft) 작업복으로 구분되어진다.

2.2 경량화 가운 유리화 특성 분석

경량화 가운의 재질은 Rayon 17%, Poly microfiber 24%, Polyester 43%, PU 16%로 구성되어 있으며, 그 원소 조성은 Table 1과 같이 분석되었다[2].

Table 1. Analyzed chemical composition of light weight gown

	C	H	O	N	S	Cl	F	무기물 (주로 Na임)
구성비 (wt%)	54.4	4.7	33.8	2.5	4.6	-	-	1.5

경량화 가운의 유리화 가능성을 용융공정과 폐기물의 배기체 영향 측면에서 분석하였다. 먼저 용융공정 측면에서 분석한 결과 Na가 1.5wt% 포함되어 있다. 유리용탕에서 경량화 가운을 열분해시키고 나면 Na는 유리용탕에 잔류하게 되고 이는 유리용탕 운전변수(점도, 전기전도도) 측면에서는 긍정적 영향을 주는 반면에 유리고화체 품질(침출특성)에는 일부 부정적 영향을 줄 수 있다. 유리조성 개발 프로그램 해석 결과 그 영향은 미미하여 유리화 시 문제가 없는 것으로 평가되었다.

다음으로 배기체 영향 측면에서 분석하였다. 이를 위하여 경량화 가운의 화학적인 성분구성, 배기체 영향 검토를 위한 가정을 설정하고 유리화시 배기체 발생량을 검토하였다. 배기체 영향 검토를 위한 저온용융로에서의 연소조건은 과잉산소, 혼합된 가연성잡고체의 처리율은 약 20kg/hr, 일정량의 공기 Inleakage를 가정하였으며, 개선작업복에 공통으로 적용하였다.

경량화 가운의 화학성분과 운전변수들 조합으로 부터 경량화 가운을 유리화 할 경우 배기체 발생량은 Table 2와 같이 계산되었다.

Table 2. Calculated off-gas composition of light weight gown generated from glass melter

Gas	CO_2	H_2O	O_2	NO	SO_2	N_2	HCl	Total
유량 (Nm^3/h)	22.17	11.49	23.09	0.87	0.70	31.24	0.00	89.58
%	24.75	12.83	25.78	0.97	0.78	34.88	0.00	100.00

이들 발생 기체들은 유리화 공정내 배기체처리 계통의 습식세정기와 선택적촉매환원반응기(SCR)의 inlet 설계조건을 이용하여 평가해 볼 때 안정적으로 처리가 가능함을 확인하였다.

2.3 경량화 작업복 유리화 특성 분석

경량화 작업복의 재질은 Rayon 24%, Poly microfiber 34%, Poly staple fiber 42%로 구성되어 있으며, 주요원소는 Table 3과 같이 분석되었다[2].

Table 3. Analyzed chemical composition of light weight cloth

	C	H	O	N	S	Cl	F	무기물 (주로 Na임)
구성비 (wt%)	56.0	4.1	33.4	-	6.5	-	-	2.15

경량화 작업복 유리화 시 유리용탕 운전변수 및 유리고화체 품질에는 특별한 문제가 없는 것으로 분석되었으며 배기체 발생량은 Table 4와 같다.

Table 4. Calculated off-gas composition of light weight cloth generated from glass melter

Gas	CO_2	H_2O	O_2	NO	SO_2	N_2	HCl	Total
유량 (Nm^3/h)	22.83	10.03	22.99	0.00	0.99	31.24	0.00	88.08
%	25.91	11.38	26.11	0.00	1.13	35.47	0.00	100.00

경량화 작업복 유리화 시 NO_x 발생은 없으나 SO_x가 발생되는 것으로 분석되어 습식세정기 설계조건에 따라 폐기물을 투입할 때 안정적으로 유리화가 가능하다.

2.4 LS 작업복 유리화 특성 분석

LS 작업복의 재질은 Nylon 100%로 구성되어 있으며 원소는 Table 5와 같이 분석되었다[3].

Table 5. Analyzed chemical composition of LS cloth

	C	H	O	N	S	Cl	F	무기물 (주로 Ti임)
구성비 (wt%)	76.76	5.98	8.97	7.98	-	-	0.01	0.3

LS 작업복의 Ti는 유리용탕 운전변수와 유리고화체 품질 모두에 긍정적 영향을 주게 된다. 배기체 발생량은 Table 6과 같이 계산되었다.

Table 6. Calculated off-gas composition of LS cloth generated from glass melter

Gas	CO2	H2O	O2	NO	SO2	N2	HCl	Total
유량 (Nm3/h)	31.38	14.67	32.00	2.79	0.00	31.24	0.00	112.09
%	28.00	13.09	28.55	2.49	0.00	27.87	0.00	100.00

경량화 작업복과 달리 LS 작업복은 SO_x가 발생되지 않고 NO_x가 발생되나, 유리화설비의 SCR을 이용하여 배기체를 처리할 수 있으므로 안정적으로 유리화가 가능하다.

3. 결론

향후 원전 방사선관리구역에서 사용 예정인 개선작업복 3종을 대상으로 유리화 시 용융공정, 고화체 품질, 배기체 발생 및 처리 측면에서 분석·평가하였다.

3종의 개선작업복 모두 유리용융 공정과 고화체 품질 측면에서 부정적 영향을 주지 않은 것으로 평가되었다. 또한, 개선작업복들을 유리화할 경우 배기체 영향 측면에서 분석한 결과 폐기물 투입량 조절 등을 통하여 유리용융로 후단에 설치된 배기체처리시스템에서 안정적으로 처리가 가능한 것으로 평가되었다. 따라서 개선작업복에 대한 향후 유리화는 원활하게 진행될 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

[1] 한국수력원자력(주), "중·저준위 방사성폐기물 유리화 원형플랜트 개발", 2008.
[2] 다이명 T&C "경량화작업복, 가운 성분 분석 결과", 2010.
[3] 다이명 T&C "L&S 작업복 성분 분석 결과", 2008.

알루미늄 금속폐기물 유리화 타당성 연구

조현제, 김지연, 김천우
한국수력원자력(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 금병로 508
cho@khnp.co.kr

1. 서론

한국수력원자력(주)에서는 원전 방사성폐기물을 안정화하고 그 부피를 저감하는 방안의 일환으로 1994년부터 유리화기술을 개발하고 있으며, 2009년 울진 원전에 유도가열식 저온용융로(CCIM) 설비를 준공하고 상용운전을 개시 하였다. 현재 울진 유리화설비에서는 원전 중·저준위 방사성폐기물 중 가연성잡고체(DAW)와 폐수지(Spent Resin)를 유리화 하고 있다.

원전 중·저준위 방사성폐기물 중 공기조화계통에서 발생하는 필터 여과재 중에 알루미늄 금속막(foil)이 있다. 일반적으로 알루미늄 금속 막은 드럼포장 후 압축하였으나 수년전부터 일본 등에서 드럼저장 및 드럼저장 상태로 처분 부적합 결정이 나오면서 이를 안정적으로 처리하는 방안이 대두 되었다. 따라서 한국수력원자력(주)에서는 알루미늄 금속폐기물에 대한 유리화 가능성 평가를 위해 실험실 규모의 용융특성 실험을 수행하였다. 알루미늄 금속을 유리용융로내에서 산화시켜 유리 구성원소인 알루미늄 산화물(Al_2O_3)로 만들기 위해 일정한 조성을 갖는 붕규산 유리프릿(frit)을 개발하였다.

본 연구를 통하여 알루미늄 산화물이 유리조성내에서 적절한 용해도를 갖고 혼합과 배출이 용이한 점도를 갖는 유리조성을 개발하였다. 또한, 알루미늄 금속폐기물이 함유된 유리조성에 대한 물리적 특성을 분석하였다.

2. 본론

2.1 용융실험

알루미늄 금속을 지름 1 cm 이하의 작은 조각으로 분쇄한 후 붕규산 유리프릿과 혼합하여 이를 점토 도가니에 담은 후 1,150 ℃ 환경의 고온 전기로에서 용융하였다. 알루미늄 금속 용융에 사용된 붕규산 유리프릿 조성은 알루미늄 산화물(Al_2O_3) 용해에 용이하도록 SiO_2+B_2O_3의 함량이 절반 이상 되도록 하였으며 여기에 Na_2O를 첨가제로 사용하였다. 실험에 사용된 주요 산화물 조성의 최고값은 Table 1과 같다.

Table 1. Maximum compositions for Al metal vitrification

Oxides	Composition (wt.%)
B_2O_3	<20
Na_2O	<17
SiO_2	<46

일정 비율의 알루미늄 금속과 붕규산 유리프릿이 혼합된 모양을 Figure 1에서 볼 수 있다. 그림에서와 같이 알루미늄 금속 조각과 유리프릿을 혼합한 후 점토 도가니에 담고 이를 전기로에 장입하였다. 전기로 용융온도를 10 ℃/mim으로 1,150 ℃ 까지 올린 후 2시간 정도 용융상태를 유지하도록 하였다. 용융물의 상태와 점도특성을 분석하기 위해 흑연몰드에 용융물을 배출하였다.

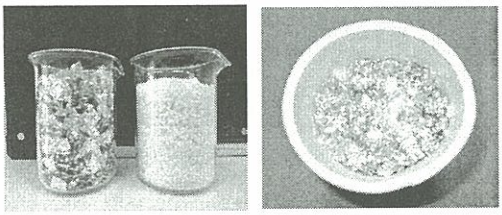
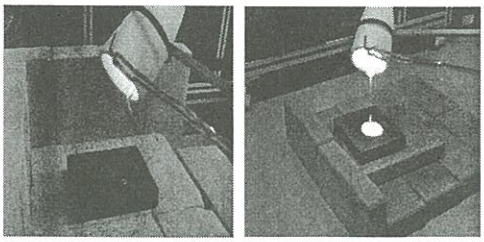


Fig. 1. Preparation of Al and Glass Frit

2.2 유리점도 평가

알루미늄 금속과 SiO_2+B_2O_3의 두 가지 조성으로만 이루어진 유리프릿을 혼합하고 용융한 실험 1의 경우, 배출 시 용융유리의 점도가 높은 것을 확인 하였다(Figure 2(a) 참조). 그러나, 알루미늄 금속과 첨가제(Na_2O)가 포함된 유리프릿을 혼합하여 용융한 실험 2의 경우 양호한 점도를 유지하여 원활하게 배출할 수 있음을 알았다(Figure 2(b) 참조). 일반적으로 유리의 점도 100 poise(꿀의 점도와 같음)가 고점도와 저점도의 경계인데 실험 1은 100 poise 이상이고 실험 2는 100 poise

이하로 평가되었다.

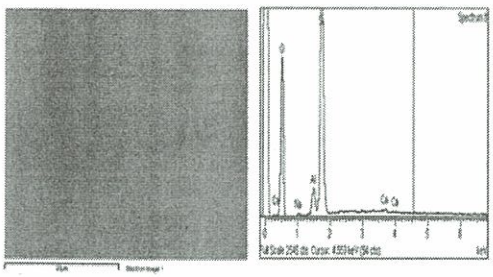


(a) High viscosity (b) Low viscosity

Fig. 2. Viscosity of Glass Melt

2.3 균질성 분석

알루미늄 금속이 함유된 두 종류의 유리고화체를 주사현미경(SEM)을 이용하여 분석한 결과, Figure 3(a)과 같이 금속이나 결정 등의 이차상이 없는 균질한 상태를 나타내었다. 즉, 알루미늄 금속은 금속이나 결정형태로 침전됨이 없이 완전 산화되어 유리구조속으로 모두 용해되어 들어간 것으로 에너지분산형분광기(EDS)를 이용한 결과 확인되었다. Figure 3(b)의 스펙트럼선을 볼 때 알루미늄 산화물의 분광선을 확인할 수 있다.



(a)SEM micrograph (b) EDS spectrum

Fig. 3. Results of SEM/EDS for vitrified form containing alumina

3. 결론

원전에서 발생되는 방사성폐기물 중 알루미늄 금속에 대한 유리화 타당성 연구를 실험실적으로 수행하였다. 전기로를 이용한 알루미늄 금속의 용융은 붕규산 유리계에서 용이한 것으로 나타났으나, 용융로의 운전변수 중 중요한 용융유리의 점도를 맞추기 위해서는 점도를 효과적으로 조절할 수 있는 첨가제(Na_2O)가 필요한 것으로 평가되었다.

알루미늄 금속의 경우 1,150 ℃ 붕규산 유리용탕 환경에서 산화가 잘 일어나는 것으로 평가되었으며 금속형태나 다른 결정형태로 침전되지 않고 유리구조속에 균질하게 분포 하는 것으로 분석되었다.

본 연구결과는 향후 국내·외 관련 폐기물 유리화를 위한 중요한 기초자료로 활용될 예정이다. 특히 알루미늄 금속에 대한 처리해법을 마련할 뿐만 아니라 장기적으로 안정적인 처분문제도 해결할 것으로 기대한다.

배기체 폐필터 유리화 타당성 연구

조현제, 김지연, 김천우
한국수력원자력(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 금병로 508
cho@khnp.co.kr

1. 서론

한수원(주)에서는 1994년부터 유리화기술 개발을 시작하였다. 1999년에는 대전 원자력발전기술원내에 유리화실증시설을 건설하여 상용설비 설계 자료를 생산하였으며, 이를 바탕으로 2009년 울진 유리화설비를 준공하였다. 현재 울진 유리화설비는 안정적으로 운영 중에 있다. 울진 유리화설비에서 핵심 분야는 한수원(주)이 전 세계에서 최초로 상용화한 유도가열식 저온용융로(CCIM)이다.

유리화(vitrification)는 유리를 이루는 유리조성 구조속에 방사성물질을 화학적으로 고정화(incorporation) 시키는 것으로 폐기물의 부피 저감뿐 아니라 생성 유리의 내침출성 효과가 큰 장점이 있다. 방사성폐기물을 안정적으로 유리화 하기 위해서는 대상폐기물의 물리·화학적 특성과 고온에서의 용융 특성을 상세히 분석할 필요가 있다. CCIM을 이용한 유리화에서는 폐기물을 최적으로 용융시키기 위한 조성유리 개발과 최적의 용융유리 점도 확보가 중요하다.

본 연구에서는 파이로프로세싱의 전처리 공정에서 발생되는 배기체 폐필터를 CCIM에서 유리화하기 위한 유리조성 개발과 온도대별 점도분석을 통해 견고한 유리고화체 생성과 안정적 운영 방안을 도출하고자 하였다.

2. 본론

2.1 유리화 대상폐기물

본 연구에 사용된 파이로프로세싱 전처리에서 발생된 배기체 폐필터는 비산재(fly ash) 필터, Ca 필터, AgX 필터로 이루어져 있다. 비산재 필터의 경우 주요 구성성분은 Al_2O_3와 SiO_2가 90 wt% 이상, Ca/AgX 필터의 경우 Al_2O_3와 SiO_2가 70 wt% 이상 분포되어 있다.

2.2 유리조성 개발

폐필터의 유리화용 유리조성 개발에 첨가제로 B_2O_3, Na_2O 등을 이용하여 최적의 유리조성과 일정 온도영역에서 적절한 점도 분포를 이루도록 하였다. 유리조성 A는 fly ash 필터 유리화를 위한 유리조성이고 유리조성 B는 Ca/AgX 혼합필터를 유리화하기 위한 유리조성이다. 유리조성 개발을 위해 컴퓨터 프로그램 GlassForm 1.1[1]을 이용하였으며 주요조성은 A의 경우 대부분 SiO_2에 Al_2O_3 및 Na_2O로 구성되어 있고, B의 경우 대부분 B_2O_3에 SiO_2 및 Al_2O_3로 구성되어 있다. 유리조성 2종에 대한 물리·화학적 평가결과를 Table 1에 나타내었다.

Table 1. Physicochemical Characteristics of Glasses A & B

Physicochemical Factor		Glasses	
		A	B
Waste Loading(%) @1,150℃		70	50
Viscosity(poise) @1,150℃		24	13
E. Conductivity(S/cm) @1,150℃		0.9	17
Density(g/cm^3)		2.5	2.8
7-Day PCT (g/m^2)	pH	11.9	10.7
	B	0.7	0.1
	Li	0.7	0.1
	Na	0.8	0.1
	Si	0.3	0.1

Table 1에서 보는 바와 같이, 유리 2종의 침출률(Product Consistency Test : PCT)을 계산한 결과 유리고화체의 주요 원소들의 침출률은 기준치인 2 g/m^2 이하를 만족하는 것으로 확인되어 화학적인 내구성은 우수한 것으로 평가되었다.

2.3 유리제조

폐필터 유리화에서 CCIM을 이용한 1,150 ℃ 환경에서 고품질의 최종 유리고화체를 생성할 수 있는지를 평가하기 위해, 먼저 폐기물을 첨가제들과 혼합한 후 고온전기로를 이용하여 용융하였다. 그런 후 생성된 유리고화체를 이용하여 유리점도 및 압축강도 측정을 준비하였다.

2.4 유리 점도 측정

유리 2종의 점도 측정을 위하여 독일 HAKKE 사의 점도 측정계(RotoVisco RV2)를 사용하여 950~1,250 ℃에서 측정하였다. 측정값은 Vogel-Fulcher-Tammann 식($\ln\eta=A/(T-T_o)+B$)을 이용하여 유리의 점도 측정값을 환산하였다. Figure 1에서 보는 바와 같이 Fly ash 유리의 경우 1,100 ℃이상에서 Ca/AgX 유리의 경우 1,000 ℃ 이상에서 점도의 상한치인 100 poise 이하를 만족 하는 것으로 분석되었다. 두 유리조성 모두 CCIM 운전온도인 1,150℃에서 측정치와 계산치 점도가 잘 일치 하는 것으로 평가되었다.

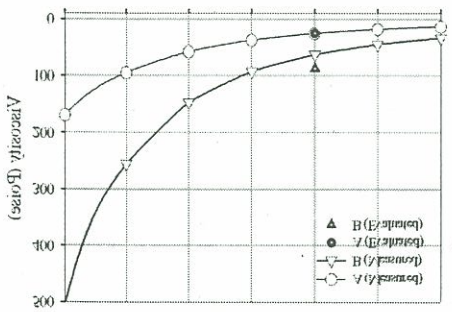


Fig. 1. Viscosity Distribution for Glasses of Spent Filters

2.5 유리 압축강도 측정

유리고화체 시편의 압축강도 측정을 위하여 유리조성 A를 흑연몰드에 부은 후 500 ℃로 미리 예열된 오븐에 넣어 서서히 냉각시켰다. 유리고화체의 시편모양은 Figure 2와 같다. ASTM C39 측정방법에 의해 봉(cylinder) 형태로 제조된 시료의 직경(2.58 cm)과 높이(5.48 cm)의 비는 1대 2.12가 되도록 하였으며 시험속도는 367.09 kgf/min로 하였다. 압축강도 측정기(DTU-900HC, Daekyung Tech & Tester Mfg., Co., Ltd.)는 국내에서 제작된 제품을 사용하였다. 유리고화체의 압축강도 측정결과 기준치인 500 psi를 훨씬 초과하는 13,000 psi 값을 나타냈다. 따라서 유리 고화체의 기계적 강도는 매우 우수한 것으로 나타났다.

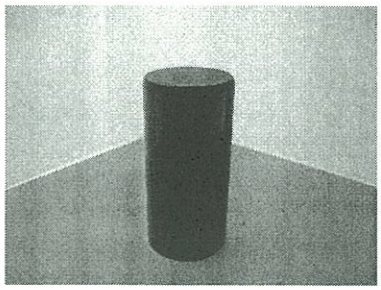


Fig. 2. Specimen of Glass Form used in Compressive Strength

3. 결론

파이로프로세싱 전처리 공정에서 발생되는 3종의 폐필터에 대한 유리조성 개발 및 유리화 방안을 도출하였다. Fly ash 필터는 70 wt%까지, Ca/AgX 혼합필터는 50 wt%까지 waste loading이 가능한 것으로 평가되었다. 개발된 2종의 유리조성은 화학적 내구성이 우수한 것으로 평가되었으며, 점도 및 압축강도 결과도 매우 우수한 것으로 평가되었다. 본 연구결과는 향후 국내에서 추진 하고자 하는 공학규모 파이로 실증시설의 인허가 기본 자료로 활용될 예정이다.

4. 감사의 글

본 연구는 한국원자력연구원 수탁과제로 수행되었으며 이에 감사드린다.

5. 참고문헌

[1] K. Vinjamuri, S.T. Wood and L.O. Nelson, GLASSFORM-Version 1.1:An Algorithm for Generating Preliminary Glass Formulations for Waste Streams,INEEL/EXT-98-00269, August (2000).

우라늄 석회침전물의 탄산염계 용해액으로부터 UO_4 침전

정동용, 최은경, 양한범, 이일희, 김광욱
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
ndychung@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력발전소에서 사용되는 핵연료로는 주로 산화우라늄이 사용되는데 이의 제조를 위해서는 우라늄 원광으로부터 정련과 변환, 농축, 재변환, 가공 등의 제조 과정을 거치게 된다. 이와 같은 산화 우라늄 제조 과정으로 부터 여러 가지 종류의 우라늄 함유 폐액이 발생된다. 다양한 화학적 상태로 존재하는 폐용액 중 우라늄의 처리는 이온교환법, 역삼투압, 증화 및 침전법 등이 주로 사용된다. 핵연료 제조시설에서 발생되는 대부분의 우라늄 폐액에는 우라늄 외에 Ca, Fe, Si, Mg, Mo, Al, Cr, Zn, Ni, Cr 등의 금속이온들이 함유되어 있다. 이때 폐액 처리는 처리된 후 배출 수질, 중화된 침전물 취급, 수력학적 성질과 중화제 비용 및 산 용액의 중화 수율 등을 고려하여 판단하지만 우라늄 함유 액체 폐기물 처리를 위해 가장 효과적이며 지금까지 많이 사용되고 있는 방법 중 하나는 소석회를 첨가하여 폐액 중 우라늄을 침전시키는 것이다. 이때 U과 공존하는 다른 금속이온들도 대부분 함께 공침전하게 된다.

지금까지 이들 우라늄 함유 석회침전물을 직접 대상으로 하여 우라늄을 저감화하는 연구는 거의 수행되지 않았다. 이는 석회침전물이 바로 최종 폐기물로 간주되었기 때문이다. 따라서 경제성이 있으면서 환경 친화적으로 석회침전물로부터 우라늄을 저감화 시키는 기술은 아직 개발되어 있지 않는 상태이다. 석회침전물을 질산 등의 산에 녹이는 경우 우라늄은 물론 기타 함유 금속이온들도 다량 같이 용해된다. 산에 용해된 우라늄 용해액으로부터 우라늄만을 분리하는 방법으로 지금까지 이온교환이나 용매추출, 중화, 침전 방법 등이 높은 선택도와 정제도를 가짐으로써 가장 많이 사용되어 왔다. 그러나 이 방법은 유기 용매, 산 등을 추가적으로 사용함으로써 2차 폐기물이 다량 발생하는 등 우라늄 함유 석회침전 폐기물의 양을 감소시키는 측면과 경제성에서 전혀 장점이 없다.

본 연구팀에서는 최근 탄산염 용액 계를 이용하여 사용후핵연료를 대상으로 우라늄의 선택적 용해-침출 침전 기술을 이용하는 COL (Carbonate-based Oxidative Leaching) 공정을 개발한 바 있다.[1] COL 기술에서는 탄산염-과산화수소 용액계를 사용하여 대부분의 금속 산화물은 불용해 상태를 유지하며 우라늄 산화물만을 선택적으로 용해하고, 용해된 우라늄은 최종 UO_4 형태로 고순도 침전 회수하며, 사용된 탄산염은 salt-free한 방법으로 처리를 하여 2차 폐기물의 발생이 없이 재순환하는 것을 특징으로 한다. COL 기술은 우라늄만을 처리하는 경우 종래의 어떠한 습식방법보다 환경친화성이 높은 것으로 평가되고 있다.

본 연구에서는 COL 기술을 사용한 석회침전물 처리의 일환으로 수행되는 것으로 우라늄 및 여러 기타 금속원소들이 함유된 석회침전물로부터 탄산염 용액을 사용하여 우라늄을 선택적으로 용해시킬 때 같이 함유된 기타 원소들의 용해정도를 살펴보고 UO_4 침전에 의한 우라늄의 침전 분리 특성과 그때 기타 원소들의 공침전 정도 그리고 우라늄 침전 생성물의 특성에 대한 연구를 수행하였다.

2. 본론

2.1 실험

탄산나트륨, 질산, 과산화수소 등은 시약급을 사용하였다. 실험은 비이커에 담겨있는 탄산용액에 용액에 불순물을 포함하고 있는 우라늄 석회침전물 분말을 첨가한 후 항온진탕기에서 교반하면서 24시간 정도 용해시켰다. 용해 후 고액 분리하여 우라늄 용액을 침전 전 용액으로 하였다. 우라늄 침전은 용액에 과산화수소를 첨가한 후 질산을 첨가하면서 용액의 pH를 조절하였다. pH의 감소에 따라 우라늄이 침전된다.

용액 중 우라늄 농도는 652nm에서 peak 특성을 갖는 Arsenazo III 시약을 사용하는 비색법을 사용하여 분석하였다. 수용상의 Al, Ca, Cr, Fe, Mg, Mo, Ni, P, Zn 등의 농도는 ICP(Inductively

Coupled Plasma Spectrometer, Model: ISA Jobinyvon JY 38 Plus) 및 AAS(Atomic absorption spectrometer)를 이용하여 분석하였다.

2.2 결과

Table 1은 용해시 사용된 석회침전물내 주요 구성 원소들의 무게 함량비를 나타낸 것이다. Ca의 양이 가장 높아 약 16.3%의 무게비를 우라늄의 경우 약 13% 정도였다.

Table 1. Composition of lime precipitate.

Elements	wt (%)
U	12.96
Al	0.79
Ca	16.3
Cr	0.01
Fe	6.78
Mg	0.56
Mo	0.01
Ni	0.01
Zn	0.02
기타(C,H,O,등)	62.56
합계	100

Fig.1은 Table 1과 같은 조성을 갖는 석회침전물 33g을 0.5M $NaHCO_3$ 용액 500ml에 넣고 상온에서 24시간 용해시킨 결과를 나타낸 것이다. 용해 전 탄산용액의 pH는 8.2 였으나 석회침전물의 용해 후 용액의 pH는 8.6 정도로 증가하였다. Fig. 1 나타낸 바와 같이 용해된 우라늄의 농도는 약 5,500ppm 이었다. 우라늄을 제외한 다른 원소들의 용해는 Mg이 약 65ppm으로 약간 용해되었고 Al, Ca, Cr, Mo 등의 원소들은 5ppm 이하만이 용해되었다.

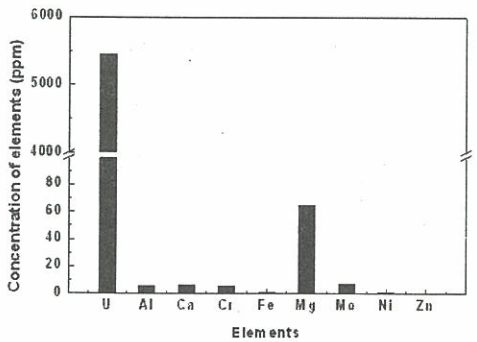


Fig. 1. Composition of dissolved elements in a carbonate solution

한편 용해된 U에 과산화수소를 넣고 질산을 사용하여 용액의 pH를 3.5로 조정하면 U의 99.9% 이상이 Uranium peroxide로 침전이 되는 것을 확인 할 수 있다. Fig. 2는 침전된 시료를 건조시킨 후에 얻어진 XRD 결과로 $UO_4 \cdot 2H_2O$ 형태의 Metastudtite로 추정된다.

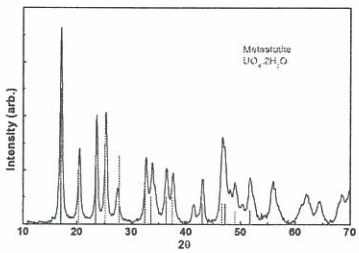


Fig. 2. XRD-data of uranium precipitate

3. 결론

본 연구는 불순물이 함유된 석회침전물을 탄산염 용액에 용해시킬때 우라늄과 여러 금속원소들의 용해도를 살펴보았다. 또한 용해액으로부터 과산화수소의 첨가와 pH 조절을 통해 우라늄의 99.9% 이상을 침전 회수할 수 있음을 확인하였다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 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).

가상사고조건의 연속적인 측면하중하에서의 금속겸용용기의 누적효과 평가 해석

최우석, 이상훈, 서기석, 김형진*, 윤정현*
한국원자력연구원, 대전 유성구 대덕대로 1045
*한국방사성폐기물관리공단, 대전 유성구 대덕대로 1045
wschoi@kaeri.re.kr

1. 서론

IAEA regulation 및 국내법규는 방사성물질의 운반용기에 대한 가상사고조건을 규정하고 이러한 사고조건에서의 안전성 유지를 보장할 것을 요구한다. 이러한 가상사고조건에는 낙하, 파열, 화재, 침수 등이 포함되는데 이러한 각각의 사고조건은 원칙적으로 연속적으로 수행되어야 한다. 이러한 연속적 사고조건하에서의 누적손상과 관련된 연구는 오래전부터 수행되었으나 국내에서는 낙하해석과 열해석시 서로 다른 모델을 사용하고, 낙하와 파열 사이에도 누적손상을 고려하는 해석은 수행하지 않는 상태였다. 이는 이전 단계의 해석의 결과값을 그 다음 해석의 초기값으로 입력해야 하는 해석기법상의 어려움에 기인한다. 본 논문에서는 이에 대한 초기연구로서 9 m 낙하해석 이후 운반용기의 최종상태를 반영하여 파열해석을 수행하는 해석기법을 개발한 내용에 대하여 기술하고자 한다.

2. 수송사고 누적조건 전산시뮬레이션

2.1 해석모델

금속 수송저장 겸용용기는 캐니스터(Canister)와 캐스크(Cask)와 충격완충재로 이루어져 있다, 상부 충격 완충체(Upper Impact Limiter)와 하부 충격 완충체(Upper impact limiter)로 나누어져 있으며, 충격완충재질은 발사우드를 사용하였다. 운반사고조건에 대한 응력평가를 위해서 캐니스터, 캐스크 볼트, Dummy Weight와 Blade는 탄성해석을 했으며 캐스크, 외부 드럼 케이스, 완충재인 발사우드 및 Tie rod는 탄소성 해석을 수행하였다. 금속수송 저장겸용 용기 전산모델은 644,269개의 절점으로 이루어진 544,379개의 요소로 구성되어 있으며 요소는 C3D8 타입이다. 각각의 해석시 중력가속도 9.81 m/s^{2}를 설정하였으며 9 m에서 낙하하는 낙하속도 13.288 m/s를 초기 속도로 설정하였다. 응력평가를 위해서 캐니스터에 대하여 응력선형화를 수행하여 결과를 얻었다.

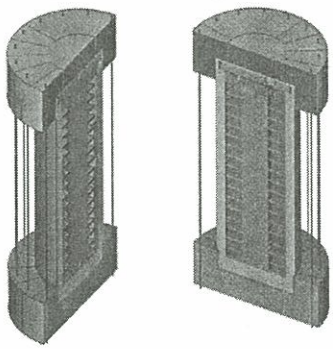


Fig. 1. 전산해석모델

2.2 수평낙하 후 수평파열의 연속해석

누적손상을 고려하기 위한 연속해석을 위해 3가지 steps을 설정하여 해석을 진행하였다. 첫 번째는 수평낙하해석, 두 번째는 수평낙하해석 이후 수평파열해석을 위한 자세로 전환하는 과정, 세 번째는 수평파열해석이다. 수평낙하해석은 0.0 sec부터 0.02 sec까지 0.02 sec 동안 진행되고, 수평파열해석은 1.025 sec부터 1.075 sec까지 0.05 sec 동안 진행된다. 0.02 sec부터 1.025sec까지는 수평낙하해석 이후 수평파열해석의 초기 자세로 위치변화를 하는 구간이며 편의상 1.005 sec의 시간간격을 두었다. 연속해석은 ABAQUS/Explicit 6.10.2를 사용하여 진행하였다. 이 가운데 두 번째 과정은 사용자가 FORTRAN 을 사용하여 프로그램을 코딩하고 ABAQUS에 연동하는 방식을 사용하였다. 아래의 그림은 연속해석 진행 가운데 변형률 값을 수평낙하해석과 수평파열해석 부분으로 나누어 그린 그림이다. 수평낙하해석 뒷 부분의 평행선과 수평파열해석 앞 부분의 평행선은 수평낙하해석의 최종값이 수평파열해석의 초기값으로 대입되었음을 나타낸다. 연속 수행된 파열해석의 변형률값은 이전 절의 개별 파열해석에서의

변형률값과 차이가 있음을 알 수 있고, 이는 연속해석시 먼저 수행된 낙하해석의 효과가 누적되었기 때문에 용기의 반응이 다른 것으로 판단된다.

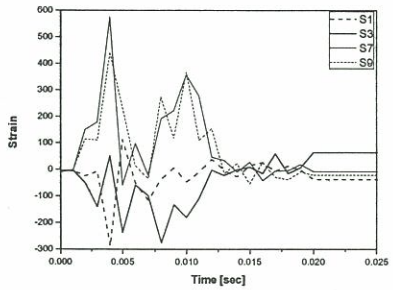


Fig. 2. 수평낙하해석시 변형률 시간이력

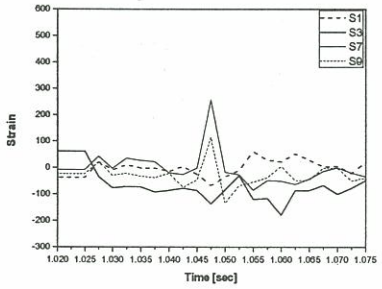


Fig. 3. 수평파열해석시 변형률 시간이력

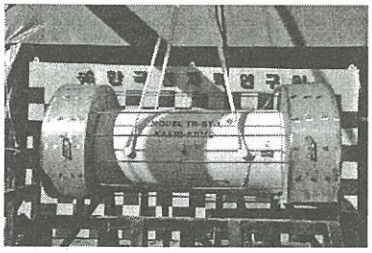


Fig. 4. 수평낙하후 겸용용기의 변형형상

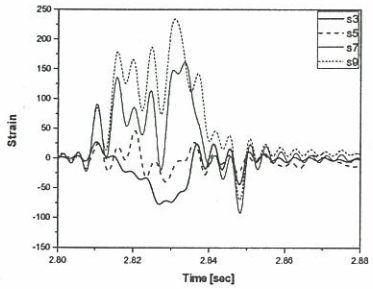


Fig. 5. 수평낙하시험시 변형률 시간이력

2.3 시험 결과와의 비교

연속사고조건에 대한 해석과의 비료를 위해 9 m 수평낙하시험 및 1 m 수평파열시험을 연속적으로 수행하였다. 수평낙하후의 용기는 Fig. 4와 같이 상하부 충격완충체가 변형하며 충격에너지를 흡수하였다. 센서부착위치에서의 변형률 시간이력의 일부를 Fig. 5와 Fig. 6에 나타내었다. 해석에서의 변형률 시간이력이 필터링 이전 데이터임을 감안하면 그 크기나 형상이 시험과 유사함을 알 수 있다.

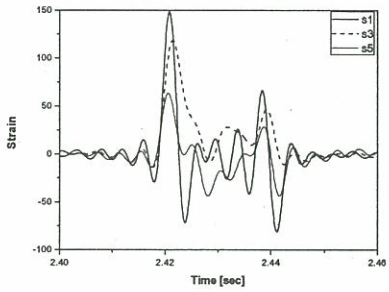


Fig. 6. 수평파열시험시 변형률 시간이력

3. 결론

낙하해석과 파열해석이 연속적으로 수행될 때의 누적손상을 고려하기 위한 해석 방법론을 정립하였다. 수송저장 겸용용기에 대하여 누적손상을 고려하는 연속해석을 수행하였으며, 시험모델을 제작하여 동일한 조건하에서의 변형률을 비교하여 해석방법론의 유효성을 보였다. 선택된 연속사고 조건의 경우에 대해 잘 설계된 충격완충체가 있는 수송용기의 경우 누적손상의 크기가 크지 않음을 알 수 있다. 그러나 연속사고조건의 조합에 따라 누적손상이 클 경우가 존재할 수 있으며, 충격완충체가 손상되는 수직낙하 후 수직파열의 경우는 이후 수행되는 화재해석에 누적손상이 어떤 영향을 미칠지 평가해야 한다. 또한 충격완충체가 없는 저장용기의 경우에는 누적손상의 영향을 판단해야 할 것으로 사료된다.

4. 참고문헌

[1] Tsu-te Wu, et al, "Dynamic Analysis of Hanford Unirradiated Fuel Package Subjected to Sequential Lateral Loads in Hypothetical Accident Conditions", PVP 2008-61564.

[2] J. M. Jordan, "Finite Element Analysis of Bulk Tritium Shipping Package", INMM.

폐 피복관의 염소화 반응 거동 모사

전민구, 이재원, 강권호, 박근일, 이창화, 양재환, 허철민
한국원자력연구원, 대전 유성구 대덕대로 1045
minku@kaeri.re.kr

1. 서론

폐 피복관은 사용후핵연료 폐기물의 약 24 wt.%를 차지하는 주요 방사성 폐기물 중 하나이다. 특히 사용후핵연료의 건식 재처리 공정시 발생하는 폐 피복관에 대한 처리 방안이 여러 각도에서 검토되고 있다. 본 연구에서는 염소 기체와의 화학적 반응을 통한 폐 피복관내 Zr 회수 가능성을 타진하기 위해 HSC code를 이용한 반응 거동 모사를 수행하였다 [1]. 폐 피복관에는 산화 탈피복 후 잔류 사용후핵연료가 존재하기 때문에 이를 고려하여 탈피복율이 폐 피복관의 염소화 반응에 미치는 영향을 이론적 계산을 통해 확인해보았다.

2. 계산 조건 및 결과

2.1 산화 탈피복 공정에 따른 사용후핵연료 및 폐 피복관의 산화

본 연구에서는 700 °C, 10 시간의 산화 탈피복 공정을 가정하여 사용후핵연료 및 폐 피복관의 산화를 고려하였다. 이에 따라 폐 피복관 내 Zr 및 Sn, Fe, Hf의 경우에 23 wt.%가 산화 탈피복 공정 동안 금속에서 산화물 형태로 바뀌는 것으로 가정하였다. 사용후핵연료의 경우 산화 탈피복 후 U_3O_8, ZrO_2, MoO_3, Pd, BaO, Y_2O_3, SrO (Cs), Rh_2O_3, RuO_2 (Tc), La_2O_3 (Am, Cm), CeO_2 (Np), Nd_2O_3 (Gd, Eu, Pm, Pr, Sm)을 구성 물질로 고려하였다 [2, 3].

2.2 Zircaloy-4 피복관의 염소화 반응

Zircaloy-4 구성 물질의 금속 및 산화물 형태가 염소 기체와 반응하여 염화물을 형성하는 반응에 대한 계산 결과를 Table 1에 나타내었다. Table 1에 나타낸 바와 같이 본 연구의 반응 조건, 즉 330 °C에서는 산화물의 경우 염소화 반응이 진행되지 않지만 금속 형태의 경우 반응이 쉽게 이루어질 것이라고 예측할 수 있다.

Table 1. Reaction behavior for chlorination of Zircaloy-4 constituents calculated by the HSC code

원소	반응	⊿G (kJ)	K
Zr	$Zr + 2Cl_2(g) \leftrightarrow ZrCl_4(g)$	-798.9	1.56×10^{69}
	$ZrO_2 + 2Cl_2(g) \leftrightarrow ZrCl_4(g) + O_2(g)$	185.0	9.42×10^{-17}
Sn	$Sn + 2Cl_2(g) \leftrightarrow SnCl_4(g)$	-398.7	3.43×10^{34}
	$SnO_2 + 2Cl_2(g) \leftrightarrow SnCl_4(g) + O_2(g)$	58.11	9.26×10^{-6}
Fe	$Fe + 3/2Cl_2(g) \leftrightarrow FeCl_3$	-271.6	3.33×10^{23}
	$1/2Fe_2O_3 + 3/2Cl_2(g) \leftrightarrow FeCl_3 + 3/4O_2(g)$	58.16	9.19×10^{-6}
Hf	$Hf + 2Cl_2(g) \leftrightarrow HfCl_4(g)$	-815.9	4.60×10^{70}
	$HfO_2 + 2Cl_2(g) \leftrightarrow HfCl_4(g) + O_2(g)$	186.7	6.79×10^{-17}

2.3 사용후핵연료의 염소화 반응

사용후핵연료 구성물질에 대한 염소화 반응 거동 모사 수행 결과를 아래 Table 2에 나타내었다. 본 결과를 통해 Pd, BaO, SrO, Rh_2O_3, La_2O_3, Nd_2O_3의 경우 염소화 반응이 진행되지만 다른 구성 물질의 경우 염소화 반응이 일어나기 어려울 것이라는 사실을 예상할 수 있다.

2.4 탈피복율에 따른 염소화 반응

탈피복율이 70, 80, 90, 99 wt.%인 경우에 대해 HSC code의 'Equilibrium composition' 모듈을 이용해 계산된 평형 상태에서의 결과를 보면 염소 기체가 전체 반응물 대비 10 mol.%로 들어간 경우 탈피복율이 기체 반응 생성물인 $ZrCl_4(g)$에 미치는 영향은 매우 적다는 것을 확인할 수 있었다. 하지만, 염소 기체의 주입량에 따른 평형 조성은 크게 변하는 것을 확인할 수 있었다. 이를 Fig. 1에 나타내었다. 이 결과로부터 염소화 반응에서 고체 염화물이 먼저 형성되고 난 뒤에 $ZrCl_4(g)$가 형성 될 것이라고 예측할 수 있다. 하지만 먼저 생성되는 염화물들은 고체 상이기 때문에 기체 상태인 $ZrCl_4(g)$와 함께 분리되지는 않을 것으로

기대되며, 고순도(99.994 mol.%)의 $ZrCl_4$(g)를 회수할 수 있을 것이라는 결과를 얻었다. 이러한 결과들을 통해 염소화 반응이 잔류 사용후핵연료가 존재하는 폐 피복관으로부터의 Zr 회수 공정으로 적용이 가능할 것으로 기대된다.

Table 2. Reaction behavior for chlorination of residual spent nuclear fuel calculated by the HSC code

반응물	반응	⊿G (kJ)	K
U_3O_8	$U_3O_8 + 6Cl_2(g) \leftrightarrow 3UCl_4 + 4O_2(g)$	640.1	3.60×10^{-56}
ZrO_2	$ZrO_2 + 2Cl_2(g) \leftrightarrow ZrCl_4(g) + O_2(g)$	185.0	9.42×10^{-17}
MoO_3	$MoO_3 + 2.5Cl_2(g) \leftrightarrow MoCl_5(g) + 1.5O_2(g)$	254.8	8.57×10^{-23}
Pd	$Pd + Cl_2(g) \leftrightarrow PdCl_2$	-80.60	9.56×10^{6}
BaO	$BaO + Cl_2(g) \leftrightarrow BaCl_2 + 0.5O_2(g)$	-266.7	1.24×10^{23}
Y_2O_3	$Y_2O_3 + Cl_2(g) \leftrightarrow 2YCl_3 + 1.5O_2(g)$	15.04	4.99×10^{-2}
SrO	$SrO + Cl_2(g) \leftrightarrow SrCl_2 + 0.5O_2(g)$	-206.2	7.21×10^{17}
Rh_2O_3	$Rh_2O_3 + 3Cl_2(g) \leftrightarrow 2RhCl_3 + 1.5O_2(g)$	-62.94	2.83×10^{5}
RuO_2	$RuO_2 + 1.5Cl_2(g) \leftrightarrow RuCl_3 + O_2(g)$	109.9	3.03×10^{-10}
La_2O_3	$La_2O_3 + 3Cl_2(g) \leftrightarrow 2LaCl_3 + 1.5O_2(g)$	-221.4	1.49×10^{19}
CeO_2	$CeO_2 + 1.5Cl_2(g) \leftrightarrow CeCl_3 + O_2(g)$	60.12	6.21×10^{-6}
Nd_2O_3	$Nd_2O_3 + 3Cl_2(g) \leftrightarrow 2NdCl_3 + 1.5O_2(g)$	-150.0	9.85×10^{12}

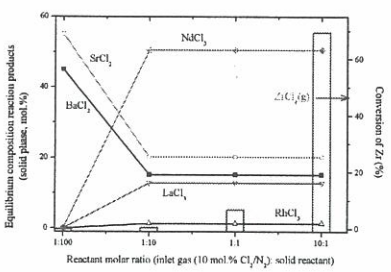


Fig. 1. Effect of chlorine gas amount on the equilibrium composition of solid phase products and conversion of Zr

3. 결론

본 연구에서는 HSC code를 이용한 폐 피복관의 염소화 반응 거동 모사를 수행하였다. 잔류 사용후핵연료의 탈피복율에 따른 반응 거동 모사를 통해 충분한 양의 염소 기체가 공급될 경우 $ZrCl_4$(g)의 회수에 문제가 없을 것이라는 결론을 얻었다. 또한, 고체 염화물이 형성되고 난 이후 $ZrCl_4$(g)의 반응이 이루어지기 때문에 탈피복율에 따라 반응 시간 혹은 염소 기체의 주입량을 변화시켜주어야 할 것이라는 결론을 얻을 수 있었다.

4. 참고문헌

[1] Outokumpu Research Oy, HSC Chemistry Webpage. http://www.outokumpu.com/hsc/.

[2] S. Sunder, N. H. Miller and W. H. Hocking, Journal of Alloys and Compounds, Vol. 213-214, pp.503-505, 1994.

[3] H. Kleykamp, Journal of Nuclear Materials, Vol. 131, pp.221-246, 1985.

[4] M. K. Jeon, J. W. Lee, K. H. Kang, G. I. Park, C. H. Lee, J. H. Yang and C. M. Heo, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Accepted for publication.

Fly ash를 첨가한 인산세라믹의 제조 및 특성평가

양재환, 이창화, 허철민, 전민구, 강권호
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
yjh98@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료를 건식으로 처리하는 파이로프로세스 기술은 전기화학적 방법을 통해 산화물핵연료를 금속핵연료로 바꾸는 전해정련 및 전해환원 공정을 포함한다. 이 공정을 효율적으로 수행하기 위해 사용후핵연료를 1000 ℃ 이상의 고온에서 가열하여 핵분열생성물을 제거하는 고도 전처리 공정을 거치게 된다. 이 과정에서 세슘, 테크네튬, 아이오딘 등의 준휘발성 핵종들이 휘발하고 이를 fly ash, calcium, AgX 등의 필터를 이용해 포집하게 된다. 핵종을 포집한 폐 필터는 방사성 폐기물로서 적절한 고화체로 제작하여 핵종 침출을 최소화한 상태로 처분장에 보내져야만 한다. 이를 위해 시멘트, 유리 등을 이용한 다양한 고화체가 제작되고 연구되어 왔다. 폐 필터의 경우 준휘발성 핵종을 포함하므로 고온 열처리가 필요한 유리화는 적절하지 않고, 일반 포틀랜드 시멘트의 경우 기계적 강도와 내침출성, 폐기물 함유량의 측면에서 보완이 필요한 부분이 있다. 이런 측면에서 인산세라믹은 기존 시멘트의 단점을 보완할 수 있는 고화매질로서 주목을 받고 있다. 상온에서 금속산화물과 인산염의 산-염기 반응을 통해 제작되는 인산세라믹은 빠른 경화시간, 우수한 압축강도, 다양한 핵종 고정화, 고화체 내 폐기물의 높은 함유량 등의 특징을 지닌다. 특히 fly ash를 첨가할 경우 기계적 강도가 향상되는 것으로 알려져 있다[1]. 본 연구를 통해 인산세라믹 모르타르 및 fly ash를 첨가한 인산세라믹을 제조하고 미세구조 및 압축강도를 측정하여 분석하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

인산세라믹의 제조를 위해 Zn, Al, Fe, Ca, Mg 등의 금속산화물이 사용되는데 본 연구에서는 산화마그네슘 분말(MgO, Martin Marietta Specialties)을 사용하였다. MgO 분말은 1500 ℃ 이상의 고온에서 하소하여 비표면적을 감소시키고 분쇄한 뒤 325 mesh 체를 이용해 거른 분말을 사용하였다. 인산염으로는 KH_2PO_4(JUNSEI) 분말을 사용하였다. 산화마그네슘과 인산염의 수용액에서의 반응은 아래와 같다.

$$MgO + KH_2PO_4 + 5H_2O = MgKPO_4 \cdot 6H_2O \quad (1)$$

식 (1)에서와 같이 두 분말의 반응 정량비는 몰비로 1:1이지만 실제 반응에 참여하는 산화마그네슘의 양은 매우 적기 때문에 몰비를 2:1, 4:1, 6:1, 8:1 로 맞추었고, 물의 양은 전체 분말 질량의 0.2 wt%로 고정시켰다. 이렇게 준비한 분말을 물과 섞은 후 분말 용해를 위해 5-10 분 정도 저어주고 플라스틱 몰드(5×10 cm)에 부었다. 그 후 경화를 위해 등온양생기(Forced Convection Oven)에 25 ℃의 온도에서 양생하였다. 또한 fly ash를 첨가한 인산세라믹의 제조를 위해 산화마그네슘과 인산염의 몰비를 6:1로 맞추고 fly ash의 질량을 전체 분말 질량비의 20, 30, 40, 50 wt%로 첨가한 인산세라믹을 제조하였다. 이렇게 제조된 인산세라믹의 미세구조 및 결정상태를 분석하기 위해서 주사전자현미경(SEM, Phillips)과 X-ray 분석(Rigaku)을 이용했으며, 압축강도 측정을 위해 유압식 압축강도 측정기를 이용해 1, 3, 7, 28일의 압축강도를 측정하여 데이터를 얻었다.

2.2 결과 분석

그림 1은 산화마그네슘 비율에 따라 제조된 인산세라믹의 압축강도 측정결과를 보여주고 있다. 그림에서 보듯이 시간에 따른 시효경화 현상으로 인해 점차 압축강도가 증가하는 것을 알 수 있는데, 1일의 강도에 비해 7일의 강도는 M/P = 2에서 최대 약 107 %까지 증가하는 양상을 나타낸다. 이러한 시효경화 현상은 시간에 따라 반응이 점차 진행되어 반응생성물의 양이 많아지기 때문으로 그림 2의 결과에 나타난 것처럼 시간이 지날수록 반응생성물의 peak가 점차 뚜렷해지고 강도가 증가하는 현상을 통해 확인할 수 있다. M/P의 비율이 4일 때 최대의 압축강도인 5436 psi를 보이고 있으며, 이는 일반 포틀랜드 모르타르의

압축강도인 4000 psi와 비교할 때 상당히 우수한 강도이다. 산화마그네슘과 인산염이 수용액에서 반응할 때 산화마그네슘 입자 표면 주위로 반응생성물이 형성되고 산화마그네슘은 반응핵의 역할을 하는 것으로 보이며, 반응생성물들은 서로 결합하여 전체적으로 단단한 망목구조를 형성하는 것으로 판단된다. 산화마그네슘의 표면에서 형성된 반응생성물은 더 이상의 반응을 방해하는 방벽의 역할을 하므로 반응생성물의 양을 최대한으로 증가시키기 위해 이론비보다 훨씬 많은 마그네슘을 넣어주는 것이다. 그러나 M/P의 비율이 8 이상이면 인산염의 양이 적어서 상대적으로 반응생성물의 양이 줄어들 수 밖에 없기 때문에 오히려 압축강도는 줄어드는 것으로 여겨진다. Fly ash를 첨가한 인산세라믹의 압축강도에 대해서는 그림 3에 표현하였다. 그림의 결과에서 보듯이 최적의 fly ash 함유비율은 30 wt% 정도이며, fly ash를 첨가하지 않은 경우에 비해 대략 65% 정도의 압축강도를 보이고 있다. 이는 분말 중 fly ash로 대체된 양만큼 반응이 일어나지 못했기 때문이다. 그러나 fly ash 자체가 인산세라믹의 공극을 메워주는 충진재의 역할을 하기 때문에 그림에 나타난 것처럼 30 wt%를 첨가했을 때가 20 wt%를 첨가했을 때보다 압축강도가 높게 나타난다.

3. 결론

산화마그네슘과 인산염을 이용해 인산세라믹 모르타르를 제조하였으며, fly ash를 첨가한 고화체를 제작하여 압축강도 시험을 실시하였다. 본 연구에서 도출된 결과를 바탕으로 고건전성의 고화체를 제조할 예정이다.

4. 참고문헌

[1] A. S. Wagh, S.-Y Jeong, D. Singh, 'High Strength Phosphate Cement Using Industrial Byproduct Ashes', French, Proceedings of the First International Conference on High Strength Concrete, pp. 542-553.

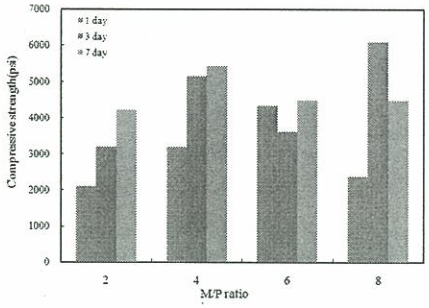


Fig. 1. Compressive Strength test result of various phosphate ceramics mortars

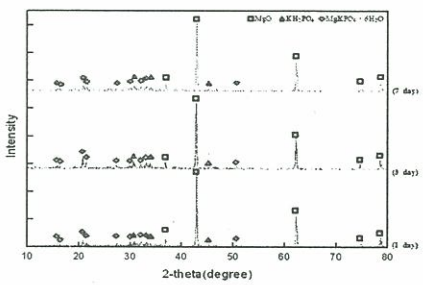


Fig. 2. XRD patterns of phosphate ceramics(M/P = 6)

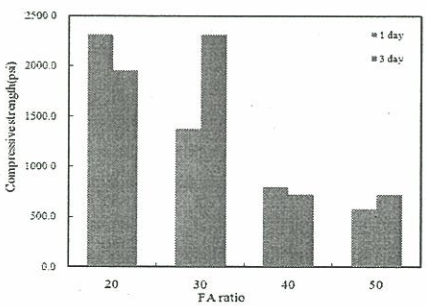


Fig. 3. Compressive Strength test result of fly ash added phosphate ceramics

방사성 토양 세척기술(Soil washing) 최적조건개발

손동빈, 김계남, 박혜민, 김기홍*, 이기원, 정운수, 문제권
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
*선광원자력안전(주), 대전시 대덕구 신일동 1683-1
shondb@kaeri.re.kr

1. 서론

동전기적 제염방법은 토양 내 존재하는 U, Co, Cs를 효과적으로 제거하는 방법이나 오염물질을 용출시키는 시간이 많이 걸린다는 단점이 있다. 이런 단점을 보완하기 위해 짧은 시간에 오염물질을 제거할 수 있는 제염방법인 토양 세척 기술(Soil washing)을 전처리 공정으로 사용하였다.

토양 세척 기술(Soil washing)은 물이나 첨가제가 포함된 수용액을 오염된 토양 등에 주입하여 오염물의 용해도를 높이고 침출되어 나오는 오염물을 추출하여 처리하는 토양 제염 기술이다. 이 방법은 유럽에서 토양 제염을 위한 방법으로 가장 폭 넓게 사용되는 토양 이송 제염법이며, 짧은 시간에 많은 양의 오염된 토양에서 제염이 가능한 기술이다. 그러나 세척용액의 오염성분을 제거하는 화학제의 선정이 어렵고, 세척용액을 처리하는 시설이 필요하다는 문제가 있다.

토양 세척 기술(Soil washing)을 사용할 경우 다량의 폐액이 발생하게 되며, 발생폐액이 동전기적 방법보다 수배이상 발생하므로 Soil washing 폐액을 어떻게 처리하는가에 대한 문제는 Soil washing 방법을 선택하는 중요한 요소가 된다.

본 연구에서는 토양 세척 기술(Soil washing)에 사용하는 적절한 세척용액을 선정하고 몇가지 세척용액에 따른 제염능력과 토양 세척 기술(Soil washing)의 특성을 살펴보았다.

2. 본론

2.1 토양 세척기술(Soil washing)세척용액의 선정

토양 세척 기술(Soil washing)의 운전변수를 최적화하기 위해, 세척용액과 고액 비, 농도를 다르게 하여 세척실험을 실시하였다. 실험 토양은 MCA로 방사능을 측정하였으며, 세척 전 우라늄의 농도가 평균 40 Bq/g 인 토양을 사용하였다. 세척용액을 주입하고 3시간 간격으로 2번 교반하여 정치시킨 후 상등액을 분리하였으며, 남은 토양을 건조시켜 무게를 측정한 후 방사능을 측정하였다. 세척용액에 따른 우라늄의 농도변화와 제거효율, 토양잔류량 등을 측정하였다.

Table 1.에서 3시간, 1회 세척의 경우 0.5M $NaHCO_3$, 1M HNO_3 어떤 세척용액을 사용하더라도 50%전후의 비교적 낮은 효율이 나타나 최소 6시간의 세척시간이 필요한 것으로 나타났다. 또한 세척용액을 선정하기 위하여 HNO_3, HCl, H_2SO_4의 강산과 $NaHCO_3$을 사용하였으며 각각의 세척용액별 고액비와 교반시간, 교반횟수를 다르게 각각 측정하여 최적의 세척용액을 선정하였다. 1M HNO_3과 $NaHCO_3$이 세척용액으로 사용한 경우 최적의 제거효율을 나타냈으며, 세척 후 pH의 차이가 극명하게 나타나 사용목적에 따라 선택할 수 있었다.

Table 1. Conditions of Soil washing experiment for soil decontamination

Reagent	0.5M $NaHCO_3$	1M HNO_3	0.5M $NaHCO_3$
Mixing ratio	1:5	1:5	1:5
Scrubbing time(hr)	3	3	3
Sieve(mm)	0.075	0.075	0.075
Repetition(time)	1	2	2
Initial conc. (Bq/g)	42.4	42.19	49.6
Removal efficiency (Bq/g)(%)	20 (47.2%)	4.09 (90.3%)	4.09 (90.3%)
Initial weight(g)	40	40	40
Remaining weight(g)	31.46	28.8	26.45
Remaining(%)	78.65	72	66.12

Table 2. Conditions of Soil washing experiment for soil decontamination with concentration

Reagent	1M HNO_3	2M HNO_3	4M HNO_3
Mixing ratio	1:2.5	1:2.5	1:2.5

Scrubbing time(hr)	3	3	3
Sieve(mm)	0.075	0.075	0.075
Repetition(time)	2	2	2
Initial conc. (Bq/g)	49.6	42.1	41.3
Removal efficiency (Bq/g)(%)	4.05 (91.8%)	3.73 (91.1%)	2.10 (94.5%)
Initial weight(g)	40	40	40
Remaining weight(g)	26.45	28.8	24.31
Remaining(%)	66.12	72	60.78

Table 2.의 경우에 HNO_3을 1, 2, 4M의 다른 농도를 사용하고 고액 비를 1g당 2.5ml를 사용하여 결과를 나타내었다. HNO_3 의 농도가 높아짐에 따라 조금씩 제거효율이 높아지나 주입한 질산과의 효율을 생각하면 1M의 HNO_3 이 최적이라고 판단되며, 혼합비도 1:2.5까지는 1:5와 제거효율의 차이가 크지 않아 1:2.5의 비율로 세척용액을 사용하는 것이 보다 효과적인 것으로 나타났다.

Table 3. Limit Conditions of Soil washing experiment for soil decontamination.

Reagent	Initial conc. (Bq/g)	Removal efficiency (Bq/g)(%)	Remaining (%)
1M HNO_3	42.19	4.09 (90.3%)	72
0.5M $NaHCO_3$	4.09	2.28 (94.6%)	65.9
1M H_2SO_4	2.28	1.92 (95.4%)	58.67
1M HCl	1.92	1.03 (97.6%)	52.85

Table 3.에서는 토양 세척 기술(Soil washing)을 통하여 오염된 토양에서 방사성 우라늄을 얼마나 제거할 수 있는지 한계를 알아보는 세척실험을 실시하였다. HNO_3, HCl, H_2SO_4의 강산과 효과적인 세척제인 $NaHCO_3$을 사용하여 각각의 세척용액에 3시간 2번씩을 1세트로 하여 2세트의 세척을 실시하였으며 4가지 세척용액으로 총 8번에 걸쳐 세척하여 방사능을 측정한 결과 오염 전 42.19Bq/g이 1.03Bq/g으로 낮아져 97.6%의 제거효율을 나타냈으나 투입되는 세척용액 대비 낮은 제거효율을 나타냈다. 또한 4가지 세척제와 8번의 세척으로도 1Bq/g이하로 낮추지 못했고, 세척용액을 교환하는 과정에서 토양이 지속적으로 유출되어 세척 후에 52.85%의 잔류량만 남아 토양 세척 기술(Soil washing)의 제염한계성을 나타냈다. 하지만 2번의 세척으로 동전기 등과 같은 다른 방법에 비해 짧은 시간 안에 높은 제거효율을 나타내었으므로 동전기와 함께 사용할 경우 전처리 과정으로 적절한 방법으로 생각된다.

3. 결론

토양 세척 기술(Soil washing)의 운전변수를 최적화하기 위해, 세척용액과 고액 비, 농도를 다르게 하여 세척실험을 실시한 결과 1M HNO_3과 $NaHCO_3$이 세척용액으로 사용한 경우 최적의 제거효율을 나타냈으며, 세척용액의 용량은 1g당 2.5ml을 사용할 때 같은 제거효율에서 적은 세척폐액이 발생될 것으로 생각된다. 또한 오염토양에서 토양 세척 기술(Soil washing)의 한계성을 실험해본 결과 1.03Bq/g까지 낮아지는 결과를 나타냈으나 투입한 세척용액을 생각해볼 때 효과가 낮아 비효율적인 것으로 나타났다. 그러나 짧은 시간 내 높은 제거효율을 나타내므로 동전기 등의 제염방법의 전처리 과정으로 사용할 때 효과적인 것으로 나타났다.

4. 감사의 글

본 연구는 한국정부가 지원하는 한국과학기술재단의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] 김재건 등, 한국방사성폐기물학회, 2009년 춘계학술대회 논문요약집, pp99-100 (2009).

[2] W. Luo, S.D. Kelly, K.M. Kemner, D. Watson, J. Zhou, P.M. Jardine, and B. Gu. "Sequestering uranium and technetium through co-precipitation with aluminum in a contaminated acidic environment" Environ. Sci. Technol. 43, pp. 7516-7522 (2009).

[3] P. Zhou, B. Gu, "Extracion of oxidized and reduced forms of uranium from contaminated soils: The effects of carbonate concentration and pH" Environ. Sci. Technol. 39, pp. 4435-4440 (2005).

우라늄 잔류물질 장기저장을 위한 예비조사

최윤동, 최휘경, 이규일, 황두성, 문제권
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
ydchoi1@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에서는 지금까지 연구를 수행하던 중에 발생된 폐기대상 우라늄 잔류물질에 대하여, 효율적 관리를 위하여 저장고에 집중 관리하고 있다. 이러한 폐기대상 우라늄 잔류물질은 상온에서 안정한 형태를 취하는 물질로서 장기저장에 적합한 화합물이어야 한다. 우라늄 금속 또는 합금, 우라늄 산화물(U_3O_8, 또는 UO_2), 그리고 UF_4 등이 안정한 화합물이며, 저장고에 관리되는 우라늄 잔류물질은 이러한 화합물 중에 한 가지 형태로 보관되어야 한다. 한편, 폐기대상 우라늄 잔류물질은 항구적으로 저장 관리될 수 없으며 결국에는 처분되어야 한다. 미국 NTS(Nevada Test Site)에 상기 화합물형태의 감손우라늄 잔류물질을 처분한 예[1, 2, 3]가 있다. 국내에서도 폐기대상 우라늄 잔류물질이 늘어나는 추세에 있으며, 장기적으로는 외국의 처분사례 조사로부터 국내 여건에 적합한 처분 형태 및 기준에 대한 검토와 정립이 필요하다.

2. 장기저장 적합성 조사 결과

2.1 장기저장 가능한 우라늄 화합물

장기저장을 위한 안정한 형태의 대표적 우라늄 화합물은 표 1.에 나타낸 바와 같다. 대부분 우라늄 화합물의 겉보기 밀도는 그것의 이론적 밀도보다 상당히 낮으며, 생성된 과정에 따라서 매우 다양한 값을 가진다. 따라서 장기저장을 위한 우라늄 화합물이 보다 적은 부피를 가지기 위해서는 우라늄 금속을 제외하고는 더 높은 밀도를 가지도록 함이 좋다. 이는 적은 부피에 따른 포장, 운송, 그리고 처분 등의 비용이 줄어들기 때문이다. 우라늄 금속의 경우 공기 중 수분과 서서히 반응해서 우라늄 산화물과 수소를 발생하게 되는데, 반응속도는 $2x10^{-5}$~$4x10^{-4}mg/cm^2$ 범위에 있다. 따라서 미국의 NTS와 같은 건조한 장소에 처분하는 경우 metal hydride나 수소 생성 등은 큰 문제가 되지 않는다. UF_4 경우, 상온에서 물에 대한 용해도는 약 40ppm 으로 매우 적다. UO_2 경우, 미세 분말은 지하수와 접촉해서 아주 서서히 산화되어 보다 안정한 다른 우라늄 산화물을 생성한다. U_3O_8 경우, UO_2와 비슷한 성질을 가지며 미세한 UO_2 분말이 가지는 자연 발화적인 pyrophoric한 성질은 나타내지 않는다. 따라서 U_3O_8은 가장 안정한 우라늄 화합물이나, 일반적으로 미세한 분말 형태로 생성되기 때문에 처분을 위해서는 후 처리나 포장 등의 추가 조치가 필요하다.

Table 1. Physicochemical properties of uranium and its compounds under ambient conditions

Compound	Bulk density, g/cm^3	Solubility in water	Reactivity
U metal	19	insoluble	Reacts slowly with water
UF_4	2.0-4.5	very slightly soluble	Reacts slowly with water
UO_2	2.0-5.9	insoluble	
U_3O_8	1.5-4.0	insoluble	

2.2 수용성 평가 사례

처분을 위한 폐기물 접수 기준은 모든 처분시설에서 개념적으로 동일하다. 그러나 처분 부지 특성에 따라서 처분 행위는 다양하다. 폐기물 수용성 허가를 위한 실증과정은, 폐기물 화학적 형태 및 포장 형식 결정 등의 필요조건을 확립하기까지는, 많은 시간과 비용이 든다. 따라서 몇몇 처분 부지에 대한 폐기물 수용 조건을 조사함으로부터 처분될 폐기물의 생산, 운송, 그리고 처분에 이르기 까지 드는 비용을 절감할 수 있다. 표 2.에 처분 폐기물에 대한 사례와 수용 기준을 운영 부지에 따라 나타내었다. NTS에는 많은 양의 감손 우라늄 화합물을 처분한 예가 있으며, Hanford 부지에는 DU(depleted uranium) 경우 허용 우라늄 농도가 NTS 경우보다 약 100배가량 적다. 기

타 DOE 부지에서 우라늄 농도 한계는 DU 경우보다 10배 또는 그 이상으로 적다. Envirocare 부지는 상업적으로 운영되며, 처분 수용 가능성은 우라늄 농도와 농축도에 따라서 분류된다.

Table 2. Uranium disposal experience and disposal criteria according to the uranium concentration

Site	Description
NTS[a]	U_3O_8(578t, 418t)[b], UF_4(1870t, 800t), UO_2(880kg, 723kg), U metal(1120t, 666t)
Hanford	Similar criteria NTS's but uranium metal exceeds the concentration allowable
Other DOE Site[c]	Not allow for disposal untreated conversion products, and small capacity
Envirocare[d]	DU less than 370,000pCi/g, NU 4,000pCi/g, Enrichment degree less than 10% and ^{235}U 1,900pCi/g

[a] Nevada Test Site, [b] Waste Quantity and uranium Quantity, [c] Los Alamos Site, Idaho Site, Savana River Site, and Oak Ridge Site operated by DOE, [d] Envirocare commercial sector.

2.3 국내 우라늄 잔류물질 재고 현황

국내 폐기대상 우라늄 잔류물질 재고를 표 3.에 요약하였다. 현재까지 발생된 폐기대상 우라늄 잔류물질 양은 많지 않으며 장기 저장에는 큰 문제가 없다. 단지 UF_6는 매우 반응성이 큰 물질로 누출 시 주변 환경오염이 심각하다. 따라서 가까운 시일 내에 변환 시켜서 장기 저장에 안정한 물질로 만들어서 저장되어야 한다.

Table 3. Inventory uranium residues

	Chemical form	Amount, kg/kgU
Depleted uranium	Uranium metal	13,156/12,356
	UF_4	12,766/9,610
	UO_2	9,337/8,344
	U_3O_8	1,943/1,816
	UF_6	184,909/125,020
Natural uranium	Uranium metal	196/195
	UF_4	60/45
	UO_2	3,733/3,256
	U_3O_8	1,373/979

2.4 우라늄 잔류물질에 대한 이용 및 처분에 대한 고찰

폐기대상 우라늄 잔류물질 대부분은 감손 우라늄으로서 지금까지 감손 우라늄이 실제로 다량으로 사용된 경우는 없지만 그 이용 가능성은 많이 연구된 바 있다. 특히 사용 후 연료를 저장하는데 차폐제로 고밀도 감손 UO_2 분말 이용이 가장 유용한 방안으로 고려된다. 우라늄 금속은 중장비에 쓰이는 평형추로의 이용이 바람직하나 방사성물질이라는 점에서 적용에 장애가 되고 있다. UF_4나 U_3O_8의 형태가 처분에 적합한 화합물이나, UF_4 경우 물에 대한 용해도로 인해 U_3O_8의 형태가 우라늄 잔류물질을 처분하기위한 최적형태의 화합물인 것으로 판단된다. 한편 우라늄 잔류물질을 처분하기위한 지역으로는 NTS 처분장과 같은 건조한 특수지역이나, 우라늄 광산 지역이 적당하다.

3. 결론

폐기대상 우라늄 잔류물질에 대한 처분은 국내의 경우 적합한 처분장 선정에, 높은 인구밀도와 비교적 낮은 깊이에 위치해 있는 지하수 등, 지정학적 제약이 많다. 따라서 사용 후 연료 저장에 충진 물질로 사용하거나 우라늄광이 있었던 부지에 처분함이 바람직하다. UF_6는 처분까지 고려된 안정한 형태의 물질로 변환시켜서 저장 되어야한다.

4. 참고문헌

[1] ORNL/TM-2000/161, Assessmant of Preferred Depleted Uranium Disposal Forms, 2000.

[2] ORNL/TM-2000/355, Evaluation of the Acceptability of Potential Depleted Uranium Hexafluoride Conversion Products at the Envirocare Disposal Site, 2000.

[3] Federal Register, Vol. 72, No. 63, 15869, April 3, 2007. Notice of Availability of a Draft Supplement Analysis for Disposal of Depleted Uranium Oxide Conversion Product Generated from Doe's Inventory of Depleted Uranium Hexafluoride.

Ag(II)를 매개체로 사용하는 전기화학적 매개산화에 의한 NOx 제거

이민우, 양희철, 이근우, 최왕규
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지
mwlee27@kaeri.re.kr

1. 서론

국내의 핵연료주기 관련 연구 및 시설 운영 시에 알파핵종 및 질산을 함유하는 TBP/n-dodecane 유기 혼성폐액이 수 톤 발생되어 있다. 이를 처리하는 공정으로 소각, 열분해 및 수증기 개질 가스화 등의 고온 분해 처리공정이 일부 실용화 되고 있으며, 이러한 고온의 분해처리 과정에서 질소산화물이 발생한다[1]. 질소산화물은 산성비와 광화학스모그의 원인이 되고 있으며, NO_x를 제거·처리하는 방법은 크게 건식 처리 공정, 및 습식 처리 공정, 두가지로 나눌 수 있다. 습식제거 공정은 건식 제거 공정에 비해 배가스의 분진농도에 비교적 영향을 덜 받는다는 장점을 지니고 있으나, 이차적으로 수질 오염의 문제 등으로 적용성에 제한을 받고 있는 실정이다[2]. 습식 처리 공정 중 전기화학적으로 생성되는 산화제에 의하여 질소산화물을 산화시켜 처리하는 전기화학적 매개 산화법(MEO, Mediated Electrochemical Oxidation)은 상온 및 상압의 조건에서 가동되고, 2차 오염물질의 배출이 없이 NO_x의 처리가 연속적으로 가능하다는 장점이 있다[3]. 본 연구에서는 상온에서 이차폐기물의 발생이 없이 유해성 가스를 안전하게 처리하기 위한 공정으로써 산화제로 Ag(II)를 사용하여 MEO 공정에서 제어 가능 인자인 전류밀도, Ag(I)의 농도, NO-공기 혼합가스 유속 및 세정용액의 유속 변화가 NO 가스의 제거율에 미치는 영향을 고찰하였다.

2. 실험 및 결과

2.1 실험

질산 전해질 내에서 전기화학적으로 생성되는 Ag^{2+} 매개산화제에 의한 습식 세정 공정을 적용하여 유기성 폐기물의 고온 분해처리 시 발생할 수 있는 유해 가스인 NO 및 NO_2의 제거 실험을 수행하였다. 이를 위하여 Ag^{2+} 산화제가 연속적으로 생성되는 전해 공정과 NO 및 NO_2 기체를 산화시켜 처리하는 세정 공정으로 이루어진 장치를 사용하였으며, 개략도를 Fig. 1에 수록하였다.

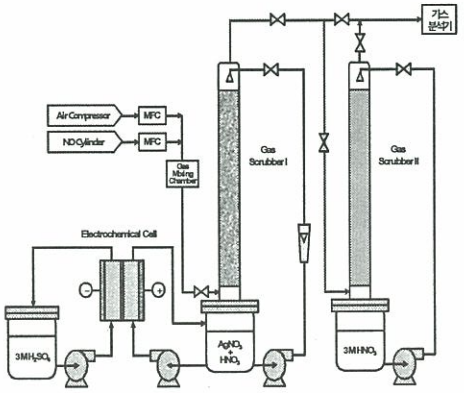


Fig. 1. A schematic diagram of MEO process for NO_x removal.

대부분의 실험은 전해셀에서 전기화학적으로 제조된 Ag^{2+} 매개산화제가 연속적으로 공급되는 가스 세정기 I (Fig. 1의 Gas Scrubber I)에서의 NO 제거 특성 파악에 초점을 맞추어 수행하였으며, 일부는 가스 세정기 I에서 처리된 가스를 다시 3 mol/l의 질산이 연속적으로 공급되는 가스 세정기 II (Fig. 1의 Gas Scrubber II)를 통과시켜 NO_x의 제거 거동을 조사하였다.

2.2 결과

NO의 농도가 400 ppm으로 조절된 NO-공기 혼합가스를 Ag^{2+} 매개산화제가 포함된 5 M HNO_3 용액이 공급되는 충진탑 형태의 가스 세정기 I과 3 M HNO_3 용액이 공급되는 가스 세정기 II를 연속적으로 통과시켜 처리하는 복합 공정에서의 NO 및 NO_X 제거 거동을 조사 하였다. 그 결과는 Fig. 2에 수록 하였으며, 가스 세정기 I에서는 NO가 NO_2로 대부분 산화되며, NO_2가 일부 질산으로 산화되어 제거되고, 가스 세정기 I에서 제거되지 않은 NO_2는 가스 세정기 II를 통해서 화학적으로 흡수 제거 되었다.

본 실험에서 NO의 제거 효율은 95% 정도로 비교적 높은 성능을 보였으나, NO_x의 제거 효율은

63% 정도로 다소 낮은 성능을 나타내었다.

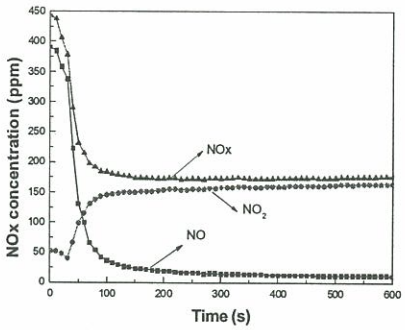


Fig. 2. Changes in NO, NO_2, and NO_x concentrations with respect to time and the removal efficiencies of NO and NO_x through gas scrubber II.

3. 결론

전기화학적으로 생성되는 Ag^{2+}를 사용하는 MEO 공정에 의한 NO 제거에 전류밀도, $AgNO_3$ 농도, 세정용액의 유속 및 NO-공기 혼합가스 유속이 미치는 영향을 조사하였다. 전류밀도가 증가할수록 Ag^{2+}의 생성속도가 증가함으로 인해 세정용액 내에 축적되는 Ag^{2+}의 농도가 빠르게 증가하면서 NO의 산화반응 속도 및 제거 효율이 증가하였으며, 미리 제조된 충분한 농도의 Ag^{2+} 함유 세정용액을 사용함에 의해서 NO 제거 효율이 더욱 증진되었다. 또한 세정용액의 유속이 증가할수록 기-액 간에 접촉효율이 증가됨에 의하여 NO의 제거효율이 점진적으로 증가한 반면에 NO-공기 혼합가스의 유속이 증가할수록 가스의 체류시간이 감소됨으로 인한 기-액 간의 접촉효율 감소에 의하여 NO의 제거효율이 점진적으로 감소하였다.

NO_x 제거 성능 향상을 위하여 NO_x 제거와 관련된 물질전달 및 반응 속도론적 연구 등 체계적인 연구가 더 필요한 것으로 생각된다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발사업의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

5. 참고문헌

[1] H. D. Harmon, et al., "Behavior of tributyl phosphate in a-line processes, Sanvannah River Laboratory Report, pp. 20-21, DP1418/UC10(1076).

[2] M. Kang, et al., "Two-stage catalyst system for selective catalytic reduction of NOx by NH3 at low temperatures," Appl. Cata. Environmental., 68, pp. 21-17(2006).

[3] D. F. Steele, "A novel approach to organic waste disposal," Atom, pp. 393-396(1989).

우라늄 함유 TBP-dodecane 폐유기용제의 열분해 및 인의 휘발거동

홍순재, 양희철, 최왕규, 이근우
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동150-1)
hsj@kaeri.re.kr

1. 서론

핵화학산업에서 kerosene이나 dodecane내의 TBP 용액은 질산에 용해되어있는 폐우라늄 핵연료 봉으로부터 우라늄, 플루토늄 및 토륨의 용매추출에 사용된다[1]. 사용된 가연성의 폐유기용제 TBP는 소각처리시 강한 부식성을 갖는 인산이 응축되어 배기체 처리 장치 배관에 부식을 일으키므로 처리하기 어렵다.

이 연구는 우라늄이 함유된 TBP 용액의 열분해 시 인의 거동을 고찰하여 우라늄이 함유된 TBP의 열분해 시 인의 분배 특성을 알아보기 위한 것이다.

2. 본론

2.1 실험방법

우라늄의 추출을 위해 사용한 되었던 dodecane과 TBP의 혼합용액을 폐시료용제(S-1, S-2)로 사용하였고, 고순도 TBP, dodecane (Aldrich Chemical Co. Ltd. 99.9%)을 사용하였다. 폐유기용제 안에 우라늄은 $(UO_2)(NO_3)_2(TBP)_2$ 상태로 존재하며 인은 $(UO_2)(NO_3)_2(TBP)_2$와 TBP의 형태로 존재한다. 원소성분분석을 토대로 한 화학양론적인 추정에 의해 두 폐유기용제의 화학적 조성을 Table 1.에 나타내었다.

Table 1. Elemental and Chemical Compositions of Tested Waste Solvents

	Elemental Composition (wt %)					
	H	C	N	O	P	U
S-1	9.6	51.2	1.0	21.5	8.2	8.6
S-2	10.5	56.6	1.0	17.4	6.3	8.3
Chemical Composition (wt %)						
	Dodecane	TBP	$(UO_2)(NO_3)_2(TBP)_2$			
S-1	15.6	51.0	33.4			
S-2	32.4	35.3	32.4			

열중량분석기(TGA-601, LECO Co.)를 사용하여 고온에서 유기용제의 열분해 거동을 알아보기 위하여, 폐유기용제(S-1, S-2)와 고순도 TBP 및 dodecane을 사용하여 불활성기체분위기에서 도가니에 뚜껑을 덮고 수행하였다. TG분석 후 잔류물에 남아있는 인과 우라늄의 함량을 ICP-AES (ACTIVA-S)을 이용하여 원소분석을 하였으며, XRD(Simenes D500)분석으로 화학종 규명을 시행하였다. TG분석 후 잔류하는 화합물의 안전성을 알아보기 위하여 TGA(SINCO, N-1500)로 1273K부터 1670K까지 분석하였다.

2.2 결과 및 토의

우라늄함유 폐유기용제(S-1, S-2)와 고순도 TBP 및 dodecane의 고온에서 무게감량 패턴을 Fig. 1에 나타내었다. Dodecane은 (1) 반응에 의하여 489K이하에서 완전히 증발하였다.

$$CH_3(CH_2)_{10}CH_3 \rightarrow CH_3(CH_2)_{10}CH_3(g) \quad \cdots\cdots (1)$$

$$(C_4H_9O)_3PO \rightarrow 3C_4H_8(g) + H_3PO_4 \quad \cdots\cdots (2)$$

TBP는 위 (2) 반응에 의해 초기 질량의 27%가 600K에서 남아야 하는데, 남아 있는 질량은 (2)반응의 화학량론적 평가와 거의 동일한 25%로 나타났다. 고온에서 H_3PO_4의 열역학적 평형농도의 예측이 Fig. 2.에 나타내었다. 이 결과는 순수 TBP의 TG분석결과와 일치하였다. 600K 이상의 온도에서 H_3PO_4는 H_2O와 P_2O_5로 분리되며 (3) 반응에 의해 $P_4O_{10}(g)$의 형태로 휘발한다.

$$H_3PO_4 \rightarrow 1/2P_4O_{10}(g) + H_2O(g) \quad \cdots\cdots (3)$$

Dodecane이 상대적으로 많은 양을 함유하는 있는 S-2는 3단계의 무게감량이 확실히 보이며, 이는 (1), (2) 및 (3)반응으로 설명할 수 있다.

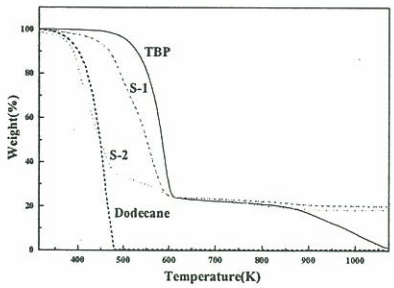


Fig. 1. Thermograms of two spent solvents (S-1 and S-2) and high-purity dodecane and TBP under pyrolysis condition at temperatures up to 1023K with a ramping rate of 4 K/min

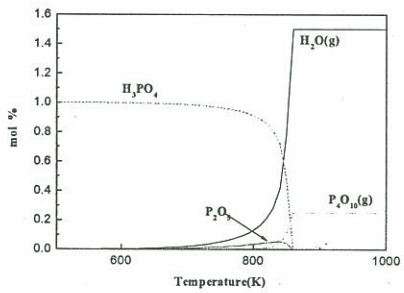


Fig. 2. The behavior of H3PO4 determined by thermodynamic equilibrium by using HSC chemistry 5.1

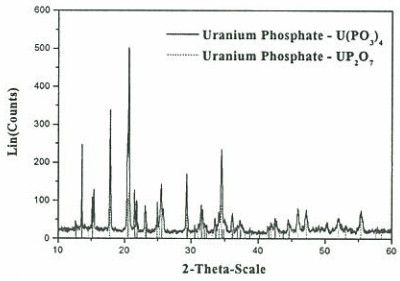
폐유기용제의 열분해 잔류물의 XRD 분석결과를 Fig. 3. (a)에 나타내었다. 이로부터 UO_2가 TBP 분해시 잔류하는 과량의 P_2O_5와 다음의 (5), (6)반응에 의해 두 종류의 uranium pyrophosphate (UP_2O_7, UP_4O_{12})를 생성 하는 것을 확인 할 수 있었다.

$$UO_2 + P_4O_{10}(g) \rightarrow UP_2O_7 \quad \cdots\cdots (5)$$

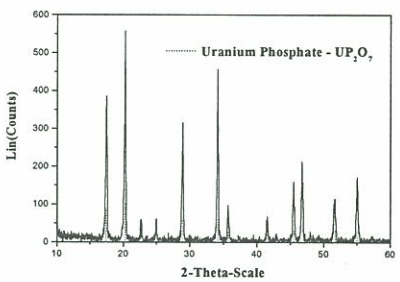
$$UP_2O_7 + P_2O_5 \rightarrow UP_4O_{12} \quad \cdots\cdots (6)$$

Uranium pyrophosphate의 열분해 잔류물의 XRD 분석결과를 Fig. 3. (b)에 나타내었다. XRD 분석결과 (7)반응에 의해서 UP_4O_{12}가 고온에서 UP_2O_7 형태로 전환 되는 것을 알수 있다.

$$UP_4O_{12} \rightarrow UP_2O_7 + 1/2P_4O_{10}(g) \quad \cdots\cdots (7)$$



(a)



(b)

Fig. 3. Powdered XRD pattern analysis of pyrolysis residue (a) and oxidation residue at further elevated temperatures up to 1673 K (b)

3. 결론

우라늄함유 TBP 폐유기용제 분해와 고온에서인의 휘발거동을 TG분석결과에 근거하여 제시하였다. 첫 번째로 저온에서의 323K까지의 dodecane의 휘발과 $(UO_2)(NO_3)_2(TBP)_2$ 탈질화가 진행되었다. 다음으로 580K 이상에서 TBP의 열분해가 시작되어 탄화수소 가스가 발생하고 P_2O_5가 잔류하였다. 남아있는 P_2O_5는 비휘발성인 UO_2와 반응하여 두 종류의 uranium pyrophosphate (UP_2O_7, UP_4O_{12})을 형성거나 600K 이상에서 $P_4O_{10}(g)$를 휘발하였다. 남겨진 UP_4O_{12}는 1400K 이상의 온도에서 불안정하여 $P_4O_{10}(g)$을 배출하고 안정된 UP_2O_7형태로 전환된다.

4. 참고문헌

[1] International Atomic Energy Agency, "Predisposal Management of Organic Radioactive Waste", *Technical Report Series No. 427*,IAEA, Vienna(2004).

원자력시설 해체공정 위험성 리스크 정량적 평가 모델

정관성, 이근우
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
ksjeong1@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력시설 특성상 해체공정에는 방사선학적 위험 작업과 비방사선학적 위험 작업이 존재한다. 해외 원자력 선진국의 해체 완료 보고서에 의하면 해체 작업중 작업자에게 위험을 가하는 재해 발생 형태는 작업자 피폭, 화재 및 폭발, 유해물질 취급, 물리적/전기적 위험 작업 등이 발생한다고 보고되고 있다[1]. 본 논문의 목적은 원자력시설 해체공정의 위험성에 대한 리스크 평가 모델을 제시하는 것이다. 이러한 목적을 달성하기 위하여 퍼지 소속함수와 퍼지 추론규칙을 설계하여 방사선학적 위험성과 비방사선학적 위험성에 대한 리스크 평가 방법론을 완성하였다.

2. 원자력시설 해체공정 위험성 리스크 평가 모델

2.1 퍼지추론 적용 배경

원자력시설 해체공정에는 방사선학적 위험과 비방사선학적 위험 작업이 있다. 세계적으로 원자력시설 해체사례가 많지만, 관련 자료가 전무한 상태이다. 이러한 이유는 지금까지의 해체 관련 연구가 방사선량 측정, 장비 개발 등에 집중되었기 때문이다. 따라서 원자력시설 해체 계획 수립 시 해체공정의 잠재적 위험 작업에 대한 자료를 확보하기가 곤란하다. 퍼지추론을 해체공정 리스크 평가에 적용하게 된 배경은 해체공정의 방사선학적 및 비방사선학적 위험작업은 불확실성(uncertainty)과 복잡성(complexity)의 특징을 갖고 있다. 불확실성이란 원자력시설 해체계획 수립 과정에서 해체공정의 잠재적 위험 작업이 발생할 것을 알고 있지만 이러한 상황에 대한 발생가능성과 위험의 크기가 어떻게 되는지 전혀 알 수가 없다는 점이다. 복잡성이란 해체를 진행하기 전에 계획을 수립하는 과정에서는 해체공정의 방사선학적 위험성과 비방사선학적 위험성과의 상호 관계가 불분명다는 점이다.

2.2 해체공정 위험성 리스크 평가 절차

원자력시설 해체공정의 위험성에 대한 리스크 평가는 Fig. 1과 같은 흐름에 따라 크게 네 단계로 진행된다. 즉, 해체공정 리스크 평가 절차는 방사선학적 리스크 평가 준비, 비방사선학적 리스크 평가 준비, 평가 대상 선정, 그리고 리스크 분석 및 평가 단계이다[2].

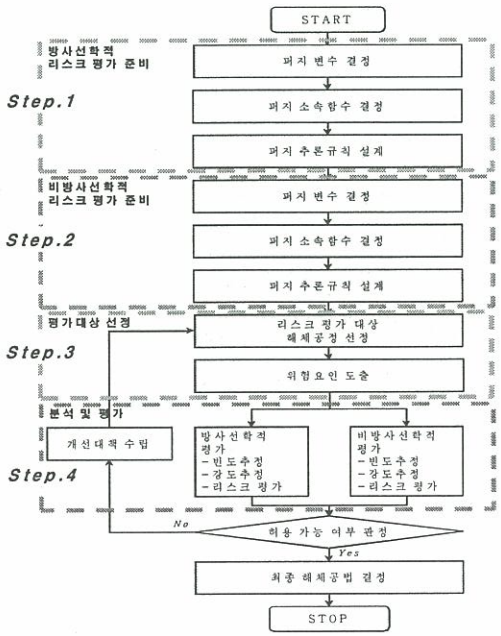


Fig. 1. Risk assessment procedure for decommissioning process

2.2.1 방사선학적 리스크 산정 방법

원자력시설 해체공정 방사선학적 리스크 산정은 다음 식과 같이 이루어진다.

방사선학적 리스크 = 빈도 × 강도 ····· (1)

여기서, 빈도는 작업자 피폭 상황 발생가능성을 나타내고, 강도는 작업자 피폭선량을 의미한다. 해체 계획 수립 시 해체공정의 작업자 피폭 상황 발생가능성과 작업자 피폭선량은 시설 운전이력 등을 통하여 사전에 산정을 한다. 즉, 작업자 피폭 상황 발생가능성과 산정된 피폭선량은 예측이지 정확한 것은 아니다. 따라서 작업자 피폭 상황

발생가능성과 피폭선량은 퍼지화가 필요하다.

2.2.2 방사선학적 리스크 평가 퍼지 변수 및 소속 함수 결정, 그리고 추론 규칙 설계

해체공정 방사선학적 리스크 평가를 위해 퍼지 변수를 결정한다. 퍼지 변수는 입력변수, 상태변수, 그리고 출력변수로 구분이 된다. 입력변수는 방사선학적 리스크 평가를 위한 입력항목을 의미하고, 상태변수는 입력변수의 정도를 세분화한 것이며, 출력변수는 방사선학적 리스크 평가 결과를 의미한다. 방사선학적 리스크 평가를 위한 각 언어적 변수에 대하여 해체 전문가 의견을 바탕으로 퍼지 집합을 구성하여 방사선학적 퍼지 소속함수를 결정한다. 그리고 소속함수의 범위 및 형태는 퍼지집합, 즉, 수렴된 전문가 의견 데이터의 특성에 맞게 결정한다. 해체공정 방사선학적 리스크 평가를 위한 변수인 퍼지 입력변수, 상태변수, 그리고 출력변수 관계를 고려하여 퍼지 추론규칙을 설계한다.

2.2.3 비방사선학적 리스크 산정 방법

원자력시설 해체공정 비방사선학적 리스크 산정은 다음 식과 같이 이루어진다.

비방사선학적 리스크 = 빈도 × 강도 ..... (2)

여기서, 빈도는 작업자 상해가능성을 나타내고, 강도는 작업자 피해크기를 의미한다. 해체 계획 수립 시 해체공정의 잠재적 위험 작업이 발생할 거라는 예측은 할 수 있지만, 어느 정도의 위험한지는 알 수가 없다. 따라서, 해체공정의 위험 작업이 발생함으로써 그에 따른 작업자 상해 가능성과 작업자 피해크기는 퍼지화 작업이 필요하다.

2.2.4 비방사선학적 리스크 평가 퍼지 변수 및 소속 함수 결정, 그리고 추론 규칙 설계

해체공정 비방사선학적 리스크 평가를 위해 퍼지 변수를 결정한다. 퍼지 변수는 방사선학적 퍼지 변수와 마찬가지로 입력변수, 상태변수, 그리고 출력변수로 구분이 된다. 입력변수는 비방사선학적 리스크 평가를 위한 입력항목을 의미하고, 상태변수는 입력변수의 정도를 세분화한 것이며, 출력변수는 비방사선학적 리스크 평가 결과를 의미한다. 비방사선학적 리스크 평가를 위한 각 언어적 변수에 대하여 해체 전문가 의견을 바탕으로 퍼지 집합을 구성하여 비방사선학적 퍼지 소속함수를 결정한다. 그리고 소속함수의 범위 및 형태는 퍼지집합, 즉, 수렴된 전문가 의견 데이터의 특성에 맞게 결정한다. 해체공정 비방사선학적 리스크 평가를 위한 변수인 퍼지 입력변수, 상태변수, 그리고 출력변수 관계를 고려하여 퍼지 추론규칙을 설계한다.

2.2.5 위험성 리스크 평가 대상 선정

원자력시설 해체를 수행하기 위해 수립된 여러 가지 해체공정 중에서 리스크 평가 대상 해체공정을 선정한다. 선정된 해체공정에서 방사선학적 위험요인과 비방사선학적 위험요인을 도출한다.

2.2.6 위험성 리스크 분석 및 평가

해체공정의 방사선학적 및 비방사선학적 위험요인에 대한 빈도와 강도를 추정하여 리스크를 평가하고, 리스크 허용여부를 판정한다. 그리고 해체공정의 위험요인에 대하여 개선 대책을 수립한다.

3. 결론

방사선학적 퍼지 소속함수 및 퍼지 추론규칙을 설계하였을 뿐만 아니라 비방사선학적 퍼지 소속함수 및 퍼지 추론규칙을 설계함으로써 해체공정에 대한 방사선학적 및 비방사선학적 위험성에 대한 리스크를 정량적으로 평가할 수 있는 방법론을 독창적으로 개발하였다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발 중장기 계획사업 일환으로 수행된 연구결과입니다.

5. 참고문헌

[1] K.S. Jeong and H.K. Lim, Factor analysis on hazards for safety assessment in decommissioning workplace of nuclear facilities using a semantic differential method, Annals of Nuclear Energy, Vol.36, 1639-1647, 2009.

[2] K.S. Jeong, K.W. Lee and H.K. Lim, Risk assessment on hazards for decommissioning safety of a nuclear facility, Annals of Nuclear Energy, Vol.37, 1751-1762, 2010.

알파/베타 오염도 원격측정 장비 제어를 위한 2차원 레이저 스캐너 오차 저감 연구

김성균, 최영수, 정경민, 서범경, 이근우
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
sungkyun@kaeri.re.kr

1. 서론

연구로와 같은 대형 원자력 시설 해체를 수행하기 위해서는 해체 대상에 대한 정확한 오염도 측정이 수반되어야 안전하고 효과적인 해체 계획을 수립할 수 있으며, 또한 오염도 측정 데이터는 방사성 폐기물과 비방사성 폐기물을 구분하는 중요한 자료로 활용되기 때문에 해체 계획 단계에서 필수적으로 수행되어야 할 작업이다.

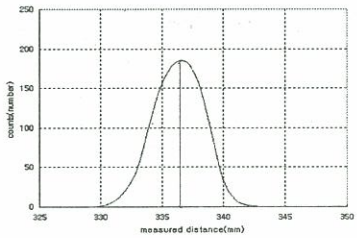
한국원자력연구원에서는 고방사능 시설의 오염도 측정 기술을 개발하기 위해 알파선과 베타선의 오염도를 동시에 측정할 수 있는 검출소재 및 동시 측정기술을 개발하고 있다. 이 기술은 하나의 검출기를 이용하여 알파선과 베타선의 오염도를 동시에 측정함으로서 작업의 효율성을 확보할 수 있으며, 원거리 신호전송이 가능한 원격검출 센서를 이용하여 작업자의 피폭 가능성을 줄여줌으로서 해체 작업의 안전성을 확보할 수 있다. 알파/베타 오염도 동시측정 방법은 장비는 검출기를 측정 대상물의 표면으로부터 10 mm 높이로 일정하게 유지하며 측정해야 일관성 있는 오염도 측정 결과를 얻을 수 있다.

본 연구에서는 알파/베타 오염도 측정 센서를 대상물 표면으로부터 일정한 간격으로 제어하는 기술로 2차원 레이저 스캐너를 사용하였고, 대상물 표면의 정밀도를 향상하기 위해 2차원 레이저 스캐닝 데이터의 오차발생 원인을 분석한 후 하고, 오차를 저감하기 위해 개발한 다양한 오차 보정 기술에 대해 언급하고자 한다.

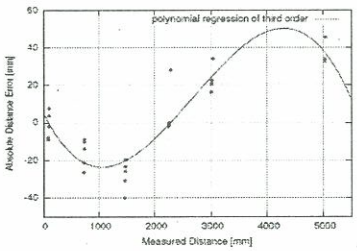
2. 본론

2.1 2차원 레이저 스캐너 오차 분석

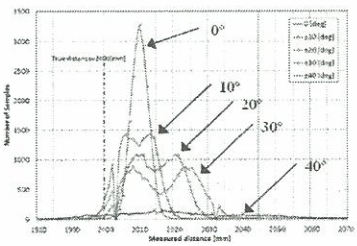
일반적으로 2차원 레이저스캐너가 가지는 오차로 인해 측정 대상물의 높이가 일정한 상태에서도 거리 측정값이 변동하므로 레이저스캐너의 오차를 보정하여 측정 정밀도를 높여 줌으로써 정밀한 제어를 가능케 하고 항상 일정한 거리에서 오염도를 측정하여 정확한 오염도 측정을 수행할 수 있다. 2차원 레이저스캐너의 오차 발생 원인을 분석하기 위해 측정 높이 변화, 회전각도 변화 등에 따른 오차를 파악하였다. Fig.1은 2차원 레이저스캐너가 갖고 있는 오차 발생 원인을 나타내고 있다. Fig. 1(a)와 같이 동일한 거리에서도 측정결과가 달라지는 랜덤 오차가 발생하며 측정결과는 가우시안 분포를 형성하는 것을 알 수 있다. Fig. 1(b)와(c)는 측정 높이 및 스캐너의 회전 각도의 변화에 따라 오차가 발생되는 것을 알 수 있다.



(a) Random error



(b) Distance error



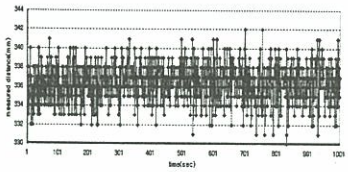
(c) Angle error

Fig. 1. Errors of 2D laser scanner

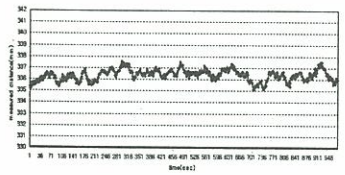
2.2 오차 보정

2.2.1 랜덤오차 보정

2차원 레이저스캐너의 랜덤 오차를 보정하기 위해 본 연구에서는 이동 평균화 기법(moving average)을 이용하여 오차를 최소화하였다. Fig. 2(a)는 레이저스캐너로 측정한 원본 데이터를 나타내고 있고 Fig. 2(b)는 이동 평균화한 결과를 나타내고 있다. 시간에 대한 랜덤오차를 보정 전 약 12mm에서 시간 평균값 처리 후 3~4mm 이내로 보정되었음을 알 수 있다.



(a) Raw data



(b) Moving averaging with 20 data

Fig. 2. Correction of random error using moving averaging method

2.2.2 거리오차 보정

측정 거리에 따른 오차 분석결과 거리별 직선 방정식과 오차를 갖는 것을 알 수 있으며 이를 보정하기 위해 거리별 직성방정식인 $\hat{y}=k\mu+b$의 형태의 보정함수를 개발하였다. 보정결과 $\hat{y}=0.9868\mu+145.35$의 보정함수를 도출하였고 이 보정함수를 이용하여 최대 ±2mm 이내의 오차로 저감됨을 알 수 있었다. 또한 직선의 방정식 내에서 실제값과의 오차가 발생되므로 이를 저감하기 위해 4차 다항식 함수를 이용하여 최소자승법으로 보정하였다. 보정결과 ±0.3mm 이내의 오차로 보정되는 것을 알 수 있었다. Fig. 3은 거리에 따른 오차 보정 결과를 나타내고 있다.

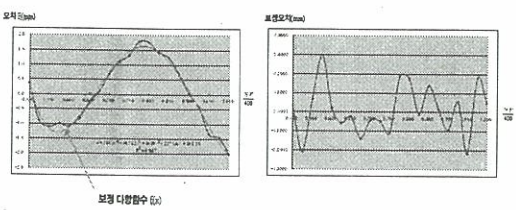


Fig. 3. Correction of measurement position error

2.2.3 각도 오차 보정

2차원 레이저스캐너는 3차원 공간상의 고정된 한 점에서 한 축 방향에 대해 ±120°의 범위까지 스캔하여 거리를 측정한다. 이때 2차원 레이저거리계가 가지는 오프셋에 의해 각도 오차가 발생한다. 이를 보정하기 위해 Fig. 4와 같은 옵셋을 고려한 거리보정함수와 높이보정함수를 이용하여 각도오차를 보정하였다. Fig. 5는 각도에 따른 오차를 나타내고 있다. 그림에서 22.5°(64 step) 이내에서는 0.2 mm 이내의 오차를 가지며, 스캔각 약 30° 범위까지는 1 mm 이내의 오차, 스캔각 45도(128 step)에서는 2 mm 정도의 오차를 가짐을 알 수 있다. 따라서 20° 이내로 스캔하면 매우 정밀한 측정값을 가짐을 수 있음을 알 수 있다.

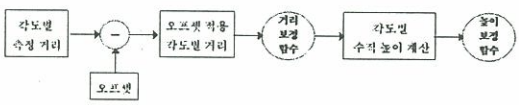


Fig. 4. Angle error correction method

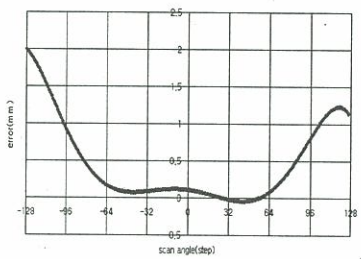


Fig. 5. Correction of angle random error

3. 결론

본 연구에서는 알파선 베타선 오염도 측정 센서를 대상물의 표면을 따라 일정 간격으로 유지하기 위한 제어 기술로 2차원 레이저스캐너를 이용하여 제어 기술을 제안하였으며, 10 mm 이상의 오차가 발생하는 레이저스캐너의 오차를 보정할 수 있는 방법 및 신호처리 기법을 개발하였다. 측정 대상 공간을 2차원 레이저스캐너로 스캔한 후에 3차원 형상정보로 생성하는 실험을 수행한 결과 오염도 측정에 적합한 3차원 형상 및 데이터를 얻을 수 있었다.

2차원 레이저스캐너는 빠른 시간에 형상정보를 생성할 수 있으며, 장애물에 의한 간섭을 사전에 파악함으로써 보다 안정적인 오염도 측정 시스템을 구현할 수 있다.

사용후핵연료 파이로프로세스 발생 공융염폐기물내 순수 공융염 회수기술에 관한 연구

이태교, 조용준*, 은희철*, 손성모*, 김인태*, 이한수*, 황택성
충남대학교, 대전광역시 유성구 대학로 79
*한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
tklee@kaeri.re.kr

1. 서론

현재 한국에서 개발되고 있는 사용후핵연료 파이로프로세스(pyroprocess) 중 전해제련공정은 LiCl-KCl 공융염내에서 전기화학적 방법을 이용하여 전해정련공정 후 잔류하는 U과 TRU 금속을 회수하며, 이 때 희토류 핵종 염화물을 함유한 공융염폐기물이 발생한다. 이 희토류 핵종은 고방열성 또는 고방사성을 띠어 공융염폐기물은 고준위폐기물로 분류되며, 이 공융염폐기물의 감량 및 안정적 처리를 위해서는 공융염내 희토류 핵종을 분리하는 것이 가장 효과적이다. 이를 위해 화학적 첨가제를 이용하여 희토류 염화물을 공융염내 불용성 화합물로 전환 및 침전시킴으로서 희토류 핵종을 공융염으로부터 분리하려는 연구가 많이 수행되었으나 공융염의 조성변화 및 불순물 증가 등의 문제점이 발생되어 폐기물 부피가 증가되는 문제점을 보였다. 이러한 문제점을 해결하기 위해 한국원자력연구원에서는 공융염폐기물내에 염화물 형태로 용해되어 있는 희토류핵종을 불순물 발생없이 공융염내 불용성 화합물로 침전시켜 상부의 순수한 공융염층과 하부의 침전층으로 분리하고, 하부의 침전층내 공융염을 감압증류를 통해 침전층내 잔류염을 분리하여 희토류 핵종 화합물만 폐기물로서 배출하는 공융염 재생공정기술에 관한 연구를 수행하고 있다.

공융염 재생공정은 희토류 핵종 침전/분리공정과 공융염 감압휘발/응축회수공정으로 구성된다. 희토류 핵종 침전/분리공정은 인산화물을 사용하여 비교적 낮은 온도에서 공융염내 희토류를 인산화물 형태로 침전시키고, 잔여의 희토류를 산소분산법을 이용하여 산화물 또는 산염화물(oxychloride) 형태로 침전시켜 침전층과 순수염층으로 분리하는 공정이고, 공융염 가압휘발/응축회수공정은 희토류 핵종 침전/분리공정에서 발생되어 희토류 핵종화합물과 공융염으로 구성된 침전층내 공융염을 감압조건에서 휘발 및 응축시켜 회수함으로서 희토류 핵종화합물을 분리하는 공정이다. 이 두 공정이 조합된 공융염 재생공정은 부산물 발생없이 재활용이 가능한 공융염을 대부분 회수할 수 있다는 것이 큰 장점이며, 또한 고준위 폐기물을 크게 감량시킬 수 있을 뿐만 아니라 최종 배출된 폐기물이 고화처리에 용이한 장점을 가지고 있다. 따라서 이 공융염 재생공정은 고준위 폐기물의 감량 및 원료물질 회수가 가능하여 사용후핵연료 파이로프로세스 친환경성과 경제성 향상에 기여할 수 있을 것으로 판단된다.

본 연구에서는 공융염 재생공정내 단위공정인 희토류 핵종 침전/분리공정과 공융염 감압휘발/응축회수공정의 연계운전을 통해 공융염폐기물내 순수염의 효과적인 분리 및 회수방안을 살펴보고자 하였다.

2. 본론

2.1 실험 및 결과

본 연구에 사용한 Lab-scale RE침전 장치는 인산화물과 산소를 주입하여 희토류핵종과 순수한 염층으로 분리하는 층분리장치와 층분리 된 고체 공융염을 분리하기 위한 분리장치, 분리된 고체공융염을 순수염층과 침전층으로 기계적으로 분리하는 장치로 구성되어 있다(Fig. 1). 실험은 LiCl-KCl 공융염 3000g, 공융염의 7%에 해당하는 희토류염화물 8가지(Y /La /Ce /Pr / Nd/ Sm/ Eu/ $GdCl_3$)를 사용하였다. 인산화물은 Li_3PO_4와 K_3PO_4를 사용하였으며 초기 희토류 양의 95%를 투입하였다. 이때 공융염 조성을 유지하기 위하여 투입한 Li_3PO_4와 K_3PO_4의 몰비를 0.583:0.417로 하였으며 이는 LiCl-KCl 공융염의 몰비와 같다. 인산화물과 희토류염화물과의 반응속도를 촉진하기 위하여 수직분산관을 이용하여 Ar(1.5 L/min×3)을 분산시켰으며 반응온도는 450℃에서 수행되었다. 이 후 잔여의 희토류 염화물을 침전시키기 위하여 온도를 700℃로 상승시킨

후 산소(1.5 L/min×3)를 수직분산관을 통하여 주입하였다. 반응시간에 따른 희토류염화물의 침전정도를 측정하기 위하여 일정시간 간격으로 석영관을 이용하여 침전반응 중 공융염을 약 9g정도 채취하였다. 채취한 염은 증류수에 용해하여 여과 후 ICP-AES를 이용하여 수용액내 존재하는 희토류 이온의 농도를 분석하였다. 반응종결 후에는 완전한 층분리가 이루어지도록 하는 것은 매우 중요하며 완전침강을 위하여 용융상태에서 충분한 침강시간이 소요되었다. 반응기내 냉각된 염은 반응용기에서 분리하기 위하여 반응기를 뒤집어 놓은 형태에서 전기히터로 좌우 및 상부에 열을 가할 수 있는 장치를 이용하여 반응용기에서 고체상태의 공융염을 용이하게 탈착시킬 수 있었고 탈착된 공융염은 기계적 절단장치를 이용하여 상부의 순수 공융염층과 하층의 희토류 침전층으로 분리하였다. 전체 공융염의 60-70%정도를 상부의 순수염층으로 1차적 회수가 이루어질 수 있었다.

희토류 침전층내 잔류 공융염을 효과적으로 분리 및 회수하기 위한 장치를 제작하였으며, 그 개략도를 Fig. 2에 나타내었다. 이 장치는 휘발된 공융염의 불필요한 침적을 최소화하기 위해 공융염의 휘발부와 응축부를 일체형의 챔버로 제작하였다. 이를 통해 장치를 효과적으로 단순화할 수 있었다. 또한 내부 압력 유지에 의한 진공펌프의 연속가동으로 발생되는 공융염의 소실을 최소화하고자 공융염의 휘발이 발생되지 않는 일정온도에서부터 닫힌계 운전이 가능하도록 설계하여 온도구배에 의해 한 곳에서만 휘발된 염이 포집될 수 있도록 하였으며, 이러한 특징으로 인해 응축부에서 회수되지 않은 공융염들이 추후 운전과정에서 다시 회수될 수 있어 휘발된 염을 거의 대부분 회수할 수 있는 장점을 보유하고 있다. 본 장치에서 희토류 침전물내 잔류 공융염의 효과적인 분리 및 회수에 대해 내부압력과 온도구배가 가장 큰 영향을 미치며, 특히 닫힌계에서 일정이하의 내부압력이 유지되기 위해서는 공융염의 휘발과 응축이 원활히 진행될 수 있도록 온도구배를 조성하는 것이 필요하다. 이를 위해 전산유체모사 프로그램을 이용하여 운전조건에 따른 챔버내 온도분포를 살펴보았으며, 그 결과를 바탕으로 희토류 침전물내 잔류 공융염의 분리 및 회수시험을 실시하였다. 그 결과, 운전온도에서 공융염의 휘발이 활발히 진행될 때 휘발부 온도의 상승이 느려지다가 일정시간 후에 급격히 상승하여 운전온도를 유지하는 현상을 보였으며, 응축부의 온도는 수십도 가량 상승하였다가 감소한 후 일정온도를 유지한 현상을 보였고 내부압력변화는 이러한 응축부의 온도변화와 유사한 경향을 보였다. 이 때 희토류 침전층(약 1kg)내 잔류 공융염은 거의 대부분 분리되어 침전물내에서 검출되지 않았으며, 휘발된 공융염은 99% 이상이 회수용기에서 하나의 덩어리 형태로 회수되었고 그 조성은 순수 공융염의 조성과 거의 일치함을 확인하였다.

3. 결론

본 연구에서는 희토류 핵종 침전/분리공정과 공융염 감압휘발/응축회수공정의 연계운전을 통해 사용후핵연료 파이로프로세스 발생 공융염폐기물 재생을 위한 순수 공융염 분리특성을 살펴보았다. 그 결과 희토류 핵종 침전/분리공정을 통해 전체 공융염의 60-70%정도를 순수염으로 분리/회수할 수 있었고, 공융염 감압휘발/응축회수공정을 통해 잔류하는 공융염을 대부분 회수할 있었으며, 이를 통해 공융염폐기물내 98% 이상의 공융염을 재생할 수 있음을 확인하였다.

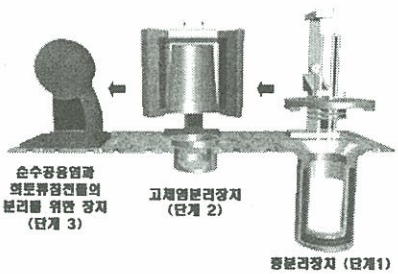


Fig. 1. Rare-earth separation apparatus

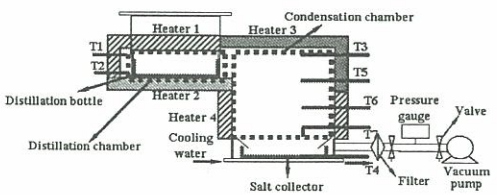


Fig. 2. A schematic diagram of the salt distillation apparatus used in this study

친수성 한외여과막을 이용한 전기여과 특성 평가

박정순, 최왕규, 이근우
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
parkjs@kaeri.re.kr

1. 서론

일반적으로 막분리(membrane separation) 기술은 수질환경에 있어 원수로부터 입자성 오염물질들 제거에 효과적이며 기존공정에 비해 소요 공간이 적고 시설확충이 용이하며, 대상물질들을 분리막의 세공 크기에 따라 용이하게 배제하여 제거 가능한 이점이 있어 용수처리 뿐만 아니라 하·폐수 처리에까지 원자력 산업을 포함한 다양한 산업분야에서 관심과 수요가 국내외적으로 급격히 증가하고 있다[1,2].

막분리 기술에서 발생되는 문제점인 막오염(fouling) 현상 및 막투과시 잔류하게 되는 입자들에 의한 농도분극(concentration polarization) 현상은 분리막의 세공과 원료 용액중에 포함된 입자의 상대적인 크기가 큰 영향을 미치게 된다. 즉, 세공크기가 큰 분리막에 경우 초기 투과유속은 높지만 투과가 진행되면서 분리막 세공과 막표면이 빠르게 오염되므로 궁극적으로는 세공크기가 작은 분리막의 투과유속이 높게 나타난다. 한외여과막(ultrafiltration membrane)은 정밀여과막(microfiltration membrane)과 같은 체거름 기능에 기초하지만 정밀여과막에 비해 더 넓은 범위까지 처리할 수 있고 보통 10,000-1000,000 정도의 유기물 처리에 쓰이며 비대칭(asymmetric)막으로 활성층과 지지층으로 이루어져 일반적인 대칭(symmetric)막보다 막표면에서 용질의 투과가 쉽게 이루어져 널리 쓰이고 있다[3].

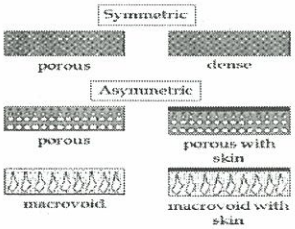


Fig. 1. Section of Symmetric and Asymmetric

그러나 이 또한 막 오염 및 농도분극 현상이 필연적으로 발생하기 때문에 이러한 현상들을 줄이기 위해서는 주기적으로 역세척(back washing)이나 세제 또는 화학약품 등으로 막표면을 세척하는 과정이 필수적이며 이를 위해서는 정상적인 조업을 일시 중단해야 하는 시간적인 손실을 감수해야 한다[4].

따라서 막오염의 제어 및 농도분극 현상을 최소화시킬 수 있는 기술이 개발되어야 하며 이에 일환으로 일반적인 막분리에 쓰이는 분리막인 소수성 막의 단점인 유기물에 의한 막오염을 보안하기 위해 소수성을 친수성으로 표면개질하여 대체하는 사례가 보고되고 있으며 투과액내에 존재하는 입자성 물질들을 전기장에 의해 표면전하에 따라 입자이동의 방향성을 변화시켜 분산과 끌림에 효과로 막오염을 억제시킬 수 있는 전기여과(electrofiltration)에 대한 막투과 효과의 증진에 대해서도 보고되고 있다[3,5,6].

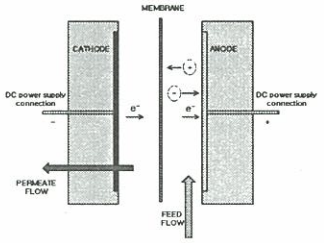


Fig. 2. Electrofiltration when an electric field is applied across a flat sheet membrane

본 연구에서는 원자력 액체 폐기물의 선택적 입자성 물질의 제거에 있어 막분리 기술에 의한 분리막 공정 도입을 위해 친수성 한외여과막과 물질전달 향상에 의한 전기여과를 접목하여 그에 따른 여과 공정 성능 및 투과 플럭스의 영향에 대해 평가하였다.

2. 실험

분리막으로는 10,000MWCO의 친수성 한외여과막인 Polyethersulfone(PES)막을 사용하여 여과 거동을 알아보았다. 분리 대상물질로는 단순히 fouling에 대한 영향을 알아보기 위해 오일함유 폐수를 처리물질로 정하여 모의 오일에멀젼을 제조하여 사용하였다. 여과 공정은 Fig. 3과 같은 형태이며 일정시간 간격으로 전자저울을 사용하여 투과량을 측정하고 나머지 투과액과 잔류액은 곧바로 처음 투과용액 탱크로 재투입하여 순환시켰다.

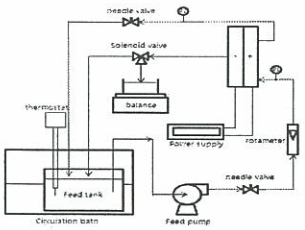


Fig. 3. Diagram of electrofiltration equipment

3. 결과 및 고찰

3.1 순수의 여과거동

모의 오일에멀전의 제조에 있어 초순수에 의한 여과거동을 알아보기 위해 초순수에 의한 막여과 형상과 모의 오일에멀젼에 의한 투과플럭스의 감소율을 비교 평가하였다. 그 결가 초순수에 대한 플럭스의 영향은 없었고 오일에멀전에 의해서 fouling이 발생함을 보였으며 초순수에 비해 약 13%까지 감소함을 나타냈다.

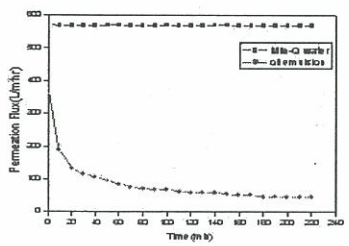


Fig. 4. The behavior of permeate flux for Mille-Q water and oil emulsion

3.2 전기장의 영향

전기장에 의한 영향을 알아보기 위해 0-120V/cm로 전기장 세기의 변화를 주어 여과시 투과플럭스에 미치는 영향을 조사하였으며 전기장 세기가 커질수록 투과율의 감소가 현저히 작아지는 것을 알 수 있었으며 이로써 막오염의 지연과 투과율의 향상으로 장시간의 운전이 가능할 것으로 보인다.

3.3 오일의 제거율

각 조건에 따른 여과성능을 알아보기 위해 투과액의 일정량을 채취하여 오일에멀전의 농도를 TOC로 측정 하였다. 전기장이 인가되지 않은 경우 96%의 제거율을 보인 반면 전기장 세기가 커질수록 제거율은 높아 졌고 최종 60-120V/cm의 세기에서는 약 99%의 제거율을 보였다. 이는 전기장의 영향에 따라 공정효율이 달라질 수 있음을 나타낸다.

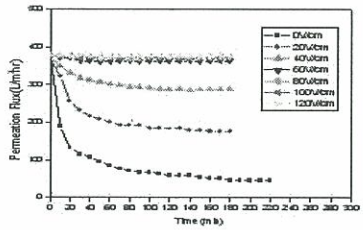


Fig. 5. The behavior of electrofiltration using PES membrane with the variation of applied external electric filed

4. 결론

기존의 막분리 방식의 문제점을 보안하는 방법 중 성능향상을 본 최적의 막 개질에 의한 친수성막을 선정하여 또 다른 방법인 전기장 인가 방식을 접목하였을시 그 효과에 대해 평가하였다. 그 결과 친수성막과 전기장을 접목하였을 시 기존의 친수성막에 의한 여과방식에 비해 투과효율 및 성능에서 크게 개선된 결과를 볼 수 있었다.

5. 참고문헌

[1] Douglas M. Ruthven, "Encyclopedia of Separation Technology", A KirkOthmer Encyclopedia, Vol. 2, pp.1399-1405.

[2] K.H. Choo and C.H. Lee, Understanding membrane fouling in terms of surfave free energy changes, J. Colliod Interf. Sci, Vol. 226, pp.367-370, (2000).

[3] I.J. Sung, "A study for permeation characteristics of the plate& frame membrane module equipped with protuberance", Seoul National University, (2009).

[4] K.S. Lee, "Application of Electric field to the control of concentration polarization in ultrafiltration and bioseparation processes", Myong-Ji University (1998).

[5] K.H. Song, K.H. Kim, S.H. Cho, K.R. Lee, J.H. Lim, S.S. Bae, "Permeation Flux of Surface-modified Hydrophilic Polysulfone Membrane", Korean Chem. Eng. Res, Vol. 42, No. 1, pp.59-64, (2004).

[6] Hanna M. Huotari, Ingmar H. Huisman, Gun Trägårdh, "Electrically enhanced crossflow membrane filtation of oily waste water using the membrane as a cathode", Journal of Membrane Science 156, pp.49-60 (1999).

희토류 침전물 함유 LiCl-KCl 공융염 재생을 위한 감압휘발/응축회수공정 개선연구

은희철, 조용준, 손성모, 이태교*, 김인태, 이한수
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
*충남대학교, 대전광역시 유성구 대학로 79
ehc2004@kaeri.re.kr

1. 서론

LiCl-KCl 공융염을 사용하는 전해제련공정은 pyroprocess의 주요 공정으로서 고준위 핵종인 희토류 염화물을 함유한 공융염 폐기물을 상당량 배출하는 문제점을 가지고 있다[1,2]. 공융염내 희토류 염화물은 고방열성과 고방사능 물질로서 고준위폐기물로 분류되며, 이러한 고준위폐기물 발생량을 최소화하기 위해서는 공융염으로부터 희토류 핵종들을 반드시 분리하여야 한다. 이를 해결하기 위해 한국원자력연구원에서는 LiCl-KCl 공융염내에서 희토류 핵종을 염내 불용성 화합물(산화물 or 산염화물 or 인산화물)로 전환 및 침전시켜 공융염에서 분리하고 전해제련공정에서 재사용이 가능한 상부의 순수염을 회수하는 공정을 개발하였으며, 이는 기존의 과잉의 침전촉진제를 주입하여 희토류 핵종을 분리하는 방법과 비교해 기술적 우수성과 환경적 측면에서 훨씬 큰 장점을 보유하고 있음을 확인하였다[1,2]. 그러나 이 공정에서 희토류 핵종 침전물을 함유한 침전층이 발생되며, 이 침전층에는 희토류 침전물외 70 wt% 이상의 공융염이 함유되어 있어 고준위 폐기물 발생량을 최소화하기 위해 반드시 공융염의 추가적인 분리가 필요하다.

공융염과 희토류 침전물간의 분리를 위한 방법으로 2차 폐기물을 발생시키지 않고 효과적으로 분리할 수 있는 감압증류법이 있으며, 공융염과 희토류 침전물과의 증기압 차는 비교적 크기 때문에 분리가 매우 효과적으로 이루어질 수 있다[3]. 따라서 감압조건에서 LiCl-KCl 공융염의 휘발 및 응축특성을 바탕으로 희토류 침전물을 함유한 공융염의 감압휘발/응축회수장치를 제작하였으며, 이 장치를 통해 공융염을 효과적으로 분리 및 회수할 수 있음을 확인하였다. 그러나 장치내 공융염의 거동분석이 진행되지 않아 고온의 휘발조건에서 장시간 운전해야 하는 단점을 보유하고 있으며, 이를 해결하기 위한 방안이 마련되어야 한다.

본 연구에서는 공융염 감압휘발/응축회수장치내 공융염의 증류현황을 파악하기 위해 장치내 온도 및 압력의 변화와 공융염의 거동과의 관계를 규명하고 적절한 운전조건을 도출하여 장치의 운전시간의 단축을 통한 공정효율을 향상 방안을 제시하고자 하였다.

2. 실험 및 결과

희토류 침전물 함유 LiCl-KCl 공융염 재생을 위한 감압휘발/응축회수장치의 개략도를 Fig. 1에 나타내었다. 이 장치는 휘발된 공융염의 불필요한 침적을 최소화하고 공융염의 이동경로를 단축시키기 위해 공융염의 휘발부와 응축부를 일체형의 챔버로 제작하였다. 이를 통해 장치를 효과적으로 단순화할 수 있었다. 또한 내부 압력 유지에 의한 진공펌프의 연속가동으로 발생되는 공융염의 소실과 공융염 증기의 불규칙한 응축거동을 방지하고자 공융염의 휘발이 발생되지 않는 일정온도에서부터 단힌계 운전이 가능하도록 하였고, 온도구배에 의해 한 곳에서만 휘발된 염이 포집될 수 있도록 하였으며, 이러한 특징으로 인해 응축부에서 회수되지 않은 공융염들이 추후 운전과정에서 다시 회수될 수 있어 휘발된 염을 거의 대부분 회수할 수 있는 장점을 보유하고 있다. 이전의 연구결과에 따르면, 공융염의 휘발은 각각의 염화물로 휘발되어 응축되기 때문에 거의 대부분이 회수되지 않는다면 회수된 염의 조성이 변화될 수 있어 재활용에 문제가 될 수 있다[4]. 그러나 본 장치에서는 내부의 냉각영역이 응축염을 회수하는 용기 바닥면에만 존재하여 휘발된 염을 한 위치에서 거의 대부분 회수할 수 있기 때문에 상기의 문제를 해결할 수 있다.

본 장치에서 희토류 침전물내 잔류 공융염의 효과적인 분리 및 회수에 대해 내부압력과 온도구배가 가장 큰 영향을 미치며, 특히 단힌계에서 일정이하의 내부압력이 유지되기 위해서는 공융

염의 휘발과 응축이 원활히 진행될 수 있도록 온도구배를 조성하는 것이 필요하다. 이전의 연구에서는 전산유체모사 프로그램을 이용하여 운전조건에 따른 챔버내 온도분포를 살펴보았으며, 그 결과를 바탕으로 희토류 침전물내 잔류 공융염의 분리 및 회수시험을 실시하여 희토류 침전물내 잔류 공융염은 거의 대부분 분리하였고 휘발된 공융염은 99% 이상이 회수용기에서 하나의 덩어리 형태로 회수되었고 그 조성은 순수 공융염의 조성과 거의 일치함을 확인하였다. 이러한 공융염의 휘발 및 응축이 장치내에서 진행될 때 장치내 온도와 압력의 변화가 관찰되었으며, 이 변화와 공융염의 거동과 관계가 있을 것으로 판단되어 blank test를 통해 장치내 온도와 압력의 변화를 비교해 보았다. 그 결과 blank test에서는 일정운전조건에서 온도와 압력의 변화가 관찰되지 않았고 거의 일정하게 유지되는 것으로 확인되었으며, 이를 통해 장치내 공융염의 휘발과 응축이 장치내 온도와 압력의 변화와 관계할 것이라 사료되었다. 이러한 관계규명을 위해 공융염 휘발 및 응축/회수를 위한 운전과정에서의 온도와 압력을 모니터링 하였으며, 휘발부의 온도변화와 장치내 압력변화가 장치내 공융염의 휘발과 응축의 현황을 파악할 수 있는 지표임을 확인하였다. 이 결과를 통해 공차운전시간을 줄임으로서 공융염 감압휘발/응축회수를 위한 설정온도에서의 운전시간을 크게 감소시킬 수 있었다. 또한 응축부의 설정온도 변화를 통해 휘발부와 응축부 사이의 온도구배를 높임으로서 공정진행속도를 증가시킬 수 있음을 확인하였다. 이상의 실험결과를 바탕으로 장치내 공융염의 휘발 및 응축거동을 도식화된 모델로 나타낼 수 있는 자료를 확보하였다.

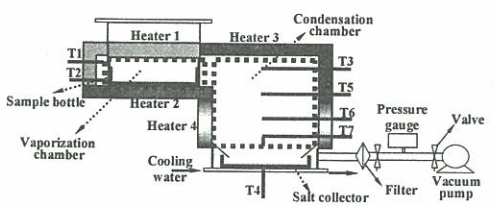


Fig. 1. A schematic diagram of the salt distillation apparatus used in this study.

3. 결론

희토류 침전물 함유 LiCl-KCl 공융염의 재생을 위한 감압휘발/응축회수장치내 공융염의 휘발 및 응축현황을 장치내 온도 및 압력변화를 통해 파악할 수 있는 방법과 응축부 설정온도 조절을 통해 운전시간을 크게 단축시킬 수 있는 개선조건을 도출하였으며, 특히 장치내 온도 및 압력에 대한 모니터링 자료는 장치 운전상황 및 문제점을 파악하는데 중요한 지표로 활용될 수 있을 것으로 판단된다.

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.

동전기 토양세척폐액 처리기술개발

김기홍, 김계남*, 손동빈*, 박혜민*, 김완석*, 이건우, 이기원*, 문제권*, 김병태
선광원자력안전(주), 대전시 대덕구 신일동 1683-1
*한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
protosavior@nate.com

1. 서론

원자력시설을 운영 및 해체하며 발생하는 오염토양의 방사성 물질을 제거하기 위한 방법으로 동전기장치를 이용할 수 있다. 동전기장치를 이용한 오염토양 제염방법은 토양 내 존재하는 U, Co, Cs 등의 방사성 물질을 효과적으로 제거할 수 있는 장점이 있다. 그러나 동전기장치는 방사성 물질을 용출하는데 많은 시간을 소요한다. 이러한 단점을 보완하기 위해 전처리 개념으로 Soil washing 방법을 사용하여 제염했다. Soil washing 방법은 비교적 짧은 시간에 오염토양에서 다량의 방사성 물질을 제거하는 것이 가능하다. 하지만 토양의 부피에 비해 수배의 Soil washing 폐액이 발생하게 되며, 이는 동전기장치에서 발생하는 폐액보다 많은 양이다. 따라서 Soil washing 폐액 감용은 동전기장치를 이용한 토양 제염의 효율증대를 위한 필수요소이다.

본 연구는 Soil washing 방법 및 Soil washing 폐액의 처리를 위한 응집제의 적정 비율에 대하여 연구하였다.

2. 본론

2.1 Soil washing 방법 및 제염 효과

동전기장치는 오염토양 내 방사성 물질을 제거하는데 효과적이다. 그러나 요염토양의 방사능 농도가 높을 경우 이를 용출하는데 많은 시간이 소요되며 이로 인한 시간 및 비용은 증가하게 되는 단점이 있다. 이러한 문제를 보완하기위해 Soil washing 방법을 사용하여 초기 방사능 농도를 낮출 수 있다.

Soil washing은 1M HNO_3을 세척액으로 이용하였으며 토양과 세척액의 1g당 2.5ml이며, 3시간 세척 후 세척액을 교환하여 다시 3시간을 세척하였다. 세척은 Stirrer를 사용하여 이루어졌으며 오염토양과 세척액은 내화학성 PVC반응기 내에 넣어서 실행하였다.

Table 1. The Method of Soil washing and Efficiency

Reagent	1M HNO_3
Mixing ratio(g:㎖)	1 : 2.5
Scrubbing time(hr)	3
Repetition(time)	2
Initial conc. (Bq/g)	42.19
Removal efficiency (Bq/g)(%)	4.09 (90.3%)
Waste water (Bg/g)	0.82
Initial weight(g)	40
Remaining weight (g)(%)	28.8(72%)

2.2 Soil washing 폐액의 침전제 선정 및 효과

본 연구의 Soil washing 방법은 질산을 희석하여 오염토양을 씻어내는 방법으로 Soil washing 후 발생하는 폐액은 방사성 물질을 포함하고 있으며 또한 토양에서 씻겨 나온 미세한 토양입자가 포함되어있다. 이러한 토양입자는 충분한 시간을 방치하거나 침전제를 넣어서 가라앉힐 수 있다. Soil washing 폐액은 산성으로 낮은 pH를 가지며 중성상태의 폐액보다 상대적으로 침전 속도가 빠르다.

그러나 질산의 화학적 특성 때문에 다양한 모재에서 부식이 발생가능성이 높아서 보관 및 이송 등 취급에 위험이 따른다. 또한 방사성 물질을 함유하고 있으므로 사고 발생 시 큰 문제를 야기할 수 있다. 이러한 위험을 줄이기 위해 낮은 pH의 폐액을 중화시키는 작업이 필요하다. 그러나 폐액을 중화하면 침전속도가 느려지는 문제가 발생하게 된다. 침전속도는 폐액을 연속으로 처리하는데 필요한 요소이며, 전체적으로 동전기장치를 이용한 오염토양 제염 공정의 처리속도를 좌우하는 중요한 요소이다.

침전속도를 높이기 위하여 침전제를 폐액에 섞는 방법을 사용하였다. 주의할 사항은 침전제가 과다하게 투입되면 폐액을 침전시킨 후 많은 양의 폐기물이 발생할 수 있으며, 응집제가 소량이 들어가면 빠르게 침전이 되지 않는 것이다. 따라

서 적절한 침전제 및 적정 혼합비율을 결정하여야 한다.

동전기 폐액은 콜로이드 상태를 유지하며, 단시간 내에 침전되지 않았으며 몇 주 후에 소량의 침전이 발생하는 특성이 있었으나, Soil washing 폐액은 폐액발생 수 시간 후에는 바로 침전이 되었다. 따라서 Soil washing 폐액은 기존의 동전기 폐액과는 다른 성상을 가짐을 알 수 있다. 동전기 폐액은 탈수과정에서 필터의 수명을 연장하거나 침전속도를 빠르게 하기위하여 입자의 크기를 증대하는 침전제를 선정하였으나, Soil washing 폐액은 침전속도를 빠르게 하는 동시에 상등수의 방사능 농도를 떨어뜨릴 수 있는 것을 선정하였다. 침전제의 종류에 따라 침전속도에 차이를 보였으며 침전속도는 $Ca(OH)_2$ + Alum + Magnetite > $Ca(OH)_2$ > NaOH의 순서로 나타났으며 최적의 침전제 비율은 다음과 같다.

Table 2. The Best Ratio of Precipitator and Efficiency

Waste water(㎖)	100
$Ca(OH)_2$(g)	1.75
Alum(g)	0.2
Magnetite(g)	0.15
Initial conc of Waste water(Bg/g)	0.82
Removal efficiency of Supernatant (Bq/g)	N/D

3. 결론

동전기장치를 이용한 오염토양의 제염효율을 높이기 위해서 Soil washing 방법을 사용할 수 있다. Soil washing 방법으로 상당량의 방사성 물질을 제거할 수 있다. 이렇게 발생한 Soil washing 폐액은 방사성 폐기물이 되므로 감용할 필요가 있다.

Soil washing 폐액은 침전속도 및 폐액 내 제염효율이 높은 침전제를 선정하였다. 그 결과 $Ca(OH)_2$가 침전속도가 빨랐으며 Alum과 Magnetite를 중첩해서 사용했을 때 폐액 내 방사능 농도를 떨어뜨리는데 효과적이었다.

4. 감사의 글

본 연구는 한국정부가 지원하는 한국과학기술재단의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] 한국방사성폐기물학회, 2010년 춘계학술대회 논문요약집, pp.65-66

[2] 한국방사성폐기물학회, 2009년 춘계학술대회 논문요약집, pp.99-100

[3] 한국폐기물자원순환학회, 한국폐기물학회지 Vol.25, No.2, pp.146-153, 2008

[4] Chemical Engineering Journal 80, pp.237-244, 2000

[5] Radiation Physics and Chemestry 73, pp.125-130, 2005

대면적 오염 핵종 제거용 poly(vinyl alcohol)/ethylhexyl acrylate latex strippable 유기소재 제조

황호상, 서범경, 이근우
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
hshwang@kaeri.re.kr

1. 서론

수명이 다한 원자력시설은 운용 중 발생하여 누적된 방사능 오염도에 대한 정확한 분석과 함께 해체를 위한 과정에서 적정한 제염이 이루어져야 한다. 따라서 원자력기술을 사용하는 국가에서는 방사능 오염도에 대한 정확한 측정과 이에 따르는 제염에 관한 기술을 꾸준하게 진행하고 있다. 방사능 오염물에 대한 제염을 위한 방법으로는 물리적 및 화학적인 방법을 포함한 다양한 방법들이 이용되고 있다. 이중에 장비나 설비의 표면에 붙어있는 오염물 위에 코팅한 후 경화시켜 오염물과 함께 박리될 수 있는 고분자 박리성 (strippable) 고분자 코팅제를 이용하는 방법이 있다.

이와 같이 원자력 설비나 장비에 부착된 방사능 오염물에 코팅된 후 오염물과 함께 오염지역으로부터 박리되어 오염물의 제거에 이용될 수 있는 박리용 고분자 코팅제의 제조에 대한 연구는 전 세계적으로 새롭게 대두되고 있는 원자력 에너지에 대한 관심과 이에 파생하여 필수적으로 요구되는 방사능 오염물 제거에 대한 관심에 부응할 수 있는 제염 기술의 발전을 위해 필수적이라 할 수 있다.

본 연구에서는 poly(vinyl alcohol) (PVA)와 ethyhexyl acrylate 라텍스 혼합 고분자를 이용하여 표면 오염물 제거에 관한 연구를 하였다. PVA는 수용성 polyhydroxy 고분자로 제조 용이함과 뛰어난 물리, 화학적 특성으로 인해 많이 적용되는 고분자이다 [1]. 선택된 기저 수용성 고분자와 콜로이드 에멀젼 라텍스를 혼합하여 새로운 박리성 코팅제를 제조하고 이를 이용하여 방사능 오염 표면에서의 박리성 및 제염계수를 평가하였다.

2. 본론

2.1 재료

실험에 사용된 모든 물은 초순수 제조 장치를 이용하여 제조하여 사용하였다. Poly(vinyl alcohol, PVA, 99+% hydrolyzed, average Mw 89,000-98,000, Aldrich Co.) and ethylhexyl acrylate latex (MJ-64, Hansol Chem.)를 전처리 없이 사용하였다.

2.2 소재 제조

반응용기에 탈이온수를 넣고 질소 가스로 30분간 퍼징하여 반응기내의 용존산소를 완전히 제거한 다. 90℃에서 PVA를 3h 이상 교반시켜 완전히 녹이고 상온으로 냉각시킨 후 MJ-64를 주입하고 추가 3h 교반하여 PVA/MJ-64 strippable 고분자를 제조하였다. 소재의 성분과 반응조건은 Table 1과 같다.

Table 1. Ingredients and conditions for the PVA/ethylhexyl acrylate polymer

	PVA	PVA/MJ-64
PVA (wt%)	10	
Ethylhexyl acrylate latex (wt%)	10-15	2.5-3.75
Reaction Temp. (℃)	90	25
Stirring speed (rpm)	300	300

2.3 특성 분석

고분자의 필름 샘플은 상온에서 24 h 충분히 건조시켰다. 수분의 영향을 많이 받는 소재성분이므로 측정 전 샘플은 50℃의 vacuum oven에서 1주일 동안 완전 건조시켰다. 고분자의 화학적 조성은 Fourier transform infrared (FT-IR) spectrometer (Nicolet, Magna IR550)을 이용하여 결정하였으며 KBr 펠렛 방법으로 4000-400 cm^{-1} 범위에서 측정하였다. 고분자의 열적 특성은 Differential scanning calorimeter (DSC)를 이용하여 T_g를 측정하였다.

2.4 Decontamination Factor (DF)

표면 오염물 제거를 위한 박리성 고분자의 DF는 다음과 같이 수행하였다. 직경 5cm의 다양한 디스크 (stainless steel, aluminium, glass, concrete, painted concrete)에 Sr-90으로 오염시켰다. Strippable 고분자를 코팅시키기 전에 오염된 각 디스크는 Low Background Counting System을 이용하여 초기 농도를 분석하였다. 고분자를 코팅하여 24h 동안 완전히 건조시키고 디스크 위의 경화된 고분자 필름을 제거한 후 다시 Low Background Counting System를 이용하여 농도를 분석하였다. DF는 식 1을 이용하여 계산하였다. 여기에서, β_1은 오염물 제거 전 β 농도이고 β_2는 오염물 제거 후의 β 농도이다.

$$Decontamination\ Factors = \beta_1/\beta_2 \quad \cdots\cdots (1)$$

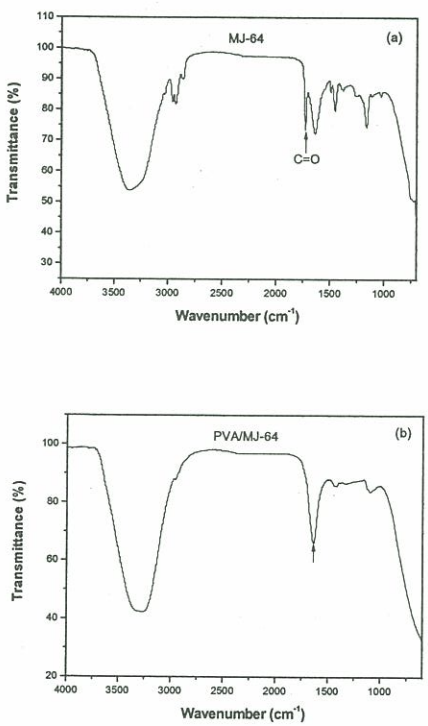


Fig. 1. FT-IR spectra of MJ-64 and PVA/MJ-64

2.5 결과 및 토의

기저 고분자 물질 및 첨가 에멀젼의 분자 구조를 확인하고 제조된 코팅제의 구조를 확인하기 위하여 FT-IR 분석을 시행하였다. 첨가제로서의 점착성의 증대와 함께 도포막의 안정성을 증대시킬 수 있는 ethylhexyl acrylate 라텍스의 경우 Fig. 1(a)에서 보이는 바와 같이 carbonyl group (C=O)을 나타내는 1726 cm^{-1}에서 강력한 피크를 보여준다. Rao와 Lal [2]에 따르면 이 영역에서의 carbonyl group은 strontium 이온이나 cobalt 이온과 같은 2가 이온과 반응하여 피착제로부터 오염물을 제거하는데 기여할 수 있는 것으로 보고되어 있다. PVA 용액과 ethylhexyl acrylate 에멀젼을 혼합하여 제조된 코팅제의 경우 (Fig. 1(b)) ethylhexyl acrylate의 carbonyl group을 나타내는 1725 cm^{-1} 에서의 뚜렷한 피크가 나타남을 보여준다.

3. 결론

PVA을 박리성 코팅제의 기저 물질로 선택하고 이에 ethylhexyl acrylate 계열의 에멀젼을 첨가하여 조성된 새로운 박리성 코팅제는 기존의 상용화된 박리성 코팅제와 차별화된 고유한 조성으로 개발되었다. PVA을 기저 담체로 하는 것은 다른 박리성 코팅제와 구별되지 않지만 첨가 콜로이드 에멀젼으로서 ethylhexyl acrylate 계열의 에멀젼을 첨가함으로써 기존 박리성 코팅제보다 인열 점착성을 증대시키고 습윤 안정성을 개선할 수 있었다. PVA의 특성을 보존하면서 보완 수지로서 ethylhexyl acrylate 에멀젼을 사용하였을 때 PVA의 기본 특성을 유지하면서 박리 과정에서 인열성과 같은 기계적 물성을 보완할 수 있다. 따라서 ethylhexyl acrylate 에멀젼 함량을 적절히 조절하여 피착면에서의 점착성 및 습윤 안정성을 증대시켜 방사성 오염물 제거에 적합한 코팅제로 사용될 수 있을 것으로 사료된다.

4. 참고문헌

[1] S. J. Kim, C. K. Lee and S. I. Kim, Journal of Apply Polymer Science, 92, 1467 (2004)

[2] S. V. S. Rao, K. B. Lal, Surface decontamination studies using polyvinyl acetate based strippable polymer, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 260, No. 1 (2001) 35-42

슬래그폐기물 안정화처리를 위한 슬래그 특성 연구

최휘경, 황두성, 최윤동, 이규일, 문제권
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
hwi82@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력 시설에서 발생하는 방사성 금속폐기물의 처리방법 중 용융처리는 제염 효율, 폐기물 감용 및 오염 핵종의 균질화에 효과적인 처리방법으로 사용되고 있다. 금속폐기물의 용융처리 시 ingot와 이차 폐기물로서 슬래그폐기물이 생성된다. ingot는 방사성폐기물로 처분하거나 제염 가능 시에는 자체처분폐기물로 전환하고, 이차폐기물인 슬래그폐기물은 쉽게 부서지는 슬래그 특성상 안정화 및 고형화 처리하여 처분해야만 한다[1].

본 연구에서는 한국원자력연구원 내의 우라늄변환시설 해체 시 발생한 금속폐기물을 용융제염하고 발생한 슬래그폐기물을 안정화 처리하기 위하여 슬래그폐기물의 특성을 조사하였다.

2. 본론

유리고화체는 적당한 유리조성 물질과 방사성폐기물의 융합에 의해 형성된 고화체로 유리고화 시 폐기물은 유리에 의해 포획될 뿐만 아니라 폐기물 원자가 유리조성원자와 결합되기도 한다.

방사성 금속폐기물의 용융 후 발생된 슬래그폐기물에는 산화물과 규화물 혹은 염 등으로 구성되어 있으며, 대부분의 경우 슬래그가 유리화 응고를 하도록 하는 SiO_2의 성분이 다량 함유되어 있기 때문에[3] 다른 첨가제 없이 슬래그폐기물만으로 고화체를 제조 할 수 있다고 본다.

슬래그형성제는 금속용융 공정에서 불순물 성분의 분리를 돕기 위해 첨가되는 물질로 금속 용융체의 산화를 방지하는 역할을 수행하며 열의 발산을 감소시킨다[4].

우라늄변환시설 발생 금속폐기물의 용융제염 시 사용된 슬래그형성제는 2.38-1.14mm의 연황색 입상이며 표. 1과 같이 슬래그형성제의 화학적 성분은 유리고화체 제조에 필요한 SiO_2와 Al_2O_3 주성분이다. 그림 1은 슬래그 형성제의 TG/DTA 분석결과를 나타낸 것이다. 슬래그형성제는 약 4% 정도의 무게감량이 일어났으며 1200℃가 넘어가면서 흡열반응을 나타내어 이 온도 이상에서 녹기 시작하는 것으로 추정된다.

Table 1. Chemical composition of slag former

항목	기준치(wt%)	분석치(wt%)
SiO_2	72-75	73.5
Al_2O_3	15-18	14.3
Fe_2O_3	1-2	1.51
CaO	1-2	1.45
MgO	0.2-0.3	0.20
K_2O	1-2	1.5
Na_2O	1-2	1.5

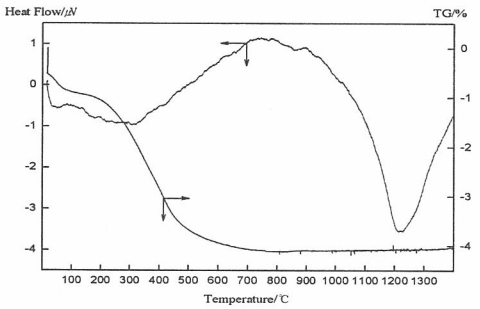


Fig. 1. TG/DTA of slag former

우라늄변환시설 발생 금속폐기물 처리 시 생성된 슬래그폐기물의 오염핵종은 우라늄이며, 방사능농도는 약 24Bq/g이다. 그리고 슬래그폐기물에는 다량의 금속폐기물 불순물들이 포함되어 있다. 그림 2는 슬래그폐기물의 TG/DTA 분석결과로 %무게가 증가하여 오히려 슬래그 내 함유된 특정물질이 산화되었음을 보여 주고 있다. 그리고 반응은 복잡한 양태를 보여주고 있어 슬래그폐기물의 녹는점을 추측하기가 어려움을 알 수 있다. 이는 슬래그폐기물에는 금속의 부식성분 등 다량의 불순물이 많이 포함되어서 특정결과를 얻을 수 없었던 걸로 추정된다.

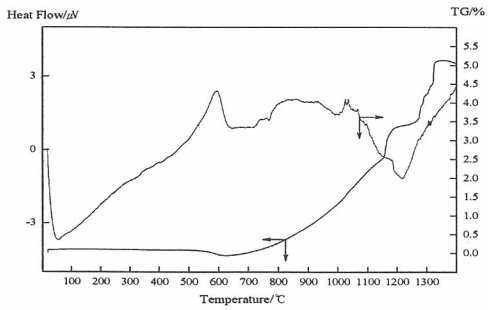
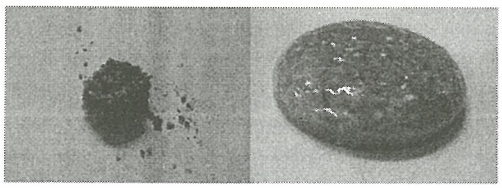


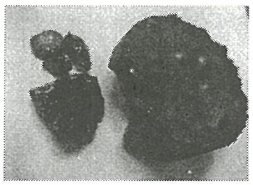
Fig. 2. TG/DTA of slag waste

슬래그의 유리고화체를 제조하기 위하여 흑연도가니를 사용하여 슬래그형성제를 1200℃, 1300℃에서 1시간동안 용융하였다.

슬래그형성제를 1200℃에서 1시간 용융시킨 결과 슬래그 알갱이가 그대로 붙어만 있는 상태로 소량 녹기는 하였지만 그림 3(a)와 같이 유리고화체가 되지 못하고 쉽게 부스러지는 것을 확인 할 수 있었다. 1300℃에서 1시간 용융 시킨 결과 그림 3(b)와 같이 유리고화체가 생성된 것을 확인할 수 있었다. 우라늄 함유 슬래그폐기물을 1300℃에서 1시간 용융시킨 결과 그림 3의 (c)와 같이 유리고화체가 생성되었다.



(a) (b)



(c)

Fig. 3. The melting samples of slag former and slag waste (a) slag former (1200℃), (b) slag former (1300℃), (c) slag waste (1300℃)

그림 4는 생성된 슬래그형성제 및 슬래그폐기물 유리고화체의 SEM사진을 나타낸 것으로, 유리고화체의 특성상 무정형으로 나타났음을 확인할 수 있다. 그러나 슬래그폐기물의 경우 형성제와 비교하여 이물질들이 함유되어 있으며, 이는 슬래그폐기물내 다량 함유된 불순물임을 알 수 있다.

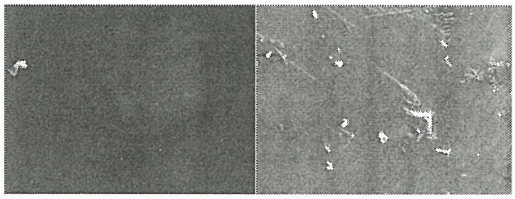


Fig. 4. SEM photograph of slag waste (X1000)

3. 결론

우라늄변환시설 발생 금속폐기물의 용융제염 후 발생한 슬래그폐기물의 안정화 처리를 위하여 슬래그폐기물의 유리고화체의 제조 특성을 조사하였다. 슬래그폐기물은 1300℃에서 1시간 용융시킨 결과 유리고화체로 생성되었다. 향후, 슬래그폐기물 유리고화체의 특성평가를 수행할 예정이다.

4. 참고문헌

[1] 방사성 금속 폐기물이 용융처리 기술 및 방사성 핵종의 분배 특성, 한국폐기물학회, vol. 22, p.213-225, 2005

[2] 변환시설 발생 해체금속 폐기물의 용융제염 처리, 한국방사성폐기물학회, p.63-64, 2009

[3] 방사성 금속폐기물의 용융 및 재활용 기술 현황, 한국원자력연구원 보고서, 2004

[4] 유리고화 설비를 위한 방사성 고화체 분석, 한국중공업주식회사 보고서, p.133, 1999

[5] 방사성폐기물 유리고화 설비 시험평가, 한국중공업주식회사 보고서, 1999

[6] 슬래그의 조성 및 염기도에 따른 방사성 핵종의 분포 특성, 한국폐기물학회, p.282-285, 2005

칼슘필터를 이용한 혼합 핵종의 포집특성

신진명, 박장진, 이재원, 나상호, 박근일
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
jjpark@kaeri.re.kr

1. 서론

최근 pyroprocess 공정의 전처리공정으로서 기존 저온 공정을 개선한 고도 휘발성 산화 공정 개발 연구가 활발히 수행되고 있다. 고도 휘발성 산화 공정 도입시 파이로 공정에 영향을 줄 수 있는 핵분열 생성물을 사전에 효율적으로 제거할 수 있는 장점이 있다. 고도 휘발성 산화 공정에서는 기존 휘발성 산화공정 채택 시 제거가 안 되는 Cs, Tc, Ru, Tc, Mo, Te, Se, Sb 등과 같은 준휘발성 핵분열 생성물이 배기체로 방출된다[1]. 휘발성 산화공정 중 휘발되는 핵종 중의 하나인 테크네튬(Tc^{99})은 반감기가 약 210,000인 장수명 핵종이고 Mo은 방사능은 없으나 발생량이 매우 큰 핵종이다. 또한 Te은 pyroproces 전해환원 공정의 전극 방해 핵종이고 Sb은 공기 중 산화하여 Sb_2O_4, Sb_2O_5, Sb_2O_6로 존재하며 고온 공정 중에 휘발이 예상되는 핵종이다.

최근에 Ca-based 필터를 이용하여 이들 핵종들을 동시에 안전하게 화학흡착 하는 처리기술이 연구되고 있다. 향후 고도 휘발성 산화공정의 배기체 처리에 칼슘 필터를 적용하기 위해서는 다핵종으로 포집된 이들의 포집거동을 이해하는 것이 필요하다. 따라서 본 연구에서는 실제 배기체 처리장치 운전시 칼슘필터에 포집된 다핵종의 포집특성을 고찰하기 위해서 다핵종이 포집된 칼슘필터의 첫단부터 저농도인 필터 끝단까지의 시료를 실험 대상으로 하였다. 이들의 고온 포집특성을 분석을 수행하기 위해 XRD, SEM-EDX, ICP-AES를 사용하여 미세구조의 변화 및 농도변화를 측정하였다.

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 bactch 기준은 200 gHM 이었다. Fig. 1에 본 실험에 사용된 배기체 처리장치 시스템을 제시하였다. 사용후핵연료 200 gHM에 존재하는 Mo, Re, Sb, Te의 양을 기준으로 Table 1에 제시된 시약을 기체상 혼합 핵종의 공급원으로 실험에 사용하였다. 이들 시약을 잘 혼합한 후 alumina crucible(50 ml) 내에 이들 시약을 넣은 후 voloxidizer 내부에 이를 장입하였다. Tc는 인공방사성 원소이기 때문에 surrogate로서 화학적 특성이 비슷한 Re(Aldrich Co. 99.9%)을 기체상 Tc의 공급원으로서 사용하였다.

포집실험은 승온 1시간 후에 칼슘필터(18mm (O.D) X 10mm(H)) 10단을 장착한 포집 zone이 800℃에 도달되도록 한 후 6.5시간 유지시켰다. 한편 포집 zone이 800℃에 도달한 것을 확인하고, voloxidizer의 온도를 1.5시간 동안 1200℃에 도달하도록 한 후 5시간 유지시켰다. 이때 Voloxidizer의 온도가 500℃로 상승하면 동시에 vacuum 펌프를 가동하여 7.6 torr의 진공을 유지하여 포집실험을 수행하였다. 포집실험 종료 후 혼합시약의 휘발율은 약 99.3%이었다. Fig. 2에 7.6 torr하 혼합 시약으로부터 발생된 기체상 Mo, Re, Sb, Te 포집 후 칼슘필터의 모습을 나타내었다. 그림에 나타난 것처럼 칼슘 필터 1~2단에 걸쳐 필터 표면의 색이 검회색으로 나타났고 뒷단으로 갈수록 색이 엷어졌다. Fig. 3은 혼합핵종 포집 후 칼슘필터의 무게 변화량을 나타낸 것으로 필터의 무게증가는 1단부터 4단 까지 나타났고 포집효율이 99% 이상이었다. 또한 혼합핵종의 대부분이 3단 내에 포집되었다. 포집 후 칼슘 필터의 결정구조 및 미세 구조변화를 분석하기 위해서 필터 1단을 XRD로 분석한 결과 몰리브데늄은 $Ca(MoO_4)$, 안티몬은 $MgSb_2O_6$, 텔레륨은 $CaTe_2O_5$형태로 포집되었음을 확인하였다. 혼합핵종 포집 후 칼슘 필터 1단부터 10단까지의 Mo, Re, Sb, Te 농도를 ICP-AES로 분석한 결과 Mo은 5단, Re은 2단, Sb은 7단, Te은 5단까지 포집되었다. 따라서 칼슘필터를 이용하여 7.6 torr의 진공하에서 Mo, Re, Sb, Te을 칼슘필터 7단내에서 동시에 포집 가능함을 확인할 수 있었다.

3. 결론

7.6 torr의 진공하 고온 휘발성산화공정에서 발생되는 Mo, Re, Sb, Te의 동시 포집을 위해 칼슘필터를 제조하여 이들의 포집특성 연구를 수행하였다. 그 결과 칼슘필터 7단 내에 기체상으로 발생되는 Mo, Re, Sb, Te 이 동시에 99%이상 포집되었다. 따라서 현재 고도 휘발성 산화공정으로부터 휘발되는 Mo, Re, Sb, Te을 동시에 포집하는 방법으로 칼슘필터의 적용가능성을 확인하였다. 향후 분위가스별 필터에 포집된 핵종의 상변화, 핵종별 포집된 필터의 열적 안정성, 그밖에 다양한 조건하에서 칼슘필터의 포집특성에 대한 연구개발이 요구된다.

4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

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)

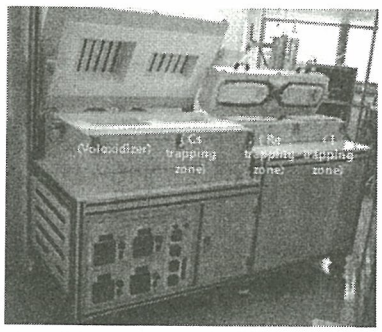


Fig. 1. Off-gas trapping system

Table 1. Source material

Reagents	Weight, g
MoO_3	1.362
Re	0.206
Sb_2O_3	0.642
TeO_2	0.16

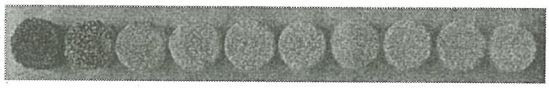


Fig. 2. Photograph of Ca-based filters after trapping Mo, Re, Sb, and Te

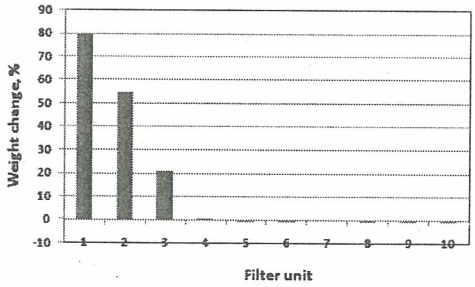


Fig. 3. Weight measurements of filter sampled for the test

우라늄잔류물질저장시설 관리를 위한 전산체계개발

황두성, 최윤동, 이규일, 문제권
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 우라늄잔류물질 저장시설을 운영 중에 있다. 우라늄잔류물질 저장시설은 지상 1층 연면적 $172m^2$(17x12m) UF_6 실린더 전용저장고와 연면적 $174m^2$의 지상 1층 및 지하 1층 저장고로 구성되어 있다. 저장시설에 저장 중인 불용핵물질은 감손우라늄(DU)과 천연우라늄(NU) 물질이며, 본 연구에서는 이들을 효율적이고 체계적으로 관리하기 위하여 UNS (Ubiquitous Sensor Network) 기반의 전산 체계를 개발하고자 한다.

2. 본론

저장시설에 저장 중인 불용핵물질의 저장량은 우라늄 기준으로 NU 4,493 kg, DU 157,148 kg 이며, 세부 사항은 표 1과 같다.

바코드 및 RFID 등을 통한 기존의 관리 시스템은 많이 개발되었으나, 그 기술적 한계로 인하여 위치확인, 도난, 훼손 등의 실태 파악은 많은 시간과 경비가 소요되는 실정이다. 따라서 본 연구에서는 불용핵물질의 효율적이고 체계적인 관리 및 도난 방지 등을 위한 USN 기술을 도입하고자 하였다. 한국원자력연구원 내 기구축된 USN형 화재 예방 시스템(KAERI-uFIPI)의 기본 인프라를 활용하여 불용핵물질의 위치 추적 및 재고관리로 장비의 활용도를 높이고 재고 관리의 효율화를 꾀하고자 하였다.

Table 1. Uranium residual materials stored in the facility

저장 장소	저장량 (U wt.)	저장 내용
UF_6 전용 저장고	125 ton	• 48Y type 실린더 17개
1층 저장고	4570 kg	• 라군슬러지 처리 후 폐기물 125드럼 • 공정설비 잔류 불용핵물질 (AUC 6드럼, 코퍼라이트폐기물 3드럼)
지하 저장고	980 kg	• 공정설비 잔류 불용핵물질 (U_3O_8) 6드럼
	9,386 kg	• UF_4 분말 28드럼
	2,162 kg	• U_3O_8 분말 14드럼, UO_2 skull 1드럼 • UF_4 슬러지, 금속폐기물 20드럼
	11,362 kg	• D-UO_2분말 44드럼, • D-UO_2집합체 2개 • UO_2분말 13드럼, • UO_2집합체 3개
	12,727 kg	• 우라늄금속, 우라늄차폐체 등 65 박스
	6 kg	• U Alloy rod, Souvenir, bundle 등 10개

소프트웨어 부문에서는 우라늄 잔류물질 관리를 위한 재고, 입고, 출고 등이 가능한 웹프로그램 개발하고 불용핵물질의 위치 추적 및 재고 관리를 위하여 기 개발 및 구축된 KAERI-uFIPI 서버 프로그램 및 클라이언트 프로그램을 도난, 움직임 등을 실시간 모니터링 할 수 있도록 업그레이드하고자 한다. 하드웨어 부문에서는 이동형 센서 노드를 불용핵물질의 보관 용기함에 부착하여 움직임이나 위치 정보 등을 고정형 센서 노드에 전달한다. KAERI-uFIPI 1, 2차 구축사업에 설치된 고정형 센서노드는 펌웨어 업그레이드를 수행한다. 또한 KAERI-uFIPI 1, 2차 구축사업에 설치된 게이트웨이 및 게이트웨이 마스터의 펌웨어 업그레이드하고 기구축된 KAERI-uFIPI 서버 활용하여 전산체계를 구축한다.

전산체계의 시스템 구성과 서비스 개념은 그림 1 및 2와 같다. 불용핵물질 보관용기에 이동형 센

서 노드를 부착하여 용기의 상태나 위치, 재고 현황 등을 연속적, 지속적으로 감시한다. 보관시설 내부에 기 설치된 고정형 센서노드의 고유기능인 화재 감지 기능 외 이동형 센서 노드에서 발생하는 다양한 정보들을 센서 네트워크를 통해 서버에 전달한다. 기본 통신 인프라는 KAERI-uFIPI (고정형 센서노드, 게이트웨이, 게이트웨이 마스터, 모니터링 PC 등) 시스템을 활용한다.

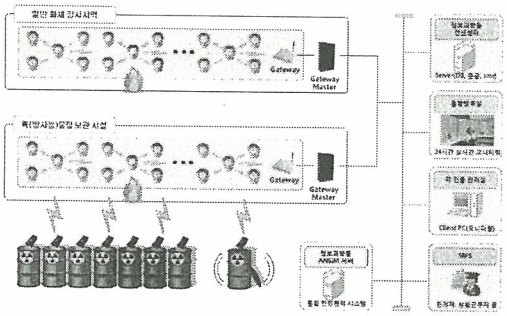


Fig. 1. System organization

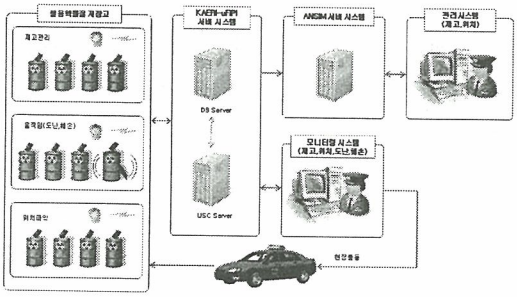


Fig. 2. Service concept

불용핵물질 저장 관리는 불용핵물질 용기에 부착된 이동형 센서노드를 통해 주기적으로 재고관리하고 재고 현황을 확인할 수 있는 리포트 문서 자동 생성한다. 불용핵물질 용기의 훼손, 이동, 분리 등 상황이 발생할 경우, 이동형 센서노드가 반응하여 실시간 응급 메시지가 발생하고, 응급 메시지 발생시 관리자 또는 관계자 즉시 현장 방문 및 확인할 수 있도록 한다. 또한 불용핵물질이 담겨져 있는 용기의 위치를 단위 공간 단위로 위치를 추적하고 관리한다.

3. 결론

한국원자력연구원 내 사용이 종료된 각종 불용핵물질의 대부분은 현재 통합 저장시설인 우라늄 잔류물질저장시설에 안전하게 저장 중에 있으며, 불용핵물질의 효율적이고 체계적인 관리 및 도난 방지 등을 위한 전산체계를 개발 중에 있다. 연구원에 구축된 USN 기반 화재예방시스템 (KAERI- uFIPI)의 인프라를 활용하여 실시간 위치추적시스템 적용하고 기본 통신 인프라는 KAERI-uFIPI(고정형 센서노드, 게이트웨이, 게이트웨이 마스터, 모니터링 PC 등) 시스템을 활용할 것이다. 본 시스템은 연구원 내 물리적방호 시스템, 핵물질 및 RI 관리, 출입통제 시스템 등에도 효율적으로 관리 가능하여, 향후 이에 대한 적용성 평가를 수행할 예정이다.

수조콘크리트의 방사화재고량 평가에 관한 연구

홍상범, 조동건, 정경환, 이기원, 문제권
한국원자력연구원, 대전 유성구 대덕대로 1045
sbhong@kaeri.re.kr

1. 서론

수명을 다한 원자력시설의 해체를 위해 시설 내 방사성핵종에 대한 재고량 평가는 매우 중요하다. 재고량 평가는 해체계획의 수립 및 해체방법의 결정, 해체작업 종사자의 피폭선량 예측, 제염기술 선정, 방사성폐기물의 관리, 환경영향 평가 및 잔류방사능 조사를 위한 기본 자료로 활용된다.

본 논문에서는 연구로 2호기 수조콘크리트 내에 존재하는 핵종 재고량을 평가를 통해 수조콘크리트의 불순물의 양을 예측하고, 외국의 사례와 비교하였다. 수조콘크리트의 방사성물질을 콘크리트의 구성성분 중 극미량으로 존재하는 불순물과 중성자의 상호작용으로 생성되며, 그 양에 따라 생성되는 방사성물질의 양에 매우 큰 영향을 준다. 그러나 콘크리트 내의 이러한 불순물의 양은 매우 미량으로 화학분석이 용이하지 않다. 재고량 평가를 위해 실험을 통해 측정된 결과와 전산코드 이용한 결과를 비교하여 연구로 수조콘크리트 내의 불순물의 양을 도출하고, 외국의 사례와 비교하였다. 이러한 결과는 향후 방사화 콘크리트의 재고량 평가의 기초자료로 활용할 수 있을 것으로 기대된다.

2. 본론

2.1 시료채취 및 측정

연구로 2호기 수조 콘크리트는 다양한 중성자 실험을 위해 중성자유도관(Beamport) 및 흑연블럭이 채워져 있는 Thermal Column이 관통하는 구조로 되어있다. 수조 콘크리트의 재고량 평가를 위해 가장 방사화가 많이 진행된 것으로 판단되는 Thermal Column 주변에서 깊이별로 시료를 채취하였다. 측정 결과 감마선 방출핵종은 ^{60}Co, ^{152}Eu가 주로 검출되었고, 원자로심과 가까운 부분에서 채취된 시료(표면에서 10 ㎝ 깊이)는 상대적으로 방사능 준위가 높고, ^{134}Cs 및 ^{154}Eu가 검출되었다. 깊이별 방사능 분포는 깊이에 따라 지수적으로 감소하는 형태를 보여주었다. ^{3}H의 경우 최대 1690 Bq/g이 검출되었으며, ^{14}C의 경우 매우 미량이 검출되었다. ^{55}Fe의 경우도 최대 1298 Bq/g까지 검출되었다[1].

2.2 방사화재고량 계산

연구로 2호기 원자로 수조콘크리트의 방사화 재고량 평가를 위해서 MCNP/ORIGEN을 조합한 방법을 이용하였다. 차폐 콘크리트의 방사화 재고량에 중요한 기여를 하는 핵종은 방사선측정을 통해 확인된 핵종을 대상으로 선정하였고, 그 이외에 콘크리트의 주요성분인 Ca의 방사화로 인해 생성되는 ^{41}Ca, ^{45}Ca를 추가적으로 고려하였다. MCNP 코드를 이용하여 노심 외곽 구조물의 중성자속 분포 및 반응 단면적을 계산하고 여기서 얻어진 반응 단면적을 ORIGEN에 적용하여 조사에 따른 핵종별 방사능 재고량을 평가하였다.

중성자속 및 반응단면적 계산을 위해 시료를 채취하여 분석한 지점과 동일한 위치에서 수조콘크리트 내부 표면에서 1m 깊이까지 10개의 구역으로 나누어 계산하였다. 계산결과 내부 표면에서 10㎝깊이에서 평균 중성자속은 7.85×10^{9} #/㎠ sec이고, 상대오차는 약 5%정도로 나타났으며, 중성자속은 깊이에 따라 지수적(exponential)으로 감소하는 형태를 보여주었다. 위의 결과를 이용하여 ORIGEN 전산코드를 이용하여 핵종별 방사능 분포를 계산하고, 콘크리트의 구성성분의 변화에 따른 영향을 도출하였다.

연구로 수조콘크리트의 화학분석을 통해 불순물의 양을 도출하고자 하였으나, 주요 성분인 Si, Ca, Fe 등 함량이 높은 원소만 화학분석을 통해 검출되고 극미량으로 존재하는 Co, Eu, Cs 등은 검출되지 않았다. 콘크리트의 구성성분은 지역마다 크게 상이함을 고려하여, 시료의 방사능분석을 통해 얻어진 결과를 바탕으로 연구로 수조 콘크리트 내에 존재한 불순물의 양을 계산하였다. 계산된 결과(Calculated values)는 NUREG/CR-3474에서 제시된 결과(Suggested values)와 비교하여 Fig 2에 제시하였다[2].

제시된 결과는 미국의 원전의 평균값으로 Li, N 원소는 매우 극미량으로 대부분의 원전에서 제시되지 않고 있다. 평가결과 수조 콘크리트의 주요 성분인 Al, Si, Ca 등은 유사한 결과를 보여주고 있으나 Fe, Co, Eu, Cs 등의 불순물의 함량은 상당한 차이를 보여주고 있어, 콘크리트 내의 불순물의 양은 분석도 용이하지 않고 지역마다 큰 차이를 보여줌을 확인하였다.

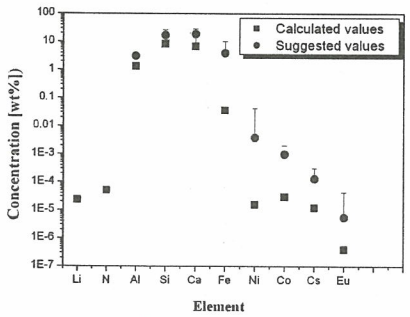


Fig. 1. The comparison results of elemental contentation in the bioshield concrete.

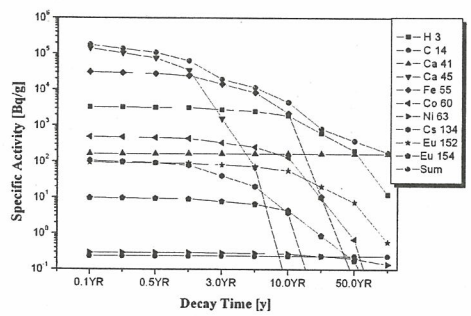


Fig. 2. The isotropic activity versus decay time at 10 cm depth and 12 years of irradiation time.

연구로 2호기 수조 콘크리트의 주요 성분 및 불순물의 양에 대한 계산결과를 이용하여 냉각기간(Cooling time)에 따른 핵종별 재고량의 변화를 살펴보았다. 연구로의 경우 상용 원전과 달리 운전시간이 일정하지 않은 특징이 있다. 연구로 2호기의 경우 운전종료 후 약 12년 후 해체가 시작되었다. Fig. 2에서 보듯이 대부분의 핵종은 생성량이 매우 적거나, 붕괴(Decay)되어 준위가 매우 낮은 반면 ^{55}Fe, ^{14}C, ^{60}Co 및 ^{152}Eu는 여전히 상당량 존재하는 것으로 확인되었다. 특히 콘크리트의 주요 구성성분인 Ca의 방사화로 인해 생성되는 ^{41}Ca은 장반감기 핵종으로 폐기물관리 및 처분 관점에서 주요하게 고려되어야 할 핵종임을 알 수 있다.

3. 결론

본 논문에서는 연구로 2호기 수조콘크리트 내에 존재하는 핵종 재고량을 측정 및 계산의 방법을 통해 평가하였고, 수조 콘크리트의 구성성분에 따른 영향을 외국의 사례와 비교하여 평가한 결과 주요성분은 유사한 결과를 보여주고 있으나, 불순물의 경우 상대적으로 매우 적은 양을 포함하고 있다. 냉각기간의 경우 재고량 평가에 있어서 매우 중요한 인자로 연구로 2호기 해체시점을 고려하여 ^{3}H, ^{55}Fe, ^{60}Co, ^{152}Eu는 여전히 상당량이 존재하고 있으며, 특히 41Ca의 경우 장반기감 핵종으로 폐기물 관리 및 처분을 위해 특별히 고려되어야 한다.

연구로 2호기 수조콘크리트를 대상으로 방사화에 따른 핵종 재고량을 실험 및 계산을 통해 비교분석 하였다. 이 결과는 향후 연구로 및 원전 해체를 위한 재고량 평가에 기술적인 자료로 활용 될 수 있을 것으로 기대된다.

4. 참고문헌

[1] 홍상범, 김희령, 정근호, 강문자, 정경환, 정운수, 박진호, "연구로 2호기 수조 콘크리트 3H 및 14C의 공간분포," 방사성폐기물학회지, 4(4), pp. 329-334 2006.

[2] J. C. Evans, E. L. Lepel, R. et al., "Long-Lived Activation Products in Reactor Materials," Pacific Northwest Laboratory, NUREG/CR-3474, 1984.

감손우라늄을 함유한 촉매로부터 우라늄 분리연구

성진현, 정성기, 박광헌
경희대학교, 경기도 용인시 기흥구 서천동 1
sungjh@khu.ac.kr

1. 서론

원자력 산업에서 우라늄을 분리하는 기술은 중요한 분야 중의 하나이다. 원자력 발전소의 연료로 사용하기 위하여 광물로부터 우라늄을 추출하여 분리하는 데 필요로 할 뿐만 아니라, 원자력 발전소의 운영 중에 발생된 우라늄 오염 폐기물을 제염하는 데에도 우라늄의 분리기술을 필요로 하고 있다.

일반 화학 산업에서도 감손우라늄이 함유된 촉매를 이용하여 고분자물질의 합성에 사용하기도 한다[1]. 국내에서도 감손우라늄이 함유된 화학촉매를 아크릴로나이트릴의 합성에 사용하였으며, 사용 후 발생된 폐촉매는 처리에 많은 어려움이 있어 저장 창고에 보관하고 있는 중이다[2]. 본 연구에서는 산성용액을 이용하여 감손우라늄이 함유된 촉매로부터 우라늄을 분리하여 폐촉매의 처리 가능성에 대하여 알아보고자 한다.

2. 실험 및 결과

2.1 감손우라늄 함유 촉매

본 실험에서 우라늄을 함유한 촉매로 Solutia사에서 제조한 MAC-3를 시편으로 사용하였으며, 화학적 조성을 Table 1에 나타내었다[3].

Table 1. Chemical composition of catalyst

Components	Concentration (%)
Silicon dioxide	45 - 55
Antimony oxide	25 - 30
Uranium	5 - 10
Iron Oxide	1 - 5

촉매를 전자주사현미경(SEM-EDX)으로 관찰한 사진과 구성성분을 Figure 1과 Table 2에 각각 나타내었다. 사진으로부터 촉매는 대략 100㎛ 이하의 직경을 갖는 원형임을 알 수 있었다. 이 촉매는 원형의 SiO_2 지지체에 $USbO_5$나 USb_3O_{10}가 흡착되어 촉매활성을 가지는 것으로 알려져 있다[4]. 따라서 감손우라늄을 분리하기 위해서는 우라늄-안티모니 화합물이 분해되어야 한다.

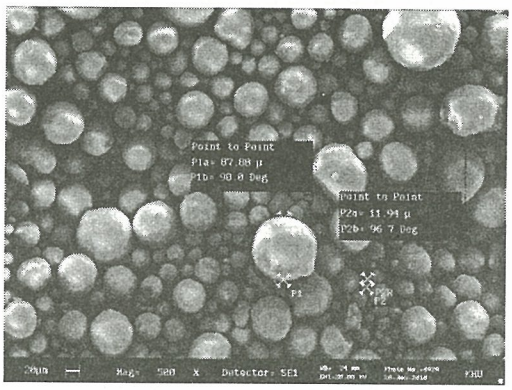


Fig. 1. SEM data of catalyst(MAC-3)

EDX의 결과로부터 촉매 속에는 감손우라늄이 약 9wt% 이하로 함유되어 있음을 알 수 있었다.

Table 2. Uranium content of catalyst before experiment (wt%)

Particle	P1	P2
Size (µm)	87.88	11.94
Si	25.9	24.32
Sb	20.75	25.61
U	7.62	8.68
Fe	3.69	4.82

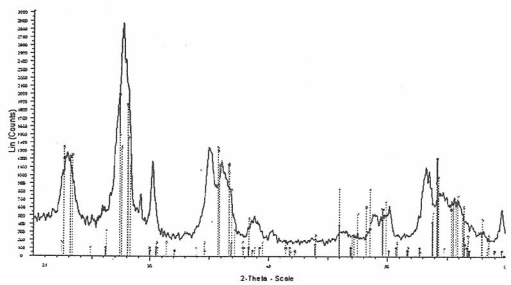
2.2 감손우라늄 분리실험

촉매로부터 감손우라늄을 분리하기 위하여 질산, 염산, 왕수 그리고 역왕수를 사용하였다. 촉매 0.2g과 각각의 산성용액 10ml를 테프론 재질의 산분해 용기에 넣은 후 마이크로웨이브 장치(MARS-5)를 이용하여 170℃에서 40분간 반응하였다. 반응 후 산성용액을 1µm의 여과지를 이용하여 여과하였다. 여과된 촉매를 전자주사현미경(SEM-EDX)으로 분석하여 Table 3에 나타내었다. 실험결과에 의하면 염산용액이 촉매로부터 우라늄을 잘 제거하는 것을 알 수 있었다.

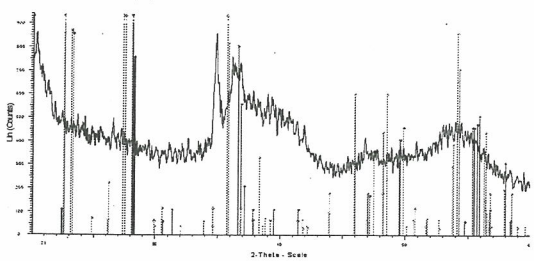
Table 3. Uranium content of catalyst after experiment (wt%)

Acid Solution	HNO_3	HCl	HNO_3:HCl (1:3)	HNO_3:HCl (3:1)
Si	23.02	0.74	21.61	24.14
Sb	16.63		19.14	19.63
U	6.18	1.49	7.16	6.56
Fe	2.84		3.82	4.42

촉매에 포함된 감손우라늄은 안티모니와 결합하여 산화물을 형성하고 있으므로, 촉매로부터 감손우라늄을 분리하기 위해서는 우라늄-안티모니 화합물이 분해되어야 한다. XRD를 이용하여 염산을 이용한 실험 전후의 촉매내에 있는 $USbO_5$와 USb_3O_{10}를 분석하여 Figure 2에 나타내었다. 염산 용해실험 후 촉매에 있는 $USbO_5$와 USb_3O_{10}이 염산 용해실험 전 촉매에 있는 것보다 훨씬 적음을 알 수 있었다.



(a) before HCl dissolution



(b) afer HCl dissolution

Fig. 2. XRD data of catalyst

3. 결론

산성 용액을 이용하여 감손우라늄이 함유된 촉매에서 우라늄을 제거하는 실험을 수행하였다. 염산용액을 이용하였을 때 우라늄을 제일 많이 제거할 수 있었으며 우라늄-안티모니 화합물이 분해되는 것을 알 수 있었다. 이 방법은 앞으로 폐촉매 처리에 유용하게 사용될 수 있을 것으로 기대된다.

4. 감사의 글

본 연구는 지식경제부의 한국에너지기술평가원에서 시행한 전력산업 인프라 구축지원 사업으로 수행된 논문입니다.

5. 참고문헌

[1] Ind. Eng. Chem. Res., 43, pp5460-5465, 2004
[2] 한국원자력통제기술원, 원자력통제, 2009년.
[3] Solutia Inc., Material Safety Data Sheet of MAC-3 Catalyst, 2002.
[4] Inorganica Chimica Acta, 94, p26, 1984.

마이크로버블을 이용한 제염장치 개발 및 성능평가

전종선, 박상규, 이상헌, 이상철, 김위수, 한병섭
(주)에네시스, 대전시 유성구 구암동 328
nunki@enesys.co.kr

1. 서론

마이크로버블이용 기술은 화학약품사용을 최소화하는 친환경기술 산업분야로 활용분야가 빠르게 확산되고 있다. 이런 기술적 특징을 활용하여 마이크로버블을 이용하여 폐기물 제염 시 2차 폐기물의 발생을 최소화하는 제염장치를 개발하고자 한다. 국내 및 해외에서도 마이크로버블을 활용한 제염기술은 초기단계이며 일반적으로 제염하기는 어려우나 마이크로버블 특성을 적용하여 제염하기 쉬운 배관재를 대상으로 제염장치를 개발하고자 한다. 기술 개발을 위해서는 마이크로버블 발생장치, 세정조와 산액관, 세정액의 오염물질을 제거하는 여과장치, 세정액 pH 조절장치 및 오존발생장치 등 구성하여 마이크로버블 제염장치를 개발하였다. 위와 같은 구성으로 제작된 마이크로버블 제염장치를 이용하여 금속배관재류에 대한 예비제염실험을 수행하여 제염조건 및 제염효율을 확인하였다.

2. 본론

2.1 마이크로버블 제염장치 개발

2.1.1 마이크로버블 발생부

본 연구에서 사용한 마이크로버블 발생장치는 고속선회방식으로서 유량 1.5 m^3/hr, 총 수두 90 m, 3450 rpm 및 2.2 kw의 성능을 보이는 입형다단펌프를 이용하여 마이크로버블을 생성한다. 이때 20 L/min 의 유속으로 버블수를 생성하며, 분당 2 L 이하의 기체를 주입(펌프 수차 1회전 당 0.58 ml 기체 주입)하여 용액에 혼합하여 버블을 생성한다.

2.1.2 버블 작용

마이크로버블을 이용한 제염기술은 마이크로버블의 수축·소멸과정에서 발생되는 붕괴에너지를 이용하여 산화물 및 부식생성물을 제거하고자 한다. Young-Laplace 공식 $P = P_l + 4\sigma/D$ 에 따르면 마이크로버블의 자기 가압효과에 의한 기포 내부의 압력상승은 $\triangle P = 4\sigma/D$ 와 같이 버블 크기에 반비례하며 미세 크기의 버블을 제염에 적용하는 것이 제염에 효과적이다. 마이크로버블 발생장치에서 발생시킨 마이크로버블 평균 직경을 20 μm 라고 가정할 때 평균 버블체적은 4.1×10^{-9} cm^3이고 버블의 밀도는 9.5×10^6 개/cm^3가 된다.

2.1.3 제염장치 구성

마이크로버블 발생부, 세정조 및 세정용액 냉각기, 세정액 순환부로 분리하여 구성하였다. 300 L 용량의 316 SUS 재질의 세정조를 중심으로 주변에 마이크로버블 발생부와 세정액 순환부를 장착하였다. 마이크로버블 발생부 상단에 약품주입탱크를 부착하여 세정액의 pH를 조절할 수 있게 하였다. 세정액 순환부에 250 L/min 용량의 순환펌프, 혼합수지와 마이크로필터를 구성하여 세정액 순환하면서 이물질을 정화하고 마이크로버블 발생부와 동시에 운전할 수 있다. 산화력 강화를 위하여 2 L/min의 용량을 가지는 오존발생장치를 부착하여 제염성능을 강화하였다.

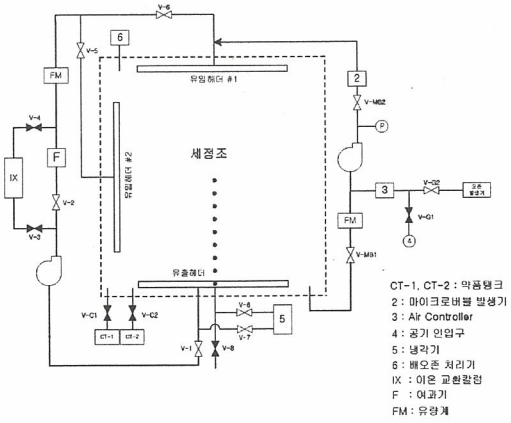


Fig. 1. 마이크로버블 제염장치 개념도

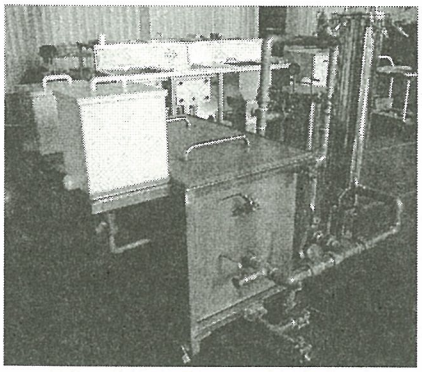


Fig. 2. 제작된 마이크로버블 제염장치

2.2 예비 제염실험

원자력시설에서의 금속 배관재류 내벽의 표면 제염에서 주 제거대상 이물질은 스케일(Scale) 또는 산화피막(녹 포함)이다. 산화부식된 모의 배관 시편을 이용하여 실험하였다.

2.2.1 금속표면에 발생한 부식산화물 제거 시험

마이크로버블 제염장치에서 부식산화물이 부착된 200 g 정도의 모의금속배관 시료를 시간대별로 제염 후 시편의 무게 변화를 확인하였다.

마이크로버블을 발생시키지 않고 세정액을 순환한 제염시험, 마이크로버블을 발생하여 세정액을 순환한 제염시험 및 세정액 조성을 변경 등 다양한 조건에서 실험을 수행하였다.

실험조건으로 마이크로버블 제염시간은 최대 180 min, 세정액량은 20 L, 제거효율을 증가시키기 위해서 30 V의 전압을 걸어주었다. 표 1과 그림 3과 같이 산화물이 제거되는 효과를 확인하였다.

Table 1. Decontamination efficiency of metal oxide

구분	제염시간			
	30min	60min	120min	180min
A*	0.19%	0.50%	1.58%	2.38%
B**	0.07%	0.08%	0.09%	0.09%
C***	0.07%	0.12%	0.19%	1.90%
D****	0.10%	0.33%	0.89%	1.74%

*A:마이크로버블사용, 0.01M Na_2SO_4 세정액 사용
**B:마이크로버블사용, 0.1M NaOH 세정액 사용
***C:마이크로버블사용, 0.1M HNO3 세정액 사용
****D:마이크로버블사용안함, 0.01M Na_2SO_4세정액사용

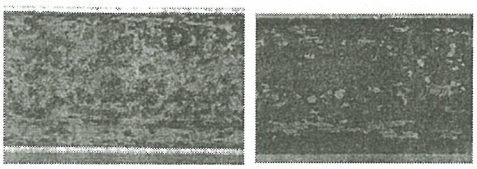


Fig. 3. Decontamination test of metal oxide used microbubble generator. [before test(L), after test(R)]

마이크로버블을 발생시키지 않고 제염한 경우는 시표 무게 변화가 1.7%이고 마이크로버블을 사용한 경우에는 시표 무게 변화 표 2와 같이 2.4% 정도 제염되는 것을 확인하였다.

3. 결론

본 연구에서는 마이크로버블 제염장치의 구성 및 제작하였으며, 산화부식 모의시편에 세정액의 종류와 제염시간 등을 변화하여 마이크로버블 제염장치의 제염성능과 최적의 세정조건 등을 확인하였다. 예비실험 결과, 시료대상 및 실험조건에 따라 시편의 무게변화율을 최대 2.4%까지 시편의 무게변화율을 확인하였다.

모의 방사성 물질의 이용한 부식산화물 제거시험을 추가하여 제염장치의 정확한 제염효율을 확인하고자 한다.

4. 감사의 글

본 연구는 지식경제부 기술혁신사업 중 원자력발전기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다.
(No. 2009T100100645)

5. 참고문헌

[1] Joo Young Park, Yong Ju Choi, Seheum Moon, Do Yun Shin, Kyoungphile Nam, Journal of Hazardous Materials, 163, p761-767, 2009/7, "Microbubble suspension as a carrier of oxygen and acclimated bacteria for phenanthrene biodegradation".

[2] 방사성 토양 및 콘크리트 제염을 위한 pilot 규모 전기화학세정장치 개발, KAERI/RR-3052/2009.

고방사성 오염도 원격 측정용 센서 제조 및 1차원 레이저를 이용한 제어기술 개발

이보람, 서범경, 이근우
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
brlee@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료 취급시설이나 원자로 압력용기 내부와 같은 고방사성 시설을 해체하기 위해서는 사전에 방사선학적인 특성 평가를 수행해야 한다. 특히, 이러한 시설들은 지역이 좁고 높은 방사선량으로 인하여 작업자의 접근이 제한적이어서 측정이 어려울 수밖에 없다. 이러한 고방사능 환경에서 방사선과의 상호작용에 의하여 빛이 발생하는 섬광체와 그 빛을 원거리로 전송할 수 있는 광섬유를 이용하여 원격으로 오염도를 측정하기 위한 연구들이 활발하게 진행되고 있다.

광섬유는 오염도 측정용 센서 부분을 소형화시킬 수 있어서 직접 측정을 하기 힘든 협소한 곳의 측정을 가능하게 하며, 광전도성과 비교적 저렴하다는 장점을 이용하여 원자력 분야의 방사선계측방법으로도 널리 이용되고 있다[1]. 또한, 센서 제조 시에 기존의 열중합 반응이 아닌 투명 에폭시 수지를 이용하여 제조하는 방법이 최근 이용되고 있으며, 투명한 에폭시 수지는 경화에 있어 반응수축이 작고, 휘발성이 없으며 가공성이 좋고 열에 대한 저항성이 우수한 장점으로 광섬유와 결합하여 제조하기가 쉽기 때문에 검출소재의 지지체로서 우수한 성질을 가진다.

본 연구에서는 광섬유 일체형 섬광체를 직접 제조하여 측정이 어려운 고방사성 시설의 오염도를 원격으로 직접 측정할 수 있는 센서를 제조하였다. 또한, 원격으로 측정 시의 효율에 가장 영향을 미칠 수 있는 측정 대상과 센서의 거리를 제어하기 위하여 1차원 레이저를 이용하여 항상 일정한 간격으로 유지할 수 있는 제어장치를 적용하여 시험하였다.

2. 본론

2.1 광섬유 일체형 오염도 측정 센서 제조

베타선 오염도 측정용 센서는 투명한 에폭시 수지에 유기섬광체를 혼합한 후에 신호전송용 플라스틱 광섬유를 적용하여 고형화함으로써 일체형으로 제조하였다. 지지체용 에폭시는 투명 에폭시 수지(YD-128, 국도화학)에 경화 촉진제(D-230)를 3 : 1의 일정한 비율로 섞고, 유기섬광체를 혼합하여 제조하였다. 베타선 측정용 유기섬광체로 제 1 용질인 PPO, wave shifter인 제 2 용질로는 POPOP를 사용하였다.

또한, 알파선을 측정하기 위한 섬광체는 베타선 측정용 에폭시 소재 유기섬광체의 전면에 알파선 검출능력이 우수한 무기섬광체인 ZnS(Ag)를 얇게 도포하여 제조하였다. 알파선 검출용 ZnS(Ag)는 분말형태로 알파선의 에너지를 충분히 흡수하고 섬광을 광섬유로 전송하려면 최적의 두께를 결정하여야 하며, 본 연구에서는 기존의 연구에서 도출한 ZnS(Ag) 섬광체 두께인 15 mg/cm^{2}를 적용하였다[2].

Fig. 1은 알파선과 베타선을 동시에 측정하여 광섬유를 통하여 원거리 신호전송이 가능한 오염도 원격 측정용 센서를 나타낸 것이다. 투명 에폭시 지지체에 신호 전송용 광섬유와 백그라운드 소거용 광섬유를 이중으로 배치하고 그 위에 베타선 측정용 유기섬광체와 알파선 검출용 ZnS(Ag) 섬광체를 이중으로 배치하여 제조하였다.

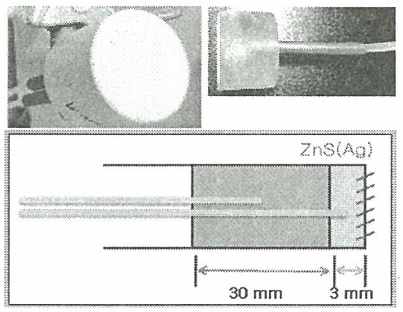


Fig. 1. The one-body sensor for the simultaneous measurement of the alpha and beta particles.

2.2 오염도 원격 측정 제어기술 개발

알파선과 베타선을 원거리에서 정밀하게 측정하기 위해서는 측정 대상과 센서를 일정한 거리

로 유지하여 측정하여야 한다. 본 연구에서는 측정용 센서를 정밀하게 제어하기 위하여 table 1과 같이 접촉식과 비접촉식 제어 방법을 상호 비교하여, 오염도 측정 센서의 위치제어 방식으로 레이저 거리 측정 센서를 이용한 제어방식을 선정하였다.

Table 1. Comparison of the position control method for radiation measurement

항목	접촉식 센서	비 접촉식	
		초음파 센서	1D 레이저 센서
내구성	좋음	좋음	좋음
가격	저렴	저렴	고가
측정거리	-	0.1 ~ 20 m	0.01 ~ 1,000 mm
정밀도	± 1 mm	측정거리의 1%	± 0.01 mm
방사선 환경 적용성	적용가능	적용가능	적용가능

Fig. 2는 1D 레이저를 장착하여 원격으로 오염도 측정용 센서를 제어하기 위하여 제작한 측정용 probe의 개념도와 이를 제작하여 핫셀용 매뉴플레이터의 gripper에 장착한 모습이다.

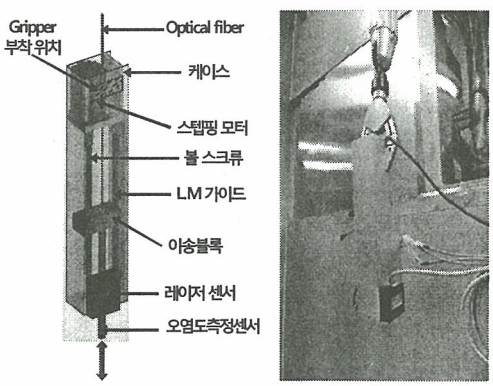


Fig. 2. The remote position control unit using 1D laser sensor and its application test in the hotcell.

원격 제어용 장치는 1D 레이저에서 측정한 거리 정보를 실시간으로 확인할 수 있으며, 오염도 측정센서의 이송속도를 1 ~ 5단계로 변경이 가능하다. 또한 조그 모드창을 이용하여 오염도 측정센서의 위치를 사용자가 직접 이송이 가능하며 off-set 거리 설정창을 통해 오염도 측정센서와 대상물 사이의 제어 거리를 원하는 거리만큼 조절이 가능하도록 프로그램 하였다.

3. 결론

알파선과 베타선을 동시에 측정을 하기 위해서 광섬유 일체형 센서를 개발하고, 원거리에서 일정한 간격을 유지하면서 오염도를 측정할 수 있는 제어 장치를 제작하여 적용하였다. 제조한 검출소재와 오염도 원격 측정용 제어장치를 결합하여 원격 취급용 메뉴플레이터에 적용하여 시험하여 고방사성 시설의 오염도 원격 측정 가능성을 확인하였다.

4. 참고문헌

[1] K. Sakasai and M. Katagiri, "In-situ ex-core monitoring using optical fibers with scintillators", IEEE Transactions on Nuclear Science, Vol. 50, No. 4, August (2003).

[2] 서범경, 이보람, 이근우, "해체 폐기물 오염도 측정용 phoswich 검출기의 기하학적 조건별 검출 특성 모사 및 성능 평가", 한국방사성폐기물학회, 2010 추계 학술발표회 논문요약집, pp. 47-48, 2010.

NF_3 플라즈마를 이용한 인코넬 모재 위 코발트 산화막의 식각반응 연구

김경민, 채산, 전상환, 김용수
한양대학교, 서울특별시 성동구 왕십리로 222
yongskim@hanyang.ac.kr

1. 서론

원자력발전은 효율적인 에너지원임에도 불구하고 방사성 폐기물을 발생시킨다는 부담이 상존하고 있다. OECD/NEA는 기술보고서에서 향후 30-40년간 원자력시설의 제염해체과정에서 약 3천만 톤의 금속폐기물이 발생할 것으로 추정하고 있으며 국내에서도 지난 1998년 고리 1호기 증기발생기가 전면 교체된 바 있고, 울진 원자력발전소 증기발생기가 교체 예정되어 있는 등 대형금속폐기물에 대한 제염 수요가 점차 발생하고 있는 실정이다. [1].

기존의 강산을 이용한 습식 제염방식은 오염물질을 효과적으로 제거할 수 있다는 장점이 있지만 복잡한 공정과 2차폐기물 문제로 인해 처리의 어려움이 있다. 반면 플라즈마 제염은 오염핵종을 반응성이 매우 뛰어난 플라즈마와 반응시켜 기화제거하는 기술로서 습식방법에 비해 공정이 간단하고 2차 폐기물의 양을 획기적으로 줄일 수 있는 제염 방법으로 부각되고 있다 .

그림1은 증기발생기에서 전열관으로 사용된 후 인출된 인코넬 합금 튜브의 감마선분광분석결과인데 다른 핵종에 비해 ^{58}Co와 ^{60}Co의 강도가 매우 높게 나타나는 것을 보여주고 있다. 더욱이 ^{60}Co는 대표적인 장수명, 고에너지 핵종으로 5.27년의 반감기를 지니며 1.17과 1.33 MeV의 높은 에너지의 감마선을 방출한다. 따라서 이 연구에서 수행한 고착된 금속 표면 코발트 핵종 제염은 매우 중요한 연구라고 할 수 있다[2,3,4].

2. 실험 및 결과

본 실험에서는 모재인 인코넬 위에 코발트 산화막이 강하게 고착되어 있는 경우를 모사하여 NF_3 기체 플라즈마와 반응시켜 온도와 출력 변화에 따른 식각률의 변화에 관한 분석을 수행하였다. 모재인 인코넬의 가공은 인코넬 봉을 저속 다이아몬드 절단기를 이용하여 디스크 형태(지름 20mm 두께 2mm)로 절단한 뒤 연마하여 가공하였다. 인코넬 모재위에 코발트 산화막을 생성하기 위해 마이크로피펫을 이용하여 200mg/ml 농도의 코발트 질산염 수용액 300μl를 모재 표면에 인가한 후 전기로를 이용하여 500°C에서 산화 시킨 뒤 상온으로 냉각시켜 모의 시편을 제조하였다.
저진공 플라즈마 장치를 이용한 실험에서는 NF_3 기체를 이용하여 r.f. 플라즈마를 발생시키고 300-350°C의 온도에서 인코넬 모재위에 형성된 코발트 산화막 제거 실험을 수행 하였다. 산화막의 무게 감소를 측정하여 이를 두께로 환산하여 식각률을 나타내었는데, 초기 반응 시간에 대한 무게 감소를 선형근사(linear fitting)하여 식각률을 산출하였다.

NF_3 기체의 유량은 15 sccm, 공정압력은 0.45 Torr로 고정 하였고, r.f 출력은 각각 150 W 와 220 W를 인가하여 실험을 수행하였다. 또한 DC bias전압의 영향에 따른 식각률을 알아보기 위하여 350°C, 220 W의 출력에서 -300 V의 DC bias 전압을 인가하여 식각률의 변화를 확인하였다.

실험결과 150 W 300°C 에서 0.43㎛/min의 식각률을 보였으며, 330°C, 350°C 온도에서 각각 0.61㎛/min 0.79㎛/min의 식각률을 보였다.

350°C, 220W에서 수행한 실험에서는 1.04㎛/min의 식각률을 나타내었으며, 같은 조건에서 -300V의 DC bias인가 되었을 때 1.29㎛/min의 식각률이 나타나는 것으로 나타났다. 결과적으로 DC bias전압의 인가 유무에 따라 약 1.24배의 식각률 향상이 나타나는 것으로 밝혀졌다. 이는 DC bias를 인가할 경우 이온보조식각(ion-assisted etching) 반응에 의하여 플라즈마 입자가 모재 표면을 활성화시키게 되므로 식각반응이 더 활발하게 발생하기 때문이다[4,5].

3. 결론

이번 연구결과 방사성 오염 핵종인 코발트산화막이 모재에 강하게 고착되었을 경우에도 반응성 플라즈마 제염공정을 이용하면 식각반응이 활발하게 발생 하였다[6]. 표면분석결과에 의하면(그림

2),[1] 반응 후에 표면 구성원소에서 F의 피크가 검출되었으며, 이는 플라즈마 반응이 불화 반응으로 인한 반응임을 알 수 있다. NF_3 플라즈마 반응 후 각 원소의 강도가 감소하여 표면으로부터 코발트산화막이 제거되었음을 알 수 있다[7].
이는 방사성 오염 핵종이 산화막 형태로 모재에 강하게 고착된 경우에도 제염이 가능하며, 높은 반응률로 플라즈마 제염 반응의 우수함을 알 수 있었다.

4. 참고문헌

[1] 한양대학교산업과학연구소, 2008년 산업과학논문집, Vol.57, No.13, 2008.

[2] Yong-soo Kim, "Decontamination of Metal Surface by Reactive Cold Plasma: Removal of Cobalt", J.Nucl. Sci. Technol., 41 (2004) 1100-1105.

[3] Grażyna Zakrzewska-Trznadel, "Removal of Radionuclides by Membrane Permeation Combined with Complexation," Esalination, 144 (2002) 207-212.

[4] K. Rashmi, "Bioremediation of ^{60}Co from Simulated Spent Decontamination Solution," Science of the Total Environment, 328 (2004) 1-14.

[5] Winters H. F., " Elementary Process at Solid Surfaces Immersed in Low Pressure Plasmas (Topics in Current Chemistry Ⅲ), Springer, New York, (1980).

[6] J. W. Coburn and Harold F. Winters, "Plasma Etching Discussion of Mechanisms", J. Vac. Sci. Technol., 16 (1979) 391-403.

[7] 한국방사성폐기물학회, 2008년 춘계학술발표회 논문요약집, Vol.6, No.1 pp. 25-26, 2008

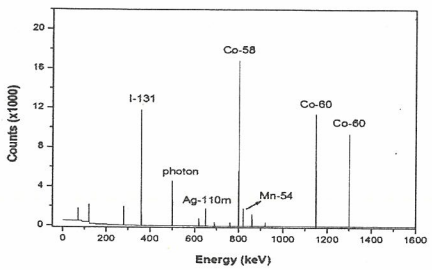


Fig. 1. γ-spectroscopy results of discharged nuclear steam generator Inconel alloy tube

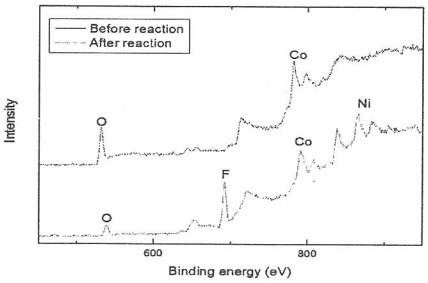


Fig. 2. XPS analysis of before and after reaction

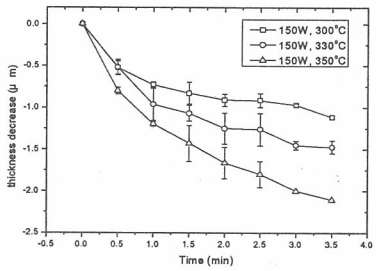


Fig. 3. Thickness decrease of cobalt oxide on the INCONEL600 (150 W, 300oC-350oC)

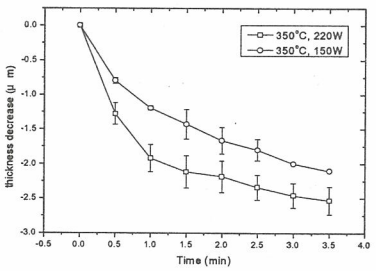


Fig. 4. Thickness decrease of cobalt oxide on the INCONEL600 (350oC, 150 W-220 W)

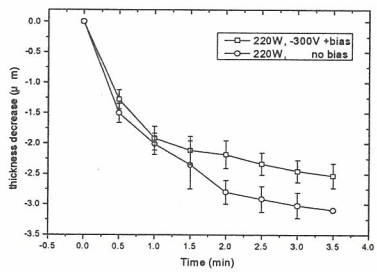


Fig. 5. Thickness decrease of cobalt oxide on the INCONEL600 with DC bias(-300V)

Application of Micro-coprecipitation Method to Alpha Source Preparation for Measuring Alpha Nuclides

Myung Ho Lee, Jong Ho Park, Se Jin Oh, Byung Chul Song, Kyuseok Song
Korea Atomic Energy Research Institute, P.O. Box 105, Yuseong, Daejeon 305-353, Korea
mhlee@kaeri.re.kr

1. Introduction

An alpha source which has a remarkable energy resolution is required to accurately analyze such emitters of these actinide nuclides. Sources for alpha spectrometric measurements have usually been prepared by a vacuum sublimation, a direct evaporation, an electrodeposition, and a micro-c oprecipitation [1,2]. Among the source preparations, an electrodeposition is a commonly used method for the preparation of sources for an alpha spectrometry, because this technique is simple and produces a very thin deposit, which is essential for a high resolution of the alpha peak. Recently, micro-coprecipitations with rare earths have been used to yield sources for -spectrometry, as these methods are simple and more rapid than an electrodeposition[3,4].

In this work, the Pu, Am and Cm isotopes were purified from hindrance nuclides and elements with an a TRU resin in radioactive waste samples, and the activity concentrations of the Pu, Am and Cm isotopes were determined by radiation counting methods after alpha source preparation like micro coprecipitation.

2. Methods

2.1 Pretreatment of the samples

A liquid waste sample (10 mL) leached from the radioactive sample with HNO_3 was evaporated to a dryness on a hot plate and the residue was dissolved in a concentrated nitric acid solution. To compensate for a chemical recovery, ^{242}Pu (0.1 Bq) and ^{243}Am (0.1 - 0.5 Bq), as yield tracers, were added into a sample. The residue was dissolved with 30 mL of 8 M HNO_3.

2.2 Separation of Pu and Am with an anion exchange resin and TRU resin

The sample solution with an 8 M HNO_3 medium was passed through a pre-conditioned anion exchange resin (Bio-Rad, 100 - 200 mesh) column (inner diameter; 10 mm, resin bead length; 80 mm) with 8 M HNO_3 at a rate of 0.5 mL/minute. The column was then washed with 20 mL of 8 M HNO_3 to remove the Am and U isotopes. The effluent was evaporated to a dryness and reserved for a subsequent separation of the Am isotopes. Columns were washed with 20 mL of 9 M HCl to desorb the Th. Finally, Pu was eluted with 20 mL of 0.36 M HCl / 0.01 M HF, which does not form a chloride complex on the anionic exchange resin.

The residue that was separated from the Pu purification step was dissolved in 30 mL of 2 M HNO_3. The content of Fe(III) was tested by adding one drop of 1 M NH_4SCN to a sample solution. If the test was positive (red color), about 200 mg of ascorbic acid was added to reduce the Fe(III) to Fe(II). The TRU Spec column (bed volume; 1.3 mL, length; 2.6 cm) was used to separate Am from U, and it was conditioned with 30 mL of 2 M HNO_3. Samples were loaded onto the column followed by a washing with 20 mL of 2 M HNO_3. The column was then washed with 4 mL of 9 M HCl and the Am fraction was eluted with 20 mL of 4 M HCl.

2.3 Comparison of an electrodeposition and a micro-coprecipitation

To investigate the electrodeposition and micro-coprecipitation yields, ^{242}Pu tracer and ^{243}Am tracer (about 0.5 Bq) were added into the solution containing the ^{239}Pu standard source and ^{243}Am standard source, respectively. The solution containing the ^{242}Pu tracer was evaporated to a dryness. The residue was dissolved in 1 mL of concentrated HCl and evaporated to a dryness. The Pu fraction was electroplated on to a stainless steel platelet or micro-coprecipitated on to a 0.1 m membrane filter. The solution containing the ^{243}Am tracer was carried out similar to case of ^{242}Pu. The samples prepared by an electrodeposition or a micro-coprecipitation were measured by an alpha spectrometer.

2.4 Measurement of the Pu, Am and Cm isotopes with an alpha spectrometer

The activity concentrations of $^{239,240}Pu$, ^{238}Pu, ^{241}Am and ^{244}Cm were measured by an alpha spectrometer. The measured activities for $^{239,240}Pu$, ^{238}Pu, and ^{241}Pu were corrected for their chemical yield by using the observed activities of ^{242}Pu. Also, the chemical yields for ^{241}Am and ^{244}Cm were obtained by measuring the alpha activity of ^{243}Am, because the chemical property of the Cm isotopes was similar to that of the Am isotopes. After the α-spectrometric measurement for $^{239,240}Pu$ and ^{238}Pu, the Pu sample coprecipitated with Nd on the membrane filter was dissolved with 10 mL of 8 M HNO_3. The dissolved solution was divided into two fractions, where one was used for measuring ^{241}Pu by a LSC and the other was used for measuring ^{239}Pu, ^{240}Pu and ^{241}Pu by a TIMS.

3. Results and discussion

Among the source preparations, such as a direct evaporation, an electrodeposition and a micro-coprecipitation, the electrodeposition method and the micro-coprecipitation method were compared in this work. The recovery ranges of ^{242}Pu with an electrodeposition and a micro-coprecipitation were 65 - 96 % and 87 - 99 %, respectively. The mean value of the chemical yield of ^{242}Pu for an electrodeposition and a micro-coprecipitation was 86 ± 5 % and 96 ± 6 %, respectively. Also, the recovery of ^{243}Am for an electrodeposition was found to be in the range of 60 % to 95 % with a mean value of 80 ± 7 %. While the recovery of ^{243}Am with a micro-coprecipitation was found to be in the range of 91 % to 99 % with a mean value of 97 ± 6 %.

For the electrodeposition method, the recoveries for the Pu and the Am isotopes were lower and variable, compared to the coprecipitation method which resulted in higher and more stable recoveries, though the α-peak resolution (FWHM : 26.7 keV) for the electrodeposition was better than that for the micro-coprecipitation (FWHM : 43.2 keV). Electrodeposition requires rather elaborate equipment which is difficult to maintain and is plagued with problems, such as current fluctuations and pH changes during an electrodeposition, that can result in a low isotope recovery.

Also, for measuring ^{241}Pu by a LSC and ^{239}Pu and ^{240}Pu by a TIMS, it is necessary to dissolve the Pu isotopes from a stainless steel disc or membrane filter after measuring the Pu isotopes by an alpha spectrometry. In this process, a lot of Fe or Ni ions were dissolved with the Pu isotopes from an electroplating plate and these ions have to be removed from the Pu isotopes with an anion exchange resin method, because the measurement of ^{241}Pu, ^{239}Pu and ^{240}Pu can be interfered by these ions. However, in the micro-coprecipitation method, the Pu isotopes are measured directly by a LSC or a TIMS after dissolving the Pu isotopes from the membrane filter. Therefore, in this work, the micro-coprecipitation method was used for the alpha source preparation because this method is simple and more rapid than an electrodeposition.

4. Conclusion

After the Pu isotopes in the radioactive waste samples were separated from the other nuclides with an anion exchange resin, the Am isotopes were purified with a TRU resin and an anion exchange resin or a TRU resin. Activity concentrations and chemical recoveries of ^{241}Am purified with the TRU resin were similar to those with the TRU resin and anion exchange resin. In this study, to save on the analytical time and cost, the Am isotopes were purified with the TRU resin without using an additional anion exchange resin.

After comparing the electrodeposition method with the micro-coprecipitation method, the micro-coprecipitation method was used for the alpha source preparation, because the micro-coprecipitation method is simple and more reliable for source preparation of the Pu, Am and Cm isotopes.

5. Acknowledgement

This work is supported by the long-term nuclear R&D project of MEST of Korea.

6. References

[1] K. W. Puphal, D. R. Olsen, Anal. Chem. 44 (1972) 284.
[2] M. H. Lee, C. W. Lee, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. 447 (2000) 593.
[3] S. R. Joshi, J. Radioanal. Nucl. Chem. Article 90 (1985) 409.
[4] F. D. Hindman, Anal. Chem. 58 (1986) 1238.

Fe 함유 우라늄폐기물의 산용해 및 침전법에 의한 U/Fe 상호분리

양한범, 이일희, 정동용, 최은경, 김광욱
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
nhbyang@kaeri.re.kr

1. 서론

본 연구에서는 Fe 함유 우라늄폐기물을 산 용해할 경우 U와 동반 공용해 되는 Fe 등 기타 원소들로부터 U를 분리할 수 있는 U 분리기술 확보를 위한 연구로서 U와 공용해 되는 불순성분 원소인 Fe와 기타 원소들은 탄산용액에서 용해도가 작아 침전되는 특성을 이용하여 산 용액에 U와 동반 공용해 되는 Fe 및 기타 원소들로부터 우라늄만을 선택적으로 분리하는 방법을 사용하여 U과 Fe의 질산용액과 탄산용액에서의 용해 및 침전특성 규명과 탄산용액에 용해되어 있는 U의 산성화 (acidification) 침전특성에 대해 고찰하였다.

2. 실험방법

우라늄 용액은 U 430ppm/(0.1 M HNO_3) 용액과 U 5(g/l)/(0.5 M Na_2CO_3-1.0M H_2O_2) 용액, Fe 용액은 Fe 100ppm 0.1 M HNO_3 용액을 사용하여 실온에서 실험조건에 따라 Na_2CO_3 분말 시약을 첨가하여 pH 미터를 사용하여 용액의 pH 연속 측정하면서 조정하였다. U와 Fe 농도는 실험 용액을 주사기 필터 (syringe filter, Advantec Co, pore size 0.2 ㎛)로 침전물을 여과하여 만든 시료를 분광 광도계(HP 8453)로 분석하였다.

침전물 입자크기 분포도는 Microtrac사의 습식 입도분석기로 분석하였다. U 침전물의 XRD 분석은 X-ray diffractometer (Rigaku)로 측정하였다. 전기오븐은 대흥과학 (모델: DCF-150L), pH 측정기는 Orion (모델: EA 940), 모든 실험은 Milli-Q plus로 제조한 18MΩ의 2차 증류수를 사용하였다. U의 농도는 U가 함유된 실험용액의 일정량을 취하여 발색제 Arsenazo III를 사용하여 652nm에서 비색분석법으로 분석하였다. Fe 농도는 Fe가 함유된 실험용액의 일정량을 취하여 발색제 1,10-Phenanthroline을 사용하여 510nm에서 흡광도를 측정하여 분석하였다.

U 침전물의 건조는 전기오븐에서 실험조건에 따라 25℃ 및 90℃에서 4시간 동안 건조시켰다.

3. 결과 및 고찰

3.1 U와 Fe의 침전 및 상호분리 특성

0.5 M Na_2CO_3-1 M H_2O_2 매질의 U 용액 (5 g/L)을 대상으로 질산용액을 첨가하여 U 용액을 탈탄산 산성화하여 pH를 감소시킨 용액에 대한 U 침전율(%)의 측정결과와 0.1 M HNO_3 용액에 Fe를 용해시켜 만든 실험용액을 Na_2CO_3 시약 분말 첨가하여 용액의 pH를 증가시킨 용액에 대한 Fe 침전율(%) 측정결과는 Table 1과 같다.

Table 1. Precipitation of U & Fe as a function of pH

pH	3.5	5	6	9	10
U 침전율, %	99.9	96.7	85.5	0	0
pH	2.0	3.0	5.0	9.1	10.3
Fe침전율, %	0	74.8	100	100	100

그리고 0.1 M HNO_3 용액에 U와 Fe를 혼합시켜 만든 실험용액을 Na_2CO_3 시약 분말 첨가하여 용액의 pH를 9.0으로 조정한 후 상등액을 주사기 필터 (syringe filter)로 여과하여 만든 분석시료를 분광 광도계로 Fe 농도를 분석하여 계산한 Fe의 침전율은 100 % 이었다. 그리고 Fe 침전물을 고-액 분리로 제거한 다음 U 함유 분리여액에 H_2O_2를 첨가한 후 질산용액으로 분리여액의 pH를 3.5로 조정하여 4시간 우라늄침전 생성시킨 후 상등액의 U 농도를 분석하여 UO_4 침전율을 계산한 결과 99.9% 이상 침전되었으므로, 침전법에 의한 U와 Fe 상호분리 가능함을 확인하였다.

3.2 U 및 Fe 침전물 특성

UO_2를 0.5 M Na_2CO_3 - 1.0M H_2O_2 매질의 U 용액 (5 g/L)에 HNO_3 용액을 첨가하여 산성화시키면 U 용액의 pH가 3.5일 때 U 침전율은 최대가 되었다. U 침전반응은 uranyl peroxocarbonato 착물이 HNO_3 용액으로 탈탄산 산성화되면서 carbonate 성분은 CO_2로 방출되고, U는 침전된다. U 침전물의 XRD를 측정하여 U 침전물이 $UO_4 \cdot 4H_2O$ 임을 확인하였다. U 침전물은 25℃에서 건

조시키면 $UO_4 \cdot 4H_2O$ 이며, 90°C에서 건조시키면 $UO_4 \cdot 2H_2O$로 분석되었다. pH 3.5에서 생성시킨 U 침전물의 입자크기는 $<1\mu m$ 이고, pH 9.0에서 생성된 Fe 침전물 평균 입자크기는 10μm로 분석되었다.

3.3 산용액중 U와 불순물원소의 분리 가능성

그리고 Fe^{3+} 이온 용액에 Na_2CO_3 용액을 첨가하면 NaOH 용액 또는 NH_4 용액을 첨가한 것과 마찬가지의 똑같은 Fe 침전물이 생성되며, 이때 Fe^{3+} 이온은 carbonate 이온과 반응하여 CO_2 가스를 방출하고 metal hydroxide 침전을 만든다. 일반적인 금속(M)이온과 CO_3^{2-} 반응 다음과 같다.

$$M^{2+} : [M(H_2O)_6]^{2+} + CO_3^{2-} \rightarrow MCO_3(s)$$

$$M^{3+} : 2[M(H_2O)_6]^{3+} + 3CO_3^{2-} \rightarrow [M(H_2O)_3(OH)_3] + 3CO_2 + 3H_2O$$

질산용액에서 U와 공용해 되는 불순물 원소들 중 M^{2+}(Fe, Ni, Ca, 등)와 M^{3+}(Fe, Ni, Ca, 등) 원소들은 CO_3^{2-}와 반응하여 $MCO_3(s)$ 또는 metal hydroxide를 형성하므로 침전법으로 U와 공용해 불순물 원소의 분리가 가능하다고 판단되어 이와 관련된 실험을 진행중에 있다.

4. 결론

Fe 함유 우라늄폐기물을 질산용액으로 용해한 용해액을 대상으로 Na_2CO_3를 첨가하여 용해액의 pH를 9.0 이상으로 조정하여 침전된 Fe를 고-액 분리하여 제거하고 분리 여액에 존재하는 U 용액에 과산화수소 첨가한 다음 질산용액으로 pH 3.5까지 산성화시켜 U를 침전시키는 방법으로 용액의 pH 변화에 따른 U 및 Fe의 침전특성을 이용하여 U와 Fe의 상호분리 가능함을 확인하였다. 그리고 침전법으로 U와 공용해 되는 Fe을 포함한 불순물 성분원소들로부터 우라늄만의 선택적 분리 가능성을 고찰하였다.

5. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국과학재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

6. 참고문헌

[1] Kyung-Chai Jeong, Tae-Joon Kim, Jong-Hyun Choi, Jin-Ho Park, Seong-Tae Hwang, J. 0f Korean Ind. & Eng. Chem. Vol.7, No.6, 1164-1173, 1996.

[2] K. W. Kim, D. Y. Chung, E. H. Lee H. B. Yang, 우라늄혼합물 위해도 저감화 기술개발 과제 2010년 연차 실적서 2010.

[3] 서인석 등, 핵연료주기 화학분석 편람, 한국에너지연구소, KAERI/GP-64/86, 1986.

사용후연료집합체 구조재 폐기물 처리 방안 최적화

나상호, 박창제, 양재환, 강권호, 박근일
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
shna@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력발전소에서 일정 기간 연소되어 인출된 연료 즉 사용후연료는 현재 잠정적으로 발전소에서 보관 저장되고 있으며, 이러한 저장능력은 거의 포화되어 가고 있는 실정이다. 사용후핵연료는 2007년 12월말을 기준으로 총 9420톤이 저장되어 있으며, 2010년에는 약 1만1000톤, 2020년에는 약 2만톤, 2040년에는 약 3만4000톤이 누적될 전망이다[1]. 따라서 사용후연료의 저장량을 감소시키고, 사용후연료 내에 잔존하는 유효 에너지 자원을 재활용하기 위하여 많은 연구가 많은 나라에서 수행되고 있다. 이와 함께 사용후연료집합체의 구조재에 대한 처리방안도 동시에 고려되어야 한다. 구조재폐기물은 방사화특성으로 인하여 고준위폐기물로 분류되고 있는 실정이다. 지금까지 검토된 구조재의 처리 방법에는 주로 부피를 줄이는 감용기술이 큰 부분을 차지하고 있으며, 크게 용융 기술과 압축 기술로 나눌 수 있다.

본 연구에서는 구조재 폐기물의 처리방법에 대해 여러 인자를 고려하여 최적화된 방안을 도출하고자 하였다. 핫셀 적용성 및 운용성, 균질성, 감용성, 2차 폐기물 발생 가능성 그리고 고준위핵종 처리 가능성 등의 인자를 고려하여 검토하였다.

2. 본론

2.1 구조재 폐기물 처리방법

구조재폐기물의 처리 방법으로 현재까지 잘 알려진 기술은 압축법과 용융법으로 대별된다. 이들 방법에 대한 각각의 특성 및 장단점을 나타내면 다음과 같다.

2.1.1 압축법

압축법은 폐기물에 단순히 물리적 힘을 가해 기하학적 구조를 변화시켜, 폐기물이 점유하고 있는 실제 부피를 감소시키는 방법으로, 소각 및 기타 처리가 용이하지 않은 경우에 효과적으로 이용할 수 있다.

압축 방식으로는 유압식, 전기식 및 기계식 등이 있다[2]. 유압식은 기계식 및 전기식에 비해 효율성, 기기 연결의 융통성 및 컴팩트하고 가볍지만 고압으로 사용할 경우, 오일의 누설 가능성이 있으며, 또한 고온이나 방사선 환경 하에서 사용할 경우 오일의 열화 등이 일어날 수 있는 단점이 있다. 이러한 단점에도 불구하고 핫셀에서의 원격조종과 유지·보수 그리고 공간 확보의 차원에서 유압식이 주로 선호되고 있다. 유압에 의한 압축방식에는 습식(미국의 B&W)과 건식(독일의 PKA)이 있다. 독일은 구조재 폐기물을 고압의 유압프레스로 수평방향으로 압축처리하여 처분용 캐니스터에 밀봉한 후 캐스크에 적재하여 저장 또는 처분한다. 반면에 미국은 수직으로 내려오는 구조재 폐기물을 수중에서 수평방향으로 측면 압축시킨 후 일정 길이로 절단 및 적재하여 저장한다.

2.1.2 용융법

용융기술은 주로 원자력시설의 해체에 따른 시설 구조물의 방사성폐기물의 중저준위으로의 처분, 감용 또는 재활용 목적으로 사용되어 왔다. 현재 외국에서 상용화되어 주로 사용되고 있는 방사성폐기물의 용융처리 기술은 크게 아크 용융(arc melting)과 유도용융(induction melting)법이 있으며, 여러 인자들을 고려하여 나라마다 특색에 맞게 선택하거나 병용한다.

유도용융의 경우, 바람직한 인자는 용탕의 양호한 교반, fume 제어 용이성 그리고 급가열 등이 있으며, 이러한 인자는 방사성폐기물의 초기 고화/균질화 용융을 고려할 때 중요하다. 반면에 아크 용융은 용탕 크기 증대시 비용이 저렴하며, 대용량의 물질의 수용이 가능하고, 용탕 조성의 변경이 용이하며, 수냉각이 불필요하므로 신뢰성 및 안전성에 대한 마진이 큰 장점이 있다.

2.2 구조재 폐기물 처리시 고려사항

- 감용비

압축법의 경우, 적용압력은 4.5톤~2,200톤으로 폐기물의 약 70~80%의 압축이 가능하며, 감용비

는 2~10 정도이다. 반면에 용융법의 경우 폐기물을 고온가열에 의한 용탕화로 인하여 기공 등이 존재하지 않아 감용비는 압축법에 비해 상당히 높다.

- 균질성

압축법은 구조재폐기물을 단순히 압축하는 것이므로 성분의 균질성은 어렵다. 다만 압축하기 전에 폐기물을 성분 별로 분류한다면 어느 정도의 균질성은 확보될 것으로 예상된다. 반면에 용융법은 폐기물을 용융시키므로 성분의 균질성은 양호한 것으로 사료된다.

- 핫셀 적용성

압축법은 초기에 적용이 원활하고 용이하며, 소규모 시설에서도 가능하며 검증된 기술로 핫셀에 적용성이 양호하다. 반면에 용융법은 폐기물을 고온으로 용융시켜야 하므로 고온의 용융로가 필요하며, 이에 따른 부대시설의 설치도 요구되므로 대용량화할 경우 핫셀에서의 적용성은 바람직하지 않은 것으로 사료된다.

- 2차 폐기물 발생 가능성

압축법은 기기를 이용하여 단순 압축하는 것이므로 부수적인 2차 폐기물은 그다지 발생하지 않는다. 용융후 2차폐기물(슬래그, 필터, 도가니 등)이 다량으로 발생한다.

- 고준위핵종 처리 가능성

압축법의 경우, 단순 압축하는 것이므로 고준위핵종 처리 가능성은 거의 없으나 압축 전에 폐기물을 재료별로 분류할 경우 고준위폐기물의 양은 감소할 것으로 판단된다. 용융법은 슬래그에 의한 고준위핵종(Co, Tc)의 분리가 어려운 것으로 보고되고 있다[3].

- 폐기물의 크기

유압에 의한 압축은 고압을 사용할 경우, 연결부위에서 오일 누설의 가능성이 크므로, 폐기물의 크기가 작은 것이 바람직하다. 반면에 용융법은 폐기물의 크기 증대가 용이하다.

2.3 구조재 폐기물 처리 방안 도출

위에서 언급한 처리방법 및 처리시 여러 인자를 고려하여 구조재 폐기물 처리 방안에 대한 도출 경로를 Fig. 1에 도시하였다[4].

구조재 폐기물 처리 최적방안 도출 경로

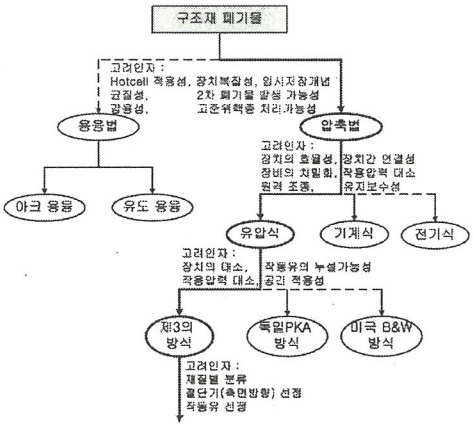


Fig. 1. Flow chart of treatment approach for structural material waste

3. 결론

구조재폐기물의 처리방법은 여러 인자, 특히 핫셀 적용성을 고려할 때 용융법보다는 압축법이 바람직한 것으로 나타났다. 압축에 의한 구조재폐기물은 향후 기술수준에 따라 보다 향상된 기술로 처리할 수 있도록 임시 저장의 개념도 있는 방법이다. 압축법에서는 유압식이 여러 인자를 고려할 때 바람직하며, 구조재폐기물 전체를 일시에 압축하는 것보다 재료별로 분리하여 모으고, 원하는 크기로 절단하여 건식으로 압축처리하는 방식이 바람직한 것으로 사료된다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력중장기과제의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] 2008 원자력연감(I), 한국원자력협회, "제4장 사용후핵연료현황", pp.351-364.

[2] 김영환 외, "핵연료집합체 구조폐기물 압축기술 개발", KAERI/TR-1442/99.

[3] 민병연 외, "방사성금속폐기물의 용융시 방사성핵종의 분배특성", Korean Chem. Eng. Res., vol.45, No.6(2007) 627-632.

[4] 나상호 외, 사용후핵연료 집합체 구조재의 폐기물 처리 방안의 최적화, KAERI/TR-4218/2010.

제4분과

방사성폐기물 처분 및 부지특성 (Oral)

빈 면

처분용기 개선에 따른 CANDU 사용후핵연료 처분효율 향상

이종열, 조동건, 국동학, 이민수, 최희주
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
njylee@kaeri.re.kr

1. 서론

우리나라에서의 사용후핵연료를 포함하는 고준위폐기물 처분을 위한 연구는 1997년부터 시작하여 한국형 사용후핵연료 기준 처분시스템 개발을 완료하였으며, 현재는 개발된 기술에 대한 실험실 및 현장 실증 그리고 처분시스템의 효율을 향상시키기 위한 다양한 연구를 진행하고 있다. 또한, PWR 사용후핵연료는 농축 우라늄을 사용하는 핵연료로 적절한 처리공정으로부터 재활용 가능물질을 회수하는 재순환주기를 고려하여 재활용을 위한 공정연구를 수행하고 있어 이 공정으로부터 발생하는 고준위폐기물에 대한 처분연구를 수행하고 있다. 그러나, CANDU 사용후핵연료는 농축하지 않은 천연우라늄을 사용한 핵연료로 여러 측면에서 재활용 가능성이 낮은 것으로 판단하고 있다. 따라서, 본 논문에서는 직접처분이 예상되는 CANDU 사용후핵연료에 대해서 기존의 한국형 처분시스템인 KRS를 바탕으로 처분효율을 분석하고 그 향상방안 도출하였다. 이를 위하여 기존에 개발한 한국형 사용후핵연료 처분시스템의 처분용기 개념에 대한 개선방안을 도출하고 이에 대하여 처분시스템의 열적요건을 만족시키는 처분개념을 설정하여, 처분면적, 열용량, 처분용기 재료량, 굴착량, 완충재량 등 기술적 효율성 측면에서 비교·분석하여 최적의 방안을 제시하였다.

2. 대안개념 도출

2.1 CANDU 처분용기 개선

기 개발된 한국형 사용후핵연료 처분시스템에서는 CANDU 사용후핵연료 처분용기와 PWR 사용후핵연료 처분용기의 외관제원을 동일하게 설정하였는데, 이는 포장/처분 공정의 효율성 및 취급 용이성을 위함이었다. 이때 CANDU 처분용기의 경우는 사용후핵연료 33다발을 9단으로 적재하여 총 297 다발 용량이었다. 한국형 사용후핵연료 처분시스템 개발 이후 현재는 PWR 사용후핵연료의 경우 유용한 자원 재활용 공정에 대한 연구를 진행하고 있으므로, 이에 맞추어 이 공정으로부터 발생하는 고준위폐기물을 처분하는 방안에 대한 고려가 필요하다. 그리고 재활용 가능성이 희박하여 직접 처분을 고려하고 있는 CANDU 사용후핵연료에 대해서는, 처분효율 향상을 위한 연구를 수행하고 있으며, 이의 일환으로 원자력발전소에서 사용 중인 60 다발용 저장 바스켓을 그대로 처분용기에 포장하는 개선된 처분용기 개념을 도출하였다. 이로부터 바스켓 적재 용량에 따라 4종류의 개선된 처분용기 개념을 도출하였다.

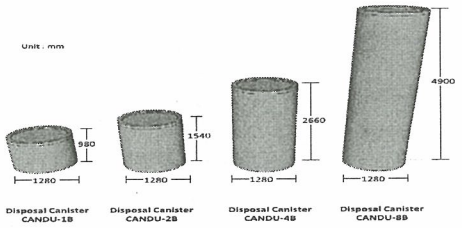


Fig. 1. 개선된 처분용기 개념

2.2 대안 처분개념

CANDU 사용후핵연료 처분효율 향상을 위한 대안 처분개념은 현재 원자력발전소에서 사용하고있는 저장 바스켓을 그대로 적재하도록 개선한 처분용기를 바탕으로 도출하였다. 즉 저장바스켓 적재용량에 따른 처분용기의 종류에 따라 4개의 대안개념을 도출하였으며, 각 개념에 있어서 처분공에 처분되는 처분용기의 수는 각각 1, 2, 4, 8개로 동일한 처분용량인 CANDU 사용후핵연료 480번들을 처분할 수 있도록 하였다.

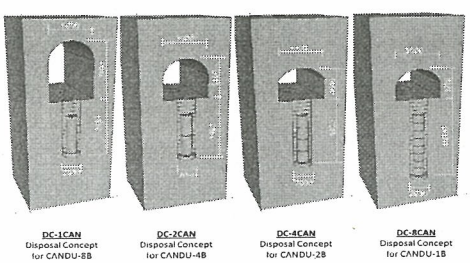


Fig. 2. 개선된 처분용기에 따른 처분개념

이들에 대한 열해석을 통하여 열적 요건을 만족하는 처분터널 간격과 처분공 간격을 결정하여 처분개념을 도출하고, 각 처분개념에 대한 비교 분석 결과를 토대로 최적의 대안개념을 제시하였다.

2.3 열해석 및 결과

처분효율 향상을 위하여 도출된 각 처분개념에 있어서 완충재의 온도에 대한 설계요건을 만족하는 처분터널간격 및 처분공 간격을 도출하기 위하여 열해석을 수행한 결과로서 그림 3에 처분공에 2개의 처분용기가 처분되는 개념에서의 완충재 블록에 대한 온도이력 보여주고 있다. 처분터널 간격을 40 m로 최고온도를 95 ℃도로 고정하였을 경우 각 처분개념의 처분공 간격은 5.3, 4.9, 4.3 및 4.3 m로 결정되었다.

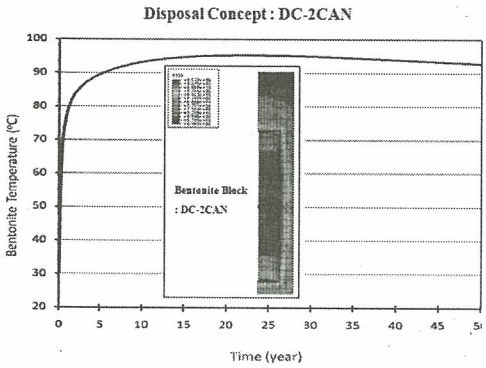


Fig. 3. 처분개념에 대한 열해석 결과

2.4 대안별 효율분석

사용후핵연료 심지층 처분시스템의 효율성을 판단하는데 있어 처분구역 단위면적당 수용할 수 있는 U-density에 대한 분석은 중요한 인자이다. 따라서, 경제적인 관점에서 볼 때, 처분시스템의 열적요건을 만족하는 범위에서 단위처분면적을 최소화하는 것이 바람직하고(표 1), 처분시스템의 주요 제한요소인 사용후핵연료에 포함되어 있는 우라늄을 단위면적에 수용할 수 있는 양을 극대화하는 방안으로 설계하는 것이 필요하다.

Table 1. 대안별 처분효율 분석

Disposal concepts	KRS-1	DC-1C	DC-2C	DC-4C	DC-8C
Capacity (bundles)	298	480	480	480	480
Unit Disposal Area	160	212.0	196.0	184.0	172.0
U-Density(kU/m^2)	35.26	43.0	46.5	49.6	53.023
Disposal efficiency	1	1.22	1.32	1.40	1.49

또한, 처분용기에 소요되는 구리 및 주철 재료와 완충재 및 뒷채움재의 소요량을 최소화하는 방향으로 설계하는 것이 바람직하다.

CANDU 사용후핵연료 처분을 위한 대안 개념은 처분공에 동일한 용량의 사용후핵연료를 처분하되 처분용기 용량에 따라 그 수를 달리하여 처분하는 개념으로 설정하였다. 따라서 본 분석에서는 각 개념별 처분효율과 그에 따른 처분용기 재료 및 완충재/뒷채움재의 증감을 고려하여 가장 효율적인 방안은 처분공에 2개의 처분용기를 처분하는 개념으로 나타났다.

3. 결론

본 연구에서는 CANDU 사용후핵연료 처분시스템의 효율성 향상을 위하여 기존 처분용기를 개선하여 1개 처분공에 동일한 용량의 사용후핵연료를 처분하는 4개의 처분개념을 설정하였다. 각 개념에 대하여 열적요건을 만족하는 처분공/처분공 간격을 설정하고, 그 결과에 따라 단위처분구역, 단위우라늄 용량, 처분용기 재료량 증가량, 완충재 증가량 및 굴착량 감소량 등을 분석하였다.

분석한 결과는 처분용기를 2단으로 처분하는 개념이 가장 바람직한 방안으로 나타났으며, 이때 처분효율은 기존 한국형 처분시스템 개념에 비하여 약 30 %정도 향상되었음을 확인하였다.

향후 상기 향상된 개념을 보다 구체화하고 실제 처분장 지역 자료을 활용한 열적/구조적 거동 등에 대한 상세분석이 필요하다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행하였습니다.

5. 참고문헌

[1] 최희주, 이종열, 최종원 외, "고준위폐기물 한국형 처분시스템 개념설계 요건," 한국원자력연구소, KAERI/TR-3003/2005, 2005.

[2] 이종열 외, CANDU 처분용기 열적-구조적 안정성평가, 방폐학회지, V.6, No.3, 2008.

[3] 최희주 외, "처분시스템 개발," 한국원자력연구원, KAERI/RR-3100/2009, 2010.

파이로 폐기물중 I-129의 처분 안전성에 미치는 영향 평가

강철형, 정종태
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
chkang@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에서는 KIEP-21 (Korean, Innovative, Environmentally Friendly, and Proliferation Resistant System for the 21st Century)이라는 선진핵연료주기 개념을 설정하고 이를 위하여 Pyro-Process와 SFR 개발에 주력하고 있다. Pyro-Process를 통하여 다양한 종류의 폐기물이 발생된다. 이러한 각기 다른 종류의 폐기물을 처분하기 위한 시스템인 선진핵연료주기 폐기물 처분 시스템 (A-KRS) 개념을 개발되고 있다. 현재 이들 파이로 폐기물에 대하여 고려하고 있는 개념에 따르면 금속 폐기물과 고준위폐기물의 경우는 처분을 하고 Cs, Sr 등의 고열량 폐기물은 열량이 충분히 낮아질 때까지 보관을 하며 I-129를 포함한 폐기물의 경우는 추후 고속로나 소멸로에서 소멸 처리하는 것으로 되어 있다. I-129은 용해도가 크고 흡착이 거의 되지 않으며 반감기가 1.59 x 10^9 년으로 장반감기 핵종의 하나이다. 따라서 I-129의 경우는 처분안전성 평가 기간의 초기부터 후반부까지 가장 중요한 영향을 미치는 핵종으로 알려져 있다. 본 논문에서는 A-KRS 시스템에 처분되는 파이로 폐기물의 처분 안전성에서 소멸 처리 계획인 I-129의 영향을 평가하여 보았다.

2. 평가 결과 및 토의

선진핵연료주기 처분 안전성 평가 프로그램은 Goldsim [1]을 이용하여 개발되었으며 복잡한 처분시스템을 평가할 수 있도록 되어 있다 [2]. 즉 각기 다른 형태의 여러 종류의 폐기물을 다양한 방법으로 처분하는 A-KRS를 평가할 수 있도록 설계되었다 (그림 1과 2 참조).

처분 안전성평가를 위하여 기준 사용후핵연료 (PWR 4.5 wt% U-235, 45,000 MWD/MTU, 5 years cooling)를 가정하고 이 기준 사용후핵연료로 pyro-process 공정을 거쳤을 때 나오는 폐기물의 양을 계산하였다 [2-4].

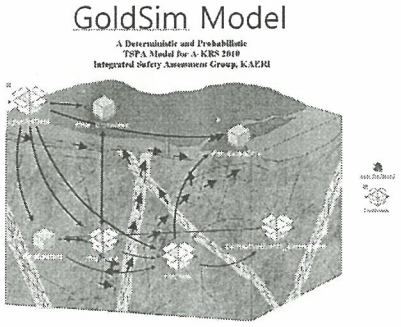


Fig. 1. GoldSom으로 개발한 처분 안전성 평가 시스템

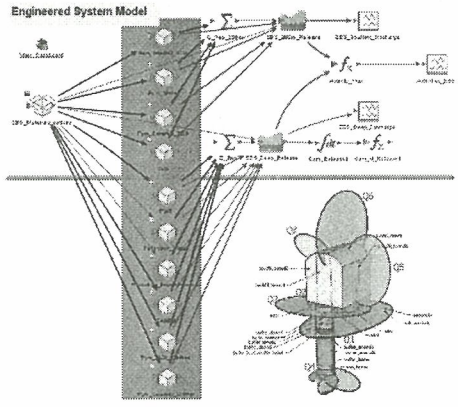


Fig. 2. Schematic View of an EBS for Different Waste Streams

그림 3는 처분 용기의 수명을 1,000년, 폐기물 고화체의 유출율을 10^{-5} 1/yr로 가정하였을 경우 파이로 폐기물을 현재 개념에 따라 고준위 폐기물과 금속 폐기물만을 A-KRS에 처분했을 때 처분 안전성평가 결과이다.

그림 4의 경우는 I-129을 소멸 처리하지 않고 고준위폐기물 및 금속 폐기물과 함께 처분하는 경우의 안전성 평가 결과이다. 그림 3과는 달리 1,000년부터 10^6년까지 I-129의 영향이 매우 큰 것을 알 수 있다.

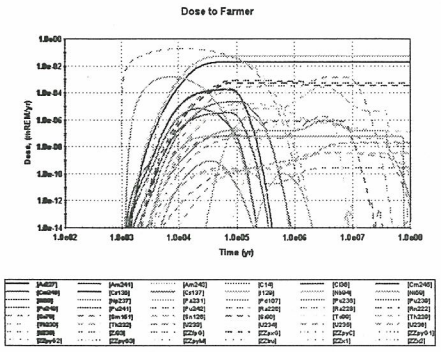


Fig. 3. 고준위 폐기물과 금속 폐기물 만을 처분할 경우

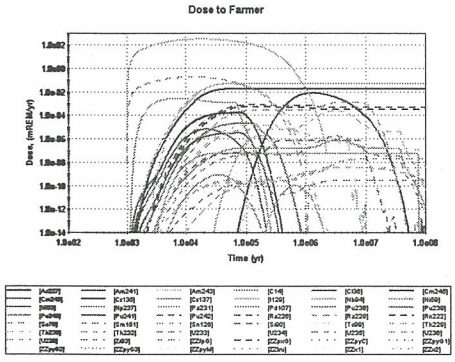


Fig. 4. I-129을 소멸처리 하지 않고 고준위 폐기물, 금속폐기물과 함께 처분할 경우

그림 5는 I-129을 소멸 처리할 경우 DF (Decontamination Factor 에 따른 처분 안전성 결과를 보여 준다. 여기서 DF는 다음과 같이 정의된다.

$$\text{Decontamination Factor} = \frac{\text{mass of nuclide in feed}}{\text{mass of nuclide in waste}}$$

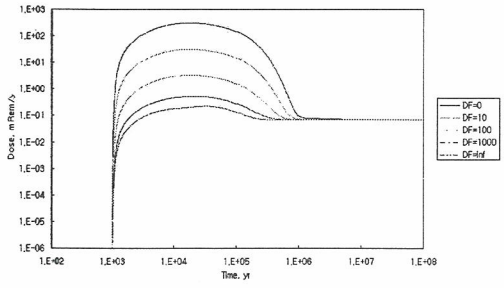


Fig. 5. I-129을 소멸 처리할 경우 DF에 따른 안전성

현재 기술로는 I-129의 DF는 50 ~ 100의 값을 가진다. 여기서 DF=0은 소멸을 하지 않는 경우로 그림 4의 결과와 같으며 DF=∞는 I-129이 100% 소멸되는 경우로 그림 3의 결과와 같아진다.

본 논문에서 I-129이 처분 안전에 미치는 영향은 매우 큼을 확인할 수 있다. 따라서 I-129의 경우는 처분하기 전 소멸을 하여 그 양을 줄이는 것이 필요함을 알 수 있다.

3. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발 중장기계획사업의 일환으로 수행되었음.

4. 참고문헌

[1] Goldsim, Goldsim Contaminant Transport Module, User's Guide, Goldsim Technology Group, 2006.

[2] Y. Hwang and C. H. Kang, "The Development of a Safety Assessment Approach and its Implication on the Advanced Nuclear Fuel Cycle," NET, 42 [1], 2010.

[3] 강철형, "선진핵연료주기 폐기물 처분안전성 평가," 한국방사성폐기물학회, 2009년 춘계학술발표회 논문요약집, 2009.

[4] 강철형, "A-KRS에 처분한 파이로 폐기물의 처분 안전성 평가 민감도 분석," 한국방사성폐기물학회, 2010년 추계학술발표회 논문요약집, 2010.

철과 마그네타이트에 의한 Se-75의 이동저지 영향

김승수, 민제호, 이승엽, 백민훈
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
nsskim@kaeri.re.kr

1. 서론

반감기가 $1.1x10^6$년으로 장수명 핵종인 Se-79는 심부지하에서 selenite로 존재할 경우, 이 핵종의 이동성이 클 수 있다. 당 연구실에서는 selenite가 처분용기의 부식 생성물인 마그네타이트에 잘 흡착하지만, 일반적으로 지하수에 과량 존재하는 탄산이온, 규산이온 등이 selenite의 마그네타이트 흡착을 방해하는 것을 확인한 바 있다 [1]. 그러나 이 실험은 비교적 지하수나 처분장에서 예상되는 셀레늄 농도보다 높은 10^{-4}~10^{-6} mol/L 영역에서 실시되었다.

한편, 처분용기가 지하에서 부식되어 셀레늄이 지하수에 노출된 경우, 셀레늄은 철산화물 뿐만 아니라 철과도 접할 것이다. 이 때 철과 철산화물 표면은 이미 벤토나이트나 지하수에 포함된 탄산이온 혹은 규산이온으로 포화되어 있을 것으로 예상된다.

본 연구에서는 실제 처분장에서 방사성폐기물로부터 유출된 셀레늄의 농도가 매우 낮을 것을 고려하여 Se-75를 이용하여 기존 실험보다 1~3승수 낮은 농도에서 실험하였다. 또한, 철과 철산화물, 그리고 이들이 규산이온으로 포화된 조건에서 셀레늄의 거동에 미치는 영향을 조사하였다.

2. 실험

셀레늄의 거동에 미치는 처분용기 재질의 영향을 조사하기 위하여 고체 매질로서 마그네타이트와 철 분말을 사용하였다. 분말 0.5 g을 $1.0x10^{-7}$ ~ $2.0x10^{-9}$ mol/L 농도를 갖는 selenite 형태의 Se-75 용액에 가한 후, $NaClO_4$을 넣어 용액중 이온강도를 0.02 mol/L로 조절하였다. 그 후, 소량의 $HClO_4$과 NaOH를 첨가하여 용액의 pH를 약 9로 조절한 후 7일동안 반응시켰다. 규산이온이 첨가된 용액의 경우, 반응초기 규산이온의 농도는 화강암 지하수중 농도를 고려하여 1 mM로 조절하였다. 규산이온으로 포화된 마그네타이트와 철 분말을 얻기 위하여 이들을 각각 과량의 규산이온 용액에 3일간 반응시킨 다음 건조시켰다. 포화시킨 분말도 동일한 방법으로 흡착반응 실험에 사용하였다. 반응후 상등액을 0.2 μm의 공극크기를 갖는 polyethersulfone 필터로 거른 다음, 용액중에 녹아있는 셀레늄의 양을 ϒ-spectrometry로 측정하였다.

3. 결과 및 토의

Table 1에서 보는 바와 같이 마그네타이트 분말을 selenite 용액에 첨가하였을 때 대부분의 selenite가 마그네타이트에 흡착하였다. 그러나 규산이온이 용액중에 존재할 경우, $1.0x10^{-7}$~$1.0x10^{-8}$ mol/L과 같이 낮은 농도의 selenite도 마그네타이트에 거의 흡착되지 않았으며, 규산이온으로 포화시킨 마그네타이트 역시 selenite를 흡착하지 않았다. 한편, 철 분말을 첨가한 경우는 마그네타이트를 첨가한 경우보다 반응후 용액의 pH가 약간 높으므로, selenite의 흡착이 감소하여야 하나, 1 mM의 규산이온 용액에서도 철 분말이 용액중 selenite 농도를 낮추었다. 또한, 규산이온으로 포화시킨 철 역시 용액중 selenite 농도를 감소시켰다. 이러한 현상은 고체 표면에 selenite가 흡착하는 마그네타이트와 달리 철에 의해서 selenite가 환원되는 것으로 생각된다. 왜냐하면 규산이온이 이미 철 표면의 반응 site를 점유하고 있는 상태에서 용액중 selenite 농도가 감소하였기 때문이다. 또한, 철 분말을 증류수에 가하였을 경우, 수소 발생은 물론 용액중 산화환원전위(Eh)가 -0.25V 이하로 크게 낮아지는 것을 관찰한 바 있다.

4. 결론

처분용기 부식생성물인 마그네타이트와 달리 철은 규산이온이 용액중에 과량 존재할 경우에도 용액중 selenite 농도를 낮추었다. 이러한 현상은

처분공 근계에서 처분용기 파손후 마그네타이트로 산화되지 않은 철 조각이 존재할 경우, 이 철이 지하수의 산화환원전위를 낮추어 셀레늄을 침전시킴으로서 selenite의 이동을 지연시킬 것으로 판단된다.

Table 1. The distribution constant (K_d) of Se-75 onto magnetite and iron powder presaturated or non-treated with silicate.

Solid	Selenite (μM)	Na_2SiO_3 (mM)	Final pH	K_d (mL/g)
Magnetite	0.1	-	8.8	480
	0.1	1.0	8.8	< 5
	0.01	1.0	8.8	< 5
Silicate-saturated Magnetite	0.1	-	9.1	< 1
	0.01		9.1	< 1
Iron	0.1	-	9.3	> 10^4
	0.1	1.0	9.3	> 10^4
	0.01	1.0	9.3	> 10^4
	0.002	1.0	9.3	> 10^4
Silicate-saturated Iron	0.1	-	9.3	2300

5. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 지원으로 수행되었습니다.

6. 참고문헌

[1] 김승수, 민제호, 이재광, 백민훈, 최종원, 한국방사성폐기물학회 학술논문요약집 2010년 추계, 211-212, 2010.

Acoustic Emission 모니터링 데이터의 Time-Frequency 기법 적용을 통한 처분장 현장암반에서의 소음원 위치추정 분석

김진섭, 이경수, 권상기, 조계춘*
한국원자력연구원, 대전 유성구 대덕대로 1045
*한국과학기술원, 대전 유성구 과학로 335
kverity@kaeri.re.kr

1. 서론

Acoustic Emission(AE)법은 비파괴시험의 일종으로, 균열 발생 시 균열의 위치표정 및 발생한 균열의 파괴모드와 방향성 그리고 구조물의 피해정도에 대한 정성적·정량적 분석이 가능하다. 이로 인하여 국외의 경우 지하 공간을 활용한 석유비축기지, 터널, 지열저류암반, 방사성폐기물처분장 등에서 균열 발생과 균열 특성 그리고 이에 따른 구조물의 안정성 평가에 널리 사용되고 있다.

하지만 AE 관련 연구의 실험은 주로 실내실험에 국한되어 있고, 균열발생 위치추정을 위해서는 주로 초기도달 P파의 추출을 통한 시간차(TOAD: Time-of-arrival-difference)를 이용한다. 그러나 현장암반의 경우 필터링을 효율적으로 한다할지라도 초기 도달 P파를 검출하는데 실험자의 주관과 노이즈가 상당부분 포함이 되게 된다. 따라서 본 연구에서는 AE 데이터를 분석하는데 Wigner-Ville Distribution 이란 시간-주파수 신호분석 기법을 활용하여, 가능한 실험자의 주관과 현장암반의 절리영향을 최소화할 수 있는 위치추정 기법을 시도하였다.

2. Time-Frequency 신호분석

2.1 Wigner-Ville Distribution

현장암반 내에서 전파되는 신호는 분산특성(dispersive media)이 존재하므로 계측 신호는 주파수 별로 에너지의 전파속도가 다르기 때문에, 시간 및 이동 거리에 따라 전체 파형이 변화한다. 따라서 파의 전파특성을 정확하게 관찰하기 위해서는 시간에 따른 도달 주파수 성분을 분석할 수 있는 비 정상상태 신호분석 방법이 필요하다. 본 연구에서는 이러한 방법 중에서 시간 및 주파수 분해능을 동시에 향상시킬 수 있는 위그너-빌 분포(Wigner-Ville Distribution)를 사용하였다.

$$W(t,w) \equiv \int z(t+\frac{\tau}{2}) z^*(t-\frac{\tau}{2}) e^{-j\omega\tau} d\tau$$
$$= \int z^*(\omega+\frac{\varphi}{2}) z(\omega-\frac{\varphi}{2}) e^{-jt\varphi} d\varphi \quad \cdots\cdots (1)$$

3. 실험재료 및 장치

암석시료에 대한 위치추정 기법을 적용하기 위하여 화강암 시편(LxWxH: 152x196x503 mm, 단위중량 :2,670 kg/m^3)을 사용하였다. AE센서(AE603SW-GA: Φ20x20H mm)는 60±20% (kHz)의 공진주파수를 가지며, 민감도가 115 dB이다. 샘플 데이터는 4096개, 그리고 샘플링 간격은 2usec이었다. 소음원으로는 52kHz의 초음파 펄서(Ultracon-2020: Φ37x47H mm)가 사용되었다.

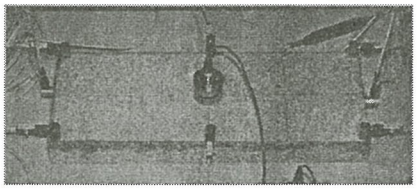


Fig. 1. Test speciment and AE sensor array.

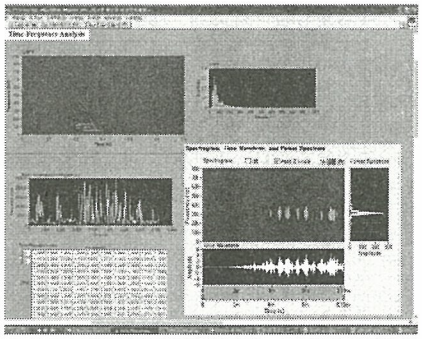


Fig. 2. Signal processing algorithm with LabVIEW.

현장암반에서의 시간-주파수 분석을 통한 소음원 위치추정을 위하여 지하처분연구시설(KURT)를 대상으로 현장실험을 수행하였다(Fig. 3). 소음원으로는 임팩트 해머를 이용하였으며 암반 시추공 깊이 별로 타격을 하였다.

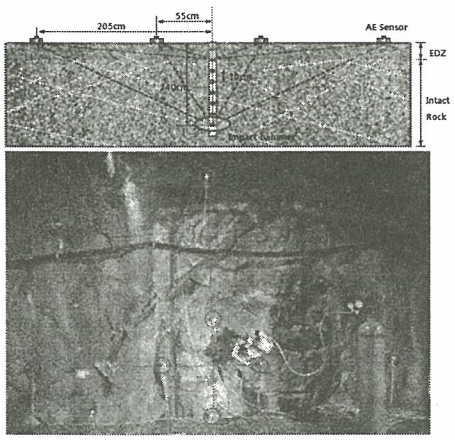


Fig. 3. Field application of Time-Freq. analysis.

4. 실험결과 및 분석

4.1 실내실험을 통한 소음원 위치추정

실내실험을 통해 측정한 신호의 위치표정 결과를 아래의 Table. 1에 나타내었다. TOAD 방법을 이용한 위치추정을 수행한 결과 최대 오차가 1.5cm이었으며, WVD을 통한 위치추정 최대오차는 2.9cm이었다.

전반적으로 TOAD 방법을 통한 위치추정 결과가 WVD에 비해 더 정확한 결과를 도출하였다. 이는 신호발생 장치로 사용한 초음파 펄서의 직경이 47mm로 AE 센서(25mm)에 비해 2배 가량 크고, 상대적으로 시료의 크기가 작아 탄성파의 전파시 source directivity가 존재하기 때문인 것으로 판단된다.

Table 1. Comparisons of source location data measured from TOAD and WVD methods.

Source position	Real position (cm)			TOAD (cm)			WVD (cm)		
	X	Y	Z	X	Y	Z	X	Y	Z
Center	0.0	0.0	0.0	0.2	0.7	0.0	0.0	1.8	0.0
Right-center	7.6	0.0	25.1	6.6	1.0	24.9	7.6	0.0	22.2
Center-upper	0.0	9.8	25.1	0.0	9.7	23.6	0.0	9.8	23.4

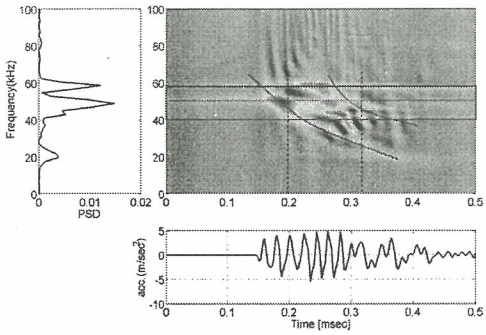


Fig. 4. Time-frequency analysis by using WVD at Ch.7

4.2 현장암반의 소음원 위치추정

현장암반의 소음원 위치추정 결과를 아래의 Fig. 4에 나타내었다. 현장실험 결과 대부분의 위치표정은 0.6m 이내의 정확도를 보였으며, 암반손상 구간에서는 상대적으로 큰 오차가 발생하였다(1.1m).

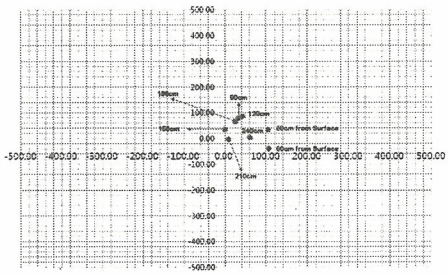


Fig. 5. Field application of AE source localization with the time-frequency signal processing.

5. 결론

WVD 알고리즘을 이용한 신호의 시간-주파수 분석을 통해 AE의 위치표정 적용가능성을 확인할 수 있었다. 현재로선 WVD의 정확도를 더욱 높이고, 신호처리시 혼신성분(cross term)의 효율적인 제거가 과제로 남아있다. 본 기술의 확립을 통해 주파수 별로 현장암반의 감쇠계수를 측정(spectral ratio 기법)할 수 있으며, 이는 균열 발생위치에서의 정량적인 균열 에너지를 추정하는데 기여할 수 있을 것으로 예상된다.

6. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국과학재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

사용후핵연료 처분을 위한 국외 부지선정 프로그램에 관한 고찰

정재열, 정해룡, 김현주, 김민정
한국방사성폐기물관리공단, 대전 유성구 대덕대로 1045
jjy@krmc.or.kr

1. 서론

우리나라 원전에서 발생하는 사용후핵연료는 2007년 말 기준으로 약 10,300tU이 원전 내 임시저장고에 저장되어 있다. 따라서 지속적인 원자력사업 수행을 위해 사용후핵연료에 대한 체계적인 관리정책 수립이 필수적이다. 사용후핵연료 관리정책의 최종 목표는 지하 심부에 처분하여 사용후핵연료를 인간과 자연환경으로부터 완전히 격리하는데 있다. 이와 같은 심지층 처분기술은 국제적으로 가장 안전한 관리방법으로 평가되고 있으며, 미국, 프랑스, 일본, 영국, 스웨덴, 핀란드, 독일, 스위스 등과 같은 원자력 선진국에서도 심지층 처분을 채택하고 있다. 이들 국가 중 스웨덴과 핀란드는 사용후핵연료 심지층 처분을 위한 부지를 선정하였으며, 현재 선정 부지에 대한 인허가 절차를 진행 중에 있다. 그 외 국가들은 부지선정 작업을 수행하고 있다.

국내의 사용후핵연료 처분을 위한 기술개발은 원자력 선진국에 비하여 초보단계이며, 자체적인 부지확보 프로그램을 마련하지 못한 실정이다. 따라서 본 연구에서는 원자력 선진국들의 사용후핵연료 처분시설 부지선정절차를 분석하여 국내 사용후핵연료 관리정책 수립과 사용후핵연료 부지선정 프로그램 개발에 기초자료로 활용하고자 한다[1].

2. 본론

2.1 스웨덴

사용후핵연료 관리 정책을 조기에 수립하였으며, 1992년 부지선정계획을 수립함으로써 체계적인 프로그램 개발 및 추진을 시작하였다(Table 1). 1976년부터 약 30년 이상 장기간에 걸쳐 지질정보 확보 프로그램을 운영 중에 있으며, 국내외 정보공개로 대국민 및 국제적 신뢰를 확보하고 있다. 또한, 화강암지역에 대한 지하처분연구시설(URL)을 운영하여 적극적인 국제공동연구를 시행하고 심지층 처분시설 부지선정 프로그램의 국외 수출을 모색하고 있다.

2.2 핀란드

사용후핵연료 관리 정책을 조기에 수립하고, 세계에서 가장 먼저 사용후핵연료 심지층 처분시설 부지를 올킬루오토(Olkiluoto)로 선정하였다. 1983년 정부가 수립한 심지층처분 프로그램에 대한 의회의 승인이 이루어지면서 단계계획이 수립되었다. 핀란드 자체의 부지독립 지하처분연구시설 없이 스웨덴, 스위스 등의 URL을 활용하여 활발한 국제공동 실증연구를 수행중이다.

2.3 스위스

부지선정을 위해서는 주정부와 주의회, 연방위원회, 연방의회의 승인을 받아야 하며, 마지막으로 국민투표를 실시하여야 한다. 이로 인해 마지막 단계에서 부지선정 프로그램이 백지화가 될 수 있는 복잡한 승인절차를 이루고 있다. 실제로 웰렌베르그(Wellenberg)의 중저준위폐기물 처분후보부지는 지역주민 투표에 의해 철회된 바가 있으며, 이후 전국민 투표로 변경하였다. 2006년 단계계획(Sectoral plan)을 수립하고 3단계 절차를 명시하고있다. 전국토에 대한 자세한 지질정보를 확보하고 있기 때문에 10년 이내 심지층 처분시설 부지선정이 가능할 것이라 예상하고 있다. 퇴적암과 화강암에 대한 URL 운영하며, 국제공동연구를 통해 처분기술 실증연구를 수행 중에 있다.

2.4 프랑스

1980년대 고준위폐기물 처분시설 부지조사 작업이 대규모 반대시위로 인해 실패하였다. 이후 1991년 방사성폐기물관련 특별법을 제정하여 법적절차를 완비하고 처분 로드맵을 작성, 방폐물관리전담기관(ANDRA)를 재편성하였다. 대중의 적극적인 참여 유도를 위해 공개토론위원회구성 및 URL부지에 지역정보감시위원회를 설치하였다. 또한, URL에서의 처분기술 실증을 법적요건으로 규정하고 있다.

2.5 독일

1998년 원전의 영구폐쇄정책을 수립하고 현재 신규 원전 건설이 법으로 금지되어있으며, 방사성폐기물 관리정책 수립을 통하여 모든 종류의 방사성폐기물은 심지층 처분을 원칙으로 하고 있다. 고준위 방사성폐기물 처분부지로 고르레벤(Gorleben) 암염층을 고려하고 있다. 1999년 처분시설 부지 및 기준 선정 위원회(AkEnd위원회)를 조직하여 부지선정 일정 및

부지선정절차를 5단계로 제시하였다. 부지선정 단계별로 주민투표를 실시하여 대중 및 지역민의 적극적인 참여를 유도하고 단계별 기준 인자에 대한 가중치를 부여하여 부지선정의 객관화를 시도하고 있다.

2.6 영국

2008년 지층처분을 고려한 방사성폐기물 안전관리(MRWS)프로그램 백서를 발행하고 2009년 전담기관(NDA)의 추진전략 보고서 발행 및 프로그램 전략을 수립중에 있다. MRWS에서는 총 6단계의 부지선정 절차를 정의하였다. 부지선정은 지원제 및 파트너쉽 접근 방법을 기본으로 하며, 부지 부적합성 조사 기준을 확정하였다. 핀란드, 프랑스, 스웨덴 등과 국제협력을 하고 있으며, 특히 스웨덴의 전담기관(SKB)와 협력을 강화하고 있다.

2.7 미국

세계 최초의 심지층 처분시설 운영 국가로써 높은 기술수준을 확보하고 있으며, 자체 기술력에 의한 부지선정 및 처분시설 건설이 가능하다. 1957년부터 심지층 처분시설을 확보하기 노력하였으며, 초기에 암염층을 처분시설 기반암으로 추친하였다. 장기간 부지선정 프로그램을 운영하였지만, 격렬한 반대에 의해 부지선정 계획이 변경되고 있다. 1982년 의회의 적극적인 개입에 의해 방사성폐기물정책법을 제정하고, 부지선정 절치 및 기준, 프로그램을 개발하였으며, 처분시설 2곳(동부, 서부)을 명문화하였다. 1984년 부지선정 가이드라인(10 CFR Part 960)에서 6단계의 부지선정절차를 확정하였다. 1997년 방사성폐기물정책법을 개정하여 유카산(Yucca Mountain)을 사용후핵연료 심지층 처분시설 부지로 지정하였으나 현재 오바마 행정부에 의해 블루리본위원회(BRC) 구성 및 국가 사용후핵연료 관리정책을 재검토하고 있다.

2.8 일본

2000년 고준위폐기물 최종처분에 관한 법률을 제정하여 사용후핵연료는 재처리하며, 재처리 시설에서 발생하는 고준위폐기물은 최종 처분 수행하도록 하고 있다. 고준위폐기물 처분시설 부지에 대한 전국 공모를 실시하여 고치현 토요타운의 신청을 접수 후, 부지조사 착수에 대한 정부의 승인을 획득하였다. 그러나, 반핵 단체 및 지역주민의 반대 운동으로 무효화 되었으며, 지자체장의 사임 및 부지조사를 철회하였다. 최종처분법에 의해 부지선정 단계는 3단계로 이루어진다. 퇴적암과 화강암에 대한 URL을 운영하며 처분기술의 실증연구를 수행 중에 있다.

3. 결론

본 연구에서 분석한 원자력 선진국 중에서도 우리나라의 실정에 적합한 모델은 스웨덴, 핀란드, 일본, 스위스, 프랑스 등을 들 수 있다. 특히, 단계적이고 체계적인 부지선정 프로그램을 통하여 심지층처분 부지를 선정한 스웨덴과 핀란드의 경험은 우리나라가 향후 처분사업을 추진하는데 많은 참고가 될 것으로 판단된다. 또한, 우리나라 보다 높은 인구밀도와 지방자치시스템으로 구성되는 스위스의 다양한 사회적 의견을 수렴하여 해결하는 방법도 참고할 수 있을 것으로 판단된다. 우리나라 월성원자력환경관리센터 부지선정 프로그램과 유사한 공모제를 기본으로 사용후핵연료 부지확보 프로그램을 개발한 영국과 일본의 프로그램도 참고대상이 될 것으로 판단된다.

4. 감사의 글

본 연구는 2010년도 지식경제부의 재원으로 한국에너지 기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다. (*No. 2010T100200152*)

5. 참고문헌

[1] 국외 처분시설 부지선정 프로그램 분석보고서, 한국방사성폐기물관리공단, p.396, 2011

Table 1. Siting process

	스웨덴	핀란드	스위스	프랑스	독일	영국	미국	일본
단계 1	일반연구	광역부지조사	부지지역선정	계획	부적합지역배제	후보부지유치공모	부지선별	개요조사지역선정
단계 2	타당성연구	부지특성조사	최소2개부지선정	지역조사	선호지역선정	부적합성지표조사	부지가능지역확인	정밀조사지역선정
단계 3	부지특성조사	상세부지특성평가	부지선정	지하연구시설건설	후보부지선정	지역사회의견조사	후보부지지명	최종처분부지선정
단계 4	상세특성조사	부지확정		상세조사	최소2개후보부지조사	유치신청지역문헌조사	후보부지추천	
단계 5				심층탐사	부지선정	유치신정지역지표조사	부지확정	
단계 6				지상시설입지검토		지층처분 운영		

Analytical Modeling of the Pseudo-Colloid Migration with the Band release Boundary Condition in the Fractured Porous Media

Mi-Seon Jeong, Chul-Hyung Kang*, Yongsoo Hwang*
University of Science & Technology, 761 Gajungro, Yuseong-Gu Daejeon, KOREA
*Korea Atomic Energy Research Institute, 1045 Daedeokdaero, Yuseong-Gu, Daejeon, KOREA
jeongms@kaeri.re.kr

1. Introduction

The concept of deep geological disposal of high-level radioactive waste has been widely accepted at many countries. The repositories aim mainly to prevent the radionuclides form migrating to the biosphere through any one of many pathways. Fractures can act as main pathways for radionuclide transport because of their relatively high permeabilities. Many papers have already dealt with the problem of the raionuclide transport in various fractured porous systems, but without discussing daughter products. However, natural radionuclides may decay to radioactive daughter muclides, which may travel farther than the parent nuclides. It is considered the multi-member decay chain of the actinide nuclide with the band release inlet boundary condition in a fractured porous rock.

2. Mathematical Modelling

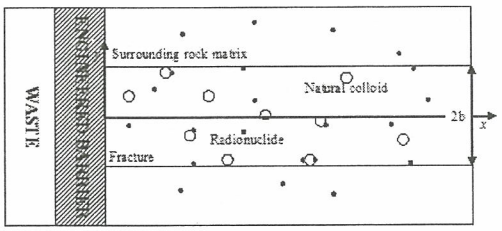


Fig. 1. The Pseudo-colloidand the solute migration in a fractured porous media

We consider the concentration of a radioactive solute, $C_{2i}(x,t)$ in the liquid phase in a thin fracture of a fractured porous rock. Also present in a fracture are the natural colloids, on which the solute can be sorbed to form the pseudo-colloids as shown in Fig.1 In the one-dimensional convective-diffusive transport within a fracture, and it is assumed that the colloids are too large to diffuse into the rock matrix. The governing equation of the pseudo-colloid migration is:

$$\epsilon_1\xi_1\frac{\partial C_{1i}(x,t)}{\partial t}+\epsilon_1\xi_1 v_1\frac{\partial C_{1i}(x,t)}{\partial x}-\epsilon_1\xi_1 D_1\frac{\partial^2 C_{1i}(x,t)}{\partial x^2}$$
$$+\epsilon_1\xi_1\lambda_i C_{1i}(x,t)-\epsilon_1\xi_1\lambda_{i-1}C_{1(i-1)}(x,t)+\epsilon_1 S_{1i}(x,t)-\epsilon_1 S_{2i}(x,t)=0$$
$$x>0,\ t>0 \quad \cdots\cdots (1)$$

where ϵ_1 is the ratio of the liquid volume to total volume in a fracture, $C_{1i}(x,t)$ is the amount of solutes sorbed on the colloid per an unit volume of the solid colloid, [kg/m^3], v_1 is the colloid velocity in a fracture, [m/yr], D_1 is the colloid dispersion coefficient, [m^2/yr], λ_i is the decay constant, [1/yr], ξ_1 is the constant volume fraction of natural colloids in a fracture, $\epsilon_1 S_{1i}(x,t)$ is the rate of sorption of pseudo-colloid to stationary fracture, and $\epsilon_1 S_{2i}(x,t)$ is that of desorption of solute from the pseudo-colloid.

For the same solute in liquid in a fracture

$$\epsilon_1\frac{\partial C_{2i}(x,t)}{\partial t}+\epsilon_1 v_2\frac{\partial C_{2i}(x,t)}{\partial x}-\epsilon_1 D_{2i}\frac{\partial^2 C_{2i}(x,t)}{\partial x^2}+\frac{q_i(x,t)}{b}$$
$$+\epsilon_1\lambda_i C_{2i}(x,t)-\epsilon_1\lambda_{i-1}C_{2(i-1)}(x,t)-\epsilon_1 S_{3i}(x,t)+\epsilon_1 S_{2i}(x,t)=0$$
$$x>0,\ t>0 \quad \cdots\cdots (2)$$

where v_2 is the solute velocity, [m/yr], D_{2i} is the solute dispersion coefficient, [m^2/yr], $\epsilon_1 S_{3i}(x,t)$ is the rate of solute sorption on the stationary fracture, b is the fracture half-width, [m], and $q_i(x,t)$ is the diffusive solute flux into the rock matrix, [kg/m^2·yr],

$$q_i(x,t)=-\epsilon_p D_{pi}\left.\frac{\partial N_i(x,y,t)}{\partial y}\right|_{y=b} \quad \cdots\cdots (3)$$

where y is the distance from the center of a fracture, [m], ϵ_p is the rock porosity, D_{pi} is the radionuclide diffusion coefficient in the rock matrix pores, [m^2/yr], and $N_i(x,y,t)$ is the radionuclide concentration in the pore water in the rock, [kg/m^3]:

$$R_{pi}\frac{\partial N_i(x,y,t)}{\partial t}-D_{pi}\frac{\partial^2 N_i(x,y,t)}{\partial y^2}$$
$$+R_{pi}\lambda_i N_i(x,y,t)-R_{p(i-1)}\lambda_{i-1}N_{i-1}(x,y,t)=0$$
$$x>0,\ t>0,\ y>0 \quad \cdots\cdots (4)$$

where R_{pi} is the solute retardation coefficient in the rock matrix.

For solute species sorbed on the stationary fracture

$$(1-\epsilon_1)\frac{\partial C_{3i}(x,t)}{\partial t}+(1-\epsilon_1)\lambda_i C_{3i}(x,t) \quad , x>0,\ t>0 \cdots(5)$$
$$-(1-\epsilon_1)\lambda_{i-1}C_{3(i-1)}(x,t)+\epsilon_1 S_{3i}(x,t)=0$$

where $C_{3i}(x,t)$ is the concentration of a sorbed solute on the stationary fracture, [kg/m^3].

For pseudo-colloids on the solid in the fracture;

$$(1-\epsilon_1)\xi_2\frac{\partial C_{1i}(x,t)}{\partial t}+(1-\epsilon_1)\xi_2\lambda_i C_{1i}(x,t) \ , x>0,\ t>0 \cdots(6)$$
$$-(1-\epsilon_1)\xi_2\lambda_{i-1}C_{1(i-1)}(x,t)-\epsilon_1 S_{1i}(x,t)=0$$

where ξ_2 is the constant volume fraction of the sorbed colloid on the solid phase in the fracture.

Linear sorption equilibrium between the solute species in the fracture and the same species sorbed on the colloid is assumed. Both the solute species and the colloids in the fracture are assumed to undergo the linear sorption equilibrium with the fracture solids:

$$K_{d1}=\frac{\xi_2}{\xi_1}, \quad K_{d2i}=\frac{C_{3i}(x,t)}{C_{2i}(x,t)}, \quad K_{d3i}=\frac{C_{1i}(x,t)}{C_{2i}(x,t)} \cdots (7)$$

The initial and boundary conditions are

$$N_i(x,\infty,t)=0, \qquad x>0,\ t>0 \cdots\cdots (8)$$

$$N_i(x,b,t)=\frac{C_{1i}(x,t)}{K_{d3i}}, \qquad x>0,\ t>0 \cdots\cdots (9)$$

$$N_i(x,y,t)=0, \qquad x>0,\ t>0 \cdots\cdots (10)$$

$$v_2 C_{2i}(0,t)-D_{2i}\frac{\partial C_{2i}(x,t)}{\partial x}\Big|_{x=0}=\frac{f_i(t)}{A}, \quad t>0 \cdots\cdots (11)$$

$$C_{1i}(\infty,t)=0, \qquad t>0 \cdots\cdots (12)$$

$$C_{1i}(x,0)=0, \qquad x>0 \cdots\cdots (13)$$

where $f_i(t)$ is the band release function, and A is the fracture cross-sectional area, [m^2].

The semi-analytical solution can be found using the Laplace Transform.

$$\widetilde{N_i}=\sum_{m=1}^{i}\frac{\widetilde{C_{1m}}}{K_{d3m}}\left(\prod_{r=m}^{i-1}\frac{R_{pr}}{D_{p(r+1)}}\lambda_r\right)\sum_{n=m}^{i}\frac{\exp[-\Phi_n(y-b)]}{\prod_{\substack{l=m\\ l\neq m}}^{i}(\Phi_n^2-\Phi_l^2)} \cdots (14)$$

$$\widetilde{C_{1i}}=\sum_{j=1}^{i}u_{ji}(s)a_j(s)\exp[\alpha_j(1-\gamma_j)x] \cdots\cdots (15)$$

3. Numerical Illustration

It is investigated the pseudo-colloid and radionuclide transport in a fractured porous medium with the band release B.C.

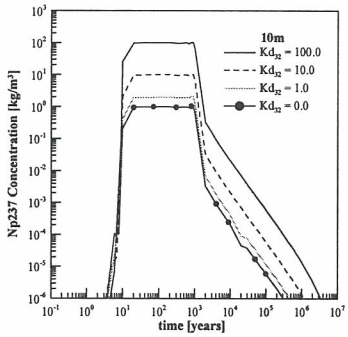


Fig. 2. the concentration profile of the Np237 with or without colloids

Fig.2 illustrates the effect of the amount of colloid in a fracture. The inlet boundary condition is applied the band release with decay, $e^{-\lambda_i t}\{h(t)-h(t-T)\}$. The total radionuclide concentration of NP237 which is the sum of solute and pseudo-colloid concentration are plotted. For this analysis, retardation and sorption coefficient of each radionuclide is assumed same, that is, Rp_i for all nuclides is 100.0 and $Kd2_i$ is 1.0. $Kd3_i$ is changed 0~100. As amount of colloid in the liquid phase in the fracture become increased, the transport is accelerated and the total concentration become high. And as expected, the radionuclide travel more distance as same time. Therefore it is indicated that the influence of the colloid in the fracture is significantly important in the geologic system.

4. Conclusions

In this paper, it is developed the pseudo-colloid migration with the band release inlet boundary conditions with multi-member decay chains in a fractured porous matrix. It is obtained a semi-analytical solution for the multi-member decay chains as a canonical form. As one can expected, the colloid has significantly important influence to the radionuclide transport in the geologic system and the decay chain also isn't neglecting.

5. Acknowledge

This Project is financially supported by the Ministry of Education and Science & Technology via KOSEF.

선량대방사능 환산 프로그램 개선

김태욱, 이나라, 강기두
한수원(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 금병로 508
taewook@khnp.co.kr

1. 서론

한국수력원자력(주)에서 개발한 선량대방사능(DTA[1]) 환산프로그램은 중저준위 방사성폐기물 드럼의 표면선량률을 드럼 내에 존재하는 핵종 방사능으로 환산하여 드럼 핵종재고량을 비용효과적인 방법으로 평가하는 기능을 한다.

기존에 개발된 프로그램은 비균질 드럼인 잡고체 드럼에 대해서만 밀도 보정을 하고, 그 밖의 드럼에 대하여는 표준밀도를 사용하여 선량대방사능 환산인자를 계산하므로 실제 드럼의 다양한 밀도를 반영하지 못하는 단점이 있었다.

또한 기존 프로그램은 매 드럼에 대하여 직접 표면선량을 입력하여 계산하여야 했기 때문에 일시적으로 많은 드럼의 계산 시 어려움이 있었다.

따라서 이러한 문제점 및 그동안 프로그램을 사용하면서 제시된 개선 요구사항을 반영하여 프로그램을 개선하였다. 개선 프로그램은 모든 밀도 범위의 드럼에 대하여 방사능 평가가 가능하며, 배치 프로그램을 이용하여 여러 드럼의 방사능 평가를 일괄적으로 수행할 수 있고, 척도인자의 로그선형회귀 방법에 대한 방사능 평가도 가능한 특징을 가진다.

2. 본론

2.1 드럼밀도 계산방법 개선

DTA 환산프로그램에서 사용하는 환산인자는 각 폐기물 드럼에서 단위 방사능당 발생되는 방사선을 MCNP[2] 전산코드 모사를 통하여 구한 표면방사선량률의 역수값이다.

DTA 환산인자는 폐기물 드럼 종류별, 핵종별로 얻어지는데, 이때 폐기물의 밀도는 기존 프로그램에서는 표준밀도를 사용하였다.

개선된 프로그램에서는 실제 드럼의 밀도를 반영하기 위하여 원전에서 발생된 드럼의 밀도 정보를 사용하여 최솟값에서 최댓값 사이의 3개 내지 5개 지점의 밀도에 대한 환산인자를 모사하고 실제 드럼 밀도의 환산인자는 이 값을 내삽하는 방법을 적용하였다.

또한 향후 발생되는 드럼이 현재의 밀도 범위(최솟값 ~ 최댓값)를 벗어날 가능성이 예상됨에 따라 최솟값 ~ 최댓값 범위를 초과하는 드럼에 대하여도 환산인자를 추정할 수 있도록 외삽루틴을 개발하여 모든 밀도 범위의 드럼에 대하여 방사능 평가가 가능하게 되었다.[그림 1]

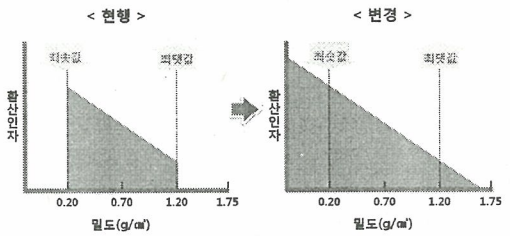


Fig. 1. The extrapolation method for DTA conversion factor applied to the drums which are out of the current density range.

2.2 다수의 드럼 일괄 평가

기존 DTA 환산프로그램은 총 12지점에서 측정된 표면선량률값, 드럼 무게, 드럼 형태 등을 입력하면 12개 지점 선량률의 평균값과 드럼의 밀도, 이에 적합한 DTA 환산인자를 사용하여 드럼의 방사능을 환산하게 된다. 사용자는 이를 위해 드럼 ID별로 입력하여 계산하므로 일시적으로 많은 드럼의 계산 시 어려움이 있었다.

이를 위해 개선된 프로그램에서는 엑셀파일에 입력된 드럼 정보를 사용하여 한 번에 다수의 드럼에 대한 방사능 환산이 가능한 일괄계산방법의 적용이 가능토록 하였다.

사용자가 드럼정보 마스터에 입력된 드럼정보(엑셀파일에 정리된 정보)를 이용하여 저장되는 폐기물 유형과 고화 유무 및 방식에 따라 총 24개의 드럼유형[표 1]을 일괄 평가할 수 있도록 하였다. 그림 2는 엑셀파일을 통한 선량대방사능 환산 과정을 보여준다.

1) DTA : Dose-To-Activity
2) MCNP : Monte Carlo N-Particle Transport Code

Table 1. The type of LLW drums where DTA conversion method can be applied (24 species)

폐기물 유형	드럼 종류	세부 명칭 및 특성	고화방식
잡고체	DOT-17H	일반형	-
		콘크리트 라이닝드럼(6cm)	-
	DOT-5B	일반형	-
농축폐액	DOT-17H	일반형	파라핀고화
		일반형	시멘트고화
		LDPE 내장형	파라핀고화
	콘크리트 드럼	Type I (C I)	시멘트고화
		Type II (C II)	시멘트고화
	DOT-5B	일반형	시멘트고화
폐수지	DOT-17H	일반형	건조
		일반형	시멘트고화
		콘크리트 라이닝 (5.4cm)	시멘트고화
		LDPE 내장형	시멘트고화
	고건전성 용기	강재 (Ferralium Alloy 255)	건조
		폴리에틸렌용기 (HDPE)	건조
	콘크리트 드럼	Type I (R I)	시멘트고화
		Type II (R II)	시멘트고화
	DOT-5B	일반형	시멘트고화
폐필터	DOT-17H	콘크리트 라이닝드럼 (6cm)	시멘트고화
		콘크리트 라이닝드럼 (18.4cm)	-
	콘크리트 드럼	Type II (F II)	시멘트고화
		Type IV (F IV)	시멘트고화
	DOT-5B	폐필터용	시멘트고화
슬러지	DOT-17H	※ 환산인자: B01(DOT-17H (200L))과 동일함	-

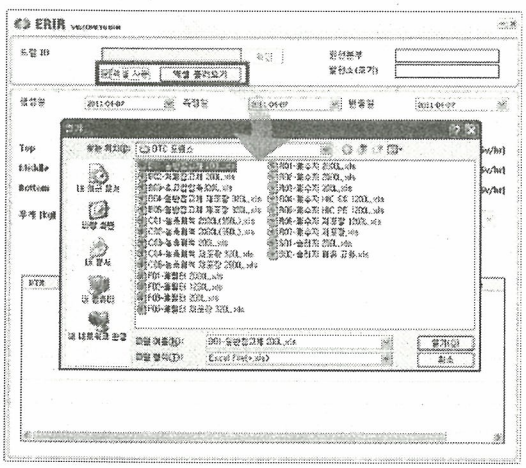


Fig. 2. DTA conversion batch process applying for a large number of drums at a time.

2.3 로그선형회귀 방법 적용

2009년도에 통합 척도인자가 도출되면서 잡고체, 고방사능 폐수지, 저방사능 폐수지, 농축폐액, 폐필터 등의 척도인자를 핵종간의 상관성에 따라 기하평균 및 로그스케일의 선형회귀 통계기법을 병행할 수 있게 되었다.[1]

따라서 개선 프로그램에서는 식 (1)과 같이 계산되는 기하평균 방법 외에 식 (2)와 같이 계산되는 로그선형회귀 방법을 통하여도 척도인자가 산출될 수 있도록 개선하였다.

$$\ln(SF) = \frac{1}{n} ZZ \sum_{i=1}^{n} \ln\left(\frac{A_{DTM_i}}{A_{Key}}\right) \quad \cdots\cdots\cdots (1)$$

여기서 SF : 핵종별 척도인자

A_{DTM_i} : DTM[3] 핵종

A_{Key} : Key 핵종

n : 척도인자 도출에 사용된 핵종 방사능 데이터의 개수

$$\ln(A_{DTM}) = F_1 \times \ln(A_{Key}) + F_0 \quad \cdots\cdots (2)$$

여기서 F_1 : 로그 차원의 1차 함수 기울기

F_0 : 로그 차원의 1차 함수 y 절편

3. 결론

향후 발생되는 드럼의 정확한 방사능 평가와 기존 사용자의 편리성을 도모하기 위해 선량대방사능 환산프로그램을 개선하였다.

프로그램 개선 결과 모든 밀도 범위의 드럼에 대하여 방사능 평가가 가능하고 다수의 드럼을 배치프로그램을 이용하여 일괄적으로 선량대방사능 계산이 가능하게 되었다. 이로 인해 다수의 드럼에 대한 방사능 평가 시 소요되는 시간을 단축할 수 있게 되었다.

3) DTM : Difficult-To-Measure

4. 참고문헌

[1] 한국수력원자력(주). 방사성폐기물 핵종재고량 평가프로그램 개발, pp.23-24, 2010.

Sorption and transport behavior of radioactive iodine

Wooyong Um*
Pohang University of Science and Technology (POSTCH),Nuclear Engineering Dept.,Pohang, Gyungbuk, Korea
wooyongum@postech.ac.kr

Key Words: Iodine 요오드, Oxidation 산화, Sorption 흡착, Transport 이동, Low-level waste depository 저준위 폐기물 저장소

1. Introduction

Nuclear wastes, which leaked from single-shell underground storage tanks or from pipelines entering/exiting the tanks at the U.S. Department of Energy (DOE) Hanford Site, have been detected in the subsurface since the 1950s. Radionuclides present in the Hanford tanks include uranium and transuranic elements, such as neptunium, plutonium, and americium, as well as radioactive and stable isotopes of lighter elements resulting from fission and activation processes [1]. The U.S. Department of Energy's current plan is to retrieve the waste currently stored in the tanks and to separate it into a high-activity fraction (having relatively little volume but most of the radioactivity) and a low-level activity fraction (having most of the volume but less radioactivity). The high-activity fraction will be vitrified and is planned to be disposed at the proposed federal geological waste disposal facility, while the low-activity immobilized fraction will be also vitrified (some may also be immobilized in other processes) and will be disposed in a near-surface Integrated Disposal Facility (IDF) located at the 200 East Area on the Hanford Site [2]. Previous performance assessment (PA) analyses of the proposed IDF site have shown that ^{129}I, ^{237}Np, ^{79}Se, ^{99}Tc, and $^{233,235,238}U$ pose the most potential risk to human health. Because the severity of environmental problems associated with these radionuclides depends on how readily these contaminants migrate from the source through the accessible environments, the risks associated with relatively mobile radionuclides are a great concern.

Radioactive iodine has been released into soils and the atmosphere during the course of nuclear power plant operations, nuclear weapon tests, nuclear accidents such as that at the Chernobyl power plant, and operations and disposal activities associated with nuclear-fuel reprocessing. Health risks associated with the release of radioactive iodine, especially as ^{129}I, are a significant environmental concern because of the long-half life of ^{129}I ($t_{1/2}$=1.6 x 10^7 years) and high mobility of all iodine isotopes in subsurface environments. Iodine is known to occur in several oxidation states (Fig. 1). In most aqueous environments, iodine is present in the -1 valence state as the iodide ion, I^-. The stability range of I^- extends almost over the entire pH and Eh range for the thermodynamic stability of water. In marine and highly oxidizing environments such as surface waters and some highly oxygenated shallow ground waters, iodine may be present in the +5 oxidation state as the iodate ion, IO_3^-. Under highly oxidizing conditions at pH values less than 4, molecular I_2^o (aq) may form from the reduction of IO_3^- or oxidation of I^-.

In this study, macroscopic batch sorption and flow-through column experiments were conducted to increase our understanding of sorption and transport behavior of radioactive iodine using IDF-specific sediments from the second borehole (C3177) and IDF-specific solutions including simulated glass leachate.

2. Methods and Results

The Hanford sediment collected from the IDF site consists of a mixture of gravel, sand, silt, and clay, but sand-sized particles are dominant. After removing gravel particles (>2 mm), the sediment was used in batch sorption and flow-through column experiments. Uncontaminated groundwater collected from well 699-S3-25 at the Hanford Site and simulated glass leachate were used as background electrolytes for two separate suites of batch sorption experiments. The composition of the simulated glass leachate is based on the pore water composition in vadose zone predicted by the STORM model (a fully coupled chemical reaction-transport code) for the low-activity waste glass filled repository at steady state conditions. Batch sorption experiments were conducted with 15-mL polypropylene centrifuge tubes by mixing sediment and either groundwater or simulated glass leachates spiked with radioactive iodine, ^{129}I of known activity (3.7 x 10^5 Bq/L). After 7 days contact, supernatant solution was separated by centrifugation and passed through 0.45-μm pore size filters. A 1-mL aliquot of filtered supernatant solution was mixed with 15-mL of cocktail solution in a glass scintillation vial and counted by liquid scintillation for ^{129}I.

The flow-through column experiments were conducted using a poly-ether-ether-ketone (PEEK) column (1.91 cm in diameter and 7.62 cm in height). Each end of the individual columns was covered by a small piece of Spectra/Mesh® to avoid the loss of particles during the flow through experiments. To achieve uniform packing, each column was packed with Hanford sediment using a vibrating Vortex-Genie 2 mixer placed on the sidewall of the column while a continuous stream of dry sediment was added. The columns were then saturated with groundwater to establish the desired flow rate and to remove any easily dispersible particles. Constant flow rate was maintained with a syringe pump and upward flow was used to minimize channeling or preferred flow in the columns. Radiotracer (^3H) in deionized water was introduced as a nonreactive conservative tracer to

determine the dispersion coefficient. After obtaining ^{3}H breakthrough for each column, the ^{3}H input solution was immediately replaced by groundwater spiked with radioactive iodine, ^{129}I (3.7 x 10^{5} Bq/L). Effluent samples were collected, filtered through 0.45-μm pore size filters, and the radioactivity of each effluent was analyzed by the same methods described for the batch sorption experiments. Breakthrough curves (BTCs) were graphically represented by plotting the relative activity, C/C_o, for each radionuclide versus pore volumes eluted. The transport parameters were determined by curve fitting of the analytical solution of the advection-dispersion equation to the measured breakthrough curves (BTCs) with the CXTFIT code.

2.1 Tc Eh-pH Diagram Calculation

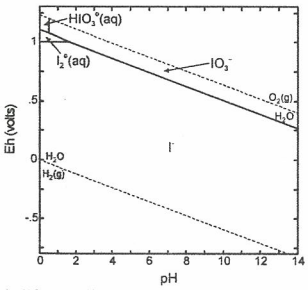


Fig. 1. Eh-pH diagram for dominant iodine species at 25°C for the synthetic groundwater.

2.2 Radioactive Iodine Sorption Results

Radioactive iodide showed low batch K_d values on three Hanford sediments in contact with both solutions, suggesting little interaction of ^{129}I at mineral-water interfaces. Even though a relatively high K_d value for iodide sorption onto illite has been reported [3], iodide sorption on most sorbents including bentonite, hematite, calcite, and montmorillonite has been found to be negligible. Slightly higher K_d values for ^{129}I sorption onto Hanford sediments in contact with Hanford groundwater were observed compared to those determined with simulated glass leachates. The increased sorption from the relatively lower pH groundwater conditions occurred on the pH-dependent protonated surface sorption sites for minerals present in the sediment. The minor changes in measured K_d values for ^{129}I on these three Hanford sediments were considered to result from different mineralogical compositions and specific surface areas. Based on the low average K_d values (0.28±0.12 and 0.09±0.06 under Hanford groundwater (pH 7.8) and simulated glass leachate (pH 9.0), respectively on C3177 borehole sediments, the mobility of ^{129}I is also considered to be rather high in both near and far-field regions at the proposed Hanford Site disposal facility.

2.3 Column Results

Because of the slight sorption affinity of ^{129}I on the Hanford sediment under groundwater condition (K_d=0.17 for C3177-110), ^{129}I transport behavior through the same sediment was slightly retarded compared with that of the non-reactive tracer (^{3}H). Slight retardation of ^{129}I was noticeable in low pore volumes and that long tailing was found in the later stages of the breakthrough. Although a classical equilibrium model showed reasonable fit results (r^2=0.96) for the iodide BTC, a non-equilibrium two-region model fit the data better, especially for the measured data at larger pore volumes. In addition, some irreversible ^{129}I sorption on the Hanford sediment was found in our previous work on iodide sorption linearity and reversibility. Higher desorption K_d values for ^{129}I on Hanford sediment, are likely caused by slow desorption processes controlled by diffusion between mobile and immobile regions that leads to the tailing.

3. Conclusions

Both batch sorption and column experiments revealed that ^{129}I was highly mobile on the Hanford sediments under both groundwater and simulated glass leachate conditions at the Hanford Site. The new data, especially for glass leachate solutions, will allow future PA predictions to refine the fate of contaminants in the near-field region of the vadose zone that will be at higher pH conditions than ambient as constituents leach from the glass. Therefore, ^{129}I will remain as the potentially one of the most mobile radioactive contaminants disposed in the proposed IDF.

4. REFERENCES

[1] Mann, F. M., Burgard, K. C., Root, W. R., Puigh, R. J., Finfrock, S. H., Khaleel, R., Bacon, D. H., Freeman, E. J., McGrail, B. P., Wurstner, S. K.,LaMont, P. E.: Hanford immobilized low-activity waste performance assessment:2001 version, DOE/ORP-2000-24, DOE, Office of River Protection (2001).

[2] McGrail, B. P., Bacon, D. H., Serne, R. J.,Pierce, E. M.: A strategy to assess performance of selected low-activity waste forms in an Integrated Disposal Facility, PNNL-14362, Pacific Northwest National Laboratory (2003).

[3] Kaplan, D. I., Serne, R. J., Parker, K. E.,Kutnyakov, I. V.: Iodide sorption to subsurface sediments and illitic sediments, *Environ. Sci. Technol.* **34**, 399 (2000).

제4분과

방사성폐기물 처분 및 부지특성 (Poster)

빈 면

확률론적 처분안전성평가에 필요한 입력자료들의 통계처리방안

박정균, 정종태
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
ckpark@kaeri.re.kr

1. 서 론

고준위폐기물을 심부지하에 처분하였을 경우에 대한 처분안전성을 평가하는 데에는 수많은 불확실성이 내재한다. 이를 고려하여 안전성평가 세부시나리오와 모델을 설정할 때에는 가장 위해를 끼칠 영향이 큰 경우를 가정하는 보수적 개념을 적용해 결정론적 평가를 수행하는 것이 일반적인 작업이다. 그러나, 결과로 얻어지는 확정적 자료값은 신뢰도의 한계와 범위를 설정하기 어렵다. 그래서, 최근에는 처분후 방사성핵종누출 및 생태계로 이동경로 각 단계마다 필요한 매개변수들의 값을 실험에서 측정한 자료값 들의 분포를 토대로 확률론적으로 안전성을 평가하여 처분시스템이 놓이게 되는 다양한 상황에서 안전성결과에 변위를 예측하는 방안이 고려되고 있다. 이를 위해 원자력연구원에서는 Goldsim기반 안전성평가코드를 개발하였고, 이에 요구되는 다양한 입력변수들에대해 실험을 통해 값들을 측정하고, 외국실험치들도 같이 통계처리하여 확률론적 안전성평가도구를 완성하고 개발한 한국형처분시스템의 안전성평가에도 활용하고자한다. 이에 일환으로 본 논문에서는 입력매계변수들의 취합방안, 통계처리방법론, 확률함수 설정방안 등에대해 다루고자한다.

2. 연구 내용

현재 활용중인 Goldsim 기반 폐쇄후안전성평가코드에 사용되는 모든 입력변수들을 목록으로 작성한 다음, 통계처리가 필요한 주요입력변수들을 선정하고, 중요한 몇가지 매개변수들을 통계처리하는 과정을 거치게 되는데, 일차적으로 모든 입력변수를 핵종이동구획별로 다음과 같이 분류하였다.

(1) 공학방벽(Eng. system) : 핵종량(source term), 처분용기, 폐기물구성체
(2) 근계영역(Near field) : 콘크리트, 벤토나이트, 뒷채움재(backfill)
(3) 원계영역(Far field) : 암석, 토양, 침전물(sediments)
(4) 생태계(Biosphere) : 강, 바다, 식물, 동물

다음으로 통계처리 대상선정 기본 방향을 다음과 같이 수립하였다.

(1) 불확실도가 높은 매개변수를 주요대상 : 천연방벽에서 핵종이동관련 변수
(2) 조건변화가 심한 경우 : 온도, 지화학조건 - 인공방벽
(3) 안전성평가에 미치는 중요도가 큰 매개변수 : 핵종용해도 (solubility)
(4) 설계인자는 고정값 우선 : 용기 두께, 충전재 두께등

다음단계로 선정된 주요입력변수들의 확률분포를 계산추정하기위해 참고문헌조사와 실험데이터를 수집하여, Excel 화일로 계통별로 분류 정리하였다. 다음단계로, 데이터를 통계처리한 후 계산결과를 새로운 Excel 화일로 정리하여 안전성평가코드 입력화일로 연계하도록 하였다.

통계처리기법으로 모멘텀분석법 (momemtum analysis)을 도입하였다. 대표적으로 데이터들이 그림1과 같이 정규분포를 가진다고 가정하면, 평균과 분산은 다음 식으로 구하게 된다.

- 평균 $\mu = \frac{\Sigma m_i n_i}{\Sigma n_i}$

- 분산 $\sigma^2 = \frac{\Sigma m_i^2 n_i}{\Sigma n_i} - \mu^2$

매개변수별로 다양한 분포양태를 가지므로 이들을 모두 정규분포함수로 가정하고 평균 및 분산을 구하기 어렵다. 그래서, 자료들의 분포양태를 파악한 다음 이들에 적합한 함수들을 추가로 도입하여 각 매개변수별로 부합되는 함수로 통계처리하도록 하였다.

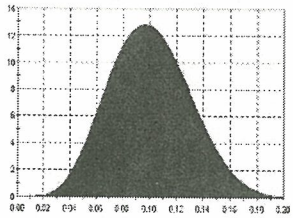


Fig. 1. Typical shape of a Normal distribution

통계처리에 적용할 함수들은 다음과 같다.

. 단일분포함수(uniform distribution)
. 삼각분포함수 (triangular distribution)
. 지수함수분포 (exponential distribution)
. 극단확률분포 (extreme probability distribution)

다음으로 고려해야할 것이 통계처리한 함수를 가지고 어떻게 계산단계별로 입력값을 선정할 것인가하는 문제이다. 확률론적 계산에 기본방향은 주어진 확률함수 범위내에서 임의 값을 추출하는 것이므로 다음과 같은 식을 만들어 적용하였다.

- **[입력값] = $\mu + \sigma^2$ [1.0 - 2[무작위수]$^1_0$]**
- **[입력값] = f(N*[무작위수]$^1_0$])**

두 식중 위의 것은 매개변수가 확률분포함수를 가질 때 평균과 표준편차값을 이용해 임의로 무작위수을 생성시켜 입력값을 계산하는 방식이다. 두 번째는 자료분포가 산발적이여서 확률분포함수적용이 어려운 경우에 적용하는 식이다. 입력변수가 함수분포를 가질 때 Goldsim에서 계산시 입력값을 선정하기위해 자료분포범위내 균등분할 선정방법인 Latin Hypercube 방법을 도입하도록 하였다.

이상과 같은 방법론을 수립하고, 구체적인 계산단계로 핵종들의 지하매질에대한 수착분배계수(Kd)를 통계처리하였다. 핵종수착계수(Kd)는 매질별, 지화학조건별로 많은 차이를 가지므로, 국내처분장조건에서 접하는 매질 별 Kd 값을 화강암, 콘크리트, 벤토나이트, 토양등으로 분류하여 각각별도 통계처리하였다. 또한, 이동경로에 따라 지화학조건이 환원상태에서 산화상태로 변함에 따라 Kd값도 변하므로 이를 반영하여 산화, 환원조건별로나누어 처리하였다. 수착실험자료는 원자력연구원에서 개발한 Web-based SDB (KAERI-SDB)를 이용하여 각 핵종별 매질별 Kd 값을 분하고, Excel file 작성하였다.

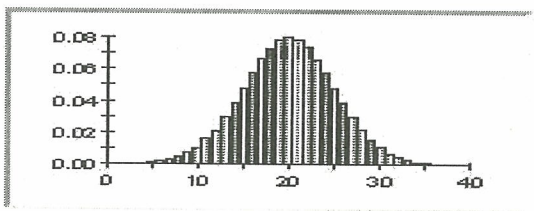


Fig. 2. data sampling with Latin Hypercube method

3. 결 론

방사성폐기물 처분안전성 평가를 위해 Goldsim 기반 안전성평가코드를 개발하였고, 확률론적 안전성평가로 확대하기위해 관련 작업을 수행하고 있다. 이에 일환으로 입력매개변수들의 취합방안, 통계처리방법론, 확률함수 설정방안등을 수립하였다. 다양한 입력변수들의 값을 조사해서 그 분포를 구하고 확률함수로 표현해 평가코드에 입력자료로 활용하는 시스템을 구축하였다. 다양한 입력변수들에대해 국내실험을 통해 측정한 값들을 중심으로 외국실험치들도 같이 통계처리하여 확률론적 안전성평가도구를 완성하고 개발한 한국형 처분시스템의 안전성평가에도 활용하고자한다.

4. 참고문헌

[1] J. Seinfeld and L. Lapidus, Process modeling, estimation, and identification, Prentice-Hall, 1974.

[2] Goldsim tech. group, Goldsim user's manual, 2007.

[3] J.bendat,A.Piersol, randon data : Analysis and measurement procedures,Wiley-interscience, 1971.

[4] KAERI, Web-based SDB (KAERI-SDB) http://sdb.kaeri.re.kr1999.

[5] K.Andersson, Transport of radionuclides in water/mineral system, Chalmer univ. 1983.

A-KRS 처분 시스템 핵종 유출 시나리오 비교 평가

이연명, 정종태, 최종원
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
ymlee@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로 프로세싱 폐기물 처분시스템이 현재 그림 1과 같이 A-KRS라는 개념으로 개발되고 있다. 지하 200m 깊이에 건설되는 터널내에 처분될 금속폐기물의 경우는 중저준위 폐기물로 간주할 수 있으나, 지하 500m의 깊이에 스웨덴의 KBS-3 개념과 유사하게 처분될 세라믹 폐기물은 고준위 폐기물이 된다.

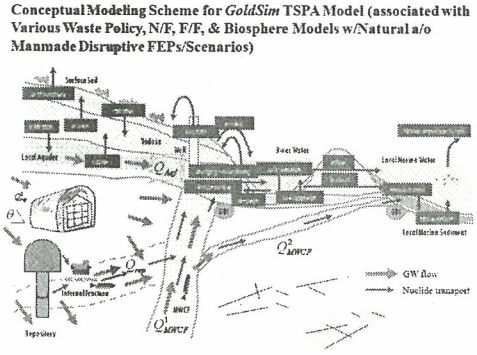


Fig. 1. 처분 시스템 개념

이러한 처분 시스템에서의 핵종 유출에 관련된 정상 및 사고시나리오에 대한 평가는 처분 시스템에 대한 안전성 및 성능 평가 측면에서 매우 중요하다. 이러한 평가를 위한 도구가 그림 2와 같이 상용 프로그램 개발 프로그램인 GoldSim[1]을 이용하여 개발되어 활용되어지고 있다.[2-5]

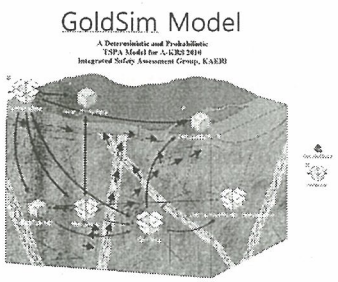


Fig. 2. GoldSim 평가 프로그램

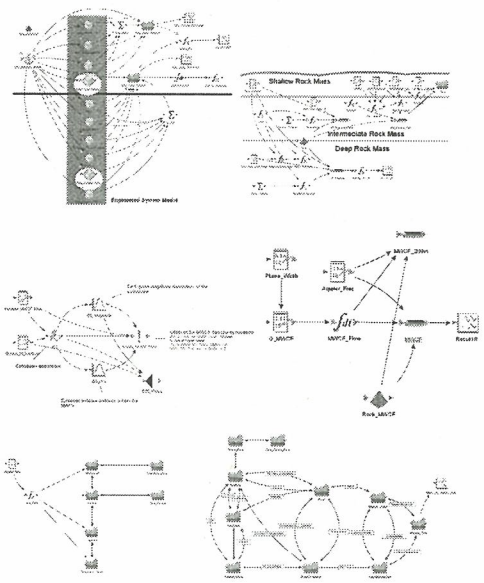


Fig. 3. 각 시나리오에 대한 GoldSim 모델링

불확실성을 낮추고 보수성도 가능한 한 줄이며 신뢰도를 향상시키는 것을 목표로 개발된 이 GoldSim 템플릿 코드는, 좌표계상으로서는 무차원이지만, 근계 및 원계영역내 지하 및 생태계를 포괄하는 처분 시스템내 핵종의 이동을 따라 실재의 시스템으로 모사하며 정량적으로 평가할 수 있는 점이 가장 큰 특색으로, 다양한 핵종 유출 및 거동 시나리오를 가능한 한 정확하고 보다 덜 보수적으로 평가할 수 있도록 해 준다. 방사성폐기물에서 지하수와의 접촉을 통해 유출된 핵종은 지하수에 의한 이동이 가장 보편적인 만큼 보다 중요하게 고려되어야 할 메카니즘이지만, 실제로 처분 환경내에는 핵종의 비정상적인 유출이나 이동을 야기하는 다양한 시나리오가 다양하게 존재할 수 있게 된다. 이러한 시나리오는 처분시스템내 핵종의 유출 및 거동에 관련된 여러 Feature, Event, 그리고 Process들 (FEPs) 을 인지하여 이들을 그 발생확률과 이러한 FEP 들의 결과로서 나타나는 정량적 평가 결과의 심각성 등을 고려

하여 인지 도출하게 된다. 이렇게 선별된 FEP들은 처분 시스템 특성에 맞추어 선별, 조합하여 시나리오를 도출하는데 활용되어지는데 이러한 과정을 통하여 그림 3과 같이 정상시나리오와 함께 4개의 비정상 시나리오를 주요 비정상 시나리오로서 인지, 도출하였는데, 우물시나리오, 지진시나리오, 용기파손 시나리오가 그 것이다. 처분장에 인접하여 우물이 굴착되는 시나리오는 최악의 경과를 줄 수 있는 인간 침입 시나리오로 상정할 수 있는 반면, 지진 발생에 따라 지하수 유동계가 변한다거나 자연 방벽이 그 기능을 상실할 수 있는 경우도 충분히 그 발생확률과 결과가 심각한 자연 발생적 시나리오로 생각될 수 있다. 또한 폐기물을 일차적으로 가두어 지하수의 접촉을 막아 핵종의 유출을 저지할 수 있는 방벽 기능을 갖는 처분용기는, 제조공정에서 원천적으로 발생한 결함에 의해 그 파손이 야기될 수도 있지만 처분된 이후 부식 등의 영향으로 파손을 초래할 수 있어 이에 대한 시나리오도 중요하게 고려되어야 한다. 이들 시나리오를 가상의 입력자료를 이용하여 각각 평가하여 그 결과를 상호 비교해 보았다.

2. 본론 및 토의

정상 시나리오에서는 처분장에서 유출된 핵종이 처분 시스템을 빠져 나와 지하수의 유동을 따라 지표수로 이동하여 이후 생태계에서 전이해 나가는 경우를 고려해 평가를 수행하였고, 우물 시나리오에서는 200m 깊이에 건설되는 금속폐기물 처분장에서 150m 이내에 근접 굴착된 우물을 상정하고 이 우물를 통하여 음용과 관개를 시행하는 농축피폭집단이 피폭되는 경우에 대해 평가하였다. 지진 시나리오의 경우에서는 지진의 발생에 따라 진앙까지의 거리의 진도의 세기를 고려하여 영향을 평가하였는데, 그 결과로서 주요지하수유동경로 (MWCF)내의 지하수의 유동량과 MWCF내 핵종 이동 거리의 변화를 고려하는 한편 지진에 따라 천연방벽이 그 방벽기능을 잃고 근계영역내로 유출된 핵종이 바로 생태계로 이동하는 시나리오로 상정되었다. 처분용기 결함의 경우 처음부터 용기에 대한 신뢰도를 주지 않는 경우와 함께 시간의 흐름에 따라 용기의 신뢰도가 변하는 경우를 구분하여 평가를 수행하였다. 이들 시나리오에 대한 평가 결과를 상호 비교하였을 때 그 결과의 심각성이 그림 4와 같이 나타났고 표 1에서 보는 대로 우물 시나리오가 가장 심각한 것으로 나타나는 것을 알 수 있었다.

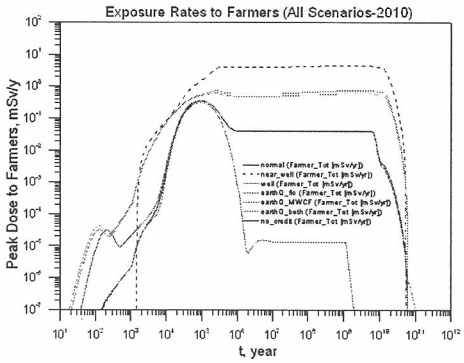


Fig. 4. 각 시나리오별 선량률 비교

Table 1. 시나리오별 최대 피폭 선량

	Scenario	Description	Peak dose, mSv/y	Peak time, yr
SC1	normal	정상 지하수 유동	0.35079	92,000
SC2	near_well intrusion	150m근저 우물 침입	4.0171	580,000
SC2a	well	150m 우물침입시 정상생태계	0.31359	92,000
SC3	earthquake_Flow	지진에 의한 유동량 10배 증가	0.35295	92,000
SC4	earthquake_MWCF	지진에 의한 원계 천연방벽 소실	0.62963	250,000
SC4a	earthquake_flow_MWCF	지진에 의한 유동량 증가 및 원계 천연방벽 소실	0.73937	260,000
SC5	barrier_credit	200m 터널내 콘크리트방벽 및 500m 터널내 용기 크레딧 조기 상실	0.35273	91,000

3. 참고문헌

[1] GoldSim Contaminant Transport Module, User's Guide, Version 4, GoldSim Technology Group, 2006.

[2] 이연명 외, 중저준위폐기물 처분 안전성평가를 위한 GoldSim 프로그램 템플릿 개발, 기술보고서 KAERI/TR-4105/2010, 한국원자력연구원, 2010.

[3] Youn-Myoung Lee et al., A GoldSim Model for Colloid Facilitated Nuclide Transport, Transactions of the Korean Nuclear Society Autumn Meeting, Jeju, Korea, October 21-22, 2010.

[4] Youn-Myoung Lee et al., "A GoldSim model for the afety assessment of an HLW repository," Progress in Nuclear Energy, 51, 746-759, (2009).

[5] Youn-Myoung Lee et al., "Evaluation of Nuclide Release Scenarios for a Hypothetical LILW Repository, submitted to Progress in Nuclear Energy.

방사성폐기물 척도인자의 주기적 검증 방안

김태욱, 이나라, 강기두
한국수력원자력(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 금병로 508
taewook@khnp.co.kr

1. 서론

국내 원전 방사성폐기물의 척도인자는 2009년에 도출되었다[1]. 척도인자는 중·저준위 방사성폐기물 인도규정(이하 '인도규정'이라 한다)[2]에 따라 2년에 1회 이상, 폐기물 조성에 변화를 줄 수 있는 요인이 발생한 경우에는 그때마다 확인을 하도록 되어있다. 따라서 향후 지속적인 척도인자 적용을 위해 국내에 적합한 척도인자 주기적 검증방안을 수립하고자 한다.

2. 본론

2.1 척도인자 도출 및 적용

원전에서 발생되는 폐기물을 처분시설로 인도하기 위해서는 인도규정에 따라 폐기물의 총방사능량 및 규명대상 핵종별 농도가 평가되어야 한다.

폐기물 드럼 내에 존재하는 감마 방사능은 드럼핵종분석장치[1]를 사용하여 평가할 수 있다. 그러나 알파 및 베타입자 방출핵종과 같이 직접 측정이 어려운(DTM[2]) 핵종의 방사능은 측정이 용이한 감마 지표(key) 핵종과의 상관관계인 척도인자를 사용하게 된다.

우리나라 원전 중저준위 방사성폐기물의 척도인자는 2004년부터 2008년에 발생된 폐기물 시료의 방사화학분석을 통하여 도출되었으며, 2009년 이후 발생되는 폐기물에 적용되기 위해서는 도출된 척도인자에 대한 타당성을 검증하여야 한다.

2.2 주기적 검증 국외 규정

미국은 NRC의 10CFR 및 BTP[3]를 통해 척도인자를 매 핵연료 주기마다 확인하도록 규정하고 있다. 세부 방법은 사업자가 자체적으로 수립하되, 수행방법의 타당성에 대하여 NRC 주재관이 비정기적으로 검토한다.

일본 및 독일은 매년 척도인자를 확인하고, 브라질 및 스페인은 핵연료 주기마다, 영국, 슬로베니아, 벨기에, 프랑스는 척도인자의 변경 필요성이 있을 때마다 확인하며, 캐나다, 멕시코, 이탈리아는 척도인자 확인주기가 규정되어 있지 않다.

2.3 주기적 검증 국외 사례

미국은 1984년 이후 원전 수화학 관리에 몇 가지 중요한 변화를 도입하였다[3]. 부식층의 ^{60}Co 함량을 줄이기 위해 아연주입을 실시하였고, 부식층의 형성을 조절하기 위해 리튬 농도를 변화시켰으며, 핵연료 결함, 예방정비기간 증가 및 대규모 제염 등이 있었다.

EPRI는 이러한 운전조건의 변화로 나타나는 척도인자의 변화를 확인하였으며, 그 결과 운전조건 변화는 일시적 또는 영구적으로 척도인자를 변화시킬 수 있으나, 이로 인한 영향이 NRC 지침에 정의된 정확도 내에 있었을 뿐 아니라 모든 공정의 민감도 내에 있음을 확인하였다. 이를 바탕으로 척도인자의 확인에 따른 조치 및 업데이트 방법이 수립되었다.

일본에서는 척도인자 개발 초기단계에서 원자로 재료 및 연료 결함에 기초하여 몇 개의 그룹으로 구분하여 각 그룹별로 척도인자를 설정하였으며, 원자력발전소에서 초기 30년 동안의 척도인자의 추이를 분석한 결과 척도인자가 일정하게 유지되었음을 알 수 있었다. 이에 따라 발전소마다 폐기물 스트림별로 1개씩의 시료를 샘플링을 통하여 검증하고 있다.

프랑스도 운전조건의 변화로 인해 척도인자에 미치는 영향이 없다는 것을 확인하였고, 몇몇 나라에서 그 영향을 검토 중에 있다.

2.4 국내 주기적 검증 방안

국내에 적합한 척도인자 주기적 확인 및 검증방안을 마련하기 위하여 국외 관련 규정 및 사례분석, 전문가 자문[4]을 수행하였으며, 이를 통해 다음과 같이 국내 주기적 검증방안을 수립하였다.

---

1) RAS : Radioactive waste Assay System
2) Difficult-To-Measure
3) 저준위 폐기물 인허가부 기술지침, 1983.

2.4.1 검증 주기 및 핵종

검증 주기는 인도규정에 따라 2 년에 1 회 수행한다. 단, 폐기물 스트림의 분리 또는 통합 등 폐기물 조성에 상당한 변화를 줄 수 있는 요인이 발생한 경우에는 추가적으로 실시할 수 있다.

대상 핵종은 인도규정에 명시된 규명대상핵종을 대상으로 종류 및 거동 특성에 따라 방사화생성핵종은 ^{3}H, ^{14}C, ^{55}Fe, ^{58}Co, ^{59}Ni, ^{63}Ni, ^{94}Nb, 핵분열성핵종은 ^{90}Sr, ^{99}Tc, ^{129}I, 초우라늄핵종은 전 알파에 대하여 검증을 실시한다.

2.4.2 시료 채취

시료의 채취 시기는 폐기물이 드럼에 담겨지기 직전이 적합하다. 국외 사례를 참고할 때 폐기물이 대량 발생되는 발전소 계획예방정비 기간 중에 채취한다.

채취 시료 수는 미국 또는 일본과 같이 발전소별로 폐기물스트림마다 1 개씩 채취한다. 단, 우리나라는 주기적 검증이 처음 실시되는 것이므로 초기 및 2차 검증시에는 발전소별로 폐기물스트림마다 3 개의 시료를 채취하여 통계적 특성 데이터를 확보하는 것도 좋은 방법으로 판단된다.

샘플링은 당해 주기 폐기물스트림의 모집단 특성을 대표하는 시료를 채취하되, 하나의 폐기물 시료에 대하여 3 번을 채취하여 그 평균값을 사용하여 통계적 대표성을 높일 필요가 있다.

2.4.3 척도인자 검증

초기 및 2차 검증시에는 로그선형회귀 (상관계수 $r \geq 0.6$ 일 때) 또는 기하평균 (상관계수 $r < 0.6$ 일 때) 방법을 사용한 통계적인 분석을 병행한다.

검증의 적합 여부는 미국 NRC BTP에서 제시한 바와 같이 시료의 척도인자 또는 척도인자의 평균값이 척도인자의 1/10 ~10 배 범위 내에 드는 것으로 판단하는 것이 적합하다.

그러나 ^{129}I와 같이 시료에서 방사능이 검출되지 않아 보수적으로 MDA값이 적용된 경우에는 시료의 척도인자 또는 척도인자의 평균값이 MDA 값 이하 값으로 도출되면 척도인자의 계속 적용이 가능할 것이다.

척도인자 분석값이 이와 같은 허용기준을 만족하지 못할 경우에도 연료손상, 연소도 변화, 아연주입 여부, 연료 설계의 변경, 운전정지 기간 연장 등 척도인자의 변화요인이 합리적으로 예상되는 경우에는 척도인자를 계속 적용한다.

만일, 척도인자의 변화요인을 밝힐 수 없을 때는 추가 시료를 채취 분석하여 검증을 다시 실시하며, 재분석 결과도 허용기준을 만족하지 못할 경우에는 신규 척도인자를 도출하거나 보수적 적용방안 등을 수립한다.

척도인자 데이터가 축적되어 여러 개의 척도인자의 적용이 가능한 경우에는 척도인자 값을 변경하는 것 보다는 미국의 예와 같이 최근 3 개 ~ 5 개 척도인자 분석값의 평균값을 신규 척도인자로 사용하는 방법도 검토할 필요가 있다.

3. 결론

국외 규정 및 사례, 전문가 자문 등을 통하여 국내 원전 방사성폐기물의 척도인자 주기적 검증 방안을 마련하였다.

척도인자 검증주기는 인도규정에 명시된 규명대상핵종에 대하여 2년마다 1회 실시하며, 초기에는 폐기물 스트림마다 3개의 시료를 채취하되 그 후에는 1개를 채취하기로 하였다. 검증결과 분석값이 척도인자의 1/10~10배에 들면 적합하고, 보수적인 MDA 값이 적용된 경우에는 그 이하 값이 되도록 하였다.

본 주기적 검증방안은 규제기관의 협의를 거쳐 2009년부터 발생되는 신규 폐기물의 척도인자 적용 타당성 검증에 사용하여 원전 발생 폐기물 드럼의 처분시설 인도에 기여할 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

[1] 한국수력원자력(주), "전 원전 방사성폐기물 핵종분석용 척도인자 및 주기적 검증방법 개발, 2009.

[2] 교육과학기술부고시 제2009-37, 중·저준위 방사성폐기물 인도규정.

[3] IAEA Nuclear Energy Series No. NW-T-1.18," Determination and Use of Scaling Factor for Waste Characterization in Nuclear Power Plants," 2009.

[4] DW James Consulting," Regulation, Methods, and Lessons Learned for Periodic Verification of Scaling Factors," 2010.

파이로 공정 세라믹폐기물 수직 처분공 주변 열 해석

최희주, 이종열, 김현아
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
hjchoi@kaeri.re.kr

1. 서론

지난 연구를 통하여 저자들은 가압경수로 사용후핵연료의 파이로 공정 처리로부터 예상되는 세라믹 폐기물에 대한 처분 단위 모듈을 개발하고, 이에 대한 열 해석을 통하여 폐기물 사이의 간격을 결정하였다[1, 2]. 이와 같은 과정을 통해 열 발생 세라믹 폐기물 처분시스템 예비 개념설계를 수행하고 이를 바탕으로 처분시스템 배치를 결정하였다.

세라믹폐기물 처분시스템에 대한 예비 개념설계 결과에 따르면, 20,000 MtU 가압경수로 사용후핵연료로부터 1,000여개의 처분용기가 발생되며, 수직공 처분방식에는 1개의 처분공에 4개의 처분용기를 처분하고 처분공 간격을 8 m 유지하는 터널 8개가 필요하다. 수평터널의 경우 2개씩 묶은 처분용기 사이의 간격은 2 m로 유지하고 터널간격 25 m을 유지하는 방식이 처분밀도가 가장 유리하였다.

본 논문에서는 예비 개념설계 결과를 바탕으로 세라믹폐기물 수직 처분공 주변에 대한 열 해석을 다양하게 수행하였다. 처분장 설계 측면에서는 완충재 내의 최고 온도가 100°C를 넘지 않도록 하는 반면, 본 열 해석에서는 장기간 동안 처분장 주변에서의 온도 변화를 다양한 조건에서 구하고자 하였다.

2. 본론

2.1 세라믹폐기물 수직공 처분

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 냉각 된 것이다. 파이로 공정으로부터의 물질수지를 분석하여 10 톤의 PWR 기준 사용후핵연료로부터 예상되는 세라믹폐기물량은 665 kg이며, 방출 후 40년 경과했을 경우, 이 폐기물로부터 발생되는 발열량은 약 300 W이다[1]. 이와 같은 세라믹폐기물을 직경 26 cm, 높이 25 cm로 제작할 경우 예상되는 고화체는 14개 정도이며, 2개의 고화체를 1개의 캐니스터에 넣으면 7개의 캐니스터가 발생된다. 발열량을 고려하여 14개의 캐니스터를 처분용기에 넣을 경우, 처분용기 당 약 600 W의 발열량이 예상된다. 지난 연구결과[2]에 따르면, 최적의 처분밀도를 위해서는 처분용기 4개를 1개의 처분공에 넣으며, 처분용기 주변은 국내산 칼슘 벤토나이트로 구성된 완충재로 채운다(Fig. 1). 이 경우 처분터널 사이의 간격은 40 m이며, 처분공 사이의 간격은 8 m이다. 처분터널 1개에는 32개의 처분공이 설치되며, PWR 사용후핵연료 20,000 tU의 파이로 공정으로부터 예상되는 세라믹폐기물의 처분을 위해서는 이와 같은 처분터널 8개가 필요하다.

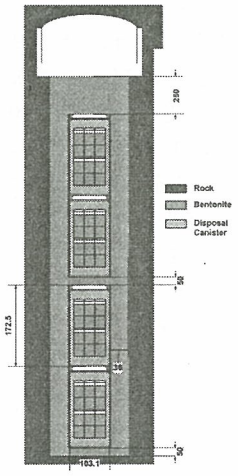


Fig. 1. Schematic of a borehole with 4 canisters

2.2 수직 처분공 주변 열 해석

Fig. 1의 처분시스템에 대한 성능평가를 위해서 처분공 주변에 대한 열 해석을 수행하였다. 열원은 ORIGEN-ARP 프로그램을 이용하여 구한 결과를 이용하였다. 처분장 설계를 위해서는 최고 온도를 구하기 위하여 주로 Fig. 2에 주어진 바와 같이 처분장 내부(구역-A로 표시)에 대해 열 해석을 수행하였으나, 성능평가를 위해서는 보다 다양한 부분을 대상으로 열 해석을 수행하였

다. Fig. 2에 대표적으로 고려할 수 있는 2 곳을 나타내었다. 구역-B의 경우 대칭 경계조건을 적용할 수 없는 곳으로 선정하였다.

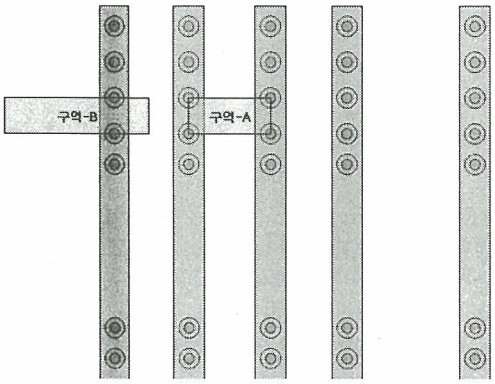


Fig. 2. Domains for the thermal analysis

Fig.2에 주어진 구역을 대상으로 수직 처분공 주변에 열해석을 ABAQUS 프로그램[3]을 이용하여 해석하였다. 암반 특성으로는 열전도도 3.0 W/mK, 비열 900 J/kg°C, 밀도 2,600 kg/m^{3}을 이용하였다. 지열구배는 3℃/100 m를 적용하였다.

열 해석 결과 완충재 내에서 최고 온도는 처분 후 5년이 지나서 발생하였으며, 구역-A의 경우에는 96.5℃, 구역-A의 경우에는 20 m 방향 처분용기와 완충재 경계지점에서 약 92.8℃로 구역-A의 최고 온도보다 약 3℃ 정도 낮게 나타났다. 이것은 처분공으로부터 주변 암반으로 열이 빠져나가기 때문이었다. 2 곳에서의 최고 온도는 설계기준인 100℃ 미만으로 나타났다.

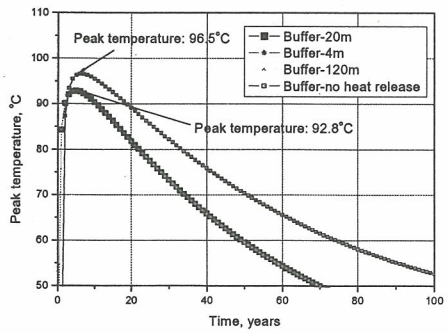


Fig. 3. Peak temperature in buffer

3. 결론

파이로 공정으로부터 예상되는 세라믹폐기물을 대상으로 개발한 수직공 처분시스템 주변에 대한 열해석을 수행하였다. 수직공 1개에 4개의 처분용기를 넣는 경우에 대하여 처분공 위치에 따라 예상되는 열 해석을 처분공 폐쇄 후 1,000년간 수행하여 온도 변화를 비교하였다. 처분터널 간격 40 m, 처분공 간격 8 m일 경우 처분장 주변에서 예상되는 최고 온도는 100°C 미만으로 유지되는 것을 확인하였다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] 최희주, 이종열, 이민수, 조동건, 국동학, 한국방사성폐기물학회 2010년 춘계 학술발표회 논문집, p.153, 2010.

[2] 최희주, 이민수, 국동학, 김현아, 한국방사성폐기물학회 2010년 추계 학술발표회 논문집, p.177, 2010.

[3] ABAQUS Ver.6.8, Dassault Systems, (2008).

온도구배를 가진 불포화 매질에서의 음이온 핵종 이동 모사

조원진, 이재완, 권상기
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
wjcho@kaeri.re.kr

1. 서론

고준위폐기물 심지층처분장은 지하 500 m - 1000 m 깊이에 위치한 안정된 지층 내에 건설된 터널 형태의 구조물이다. 심지층처분장에서는 처분동굴 바닥에 수직으로 처분공을 굴착하고, 그 속에 고준위폐기물을 밀봉한 처분용기를 넣은 후 처분용기와 처분공 암반 벽 사이의 공간을 완충재(buffer material)로 충전시킨다. 처분동굴 내의 처분공들이 모두 폐기물로 채워지면, 처분동굴과 연결터널들을 뒷채움재(backfill material)로 채운 후 처분장을 폐쇄한다. 심지층 처분장이 폐쇄된 후, 처분된 고준위폐기물로부터 발생되는 붕괴열에 의해 완충재의 온도가 상승하며, 주위 암반에 존재하는 지하수가 처분장 내로 침투함에 따라 완충재의 포화가 일어난다.

완충재의 온도는 폐기물로부터 발생되는 붕괴열로 인해 상승하게 되며, 완충재의 온도 상승은 주위 암반으로부터 완충재 내로 지하수가 침투한 것을 상당기간 동안 지연시키는 역할을 한다. 따라서 처분장 폐쇄 후의 완충재는 온도구배가 존재하고, 포화도가 시간에 따라 달라지는 불포화 다공성 매질로 간주할 수 있다. 불포화 상태의 다공성 매질에서는 주로 액상으로 이동하는 방사성핵종의 이동 경로가 감소되므로, 포화 상태에 있는 매질의 경우보다 핵종의 이동이 늦어진다. 따라서 온도구배를 가진 불포화 매질에서의 핵종 이동을 분석, 평가하는 것은 고준위폐기물 처분장의 설계 및 장기 성능평가에 중요하다.

심지층처분장의 설계기준은 처분용기 외벽과 완충재 사이의 계면 온도가 90 ℃를 넘지 않도록 규정하고 있다 [1]. 이러한 온도 제한에서, 완충재 공극 내에는 기상(gas phase)과 액상(liquid phase)이 공존하는 이상(two phase) 조건이 유지될 것이다. 이 연구에서는 붕괴열에 의해 온도 구배가 형성되는 고준위폐기물 처분장 완충재에서 지하수의 침투에 따른 완충재 내의 포화도 분포와 음이온 핵종인 Iodine의 이동 현상을 해석하였다.

2. 모델링 및 해석

온도 구배기 있는 불포화 매질에서의 핵종이동을 TOUGH2 컴퓨터코드[2]를 이용하여 분석하였다. TOUGH2 컴퓨터코드 는 불포화 매질에서 다상(multiphase) 및 다성분(multicomponent) 유체 혼합물의 다차원(multi-dimensional) 열 및 유체 흐름을 수치 모사하기 위한 컴퓨터코드이다. 이 코드에서는 유체의 이류(advection) 흐름을 Darcy의 법칙을 다상으로 확장시켜 모사한다. 이 연구에서 분석 대상으로 삼은 것은 한국원자력연구원에서 공학적방벽시스템에서 일어나는 열-수리-역학적-화학적 복합 거동을 규명하기 위해 실시하고 있는 공학적 규모 실증실험인 KENTEX-C이다 [2].

TOUGH2 컴퓨터 코드에서, KENTEX-C의 상세 구조를 반경 방향으로 대칭인 2차원 격자구조로 모델링하였으며, 이 구조는 원통형 탄소강 압력용기 본체 내에서 벤토나이트 완충재 블록에 의해 둘러싸여 있는 원통형 히터를 모사한 것이다. 모델링에서 좌우 대칭 조건이므로, 강제 압력용기의 수직 단면의 절반 부분만 고려하였다. 시뮬레이션을 위해 강제 압력용기의 반경방향 단면은 두 영역으로 구분하였다. 첫 번째 영역은 $0 \le r \le 0.204$ m 인 영역으로 격자 크기 0.017 m로 분할되었으며, 두 번째 영역은 $0.204 < r \le 0.375$ m인 영역으로, 격자 크기를 0.0057 m로 감소시켰다. 압력용기의 축 방향은 0.0425 m의 균일한 격자 크기로 분할하였다. 완충재의 초기 조건은 수분함량이 중량비로 13 %, 온도는 25 ℃, 압력은 1.0 bar 로 설정하였으며, 전기히터의 출력이 가변적으로 조절되어, 원통형 히터와 벤토나이트 완충재 계면에서의 온도가 90 ℃로 유지되는 것으로 가정하였다. 외측 경계조건으로, 물이 주입되는 압력용기 벽은 일정 온도 (25 ℃), 일정 압력 (5

bars) 및 포화조건이 유지되고, 모델 메쉬의 상부 및 하부 표면도 역시 일정 온도 (25 ℃), 일정 압력 (1 bars)이 유지된다고 가정하였다.

200일이 경과되었을 때, 완충재 내의 포화도 분포 등고선을 그림 1(a)에 나타내었다. 가열 초기에는 히터 표면의 온도가 상승함에 따라 히터와 근접한 완충재 영역에서는 건조 현상이 일어난다. 시간이 경과함에 따라 모세관 압력에 의해 압력용기 벽으로부터 완충재 내부로 물의 유입이 가속된다. 온도 상승에 따른 물의 점도 감소는 히터 근처에서 수리전도도를 증가시켜, 완충재 전반에서 포화도는 시간 경과에 따라 증가하게 된다. 실험 시작 후 200일이 경과되었을 때, 완충재 내에 분포된 Iodine의 농도 분포 등고선을 그림 1(b)에 나타내었다. 열-수리-역학적 복합 조건 하에서의 음이온의 이동 속도는 포화조건에서의 이동 속도에 비해 상당히 낮아, 200일이 경과된 후에도 주입된 iodine의 일부분만이 히터 근처에 도달하는 것으로 나타났다. 히터의 축 방향 길이의 정 중앙 부분 높이 지점에서, 원통형 히터의 표면과 중심으로부터 수평 거리에 따른 완충재의 iodine 농도의 변화를 시간 경과에 따라 나타내면 그림 2와 같다. 이와 같이 iodine의 이동이 늦게 나타나는 것은, THM 조건에서는 완충재가 상당 기간 동안 물로 포화되지 않고 불포화 상태를 유지하기 때문이다.

3. 결론

고준위폐기물처분장의 폐쇄 후, 공학적방벽시스템의 완충재에서 일어나는 음이온 핵종의 이동현상을 분석하였다. 공학적 규모 실증실험 장치인 KENTEX-C를 대상으로 온도구배가 존재하는 불포화 매질을 통한 음이온의 이동을 TOUGH2 컴퓨터 코드를 이용하여 해석하였다. 열-수리-역학적 복합 조건 하에서 음이온의 이동 속도는 일반적인 포화조건에서의 이동 속도에 비해 상당히 낮아, 200일이 경과된 후에도 주입된 iodine의 일부분만이 히터 근처에 도달하였다.

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).

[3] K. Pruess, C. Oldenburg and G. Moridis, "TOUGH2 User's Guide, Version 2.0, Lawrence Berkeley National Laboratory, LBNL-43134 (1990).

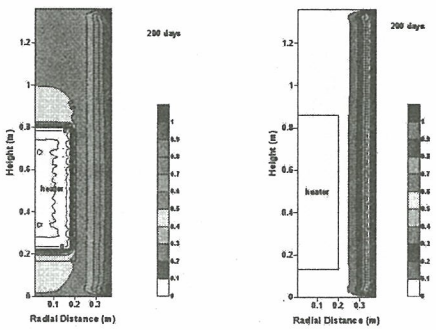


Fig. 1. 200일 경과 후의 (a)포화도 분포 및 (b) iodine 농도 분포 등고선

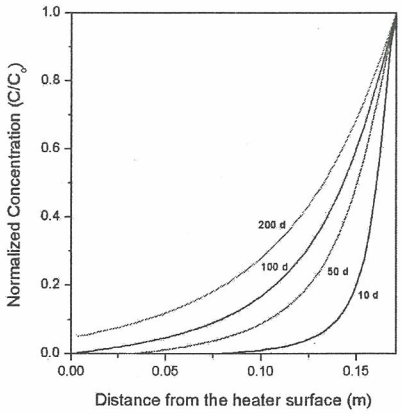


Fig. 2. 시간 경과에 따른 반경 방향의 iodine 농도 분포 변화

Iron Metal에 의한 Selenite 화학종 변화

민제호, 김승수*, 백민훈*, 최종원*, 배기서
충남대학교 녹색에너지기술전문대학원, 대전시 유성구 대학로 79
*한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
jhmin1031@gmail.com

1. 서론

Se-79는 긴반감기(1.1x10^{6}년)를 가지며, 자연수 중에서 셀레늄은 selenite(SeO_3^{2-}) 혹은 selenate(SeO_4^{2-})와 같은 화학종으로 용해도가 크고, 주변 물질에 잘 흡착되지 않는 음이온으로 이동성이 좋아 방사성폐기물 처분에 있어서 주요 관심핵종 중의 하나이다[1]. 하지만 국내 심부지하조건(pH=8.5~9.5, Eh≦-250mV)에서 셀레늄은 SeO_4^{2-}로 존재하기 어렵고, 대부분 Se(0), Se(-II) 혹은 SeO_3^{2-}로 존재할 것으로 예상된다. 이들 중 Se (0), $FeSe_2$와 같은 Se(-II)는 SeO_3^{2-} 화합물과 달리 용해도가 매우 낮은 것으로 알려져 있다.

본 연구에서는 처분장에서 폐기물 처분용기가 국부적으로 부식되어 용기 재질인 철이 용액중에 존재할 경우, 이 철에 의해 용액중의 SeO_3^{2-}가 환원되어 용해도가 낮은 물질을 형성하는 현상 여부를 확인하기 위하여 실험을 실시하였다. 또한, Visual MINTEQ 코드를 이용하여 셀레늄의 화학종 변화를 계산하여 실험결과와 비교하였다.

2. 실험

2.1 Selenite 환원 실험

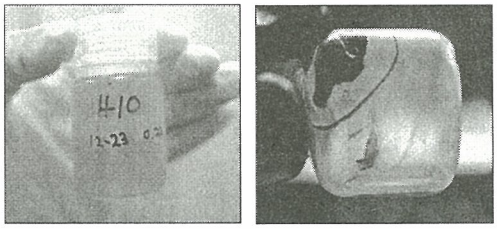
실험은 아르곤으로 채워진 글로브박스 안에서 이루어졌으며, 증류수를 사용하였다. 500mL 테프론병에 철분말 3~4g과 50mM Na_2SeO_3 용액 200 mL을 넣어주어 Eh를 -330~-380mv 으로 맞추어 주었다. 0.1M NaOH을 이용하여 용액의 pH를 10으로 조절하였다. 이 용액을 교반기에 넣고, 7일 동안 교반하였다. 교반 후 용기 안 벽면에 생성된 적색침전물을 확인하기 위하여 cellulose acetate filter로 닦아내어 XRD를 측정하였다. 또한, 여과한 철 분말도 건조 후 측정하였다.

2.2 Selenium 화학종 계산

실험과 유사한 조건에서 SeO_3^{2-}의 화학종 변화를 계산하기 위하여 Visual MINTEQ 코드를 이용하였다. Table 1에는 코드에 사용한 셀레늄의 열역학 자료를 표시하였다. 산화환원전위는 반응 후 실험용액의 Eh값이 -330 mV로 측정되었으므로 이 값을 이용하여 계산하였다.

Table 1. Thermodynamic data of selenium

Reaction	log K
$SeO_3^{2-} + H^+ \rightarrow HSeO_3^-$	8.4 (Nagra,2002)
$HSeO_3^- + H^+ \rightarrow H2SeO_3(aq)$	2.8 (Nagra,2002)
$H_2SeO_3(aq) + 6H + 6e^- \rightarrow H_2Se(aq) + 3H_2O$	46.2 (Nagra,2002)
$H_2Se(aq) \rightarrow HSe^- + H^+$	-3.8 (Nagra,2002)
$HSe^- \rightarrow Se(cr) + H^+ + 2e^-$	-7.69 (SKB, 2006)



<a> <b>

Fig. 1. (a) Filtrate passed through a 0.22 um PES filter after 3-days reaction, (b) Red precipitate formed in side of Teflon bottle after 7-days reaction.

3. 결 과

실험초기 실험용액의 색이 무색이었으나, 시간이 경과함에 따라 주홍색으로 변하고(Fig. 1 <a>), 7일이 시간이 경과한 후에는 테프론병 벽면에 적색침전물이 관찰되었다(Fig. 1 <b>). 생성된 적색침전물을 측정한 결과, Fig. 2와 같이

Se(cr)로 확인되었다. 그러나 소량의 적색침전물을 포함한 철 분말을 측정한 경우, 철 피크 외에는 Se(cr) 혹은 Fe_xSe_y와 같은 피크가 관찰되지 않았다.

Visual MINTEQ 코드를 사용하여 얻은 결과(Fig. 3)도 실험과 동일한 pH 10의 조건에서는 주 화학종이 Se(metal)로 계산되어 실험결과와 잘 일치하였다. pH 10, 상온, $[Se]_{total}$=50mM에서 Se(cr) 형성 Eh조건을 Visual MINTEQ로 계산한 결과 약 -450~-30mv이었다.

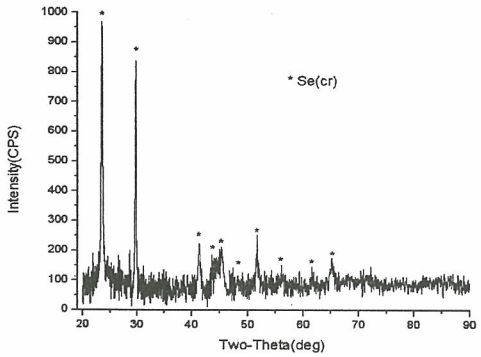


Fig. 2. X-ray diffraction pattern of the precipitate

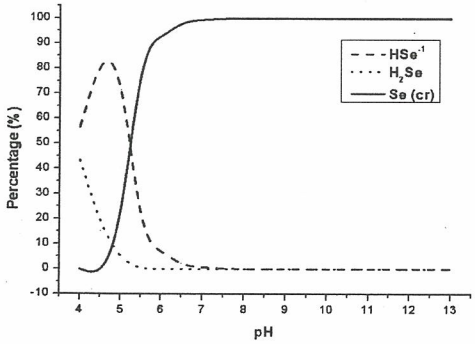


Fig. 3. Percentage diagram for selenium species ($[Se]_{total}$=50mM, pH 10, Eh -330mv)

4. 결론

산소가 차단된 조건에서 SeO_3^{2-}용액에 철 분말을 넣고 교반시킨 결과, 철에 의해 -330mv 이하의 환원조건이 형성되어 SeO_3^{2-}가 Se(red, cr)로 환원되었음을 확인하였다. 이는 심부 지하 고준위폐기물 처분장에서 셀레늄이 SeO_3^{2-}으로 존재하더라도 처분용기 재질에 의해 용해도가 낮은 셀레늄 금속물을 형성하여 이동성이 낮을 것으로 예상된다.

5. 참고문헌

[1] 한국원자력연구원, 2010년 기술보고서, TR-4194, p. 1-9, 2010.

고준위폐기물 처분기술 특허동향 분석 연구

김은가, 류건중, 조성수, 서인석
(사)대덕원자력포럼, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
ekkim806@hanmail.net

1. 서론

고준위폐기물 처분기술에 관한 각국의 특허를 분석하여 동향을 파악·제시함으로써 국내의 관련 기술 개발을 위한 방향 설정에 기여하고자 한다. 특허분석은 고준위폐기물 처분개념 정립을 위한 국내 기술능력 조사·분석 연구[1]에서 제시한 기술 분류를 토대로 4개 기술 분야를 특허분석 대상으로 하였으며, 고준위폐기물 처분기술 특허는 검색식을 사용하여 1971년~2010년 6월까지의 기간 중에 출원된 한국특허 35건, 미국특허 118건, 일본특허 108건, 유럽특허 39건, 국제특허 41건 등 총 341건을 발췌하여 이를 토대로 일반 통계적 분석, 특허분석지표에 의한 정량분석, 심층분석 등 다양한 분석을 수행하였다.

2. 본론

2.1 처분기술 특허의 통계적 분석

고준위폐기물 처분기술 분야에 대한 대상국가의 특허를 보면 미국특허가 118건으로 가장 많고, 일본특허가 108건으로 그 뒤를 잇고 있다. 그 다음이 국제특허 41건, 유럽특허 39건, 우리나라특허 35건 순으로 비슷한 수준의 특허출원을 하고 있다.

한국특허에서는 내국인이 33 건으로 94.29%를 차지하고 있으며, 미국특허의 경우 미국인 출원이 101.5건으로 85.59%를 차지하고 있다. 일본특허는 일본인 출원이 104건으로 96.30%를 차지하고 있으며, 유럽특허는 미국이 17건으로 43.59%를 차지하고 있다. 유럽특허의 경우 외국인의 특허 점유율이 56.41%에 이르고 있어 비교적 다양한 국가의 출원분포를 나타내고 있다. 국제특허는 미국이 25건으로 60.98%를 차지하고 있다. 각국특허에서의 국가별 연도별(기간별) 출원건수를 보면 대표적으로 한국특허의 경우 그림 1에 나타낸 바와 같이 한국출원인이 33건으로 1994년부터 특허를 출원하기 시작하여 2007년에 가장 많은 10건을 출원하였으며, 그 후 다소 주춤하는 경향이 있다.

그러나 5년 단위로 구분한 기간별 동향을 보면 계속 출원건수가 증가하여 우리나라에서의 고준위폐기물처분 기술 개발이 활발히 이루어지고 있음을 보여주고 있다.

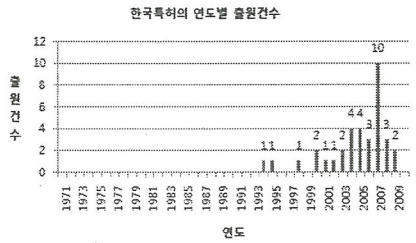


Fig. 1. Changes of the number of patents filed by year in Korea

한국특허에서 출원인별 출원 동향은 한국원자력연구원이 한국수력원자력(주)과 공동으로 가장 많은 10건을 출원하였으며, 한국원자력연구원이 단독으로 5건을 출원하여 한국에서는 한국원자력연구원이 단연 특허 출원을 주도하고 있다는 것을 보여준다. 그 외에 선광원자력안전(주), (주)종현엔지니어링이 2건씩의 특허를 출원하고 있다. 특히 외국계 기업으로는 Holtec Interantional Inc.가 유일하게 2건의 특허를 출원하고 있다.

한국특허에서 세부기술 분야별 출원 동향을 보면 처분시스템개발기술과 지질환경평가기술의 특허출원이 활발한 것으로 나타났다. 한국특허 전체 35건 중 처분시스템개발기술 특허가 57.14%(20건), 지질환경평가기술 특허가 28.57%(10건), 공학적방벽개발기술 특허가 11.43%(4건), 처분시스템 성능 및 안전성평가 기술 특허가 2.86%(1건)이었다. 한국특허는 2001-2010년 구간에 특히 출원활동이 활발하였다.

2.2 특허분석지표에 의한 정량분석

특허분석 지표들에 대한 분석을 수행하여 그 결과를 제시함으로써 상대적 특허활동, 영향력, 상대적 영향력, 기술력, 시장의 크기 등에 대한 효과를 분석하였다. 그림 2에는 각종 특허활동지

수와 패밀리수를 토대로 고준위폐기물처분기술에 대하여 각국의 질적 수준과 경쟁력을 도시한 것이다.

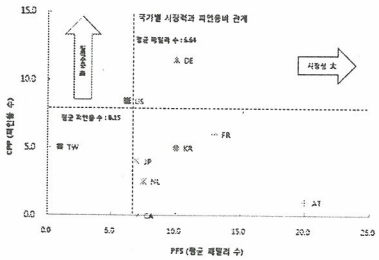


Fig. 2. National patents quality and competitiveness of HLW disposal technology

이 그림의 횡축은 패밀리수(PFS), 종축은 피인용수(CPP)를 나타내며, 이 평면을 평균 패밀리수 6.64, 평균 피인용수 8.15를 기준하여 4부분으로 구분하면 각국의 경쟁력을 파악할 수 있다. 즉, 횡축의 우측으로 갈수록 시장성이 크고 종축의 상부로 갈수록 질적 수준이 높음을 의미한다. 이 기준에 의하면 시장성도 크고 질적 수준도 높은 큰 나라는 독일이며, 미국은 질적 수준과 시장성이 평균 정도이며, 프랑스, 한국은 시장성은 높으나 질적 수준은 낮다.

2.3 심층분석

포트폴리오로 본 각국특허의 고준위폐기물처분기술 분야의 위치를 살펴보면 그림 3에서 보여주는 바와 같이 성수기 단계에서 퇴조기 단계로 접어들고 있다.

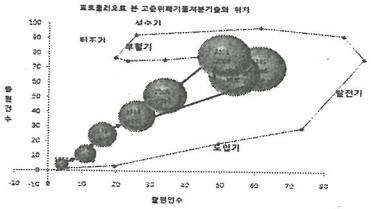


Fig. 3. Location of HLW disposal technology by portfolio

3. 결론

고준위폐기물 처분기술 분야에 있어 우리나라는 미국이나 일본 그리고 유럽연합에 비하여 특허출원이 상당히 늦게 시작되었다. '90년대에 들어서야 비로소 특허출원이 시작되었으며 이후 특허출원이 매년 증가하는 추세를 보이고 있으며 한국특허에서는 발전기에 해당한다.

4. 감사의 글

본 연구는 한국원자력연구원 원외 자체연구개발사업의 일환으로 이루어졌다.

5. 참고문헌

[1] 강창순 외 23명, KAERI/CM-231/98, 한국원자력연구소, (1998.9)

배경 단열이 반영된 단열 암반에서의 지하수내 용존 물질의 이동 양상 분석

고낙열, 지성훈
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
nyko@kaeri.re.kr

1. 서론

심지층 처분시설을 계획할 때에는 수십만 년 이상 처분장에 놓인 방사성폐기물로부터 발생할 수 있는 방사성 핵종이 처분시설 밖으로 누출되지 못하도록 여러 가지 공학적 방벽을 설치한다. 그러나 예기치 못한 사건에 의해 처분안전성이 위협받을 수 있기 때문에, 처분시설에서 방사성 핵종이 누출되는 경우를 상정하고 그 때의 핵종의 이동 양상을 예상하여 처분장의 건설과 운영, 폐쇄 후의 안전성을 유지시키는데 이용하게 된다.

이 연구에서는 블록 규모의 지하수 유동 모의에서 배경단열을 고려해서 알아낸 지하수 유동 경로를 이용하여 지하수를 따라 이동하는 용존 물질의 시간에 따른 변화를 불확실성을 고려하여 계산하였고 처분안전성 평가에 이용할 방안에 대해 고찰하였다.

2. 지하수 유동 모델링

2.1 지하수 유동 모의 영역

지하수 유동에 이용된 모의 영역은 실제 심지층 처분장이 건설되고 있는 핀란드의 Olkiluoto 섬 중앙부의 지하로, 500 × 500 × 500 m 규모이다. Olkiluoto 섬은 순상지이고 10 m 내외의 토양층 아래 선캠브리안대의 암석이 기반암으로 존재하고 있어 모의 영역은 모두 암반의 특성을 갖는 것으로 가정하였다. 남동, 북동 방향의 단층이 주 단열대를 형성하고 있다(Vaittinen 등, 2003).

2.2 배경 단열의 영향 고려

Olkiluoto 현장에서 조사된 단열대 자료를 바탕으로 불연속(discrete) 단열망을 구성하고, 구성된 단열망을 이용해 수리전도도 분포를 만들어 3차원의 연속체 (continuum) 격자에 입력하는 혼합(hybrid) 모형을 이용하였다. 그리고 국지적 지질구조가 끼치는 영향을 알아보기 위해 배경 단열 자료를 분석하여 수리전도도 분포에 반영한 모형도 작성하였다. 또한 관측정에 의해 교란되는 지하수 유동 환경을 나타내기 위해 DFE(discrete fracture element) 기법을 적용하여 관측정 구조를 지하수 유동 모형에 입력하였다(Diersch, 2005).

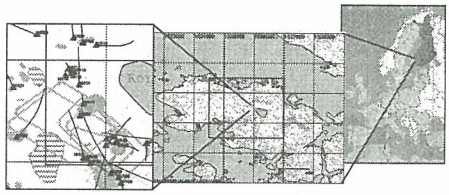


Fig. 1. Groundwater modeling domain in Olkiluoto island

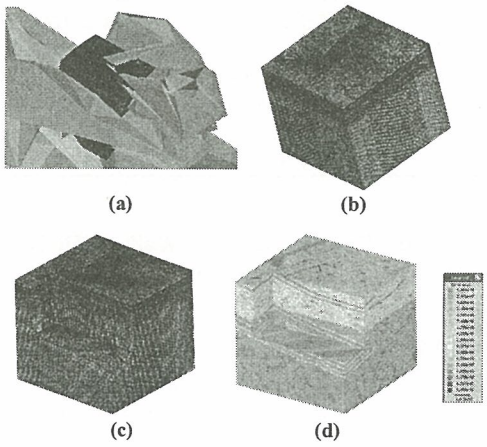


Fig. 2. (a) discrete fracture network, (b) 3-D continuum mesh, and hydraulic conductivity fields (c) without and (d) with background fracture

3. 지하수 유동 경로와 이동 시간

배경단열이 고려되면 국지적으로 수리전도도가 높아 지하수가 잘 흐를 수 있는 통로가 생성되어 복잡한 유동 경로가 발생하고(Fig. 3), 암반의 수리전도도가 전체적으로 상승하는 효과를 불러와 이동 시간은 오히려 감소되어 나타났다(Table 1).

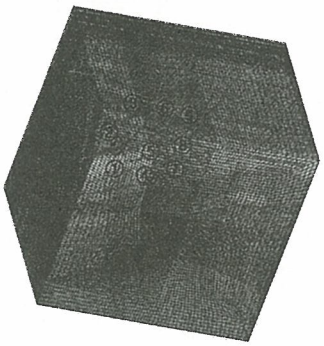


Fig. 3. Result of the particle tracking when the background fractures were included

Table 1. Travel times and distances for each particle released from the points shown in Fig. 3

Release Points	Travel Time ($\times 10^3$ year)	Travel distance (m)
1	8.3 ± 2.0	209 ± 2
2	9.0 ± 2.0	209 ± 13
3	17.9 ± 5.8	233 ± 12
4	13.5 ± 4.0	244 ± 62
5	16.9 ± 4.0	267 ± 6
6	15.0 ± 2.8	236 ± 7
7	52.6 ± 19.9	331 ± 23
8	27.3 ± 5.3	278 ± 9
9	15.0 ± 4.6	224 ± 7

4. Time-Domain Random Walk (TDRW) 방법을 이용한 용질의 이동 양상

지하수 유동 모의를 통해 파악한 지하수 유동 경로 자료를 이용하여 지하수내 용질의 시간에 따른 이동 양상을 TDRW를 이용하여 계산하였다. TDRW는 특정 시각에서의 공간에 따른 분포를 계산하는 Random Walk 방식에 비해 특정 지점에서의 시간에 따른 농도 또는 양의 변화를 계산하는 방식으로 지하수내의 용질의 이동을 평가한다. 앞서의 지하수 유동 모의 결과를 이용하여 평가한 시간에 따른 지하수 용질의 이동 양상은 일반적인 breakthrough curve의 모습을 잘 모여준다(Fig. 4). 이는 이용한 TDRW 모형이 이송(advection)과 분산(dispersion)만을 고려했기 때문으로 생각된다.

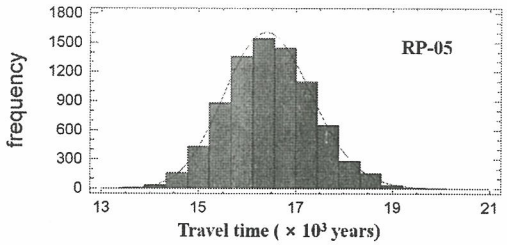


Fig. 4. The arrival distribution using TDRW calculation for the particle located in RP-05 from Fig. 3

5. 결론

배경 단열 자료를 고려하여 단열 암반에서의 지하수 유동 모의를 실시하고 특정 지점에서의 지하수 유동 경로와 이동 시간을 평가하였다. 그리고 그 자료를 이용하여 특정 위치에서의 용질이 시간에 따라 어떻게 이동해 가는가를 TDRW를 이용하여 평가하였다. 특정 위치에서의 시간에 따른 용질의 변화 양상을 잘 표현해 주기 때문에 TDRW 방법은 장기간의 지하수 유동 양상에 대한 평가가 필요한 처분안전성 연구에 적합하고 많은 도움을 줄 수 있을 것으로 기대된다.

6. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부 원자력연구개발사업의 지원을 받았음을 밝히며 이에 감사드린다.

7. 참고문헌

[1] T. Vaittinen, 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).

[2] Diersch, H.-J.G., 2005. Discrete feature modeling of flow, mass and heat transport processes by using FEFLOW, in: WASY GmbH (Eds.), FEFLOW: Finite Element Subsurface Flow and Transport Simulation System. White Papers Vol. 1. WASY GmbH, Berlin, Germany, 149-196.

미생물에 의한 4가 우라늄 콜로이드 생성 및 지구환경적 의미

이승엽, 오종민, 백민훈, 최종원
한국원자력연구원, 방사성폐기물기술개발부
seungylee@kaeri.re.kr

1. 서론

지하환경은 지표와는 다르며, 대체로 환원상태(낮은 Eh)의 지하수와 단열(fracture)을 가진 암석 등으로 구성되어 있다. 지하환경은 다양한 종류의 혐기성미생물들이 서식하고 있으며, 이들 중의 일부는 산소가 희박한 조건에서 용존 금속원소들을 환원시키거나 콜로이드와 같은 광물 형성 작용을 일으킬 수 있다. 이와 같은 미생물들을 금속환원미생물이라고 일컫는데, 이들은 에너지원으로 잔존 유기물을 이용하거나 수소(H_2) 혹은 메탄(CH_4) 가스 등을 이용할 수 있다[1]. 자연 조건에서 공급되는 에너지원들은 미생물에게 전자공여체로 이용되며 주변의 용존 산화금속원소 혹은 산화철 광물 등은 환원되거나 광물 변이가 일어난다[2].

본 연구에서는 황산염환원미생물(SRB)에 의해 용존 산화우라늄이 환원되면서 4가 우라늄 콜로이드로 변하는 과정을 관찰하였다. 또한, 이러한 우라늄 환원과정에 의해 우라늄의 지하에서의 지구화학적 거동을 이해하고자 하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

실험에 사용된 미생물은 *Desulfovibrio desulfuricans*와 *Desulfovibrio vulgaris* 두 종류의 황산염환원박테리아(SRB)가 사용되었다. 100 mL의 성장배지에는 lactate(10 mM), Fe-sulfate(2 mM)가 있고, 50 μM 농도의 우라늄이 주입되었다. 실험은 약 45일간 이뤄졌으며 우라늄을 포함한 미량원소들의 농도 변화를 살펴 보았다.

2.2 SRB-우라늄 반응

SRB는 물 속의 황산염을 환원하여 황화물로 만들며, 이 때 다른 양이온인 철과 결합되어 황화철 광물이 만들어진다. 이 과정에서 만들어지는 황화철은 대부분 맥키나와이트(mackinawite, FeS)라는 광물이며, 초기에는 매우 작은 나노입자의 형태를 띤다. SRB의 환원작용이 활발해짐에 따라 점점 더 많은 맥키나와이트와 그들의 결정성이 좋아지고 입자들의 크기도 점점 커진다. 초기 우라늄의 농도 변화는 이러한 황화광물의 형성과 밀접과 관련이 있고, 용존우라늄들이 대부분 나노입자인 맥키나와이트에 흡착되어 수 일내에 급격한 우라늄 농도 감소를 보인다(그림 1).

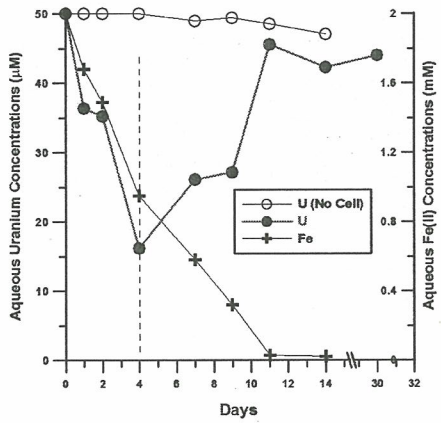


Fig. 1. Changes of aqueous U and Fe concentrations via activity of *D. desulfuricans*

하지만, 시간이 흐르면서 우라늄의 농도가 다시 서서히 증가하는데, 이러한 변화는 미생물들의 직접적인 환원작용보다는 황화광물의 환원작용에 의해 나타나는 현상으로 보인다. 대부분의 우라늄은 6가에서 4가로 환원되고 콜로이드 크기(< 20 nm)의 입자를 갖는 용존 형태를 보인다(그림 2).

2.3 지하환경에서의 우라늄핵종 이동

방사능으로 오염된 토양이나 지하수에서 방사성핵종들은 빠른 확산을 보인다. 일반적으로 우라늄과 같은 액티나이드(actinides) 핵종성분들은 물속에 용해되면 이온상태로 존재하여 주변의 광물 및 암석표면에 흡착된다. 따라서, 거리에 따라 대부분의 용존 핵종들은 멀리 이동하지 못하고 점차 토양 혹은 광물/암석 표면에 흡착되거나 침전되면서 물 속의 핵종 농도는 점차 감소되어야 한다. 하지만, 최근의 발표된 논문에서 플루토늄과

같은 핵종들이 먼 원거리까지 확산된다는 사실이 보고되었다[3]. 이러한 현상에 대해서 일부 학자들은 핵종들의 콜로이드 이동설을 주장하게 되었고 다양한 실험들이 진행되었다. 하지만, 무기 혹은 유기 콜로이드에 흡착되어 이동하는 핵종만이 관찰되었을 뿐, 핵종 자체의 콜로이드는 확인하지 못하였다. 본 연구에서는 우라늄 핵종 자체의 콜로이드화 현상을 관찰하였으며, 미생물로부터 형성된 황화광물이 우라늄의 콜로이드화 작용을 촉진한다는 사실을 처음 보고한다(그림 2).

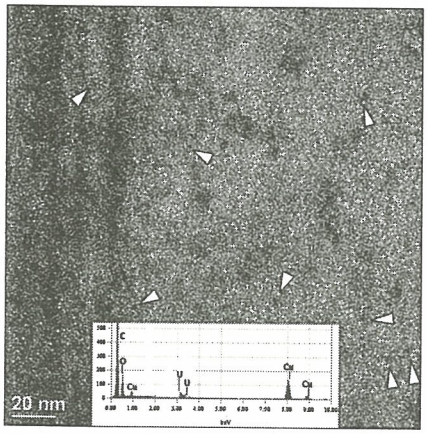


Fig. 2. A high-resolution electron microscopic image showing U(IV) nanoparticles.

3. 결론

지하환경에서 핵종들의 거동은 자체 콜로이드화에 의해 크게 달라지며, 여기에는 박테리아의 역할과 생황화광물의 형성 작용이 깊숙이 연관되어 있다. 따라서, 지구환경에서의 핵종들의 이동은 원소들의 화학적인 특성과 더불어 지하미생물들의 역할에 따라 크게 영향 받을 수 있다는 사실을 주지할 필요가 있다.

4. 감사의 글

본 논문은 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 연구비를 지원받아 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] Konhauser, K., 2007, Interaction to Geomicrobiology. Blackwell Publishing, Malden, USA, 425 p.

[2] Roh, Y., Moon, H.S., 2001, Iron reduction by a psychrotolerant Fe(III)-reducing bacterium isolated from ocean sediment. Geoscience Journal, 5, 183-190.

[3] Novikov, A. P. *et al.*, 2006, Colloid transport of plutonium in the far-field of the Mayak Production Association, Russia. Science, 314, 638-641.

Considering the effect of water pressure at the analysis of a hydraulic test in a fractured rock

S.-H. Ji, Y.K. Koh, and J.W. Choi
Korea Atomic Energy Research Institute, 1045 Daedeokdaero, Yuseong, Daejeon, 305-353, Korea
shji@kaeri.re.kr

1. Introduction

Groundwater flow through fractures is one of major pathways for radioactive contaminants from a subsurface repository to the biosphere. From the cubic law the transmissivity of a fracture is proportional to the cube of the aperture, which introduces that a small change of the aperture can make a big change in the flow rate thus the transmissivity of a fracture –if the aperture increases by 50 %, the transmissivity of a fracture increases by 338 %. It is known that a sufficiently large water pressure makes a change in a fracture aperture thus a fracture transmissivity (e.g. hydro-fracturing), and a small change in water pressure, which is often occurred during the hydrogeologic characterization works, maybe affect a fracture aperture thus the well test result.

In this study, we evaluate the influence of the water pressure on the fracture aperture and the fracture transmissivity with a series of field experiments. For the experiments, a borehole is installed in the KURT, and the test interval is determined through the analyses of borehole logging and hydraulic tests. Then, a double packer system, which is able to observe the change of an aperture due to the water pressure change directly, is developed and installed in the test borehole. Using the double packer system the aperture of a fracture in the test interval and the flow rate are observed directly under various water pressures, and the relation between the water pressure and the aperture thus the fracture transmissivity during a hydraulic test is quantified.

2. Test borehole

The test borehole named as TB-5 is located in the KURT, which is in Daejeon, middle-western area of the Korean peninsula. The KURT, whose maximum depth is 90 m from the ground surface, is a small scale underground research facility with 180 m long access tunnel and two research modules. Fig. 1 shows the layout of the KURT and the location of the TB-5 borehole. The length and radius of the TB-5 are 30 m and 4 in, respectively, and its host rock is two-mica granite.

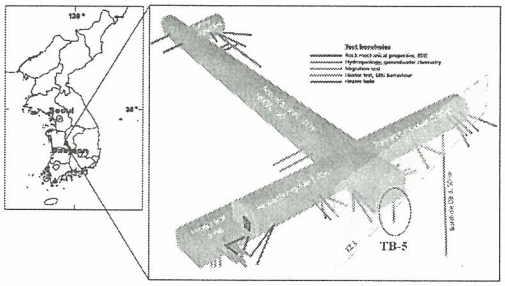


Fig. 1. Layout of the KURT and the location of the test borehole, TB-5

To determine the test interval, fractures crossing the TB-5 are logged using an acoustic televiewer. The total number of them is 78, and thus the P10 defined as the number of fractures per unit length of the borehole is 2.6. The fractures can be classified to 3 fracture sets, and the fracture set with 233 and 74 degrees of the mean trend and plunge, respectively, is the most dominant one. Based on the borehole logging data, the packed-off section 28.2 – 29.1 m depth from the top of the casing (TOC) is selected as the test interval because it has 1 fracture that is not connected to other

boreholes thus the intensive observation and analysis for the target fracture are possible.

3. Results

3.1 Hydraulic test

In the test interval, preliminary hydraulic tests such as a constant head withdrawal and recovery tests are conducted. During the constant head withdrawal test, the hydraulic head in the test interval instantaneously decreases from the initial head to the assigned head, and is kept constant. The out-flow rate is initially at maximum, and converged to a value. The recovery test begins by stopping the groundwater outflow, and the hydraulic head is restored to the initial one. The constant head withdrawal test results are analyzed with the Moye, Jacob-Lohman and straight line model while the recovery test results Horner models. Table 1 shows the estimated transmissivity for the test interval. The difference between the estimated transmissivities from the constant head withdrawal test and those from the recovery test is about 1 order.

Table 1. The estimated interval transmissivities from the constant withdrawal and recovery tests conducted at the test interval in the TB-5 borehole

Estimated interval transmissivity [m^2/sec]			
Constant head withdrawal test			Recovery test
Moye analysis method	Jacob-Lohman analysis method	Straight line analysis method	Horner analysis method
3.6E-9	4.8E-9	5.2E-9	2.7E-8

3.2 Developed double packer system

For direct observation of the fracture aperture during a hydraulic test, a special double packer system is designed. It is composed of three parts: outer pipe, inner pipe and acrylic pipe. Eight rubber packers to isolate the specific zone in a borehole are attached to the outer packer, and there is an observation window, which is located at the zone isolated by the packers, in the outer pipe. The inner pipe is coupled with the acrylic pipe for direct observation of a fracture using a borehole camera. It is a passage for a borehole camera and cables and a barrier to shut out the influence of the assigned water pressure to the test zone on the camera. It is placed inside the outer pipe. Note that the outer and inner pipes are made of the stainless steel.

3.3 Water pressurizing tests

To check the performance of the developed double packer system and confirm the experimental set up, a preliminary test for quantifying the relation between water pressure and a fracture aperture is conducted. The pressurized water is injected to the target interval through the space between the outer and inner pipes using a constant pressure injection pump, and a borehole camera such as the borehole image processing system (BIPS) is inserted into the inner pipe to record the change of the target fracture aperture. Transducers for measuring the established water pressure and the injection rate into the target zone are installed between the injection pump and the injection hole in the outer pipe.

The target fracture and the injection rate into the test zone are observed while a hydraulic head of 50 m is applied to the test zone. After the water pressure is imposed, the aperture of the fracture in the test zone is increased, which means that the effect of water pressure change should be considered when the estimated hydraulic parameter from a field test is applied to the safety assessment of the repository.

4. Acknowledgement

This work was financially supported by the Korean Nuclear R&D program of the Ministry of Science and Education.

5. References

[1] Batu, V., 1998, Aquifer hydraulics: A comprehensive guide to hydrogeologic data analysis, John Wiley & Sons, Inc., New York.

한국원자력연구원 내 지하처분시설에서의 암반손상대 평가에 관한 연구

이창수, 전석원, 권상기*,
서울대학교, 서울특별시 관악구 대학동
*한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
cslee@snu.ac.kr

1. 서론

일반적으로 굴착손상영역(Excavation Damaged Zone, EDZ)은 역학적, 열적, 수리적 그리고 화학적 특성이 굴착으로 인해 원래의 암반과 다른 특성을 나타내는 영역을 의미한다. 이러한 암반손상영역은 특히 심도가 깊을수록 그리고 현지응력이 클수록 그 영향은 크게 나타나게 된다. 특히 지하 약 500 m에 건설되는 고준위 방사성 폐기물 처분장의 경우, 굴착손상영역으로 인한 처분장 주변의 암석 물성 변화는 고준위 방사성 폐기물 처분장의 안정성에 크게 영향을 미치게 된다. 따라서 굴착으로 인해 발생된 손상영역의 범위와 그 정도를 파악하는 것은 고준위 폐기물 처분장 설계를 위해 반드시 필요하다. 이에 본 연구에서는 KAERI Underground Research Tunnel, KURT의 건설과정 동안 발생된 굴착손상영역의 범위와 그 정도를 실험실 시험과 수치해석을 이용하여 구하고자 하였다.

2. 본론

대전광역시 유성구 덕진동 일대의 한국원자력연구소 부지 내에 위치하고 있는 KURT는 총 180 m의 진입터널과 좌, 우로 30 m, 45 m의 연구터널 그리고 회차구간(turning shelter)으로 이루어져 있다. 본 연구에서는 터널입구로부터 약 60 m 떨어진 회차구간에서 획득한 암석의 공극률의 변화를 살펴봄으로써 굴착손상영역의 특성을 실험적으로 살펴보고자 하였으며, 또한 Particle Flow Code 2D를 이용한 수치해석적인 방법으로 굴착손상영역을 평가하고자 하였다.

2.1 실내시험

공극률은 전체 부피에 대한 공극의 부피비로 정의된다. 본 연구에서는 암석시료를 800 Pa 이내의 진공오븐에서 24시간 이상 수중에서 포화시킨 포화시료의 질량과 105 ℃ 온도로 24시간이상 건조시킨 건조질량, 그리고 시료의 부피를 이용하여 암석시편의 공극률을 측정하였다. Fig. 1은 벽면거리에 따른 암석의 공극률의 변화를 보여주고 있다. 굴착전의 공극률은 0.65 % ~ 1.41 %의 범위로 나타났으며, 그 평균값은 0.99 %이고 표준편차는 0.23으로 나타났다. 반면 굴착 후의 암석 공극률은 1.05 % ~ 5.85 %의 범위로 나타났으며, 평균값은 2.58 %이고, 표준편차는 1.15로 나타났다. 굴착 전과 굴착 후의 암석의 공극률을 살펴본 결과, 평균값을 기준으로 공극률이 약 2.6배 정도 증가한 것을 알 수 있었다. 이는 굴착으로 인해 주변 암반이 영향을 받은 것으로써, 미세균열의 발생과 기존 균열의 확장으로 인한 것으로 판단된다. 또한 그 영향을 받은 범위는 Fig. 1에서 알 수 있듯이, 벽면거리가 약 2.5 m 지점까지인 것으로 판단된다. 이러한 연구결과는 선행 연구(Kwon et al., 2009)와 비교하였을 때, 유사한 경향을 보임을 알 수 있었다.

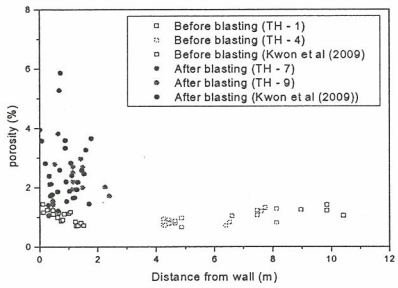


Fig. 1. Relationship between porosity and distance from the wall

2.2 수치해석

Particle Flow Code 2D를 이용하여 굴착손상영역을 수치해석적으로 모사하기 위해, KURT 주변 암반의 물성은 선행연구 Kwon er al (2006)에서 제시한 Q값을 이용하여 Barton (1980, 1995)이 제시한 식으로부터 암반 변형계수는 18.90 GPa, 암반강도는 32.51 MPa로 추정하였다.

발파에 의한 암반 굴착을 수치해석적으로 모사하기 위하여 발파에 의해 발생되는 최대발파압력은 Konya와 Walter (1991)에서 제안한 식을 이용하였으며, 최성웅 등 (2004)이 제시한 감쇠함수와 최대발파압력의 디커플링효과를 고려하였다.

발파에 의해 발생된 균열밀도를 계산하여 굴착손상영역을 정량적으로 산정하고자 하였다. Fig. 2는 벽면으로부터 거리를 0.1 m 간격으로 세분화하여 구한 균열밀도를 벽면거리에 대해 나타낸 것이다. 전체적으로 벽면거리가 증가함에 따라 균열의 밀도는 감소함을 알 수 있다. 이러한 경향은 앞서 살펴본 공극률의 변화양상과 매우 흡사한 것으로 나타났다. 발파에 의해 발생된 균열의 밀도를 수치해석적인 방법으로 살펴본 결과 최대 약 40 %정도로 나타났으며 손상범위는 약 4 m 지점까지인 것으로 나타났다.

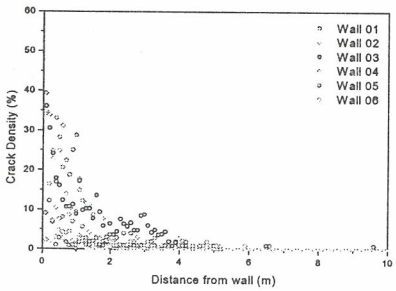


Fig. 2. Change of the crack density around wall of KURT

3. 결론

본 연구에서는 KURT의 건설로 발생된 굴착손상영역에서 획득한 암석시료들을 이용하여 암석의 공극률을 조사함으로서, 굴착손상영역의 범위와 손상정도를 살펴보았다. 공극률의 변화를 살펴본 결과, 발파에 의한 굴착으로 인해 약 2.5 m 내의 암석들은 공극률이 평균적으로 약 2.6배 정도 증가하는 것으로 나타났다.

PFC2D를 이용하여 KURT의 발파에 의한 굴착과정을 수치해석적으로 모사하여 굴착손상영역을 정량적으로 평가하였다. 수치해석의 결과 벽면거리가 약 4 m인 지점까지 균열이 발생하는 것으로 나타났으며, 벽면거리가 가까운 영역에서는 최대 약 40 % 정도의 균열이 발생하는 것으로 나타났다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환인 공학적 방벽 성능실증 기술개발 과제(53324-11)로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] 최성웅, 박의섭, 선우춘, 정소걸, 2004, 실측 진동파형을 이용한 발파 동해석 기법에 관한 연구, 터널과 지하공간, 제 14권 제 2호, 108-120

[2] Barton N. Løset F, Lien R, Lunde J. Application of the Q-system in design decisions concerning dimensions and appropriate support for underground installations. Int Conf Subsurface Space, Rockstore, Stockholm, Sub-surface 1980; 2: 553-561.

[3] Barton N. 1995. The influence of joint properties in modelling jointed rock masses. Keynote Lecture, 8th Congress of ISRM, Tokyo, Vol. 3. Rotterdam: Balkema, 1995.

[4] Konya, C. J., Walter, E. J., 1991. Rock blasting and overbreak control. FHWA-HI-92-001. National Highway Institute, 5.

[5] Kwon, S., Cho, W. J., Han, P. S., 2006. Concept development of an underground research tunnel for validating the Korean reference HLW disposal system. Tunnelling and Underground Space Technology. 21, 203-217.

[6] Kwon, S., Lee, C. S., Cho, S. J., Jeon, S. W., Cho, W. J., 2009. An investigation of the excavation damaged zone at the KAERI underground research tunnel. Tunnelling and Underground Space Technology. 24, 1-13.

단열대 도출 정량화를 위한 통계적 기법 활용

박경우, 배대석, 김건영, 김경수
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045번지
woosbest@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성폐기물 처분 연구를 위해 연구지역의 부지특성조사에서 우선적으로 도출해야 하는 것은 지질모델이다. 연구지역의 지질모델을 기반으로 해서 지하수 흐름을 해석할 수 있는 수리지질모델이 도출되며, 수리지질모델에 근거하여 처분 안전성 평가의 입력 자료가 비로소 도출될 수 있다. 일반적으로 지질모델은 단층의 크기 및 방향을 설명하는 지질구조모델을 의미한다고 생각할 수 있으나, '처분 영역을 흐르는 지하수를 통해 핵종이 이동한다'는 수리지질학적 관점에서 주요한 투수성 단열대 및 지하수 흐름의 통로 혹은 방벽의 역할을 하는 단층에 대한 기하학적 특성을 설명하는 모델로 정의할 수 있다. 본 연구는 장심도 시추공 지질조사 자료로서 수행된 각 물리검층 자료를 이용하여 지질모델에 입력될 투수성 단열대 도출을 위해 수행되었으며, 이를 위해 통계적인 기법을 적용하여 보다 객관적인 방법으로 투수성 단열대를 도출하고자 한다.

2. 본론

2.1. 연구 지역

방사성폐기물 처분 연구의 일환으로 한국원자력연구원의 연구지역에서 총 255m의 굴착 길이를 갖는, 단면 6(W) ×6(H)m(마제형), 굴착방향 N56° W, 하향 5.7°로 지하처분연구시설(KURT)를 건설하였다. KURT는 주터널 외에 좌우측 두 개의 연구용 터널로서 구성되는데 본 연구는 좌측 연구용 터널에서 굴착된 DB-01 시추공의 물리검층 결과를 이용하여 수행되었다.

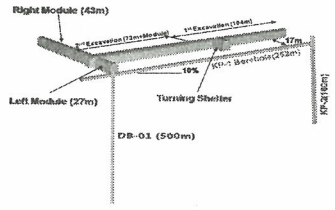


Fig. 1. Description of KURT and DB-01

2.2. 연구 방법

DB-01 장심도 시추공에서 BHTV, 온도, 전기전도도, 전기비저항, 밀도, 완전파음파 검층이 수행되었다. 통계 분석에서 이용된 자료는 BHTV 자료에서 도출된 단열빈도, 온도, 전기전도도 검층 결과의 변화량, 전기비저항(Short normal, Long normal), 밀도, 완전파 음파(Vp, Vs) 검층 결과의 미터당 평균값이다. 총 8개 자료를 변수로 하여 각 변수에 대한 상관관계를 분석하였고, 또한 상관관계를 이용한 주성분 분석을 통해 변수의 특성을 선형화 하여 주성분 점수를 도출하고 심도별 주성분 점수를 이용하여 단열대를 정량화하였다.

2.3 상관관계 분석

1) 전체 변수를 적용

각 변수의 상관관계 도출한 결과 단열대의 존재와 가장 연관이 있다고 간주되는 단열빈도와 각 물리검층 결과와의 관계는 전기비저항 검층, 완전파음파 검층 결과가 음의 상관관계를 보였다. 하지만, 온도 및 전기전도도의 변화량과는 거의 관계가 없는 것으로 분석되어 투수성 단열대가 갖는 물리적 의미에 부합되지 않는다(Table 1). 이는 BHTV 검층 결과 도출된 단열의 개수가 투수성 여부에 관계없이 관찰되는 모든 단열을 포함하기 때문인 것으로 분석되며(Fig 2), 투수성 단열대의 도출을 위해 온도, 전기전도도의 변화량에 선형적인 단열의 개수를 구분하여야 하는 필요성을 제기된다. 즉, 단열빈도가 온도 및 전기전도도의 변화량과 선형적 관계를 나타내는 자료를 구분할 경우, 자료의 상관관계가 달라질 수 있는 것이다.

Table 1. Correlation Coefficient of all variables

	단열빈도	온도	전기전도도	전기비저항 (Short n)	전기비저항 (Long n)	밀도	완전파음파 (Vp)	완전파음파 (Vs)
단열빈도	1.00	0.04	0.03	-0.39	-0.36	-0.11	-0.33	-0.30
온도	0.04	1.00	0.41	0.14	0.17	0.43	-0.29	-0.39
전기전도도	0.03	0.41	1.00	-0.13	-0.08	-0.13	-0.56	-0.54
전기비저항 (Short n)	-0.39	0.14	-0.13	1.00	0.89	0.38	0.54	0.42
전기비저항 (Long n)	-0.36	0.17	-0.08	0.89	1.00	0.40	0.37	0.22
밀도	-0.11	0.43	-0.13	0.38	0.40	1.00	0.27	0.18
완전파음파 (Vp)	-0.33	-0.29	-0.56	0.54	0.37	0.27	1.00	0.96
완전파음파 (Vs)	-0.30	-0.39	-0.54	0.42	0.22	0.18	0.96	1.00

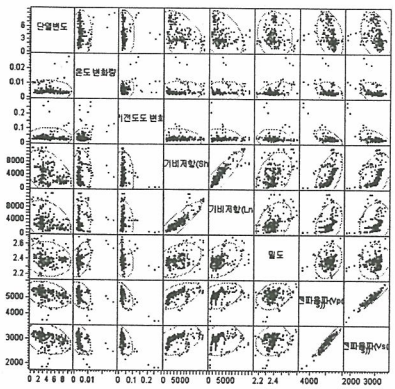


Fig. 2. Correlation plot of all variables

2) 온도/전기전도도 변화량 결과를 이용한 보정

투수성 단열대의 존재를 간접적으로 지시하는 온도와 전기전도도의 변화량에 선형적인 자료를 구분하여 상관관계 분석을 수행한 결과, 심도별 단열빈도와 전기전도도, 온도 변화량은 양의 상관관계를 나타내었으며, 전기비저항, 밀도, 완전파 음층 결과는 음의 관계를 보이고 있어, 단열대가 갖는 물리적 의미에 잘 부합된다고 판단된다 (Table 2, Fig. 3).

Table 2. Correlation coefficient by modified variables

	단열빈도	온도	전기전도도	전기비저항 (Short n)	전기비저항 (Long n)	밀도	완전파음파 (Vp)	완전파음파 (Vs)
단열빈도	1.00	0.51	0.93	-0.53	-0.49	-0.45	-0.63	-0.61
온도	0.51	1.00	0.38	0.14	0.15	0.40	-0.15	-0.30
전기전도도	0.93	0.38	1.00	-0.59	-0.47	-0.57	-0.65	-0.58
전기비저항 (Short n)	-0.53	0.14	-0.59	1.00	0.93	0.78	0.46	0.36
전기비저항 (Long n)	-0.49	0.15	-0.47	0.93	1.00	0.72	0.34	0.23
밀도	-0.45	0.40	-0.57	0.78	0.72	1.00	0.48	0.31
완전파음파 (Vp)	-0.63	-0.15	-0.65	0.46	0.34	0.48	1.00	0.96
완전파음파 (Vs)	-0.61	-0.30	-0.58	0.36	0.23	0.31	0.96	1.00

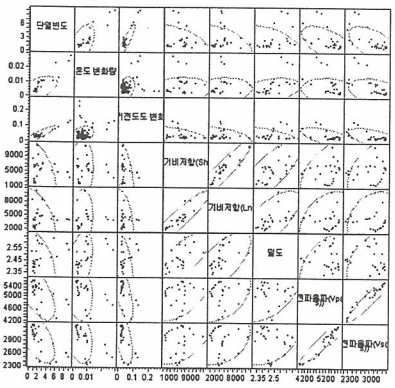


Fig. 3. Correlation plot of modified variables

2.4 주성분 분석

투수성 단열대의 존재를 간접적으로 지시하는 온도/전기전도도의 변화량에 민감한 자료를 이용하여 상관관계에 근거한 주성분 분석을 실시하였다. 주성분 분석 결과 총 8개의 변수는 2개의 주성분 수로 80%이상 설명될 수 있으며(Table 3), 고유벡터 값에서 제 1주성분이 투수성 단열대를 설명하는 자료로서 활용될 수 있는 것으로 분석된다(Table 4).

Table 3. Result of principal component analysis

No.	Eigenvalue	Percent	Cum. Percent
1	4.48	56.04	56.04
2	1.95	24.36	80.04
3	0.93	11.57	91.98
4	0.42	5.25	97.23
5	0.10	1.27	98.49
6	0.08	1.03	99.53

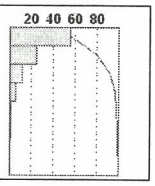


Table 4. Eigenvectors of principal components

주성분		1	2	3	4	5	6	7	8
단열빈도		-0.40	0.25	0.30	0.23	0.52	-0.31	0.39	0.35
변화량	온도	-0.08	0.61	0.45	-0.28	-0.54	-0.19	-0.13	0.05
	EC	-0.41	0.17	0.22	0.49	0.04	0.51	-0.29	-0.40
전기비저항	Shn	0.39	0.34	-0.17	0.35	0.24	-0.55	-0.32	-0.36
	Lnn	0.34	0.37	-0.28	0.48	-0.28	0.31	0.36	0.35
밀도		0.35	0.40	0.09	-0.44	0.55	0.46	-0.07	0.01
완전파음파	Vp	0.38	-0.19	0.53	0.09	-0.05	0.00	0.55	-0.47
	Vs	0.35	-0.30	0.51	0.27	0.03	0.03	-0.46	0.49

3. 결론

DB-01 시추공에서 수행된 6개의 물리검층 자료에서 도출된 8개의 변수를 이용하여 통계분석을 수행하였다. 지질모델에 입력될 투수성 단열을 도출하기 위해 전체 단열을 이용하는 것보다 투수성 단열의 물리적 특성에 맞도록 온도, 전기전도도 검층의 변화량에 선형적 관계를 보이는 단열을 기준으로 상관관계를 분석하였으며, 이는 밀도, 전기비저항, 음파 검층 결과 단열대가 갖는 물리적 특성과 잘 부합된다. 총 8개의 변수를 이용하여 주성분 분석을 수행한 결과 제 1주성분이 투수성 단열을 설명하고 있는 것으로 분석되며, 심도별 제 1 주성분 점수를 도시할 경우 시추공에서 확인되는 투수성 단열을 도출할 수 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

KURT 시설 부지 내 DB-2 시추공에서의 암반 투수성 평가

김경수, 박경우
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
kskim@kaeri.re.kr

1. 서론

본 연구는 KURT 시설 부지의 심부 시추공을 이용하여 예상 처분장 심도의 암반 투수성을 정밀하게 평가하는 것이 주된 목적이다. 시추공에서의 단열 암반의 수리특성 조사 및 시험법에 대한 구체적인 기술 구축은 궁극적으로 단열 암반에서 HRD와 HCD의 영역을 어떻게 정량적으로 구분할 것인지가 핵심이며, 나아가 이들 각각의 영역에서 지하수의 흐름이 어떤 현상으로 이루어지는지를 해석하는 것이다. 이 결과는 지질구조 모델, 수리지질 개념모델, 그리고 지하수유동 해석 모델의 근간을 이루는 것으로서, 지하수 흐름 현상에 공간적으로 가장 큰 영향을 미치는 HRD와 HCD의 대표적인 수리특성을 결정하는데 기본적인 자료의 역할을 하게 된다.

2. 연구방법

일차적으로 수리적인 구조 해석을 위하여 DB-2 시추공의 시추주상도 분석을 통하여 예상되는 투수성 구조를 분류하여 이들이 수리특성과 어떤 상관관계를 갖는지를 분석하였다. 이를 위하여 시추조사 자료 중 단열(대)의 분포특성과 수리특성의 상관관계를 분석하기 위하여 시추코어의 RQD, 단열대와 암맥의 발달 심도 및 폭, 시추 과정 중에 계측된 지하수위의 변화, 그리고 시추 과정에서 단일 패커로 수행한 정밀 수리시험 결과를 종합적으로 해석하였다. 특별히, 정밀 수리시험은 시추 작업 중 매 100m 심도마다 굴진작업을 중단하고, 안정 수위에 도달한 이후 단일 패커를 이용하여 수행하였다. 시험방법은 안정 지하수위에 대하여 매 시험마다 rising/falling head slug test를 병행하였다.

3. 투수성 지질구조의 특성 해석

Rock Quality Designation

심도 80m까지는 최소 55%까지 불량한 암질지수를 가지며, 20.0m 하부 구간부터는 경암이 분포하지만 RQD를 고려할 때, 상부층의 풍화 및 응력제거로 인한 고투수성의 풍화대 혹은 파쇄대 구간은 GL.-80m까지 정의하는 것이 타당하다. 95~130m 구간은 염기성 암맥의 관입과 절리가 다수 분포하는 구간으로 최소 RQD는 73%이다. 180~200m 구간은 지질구조적인 파쇄대 구간으로 최소값은 22%이다. 290~350m 구간은 염기성 암맥의 관입과 절리가 다수 분포하는 구간으로 최소값은 RQD는 76%이다. 380~430m 구간에는 소규모의 지질구조적인 파쇄대가 분포하고 있으며, 전반적으로 절 리가 많이 분포하는 구간이다. 450~500m 구간은 3개 조의 지질구조적인 파쇄대가 분포하여 최소 RQD는 32%이다.

Fracture Zone

상부층 파쇄대 구간 내에는 4개 조의 단열대가 분포하며, 43.2~43.3m, 45.5~45.6m, 51.3~51.7m, 그리고 53.3~53.5m 구간의 외견 폭은 0.1~0.4m로 소규모 단열대에 해당된다. 181.7~197.3m 구간에는 DB-2 시추공에서 가장 규모가 큰 외견 폭 5.6m 규모의 지질구조적인 단층이 분포하며 점토와 방해석의 충전물질이 관찰된다. 339.3~340.2m 구간과 427.2~427.5m 구간에는 소규모 단열대가 분포한다. 400m 하부에는 단층작용에 의한 3개 조의 단열대가 분포하는데, 그 분포구간은 각각, 465.8~467m, 472.3~476m, 477.3~478.3m 구간으로 그 외견 폭은 약 1~3.7m의 규모를 갖는다. 이들 단열대는 전체적으로 RQD 값에 영향을 미치고 있으며, 실트질 점토, 모래, 방해석 등의 충전물질이 관찰된다.

Dike Rock

판상형의 암맥은 관입 이전에 이미 단열구조가 있는 곳을 따라서 관입되기 때문에 원칙적으로 불연속면으로 취급되어야 하며, 암맥 자체 내에 단열이 발달하는 유형도 있으며, 경우에 따라서는 주변부에 교란대(damage zone)가 발달하는 특성도 있다. 77~102.5m 구간에 4개 조의 염기성 암맥이 분포하며, 100m 심도의 암맥은 단열이 다수

분포하여 RQD 값을 저하시키고 있다. 이 암맥은 주변부의 교란대를 형성하는 것으로 판단된다. 315~327m 구간에는 2개 조의 염기성 암맥이 분포하여 절리가 많은 편으로 RQD 최소값은 76%으로 이들 암맥은 304m 심도의 단열대와 더불어 주변부에 교란대를 형성하는 것으로 판단된다.

4. 시추공 굴착 중 지하수위 변동특성 해석

DB-2 시추공의 안정 지하수위를 GL.-9.0m로 설정하면, 급격한 지하수위 강하는 200m 부근과 300m, 그리고 350m 부근에서 발생하였으며, 지하수위 상승은 유일하게 340m 부근에서 1회 발생하였다. 전체적으로 350m 심도까지는 약 GL.-9.0m의 수위를 형성하며, 그 하부에서는 GL.-10.4m의 정수두압을 유지하고 있다. 결과적으로 상부의 지하수 압력이 높기 때문에 수직적으로는 하향의 지하수 흐름이 형성되므로 전형적인 지하수 함양 지역의 특성을 나타낸다 (Table 1).

Table 1. Analysis of groundwater fluctuation during drilling work

심도	지질구조 특성	지하수위 특성	
		지하수위 (GL.-m)	변동 특성
150~200	단층 단열대 분포구간	11.4	급격한 하강
289~300	HRD 구간	9.5	소폭 하강
330~350	소규모 단열대 분포구간	8.5	소폭 상승
350~375	HRD 구간	10.4	급격한 하강
380~400	HRD 구간	10.8	소폭 하강
430~445	소규모 단열대 분포구간	10.6	
455~470	단열대 분포구간	10.8	
490~500		10.6	

5. 정밀 수리시험 결과의 해석

KURT 시설 부지의 암반 투수성은 전형적인 심도의 증가에 따른 투수성 감소 경향을 나타내고 있다. 시험의 정확성을 확보하기 위하여 시험 구간별로 최대 3회씩 수행하여 분석한 결과, 투수량계수는 1.08E-8 ~ 9.95E-5 m^2/s의 범위를 가진다 (Table 2). 심도 300m 까지의 투수성은 유사한 경향을 보이나, 그 하부에서는 급격히 저투수성 특성을 나타낸다. 시험구간의 폭이 넓기 때문에 단열대와 암맥, 그리고 단열빈도(RQD)와의 상관관계를 직접적으로 분석할하기 힘들지만, 적어도 300m 하부 구간의 단열대 구조의 투수성은 HRD 영역의 투수성에 비하여 큰 차이를 갖지 않을 것으로 해석된다. 특히, 400m 하부 구간의 투수성은 매우 낮은 특성(1.21E-10 m/s)을 보인다 (Fig. 1).

Table 2. Hydraulic conductivity and transmissivity up to -500m depth

시험 구간 (GL. -m)	암반 투수성	
	투수량계수 (m^2/s)	수리전도도 (m/s)
0 ~ 129	4.78 ~ 9.95E-5	3.70 ~ 7.72E-7
100 ~ 200	6.15 ~ 8.65E-5	6.15 ~ 8.65E-7
200 ~ 300	2.77 ~ 3.59E-5	2.77 ~ 3.59E-7
300 ~ 380	4.52 ~ 6.12E-7	5.65 ~ 7.68E-9
400 ~ 490	1.09E-8	1.21E-10

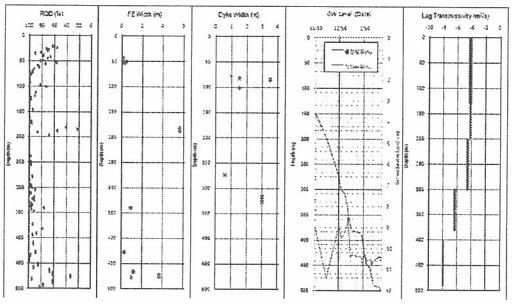


Fig. 1. Comparison with RQD, fracture zones, dike rocks, groundwater level, and permeability

6. 결론

KURT 시설 부지에서 지하 500m 심도까지의 수리-지화학 환경 조사 및 시험 기술의 기반 구축을 목적으로 DB-2 공의 시추조사 자료 중 단열(대)의 분포특성과 수리특성의 상관관계를 분석하기 위하여 RQD, 단열대와 암맥의 발달 심도 및 폭, 시추과정 중의 지하수위의 변화, 단일 패커로 수행한 정밀 수리시험 결과를 종합적으로 해석한 결과는 Fig. 2와 같이 그 상관관계를 설명할 수 있다.

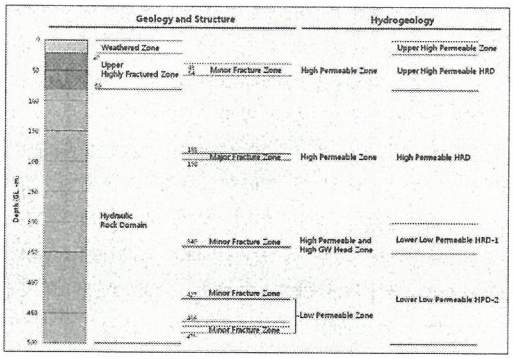


Fig. 2. Correlation of rock mass permeability with structural geological and hydrogeological properties

7. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 지원으로 수행되었다.

KURT 시설 부지조건에서 심지층 처분시설 입지 후보영역 도출

김경수, 박경우, 최희주
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
kskim@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력연구개발사업에서 추진되고 있는 고준위폐기물 장기관리기술 개발 과제에서는 2011년까지 선진핵주기 고준위폐기물 처분시스템(A-KRS)의 개념을 수립 중이다. 이 연구의 주된 내용은 KURT 시설 부지의 지질환경 조건 하에서 선진핵주기의 고준위폐기물을 대상으로 적정한 처분시스템을 설계하고 예비적인 안전성평가까지를 수행한다. 본 연구는 1997년부터 현재까지 조사, 평가된 KURT 시설 부지의 지질환경특성의 주요 내용을 종합한 것으로 A-KRS의 지하 처분장 배치 및 공학적방벽의 설계, 그리고 안전성 평가에 필요한 지질 정보를 제시하는 것이 목적이다.

2. KURT 시설 부지 지질조사 프로그램

KURT 시설 부지의 지질조사 프로그램의 목적은 첫째, 부지의 지질학적 특성 평가를 위한 조사기술의 개발 및 개선, 둘째, A-KRS 설계, 안전성평가, 핵종이동 특성 연구 및 공학적방벽 특성 평가를 위한 부지 규모의 지구과학적 자료의 제공, 셋째는 부지규모 및 암반 블록 규모의 부지특성모델을 구축하는 것이다. 지질조사는 1997년부터 착수되었으며 단계별 주요 조사 내용은 Fig. 1과 같고, 조사 절차는 Fig. 2에 따라 진행되었다.

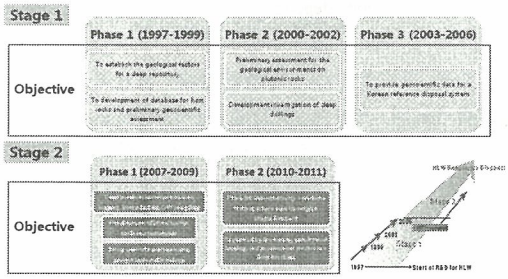


Fig. 1. Step-wised site investigation program on KURT site.

3. 지질구조 개념모델

KURT 부지의 지질구조 개념모델은 상부의 토

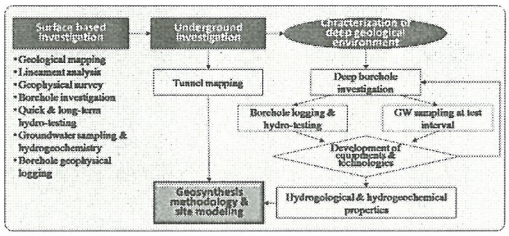


Fig. 2. Site investigation procedures in KURT site

양층과 풍화대를 구성되는 Hydraulic Soil Domain, 배경단열이 분포하는 Hydraulic Rock Domain, 그리고 저경사 단열대를 포함하는 11개의 Hydraulic Conductor Domain으로 구성된다 (Fig. 3). 현재까지의 조사된 결과에 의하여 Version 2의 개념모델을 제시하였으며, 향후 1,000m 까지의 심부 시추조사를 통하여 좀 더 불확실성이 저감된 모델로 보완될 것이다. 이 개념모델은 지하수유동 해석의 기초 모델이 된다.

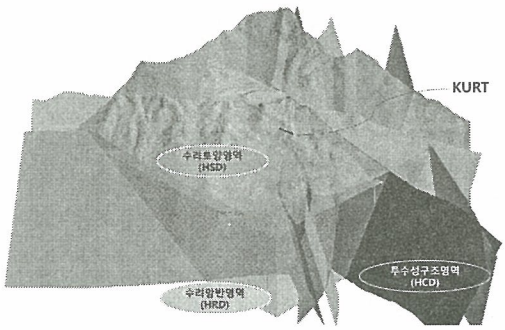


Fig. 3. Geo-structural model of KURT site (version 2)

4. 심지층 처분시설 입지 후보영역 도출

지질구조 개념모델에서 언급된 국지 규모와 부지 규모에서의 단열대를 처분시설이 위치할 것으로 예상하는 표고 -500 m 까지 투영하였다. 국지 규모의 단열대 분포도는 Fig. 4와 같으며 여기에서는 선구조선을 포함한 결과이다. 주로 E-W 방향 계열과 NS 방향 계열의 단열대가 우세한 것을 알 수 있다. 처분시설이 입지할 수 있는 후보 영역은 평면적으로는 지표에서 확인되었거나 추정되는 단열대를 표

고 -500m 까지 투영시켜서 단열대를 교차하지 않고 충분한 이격거리(respect distance, 단열대 양측으로 50m 이상)를 갖는 조건에서 처분장 규모의 영역을 확보할 수 있는지를 검토하였다. 마찬가지로, 수직적으로는 KURT 시설부지를 중심으로 N-S와 E-W 방향으로 단면도를 작성하여 단열대가 교차하지 않는 공간을 도출하는 방법을 취하였다.

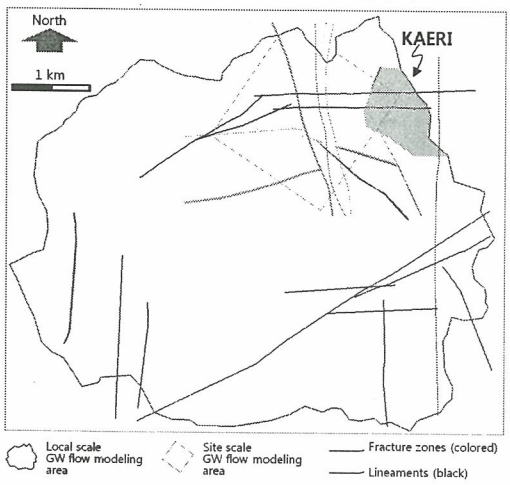


Fig. 4. Fracture zones at the -500m level in local scale area

KURT 부지를 중심으로 하는 부지규모의 영역에서 지하 500m 심도에서 처분시설을 입지할 수 있는 가능 영역은 평면적으로는 Fig. 5와 같이 도출된다. 후보영역은 부지의 좌측에서 단열대를 교차하지 않는 충분한 영역을 확보할 수 있으며, 우상단 지역에서도 가능 지역을 고려할 수 있다. 수직적으로 처분시설이 입지 가능한 영역은 N-S와 E-W 단면에서 단열대의 발달 방향을 검토하여 도출하였다. Fig. 6의 단면에서는 E-W 방향의 단면에서 남북방향의 주향으로 다수 분포하는 단열대의 서측 영역에서 충분한 규모의 처분장 영역을 확보할 수 있다. 폐기물의 종류에 따라서 심도를 달리 할 수 있을 정도의 균질한 암반 영역이 존재할 것으로 판단된다. N-S 방향의 단면에서는 단열대의 대부분의 경사 방향이 동쪽이므로 가능한 한 서 동쪽보다는 서쪽 영역에서 균질한 암반 영역을 기대할 수 있다.

5. 결론

전반적으로 KURT 시설 부지에서 심지층 처분시설 입지 후보 영역은 본 지역의 중앙부에서 우세하게 분포하는 남북 방향의 주향을 갖는 단열대의 서쪽 영역의 -200m 이하 심도에서 충분한

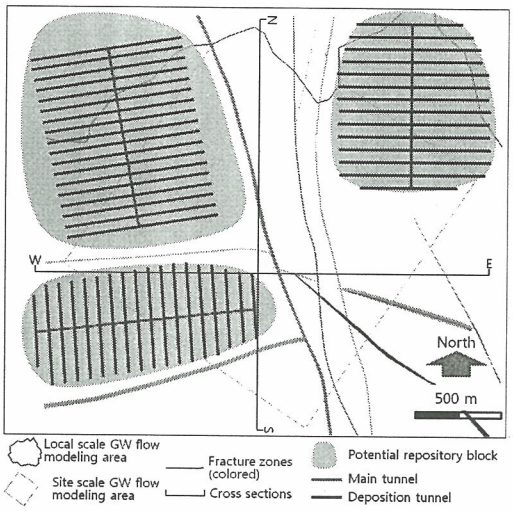
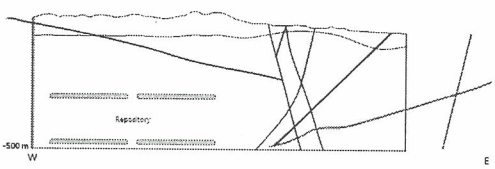
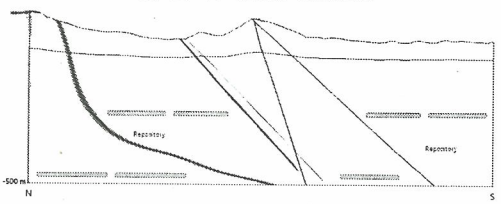


Fig. 5. Potential layout at KURT site at the -500m level in site scale area. Tunnel orientations are selected to make best use of available space without consideration of stress orientation



(a) E-W cross section



(b) N-S cross section

Fig. 6. Potential repository area at KURT site scale area. The tunnel depth depends on the disposal system design and its safety assessment

영역을 확보할 것으로 판단된다. 선진핵주기 고준위폐기물의 처분에 적합한 심지층 처분장의 심도는 추가적인 연구를 필요로 한다. 실제 처분장의 심도는 광역적인 지각운동, 지하수의 화학적 특성, 지하수의 유속과 배출지역까지의 유동거리, 지질구조적 특성 등을 종합하여 결정해야 할 설계 인자이다.

6. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 지원으로 수행되었다.

사용후핵연료 수송저장용기 차폐 해석

김연화, 손정희, 이상철, 전종선, 한병섭
(주)에네시스, 대전시 유성구 구암동 328번지
yhkim@enesys.co.kr

1. 서론

사용후핵연료 수송저장용기 차폐체 개발 과제의 일환으로 개발한 차폐체를 특정 수송용기에 적용하여 차폐해석을 수행함으로써 개발한 차폐체 평가를 수행할 예정이며, 개발한 차폐체의 평가에 앞서 대표적인 수송용기인 TN24P 모형을 모델로한 기본용기 모형을 선정한 후 기본용기에 상용화된 차폐체를 적용하여 방사선차폐 해석을 수행하였다.

수송용기 차폐해석을 위해 ORIGEN-ARP코드를 이용하여 대표사용후핵연료에 대한 감마선원 및 중성자선원을 평가하고, 대표적인 선량평가 코드인 MCNPX 코드를 이용하여 기본용기에 대한 정상상태에서의 표면 및 표면 2m 거리에서의 선량을 평가한다.

2. 본론

2.1 방사선원 평가

MCNPX 코드를 이용한 기본용기의 차폐해석을 위해서는 방사선원항의 종류와 크기가 결정되어야 한다. 행렬지수법을 이용하여 사용후핵연료의 방사성핵종 구성비와 핵물질의 특성을 계산 할 수 있는 ORIGEN-ARP 코드를 사용하였다. ORIGEN-ARP코드는 원자로내에서 조사되는 기간동안 핵연료 집합체의 핵분열생성물, 방사화생성물 및 Actinide와 그 딸핵종의 생성 및 붕괴를 계산하며, 냉각기간에 따른 에너지그룹별 중성자선 및 감마선속을 계산해준다.

방사선원항의 평가에 모사된 사용후핵연료는 PWR 17×17형태로 농축도 4.5wt%, 연소도 45,000 MWD/MTU이며, 연소 조건은 37.5 W/gU의 비출력(Specific Power) 100%로 가정하여 유효 연소기간을 400일로 하였으며, 전체 3주기 동안에 2번의 핵연료 교체기간을 각각 60일로 가정한다.

표 1은 냉각기간을 5년으로 가정하여 계산한 사용후핵연료의 감마선원 및 중성자선원이다.

Table 1. 사용후핵연료 선원

Photon		Neutron	
Energy (MeV)	Intensity (photons/sec)	Energy (MeV)	Intensity (neutrons/sec)
5.00E-02	1.50E+15	1.00E-08	9.80E-05
1.00E-01	4.33E+14	3.00E-08	3.91E-04
2.00E-01	3.52E+14	5.00E-08	5.55E-04
3.00E-01	9.98E+13	1.00E-07	1.89E-03
4.00E-01	6.93E+13	2.25E-07	6.95E-03
6.00E-01	7.46E+14	3.25E-07	7.28E-03
8.00E-01	2.51E+15	4.00E-07	6.27E-03
1.00E+00	3.27E+14	8.00E-07	4.28E-02
1.33E+00	8.88E+13	1.00E-06	2.63E-02
1.66E+00	2.64E+13	1.13E-06	1.86E-02
2.00E+00	1.13E+12	1.30E-06	2.60E-02
2.50E+00	2.37E+12	1.77E-06	8.06E-02
3.00E+00	7.85E+10	3.05E-06	2.74E-01
4.00E+00	7.25E+09	1.00E-05	2.43E+00
5.00E+00	8.59E+06	3.00E-05	1.23E+01
6.50E+00	3.45E+06	1.00E-04	7.76E+01
8.00E+00	6.76E+05	5.50E-04	1.10E+03
1.00E+01	1.44E+05	3.00E-03	1.40E+04
		1.70E-02	1.90E+05
		1.00E-01	2.65E+06
		4.00E-01	1.80E+07
		9.00E-01	3.91E+07
		1.40E+00	3.91E+07
		1.85E+00	3.13E+07
		3.00E+00	5.87E+07
		6.43E+00	5.31E+07
		2.00E+01	5.03E+06
total	6.15E+15	total	2.47E+08

2.2 기본용기 모델링

몬테카를로법을 이용하여 입자의 수송을 확률론적으로 계산하는 MCNPX 코드는 방사선 차폐해석 및 선량 평가를 수행하는 대표적인 코드이다. MCNPX 코드는 Cell cards, Surface cards, Data cards로 입력 파일이 구성되며, Cell cards와 Surface cards에서 평가하고자 하는 대상의 형태를 모델링하게 되고, Data cards에서 선원, 물성 등의 자료를 입력하게 된다.

모델링한 기본용기 모형은 그림1과 같으며, 기본용기의 몸체는 스틸, 바스켓은 알루미늄, 중성자 차폐체로는 상용화된 NS-4-FR의 물성 값을 사용하였다.

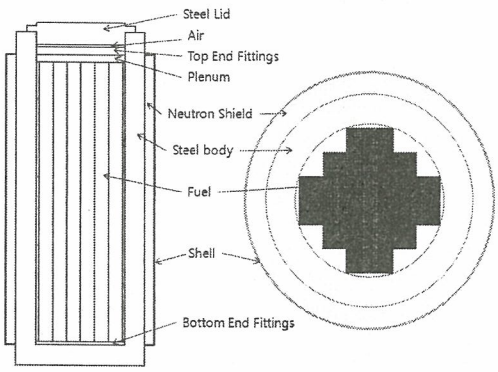


Fig. 1. 기본용기 모형

2.3 선량평가

기본용기의 선량을 평가하기 위해서는 용기 바닥, 측면, 뚜껑의 선량을 모두 평가하여 제일 높은 지점의 선량으로 법정 기준치를 만족함을 평가하여야 하지만, 본 과제에서는 중성자 차폐체를 개발하는 것이 목적이므로 성능 평가를 위해 중성자 차폐체가 포함되어있는 기본용기 측면의 선량만을 비교 평가 하였다.

기본용기를 세로 25cm 간격으로 용기 바닥부터 용기 상단까지 20개로 분할하여 높이에 따른 각 지점의 선량을 평가하였다. 표 2는 20개로 분할한 각 높이에 따른 선량 결과이며 segment 1과 2는 용기 뚜껑, 3~19은 중성자 차폐체가 둘러싸여 있는 지점, 19와 20은 용기 바닥에 해당된다. MCNPX 코드로 선량 평가한 결과 중성자의 경우 중성자 차폐체가 없는 뚜껑과 바닥 부분이 선량 값이 높게 평가 되었으며 그 중 뚜껑 부분이 더 높게 나타났다. 감마의 경우 수송용기 몸체, 바닥, 두껑 등이 밀도가 높은 스틸로 이루어져 감마 차폐가 이루어지고 있기 때문에 중성자와는 달리 수송용기 1/3, 2/3 되는 지점이 높게 평가 되었다.

표 3은 기본용기 측면 중에서 중성자 차폐체가 포함되어 있는 지점의 표면 및 2m 거리에서의 중성자 및 감마선량이다. 표면선량이 1.46E-1 mSv/hr, 표면 2m 거리의 선량이 3.06E-2 mSv/hr로 법정 기준치인 용기 표면 선량이 2mSv/hr 이하, 표면 2m 거리에서 0.1mSv/hr이하를 만족한다.

3. 결론

MCNPX 코드를 이용하여 기본용기에 대한 정상상태에서의 표면 및 표면 2m 거리에서의 선량을 평가 하였으며 평가결과 기준치를 만족하였다.

향후 개발한 차폐체를 적용하여 차폐해석을 수행함으로 개발한 차폐체의 차폐능력 및 실제 수송용기에 대한 적용성을 평가할 수 있을 것으로 판단된다.

Table 2. 기본용기 높이에 따른 선량

segment No	중성자		감마	
	표면 (mSv/hr)	2m 거리 (mSv/hr)	표면 (mSv/hr)	2m 거리 (mSv/hr)
1	8.86E-02	8.12E-03	3.93E-02	1.26E-02
2	1.08E-01	8.74E-03	5.62E-02	1.22E-02
3	3.37E-03	6.69E-03	2.48E-02	1.41E-02
4	2.64E-03	4.94E-03	4.43E-02	1.62E-02
5	3.56E-03	4.39E-03	4.96E-02	1.75E-02
6	3.36E-03	3.28E-03	6.45E-02	1.95E-02
7	3.73E-03	2.32E-03	5.85E-02	2.06E-02
8	4.56E-03	2.31E-03	5.06E-02	2.01E-02
9	3.97E-03	1.69E-03	4.84E-02	2.36E-02
10	4.22E-03	1.49E-03	5.51E-02	2.19E-02
11	3.75E-03	1.82E-03	5.03E-02	2.06E-02
12	3.69E-03	1.86E-03	5.16E-02	2.26E-02
13	2.88E-03	1.38E-03	5.16E-02	2.39E-02
14	3.90E-03	1.81E-03	5.34E-02	2.20E-02
15	3.40E-03	2.01E-03	5.83E-02	2.10E-02
16	3.50E-03	2.13E-03	6.43E-02	1.92E-02
17	3.52E-03	2.53E-03	5.23E-02	1.89E-02
18	2.50E-03	3.09E-03	5.01E-02	1.38E-02
19	1.69E-02	5.37E-03	2.66E-02	1.02E-02
20	8.13E-02	4.18E-03	6.74E-03	1.05E-02

Table 3. 정상상태에서 기본용기 측면 표면 및 2m거리에서의 선량

	표면 선량 (mSv/hr)	2m거리에서의 선량 (mSv/hr)
감마	6.45E-2	2.39E-2
중성자	8.13E-2	6.69E-2
합계	1.46E-1	3.06E-2

4. 감사의 글

본 연구는 2010년도 지식경제부의 재원으로 한국에너지 기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다. (No. 2010T00100839)

5. 참고문헌

[1] J. Korean Nuclear society, Vol.15, No.4, pp.248-255, 1983

[2] Evaluaion of Effect of Fuel Assembly Loading Patterns on Termal and Shielding performance of a spent Fuel Sotrage/Transportation Cask., PNNL-13583, 2001

해외 처분시설 Safety Case 구축과 검토 현황

서은진, 정찬우, 박진용, 정해용, 정승영, 이윤근
한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 과학로 34
ejseo@kins.re.kr

처분시설 안전성을 뒷받침할 수 있는 모든 논거들을 포함하고 있는 Safety Case는 처분 대상폐기물의 종류와 처분사업단계에 따라 그 목적과 내용이 다양할 것이다. 본 고에서는 해외 처분 선행국들의 Safety Case 구축과 검토 사례 현황에 대해 살펴봄으로써 우리나라 중·저준위폐기물 처분시설 Safety Case 구축과 검토 시 고려해야 할 주안점과 과제를 도출하고자 하며 이를 향후 고준위폐기물 처분 Safety Case 구축과 검토에 활용코자 한다.

1. Safety Case의 배경

해외 처분 선행 국가들의 Safety Case 구축 현황을 살펴보면, 스웨덴[1], 핀란드와 같이 복수의 후보지가 있는 상황에서 Safety Case를 "최초" 또는 "예비적인" 안전성평가를 목적으로 수행한 경우가 있으며, 영국(Drigg 처분장)과 같이 특정한 하나의 부지에 관한 Safety Case에서 실행가능성(feasibility)을 보여준 경우 등 Safety Case의 배경은 다양하다.

스웨덴의 Safety Case는 Formark와 Laxemar의 두 후보지에 대하여 지표조사와 완충재, 처분용기의 full scale 제조시험에 따른 최초의 폐쇄후 안전성평가를 의미하고 있으며 규제기관에 대한 피드백 요청과 규제기관과의 소통 촉진 등이 그 목적으로 되어 있다.

핀란드의 Safety Case는 네 후보지에서 하나의 부지로 집중하겠다는 원칙결정(Decision in Principle)을 위한 예비적 안전성평가로 볼 수 있으며, 프랑스의 Safety Case는 해당 안전성평가가 Bure 부지 한 곳에 대한 것인데 이는 점토층 내 처분의 실행가능성에 대한 평가라 할 수 있겠다.

영국의 Safety Case는 이미 처분사업이 수행되고 있는 사례(Drigg 처분장)에 대해 관리 기간 종료 후의 안전성 및 운영 중 안전성에 대하여 폐쇄후 Safety Case(Post Closure Safety Case)와 운영 중 환경 Safety Case (Operational Environmental Safety Case)로 구성되어 있다.

2. Safety Case 검토의 목적

영국, 스웨덴, 프랑스의 경우는 Safety Case 검토를 통하여 지침(guidance)을 제공함으로써 Safety Case 개선을 목적으로 하고 있으며 핀란드는 안전요건과의 부합성 검토에 주안점을 두고 있다.

예를 들어 영국의 사례[1]를 보면, Safety Case 검토를 통해 규제요건에 관한 지침을 제공함으로써 Safety Case 개선을 기대하고 있고 스웨덴[2]은 허가 신청 시 처분사업자가 제출하는 Safety Case에 대해 규제기관이 기대하고 있는 내용에 관한 지침을 제공하고 있다.

핀란드[3]는 최우선적으로 고려하는 것이 안전요건과의 부합성을 검토하는 것인데 세부항목에 따라서는 후속 인허가 단계에 판단을 위임하는 것으로 기술된 항목도 있고 실제 판단을 유보하고 있는 항목도 있다. 프랑스[4]는 점토층에서 처분의 실행가능성 여부와 향후 부지에 대한 이해 향상을 목적으로 하는 것 외에 필요한 사항에 관하여 규제기관의 의견을 제시하는 것을 그 목적으로 하고 있다.

3. Safety Case 검토의 법적 위치

법적으로 규정된 규제행위라는 것을 Safety Case 검토 보고서에 명시하고 있는 경우는 핀란드이며 검토보고서만으로는 Safety Case 검토에 대한 법적 위치 판단이 어려운 경우는 프랑스이다. 또한 정식 인허가 절차의 일부는 아니라고 기술되어 있는 경우가 스웨덴이며 Safety Case의 제출이 자발적(voluntarily)으로 이루어지고 있으며, 검토행위가 허가와 직접 연관되지는 않는다고 검토보고서에 명시되어 있는 경우는 영국이다.

1) 스웨덴은 2008년 당시 Forsmark와 Laxemar의 2 후보지에 대해 Safety Case를 구축했었다. 이후 SKB는 2009. 6. 3 최종 처분지로 Forsmark를 선정했음을 발표하였고 2011. 3. 16 Forsmark 부지에 대한 처분시설 건설허가를 규제기관인 SSM에 신청하였다.

그러나 실질적으로 Safety Case 검토가 법적으로 규정되어 있지 않고 또 인·허가와 직접 연관되지 않는 경우라 하더라도 Safety Case 검토 행위는 처분사업자에게 처분시설 안전성의 입증과 개선을 위한 지침을 제공하는 것이 궁극적인 목적이라 할 수 있겠다.

또한 핀란드의 경우는「사용후핵연료의 처분에 관한 일반안전규칙에 관한 정부결정」이 1999년 5월1일부로 시행되었으며 Safety Case가 같은 해 5월에 제출되었으므로 Safety Case 구축이 정부결정의 수립과 병행하여 진행된 것이라 볼 수도 있다.

4. Safety Case의 검토 방법

Safety Case의 검토는 전체적으로 규제기관 외에 외부전문가에 의한 검토도 병행하면서 수행되었다. 외부전문가의 검토 결과는 독립된 보고서의 형태(영국, 스웨덴, 프랑스) 또는 동일보고서 내 독립된 장(章)의 형태(핀란드)로 공개되고 있다. 이러한 외부전문가 검토는 다중적이며 독립된 검토를 제공하고자 하는 것이 그 의도라 할 수 있다. 스웨덴 외부전문가 검토보고서에는 "반드시 규제기관인 SKI, SSI의 의견과 일치하는 것은 아니다"라고 기술되어 있으며 사업자인 SKB 뿐만 아니라 규제기관인 SKI, SSI에도 Safety Case 검토와 관련된 권고 사항 등이 포함되어 있다.

프랑스는 OECD/NEA에 검토를 의뢰하였으며 그 검토내용은 별도 발간하고 있으나 IRSN의 검토 방법은 검토보고서에 기재되어 있지 않아 불명확하다.

영국은 민영회사(Galson Science Limited)에 외부검토를 위탁하여 그 검토결과에 따라 검토보고서를 기술하였으며 계통적 검토방침을 서술하고 있다.

그리고 영국, 스웨덴, 프랑스는 Safety Case 검토 과정에서 규제기관이 독자적인 검증계산도 수행하였다고 되어 있다.

5. Safety Case의 검토 관점

Safety Case 검토에 적용된 공통적인 관점으로 품질보증, 추적성, 투명성 등을 꼽을 수 있으며 관련 근거의 합리성과 수용성에 주목하는 검토 사례도 있었다. Safety Case의 구성이 계층적으로 이루어진 경우는 추적성, 투명성과 함께 계층구조의 적절성도 평가의 관점이 되고 있으며 불확실성의 취급방법도 검토에서는 중요한 요소로 판단하고 있다. 그리고 요건이 명확하게 수립되어 있는 국가의 경우 요건과의 부합성 검토가 중요하며 안전전략과 관련하여 안전성 확보를 위한 진행방법이 주요 검토 관점이었다.

부지 조사와 관련하여 부지 고유의 정보가 어느 정도 파악되어 있는지 그리고 그 정확도와 정보가 충분한지 여부가 검토되었으며 미래 부지의 변천 시나리오 평가도 이에 포함되었다.

인공방벽의 초기상태와 열화 진행상태에 관해 충분한 과학적 이해가 되어 있는지와 안전성평가에 있어서 입력데이터의 질과 양, 모델에 필요한 데이터와 실제 이용 가능한 데이터의 차이, 데이터의 선택과 일관성, 위험도 평가와 결과 제시의 방법, 선량에 대한 영향요인 검토와 관련 FEP들의 완전성 증명 등이 포함되어 있다.

그 외에 권고로서 후속 단계의 수행내용과 허가신청까지 수행되어야 할 내용, 추가적인 조사 연구개발 등이 있으며 사업자의 구체적인 계획과 그 실행 가능성까지 검토한 사례도 있으며 운영중 안전성에 관한 검토 사례도 있었다.

6. 감사의 글

이 연구는 원자력연구개발사업「방사성폐기물 리스크 최적검증기술개발」과제로 수행되었습니다.

7. 참고문헌

[1] The Environmental Agency's Assessment of BNFL's 2002 Environmental Safety Cases for the Low-Level Radioactive Waste Repository at Drigg, 2005.

[2] SKI's and SSI's review of SKB's safety report SR-CAN (SKI Report 2008:23/SSI Repor 2008:04E).

[3] Posiva's application for a decision in principle concerning a disposal facility for spent nuclear fuel, 2000.

[4] Avis de I'institut de radioprotection et de surete nucleaire sur le Dossier, 2005.

공학적 규모의 완충재 THMC거동 실증실험: 음이온 이동

이재완, 조원진, 임진규, 권상기
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
jolee@kaeri.re.kr

1. 서론

고준위폐기물처분장에서 공학적방벽은 처분용기, 완충재, 뒷채움재를 포함하는 핵심 구성요소로서, 구성시스템이 복잡하고, 열-수리-역학적-화학적 현상이 복합적으로 일어나기 때문에, 성능 예측 및 시스템의 설계가 어려운 부분이다. 한국원자력연구원에서는 KRS (Korea Reference disposal System) 공학적방벽시스템의 성능 실증기술 확보의 일환으로, 공학적 규모의 KENTEX-C 실증장치를 제작.설치하고, 열-수리-역학적 복합조건에서의 완충재를 통한 용질이동 실증실험을 수행 중에 있다. 이와 관련하여, 본 연구에서는 음이온인 요오드이온을 선정하여 벤토나이트에 의한 음이온의 흡착 및 확산특성을 규명하고, 또한 공학적규모의 KENTEX-C 실험을 통하여 열-수리-역학적 복합조건에서의 음이온의 이동특성을 실증하였다.

2. 본론

2.1 실험

본 실험에 사용된 벤토나이트는 경주시 양남면 벤토나이트광산에서 채취한 것을 사용하였다. 광물분석 결과, 이 벤토나이트는 몬모릴로나이트 (montmorillonite, 70 %)와 장석(feldspars, 29%)을 주성분으로 하고, 소량의 석영 (quartz, ~1%)을 포함하였다. 화학조성은 SiO_2 56.8%, Al_2O_3 20.0%, Fe_2O_3 6.0% 및 기타 미량성분으로 되어 있다. 양이온교환능은 57.6 meq/100g 이다.

흡착실험은 회분식 방법으로 수행되었으며, 확산실험은 내부확산(In-diffusion) 방법에 따라 수행되었다. 흡착실험과 확산실험의 결과는 각각 KENTEX-C 실증실험에서 요오드이온의 지연특성 이해와 THMC 모델링에서 요오드이온의 확산계수를 제공하는데 사용되었다.

KENTEX-C 실험장치는 KRS 공학적방벽시스템 (그림 1)의 1/3 크기 실증장치로서, 기존의 KENTEX 장치에 음.양이온 용액 순환공급시스템을 추가 제작. 설치하여 만들었다. 이 실험장치는 압력실린더, 가열시스템, 벤토나이트블록, 용액순환공급시스템, 센서/기기, 히터제어시스템/데이터수집시스템, 프레임구조물 등의 하드웨어와 실험장치를 모니터링 및 제어하고 또한 센서로부터 나오는 신호를 계측하고 수집.분석하는 운영프로그램으로 구성된다. 본 실증실험은 히터-벤토나이트 경계면에서의 온도를 90 ℃까지 올리면서, 동시에 용액순환공급시스템으로부터는 일정 농도의 실험용액이 공급될 수 있도록 하였다. 10^{-2} M CsI 실험용액은 용액순환공급시스템을 이용하여 벤토나이트 블록 둘레면 (hydration surface)으로 5기압으로 공급하였으며, 농도를 일정하게 유지하기 위해서 수시로 저장탱크 내 용액 농도를 체크하고 초기농도보다 부족하면 그 만큼의 시약을 더 넣어 농도를 일정하게 유지하였다. 본 실험이 진행되는 동안, 벤토나이트블록의 열-수리-역학적 실험조건은 PRODASH-EN 3.0 운영프로그램에 의해 모니터링 되고, 데이터는 일정한 시간간격으로 수집되었다. 그리고 벤토나이트블록을 통한 요오드이온의 이동 데이터는 core-drilling 방법으로 채취한 코어시료를 일정간격의 박편으로 절단한 뒤, 1 M의 염산용액으로 용출하고, 원심분리와 여과를 거쳐 나온 용액을 분석하여 얻었다.

2.2 실험 결과

벤토나이트에 의한 요오드이온의 흡착 평형분배계수 (Kd)는 매우 낮은 값을 보였다. 벤토나이트에 의한 요오드이온의 흡착등온선은 Freunlich isotherm을 따랐으며 다음과 같은 식으로 표시되었다.

$$q = K_F C^{1/n}$$

이 때 K_F 는 0.537. n는 1.607이었다. 요오드이온의 평형분배계수는 용액의 농도가 증가할수록 평형분배계수가 감소하였다.

확산실험결과, 압축벤토나이트의 확산계수는 주어진 건조밀도 범위에서 1.4×10^{-10} m^2/s - 3.0×10^{-10} m^2/s 사이의 값을 보였다. 이 확산계수는 건조밀도가 증가할수록 감소하였으며, 높은 건조밀도로 갈수록 그 변화가 적었다.

KENTEX-C 실증실험에서, 온도 및 압력센서는 운전기간 동안 정상적으로 작동되었으나, 습도센서는 H-D-R2-T1 만이 정상작동이 되었다. 습도센서의 고장으로 인한 부족한 실험데이터는 코어-드릴링 샘플링방법을 통해 더 확보되었다. 그 밖에, 히터 컨

트롤, 용액순환펌프 제어, 용액저장 레벨 감지 및 THM 데이터 수집.분석 등은 PRODASH-EN 3.0에 의해 성공적으로 수행되었다. KENTEX-C 실증실험 결과, 온도는 25 ℃에서 90 ℃로 올려 정상상태에 도달하는데 수일 밖에 걸리지 않았으며 (그림 2), 벤토나이트블록 내 수분함량분포와 전압력분포는 운전 이전과 마찬가지로 정상상태에 있음을 확인할 수 있었다. KENTEX-C의 열-수리-역학적 복합조건에서 요오드이온은 확산에 의해 꽤 빠르게 진행됨을 알 수 있었다 (그림 3). 이것은 요오드음이온이 주어진 열-수리-역학적 조건에서도 음전하를 갖는 벤토나이트 입자표면에 거의 흡착이 되지 않고 이동하기 때문으로 보인다. 또, 이 실험결과로 통해 벤토나이트 블록 내 요오드이온의 농도는 수개월 내에 포화상태에 도달될 것으로 예상된다.

3. 결론

본 연구에서는 공학적방벽시스템의 THMC 거동 실증의 일환으로, 벤토나이트에 의한 요오드이온의 흡착 및 확산특성을 규명하고, 공학적규모의 KENTEX-C 실험장치를 이용하여 열-수리-역학적 복합조건에서의 벤토나이트블록을 통한 요오드이온의 이동특성을 성공적으로 실증할 수 있었다.

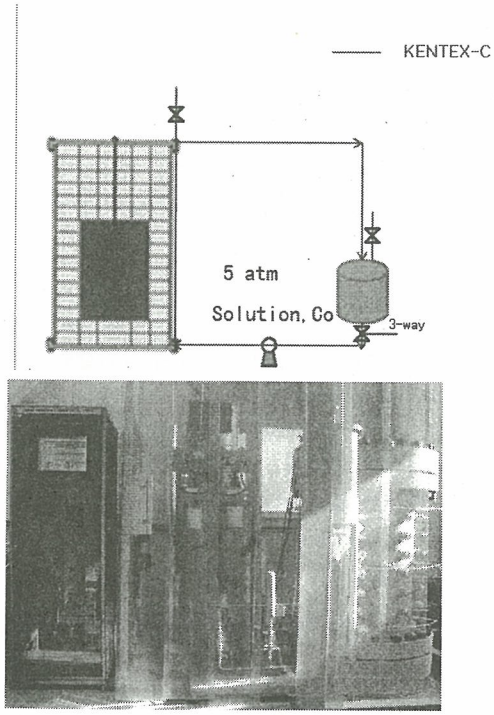
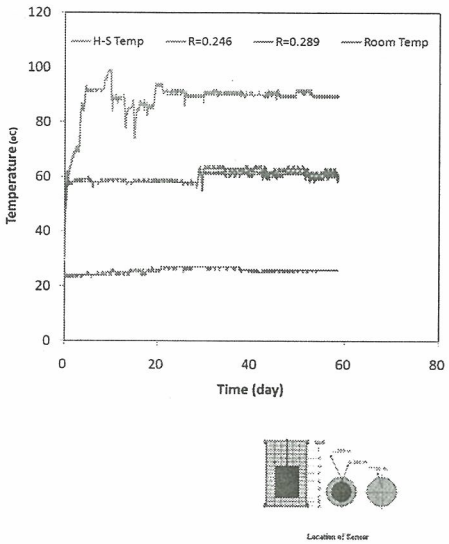


Fig. 1. KENTEX-C 실증실험장치



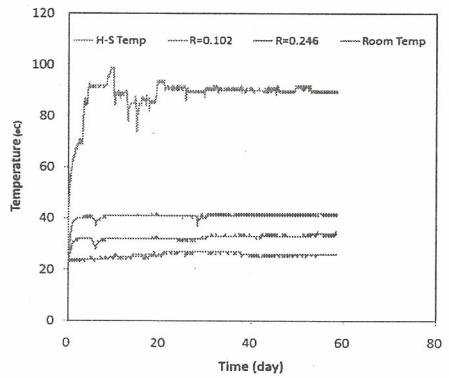


Fig. 2. 열-수리-역학적 복합조건: 온도분포

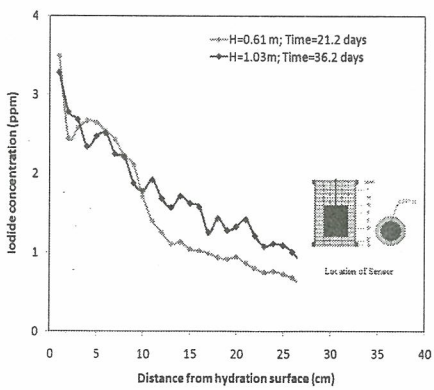


Fig. 3. 열-수리-역학적 복합조건에서의 요오드이온 이동특성

유동성 단열이 slug test의 oscillation response에 미치는 영향

이항복, 지성훈, 고용권, 최종원
한국원자력연구원, 대전광역시 대덕대로 1045 (덕진동 150-1)
hblee@kaeri.re.kr

1. 서론

대수층의 수리 특성 중 특히 수리전도도를 구하는 효과적인 방법으로 순간충격시험이 많이 사용되고 있다. 시험 방법이 간단하고 특별히 매질의 투수성이 낮은 암반 대수층의 경우에는 양수량을 일정하게 유지시키기가 어렵기 때문에 순간충격시험이 효율적으로 적용되고 있다. 그러나 암반 대수층은 일반적인 대수층에 비해 단열에 의한 불균질성이 매우 크기 때문에 기존의 선형적인 수위 변화가 아닌 비선형적 이상 반응이 발생할 수 있다. 그러므로 단열의 존재와 그 성격이 수리시험반응에 미치는 영향에 관해서 파악하는 것은 매우 중요하다.

본 연구에서는 multi-packer를 이용해 유동성 단열이 존재하는 고립된 암반 대수층 구간에서 순간충격시험을 실시하고, 그에 따른 비선형적 반응을 관찰하였다. 또한 기존의 해석해를 이용해 수리전도도를 구하고, 이러한 oscillation 반응에 관여하는 유동성 단열의 역할에 대해서 분석해보았다.

2. 시험 및 결과

연구지역은 경기변성암 복합체 내에 위치하며 주로 선캄브리아기의 편마암류와 중생대의 화강암으로 구성되어 있다 (Fig. 1). 암반은 전체적으로 크게 풍화되지 않은 상태이고, YS-4 시추공에서 시험이 시행되었다. YS-4 시추공은 총 깊이가 350 m이고 공의 직경은 0.076 m이며 스크린과 케이싱의 직경은 각각 0.044, 0.026 m이다. Fig 2는 시험을 위해 설치된 multi-packer system을 나타낸 것인데 패커와 측정부분, 케이싱, 펌핑 포트로 구성 되어 있으며 interval을 자유롭게 변화시키면서 시험할 수 있다. (246 - 264 m)구간에서 순간충격시험이 실시되었고 이 구간의 수위는 지표보다 약 3.8 m정도 높은 자분정이었다. 따라서 지표 위에 투명 아크릴 관을 제작하여 시추공 상부와 수리적으로 단절 후 연결을 하여 순간적으로 수위가 회복하도록 하고 그 반응을 자동수위 측정기를 통해 관찰하였다.

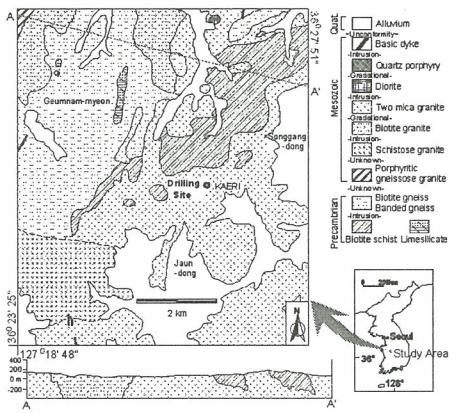


Fig. 1. 연구 지역 지질도

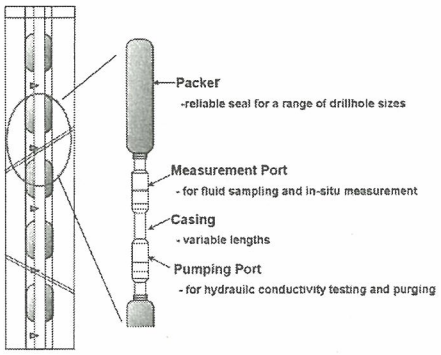


Fig. 2. 멀티 패커 모형도

암반의 내부 구조, 단열의 위치와 존재를 파악하기 위해 BHTV 검사를 시행하였다. 시험 구간은 전체적으로 풍화가 많이 되지 않은 깨끗한 상태의 암반이었고, 255 m 부근에 지하수의 흐름이 원활하게 이뤄지는 하나의 유동성 단열이 존재하는 것을 확인하였다.

Fig. 3은 순간충격시험의 결과로 수 분 내에 시

험이 마무리 되었으며, 초기에 빠르게 수위가 회복되는 모습을 보이고 한두 번 정도의 수위의 출렁거림이 확인되었다. 이는 일반적인 대수층의 순간충격시험 시 나타나는 선형적인 반응이 아니라 높은 수리전도도를 가지는 high permeable 대수층에서 종종 발견되는 결과이다. 지하수 속도가 순간적으로 1 m/s 이상 되는 상태에서 빠른 지하수 흐름이 관정 내 관성효과나 관정 연결부위의 비선형적인 수두 손실에 의해 이와 같은 oscillation이 발생한다고 알려져 있다.

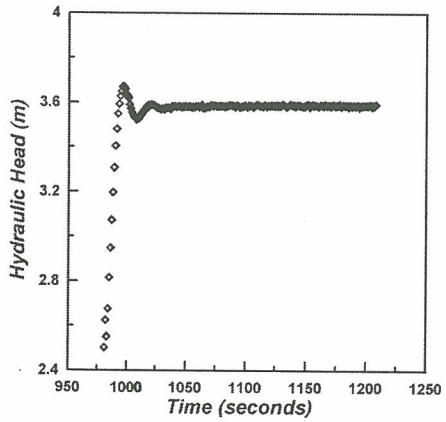


Fig. 3. YS-4 시추공에서의 수리 반응

결과 값을 Bouwer & Rice 해석법을 이용해서 수리전도도를 구해보면 약 3×10^{-6} ~ 3×10^{-5} m/s 정도의 값을 보인다. 이 구간에서는 시험 시, 주변 매질의 투수성이 매우 낮기 때문에 하나의 유동성 단열을 통해서만 지하수가 흐른다고 가정하고, 이를 cubic law와 darcy law를 이용해 간극의 크기를 추정해보면 약 100 마이크론미터 정도 된다. 순간충격시험 초기에 관정 주변의 수두구배가 순간적으로 1이상이 될 수 있기 때문에, 계산해보면 관정 주변의 지하수의 순간 속도는 1 m/s 이상이 나타날 수 있다. 그렇기 때문에, 구간 전체적으로 보았을 때는 수리전도도가 그렇게 높지 않지만 유동성 단열의 존재로 인해 스크린 근처의 지하수 속도가 원래보다 매우 빠르게 발생할 수 있고 이것이 비선형적 흐름을 유도해 수위의 oscillation을 만들어 낸다고 할 수 있다.

3. 결론

본 연구를 통하여 순간충격시험 시 수리전도도가 매우 낮은 암반 대수층에서도 유동성 단열로 인하여 순간적으로 빠른 지하수 흐름이 발생할 수 있고, 이것이 지하수위의 비선형적 oscillation response를 유도할 수 있음을 파악하였다. 기존의 투수성이 높은 대수층에서만 관찰되던 oscillation response가 암반 대수층에서 나타나는 원인으로써 유동성 단일 단열의 역할을 파악한 것에 본 연구의 의의가 있다 하겠다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 지원을 받아 수행되었으며 이에 감사드립니다.

고준위방사성폐기물 심층처분시설에 관한 일반기준 개발

정찬우, 서은진, 박진용, 정해용, 김병수, 정승영
한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 과학로 34
jcw@kins.re.kr

1. 서론 - 개발 방향

고준위방사성폐기물(HLW)의 처분에 관한 기술기준은 처분분야의 규제요소로서 해당 처분시스템 및 핵주기의 개발과 안전의 기초가 된다. 우리 원자력법령은 HLW 심층처분에 대한 기본요건만을 정하고 있고 세부기준(교육과학기술부 고시)은 준비 중이다. 국내 심층처분시설의 연구개발을 위해 당해 기술기준의 수립이 시급한 반면 부지등 시스템고유특성이 아직 결정되지 않은 여건을 감안할 때 처분시스템 개발에 필수적인 일반기준(generic criteria)을 우선 제시하는 것이 바람직하다. 즉, 처분시스템에 대한 기초요건 중심의 통합기준 형식으로, 시스템 구성과 안전성 구축의 연계성을 강화하고, 향후 설계단계에서 시스템고유기준(specific criteria)으로 발전하기 위한 기반을 조성하는 방향으로 수립할 필요가 있다.

2. 기준의 체계와 구성방식

상기 개발방향에 따라 현재 작성된 기준 초안은 다음과 같은 접근방법을 채용하고 있다.

- 전체성능기준과 시스템특성기준으로 구성. 천층처분시설의 경우와 같이, 전체성능기준으로서 처분시설의 기본기능(처분안전성)에 관한 방사선안전기준(안전목표)을, 시스템특성기준으로서 시스템 구성요소별 안전기능에 관한 요건을 정한다.
- 심층처분의 시스템 및 안전성을 구성하기 위한 기본철학 반영. HLW처분의 장기 위해특성을 고려하여 위험도에 기반한 안전목표와 평가방법을 채용한다. HLW처분에 따른 방사선위해의 크기와 시공간적 범위를 감안하여 다중방호 관점에서 방벽의 폐기물 격리성능을 구체화(예; 방벽 누출률 제한 등)하고 처분안전성과 연계를 강화하는 방식으로 다중방벽-심층방어를 구현한다. 처분시스템의 수동안전기능에 의한 처분안전성을 지향한다.
- 체계적인 Safety case 구축을 통한 시스템 개발, 운영안전 및 처분안전성 확립 유도[1]. 부지조사로부터 설계·건설·운영·폐쇄에 이르기까지 지하연구시설을 통한 안전성 실증을 유도한다. 처분시설 단계별 안전성평가와 안전기능 재점검을 강조한다. 처분시설의 운영안전을 폐쇄후 처분안전성과 구분하여 서술하되 연계성을 고려하고, 허가신청서의 문맥에서 대안검토등 최적화 개발과 개발단계 규제검토의 근거를 마련한다.
- 시스템 개발에 중요한 처분시설 운영방식에 대한 전략적 고려. 국내 처분의 개념과 여건을 감안하여 시설 운영 중 폐기물의 회수는 고려하되 폐쇄 후 회수의 필요성과 가능성을 최소화하는 방향으로 하고 처분시설 폐쇄 전 모니터링은 해당시점에서 시스템의 상태에 따라 시행하도록 한다.

3. 기준안 내용과 적용방안

Table 1은 위에서 언급한 개발방향과 구성방식에 따라 도출된 일반기준(안)을 요약한다. 안전한 심층처분시스템의 개발을 뒷받침하되 허가신청서 작성 등 단계별 규제적용의 근거를 반영하는 것이 그 골자이다. 당해 고시안의 원문과 해설은 http://radwaste.kins.re.kr에서 찾아볼 수 있다.

4. 맺음말 - 의견 수렴

당해 고시안은 2011년 말까지 제정을 목표로 현재 수정·보완 과정에 있다. 적용성을 높이기 위해서는 폭넓은 의견수렴이 필수적인 바, 이 분야 전문가들과 관계자들의 검토와 의견을 기대합니다.

5. 감사의 글

이 연구는 원자력연구개발사업「방사성폐기물 리스크 최적 규제기술개발」과제로 수행되었습니다.

6. 참고문헌

[1] IAEA Safety Requirement, Disposal of Radioactive Waste, 2011.

Table 1. Summary of the draft integrated generic criteria for deep geological repository (The original and commentary can be found at http://radwaste.kins.re.kr/sub16.aspx)

분야	조항 / 내용 및 접근방식	근거규정	적용방안
1장 **총칙**	1. **목적** / 심층처분 관계규정 시행 2. **적용** / 심층처분시설 단계별 일반기준 3. **정의** / 안전목표, 성능기간, 회수, 안전기능 등		
2장 **HLW 처분에 따른 방사선 위해 방지**	4. **국민건강과 환경의 보호** / 선언적 기준 5. **안전목표** / 총위험도 < 10^{-6}/y, 시나리오별 선량 < 10 mSv/y 6. **안전성평가** / 시나리오 구성방법, 평가지침 등 7. **신뢰성 구축** / natural analogue, 심층방어증거 등을 가미한 safety case 구축 8. **종합안전성 구축** / 전체단계 safety case 발전구축	영 323조의2제2호 (환경상의 위해방지)	◆다양한 피폭상황 중첩 고려 ◆미래 불확실성 감안 ◆다양한 잠재위해를 위험도로 통합
3장 **처분시설 개발**	9. **지하연구시설** / Safety case 구축 관련 시스템개발 핵심역할 10. **부지** / 처분시설 운영안전 및 격리기능 11. **지질학적 안정성** / 구조적 변형, 단층/지진 활동 고려 12. **시스템구성** / 다중방벽-심층방어, 제한적 회수 13. **천연방벽** / 단일 기반암, 처분고 심도, 매질 안정성 14. **공학적 방벽** / 처분용기 역할, 열/압력 제어, 1천년 누출방지 15. **설계 일반사항** / 시스템/안전성 구성, 수동안전, 양립성, 회수성 16. **구조 및 설비** / 고유특징, 운영안전특징, 관리/모니터링 17. **처분시설 건설** / 안전기능의 보전 18. **구조물·계통·기기 성능** / 구조적·기능적 건전성, 안전기능, 물 접촉 방지 19. **폐기물 특성** / 자체방벽성능, 열/압력/임계 제어, 처분적합성 20. **복합처분시설** / 독립시설 조건, LILW 처분, LILW시설의 공존	방사선규칙 60조2항(위치) 66조2항(구조.설비) 70조 (구조물.계통.기기) 시행규칙 88조2항 (폐기물 인도) 방사선규칙 80조2항 (저장.처리.처분)	◆처분시스템 개발단계에서 심층처분시스템을 구성하는 데 적용되어야 할 기본사항 종합 ◆부지·천연방벽·공학적 설계특징·폐기물특성 등 시스템구성요소들의 개별특성요건과 연계특성요건을 안전성의 문맥에서 설정 ◆처분시스템이 해당 safety case를 통해 체계적으로 개발되도록 유도
4장 **처분시설 운영과 폐쇄**	21. **시설 운영** / 설계성능 부합성, 안전기능 보전 22. **구역 설정** / 제한구역, 보전구역, 방사선관리구역 23. **폐기물관리** / 처분폐기물 특성기준, 폐기물 인수기준 24. **안전성평가 갱신** / 운영중 안전성 재평가 (수시, 주기) 25. **폐쇄 전 모니터링** / 모니터링 필요성 판단 및 시행 26. **폐쇄** / 폐쇄계획 수립과 시행 27. **제도적 관리** / 제도적 관리 계획 수립과 시행 28. **제도적 관리 종료** / 종료의 조건과 방법 29. **영구표지** / 영구표지에 관한 기준	방사선규칙 80조2항 (저장.처리.처분)	◆심층처분시설 운영, 폐쇄 및 폐쇄 후 관리에 대한 기준 - 시스템 개발에서 고려해야 할 사항들
5장 **건설·운영허가 신청서류 작성**	30. **일반지침** - 시스템개발 제반활동 품질관리체계 - 전체개발단계 Safety case 구축 - 시스템 개발 최적화/정당화 입증 31. **안전성분석보고서** - SAR 항목별 기본사항 - 근거기준 부합성, 유관항목 연계성	시행규칙 79조5항 (건설.운영허가 신청)	◆SAR등 심층처분시설 허가신청서류 작성시 기본고려사항 ◆허가신청서류 작성 관점에서 처분시스템 개발시 반영할 내용

중·저준위 방폐장 종합개발을 위한 안전성평가 고려사항

정찬우, 서은진, 박진용, 정해용, 김용재, 이윤근
한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 과학로 34
jcw@kins.re.kr

1. 기본사항

현재 10만 드럼 용량의 1차시설이 건설 중인 경주방폐장을 계획대로 향후 50여년에 걸쳐 80만 드럼 규모까지 성공적으로 개발하기 위해서는 종합개발계획과 함께 안전성평가 분야의 철저한 준비가 필요하다[1]. 기본적으로 해당 안전성평가는 다음을 포함한 예상 이슈들에 대응해야 할 것이다.

- 전체개발에 대한 밑그림으로부터 종합평가. 1차 시설의 시스템 및 안전성 구성은 적절한 밑그림에 기초하지 못하여 종합개발을 위한 최적화 기반을 조성하지 못한 채 후속개발의 제약조건이 될 상황이다. 이제 2차시설 개발시점부터라도 주어진 조건을 반영한 전체 바탕에서 시스템 구성과 안전성 구축이 체계적으로 연계되어야 한다.
- 복합처분계-복합특성 고려. 향후 장기간 후속개발에 따라 경주방폐장은 건설·운영·폐쇄·폐쇄후관리 등 다양한 관리형태와 여러 방식의 처분고가 혼재하고 주변 원전과 상호작용까지 포함하는 복잡계로서 이 방면의 유효한 접근방법을 요한다.
- 초기 경험과 건설·운영 중 발전내용 반영. 1차시설 허가에 따른 안전성평가 부문의 후속조치과제는 처분시설에 보편적인 요건으로 이행되어야 한다. 즉, 처분시설 전체단계에 걸쳐 안전성평가의 발전과 안전성 증진을 도모하는 것이 처분시설 안전성 구축의 특질인 바, 이를 통해 초기 안전성평가의 문제점을 해소하고 최신의 현장데이터와 추가해석 등을 적용, 보다 실제적인 평가체계로 발전하여 후속 안전성평가에 활용되어야 한다.
- 실제적이고 Robust한 접근. 종합개발의 안전성평가는 안전도 확보를 위해 불확실성과 결부된 보수성을 앞세우기보다는 충분한 민감도분석과 불확실성 평가에 의한 정당화를 지향할 필요가 있다.

요컨대, 처분시스템 개발을 곧 해당 Safety case 구축과정으로 인식하고[2] 양자를 체계적으로 연계하여 방폐장 종합개발 전과정에 적용하여야 한다.

2. 종합개발에 따른 안전논점

국내 중·저준위폐기물처분시설에 대한 안전기준은 운영단계에 대해 모든 원자력시설에 공히 적용되는 일반인 선량제약치(기체방출물에 의한 외부피폭 < 0.05 mSv/y, 액체방출물에 의한 유효선량 < 0.03 mSv/y, 부지당 총유효선량 < 0.25 mSv/y 등)와 폐쇄 후 단계에 대한 성능목표(정상 자연현상에 따른 일반인 선량 < 0.1 mSv/y, 비정상 확률현상에 따른 위험도 < 10^{-6}/y)와 우연한 침입자 보호를 위한 기준(1 mSv/y)으로 구성되어 있다. 이와 관련하여 1절의 이슈들을 방폐장 안전성의 문맥에서 다음과 같이 구체화할 수 있다.

- 전체 방폐장 개발에 합당한 방사선방호체계 적용. 후속개발에 따라 서로 다른 처분고 및 주변 원전 등으로부터 영향의 발현에는 다양한 시차가 예상된다. 이러한 양상은 전체시스템 성분별 또는 시점별로 서로 다른 성분 및 단계로부터 유래한 영향들의 중첩을 나타냄으로써 개별 안전기준의 적용에 혼란을 야기할 수 있다. 안전기준을 해당 역할에 맞게 잘 적용하기 위해서는 기여 시나리오와 결과 영향 들을 피폭의 특성(계획/비상/기존피폭)과 유형(정상/잠재피폭) 등 방사선방호체계의 문맥에서 적절히 분별하여야 한다[3].
- 천층 특성의 고려. 천층 처분고는 지하수 및 폐기물 거동 면에서 동굴 처분고와 다른 양상을 보일 수 있다. 예로서, 처분고의 형태와 배치에서 동굴의 경우에는 응력이 주 고려사항인 반면 천층의 경우에는 지하수 접촉패턴에 민감할 수 있다. 천층용 방벽의 설계는 여러 대안에 걸쳐 폭넓은 성능평가를 통한 최적화를 필요로 한다.
- 동적 안정성 입증. 이질적인 성분들이 물리적·화학적으로 결합된 복잡계에 대해서는 구조적 안정성뿐만 아니라 dynamic stability도 반드시 확인되어야 한다[4]. 예로서, 어떤 처분고 및 폐기물 거동이 다른 처분고 및 폐기물에 의해 영향을 받을 수 있고 비선형 상황에서 어느 시점에서 총영향이 개별 영향의 단순합산치를 초과할 가능성이 있다. 복잡계에 대하여는 성분간 상호작용에 관한 systems analysis를 수행하여 이러한 비선형 가능성이 없음을 입증하여야 한다.

- 인접시설과의 상호작용 고려. 상기 방호체계 적용에 관한 고려와 맞물려, 당해 방폐장의 개발과 운영을 위해 부지당 제한치의 적용방안에 대해 재검토가 필요하다. 예로서, 현 시점에서 폐쇄후 단계 안전성을 지향하는 당해부지가 운영단계 안전성이 강조되는 인접부지와 한데 묶이는 것은 다분히 잠재피폭 성격의 방폐장 특성을 감안할 때 온당하지 않을 수 있다. 이와 관련하여, 당해 복합처분계에서는 처분고로부터 방사성물질의 누출시점을 최대한 늦추는 노력과 함께 누출평가를 정당화하기 위한 정교한 모델링 노력도 중요한 바, 이는 특히 천층처분에 대하여 강조된다.
- 운영단계평가. 여러 유형의 물리적, 단계적 특성들이 공존하는 복합시스템의 성격을 고려하여야 하며 특히 폐쇄처분고와 운영처분고의 공존에 적절한 접근이 요구된다. 전체로 운영시설에 준한 평가가 필요할 것이므로 운영단계 선량제약치의 적용에 유의하여야 하며 대표인 설정을 포함한 생태계평가와 Dosimetry에도 노력이 필요하다.

3. 폐쇄후 안전성평가 부문별 발전방향

경주방폐장 후속개발과 처분안전성 증진에 필요한 폐쇄후안전성평가 실무상 주안점을 제안한다.

- 수리지질평가. 처분시설 주변 수리지질평가는 폐쇄후 안전성평가의 시발점으로, 처분시설 개발단계별로 평가결과의 유효성이 지속적으로 확인·입증되어야 한다. 특히, 단순히 평가만이 아닌 건설단계에서 확보된 추가자료 및 문헌조사를 통해 지하수위 회복 여부, 해수침투 등 근본적인 가정에 대한 객관성 확보에 더한층 노력이 필요하다. 또한 모델링 규모의 다양화를 통해 처분고 내 지하수 유입 및 유출 해석의 정교화가 요구되며, 지하수유동모델링과 연계한 대표핵종의 다차원 거동 해석은 안전성 실증에 요소가 될 것이다.
- 정상시나리오 평가. 해당 처분의 기본성능을 확인하고 다른 두 평가의 기초로서 이 평가는 안전성평가의 중심을 이룬다. 이를 위해, 1,2절에서 언급한 제반 고려사항들을 적절히 반영한 종합시스템성능평가(TSPA)가 요구된다.
- 비정상 확률시나리오/위험도 평가. 이것은 정상 자연현상에 대한 평가와 더불어 당해 처분시스템의 성능을 확인하는 것으로, 당해 처분시설에서 폐쇄후 자연적 또는 인위적 요인으로 인하여 발생이 예측되는 대표적 확률현상들에 대해 위험도 성능목표(10^{-6}/y)가 만족되는지를 입증한다. 확률현상 위험도평가 수행 시 시나리오에 대한 발생확률의 추정과 평가에 불확실성이 내포될 수 있는 바, 안전성의 객관화를 위해 평가 전과정에 대한 양식화가 요구된다. 이를 위해 처분시설 내외부환경의 장기적 변화를 예측함에 있어 미래사건의 발생확률 및 영향의 "정형화"와 안전성평가 모델의 "양식화"의 반복과정을 효과적으로 진행하는 평가체계를 적용하는 것이 바람직하다. 그 수행 범위에는 전체 평가기간 동안 발생할 가능성을 염두에 둔 시나리오의 정당화와 사건 발생 시점별 상세평가가 포함되어야 할 것이다.
- 생태계 및 인간침입 평가. 안전성평가 중 불확실성이 가장 큰 분야로 현 상태를 기초로 미래에 대한 보편타당한 예측평가가 핵심이며 평가 신뢰성 향상을 위한 노력이 필요하다. 복합계에 따른 결정집단/대표인 설정과 피폭모델링에서 발전이 필요한 바, 여기에는 생태계평가의 고도화, 인근 인간활동의 적절한 분석을 통한 평가시나리오의 객관적 타당성 증진, 입력변수 자료의 특성화 및 체계화, 전산코드의 고도화를 통한 평가다양성 확보, 미래 예측과 관련하여 확률론적 평가방법의 도입을 통한 결정론적 평가 결과의 보완 등이 포함된다. 한편, 현행 인간침입 방호기준(1 mSv/y)에 대한 정확한 취지를 파악하여 억측성 시나리오를 배제하고 보편타당한 시나리오를 바탕으로 평가하는 것이 중요하다.

4. 맺음말

경주방폐장은 장기간 방폐물을 수용하며 원자력산업을 뒷받침해야 할 중요한 국책시설이므로 마스터플랜에 따라 체계적으로 구축되어야 한다. 여기서 검토한 고려사항들이 종합개발과 안전성 증진에 보탬이 되기를 기대한다.

5. 참고문헌

[1] 한국방사성폐기물학회, 2009년 춘계학술발표회 논문요약집, pp.165-166, 2009.
[2] IAEA Safety Requirement, Disposal of Radioactive Waste, 2011.
[3] ICRP Pub.103, 2007 Recommendations, 2007.
[4] (e.g.) G. Iooss & D. Joseph, Elementary Stability and Bifurcation Theory, Springer.

공학적 방벽 열화평가를 위한 지화학 모델링 검증 고찰

김건영, 류지훈, 고용권, 정해룡*
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
*한국방사성폐기물관리공단, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
kimgy@kaeri.re.kr

1. 서론

장기간에 걸친 공학적방벽과 지하수와의 반응, 특히 콘크리트-지하수 반응 및 이로 의한 콘크리트 방벽내의 시멘트계 물질의 물리/화학적 변화특성을 예측 할 수 있는 지화학 모델링은 처분장 안전성 평가를 위해 매우 중요하다. 콘크리트와 지하수 반응의 해석과 이와 관련되어 수행된 기존의 수많은 모델링들은 시멘트의 수화과정 및 열화과정에 의한 다양한 조성광물들의 복잡한 화학과정에 그 초점을 맞추고 있다. 이 중 시멘트의 수화과정 및 열화과정은 콘크리트와 지하수 반응체계를 개발하는데 핵심적인 내용이며 이 과정들을 이해하기 위해서는 무엇보다 시멘트 수화과정과 열화과정과 관련된 화학과정을 이해하는 것이 중요하다. 따라서 시멘트의 수화과정과 열화과정을 열역학 및 화학적으로 정량화 하려는 노력이 많은 연구들에 의하여 시도 되어왔다. 하지만 시멘트의 수화과정과 열화과정은 다양한 화학 과정들이 매우 복잡하게 얽혀있기 때문에 이러한 과정들을 모델링하는 일은 그리 쉬운 일이 아니다. 또한, 현재까지 실험연구에 의해 조사된 시멘트의 수화과정과 열화과정에 의해 생성된 광물들의 화학성분이 매우 방대하고 또한 아직까지 명확하게 정의되지 못한 광물조성들이 많이 존재하기 때문에 이에 따르는 방대한 열역학데이타 베이스를 가지고 있는 검증된 모델링이 필요하다. 본 연구에서는 콘크리트 열화평가를 위해 콘크리트-지하수 반응체계를 모델링하기 위해서 PHREEQC를 선택한 이유 및 이 프로그램을 본 연구목적에 적용하였을 때 적합성 여부를 평가해보았다. 즉, 수행하고자 하는 연구목적에 따라 PHREEQC 프로그램을 선택하여 모델링을 수행할 때 무엇보다 이 모델링 프로그램으로 본 연구목적을 달성할 수 있을지에 대한 검증이 필요하며, 따라서 본 연구에서는 연구목적을 달성하기 위하여 설정된 개발과정들과 연계된 PHREEQC 프로그램의 이용사례들을 기존 문헌에서 살펴봄으로써 PHREEQC 프로그램이 설정된 연구목표를 정확하게 달성할 수 있을지를 판단하고자 하였다.

2. 본론

2.1 모델링 프로그램 검증의 정의

기존 문헌들로부터([1],[2],[3],[4]) 정의된 모델링 프로그램의 'verification' 과 'validation'에 대한 내용을 정리하면 다음과 같다.

Verification : 어떤 모델링 프로그램이 연구목적에 맞는지, 즉 그 프로그램이 본 연구목적을 위해 적절한 모델체계와 정확한 수학적 계산을 수행할 수 있는지를 확인 하여야 한다.

Validation : 모델링 프로그램에 의하여 실행된 결과가 그 모델링 프로그램과는 독립적으로 실행된 실험의 결과와 비교 분석되어야 한다. 아울러 어떤 연구에 사용된 모델링 프로그램을 충분한 실험결과에 의하여 비교하여 모델링에 의해 계산된 예측이 정확한지에 대한 평가가 이루어져야 한다.

2.2 콘트리트 열화평가에 PHREEQC의 적용사례

PHREEQC는 시멘트의 수화과정은 물론이고 열화과정 그리고 다양한 화학과정에 따라 생성되는 광물들의 열역학적 특성들을 조사하기 위한 연구 등에 다양하게 사용되어 왔다. 또한 시멘트 광물들과 용해된 특정 화학요소들과의 상호반응을 조사하기 위하여 모델링 프로그램을 적용한 사례들도 있다. 이외에도 공학적 방벽에서의 시멘트 열화과정을 모델링하기 위하여 PHREEQC를 사용하였고 더 나아가, 방사성폐기물처분장에 사용될 시멘트의 열화과정과 그 영향에 대하여 PHREEQC를 사용하여 예측하고 그 결과물을 제시한 사례도 있다 (표 1).

콘크리트와 지하수 반응체계를 개발하기 위하여 시멘트의 수화과정과 열화과정을 모델링 하기위하여 기존연구사례들을 검토해 볼 때 그 들 연구사례에서 PHREEQC를 이용하여 그 연구목적을 정확히 달성하였다고 볼 수 있다. 기존 문헌에 따르

면 시멘트의 수화과정을 시작으로 열화과정 및 시멘트 관련 각종 광물들에 대한 특성과 다른 화학종과의 상호반응 등 시멘트와 관련하여 방대한 연구과제에서 PHREEQC 프로그램이 사용되어왔고 실질적으로 공학적방벽내에서 시멘트 열화과정에 대한 연구사례와 스웨덴의 방사성폐기물 처분장에 사용될 시멘트 열화과정을 예측하고자 PHREEQC를 사용하기도 하였다. 이들 대부분의 연구사례에서는 모델링과 실험이 동반되어 실질적으로 모델링에 대한 검증 'validation'이 이루어 졌다. 따라서 이러한 기존 연구사례에 비추어 볼 때 본 연구에서 수행하고자 하는 콘크리트-지하수 반응체계 개발을 위하여 PHREEQC 프로그램을 선택한 것에 대한 검증 'verification' 또한 기존문헌조사에 따른 사례들에 의해 입증될 수 있다.

Table 1. Cases of application of PHREEQC code for the cement degradation assesement

대상	연구과제내용	참고문헌
시멘트 수화과정	실험을 통하여 시멘트 공극수를 분석하고 모델링을 통하여 수화과정에 의한 생성광물의 포화도 조사	Rothstein et al. (2002) 와 Thomas et al. (2003)
특정광물의 특성조사	실험과 모델링을 통하여 시멘트 수화과정에 따라 생성된 광물들의 열역학적 특성조사	Reardon and Fagan (2000)
시멘트페이스트와 다른 화학요소들과의 반응	실험과 모델링을 통하여 시멘트 수화과정에 의해 생성된 광물과 다른 화학요소들사이의 반응과정 (특히 흡착과정)을 조사	Elakneswaran et al. (2009)
시멘트 침출과정	실험과 모델링에 의한 시멘트 페이스트로부터의 침출현상 조사	Halim et al., (2005), Martens et al., (2010)
시멘트 열화과정	시멘트 열화과정에 mass balance 개념을 적용하여 장기적인 시멘트 열화과정을 예측	Jacques et al. (in press)
시멘트와 점토광물의 반응	시멘트/점토광물간의 화학적 반응을 모델링하고 실험과 비교분석	Gaucher et al., (2004)
공학적 방벽에서 시멘트 열화과정의 영향	스웨덴 방사성폐기물처분장 환경에서 시멘트 열화과정에 의한 영향을 모델링에 의하여 예측	Höglund and Konsult, (2001)

본 연구 과제를 수행하기 위해 선택한 모델링에 대한 'validation'은 앞에서 정의한 그대로 실험을 통한 검증이 우선시 되어야 한다. 연구목적에 적합한 실험이 모델링과 동반되어 서로의 결과를 비교할 때 그 모델링에 대한 'validation'이 이루어질 수 있을 것이다. 하지만 어떤 이유에서건 실험이 모델링과 동반되지 못하는 경우 (예로 연구목표가 시멘트의 열화과정을 장기간에 걸쳐 예측하고자 하는 경우), 실험결과는 기존문헌조사에 의하여 얻어질 수밖에는 없고 이러한 기존문헌조사에 의해 취합된 실험결과로 모델링의 결과가 비교되어야 한다. 또 다른 검증방안으로써 다른 모델링 프로그램을 사용하여 그 모델링 결과를 비교분석하는 방법이 있을 수 있다. 예를 들어 콘크리트 열화평가를 위해서 수행하고 있는 지화학 모델링의 다양한 검증을 위해서 PHREEQC 외에 TOUGHREACT 혹은 EQ3/6 등을 사용하여 그 결과를 상호 비교함으로써 사용된 지화학 모델링의 결과에 대한 검증을 수행할 수도 있을 것이다.

3. 감사의 글

본 연구는 2010년도 지식경제부의 재원으로 한국에너지 기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다(No.2009T100100523).

4. 참고문헌

[1] AIAA, 1998. Guide for the Verification and Validation of Computational Fluid Dynamics Simulations. American Institute of Aeronautics and Astronautics, AIAA-G-077-1998.

[2] ASME, 2006. Guide for Verification and Validation in Computational Solid Mechanics. American Society of Mechanical Engineers, ASME V&V 10-2006.

[3] DoD, 1996. DoD Instruction 5000.61: Modeling and Simulation (M&S) Verification, Validation, and Accreditation (VV&A). From www.dmso.mil/docslib.

[4] Roache, P.J., 1998. Verification and Validation in Computational Science and Engineering. Hermosa Publishers, Albuquerque, NM.

공학적 방벽의 열화평가를 위한 콘크리트-지하수 반응체계 분석

류지훈, 김건영, 고용권, 최종원, 박주완*
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
*한국방사성폐기물관리공단, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
jryu@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성폐기물처분의 다중방벽개념에서 콘크리트는 벤토나이트와 함께 중요한 공학적 방벽 구성물질 중 하나이며 특히 중저준위폐기물 처분장에 있어서는 일반적으로 가장 중요한 공학적 방벽의 역할을 하고 있다. 처분시설의 공학적방벽은 시간의 경과와 함께 열화(Degradation)되어 궁극적으로는 방벽으로서의 역할을 상실하여, 처분된 폐기물이 자연 생태계로 유출된다. 특히 시멘트 물질로 이루어진 콘크리트 방벽의 경우, 수리전도도는 매우 낮지만, 지하처분 개념하에서 처분시설 주변 지하수와의 반응을 피할 수 없기 때문에 장기적 안전성이 보장되어야 하는 방사성폐기물 처분시설의 특성상 장기간의 콘크리트-지하수 반응에 의해 콘크리트의 용해 및 열화가 진행되어 주위 생태계로 핵종유출을 야기시키게 된다. 따라서 장기간에 걸친 공학적방벽과 지하수와의 반응, 특히 콘크리트-지하수 반응 및 이로 의한 콘크리트 방벽내의 시멘트계 물질의 물리/화학적 변화특성을 예측 할 수 있는 지화학 모델개발이 필수적으로 요구된다. 본 연구에서는 이러한 시멘트 수화과정과 열화과정에 대한 모델링 체계를 분석하고 시멘트의 수화과정 및 열화과정과 관련하여 시간에 따른 광물들의 함량 및 부피 변화, 그리고 그에 따른 공극의 변화를 열역학적 모델링으로 예측하여 보았다

2. 본론

2.1 모델링 수행 방법

본 연구에서는 기존 문헌에서 제시한 시멘트 조성광물과 관련된 열역학 데이터를 기존의 PHREEQC 2.0 프로그램[1]에 적용하여 연구 목적에 맞는 시멘트 수화과정 및 열화과정에 대한 모델링을 수행하였다. 물/시멘트(w/c) 비율은 0.4로 설정하여 시멘트 수화과정을 수행하였으며 시멘트 수화과정에 이어서 시멘트 페이스트에 대한 43,000년 기간동안의 열화과정을 모델링하였다.

본 모델링에서는 시멘트 페이스트의 총 두께를 1m로 가정하였을 때 이를 총 20개의 cell들로 나누고 따라서 각 cell의 두께가 5cm가 되도록 설정하였다(Fig. 1). 확산반응과 관련된 effective diffusivity 값은 $1x10^{-1}1$ m^2/s 로 가정하였다. 용해된 화학종의 activity coefficient 는 PHREEQC에 내재된 extended Debye-Hückel equation 으로 계산되었다.

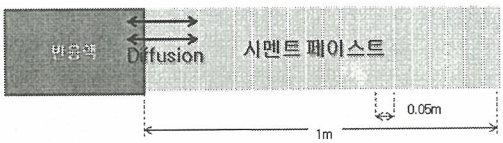


Fig. 1. Schematic diagram of the cement degradation modeling

시간에 따른 시멘트 열화과정에 의한 각 광물들의 부피와 이에 따른 공극률의 변화는 초기 공극이 없다고 가정하였을 때 초기 전체 부피를 각 광물의 부피의 합으로 설정하고 각 구간의 부피내에서 각 광물의 부피변화를 합산하여 공극률의 변화를 예측하였다.

2.2 모델링 결과

2.2.1 시멘트 수화과정

시멘트 클링커의 수화과정에 의한 생성광물 중에서 portlandite와 C-S-H 의 농도함량은 상대적으로 높은 것으로 나타났다. C-S-H는 Ca/Si의 비율이 다양하게 나타날 수 있는데 portlandite가 C-S-H와 공존할 경우, C-S-H의 Ca/Si 의 비율이 최고치(1.5~1.9)를 보인다. 시멘트 수화과정에 의해 생성된 소량의 광물들에는 AFm, AFt등의 광물군들이 있다. 수화과정 생성광물 중에 portlandite와 $C_{1.67}SH_{2.1}$의 농도는 다른 생성광물에 비하여 상대적으로 높다. 이 밖에도 calcium monocarboaluminate, calcite, ettringite, hydrotalcite 의 광물들이 시멘트 수화과정에 의하여 생성되지

만 그들의 농도는 상대적으로 낮다.

2.2.2 시멘트 열화에 의한 광물의 부피변화

시멘트 페이스트가 반응액과 반응을 시작하여 시멘트의 열화과정을 일으키면서 portlandite의 부피가 약 20년경 시멘트 표면에서부터 감소하기 시작한다. 이러한 portlandite의 부피 감소는 완만하게 오랜 기간을 거쳐 계속적으로 일어나며 약 10.000년 후에는 portlandite의 부피함량이 시멘트 cell 1(표면)에서 완전히 소멸되는 것으로 예측되었고 Cell 구간이 시멘트 표면에서 멀어질수록 portlandite의 부피감소는 적다. 약 40,000년 이후에는 시멘트 열화과정에 의하여 시멘트 표면부분에서 portlanite, ettringite, $C_{1.67}SH_{2.1}$, monocarboaluminate의 부피가 완전히 소멸한다. 반면에 같은 시점에서 Cell 1 구간에서 $C_{0.83}SH_{1.3}$, thaumasite, C_2ASH_8의 부피가 증가함을 보여준다(Fig. 2).

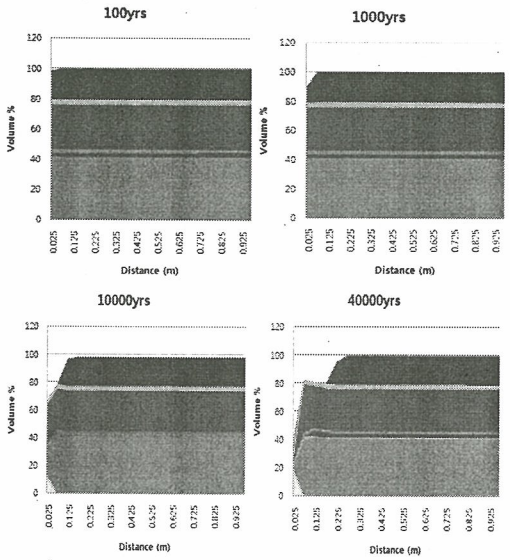


Fig. 2. Volume ratio of the cement minerals in each cells

2.2.3 시멘트 열화과정에 의한 시간별 공극률변화

시멘트 열화과정에 의한 구성광물의 변화가 가장 심한 Cell 1~3 (0-15cm) 구간에 대한 공극률을 계산하였다. Cell 1 (0-5cm) 구간에서는 상대적으로 다른 구간에 비하여 공극률이 높고 상승폭도 높을 것으로 예측되었다. 또한 공극률의 증가 추세가 시멘트 열화과정에 의해 지속적으로 상승하는 것으로 예측되었다. 이는 Cell 1 구간에서 높은 농도함량과 부피를 차지하는 시멘트의 주요 구성광물인 portlandite, ettringite, $C_{1.67}SH_{2.1}$의 감소가 시멘트 열화과정에 의하여 일어나기 때문으로 판단된다. 시멘트의 열화과정에 의하여 주요광물들이 용해되어 그 부피가 감소되는 반면에 침전되어 생성되는 광물들은 상대적으로 미흡한 것으로 예측되었다. 따라서 Cell 1구간에서 공극률은 계속해서 증가하게 된다(Fig. 3). 반면에 Cell 2 구간에서는 약 3,000년경에 공극률의 상승이 시작되어 약 17,000년경에 0.2까지 도달하다가 17,000년경 이후부터 공극률의 감소가 이루어진다. 하지만 그 감소폭은 상당히 완만할 것으로 예측된다. Cell 3구간의 경우 공극률의 상승이 약 10,000년경에 시작되어 0.2까지 도달하다가 약 20,000년경이후부터 일정한 공극률은 유지하는 것으로 나타났다. Cell 2-3 구간에서 공극률이 최대 0.2를 넘지 못하는 현상은 시멘트의 주요 구성광물이 열화과정에 의한 용해반응이 Cell 1 구간에 비하여 미흡하기 때문으로 판단된다.

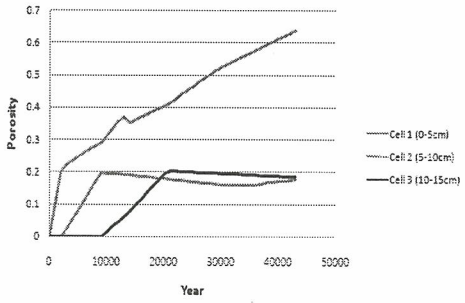


Fig. 3. Porosity changes by cement degradation

3. 감사의 글

본 연구는 2010년도 지식경제부의 재원으로 한국에너지 기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다(No.2009T100100523). 아울러 일부 교육과학기술부가 주관하는 원자력중장기 연구의 일환으로 수행되었습니다.

4. 참고문헌

[1] Parkhurst, D.L., (1995) User's guide to PHREEQC-A computer program for speciation, reaction path, advective transport and inverse geochemical calculations: U.S. Geological Survey Water-Resources Investigations Report 95-4227, 143p.

중저준위 방사성폐기물 내 ^{59}Ni 및 ^{63}Ni의 방사능 측정 방법에 대한 고찰

송병철, 김영복, 이창헌, 한선호, 이명호, 송규석
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
nbcsong@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력시설에서 발생된 ^{59}Ni는 원자로 내에서 중성자에 의하여 $^{58}Ni(n, r)^{59}Ni$ 핵반응으로 생성되며 방사화된 금속이나 냉각수 내에 존재하는 핵종들을 포집하는 수지등에 존재하며, 반감기가 7.5×10^4로 매우길어 폐기물 처분시 중요하게 취급되는 핵종이다. 또한 ^{63}Ni은 $^{62}Ni(n, r)^{63}Ni$ 핵반응으로 생성되며 반감기가 99.5년으로 매우 길다. 이들 핵종들의 방사능 농도를 측정하는 방법으로는 저에너지 감마선 분광분석법 및 액체섬광계수법등을 이용한다. 본 연구에서는 저에너지 감마선 분석기 및 액체섬광 계수기의 적정 조건을 확립하였으며, ^{59}Ni의 표준물을 제조하여 사용하였다. 또한 저에너지 감마선 측정방법 및 액체섬광계수법등의 측정 방법에 따른 최소검출방사능 농도를 산출 하였으며, 실제 중저준위 방사성 폐기물 시료 내 존재하는 ^{59}Ni 및 ^{63}Ni의 방사능 농도를 측정하였다.

2. 본론

2.1 저에너지 감마선분광분석기를 이용한 ^{59}Ni의 방사능 측정 방법

저에너지 감마선 및 X-ray를 방출하는 ^{55}Fe, ^{59}Ni, ^{129}I 등을 측정하기 위하여 NaI(Tl) Thin layer 검출기(3xM.040/3B, BICRON), Radiation Analyzer (Model 5000, Nucleus) 및 Spectra Analyzer(PCA-II, TENNELEC)로 LEPS(Low Energy Photon Spectrometer)시스템을 구성하였다. 저에너지 표준선원으로 ^{109}Cd 과 ^{55}Fe등을 사용하여 LEPS 시스템의 에너지 보정을 하였으며, ^{59}Ni 표준물 제조를 위하여 산화니켈(NiO, MW 74.7) 0.4384 g을 하나로에서 48시간 중성자 조사하였으며, 진한염산(37 %, Aldrich) 2 mL를 넣어 용해 시킨후 증발 건고 후 0.1 M HCl 5 mL로 녹인후 25 mL Vol-flask에 옮기고 표선까지 증류수로 채웠다. 산화니켈 0.4384 g의 방사능은 2.845×10^4 Bq 이며 용액 25 mL에 들어있는 방사능량은 1138 Bq/mL (10 mg Ni/mL) 이었다.

^{59}Ni-DMG의 침전 무게에 따른 계측효율을 구하기 위하여 산화니켈 표준물(13.7 mg/mL, 1 M HCl)를 각각 0.05 mL, 0.10 mL, 0.15 mL, 0.20 mL, 0.25 mL 및 0.30 mL 원심분리관에 넣고 1 M HCl로 최종부피가 2 mL 되도록 채우고 증류수 7.5 mL, Acetone 13 mL, tataric acid 용액(250 mg/mL) 3 mL를 넣는다. 진한 암모니아수를 pale blue 색이 나타나고 약간의 암모니아 냄새가 날 때까지(pH 9) 방울 방울 넣고 65 ℃에서 약 2분간 중탕하고 1 % DMG (95 % ethanol)를 5 mL 넣는다. 150 ℃에서 1시간 건조시키고 무게를 기록하고 Collodion희석용액(collodion:EtOH-1:20) 소량으로 침전물을 고정시키고 계측한다. 염의 무게에 따른 계측효율을 구하고 다음과 같은 보정식을 얻었다.

$$Log(Eff) = -0.00513 \times w + 1.1128$$

시료는 산분해 및 마이크로웨이브를 이용하여 용해되었으며, 순수하게 분리된 Ni을 dimethyl-glyoxime을 사용하여 $Ni(DMG)_2$ 침전을 얻었고, 계측효율보정곡선으로부터 시료의 침전 무게에 따라서 계측효율을 결정하고 방사능을 구하였다.

2.2 액체섬광계수기를 이용한 ^{63}Ni의 방사능 측정 방법

중저준위 방사성폐기물 내 ^{63}Ni 방사능을 측정하기 위하여 액체 섬광계수기가 이용되었으며, 시료는 ^{59}Ni 측정이 끝난 $Ni(DMG)_2$ 침전물을 1 mL의 1 M 질산을 넣고 IR 램프 아래에서 녹인다음 1 mL의 1 M 질산으로 10 mL 유리 비이커로 옮기고 가열판 위에서 타지 않도록 증발건고시킨다. 유기물을 분해시키기 위하여 3 mL의 진한 $HClO_4$를 넣고 흰 증기가 발생할 때까지 가열하였다. 니켈 산화물의 색깔인 검은색이 나타날 때까지 가열하고 2 mL의 0.7 *M* HCl로 저온 가열시켜 용해시킨 후 LSC 계측용 바이알로 옮겼다. 15 mL의 Ultima Gold LLT를 가하고 50분간 계측하였다.

소광효과에 따른 계측효율 보정곡선으로부터 시료의 계측효율을 구하고 ^{63}Ni 방사능을 구하였다.

2.3 ^{59}Ni 및 ^{63}Ni의 최소검출방사능 산출

방사능 계측기의 최소검출방사능은 주어진 신뢰도에서 검출될 수 있는 최소 방사능을 말하며 이는 기기의 백그라운드, 계측효율, 계측시간 및 시료 량 등에 의하여 결정되고, 최소검출방사능을 낮출 수 있는 가장 효과적인 방법은 시료 량을 크게 하거나 계측시간을 길게 하는 방법이 있으나 실험조건에 따라서 상호보완적이어야 한다.

저에너지 감마선분광분석를 사용하여 ^{59}Ni 에너지 영역에서 ROI(Region of Interest)를 설정하고 바탕값을 3000 초 동안 3회 측정하였을 때 바탕값 평균은 0.1cps 이었으며 바탕 값으로부터 구한 최소 검출 계수율은 0.03 cps 이었으며, 시료량을 1g, 측정효율을 0.11로 계산 하였을때 ^{59}Ni의 최소검출방사능은 0.47 Bq/g 이었다.

또한 액체섬광계수기를 사용하여 ^{63}Ni 영역에서 300초 동안 바탕 값을 측정하였을때 0.4 cps로 최소검출계수율은 0.06 cps 이었으며, 시료량을 1 g,계측효율을 0.63으로 계산하였을때 ^{63}Ni의 최소검출 방사능 농도는 0.16 Bq/g 이었다.

2.4 중저준위 폐기물 내 ^{59}Ni 및 ^{63}Ni의 방사능 측정

중저준위 방사성폐기물 시료 내 ^{59}Ni를 화학적으로 분리하여 Ni-DMG 침전을 얻은 후 저에너지 감마선분광분석기를 사용하여 ^{59}Ni의 방사능을 측정하였을 때 1 ~ $1x10^3$ Bq/g 정도의 방사능이 검출되었으며, 상대표준 불확도는 9.9 %이었다. 또한 Ni-DMG 침전을 산으로 용해한 후 액체섬광계수기를 이용하여 ^{63}Ni의 방사능을 측정 하였을때 10 ~ $1.5x\ 10^6$ Bq/g 정도의 방사능이 검출되었으며, 상대표준 불확도는 7.1 %.로 평가 되었다.

3. 결론

중저준위 방사성폐기물 내 함유되어 있는 ^{59}Ni 및 ^{63}Ni의 방사능을 측정하기 위하여 저에너지 감마선분광분석기 및 액체섬광계수기가 사용되었다. 저에너지 감마선 분광분석기의 ^{59}Ni 에너지영역에서의 백그라운드 및 계측효율은 각각 0.1 cps 및 11 %로 이었으며, ^{63}Ni 에너지영역에서의 백그라운드 및 계측효율은 각각 0.4 cps 및 63 %이었다. 저에너지 감마선 분광분석기 및 액체섬광계수기를 이용하여 ^{59}Ni 및 ^{63}Ni의 방사능을 측정할 때 최소검출한계는 각각 0.03cps 및 0.06cps이었다. 또한 중저준위 방사성폐기물 시료 1g을 3000 초 동안 측정하였을 때 최소검출 방사능 농도는 각각 0.47 Bq/g 및 0.16 Bq/g 이었다. 중저준위 방사성 폐기물 시료 내 59Ni 및 63Ni의 방사능 농도는 각각 1 ~ $1x10^3$ Bq/g 및 10 ~ $1.5x\ 10^6$ Bq/g로 검출되었으며, ^{63}Ni 및 ^{59}Ni 방사능 농도비가 100~ 200배로 ^{63}Ni의 방사능이 높게 나타났다.

4. 참고 문헌

[1] C. C. Lin, "Raiochemistry in nuclear power reactors", National academy press, E-23-28 (1996)

[2] B. R. Harvey, A. G. Sutton, "Liquid scintillation counting of ^{63}Ni", J. Int. J. appl. Radiat. Isotopes 21., 519-523 (1970).

[3] J. H. Kaye, R. S. Strebin, A. E. Nevissi, "Measurement of ^{63}Ni Highly radioactive hanford waste by liquid scintillation counting", J. Radioanal. Nucl. chem.. 180 197-200 (1994).

KURT 황산염박테리아에 의한 우라늄 환원 및 중금속 원소들의 영향

오종민, 이승엽, 백민훈
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
ohjm@kaeri.re.kr

1. 서론

혐기성 환경 하에서 지구미생물들은 산소 대신에 철, 망간, 우라늄, 크롬 등의 여러 무기이온들을 전자수용체로 이용하여 신진대사작용을 진행한다. 이러한 미생물들은 중금속이나 핵종원소들을 환원시켜 황화광물 및 기타 금속광물형태로 광물화시킬 수 있다는 연구들이 보고되고 있다.

본 실험에서는 황산염환원박테리아(SRB)에 의한 황화광물 생성시 우라늄의 제거 및 망간, 니켈, 구리, 코발트와 같은 금속원소들의 영향을 알아보고자 하였다.

2. 본론

실험에 사용된 미생물은 KURT 지하 약 80 m 깊이에서 생존하는 미생물로, 표 1의 배양액에 5% Fe(Ⅱ)의 ammonium을 주입한 배양액을 이용하여 증식시켰다. 인큐베이터를 이용하여 30℃를 유지하여 주었으며, 미생물의 활동에 의해 생긴 mackinawite라는 황화광물을 관찰하였다.

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_2HPO_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_4Cl 1.0 g		

KURT SRB의 우라늄의 환원 작용에 중금속이 미치는 영향을 알아보기 위하여 ATCC 7757 배양액과 우라늄($UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$, $5x10^{-5}$ M)이 존재하는 시료에 각각 망간($MnCl_2$), 구리($CuCl_2 \cdot 2H_2O$), 니켈($NiCl_2$), 코발트($CoCl_2 \cdot 6H_2O$)를 0.2 mM씩 넣어주고 2주간 배양하였다. 시간이 지남에 따라 mackinawite가 생성되었으며 미생물의 동정을 위해 16S rRNA PCR-DGGE 분석, 우라늄, 망간, 구리, 니켈, 코발트의 농도변화를 알아보기 위하여 ICP 분석을 실시하였다.

16S rRNA PCR-DGGE 분석 결과 KURT 지하수에서 배양된 미생물은 황산염환원박테리아인 *Desulfomicrobium baculatum*으로 밝혀졌다(그림 1).

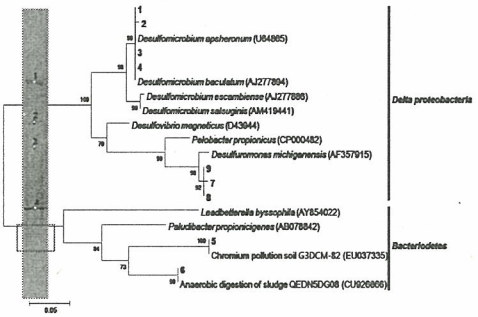


Fig. 1. 16S rRNA PCR-DGGE result of SRB enriched at KURT water

ICP 분석 결과 박테리아를 넣어 주지 않은 시료와 불순물로 구리를 넣어준 시료를 제외하고는 용존 우라늄이 거의 다 제거되었다. 불순물로 구리가 존재할 때는 박테리아의 활동이 제한되지만 망간, 니켈, 코발트는 박테리아가 우라늄을 환원하는 활동에 영향을 주지 않음을 알 수 있다(그림 2).

망간과 니켈, 코발트의 용존 농도를 살펴보면 망간은 거의 변화가 없지만 니켈과 코발트는 용존 농도가 거의 0까지 떨어짐을 알 수 있다. 이는 박테리아의 활동에 의해 mackinawite 생성시 우라늄과 함께 포획되었거나 박테리아나 광물에 흡착되었음을 시사한다(그림 3).

또한 2주간의 실험동안 변화가 없었던 구리 시료가 한달 뒤에 mackinawite 생성과 더불어 용존 우라늄이 거의 다 제거된 것으로 관찰되었다. 이는 초기에는 구리가 있는 환경이 박테리아의 활동을 제한시켰지만 박테리아가 환경에 적응하고

나서는 다른 원소가 있을 때와 마찬가지로 우라늄을 제거할 수 있음을 나타낸다.

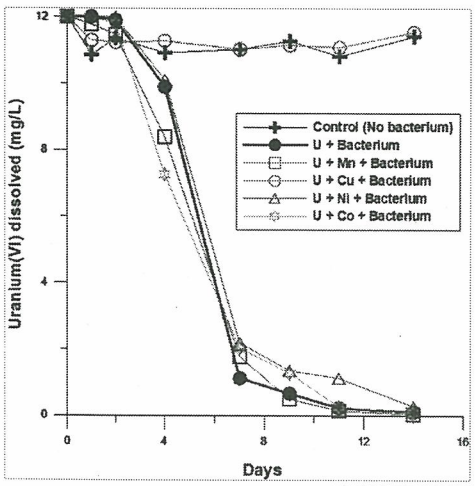


Fig. 2. ICP analyses for Uranium variation by microbial activity

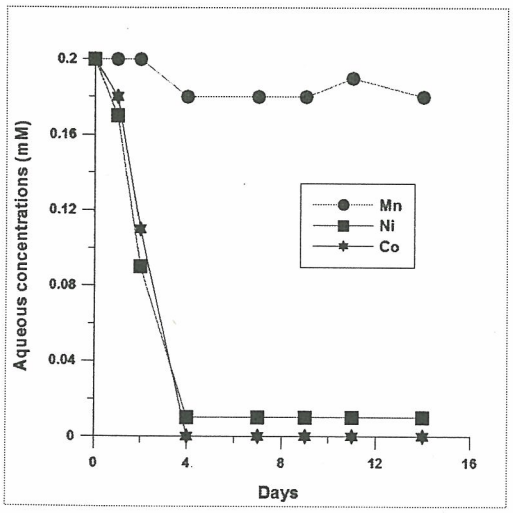


Fig. 3. ICP analyses for Mn, Ni, Cu variation by microbial activity

3. 결론

본 연구결과로부터 KURT 지하수의 황산염환원박테리아인 *Desulfomicrobium baculatum*은 망간, 니켈, 코발트와 같은 중금속의 존재하에서도 생광물화 작용을 통해 우라늄 농도를 저감시킬 수 있는 가능성을 보여주었다. 또한 처분용기의 재료로 고려되는 구리 성분의 존재하에서도 반응이 느리기는 하지만 박테리아들의 우라늄 제거 가능성을 보여주었다.

4. 참고문헌

[1] 한국광물학회지, 한국원자력연구원 지하심부 미생물에 의한 용존우라늄 제거 및 광물화 특성, Vol.23, pp. 107-115, 2010.

[2] 지질학회지, 지하심부 금속환원미생물과 용존우라늄과의 반응 및 철함유 광물의 영향, Vol.46, pp. 357-366, 2010.

Acoustic Emission기법을 활용한 KURT 무결암의 손상기준 및 균열패턴 분석

이경수, 김진섭, 권상기
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
lks@kaeri.re.kr

1. 서론

지하 수백 m의 암반을 굴착하여 건설되는 방사성폐기물처분장은 생성된 공동 주변의 응력재분배와 응력교란 등으로 모암과는 다른 역학적, 수리적, 열적 특성을 가진다. 따라서 방사성폐기물처분장 주변에서 발생하는 결함의 발생 유무와 결함의 정도를 실시간으로 평가할 수 있는 모니터링 법의 개발은 필수이다. 최근 국내외에서는 방사성폐기물처분분야에 Acoustic emission(AE)법을 활용한 연구가 널리 수행되고 있다.

그러므로 본 연구에서는 방사성폐기물처분장에 AE법을 적용하기에 앞서 암석시료를 이용한 실험실 규모의 실험을 통하여 시료 내부에서 발생하는 균열에 따른 암석시료의 손상기준과 균열 패턴 분석에 대한 연구를 AE법을 이용하여 수행하였다.

2. 본론

2.1 시험방법

본 연구에서 사용된 암석시료는 세립질 또는 중립질의 복운모 화강암으로 시료의 크기는 52×117mm이다. 암석시료에서 발생하는 균열에 따른 손상기준 및 균열의 패턴을 분석하기 위하여 일축압축하중을 시료에 가하였으며 하중에 의하여 균열 발생시 생성되는 AE 신호는 Rectuson사의 AE-300시스템과 Fuji ceramics사에서 제작한 8개의 60kHz 공진센서를 이용하여 시료표면에 부착하여 획득하였다. AE 센서에서 탐지한 신호는 프리엠프에서 40dB, 메인엠프에서 20dB 증폭시켰으며 AE검출한계는 주변에서 발생하는 노이즈 수준을 고려하여 80dB로 설정하였다. PDT, HDT, HLT는 관련 문헌조사와 발생파형을 고려하여 50, 100, 500μsec로 설정하였다.

2.2 암석시료의 역학적 특성

본 연구에서 사용된 암석시료의 탄성계수와 포아송비는 스트레인게이지를 이용하여 변형률을 측정한 뒤 응력-변형률 곡선에서 일축압축강도의 40~60% 구간의 결과를 이용하였다. 실험결과 탄성계수는 50GPa, 포아송비는 0.19, 일축압축강도는 164MPa인 것으로 조사되었다.

2.3 암석시료의 손상기준 분석

균열 발생 시 생성되는 AE파는 균열과 직접적인 관계가 있기 때문에 AE파를 이용하여 균열 발생에 따른 물체의 손상기준에 대한 정량적 분석이 가능하다. 따라서 압축강도 시험 시 암석시료 내부에서 균열에 의하여 발생하는 AE파의 parameter 중 count를 이용하여 암석시료의 손상기준에 대한 분석을 수행하였다. 실험 결과 균열 닫힘응력은 최대강도의 0.13배, 균열개시응력은 0.42배, 2차 균열개시응력은 0.69배, 균열결합응력은 0.81배, 균열손상응력은 0.91배이며 균열손상응력 이후부터는 균열 발생의 빈도가 급격히 증가하는 것으로 조사되었다.

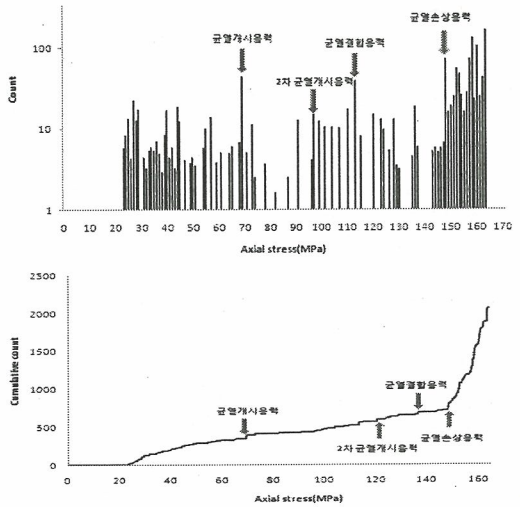


Fig. 1. AE count and cumulative count induced by rock sample under uniaxial compression

2.4 모멘트텐서법

균열운동 $b(y,t)$에 의하여 시간 t, 점x에서 발생한 변위 $u(x,t)$는 균열면 F에 대한 탄성상수 C_{pqkl}, 그린함수의 공간미분 $G_{ip,q}(x;y,t)$, * 컨벌루션 등을 이용하여 식 1과 같이 나타낼 수 있다.

$$u(x,t)=\int_F C_{pqkl}G_{ip,q}(x,y,t)*[b(y)l_k S(t)]n_l dS \quad \cdots\cdots (1)$$

식 1의 우변에 있는 탄성상수와 균열운동에 대한 방향벡터, 접선벡터, 균열운동벡터에 대한 항정리를 실시하면 식 2와 같이 모멘트텐서 m_{pq}를 획득할 수 있다.

$$\int_F C_{pqkl}[b(y)l_k]n_l dS=[C_{pqkl}l_k n_k][\int_F b(y)dS] \quad \cdots\cdots (2)$$
$$=[C_{pqkl}l_k n_k]\Delta V=m_{pq}$$

균열 발생시 AE센서에 의하여 탐지되는 AE파의 초동 진폭 $A(X)$는 m_{pq}을 활용하여 식 3과 같이 나타낼 수 있다.

$$A(x)=C_s\frac{Re(t,r)}{R}r_p r_q m_{pq} \quad \cdots\cdots (3)$$

여기서, C_s는 보정계수, R은 AE 발생위치에서 AE센서까지의 거리, r는 R의 방향벡터, $Ref(t,r)$은 벡터 r과 센서민감도의 방향벡터 t에 대한 반사계수이다.

식 3을 이용하여 모멘트텐서를 획득한 뒤 모멘트텐서의 고유치를 식 4에 대입하면 전단균열비 X, 편차인장균열비 Y, 인장균열비 Z를 획득할 수 있다.

$$X=\frac{e_2-e_3}{e_1}, Y=\frac{2(e_1-2e_2+e_3)}{3e_1}, Z=\frac{e_1+e_2+e_3}{3e_1} \quad \cdots\cdots (4)$$

순수 전단균열인 경우 $X=1, Y=Z=0$, 순수 인장균열인 경우 $X=0, Y=2/3, Z=1/3$이나 Ohtsu는 수치해석을 통하여 $X<40\%$인 경우를 인장균열, $X>60\%$인 경우를 전단균열로, $40\%<X<60\%$인 경우를 복합균열로 분류하였다.

따라서 본 연구에서는 Ohtsu가 제안한 바와 같은 방법으로 균열패턴을 분류하였으며 균열닫힘응력에서부터 균열손상응력까지의 결과만을 해석하였다. Fig 2는 모멘트텐서해석을 통한 균열패턴분석 결과이다.

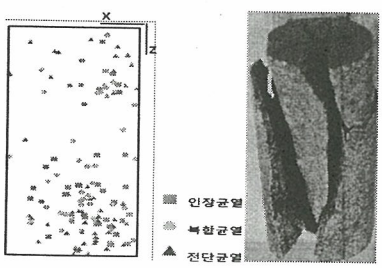


Fig. 2. Crack mode by moment tensor analysis

모멘트텐서해석을 수행한 결과 총 발생한 159개의 균열 중 인장균열은 52개(33%), 복합균열은 44개(27%), 전단균열은 63개(40%)가 발생한 것으로 분석되었다. 또한 하중 초기에는 시료의 하단부에서 인장균열의 발달이 우세하였으나 하중 이 증가함에 따라 시료의 중·하단부에서 복합균열과 전단균열의 발달이 우세한 것으로 해석되었다.

또한 식 2에 있는 균열의 체적 ΔV는 라메상수와 균열면의 방향벡터와 운동벡터의 내적, 모멘트텐서의 대각 성분들의 합을 통하여 획득할 수 있다. 따라서 발생한 균열체적을 분석한 결과 Fig 3과 같이 2차 균열개시응력수준이 지남에 따라 전단균열의 체적이 급속히 증가하였으며 모멘트텐서해석을 토대로 균열의 전파와 결합는 전단균열에 의해서 이루어지는 것을 유추할 수 있다.

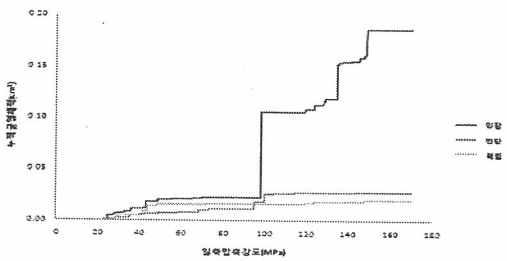


Fig. 3. Crack volume estimation

3. 결론

일축압축하중을 받는 암석시료의 손상기준과 발생한 균열패턴에 대하여 AE법을 이용하여 연구를 수행하였으며 결과를 요약하면 다음과 같다.

일축압축하중에 의한 시료의 손상기준에 대한 분석결과 균열닫힘응력은 최대강도의 0.13배, 균열개시응력은 0.42배, 2차균열개시응력은 0.69배, 균열결합응력은 0.81배, 균열손상응력은 0.91배인 것으로 조사되었다.

모멘트텐서 해석을 통하여 발생한 균열 패턴을 분석한 결과 하중 초기에는 인장균열의 발생이 우세하였으나 하중이 증가함에 따라 전단균열의 발생이 점진적으로 많아졌다. 다시 말해서 균열들의 전파와 결합 그리고 파괴에 직접적으로 영향을 주는 균열은 전단균열에 의한 것으로 유추할 수 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

디스크형 완충재 블록의 물성 분석

임진규, 이재완, 조원진, 권상기
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
odinljg@naver.com

1. 서론

고준위폐기물처분장에 설치할 완충재 블록의 제작기술은 중요한 처분기술요소 중의 하나로, 주위 암반으로부터의 지하수 유입을 최소화하고, 지하수에 의해 용해된 핵종이 폐기물로부터 유출되는 것을 저지하며, 외부의 역학적 충격으로부터 폐기물과 처분용기를 보호하는 역할을 한다. 우리나라 기준처분시스템의 완충재로는 처분용기의 상,하부에는 디스크 모양의 블록을, 처분용기의 측면에는 도넛형 블록을 설치할 예정이다. 그러므로 고준위폐기물처분장 완충재의 설계 및 방벽성능 향상을 위해서는 완충제의 성능기준과 제작 및 설치 시 블록의 건전성을 만족하는 디스크형 완충제 블록 제작기술 확보가 필요하다. 이와 관련해서, 본 연구에서는 디스크형 완충제 블록 제작을 통하여, 처분장에 적용할 디스크형 완충재 블록의 균일성(homogeniety), 역학적 특성 및 열전도도특성 등을 조사하였다.

2. 본론

2.1 실험

실험에 사용된 벤토나이트는 경주산 벤토나이트로 원광을 분쇄 한 후 200 메쉬(mesh) ASTM 망체를 통과한 것을 사용하였고 광물분석 결과, Ca-벤토나이트로서 몬모릴로나이트(montmorillonite, 70 %)와 장석(feldspars, 29%)을 주성분으로 하고, 소량의 석영 (quartz, ~1%)을 포함하였다. 화학조성은 SiO_2 56.8%, Al_2O_3 20.0%, Fe_2O_3 6.0% 및 기타 미량성분으로 되어 있다. 블록 제작은 유압프레스와 디스크형 블록 제작몰더를 사용하여 직경 25cm x 높이 4.25cm (혹은 8.5cm)로 제작하였으며, 건조밀도(1.45~1.65 g/cm^3), 벤토나이트의 입자크기, 블록높이에 따른 압축하중과 블록의 상태를 조사하였다. 제작한 완충재 블록은 각 부분별 건조밀도와 수분함량을 측정하였고, 일축압축시험과 열전도도 측정을 실시하였다.

2.2 실험 결과

실험 결과, 건조밀도가 커질수록 블록제작 시 필요한 압축하중은 증가하였고(Fig. 1), 압축하중-건조밀도의 관계는 거의 선형관계를 보였다. 블록의 높이를 4.25 cm와 8.5cm로 달리하였을 때 블록 높이가 높을수록 그에 따라 압축하중도 더 필요하지만, 그 증가율은 크지 않음을 알 수 있었다. 벤토나이트 입자크기에 따른 블록의 압축하중에 대한 영향을 보기 위해 분말시료와 과립시료에 대해 실험한 결과, 분말 시료를 사용했을 때가 과립시료를 사용했을 때보다 더 큰 하중을 필요로 하였다.

건조밀도 1.55 g/cm^3, 수분함량 13.5%인 성형블록의 건조밀도, 수분함량의 균일성을 분석한 결과, 전체블록에 대해서 건조밀도는 1.47 g/cm^3~1.59 g/cm^3 사이의 분포값을 수분함량은 12.84~14.23% 사이의 분포값을 보이고 있다(Fig. 2). 일축압축강도는 약 1.5 MPa~4.0 MPa, 탄성계수는 0.1 GPa~0.18 GPa 사이의 값을 보였으며, 일축압축강도와 탄성계수 모두 건조밀도가 클수록 증가하였다(Fig. 3). 성형블록의 열전도도는 건조밀도가 커짐에 따라 증가하였고(Fig. 4) Volclay 벤토나이트를 대상으로한 입자크기에 따른 열전도도는 과립시료가 분말시료보다 더 큰 열전도도를 나타내었다. 이때 Volclay 벤토나이트 블록의 열전도도는 입자상태에 관계없이 국산벤토나이트 블록보다 더 낮은 값을 가짐을 알 수 있었다.

3. 결론

블록 제작시험 결과, 블록의 압축하중은 건조밀도와 블록높이가 클수록 더 큰 압축하중이 요구되었고, 분말입자보다 과립입자의 벤토나이트로 블록 제작시 더 작은 하중이 필요하였다. 성형블록의 건조밀도와 수분함량 분포를 분석한 결과, 비교적 고른 분포를 보였지만, 큰 규모의 블록의 경우 블록 압축 전 시료고르기 작업에 의해 영향을 받을 수 있기 때문에 작업자의 세심한 주의가 필요함을 확인할 수 있었다. 일축압축강도, 탄성계수, 열전도도는 건조밀도가 커질수록 증가하였으며, 과립시료가 분말시료보다 더 큰 열전도도를 나타내었다.

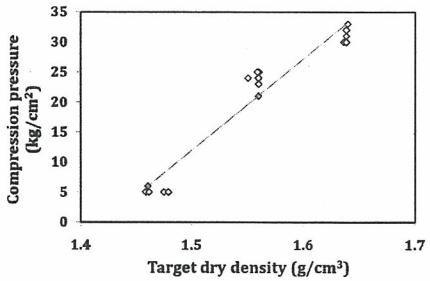


Fig. 1. 압축하중 - 건조밀도의 관계

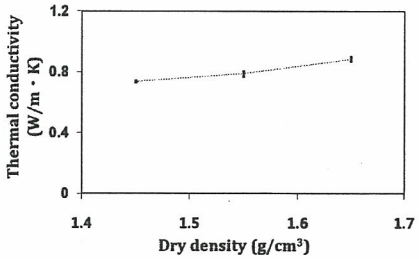


Fig. 4. 건조밀도에 따른 열전도도 변화

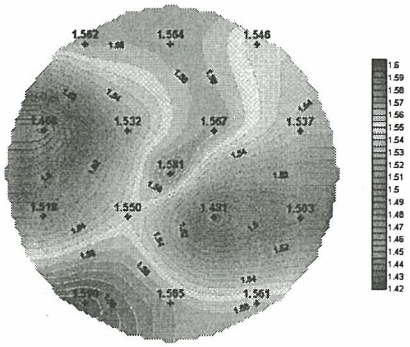


Fig. 2. 디스크형 벤토나이트 블록(Density 1.55) - Density Distribution 1.55

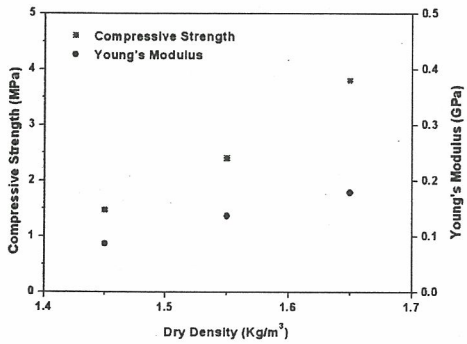


Fig. 3. 건조밀도에 따른 일축압축강도와 탄성계수 변화

고준위폐기물 처분형태에 따른 처분장 내 대기온도 예측에 관한 수치해석 연구

윤찬훈, 권상기, 김진*
한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
*인하대학교, 인천 남구 용현동 253
chyoon@kaeri.re.kr

1. 서론

고준위 방사성 폐기물 처분장의 경우 처분 터널 하부에 밀봉되는 처분용기는 밀봉 후 고준위 폐기물의 방사성 붕괴에 의해 상당기간 동안 발열을 하게 되며(완충재 사용 유무에 따라 100℃~150℃), 암반을 통한 열전달, 암반 표면으로부터의 대류, 지하수 유입에 의한 열전달 등에 의해 처분터널의 대기온도 상승에 큰 역할을 하게 된다.[1] 그리고 이러한 대기온도의 상승은 폐기물의 운반 및 저장, 처분장 내 작업 환경 및 처분된 고준위 폐기물의 안전성에 악영향을 미치게 된다. 그러므로 수치해석을 이용하여 처분장 내 대기온도를 예측하고, 이에 부합되는 적절한 환기시스템을 확보하는 것은 매우 중요하다. 이에 본 연구에서는 한국원자력연구원 내 위치한 지하처분연구시설(KAERI Underground Research Tunnel, KURT)에서 실험을 통해 결정된 열전달계수를[2] 바탕으로 수치해석을 통해 사용후핵연료 처분 형태에 따른 처분장 내 대기온도를 예측하고자 하였다.

2. 본론

2.1 처분시스템

본 연구에서는 처분장 내 대기의 온도를 예측하는 것이 목적이므로 수치해석 시 수직처분의 개념은 한국형 기준 처분개발 시스템(Korean Reference Disposal System, KRS)을 사용하였으며, 수평처분의 개념은 사용후핵연료 컨테이너를 처분터널 바닥에 일정한 간격으로 거치하는 방식을 이용하여 수치해석 하였다.

2.2 사용후핵연료(PWR)의 열 방출량

수치해석에 사용된 처분용기는 집합체 1개당 461kg의 우라늄으로 구성되어 총 665kg의 무게를 가지며 하나의 처분용기에 4개의 집합체가 포함되어 있다. 수치해석에 사용한 기준 열 방출량은 식(1)에 의해 결정하였다.[3]

$$q(t) = 14545.7 \times (40+t)^{-0.75756}\ W/MTU \quad \cdots\cdots (1)$$

식(1)에서 40은 냉각시간, t는 지하에 처분되는 기간을 의미한다. 본 연구에서는 처분용기 1개에서 발생되는 열량을 PWR 집합체 1개가 포함된 우라늄 0.46톤에서 발생되는 열량으로 가정하여 수치해석에 적용하였다.

2.3 처분시스템 구성요소의 물성

수치해석에 필요한 열전달계수 h는 KURT 현장실험 결과인 자연대류 조건에서 4.73 $W/m^2 \cdot K$를 초기조건으로 설정하였다. 그리고 수치해석에 이용된 처분터널 주변 암반의 물성은 KURT 암반의 수치를 사용하였다. 또한 처분시스템의 구성요소의 물성은 표 1에 나타냈다.

Table 1. Property of repository system component

Material	Property	Dimension
PWR	Density [kg/m^3]	2000
	Thermal conductivity [W/m· ℃]	0.135
	Specific heat [J/kg· ℃]	2640
Canister insert	Density	7200
	Thermal conductivity	52
	Specific heat	504
Outer shell	Density	8900
	Thermal conductivity	386
	Specific heat	383
Buffer	Density	1970
	Thermal conductivity	1.0
	Specific heat	1380

2.4 수치해석 조건 및 형상

처분장 내 대기온도의 분석을 위해 사용된 해석코드는 PHOENICS (Parabolic Hyperbolic Or Elliptic Numerical Integration Code Series)로서 영국에서 개발된 상용 CFD 유체 유동 시뮬레이션 프로그램이다. 해석은 비정상상태로 100년을 10단계로 나누어 실

행하였으며 세부적인 초기조건은 표 2에 나타냈다.

Table 2. The condition of simulation

Simulation program	PHOENICS 2009-FLAIR
Domain material	Ideal gas(30℃)
Grid	Basic : 35 × 31 × 55
Turbulence model	LVEL Model
Convergence	Residual ≤ 0.01%
Iteration	1000/steps

수치해석을 위해 수직 및 수평처분에 대한 형상을 그림 1과 2와 같이 너비 5m, 높이 6.15m의 처분터널 형상을 기본으로 하여 4방향(위, 아래, 좌, 우)으로 10m 씩 확장하여 형상을 만들었다. 그리고 터널의 입구는 콘크리트 방벽으로 막혀있는 상황으로 가정하였다.

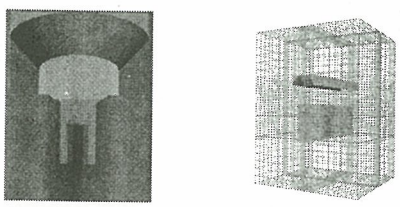


Fig. 1. Configuration of Simulation(Vertical disposal)

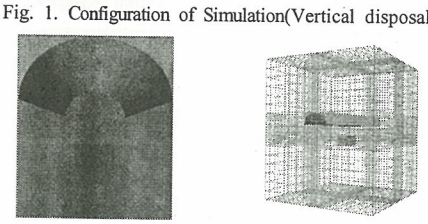


Fig. 2. Configuration of Simulation(Horizontal disposal)

2.5 해석결과

2.5.1 수직처분방식에서의 온도분포

그림 3은 열원을 중심으로 주변 암반으로 서서히 열이 전파된 모습을 보이며 PWR의 최고 온도가 처분 10년 후에 약 79.26℃까지 상승하였다.

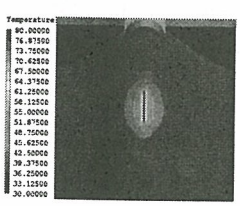


Fig. 3. After 10years(Temp)

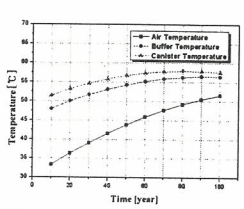


Fig. 4. Change of Temperature

그리고 수직처분 시 시간에 따른 처분터널의 대기, 완충재 및 캐니스터의 온도를 그림 4에 나타냈다. 10년이 지난 후 대기의 온도가 33.36℃, 100년 후 대기의 온도는 51.54℃ 까지 증가하였다.

2.5.2 처분기간에 따른 대기온도 변화

수평처분 시 PWR의 최고 온도가 처분 후 10년 후 84.35℃를 나타냈고, 수직처분에 비해 약 5.09℃ 높은 온도이다(그림 5). 그림 6 역시 수직처분과 마찬가지로 각 요소에 대한 온도변화를 나타내며, 10년 후 대기의 온도가 34.48℃를 나타냈고 처분 후 100년이 지난 시점에서는 52.63℃까지 증가하였다.

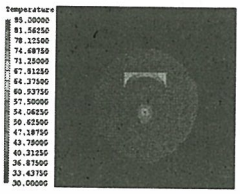


Fig. 5. After 10years(Temp)

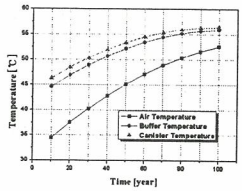


Fig. 6. Change of Temperature

3. 결론

시간에 따른 처분 방식별 수치해석 결과, 대기의 온도는 시간의 경과에 따라 약 2.1% ~ 3.3% 가량 수직처분 방식에 비해 높은 온도를 보였으나, 완충재 및 캐니스터의 경우는 오히려 0.5℃ ~ 3.36℃ 가량 낮은 온도를 형성하였다. 이는 폐기물의 저장위치에 따라 주된 매질(암반 & 공기)의 차이로 인한 결과로 판단된다. 본 연구 결과를 바탕으로 향후 폐기물의 발열량, 저장간격, 처분터널의 단면적 및 완충제 두께에 따른 대기온도 분포를 분석 할 예정이며, 추가적인 연구를 통해 처분장 내 최적 환기시스템 구축방안을 마련해 나갈 것이다.

4. 참고문헌

[1] 김진, 권상기, "한국형 방사성 폐기물 처분장을 위한 환기시스템 전략", Journal of the Korean Radioactive Waste Society, vol. 3(2), pp.135~148(2005).

[2] 권상기, 조원진. 2009, 지하처분연구시설 주변의 열, 수리, 역학적 초기조건, 공학적방벽 성능 현장 실증연구 과제 보고서, KAERI/TR-3796/2009.

[3] 윤찬훈, 권상기, 김진, "KURT 내 열전달계수 결정에 관한 실험적 연구", Journal of Korean Society for Rock Mechanics, Tunnel & Underground space, 19(6), pp.507~516(2009).

KAERI-SDB를 이용한 우라늄의 수착특성 평가

이재광, 백민훈, 이태엽
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
jklee1@kaeri.re.kr

1. 서론

세계적으로 많은 나라에서 방사성폐기물의 안전한 처분을 위하여 처분장 건설을 고려하고 있다. 방사성폐기물 처분의 가장 중요한 목적은 핵종들을 방사성폐기물 처분장에 격리시키는 것이고, 핵종들이 유출되었을 경우 생태계로의 이동을 최소화 하는 것이다. 특히, 지하환경에서 핵종의 이동은 핵종과 주변 모암, 지하수 그리고 단열충전광물 등의 상호 반응, 즉 수착에 많은 영향을 받는다. 따라서, 수착은 심부 지하 처분환경에서 방사성폐기물 처분 안전성 평가에 중요한 요소이다.

일반적으로 방사성폐기물 처분 안전성 평가 입력자료 중의 하나로 분배계수(Distribution coefficient, K_d)가 사용된다. K_d(mL/g)는 고체매질에 수착된 핵종의 농도에 대한 용액에 존재하는 핵종의 농도의 비로 나타내며 다음 식과 같이 정의한다.

$$K_d = \frac{(C_o - C_q)}{C_q} \cdot \left(\frac{V}{M}\right)$$

여기서, C_o, C_q는 핵종의 초기 및 평형상태 도달 후 용액에 존재하는 농도(mol/L)를 의미하며, V와 M은 각각 수용액 용량(mL)과 고체매질의 양(g)을 의미한다.

핵종의 수착은 고체매질, pH, 산화환원전위, 탄산염 농도, 이온강도, 용존유기물 그리고, 핵종의 농도 등 다양한 지화학적 요인에 많은 영향을 받는다. 수착 메카니즘이 매우 복잡하기 때문에 특정한 지화학적 조건에서 대표적인 K_d 값을 선정하거나, 방대한 양의 수착 자료로 부터 필요한 수착자료를 구하는 것은 매우 어렵다. 이러한 이유로 지난 수십년 동안 다양한 형태의 수착 데이터베이스가 개발되어 왔다.

한국원자력연구원에서는 사용자들에게 보다 효율적인 방법으로 핵종 수착자료 또는 핵종의 수착특성을 제공하기 위하여 웹기반의 핵종 수착데이터베이스(KAERI-SDB)를 2009년에 개발하였다. KAERI-SDB는 31개 핵종에 대한 16,000 여개의 국내외 수착자료가 수록되어 있으며, 사용자가 인터넷 웹브라우저를 이용하여 시간과 장소에 제한 없이 누구나 핵종의 수착자료를 검색 및 저장할 수 있도록 구현되었다.

본 연구에서는 KAERI-SDB의 활용성을 향상시키기 위하여 KAERI-SDB를 이용한 사례분석을 통하여 대표적인 악티나이드 핵종 중의 하나인 우라늄에 대한 수착특성을 평가하였다.

2. 본론

2.1 KAERI-SDB 개요

KAERI-SDB는 웹기반으로 구현되었기 때문에 http://sdb.kaeri.re.kr에 접속하여 사용할 수 있다. KAERI-SDB는 검색기능, 관리자기능, 차트 구현, 자료다운로드, 그리고, 통계 기능 등을 포함하며 다음과 같은 다양한 적용이 가능하다.

1. 다양한 지화학적 조건에서 대표적인 Kd, 또는 K_d 범위의 선정
2. 산포도를 이용한 지화학적 조건에 따른 수착특성 평가
3. 지수도를 이용한 지화학적 조건들의 범주별 수착 경향 분석
4. 통계분석을 통한 수착 자료 평가

2.2 우라늄 수착 특성 분석

KAERI-SDB를 이용한 우라늄 수착 특성에 대한 사례분석 항목은 다음과 같다.

사례 1. 침철석에 대한 우라늄 수착
사례 2. 화강암에 대한 우라늄 수착
사례 3. 우라늄 수착에 대한 탄산염의 영향

2.2.1 침철석에 대한 우라늄 수착

침철석(goethite)과 같은 산화철광물은 암반 단열 충전광물로도 존재하는데, 핵종에 대한 수착친화력이 매우 좋기 때문에 심부 지하환경에서 핵종의 이동 지연에 중요한 역할을 한다. KAERI-SDB를 이용한 평가 결과, 침철석의 우라늄 수착은 pH 변화에 민감하게 반응하였다. Table 1에서 보여주듯이, 침철석에 대한 우라늄의

수착은 pH 3.0~5.0 범위에서 적게 수착이 되었으나, pH 5.0~7.0의 영역에서 수착이 급격히 증가하는 경향을 보인다. 또한 pH 7.0~9.0에서 우라늄 수착은 다소 감소하는 경향을 나타내는데 이는 수착이 잘 안되는 우라닐 탄산 화학종 형성에 기인하는 것으로 판단된다[1].

2.2.2 화강암의 우라늄 수착에 대한 pH 영향

화강암은 심부지질의 고준위폐기물 처분장의 모암으로 평가되고 있다. KAERI-SDB를 이용하여 평가된 화강암의 우라늄 수착은 침철석에 비하여 매우 적게 나타났다(Table 1). 한편, 침철석의 경우와 마찬가지로 화강암의 우라늄 수착은 pH에 매우 의존적이며 이는 수용액에 존재하는 탄산염의 영향에 의한 것으로 사료된다.

Table 1. Population Mean of K_d(mL/g) of Uranium Sorption onto Goethite and Granite

pH	K_d (mL/g)	
	Goethite	Granite
3~5	59.7±57.2	7.5±2.1
5~7	1655.5±816.8	32.4±8.5
7~9	829.4±475.6	27.3±17.8
9~12	N/A	3.9±0.4

2.2.3 수착에 대한 탄산염의 영향

KAERI-SDB를 이용한 침철석과 화강암에 대한 우라늄 수착 평가결과 우라늄수착은 pH 의존적이며, 알칼리 영역에서의 수착은 탄산염에 영향을 받는 것을 간접적으로 확인하였다. 따라서, 본 사례에서는 우라늄 수착에 대한 탄산염의 영향을 평가하고자 하였다.

카올리나이트에 대한 우라늄의 수착은 수용액 중에 탄산염이 대기압(pCO_2=3.16×10^{-4}atm) 상태로 존재할 때 탄산염이 1×10^{-2} mol/L 농도로 존재할 때 보다 훨씬 높은 것으로 확인 되었다(Fig. 1). 이는 수용액의 탄산염 농도 변화에 따른 우라늄 화학종의 변화에 기인한 것으로 판단된다. 탄산염 농도 변화에 따른 우라늄의 화학종을 예측하기 위하여 지화학적 평가 모델인 Visual MINTEQ Ver.3.0을 이용하여 우라늄 화학종을 계산하였다[2].

화학종 계산 결과, 대기압 상태에서 우라늄은 대부분 수산화 우라닐 이온들로 존재하지만, 탄산염 농도가 1×10^{-2} mol/L로 증가하게 되면 대부분의 우라늄은 $UO_2(CO_3)_2^{2-}$ 및 $UO_2(CO_3)_3^{4-}$ 등의 광물에 대한 수착친화도가 낮은 우라닐 탄산 화학종의 형태로 존재하게 된다. 화학종 분포 계산 결과 및 KAERI-SDB를 이용한 검색 결과를 통하여 탄산염은 우라늄 수착에 많은 영향을 주는 것을 확인 할 수 있다.

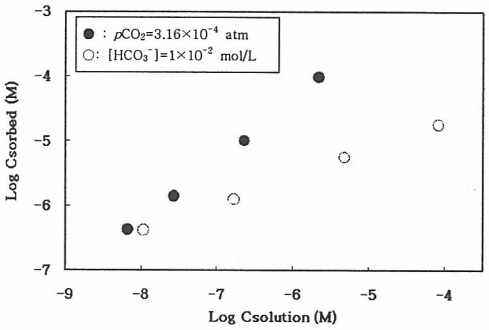


Fig. 1. Effect of dissolved carbonate on the sorption of uranium onto kaolinite

3. 결론

본 연구에서는 핵종 데이터 베이스의 성능과 접근성을 향상시키기 위하여 개발한 KAERI-SDB를 활용한 우라늄의 수착특성을 평가하였다. KAERI-SDB를 이용한 우라늄 수착특성 평가를 통하여 KAERI-SDB는 핵종들의 수착 특성을 평가하고 특정한 지화학적 조건에서의 K_d값의 범위를 정하거나, 통계적인 방법을 이용하여 핵종의 K_d 값을 산정하는데 유용한 활용될 수 있음을 확인하였다.

따라서, KAERI-SDB는 방사성폐기물 처분장 안전성평가 뿐만 아니라, 지하환경에서 다양한 핵종들의 이동 및 지연현상의 예측에 유용한 도구로 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

5. 참고문헌

[1] T. D. Waite et al.., Geochmi. Cosmochim. Acta, Vol. 58, pp. 5465-5478, 1994.

[2] J. P. Gustafsson, Visual MINTEQ Ver. 3.0, http://www.lwr.kth.se, Stockholm, 2010.

물리 검층 및 수리 실험을 이용한 장심도 관정에서의 수리 영역 구분

이대형, 지성훈, 박경우, 고용권, 여인욱*
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지
*전남대학교, 광주광역시 북구 용봉동
leedh@kaeri.re.kr

1. 서론

일반적으로 방사성 폐기물 처분장의 경우 지하 심부에 위치하므로, 심부결정질암반에 대한 연구가 필요하지만 공간적, 경제적 제약으로 인해 이러한 연구들이 미미한 실정이다. 우리나라의 경우 대수층의 대부분이 결정질 암반으로 구성되어 있어, 핵종들의 주 이동통로는 절리 및 단층대와 같은 파쇄대이며 지하수의 흐름을 통해 먼 곳까지 이동하게 된다. 그러므로 지하수 유동에 가장 크게 관여하게 되는 수리투수영역(HCD)를 구별해 내는 것이 매우 중요하다 [1].

본 연구는 한국원자력연구원 내 지하연구시설의 장심도 관정(DB-1)에서의 물리 검층을 통해 관정을 관통하는 단열대를 구분하고 수리 실험 및 변동량 분석(derivative analysis) [2, 3]으로 각각의 단열대에 대한 수리영역(hydraulic domain)을 구분하고자 하였다.

2. 본론

장심도 관정에 대해 온도 및 전기전도도, Suspension PS, 음파, 전기비저항, 밀도, 시추공 영상 촬영과 같은 물리검층을 실시한 후, 스웨덴 핵연료폐기물관리회사(Swedish Nuclear Fuel & Waste Company, SKB)의 기준을 참고로 8 구간의 단열구간과 14 구간의 배경단열구간을 추정하였다. 총 22 구간에 대하여 수리 실험을 실시한 결과 [4], 단열구간에 해당하는 3~25 m, 43.5~59.5 m, 92~116 m, 156~159 m, 183~194 m, 201.5~226 m, 234~244 m, 279~293 m 구간은 10^{-5}~10^{-9} m/s의 범위의 수리전도도를 보였다. 이는 단열구간이 지하수의 유동로뿐만이 아니라 방벽역할을 하는 수리투수영역(hydraulic conductor domain, HCD)의 특징을 보이기 때문인 것으로 판단된다. 그러나 온도 및 전기전도도 검층에서 이상대가 발견되지 않는 156~159 m, 183~194 m, 구간은 단열구간 중 상대적으로 낮은 수리전도도가 산출되었으며, 특히 279~293 m 구간은 단열구간 중 가장 낮은 수리전도도가 산출되었다. 이 세 구간들은 수리투수영역 중 지하수의 유동로보다는 지하수의 흐름을 방벽(barrier)역할을 하는 구간으로 판단된다. 배경단열구간에 해당하는 65~85 m, 125~145 m, 251~271 m, 291~311 m, 311~331 m, 331~351 m, 351~371 m, 371~391 m, 391~411 m, 411~431 m, 431~451 m, 451~471 m, 471~491 m 구간은 10^{-8}~10^{-10} m/s의 범위로 단열구간에 비해 훨씬 낮은 수리전도도가 산출되었으며, 비교적 균질한 값들을 보였다. 전 구간에 대해 수위 회복 자료를 이용한 변동량 분석을 실시하고, 물리검층 및 시추코어 관찰을 통해 최종적인 수리영역을 구분하고자 하였다. 3~25 m, 43.5~59.5 m 구간은 물리 검층 전 항목에 걸쳐 이상대가 나타났고, 단열구간 중 투수성이 가장 큰 구간으로 정압배출시험을 통한 앞선 두 구간의 평균값은 5.55×10^{-6} m/s, 수위회복시험을 통한 앞선 두 구간의 평균값은 3.28×10^{-6} m/s이며 변동량 분석 결과 원활한 흐름을 보이는 구간으로 수리투수영역(HCD)로 구분하였다. 92~116 m 구간도 물리 검층 전 항목에 걸쳐 이상대가 나타났고 투수성이 상대적으로 큰 구간이며 변동량 분석 결과 단열구간 중 가장 원활한 방사상 흐름(radial flow)을 보이는 것으로 수리투수영역(HCD)로 구분하였다. 156~159 m, 183~194 m 구간은 단열이 밀집되어 있고 단층 점토가 발견되는 구간이나 수리전도도가 정압배출시험을 통한 앞선 두 구간의 평균값은 1.15×10^{-8} m/s, 수위회복시험을 통한 앞선 두 구간의 평균값은 3.39×10^{-8} m/s로 단열구간 중 상대적으로 작고 변동량 곡선의 양상을 관찰한 결과 초기 관정저류효과 및 과도기 기간이 매우 긴 수리적 특성으로 보여, 지하수 흐름을 지연시키는 자연 방벽의 역할을 하는 수리투수영역(HCD)로 구분하였다. 201.5~226 m, 234~244 m 구간은 변동량 곡선은 유사한 양상을 보이고 있으며 지하수 유동이 원활한 구간임을 확인할 수 있으며 수리 실험 결과

3~25 m, 43.5~59.5 m 구간의 수리전도도도 보다는 낮으며 정압배출시험을 통한 앞선 두 구간의 평균값은 7.15×10^{-7} m/s, 수위회복시험을 통한 앞선 두 구간의 평균값은 4.35×10^{-6} m/s의 값이 산출 되었으나, 이는 변동량 곡선의 과도기 구간을 반영하여 나타나는 결과라 판단하였고 물리검층 결과와의 비교를 통해 수리투수영역(HCD)로 구분하였다. 279~293 m 구간의 경우 수리전도도가 단열 구간 중 가장 낮으며 정압배출시험을 통한 수리전도도 값은 1.76×10^{-9} m/s, 수위회복시험을 수리전도도 값은 6.26×10^{-8} m/s로, 변동량 분석과 시추 코어 관찰과의 비교 분석을 통해 수리암반영역(HRD)으로 구분하였다. 배경단열구간의 변동량 곡선의 양상은 대체로 우물저류효과(wellbore storage effect)를 포함한 과도기 구간이 길며 후기로 갈수록 수리적 연결성이 불량한 구간임을 확인할 수 있으며, 배경단열구간 14 구간에 대해 수리암반영역(HRD)으로 구분하였다. 본 연구 결과, 물리검층을 통해 구분한 단열구간 중 3~25 m, 43.5~59.5 m, 92~116 m. 201.5~226 m, 234~244 m 구간은 지하수의 유동로 역할을 하는 전형적인 수리투수영역(HCD)의 특징을 나타내는 구간으로서, 변동량 분석 결과 3~25 m, 43.5~59.5 m 구간은 선형흐름과 방사상 흐름의 중간에 해당하는 유동차원을 보였고, 92~116 m 구간은 전형적인 2차원의 방사상 흐름을 보였다. 단층 파쇄대 구간인 201.5~226 m 구간과 234~244 m 구간은 과도기 구간이 다열구간 중 상대적으로 오래 지속되나, 후기에 2차원 흐름보다 더 큰 유동차원을 보이는 흐름영역이 나타난 것을 알 수 있었다. 반면 물리검층을 통해 단열구간으로 판별된 279~293 m, 156~159 m, 183~194 m 구간은 지하수 유동의 주된 통로라기보다는 지하수 흐름을 지연시키는 수리투수영역(HCD)으로 구분할 수 있다. 배경단열구간은 물리검층에서 이상대가 발견되지 않았고, 수리 실험 결과에서도 단열구간에 비해 수리전도도 값이 상대적으로 작게 나타났다. 변량 곡선의 양상 역시 초기 관정저류효과와 과도기 구간이 매우 길게 나타나며, 대수층의 특성이 나타는 후기 구간 역시 매우 불규칙하게 변동하여 특정한 지하수 흐름 영역을 보이기보다는 불규칙한 지하수의 흐름 특성을 보여 지하수의 흐름이 원활하지 않을 수 있음을 보여준다. 수리실험 결과에 의해서도, 물리검층에 의해 판별된 배경단열구간을 모두 수리암반영역(HRD)으로 분류할 수 있었다.

3. 결론

본 연구를 통하여 DB-1을 관통하는 단열들에 대한 수리영역을 구분할 수 있었다. 연구지역의 DB-1 관정을 관통하는 절리들 중 수리투수영역은 DB-1의 270m 상부에 주로 분포하여 지하수 유동로의 역할을 하고 있고, 물리 검층과 대수층 시험의 해석 및 코어자료를 비교함으로써 변동량 분석의 단점을 보완하여 수리투수영역(HCD)을 구분해낼 수 있었지만, KURT 내 하나의 시추공 자료를 이용한 것이므로 보다 정확한 분석을 위해 추가적인 관정을 설치하여 각각의 수리영역과의 연결성을 분석함으로써 DB-1 주변의 수리지질모델을 완성할 수 있을 것이다. 따라서, 장심도 시추공에서 단열구간과 배경단열구간의 분석이라는 부분은 충족이 되었다고 볼 수 있지만, 단열대의 방향성 및 크기에 대한 일부 규명되지 않은 부분이 있다. 또한 단층 파쇄대이지만 자연적 방벽 역할을 하는 수리투수영역(HCD)을 추가적으로 구분함으로써, 방사성 폐기물 처분장 주변의 지질모델 구축에 기여할 것으로 보인다.

4. 참고문헌

[1] Rhen, I., Follin, S., Hermanson, J., 2003. Hydrological Site Description Model: A Strategy for Its Development during Site investigation, R-03-08, SKB, Stockholm.

[2] Bourdet, D., Whittle, T. M., Douglas, A. A. and Pirard, Y.M., 1983a, A new set of type curves simplifies well test analysis, *World Oil*, **196**(6), 95-106.

[3] Renard, P., Glenz, D. and Mejias, M., 2008, Understanding diagnostic plots for well-test interpretation, *Hydrogeology Journal*, **17**(3), 589-600.

[4] Batu, V., 1998, *Aquifer hydraulics*, John Wiley & Sons, INC., New york.

심지층 처분용기 전단시험모듈의 개발

이민수, 최희주, 최종원
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150
minm@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력발전소에서 발생된 사용후 핵연료 및 고준위 폐기물은 높은 방사선과 장반감기로 인해 지상에 처분하기보다는 인간의 침입이 어려운 심지층에 처분하는 방안이 연구되고 있다. 심지층은 인간에 의한 사고를 방지하기에는 유리하지만, 지진과 같은 자연적 재해는 피해갈 수 없다. 통상적으로 처분용기 주변은 화학적, 물리적 완충역할을 하는 완충재로 보호된다. 완충재의 가장 큰 목적은 방사성 핵종의 확산을 막고, 부식인자의 침투를 막는 것이다. 하지만, 지진과 같은 자연재해에서는 용기에 가해지는 물리적 충격을 완화시킬 수 있는 완충기능도 있어야 할 것이다. 일본 JAEA에서는 지난 10년간 지진에 의한 단층(fault)이 처분장을 관통할 경우를 예상하여 전단시험을 실시하여 왔다[1]. 이에 우리나라도 완전히 지진으로부터 안전한 지역이 아니므로, 현재 개발되고 있는 심지층 처분용기가 한국형 공학적 방벽에서 안전하다는 것을 확인할 필요가 있다. 이러한 목적으로 지진에 의한 단층활동을 모사할 수 있는 전단시험모듈을 개발하고자 하였다.

2. 본론

2.1 JAEA 전단시험기기

일본 JAEA 에서 운용하고 있는 전단시험기기는 고준위 폐기물 처분장에 사용될 EBS에 단층이 발생할 경우를 가정하여, 전단 움직임에 의한 축소판 EBS 움직임과 건전성을 실험실에서 살펴보기 위해 제작된 것이다. 전단시험결과는 FEM(finite element method)로 전산모사한 해석결과와 비교하여 모델링의 정확성을 높이는 데 사용된다. 최종적으로는 실제 규모의 단층 거동(빠른 전단속도 최대 1m/sec, 및 전단움직임 1m 이상)에 대한 전산모사의 신뢰도를 높이는데 그 의미가 있다. 그림 1은 JAEA에서 현재 운용중인 전단시험장치를 나타내고 있다. 전단시험장치의 규모는 실제 처분장에 사용될 EBS의 1/20 크기이며, 전단속도는 약 0.1 m/sec로 한쪽 시험용기를 수직으로 최대 70mm까지 이동시켜서 시험할 수 있다.

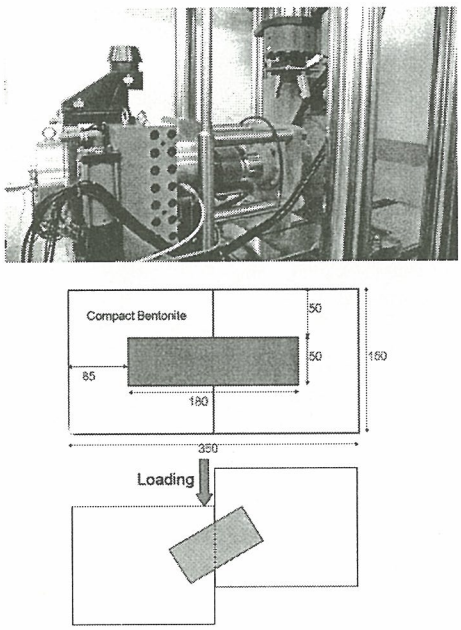


Fig. 1. JAEA의 EBS 전단시험장치(상)
전단시험 도식도(하)

2.2 한국형 EBS 모델

현재 A-KRS에서 고려하고 있는 한국형 처분용기는 내부주철용기와 부식저항성을 지니는 저온분사코팅 외부구리용기의 이중용기구조를 채택하고 있다[2]. 이에 비해 일본의 처분용기는 탄소강의 단일 용기를 사용하고 있다. 그리고 일본형 완충재는 70wt% Na 벤토나이트와 30wt% silica sand 혼합물로 건조밀도 1.6 g/cm^{3}로 압축 성형하여 사용한다. 하지만 한국형 완충재는 경주산 100% Ca 벤토나이트로서 건조밀도 1.6 g/cm^{3}로 압축 성형하여 사용하게 되므로, 일본의 전단시험결과는 한국형 EBS 시스템에 활용하기에는 무리가 있다.

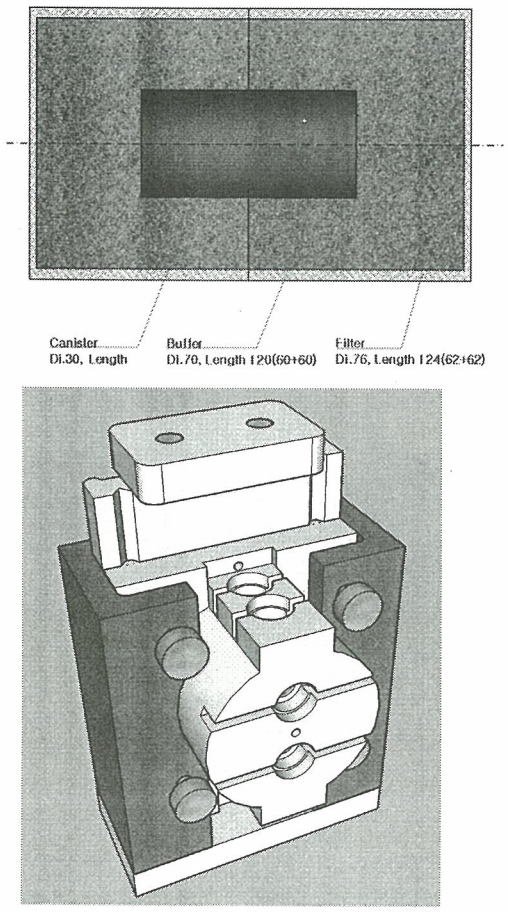


Fig. 2. KAERI의 전단시험 규격(상)과 전단시험모듈 조감도(하)

2.3 KAERI 전단시험모듈 설계

한국현 전단시험모듈은 일본 JAEA보다 규모가 작은 1/35 정도 규모로 모듈형으로 설계되었으며, 자체적으로 전단시키는 기계적 기능은 없고, 일반 재료압축시험기기에 장착될 수 있도록 하였다(그림 2). 전단모듈은 2개의 분리된 챔버가 맞닿는 면이 물리적으로 미끄러지는 구조로 되어 있어, 내부에 위치한 완충재와 시험용기가 전단력을 받도록 되어 있다. 시험용기는 주철-구리 이중구조로서 직경 30mm, 길이 60mm이다. 모듈내 완충재 공간은 직경 70mm, 길이 60mmx2이다. 완충재가 접하는 모듈 내면에는 물이 스며들 수 있도록 2~3 mm 두께의 금속 필터가 덮여 있다. 모듈의 전단범위는 0~30mm 정도이며, 25mm 전단될 경우 시험용기는약 24.6도의 회전을 하는 것으로 계산된다. 전단시험 시 압력 변화를 측정하기 위해 위치가 고정된 챔버 반쪽에는 6개의 다이아프램형 압력 측정용 센서가 부착될 예정이다.

3. 결론

앞으로 제작될 전단시험모듈은 실제 지진에 대비한 한국형 공학적 방벽의 안전성을 확인하는데 사용될 예정이다. 실제 소규모의 시험결과를 통해 실제규모의 전단거동을 모사할 수 있는 정확한 전산모델을 개발하는 것을 최종 목표로 삼고 있다. 이를 위해 전단시험모듈 개발과 더불어 역학모델개발도 병행하여 추진하고 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] Morimasa Naito, Yuya Saito, Kenji Tanai, and Mikazu Yui, Journal of Power and Energy Systems, Vol. 3, No. 1, pp 158-168, 2009

[2] J. Lee, H.J. Cho, and J. Choi, "Concept of a Korean Reference Disposal System for Spent Fuels", J. Nucl. Sci. Technol. 44, p1565, 2007.

제5분과

방사선 안전 환경 및 기타 (Oral)

빈 면

도시환경에서 방사능오염 표면의 중요도 분석

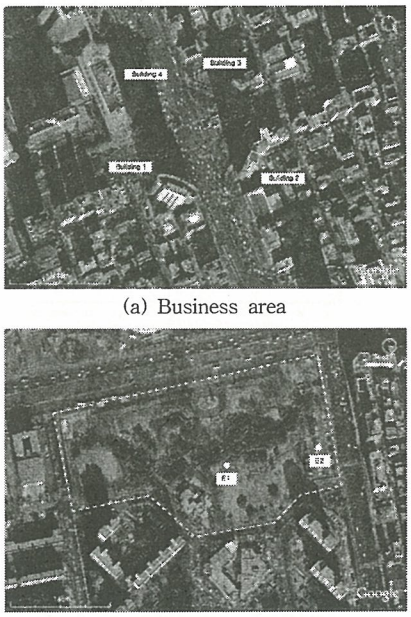
황원태, 정효준, 김은한, 한문희, 김인규
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
wthwang@kaeri.re.kr

1. 서론

국제원자력기구 (IAEA) 주관 국제비교프로그램 EMRAS-2(Environmental Modelling for RAdiation Safety, Phase 2)는 이전 IAEA 주관 프로그램인 EMRAS-1 (2003~2007)의 후속프로그램으로 변화하는 방사선환경방호의 새로운 관심사에 대한 국제적 조화를 목적으로 2009년 초에 조직되어 2012년 초까지 운영될 예정이다. EMRAS-2는 9개 분과로 구성되었으며 도시오염평가분과에서는 대기확산과 침적을 포함하여 도시 주거지에서 방사능오염 평가를 위해 사용되는 모델의 결과를 상호비교하고 이를 통해 얻어진 지식으로부터 모델의 향상을 도모하는 것을 목표로 한다. 동 분과에서는 모델예측 결과를 비교하기 위해 1) 단거리 대기확산 시나리오, 2) 중거리 대기확산 시나리오, 3) 대응행위에 따른 피폭저감 시나리오를 설계하였다. 서울 도심지역이 대응행위에 따른 피폭저감 시나리오 대상지역으로 선정되었으며 한국원자력연구원에서 개발한 도시오염평가모델 METRO-K [1]로 평가한 결과가 도시오염평가분과에 제출되었다. 본 논문에서는 대응행위에 따른 피폭저감 시나리오에 대해 METRO-K를 사용하여 도시환경을 구성하고 있는 각기 다른 오염표면의 중요도를 분석하였다.

2. 본론

Fig. 1은 EMRAS-2의 도시오염평가분과에서 대응행위에 따른 피폭저감 비교를 위해 선정된 서울의 한 중심가를 보여준다. 평가를 위해 동 지역의 지형, 기후, 생활, 건물특성 등에 대한 자료를 문서화하여 모델평가 참여자들에게 제공하였으며, 또한 보다 상세자료가 필요한 참여자들을 위해 건물의 좌표 및 속성 (건물높이, 재질 등), 환경 (건물, 도로, 공원 등)에 대한 속성자료를 GIS로 구현하여 제공하였다. 두 가지 핵종(Co-60, Pu-239), 사건발생 당시의 3가지 기상조건 (비가 없는 경우, 적은 비와 많은 비가 있는 경우), 2가지 침적시점 (6월 1일, 1월 1일), 6개 평가지점 (상업지역 Building 1의 4개 지점, 공원지역에 대해 2개 지점), 9가지의 대응행위에 대해 각기 다르게 조합된 시나리오에 대한 평가가 수행되었다. 사건이 발생한 당일 공기중 농도는 두 핵종에 대해 각각 1 MBq day/m^{3}을 가정하였다.



(a) Business area

(b) Park area

Fig. 1. Urban area designed to compare the countermeasure effectiveness

Fig. 2는 Co-60에 대해 METRO-K를 사용하여 사건이 발생한 6월 1일 비가 없고 아무런 대응행위도 취하지 않았을 경우 6개 지점 (#1, #2, #3, #4는 Fig. 1에서 상업지역에 위치한 Building 1의 1층, 10층 24층, 외부를 나타내며, #5와 #6는 Fig. 1에서 각각 공원지역의 오솔길과 주차장을 나타냄)에 대한 외부피폭선량률을 보여준다. 상업지역보다 공원지역이 상대적으로 높은 선량률을 나타냈으며, 같은 건물이라 하더라도 위치에 따라 선량률은 큰 차이를 나타냈다. Fig. 3은 동일 조건에

서 아무런 대응행위도 취하지 않은 경우 Building 1의 1층 실내의 선량률에 대한 오염표면의 기여를 보여준다. 사건이 발생한 직 후 (Year 0)에는 도로변 가로수에 의한 영향이 가장 높았으나 시간이 경과함에 따라 도로와 건물외벽의 중요도가 증가하였다. Fig. 4는 동일한 조건에서 사건이 발생한 직 후 Building 1의 각기 다른 위치에서 선량률에 대한 각기 다른 오염표면의 기여를 보여준다. 1층, 10층, 24층, 외부지점에서 선량률에 대한 기여는 각각 가로수, 건물외벽, 지붕, 가로수의 영향이 가장 높게 나타났다. Fig. 5는 사건발생 당일에 비가 많이 온 경우 (20mm/day) 위치별 선량률에 대한 오염표면의 기여를 보여 주는데 비가 없는 경우 (Fig. 4)와 비교하여 표면의 중요도는 뚜렷한 차이를 보였다.

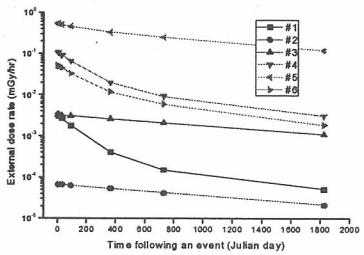


Fig. 2. Dose rate for the different locations

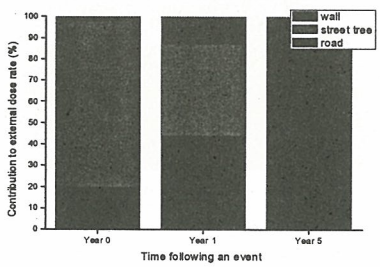


Fig. 3. Contribution of surface in the ground floor of Building 1

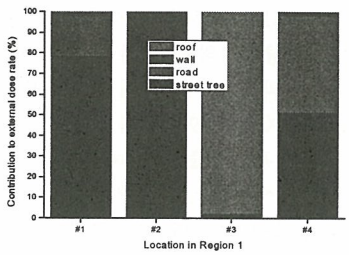


Fig. 4. Contribution of surface in case of no rain

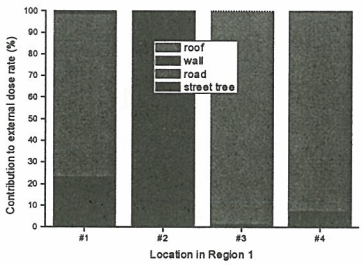


Fig. 5. Contribution of surface in case of heavy rain

3. 결론

도시환경은 다양한 표면으로 구성되어 있으며, 이들에 대한 방사성핵종의 거동도 뚜렷이 다른 차이를 나타냈다. 따라서 만일 원전이나 방사능분산장치 (RDD)의 폭발과 같은 사건이 발생하여 도시지역을 오염시킬 경우 방사능피폭 뿐 아니라 경제적·사회적 피해를 최소화하기 위해서는 해당 환경에서 오염표면의 특성을 고려하여 적절한 대응행위를 선택하는 것이 중요하다. EMRAS-2는 변화하는 방사선환경방호에 맞추어 구성된 IAEA 주관 국제비교프로그램이다. 도시오염평가분과의 대응행위 저감효과 시나리오에 국내모델이 참여하고 있으며 세계 각국의 여러 모델로 계산한 결과와 비교·논의 중에 있다. 동 프로그램은 2012년 초에 완료되며 상세 비교결과는 그 이후 IAEA 기술보고서로 발간될 예정이다. 또한 현재 후속 프로그램을 준비 중에 있으며 각 국의 다양한 제안을 기다리고 있는 중이다.

4. 감사의 글

본 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국과학재단의 원자력기술개발사업으로 지원 받았습니다 (연구과제 관리코드 : M20702010001-08M0201-00110).

5. 참고문헌

[1] 황원태 등, 대한방사선방어학회지, 30권 3호, pp. 99-105, 2005

사용후핵연료 수송방안분석 프로그램 DB 설계

이상헌, 이수홍, 한병섭, 성기열*, 윤정현*
(주)에네시스, 대전광역시 유성구 구암동 328
*한국방사성폐기물관리공단, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
shlee@enesys.co.kr

1. 서론

현재 국내 원전에서 발생되는 사용후핵연료는 원전부지 내 임시저장시설에 저장관리 되고 있다.

사용후핵연료 수송방안 분석을 위한 물량산정, GIS를 연결한 수송루트 및 수송 Cycle 분석, 위험도 분석, 비용평가등은 RISKIND, RADTRAN, INTERTRAN, CALVIN 및 HIGHWAY과 같은 개별 프로그램이 있으나, 통합된 상용 프로그램은 국내외적으로 없는 실정이다.

본 논문에서는 수송 시나리오를 도출하고 비용평가를 수행 할 수 있는 수송방안분석 프로그램 DB에 대해 설명하고자 한다.

2. 본론

사용후핵연료 수송방안분석 프로그램에 적용되는 DB는 국내,외에서 개발 또는 사용가능한 항목에 대해 고려하였다.

2.1 수송방안분석 프로그램 구성

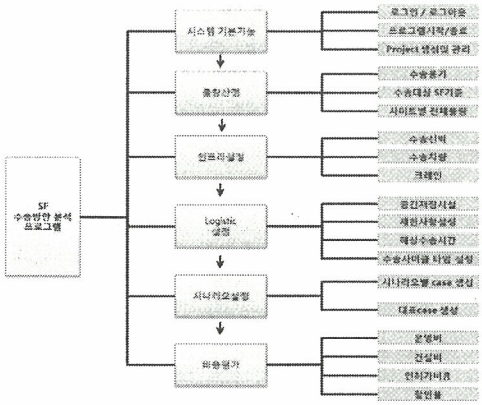


Fig. 1. 수송방안 분석 프로그램 구성

작성된 DB는 물량설정, 인프라, 프로세스, 시스템 등을 구분하여 구성요소인자들을 분류하고, 영향인자에 의한 결정사항을 선정하여 시나리오를 도출해야한다.

2.2 수송방안분석 프로그램 DB 구성

수송 시나리오를 기술성 및 경제성을 종합적으로 분석한 후 적용 가능 시나리오별 수송 시스템을 구축하였다. 수송시나리오를 도출하기 위해서는 각 항목의 DB를 작성해야 하며, 작성된 DB는 프로그램으로 불러 올 수 있다.

2.2.1 수송용기

현재 국내, 외에서 개발 또는 상용화 되어 있는 수송용기를 DB로 작성하였다. DB 항목으로는 수송용기 명칭, 대상연료, 수송용량, 최대농축도, 최대연소도, 냉각기간, 붕괴열을 나타내었다. 현재 프로그램 DB화 되어있는 사용후핵연료의 저장량 정보는 한국수력원자력의 2008년 12월말 기준 자료이다.

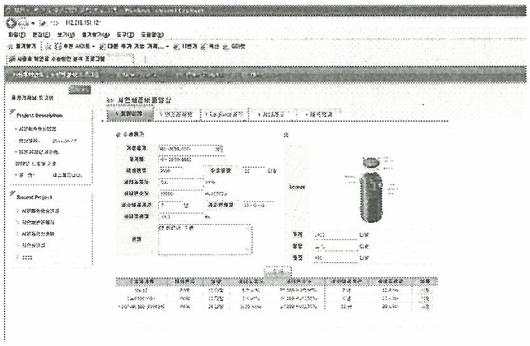


Fig. 2. 수송용기 DB

2.2.2 기준선박

사용후핵연료 수송을위한 수송선박의 DB는 수송선박 명칭, 선박 등급, 승무원 수, 최대수송용기 적재량, 연속운항거리, 항해속도, 적재 및 하역 방식 등 13가지 항목으로 나타내었다. 이러한 항목은 시나리오 스케줄 생성 및 비용평가 부분과 연계되어 있다.

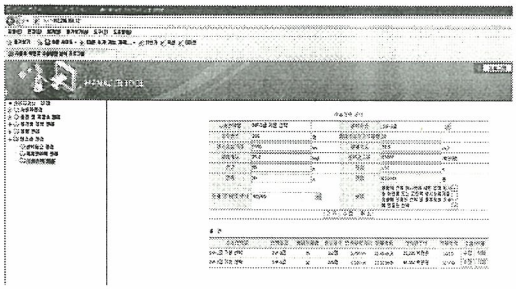


Fig. 3. 수송선박 DB

2.2.3 적재 및 하역 방식

적재 및 하역방식은 RO/RO 방식과 LO/LO방식으로 입력되어 있다. 방식에 따른 별도의 크레인 수량 유무가 결정되며, 이는 비용평가 항목에서도 하나의 변수가 된다.

2.2.4 저장시설

저장시설의 위치 선정은 AR방식과 AFR방식이 있다. 현재 지정된 장소가 없기 때문에 본 프로그램에서는 사용자가 직접 지정하여 DB내에 추가 할 수 있도록 되어 있다. 저장시설 위치의 경우는 GIS 시스템과 연계되어 나타나며, 이는 사용후핵연료 수송을 위한 수송거리를 산출해 내며, 수송시나리오 도출시 영향인자가 된다.

2.2.5 제한사항 설정

제한사항 설정에서는 사용후핵연료 수송을 위한 원전의 정보 및 작업순서, 연간작업일 수, 선하역시간 등을 입력하게 된다. 제한사항 설정 DB는 시나리오 생성 시 여러 가지 변수인자가 된다.

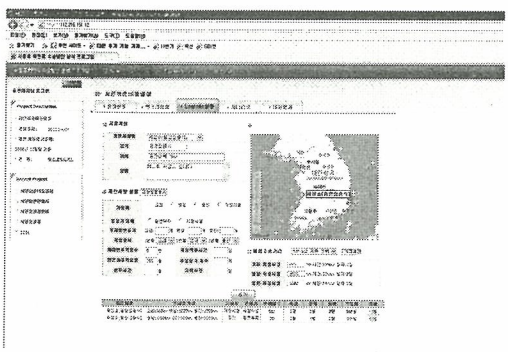


Fig. 4. 저장시설 DB 및 제한사항설정

2.2.6 비용평가

비용평가 항목은 수송용기, 수송선박, 관련시설 및 장비, 인건비, 운영비, 유지보수비, 사용자정의로 나뉘어져 있다. 항목별 입력 값에 따른 비용평가 결과를 나타낼 수 있다.

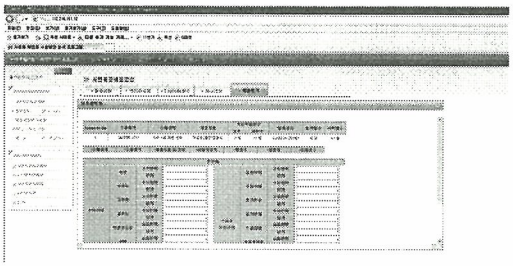


Fig. 5. 비용평가 DB(직접입력)

3. 결론

과거 이 프로그램이 개발되기 전까지는 사용후핵연료를 수송 할 경우 몇 가지 수치변수의 최적 해를 구하는데 적용할 수 있을 뿐, 풀어내야 할 최적화 변수가 매우 많은 문제에 대한 다른 방법론이 요구되었다. 이 프로그램은 각 구성요소를 수행하기 위한 알고리즘과 구성요소를 통합하는 과정을 수행하였으며, 경제성 및 기술성 등을 종합적으로 분석한 후 시나리오별 수송시스템을 구축하였다. 최적의 사용후핵연료 수송시나리오를 생성하기 위해서는 적합한 DB 구축해야 한다.

4. 감사의 글

본 연구는 지식경제부에서 시행한 방사성폐기물 관리 기술개발사업의 지원을 받아 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

5. 참고문헌

[1] KRMC,"수송 시나리오 설정 보고서".
[2] KAERI, "사용후핵연료 소외수송 방안분석 용역 최종보고서", 2008.
[3] 원자력환경관리센터, "방사성폐기물 수송시스템 방안분석 최종보고서".
[4] 송종순외,"사용후연료 비순환주기 시나리오 개발 최종보고서" 2008.
[5] 최희주외, "PWR 사용후핵연료 운반 물량분석 프로그램 개발" 2008.
[6] "사용후핵연료 수송물량 및 수송비용 분석 프로그램 개발", 한국원자력연구원, 2008.

방사성물질로 인한 상수 오염 유효선량평가

정효준, 황원태, 김은한, 한문희
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
jeong1208@kaeri.re.kr

1. 서론

미국의 9/11사태 이후 국제사회는 테러에 대한 우려와 관심을 증대시켜 왔으며 방사성 핵종을 이용한 테러도 주요 관심 대상이 되었다. 사회혼란을 극대화하기 위해 인구 밀집 지역에 위치한 다중 이용시설이나 국가 주요시설은 방사성 물질을 이용한 테러의 대상이 될 수 있다. 그 형태는 폭발로 인한 공기오염과 음용수와 관련된 시설물에 방사성 핵종을 투여함으로 발생하는 식수오염으로 구분될 수 있다. 본 연구에서는 1987년 브라질 Goiania에서 분실한 Cs-137 50 TBq이 상수원으로 이용되는 하천에 투입되었을 경우를 가정하여 유효선량을 평가하였다.

2. 본론

지표수에서 방사성물질의 거동은 식1과 같이 3차원 이류확산방정식으로 나타낼 수 있다[1, 2].

$$\frac{\partial C}{\partial t}+U\frac{\partial C}{\partial x}+V\frac{\partial C}{\partial y}+(W-W_s)\frac{\partial C}{\partial z} \cdots\cdots (1)$$
$$=\frac{\partial}{\partial x}\left(\varepsilon_x\frac{\partial C}{\partial x}\right)+\frac{\partial}{\partial y}\left(\varepsilon_y\frac{\partial C}{\partial y}\right)+\frac{\partial}{\partial z}\left(\varepsilon_z\frac{\partial C}{\partial z}\right)-\lambda C$$

C : 방사성핵종 농도(Bq m^{-3})
T : 시간 (s)
U,V,W : x,y,z 방향의 유속(ms^{-1})
W_s : 방사성핵종 침강 속도(ms^{-1})
x, y, z: 하천의 길이, 수평, 수직 방향 거리(m)
ε_x, ε_y, ε_z : x, y, z 방향의 확산계수(m^2s^{-1})
λ: 붕괴상수(s^{-1})

방사성물질의 투입이 순간적으로 이루어지고 수심방향으로 완전혼합을 가정하면 식1은 식2와 같아지며 해석해는 식3과 같다.

$$\frac{\partial C}{\partial t}+U\frac{\partial C}{\partial x}+V\frac{\partial C}{\partial y}=\varepsilon_x\frac{\partial^2 C}{\partial x^2}+\varepsilon_y\frac{\partial^2 C}{\partial y^2}-\lambda C \cdot\cdot (2)$$

$$C(x,y,t)=\frac{W}{4\pi Bt\sqrt{\varepsilon_x\varepsilon_y}} \cdot \cdots\cdots (3)$$
$$\exp\left[-\left\{\frac{(x-Ut)^2}{4\varepsilon_x t}+\frac{y^2}{4\varepsilon_y t}\right\}-\lambda t\right]$$

W는 하천에 투입된 방사성 핵종의 총량을 나타내며 B는 하폭을 의미한다. 본 연구에서는 상수원수 취수지점 상류 1.5km 지점에서 Cs-137의 투입이 일어나고 하폭은 300m, 유속은 0.8m/sec로 가정하여 농도를 계산하였다. 하천의 너비방향 중 가장 높은 값이 발생하는 지점에서 취수하는 것을 가정하여 선량을 계산하였다. 수돗물 음용으로 인한 유효선량은 식4와 같다.

$$Dose_{in}[mSv]=DCF_{in}[mSvBq^{-1}] \cdots\cdots (4)$$
$$\cdot\ Conc_w[Bq/L]\cdot DW[L/day]\cdot ED[day]$$

$Dose_{in}$: 수돗물 음용으로 인한 유효선량
DCF_{in} : 선량계수(1.30E-5 mSv/Bq, ICRP72)
$Conc_w$: 수중 Cs-137의 농도
DW : 수돗물 음용량(1.1 L/day)
ED : 피폭기간

수중 Cs-137농도는 최고값이 나타나는 시각을 중심으로 10분 동안의 평균값을 사용하였다. 취수된 물속에 포함된 Cs-137이 상수처리 과정에서 제거되는 양은 무시하였으며, 3일간에 걸쳐 각 가정으로 급수되는 것으로 가정하였다. 수평확산계수와 수직확산계수는 메타분석을 이용해 추정하였다. 최근 5년간 발표된 논문에 수록된 수평확산계수는 최저 $3m^2/s$에서 $1500m^2/s$까지 그 범위가 매우 넓게 나타났으며 대략적으로 삼각형 분포를 나타냈다. 최빈값을 중심으로 90퍼센트 구간은 $50m^2/s$에서 $600m^2/s$이었다. 수직확산계수는 $0.0045m^2/s$에서 $1.1m^2/s$로 값은 작으나 변동폭은 수평확산계수에 비해 매우 큰 것으로 나타났다. 그림 1은 시

간의 경과에 따른 Cs-137의 농도변화의 예를 나타낸 것으로 투하지점을 따라 하천길이 방향으로 Cs-137의 플룸이 희석되면서 확산되는 것을 알 수 있다. 그림 2는 수평확산계수의 변화에 따른 취수지점의 Cs-137농도를 나타낸 것이다. 수평확산계수가 클수록 최고농도 도달시간은 짧아지며, 수평확산계수가 작을수록 최고농도 도달시간은 길어지며 최고농도는 높아짐을 확인할 수 있다.

수평확산계수와 수돗물 음용량은 삼각형분포, 수직확산계수는 로그노말분포로 가정하고, 취수지점에서 시간의 경과에 따른 Cs-137의 농도 중 최고값을 중앙으로 하는 10분 동안의 평균값을 Cs-137의 수중 농도로 사용하여 선량에 대한 몬테카를로 시뮬레이션을 수행하였다. Cs-137로 오염된 수돗물로 인한 유효선량은 그림 3에 빈도분포로 나타낸 바와 같이 평균값은 0.0083 mSv, 95% Certainty range는 0.0039 mSv에서 0.016 mSv로 나타났다. 평균값이 최빈값보다 커 왼쪽으로 치우친 분포를 나타내고 있으며 유효선량이 높아질수록 발생확률은 줄어든다.

3. 결론

본 연구에서는 방사성 핵종으로 인한 상수원 오염을 가정하여 선량을 계산하였다. 다소 보수적으로 평가하기 위해 최고농도 지점에서의 취수와 최고농도 근처의 수돗물 음용을 가정하였다. 향후 일어날 지도 모를 만일의 사고에 대비하여 사고시나리오의 타당성, 방사선량 계산에 필요한 변수분포의 적정성 및 상수원수 공급하천 특성 등에 대한 다각적 인 접근이 필요할 것으로 판단된다.

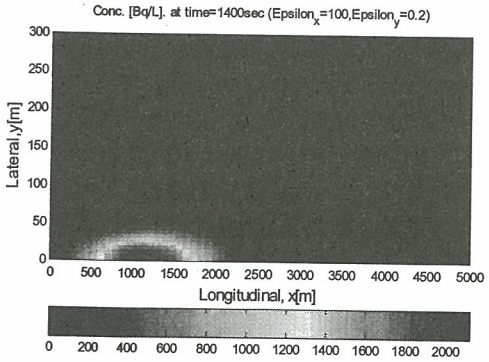


Fig. 1. Concentration of Cs-137 in water by the elapsed time and distance

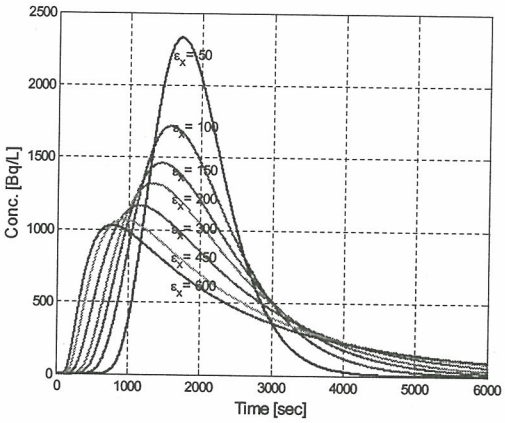


Fig. 2. Concentration of Cs-137 in water by lateral dispersion coefficients at the intake point

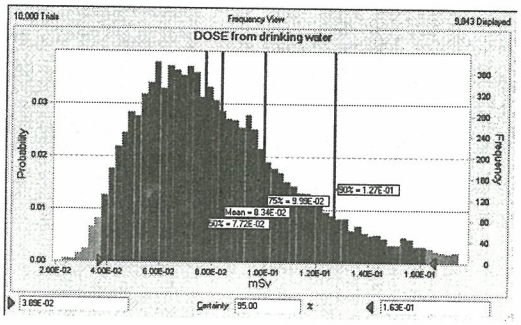


Fig. 3. Frequency distribution for the radiation dose from drinking water

4. 감사의 글

본 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국과학재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다 (연구과제 관리코드 : M20702010001-08M0201-00110).

5. 참고문헌

[1] Chapra, S. C., Surface water-quality modelong, Waveland Pr Inc., 2008.

[2] Onishi, Y., Contaminant transport models in surface waters, Applied Sciences 274, 313-341, 1994.

핵연료 크러드 현장분석 기술개발을 위한 Ni-Cr-Fe 혼합산화물 제조 및 화학 특성 분석

정상혁, 연제원, 정의창, 윤명희, 강용*, 송규석
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
*충남대학교, 대전광역시 유성구 대학로 79
yeonysy@kaeri.re.kr

1. 서론

국내의 원자력발전소는 원전의 경제성 향상을 위하여 장주기 고연소 운전을 채택하고 있다. 그러나 장주기 운전으로 인하여 핵연료 표면 또는 증기발생기에 침적되는 부식생성물이 증가되는 현상이 일부 관찰되고 있다. 이러한 부식생성물은 CRUD (Chalk River Unidentified Deposits)라고 명명되어지며, 계통내의 방사선량률의 증가, 축방향 출력 분포 이상(AOA)의 발생, 방사성폐기물 증가의 원인이 될 수 있다[1].

원전 냉각재계통의 크러드 저감화를 위하여 핵연료 피복재 개발, 냉각수의 수소주입, 고온 pH 운전, EBA (enriched boric acid) 사용, 수화학 조절 등[1]과 같은 방안이 개발되고 있다. 이와 함께 크러드 성분에 대한 정보는 크러드 발생원인 규명에 대하여 중요한 정보를 제공하기 때문에 크러드 저감화를 위한 중요한 기초자료로 활용되어질 수 있다. 그러나 현재 크러드 성분분석은 크러드 시료를 원전 현장에서 채취하여 분석시설이 있는 장소로 이송한 후, 방사화학 실험실에서 용해하여 분석하는 절차로 수행된다. 이러한 방법은 방사성 물질인 크러드의 채취 및 이송에 높은 비용의 발생한다. 이러한 배경에서 레이저기술을 이용하여 크러드를 현장에서 분석할 수 있는 기술을 개발하게 되었다.

레이저 유도 플라즈마 분광법(laser induced breakdown spectroscopy)[2]은 레이저 빔을 시료에 직접 조사하여 발생하는 플라즈마 방출 분광선을 검출하는 방법으로 현장에서 시료의 전처리 과정없이 수행할 수 있는 신속한 방법을 제공한다. 그러나 이 방법을 이용하여 정량분석을 수행하기 위해서는 분석에 사용할 수 있는 방출 분광선을 선택하고 다양한 조성에서 분석하려는 성분에 대한 분광선의 세기 (intensity)에 대한 데이터베이스를 구축하여야 하므로, 다양한 조성의 크러드 시료가 요구된다.

본 연구에서는 레이저 유도 플라즈마 분광법을 이용한 크러드의 분석 가능성을 확인하기 위하여 크러드의 구성원소인 Fe, Ni, Cr로 구성되어있는 모사크러드를 제조하고 그 화학적 특성을 전자현미분석기(EPMA), X선 회절분석기(XRD), 적외선 흡수분광법(FT-IR)을 이용하여 조사하였다.

2. 실험

크롬이 함유된 크러드를 제조하기 위하여 2M $Ni(NO_3)_2$와 2M $Fe(NO_3)_3$ 수용액을 1M LiOH 수용액으로 중화시켜 $Ni(OH)_2$, $Fe(OH)_3$를 각각 제조하였다. 제조한 $Ni(OH)_2$와 $Fe(OH)_3$을 이용하여 니켈/철의 질량비가 1이 되도록 혼합한 후 다양한 양의 산화크롬 [$Cr_2O_3 \cdot nH_2O$] 분말 (Cr=0, 1, 3, 5, 10 wt.%)을 각각 첨가하였다. 그 후, 증류수에 혼합·분산 후, 50°C에서 6 시간 건조시켜 니켈-크롬-철 혼합산화물을 제조하였다. 일정량의 수분을 함유하고 있는 혼합산화물 분말 약 0.1 g을 5.5 kg/cm^{2}의 압력으로 펠렛으로 만든 후, 석영 튜브에 넣고 진공 밀봉하였다. 밀봉된 석영 튜브 내 혼합산화물을 다양한 온도에서 8 시간 열처리하여 니켈-크롬-철로 구성되어있는 모사 크러드를 제조하였다.

표 1은 500℃에서 8 시간 열처리하여 얻어진 니켈-크롬-철 혼합산화물을 표면분석 장치인 전자현미분석기(EPMA)를 이용하여 성분분석을 수행한 결과이다. 니켈-크롬-철 혼합산화물 (Ni/Fe=1 wt. ratio)에 함유되어 있는 크롬의 농도(wt.%)는 0, 0.72, 3.45, 5.15, 9.07로 제조 시 조절한 크롬 농도와 대체로 일치함을 확인하였다.

Table 1. Cr contents of Ni-Cr-Fe mixed oxides after heat treatments. Heat treatment was carried out at 500℃ for 8 h

Mixing ratio of Cr in mixed oxides (wt.%)	Cr content in mixed oxides by measured EPMA (wt.%)
0	0
1	0.72
3	3.45
5	5.15
10	9.07

3. 결과

3.1 혼합산화물의 결정구조 특성

니켈-크롬-철 혼합산화물의 열처리 온도변화에 따른 결정구조의 변화를 조사하기 위하여, 크롬의 농도 10 wt.%가 포함된 니켈/철 (Ni/Fe=1, 질량비) 혼합산화물을 여러 온도에서 8 시간 열처리 한 후 X-선 회절 패턴을 측정하였다. 그림 1에서 보여주다시피, 혼합산화물은 200℃ 이상에서 $NiFe_2O_4$, NiO 결정구조에 해당하는 피크가 관찰되었으며 400℃ 이상에서 $NiCr_2O_4$, $NiFe_2O_4$, NiO 결정구조에 해당하는 피크가 관찰되었다.

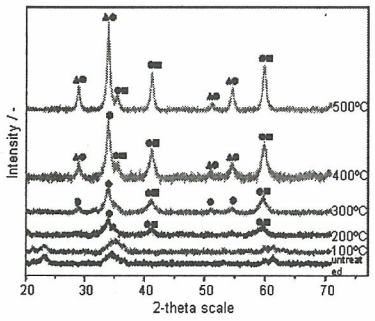


Fig. 1. X-ray diffraction patterns of Ni-Cr-Fe mixed oxides with 10 wt.% Cr. NiO(■), $NiFe_2O_4$(●), $NiCr_2O_4$(▲)

3.2 혼합산화물의 화학결합 특성

니켈-크롬-철 혼합산화물의 열처리 온도변화에 따른 화학결합 특성을 조사하기 위하여, 크롬의 농도 10 wt.%가 포함된 니켈/철 (Ni/Fe=1, 질량비) 혼합산화물을 여러 온도에서 8 시간 열처리 한 후, 적외선 흡수 스펙트럼을 측정하였다. 그림 2에서, 혼합산화물은 100℃ 이상에서 $NiFe_2O_4$의 흡수대 (595 cm^{-1})[3]가 관찰되었으며 온도상승에 따라 흡수크기가 증가하였다. $NiCr_2O_4$의 흡수대(786 cm^{-1})[4]는 100℃ 이상에서 미미하게 관찰할 수 있으나 400℃ 이상에서 뚜렷하게 나타났다. $NiCrO_4$의 적외선 흡수특성이 뚜렷하게 관찰되는 온도 400℃는, 그림 1에서 $NiCr_2O_4$의 결정구조가 관찰되는 온도 400℃와 유사하였다.

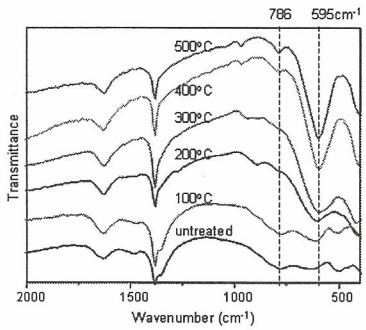


Fig. 2. FT-IR spectra of Ni-Cr-Fe mixed oxides with 10 wt.%. Cr

4. 결론

레이저 유도 플라즈마 분광법을 이용한 크러드 분석 가능성을 확인하기 위하여 Ni, Cr, Fe로 구성되어있는 혼합산화물을 제조한 후 그 화학특성을 조사하였다. 열처리 후, Ni-Cr-Fe 혼합산화물의 결정구조는 $NiFe_2O_4$와 $NiCr_2O_4$로 각각 관찰되었으며, $NiCrO_4$의 적외선 흡수특성이 뚜렷하게 관찰되는 온도와 $NiCr_2O_4$의 결정구조가 관찰되는 온도는 400℃로 유사하였다.

5. 감사의 글

이 논문은 지식경제부의 재원으로 시행하는 한국에너지기술평가원의 에너지기술개발사업과 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로부터 지원받았습니다.

6. 참고문헌

[1] J. -W. Yeon et al., Journal of Nuclear Materials, 354, 163-170, 2006.

[2] E. -C. Jung et al., KAERI/RR-3112/2009.

[3] J. -W. Yeon et al., Solid State Phenomena, 124-126, 1565-1568, 2007.

[4] F. M. Labajos, V. Rives, Inorganic Chemistry, 35, 5313-5318, 1996.

아스팔트 표면에서의 공간감마선량률 이상치 측정 및 인공핵종 검출

정진욱, 국성도, 임준, 김우곤
경주시월성원전·방폐장환경감시센터, 경북 경주시 양북면 와읍리 394
forever0224@wsnesc.or.kr

1. 서론

경주시월성원전·방폐장환경감시센터(이하 감시센터)에서는 이동형 방사선량률 측정차량을 이용해 주기적으로 월성원전 주변 및 경주시내의 공간감마 선량률을 모니터링하고 있다. 최근에 감시센터에서는 월성원전 주변지역의 공간감마 선량률을 측정하던 중 아스팔트 표면에서 이상치를 측정한 바 있다.

본 논문은 공간감마 선량률을 모니터링 하는 과정에서 측정된 이상치의 공간감마 선량의 원인 및 조치결과를 소개하고 관련된 문제점들을 제시해보고자 한다.

2. 본론

2.1 이동형 방사선량률 측정시스템 및 운영현황

그림 1의 이동형 방사선량률 측정 차량(이하 선량측정 차량)은 지리정보시스템을 기반으로 CDMA통신과 위성위치 추적시스템을 이용하여 차량 이동 중에 실시간으로 공간 방사선량률을 측정하고 동시에 감시센터에 위치한 메인 서버에 전송하는 장치이다. 검출기는 3×3인치 NaI(TI) Scinti-llator이며 측정범위는 1μR/h~3mR/h이다.

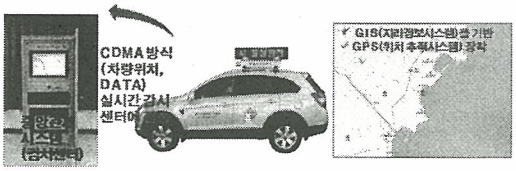


Fig. 1. 이동형방사선량율 측정 차량

감시센터는 선량측정 차량을 이용해 월성원전주변지역과 경주시내권으로 구분하여 주 3회 이상 환경방사선을 모니터링하고 있다.

2.2 이상치 발견 및 조치사항

지난 2월 24(목)에 국도 31호선 경주시 감포읍 초입 도로에서 평상변동 범위(4~13μR/h)를 상회하는 22μR/h의 선량률이 선량 측정차량에 의해 감지되었다. 선량 이상치를 감지한 후 감시센터는 휴대용 선량측정기를 이용해 아스팔트 표면에 대한 정밀 측정과 시료채취 및 감마핵종 분석을 시행하였다. 그 결과 아스팔트 표면에서 최대 230μR/h의 선량률이 측정되었으며 이상치 발견 위치에서 단일핵종 Cs -137이 8,440 Bq/kg 농도로 검출되었다. 그림 2는 이상치 측정위치를 나타낸 것으로써 폭 1.5m, 길이 414m 갓길도로 전구간이 불 균질하게 오염된 것으로 판단된다.

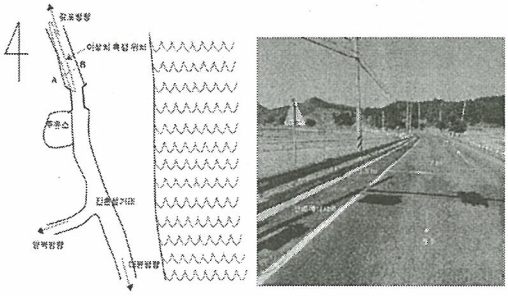


Fig. 2. 공간감마선량율 이상치 발견 위치

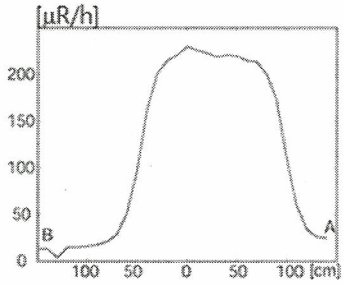


Fig. 3. 단면 B-A에서의 선량분포

그림 3은 아스팔트 표면에서의 최대선량지점을 중심으로 그림 2의 단면 B에서 A까지 10㎝ 간격으로 측정한 선량분포를 나타낸 것이다.

감시센터는 해당지점 외에 비슷한 시기에 포장된 아스팔트 2곳(포항 송도동, 포항 유강리)에 대해서도 추가적인 측정 및 분석을 시행하여 동일한 이상치가 발견됨을 확인하였다. 표 1.은 이상치가 검출된 3개 지점의 아스팔트에 대해 감시센터에서 측정한 결과를 나타낸 것이다. 표 1.을 보

면 일반 환경에서 측정되는 자연선량율과 세슘농도에 비해 상당히 높음을 알 수 있다. 이러한 명확한 결과를 통해 감시센터는 원인파악과 영향평가 및 해당 아스팔트에 대한 조치를 위해 관계기관(교과부, 경주시 및 포항시)에 통보한 후 대책을 논의 하였다.

Table 1. 이상치 아스팔트 측정결과

지점	선량율 (μSv/h)	세슘농도 (Bq/g)
경주 감포	0.60~2.30	8.44
포항 송도동	0.80~1.60	-
포항 유강리	0.80~1.00	0.37

2.3 원인파악 및 영향평가

관계기관 회의를 통해 해당 아스팔트에 대해 방사능 오염의 원인이 될 수 있는 도로포장 시공업체, 정유회사, 골재공급업체의 방사선원 보유량, 방사성물질 유출여부 등을 조사한 결과 아스팔트 포장 시 과거에 재활용된 폐아스콘의 일부 성분이 오염의 원인이 된 것으로 추정되었다. 또한 해당 아스팔트에 대한 방사선 영향은 경주 감포 도로의 경우 지역주민이 해당 도로를 1일 2회 365일을 통과하는 기준으로 연간 선량 한도 1mSv의 7.1% 수준인 0.071 mSv/y로, 포항 송도동의 경우 3.4% 수준인 0.034 mSv/y로 미미한 것으로 평가되었다.

2.4 향후 조치사항

세슘이 검출된 3개 지역 아스팔트 처리에 대해 교과부는 Cs-137의 총 방사능이 10,000Bq을 초과하고 농도가 10Bq/g 이상일 경우 방사성폐기물에 해당되어 폐기의 대상이 된다고 판단하였다[1]. 이러한 판단기준에 따라 3개 도로에서 검출된 세슘의 평균 방사능 농도가 3.31~6.93Bq/g 으로써 원자력법상 관리대상 기준(10Bq/g) 이하 이므로 자체처분이 가능하며 해당 지자체의 판단에 따라 관리할 수 있다고 보았다. 다만 경주 감포 도로의 경우 일부 구간(최대 12.1Bq/g)이 관리대상에 포함되므로 재포장이 바람직하다는 권고를 하였다. 이에 따라 경주시는 해당 아스팔트에 대해 전면 제거 후 재포장, 포항시는 그대로 유지하는 것으로 결정하였다[2].

2.5 주민설명회

감시센터는 해당지점(감포)의 주변지역 주민들에게 발견경위, 오염원인 및 조치결과를 설명하기 위해 주민설명회를 개최하였다. 이 자리에서 지역주민들은 해당핵종에 의한 영향평가 결과, 미미한 수준임에도 불구하고 관리대상 기준에 포함되므로 제거를 해야 한다는 사실에 혼란스러워 하였다. 즉 폐기를 할 정도이면 위험하다는 것인데 그 영향이 미미하다는 발표 결과를 이해하지 못하겠다는 것이다. 또한 관리대상 기준(10Bq/g)이하이므로 오염된 아스팔트를 제거하지 않을 경우 발전소에서 방출된 핵종 또한 이 기준에 미달하면 무방하다는 것인지 이의를 제기하기도 하였다. 이러한 결과는 일반 환경에서 방사능 오염이 발견될 경우 일반인들에게 명확히 제시할 수 있는 폐기기준 및 관련기준의 부재 때문인 것으로 보인다. 해당 아스팔트를 폐기할 경우 방사성폐기물로 볼 것인지 아니면 일반폐기물로 볼 것인지에 대한 모호성 및 자체처분 할 경우 발생자의 모호성 등의 문제점이 있다[3].

3. 결론

본 논문은 아스팔트에서 인공핵종이 발견된 특이한 경우를 설명하고 그 처리과정에 있어 문제점들을 제시하였다. 원자력이용시설 주변 환경시료의 경우 방사능 분석결과가 최근 3년간 평균치의 5배를 초과한 경우 및 최소검출가능농도 미만으로 계측된 시료에서 인공핵종이 검출될 경우 교과부에 보고하고 조치하도록 되어있다[4]. 아스팔트, 콘크리트 및 철제구조물 등 일반 환경에서 방사능 오염이 확인된 경우 현재 관련규정이 없어 일반인 및 환경방사능 분석기관에게 혼란을 일으킬 가능성이 있으며 원전 사업자 에게 차별의 가능성이 있다. 따라서 일반 환경에서 방사능 오염 시 원인규명에 대한 규정, 오염 및 폐기처리에 대한 규정의 법제화가 필요해 보인다.

4. 참고문헌

[1] 방사선방호 등에 관한 기준 고시, 교과부 고시 2009-37호, 2009.

[2] 월성 및 포항지역 도로의 선량률 이상치 발견 관련 현장조사 결과, 교과부, 2011.03.30.

[3] 방사성폐기물의 자체처분에 관한 규정고시, 교과부 고시, 2009.-37호, 2009.

[4] 원자력이용시설 주변의 방사선환경조사 및 방사선환경영향평가에 관한 고시, 교과부 고시, 2010-32호, 2010.

True Flow Velocity Identification in Sampling Airborne Radioactive Materials from the Stacks and Ducts of Nuclear Facilities

Sunhaeng Kang, Charnyoun Park
Korea Filter Testing Laboratory, Ltd, #1110-23 Oryong-dong, Buk-gu, Kwangju City, 500-480 Seoul, Korea
kftl@kftl.re.kr

1. Introduction

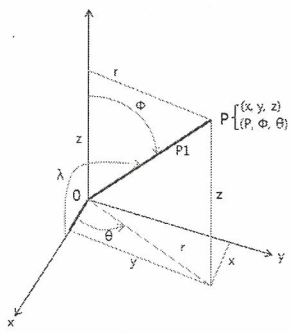
In the evaluation of the existing air-sampling system, angular or cyclonic flow, air velocity profile, gas concentration profile, and particle concentration profile are key components in evaluating the regulatory compliance and system control. If existing air-sampling systems are not designed to the performance requirements and recommendations of ISO 2889:2010(E), an evaluation of the performance of the system is advised. If deficiencies are discovered, a determination of whether or not a retrofit is needed and practicable is recommended.

Among the above profiles the velocity profile will be a focus of this work. A usual method to determining the velocity profile's adequacy is to calculate the coefficient of variance (COV) of the measured velocities along the measurement grid. The grid is a selection of points across a section based on the guidance in ISO 10780 for the centre 2/3 of the area of the stack or duct. Additional points or area may be added to adequately cover the region. The COV should not exceed 20 % over the centre region of the stack that encompasses at least 2/3 of the stack cross-sectional area.

2. Theory

2.1 Uniform Air Velocity

It is important that the gas momentum across the stack cross section where the sample is extracted be well mixed or uniform. Consequently, the velocity is measured at several points in the stack at the elevation of the sampling nozzle. The uniformity is expressed as the variability of the measurements about the mean. This is expressed using the relative coefficient of variance (COV), which is the standard deviation divided by the mean and expressed as a percentage. The lower the COV value, the more uniform the velocity. The acceptance criterion is that the COV of the air velocity must be less than 20% across the center two-thirds of the area of the stack.



2.2 True Air Velocity

In a Cartesian coordinate the flow velocity measured P can be designated as a vector

(x, y, z)

from the origin of a grid in the duct as shown in the left figure. The x-axis is the main flow direction. In a spherical coordinate, the point vector P becomes

$$(P1, \phi, \theta)$$

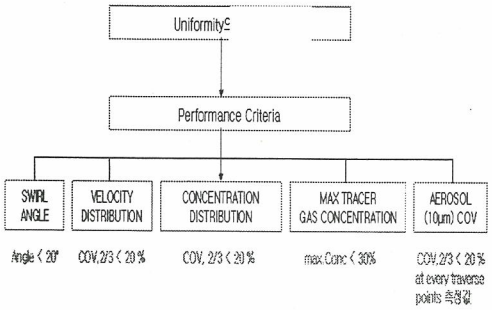
Since the air velocity measured in a duck is different from P, we need to convert it into P the true velocity. The measured velocity is a cosine of the true velocity. Using the scalar product of two vectors it is shown to be

$$P = \frac{x}{\tan\lambda}$$

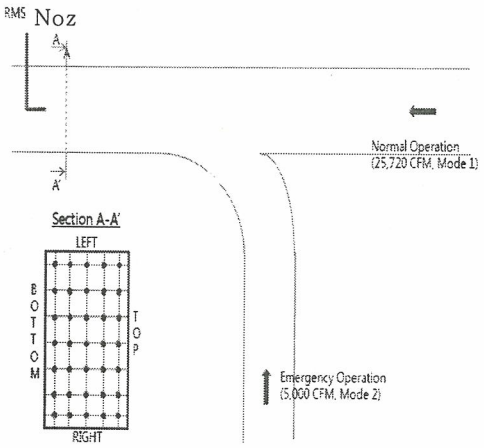
where λ is angle between P1 and x-axis. The measured air velocity X is converted to true vector P.

2.3 Experimental

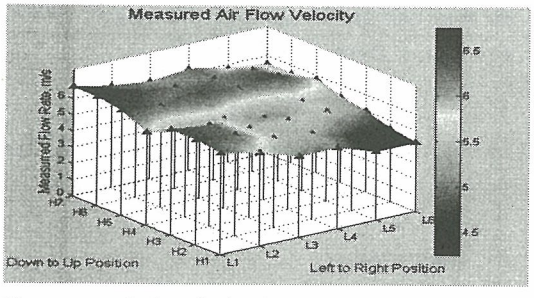
Over-all procedure is shown bellow.



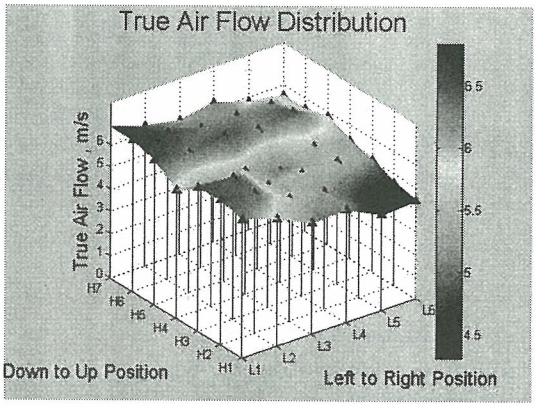
Duct shape and air flow configuration is shown bellow. The detail of this will be presented in the workshop.



2.4 Results



The measured air velocity is plotted as above.



The true velocity calculated thereof is shown bellow.

Analysis of the measured and calculated true values are summarized bellow.

	Measured,m/s	True, m/s
Avg	14.61	14.73
Std	2.06	2.07
Min	10.50	10.53
Max	16.75	16.85
COV	14.10	14.06

3. References

[1] Sampling airborne radioactive materials from the stacks and ducts of uclear facilities, ISO 2889, Second edition 2010-03-15.

B(U)형 동위원소 전용운반용기 설계

임성규, 강한묵, 장용준, 김동현, 안창석, 장동철
한일원자력주식회사, 경기도 안양시 만안구 안양7동 동영벤처스텔 3차 301호
ls9800@hanilnuclear.co.kr

1. 서론

방사성동위원소(RI)는 의료분야, 산업체 및 기타 분야등을 포함한 사회 각 분야에서 널리 사용되고 있으며 수요량 또한 해마다 크게 증가하고 있는 추세이다. 사용량의 증가와 함께 사용 후 RI의 폐기분야도 상대적으로 증가하고 있으며 따라서 폐기 RI의 운반 및 폐기관련 작업의 발생 시 및 안전하고 효율적인 운반을 위한 전용운반용기의 필요성과 함께 해외에서 RI의 수입 시 별도의 운반용기 임대료등 부수적인 비용이 발생하고 있으며 국내로 반입되는 RI 수입량 및 그에 따른 운반횟수의 증가추세는 앞으로도 지속적으로 증가할 것으로 판단되어 운반용기 임대료등의 부수적인 발생비용 또한 크게 증가 할 것으로 예상되어 동위원소 전용운반용기를 제작하게 되었다. 운반용기의 설계기준은 교육과학기술부 고시, IAEA Safety Standard 및 미국 10CFR등에서 규정하고 있는 조건들을 만족할 수 있도록 설계기준을 설정하였으며 정상 및 사고시 조건등 운반용기에 대한 시험 및 평가는 전산해석프로그램을 사용하여 수행하였다. 본 논문에서는 현재 진행 중인 전용운반용기의 설계 , 정상 및 비정상상태의 조건들에 대한 전산해석을 수행하여 용기의 구조 건전성을 평가 하였다.

2. 본론

2.1 전용운반용기의 설계

운반용기는 차폐용기와 완충용기로 구성 되었다완충용기 내부에 차폐용기를 결합하는 방식으로 제작하였으며, 16개의 볼트로 체결하여 기밀을 유지하였다. 완충용기는 바깥지름 980mm, 두께 10mm, 내부에 완충제를 충진 하였으며, 차폐용기는 바깥지름 480mm, 두께 20mm, 내부에 차폐체인 납이 충진 되었다. 4가지 이상 재료로 구성되어 있으며 전반적인 구조재는 STS304를 사용하였고 열 시험평가를 위해 구조재와 완충제 사이에 단열재를 충진 하였다. 또한 낙하 시험시 완충용기의 파손을 보완 하기 위해 용기 상 하부에 Over Pack을 결합하여 안정성을 한층 더 높였다

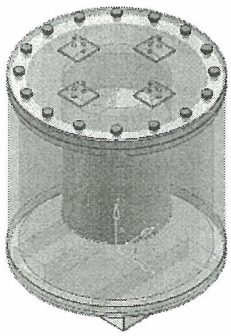


Fig. 1. 운반용기 투시도

2.2 운반용기 건전성평가

운반도중 충돌 시 운반용기 뚜껑은 용기의 본체와 외경이 같은 상태로 함께 충돌하기 때문에 뚜껑볼트에 충격하중이 발생하지는 않는다. 그러나 보수적인 해석을 위해 두껑 혹은 용기 충돌로 인해 100g의 가속도를 받아 전체 중량의 100배인 충격하중(Ft)이 작용한다고 가정하였으며 운반 내용물의 중량은 전체 1600kg 으로 가정하였다.

$$\sigma_y = \frac{Wt}{A*n} = \frac{1600*100*9.81*4}{\pi*d^2*n} \quad \cdots\cdots (1)$$

M30을 사용할 경우 안전율은 약 4.5로 만족하였으며 차폐용기의 볼트선정을 위해 차폐용기 무게는 약 1000kg으로 가정하였다. B형 운반용기 내부압 규정에 따라 내부압 700KN으로 선정 볼트에 가해지는 압력은 W는 "용기무게 + 내부압"을 적용하였으며 볼트 수량은 16개로 적용하였다.

$$\sigma_y = \frac{W}{A*n} \quad \cdots\cdots (2)$$

2.3. 차폐성능 평가

전산 해석 프로그램(MCNPX)을 통하여 차폐성을 평가 하였으며 전산해석프로그램의 구속조건 사항은 지름 480mm, 높이 480mm 의 실린더 형

태이며 운반대상 선원은 400Ci의 Co-60, 차폐체는 납을 적용하였다. 전산프로그램 해석결과는 차폐체의 외부표면에서의 방사선량율이 약 0.19 mSv/h로 차폐 건전성이 유지됨을 확인하였다.

2.4 전산해석프로그램을 이용한 건전성 평가

전산해석프로그램(ANSYS ver. 12.1)을 이용하여 용기의 건전평가 항목들에 대한 모의시험을 실시하였으며 평가방법은 교육과학기술부 고시 "방사성물질운반용기의 제작검사 및 사용검사에 관한 규정"등의 평가항목을 적용하였다.

낙하 조건 시 응력 한계설정

"방사성물질 운반용기의 제작검사 및 사용검사에 관한 규정 고시"에 관한 평가 사항을 ASME code section iii division 3 값에 준수 하여 건전성을 입증해야하며 완충용기와 차폐용기의 구조재인 **"STS304"**에 대하여 건전성을 평가 하였다. 낙하시험은 운반용기의 무게가 5000kg 미만이므로 정상조건에서 자유낙하 1.2m, 비정상조건에서는 9m 높이를 적용하여 수직 및 수평낙하시험을 실시하였다. 전산해석 구속조건은 낙하 바닥면은 강체 , 해석속도는 0.01sec로 하였다.

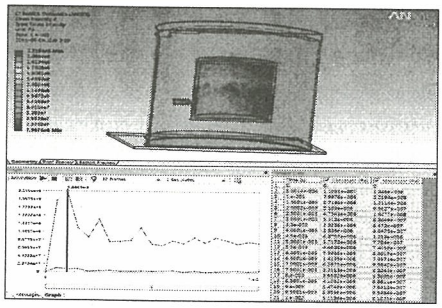


Fig. 2. 1.2m 수직낙하 응력수치 및 그래프

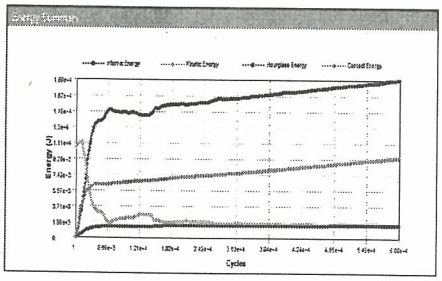


Fig. 3. 1.2m 수직낙하 에너지 그래프

관통시험

정해진 규격의 봉을 용기로부터 1m높이에서 자유낙하시켜 용기의 건전성을 평가하였으며 수평 및 수직 관통시험을 실시하였다. 수직관통 시험결과 1차 막응력은 41,609MPa, 2차 일반응력은 79,324MPA ,최대변형률은 0.0011596m/m이 발생하였으며 에너지에러 발생수치가 낮으므로 전산해석은 올바르게 수행된 것으로 평가하였다. 1차 막응력 및 2차 일반응력의 한계수치 이내로서 건전성을 확인하였다. 낙하사고조건인 9m 높이에서 자유낙하시험결과도 한계수치 이내였으므로 건전성이 유지된다고 판단하였다.

열시험 평가

열시험은 용기의 구조재, 단열재, 완충제, 차폐용기 구조제, 납 및 선원에 대해 실시하였으며 전산해석을 위한 구속조건은 자연대류계수 38℃, 용기내부에는 체적 1㎤의 선원에서 1451.5W/㎥이 발생하며 용기표면 방사율은 -0.85로 설정하여 해석하였다.

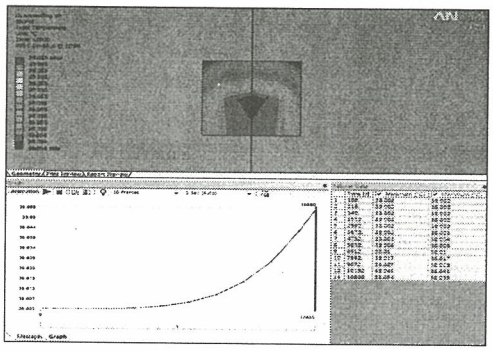


Fig. 4. 선원을 30분간 가열 후 3시간 방치

3. 결론

방사성동위원소 전용운반용기를 설계하여 제작전 전산해석프로그램을 이용하여 운반용기의 평가항목별 전산해석 및 평가를 실시하였으며 해석결과에 따른 설계 반영 및 보완등의 작업을 실시하였다. 본 논문은 용기의 제작 및 실제 평가시험을 준비하는 과정에서 사전 전산해석을 실시한 결과에 대한 내용이며 운반용기의 실 제작 및 건전성평가를 실시하여 향후 방사성동위원소의 전용운반용기로 사용할 계획이다.

4. 감사의 글

본 논문은 2010 중기청 기술개발혁신과제 실용부문의 일환으로 수행되고 있는 과제임.

방사능재난시 지방자치단체 방재계획 수립에 관한 연구

김광철, 김승평, 나만균, 염유선, 염정민
조선대학교, 광주광역시 동구 서석동 375
kch2419@korea.kr

1. 서론

원자력발전소의 방사선비상에 대비하여 주민의 생명과 재산을 보호하고, 환경을 보전하기 위하여 정부는 "원자력 시설 등의 방호 및 방사능방재대책법"을 제정하여 국가 방사능재난관리체계를 구축 운영하고 있다.

그리고 지역의 방사능방재대책 발전을 위하여 중앙부처에서는 다양한 지원을 하고 있으나, 기초 및 광역 지방자치단체에서는 방사능방재대책에 대한 기술행정체계가 대단히 미흡하다.

따라서 주민보호 등 지역설정에 맞는 종합적이고 체계적인 방사능방재대책을 수립·운영할 필요가 있으며, 특히 최근 일본 후쿠시마 발전소 사고에 따른 방사능 방재대책에서 나타난 지방자치단체의 초동대응 실패 등을 살펴보고 효율적인 방재계획 수립에 대하여 검토하였다.

2. 본론

2.1 방사선비상계획구역

방사선비상계획구역은 원자력비상시 집중적으로 주민을 보호할 수 있도록 신속하고 효율적인 세부계획이 수립되어야 하는 지역으로서 방사능 사고분석을 토대로 하여 발전소를 중심으로 반경 8~10 ㎞ 지역을 발전소 주변지역의 인구분포, 도로망 및 지형 등 그 지역의 고유한 특성과 방사능비상 또는 방사능재난 시 발생할 경우 주민보호 등을 종합적으로 고려하여 원자력사업자가 관할 광역 자치단체장과 협의 후 설정한 구역이다.

그러나 최근 후쿠시마 원전사고로 나타난 다수호기의 방사능 재난시 방사능 위협구역이 매우 넓게 분포됨에 따라 정치적 또는 사회적 여론이 기존의 방사선비상계획의 확대를 요구하고 있다.

방사선비상계획의 확대는 원전인근지역에 대도시가 있을 때에는 지자체 부담과 사회적 파장이 매우 클 것으로 예상된다.

따라서 과학적이고 합리적인 방향을 모색함과 동시에 10 ㎞이상의 범위에 대해서는 해당 구간의 인구수, 대피로 등을 파악한 후 최소 수량의 방호용품을 비치하는 한편 대피 및 소개 범위를 넓힐 수 있는 시스템을 확보하는 것이 보다 효과적이라 판단된다.

2.2 지역방사능방재계획 및 구축

지역방사능방재계획 수립은 '방재대책법 제19조'에 시·도 방사능방재계획 및 시·군·구 방사능방재계획은 시·도지사 및 시장·군수·구청장이 수립하여 이를 교육과학기술부장관에게 제출토록 되어 있다.

그동안 기초 지방자치단체 중심으로 방재계획을 수립하였으나 일본의 원전사고에서의 지자체 방사능방재대책에 따른 문제점과 인접국가인 중국, 일본을 포함한 방사선사고시 대응을 위한 계획을 포함하여 방사능방재를 통합적으로 기초 지자체 중심에서 광역지자체 중심의 방재계획으로 옮겨 주민소개, 주민대피 및 방사능방재교육과 훈련을 실시하는 것이 바람직하다고 판단된다.

또한 기초 지자체 중심의 방재계획이 아닌 광역지자체에서 시·군간 협조체제를 구축하여 대응기관 및 유관기관을 지역 방재계획서에 포함하여 지역방사능방재계획을 수립하는 등 지정근거를 만들어 운영할 필요가 있다.

2.3 방사능 누출 현장 현장조치행동 매뉴얼

방사능 누출 현장조치매뉴얼에는 '방사능방재분야', '인접국가 방사능사고 대응 매뉴얼', '방사능테러 분야'로 분류되어 있다.

방사능방재분야는 교육과학기술부가 원전안전분야(방사능누출) 위기대응 실무매뉴얼을 작성하고, 지역방재센터에서 원전안전분야 현장조치행동매뉴얼을 마련하고 있지만, 현재 구축된 매뉴얼은 대응 주체가 다른 바, 지자체가 대응하는 부분을

정리해서 하나의 매뉴얼로 만들어 운영하는 것이 방사능방재에 효율적이라고 판단되며 또한, 각종 훈련 등을 실시한 후 문제점을 보완하는 등 지속적인 관리가 필요하다.

2.4 방사선방호용품 비치 또는 제공

일본의 후쿠시마원전 재난 이후 구조대, 군부대, 경찰 등에게 방호용품에 대한 비치 및 제공을 요구하고 있다.

현재는 중앙정부 또는 지자체와 해당기관에서 방사선비상 대응을 해야 하는 관계로 원자력사업자에게 특수방호복, 선량측정기, 방호약품 등을 구조대, 군부대, 경찰 등에 원자력사업자가 제공하기는 어려운바 향후 사업자가 방호용품을 비축하거나 중앙정부가 제공하는 방안을 제시할 필요가 있다.

2.5 방사능 방재훈련

방사능방재에 대응하는 훈련은 U.S NRC 권고 '10 CFR 50, App E'의 사항에 맞추어 방사능 방재훈련의 실시주기에 따라 국내의 경우도 연합훈련, 합동훈련 등을 실시해 오고 있었으나, 최근 방사능방재에 대응하는 전체훈련에 지자체, 유관기관(소방서, 경찰서 등) 등으로부터 발전소 방사능방재 훈련에 참여하기를 희망하는 의견이 제시되고 있다.

현행 방사능방재 전체훈련에 유관기관의 참여뿐만아니라 방사능 재난시 지역주민을 보호하고, 신속하고 세부적인 대피 방법들을 모색하고 합리적인 훈련주기 재설정을 검토하였다.

3. 결론

원자력발전소의 방사선비상에 대비하여 주민보호와 보호조치를 위한 기본개념을 일본 후쿠시마 원전사고를 거울삼아 원전입지지역의 방사선비상계획구역, 지역방사능방재계획 및 구축, 방사능누출 현장조치행동매뉴얼 등에 대한 정책적 방향을 제시하고 주민보호에 요구되는 비상대응 활동 운영개념을 정립하도록 하였다.

4. 참고문헌

[1] 최재봉 · 김영진, 원자력발전소 안전의 미래, 기계저널 제40권 제5호, 2000.

[2] 오근배, 21세기 우라나라에서의 원자력의 역할, Prospectives of Industrial Chemistry, vol.5, no.2, 2002.

[3] 김영평외, 한국의 원자력위험관리에 관한 체계적 연구, 고려대행정문제연구소, 1994.

[4] 송명재, 방사선의 세계, 한국원자력문화재단, 2000.

[5] 최인철, 중 · 저준위 방사성폐기물 처분장 건립에 관한 사회문화적 요인들, 원자력산업 22(1), 2002.

[6] 조성경 · 오세기, 원자력시설 및 정책의 수용성에 영향을 미치는 인식인자 도출에 관한 이론적 고찰, 한국에너지공학회지, 제11권 제4호, 2002.

[7] F. D. Sowby, Radiation and other risks, Health Physics 11, 1965.

[8] A. E. Walter, P. Upson, Socio-political factors influencing the expansion of nuclear power, IAEA TECDOC-1117, 1999.

[9] Choi Y.S., Kim J.S., & Lee B.W., Public's perception and judgement on nuclear power, Annals on Nuclear Energy 27(4), 2000.

[10] 전라남도, 정책기획관, 2011 지역방사능방재계획, 2011.

[11] 부산광역시, 원전안전분야(방사능 누출) 현장조치 행동매뉴얼, 2010.

[12] 한국수력원자력주식회사, "영광원자력본부 방사선비상계획서".

[13] 한국수력원자력주식회사, "영광원자력본부 방사선비상계획수행절차서".

[14] 한국원자력안전기술원, "발전용원자로의 방사선비상 발령 기준에 관한 기술지침서", 2003, KINS/GT-N021-1.

제5분과

방사선 안전 환경 및 기타 (Poster)

빈 면

삼중수소 붕괴열에 의한 열량계 내 열전달 전산해석

송규민, 고병욱, 이계우, 손순환, 장민호*, 윤세훈*, 강현구*, 조승연*, 정기정*, 정홍석**
한전전력연구원, 대전시 유성구 문지로 65
*국가핵융합연구소, 대전시 유성구 신성로 14
**한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
kmsong@kepri.re.kr

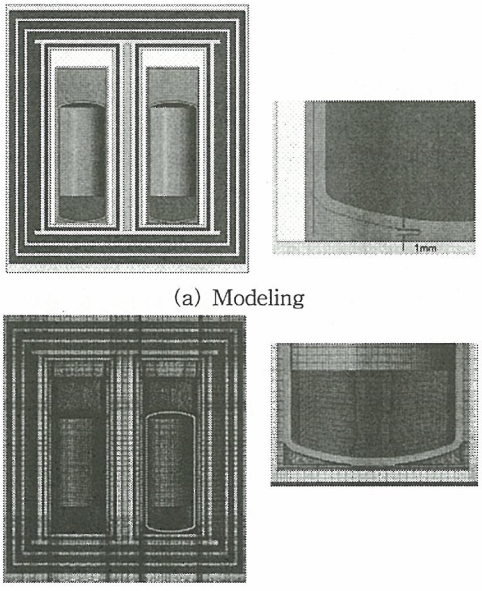
1. 서론

국제핵융합실험로(ITER: International Thermo-nuclear Experimental Reactor)는 핵융합연료로 삼중수소를 사용할 예정이며, ITER로 운반된 삼중수소는 삼중수소 로딩 스테이션(TLS: Tritium Loading Station)으로 장입되기 전, 밀봉상태에서 삼중수소 열량계를 이용하여 재고량을 측정한다[1-2]. 본 연구에서는 TLS 전용 열량계 설계요건 개발 및 규격서 작성을 위해 필요한 설계자료 생산을 위해 삼중수소 붕괴열이 열량계 내부에서 전달되는 형상을 전산해석으로 검토하였다.

2. 본론

2.1 형상 모델링과 격자생성

본 연구는 한전전력연구원에 설치된 twin cell 형태의 열량계[3]와 ITER 삼중수소 운반용기의 구성품 중의 하나인 알루미늄 2차용기를 대상으로 하였다. 알루미늄 2차용기는 ITER 삼중수소 플랜트내 2차격납과 열량계에서의 오염방지를 위해 삼중수소 저장·운반용기의 요건에 의해 사용된다. 삼중수소 열량계는 twin cell 형태로 측정셀과 레퍼런스셀이 있으며 이를 적용하여 Figure 1처럼 열량계 내부에 저장용기와 레퍼런스용기를 설치한 형상과 격자를 생성하였다. 열량계 형상은 얇은 판이 여러 겹으로 구성되어 있어 테트라 격자를 사용할 경우 너무 많은 격자가 필요하다. 본 해석에서는 헥사격자로 구성하여 격자작업 시간이 많이 걸리는 단점은 있으나 계산에 소요되는 시간을 줄이고 수렴성을 높였다. 특히 밀폐된 공간에서 자연대류 유동을 해석하는 경우 수렴성이 많이 떨어지게 되는데 헥사격자를 적용하여 수렴성을 확보하였다. 격자구성을 위해 사용된 프로그램은 ICEM CFD 격자 생성프로그램으로 소요된 격자수는 300만 노드였다. 저장용기가 들어가는 공간사이는 형상이 복잡하여 Figure 1(b)의 오른쪽처럼 별도로 격자를 생성하여 도메인 간에 인터페이스 처리를 하였다.



(a) Modeling

(b) Layer

Fig. 1. Calorimeter modeling and layering

2.2 경계조건 및 실험조건

Table 1과 2는 실험조건과 열량계 내부 재료의 물성치를 보여주고 있다. 열량계 경계조건으로 외부온도는 18 ℃로 하였으며 열원은 Figure 1의 붉은부분인 저장용기 하부에서만 발생하는 것으로 하였다. 단열재는 발포고무를 적용하였으며 저장용기 재질은 스테인리스 강, 알루미늄 판 재질은 Al 2017-O를 적용하였다. 저장용기 내부는 진공영역으로 대류에 의한 열전달은 없고 복사에 의해서만 열전달이 일어나며 열량계 측정셀과 레퍼런스셀은 공기가 채워져 있는 것으로 하였다.

Table 1. Experimental conditions

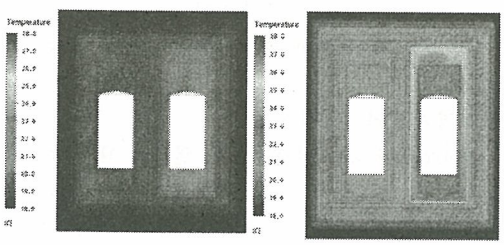
Case	1	2	3
Voltage [V]	4	6	8
Power [W]	1.4576	3.2652	5.8032

Table 2. Properties of materials

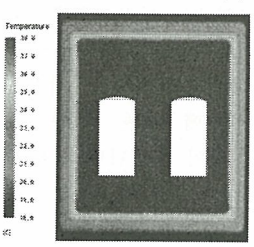
Domain	Material	Specification	
		ρ (kg/m^3)	k (W/m·K)
Fluid domain	Air	1.185	0.0261
Solid domain	Vessel	7,920	16
	Aluminum 2017	2,790	193
	Insulator	140	0.034

2.3 결과 및 고찰

Figure 2와 3은 전산해석결과로 열량계 전체의 온도분포와 열량계 내부 벽을 통한 열전달 플럭스를 나타낸 그림이다. 열원이 작을 경우 온도분포나 플럭스의 구분이 크게 없지만, 열원이 커질수록 부분별 차이가 현저하게 나타난다. 이는 측정셀 내 온도차에 의한 자연대류가 중요해지면이로 인해 부분별 온도구배가 나타나고 플럭스의 변화가 나타나기 때문이다. 측정셀 표면별 플럭스 차이는 측정센서 위치 및 수량 최적화에 영향을 주는 인자이다. 또한 플럭스 차이가 열량계 측정 정밀도에 주는 영향을 최소화하기 위해 측정셀과 알루미늄 블록 간 열전달이 원활하게 이루어지게 하는 구조적 설계가 필요한지 추가로 분석해 볼 필요가 있다.

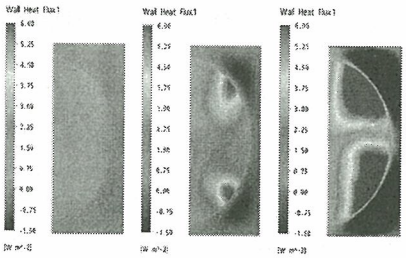


(a) Case-1 (b) Case-2



(c) Case-3

Fig. 2. Temperature profile



(a) Case-1 (b) Case-2 (c) Case-3

Fig. 3. Heat flux on the internal surface

3. 결론

삼중수소 붕괴열을 열원으로 하는 열량계 내 열전달해석을 수행하였다. 열원의 크기에 따라 측정셀 여러 면의 온도구배와 플럭스에 미치는 영향을 살펴보았으며 열량계 정밀도를 향상시키기 위하여 측정센서의 위치와 수량, 단열구조에 따른 열량계 설계 최적화 필요성 여부를 확인하였다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부와 지식경제부의 국제핵융합실험로 공동개발사업(2011-0000293)으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] 송규민, 이계우, 고병욱, 손순환, 정양근, 장민호, 윤세훈, 강현구, 조승연, 정기정, 정홍석, "삼중수소 저장용기 열용량이 삼중수소 열량계 측정성능에 미치는 영향", 한국방사성폐기물학회, 2010년 춘계학술대회 논문요약집, p85-86, 2010.

[2] 송규민, 이계우, 고병욱, 이숙경, 손순환, 장민호, 윤세훈, 강현구, 조승연, 정기정, 정홍석, "펠티에 소자를 이용한 소형 열량계 특성시험", 한국방사성폐기물학회, 2011년 추계학술대회 논문요약집, p111-112, 2011.

[3] K. M. Song, et al, "Test of a large-volume calorimeter in KEPRI tritium laboratory", *IEEE Trans. Plasma Sci.*, 38(3), p295-299 (2010).

이온전리함을 이용한 저준위 감마선조사장치 최고측정능력(BMC) 산출

서장수, 하석호*, 원유호**
한수원(주) 원자력교육원, 울산광역시 울주군 서생면 신암리 991
*한국표준과학연구원, 대전광역시 유성구 도룡동 1
**한수원(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 장동 25-1
sjssjs@khnp.co.kr

1. 서론

감마선 조사장치란 감마선을 방출하는 핵종을 차폐체 내부에 두고 일정 방향으로 빔을 조사할 수 있도록 하는 장치로 거리에 따른 선량률을 이용하여 서베이미터 등의 교정에 사용되며 특히 원자력발전소 방사선계측기의 교정에 사용되는 감마선조사장치는 ^{137}Cs 밀봉 선원을 사용하고 있다.

최고측정능력[1]이란 규정된 시험실 조건 하에서 기 확립된 교정 또는 교정 유형에 대하여 교정기관이 달성할 수 있는 최소의 측정 불확도를 말하며, 이 때 측정에 기여하는 불확도 요인은 작은 것이라 할지라도 누락됨이 없이 모두 평가되어야 한다.

본 논문의 최고측정능력은 감마선 조사장치(^{137}Cs 111 MBq)의 교정 결과를 바탕으로 산출한 것이며, 측정 범위는 0.3 μGy/h ~ 10 μGy/h 이다.

2. 측정 및 방법

감마선 조사장치의 교정은 국가측정표준과의 소급성이 유지된 이온전리함을 이용하여 공기커마율을 측정하고 거리와 커마율과의 관계를 식으로 표현하는 것으로 아래와 같은 절차[2]에 따라 수행되었다.

첫째, 이온전리함을 교정대에 설치하고 레이저와 교정대 이동장치를 사용하여 감마선 조사빔과 전리함의 중심이 일치하도록 측정기의 상하 좌우 방향을 조정한다.

둘째, 측각기를 사용하여 기준면 상에 전리함의 중심이 위치하도록 측정기의 전후 방향을 조절한다.

셋째, 전리함에 고전압을 공급하여 충분히 안정시킨 후 선원을 인출시켜 60 분간 예비조사를 수행한다.

마지막으로 교정레일 범위(100 ㎝ ~ 500 ㎝)에 대하여 100 ㎝ 간격으로 이온화 전류를 측정하고, 측정값이 10^{-14} A 정도의 미소 전류임을 감안하여 누설전류(BKG)는 각 측정 점마다 측정 전후의 평균값을 산출하여 이온화 전류 측정값을 보정하여준다.

이러한 절차에 따라 각 측정 지점에 대하여 10회 이상의 반복 측정을 수행하였으며, 측정기 지시 값의 변동이 ± 1 % 이상이 되거나 측정 중 온도, 압력에 의한 보정인자의 변동이 ± 0.2 % 이상이 되는 경우 재측정을 실시하였다.

3. 결과 및 고찰

상기와 같은 절차에 따라 측정된 거리별 이온화 전류에 이온전리함의 교정상수를 곱하여 공기커마율을 구하였으며, 그 결과를 Table 1에 나타내었다.

Table 1. Air Kerma Rate

Distance (㎝)	Net I (A)	C.F.of Chamber (Gy/C)	Kair (μGy/h)
100	2.388E-13	9.32E+03	8.012
200	1.774E-13	3.09E+03	1.973
300	7.646E-14	3.09E+03	0.851
400	4.323E-14	3.09E+03	0.481
500	2.779E-14	3.09E+03	0.309

Table 1의 결과를 회귀시켜 다음과 같은 거리-커마율의 관계식을 얻었으며,

$$\dot{K} = 10^{5.18472} \cdot D^{-2.033556}$$

여기서

$\dot{K}$: 공기 커마율(mGy/h)

D : 거리(㎝)

이때의 각 요인별 불확도는 다음과 같이 산출하였다.

- 기준기 교정인자의 불확도 : u(Ns)
  이온전리함 성적서에 주어진 상대 확장 불확도를 포함인자 k = 2로 나누어 적용함
- 측정 전류의 불확도 : u(Is)
  BKG를 보정한 전류 값의 표준편차를 해당 전류값으로 나누어 상대 표준 불확도로 표시함
- 이온화 전류 측정장치의 불확도 : u(k_E)
  Capacitor, 전압측정장치 및 타이머의 불확도를 합성하며, 성적서 및 매뉴얼 등에 표기된 내용을 바탕으로 평가함
- 환경보정인자의 불확도 : u(k_{tp})
  온도계 및 기압계의 불확도를 합성하여 평가함
- 위치 재현성 불확도 : u(k_d)
  마그네틱 스케일, 텔레스코프 및 인사이드 마이크로미터, 선원 중심으로부터 인사이드 마이크로미터 측정 기준면까지 거리의 불확도를 합성하여 평가하되 선량률에 미치는 영향(기여도)을 따로 평가하여 2를 곱한 값을 적용함
- 조사 빔 균질성의 불확도 : u(k_f)
  유효 조사 빔 영역에서의 최대 퍼짐 5 % 의 절반을 직사각형 분포로 평가함
- 내삽함수의 불확도 : u(SDF)
  아래의 식에 따라 구하며 이 때 자유도는 데이터의 개수에서 변수의 개수를 뺀 값을 적용함

$$u(SDF) = \sqrt{\frac{\sum [100 \cdot (\dot{K}_m - \dot{K}_f)/\dot{K}_f]^2}{n-m}}$$

여기서 $\dot{K}_m$: 측정값, $\dot{K}_f$: 내삽값 ,
n : 데이터개수 m : 변수의 개수

이상을 종합하면 Table 2와 같다.

Table 2. Uncertainty Budget

Component	Expectation value	Standard uncertainty (%)	PDF	Degree of freedom
Ns	3.09×10^{3} Gy/C	2.55	N	∞
kE	1.0	0.07	R	∞
ktp	1.015 ~ 1.025	0.013	N	∞
kd	1.0	0.02	R	∞
kf	1.0	1.44	R	∞
Is	2.8×10^{-14}A ~2.4×10^{-13}A	2.67	t	9
SDF	1.0	1.02	t	4
Combined uncertainty (%)		4.09		70

* PDF : 확률분포함수(Probability Density Function)

측정기가 이상적으로 작동하는 것으로 간주하여 측정 전류에 의한 불확도[u(Is)]및 내삽함수의 불확도[u(SDF)]를 제거 ('0'으로 평가)하고 나머지의 불확도를 합성하여 2.93 % 의 상대합성 표준불확도를 산출하였으며, 유효 자유도가 충분히 큰 것을 감안하여 신뢰수준 약 95 %에서의 포함인자[3] k = 2를 적용, 5.9 %의 최고측정능력을 산출하였다.

유효 빔 크기에서의 조사 빔에 대한 균질도는 따로 측정하여 적용하여야 하나, 조사장치 및 선원의 기하학적 구조에 따라 다르게 나타날 수 있으므로 '감마선조사장치의 표준교정절차'에 기술된 조사장치의 성능요건(± 2.5 %)을 적용하였다.

4. 결론

본 시험에서는 신뢰수준 약 95 % 에서의 포함인자 k = 2를 적용, 저준위 감마선조사장치의 최고측정능력을 5.9 % 로 산출하였다.

일반적으로 교정대상 기기는 이상적으로 작동하지 않으며, 이러한 요인들이 불확도에 기여하는 정도는 각기 다르므로 실제 측정에서의 불확도는 최고측정능력보다 항상 크게 나타나게 되며, 실제로 조사장치 교정시에는 최고측정능력 산출시 제외하였던 측정전류 및 내삽함수의 불확도를 포함하여 확장 불확도를 산출하여야 한다.

5. 참고문헌

[1] KOLAS-G-0004 최고측정능력산출 및 유지관리 지침(2008).
[2] KASTO 02-80107-102 감마선 조사장치의 표준교정 절차(2002).
[3] KRISS-99-070-SP 측정불확도 표현지침(1999).

우선순위(PI) 기법을 활용한 방사성물질 누설 가능성 평가

양양희, 손순환, 이갑복, 손욱
한전전력연구원, 대전 유성구 문지로 105
yhyang@kepri.re.kr

1. 서론

원전 사업자는 운영 중에 발생되는 방사성물질이 외부환경으로 유출되지 않도록 많은 노력을 기울여야 한다. 2005년 전후에 미국의 일부 원전에서 방사성 액체가 비계획적으로 유출되어 부지 내 지하수가 오염된 사례가 있다. 이에 따라 미국의 EPRI에서는 비계획적 유출물 발생을 방지하기 위해 계통, 구조물 및 기기(SSC, System, Structure, Component)에 대해 누설위험도 순위를 정하여 관리하는 우선순위(Priority Index, PI) 평가기법을 개발하였다. 이 PI 평가기법은 현재 미국에서 SSC의 누설위험도의 평가의 표준방법으로 널리 쓰이고 있다. 본 논문은 SSC에 대한 PI 평가기법을 살펴보고, 국내원전에 적용하여 평가한 결과에 대해 논하였다.

2. 본론

2.1 PI 평가기법

PI 값은 지하수 오염을 야기할 가능성과 야기된 오염의 중대성의 곱으로 산정한다. 즉 누설위험도를 다음과 같이 누설 가능성(Likelihood)과 누설 시 중대성(Consequence)의 두 요소로 평가한다.

$$\mathbf{PI = Likelihood \times Consequence \times N} \cdots\cdots (1)$$

여기서 N은 PI 값을 백분율로 표현하기 위한 상수로 100/9의 값을 갖는다.

누설 가능성과 누설 시 중대성은 다시 세부 항목으로 구성된다. 누설 가능성은 해당 SSC에서 누설이 일어날 가능성을 누설이력(H_L), 상태(C_L) 및 설계 (D_L) 측면에서 세분화한다. 누설 시 중대성은 해당 SSC의 재고량(I_C), 핵종의 위해도(H_C) 및 이동성(M_C) 그리고 누설 후 검출 가능 여부(P_C)에 따라 평가한다. 각 요소에 대한 계산식은 다음과 같다.

$$\mathbf{Likelihood} = \frac{[H_L + C_L + D_L]}{3} \cdots\cdots (2)$$

$$\mathbf{Consequence} = \frac{[I_C + H_C + M_C + P_C]}{4} \cdots\cdots (3)$$

최종적으로 평가된 PI 값은 그 값이 클수록 지하수 오염위험도가 크다는 것을 의미한다. 그러나 PI 값의 계산에 필요한 평가항목 중 일부는 평가수행자 및 해당 발전소 상황에 의존하기 때문에, 특정 발전소에서 계산된 PI 값을 다른 발전소의 PI 값과 비교하는 것은 무리가 있다고 할 수 있다.

평가대상이 되는 SSC는, 방사성 액체가 저장되어 있거나 또는 통과 가능성이 있으면서, 동시에 방사성 액체가 토양 및 지하수로 누설될 가능성이 있는 계통, 구조물 및 기기이다. EPRI는 평가대상을 System의 경우 Pipe Sleeves between Buildings 외 49개, 구조물은 Spent Fuel Pool 외 15개, 그리고 기기는 Primary Water Tank 외 24개를 선정하고 평가하도록 제시하였다. 하지만 PI 기법을 처음으로 적용하는 발전소는 EPRI에서 제시한 모든 SSC에 대해 평가를 할 경우 많은 인력 및 예산이 수반되어야 하는 등 어려움이 따를 수 있다. 평가 대상 SSC 의 개수는 발전소 상황에 따라 적절히 조정할 필요가 있다고 할 수 있다. 실제 미국 St. Lucie 원전의 경우, 모든 SSC에 대한 평가를 하지 않았으며 Condensate Polishing 외 19개 SSC에 대해서 PI 평가를 수행하였다.

2.2 평가결과

평가대상 SSC 선정을 위해, EPRI에서 제시한 평가 후보군을 참조하여 고리 1,2호기는 Spent Fuel Pool 등 31개의 평가 대상 SSC를 선정하였다. 월성 1, 2호기는 중수로로서 EPRI 평가대상 후보군을 적용하는데 어려움이 있었다. 이에 고리 1, 2호기에서 선정한 SSC에서 경수로 고유분을 제외한 후, 중수로 특성을 반영하여 Spent Fuel Bay 등 37개를 선정하였다. 아래 Table 1에 고리 1,2호기의 평가대상 리스트를 나타내었다.

Table 1. 평가대상 List

• Building Sump Piping • Building Sumps and Moats (that interface with the ground) • Spent Fuel Pool • Spent Fuel Transfer Canal • Spent Fuel Pool Cask Wash Area • Spent Fuel Pool Cooling and Cleanup Equipment • Residual Heat Removal Piping • Component Cooling water system • Component Cooling Water Lines running between Buildings or Underground • Component Cooling Seawater Sys • Refueling Water Storage Tank' • Refueling Water Storage Tank (RWST) Moat Drain Pipe' • Primary Water Tank' • Aux Steam Condensate Return Sys' • Steam Generator Blowdown Piping • Turbine Hall Drains	• Main Steam Sys • Condensate Sys • Condenser Cooling Water Sys • Condenser Leak Detection Sys • Radioactive Waste Treatment Sys • Active Drainage Sys • Radwaste Pipelines, especially Discharge Line • Drain Lines for Laundry System • Floor & Roof Drains in potentially contaminated areas interfacing with the ground • Building Walls with potential interior leaks (e.g., Spent Fuel Pool, Transfer Canal) • Seismic Gaps (Seams) between Buildings • Storm Drain Collection Basin and Yard Drainage System • Sample Lines that run between buildings or underground, including secondary side systems • Laboratory Drain Tank Lines • CV Dewatering Sump'

평가자는 현장 전문가로서 고리 1발 3명, 월성 1발 4명을 선임하여 평가하였다. 평가결과는 평가자에 따라 상이하였다. 고리 1,2호기의 경우 최대 PI 값을 평가자 A는 CV Dewatering Sump를, 평가자 B는 Spent Fuel Pool를, 평가자 C는 Turbine Hall Drains를 선정하였다. PI값의 합리적인 값을 얻고자 3명 평가자의 평가결과를 평균해 보았다. 그 결과, 최대 PI 값으로 1호기에서는 Spent Fuel Pool, 2호기에서는 Refueling Water Storage Tank, Turbine Hall Drains 그리고 CV Dewatering Sump로 나타났다. 월성 1,2호기의 평가결과는 평가자의 최대 PI 값이 일부는 같으나 대부분 각각 다르게 나타났다. 최대 PI 값을 평가자 A는 Active Drainage System을, 평가자 B는 Component Cooling Water System 및 D_2O Sampling System을, 평가자 C는 Spent Fuel Bay를, 평가자 D는 Spent Resin Storage Vault를 각각 선정하였다. 평가자 4명의 최대 PI값을 평균해 본 결과, 최대값으로 모두 Spent Fuel Bay를 평가하였다. 아래 Table 2는 고리 1호기에 대해 평가자 A의 평가결과를 보여주고 있다.

Table 2. 평가결과

ITEM	LIKELIHOOD				CONSEQUENCE					PRIORITY INDEX
System, Structure and Components	History	Condition	Design	Score	Inventory	Hazard	Mobility	Post-Release Detection	Score	
Building Sump Piping	0	1	0	0.3	1	1	1	1	1.0	3
Building Sumps and Moats	0	3	0	1.0	1	1	1	2	1.3	6
Spent Fuel Pool (or bay)	1	1	1	1.0	2	2	1	1	1.5	8
Spent Fuel Transfer Canal	0	1	0	0.3	2	2	1	1	1.5	3
Spent Fuel Pool	0	1	0	0.3	2	2	1	1	1.5	3
SFP Cooling Equipment	0	1	0	0.3	2	2	1	1	1.5	3
RHR Piping	0	1	0	0.3	1	2	1	1	1.3	3
CCW system	0	1	0	0.3	1	1	1	0	0.8	3
CCW Lines	0	1	0	0.3	1	1	1	0	0.8	3
CC Seawater Sys	0	1	0	0.3	1	1	1	0	0.8	3
RWST	0	1	1	0.7	2	2	1	0	1.3	3
RWST Drain Pipe	0	1	1	0.7	2	2	1	0	1.3	3
Primary Water Tank	0	1	1	0.7	2	2	1	0	1.3	3
Aux Steam Return	0	1	0	0.3	1	1	1	2	1.3	3
S/G Blowdown Piping	0	1	1	0.7	1	2	1	2	1.5	3
Turbine Hall Drains	0	1	1	0.7	1	1	1	2	1.3	5
Main Steam Sys	0	1	0	0.3	1	1	1	0	0.8	3
Condensate Sys	0	1	0	0.3	1	1	1	0	0.8	3
CCWS	0	1	0	0.3	1	1	1	0	0.8	3
Cond. Leak Detection Sys	1	2	0	1.0	1	1	1	1	1.0	4
Radwaste Treatment Sys	0	1	0	0.3	1	2	1	1	1.3	3
Active Drainage Sys	0	1	0	0.3	1	1	1	1	1.0	3

한편, 발전소별 PI값 경향을 파악하기 위해, PI값 전체를 평균한 결과 고리 1, 2호기는 7을, 월성 1, 2호기는 16으로 월성이 고리의 2배로 높은 것으로 나타났다. 이와 같은 현상은 세부 항목 값들을 분석한 결과 동일한 경향을 띄는데, 이는 삼중수소가 지하수의 오염원이며 중수로라는 노형의 특성이 반영된 것이라고 판단된다. 아래 Table 3은 세부항목 평균값을 보여주고 있다.

Table 3. 세부항목 평균값

구분	History	Condition	Design	Inventory	Hazard	Mobility	Post Release Detection
고리 (A)	0.03	1.12	0.72	1.41	1.26	1.15	0.82
월성 (B)	0.59	1.12	1.13	1.83	1.53	1.93	0.87
B/A	18.4	1.0	1.6	1.3	1.2	1.7	1.1

3. 결론

EPRI에서 개발한 PI 평가기법을 이용하여 국내 원전의 계통, 구조물 및 기기에 대해 누설위험도 순위를 평가해 보았다. 그 결과 Spent Fuel Pool이 대부분 누설위험순위가 높은 것으로 나타났다. 노형별로 요소 값을 비교했을 때 중수로가 경수로에 비해 높았다. 이는 중수로가 삼중수소의 발생률이 높은 노형 특성이 반영된 것이라고 본다. PI의 평가값은 평가자별로 다르게 나타났는데 이는 평가기준 및 방법에 대한 평가자들의 이해가 상이했다고 본다. 따라서 평가자 선정방법 및 평가방법에 대한 일부사항을 보완하여 시행한다면 원전부지 지하수 오염방지에 기여할 것으로 본다.

4. 참고문헌

[1] Groundwater Protection Guidelines for Nuclear Power Plants, 1016099, EPRI, 2008.
[2] 원전부지 지하수 오염 해외사례 조사 보고서, 한전전력연구원, 2010.
[3] 원전부지 지하수 모니터링 방안연구, 최종보고서, 한전전력연구원, 2011.

고리원전 주변 해양확산 특성 연구

이갑복, 양양희
한국전력공사 전력연구원, 대전시 유성구 문지로 65
gblee@kepco.co.kr

1. 서론

교육과학기술부고시 2003-12호 "원자로시설부지 수문 및 해양특성 조사·평가 기준"이 제정된 이후 원전으로부터 방출된 유출물의 해양확산 특성 평가 연구에 대한 필요성이 커지고 있다. 한국수력원자력(주)와 전력연구원은 신고리, 신월성, 신울진 원전 등 다수의 신규원전 건설이 계획 또는 추진되고 있는 동해안을 대상으로 광역 및 부지별 입지특성을 반영한 해양확산 평가모델을 개발하였다[1]. 본 연구에서는 고리원전을 대상으로 평년자료를 이용하여 해양확산을 모의한 결과를 토대로 고리원전 주변 해역에서의 해양확산 특성을 분석하였다.

2. 본론

2.1 해양확산 모델링 체계 및 입력자료

본 연구에서는 해수유동과 해양확산을 표 1과 같이 3단계로 나누어 모델링하였다.

Table 1. 해수유동 및 해양확산 모델링 체계

Items	Phase 1	Phase 2	Phase 3
Model	RIAMOM [2]	RIAMOM	EFDC
Domain	East Sea/Japan Sea	100 x 100km	15 x 35km
Mesh size	1/12°(9km)	1/36°(3km)	50~400m
Ver. levels	20(z-level)	20(z-level)	7(sigma-level)
Bathymetry	ETOPO5	ETOPO5	Nautical chart
Sea surface temperature	Obtained by ECMWF, JODC, KODC	Nesting of Phase 1 model results	Nesting of Phase 2 model results
Sea surface salinity	Obtained by JODC, KODC		
Wind stress	ECMWF		
Boundary data	In-outflow condition from the JCOPE OCM		Tide : Observation(M_2,S_2, K_1,O_1&M_{sf}) Current : Nesting of Phase 2 model results

1 단계에서는 동해 전체 해수순환을 모의하고, 2단계에서는 1 단계 모의결과를 이용하여 고리원전 부지 반경 80km 영역에서의 해수유동과 해양확산장을 구한다. 3단계는 2단계에서 구한 해수유동장을 이용하여 부지 반경 15km 정도의 협역에 대해 해수유동장과 해양확산장을 계산한다. 3단계에서 구해진 해양확산장을 다시 2단계의 해수유동장과 결합하여 부지 반경 80km까지의 해양확산장을 계산한다.

고리원전 주변의 평균적인 해수유동 및 해양확산 특성을 알아보기 위해 1961~2005년 관측된 자료를 이용하여 해수순환을 모의하였다. 관측자료는 국립수산과학원에 의해 관측된 장기 누년 평균된 격월 수온, 염분 자료(1961~2005년)를 사용하였다.

평년 해수 유동장을 모의하기 위해 일별 기상자료로 1998~2001년의 ECMWF 자료와, 2002~2005년의 JMA (Japan Meteorological Agency) MSM (Mesoscale Atmospheric Model)결과를 사용하였다. 해표면 열속자료는 일평균 기온, 운량, 상대습도, 바람, 강수량과 해표면 수온자료를 이용 bulk 방법을 통해 계산되었다. 제주와 대한해협을 통한 유입구의 수온과 염분자료는 1/6°격자의 Pacific Ocean Model 결과를 이용하였고 유입량은 1998~2005년의 월평균 수송량 자료를 사용하였다.

2.2 해수유동 및 해양확산 모델링 결과

부지 반경 80km 영역의 전반적인 해수유동 특성을 살펴보기 위해 2단계 중간역 해수유동장 모델링 결과를 그림 1에 계절별로 제시하였다.

고리 해역에서 2월에 동한난류는 약하게 나타나고 5월에 다소 커지며 8월에 가장 크게 나타나고 있고, 11월에는 다시 약화되는 형태를 보이고 있다. 동해 광역 해수유동 모델 결과(붉은색 화살표)에서는 중간역 모델결과에 비해 동안난류의 크기가 다소 빠른 것으로 나타나고 있다. 또한 광역 모델 결과에 비해 중간역 모델의 결과에서 부산 남서쪽 해역의 남서쪽 방향의 해류 흐름이 더욱

뚜렷이 모의되고 있다. 이러한 남서쪽 해류흐름은 가을철과 겨울철에 다소 강하게 나타나고 있다.

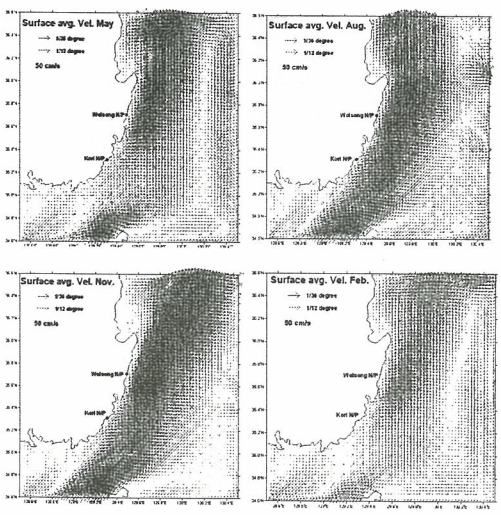


Fig. 1. 고리원전 주변 해수유동장 모델링 결과 (상단 좌측부터 5월(봄), 8월(여름), 11월(가을), 2월(겨울))

평년자료를 이용하여 고리원전 반경 80km 해역에서 모델링한 정상상태에서의 액체 방사성 유출물 해양확산장을 계절별로 그림 2에 제시하였다.

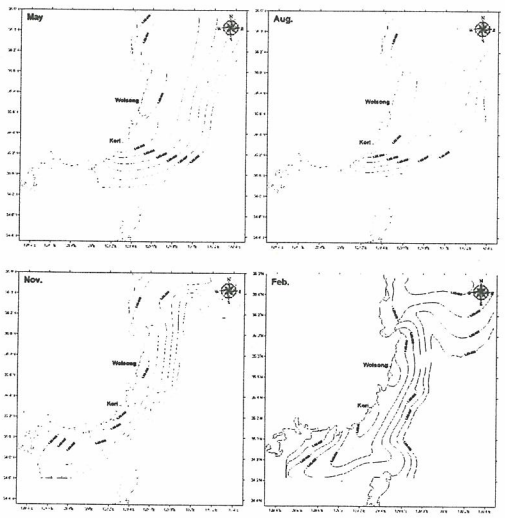


Fig. 2. 고리원전 주변 해양확산장 모델링 결과 (상단 좌측부터 5월(봄), 8월(여름), 11월(가을), 2월(겨울))

평년모델결과를 이용한 고리+월성해역에서 해양확산 모델결과를 살펴보면 가을과 겨울철에는 남북으로 주로 확산이 일어나며, 남쪽 보다는 북쪽으로 보다 더 확산되는 양상을 보이고 있다. 봄철과 여름철에는 남쪽으로의 확산양상은 거의 나타나지 않고 주로 북쪽으로만 확산되는 경향을 보이고 있다. 이러한 확산특성은 동한난류의 세기가 강한 봄과 여름철에는 주로 이류작용이 크게 영향을 미쳐 북쪽으로의 확산양상이 보이고, 그 세기가 약한 가을과 겨울철에는 평년 해수유동 모델결과에서 설명된 부산 남서측에서 나타나는 남서향류의 영향을 받아 남쪽으로의 확산양상이 나타나는 것으로 판단된다.

3. 결론

고리원전 주변의 해양확산 특성을 알아보기 위해 해수유동과 해양확산장을 삼차원 모델을 이용하여 모델링하였다. 고리원전 주변에서의 해양확산 특성은 동안난류와 부산 남서쪽 해역의 남서쪽 방향 해류의 계절 변동에 따라 차이를 보이는 것으로 나타났다. 따라서 고리원전으로부터 배출되는 방사성물질의 해양확산 평가시에는 계절적인 해수유동의 특성을 반영할 수 있는 평가방법이 요구된다.

4. 참고문헌

[1] 한전전력연구원, "원전 액체 방사성 유출물 해양확산 평가기술 개발 최종보고서," 산업자원부, R-2004-A-064, 2006.

[2] Lee, H.J. et al.. "Comparison of RIAMOM and MOM in modeling the East Sea/Japan Sea circulation," *Ocean and Polar Res.*, 25(3) 287-302, (2003).

지중동물의 방사성동위원소 전이계수 측정

전인, 임광묵, 최용호, 금동권, 박두원
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
ijun@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력 시설로부터 누출된 방사성 핵종은 우리 주변의 환경 생태계에 영향을 끼치고 이런 이유로 인하여 인간 중심의 방사선 방호는 점차 환경 전체의 방사선 방호 개념으로 바뀌어져가고 있다. 이러한 생태계 중에서 농작물에 의한 흡수, 억제 및 전이 효과에 대한 연구는 활발한 편이고 많은 연구 결과들이 발표되었다[1]. 그렇지만 여러 가지 동물의 전이계수와 관련된 연구는 농작물에 비하면 아직 초창기 이지만 동물의 근육이나 조개류의 노출에 의한 연구가 있었고, 어류는 무지개 송어의 조직에 대한 흡수 및 감소율 관련 연구도 진행 되었다[2]. 그러나, 대기 중으로 방출된 방사성 동위원소는 반감기에 의해 감소하지 않는 한 여러 가지 영향으로 인하여 토양이나 작물에 침적되고 이는 땅 속에서 생활하는 동물에게는 주 오염원이 되고 있다. 이에, 본 논문에서는 땅 속에서 생활하는 동물의 전이계수 측정 방법과 그 결과에 대해 고찰하고자 한다.

2. 재료 및 방법

2.1 실험동물

지구의 땅속에서 널리 서식하고 있는 지렁이는 땅속에 살고 있는 생물체 전체 무게의 약 80 %를 점유하고 있고 자연 생태계에서 환경생태학적으로 매우 중요한 역할을 수행하는 것으로 알려져 있다. 지구상에 지렁이가 출현한 연대는 약 5~6억 년 전 고생대로 추정되고 전 세계적으로 약 9,000여종이 서식하는 것으로 알려져 있다. 우리나라에는 다모강에 131종, 빈모강에 57종, 질강에 2종으로 모두 190여종이 서식하고 있는 것으로 밝혀졌다.

실험에 사용된 지렁이는 생후 3개월 정도 된 붉은줄지렁이로 학명은 *Eisenia andrei*이고 지렁이목, 낚시지렁이과로 분류하며 크기는 약 4.8~9.5 cm이고 지름은 2.8~4.0 mm(10번째 마디), 2.6~3.5 mm(20번째 마디), 3.3~4.7 mm(환대)이고 등은 붉은 갈색, 배는 노란색을 띠고 있으며 마디 사이에 줄무늬가 없다. 마디 수는 75 ~ 80개이고 우리나라 전역에 비교적 고르게 분포하고 있다

2.2 실험방법

지렁이의 전이계수 측정 실험을 위하여 가로 30 cm, 세로 60 cm, 높이 20 cm 크기의 사육 상자를 제작하여 실험에 사용하였다. 지렁이는 빛을 싫어하는 습성이 있어 사육 상자를 검은색 아크릴로 제작하여 빛을 차단할 수 있도록 하였다. 상자에 투입할 토양과 동위원소를 균일하게 혼합하기 위하여 먼저 500 g의 건조 토양을 곱게 만들어 동위원소와 함께 작은 반구형 혼합기로 섞고 이를 다시 V형 혼합기에서 사육토양 19.5 kg과 골고루 혼합하였다. 실험기간 동안 오염되지 않은 먹이에 의해 방사능 농도가 희석되는 것을 방지하기 위하여 미리 지렁이의 먹이가 될 수 있는 유기질 퇴비를 4 kg씩 혼합하였고 실험기간 동안에는 먹이를 추가로 공급하지 않았다. 토양에 혼합한 동위원소는 ^{137}Cs 및 ^{60}Sr을 9.25 x 10^6 Bq, ^{65}Zn 9.25 x 10^5 Bq를 처리 하였다. 상자 당 9 kg의 물을 토양과 혼합하여 야생의 지렁이 서식 조건과 같도록 수분을 유지하고 상자 당 1 kg씩 투입하여 실험을 진행하였다[그림 1].

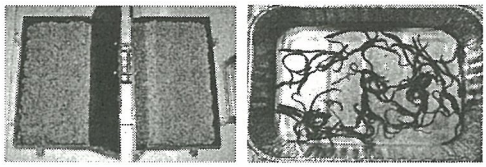


Fig. 1. 지렁이 사육 상자와 붉은줄지렁이

2.3 샘플 및 계측

지렁이 샘플 채취는 약 1주일 간격으로 총 6회 하였으며 회당 평균 약 50 g(약 400 마리)를 취하였고 지렁이 몸속에 있는 분변토 제거를 위하여 24시간 동안 토양이 없는 포획 상자에 보관하여 배설을 할 수 있도록 하였다. 건조된 지렁이의 방사능 농도 측정을 위하여 100 ml vial에 건조된 지렁이를 넣고 무게를 측정한 다음 질산을 시료

가 잠겨 용해 될 정도로 넣고 H^2O^2를 떨어뜨려 용해시킨 후 감마 스펙트로메트리의 계측 효율을 일정하게 하기 위하여 증류수로 전체 무게가 40 g(40 ml)이 되도록 넣어 계측하였다

2.4 결과 및 해석

체내 토양을 배설 한 후의 지렁이 시료 무게는 평균 20~60 g 내외였고 건조 후 무게는 약 2.3~10 g 내외였다. 분석용 지렁이를 채취할 때 일정량의 토양을 같이 취하여 토양의 방사능 농도를 같이 계측하여 지렁이의 전이계수를 구하였다. 실험기간 동안 토양의 방사능 농도는 ^{65}Zn이 1.27 x 10^6~2.55 x 10^6 Bq/Kg, ^{137}Cs이 6.53 x 10^7~1.21 x 10^8 Bq/Kg, ^{85}Sr가 3.53 x 10^7~7.09 x 10^7 Bq/Kg으로 세 핵종 모두 변화의 폭이 크지 않고 거의 일정하게 유지되었다[표 1]. 지렁이의 방사능 농도는 ^{85}Sr가 3.40 x 10^2~6.48 x 10^2 Bq/Kg, ^{65}Zn가 21.7~54.7 Bq/Kg, ^{137}Cs이 65.0~154 Bq/Kg였다[표 2]. 이를 토대로 계산한 지렁이의 CR계수는 그림 2에서 보여준다.

Day / Rad	D7	D14	D22	D30	D43	D58
^{137}Cs	6.53E+07	6.57E+07	1.21E+08	9.40E+07	9.82E+07	9.82E+07
^{85}Sr	3.53E+07	3.76E+07	7.09E+07	5.40E+07	3.05E+07	5.69E+07
^{65}Zn	1.27E+06	1.39E+06	2.55E+06	2.01E+06	2.03E+06	2.06E+06

Table 1. Radioactivity in Soil(Bq/Kg)

Day / Rad	D7	D14	D22	D30	D43	D58
^{137}Cs	9.24E+01	6.50E+01	1.54E+02	1.42E+02	1.44E+02	1.50E+02
^{85}Sr	5.21E+02	3.40E+02	6.48E+02	4.24E+02	4.25E+02	5.43E+02
^{65}Zn	2.17E+01	2.24E+01	5.15E+01	3.94E+01	4.72E+01	5.47E+01

Table 2. Radioactivity in Earthworm(Bq/Kg)

3. 결론

이상의 방법을 통해 우리나라에 널리 분포하고 있는 지렁이를 이용하여 지중동물의 방사성 동위원소의 전이계수를 구하기 위한 실험 결과를 기술하였다. 대부분의 동, 식물 관련 실험이 갖는 문제점이지만 특히 동물은 서식 조건의 충족이 실험의 성공을 좌우한다. 그런 면에서 지렁이는 비교적 생육조건이 까다롭지 않아 이번 실험대상 지중동물로 선정하였다. 실험 결과, 그림 2에 나타난 바와 같이 세 가지 방사성 동위원소 모두 CR 계수가 약간의 변화가 있지만 일정함을 보였다. 이는 지렁이가 흡수할 수 있는 일정양의 방사성 동위원소를 알 수 있고 그 값을 CR 계수로 선정하여 지중동물의 선량평가에 활용할 수 있을 것으로 사료 된다. 하지만, 생육조건, 토양의 농도, 지렁이의 크기에 따라 CR 계수는 달라질 것으로 생각되어 각 단계별로 보다 더 세밀한 실험이 필요할 것으로 사료된다.

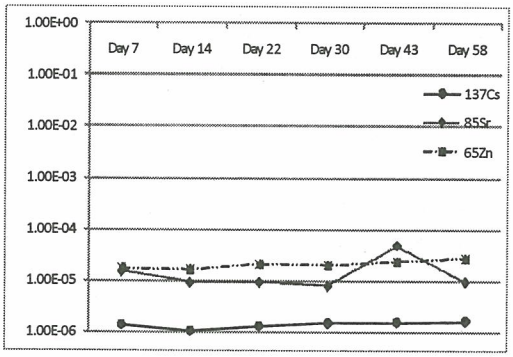


Fig. 2. Concentration Ratio for Earthworm

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 중장기과제로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] Y. H. Choi, K. M. Lim, H. J. Choi, G. S. Choi, H. S. Lee and C. W. Lee, "Plant uptake and downward migration of ^{85}Sr and ^{137}Cs after their deposition on to flooded rice fiends : lysimeter experiments with and without the addition of KCl and lime," Journal of Environmental Radioactivity, 78, pp. 35-49 ,2005.

[2] J. Garnier-Laplace, C. Adam, T. Lathuilliere, J. Baudin and M. Clabaut, "A simple fish physiological model for radioecologists exemplified for ^{54}Mn direct transfer and rainbow trout (*Oncorhynchus mykiss* W.)," Journal of Environmental Radioactivity, 49, pp. 35-53, 2000.

금속환원법과 전해정련법을 이용한 Zircon원광으로부터 원자로급 Zr 제조기술

박경태, Li Hui, Nersysan. H. Hayk, 이종현
충남대학교, 대전광역시 유성구 궁동 220
ktpark@cnu.ac.kr

1. 서론

지르코늄은 중성자의 높은 투과성과 내식성 등 자체의 고유한 여러 성질 때문에 원자로의 연료봉을 피복하거나 우라늄과의 합금에 이용되며, 원자로 내부의 구조물 등의 용도로 매우 중요하게 사용된다. 지르코늄은 고온에서 강도가 좋고, 순환하는 냉각제에 쉽게 부식되지 않으며, 방사성 동위원소를 잘 형성하지 않고, 중성자 조사에 의한 기계적 손상이 작다. 지르코늄과 화학적으로 비슷하며 모든 지르코늄 광석에 들어 있는 하프늄은 열중성자 흡수성이 크기 때문에 지르코늄을 원자로에 이용하기 위해서는 제련과정에서 반드시 제거해야 한다. 지르코늄의 제조는 공업적으로는 크롤법이 이용되고 있다. 즉, 원료광석을 아크로에서 환원시켜 탄소화물과 질소화물을 만들고, 이것을 염소화한 다음 증류 정제하여 순수한 $ZrCl_4$를 얻는다. 이것을 증기로 하여 약 800℃에서 마그네슘과 반응시켜 금속으로 만들고, 이어서 비활성기체 속에서 융해하여 지금으로 만든다. 판·선 등으로 가공하는 순도가 높은 금속(99.8% 이상)은 요오드화지르코늄의 열분해, 염화지르코늄의 용융염전기분해 등에 의해서 만든다 하프늄 함량이 극도로 제한된 지르코늄을 생산하기 위해서는 매우 복잡한 단계를 거치게 된다. 이러한 기존의 지르코늄 제련공정은 독성이 강한 염소가스를 이용한 원광의 염화공정이 반드시 수반되므로 환경오염 우려로 인하여 국내에서의 적용은 현실적으로 어려움이 있다. 따라서 염화공정을 거치지 않고 원광으로부터 직접 원자로급 지르코늄을 제조할 수 있는 기술 개발이 필요하다. 본 연구에서 개발하고자하는 원자로급 지르코늄 제련 기술에 대한 도식을 그림 1에 나타내었다. Zircon원광($ZrSiO_4$)으로부터 금속환원공정 ZrSi를 제조하고 용융염 전해정련 공정에 의해 Zr을 양극용해 시키며, Zr^{+4}/Hf^{+4}의 활성도를 제어하여 Hf의 함량이 제어된 순수한 금속 Zr을 회수하는 방법이다. 본 공정은 기존의 상용 Zr제련 공정에 비하여 독성이 강한 염소가스를 전혀 사용하지 않고, 복잡한 용매추출단계도 필요 없으며 추가적인 환원재의 공급 없이 전해 공정만으로 지르코늄을 생산하므로 기존 공정에 비하여 생산단가를 대폭 줄일 수 있으며, 장비의 부식문제 및 환경오염 우려를 원천적으로 제거할 수 있는 공정이다.

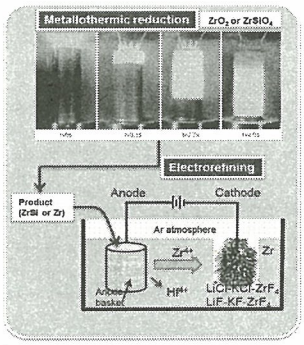


Fig. 1. A diagram of Experimetal Procedure for Zr refining process from Zr ore

2. 본론

2.1 자전연소고온합성법을 이용한 금속환원공정

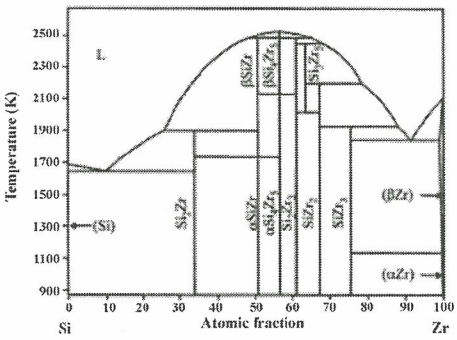


Fig. 2. Binary phase diagram of Zr-Si system

그림 2에 Zr-Si 이원계 상태도를 나타내었다. 고온 합성측면에서 상태도 상 Zr 원자비가 40~70%범위에서 다양한 상이 생성되는 것을 확인 할 수 있다. 후속공정인 전해정련공정에서도 Zr 이온 가수에 따라 전기화학당량 및 전착형상 등의 달라지므로 반드시 전처리 공정에서 고온합성공정

에서 초기장입물에 따른 생성화합물의 정량화된 조건이 필요하다. 그래서 초기장입물의 조건을 $ZrSiO_4$ + 4Mg의 기존조성에 SiO_2 와 ZrO_2를 첨가하여 Zr/Si 원자비(α)를 조절하여 고온합성을 진행하였으며 그 결과 반응부산물의 XRD 분석결과를 Fig. 3에 나타내었다. XRD 분석결과 α가 0.5인 경우 ZrSi와 $ZrSi_2$가 생성되고 잔존 Si가 관찰되었으며, α가 2 일때 ZrSi, Zr_5Si_3, Zr_3Si_2, $Mg_2Zr_5O_{12}$ 상이 관찰되었다. 그리고 α가 1 일때는 ZrSi 단상이 생성되어 후속공정의 재료로 사용하였다.

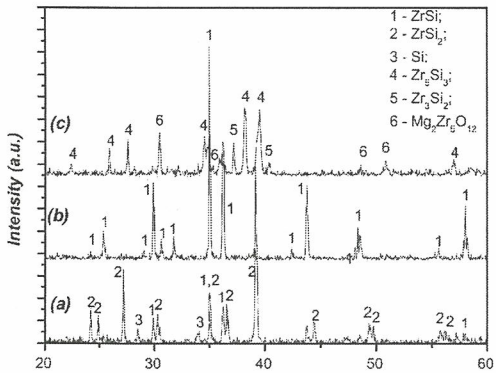


Fig. 3. XRD patterns of metallothermic reduction products: (a) α= 0.5, (b) α= 1.0 and (c) α= 2.0

2.2 전해정련공정을 통한 Zr회수

금속 환원공정으로 제조된 ZrSi 분말을 진공아크용해법으로 버튼형으로 제조하고 이를 양극재료로 사용하여 전착실험을 실시하였다. 전해정련 전후 시편에 대하여 X-선 회절을 통하여 화합물 분석을 실시하고 그에 대한 결과를 그림 5에 나타내었다. 전착실험 결과 ZrSi 초기조성에서 Zr만 선택적으로 회수된 것을 확인 할 수 있었다. 원자로급 Zr 제조의 가능성을 판단하기 위하여 ICP-MS를 이용하여 전착물의 불순물 분석을 실시하였다. 측정결과는 표 1에 나타내었다.

ASTM B349 피복관재료 기준과 비교분석한 결과대부분의 불순원자들은 ASTM B349 허가치 이내로 제한 된 것을 확인 할 수 있었으며, 특히 Hf의 경우 전해정련 이전에 약 3.5%에서 전해정련 이후 70ppm으로 떨어져 전해정련을 통하여 우수한 정련효과가 있는 것을 확인 할 수 있었다.

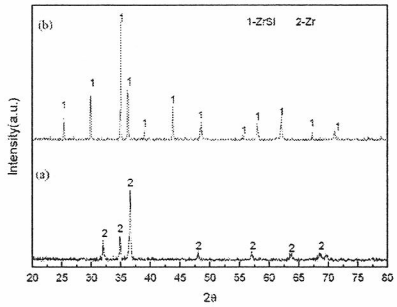


Fig. 4. XRD patterns of the samples before (b) and after (a) electrorefining

Table 1. Impurity concentrations in ZrSi and zirconium deposits after electrorefining

Impurity		Hf	Co	Sn	Ni	Cr	Al	Mg	Mn	Pb
Conc. ppm	ASTM B349 [25]	100	20	50	70	200	90	500	50	100
	Before refining	35200	53	115	142	350	210	350	560	240
	After refining	70	10	<50	50	40	100	290	40	<50

3. 결론

금속환원과 전해정련 공정을 통하여 Zircon원광으로부터 Zr 제조를 실시한 후 결과 자전연소고온합성법으로 성공적으로 $ZrSiO_4$로부터 ZrSi로 환원을 실시하였으며, 환원된 ZrSi는 전해정련 공정을 통하여 성공적으로 Zr을 회수할 수 있었다. 또한 전착물의 불순물분석을 실시한 결과 ASTM B349 피복관 재료에 준하는 우수한 정련효과를 나타내었다.

4. 감사의 글

이 연구는 지식경제부의 재원으로 시행하는 에너지기술평가원의 전력산업원천기술개발사업 연구지원프로그램(No.2010T100100392)으로 지원받았기에 이에 감사드립니다.

5. 참고문헌

[1] ASTM B349, Standard Specification for Zirconium Sponge and Other Forms of Virgin Metal for Nuclear Application, ASTM International, West Conshohocken, PA,USA,DOI: 10.1520/ B0349_B0349M - 09, www.astm.org.

열중성자/감마선 동시측정을 위한 일체형 광섬유 방사선 센서에 대한 연구

한기택, 장경원, 유욱재, 서정기, 문진수, 문주현*, 김신**, 박병기***, 이봉수
건국대학교, 충북 충주시 단월동 322
*동국대학교, 경상북도 경주시 석장동 707
**제주대학교, 제주특별자치도 제주시 제주대학로 102
***순천향대학교, 충청남도 아산시 신창면
bslee@kku.ac.kr

1. 서론

방사선 측정 기술은 방사성 물질의 비파괴 검사의 목적으로 사용되어 왔다 [1]. 특히 핵분열 생성물로 부터 발생되는 중성자와 감마선 등의 방사선 측정은 사용후핵연료(spent fuel, SF)의 안전관리 및 특정핵물질을 검출하는데 있어 매우 중요하다. 그러나 SF 집합체와 같이 협소한 공간에서의 방사선 계측은 매우 어려우며, 그에 따라 높은 유연성과 작은 크기의 방사선 계측기가 요구되고 있는 실정이다. 이러한 환경에서 사용하기 위해서 최근 개발되고 있는 광섬유 방사선 센서는 그 크기가 작고, 유연성이 뛰어나며, 전자기파 영역에서 간섭을 받지 않는 등, 악조건의 방사선 환경에 대해서 많은 장점을 가지고 있다.

본 연구에서는 원자로 내의 중성자/감마선 혼합영역 내에서 열중성자와 감마선을 동시에 원거리에서 측정하기 위한 열중성자/감마선 일체형 광섬유 방사선 센서를 제작하였다. 그리고 제작된 센서를 이용하여 교토대학교 연구용 임계원자로(Kyoto University Critical Assembly, KUCA)에서 연료봉의 중심으로부터 거리에 따른 감마선 및 열중성자의 분포도를 측정하였다.

2. 본론

2.1 실험 재료 및 방법

일체형 광섬유 방사선 센서는 크게 전환체(converter), 유기섬광체(organic scintillator), 광섬유와 광 계측장비로 구성된다. 열중성자를 측정하기 위한 전환체와 유기섬광체로는 ^{6}LiF(Acros Organics)와 BCF-20(Saint Gobain)을 각각 사용하였다. ^{6}Li은 열중성자와의 반응을 통하여 알파입자를 방출하고, 알파입자는 유기섬광체와 반응하여 섬광빛을 발생시킨다. BCF-20은 일반광섬유와 같은 형태인 코어와 클래딩으로 구성되고, 감마선 및 입자방사선들과 반응하여 492 nm에서 최대파장을 갖는 빛을 방출한다. 본 연구에서는 알파입자의 비정(range)을 고려하여 BCF-20의 클래딩 부분을 제거하였다.

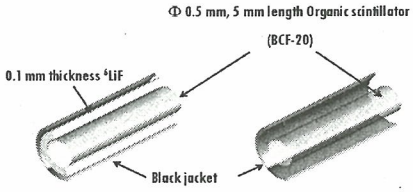


Fig. 1. Structure of the fiber-optic neutron and gamma sensor using ^{6}LiF and BCF-20

그림 1은 ^{6}LiF와 BCF-20을 사용하여 제작한 광섬유 방사선 센서의 구조를 보여주고 있다. 그림 1-(a)의 열중성자/감마선 센서는 5 ㎜의 길이를 갖는 유기섬광체와 그 주위를 0.1 ㎜의 두께로 둘러싸고 있는 ^{6}LiF 전환체로 이루어져 있고, 열중성자와 감마선을 함께 검출한다. 그림 1-(b)의 감마선 센서는 전환체를 제외하고 열중성자/감마선 센서와 동일한 구조를 가지고 있고, 감마선만을 측정하게 된다. 그러므로 ^{6}LiF 전환체가 있는 센서와 없는 센서의 측정값의 차로 열중성자를 측정하게 된다.

체렌코프 빛(Cerenkov light)은 광섬유 방사선 센서를 이용함에 있어서 고려해야 할 사항이다. 체렌코프 빛은 하전입자(charged particle)가 어떠한 매질 속에서 빛보다 빠른 속도로 움직일 때 발생된다. 체렌코프 빛의 파장범위는 상당히 넓지만, 최대파장은 가시광 영역인 400~480 nm의 범위에서 나타나기 때문에 광섬유 방사선 센서의 섬광체에서 발생되는 실제 광 신호의 측정에 어려움을 준다 [1]. 따라서 본 연구에서는 유기섬광체를 사용하지 않은 기준 광섬유(reference optical fiber)를 추가로 사용하여 감법을 이용해서 각 센

서에서 발생되는 체렌코프 빛을 제거하였다.

그림 2는 열중성자와 감마선을 동시에 측정하기 위한 일체형 광섬유 방사선 센서의 구조를 보여주고 있다.

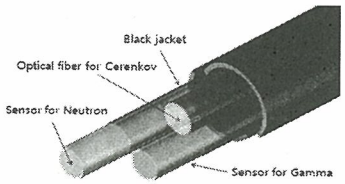


Fig. 2. Structure of the integrated fiber-optic radiation sensor

그림 3은 일본 KUCA에서 수행한 열중성자와 감마선 측정을 위한 실험구성을 보여준다. 광 계측장비로는 위치 민감형 광증배관(H7546, Hamamatu)를 사용하였다. 본 광증배관은 공급전압을 조절하여 섬광빛의 증폭률을 조절할 수 있고, 최대검출파장은 약 420 nm이다. 그리고 광증배관에서 출력되는 전류신호를 전압신호로 변환하여 증폭시키기 위해서 증폭기 시스템을 제작하여 사용하였다. 증폭된 전압신호는 신호수집장치(DAQ board)를 거친 뒤 랩뷰(LabVIEW) 프로그램을 통해 디스플레이 및 저장된다. KUCA에 있는 임계집합체의 연료봉에서 발생되는 열중성자와 감마선의 분포는 일체형 광섬유 방사선 센서와 위치조절장치 그리고 20 m 길이의 광섬유를 사용하여 측정하였다.

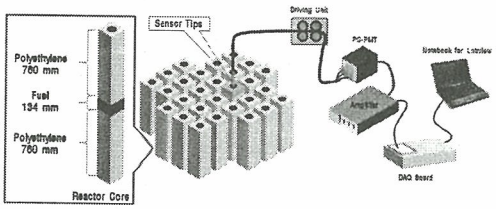
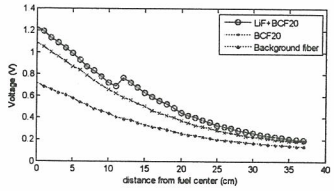


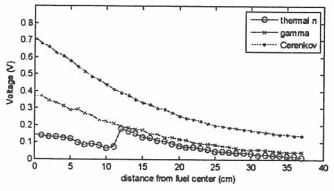
Fig. 3. Experimental set-up for measuring thermal neutrons at KUCA

2.2 실험결과

그림 4는 일체형 광섬유 방사선 센서를 사용하여 측정한 임계집합체의 핵연료봉에서의 열중성자, 감마선 그리고 체렌코프 빛의 분포를 보여주고 있다. 그림 4-(a)는 두 개의 센서와 체렌코프 빛을 감해주기 위해 사용한 기준 광섬유로부터 발생된 각각의 광량을 보여준다. 이 값은 두 센서로부터 계측된 광신호로부터 기준 광섬유에서 측정된 체렌코프 빛을 감해주지 않은 값이다. ^{6}LiF와 BCF-20으로 구성된 열중성자/감마선 센서에서 가장 큰 광량이 계측되는 것을 확인할 수 있다. 그림 4-(b)는 감마선과 체렌코프 빛을 제거한 열중성자 그리고 감마선과 체렌코프 빛의 분포를 보여주고 있으며 실험결과, 열중성자의 피크는 연료봉의 중심으로부터 13 cm 떨어진 곳에서 측정되었다.



(a)



(b)

Fig. 4. Measurement of the distributions of thermal neutron, gamma-rays, and Cerenkov lights using integrated fiber-optic radiation sensor for the detection of neutrons and gamma-rays

3. 결론

감마선을 동반한 열중성자의 계측은 사용후핵연료의 안전관리와 특정 핵 물질을 모니터링 하는 데에 있어서 매우 중요하다. 본 연구에서는 열중성자/감마선 측정용 일체형 광섬유 방사선 센서를 제작하였고, 중성자/감마선 혼합영역에서 열중성자와 감마선을 분리하여 동시에 측정하였다. 일체형 광섬유 방사선 센서는 높은 공간분해능을 가지고 있고, 실시간 측정이 가능하므로 사용후핵연료의 안전관리와 특정 핵물질을 모니터링하기 위해 사용할 수 있을 것으로 기대된다.

4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 연구지원프로그램으로 지원받았습니다. (M2009-0078227)

5. 참고문헌

[1] B. Lee, K. W. Jang, D. H. Cho, W. J. Yoo, G.-R. Tack, S.-C. Chung, S. Kim, and H. Cho, 2007b. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A. vol. 579, pp. 344-348.

울진부지 액·기체 방사성폐기물 배출량 평가

손중권, 김민철, 강기두
한국수력원자력(주) 원자력발전기술원, 대전시 유성구 금병로 508
jkson1@khnp.co.kr

1. 서론

원전가동에 따른 방사선 환경영향은 기체, 액체 및 고체 방사성물질의 배출로 인한 영향으로 구분할 수 있다. 고체 방사성폐기물의 경우 발전소 내 저장고에 저장하기 때문에 소외로 배출될 가능성이 거의 없으나 액·기체 방사성폐기물은 그만큼 배출에 의한 환경영향 평가가 중요하다고 할 수 있다. 본 논문에서는 울진부지에서 배출된 액·기체 방사성폐기물 배출량을 분석하였으며, 이를 바탕으로 부지경계에서의 배출 방사성물질의 농도를 평가하여 법적 제한치와 비교하였다.

2. 본론

기체 및 액체 배출물의 소외 배출에 대한 제한치는 교육과학기술부 고시 제2009-37호[1]에서 정하는 부지경계구역에서의 배출관리기준(별표3의 제1란의 당해 방사성핵종에 대한 제5란과 제8란의 농도)이다. 이 기준은 일반인에 대한 선량 제한치로부터 도출된 것으로 전체 부지에 대한 기준이다. 따라서 울진1발전소, 울진2발전소 및 울진3발전소 각각의 방사능 방출량을 분석하고 이를 토대로 울진부지 전체호기의 방사능량을 계산하여 배출관리기준 만족여부를 평가하였다. 평가에 활용된 자료는 2000년 ~ 2009년까지 10년간 발간된 방사선관리연보[2]의 기체 및 액체상 방사성물질의 연도별 배출량 측정기록이다.

부지경계에서의 기체 방사성물질의 농도는 핵종별 연간 기체 방사성물질 배출량과 최대 대기확산인자값을 곱하여 구하며 수식 (1)과 같다.

○ 부지경계의 기체 방사성물질의 농도(TBq/㎥)

$$= \text{기체방사성물질배출량}(TBq/yr) \times \text{대기확산인자}(\sec/m^3) \times \frac{1yr}{(365\times24\times60\times60)\sec} \quad \cdots\cdots (1)$$

부지경계에서의 액체 방사성물질의 농도는 핵종별 연간 액체 방사성물질 배출량에 대해 방사선관리연보에 제시된 희석수량과 울진부지에 맞게 수정된 K-DOSE60[3]에서 제시된 희석인자 2를 적용하여 부지경계에서의 농도를 구하며 수식 (2)와 같다.

○ 부지경계의 액체 방사성물질의 농도(TBq/㎥)

$$= \text{액체방사성물질배출량}(TBq/yr) \times \frac{1}{\text{희석수량}(m^3/\sec)} \times \frac{1yr}{(365\times24\times60\times60)\sec} \times \frac{1}{2} \quad \cdots\cdots (2)$$

방사성물질의 종류를 알고 있는 핵종이 2종 이상일 경우 각 핵종별 농도는 물론 배출되는 핵종별 방사능 농도와 배출관리기준의 비의 합계가 1 이하가 되도록 핵종별 농도 기준치도 준수해야 한다. 핵종별 배출량을 가중치로 하여 계산한 혼합허용농도와 각 핵종별 부지경계농도의 합으로 계산한 혼합농도는 식(3), (4)와 같으며 기체 방사성물질과 액체 방사성물질에 대해 공통으로 적용한다.

○ 혼합허용농도(TBq/㎥)

$$= \sum_{\text{핵종}_i}^{\text{전체핵종}} \left[\text{핵종}_i\text{의 배출관리기준}(TBq/m^3) \times \frac{\text{핵종}_i\text{의 배출량}(TBq/yr)}{\sum_{\text{핵종}_i}^{\text{전체핵종}} (\text{핵종}_i\text{의 배출량}(TBq/yr))} \right] \quad \cdots\cdots (3)$$

○ 혼합농도(TBq/㎥)

$$= \sum_{\text{핵종}_i}^{\text{전체핵종}} \left[\text{핵종}_i\text{의 부지경계에서의 농도}(TBq/m^3) \right] \cdots (4)$$

평가기간 동안의 울진 1,2,3,4,5,6호기에서 기체형태로 배출된 주요핵종은 H-3, Xe-133, I-133 등이며 평가기간 중의 연간 배출량에 대한 변화추이를 분석한 결과 증가 또는 감소 추세의 경향은 없었다. 각 핵종의 부지경계농도를 배출관리기

준과 비교해 보면 기체 방사성물질 배출에 의한 부지경계에서의 농도가 고시의 배출관리기준을 만족하고 있으며 그 값은 기준치 대비 1% 이하로 낮게 관리되고 있음을 알 수 있었다.

평가기간 동안의 울진 1,2,3,4,5,6호기에서 액체형태로 배출된 주요핵종은 H-3, I-131, Co-60 등이며 배출방사능의 대부분을 H-3이 차지하고 있다. 각 핵종의 부지경계농도를 배출관리기준과 비교해 보면 액체 방사성물질 배출에 의한 부지경계에서의 농도가 고시의 배출관리기준을 만족하고 있으며 그 값은 기준치 대비 1% 이하로 낮게 관리되고 있음을 알 수 있었다.

2000년부터 2009년까지 방출된 핵종들 중 방출량 및 선량기여도가 상대적으로 큰 핵종인 삼중수소에 관한 연도별 방출량을 그림 1과 그림 2에, 기준치 대비 연도별 농도분포를 그림 3과 그림 4에 나타내었다. 그림 3에서 볼 수 있듯이 10년간 기체 삼중수소의 부지 경계농도의 범위는 1.78E-12~1.45E-11 TBq/m^3으로 기준치(3.00E-09 TBq/m^3) 대비 약 0.06~0.48% 수준이다. 10년간 액체 삼중수소의 부지 경계농도의 범위는 9.29E-09~1.14E-07 TBq/m^3으로 기준치(4.00E-05 TBq/m^3) 대비 약 0.02~0.28% 수준임을 그림 4에서 볼 수 있다.

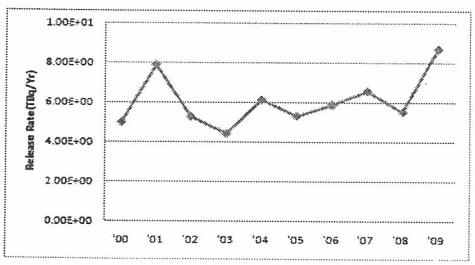


Fig. 1. Gaseous H-3 Release per Year

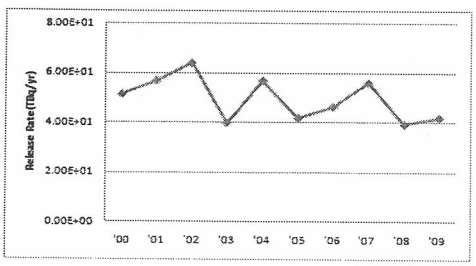


Fig. 2. Liquid H-3 Release per Year

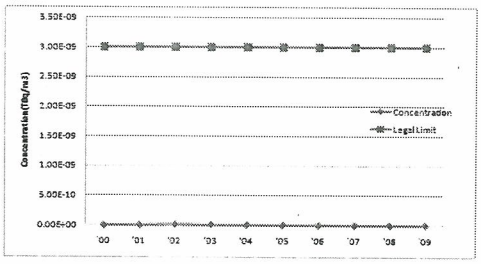


Fig. 3. Legal Limit and Concentration of Gaseous H-3

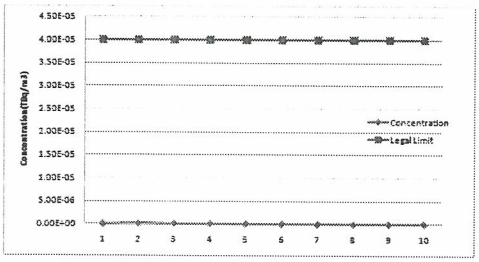


Fig. 4. Legal Limit and Concentration of Liquid H-3

3. 결론

울진부지에서 2000년부터 2009년까지 배출된 기체 및 액체 방사성물질 배출량을 평가하였다. 기체배출물의 주요 핵종은 H-3, Xe-133, I-133 등으로서 부지경계 농도가 교육과학기술부 고시 제2009-37호의 배출관리기준에 비해 1% 이내의 수준으로 관리되고 있었으며, 액체배출물의 주요 핵종은 H-3, I-131, Co-60 등으로서 대부분 H-3였으며 부지경계 농도가 교육과학기술부 고시 제2009-37호의 배출관리기준에 비해 1% 이내의 수준으로 관리되고 있었다. 울진원전은 방사성폐기물 배출관리를 규정에 따라 수행하여 배출량을 최소화하고 법적 기준치를 충족하고 있음을 알 수 있었다.

4. 참고문헌

[1] 교육과학기술부 고시 제2009-37호(방사선방호 등에 관한 기준 고시), 2009.

[2] 한수원(주), 원자력발전소 방사선관리연보, 2000~2009.

[3] 한전전력연구원, 원자력발전소 주변 주민선량 계산지침서 Rev.2, 2003.

저준위 감마선 조사장치 조사시간 오차 감소방안

원유호, 조문형, 고종현
한수원(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 금병로 508
won8387@khnp.co.kr

1. 서론

원자력발전기술원은 방사선 분야의 국제공인 교정기관(KOLAS)[1]으로 인정받아 원전 방사선계측장비에 대한 교정을 수행하고 있으며 개인자동선량계 및 TLD 등의 기준 조사를 위하여 ^{137}Cs 선원이 장착된 감마선 조사장치를 사용하고 있다.

이러한 조사장치는 셔터 개폐와 타이머 개시, 종료 시간 등의 불일치에서 기인한 오차가 발생할 수 있어 개인선량계의 교정 및 TLD 기준조사 시 이러한 시간 오차에 대하여 적절한 보정을 하여야 한다.

본 실험에서는 ^{137}Cs 185 MBq 이 장착된 저준위 조사장치에 대하여 이온 전리함을 이용하여 서로 다른 시간 동안 감마선 조사 시 발생하는 전위차를 측정하고 이를 비교하여 조사 시간 보정 값을 산출하였다.

2. 본론

감마선 조사장치에 장착된 185 MBq 선원을 대상으로 조사시간 오차를 다음과 같이 측정하였다

첫째, 이온 전리함을 교정대에 위치시킨 후 이온 전리함의 중심점을 감마선 조사장치의 레이저와 정렬하였다.

둘째, 전위 측정 프로그램을 이용하여 선원을 인출하지 않은 상태로 5회 측정 평균하여 배경값을 산출하였다.

셋째, 선원을 인출하여 100 초간 5회 조사하여 측정된 값을 평균하였다.

넷째, 선원을 50초 인출하여 조사한 후 다시 50초를 인출하는 방법으로 합계 100 초를 인출하여 각각 5회 조사, 측정된 값을 평균하였다. 이 때 최종 측정 값은 배경값을 보정하여 얻어진 값으로 하였다.

측정에 사용된 챔버는 Exradin 사의 A7(3ℓ)이며, -500 V 의 고전압을 챔버 벽에 인가하여 측정하였다[1]. 측정 시간은 챔버의 체적, 축전기 용량 및 측정 전압 등에 의하여 결정되며, 전압 측정장치의 측정범위(2 V) 중 일반적으로 정확도가 가장 좋은 1 V 근방에서 측정을 수행할 수 있도록 축전기 용량(47.995 pF)을 고려하여 100 초를 산출하였다.

전리함에 의하여 측정된 전류 즉 시간에 따른 전위의 변화는 동일한 전리함 및 축전기를 사용할 경우 측정 시간과 무관한 일정한 값을 나타내게 된다. 즉 식 (1)의 관계가 성립된다[2].

$$I_1 = I_2 = \frac{CV_1}{t_1} = \frac{CV_2}{t_2} \quad \cdots\cdots (1)$$

여기서 t_1 및 t_2 는 측정 시간이며, V_1 및 V_2 는 각각 t_1 및 t_2 시간 동안 발생된 전위차이다.

본 실험에서는 t_1 및 t_2 를 각각 100 초 및 50 초 2회로 설정하여 동일한 100 초를 조사하는 것으로 설정하였으나 실제로 t_1과 t_2에는 각각 1 회와 2 회의 Δt(보정해야 할 시간오차)가 포함되어 있다. 이러한 관계를 식으로 표시하면 아래와 같다.

$$\frac{CV_1}{100+\Delta t} = \frac{CV_2}{50+50+2\Delta t} \quad \cdots\cdots (2)$$

위 식을 Δt 에 대하여 정리하면 아래 식과 같으며, 측정에서 얻어진 V_1과 V_2를 대입하여 보정하여야 할 조사시간 오차 Δt 를 구할 수 있다.

$$\Delta t = 100 \times \frac{V_1 - V_2}{V_2 - 2V_1} \quad \cdots\cdots (3)$$

185 MBq 에 대하여 100 초간 측정한 결과를 Table 1에 나타내었으며, 1회의 Δt 가 포함되어 있다.

Table 1. Measured Values (185 MBq 100 s)

측정전압$V_{1(i)}$ (V)	인출시간(초)	환경보정인자	측정전류(A)
1.020 21	100	1.009 34	2.43E-13
1.024 14	100	1.009 47	2.44E-13
1.025 89	100	1.009 51	2.45E-13
1.029 20	100	1.009 58	2.46E-13
1.027 47	100	1.009 70	2.45E-13
평균(V)		1.025 38	
표준불확도(V)		0.003 45	
상대표준불확도(%)		0.3	

1) KOLAS : Korea Laboratory Accreditation Scheme

상기와 같은 방법으로 연속 2 회 50 초를 측정한 결과를 Table 2에 나타내었으며, 실제 전하가 수집된 시간은 50 초 + 50 초 + 2Δt 이다.

Table 2. Measured Values (185 MBq 50 s + 50 s)

측정전압$V_{2(i)}$ (V)	인출시간(초)	환경보정인자	측정전류(A)
1.033 57	50 + 50	1.009 77	2.47E-13
1.031 05	50 + 50	1.009 83	2.46E-13
1.034 43	50 + 50	1.009 97	2.47E-13
1.027 63	50 + 50	1.010 02	2.45E-13
1.032 86	50 + 50	1.009 99	2.46E-13
평균(V)		1.031 90	
표준불확도(V)		0.002 70	
상대표준불확도(%)		0.3	

선원을 인출하지 않은 상태에서 동일한 용량의 축전기를 사용하여 배경값을 측정하였으며, 측정된 결과를 Table 3에 나타내었다.

환경보정인자는 측정 시의 대기압 및 온도에 의한 밀도 변화를 보정하기 위하여 사용되는데 온도 및 기압 측정값을 전위 측정 프로그램에 입력하여 계산하였다.

Table 3. Measured Values (BKG 100 s)

측정전압$V_{(b)}$ (V)	인출시간(초)	환경보정인자	측정전류(A)
0.005 25	100	1.010 11	1.24060E-15
0.005 76	100	1.010 19	1.35967E-15
0.005 66	100	1.010 25	1.33592E-15
0.005 10	100	1.010 26	1.20453E-15
0.005 56	100	1.010 23	1.31207E-15
평균(V)		0.005 46	
표준불확도(V)		0.000 28	
상대표준불확도(%)		5.1	

최종 측정값(V_1 및 V_2)은 최초 측정값(표 1의 $V_{1(i)}$ 및 표 2의 $V_{2(i)}$)에 배경값(표3의 $V_{(b)}$)을 보정하여 산출하였다.

위에서 측정된 값을 식 (3)에 대입하여 다음과 같이 조사시간 보정값(Δt)을 산출하였다.

$$\Delta t = 100 \times \frac{1.019\ 92 - 1.026\ 44}{1.026\ 44 - 2 \times 1.019\ 92} = 0.6\ s$$

측정에서 고려하여야 하는 불확도 요인을 Table 4에 나타내었으며 자유도 4에 해당하는 t 값(2.78)을 상대합성 표준 불확도에 곱하여 확장 불확도를 산출하였다.

측정전압에 대한 불확도는 전압 값에 대한 표준편차를 평균값으로 나누어 상대표준 불확도로 표시하였다.

전압 측정 장치의 불확도는 제작사가 제시한 값을 인용하여 산출하였으며, 환경보정인자에 대한 불확도는 측정에 사용된 기압계 및 온도계의 성적서 상에 표기된 불확도를 합성하여 산출하였다.

Table 4. Estimated Uncertainty

불확도 요인	추정값	상대표준 불확도(%)	확률분포	자유도
측정전압	1.020 21 ~ 1.034 43	0.3	t	4
전압 측정장치	1.0	0.03	직사각형	∞
환경보정인자	1.009 34 ~1.010 26	0.01	직사각형	∞
상대합성표준 불확도 (%)	-	0.3	-	4
확장불확도 (%)	-	0.8	-	-

측정결과 조사시간 보정값은 0.6 초로 산출되었으며 이는 100 초를 조사하고자 할 경우 0.6 초를 보정하여 99.4 초를 설정하여야 함을 의미한다.

측정 결과 산출된 보정시간(Δt)이 조사장치 타이머의 최소 표시단위인 1초보다 작으므로 실제로 -1 초를 보정하여야 하며, 나머지 0.4 초를 아래의 식 (4)에 따라 불확도로 평가하여야 한다.

$$\frac{0.4\ s}{200\ s \times \sqrt{3}} \times 100 = 0.1\ \%\ ^{[3]} \quad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots (4)$$

3. 결론

산출된 보정 시간은 개인선량계 교정 및 TLD 기준 조사 시 보정하여야 하며, 조사시간 보정으로 인한 불확도 값은 약 0.1 % 로 전체 불확도에 미치는 영향은 매우 작은 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

[1] Standard imaging, Exradin Ionization Chamber User's manual, pp 5-8.

[2] Glenn F. Knoll, Wiley, 2000, Radiation detecton and measurement 3rd, pp 138-140.

[3] KASTO 02-26-1030-042, 이온전리함형 선량계의 표준교정절차 pp 16.

VISTA ITL을 이용한 정지냉각계통(RCS) 흡입관 파단모의 시험

민병연, 박현식, 신용철, 최남현, 이성재
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 대덕대로 1045
bymin@kaeri.re.kr

1. 서론

SMART-330은 VISTA의 기준 원전인 SMART-P와 상이한 설계 특성을 가지고 있다. VISTA ITL의 SMART-330 대비 길이비 및 유량 면적비는 각각 1/2.77 및 472.9로 SMART-330에 대비한 기준 부피비는 1/1310이다. 기준 길이와 유동 단면적으로는 각각 노심-증기발생기 중심간 높이차 및 Active core의 유동 단면적을 채택하였다. VISTA ITL은 3단계 척도법[1]에 따라 축척되었다. VISTA-ITL 시험장치의 구성은 설정된 압력 및 온도 조건에서 열을 발생하는 일차계통, 운전조건에 따라 일차측의 열을 적절하게 제거하는 이차계통, 원자로 정지시 피동적인 자연순환을 이용하여 일차계통의 잔열을 제거하는 피동잔열제거계통, 계통의 전반적인 운전 변수를 감시하고 자료를 수집하는 자료처리 및 보호 계통, 그 밖에 계통에 공급되는 전기, 공기, 냉각수 등을 공급하는 보조계통 증기 가압기, 안전주입계통, 피동잔열제거계통 보충탱크 및 관련 배관, 파단모의를 위한 파단모의계통 및 파단유량측정계통으로 구성되어 있다. **Fig. 1**은 VISTA ITL의 개략도이다.

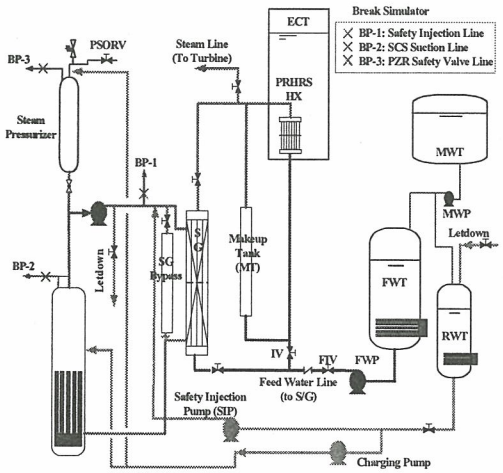


Fig. 1. Schematic diagram of VISTA-ITL facility

일체형원자로의 정상운전 및 과도상태에서 나타나는 물리적 현상에 대한 TASS/SMR-S 코드의 예측 능력에 대한 검증을 위해 열수력 종합효과 시험장치 (VISTA ITL)를 활용하여 다양한 파단 위치에서의 SBLOCA 모의시험을 수행하였다. SBLOCA 모의시험 중에서 정지냉가계통 흡입관 양단 파단을 모의하는 SB-SCS-01 시험은 VISTA ITL을 이용한 SBLOCA 검증시험 시험절차서[2]에 따라 수행되었다.

2. 본론

Table 1은 SBLOCA 모의실험 SB-SCS-01에서의 주요 사건 전개 과정이다.

Table 1. Major sequence of event for SB-SCS-01

Event	Set-point	Time after break (s)
Break occur	-	0
ReachLPPset-point	12.13 MPa	130
LPP reactor trip signal	LPP+0.66 s	
- FW Stop	-	131
-Pump Coastdown	-	131
Reactor Trip	LPP+0.96 s	132
PRHR actuation signal	LPP+1.32 s	132
PRHRS IV open	PRHRSAS+3.0 s	142
MSIV/FIV close	PRHRSAS+9.0 s	151
Safety injection signal	10.0 MPa	539
Safety injection start	SIAS+18.03 s	556

정지냉각계통 흡입관 양단 파단 발생 후 130 초 후에 가압기의 압력(PT-PZR-01)이 가압기 저압력(LPP) 정지 설정치 압력인 12.13 MPa에 도달하면 가압기 저압력에 의한 원자로 정지신호가 발생하였고, 급수유량은 131초에 공급이 중단되었고, 원자로 냉각재펌프는 131초부터 관성서행을 시작하였다. 노심 출력은 131 초부터 급격히 감소함을 보여주고 있으며, 피동잔열제거계통 작동신호(PRHRSAS)가 132초에 발생되었다. PRHRS 격리밸브의 개방은 142초에 이루어졌고, 급수관 및 주증기관 격리밸브의 폐쇄는 151초에 이루어졌다. 원자로용기의 압력(PT-BPV-01)이 539 초에 10.0 MPa 이하로 감소되면서 안전주입 작동신호(SIAS)가 발생한다. 안전주

입 작동신호 발생 후 약 17 초 이후인 556 초에 안전주입이 시작된다. **Fig.2**는 원자로 냉각재 계통의 압력을 보여주고 있다. 정지냉각계통 흡입관 파단사고(SCS break)가 발생하면 정상상태의 가압기 압력(15.0 MPa)이 감소하기 시작하여 LPP에 의한 원자로 정지신호가 발생되면 소외전원이 상실사고가 발생되며, 급수 유량이 중단되고 원자로 냉각재 펌프는 관성서행을 시작한다. 정지냉각계통 흡입관 파단사고 발생 후 130 초 뒤에 가압기 저압력 설정 값인 12.13 MPa에 도달하였으며, 이어서 가압기 저압력(LPP) 원자로 정지신호가 발생됨을 알 수 있다. LPP 신호 발생 후 압력이 11.3 MPa까지 감소한 후 다시 11.47 Mpa까지 증가한 후 서서히 감소하는 경향을 보여주고 있다.

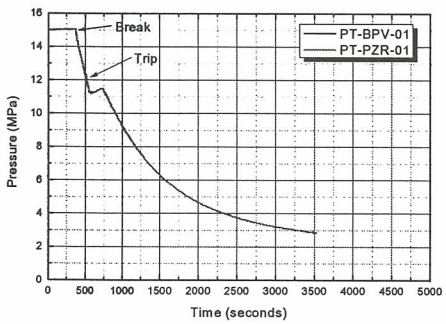


Fig. 2. Primary system pressure

Fig.3은 노심 입구의 원자로 냉각재 유량으로서 원자로냉각재펌프에 의해 정상상태 시 2.63 kg/s로 공급되고 있다. SCS break 발생 후 약 131 초 후(DAS 시간: 512 초)에 원자로냉각재계통 유량이 정상상태 값의 20% 이하로 급격히 감소하는 것을 보여준다. 시험시작 후 554 초에는 유량이 계측 가능한 유량 범위 이하로 낮아졌다.

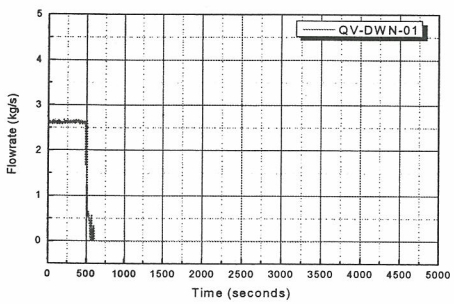


Fig. 3. Primary system flow rate

Fig.4는 원자로용기와 가압기의 수위 변화를 보여주고 있다. 노심을 포함하는 원자로용기 수위는 break 시점부터 조금씩 증가하다 펌프 Coastdown이 시작되는 시점(약 131초)에는 급격히 상승한다. 안전주입수가 주입(556 초)된 이후에도 수위는 감소하여 최소 수위 1.9 m까지 감소한 후 약 1450 초부터 회복이 시작되었다.

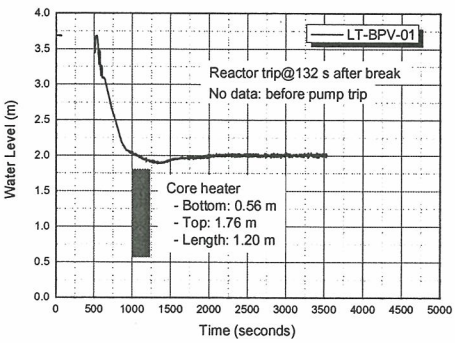


Fig. 4. Primary system water level

3. 결론

정상상태 조건은 실험요건서에 제시된 시험 초기 조건을 만족시키도록 운전되었으며, 노심 출력 및 안전주입 유량 등의 경계 조건도 적절히 모의되었다. 정지냉각계통 흡입관에서의 파단, 히터 트립 및 잔열곡선 인가, 급수 중단, 펌프 Coastdown, PRHRS의 작동, 안전주입수의 주입이 SBLOCA 시나리오에 따라 적절히 모의되었다. 파단유량이 적절히 측정되었으며, 일차계통 및 이차계통에서 압력의 재가압 현상이 일어났다. PRHRS 자연순환 유량은 이차계통 정격 유량 대비 최대 11.0%로 공급되어 안정적인 자연 순환 유동이 형성되었다. 정지냉각계통 흡입관 양단 파단에 대한 실험 결과는 SMART 원자로의 사고 모의 조건을 적절히 모의하는 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

[1] Ishii, M. and Kataoka, I. 1983. Similarity Analysis and Scaling Criteria for LWRs Under Single Phase and Two-Phase Natural Circulation. NUREG/CR-3267, ANL-83-32, Argonne National Laboratory.

[2] 박현식 외, VISTA ITL을 이용한 SBLOCA 검증시험 시험절차서, 751-TF440-001, 한국원자력연구원, 2010.

저선량 측정시 GM tube의 상대오차 및 분산계수 평가

조문형, 원유호, 맹성준
한수원(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 장동 25-1
02190559@khnp.co.kr

1. 서론

감마선 서베이미터는 공간 방사선량률을 측정하는 계측기로 GM tube, 이온전리함 및 섬광물질 등을 검출기로 사용한다.

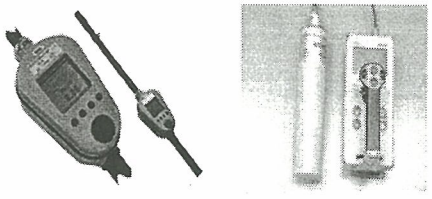
이중 가장 일반적으로 사용되는 검출기는 GM tube와 섬광물질인데 GM tube는 Ne, Xe 등 내부가 불활성가스로 채워져 있어 방사선과 상호작용할 확률이 고체인 섬광물질에 비해 낮으며 저선량 측정시에는 자연방사선 준위의 영향으로 정확한 측정값을 얻기 어렵다. 따라서, GM tube로 제작된 검출기는 주로 고준위, 중준위 측정용으로, 섬광물질로 제작된 검출기는 10 uSv/h 이하의 저선량 측정용으로 사용된다.

본 논문에서는 GM tube로 제작된 감마서베이미터에 대하여 관련 국제 규격인 IEC 60846에서 제시하는 10 uSv/h 이하의 저선량 범위에서의 상대오차와 분산계수를 정량적으로 산출하여 기준 만족여부를 평가하고 섬광물질과의 측정값을 비교함으로써 저선량측정시 보다 신뢰성 있는 측정결과를 얻을 수 있는 방안을 제시하고자 한다.

2. 본론

2.1 실험 대상

실험에는 국내 원전에서 가장 많이 사용되고 있는 Teletector 타입 감마서베이미터(Fig 1.(a))와 저준위 감마서베이미터(Fig 1.(b))를 사용하였으며 각각의 검출기 제원은 Table.1과 같다.



(a) (b)

Fig. 1. Pictures of gamma survey meters; (a) Teletector, (b) Low-range survey meter

Table 1. Specifications of detectors

Specification	GM tube	Scintillator
Detector Material	Ne Gas	NaI(Tl)
Sensitivity	18 cps/mR/hr	20,000 cps/mR/hr
Diameter	15.1 mm	51 mm

2.2 상대오차 및 분산계수 산출

감마선 서베이미터에 저선량의 방사선을 조사시키기 위하여 ^{137}Cs 선원 185 MBq이 내장된 조사장치를 사용하였다.

조사장치의 교정성적서에 명시된 공기커마율에 ^{137}Cs선원의 붕괴보정상수를 적용하여 실험을 수행한 날짜에서의 공기커마율을 산출하였으며, 이 값에 ISO 4037-3에서 제시하는 ^{137}Cs에 해당하는 선량환산인자 1.2 Sv/Gy를 적용하여 공기커마율(Gy/h)을 주변선량당량율(Ambient dose equivalent, Sv/h)로 환산하여 기준값으로 정하였다[2].

각각의 서베이미터에 0.8 uSv/h~10 uSv/h를 조사시켰으며 저선량에서의 상대오차를 세부적으로 산출하기 위해 2 uSv/h 이하에서는 0.1 uSv/h ~0.3 uSv/h 단위로 선량률을 감소시켜가며 측정했다.

각각의 선량률에서 10회의 측정값을 구하였으며 상대오차는 기준값에 대한 측정값의 평균을 비율로 산출하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

Table 2. Relative error of detectors

Reference Dose rate (uSv/h)	Relative error(%)		Limits (%)
	GM tube	Scintillator	
7	2.74	-3.46	±20
5	0.32	-2.58	±20
3	9.10	-1.84	±20
2	4.44	-6.36	±20
1.8	-14.29	-6.17	±20
1.5	14.72	-5.25	±20
1.2	4.82	-4.71	±20
1.0	5.29	-4.79	±20
0.9	16.21	-3.26	±20
0.8	-18.64	-2.91	±20

또한, 각각의 측정 지점에서 측정값의 통계적인 변화량을 알아보기 위해 다음의 식으로 분산계수를 산출하였으며 그 결과를 Table 3에 나타내었다[1].

$$u = \frac{1}{\bar{x}}\sqrt{\frac{1}{n-1}\sum_{i=1}^{n}(x_i-\bar{x})^2}\times 100 \quad \cdots\cdots\cdots\cdots (1)$$

여기서, x : 측정값
x_i : 측정값의 평균
n : 측정횟수

Table 3. Coefficients of variation of detectors

Reference Dose rate (uSv/h)	Coefficients of variation(%)		Limits (%)
	GM tube	Scintillator	
7	1.49	0.08	9
5	2.01	0.06	11
3	2.99	0.14	13
2	7.69	0.19	14
1.8	5.85	0.22	14.2
1.5	5.46	0.17	14.5
1.2	8.74	0.26	14.8
1.0	7.44	0.46	15
0.9	9.69	0.36	15
0.8	12.13	0.44	15
Background	19.59	0.54	-

2.3 결과 및 고찰

실험을 통해 얻은 GM tube와 섬광물질 각각의 상대오차를 그래프로 도식하여 비교하면 다음과 같다.

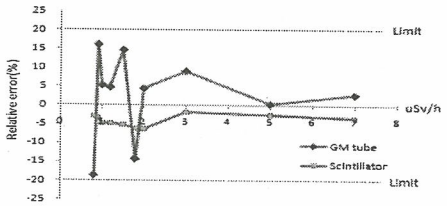


Fig. 2. Relative error of detectors

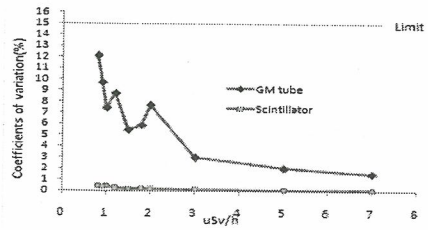


Fig. 3. Coefficients of variation of detectors

Table 2, 3을 통해 GM tube와 섬광물질의 상대오차와 분산계수 모두 IEC 60846의 기준을 만족함을 알 수 있었다.

Table 2에서 GM tube의 경우 3 uSv/h 이상에서는 상대오차의 크기에 큰 변화가 없었으나 3 uSv/h 미만에서는 최대 18.6% 까지 변화하였으며, 섬광검출기는 실험이 이루어진 전체 범위에서 7% 미만으로 상대오차가 산출되었다. 또한, Table 3에서 두 서베이미터 모두 선량률이 낮아질수록 분산계수가 커지는 경향을 보였으며 GM tube는 1.49%~12.13%, 섬광검출기는 0.08%~0.44%로 GM tube가 섬광검출기에 비해 최대 11% 가량 분산계수가 높게 산출되었다.

3 uSv/h 미만에서 GM tube의 상대오차와 분산계수가 커지는 이유는 기준 선량률이 낮아질수록 자연방사선 준위의 분산계수가 측정값에 미치는 영향이 섬광검출기보다 커지기 때문으로 판단된다.

실험 결과를 토대로 GM tube로 제작된 서베이미터로 저선량을 측정할 경우 3 uSv/h 이상에서는 상대오차와 분산계수의 영향이 적지만 3 uSv/h 미만의 범위에서는 서베이미터의 지시값에 상대오차와 분산계수의 영향을 고려하여야 보다 신뢰성 있는 측정결과를 얻을 수 있음을 알 수 있었다.

3. 결론

저선량 측정시 GM tube와 섬광검출기의 상대오차 및 분산계수를 평가한 결과 실험이 이루어진 전체 범위에서 국제규격 IEC 60846의 기준을 만족하지만 GM tube는 3 uSv/hr 미만에서 섬광검출기에 비해 상대오차와 분산계수가 큰 것으로 나타났다. 따라서 GM tube로 제작된 서베이미터로 3 uSv/h 미만을 측정할 경우 보다 신뢰성 있는 결과를 얻기 위해서는 상대오차와 분산계수를 고려해야 하며 보다 정확한 측정결과을 얻기 위해서는 측정특성이 상대적으로 우수한 섬광물질로 제작된 계측기를 사용하는 것이 바람직하다.

4. 참고문헌

[1] IEC 60846 Radiation Protection instrumentation - Ambient and/or directional does equivalent (rate) meters and/or monitors for beta, X and gamma radiation, pp.21, 81, 2002.

[2] ISO 4037-3 Calibration of area and personal dosimeters and measurement of their response as function of energy and angle of incidence, pp. 22, 1999.

지리정보시스템을 활용한 사용후핵연료 운반경로분석

김민경, 이수홍, 한병섭, 이석규*, 노영화*
(주)에네시스, 대전광역시 유성구 구암동 328
*지오스캔, 경기도 안양시 동안구 관양동 1307-37
kmk@enesys.co.kr

1. 서론

사용후핵연료의 경우 사회적 영향을 고려할 때 거주지역이나 일반 환경의 경로에 대한 특성을 감안하여 운반 경로에 대한 안전성이 확보되어야 한다. 운반 중에 발생되는 충돌, 전복, 화재 및 침몰 등의 사고를 미연에 방지하기 위한 운반경로 선정을 위해서는 육상 및 해상에 대한 다양한 데이터들을 광역적으로 비교·분석되어야 한다. 이러한 데이터들을 통합·분석하는 것은 다양한 조건을 복합적으로 분석하여 가장 적절한 경로를 산정하는 것으로 단순한 관련정보를 주관적으로 판정하기에는 어려움이 있다. 이에 지리정보시스템을 활용하여 다양한 데이터의 비교분석과 현실의 지형지물을 고려하여 지도상에 시각화된 결과를 도출하여 객관적이며 국내에 실정에 맞는 운반경로를 도출하고자 한다.

2. 본론

2.1 지리정보시스템 개요

지리정보시스템 (GIS;Geographic Information System)은 "공간상 위치를 점유하는 지리자료(Geographic data)와 이에 관련된 속성자료 (Attribute data)를 통합하여 처리하는 정보시스템으로서, 다양한 형태의 지리정보를 효율적으로 수집·저장·갱신·처리·분석하여 도면상에 시각화된 출력결과를 도출, 보다 효과적인 의사결정을 지원하는 총체적 시스템이다.

2.2 지리정보시스템의 적용현황

지리정보시스템의 국내 적용현황을 살펴보면 국토 공간상에 존재하는 토지, 환경, 자원, 시설물 등의 정보를 체계화하기 위한 국가지리정보구축사업이 10여년간 진행되어온 상태로 많은 분야별 공간데이터가 구축되어 있으며 원자력분야에서는 원전부지의 지리정보와 연계하여 정확한 방재관련 정보 및 방사능누출사고정보를 중앙본부와 지역본부, 정부부처, 지방자치단체 및 원자력방재유관기관이 신속하게 공유하고 이에 효율적으로 대응하는 것을 지원하는 웹 기반 방재시스템에서 적용되고 있다. 지리정보시스템은 현재 다양한 분야에서 적용되고 있다.

2.3 사용후핵연료 운반경로분석으로 적용

사용후핵연료 운반경로분석에 지리정보시스템을 적용하기 위해서는 운반경로에 필요한 육상과 해상의 기본 자료들을 공간데이터베이스(DB)로 작성하여 구축된 DB를 이용하여 운반제한조건을 설정하여 최적화된 운반경로분석을 해야 한다.

2.3.1 육상운반 제한 & 선호 조건 설정

제한조건의 경우 운반경로분석을 위해 가장 먼저 고려해야 할 조건으로 제한높이, 하중, 지하차도, 터널, 교량으로 설정한다. 제한 하중과 높이는 사용후핵연료 운반수단인 트렉터, 트레일러와 운반용기의 하중과 높이 특성까지 고려하여 선택하고 안전성 확보를 위한 최단거리를 선정하여 운반시간을 단축하고자 한다. 선호조건은 제한조건을 설정한 이후 추가적으로 인문학적특성과 지질학적 특성을 고려하여 사고 시 발생할 수 있는 사회적 문제 제기를 최소화 할 수 있도록 설정하도록 한다.

제한조건	선호조건
도로 제한높이	가축수
도로 제한하중	논밭면적
고가차도, 교량, 터널 구분	인구수

2.3.2 해상운반 제한 & 선호 조건 설정

사용후핵연료의 해상운반시 제한 & 선호조건은 해상에서의 사고가 발생할 경우 안전성을 확보하기 위해서 어업자원수역과 국가어항, 환경보전해역을 제한조건으로 설정하였으며, 사고발생을 줄

이기 위해 해상사고다발지역을 회피하도록 설정하였다. 또한 사용후핵연료의 해상운반시에는 유조선 운반 사고와 같이 위험 가능성이 존재하기 때문에 기본적으로 유조선통항금지유역을 기준으로 삼아 경로를 선택해야 할 것이다.

제한조건	선호조건
교통안전특정해역	항구지역 인구수
국가어항	항로길이
선박계류지	양식장 유무
어업자원보호수역	
영해한계선	
유조선통항금지유역	
해상사고다발지역	
환경보전해역	
해상장애물구역	

2.3.3 지리정보시스템(GIS) 구축 예시

Fig. 1.은 지리정보시스템을 활용한 운반경로 분석 프로그램으로 왼쪽 화면에서는 육상과 해상의 데이터의 정보를 볼 수 있으며, 오른쪽 화면은 데이터들을 시각화한 기본화면이다.

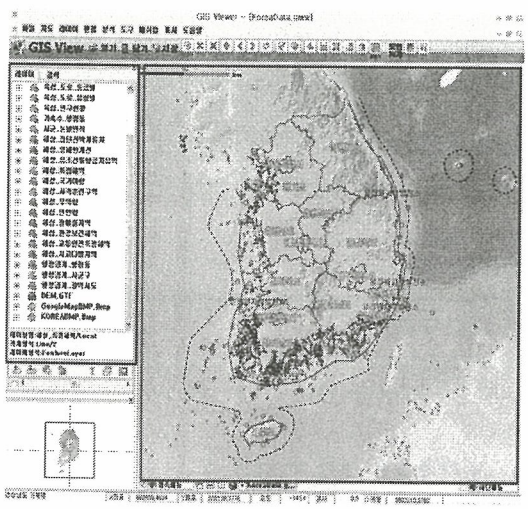


Fig. 1. GIS 운반경로분석 기본화면

Fig. 2 는 지리정보시스템을 활용하여 육상의 경로분석을 한 것이다. 출발점과 도착지점을 선택하여 경로가 선정되며, 정보창에서 선정된 경로의 거리, 속도, 경비에 대한 정보를 확인 할 수 있다.

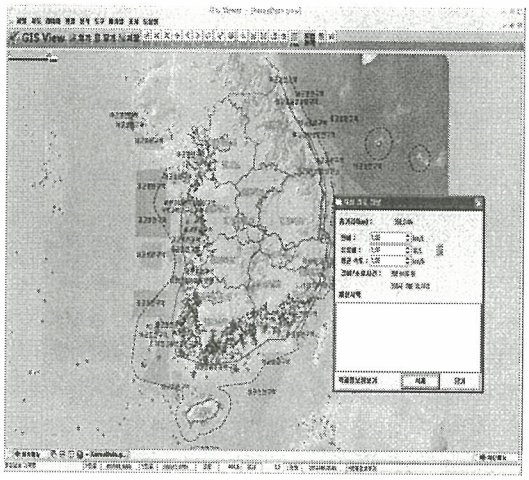


Fig. 2. GIS 운반경로분석의 경로도출화면

3. 결론

사용후핵연료 운반경로선정에 적용한 지리정보시스템은 육상 및 해상의 다양한 데이터와 제한 & 선호 조건의 분석을 통하여 적절한 경로가 도출 되어 운반의 경제성과 안전성을 확보가 가능할 것이며, 사고 시 발생하는 피해의 최소화를 실현시킬 수 있을 것이다. 추후 운반평가의 위험도 분석 등 다양한 분야에도 접목시킬 수 있을 것이다.

4. 감사의 글

본 연구는 지식경제부에서 시행한 방사성폐기물 관리 기술개발사업의 지원을 받아 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

5. 참고문헌

[1] 한국GIS학회 2007년 추계학술대회, 원자력방재를 위한 지리정보시스템.
[2] 한국공공관리학보 1999년 12월, 국가지리정보시스템 활용체계 구축에 관한 연구.

고기능성 PVA 방호용품의 특징 및 원전 적용성

홍성준, 강덕원, 이봉도, 김효철, 김명호, 배홍익
하나검사기술(주), 경기도 하남시 초이동 337-10
sjhong83@naver.com

1. 서론

원전작업자의 방호를 위한 방호복은 다양한 종류가 있으며 또한 여러 종류의 신소재 재질의 방호용품이 개발, 시험 중에 있다. 이 중 PVA(Poly Vinyl Alcohol, 이하 PVA)재질의 방호용품은 약 80% 정도의 미국원전에서 채택, 사용할 정도로 방호성능 및 폐기물 저감효과와 위생 및 작업효율 향상 측면에서 우수한 평가를 받고 있다. PVA 재질의 방호용품은 방호복, 장갑, 덧신, 두건, 가운, 제염지, 누수흡수봉, 걸레, 폐기물 수거비닐, 토드백, 작업 커버 및 시트 등 원전 현장 작업 시 사용되는 거의 모든 작업분야에 활용될 수 있도록 개발되어져 왔다. 이 방호복은 다양한 작업환경에 맞도록 제작이 가능하며 고 기능성을 지니고 있어 날로 확대 보급될 것으로 전망된다. 최근 들어서는 멕시코, 중국 및 유럽 원전에서도 시험 적용 중에 있으며 국내에서도 대규모 설비 교체공사 시 이미 사용한 경험이 있다. 본 논문에서는 PVA 재질의 기능성 방호용품에 대한 특성을 소개하고 각 특성에 따른 이점에 대하여 기술하였다.

2. 본론

2.1 PVA 방호용품의 기본 특성

PVA 방호용품의 기본적인 특성은 면 방호복이나 PVC 재질의 기존 방호용품으로는 대체할 수 없는 물에 녹여 감용시킬 수 있는 수용성 기능을 지니고 있다. 또한 작업시 발생하는 방사성입자의 침투를 막을 수 있는 방호성능과 제품의 다양화로 용도에 맞게 선택, 사용이 가능하다. 특히 Overhaul이나 대규모 공사 시 일시에 발생하는 다량의 세탁물에 대한 처리 부하를 해소시킬 수 있으며 1회 사용품으로 방사능 오염의 전이를 막을 수 있을 뿐 아니라 착용시 땀 배출능력이 뛰어나 작업자들이 보다 심리적으로 안정감있게 작업에 임할 수 있다는 장점을 지니고 있다.

2.2 수용성 효과

PVA 재질은 물에 용해가 가능하기 때문에 방호용품의 섬유표면에 붙어있는 오염물질의 분리 및 제거가 용이하다. 일반 면 및 혼방 재질의 방호복은 내부에 침투하여 세탁시 쉽게 오염이 제거되지 않는 경우가 많으나, PVA방호용품은 수용성으로 인해 모든 섬유조직이 용해되기 때문에 입자 및 분자형태의 오염물질이 쉽게 분리 및 제거가 가능하다. 수용성이라 하여 물에 바로 녹는 것은 아니며, PVA 방호용품은 일반적으로 약 90~100℃ 이상의 고온수에서 용해되는 특징을 지니고 있기 때문에 용해과정에서 펜톤 산화반응과 소량의 화학약품을 첨가함으로써 완벽한 용해가 가능하다. 또한 방호용품에 부착된 벨크로, 지퍼 등 불용성 물질을 제외하고는 대부분이 수용성 재질의 PVA로 이루어져 있어 폐기물 저감측면에서도 유리한 잇점이 있다. 기 사용한 방호용품을 수거하여 용해·산화처리 공정을 거쳐 처리시 약 1/100로 폐기물이 감용된다. 용해 처리시 유일하게 잔유물로 남는 불용성인 벨크로, 지퍼 등도 전량 용해 처리하기 위해 수용성 벨크로 및 지퍼를 개발 중에 있어 조만간에 사용 방호용품의 폐기물 제로화를 달성할 수 있을 것으로 기대하고 있다.

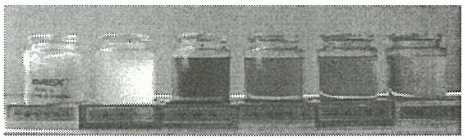


Fig. 1. Dissolving process of PVA garment

2.3 위생적 측면

현재 사용하는 면 방호복은 세탁하여 재 사용하나 PVA 방호용품은 기본적으로 1회만 사용하기 때문에 보다 위생적이며 각종 피부염 및 알러지의 유발 가능성을 최소화시킬 수 있다.

2.4 방호 기능면

PVA 방호용품의 방호성능을 확인하기 위해 입자투과율, 수분배출능력 및 열스트레스율 등을 평가하였다.

2.4.1 입자투과율

PVA 방호용품은 각 제품별로 성능이 다르지만,

높은 입자투과 방지성능을 지니고 있다.(그림 2.참조) ASTM 시험법으로 원전에서의 오염입자 크기와 유사한 0.6~90um 사이즈의 활성탄 입자(평균: 23um)를 각 섬유별 필터를 사용하여 낙하 시험하였을 때, 그림 2와 같이 개선된 PVA 방호복에서는 거의 모든 입자가 투과되지 않아 우수한 방호성능을 나타낸다.

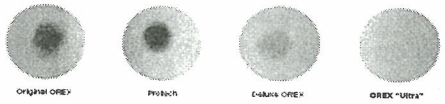


Fig. 2. Particulate pass-through

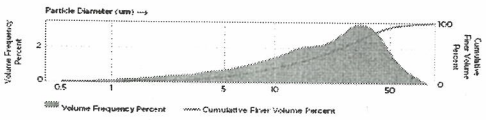


Fig. 3. Graphite size distribution

2.4.2 수분 배출능력

PVA 방호복의 수분 배출능력 평가를 위해 MVTR(Moisture Vapor Transmission Rate)을 ASTM E96-05, Procedure B water method at 73.4°F(23℃)와 50% RH 조건하에서의 시험법으로 종이방호복과 비교하였을 때, 높은 수분 배출능력을 나타내며 이러한 수분 배출능력을 통해 작업자들은 훨씬 더 쾌적한 기분을 유지한 상태로 작업을 수행함으로 작업효율을 향상시킬 수 있다.

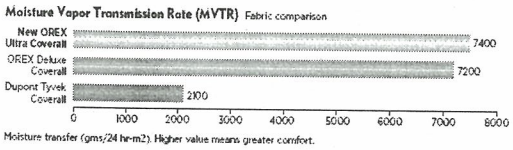


Fig. 4. Moisture vapor transmission rate

2.4.3 열스트레스 저감

앞에서 기술한 MVTR 외에 장점은 열스트레스 저감 측면이다. 수용성 방호복은 속옷만을 착용했을때와 거의 비슷한 열스트레스 수준을 보여주고 있다.(그림 5. 참조)

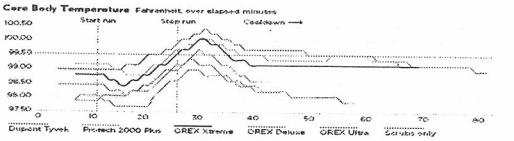


Fig. 5. MVTR comparison between various fabrics

2.4.4 재질의 기능성

일반 면 방호용품 등은 직포(Woven) 타입으로 직물의 형태를 띠고 있기 때문에 어쩔 수 없이 씨줄과 날줄사이에는 구멍이 생긴다. 그러나 PVA 방호용품은 부직포(Non-woven) 타입으로 구멍이 없다. 면 방호용품을 약 10회 세탁할 경우, 그 구멍은 더욱 커지며, 이를 통해 입자가 침투할 가능성이 높아지게 된다. 하지만 PVA 방호용품의 경우는, 부직포 형태를 띠고 있어 초기부터 거의 구멍이 없으며 1회만 사용하고 폐기되기 때문에 보다 나은 방호측면의 기능성을 제공한다.

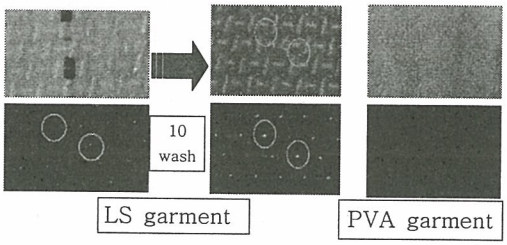


Fig. 6. Variation of hole size for brand-new to after 10 washes in LS garment.(L), PVA(R) garment

3. 결론

PVA 재질의 방호용품은 물에 녹는 수용성 특성을 지니고 있어 폐기물이 거의 발생되지 않고 착용감이 좋으며 위생적이어서 우수한 방호성능을 기대할 수 있는 사용효율성이 뛰어난 방호용품이다. 그러나 1회용이기 때문에 비용 측면에서 볼 때는 기존 면 방호용품과 비교해 단가가 비싸다는 단점도 지니고 있다. 하지만 압력관 및 증기발생기 교체 등의 대규모 공사 시와 정기보수작업 등의 고 오염지역이나 고 오염이 우려되는 작업환경에서는 기존 면 방호용품 또한 재사용이 불가능하다는 점을 고려해 PVA 방호용품을 적재적소에 채택, 사용한다면 방호측면과 폐기물 감용측면에서 높은 효율을 기대할 수 있을 것이다. 이러한 최적의 방호성능 제공 및 폐기물 저감 등의 이점을 살리기 위한 각 방호용품별 특성을 고려해 적절히 적용된다면 작업효율의 향상과 폐기물 감용화에 따른 처분비 절감 등의 경제적 이득도 함께 얻을 수 있을 것으로 기대된다.

4. 참고문헌

[1] EPRI Report 1003435."Emerging LLW Technologies Dissolvable Clothing", pp.32-35,2002

[2] Eastern Technologies, "OREX application guide".

PVA 재질을 이용한 방사선작업자용 덧대기 방호용품의 활용성 향상

강덕원, 이봉도, 홍성준, 김효철
하나검사기술(주), 경기도하남시초이동337-10
world2is@naver.com

1. 서론

원전 작업들은 방사선 작업을 위해 다양한 형태의 방호용품을 사용한다. 그 중에서도 제일 많이 사용하는 용품은 방호복으로, 사용 재질이 면, 비닐 및 합성섬유 등으로 다양하다. 일정기간을 사용하다 오랜 사용으로 헤졌거나 오염도가 높을 때는 새것으로 교체하며, 22개의 원전이 정상운전 및 핵연료 교체를 위한 정기적인 보수 작업이 이루어지기 때문에 발생폐기물량 또한 만만치 않다. 처분비의 상승으로 드럼당 1,000만원을 조만간 상회할 예정에 있어 폐기물발생 사업사의 입장에서는 발전원가에 부담을 덜기 위해 폐기물발생량을 저감시키기 위한 목표를 설정하여 2015년까지는 현재의 절반 수준으로 폐기물발생을 줄이기 위한 노력을 경주하고 있다. 본 연구에서는 기존 면방호복 및 나일론 재질의 LS방호의 활용효율 향상과 폐기물 저감화 측면에서 수용성 재질의 PVA(Poly Vinyl Alcohol) Sheet를 주요 오염부위(팔, 무릎, 힙)에 탈부착이 가능한 덧대기 형태로 적용하는 방안에 대해 기술하였다.

2. 본론

현재 국내 원전의 방사선관리구역에서 착용하는 작업복은 혼방섬유 방호복과 나이론 재질의 방호복 및 PVA 재질의 수용성 방호복이 있다. 작업복의 폐기시점은 일정하지는 않으나 통상적으로 장기간 세탁 사용에 따른 노화나 기름오염지역 및 험한 작업에 따른 재사용 불가와 고 오염에 따른 타 작업복의 오염전이 등을 고려해 육안 및 설정된 선량값을 초과 시에 교체 폐기하고 있다. 최근 들어, 전 원전을 대상으로 발생되는 모든 폐기물에 대해 50% 이상 발생량을 저감시키기 위한 노력을 경주해오고 있다(표 1. 참조). 본 연구에서는 이러한 목표 설정에 초점을 맞추어 효율적인 방호복 관리방안을 제시하였다. 작업복을 보다 오랫동안 깨끗하게 사용, 관리함으로써 장시간 사용에 따른 경제적 효과 및 방사성폐기물 발생량 저감화에도 기여할 수 있는 효율적인 적용방안에 대한 검토와 이에 따른 효과도 함께 모색하였다.

Table 1. Statues of Low-Medium Radwaste Generation

구분		2003년 발생 현황	비율 (%)	2004년 발생 현황	비율 (%)	2005년 발생 현황	비율 (%)	계(비율%)	
농축 폐액		263	6	306	9	189	4	758	(6)
폐수지		418	10	337	10	405	9	1,160	(10)
폐필터		60	1	32	1	24	1	116	(1)
잡고체	가연성	2,074	49	1,706	48	2,206	51	5,985	(50)
	비가연성	1,382	33	1,137	32	1,470	34	3,990	(33)
계(드럼)		4,197	100	3,518	100	4,294	100	12,009	(100)

2.1 덧대기 방호용구 디자인 및 적용성

다음에 기술한 바와 같이 혼방섬유 방호복, LS 및 PVA 방호복은 서로 장·단점을 지니고 있음을 알 수 있다.(표 2. 참조) 국내 원전의 경우는 장기간 사용이 가능한 면 방호복이 전체 사용량의 90% 이상을 점유하고 있으나 최근 들어 대규모 공사시 작업자 방호나 폐기물 발생량 저감을 위해 고기능성 재질의 PVA 방호복이나 LS방호복으로 바꾸어 사용하는 추세이다. 또한, 기존 사용했던 방호복도 폐기물발생량을 줄이기 위해 기존보다 1/2 정도로 가벼운 면방호복을 개발중에 있다. 미국 원전의 경우는 폐기물발생량 측면과 착용감 및 대량 사용에 따른 방호용품 비용 인하로 80% 이상의 원전이 수용성방호복인 PVA방호복을 사용하고 있다. 본 논문에서는 어떤 종류의 방호복을 사용하든지 착용하는 방호복의 사용 수명을 연장하고 폐기로 인한 발생량을 최소화하기 위해 수용성 재질(PVA)을 가공해 덧대기 형태로 설계, 제작하여 오염 집중부위만 탈·부착하여 사용하도록 고안하였다.

Table 2. Comparison of Splint Material for Radiation Workers

항목	PVA 방호복 (OREX Ultra)	LS 방호복 (Protech Plus)	면방호복 (Poly Cotton)
사용회수	-세척하여 재사용 -노화/오염도에 따라 교체	-세척하여 재사용 -노화/오염도에 따라 교체	-1회 사용 -2~3회 재사용 가능
투습율	-4,139g/24hr-m^2 -땀 배출 능력 매우 우수	-1,447g/24hr-m^2 -땀 배출 능력미흡	-1,992g/24hr-m^2 -땀 배출능력 미흡
입자투과시험	-0% -입자투과 방호능력이 완벽	-54% -방호 능력이 미흡 -잔류 오염 누적	-54% -LS 방호복과 동일 -잔류 오염 누적
밀도	-65g/m^2 -가볍다.	-102g/m^2 -가볍다.	-280g/m^2 -무겁다.
내구성	강 함	강 함	강 함
기타	-일회용품 -위생적, 경제적 -폐기물발생 제로화	-세탁 후 반복사용 -압축,소각,유리화 -2차폐기물발생	-세탁후 반복사용 -압축,소각,유리화 -2차폐기물발생

2.2 PVA의 구조 및 물성

- PVA는 PVA와 같은 비닐에스터 중합체의 비누화에 의해 만들어지는 가지가 없는 선형고분자임.

Table 3. Comparison of Poly Vinyl Alcohol(PVA) Property

명칭(약어)		P.V.A
화 학 명		PolyVinylAlcohol
분 자 식		$(CH_2CHOH)n$
분 자 구 조		$\left[-\underset{\underset{OH}{|}}{CH_2-CH}-\right]_n$
화학적특성	결정 녹는점(℃)	200
	비중 (물=1)	1.27~1.31
	물 용해도 (%)	100(가용성)
	木熔化 온도(℃)	10~100℃(비누화 정도에 따라 다름)
물리적특성	표준 수분율(%)[주]	5
	신장율 (%)	55
소각시 생성물		CO_2, H_2O
용 도		면 대체 섬유, 작업복, 학생복, 속옷 등

2.3 PVA의 분해메카니즘

- PVA 물질은 수용성 재질로 100℃ 정도의 물에 용해시켜 CO_2와 H_2O로 완벽하게 산화시키는 기술로, 분해의 촉진을 위해 펜톤반응을 사용한다. 펜톤반응은 과산화수소와 촉매로 작용하는 2가 철(Fe^{2+})의 반응을 통해 산화성이 우수한 화학종이 수산화라디칼(OH·) 메커니즘에 의해 연속적으로 분해되어 가는 과정임.

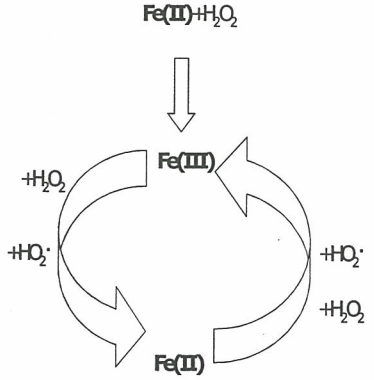


Fig. 1. Mechanism of Fenton's Reaction by Fe(II)

2.4 PVA 물질의 제조 특성

- PVA 합성 섬유는 강도, 내마모성, 내구성이 뛰어나고 내열성, 내광성도 좋으며 합성섬유 중 흡수성이 가장 뛰어남.
- 비닐에스테르 계열의 전구체를 합성하고 이들을 알칼리나 산으로 가수분해시켜 제조.

2.5 PVA 재질의 덧대기 용품 디자인 및 장점

- 방사선작업시 신체와 접촉 가능성이 높은 부위에 탈·부착이 가능한 형태의 덧대기를 사용해 방호복의 전면 오염 확산 방지로 재활용 및 장기 사용 가능토록 유도.
- 가공성이 뛰어난 PVA재질 사용으로 대상 부위의 신체 형상에 적합하게 디자인 가능 (그림 2, 3 참조).
- 수용성 재질로 용해 후 열분해 처리시켜 폐기물 발생량 제로화.
- 방호복의 활용성 제고 및 구매비용 절약효 과와 발생 폐기물량 감소에 따른 처분비용 절감.

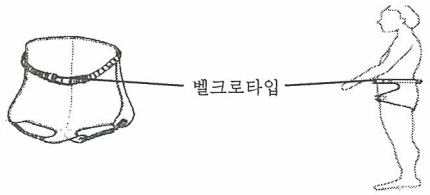


Fig. 2. Splint for Hip Contamination Protection

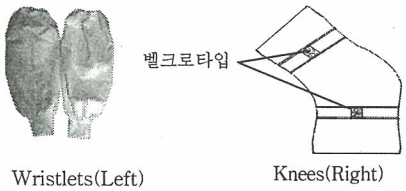


Fig. 3. Splint for Wristlets and Knee's Contamination Protection

3. 결론

원전 방사선 작업자들이 착용하는 방호복을 사용수명 연장 및 폐기물 저감화와 처분비용 절감 차원에서 물에 녹는 수용성 합성섬유를 주요 접촉오염 부위에 덧대기하여 사용할 수 있는 방안을 제시하였다. 착용 신체부위의 형상을 고려하여 디자인 하였기에 착용감도 좋으며 탈·부착이 용이해 방사선 관리용품의 효율적 사용 측면과 폐기물 감용 측면에서 매우 유용하게 활용할 수 있을 것으로 기대된다.

4. 참고문헌

[1] EPRI Report 1003435."Emerging LLW Technologies Dissolvable Clothing", pp.32-35, 2002.
[2] 원자력발전소 방사선 관리 연보(2004).
[3] PVA방호용품 자체처분(하나-개발-PJ-04).

FTL 및 하나로 배수조의 액체 방사성폐기물 핵종 분석

최호영, 이문, 한재삼, 조성환, 김민수, 허순옥, 안국훈
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045, 305-353
choihy@kaeri.re.kr

1. 서론

핵연료조사시험설비(Fuel Test Loop, FTL)는 2007년 3월에 설치하였으며, 2009년 9월에는 시험핵연료 장전후 출력상승시험을 마침으로써 시운전을 정상적으로 종료하였다. 현재 FTL은 저온운전대기2(Cold Stand-by2, CSB2)로 운전하고 있다. FTL은 현재 가동중인 원자력발전소의 노심 조건과 유사한 환경을 만들어 시험핵연료 조사 시험, 핵연료 연소도 및 건전성 입증, 새로운 핵연료 개발 및 핵연료봉 검증 조사 시험 등을 수행한다. FTL 계통의 정상운전, 계통 유지보수, 기타 작업 및 실험 시 계통 외부로 나오는 액체 방사성폐기물은 제 2기기실에 있는 배수조(sump)에 수집되어 저장된다. 하지만 1차 파이프 갤러리에서 발생하는 FTL 계통의 액체 방사성폐기물은 하나로 배수조로 유입된다. 그리고 하나로는 1995년 2월에 첫 임계(criticality)에 도달한 이후 단계별로 원자로 출력을 상승하여 2004년 9월에는 설계 최대 출력인 30 MW에 도달하였다. 현재 원자로 출력은 30 MW로 28일 운전, 7일 정지 주기로 운전하고 있다. 하나로는 핵연료 및 재료의 조사시험, 동위원소 생산, 중성자 빔을 이용한 연구, 중성자 방사화 분석, 중성자핵변환도핑 등에 활용되고 있다. 하나로의 정상운전중, 계통 유지보수, 기타 작업 및 실험시 발생한 액체 방사성폐기물은 원자로건물 배수조에 수집되어 저장된다.

이 논문에서는 2010년도 FTL과 하나로의 운영과정에서 발생한 액체 방사성폐기물의 발생 원인과 배수조에 모인 액체 방사성폐기물의 핵종을 분석 비교하였다.

2. 본론

2.1 FTL 액체 방사성폐기물

2.1.1 방사선원

FTL을 운전하면서 발생하는 액체 방사성폐기물의 방사선원으로는 시험핵연료에서 나오는 핵분열생성물과 시험 핵연료봉, 주냉각수계통에서 발생하는 부식 및 방사화생성물이다. 모든 핵분열생성물은 시험핵연료봉 안에 갇혀 있으나, 미세한 양이 주냉각수계통에 유입될 수 있다. 그리고 주냉각수 펌프 베어링 마모에 따른 안티몬(Sb-122, Sb-124)과 주냉각수 배관(stainless steel)에서 나온 코발트(C0-60)이 유입될 수 있다. 하지만 취출보충정화계통의 여과기를 사용하여 주냉각수계통의 방사능 물질을 지속적으로 제거하여 제한치 이내로 유지한다. FTL 정상 운영중 계통 외부로 나오는 액체 방사성폐기물은 제 2기기실에 위치한 배수조에 저장된다.

2.1.2 액체 방사성폐기물 발생 원인

FTL의 정상 운전중 액체 방사성폐기물의 발생 요인은 방사성 액체를 포함하고 있는 계통의 경계인 펌프, 밸브, 열교환기등의 기기와 배관의 연결부위, 기기의 연결 부위 등에서 비롯된다. FTL 운영중 액체 방사성폐기물은 제 1기기실에서의 스트레이너 탈부착시, 주냉각기 전단 배기, 주냉각수 펌프 전단 배기, 열교환기 배기 등의 각 계통의 배기 작업과 주냉각수 펌프 후단 배수, 4인치 배관 배수 작업시에 발생하였다. 그리고 제 2기기실에서의 액체 방사성폐기물은 취출보충정화계통 펌프 씰에서의 누수, 이온교환기 및 여과기 배기 작업시에 발생하였다. 또한 2010년도에는 1월부터 주냉각수계통의 방사선량 증가에 따른 주냉각수계통 내부 세척시에 액체 방사성폐기물이 발생하였다.

2.2 하나로 액체 방사성폐기물

2.2.1 방사선원

하나로의 노심은 저온, 저압 조건에서 운전되며, 정상운전시 고려되는 방사성 핵종은 방사화에 의해 생성되는 N-16, N-17, O-19, Ar-41, 삼중수소 및 부식생성물 등이다. 부식 생성물은 핵연료 지지 구조물 및 중수 탱크에 사용하는 지르칼로이, 핵연료 피복재, 침니 등 노심 구조물에 사용하는 알루미늄계 합금, 그리고 유입 공동, 열교환기 및 각종 배관 등의 스테인레스스틸계 합금에서 발생한다. 하나로에서 발생되는 모든 액체 방사성폐기물은 원자로건물 지하에 위치한 배수조에 저장된다.

2.2.2 액체 방사성폐기물 발생 원인

하나로의 정상 운전중 발생하는 액체 방사성폐기물은 방사성 액체를 함유하고 있는 계통의 경계인 펌프, 밸브, 열교환기 등의 계통기기와 배관의 연결 부위, 기기의 연결 부위 등에서 발생한다. 하나로 정상 운영중 발생하는 액체 방사성폐기물은 1차냉각계통 기기실의 펌프, 열교환기, 밸브 등의 유지보수 작업, 1차정화계통과 사용후핵연료냉각정화계통 기기실의 펌프, 밸브, 여과기, 이온수지 등의 유지 보수 작업 및 수조고온층계통의 이온수지 교체 작업 과정 등에서 발생한다. 그리고 원자로 수조에 들어가는 새핵연료, 기기 및 장비 등의 세척시에도 발생한다.

2.3 액체 방사성폐기물 핵종 분석

Table 1. Result of Nuclide Analysis

단위 Bq/mL	FTL Sump	FTL Sump	FTL Sump	FTL Sump	하나로 sump
핵종	2008-12-10	2010-06-25	2010-07-28	2010-10-20	2010-05-14
Ar-41	74.6	5.52	18.5	3.52	25.3
Ba-140	2.85	17.8	57.7	9.02	71.6
Ce-141	81	3.71	22.2	1.4	20.2
Ce-144	6.58	19.3	88.4	11.5	240
Co-58	1.06	4.09	10	2.33	256
Co-60	1.25	58.2	156	59.8	6830
Cr-51	6.49	48.4	151	8.85	39.4
Cs-134	97.8	110	204	580	123
Cs-137	2.08	3.02	12.3	4.56	45.6
Fe-59	1.21	7.39	22	5.75	55.7
I-131	77	5.01	25.2	3.41	19.6
I-132		7.44	15	2.58	19.1
I-133	75.5	1.99	24.8	4.52	43
La-140	1.02	7.82	14.7	3.17	18.3
Mn-54	28.6	3.75	11.7	2.65	122
Mn-56	28.6	1.35	11.3	2.1	23.9
Na-24	75.1	37.3	905	154	460
Nb-95	24.2	5.3	12.8	2.81	75.9
Np-239	5.22	3.8	65.8	14.2	142
Tc-99M	64.8	1.46	8.28	1.41	6.71
W-187	1.09	9.95	44.8	6.28	66.2
Ru-103	1.22	5.68	19.2	2.18	24.7
Mo-99	62.1	2.74	8.15	1.39	13.5
Te-132	52	4.67	11.3	1.36	14.3
Sb-122		6.25	1920	3.54	241
Sb-124	63.2	1470	34300	6880	18900
Xe-133	1.47	5.42	25.1	5.96	24.8
Xe-135	72	3.58	10	2.12	17.5
Zn-65	1.51	16.8	32.6	5.69	146
Zr-95	90.6	5.07	24.5	3.57	42.9
H-3	2270	4410	5690	1390	292000
Gross-α	40	16	16	16	40
Gross-β	80	1520	33300	6790	5190

2.3.1 액체 방사성폐기물 핵종 분석

Table 1은 FTL과 하나로의 운영과정에서 발생한 액체 방사성폐기물의 핵종을 분석한 것이다. Table 1에서 보면 바륨(Ba), 세륨(Ce), 요오드(I), 루터튬(Ru), 몰리브덴(Mo), 테크네튬(Te) 및 크세논(Xe) 등은 핵분열생성물로서 이는 핵연료 제작시 핵연료 피복관의 표면에 붙은 우라늄(U) 가루의 핵분열로 생성된 것이다. 하나로 배수조에서 방사능이 높게 나온 핵종은 세슘(Cs), 철(Fe), 망간(Mn), 니오브(Nb), 텅스텐(W), 안티몬(Sb), 아연(Zn), 지르코늄(Zr) 및 삼중수소(H-3) 등이다. 하나로 배수조에서 코발트(Co-60) 방사능이 크게 나타났는데, 이는 스테인레스스틸(SUS 316)에 포함된 니켈(Ni-58)의 불순물로 함유된 코발트(Co-59)의 중성자 포획반응 때문이며, 지르코늄은 노심 구조물이나 핵연료 집합체 구조물로 사용된 재료에서 부식생성물이 발행하여 방사화되었기 때문이다. 하나로 배수조에서 코발트(Co-60)과 안티몬(Sb-124)가 높게 나타난 것은 FTL 계통에서 누수 및 배수된 냉각수 일부가 유입되어 계측된 것으로 추정된다. 그리고 FTL 배수조에서도 하나로 배수조에서 검출된 핵종과 같지만 방사능은 적은 것으로 나타났다. 특히 안티몬(Sb-124)의 방사능이 높게 나타난 것은 FTL 주냉각수 펌프 베어링 마모에 따른 베어링에 포함된 안티몬이 방사화되어 나타난 것이다. 그리고 주냉각수계통의 방사선은 계통에 과산화수소(H_2O_2) 주입하여 코발트(Co-60) 핵종을 제거하여 방사선량을 감소시킬 예정이다.

3. 결론

FTL 배수조와 하나로 배수조의 액체 방사성폐기물의 핵종을 분석하였다. 하나로 배수조에서는 주로 핵연료 표면에 묻은 우라늄 가루의 핵분열에 의한 핵분열 생성물이 많았고, 노심 구조물과 핵연료 구조물에 의한 반응에 의한 핵종이 많았다. FTL 배수조에서는 주냉각수 펌프 베어링 마모와 주냉각수 배관의 스테인레스스틸(SUS316)의 불순물 방사화로 인한 핵종이 특히 높게 나타났다.

4. 참고문헌

[1] 한국원자력연구원, "하나로 안전성분석보고서 (KAERI/TR-710/1996)", 1996.

[2] 한국원자력연구원, "하나로 안전성분석보고서 11.7핵연료시험설비(KAERI/TR-3898/2009)", 2009.

[3] 임인철 외, "2009년 하나로 및 활용시설 운영 (KAERI/MR-501/2009)", 2009.

[4] 하나로심포지움, 2009년 학술발표회 초록집, pp.35, 157, 164, 2009.

방사성동위원소 생산에 따른 발생 폐기물 관리방안

심호섭, 김완태, 구본철, 김우란
한국원자력안전기술원, 대전시 유성구 과학로 34
k038shs@kins.re.kr

1. 서론

사이크로트론은 1986년 원자력의학원에 연구목적으로 우리나라에 처음으로 사용된 이후 2004년부터는 의료용 방사성동위원소 생산을 위하여 널리 사용되어 현재는 35대가 설치 운영되고 있다. 국내에서 사용되어지는 사이크로트론은 대부분 의료기관에서 환자진단을 위해서 사용되어지는 F-18 핵종을 생산하는 것으로 $^{18}O(p,n)^{18}F$ 핵반응을 이용한다.

F-18 핵종은 110분의 비교적 짧은 반감기를 가지는 핵종으로 1일 경과 후에는 약 13반감기가 지나므로 F-18 핵종의 취급으로 인하여 발생하는 방사성폐기물은 『방사성폐기물의 자체처분에 관한 규정 고시』에 따라 일정기간 지난 후 자체처분이 가능하다. 원자력법 관련 규정에 따르면 물리적 상태가 고체상으로서 허용기준 및 핵종별 농도 이상인 경우에는 폐기시설 등의 건설·운영 허가를 받은 자에게 위탁폐기를 하여야 하며, 허용기준 및 핵종별 농도 미만의 방사성폐기물의 경우에는 방사성폐기물의 자체처분 절차 및 방법에 따라 처분해야 한다.

F-18 핵종을 진단용으로 사용하는 의료기관에서는 발생하는 방사성폐기물에 대하여 자체처분의 방법을 이용하고 있으나, F-18 핵종을 생산하는 사이크로트론 시설을 보유한 기관에서는 현재까지 자체처분을 통한 방사성폐기물 처리가 쉽지 않은 상황이다. 이는 사이크로트론 가동으로 인하여 생산하고자 하는 핵종인 F-18 외에 불순물로 간주되는 방사성핵종이 만들어지기 때문이다.

2. 본론

2.1 시료 채취

F-18 핵종을 생산하는 15곳의 사이크로트론에 대하여 (p,n) 반응 후 생성되는 조사생성물질, F-18 핵종을 흡착하는 흡착물질(음이온교환수지 칼럼), 그리고 음이온교환수지칼럼 통과 후 나오는 회수물질에 대하여 시료를 채취하여 핵종 및 방사능분석을 한국원자력연구원에 의뢰하였다.

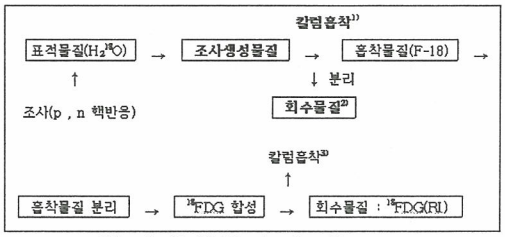


Fig. 1. F-18 Production Process

2.2 측정결과 및 분석

액체 및 고체 시료 측정 결과 생산을 목적으로 한 F-18 핵종 외 $^{18}O(p,n)^{18}F$ 핵반응으로 생성된 중성자에 의해 방사화된 바나듐은 티타늄 표적박막에서 크롬, 망간, 코발트, 아연 등은 HAVAR 표적박막에서 테크네튬은 빔 집속장치 주변 일부 스테인레스 스틸 성분 중 몰리브덴 성분이 방사화에 기인하여 생성하며 트리튬 경우 표적물질인 물이 $^{18}O(p,^{3}H)^{16}O$ 핵반응에 의해 만들어 지는 것으로 판단된다.

시료측정 결과 액체 방사성폐기물로 발생하는 H-3의 경우 최대 방사능은 3.3E+11 Bq/㎥로서 배출관리기준인 4E+7 Bq/㎥을 초과하고, Co-58의 경우 최대 방사능은 7.78E+9 Bq/㎥로서 배출관리기준인 7E+5 Bq/㎥을 초과한다.

고체 방사성폐기물로 발생하는 V-48의 경우 최대 방사능은 7.43E+4 Bq/g로서 153일 이상 보관 후 자체처분이 가능하며 Co-56의 경우 최대 방사능은 2E+3 Bq/g로서 333일 이상 보관 후 자체처분이 가능한 것으로 판단된다.

3. 결론

액체 및 고체 시료 측정 결과 사이크로트론에서는 생산하고자 하는 F-18 핵종 외에 V-48, Cr-51, Mn-52, Mn-54, Co-56, Co-57, Co-58, Co-60, Zn-65, Tc-96, W-178, Re-182, Re-183, Re-184, Re-186, H-3 핵종이 부수적으로 검출되

었다. 생산되는 F-18 핵종은 짧은 반감기로 인해 이로 인한 방사성폐기물은 쉽게 자체처분이 가능하나, 음이온교환수지와 이를 통과한 액체는 반감기가 긴 핵종을 포함하여 고체상 및 액체상 폐기물로 간주되어 처분될 것이므로 처분과 관련한 기준을 만족할 수 있도록 방사성폐기물 관리 방안이 반드시 수립되어야 한다.

시료 채취 및 측정 분석 대상으로 11개의 '표적용기-표적박막' 재질 조합 유형이 모두 포함될 수 있도록 시료 채취 기관을 선정하는 것이 바람직하였으나 'Ag/Ni-Co Alloy', 'Ti/Havar Alloy', 'Ni/Ti', 'Nb/Ti-Havar Alloy' 조합 유형에 대해서는 해당 기관의 사정으로 시료채취가 여의치 않아 측정 결과 비교 및 향후 자료 활용에 제한이 있다.

4. 참고문헌

[1] 연구용 Cyclotron 개발 및 운영, KIRAMS/RR-014/2009.

[2] 고에너지 양성자 빔을 이용한 방사성동위원소 핵종개발, KIRAMS/RR-002/2008

물리적방호에서의 핵심구역파악 예비분석

최영, 김길유, 정우식, 박희성, 신희성, 김호동
한국원자력연구원, 305-353 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
ychoi@kaeri.re.kr

1. 서론

핵물질 또는 원자력 시설에 대한 사보타지 행위는 직원에 대한 방사능 피폭 위험내지는 대중과 환경에의 잠재적인 방사능 누출을 야기할 수 있다. 방사능 위험은 위협과 핵물질의 형태, 핵물질 및 기타 핵분열성 물질의 재고량, 시설이나 핵물질 포장의 설계 그리고, 이들의 안전 특성(safety features)에 크게 좌우된다. 결과적으로 사보타지 가능성과 방사선적 영향과 관련하여 시설의 고유 설계 또는 포장 설계에 대한 평가는 안전 및 물리적 방호 전문가 간에 긴밀한 협의를 거쳐 수행되어야 한다. 원자력 설비에 대한 사보타지에 대하여 효과적인 대처가 이루어지기 위하여서는 테러리스트의 공격으로부터 보호되어야 만하는 주요 원자력 설비가 들어있는 필수 보호 지역(Vital Area)을 파악하는 작업이 필요하다. 본 연구에서는 물리적방호차원에서 핵심구역을 파악하여 최소 시설방호의 필요성 제시하고자 한다.

2. 본론

2.1 핵심구역파악

핵심구역 파악을 위한 모델은 많은 현장 자료와 PSA 모델에 기반으로 하므로, PSA 전문가, 발전소 설계자 및 운전원들과의 의견교환을 통하여 합리적으로 수행한다. 핵심구역 파악을 위한 분석의 효율성을 높이기 위해서 핵심구역 파악을 위한 수행 절차서은 그림 1과 같다.[1]

크게 수행절차는 (1)사보타지 행위에 의한 타겟정보파악 (the target information for assessment of the sabotage-induced risk) (2) 확률론적 안전성분석 방법에 의한 핵심구역파악 (vital area identification based on probabilistic safety assessment techniques) (3) 위험도에 따른 핵심구역순위결정 (ranking the vital area based on risk assessment) (4) 원자력시설의 물리적방호 개선 (improving the physical protection system of nuclear fields)

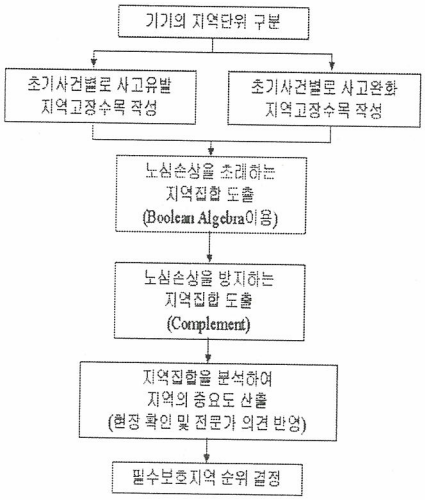


Fig. 1. vital area identification (VAI) based on PSA technique

2.2 핵심구역 파악을 위한 분석

본 핵심구역파악을 위해서 사용한 방법은 원자력발전소 위험도분석에 적용하는 잘 알려진 PSA방법 활용하였다.[2] 핵심구역 정의를 위한 리스크 분석을 위하여 원자력발전소 배관을 세그먼트로 분절화한다. 이는 리스크 순위 결정을 위하여 사고결말과 운전조건이 유사한 배관을 묶어 하나의 배관 세그먼트로 정의한다. 배관 세그먼트라는 개념은 임의의 부위에 대한 파손이 동일한 사고결말(예, 계통 기능 상실, 펌프 계열 상실 등)을 갖는 배관의 일정 부분으로 정의될 수 있으며, 배관 세그먼트 정의 작업은 각 계통에 포함된 배관의 중요성을 평가하기 위해 수행한다.

마지막으로 분석대상에 적용하는 핵심구역파악을 위하여 배관 세그먼트는 배관 파손으로 인한 사고결말등을 고려하여 결정한다. 배관 세그먼트 경계는 사고결말 측면에서 큰 차이를 보일 만큼의 배관구경의 변화 지점 또는 배관 분기점들로

정해진다. 배관 세그먼트를 나누는 작업은 아래와 같은 기준을 적용하여 수행한다.

2.3 핵심구역 파악을 위한 사고결말 분석

본 핵심구역파악을 위하여 배관 파손으로 인한 직접피해는 다음과 같이 분류된다. (1)원자로 정지 또는 LOCA 같은 초기사건을 야기하는 손상, (2)단일 계열 또는 계통의 이용불능을 초래하는 손상, (3)다중 계열 또는 계통의 이용불능을 초래하는 손상, (4)상기사항들이 조합된 사건을 야기하는 손상이다.

직접피해를 평가할 때 모든 계통에 공통적으로 해당하는 주요 가정사항은 다음과 같다.

- ㅇ 사고결말에 대한 초기사건은 내부사건 PSA 사고경위에서 고려된 초기사건들만 고려된다.
- ㅇ 파단 크기에 따른 LOCA 분류는 PSA에 정의된 크기를 기본으로 하여 정한다.

각 계통별로 배관 세그먼트에 대해서 정성적으로 식별된 직·간접 피해에 따른 리스크 정량화는 다음과 같은 절차를 따라서 수행한다.

- ㅇ 배관 파손에 따른 직·간접 피해효과 정성적 검토
- ㅇ 직·간접 피해효과가 같은 배관 세그먼트들에 대한 그룹화
- ㅇ PSA 모델에서 적절한 대체기기 선정
- ㅇ PSA 모델을 이용한 정량화 수행
  - Vital Area Set 도출
  - 중요도 분석 방법 개발 필요
  - Walk Down을 통한 확인
  - 보조 기준'을 통한 순위 재정리
    . Accessibility
    . Recoverablity
    . Protection Set 도출
- ㅇ 정량화결과 검토

그림2에서와 같이 핵심구역파악은 고장수목분석을 위한 고속실행 알고리즘을 을 활용한다. [3] 현재 사용한 핵심구역파악에 적용한 관리시스템은 사보타지로 발생하는 사고완화, 훈련 및 위험도를 관리하는 유용한 tool이 될 것이다.

Room (1)	Initiator (2)	Events (3)	Events Comments (4)	Flood Area (5)	LineNumber (6)	Segment ID (7)	Segment Description (8)	P&ID Drawing (9)	P&ID Drawing Location (10)
0047-A09B		C:\FTA\BRHT100 HSSPPSLIMP	Plant fire all initiating events	0047-A09B	SI004CA-10	HS-073	10" high pressure safety injection suction line on header 1 from 14"x10" reducer through valve 1470 to high pressure safety injection pump 1	9-441-H105-001 Rev. 6	B7

Fig. 2. Display of VAI Results

3. 결론

물리적 방호의 개념은 하드웨어(보안 장치들), 절차 및 시설 설계(배치 포함)의 계획된 조합을 요구하는 개념이다. 본 연구에서는 상기와 같은 물리적 방호를 위해 원자력발전소의 배관 분절화 및 예비사고결말 분석하였다. 그리고 분석결과를 반영해 핵심구역을 파악하였다. 핵심구역파악분석은 특정발전소, 사고시나리오를 갖는 PSA모델을 활용한 예비모의 분석이다. 물리적방호의 핵심구역을 결정할 때 사용한 PSA모델은 중요한 정보로서 중요한 역할을 할 것이다. 그리고 앞으로, 본 핵심구역파악 분석기술을 원전뿐 만 아니라 핵주기시설등 국내원자력관련 설비에 적용하면 효과적이면서 효율적인 물리적 방호체계를 구축할 것이다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었다.

5. 참고문헌

[1] C. K. Park, W. S. Jung, J. E. Yang, H. G. Kang, "A PSA-based vital area identification methodology development," Reliability Engineering and System Safety, 82, pp. 133-140, 2003.

[2] S. H. Han, "PC-Workstation Based Level 1 PRA Code Package-KIRAP," Reliability Engineering and System Safety, Vol.30, pp.313-322, 1990.

[3] W. S. Jung, S. H. Han, J. J. Ha, "A Fast BDD Algorithm for Large Coherent Fault Trees Analysis," Reliability Engineering and System Safety, Vol. 83, pp. 369.374, 2004.