

KOREAN RADIOACTIVE WASTE SOCIETY

2014 춘계학술논문요약집

Abstracts of Proceedings of the
Korean Radioactive Waste Society SPRING 2014

일 시

2014. 5. 7(수) – 5. 9(금)

장 소

평창 알펜시아 컨벤션센터



사단 한국방사성폐기물학회
법인 Korean Radioactive Waste Society

KOREAN RADIOACTIVE WASTE SOCIETY

2014 춘계학술논문요약집

Abstracts of Proceedings of the
Korean Radioactive Waste Society SPRING 2014

일 시

2014. 5.7(수) – 5.9(금)

장 소

평창 알펜시아 컨벤션센터



사단 한국방사성폐기물학회
법인 Korean Radioactive Waste Society

목 차

1분과 후행핵연료주기기술 및 정책 (Oral)

09:00~09:20	운반저장검용용기 개발에 따른 운반 사용검사의 대체검사 도입 방안	17
	육대식, 박동극, 정재학, 이동명[한국원자력안전기술원]	
09:20~09:40	사용후핵연료 수송·저장 캐니스터 밀봉 용접부 비파괴검사 모의시험	19
	채경선, 박병목, 신경욱, 김홍준, 황영진, 박재석[세안기술(주)], 이상훈[한국원자력연구원]	
09:40~10:00	모의 사용후 핵연료봉 제조장치 개발	21
	이정원, 김영환, 조광훈, 강상준, 이재원[한국원자력연구원]	
10:00~10:20	Nitride 코팅층의 우라늄 반응 특성	23
	장준혁, 강희석, 이호세, 박성빈[한국원자력연구원]	
10:40~11:00	흡수스펙트럼을 이용한 고온 LiCl-KCl 용융염 내 넵투늄 화학적 거동 연구	25
	박태홍, 김대현, 배상은, 조영환, 김종윤, 연제원, 송규석[한국원자력연구원]	
11:00~11:20	파이로프로세스 공정연계 방안과 핵확산저항성 영향 분석	27
	안성규, 서중석, 권은하, 김호동[한국원자력연구원]	
11:20~11:40	핵연료주기 시스템 다이내믹스 모델 개발	29
	최성열, 고원일[한국원자력연구원]	
11:40~12:00	TM-ICI 안내관 밀봉설계에 관한 연구	31
	김기찬, 신태명[한국교통대학교], 맹철수, 정장규[한국전력기술(주)]	

1분과 후행핵연료주기기술 및 정책 (Poster)

P0101	전해정련 LiCl-KCl 공융용염 이송 기술 개발	35
	이성호, 김인태, 박성빈[한국원자력연구원]	
P0102	평형모델을 이용한 핵연료주기 단계별 단위비용의 민감도 분석	37
	김성기, 강길범, 고원일[한국원자력연구원]	
P0103	승온하에서 UO_2 소결체의 공기중 노출 온도에 따른 산화특성	39
	김건식, 김동주, 이영우, 오장수, 김종현, 양재호, 김선기[한국원자력연구원]	
P0104	Hazard Analysis for Engineering-scale Pyroprocess Facility	41
	Seong-In Moon, Gil-Sung You, Seok-Jun Seo, Won-Myung Chong, Jeong-Hoe Ku, and Ho-Dong Kim[KAERI]	
P0105	파이로 핫셀시설에 대한 우리나라와 미국의 안전성 평가체계 비교/분석	43
	유길성, 문성인, 정원명, 구정희, 김호동[한국원자력연구원], 전관식[(주)라드웍스]	

P0106	HKED 기술의 파이로 공정 핵물질 분석 활용가능성 검토45 박광준, 서희, 원병희, 송대용, 박세환, 김호동[한국원자력연구원]
P0107	시료 조건에 따른 PRIDE UNDA 교정 시뮬레이션47 서희, 원병희, 이승규, 박세환, 신희성, 송대용, 나상호, 김호동[한국원자력연구원], 이현수[한양대학교]
P0108	사용후핵연료 운반용기 제작 및 법적제작검사49 정성환, 정윤창[한수원중앙연구원]
P0109	레이더를 이용한 용융염 레벨 측정 장치의 전해정련공정에서의 적용51 강현우, 박성빈, 황성찬, 진형주[한국원자력연구원]
P0110	공학규모 염증류장치의 시운전53 권상운, 박기민, 장준혁, 김정국, 박성빈[한국원자력연구원]
P0111	U-dendrite의 용해특성을 이용한 압축성형 연구55 이호세, 장준혁, 강희석, 박성빈[한국원자력연구원]
P0112	사용후핵연료 처리를 위한 이온성 액체 기술 현황57 박병홍, 강조흥, 김기섭[한국교통대학교]
P0113	TBP 희석제를 위한 소수성 이온성 액체 밀도59 박병홍, 김청[한국교통대학교]
P0114	소체적 연료의 봉내압 측정시험에 대한 평가61 이형권, 김도식, 전용범, 서항석, 권형문, 장정남, 김성근, 김대호[한국원자력연구원]
P0115	경수로용 사용후핵연료 지지격자 덤플 및 스프링 마모 관찰용 시스템 구축63 주용선, 김길수, 김도식, 백승제, 유병욱, 진영관, 김기하, 박대규, 홍권표, 안상복, 전용범[한국원자력연구원]
P0116	사용후핵연료 건전성 평가를 위한 손상 기준 정립 방안65 김소영, 김정구, 이성기, 임채준[한전원자력연료㈜], 김진경, 이상진[한국원자력환경공단]
P0117	PRIDE 전해정련 공정장치 salt test67 진형주, 강현우, 황성찬, 박성빈[한국원자력연구원]
P0118	파이로 시설 원격취급시스템69 김기호, 김성현, 박병석, 이종광, 류동석, 유승남, 한중희, 조일제[한국원자력연구원]
P0119	파이로 핫셀시설에 대한 안전시스템 설계요건 분석71 서석준, 문성인, 정원명, 유길성, 구정희, 김호동[한국원자력연구원]
P0120	LSDS Development for Isotopic Fissile Assay in used Fuel73 YongDeok Lee, Ho-Dong Kim, KeeChan Song[KAERI], and ChangJe Park[Sejong Univ.]
P0121	Hotcell내 조사후 핵연료의 금속조직시험시편 제작기술75 서항석, 전용범, 김도식, 이형권, 권형문, 장정남, 권인찬[한국원자력연구원]
P0122	DRYSIM6 노외성능 및 내구성시험 평가77 김대호, 신창환, 양용식, 국동학, 구양현[한국원자력연구원]

P0123	아르곤셀 냉각시스템 개선 및 성능시험79 홍동희, 조일제, 이원경, 한종희, 장영국, 노선호[한국원자력연구원]
P0124	몬테칼로 기법을 적용한 MUF 불확도 검증 방안 연구81 원병희, 안성규, 한보영, 신희성, 박세환, 김호동[한국원자력연구원]
P0125	사용후핵연료 산화처리 이중반응장치 설계83 김영환, 이재원, 이광연, 이주호, 이정원[한국원자력연구원]
P0126	수정된 Shrinking Cylinder Model에 근거한 저온 Voloxidation 공정모델링에 관한 연구85 이주호, 전상채, 이재원, 김영환, 강상준, 이광연, 박근일[한국원자력연구원]
P0127	500°C LiCl-KCl 용융염 내 Ce^{3+} 이온과 Nd 금속 간의 반응에 관한 연구87 신정식, 김택진, 심준보, 백승우, 김광락, 김가영, 정재후[한국원자력연구원]
P0128	사용후핵연료 건식저장시설의 염해영향에 대한 잔존내구수명 평가89 성낙훈, 최규섭, 표원삼[(주)코네스코퍼레이션], 정성환[한수원중앙연구원]
P0129	염화 우라늄 제조장치의 salt 이송 및 pellet 제조 성능 실험91 우문식, 진형주, 박근일, 박성빈[한국원자력연구원]
P0130	후프 응력에 따른 수소화물재배열 현상 및 기계적 물성 변화 평가93 김영준, 국동학[한국원자력연구원]
P0131	수송·저장 용기 핵연료집합체 최대 피복관 온도 산출 방법 분석95 김형진, 강경욱, 백창열, 윤시태[한국원자력환경공단]
P0132	ACPF Argon Compartment 열유동 해석97 박병석, 이종광, 유승남, 김기호, 조일제[한국원자력연구원]
P0133	사용후핵연료 안전성 및 건전성 시험시설 개념설계99 허성현, 이윤재, 최중서[(주)대우건설], 선승호, 이상진[한국원자력환경공단]
P0134	ACPF 알곤 컴파트먼트 운용 원격운전 크레인 개발101 이종광, 박병석, 유승남, 김기호, 조일제[한국원자력연구원]
P0135	PRIDE 수명주기 관리시스템 구축103 한종희, 홍동희, 이원경, 조일제[한국원자력연구원]
P0136	사용후핵연료 건전성관련 장기저장 모니터링 항목 비교105 전관식, 김지현, 서현석, 박상훈[(주)라드웍스], 육대식[한국원자력안전기술원]
P0137	가상 공학규모 파이로시설의 물리적방호시스템 예비개념 검토107 이호희, 권은하, 김호동[한국원자력연구원]
P0138	가상 파이로시설 물리적방호시스템의 EASI 프로그램을 적용한 유효성평가109 이호희, 권은하, 김호동[한국원자력연구원]
P0139	다성분계 향류 다단 산화추출공정의 수치모사111 김광락, 안도희, 김시형, 김택진, 김가영, 심준보, 정재후, 백승우[한국원자력연구원]

P0140	절개탈피복 회수 연료파편의 세슘 휘발거동 분석 113 이재원, 이도연, 백영희, 이광연, 강상준, 전상채, 박근일[한국원자력연구원]
P0141	우라늄-희토류 함유 LiCl-KCl 공융염에서 우라늄 회수 시험 115 심준보, 신정식, 김택진, 김시형, 김가영, 김광락, 정재후, 안도희, 백승우, 이한수, 김인태[한국원자력연구원]
P0142	사용후핵연료 운반 위험도 평가를 위한 방출선원향관련 조사 연구 117 신상원, 김연화, 신상화, 이재민[TUV Rheinland Korea]
P0143	Current Status of the INPRO Collaborative Project, Proliferation Resistance and Safeguardability Assessment Tools (PROSA) 119 H.L. Chang, E.H. Kwon, W.I. Ko, and H.D. Kim[KAERI]
P0144	강건설계 기법을 이용한 사용후연료 수송용기의 구조설계인자 연구 121 박경원, 신태명[한국교통대학교]
P0145	사용후핵연료 건식저장 환경에서의 Hoop Stress별 수소화물 재배열 취성 분석 123 국동학, 김영준, 김주성, 구양현[한국원자력연구원]
P0146	사용후핵연료 저장 용기의 Fuel guide tube 저변형 용접기술 125 주성민, 박광수, 김홍주[(재)포항산업과학연구원]
P0147	사용후핵연료 Pu 계량을 위한 XRF 시스템의 Compton suppression 적용성 평가 ... 127 이승규, 서희, 원병희, 김호동, 박세환[한국원자력연구원], 김용균[기초과학연구원]
P0148	사용후핵연료 CASK의 내부 모니터링 기술 129 박광수, 이관희, 주성민, 박신화[(재)포항산업과학연구원]
P0149	주요국 사용후핵연료 관리현황 및 장기관리대안 131 최성열, 강길범, 이선희, 윤새롬, 루쌍, 고원일[한국원자력연구원]
P0150	PRIDE 원격작업을 위한 MSM의 쓰루풋 측정 133 류동석, 한종희, 김기호, 조일제[한국원자력연구원]
P0151	Analysis and Prospect of Regulatory Requirements for Spent Fuel Integrity Evaluation 135 Yoonhee Lee, Seongki Lee, and Chaejoon Lim[KEPCO NF]
P0152	핵확산저항성 강화 파이로 시설 설계방안 137 구정희, 문성인, 정원명, 유길성, 서석준, 김호동[한국원자력연구원]
P0153	PRIDE 카드뮴 종류장치를 이용한 카드뮴 종류 실험 139 정재후, 김광락, 안도희, 백승우, 심준보, 김택진, 김가영, 김시형[한국원자력연구원]

2분과 방사성폐기물 처분 및 부지특성 (Oral)

09:00~09:20	처분장 공학적방벽 성능실증을 위한 시험설비 디자인 143 이민수, 최희주, 이창수[한국원자력연구원]
-------------	--

09:20~09:40	심부시추공 처분기술 국내 적용성 예비 분석	145
	이종열, 배대석, 김건영, 이민수, 최희주, 김경수[한국원자력연구원]	
09:40~10:00	Appropriate Domain Size for Stochastic Discrete Fracture Model	147
	Sung-Hoon Ji and Yong-Kwon Koh[KAERI]	
10:00~10:20	고준위폐기물처분장 공학적방벽의 캡채움물질 연구 : 기술동향 중심으로	149
	이재완, 최영철, 김진섭, 최희주[한국원자력연구원]	
10:40~11:00	지하수 조건에서 $\text{Ca}^{2+}/\text{UO}_2^{2+}/\text{CO}_3^{2-}$ 화학종의 점토광물질에 대한 흡착특성 연구 ..	151
	조용흠, 이준엽, 윤종일[한국과학기술원]	
11:00~11:20	복합처분시스템에서 처분안전기준의 해석과 안전성평가 적용	153
	정찬우, 정효숙, 서은진, 박진용, 송민철[한국원자력안전기술원]	
11:20~11:40	중·저준위방폐물 운반용기 설계	155
	김기진, 최광섭[한국원자력환경공단], 김태수, 송양수, 민영선[(주)코네스코퍼레이션]	
11:40~12:00	Role of Natural Organic Matter on Radioactive Iodine Fate in Subsurface Environments	157
	Sangsoo Han, Wooyong Um, and Sungwook Choung[POSTECH]	

2분과 방사성폐기물 처분 및 부지특성 (Poster)

P0201	심부 시추공 처분 안전성 평가를 위한 문헌조사 및 예비 연구	161
	김정우, 김인영, 최희주, 이종열[한국원자력연구원]	
P0202	고준위폐기물 심부시추공 처분을 위한 새로운 공학적방벽 제안	163
	최희주, 이민수, 유맏고밭게빛나라, 이종열[한국원자력연구원]	
P0203	시간분해 레이저 유도 형광분광학을 이용한 KURT 지하수의 우라늄 농도 및 화학종 결정	165
	백민훈, 정의창, 정종태[한국원자력연구원]	
P0204	사용후핵연료 심부시추공 처분 안전성평가를 위한 골드심 모델	167
	이연영, 정종태[한국원자력연구원]	
P0205	심부 환경의 단일 단열내 지하수 유동 모의	169
	고낙열, 지성훈[한국원자력연구원]	
P0206	척도인자 개발을 위한 방사성폐기물 시료 내 ^{90}Sr 분리거동 평가	171
	이창현, 조형국, 이민영, 양희룡, 안홍주[한국원자력연구원], 김민원[(주)엑트]	
P0207	방사성폐기물처분장 주변 환경변화에 있어서 열역학 모델의 활용	173
	민제호, 김정우, 정종태[한국원자력연구원]	
P0208	벤토나이트 압축 방향에 따른 팽윤 특성평가	175
	유맏고밭게빛나라, 이민수, 최희주[한국원자력연구원]	
P0209	무산소 조건에서 구리부식과 가스생성에 대한 방사선과 염소의 영향	177
	이재광, 민제호, 정종태[한국원자력연구원]	

P0210	심부처분환경조건의 생지화학 가스에 의한 우라늄 수탁 거동 영향 179 이승엽, 이지영, 차완식, 이재광, 정종태, 김경수[한국원자력연구원]
P0211	황동석(chalcopyrite) 존재 시 산화환원 조건에 따른 우라늄 핵종 이동 특성 이해 181 박태진, 민제호, 이재광, 이승엽, 정종태[한국원자력연구원]
P0212	KURT 연구용터널 확장에 따른 지하수 장기모니터링 시스템 구축 183 권장순, 류지훈, 고용권, 김경수[한국원자력연구원]
P0213	국내 결정질암반 내 지하수의 수리지화학 특성 예비 평가 185 권장순, 박경우, 김지연, 고용권[한국원자력연구원]
P0214	국내 결정질 암반에서 조사한 심부 영역의 단열대 분포(화강암, 편마암 지역) 연구 187 박경우, 고용권, 김경수[한국원자력연구원]
P0215	처분밀도 향상을 위한 방사선원향 최적화 가능성 연구 189 조동건, 정종태[한국원자력연구원]
P0216	지하수위 강하에 따른 해수침투 및 지하수의 예비 유동 모델: 제주도 서부 해안지역 .. 191 김대희, 고용권[한국원자력연구원], 구민호[공주대학교], 정일문[한국건설기술연구원]
P0217	시계열분석과 요인분석을 통한 결정질 암반 지하수위 변동 분석 193 이정환, 정재열, 정해룡[한국원자력환경공단]
P0218	해수침투와 그라우팅에 의한 심부 지하수의 지화학적 특성 평가 및 예측 195 오승주, 류지훈, 고용권[한국원자력연구원]
P0219	Xylenol Orange 비색법에 의한 H ₂ O ₂ 정량법 최적화 197 김종구, 장은실, 윤영상, 하영경, 송규석[한국원자력연구원]
P0220	전해정련을 이용한 Zr합금 폐 피복관 처리기술 연구 199 이창화, 이유리, 전민구, 최용택, 강권호, 박근일[한국원자력연구원]
P0221	흑운모의 풍화 및 Cs 흡착에 미치는 수용액 내 양이온의 영향 201 김지연, 권장순, 고용권[한국원자력연구원], 김영규[경북대학교]
P0222	조사재시험시설 공기조화 제어반 개조 203 백상열, 백승제, 유병옥, 김길수, 정양홍, 안상복, 전용범[한국원자력연구원]
P0223	경주 처분장 사일로 폐쇄 후 내부환경 변화 연구 205 하재철, 정해룡, 정재열[한국원자력환경공단]
P0224	방사성폐기물처분시설 3D 지질환경 모델 구축(1) 207 이태엽, 이정환, 정해룡[한국원자력환경공단]
P0225	압축드럼 생성시점을 고려한 원전 재포장드럼의 방사능 규명 209 신성규, 성석현, 권민철, 이상훈, 김수진, 이기형[한국원자력환경공단], 문주현[동국대학교]
P0226	방폐물 신분류체계를 고려한 동굴처분시설 폐기물 정치방안 설정 211 박종걸, 광상수, 김현[한국원자력환경공단]
P0227	연소도 이득효과 적용 시 핵연료 오장전으로 인한 책임계 영향 정량 분석 213 차길용, 김순영[㈜래드코어], 김태만[한국원자력환경공단]

3분과 제염해체 및 방사성폐기물 처리 (Oral-1)

09:00~09:20	연구로 1호기 해체 및 해체폐기물 관리 현황 217 황두성, 정경환, 홍상범, 문제권[한국원자력연구원]
09:20~09:40	MCNP/ORIGEN2를 이용한 월성1호기 노심구조물 선원항 계산 219 노경호, 김창락, 하창주[한국전력국제원자력대학원대학교]
09:40~10:00	원자력시설 해체 부지복원 전략 및 사례 분석 221 홍상범, 서범경, 문제권[한국원자력연구원]
10:00~10:20	원자로압력용기 해체를 위한 일체형 원격 절단 시스템 연구 223 현동준, 이성욱, 서용철, 김근호, 이종환, 정관성, 최병선, 문제권[한국원자력연구원]
10:40~11:00	원자력 발전소 주요 부품의 해체 시뮬레이션을 위한 CAD모델의 절단 방법 225 김익준, 김근호, 문제권, 서재석, 이종환, 정관성, 최병선, 현동준[한국원자력연구원]
11:00~11:20	원자력시설 해체계획서 작성지침 개발방향에 대한 고찰 227 안상면, 이정준, 육대식, 정찬우, 이병수[한국원자력안전기술원]
11:20~11:40	부식생성물 평가코드 CRUDTRAN을 이용한 국내 원전의 해체선원항 예측연구 229 윤태빈, 송종순[조선대학교]
11:40~12:00	연구용 원자로 해체비용 평가 프로그램 (REDCAP) 개발 231 정재훈, 최광순, 박정수, 이병식[한국전력기술(주)]

3분과 제염해체 및 방사성폐기물 처리 (Oral-2)

09:00~09:20	고염도 해수폐액에서 실리코티타네이트의 Cs, Sr 선택적 흡착제거 성능 평가 235 이지훈, 백석민, 조항래, 박승철, 양호연[한수원중앙연구원]
09:20~09:40	우라늄화합물로 오염된 금속폐기물의 용융처리시 우라늄의 거동 조사 237 전관식, 유성현[㈜유이엔지]
09:40~10:00	LiCl-KCl 용융염에서 $CeCl_3$, $PrCl_3$ 의 전기화학적 거동 연구 239 김범규, 이애리, 김용일, 박병기[순천향대학교]
10:00~10:20	파이로 공정에서 발생하는 산화희토류 폐기물 담지용 Ca-apatite 결정화유리 고화체 241 김미애, 허종[포항공과대학교]
10:40~11:00	Cs 오염수 처리를 위한 hybrid 흡착제의 합성과 특성 연구 243 이근영, 박민성, 이일희, 김광욱, 정동용, 문제권[한국원자력연구원]
11:00~11:20	원전해체 시 요구되는 일차계통 방사성 물질 오염제거를 위한 HYBRID-II 제염제 ($Cu^+/N_2H_4/H_2SO_4$)의 개발 245 김선병, 원희준, 이우성, 문제권, 최왕규[한국원자력연구원]
11:20~11:40	방사성 세슘 제거를 위한 자성흡착제/하이드로젤 복합소재의 제조 247 양희만, 홍상범, 최용석, 이근우, 서범경, 문제권[한국원자력연구원]

11:40~12:00	파이로 공정에서 발생하는 129-이 담지용 유리 고화체 개발	249
	이청원, 허종[포항공과대학교]	

3분과 제염해체 및 방사성폐기물 처리 (Poster)

P0301	동전기 폐액의 재사용을 위한 처리방법	253
	김승수, 한규성, 박옥량, 김계남[한국원자력연구원]	
P0302	암모늄몰리브도포스페이트 지지체로써의 폴리에터술폰의 적용 가능성	255
	박재일, 김정석, 박용준[한국원자력연구원]	
P0303	원전 핵심설비 해체 계획 수립을 위한 3차원 CAD 모델 기반 공간선량률 가시화 기술 개발	257
	이중환, 김근호, 현동준, 서재석, 김익준, 정관성, 최병선, 문제권[한국원자력연구원]	
P0304	RIPF 방사성 액체/고체폐기물 처리	259
	윤동원, 이문, 윤병주[한국원자력연구원]	
P0305	TGA 장치를 이용한 Zircaloy-4 피복관의 염소화 반응 속도 연구	261
	전민구, 최용택, 강권호, 박근일[한국원자력연구원]	
P0306	EU-APR1400 방사성폐기물계통 설계특성	263
	하각현, 김성환, 황도현[한수원중앙연구원]	
P0307	Characteristics of Perovskite Ca(La, Gd)TiO ₃ Nano-Powder as a HLW Ceramic Form Using Combustion Synthesis	265
	Yeon-Ku Kim, Young-Min Han, Sooji Jung, and Choong-Hwan Jung[KAERI]	
P0308	국내 원자력발전소 해체비용 규모의 적정성 검토	267
	김학수[한수원중앙연구원], 문주현[동국대학교]	
P0309	해체 부지 잔류방사능 측정용 컴프턴 억제형 검출기 설계 및 성능 평가	269
	유지현, 서범경, 홍상범, 문제권[한국원자력연구원]	
P0310	음이온교환수지 분리관에서 ⁵⁵ Fe 및 ⁹⁴ Nb의 분리에 미치는 옥살산의 영향	271
	조형국, 이창현, 이민영, 양희룡, 안홍주[한국원자력연구원], 김민원[(주)엑트]	
P0311	다양한 형태의 실리카 나노입자를 포함한 복합유체의 안정성 평가	273
	윤인호, 김초롱, 정종현, 양한범, 박상윤, 문제권, 최왕규[한국원자력연구원], 윤석본[한수원중앙연구원]	
P0312	우라늄오염자갈의 제염실험	275
	박옥량, 김계남, 김승수, 문제권[한국원자력연구원]	
P0313	석탄회 필터를 이용한 기체상세슘의 포집 반응속도 모델	277
	박장진, 신진명, 양재환, 백영희, 유재욱, 박근일[한국원자력연구원]	
P0314	기체상 테크네튬(레늄) 포집을 위한 칼슘 그래놀 필터	279
	박장진, 신진명, 양재환, 백영희, 유재욱, 박근일[한국원자력연구원]	
P0315	미국 상용 원자력발전소 해체 사례 조사 및 분석	281
	이성철, 김창락[한국전력국제원자력대학원대학교]	

P0316	고염/고방사성 해수폐액에서 CST에 의한 Cs의 흡착특성 283 이일희, 소지양, 백예지, 박민성, 이근영, 김광욱, 김익수, 정동용, 문제권[한국원자력연구원]
P0317	압축성 방사성폐기물의 감용처리 285 강일식, 홍대석, 손종식, 김태국, 광경길, 김기홍, 이범철[한국원자력연구원]
P0318	고방사화 원자로압력용기 하부내부구조물 해체 시나리오 평가 287 서재석, 최병선, 정관성, 현동준, 이종환, 김익준, 김근호, 문제권[한국원자력연구원]
P0319	밀봉선원폐기물 폐기용기 표준화 방안 289 김윤복, 한은덕, 이정민[한국원자력환경공단]
P0320	국내신규원전 폴리머 고화 설비 국산화 개발 적용 291 김동균, 이세엽, 문기원[한국원자력엔지니어링]
P0321	고분자 전해질 고정화제에 대한 제조 특성 분석 293 최용석, 이근우, 서범경, 문제권[한국원자력연구원]
P0322	이질동상 침전법을 이용한 방사성 폐액의 처리 295 소지양, 이일희, 박민성, 백예지, 이근영, 김광욱, 김익수, 정동용, 문제권[한국원자력연구원]
P0323	나노입자 복합유체의 화학제염제 특성에 대한 제염효과 고찰 297 양한범, 윤인호, 박상윤, 김선병, 김초롱, 최왕규[한국원자력연구원]
P0324	방사성 소각재의 가열처리가 소각재 특성에 미치는 영향 299 이윤지, 나상호, 이기원, 문제권[한국원자력연구원]
P0325	유기물의 오존 산화처리 연구(1) 301 김기홍, 강일식, 홍대석[한국원자력연구원]
P0326	압축성 경금속 드럼 감용장치 적용개선 303 이건화, 박우용, 장대성[하나검사기술㈜], 신현종[한국수력원자력㈜]
P0327	He 분위기하 AgX를 이용한 Xe, Kr 포집 특성 305 백영희, 박장진, 신진명, 양재환, 유재욱, 박근일[한국원자력연구원]
P0328	복합유체 제염 시 실리카 나노입자의 코발트 흡착 거동 307 김초롱, 정종현, 윤인호, 양한범, 최왕규, 문제권[한국원자력연구원], 윤석본[한수원중앙연구원]
P0329	산화제염조건에서 원전 일차계통 구조재의 crevice 부식특성평가 309 정준영, 박상윤, 원희준, 최왕규, 문제권[한국원자력연구원], 박소진[충남대학교]
P0330	복합공정을 이용한 BM 폐수지의 자체처분 기술 311 성진현, 허준, 김현기, 김승일, 강덕원[Haji 방사선공학센터], 안희진, 서봉수, 김대성, 정연해[한국수력원자력㈜]
P0331	초음파 기술을 이용한 폐수지 중 ^{60}Co 제염 실험 313 김현기, 김승일, 성진현, 허준, 강덕원[Haji 방사선공학센터]
P0332	해체 비용 산정시 해체 과도기 비용에 대한 고려 315 손정희, 신상화, 이재민[TUV Rheinland Korea]

P0333	삼중수소 취급시설의 구조 317 홍권표, 서기석, 손종식, 안상복, 주용선[한국원자력연구원], 조승연, 이현곤, 정기정[국가핵융합연구소]
P0334	산성용액에서 과산화수소의 분해첨가에 의한 Hydrazine 분해 319 이우성, 원희준, 김선병, 최왕규, 박상윤, 문제권[한국원자력연구원]
P0335	용융제염 공정 후보선택을 위한 AHP식 접근법 321 조봉비, 김철민, 안석영[부산대학교]
P0336	우라늄함유 TBP 유기폐액 열분해 가스의 수증기개질 촉매로서 Rh ₂ O ₃ -CeO ₂ 촉매 제조 연구 323 이민우, 양희철, 황호상, 정동용, 문제권[한국원자력연구원]
P0337	원전해체용 로봇시스템에서의 실시간 방사선 및 핵종 측정 기술개발 동향 325 김민수, 이용래, 박정원[㈜액트알엠티]
P0338	원전 일차계통 산화막의 반도체 특성에 따른 제염효과 고찰 327 박상윤, 정준영, 원희준, 황두성, 최왕규, 문제권[한국원자력연구원]
P0339	원자력시설 해체 작업환경 숙련도 향상을 위한 훈련 시스템 329 정관성, 문제권, 최병선, 현동준, 이종환, 김익준, 김근호, 서재석[한국원자력연구원]
P0340	HVAC 필터를 유리화하기 위한 알루미늄 용융 조건 분석 331 장인선, 이해현, 조현제[한수원중앙연구원]
P0341	표면온도제어장치를 이용한 LiCl 염폐기물의 탈염화 특성 333 조인학, 이영석[충남대학교], 박환서, 이기락, 은희철, 박근일[한국원자력연구원]
P0342	파이로그린 공정 발생 희토류 산화물 유리화 특성 연구 335 이해현, 이병관, 조현준[한수원중앙연구원]
P0343	Imidazolium을 기반으로 하는 이온성 액체를 이용한 우라늄추출 337 박민성, 김익수, 소지양, 백예지, 이일희, 김광욱, 이근영, 정동용, 문제권[한국원자력연구원]
P0344	한울유리화설비 유리고화체 건전성 평가 339 조현준, 이해현, 장인선[한수원중앙연구원], 심준휘, 정정수, 김종관[한수원(주)한울원자력본부], 광경길[한국원자력연구원]
P0345	원자력시설 해체 후 부지 재이용을 위한 방사선학적 기준 개발 계획 341 이정준, 안상면, 육대식, 정찬우, 이병수[한국원자력안전기술원]
P0346	2013년 가연성폐기물 처리시설을 이용한 감용처리 시험 결과 343 윤경수, 이기원, 민병연, 문제권[한국원자력연구원]
P0347	질산용액으로부터 이온성 액체를 이용한 우라늄 금속의 추출 특성 345 김익수, 박민성, 정동용, 이일희, 양한범, 문제권[한국원자력연구원]
P0348	Fluoride계 용융염에서 전해정련을 이용한 Zr 회수 연구 347 이유리, 이창화, 강권호, 박근일[한국원자력연구원]

P0349	후쿠시마 원전사고와 같은 재난적 원전사고에서 발생하는 대용량 고염 방사성 폐액 처리를 위한 방사성 핵종의 복합응집 침전연구 349 김광욱, 백예지, 이근영, 소지양, 박민성, 이일희, 정동용, 문제권[한국원자력연구원]
P0350	감압조건에서 LiCl-KCl-NdCl ₃ 시스템의 열적무게감량특성 351 은희철, 최정훈, 박환서, 박근일[한국원자력연구원], 조인학[충남대학교]
P0351	소결조제에 의한 소각재 고화연구 353 안병길, 이기원, 민병연, 이윤지, 나상호, 윤경수, 문제권[한국원자력연구원]
P0352	유도가열식저온로 하부챔버의 열피로 수명평가 355 이병관, 이해현, 장인선, 김천우[한수원중앙연구원]
P0353	LiCl-KCl 공융염 폐기물 내 희토류 핵종의 인산화침전반응 거동 분석 357 최정훈, 은희철, 이기락, 박환서, 박근일[한국원자력연구원]
P0354	석탄회필터 포집 방사성 세슘 분석 359 김정석, 김영복, 신진명, 최광순, 박재일, 박용준[한국원자력연구원]
P0355	Lab규모 밴드히터형 농축폐액 증발건조기 개발·실험을 통한 실증설비 최적설계 연구 .. 361 조항래, 백석민, 이지훈, 박승철, 양호연[한수원중앙연구원]
P0356	방사성 요오드 기체의 포집을 위한 비스무스와 요오드의 반응친화성 탐색 363 양재환, 신진명, 박장진, 유재욱, 백영희, 박근일[한국원자력연구원]
P0357	LiCl-KCl 용융염에서 액체금속 Bi에 대한 LaCl ₃ 의 전기화학적 거동연구 365 김범규, 이에리, 김용일, 박병기[순천향대학교]
P0358	LiCl-KCl 용융염에서 NdCl ₃ 의 전기화학적 거동연구 367 김범규, 이에리, 김용일, 박병기[순천향대학교]
P0359	콘크리트 저장용기 Mock Up 공시체 분석을 통한 제작성 평가 결과 369 도호석, 백창열, 윤시태[한국원자력환경공단], 강동인[(주)대왕콘]
P0360	사용후핵연료 수송저장용기 개발 차폐체 원주형 시편 제작특성 371 전종선[(주)에네시스], 이종욱[BH(주)]
P0361	고화유리제작용 Cold Crucible Melter 유리용융조건 도출 373 김윤호, 김진태, 한경식, 이종후[(주)KHPT]
P0362	Study on the Leaching Characteristics of Simulated Nuclear Waste Glass ... 375 Y.H. KIM, K.S. HAN, J.H. LEE, J.H. KIM, and J.T. KIM[KHPT]

4분과 방사선환경 및 안전 (Oral)

09:00~09:20	생활·건축자재에서 방출되는 라돈가스 측정 및 분석 379 송미숙, 주명훈, 임성규, 김현도, 안창석, 장동철, 서승범[한일원자력(주)]
09:20~09:40	추출크로마토그래피법을 이용한 해수 중 방사성 스트론튬 및 플루토늄의 축차 분리 기술 연구 381 김현철, 정근호, 장미, 박효국, 강문자, 최근식[한국원자력연구원]

09:40~10:00	퍼프모델을 이용한 월성원전부지 확산실험 해석	383
	정효준, 김은한, 박미선, 정해선, 황원태, 한문희[한국원자력연구원]	
10:00~10:20	월성원전 주변지역 식물의 방사능 오염에 관한 연구	385
	정진욱, 정성일, 국성도[경주시월성원전환경감시센터], 강태호[동국대학교]	
10:40~11:00	사용후핵연료 건식저장시설 콘크리트 균열에 따른 차폐영향평가	387
	고재훈, 성낙훈, 박제호[(주)코네스코퍼레이션], 정성환[한수원중앙연구원]	
11:00~11:20	방사성폐기물 보관용기 건전성 확보를 위한 비접촉 측정방법	389
	이병일, 홍용호, 김숙관[(주)엑트]	
11:20~11:40	사용후핵연료 21다발 운반용기 장전형태에 따른 선량을 비교 연구	391
	이우교, 이준훈, 김이수, 김순영[(주)래드코어], 김태만, 백창열[한국원자력환경공단]	
11:40~12:00	사용후핵연료 저장조 냉각기능 상실사고시 피복관 공기중 산화거동 연구	393
	김선기, 방제건, 전태현, 구양현[한국원자력연구원]	

4분과 방사선환경 및 안전 (Poster)

P0401	원전에서 발생하는 기체 유출물의 ^{14}C 채취 및 측정방법 조사연구	397
	김지현, 서현석, 전관식, 박상훈[(주)라드웍스], 김성일[한국원자력안전기술원]	
P0402	사무공간에서 방출되는 라돈/토론가스 측정 및 분석	399
	주명훈, 송미숙, 임성규, 김현도, 안창석, 장동철, 서승범[한일원자력(주)]	
P0403	NaI(Tl) 방사선수송 코드설계와 전력밀도 이론적 산출	401
	주명훈, 송미숙, 임성규, 김현도, 안창석, 장동철, 서승범[한일원자력(주)]	
P0404	안전관리규정 세부지침 내용을 반영한 방사선안전관리 표준절차서 개발	403
	박병목, 채경선, 신경욱[세안기술(주)], 이윤중, 이진우[한국원자력연구원]	
P0405	중성자 조사실 산란선 영향 측정	405
	원유호, 조문형, 강기두[한수원중앙연구원]	
P0406	알파분광분석시 전기전착 두께에 따른 스펙트럼 변화	407
	장미, 임종영, 김원영, 강문자, 최근식[한국원자력연구원]	
P0407	수생식물이용 방사능 흡수 연구	409
	김병호, 최용호, 임광목, 금동권[한국원자력연구원], 서강욱[국립수목원]	
P0408	사용후핵연료 중간저장시설에서의 직접방사선량 계산 시 선원항의 모사 방법에 따른 차폐건물 외벽에서의 민감도 평가	411
	노경용, 차길용, 김이수, 이준훈, 김순영[(주)래드코어], 김태만, 백창열[한국원자력환경공단]	
P0409	Comparative Study of the 90--Sr Separation via Ion-Exchange and Solvent Extraction	413
	Mumtaz Khan, Jinmo Ahn, Wooyong Um[POSTECH], Babar Hussain, and Tania Jabbar[PINSTECH]	

P0410	EDR을 이용한 폐순환 계통의 NaNO_2 제거기술	415
	이만길[한국수력원자력(주)], 박종석, 이세반, 김승일, 강덕원[Haji 방사선공학센터]	
P0411	한울원전 주변해역 3차원 해양확산평가 모델링	417
	양양희, 이갑복, 손욱, 손순환[한수원중앙연구원]	
P0412	지표면 침적된 방사성핵종의 공중방사선탐사를 위한 NaI(Tl) 검출기 반응함수의 고도에 따른 각도 의존성 평가	419
	지영용, 정근호, 이완로, 김창중, 장미, 강문자, 최상도, 최근식[한국원자력연구원], 최희열, 김병직[한국원자력안전기술원]	
P0413	소형 CMOS 카메라 모듈을 이용한 감마선 검출	421
	장재석, 신상훈, 장경원, 심혁인, 홍승한, 김선근, 전해수, 김재석, 권구원, 유육재, 이봉수[건국대학교]	

1분과

후행핵연료주기기술 및 정책 (Oral)

KOREAN RADIOACTIVE WASTE SOCIETY

운반저장검용용기 개발에 따른 운반 사용검사의 대체검사 도입 방안

육대식*, 박동극, 정재학, 이동명

한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 구성동 19번지

*dsyook@kins.re.kr

1. 서론

국내 원자력발전소내 사용후핵연료의 저장시설 포화가 예상됨에 따라 원자력환경공단에서는 중간저장을 위한 운반저장검용용기를 개발하고 있다[1]. 현재 국내 원자력안전법에서는 운반저장검용용기 자체에 대한 인허가 요건은 존재하지 않는다. 또한 저장용기만의 허가를 받을 수 있는 요건도 부재하다. 이에 따라, 사업자는 운반용기로서의 인허가를 받고, 저장시설에 대한 인허가 신청시 운반용기허가와와는 별개로 저장용기로서 인허가를 받아야 하는 상황이다. 본 연구에서는 현행 원자력안전법 체계 및 국외 운반저장검용용기에 적용되는 기술기준 검토를 통해 필요한 운반저장검용용기가 국내에 도입될 때 운반용기 사용검사 기술기준 중에서 개선이 필요한 항목을 도출하였다.

2. 본론

2.1 원자력안전법 체계 내 안전규제 현황

사용후핵연료를 위한 운반저장검용용기는 현재의 원자력안전법 체계에서는 B형 운반용기로 인허가를 받아야 한다. 즉, 사업자는 원자력 안전법 제76조에 의거 운반용기 설계승인을 받아야 하며, 제작 및 사용을 위한 제작·사용검사를 받아야 한다. 운반용기에 대한 인허가 요건 및 절차는 설계, 제작, 사용에 이르는 전 과정이 원자력안전법, 시행령, 시행규칙, 방사선안전관리 등의 기술기준에 관한 규칙, 위원회 고시 제2013-27호(폐기물.02) 및 제2013-51호(폐기물.19)에 체계적으로 제시되어 있으며, 이는 Fig. 1을 통해서도 확인할 수 있다. 사용후핵연료 중간저장시설에 관하여서는 원자력안전법 제63조 등과 하위 법령에서 방사성폐기물 폐기시설의 일환으로 규정이 완비되어 있다. 또한, 현재 미제정 상태인 중간저장시설과 관련된 구조 및 설비에 관한 기술기준, 안전성분석보고서 작성 지침 고시 2건이 이미 개발 완료되고 현재 제정 추진 중에 있다[2]. 현행 원자력안전법 체계에서

사용후핵연료 중간저장시설에 도입하기 위한 저장용기는 저장시설의 일부이며, 저장용기 자체를 위한 별도의 인허가 체계는 마련되어 있지 않다. 이를 개선하기 위한 연구가 기 수행되어 저장용기 설계승인 제도 및 제작검사의 필요성이 제시된 바 있다[2].

2.2 운반용기 사용검사 기술기준

사용후핵연료 운반용기에 대한 사용검사 기술기준은 위원회 고시 제2013-51호(폐기물.19)[3]에 제시되어 있다. 사용후핵연료 운반용기는 매 5년마다 사용검사를 받아야 하며, Table 1에서의 사용검사 항목별 합격기준은 동 고시 제11조에 제시되어 있다.

Table 1. Inspection items for spent fuel transport cask

No.	Inspection item
1	Visual inspection of internal and external appearance
2	Load test of hoist or cohesive (or bracing) devices
3	Performance test of radiation shield.
4	Non destructive test of key welded parts
5	Inspection of maximum normal operating pressure using hydraulic or air pressure;
6	Leak test of containment systems
7	Inspection of heat transfer performance

2.3 운반저장검용용기 사용검사 대체 검사 방안

운반저장검용용기는 그 특성상 발전소에서 운반저장검용용기에 사용후핵연료가 장전되어 중간저장시설로 운반되어지면, 그 상태로 저장을 하게 된다. 그러므로, 운반저장검용용기는 중간저장시설에 저장하는 기간 동안에는 운반용기로서 사용되지 않으므로 새로 신설된 조항인 위원회고시 제2013-51호 제9조 제3항에 의해 사용검사를 받지 않을 수 있다. 그러나 저장 후 다음 목적지(사용후핵연료 처리시설, 제2의 중간저장시설 혹은 처분시설)로 운반을 하기 위해서는 중간저장시설 내 저장 후 운반을 위한 운반전 검사 수행이 필요하며, 이 때 Table 1에 의한 사용검사를 수행하여야 한다. 사용후핵연료가 저장된

상기의 4개 항목 만족여부를 확인할 수 있는 문서가 제시되고 이에 대한 검토 결과 적합한 것으로 판단된다면 최대사용압력검사는 합격한 것으로 볼 수 있을 것이다.

본 연구에서는 사용후핵연료 운반 저장겸용용기 도입시 운반 사용검사 항목 중 중간저장시설 저장 후 운반시 적용하기 힘든 사용검사 항목에 대한 대체검사 방안을 제시하였다. 운반저장겸용용기에 대해 5년마다 수행하여야 하는 사용검사는

- [1] 이상진 ‘사용후핵연료 관리사업 추진현황’, 사용후핵연료 관리기술 교류를 위한 워크숍, 2013.12.
- [2] 육대식, 박동극 외5인, “국내 사용후핵연료 전과정 안전규제현황 및 개선방향”, 대한방사선방어학회, 2012 추계학술발표회 논문요약집, pp. 158-159.
- [3] 원자력안전위원회, “방사성물질 운반용기의 제작검사 및 사용검사에 관한 규정”, 제2013-51호, 2013.
- [4] IAEA, “Guidance for preparation of a safety case for a dual purpose cask containing spent fuel”, Draft TM-44985, 2013.

사용후핵연료 수송·저장 캐니스터 밀봉 용접부 비파괴검사 모의시험

채경선^{1*}, 박병목¹, 신경욱¹, 김홍준¹, 황영진¹, 박재석¹, 이상훈²

¹세안기술주식회사, 서울특별시 금천구 가산디지털2로 184

²한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*gschae7@sae-an.co.kr

1. 서론

경수로형 사용후핵연료 수송·저장시스템 종합안전성 입증시험 기술개발의 일부로서 축소규모(1/3) 급속용기 낙하시험모델(Drop Test Model)을 이용한 캐니스터 밀봉용접부 비파괴검사 모의시험을 수행하였다. 사용후핵연료 수송·저장시스템과 관련한 해외 상용인허가 관련문헌[1][2]등에서 다양한 캐니스터 밀봉 용접부 비파괴검사방법을 제시하고 있으나, 모의시험에서는 표면검사방법인 액체침투탐상검사(Liquid Penetrant Examination(PT))와 체적검사 방법인 초음파탐상검사(Ultrasonic Examination(UT))를 시험 적용하였다. 캐니스터 밀봉 용접부 비파괴검사 시험방안 구상과 비파괴검사절차 검토를 위한 목적으로 실시한 모의시험결과로부터 비파괴검사를 위한 접근성, 검사기법, 설계요건, 검사절차, 합격기준 등을 확인하였다.

2. 본론

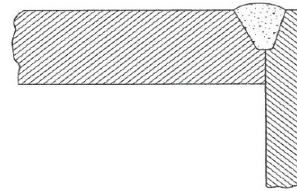
2.1 관련요건 및 제한사항

사용후핵연료 수송·저장 격납용기에 관한 참조기준[3]에서는 Fig. 1의 캐니스터 밀봉용접 형태에 대한 비파괴검사 방법으로서 PT, UT, LT(Leak Test)를 명시하고 구체적인 검사실시 방법에 관한 ASME 참조요건과 합격기준을 제시하고 있다. 낙하시험모델의 배기,배수포트는 실험목적상 캐니스터 내부의 각종센서와 연결된 케이블이 설치되어 용접방법이 아닌 볼트방법으로 밀봉하므로 LT를 제외한 캐니스터 리드-셸간 용접부만 고려하였으나 실제 원형설계모델에서는 Table 1에 나타난 것 처럼 다양한 압력경계부 밀봉 용접에 대한 비파괴검사 방법 및 합격기준 적용사례[4]를 참고할 수 있다.

낙하시험모델과 원형설계모델 각각에 적용될 수 있는 합격기준의 정량적 수치는 동일하지 않다. 비파괴검사 특성상 동일한 검사방법을 적용할지라도 검사대상 재료의 두께, 온도, 표면상태 등에 따라 합격기준의 정량적 수치 및 검사결과의 신

뢰성에 미치는 영향이 크므로 시험조건변화에 따른 절차검증이 필수적이다. UT의 경우 검사장비 교정시험편과 캐니스터 밀봉용접 검사부의 표면 온도차이가 25°F(약14°C)이내로 유지되어야한다는 요건만 고려하더라도 시험환경조건이 상이한 모의시험과 원형설계에 적용할 비파괴검사시험 및 합격여부는 각각 독립적이다.

Figure WC-4265-2
Typical Partial Penetration Weld Detail for
Category C Flat Head Closure Joints



(a) Single Closure Weld Detail

Fig. 1. Canister Closure welds of Drop Test Model.

Table 1. Canister Closure inspection & Acceptance Criteria

Closure Weld	Weld Type	NDE Methods	ASME Acceptance Criteria
Lid-to-Shell	Partial (V-groove)	VT on Track Welds	NF-5360
		PT Root Pass	NB-5350
		PT Final Pass	NB-5350
		VT Final Pass	NF-5360
		UT / multi-layerPT	NB-5332
		Helium Leakage Test	Sect.V & ANSI N14.5
Lid-to-Vent/ Drain Cover Plate	Partial (Bevel groove)	VT on Track Welds	NF-5360
		PT Root Pass	NB-5350
		PT Final Pass	NB-5350
		VT Final Pass	NF-5360
		Helium Leakage Test	Sect.V & ANSI N14.5
Lid -Cover Plate	Fillet	VT on Track Welds	NF-5360
		PT Root Pass	NB-5350
		(if multiple pass)	
		PT Final Pass	NB-5350
Shell-Cover Plate		VT Final Pass	NF-5360

2.2 모의시험방법

캐니스터 밀봉 용접부 비파괴검사 모의시험으로서 축소규모(1/3) 낙하시험모델의 용접부 표면검사는 PT방법을, 체적검사는 UT방법을 적용하였다. 재료시험편은 원형설계내용 및 축소모델 밀봉 용접부 모재와 동일한 재료를 사용하여 제작한 것으로서 체적검사시 UT검사장비 교정등을 위해 사용하였다. ASME Sec.V[5]에 따른 검사절차와 방법, 재료 등의 제반 요건을 고려하였고, PT는 원자력등급 탐상제(강성공업 NP계)를, UT는 2~2.25MHz 수직(0도) 및 사각탐촉자(45~70도), 종파사각(70도)탐촉자, USN60SW 등의 장비를 활용하였다.

PT검사에서는 균열, 선형지시 및 원형지시등의 유관지시여부를, UT검사에서는 재료시험편의 대비기준값을 초과하는 불완전 지시나, 균열, 용융부족, 용입불량 특성을 갖는 지시의 존재여부 및 설계요건상의 용입깊이에 대한 검사를 주요 검사내용으로 하였다. 또한 모의시험에서는 합격여부와 관계없이 비파괴검사 시험방안 및 절차, 검사기법, 검사부위 접근성 등의 적합성여부도 확인하였다.

2.3 모의시험결과

Fig. 2에 나타낸 것 처럼 모의시험 목적상 PT검사는 용접부의 루트패스(Root pass), 중간층패스, 최종패스에 대해 적용한 결과 합격기준을 불만족하는 균열, 선형지시 및 원형지시 등의 유관지시는 발견되지 않았다. 모의시험체 밀봉용접부 원주방향 전체에 대한 UT검사 결과 8~12 mm 용입깊이로서 설계기준치인 10±2.5 mm 범위내에 해당함을 확인하였고, 체적검사로 확인할 수 있는 균열, 용융부족, 용입불량, 웰부위 용접열영향부내 판상지시(Lamella Tear) 등의 유관지시는 발견되지 않았다. 검사기법 및 검사부위 접근성과 관련하여 초음파탐촉자의 용접면상 주사(Scanning)가 가능하도록 용접면의 표면가공처리 필요성이 있었다.



Fig. 2. LT(Left) and UT(Right) for SNF Canister drop test model.

3. 결론

경수로형 사용후핵연료 수송·저장시스템 종합안전성 입증시험기술 개발의 일부분으로 축소규모 금속용기 낙하시험모델(Drop Test Model)을 이용한 캐니스터 밀봉용접부 비파괴검사 모의시험결과 표면 및 체적검사 시험방안 및 적용절차를 검토하였다. 체적검사의 경우 현장여건상 수침법 적용을 배제한다면 캐니스터 용접면 표면처리에 대한 검토가 이루어져야 하고, 시험방안 및 적용절차의 실증과 검사결과의 신뢰성 제고를 위해서는 사용후핵연료를 캐니스터 내 적재이후 사용후핵연료로부터 발생하는 캐니스터 밀봉용접부 표면온도 조건과 동일한 검사환경을 고려한 검증시험과 절차검증을 위한 시험이 원형설계모델이 완성된 시점에서 추가적으로 실시되어야 할 것으로 판단된다.

4. 감사의 글

본 연구는 산업통상자원부의 재원으로 한국에너지기술연구원(KETEP)의 지원을 받아 수행중인 연구과제입니다.

5. 참고문헌

- [1] Grand Gulf Nuclear Station - NRC Inspection Report 050-00416/06-009 ; 072-00050/06-001, ADAMS, NRC 2006.
- [2] U.S.NRC, "Standard Review Plan for Spent Fuel Dry Storage Systems at a General License Facility", NUREG-1536, Rev1A, 2010.
- [3] ASME B&PV Code Sec.III, "Containments for Transportation and Storage of Spent Nuclear Fuel and High Level Radioactive Material and Waste", Division 3, ASME BPVC Sec.III, 2013.
- [4] Holtec International, "Final Safety Report for the HI-STAR 100 Cask System", ADAMS, NRC.
- [5] ASME B&PV Code Sec.V, "Nondestructive Examination", ASME, 2007.

모의 사용후 핵연료봉 제조장치 개발

이정원*, 김영환, 조광훈, 강상준, 이재원

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*jwlee3@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력 발전의 경제성 제고와 누적되는 사용후 핵연료(Spent fuel)의 효율적 관리를 위한 노력의 일환으로써, 사용후 핵연료의 재활용에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다[1]. 효과적인 사용후 핵연료 자원의 재활용과 더불어 핵확산 저항성(Non-proliferation)까지도 확보할 수 있는 파이로 건식처리(Pyroprocess) 연구가 그 중 대표적이라 할 수 있다. 파이로 공정은 여러 단계의 사용후 핵연료 처리 공정을 거치게 되는데, 고방사성으로 인해 원격 및 차폐 기술이 필수적인 바, 연구 개발을 위한 취급에 어려움이 많다. 그래서 통상적으로 감손우라늄을 이용한 모의 사용후 핵연료를 제조하여 파이로 공정 연구를 수행하고 있다. 파이로 초기 공정인 연료봉 피복관 절개 연구를 위한 모의 사용후 핵연료봉이 필요하여 모의 사용후 핵연료봉 제조를 위한 장치 개발을 본 연구를 통해 수행하였다.

상기 요구사항을 충족하기 위한 제조장치는 피복관 파열시험 기술과 문헌조사를 통해 개념 설계하였다. 피복관 파열시험의 경우 800 °C, 약 20 bar에서 파열되며, 문헌상으로는 1200 °C, 70 bar에서 bamboo 현상이 나타나면서 연료봉 압착이 발생하는 것으로 조사되었다[3]. 그리고 산업안전보건법에 따라 고압용기 안전에 대해 승인도 받아야 한다. Fig. 2는 개념설계 및 문헌상 조사된 압력용기 그림이다.

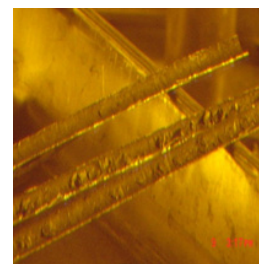
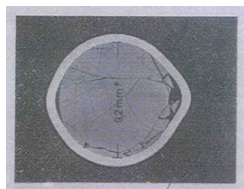


Fig. 1. Cross section & inner surface of spent fuel rod.

2. 본론

2.1 요구사항 분석

사용후 핵연료봉이 원자로내에 고온(약 400 ℃), 고압(약 150 bar)으로 연소하는 동안 Fig.1과 같이 UO_2 소결체와 Zircaloy-4(Zry) 피복관 사이에 화학적 반응이 일어나 Zry/ UO_2 반응층을 형성한다[2,3]. 이 반응층은 연소시간이 길수록, 즉 연소도가 높을수록 그 두께가 증가하고 조직이 치밀하여 사용후 핵연료 재활용을 위한 탈피복 공정에서의 핵물질 회수율에 많은 영향을 미친다[2,3]. 그러므로 모의 사용후 핵연료봉 제조 장치의 요건은 다음과 같다.

- PWR 16X16 type (소결체 ϕ 8.2, 피복관 내경 : ϕ 8.3) 길이 약 25cm 수용 가능
- 피복관 및 소결체간 접촉층(반응층)이 단 시간에 생성되어야 함 : 고온 고압이 요구됨.

2.2 개념 설계

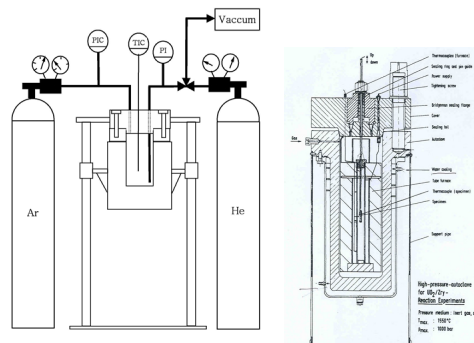


Fig. 2. Conceptual design for equipment.

2.3 상세 설계 및 제작

앞에서 서술한 요구사항 및 개념 설계를 기본으로 장치 상세설계 및 제작을 수행하였다. 기존의 HIP (Hot Isostatic Press) 장치와 유사하나 핵연료봉 제조를 위한 특수성을 감안하여 다음과 같이 설계, 제작하였다. (Fig. 3 참조)

- 본 장치는 모의 사용후 핵연료 봉을 제조하는

장치로서, 제조에 필요한 고온(1200 ℃), 고압(100 bar) 반응기(Pressure Vessel)이며, 고온(1200 ℃) 발생장치는 불활성 가스(Ar)분위기 고압 반응기 내부에 설치되어야 하며, 발생된 고온의 외부 열 전달을 최소화 할 수 있는 단열 시스템으로 구성되는 고온, 고압 반응기이다.

- 외부 반응기는 jacket type으로 냉각을 위한 냉각장치가 있으며, 모의 핵연료 봉의 형태는 외경 3/8인치(9.5 mm), 길이 약 300 mm의 피복관(tube)에 핵연료 물질이 장전된 형태로 내부 가열부에 연료봉 5 개 이상이 투입될 수 있는 시스템으로 구성된다
- 온도 및 압력을 컨트롤하여 온도(1200 ℃)와 압력(100 bar)을 일정하게 반응 시간 동안 유지시켜 모의 사용후 핵연료 봉을 제조할 수 있는 구조로 되어야 한다.
- 압력용기: 볼트 체결 형식(Bolt closure Type)
- 내부규격 : 380 Ø x 560 H (mm)
- 사용규격 : 150Ø x 345 H (mm)
- 온도 정밀도(± 5.5⁰C) 구간:150Øx300H(mm)
- 최대 사용온도 : 1200 ⁰C
- 최대 사용압력 : 100 bar
- 압력용기 재질 : SUS 316L
- 발열체 : Graphite Heater (5KW)
- 단열재 : Graphite Fiber (두께 : 50T)
- 온도제어 : Micro-Processed Programmable Type Temperature Controller (P.I.D Mode)
- 장치제어 (Data Acquisition System) : Touch Screen + Program Logic Controller
- 전원 : 220V / 3Phase / 60 Hz
- 사용가스 : Ar(반응기 내부)및 He(연료봉 내부)

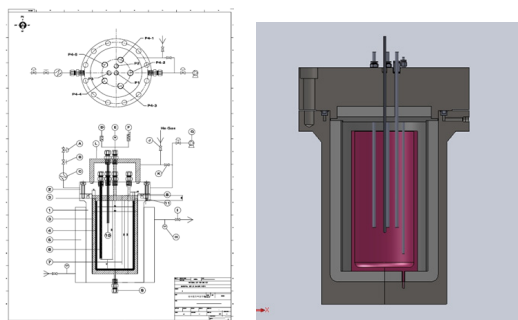


Fig. 3. Detailed design for equipment.

이상의 상세 설계를 반영하여 Fig. 4와 같이 장치를 제작하였다. 그리고 장치의 시운전 및 모의 사용후 핵연료 제조를 위한 제조 조건 시험을 수

행하여 Fig. 5와 같이 피복관이 압착된 모의 사용후 핵연료봉 제조 조건을 확인할 수 있었다.



Fig. 4. Equipment for manufacturing simulated spent fuel rods.



(a) before test



(b) after test

Fig. 5. Simulated spent fuel rods produced from trial operation tests.

3. 결론

파이로 초기 공정인 연료봉 피복관 절개 연구에 필요한 모의 사용후 핵연료봉 제조를 위해 1200℃, 100 bar까지 가온, 가압할 수 있는 모의 사용후 핵연료봉 제조 장치 개발을 성공적으로 수행하였다.

4. 감사의 글

이 논문은 2013년도 미래창조과학부의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(원자력기술개발사업, No. 2012M2A8A5025696)

5. 참고문헌

- [1] 한국원자력산업회의, 원자력산업, 331호, pp. 68-90, 2012.
- [2] P. Hofmann and D. Kerwin-peck, J. Nucl. Mater. 124, pp.80-105, 1984.
- [3] P. Hofmann and C. Politis, J. Nucl. Mater. 87, pp.375-397, 1979.

Nitride 코팅층의 우라늄 반응 특성

장준혁*, 강희석, 이호세, 박성빈

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*jangjunhyuk@kaeri.re.kr

1. 서론

전해정련공정은 사용후핵연료의 약 93%를 차지하고 있는 우라늄을 회수하는 파이로프로세스의 핵심공정으로 파이로 공정의 생산성 및 경제성을 결정짓는 중요한 공정이다. 전해정련공정은 전기화학을 이용하여 우라늄을 LiCl-KCl 용융염 속에서 음극전극 표면에 석출시킨다. 이렇게 회수된 우라늄 전착물은 약 20~30wt%의 염을 포함한 수백마이크로의 dendrite 형상을 띄고 있다. 이러한 미세한 powder 형태의 우라늄 dendrite는 산소와 반응성이 매우 높을 뿐만 아니라 tap density가 매우 낮아 취급 및 보관에 큰 어려움이 있다. 이에, 미세한 우라늄 dendrite powder를 효과적으로 잉곳의 형태로 제조하기 위하여 유도가열방식을 이용한 우라늄 잉곳주조기술을 개발하여 왔다.

유도가열로에서 일반적으로 Graphite를 용해도가 낮은 재료로 사용하지만, Graphite가 우라늄 또는 UCl_3 와의 반응성이 매우 높기 때문에 직접적인 사용에 큰 어려움이 있다. 하여 Graphite를 유도가열로의 용해도가 낮은 재료로 사용하기 위한 코팅 재료개발에 대한 연구가 매우 절실한 상황이다.

다양한 산화물 세라믹 재료를 이용한 선행연구 결과 Y_2O_3 가 U용탕 내에서 가장 안정한 코팅재료로 보고되어 있다 [1,2]. 하지만 실제 용해도가 낮은 사용을 위해서는 더욱 안정한 코팅재료 개발이 필요하다. 질화물계 세라믹의 경우, U와의 반응성에 대해서 크게 알려져 있는 연구결과가 없다. 이에, 본 연구에서는 질화물 재료들의 U와의 반응성에 대한 열역학적 고찰 결과를 바탕으로 코팅 후보물질들을 선정하였다. 선정된 후보물질들을 Graphite 시편에 용사하여 코팅층을 형성하였다. 코팅된 시편을 이용하여 우라늄 용탕과의 반응성을 분석하였다.

2. 본론

2.1 열역학적 안정성

코팅재료 선정을 위하여 Oxide 및 Nitride 재료들의 U 및 UCl_3 와의 반응성을 Gibbs free energy change로부터 예측하였다. 그 결과 Y_2O_3 , ZrN, TiN가 U-용탕과의 반응에서 화학적으로 안정함을 확인 할 수 있었다.

2.2 코팅시편 분석

위의 결과를 바탕으로, Y_2O_3 , ZrN, TiN 재료를 Plasma spray법을 이용하여 Graphite plate에 표면처리 하였다. 표면처리 한 Graphite plate를 XRD와 SEM을 이용하여 코팅층을 분석하였다. Fig. 1은 각각의 코팅시편의 단면을 관찰한 SEM 분석 결과이다.

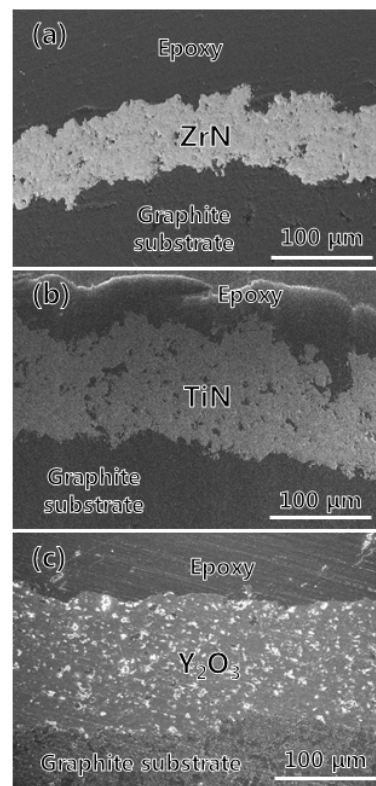


Fig. 1. SEM cross-sectional images for ZrN, TiN, Y_2O_3 coated sample.

세 시편 모두 약 100 μm 두께의 코팅층이 성공적으로 형성됨을 확인 할 수 있다. XRD 분석결과 ZrN과 TiN 코팅층에서는 각각의 산화물의 peak 이 함께 관찰되었다. 이러한 결과는 ZrN, TiN 코팅물질들이 Plasma coating 중에 부분적으로 산화되어 Nitride와 Oxide가 섞인 혼합층을 형성함을 보여주고 있다.

2.3 우라늄 용탕과의 반응성

위와 같이 코팅된 시편을 이용하여 우라늄 용탕과의 반응성을 평가하였다. 코팅된 시편을 약 40g의 우라늄과 함께 1400°C 온도로 가열하였다. 상온으로 냉각 후 각각의 코팅시편의 단면을 SEM을 이용하여 관찰하였다.

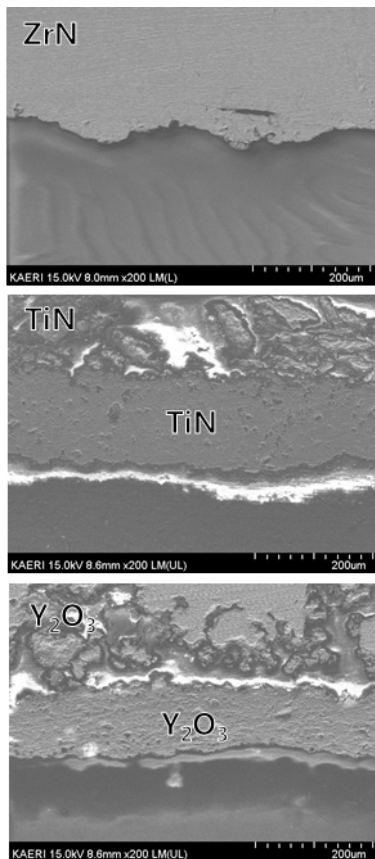


Fig. 2. SEM cross-sectional images for ZrN, TiN, Y_2O_3 coated sample after melting test.

SEM 분석결과 TiN과 Y_2O_3 는 우라늄 용탕과의 반응 후에도 안정하게 존재하는 반면 ZrN 코팅층은 사라지는 것을 확인 할 수 있었다. 이러한 결과로부터, Y_2O_3 와 함께 TiN이 용해도가나 코팅재

료로 높은 가능성이 있음을 잘 보여주고 있다.

3. 결론

다양한 Oxide와 Nitride 재료들의 U과 반응에 대해 열역학적 안정성을 고찰 해 본 결과, ZrN과 TiN 재료가 Y_2O_3 와 함께 용해도가나 코팅재료로서 높은 가능성을 보임을 확인 할 수 있었다. 각각의 재료를 용사 코팅 한 결과 Nitride와 Oxide의 연속된 복합층이 약 100 μm 의 두께로 Graphite plate 표면에 성공적으로 형성됨을 확인하였다. 이렇게 코팅 된 시편을 이용하여 1400°C의 온도에서 우라늄 용탕과의 반응성을 평가 해 본 결과, TiN과 Y_2O_3 코팅층은 안정한 반면 ZrN 코팅층은 불안정함을 확인 할 수 있었다. 이러한 결과로부터 Y_2O_3 와 함께 TiN이 용해도가나 코팅재료로 높은 가능성이 있음을 확인 할 수 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부에서 주관하는 원자력 연구개발사업의 일환으로 수행하였습니다

5. 참고문헌

- [1] C.H. Cho, Y.S. Lee, E.S. Kim, J.G. Kim and H.S. Lee, J. Radioanal. Nucl. Chem., 287 (2011) 485-490 Vol. 8, No. 1, pp.85-89, 2010.
- [2] S.H. Lee, C.H. Cho, Y.S. Lee, H.S. Lee and J.G. Kim, Korean J. Chem. Eng., 27(6), pp.1786-1790 (2010).

흡수스펙트럼을 이용한 고온 LiCl-KCl 용융염 내 넵투늄 화학적 거동 연구

박태홍*, 김대현, 배상은, 조영환, 김종윤, 연제원, 송규석
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*parktae@kaeri.re.kr

1. 서론

용융염 매질에서의 전기화학반응을 근간으로 하는 파이로공정은 사용후핵연료에 포함되어 있는 우라늄과 초우라늄 원소(예: 플루토늄, 아메리슘, 넵투늄 등)를 고방열핵종으로부터 분리하여 회수함으로써 폐기물의 부피를 크게 감소시킬 뿐만 아니라 차세대 원자로의 핵연료로 장반감기의 악티나이드 핵종을 재활용할 수 있는 기술을 제공할 수 있다. 이때 용융염 전해질에 공존하는 다양한 금속들은 인가된 전위에 따라 다양한 산화환원반응을 할 수 있고, 이온간 화학반응 또한 가능할 수 있다. 따라서 고온 용융염 매질에서 악티나이드 및 란타나이드 이온의 전기화학적 그리고 화학적 거동에 대한 이해는 전해환원을 비롯하여 전해정련과 전해제련과정의 화학반응을 이해하고 최적화하는데 중요한 자료가 된다. 지금까지 다수의 연구는 용융염 내 우라늄에 집중되어, 보다 깊이 있는 이해를 위해 초우라늄 원소의 전기화학적 거동에 대한 연구도 지속적으로 요구되고 있다. 금번 연구에서는 전기화학적 전위에 따른 넵투늄의 산화수 변화와 용융염 내에서 넵투늄의 화학반응을 UV-vis 흡수스펙트럼을 통해 모니터링하여 고온의 LiCl-KCl 매질에서 넵투늄의 전기화학적 그리고 화학적 거동을 분광학적으로 살펴보았다.

2. 본론

2.1 실험

LiCl-KCl 공융염은 Sigma-Aldrich 구입하여 정제과정 없이 사용하였다. 넵투늄 표준용액 (in HCl)을 증발건고 후, 음이온교환수지로 정제하고 건조시킨 후 글로브박스에서 LiCl-KCl 공융염과 함께 450°C에서 녹인 후 전기화학적 방법으로 넵투늄의 산화상태를 조절하여 공융염에 분산된 넵투늄 시료를 제조하여 사용하였다.

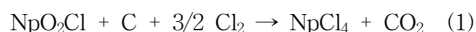
모든 용융염 실험은 Ar 분위기, H₂O < 1 ppm, O₂ < 1 ppm 조건의 글로브박스에서 전기로의 온도를 450°C로 유지하면서 수행하였다.

흡수스펙트럼은 자체적으로 제작한 전기화학/분

광 일체형 측정시스템을 사용하여 석영관으로 제작된 분광/전기화학 셀의 용융염 용액 내의 전기화학적 전위를 조절하면서 측정하였다. 이때, 작업전극은 탄소막대 또는 텅스텐금속판, 기준전극은 1wt% AgCl이 녹아있는 LiCl-KCl 공융염에 은 금속선을 넣어 사용하였다.[1]

2.2 결과 및 고찰

이온교환수지로 정제된 넵투늄을 LiCl-KCl 공융염에 녹인 후, 용융염에 -1.1 V (vs. Ag/Ag⁺)의 전위를 가하면 탄소 전극에서 Cl⁻이온이 산화되어 Cl₂가 발생하며, 이때 NpO₂⁺ 이온은 아래의 반응에 의해서 Np⁴⁺ 이온으로 환원이 된다.[2]



이후 용융염을 상온으로 식혀 굳히게 되면 NpCl₄ 용융염 시료를 얻을 수 있다.

NpCl₄ 용융염 시료를 450°C LiCl-KCl 공융염에 녹인 후 얻은 흡수스펙트럼에서 관측된 가시영역의 흡수띠들은 용융염 내 Np⁴⁺ 이온이 용해되어 있음을 이전 연구결과와 비교하여 확인할 수 있다.[3]

한편 Np⁴⁺가 용해되어 있는 용융염에 0.2 V를 인가하면 Np⁴⁺가 Np³⁺로 환원이 일어나고 그 스펙트럼 변화를 Fig. 1에서 볼 수 있다.

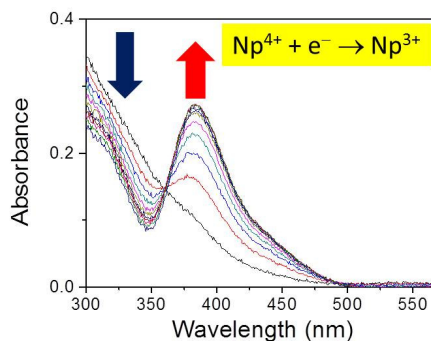


Fig. 1. Spectral change of Np ions during the reduction of Np⁴⁺ to Np³⁺ in LiCl-KCl melt.

환원전위 인가 시간이 길어짐에 따라 Np^{4+} 이온의 농도가 줄어들고 Np^{3+} 이온의 농도가 증가함을 새로이 생성되어 점차적으로 커지는 380 nm의 흡수띠를 통해 확인할 수 있었다. 또한 360 nm에서 관찰되는 등흡수점(isosbestic point)은 환원전위가 인가되는 동안 용융염 내에서 Np^{4+} 와 Np^{3+} 이온만이 반응에 참여하고 있다는 것을 알려준다. 주목할 만한 점은 지금까지 발표된 용융염 내 넵투늄의 분광학 연구는 주로 가시영역에서 관측되는 f-f 전이에 집중되어 있어 금변 연구에서 관찰된 Np^{3+} 이온의 360 nm 흡광띠는 그 예를 찾기 어렵다. 특히 이 흡광띠는 몰흡광계수가 큰 d-f 전이로 예상되기 때문에 f-f 전이를 연구에서 보다 훨씬 묽은 농도의 용액에서 관측될 수 있다. 또한 0.7 V보다 큰 전위를 인가하면 역반응인 산화반응이 일어나고 가역적으로 Np^{4+} 이온을 다시 얻을 수 있다.

3. 결론

전기화학/분광 일체형 측정시스템을 이용하여 고온 LiCl-KCl 공융염에서 Np^{4+} , Np^{3+} 이온의 산환원 반응을 분광학적으로 실시간 관측할 수 있었다.

4. 감사의 글

본 연구는 2013년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행하였습니다. (No. 2013M2A8A5025923)

5. 참고문헌

- [1] Y. J. Park, S. E. Bae, Y. H. Cho, J. Y. Kim, K. Song, Microchemical J., Vol. 99, p. 170, 2011.
- [2] A. Uehara, T. Nagai, T. Fujii, O. Shirai, H. Yamana, J. Nucl. Mater. Vol 437, p. 166, 2013.
- [3] I. B. Polovov, C. A. Sharrad, I. May, B. D. Vasin, V. A. Volkovich, T. R. Griffiths, ECS Trans., Vol. 3, p. 503, 2007.

파이로프로세스 공정연계 방안과 핵확산저항성 영향 분석

안성규*, 서중석, 권은하, 김호동

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*skahn76@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로 단위공정에 대한 기술개발이 활발하게 이루어져 오고 있음에 따라, 각 단위공정과 공정을 연계하는 방안이 고려되어야 한다. 공정 연계 방법에 따라 핵물질 조성이나 손실이 달라질 수 있으며, 이는 안전조치와 핵확산저항성 측면에서 영향을 미친다. 본 연구에서는 서로 다른 주요공정 단계 ([1]-[3])를 검토하여 가능한 연계 방안을 도출하고 안전조치와 핵확산저항성 특성에 미치는 영향을 분석하였다.

2. 본론

2.1 전처리-환원 공정 연계

환원공정으로의 연계 시 가장 고려해야 할 사항은 핵물질 손실 최소화과 피복관 잔류 핵물질 회수 방법이다. 연계 방안은 크게 탈피복 방법(산화 또는 기계적)에 따라 크게 나뉠 수 있으며 표1에 연계방안 및 그에 따른 기술적, 안전조치와 핵확산저항성 측면에서의 영향을 정리하였다. 특별히, 기계적탈피복 공정에 대한 균질화 방안으로서 사용후핵연료의 축방향으로 연소도가 일정한 부분을 별도 배치하고, 나머지 양 끝단과 피복관 내 잔류핵물질 및 미세입자 핵물질은 산화 및 균질화하면 핵물질 계량 불확도 최소화할 수 있을 것으로 기대한다.

2.2 환원-정련 공정 연계

금속전환체를 정련공정에 연계할 시 고려해야 할 사항은 미전환 회토류(RE) 산화물, 잔류용융염 제거 방법 및 금속전환체 도입방법이다. 표1에 연계 방안 및 그에 따른 기술적, 안전조치와 핵확산저항성 측면의 영향을 정리하였다. 전해환원-전해정련간 미환원물질(Dross) 제거단계를 적용할 경우, 최종 생성물에서의 감마선분광 적용을 통한 비파괴 핵물질계량이 가능하다.

2.3 정련-제련 공정 연계

정련공정이 끝난 후 U/TRU를 회수하는 제련공정에서 동일한 반응기를 사용할 경우 정련에 이용하는 교체전극과 제련에 이용하는 LCC전극을 따로 교체해야한다. 별도 반응기를 사용할 경우에는 LiCl-KCl 용융염 이송 취급 방법이 최대 관심

사이다. 분석 내용 및 결과는 Table 1에 정리했다. 전해정련-전해제련 간 염 이송을 위하여 내부반응기를 사용할 경우, 홀드업 및 핵물질의 손실을 최소화하면서 정확한 염의 무게측정이 가능해짐에 따라 계량 정확도 증가 및 '공정 물질 정리'(Clean-out)가 가능하다.

3. 비교 및 결론

파이로 주요 공정옵션 및 공정간 연계방안에 대해 기술적 측면에서의 용이성 및 장·단점 분석하고, 옵션에 따라 달라지는 핵물질 조성, 물리·화학적 형태, 운전특성 등을 고려하여 안전조치 적용성, 전용위험도 등 PR 특성을 평가했다. 이를 바탕으로 기술적 관점에서 실현 가능할 만한 범위에서 PR 강화를 위한 파이로 공정 연계방안 도출하였다. 이러한 방안들은 최소한의 기술적 관점 영향을 반영하기는 하였으나 주로 안전조치를 포함한 PR 측면의 특성을 기반으로 제시하는 방안들이다. 지속적으로 공정기술개발자들과의 교류를 통해 현실적으로 적용 가능한 방안들을 수정 보완해서 제시해 나갈 계획이다. 기술적인 측면에서의 장단점을 근거로 전체 종합공정을 구성하고 개발해 나가는데 참고할 수 있을 것으로 기대한다. 이러한 과정 자체가 설계기반안전조치이며 핵확산저항성을 강화하는 방안이다.

4. 감사의 글

이 연구는 2013년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행되었다. (원자력기술개발사업, No.2012M2A8A5025944)

5. 참고문헌

- [1] Hansoo Lee, et al., "Current Status of Pyroprocessing Development at KAERI," Sci. & Tech. of Nuclear Installation, Vol. 2013, Article ID 343492, 2013.
- [2] M. Williamson, "Pyroprocessing Flowsheets for Recycling Used Nuclear Fuel," Nucl. Eng. And Tech. Vol. 43(4), Aug 2011.
- [3] NEA, "Spent Nuclear Fuel Reprocessing Flowsheet," Nuclear Science NEA/NSC/WPFC /DOC(2012)15, 2012.

Table 1. Linkage options between processes and their technical and proliferation resistance aspects

공정 단계	연계 방안	기술적 평가	안전조치, 핵확산저항성 영향	
산화 탈피복 ↓ 전해 환원	적당한 크기의 펠렛으로 제조	추가 공정단계가 필요한 단점은 있지만, 현실적으로 유일한 방안.	○	○
	STS Mesh로 구성된 Cathode Basket 개념 개선하여 손실 최소화	구체적 장치개념 부재	X	◎
	LiCl염계로 손실된 핵물질 회수가 쉬운 장치 개발	구체적 장치개념 부재	X	△
기계적 탈피복 ↓ 전해 환원	1mm이상의 크기만을 도입→작은 입자와 Hull은 LiCl-KCl 용융염계에서 ZrCl4 이용해 염화물로 전환→직접 전해정련 과정으로 도입	전처리셀에서 염을 이용한 공정 추가에 따른 부담	○	△
	1mm 이상의 크기만을 도입 → 작은 입자와 Hull은 500℃ LT Voloxidation 후 펠렛 형태로 제조	산화탈피복과 동일한 단계/장치가 필요하지만, 운전횟수는 적을 수 있음	○	△
	산화 탈피복 옵션 (2)와 동일	산화 탈피복 옵션 (2)와 동일	X	△
	산화 탈피복 옵션 (3)과 동일	산화 탈피복 옵션 (3)과 동일	X	△
전해 환원 ↓ 전해 정련	음극처리로 잔류염 제거 → 용융으로 Dross제거 → 사출성형으로 봉 제조 후 절단하여 도입	잔류용융염, 미전환 RE산화물 제거 및 최종 TRU회수물의 RE금속 조성율을 크게 낮출 수 있음. 공정장비, 운전단계가 늘어남.	◎	○
	음극처리로 잔류 용융염만을 제거	미전환 RE산화물로 인해 UCl3 소모, UO2 생성, LiCl-KCl 용융염계로 분산 등의 문제점 발생	○	○
	양 공정의 Basket 규격을 동일화 후 직접 도입 (잔류염 제거 단계 없음)	두 번째 방안의 문제점 + 용융염의 온도상승으로 인한 비정상운전 사고 발생 가능	△	X
	공동 Basket 사용 + 음극처리로 잔류염 제거	basket 채로 음극처리 시 basket 손상, 수명저하 등으로 공동 basket 사용에 따른 장점 활용 불가할 수 있음.	X	◎
전해 정련 ↓ 전해 제련	내부반응기에서 고화 후 도입	기술적으로 가장 바람직	◎	◎
	동일 반응기에서 전극만 교체	상단 플랜지 공간확보 필요 및 원격운전성에 대한 어려움	△	△
	전용 이송관으로 연결	450℃ 이상 가열 필요, 국부적 냉각으로 막힘 등의 운전사고 발생가능	X	X

핵연료주기 시스템 다이내믹스 모델 개발

최성열*, 고원일

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*csy@kaeri.re.kr

1. 서론

핵연료주기는 핵물질의 채광부터 정련, 변환, 농축, 핵연료 제조, 원자로, 저장, 분리, 처분과 같은 일련의 과정과 함께 각 단계별로 선택 가능한 많은 수의 옵션들이 존재하는 복잡한 과정이다. 이런 핵연료주기는 사용후핵연료의 재사용 여부에 따라서 직접처분주기와 재처리주기로 구분할 수 있는데, 어떤 핵연료주기를 선택하는가는 폐기물관리, 경제성, 핵확산저항성, 자원활용률, 에너지안보, 환경친화성 등 다양한 기술, 사회, 정치적 측면에 미치는 영향력이 크다. 이러한 영향을 분석할 수 있는 기존의 평형모델은 정적물질흐름으로 시간에 따른 물질흐름 변화를 계산할 수 없으며, 각 시나리오 단위로 분석을 진행하여 새로운 핵연료주기 시나리오 해석을 위해서는 기존에 작성된 모델과는 별개로 처음부터 재작성이 요구된다. 또한, 평형모델은 복잡한 원자로 배치, 폐쇄 모델을 고려하기 어려우며, 중요 핵종들의 이송, 중성자 조사, 붕괴와 같은 물질 흐름 추적을 할 수 없고, 다단계에 걸친 재처리주기를 모사가 어렵다. 평형모델의 이런 단점을 극복하고 시간에 따른 물질흐름을 핵종단위로 추적할 수 있도록 시스템 다이내믹스 방법에 기반을 둔 새로운 핵연료주기 동적 모델을 개발하였다.

2. 수학적 모델

핵연료주기 동적 물질흐름 분석을 위해 핵연료주기를 채광부터 처분까지 총 7 단계로 모듈화하고, 이 7개 모듈의 시스템 다이내믹스 모델을 각각 개발 통합하였다. 본 논문에서는 원자로 생애주기와 사용후핵연료 저장 부분에 대한 수학적 모델을 설명한다.

2.1 원자로 생애주기 모듈

원자로는 주문이후에도 인허가와 건설을 위한 시간이 필요하다. 따라서 신규 원자로가 필요년도에 발전에 들어갈 수 있도록 원자로 건설을 결정하고 주문해야한다. 이런 시간 차이는 최소한 고

려하고 있는 원자로 타입 중에서 가장 오래 인허가(T_L)와 건설(T_C)이 소요되는 원자료를 건설할 수 있을 정도로 충분해야한다. 이 시간 T_P 는 아래와 같이 표현할 수 있다.

$$T_P \geq \max(T_L^1 + T_C^1, \dots, T_L^i + T_C^i) \quad (1)$$

원자로는 수요대비 부족한 전력 공급량을 보충해 주기 위해서 건설된다. 필요년도 전력량은 현재 인허가, 건설 중인 원자로와 현재 운영 중인 원자로 중에 필요년도까지 폐쇄되지 않는 원자료를 산출하여 계산할 수 있다. 이 발전량이 수요량에 비해 얼마나 부족한지 계산하여 예상전력부족량(E_{short})을 계산한다. 또한, 원자로 타입별로 시간에 따른 주문 비율(S_{ord})을 정해준다. 그리고 원자로 타입별로 발전용량을 P , 이용률을 CF 라하면, 해당년도에 주문하는 i 번째 타입 원자로의 수(N_{ord})와 주문하는 원자로의 총 발전량(E_{ord})은 아래와 같다.

$$N_{ord}^i(t) = \begin{cases} \min \left\{ n \in \mathbb{Z}^+ \mid n \geq \frac{E_{short}(t+T_P) \times S_{ord}^i(t)}{P_i \times CF_i \times 8760[\text{hours}]} \times 1000 \left[\frac{\text{GWh}}{\text{TWh}} \right] \right\} \\ \text{for } i \leq \hat{i}, \sum_{i=1}^{\hat{i}-1} E_{ord}^i(t) < E_{short}(t+T_P) \leq \sum_{i=1}^{\hat{i}} E_{ord}^i(t) \\ 0 \quad \text{for } i > \hat{i} \end{cases} \quad (2)$$

$$E_{ord}^i(t) = N_{ord}^i(t) \times P_i \times CF_i \times 8760[\text{hours}] \times 0.00 \left[\frac{\text{TWh}}{\text{GWh}} \right] \quad (3)$$

2.2 사용후핵연료 저장 모듈

사용후핵연료는 2가지 경로를 통해서 발생된다. 첫 번째는 매주기마다 교체되는 핵연료고, 두 번째는 원자로 폐쇄로 발생하는 전체 노심 핵연료이다. 운영 중인 원자로 수를 N_o , 폐쇄되는 원자로 수를 N_{shut} , 핵연료 연소도를 BU , 열효율을 ε , 핵연료 노심장전시간을 λ 라 하면, 첫 번째 사용후핵연료 발생은 식 (4), 두 번째는 식 (5)와 같다.

$$SF_{ann}(t) = \sum_i \frac{P_i \times 365[\text{days}] \times CF_i}{\varepsilon_i \times BU_i} N_o^i(t) \quad (4)$$

$$SF_{shl}(t) = \sum_i \frac{P_i \times CP_i \times \lambda_i}{\varepsilon_i \times B U_i} \times N_{shl}^i(t) \quad (5)$$

이를 이용하면 소내저장소에 있는 사용후핵연료량, C_{OS} 는 다음과 같이 계산된다. 이때 V 는 사용후핵연료 핵종 구성에 관한 벡터이다.

$$C_{OS}^{i,j,k}(t) = SF_{shl}^{i,j} \times V_{sf}^{i,j,k} + SF_{shl}^{i,j} \times V_{sf}^{i,j,k} - \sum_{k=1}^{C_{OS}^{i,j,k}} TR_{toIS}^{i,j,k}(t) \quad (6)$$

이때, TR_{toIS} 는 소내저장소에서 중간저장시설로 이동하는 사용후핵연료량으로 다음과 같다.

$$TR_{toIS}^{i,j,k}(t) = \begin{cases} C_{OS}^{i,j,k}(t) & \text{for } j < \hat{j}, \sum_{j,k} C_{OS}^{i,j,k}(t) < TR_{toIS}^i(t) \leq \sum_{j,k} C_{OS}^{i,j,k}(t) \\ \frac{TR_{toIS}^i(t) - \sum_{j,k} TR_{toIS}^{i,j,k}(t)}{\sum_{j,k} C_{OS}^{i,j,k}(t)} \times TR_{toIS}^i(t) & \text{for } j = \hat{j} \\ 0 & \text{for } j > \hat{j} \end{cases} \quad (7)$$

이와 비슷하게 중간저장 시설 사용후핵연료량 C_{IS} 는 다음과 같다.

$$C_{IS}^{i,j,k}(t) = C_{IS}^{i,j,k}(t-1) + TR_{toIS}^{i,j,k}(t) - TR_{toSP}^{i,j,k}(t) \quad (8)$$

이때, TR_{toSP} 는 분리공정으로 이동하는 사용후핵연료의 양으로 다음과 같다. 여기서 f_{cm} 은 핵분열 생성물질을 $t_{cooling}$ 은 최소냉각시간을 나타낸다.

$$TR_{toSP}^{i,j,k}(t) = \begin{cases} C_{IS}^{i,j,k}(t) & \text{for } j < \hat{j} \text{ and } j \leq t - t_{cooling}^i \\ \frac{\sum_{j,k=f_{cm}}^{j-1} C_{IS}^{i,j,k}(t) < TR_{toSP}^i(t) \leq \sum_{j,k=f_{cm}}^{j-1} C_{IS}^{i,j,k}(t)}{\sum_{k=f_{cm}}^{j-1} C_{IS}^{i,j,k}(t)} \times TR_{toSP}^i(t) & \text{for } j = \hat{j} \\ 0 & \text{for } j > \hat{j} \text{ or } j > t - t_{cooling}^i \end{cases} \quad (9)$$

3. 예비결과

Fig. 1과 Fig. 2는 경수로에서 혼합핵연료를 사용하는 경수로 그리고 다시 고속로로 변화하는 핵연료주기의 분석결과이다. 이는 OECD/NEA에서 제공하는 벤치마크 자료이다 [1]. MOX 제조에

따라서 줄어드는 UO_2 사용후핵연료와 이후 MOX 사용 경수로 폐쇄로 재증가하는 경향까지 잘 묘사하고 있다. 또한 고속로 도입에 따라 UO_2 사용후핵연료는 110년경 그 재고량이 0으로 수렴한다.

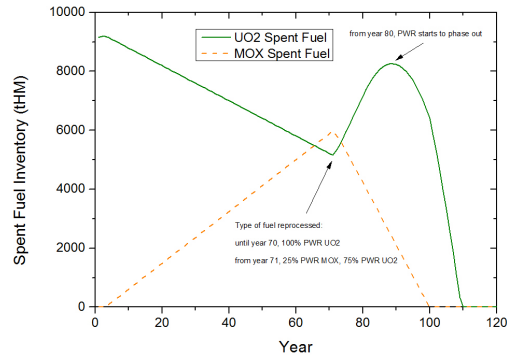


Fig. 1. Stocks of UO_2 and MOX Spent Fuel.

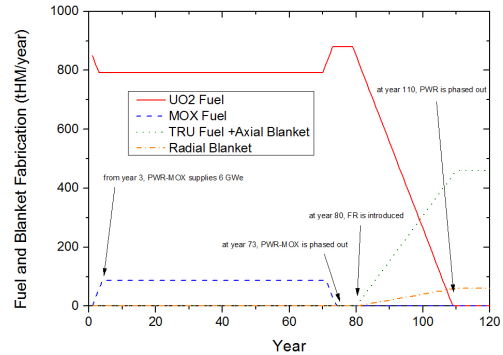


Fig. 2. Annual Fabrication of PWR, MOX, SFR Fuels.

4. 결론

핵연료주기의 핵종별 동적물질흐름을 계산하는 프로그램을 작성하였고, 이를 OECD/NEA가 제공하는 벤치마크 문제를 통해서 검증하였다.

5. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

6. 참고문헌

- [1] OECD/NEA, Benchmark Study on Nuclear Fuel Cycle Transition Scenarios Analysis Codes, OECD/NEA, 2012.

TM-ICI 안내관 밀봉설계에 관한 연구

김기찬¹, 맹철수², 정장규², 신태명^{1*}

¹한국교통대학교, 충청북도 충주시 대학로 50

²한국전력기술(주), 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 113

gckim89@gmail.com

1. 개요

경수형 원자로 노심의 핵분열 상태를 측정하기 위하여 중성자를 탐지하는 노내계측기(InCore Instrumentation : ICI) 설계는 ICI 노즐이 원자로 상부에 부착되는 상부탑재 방식(Top-mounted pattern)과 원자로의 하부에 부착되는 하부탑재 방식(Bottom-mounted pattern)이 있다. 최근 중소형 원자로 및 미래형원자로의 ICI 안내관 노즐 설계는 대부분 상부탑재형을 채택하고 있는데, 이는 하부 ICI 노즐을 통한 노심용융물의 노외방출 위험을 배제하기 위한 것이다. 최근들어 원자로의 중대사고 대처능력의 중요성이 강조되고 있어, 미국 WEC, 프랑스 AREVA 및 일본의 MHI 등의 경쟁사들이 개발한 최신원전은 주로 상부탑재형 노내계측기(TM-ICI)를 채택하고 있다. 계측기 및 안내관의 각 부품 사이에 틈이 존재하여 계측기의 삽입·인출 시 고온 고압의 유체에 의한 방사능 물질 유출을 방지하기 위해서는 안내관의 밀봉설계가 중요한데, 본 연구는 국내 독자설계의 성공적인 추진을 위하여 TM-ICI 밀봉설계에 관한 국내외 관련 특허를 검토하여 적절한 설계방향을 모색코자 한다.

2. 계측기 안내관 밀봉 특허 현황

2.1 주요 경쟁사의 특허 기술

국내에 등록되어 있으면서 아직 유효하여 국내 독자설계 시 직접 적용이 곤란한 경쟁사들의 주요 밀봉기술 두가지에 대하여 정리하면 다음과 같다.

2.1.1 Seal arrangement for in-core instrument housing [2]

원자로 헤드를 관통하는 계측계통의 헤드외부 기둥은 설치 및 보수가 유리하도록 서로 독립되어 있는 플랜지로 구성되어 있다. 각 플랜지를 조립하면, 플랜지 사이에 틈이 발생하게 된다. 이 때 그 틈으로 원자로 내부의 고압의 방사성 냉각수가 외부로 유출될 수 있기 때문에, 이 기술은 유출을 방

지하기 위해 안내관과 계측기 사이를 밀봉시키는 밀봉장치이다. 상하부 두 곳의 노내계측기 안내관과 내부의 계측기를 밀봉하는 구조이다. 각 압축집합체는 회전너트와 압축이음쇠로 구성되며 압축이음쇠의 축력으로 계측기 안내관 외부와 밀봉실 간의 밀봉을 유지하여 외부로 냉각수가 유출되는 것을 방지한다.

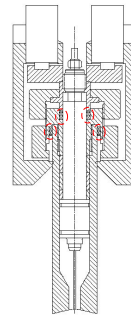


Fig. 1. Seal arrangement for in-core instrument housing.

2.1.2 Face seal gland with raised peripheral ring having circumferentially spaced recesses [3]

본문 2.1.1의 특허와 유사하게 원자로 내부의 고압의 방사성 냉각수가 플랜지 사이의 틈새를 통해 외부로 유출되는 것을 방지하려는 장치로서, 원주방향 홈과 링을 가지는 밀봉장치이다. 두 계측계통관을 연결할 때 플랜지 접촉면 사이에 개스킷을 두고 조여서 밀봉강도를 높이는 구조이다. 상부 플랜지에 냉각수가 직접적으로 만나는 부분에 반구모양의 돌출된 형상이 존재한다. 링구조형 관이 나선형관을 회전하면서 개스킷이 압축되는데, 그 형상이 밀봉 면의 압축력을 더욱 크게 만들어주어 밀봉 효율을 유지하는 구조이다.

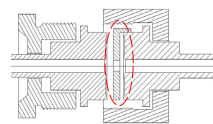


Fig. 2. Face seal gland with raised peripheral ring having circumferentially spaced recesses.

2.2 국내 산업계의 유사 밀봉기술

2.2.1 크롤러 벨트형 밀봉기술 [4]

먼저 상부탑재형 노심계측계통에 적용할 수 있는 밀봉기술 중의 하나로는 크롤러 벨트타입 설계가 있다. 이는 트랙 링크와 부시 사이를 접시스프링과 실링으로 이루어지는 밀봉장치에 의해 양호하게 밀봉할 수 있게 한 국내특허 기술이다. 여기서 주로 관심 부분은 크롤러 벨트에 적용되는 밀봉 기술이다. 밀봉장치에 접시스프링과 실링을 병용하여 사용함으로써, 압축방향의 하중에 대한 실링의 내구성을 높임과 동시에 장기간에 걸쳐 안정된 밀봉 성능을 확보하는 것을 목적으로 하고 있다. 이 기술은 접시스프링의 탄성력에 의해 탄성수지 재료로 구성된 실링이 트랙링크의 밀봉장치 장착구멍의 둘레 벽면에 접촉하면서 부시의 끝면에 슬라이딩 접촉을 하므로 바깥쪽 링크부와 부시 끝면 사이의 면접촉 상태를 양호하게 밀봉할 수 있다.

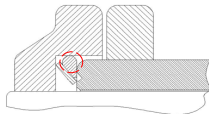


Fig. 3. Main part cross-section of the crawler belt type sealing.

이 기술의 장점은 접시스프링의 탄성력이 커질수록 밀봉 능력이 향상 되는 것을 알 수 있다. 이 기술을 TM-ICI의 밀봉에 적용하면, 원자로 내부의 냉각수가 고압으로 존재하기 때문에 접시스프링에 고압이 가해지게 되면 접시스프링이 실링을 밀봉면으로 더 강하게 접촉시키게 되므로 유사개념을 적용하여 적절히 설계하면 내부의 압력이 커질수록 밀봉효과가 좋아지는 설계가 가능하게 된다.

2.2.2 파이프형 밀봉기술 [5]

이 기술은 파이프와 같은 기다란 물체를 둘러싸기 위한 밀봉장치이다. 이 장치는 슬리브와 단부판으로 이루어진 폐쇄 조립체를 형성한다. 밀봉판들 사이에는 밀봉재료가 삽입되어있다. 이 밀봉재료를 외부 핸들에 의해 작동하는 가압판에 의해 압력이 가해지면 삽입된 물체에 그 힘이 전달되어 밀봉되고 축 방향으로 동심 밀봉 링이 존재하여 내부의 유체가 외부로 유출되는 것을 확실하게 방지할 수 있다. 앞의 기술의 경우 밀봉 부분에서 냉각수가 유출된다면 바로 외부로 유출되는 사고가 발생할 수 있지만, 밀봉의 부분이 두 부분으로 구성되

어있어 방사성 냉각수가 유출되어도 이차적으로 동심 밀봉 링이 외부로 유출되는 것을 방지할 수 있다.

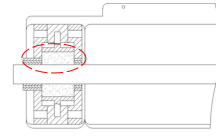


Fig. 4. Cross-section of the pipe type sealing.

3. 결론

현재 경쟁사들에 의해 국내에 특허로 등록되어 있는 TM-ICI에 관한 밀봉설계 개념은 축 방향의 압축력을 가하여 원주방향의 밀봉기능을 높이는 형태로 주로 사용하고 있다. TM-ICI에 관한 밀봉 기술을 국내 개발하기 위해 산업계에서 활용되는 밀봉기술을 응용하여 적용하고자 크롤러 벨트에서 트랙링크와 부시사이의 밀봉장치 설계 개념을 검토하여 보았다. 이 방식에서 주요 관심 부분은 접시스프링과 실링 구조를 가지는 밀봉 기술인데 TM-ICI에 적용한다면, 내부의 냉각수가 고압으로 존재하기 때문에 접시스프링 또는 실링에 직접 압력을 가해주는 장치가 실링을 밀봉면 쪽으로 더 강하게 접촉시킬 수 있게 되어 밀봉성능이 향상되게 된다. 또 파이프형 밀봉장치는 TM-ICI 조립면 사이로 냉각수 유출 시 동심 밀봉링에 의해 2차 밀봉이 가능하기 때문에 앞의 기술보다 좀더 유리한 설계도 가능할 것이다.

4. 감사의 글

본 연구는 2013년도 산업통상자원부 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구과제입니다. (과제번호 : 20131510101680)

5. 참고문헌

- [1] 자문보고서, 신태명, “상부탑재형 노심계측계통 개발 과제 기술자문 최종보고서”, 2014.
- [2] US Patent, No 6,522,708, "Seal arrangement for in-core instrument housing", 2003.
- [3] US Patent, No 6,318,766, "Face seal gland with raised peripheral ring having circumferentially spaced recesses", 2001.
- [4] 대한민국특허청, No 10-2000-7008450, "크롤러 벨트", 2001.
- [5] 대한민국특허청, No.10-1996-0702950, "밀봉장치", 1996.

1분과

후행핵연료주기기술 및 정책 (Poster)

KOREAN RADIOACTIVE WASTE SOCIETY

전해정련 LiCl-KCl 공융용염 이송 기술 개발

이성호*, 김인태, 박성빈

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*shlee6@kaeri.re.kr

1. 서 론

전해정련 반응후 전해정련반응기내 LiCl-KCl 공융용염은 전해제련 반응기로 이송되어야한다 고온에서의 염이송방법은 염이송 펌프에 의한 방법, 중력(gravity) 에 의한 방법, 감압식에 의한 방법등이 있다. 이러한 염이송 방법중 염이송펌프에 의한 방법이 다른 방법에 비해, Impeller 회전속도를 조절함으로 염이송 유량 및 펌프 head 조절이 용이하고, 또한 재현성이 우수하여 가장 좋은 염이송방법으로 분석되어 졌다[1,2]. 그러나 고온에서의 고온 펌프 재질의 부식성등 국내외 고온 염이송펌프의 제작이 불가하여 전해정련-제련 연계 염이송방법으로 감압식 염이송 방법을 선정하였다.

본 연구에서는 전해정련-제련 연계 염이송기술 개발을 수행하기위하여, 감압식 염이송장치를 설계 및 제작하였고, 장치를 이용한 감압식 염이송 실험을 수행하였다. 또한 공학규모 염이송 실험을 수행하기 위하여 PRIDE 염이송장치의 설계 및 제작 하였고, 그 성능시험을 확인하였다.

2. 본 론

2.1 감압식 염이송 장치 제작 및 특성

고온의 LiCl-KCl 용융염계에서 전해정련반응기에서 U를 전해정련하는 전기화학적 반응을 종료한 후 후속 공정인 전해 제련 반응기로 용융염을 이송하기 위한 감압식 염이송 실험 장치를 설계 및 제작하였다. 본 실험 장치는 heating 계통이 장착된 용융염 용해 및 Receiver 반응기, 용융염 이송관, 공압 실린드, 진공챔브 및 진공 펌프로 구성되어 있으며, 사용하는 LiCl-KCl 공융용염의 강한 부식성과 조해성 때문에 Fig. 1에서와 같이 실험 장치는 글로브박스내 설치되어 있다. 실험 장치 제작/설치후, heating furnace의 온도를 제어 함으로 용해 및 Receiver 반응기내 온도를 확인하였고, 진공펌프를 작동하여 반응기내 압력이 10^{-2} atm 이하로 유지됨을 확인하였다. 또한 장치 글로브박스내 수분 및 산소농도를 1ppm 이하로

Ar 분위기를 제어 하였다.



Fig. 1. Apparatus for suction transport experiments.

2.2 염이송 시험 준비

염이송 실험을 수행하기위해서, 우선 99%의 LiCl 및 KCl을 이용하여, LiCl-KCl 공융용염을 제조하였다. Fig. 2는 LiCl-KCl 공융용염을 제조하기위한 salt의 수분제거 온도 및 시간을 설정하기위하여 제조된 31mg LiCl-KC salt를 이용한 TGA 분석 결과를 나타내었다. 분석 결과를 토대로하여 LiCl-KCl 공융용염의 건조 조건을 온도: 200℃ 시간: 1시간으로 결정하였다. 1kg의 LiCl-KCl salt를 제조하기위하여, 448g LiCl 및 552g KCl 염을 각각 정량한 후 try oven에 넣어 적절히 혼합시킨 후, salt 내 포함된 수분을 제거하기위하여 200℃의 강제순환건조 오븐내에서 1시간 건조하였다.

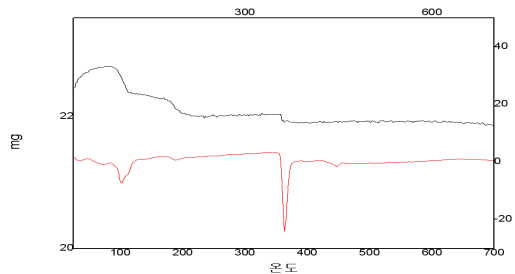


Fig. 2. TGA analysis results of LiCl-KCl eutectics.
[—: Weight (mg), —: Heat flux (mW)]

3. 감압식 염이송 실험

염이송 실험을 수행하기 위하여 먼저 2kg LiCl-KCl 공용융염을 제조하기 위하여, 896g LiCl 및 1104g KCl 염을 각각 정량한 후 혼합시킨 salt 200℃의 강제순환건조 오븐내에서 1시간 건조하였다. 2 kg의 LiCl-KCl 공용융염을 제조한 후 이를 염이송장치 용해반응기에 장입하여, 500℃의 고온에서 진공감압도 및 시간에 따른 감압식 염이송 실험을 수행하였다. 감압 염이송 실험 시 진공도는 200mm torr-2torr 범위에서 수행하여 시간에 따른 염이송 실험 결과 Fig. 3에서와 같이 70초간 감압 염이송실험 후 몰드에 이송된 염은 1.82kg 이었고, 반응기내 잔류하는 염의 양은 0.18kg으로 정량, 확인됨으로서, 용해반응기 하부가 conetype이고, 반응기 하부로부터 염이송관 높이가 5mm임을 고려하면, 500℃의 고온에서 거의 99%이상의 염이 감압 염이송됨을 확인하였다. 또한, Fig. 4에서와 같이 200mm torr-2torr 범위의 진공도에서 시간에 따른 감압 염이송 실험 결과 염이송 mass flow rate 는 1.54 kg/sec로 나타났다.



Fig. 3. Transported salt in a mold vessel.

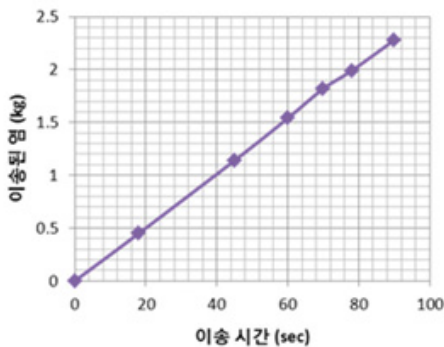


Fig. 4. Results for suction transport experiments according to time.

4. 결론

본 연구에서는, 고온의 LiCl-KCl 용융염계에서 전해정련반응기에서 U를 전해정련하는 전기화학적 반응을 종료한 후 후속 공정인 전해 제련 반응기로 용융염을 이송하기 위한 감압식 염이송 실험 장치를 설계 및 제작하였다. 감압식 염이송 실험을 수행하기 위하여, 99%의 LiCl 및 KCl을 이용하여, LiCl-KCl 공용융염을 제조하기 위한 salt의 건조 조건을 설정하였고, 일정량의 LiCl-KCl 공용융염을 제조한 후 이를 염이송장치 용해반응기에 장입하여, 500℃의 고온에서 진공감압도 및 시간에 따른 감압식 염이송 실험을 수행하였다. 염이송 실험 결과 거의 99%이상의 LiCl-KCl 공용융염이 감압 염이송됨을 확인하였다. 또한, 200mm torr - 2torr 범위의 진공도에서 시간에 따른 감압 염이송 실험 결과 염이송 mass flow rate 는 1.54 kg/sec로 나타났다.

앞으로, 정량화된 고온 감압식 염이송 실험을 계속적으로 수행함으로 전해정련-제련간 감압식 고온 염이송 기술을 개발하고, 연계 염이송 운전 체계를 구축할 예정이다.

5. 참고문헌

- [1] T. Hijikata and T.Koyama., J. of Engineering for Gas Turbine and Power,, Vol.31 JULY 2009.
- [2] B. Hanson et al., "Pyrochemistry: A Program for Industrialization" Proceeding of GLOBAL, 2003, New Orleans, Nov.

평형모델을 이용한 핵연료주기 단계별 단위비용의 민감도 분석

김성기*, 강길범, 고원일

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*sgkim1@kaeri.re.kr

1. 서론

본 논문은 핵주기 비용에 가장 많은 영향을 미치는 단위비용을 도출하기 위해 평형모델(equilibrium model)을 이용하여 4가지 핵주기 옵션(직접처분, PWR-MOX, DUPIC, Pyro-SFR)을 대상으로 핵주기 비용에 대한 핵주기 단계별 단위비용의 민감도를 계산하였다. 민감도 분석 결과, 4개의 모든 옵션에서 우라늄 비용이 핵주기 비용에 가장 많은 영향을 미치는 인자로 나타났다. 그리고 직접처분과 파이로-고속로 옵션의 경우 우라늄 비용 다음으로 처분단가와 파이로 처리 단가가 핵주기 비용에 많은 영향을 미치는 중요한 인자로 밝혀졌다. 이러한 이유는 해당 단가의 확률분포 편차가 상대적으로 크기 때문인 것으로 사료된다.

2. 본론

2.1 평가 대상

평형모델을 이용하여 핵주기 단계별 단위비용의 민감도를 계산하기 위해 4가지 핵주기 대안을 분석대상으로 설정한 이유는 첫째, MIT가 직접처분이 가장 경제성이 좋은 것으로 평가한 사례가 있고 [1] 둘째, DUPIC은 한국에서 연구를 진행한 바 있으며 셋째, PWR-MOX 핵주기는 원자력선진국에서 가장 많이 사용된 습식재처리 방법이고 넷째, 파이로-고속로 연계 핵주기는 현재 선진핵연료주기로서 미래 에너지 기술로 평가 받고 있기 때문이다. 특히 파이로-고속로 핵주기는 경제성 측면에서 직접처분의 경쟁대안으로 부각되고 있다. 왜냐하면 미국의 야카마운틴 처분장 건설 취소로 인하여 세계 각국에서 효율적인 순환핵주기 방안을 재검토 하고 있기 때문이다. 또한 고준위처분장의 부지확보를 위한 사회적 비용을 고려하면 직접처분의 경제성이 파이로-고속로 핵주기 대안에 비해 크게 감소될 수 있다.

2.2 단위비용 특성 및 민감도 분석 방법

핵주기 공정단계별 단위비용은 각국마다 상이한 환경으로부터 도출된 것이기 때문에, 단가의 불확도를 감소시키고 핵주기 비용계산 결과의 신뢰도를 증가시키기 위해 우선적으로 단위비용의 정규화(normalization)가 필요하다. 만약에 정규화 되지 않은 단위비용을 사용하여 핵주기 대안의 경제성을 평가하면 평가 결과의 왜곡을 초래할 수 있다.

본 논문에서는 민감도 분석을 위해 정규화된 Table 1과 같은 단위비용[2]과 평형모델을 사용하였다. 평형모델은 기술성숙도, 평형상태 도달에 필요한 시간, 그리고 핵주기 기술개발 제약 등을 반영할 수 없지만, 핵주기 옵션들의 장단점을 고려하여, 핵주기 비용을 쉽게 계산할 수 있는 큰 장점을 가지고 있다. 즉, 평형모델은 핵주기 관련 비용정보를 의사결정자에게 신속하게 제공할 수 있다. 그러나 평형모델은 핵주기 공정 단가의 변화 등을 고려할 수 없는 한계점을 내포하고 있다. 즉, 평형모델은 어느 일정시점의 핵주기 단가만 반영할 수 있다 [3].

Table 1. Unit cost for cost estimation

Phase	Value	Std Dev.	Unit
Uranium	75	49.7	\$/kgU(U_3O_8)
Conversion	10	2.8	\$/kgU(UF_6)
Enrichment	110	14.4	\$/SWU
Fabrication	PWR	250	\$/kgU
	CANDU	135	\$/kgHM
S/F dry storage	120	44.9	\$/kgHM
Pyroprocess & SFR fuel fab.	6000	1224.8	\$/kgHM
S/F conditioning and packaging	93	16.3	\$/MTHM
S/F Geologic Repository	650	123	\$/kgHM

2.3 민감도 분석 결과

핵주기 비용에 많은 영향을 미치는 단위비용을 밝히기 위하여 @Risk 소프트웨어를 이용하여 식 (1)과 같은 핵주기 단위비용의 분산기여도(contribution to variance)를 계산하였다 [4].

$$CV_i = \frac{(CCX_i)^2}{\sum_i (CCX_i)^2} \quad (1)$$

where CV_i =contribution to variance at phase i,
 CCX_i = correlation coefficient of X variable at phase i

분산기여도 계산 결과, Fig. 1-4와 같이 4개의 옵션 모두에서 우라늄 비용이 핵주기 비용에 가장 많은 영향을 미치는 인자로 나타났다.

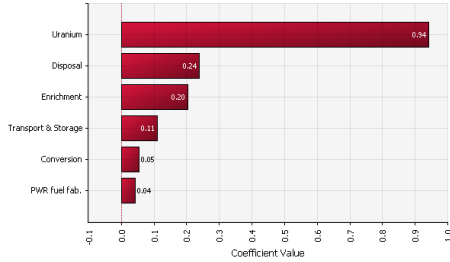


Fig. 1. Sensitivity of direct disposal unit cost.

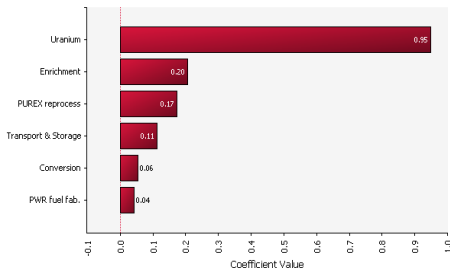


Fig. 2. Sensitivity of PWR-MOX fuel cycle unit cost.

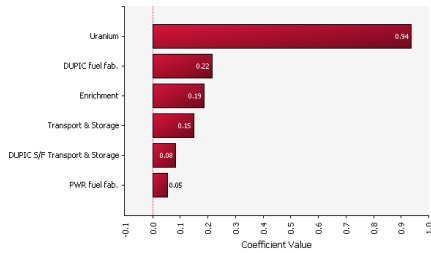


Fig. 3. Sensitivity of DUPIC fuel cycle unit cost.

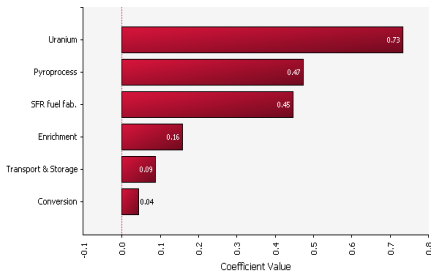


Fig. 4. Sensitivity of Pyro-SFR fuel cycle unit cost.

특히, Fig. 1의 직접처분 옵션에서는 처분비용이 우라늄 비용 다음으로 영향을 많이 미치는 중요한 인자로 계산되었으며, Fig. 4에서와 같이 파이로-고속로 핵주기는 파이로 처리비용이 중요한 영향 인자로 나타났다. 따라서 핵주기 비용을 감소시키기 위해 지속적으로 파이로 기술과 처분기술을 개발할 필요가 있다.

3. 결론

핵주기 비용에 대한 단위비용의 민감도 분석 결과, 4개의 모든 옵션(직접처분, PWR-MOX, DUPIC, Pyro-SFR)에서 우라늄 비용이 핵주기 비용에 가장 많은 영향을 미치는 인자로 나타났다. 그리고 직접처분과 파이로-고속로 옵션의 경우 우라늄 비용 다음으로 처분단가와 파이로 처리 단가가 많은 영향을 미치는 중요한 인자로 밝혀졌다. 그러나 본 논문에서 사용된 평형모델은 시간 종속된 물질흐름과 비용을 계산할 수 없는 한계점을 내포하고 있다. 향후 동적모델을 개발하여 평형모델과 동적모델의 계산결과를 비교분석하는 것이 필요할 것으로 판단된다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력 연구개발비의 지원으로 수행하였습니다.

5. 참고문헌

- [1] MIT, 2010, "The future of the nuclear fuel cycle", Massachusetts Institute of Technology, USA, pp. 17-18.
- [2] Shropshire, D.E., Williams, K.A., Boore, W.B., Smith, J.D., Dixon, B.W., Dunzik- Gougar, M., Adams, R.D., Gombert, D., Schneider, E., 2008, Advanced Fuel Cycle Cost Basis, Idaho National Laboratory, INL/EXT-07-12107 Rev. 1, pp. 24-27.
- [3] Abdelhak Challal, Mohamed Tkouat, 2012, The Design of Cost Estimating Model of Construction Project: Application and Simulation, Open Journal of Accounting, Vol. 1, pp. 15-26.
- [4] Han D. H., Min G. H., 2012, A practical introduction to project risk management, Iretech Press, pp. 46-49.

승온하에서 UO_2 소결체의 공기중 노출 온도에 따른 산화특성

김진식*, 김동주, 이영우, 오장수, 김종현, 양재호, 김전기
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*keons@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료 저장조의 냉각기능 상실사고가 발생하면 핵연료가 대기 중에 노출되고 이로 인해 핵연료의 대량 파손이 발생하여 다량의 고방사성 물질이 외부로 방출 될 수 있다. 냉각기능 상실 사고에 의하여 핵연료의 온도가 높아지면 피복관의 손상이 일어난 후에 UO_2 소결체가 공기 중에 노출되어 산화됨으로써 핵연료의 파손이 급격히 진행되게 된다. 핵연료봉은 금속 피복관이 UO_2 소결체를 싸고 있으므로 사고로 저장조 내의 핵연료 온도가 상승 될 때 피복관이 손상되어 UO_2 소결체가 공기와 접촉되는 시점(온도)에 따라 핵연료의 파손과 방사성 물질 방출 거동이 달라질 수 있다. 본 논문에서는 승온 하에서 UO_2 소결체가 공기 중에 노출되는 온도에 따른 산화특성을 조사 하였다.

2. 본론

2.1 실험 방법

UO_2 소결체(밀도: 96%, 결정립크기: 8 μm)를 두께 1mm의 disk 형태로 절단하여 시편을 제조하였다. UO_2 소결체가 저온 및 고온에서 공기와 접촉되어 산화되는 경우를 고려하여 두 조건의 실험을 수행하였다. 저온에서 공기와 접촉하는 경우는, UO_2 시편을 장착하고 불활성 기체인 알곤을 흘려 주면서 분당 5°C 로 가열하여 400°C 에 도달될 때 알곤을 공기로 교체하여 800°C 까지 승온 하면서 TGA를 이용하여 무게변화를 측정하였고, 고온에서 공기와 접촉하는 경우는 950°C 에 도달될 때 알곤을 공기로 교체하여 1350°C 까지 승온 하면서 무게변화를 측정하였다. 또한 산화된 각 시편의 형상을 관찰 하였다.

2.2 결과 및 고찰

Fig. 1 (a)은 분당 5°C 승온되는 조건에서 400°C 부터 UO_2 소결체가 공기에 노출 될 때 온도에 따른 산화거동을 나타낸다. 이 경우 425°C 부근에서 산화가 시작되어 570°C 부근의 낮은 온도에서 산화가 완료된다.

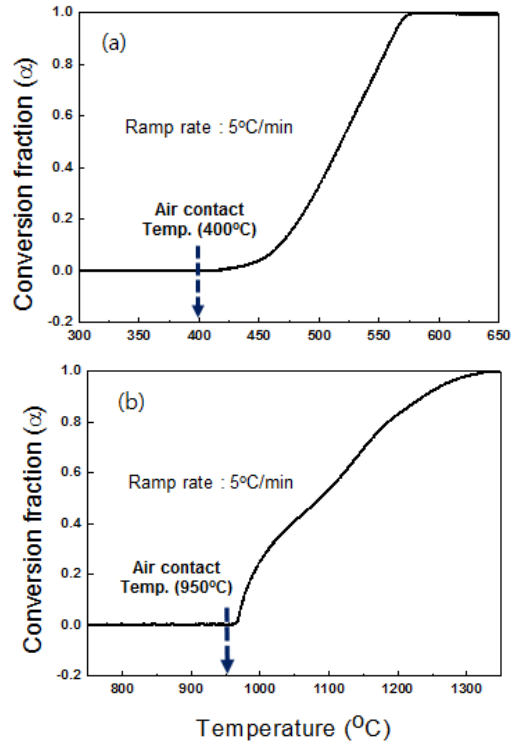


Fig. 1. Effect of air-contacted temperature on oxidation behavior of UO_2 pellet (a) 400°C (b) 950°C .

UO_2 시편은 불활성 분위기에서는 산화가 일어나지 않다가 공기 중에 노출된 이후에는 S 곡선의 산화거동 보인다. 즉, 산화속도가 초기에는 부드러운 포물선을 유지하다가 이후 선형적으로 증가하고 다시 점진적으로 감소한다. 초기 산화속도가 느린 것은 UO_2 표면에 $\text{U}_3\text{O}_7/\text{U}_4\text{O}_9$ 얇은 막이 형성되고 일부는 U_3O_8 으로 변환된다. 이 과정이 지나면 U_3O_8 층은 부피팽창으로 크랙이 발생되면서 분말화가 발생하고 이로 인해 반응면적이 증가하면서 산화속도가 선형적으로 빨라진다. 이후에는 유효 반응 면적이 줄어들어 산화속도는 다시 감소된다. 이러한 거동은 $400\text{--}600^\circ\text{C}$ 영역에서 UO_2 소결체의 등온산화 결과와 일치한다. 이것은 저온 영역에서 UO_2 소결체가 공기중에 노출되는 경우

에는 UO_2 소결체는 U_3O_8 으로 변환되면서 미세하게 분말화가 일어나고 이로 인하여 산화가 급격히 진행되는 과정을 보인다. Fig. 2(b)는 400°C 부터 공기에 노출되어 800°C 까지 승온한 후 냉각한 시편의 형상으로 미세 분말화가 일어난 것을 보여준다. Fig. 1 (b)은 분당 5°C 승온되는 조건에서 950°C 부터 UO_2 소결체가 공기에 노출될 때 온도에 따른 산화거동을 나타낸다. 이 경우 960°C 부근에서 산화가 시작되어 1300°C 부근의 높은 온도에서 산화가 완료된다. 온도에 따른 산화 속도는 저온에서 공기에 노출된 경우와 달리 U_3O_8 으로의 변환율(a)이 0.3인 1000°C 까지 빨라지다가 변환율이 0.63인 1120°C 까지 느려지고 또 1200°C 부근까지 다시 빨라지다가 이후 느려지는 복잡한 거동을 보인다. Fig. 2(c)는 950°C 부터 공기에 노출되어 1350°C 까지 승온한 후 냉각한 시편의 형상으로 저온에서 노출된 시편과는 달리 분말화가 일어나지 않고 bulk 상태를 유지하였다. 이것은 저온에서는 U_3O_8 으로 상변화 때 발생하는 응력 때문에 미세한 분말로 되지만 고온에서는 응력을 완화할 수 있으므로 분말화가 일어나지 않으면서 상변화가 일어나고 bulk한 시편 내로 산소의 확산에 의하여 산화가 진행된다. 고온에서는 저온에서와 달리 산화가 진행되어도 반응 면적이 일정하게 유지되므로 산화속도가 급격히 증가하지는 않는다. 다만 고온에서는 산소의 확산 속도가 빠르기 때문에 UO_2 산화 속도도 빨라지게 된다. 산화가 열적활성화 과정이므로 고온에서의 산화가 저온에서 보다 빠른 것이 일반적이다. 그러나 UO_2 소결체의 경우에는 저온에서 산화가 시작될 때 분말화로 인해 반응면적이 커져 산화속도가 급격히 증가하는 반면에 고온에서는 분말화가 일어나지 않으므로 상대적으로 산화 속도가 느려지는 특징을 보인다. 이러한 결과는 저장조의 냉각기능 상실 사고로 인하여 핵연료 온도가 상승하고 이로 인해 피복관이 손상되어 UO_2 소결체가 공기 중에 노출될 때, 낮은 온도에서 노출될 때가 높은 온도에서 노출될 때 보다 핵연료봉 파손과 방사성 물질 방출 측면에서 나쁜 상황임을 알 수 있었다.

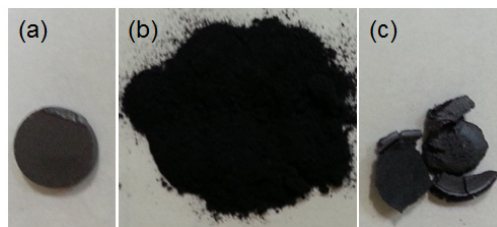


Fig. 2. Sample morphology (a) as-received (b) $400\sim 800^\circ\text{C}$ air contacted (c) $950\sim 1350^\circ\text{C}$ air contacted.

3. 결론

400°C 저온에서 UO_2 소결체가 공기 중에 노출되는 경우에는 425°C 부근에서 산화가 시작되어 550°C 부근의 낮은 온도에서 산화가 완료되고 시편은 미세 분말이 되었다. 반면에 950°C 고온에서 공기 중에 노출되는 경우에는 960°C 부근에서 산화가 시작되어 1300°C 부근의 높은 온도에서 산화가 완료되고 시편은 bulk 상태를 유지하였다. 저장조의 냉각기능 상실 사고로 핵연료 온도가 상승하고 이로 인해 피복관이 손상되어 UO_2 소결체가 공기 중에 노출될 때, 낮은 온도에서 공기 중에 노출되는 경우가 높은 온도에서 공기 중에 노출되는 경우보다 핵연료봉 파손과 방사성 물질 방출 측면에서 나쁜 상황임을 확인하였다.

4. 감사의 글

이 논문은 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행한 연구임.

Hazard Analysis for Engineering-scale Pyroprocess Facility

Seong-In Moon*, Gil-Sung You, Seok-Jun Seo, Won-Myung Chong, Jeong-Hoe Ku, and Ho-Dong Kim

Korea Atomic Energy Research Institute, 989-111 Daedeok-daero, Yuseongkgu, Daejeon, 305-353

*simoon21c@kaeri.re.kr

1. INTRODUCTION

Pyroprocess technology has been considered as a fuel cycle option to solve the spent fuel accumulation problems in Korea. The Korea Atomic Energy Research Institute has been studying pyroprocess technology, and the conceptual design of an engineering-scale pyroprocess facility, called the Engineering-Scale Pyroprocess Facility (ESPF)[1,2], has been performed on the basis of a 10 tHM throughput per year. In this paper, safety requirements of the ESPF for the protection of facility workers, collocated workers, the off-site public, and the environment were introduced. For the identification of safety SSCs (Structures, Systems, and Components) and/or ACs (Administrative Controls), the following activities were conducted: 1) identifying hazards associated with operations, 2) identifying potential events associated with these hazards, and 3) identifying the potential preventive and/or mitigative controls that reduce the risk associated with these accident events.

2. IDENTIFICATION OF POTENTIAL ACCIDENT SCENARIOS

2.1 Hazard Identification

A hazard is defined as a source of danger (i.e., material, energy source, or operation) with the potential to cause illness, injury, or death to personnel or damage to an operation or the environment (without regard for the likelihood or credibility of accident scenarios or consequence mitigation)[3]. The fundamental hazards affecting the ESPF can be categorized into process-related hazards, natural hazards, and manmade external hazards. Among the hazards, spent fuel, radioactive materials, toxic materials, and combustibles are included in process-related hazard materials. Hazard

identification activities were conducted, and some process-related hazards and natural hazards were identified. However, manmade external events were not considered as a unique hazard in this study, and that could be dealt with after establishing security design policies.

In this study, a preliminary hazard checklist (PHC) evaluation was used to identify potential facility hazards. Materials and energy hazard sources that have the potential to lead to an uncontrolled release of radioactive or hazardous materials from the ESPF were investigated. An SF cask area, active material storage area, transfer tunnel area, air cell area, argon cell area, and operating area were considered to determine the preliminary initial events. As a result of a PHC evaluation for the ESPF, a total of 41 candidate initial events were determined.

2.2 Hazard Evaluation

A qualitative hazard evaluation was performed to select the potential hazardous events and causes at the ESPF. Internal events happen as a result of operator error and equipment failure during process or facility operation. An analysis of postulated accidents caused by malevolent acts is not within the scope of this study.

In this study, a hazard evaluation of the ESPF and associated operations was conducted using a preliminary hazard analysis (PHA). The results of the PHA serve as the basis for hazard ranking so that bounding accident scenarios can be selected. Hazard ranking is determined by qualitatively assigning frequency and consequence estimates to each hazard or accident scenario developed by the PHA. The hazard frequency, which is based on available data, operating experience, and engineering judgment, is categorized into four grades: (A) Anticipated or Likely, (U) Unlikely, (V) Extremely Unlikely, and (E) Beyond Extremely Unlikely, and

the hazard consequence severity is classified into four grades: (H) High, (M) Moderate, (L) Low, and (N) Negligible[4]. A risk ranking matrix is used to compare all hazards and accident scenarios identified in the PHA.

The facility hazards may result in an uncontrolled release of radioactive or hazardous material and a direct radiation exposure, and were evaluated using the PHA; preliminary bounding accidents were then selected. As a result of a PHA for the 41 candidate initial events, ten initial events falling into hazard ranking 1 or 2 were determined as bounding initial events. The first column of Table 1 shows an example of a PHA for initial events selected as bounding events.

2.3 Preventive and Mitigative Features

From the analysis in accordance with the PHA, the controls for ESPF were derived, which are shown in bold/italic text in Table 1. Some additional features are also listed for hazard events not requiring formal derived controls.

The hazard evaluation results described in Table 1 show that the ESPF is designed and operated using a defense-in-depth approach that protects the off-site public, collocated workers, facility workers, and environment from the associated hazard events. Based on the estimated risk, some safety-significant SSCs and ACs were identified for the facility and the collocated worker, and one safety-class SSC for the radioactive material release accident was identified for protection of the off-site public. The identified SSCs for each event will be credited for preventing or mitigating the events through accident analyses in ongoing study.

3. SUMMARY

A hazard evaluation for the facility was performed for identification of the safety SSCs (Structures, Systems, and Components) and ACs (Administrative Controls), and some safety-significant SSCs and ACs were then identified for the facility and the collocated workers, and one safety-class SSC was identified for protection of the off-site public. This

study will be used to perform a safety evaluation for accidents involving any of the hazards identified, and to establish safety design policies and advance a more definite safety design.

Table 1. Summary of accident scenario and identified controls

Hazardous Event	Preventive and Mitigative Features	
	Design	Administrative
Fire and Explosions: Air enters argon cell via open, active penetration (transfer lock) resulting in exposure of pyrophoric materials to air and release of radioactive material	<i>Transfer lock dual door airlocks</i> Argon cell atmosphere monitoring Transfer lock door positions monitored Hot cell exhaust system Building exhaust system Building structure	<i>AC(s) on transfer lock operation</i> <i>AC on quantity of exposed pyrophoric material inside argon cell</i> <i>AC on transfer lock leak rate</i> Operator training Approved procedures
Radioactive Material Release: Damage and meltdown of spent fuel assembly resulting in release of radioactive material	<i>Storage vault design</i> to prevent damage of spent fuel Storage cooling system Building exhaust system Safety exhaust system	Radiation protection program
Direct Radiation Exposure: Loss of air or argon cell shielding resulting in direct radiation exposure to facility workers	<i>Air and argon cell structure</i> <i>Air and argon cell shielding</i>	<i>AC on direct radiation exposure restrictions</i> Radiation protection program Operator training
Inadvertent nuclear criticality: Inadvertent nuclear criticality in argon cell or waste storage cell	<i>Argon cell shielding</i> <i>Waste storage cell shielding</i> Building structure	<i>AC on personnel access restrictions</i>
Nonradioactive Hazardous Material Release: Chlorine gas release	<i>Evacuation System</i> Chlorine gas monitoring system and alarms	Operator training Approved procedures
Natural Phenomena Hazards: Earthquake results in severe building structural damage/collapse and results in radioactive material release	<i>Cell structure</i> Building structure	<i>AC on quantity of pyrophoric material inside argon cell</i> <i>AC on AFC radioactive material inventory</i> <i>Emergency management program</i>

4. REFERENCES

- [1] Moon, S.I., et al., 2013, Preliminary conceptual study of engineering-scale pyroprocess demonstration facility, Nuclear Engineering and Design, Vol.259, pp.71-78.
- [2] Moon, S.I., et al., 2014, Preliminary safety study of engineering-scale pyroprocess demonstration facility, Nuclear Engineering and Technology, Vol.6, No.1, pp.63-72.
- [3] U.S. Department of Energy, Preparation guide for U.S. department of energy nonreactor nuclear facility documented safety analyses, DOE-STD-3009-94.
- [4] Mitchell, G.W. et al., 2000, Hot cell facility (HCF) safety analysis report, SAND2000-2355.

파이로 핫셀시설에 대한 우리나라와 미국의 안전성 평가체계 비교/분석

유길성^{1*}, 전관식², 문성인¹, 정원명¹, 구정희¹, 김호동¹

¹한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

²(주)라드웍스, 대전광역시 유성구 대덕대로 530 첨단상가 다308호

*yougil@kaeri.re.kr

1. 개요

국내 원자력발전소에서 발생하는 사용후핵연료의 누적문제 해결을 위해 사용후핵연료에 대한 파이로프로세싱 연구가 한국원자력연구원을 중심으로 추진되고 있다[1-3]. 이를 위해 실험실 규모의 ACPF와 미조사 핵연료에 대한 통합시험시설인 PRIDE 시설을 이미 건설하였고, 또한 30 ton/년 규모의 사용후핵연료를 취급할 수 있는 파이로 핫셀시설의 타당성이 검토되고 있다. 대규모 파이로 핫셀시설의 건설을 위해서는 무엇보다 안전성 확보가 중요하지만 우리나라의 경우 아직까지 안전성 평가체계가 완전히 갖추어져 있지 않은 실정이다. 따라서 원자력 선진국 미국의 핵주기시설에 대한 안전성평가 체계를 조사하고 우리나라의 차이점을 비교·분석해 보았다.

2. 양국의 안전성 평가체계

2.1 우리나라의 파이로 핫셀시설 안전성평가 체계

우리나라의 파이로 핫셀시설에 대한 안전성평가 체계는 현재 원자력안전법상 핵연료주기사업 중 사용후핵연료 처리사업의 법에 따라 평가하도록 되어있다[4]. 핵연료주기사업에 대한 안전규제는 사업의 지정, 계량관리규정승인, 물리적 방호규정승인, 사용전검사, 계량관리검사, 물리적 방호검사, 품질보증검사, 방사선비상계획승인, 정기검사, 해체승인의 순으로 되어있다.

핵연료주기시설에 대한 안전성 평가를 위한 기술기준은 기술능력의 확보와 시설의 위치·구조·설비 및 성능이 [원자로시설 등의 기술기준에 관한 규칙]에서 규정하고 있는 기술기준에 적합하여 방사성물질에 따른 인체·물체와 공공의 재해방지에 지장이 없어야 한다. 위치기준과 품질보증기준에 대해서는 원자력발전소의 기술기준을 준용하고 있다. 환경상의 위해방지 기준은 [방사선 방호 등에 관한 기준]에서 제시된 시설에서 배출되는 액체 및 기체상태의 제한구역 경계에서의 농도제한치를 각 핵종별로 규정하고 있으며, 방사선량 기준치도 이 고시에서 규정하고 있다. 핵주기시설에 대한 세부적인 안전기준은 대부분 원자력에 대한 고시를 준용하고 있다.

2.1.1 위치평가기준

지질 및 지진, 위치제한, 기상조건, 수문 및 해양, 인위적 사고에 의한 영향, 비상계획 실행가능성 및 다수기 건설에 대한 기준으로 구성되어 있다.

2.1.2 구조, 설비 및 성능기준

방사성폐기물 처리설비 및 저장설비, 핵연료집합체 또는 사용후핵연료 저장설비 및 취급장치, 비상전원, 재료 및 구조, 사용후핵연료 처리시설의 성능, 외적요인에 의한 설계기준, 화재방호에 관한 설계기준, 방사선방호설비, 방사선관리구역에 대한 조치에 대한 성능기준으로 구성되어 있다.

2.1.3 환경상의 위해방지 기준

부지 제한구역 경계에서의 방사성물질의 농도 및 방사선량이 법에서 정한 기준 이하여야 한다.

2.1.4 운영기술능력 기준

사업수행에 필요한 조직과 부서, 책임과 권한, 안전 관련 사항의 검토를 위한 공학적·기술적 지원조직, 책임과 권한에 상응하는 자격과 경험, 안전 관련 주요 구조물 및 설비의 시험 및 검사 계획에 대한 운영기술 기준으로 구성되어 있다.

2.1.5 품질보증 계획서 작성 기준

품질보증조직 및 계획, 설계 및 구매서류관리, 지시서·절차서·도면, 구매품목과 용역관리, 품목 식별 및 특수작업관리, 검사, 서류 및 시험관리, 측정·시험장비 관리, 취급·저장·운송, 검사·시험·운전상태, 부적합 품목관리, 시정조치, 품질보증기록, 감사로 구성되어 있다.

2.2 미국의 파이로 핫셀시설 안전성 평가 체계

미국은 핵물질을 처리하는 시설 내 위험도와 그 위험도와와의 연관성을 평가하기 위해서 통합 안전성분석을 이용하도록 10CFR70에서 정하고 있으며, 이 규정에는 사용후핵연료 재활용시설에 대한 안전상 중요인자들을 기술하고 있다 [5,6]. 이는 통합안전성분석의 사용이 기존의 보수적이고 시나리오 기반의 결정론적 접근방법에 비해 위험도의 정량화에 더 중요하다고 보고 있다. 또한 확률론적 위험도 평가의 모든 범

위보다 오히려 통합안전성분석을 사용하는 주된 이유는 핵연료주기시설에서 일어나는 사고 또는 방사선 누출의 영향이 원자로 사고에 비하여 작을 것으로 추측되기 때문이다.

2.2.1 통합안전성분석

10CFR70.62(안전프로그램과 통합안전성분석)에서 규정하고 있는 안전프로그램을 수립하고 유지해야 한다. 이 안전프로그램은 여러 안전요소로 구성되며, 10CFR70.61의 성능요건 준수를 증명할 수 있어야 한다.

2.2.2 방사선 방호

방사선방호프로그램은 작업자의 방사선학적 건강 및 안전을 보호하는데 있어서 적합하여야 하고 10CFR19, 20, 70의 규제요건을 준수하여야 한다. 이 프로그램은 프로그램 구성요소, 감사 및 프로그램의 이행에 대한 설명을 포함하여야 한다.

2.2.3 책임제 안전

책임제사고정보시스템(CAAS)을 갖추게 하고 있으며, 정상 및 비정상 조건에서 모든 핵 공정들을 미입계 상태로 유지하도록 해야 한다. 또한 책임제 안전프로그램을 가지도록 하고 있다.

2.2.4 화재 방호

시설에서의 화재에 대한 위험을 알리고 화재 안전에 대한 허용준위를 유지하기 위한 절차를 갖고 화재를 진압하기 위해 신속하고 안전한 대응준비를 하여야 하며, 이를 입증하기 위한 사항들을 만족하여야 한다. 또한 화재안전을 정의함에 있어 등급화된 접근법을 사용할 수 있으나 이 방법은 화재로부터 작업자, 대중 및 환경을 보호할 수 있음을 입증하여야 한다.

2.2.5 화학공정안전

시설의 화학공정에 대한 설명과 화학적 사고경위 및 사고영향을 평가하고 공정에 대한 안전관련 품목 및 이의 유일성을 입증하여야 한다. 또한 화학공정 관리방법 및 기존 시설에서의 신규 시설 또는 신 공정에 대한 설치요건을 구비하여야 한다.

2.2.6 비상관리

작업자, 공중 및 환경을 보호하기 위한 적절한 비상관리 설비와 절차서가 담겨진 비상계획을 작성하여야 한다. 비상계획은 10CFR70.22(i)(3)의 요건에 의해 적정성이 평가되며, 제시된 구체적인 수용기준을 만족하여야 한다.

2.2.7 부지특성

부지설명에는 환경영향보고서, 비상계획서, 통합안전성분석 요약보고서 등을 준비하는데 필요한 부지정보를 기술한다. 시설의 부지평가를 위해 필요하고 충분한 정보를 제시하여야 한다.

3. 양국의 안전성 평가체계 비교/분석

우리나라와 미국의 원자력 규제법내의 안전성 평가체계는 형식적인 차이는 있으나, 평가의 내용면에서는 큰 차이가 없다. 우리나라의 경우 대규모 사용후핵연료 처리시설이 없는 관계로 아직까지는 세부 관련법의 개발이 미진한 상태이다. 미국의 경우도 현재 상용 사용후핵연료 처리시설의 미보유로 관련법에 대한 정비가 완벽하게 이루어져 있지 않으나, 최근 기존의 핵주기시설에 대한 규제법에 사용후핵연료 처리시설의 안전요건도 보완 및 정비하고 있다. 본문에서 기술된 통합안전성분석 방법은 우리나라의 관련법 개발 및 시설 안전설계에 참조자료로 활용 가능성이 높다.

4. 결론

미국은 핵연료주기시설의 통합안전성분석 및 주요 안전항목에 대한 평가방법을 제시하고 있으며, 최근 평가기준의 강화로 이에 상응하는 평가방법이 강화되고 있다. 우리나라의 파이로 핫셀시설에 대한 안전성 평가에도 미국의 강화된 기준과 평가방법을 적절히 활용/보완한다면, 시설의 안전성확보에 크게 기여할 수 있을 것이다.

5. 참고문헌

- [1] You, G.S., et al., 2004, Development of experimental facilities for advanced spent fuel management technology, KAERI/RR-2764/2006.
- [2] Gil-Sung You, et al., 2011, Concept and safety studies of an integrated pyroprocess facility, Nuclear Engineering Design, No. 241, pp. 415-424.
- [3] G.S. You, et al., 2013, Pyroprocess facility design for a nuclear fuel cycle, Proceedings of the 21th International Conference on Nuclear Engineering, ICONE21-15190.
- [4] 원자력안전위원회, 원자력안전법 (2013).
- [5] NUREG-1909, Background, Status, and Issues Related to the Regulation of Advanced Spent Nuclear Fuel Recycle Facilities, US NRC (2008).
- [6] NUREG-1520, Standard Review Plan (SRP) for the Review of a License Application for a Fuel Cycle Facility, US NRC (2010).

HKED 기술의 파이로 공정 해물질 분석 활용가능성 검토

박광준*, 서희, 원병희, 송대용, 박세환, 김호동

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*kjpark@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후 핵연료에 대한 대규모 파이로 공정 처리 시설에서 정확한 핵물질 계량은 안전조치에 필수적인 요건이다. 그러나 파이로 공정 최종 산출물은 습식공정인 PUREX 공정과는 달리 순수한 우라늄과 플루토늄을 분리하지 않고, 핵확산 저항성을 높이기 위하여 다른 액티나이드 원소들과 함께 공존한다. 따라서 기존의 습식공정 핵물질 계량방법을 그대로 적용할 수 없으며, 새로운 분석방법을 찾아야 하는 상황에 처해 있다. 그래서 파이로 공정 산출물의 고체시료 일부를 용해시키는 것을 전제로 HKED 측정방법을 검토하게 되었다. 핵물질 원소분석에 있어서 HKED 측정/분석 기술은 그 정확도가 감마나 중성자 분석 방법에 비해 우수하며, 분석시간도 화학적 파괴분석에 비해 훨씬 짧은 이점을 갖고 있다. 시료를 고상에서 액상으로 변환시키고, 회석시켜야 하는 번거로움이 있지만 정확한 핵물질 분석을 위해서 이 정도는 감수해야 할 것이다. HKED 기술은 핵물질 원소분석에 주로 사용되며, 동위원소 분석에는 TIMS와 HRGS 같은 다른 기술이 사용된다.

2. HKED 측정기술의 개요

사용후핵연료 재처리 공정 입력용액 내의 우라늄과 플루토늄 농도를 결정하기 위해 분석될 용액을 담고 있는 2개의 분리된 시료 바이알이 Fig. 1에서 보여주는 바와 같이 X-선 튜브로부터 발생하는 강한 X-선 빔으로 조사된다. X-선 빔에 대해 응답신호는 두 가지 서로 다른 방법으로 사용된다.

① 첫째, 유리 큐벳 (glass cuvette) 내의 용액시료를 통과하는 고도로 시준된 X-선 빔의 투과율이 특정 에너지 구역 내의 에너지 함수로서 측정된다. 근본적인 측정기술은 K-흡수단 분광분석법이며, 보통 K-edge 농도측정법 (K-edge densitometry: KED)이라 부른다. 이 기술은 우라늄 농도를 결정하는데 사용된다.

② 두 번째, 두 번째 바이알 (PE vial)을 조사시키는 X-선 빔은 입력용액 내의 우라늄과 플루토늄으로부터 특성 X-선 방출을 자극한다. 이러한 유도 X-선의 세기가 측정되어 U/Pu 비를 결정하는데 사용된다. 근본적인 측정 기술은 잘 알려진 X-선 형광 (X-ray fluorescence : XRF) 분석 기술이다.

KED와 XRF 측정 모두는 동시에 수행된다. 필요한 측정 장비는 X-선 발생기를 제외하고 전형적으로 감마선 분광분석법에서 사용하는 장비와 동일하다.

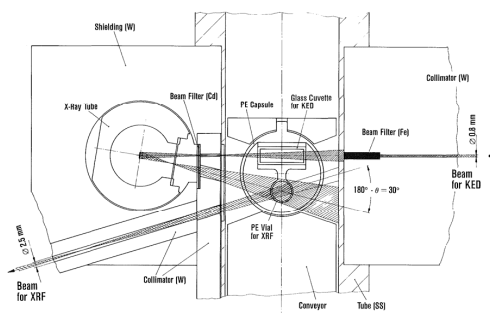


Fig. 1. Plan of the X-ray beam geometry for KED and XRF in the Hybrid Instrument.

3. KED 측정 방법

모체 (matrix) 농도 ρ_M 내 어떤 분석대상 성분 (analyte)의 분율 농도 ρ_A 는 그 성분의 흡수단 에너지 상/하 투과율 측정으로부터 선택적으로 결정될 수 있다. 투과율이 결정되는 흡수단 양쪽 에너지를 E_- 와 E_+ 로 표시하면 다음과 같은 식을 얻는다.

$$T(E_-) = \exp - [\mu_A(E_-)\rho_A + \mu_M(E_-)\rho_M]d$$

$$T(E_+) = \exp - [\mu_A(E_+) \rho_A + \mu_M(E_+) \rho_M] d$$

여기서 μ_A 와 μ_M 은 투과 에너지에서 성분 원소와

모체의 질량감쇠계수를 나타낸다. 투과율 비는 위 식으로부터 계산한다.

$$\frac{T(E_-)}{T(E_+)} = \exp[\Delta\mu_A\rho_A - \Delta\mu_M\rho_M]d$$

위 식의 양변에 대수를 취하고, ρ_A 에 대하여 정리하면 다음과 같이 된다.

$$\ln\left[\frac{T(E_-)}{T(E_+)}\right] = [\Delta\mu_A\rho_A - \Delta\mu_M\rho_M]d$$

$$\rho_A = \frac{\ln[T(E_-)/T(E_+)]}{\Delta\mu_A d} + \frac{\Delta\mu_M}{\Delta\mu_A}\rho_M$$

위 식에서 모체 항을 배제하는 실험 가능성이 있는데, 이러한 것은 농도측정 방정식을 단순한 형태로 줄여준다.

$$\rho_A = \frac{\ln[T(E_-)/T(E_+)]}{\Delta\mu_A \cdot d}$$

4. XRF 스펙트럼 분석

U/Pu 무게 비는 다음과 같은 관계를 통해 형광 $UK\alpha_1$ 와 $PuK\alpha_1$ 의 측정된 순 피이크 면적 (net peak area)으로부터 유도된다.

$$\frac{U}{Pu} = \frac{A(U)}{A(Pu)} \cdot \frac{P(UK\alpha_1)}{P(PuK\alpha_1)} \cdot \frac{ORE(PuK\alpha_1)}{ORE(UK\alpha_1)} \cdot \frac{1}{R_{U/Pu}}$$

여기서,

A = 우라늄 및 플루토늄에 대한 원자무게

P = $K\alpha_1$ X-선의 순 피이크 면적

ORE = $K\alpha_1$ X-선에 대한 overall relative detection efficiency

$R_{U/Pu}$ = 일차 X-선 빔에서 $UK\alpha_1$ 과 $PuK\alpha_1$ X-선의 방출확률 비를 나타내는 교정인자

XRF 스펙트럼으로부터 결정될량은 순 피이크 면적 P와 두 원소의 $K\alpha_1$ 에 대한 전체 에너지 상 대검출효율 ORE 이다.

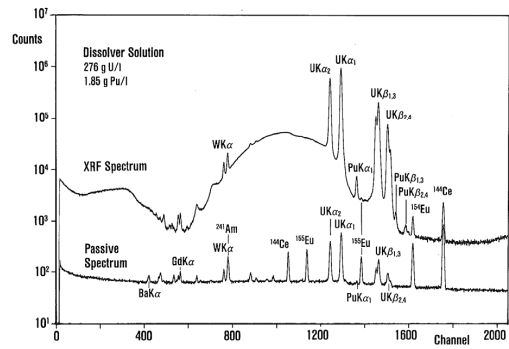


Fig. 2. Typical XRF spectrum (top) and passive spectrum (bottom) measured with the XRF detector from an input solution.

5. 결론

파이로 공정 최종 산출물은 습식공정인 PUREX 공정과는 달리 순수한 우라늄과 플루토늄을 분리하지 않고, 핵확산 저항성을 높이기 위하여 다른 악티나이드 원소들과 함께 공존한다. 따라서 기존의 습식공정 핵물질 계량방법을 그대로 적용할 수 없다. 그래서 파이로 공정 산출물의 고체시료 일부를 용해시키고, 회석시키는 방법을 사용하면, HKED 측정기술을 적용할 수가 있을 것으로 판단하게 되었다. 핵물질 원소분석에 있어서 HKED 측정/분석 기술은 그 정확도가 감마나 중성자 분석 방법에 비해 우수하며, 분석시간도 화학적 파괴분석에 비해 훨씬 짧은 이점을 갖고 있다. 시료를 고상에서 액상으로 변환시키고, 회석시켜야 하는 번거로움이 있지만 정확한 핵물질 분석을 위해서 이 정도는 감수해야할 것이다.

6. 참고문헌

- [1] H. Ottmar, "ESARDA Bulletin No.4 1986.

시료 조건에 따른 PRIDE UNDA 교정 시뮬레이션

서희^{1*}, 원병희¹, 이승규¹, 박세환¹, 신희성¹, 송대용¹, 나상호¹, 김호동¹, 이현수^{1,2}

¹한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

²한양대학교, 서울특별시 성동구 왕십리로 222

*hseo@kaeri.re.kr

1. 서론

우리나라는 아직까지 사용후핵연료에 대한 최종적인 처리 및 관리방안이 수립되어 있지 않은 상황이며, 최근 공론화를 통한 사회적 합의안을 찾는 노력을 진행하고 있다. 파이로 기술은 사용후핵연료의 독성 감소 및 폐기물 부피 감용 등 다양한 장점을 가지고 있어서 사용후핵연료 처리 및 관리 방안 중 하나의 좋은 옵션이 될 수 있다. 이에 한국원자력연구원에서는 파이로 공정에 대한 기술성, 경제성, 핵비확산성을 면밀히 확인하고 있으며, 이 중에서 본 연구팀에서는 핵비확산성을 보증할 수 있는 다양한 안전조치 기술들을 개발하고 있다. 이를 위해 최근 핵물질 계량장치를 제작한 바 있으며[1], 본 연구에서는 시료 조건에 따른 반응도 변화를 시뮬레이션으로 확인하였다.

2. 본론

PRIDE UNDA (Unified Non-Destructive Assay)는 파이로 공정을 통해 발생하는 다양한 형태의 공정물질 내에 포함된 핵물질의 양을 측정하기 위해 개발되었다(Fig. 1). PRIDE UNDA에는 3가지의 비파괴측정기법, 즉, 중성자, 감마, 무게 측정기법이 하나의 측정장치에 통합되어 있어서, 낮은 계통오차를 기대할 수 있다는 장점이 있다. 현재 각 개별 측정부에 대한 테스트는 완료한 상황이며, 우라늄 교정선원을 이용한 교정곡선을 획득하는 과정이 남아 있다.

파이로 공정에서 최초 입력 핵물질은 펠렛 형태이며, 산화 공정을 통해 분말형태로 변환되며, 이후 환원 공정을 통해 다시 금속형태로 변환된다. 이렇듯, 파이로 공정을 통해서는 다양한 형태의 공정물질이 발생되며, 이러한 시료의 특성은 PRIDE UNDA의 반응도에 변화를 유발할 수 있다. 따라서, 낮은 계량오차를 달성하기 위해서는 교정곡선을 획득할 때 이러한 시료 특성을 고려해야만 한다.



Fig. 1. Photo of PRIDE UNDA (Unified Non-Destructive Assay).

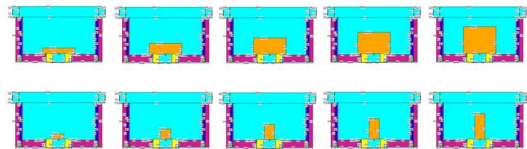


Fig. 2. MCNP simulation geometry for U_3O_8 powder (top) and UO_2 pellet (bottom).

이에 Fig. 2에서 볼 수 있듯이 U_3O_8 분말 형태와 UO_2 펠렛 형태의 감손우라늄 선원에 대하여 PRIDE UNDA의 반응도를 MCNP 시뮬레이션을 통해 확인하였다. 이를 위해 각각의 경우에 대하여 감손우라늄의 양을 10, 20, 30, 40, 50 kg 까지 변경시키면서 PRIDE UNDA의 계수율을 확인하였다.

Fig. 3에서 볼 수 있듯이 펠렛의 경우가 분말의 경우 보다 높은 계수율을 보임을 확인할 수 있다. 주된 원인으로서는 두 시료간의 밀도 차이로 인한 중성자 증배(multiplication) 변화를 들 수 있다. 즉, 펠렛의 경우 밀도가 높기 때문에 중성자 증배가 잘 일어나며, 이는 발생하는 중성자의 수가 더 많음을 의미한다. 참고로, 감손우라늄 양에 따라 중성자 증배계수는 분말의 경우 1.01~1.02

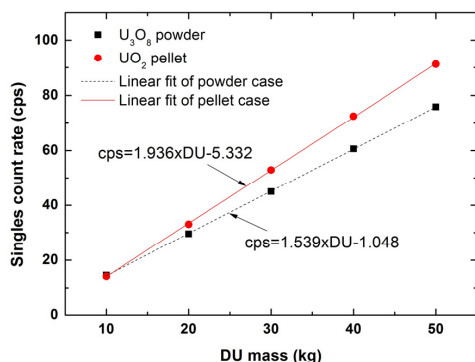


Fig. 3. Calibration curve for the case of U_3O_8 powder (black squares) and UO_2 pellet (red circles).

정도이지만, 펠렛의 경우에는 1.05~1.07 정도였다. 또한, 캐비티 내에서 시료가 차지하는 영역에서도 차이가 있기 때문에 축방향 및 반경방향 측정효율 차이가 이러한 계수율의 변화에 기여한 것으로 판단된다[2]. 만약, 펠렛으로 획득한 교정곡선을 사용하여 분말 형태의 시료를 측정할 경우 최대 16%까지 계량오차가 발생할 수 있음을 확인할 수 있었다.

3. 결론

본 연구에서는 시료 조건에 따른 PRIDE UNDA의 반응도 변화를 시뮬레이션으로 확인하였다. 이를 통해 파이로 공정을 통해서 다양한 형태의 시료가 발생되므로 낮은 계량오차를 달성하기 위해서는 최대한 동일한 형태의 교정선원을 사용하여 교정곡선을 획득해야 함을 확인할 수 있었다. 따라서 우선 펠렛 형태의 교정선원을 제작하여 교정곡선을 얻은 후 이를 분말화하여 분말 형태의 교정선원으로 제작하고, 이에 대한 교정곡선을 따로 얻을 계획이다. 이후 파이로 시료에 대한 핵물질 계량 시 시료의 특성을 고려하여 보다 적합한 형태의 교정곡선을 선택적으로 사용하여 측정할 계획이다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

5. 참고문헌

- [1] 서희 외, “파이로 핵물질 계량을 위한 통합비과피측정장치(UNDA) 개발”, 한국방사성폐기물학회 2013년 추계학술발표회 논문요약집, pp.159-160, 2013.
- [2] 원병희 외, “MCNPX 코드를 이용한 통합비과피측정장치의 중성자 검출효율 평가”, 방사선방어학회지, 38(4), pp.172-178, 2013.

사용후핵연료 운반용기 제작 및 법적제작검사

정성환*, 정윤창

한수원중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70

*shchung@khnp.co.kr

1. 서 론

경수로 원전의 사용후핵연료 저장능력을 확보하기 위한 소내운반용 KN-18 사용후핵연료 운반용기를 개발하여 정부로부터 설계승인 인허가를 획득하고, 현재 국내에서 4식이 제작되고 있으며 관련법령에 따라 규제기관의 법적제작검사를 받고 있다. 운반용기는 CE형 사용후핵연료를 18다발까지 운반할 수 있는 B(U)F형으로, 원자력안전법, IAEA SSS No.SSR-6 및 미국 10 CFR 71의 관련요건에 따른 정상운반 및 운반사고 조건에 대하여 해석과 시험을 통하여 안전성을 입증하였다. 운반용기는 원통형이며, 단조강 셸, 중성자차폐체, 열전달 핀, 외부셸 및 트러니온으로 이루어지는 용기본체, 용기본체의 상부에서 볼트로 체결되는 1, 2차 용기뚜껑, 연료가 장전되는 내부바스켓 및 상하부의 충격완충체로 구성되는데, 용기본체는 직경 약 2.4m, 높이 약 5.1m이고, 장전된 연료를 포함한 취급중량은 약 104톤, 충격완충체를 포함한 운반중량은 약 125톤이다(Fig. 1 참조). 운반용기는 Fig.2에 나타난 것처럼 특수제작 트레일러에 설치된 결속장치에 수평으로 상차되고 충격완충체가 체결되어 운반되는데, 운반도중 우천대비, 오염확산방지 및 열전달을 위하여 트레일러에 personnel barrier를 설치한다.

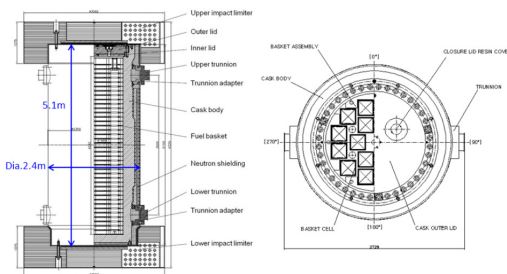


Fig. 1. Cask general arrangement.

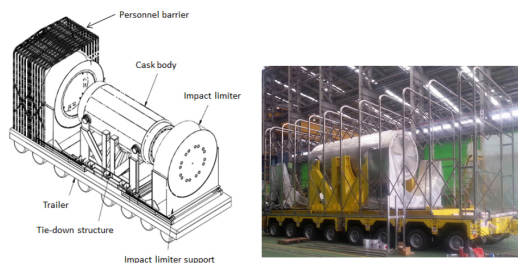


Fig. 2. Transport mode.

2. 운반용기 제작

운반용기의 본체는 탄소강으로 상부원통과 하부원판으로 각각 단조하여 가공되고 원통과 하부는 서로 용접으로 결합된다. 스테인리스강의 용기뚜껑도 단조하여 가공되어 용기본체 상부에서 뚜껑볼트로 체결된다. 알루미늄 재질의 열전달 핀이 가공되어 용기본체 단조강과 스테인리스강 외부셸 사이의 공간에 부착되고 그 공간에 중성자차폐체인 레진이 채워진다. 바스켓은 사각구멍이 가공된 스테인리스강 원판이 여러 층으로 적층되어 구조물을 형성하고 용기본체의 내부에 설치된다. 모든 제작은 ASME Sec.III Div.3 요건을 따른다. 운반용기 제작공정에 대하여 Fig. 3에 나타내었다.

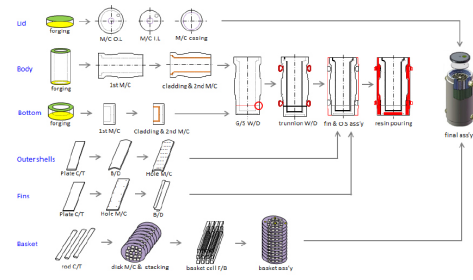


Fig. 3. Cask fabrication process.

용기본체는 Mandrel bar forging으로 단조된 SA350 LF3 단조강인데, 단조두께는 305mm로 국내에서는 최대두께에 해당한다.(Fig.4 참조)



Fig. 4. Cask body forging.

본체의 상부와 하부는 narrow gap girth seam welding으로 용접 부착되며(Fig. 5 참조), 모든 탄소강 표면은 부식방지를 위하여 스테인리스강으로 cladding 된다(Fig. 6 참조).



Fig. 5. Cask body welding.



Fig. 6. Cladding.

본체 단조강 셸과 외부셸 사이에는 열전달 핀이 부착되며, 그 사이공간에 중성자차폐체인 레진(NS-4-FR)이 진공주조로 채워진다(Fig. 7 참조).



Fig. 7. Heat transfer fin and resin pouring.

바스켓 구조물은 연료가 장전되는 18개의 사각통 연료 셸이 들어가도록 구멍이 나있는 원판이 여러 층으로 적층되어 용기의 내부에 삽입 설치된다. 연료 셸의 각 외부면에 metamic 재료의 중성자흡수재가 부착된다(Fig. 8 참조).

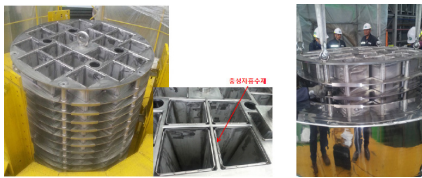


Fig. 8. Fuel basket structure.

운반 도중의 사고에 대비하기 위한 상하부의 충격완충체는 원통형인데, 내부에 충격흡수재인 목재(spruce & beech woods)가 적층되어 채워진다(Fig.9 참조).



Fig. 9. Impact limiter and woods stacking.

용기 및 관련장비의 스테인리스강으로 된 모든 표면은 원전의 관리구역에서의 반출 시 오염물질에 대한 표면 제염이 용이하도록 buffing 처리를 한다(Fig. 10 참조).

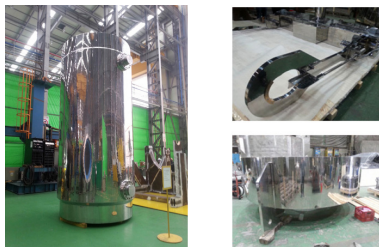


Fig. 10. Buffing treatment on surfaces.

3. 운반용기 법적제작검사

운반용기의 제작은 원안위 고시 제2013-51호에 따라 제작검사를 받아야 한다. 이는 IAEA 운반규정 요건인 운반용기 최초사용 전 검사사항과 동일하다. 제작검사 항목은 재료검사, 용접 및 비파

괴 검사, 외형 및 육안검사, 최대사용압력검사, 하중검사, 격납경계 누설검사, 열전달성능검사, 방사선차폐성능검사, 기능시험 등으로 이루어진다.

용기본체 재료인 SA350 LF3 단조강은 낙중 및 충격 시험 등에서 -107°C 의 파괴전이온도(RT_{NDT})를 만족하여 -40°C 운반조건에 대한 파괴인성을 확보한 것이 가장 큰 기술적 성과였다(Fig. 11 참조).



Fig. 11. Drop weight and impact tests.

외형검사는 외부손상 여부와 각 구성품의 치수검사로 확인하였으며(Fig. 12 참조), 용접부 검사는 RT, UT, PT 등의 비파괴검사와 헬륨누설검사로 용접부의 건전성을 확인하였다(Fig. 13 참조).

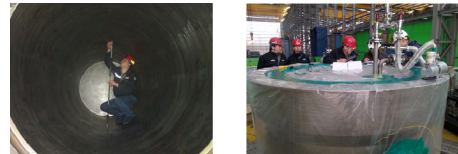


Fig. 12. Dimension check. Fig. 13. Integral leak test.

하중검사는 유압잭을 이용하여 ANSI N14.5에 따라 사용하중의 1.5배를 적용하고 시험 후 인양부 비파괴검사로 평가하였으며(Fig.14 참조), 최대사용압력검사는 ASME 요건에 따른 최대압력의 1.5배에 대한 수압시험을 실시하였다(Fig.15 참조).



Fig. 14. Load test. Fig. 15. Hydrostatic test.

열전달성능검사는 설계연료와 동일한 열용량의 모의히터를 바스켓에 장착하고 실제 운반양상과 동일하게 용기를 트레일러에 설치한 후 각 부위의 온도를 측정하고 해석치와 비교 평가한다. 누설검사는 격납경계에 대하여 헬륨누설시험을 수행한다. 방사선차폐성능검사는 원전에서 설계요건에 근접한 실제연료를 용기에 장전한 후 각 부위의 선량률을 측정하고 해석치와 비교 평가한다.

4. 참고문헌

- [1] ASME BPVC Sec.III Div.3, "Containments for Transportation of Spent Nuclear Fuel"
- [2] 원안위 고시 제2013-51호, "방사성물질 운반용기의 제작검사 및 사용검사에 관한 규정"

레이더를 이용한 용융염 레벨 측정 장치의 전해정련공정에서의 적용

강현우*, 박성빈, 황성찬, 진형주

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*hyunwookang@kaeri.re.kr

1. 서론

전해정련공정을 통해 생산되는 우라늄 전착물에는 약 20-30 wt%의 잔류염이 포함되므로, 정련공정이 진행됨에 따라, 전해정련장치 내에 있는 용융염의 양은 줄게 된다. 용융염의 양이 줄어들게 됨에 따라 용융염에 잠기는 음극과 양극의 면적이 달라지므로, 정련공정의 효율을 유지하기 위해서는 일정한 양의 용융염을 유지해야 한다. 따라서 정련공정의 매 배치마다 용융염의 레벨을 정량적으로 측정할 수 있는 방안이 확립되어야 한다.

전해정련 공정은 500 ℃의 KCl-LiCl 용융염을 이용하므로, 레벨 측정 방식에 있어서 접촉식 방식보다는 비접촉방식이 유리할 것으로 판단된다. 레이더를 이용하는 레이더 레벨 측정은 비접촉 방식으로, 측정 대상인 물체에 직접 닿지 않아도 되므로, 제품의 오염을 방지하며, 측정물의 점도에도 영향이 없으며, 가동부가 없다는 장점이 있다. 또한, 유지보수 비용이 적고, 측정 길이를 조정하기가 매우 용이하며, 설치가 매우 간편한 장점을 가지고 있다. 레이더 레벨 측정 기술은 액체 측정용과 분체 측정용으로 나뉘는데, 액체 측정용인 경우, 날카로운 주사각(발사각도)보다는 넓은 방사 면적에서의 정확한 액위를 측정하는 것이 중요하므로 액체 측정용 레이더 레벨계는 저주파수 대역(약 5.8GHz)에서 개발이 많이 이루어진다. 레이더 레벨계의 측정 원리는 측정 대상 물체에 펄스 주파수를 보내고 대상 물체에 맞고 되돌아오는 펄스파의 시간을 측정/분석하여 양 또는 거리로 산출하여 계측하는 것이다.

2. 본론

2.1 용융염 레벨 측정 장치 제작

용융염 레벨 측정 장치는 전착물 이송 장치 글로브 박스를 개량하여 사용하였다. 글로브 박스 내부에 장착된 프랜지를 개조하여 IBM 사의 레벨 측정 장치 중 센서 부분을 프랜지 위에 장착

하였다. impeller와 thermocouple를 프랜지 하단에 설치하여, 용융염의 혼합을 용이하게 하는 동시에, 온도를 모니터링 할 수 있게 제작하였다. 글로브 박스 외부에 연결된 컴퓨터로 용융염의 레벨을 모니터링 하였다. 센서가 프랜지와 연결된 하단 부에 10 mm 간격으로 라벨링을 하여, calibration을 하였다.

2.2 용융염 레벨 측정 실험 결과

2.2.1 벽면 및 물 위에서의 calibration

각 레벨 포인트당 데이터를 수집하여, 최대값과 최소값을 제외한 데이터로 평균값을 계산하였다. 각 레벨 포인트는 50 mm 간격으로 11 개를 선정하였다.

2.2.1.1 벽면 위에서의 calibration

Fig. 1에서 제시한 바와 같이, 벽면 위에서의 calibration 그래프는 실측 값과 비교하여 비례 관계에 있으며, $Y = 0.97545 X - 7.81818$ ($R^2 = 0.99888$)로 근사할 수 있다. 변화하는 벽면 위에서의 오차는 실제 변화 값 50 mm에 대해 평균 -2.1 mm (-4.2 %)의 오차가 발생하였으며, 오차는 항상 음수로만 발생하였다.

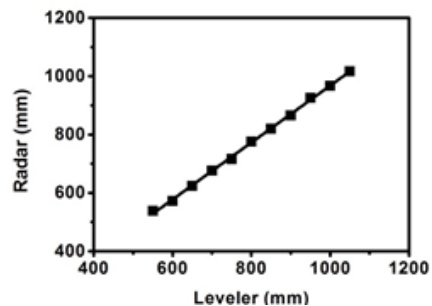


Fig. 1. Calibration on the wall.

2.2.1.2 물 위에서의 calibration

Fig. 2에서 제시한 바와 같이, 물 위에서의 calibration 그래프는 실측 값과 비교하여 비례 관계

계에 있으며, $Y = 0.94145 X - 21.49455$ ($R^2 = 0.99571$)로 근사할 수 있다. 변화하는 물 위에서의 오차는 실제 변화 값 50 mm에 대해 평균 -3.7 mm (-7.4 %)의 오차가 발생하였으며, 오차는 항상 음수로만 발생하였다. 벽면 위에서의 측정과 비교할 때, 물 위에서 측정하는 경우, 표면에서 난반사가 일어날 수 있기 때문에, 오차의 범위가 커진다.

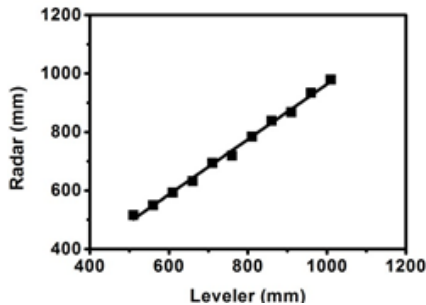


Fig. 2. Calibration on the water.

2.2.2 용융염 위에서의 calibration

각 레벨 포인트당 데이터를 수집하여, 최대값과 최소값을 제외한 데이터로 평균값을 계산하였다. 염을 2 kg 장입하면, 용기 내 액위가 14 mm 상승하므로, 염을 10 kg에서 24 kg까지 각각 2 kg 단위로 장입하여, 각 레벨 포인트는 14 mm 간격으로 8 개를 선정하였다. 또한, 하나의 레벨 포인트에 대해, Fig. 3에 제시한 10 mm 간격의 라벨링을 이용해, 센서의 위치를 10 mm 간격으로 변화시키며, 액위가 고정된 경우, 센서의 위치에 따른 레벨을 측정하였다. 센서의 위치를 프랜지 바로 위에 고정하고 (센서와 프랜지 사이의 거리, 0 mm), 용융염의 레벨을 14 mm 간격으로 변화시키며 레벨을 측정하였다.

Fig. 3에서 제시한 바와 같이, 용융염 위에서의 calibration 그래프는 실측 값과 비교하여 비례 관계에 있으며, $Y = 0.8677 X + 80.51687$ ($R^2 = 0.90009$)로 근사할 수 있다. 변화하는 물 위에서의 오차는 실제 변화 값 14 mm에 대해 평균 -0.6 mm (-4.3 %)의 오차가 발생하였으며, 오차는 음수와 양수 모두로 발생하였다. 벽면 또는 물 위에서의 측정과 비교할 때, 용융염 위에서 측정하는 경우, 표면에서 난반사가 일어날 수 있기 때문에, 오차의 범위가 커진다.

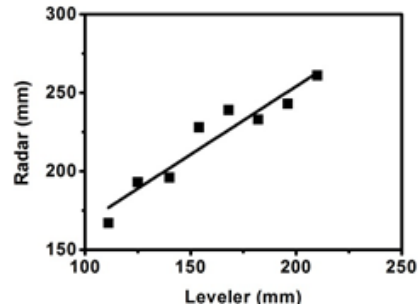


Fig. 3. Calibration on the molten salt.

3. 결론

레이더 용융염 레벨 측정 장치를 이용하여, 반사면이 벽, 물, 용융염의 세 가지 경우에 대해 레벨을 측정하였다. 실제 측정값의 경우, 벽, 용융염, 물의 순서로 오차가 작게 발생하였다. 레이더식 측정법의 경우, 레이더가 반사 면과 상호작용하므로, 유동성이 없는 벽에서의 오차가 가장 작고, 유동성이 큰 물에서의 오차가 가장 컸으며, 용융염의 경우, 벽면과 비슷한 정도의 오차를 보였다. Calibration의 경우, 벽, 물, 용융염의 순서로 오차가 작게 발생하였으나, 오차의 절대값 (Y 절편)이 상당히 크게 변화하므로, 레이더 장치를 사용할 경우, 매질에 따른 calibration을 반드시 실행해야 한다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부에서 주관하는 원자력 중장기계획사업의 일환으로 수행하였습니다.

5. 참고문헌

- [1] 한국방사성폐기물학회, 2012년 춘계학술발표회 논문요약집, pp.55-56, 2012.
- [2] 한국방사성폐기물학회, 2012년 춘계학술발표회 논문요약집, pp.73-74, 2012.
- [3] 한국방사성폐기물학회, 2012년 춘계학술발표회 논문요약집, pp.115-116, 2012.

공학규모 염증류장치의 시운전

권상운*, 박기민, 장준혁, 김정국, 박성빈

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*swkwon@kaeri.re.kr

1. 서론

전해정련 공정에서는 고체음극을 이용하여 순수한 우라늄을 분리하며, 회수된 우라늄 전착물은 텐드라이트 형상의 작은 크기이며, 많은 양의 공용염이 함유되어 있다. 회수된 우라늄은 우라늄 잉곳으로 제조하여 핵연료의 성분 조정 등의 목적으로 재사용시까지 보관한다. 따라서 잉곳제조 전에 우라늄전착물에 남아 있는 공용염을 제거하여야 한다. 공용염 제거에는 진공증류의 방법이 보통 사용되나 전해정련에서 발생한 우라늄 전착물의 공용염을 모두 진공증류하기 위해서는 고온에서 장시간 조업해야하는 어려움이 있다[1-3]. 미국, 일본 등에서는 전해정련과정에서 발생한 우라늄 전착물로부터 공용염을 제거하기 위해 캐소드 프로세서(Cathode Processor)라 불리는 진공증류탑을 공학규모 장치로 개발하여 사용하고 있다 [2]. 이 장치는 탑 상부에 우라늄 전착물을 넣고 외부에 설치된 히터를 이용하여 가열하며, 공냉식으로 냉각되는 하부 응축부위에 공용염 회수도가니를 두어 증발된 공용염을 응축 회수한다.

본 연구에서는 전해정련공정에서 발생한 우라늄전착물에 잔류하는 공용염을 진공증류에 의해 분리하는 공학규모 염증류장치의 조업조건 확보 및 장치 개선을 위한 시운전을 공탑 실험 및 염장입 실험을 통하여 수행하였다.

2. 본론

Fig. 1은 한국원자력연구원 PRIDE 실험시설 알곤셀에 설치된 공학규모 염증류장치의 모습을 나타낸 것으로, 50 kg/day 규모의 우라늄 전착물을 취급하도록 설계되었다.

설계, 제작된 장치의 시운전을 위하여 먼저 공탑 승온시험을 실시하였다. 분당 5°C의 속도로 승온하고 4 개의 제어 영역에서 각각 다르게 설정하였다. 증발영역은 증류탑 내부 온도가 800°C 이상 유지되고, 방열판 아래쪽의 응축 영역은 400°C 이상 유지될 수 있도록 히터의 설정온도를 변화시켰다. Fig. 2에 공탑 승온 시험 결과를 나타내었

으며, 측정 온도 프로파일에서 보듯이 설정된 프로그램에 따라 잘 유지 되었다. 히터의 온도와 증류탑 내부의 온도 차이를 아는 것은 매우 중요하며, 증발 영역에서는 20°C 정도의 차이가 있음을 알 수 있었고, 이를 히터 온도를 설정 기준으로 결정하였다.

한편 염 증류장치는 자연냉각 방식에 의존하여 도가니를 교체하며, Fig. 2에 나타난 것처럼 전체 염증류공정에 가장 많은 시간이 소요되었다. 따라서 본 연구에서는 강제 냉각 방식을 도입하는 방안을 검토하였으며, 강제냉각을 위해서 증류탑 외벽과 히팅자켓 사이로 알곤 기체를 흘려주는 방식으로 개조하였다.

증류탑 장치를 이용 염 증류실험을 수행하였으며, 약 4 kg의 염을 장입하여 820°C에서 두 시간 동안 증발 시켰다.

Fig. 3은 증발 실험이 끝난 후의 도가니의 모습이며, 내부에는 전혀 염이 남아 있지 않고, 무게 측정에서도 염이 모두 증발 된 것으로 나타났다. 따라서 실험실 규모에서와 마찬가지로 염증류장치의 조업은 800°C 이상에서 이루어 져야 한다는 것을 알 수 있었다.

도가니에서 증발된 염은 방열판 옆의 튜를 지나 응축영역 바닥에 있는 염회수 용기에 모여 고화된다. Fig. 4(a)는 염회수용기의 모습이며, 대부분의 염이 여기에 잘 모여 있다. 무게 측정 결과 염 회수율은 97 %를 상회하였다. Fig. 4(b)는 회수염 블록의 모습이며, 전해정련 장치로 재순환된다. 잉곳 형태의 염은 용기로부터 분리가 용이하여야 하며, Fig. 4(b)에서처럼 비교적 쉽게 탈착되었고 간단하게 작은 조각으로 나눌 수 있었다.

3. 결론

전해정련공정에서 발생한 우라늄전착물에 잔류하는 공용염을 진공증류에 의해 분리하는 공학규모 염증류장치의 시운전을 공탑 실험 및 염장입 실험을 통하여 수행하고, 조업조건 확보 및 장치 개선을 위한 여러 결과를 확보하였다.

4. 감사의 글

이 연구는 미래창조과학부 원자력연구개발사업의 지원으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] S. W. Kwon, K. M. Park, H. S. Lee, and J. G. Kim, J Radioanal Nucl Chem, 288, 789 (2011).
- [2] B. R. Westphal, Distillation Modelling for a Uranium Refining Process, Report ANL/TD/CP-87031, INL, ID, USA (1996).
- [3] S. W. Kwon, K. M. Park, H. S. Lee, and J. G. Kim, 방사성폐기물학회 2011 춘계학술 발표회 논문요약집 pp.187-188 (2011).



Fig. 1. Photograph of engineering scale salt distillation system.

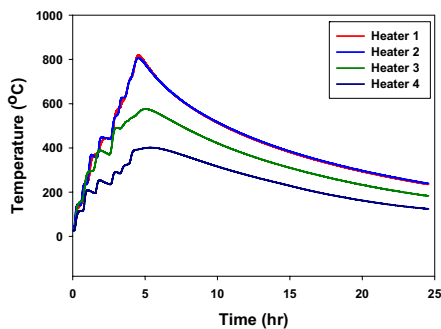


Fig. 2. Temperature profile during heating of engineering scale salt distiller installed in PRIDE Ar cell.



Fig. 3. Photograph of deposit crucible after 2 hours run of salt distillation.



(a)

(b)

Fig. 4. Photographs of recovered salt and salt ingot in salt recovering vessel.

U-dendrite의 용해특성을 이용한 압축성형 연구

이호세*, 장준혁, 강희석, 박성빈

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*hellohose@kaeri.re.kr

1. 서론

건식 파이로 프로세스는 사용후 핵연료에 포함되어 있는 순수 우라늄 및 TRU 등 유용한 원소를 회수하여 재활용하기 위해 오래전부터 연구되고 있다. 그 중 파이로 프로세스의 핵심 공정 중 하나인 전해정련공정은 사용후 핵연료 내에 포함된 다량의 우라늄을 회수하는 공정으로, 우라늄의 회수율 및 순도를 높이기 위해 꾸준히 연구되어 왔다[1]. 전해정련공정은 전기화학을 이용하여 우라늄을 LiCl-KCl 용융염 속에서 음극전극 표면에 석출시키고 회수된 우라늄 전착물은 염증류공정을 거쳐 순수한 우라늄만 회수된다.

이때 얻어진 순수한 우라늄 전착물은 수백 μm ~수mm 크기의 dendrite 형상을 띄게 된다. 이러한 미세한 powder 형태의 우라늄 dendrite는 산소와 반응성이 매우 높을 뿐만 아니라 tap density가 매우 낮아 취급 및 보관에 큰 어려움이 있다. 이에, 미세한 우라늄 dendrite powder를 효과적으로 잉곳의 형태로 주조하기 위한 연구가 필수적이다 [2,3].

본 연구에서는 U-dendrite의 열전달 거동을 개선할 뿐만 아니라 표면적적을 줄여주어 산소와의 반응을 억제하기 위하여 용해재료를 압축성형방식을 도입하였다. 미세한 파우더 형태의 U-dendrite는 tap density가 1 이하로 U-bulk의 1/20에 불과하다. 이는 U-dendrite 압축성형이 충분히 가능함을 제시해주고 있다. 이에, U-dendrite의 압축성형성을 평가하고 압축성형 후의 용해가능성을 확인하였다.

2. 본론

2.1 U-dendrite의 압축성형성

글로브박스 내부에 압축성형장치를 설치하여 U-dendrite의 압축성형성을 평가하였다. 염증류 후 얻어진 순수한 U-dendrite를 압축성형 재료로 사용하였고, 30 ton 규모의 유압 Jack을 이용하여 압축하였다.

Fig. 1은 압축성형 전(Fig. 1(a))과 후(Fig. 1(b))의 U-dendrite를 보여주고 있다.

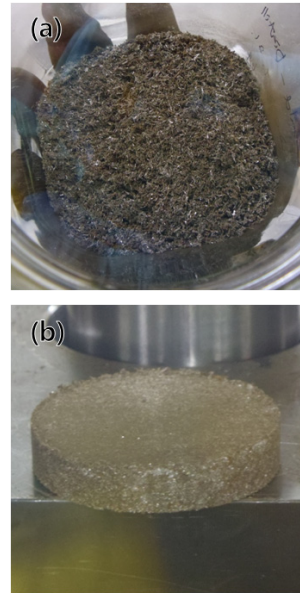


Fig. 1. U-dendrite (a) before and (b) after compression molding.

그림과 같이 Powder형태의 U-dendrite를 성공적으로 압축성형하여 약 300g의 ingot의 형태로 제조가 가능한 것을 확인 할 수 있었다. 반복적인 압축성형을 통하여 압축된 U-dendrite의 density를 분석해 본 결과, 10.08 g/cm³으로 계산 되었으며 Table 1에 도표하였다.

U-dendrite를 10배로 압축 성형 할 수 있음을 Table 1을 통해 알 수가 있다. 이렇게 압축성형된 U-dendrite는 미세입자형태의 U-dendrite에 비해 계량이 쉬울 뿐만 아니라 이송 및 보관이 용이한 장점을 가지고 있다.

Table 1. Density of uranium dendrites after compression molding

Test NO.	Dia meter [cm]	Height [cm]	Volume [cm] ^a	Weight [g]	Density ^b
#1	6.0	1.36	38.45	376.6	9.79
#2	6.0	1.93	54.57	550.2	10.08
#3	6.0	1.65	46.65	370.4	7.94
#4	6.0	1.34	37.89	301.9	7.97
#5	6.0	2.13	60.22	516.9	8.58
#6	6.0	1.53	43.26	360.9	8.34
#7	6.0	1.41	39.87	304.5	7.64
#8	6.0	0.85	24.03	219.1	9.12
Total			344.9	3000.5	8.70

^a Volume calculated from diameter and height of the compressed U-dendrite

^b Density calculated from Volume^a and weight of the compressed U-dendrite

2.2 압축성형된 U-dendrite의 용해성 평가

U-dendrite를 반복 압축성형하여 얻어진 압축성형된 U-dendrite를 이용하여 용해가능성을 평가해 보았다. 약 3kg의 압축성형 U-dendrite를 Y₂O₃가 코팅된 흑연도가니에 넣은 후 고주파 유도도로에 장입하였다. 용해챔버를 5 x 10⁻² torr의 압력 이하로 진공배기 후 1400 °C의 온도까지 승온하였다. 1400°C의 온도에서 2시간 유지 후 진공분위기에서 냉각하였다. Fig. 2에서는 반응이 모두 진행된 후 얻어진 U-잉곳을 볼 수 있다.



Fig. 2. Obtained U-ingot after melting test.

잉곳제조 시 약 3 wt%의 Loss 가 발생하였는데, 이는 INL에서 보고된 수치와 유사한 값이다. 이러한 결과 압축성형방식으로 U-ingot을 효율적으로 제조 할 수 있음을 Table 2에 잘 보여주고 있다.

Table 2. Yield of ingot consolidation by a melting test of uranium dendrites after compression molding

	Material	Weight[g]	Yield[%]
Inserted	U-dendrite	3009	-
Obtained	U-Ingot	2909	96.7
	Dross	89	3.0
Loss		11	0.4

3. 결론

본 연구에서는 미세 U-dendrite의 압축성형성을 평가하고 압축성형된 U-dendrite의 용해가능성을 확인하였다. 그 결과 다음과 같은 결과를 얻을 수 있었다.

- 미세 U-dendrite를 성공적으로 압축하여 10 g/cm³ density U-dendrite 덩어리를 제조하였다.
- 약 3kg의 압축성형된 U-dendrite를 이용하여 성공적으로 U-ingot을 제조하였다.

이와 같이 압축성형된 U-dendrite를 이용하여 잉곳을 제조 할 경우, U-dendrite의 계량 및 보관이 용이 할 뿐만 아니라 주조장치의 크기를 획기적으로 소형화 시킬 수 있을 것으로 판단된다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부에서 주관하는 원자력연구개발사업의 일환으로 수행 하였습니다.

5. 참고문헌

- [1] 강영호, 양역석, 황성찬, 이흥기, Applied Chemistry, Vol.2, No.1, pp.508-511, 1998.
- [2] C.H. Cho, Y.S. Lee, E.S. Kim, J.G. Kim and H.S. Lee, J. Radioanal. Nucl. Chem., 287 (2011) 485-490 Vol. 8, No. 1, pp.85-89, 2010.
- [3] S.H. Lee, C.H. Cho, Y.S. Lee, H.S. Lee and J.G. Kim, Korean J. Chem. Eng., 27(6) (2010) 1786-1790.

사용후핵연료 처리를 위한 이온성 액체 기술 현황

박병홍*, 강조흥, 김기섭**

한국교통대학교, 충청북도 충주시 대학로 50

*b.h.park@ut.ac.kr, **kks1114@ut.ac.kr

1. 서론

현재 상업적으로 활용되는 사용후핵연료 처리 공정은 습식공정인 PUREX이다. 액-액 추출원리 활용한 PUREX 공정에는 다양한 변형이 존재하나 일반적으로는 1차 정제 사이클로부터 공정을 시작한다. PUREX 공정에서 U와 Pu는 질산 용액으로부터 추출제인 TBP를 사용하여 분리된다. 이때 추출제의 점도, 비중 등의 물성 조절을 위해 희석제로 n-dodecane (n-DD) 또는 등유가 사용된다.

희석제인유기 용매는 휘발성 성질과 환경 오염의 원인이기 때문에 최근 이를 대체할 수 있는 친환경 매질로 사용되는 이온성 액체의 적용이 시도되고 있다¹⁻³⁾. 이러한 기술들은 적용 가능성에 높은 반면 국내에서는 연구가 미진한 분야이다. 본 연구에서는 연구자들이 이온성 액체를 활용한 후핵연료 주기 공정 개발 단계로 진입을 원활하게 하기 위해 기존 연구들의 접근 방법들과 주요 결과들을 정리하였으며 현황과 주요 이슈들을 검토하였다.

2. 이온성 액체 특성

이온성 액체(IL, Ionic Liquid)는 양이온과 음이온으로 구성된 상온 액체 유기염을 일컫는 용어로 사용된다. 순수한 물질의 액체 상태가 이온들로 구성되었다는 측면에서 용융염과 개념적으로는 동일하여 이온성 액체를 용융염의 일종으로 분류할 수도 있으나 무기염들인 용융염과 달리 낮은 온도에서 액체 상태를 나타내는 특징으로 인해 일반적으로는 용융염과 분리하여 정의한다.

이온성 액체가 지닌, 일반적인 유기 용매와 대비되는 대표적인 물성들은 비휘발성, 고전도성, 불연성 성질을 들 수 있으며 이를 활용하면 휘발성 유기화합물(VOC)을 배출하지 않는 친환경 공정을 개발할 수 있다.

추출 공정에 활용되기 위해서는 수용액에 존재하는 금속이온을 추출한 후 액-액 상분리를 유발

시켜야하므로 이온성 액체는 소수성을 지녀야 한다. 이러한 소수성 환경은 이온성 액체에 의해 만들어지며 실제 금속 이온 추출은 추출제를 사용하여 얻게 된다. 따라서 금속 이온의 특징에 따라 다양한 추출제가 소수성 성질을 지닌 1-alkyl-3-methylimidazolium hexafluorophosphate ([Cnmim][PF₆]) 희석제에서 시도되어 분배율 향상을 보였으며⁴⁾ 이를 활용하여 목적에 맞게 이온성 액체의 종류를 변화시킬 수 있었다⁵⁾.

이온성 액체에서 주목해야할 물성은 전기화학적 성질로, 이온성 액체는 넓은 전기화학창을 지니고 있어 전기화학 반응에서 안정적인 전해질로 사용될 수 있다⁶⁾. 일반적으로 이온성 액체는 3에서 6 V까지 넓은 전위창을 보이고 있다. 또한, 전극과 용액의 산도(acidity)를 변경시키면 Fig. 1과 같이 전기화학창을 1 V 정도는 변화시킬 수 있음이 밝혀졌다. 이온성 액체 매질에서 전기화학적 방법으로 금속 이온을 전착시킬 수 있기 때문에 추출 공정 후 금속 이온을 전기화학적으로 회수할 수 있게 된다.

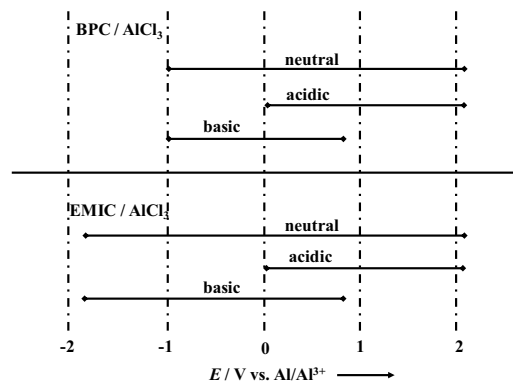


Fig. 1. Electrochemical window of ionic liquid with respect to acidity.

3. 이온성 액체 활용

PUREX 공정에 사용되는 유기용매(n-DD 또는 등유)를 대체하여 TBP를 용해시키기 위한 희석

제로서의 이온성 액체의 적용 가능여부는 우라늄 추출을 중심으로 연구되었다⁷⁾. 질산에 용해된 우라늄 추출을 위해 1.1 M TBP를 [bmim][PF₆] 이온성 액체에 희석시켜 두 용액을 접촉시킨 결과 우라늄의 분배율은 질산 농도 0.01에서 4 M 범위에서는 1.1 M TBP/n-DD 시스템과 유사한 수치로 나타났으며 질산 농도가 4 M을 넘어서는 범위에서도 분배율이 증가하여 n-DD를 사용한 경우보다 우수한 것으로 결과가 발표되었다⁷⁾. 동일한 연구에서 추출제를 첨가하지 않고 이온성 액체만을 접촉시켰을 때에는 단지 소량의 우라늄만이 추출되는 결과도 함께 제시되었다⁷⁾. 알킬기를 변경하여 가지가 좀 더 긴 octyl기를 연결한 [omim][PF₆]를 희석제로 사용한 비교 연구에서는 1.1 M TBP/[omim][PF₆]에서 우라늄의 분배율이 모든 질산 농도 범위에서 [bmim][PF₆] 보다 다소 낮았으나 [omim][PF₆]의 질산에 대한 용해도는 [bmim][PF₆]에 비해 두세 배 낮은 것으로 관찰되었다⁸⁾.

4. 결론

본 연구에서는 최근 다양한 화학 공정에서 친환경 용매로 주목 받고 있는 이온성 액체 관련 연구를 정리하여 제시하였다. 이온성 액체는 그 자체가 금속 이온을 추출할 수 있는 추출제로 사용되는 것은 아니며 추출제를 희석하여 수용액 상과 상분리를 발생시키기 위한 소수성 용액으로 사용된다. 한편, 이온성 액체로 추출된 금속 원소들은 전기화학적으로 회수될 수 있기 때문에 이온성 액체에서 활용되는 주목할만한 특성으로는 추출제를 용해시키는 소수성 성질과 전해반응 매질로서 넓은 전기화학 창을 들 수 있다.

이온성 액체는 다양한 양이온과 음이온 조합으로 원하는 물성을 갖춘 용매를 만들 수 있다는 측면에서 매력적인 물질이긴 하지만 다소 복잡한 구조에 의해 추출 또는 용해되어 있는 금속 원소들의 배위 환경에 대한 이해가 선행되어야 한다. 따라서, 현재까지의 연구는 화학적 접근으로 분광학적 분석과 전기화학적 물성 측정에 집중되어 있는 것으로 볼 수 있다. 사용후핵연료 및 방사성 폐기물 처리 공정에 적용을 위한 실제적인 접근으로 우라늄 및 여타 금속 원소들을 포함하고 있는 다성분 계에서 추출 성능과 전기화학 거동이 이온성 액체를 이용한 공정 개발을 위해서 필요

한 것으로 판단된다. 이에 더불어 핵확산 저항성 측면에서 Pu이 어떻게 독자적으로 분리되지 않을지에 대한 과학적, 기술적 연구 또한 병행되어야 할 것으로 보인다.

5. 참고문헌

- [1] K. A. Venkatesan et al., J. Nucl. Radiochem. Sci., 10, R1-R6, 2009.
- [2] S. H. Ha et al., Korean J. Chem. Eng., 27, pp. 1360-1365, 2010.
- [3] P.R. Vasudeva Rao et al., Sep. Sci. Technol., 47, pp. 204-222, 2012.
- [4] A. E. Visser et al., Sep. Sci. Technol., 36, pp. 785-804, 2001.
- [5] A. E. Visser et al., Chem. Commun., Issue 1, pp. 135-136, 2001.
- [6] M. Galiński et al., Electrochim. Acta, 51, pp. 5567-5580, 2001.
- [7] P. Giridhar et al., J. Radioanal. Nucl. Chem., 265, pp. 31-38, 2005.
- [8] P. Giridhar et al., J. Nucl. Radiochem. Sci, 5, pp. 21-26, 2004.

TBP 회석제를 위한 소수성 이온성 액체 밀도

박병홍*, 김청

한국교통대학교, 충청북도 충주시 대학로 50

*b.h.park@ut.ac.kr

1. 서론

상업적으로 운전되는 PUREX 공정은 시행하는 국가들에서 각각 다소 변형된 형태로 활용되나 일반적으로는 Fig. 1과 같은 1차 정제 사이클로부터 시작한다. 우라늄과 플루토늄은 사용후핵연료를 용해시킨 질산 용액으로부터 n-dodecane (n-DD) 또는 등유(kerosene)와 같은 불활성 지방족 회석제에 의해 용해된 30%(v/v) (약 1.1 M) 농도의 tri-butyl phosphate(TBP) 유기상으로 Pu^{+4} 와 UO_2^{+2} 형태로 추출된다¹⁾. 첫 추출 공정에서 대부분의 분열생성물들은 수용액상에 잔류하게 되고 유기상의 Pu^{+4} 는 NH_2OH 에 의해 Pu^{+3} 로 환원되어 6 M 질산 수용액으로 역추출 된다. 유기상에 잔존하게 된 우라늄은 회석 질산에 의해 역추출 되어 회수된다.

PUREX는 추출 공정의 특성상 다량의 회석제가 사용되며 유기 용매를 회석제로 사용함에 따라 다량 발생하는 폐기물에서 환경 오염과 경제성 저하 등의 문제가 발생된다. 이러한 이유로 최근 회수 가능한 대안 회석제의 개발이 시도되고 있다. 이온성 액체는 비휘발성이며 비연소성 물질로 이러한 조건에 부합하며 전기화학적 특성을 이용하면 회수 가능한 용매로 주목을 받고 있다²⁻³⁾. 이온성 액체가 추출 공정에 사용되기 위해서는 질산 수용액상과 혼합되지 않는 소수성 성질을 지녀야 한다. 따라서 본 연구에서는 소수성 이온성 액체를 대상으로 액-액 상분리 특성 파악을 위해 필요한 물성인 밀도를 측정하였다.

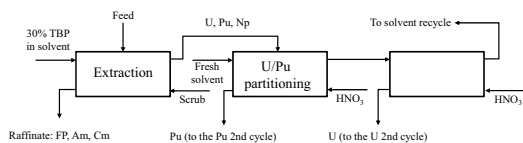
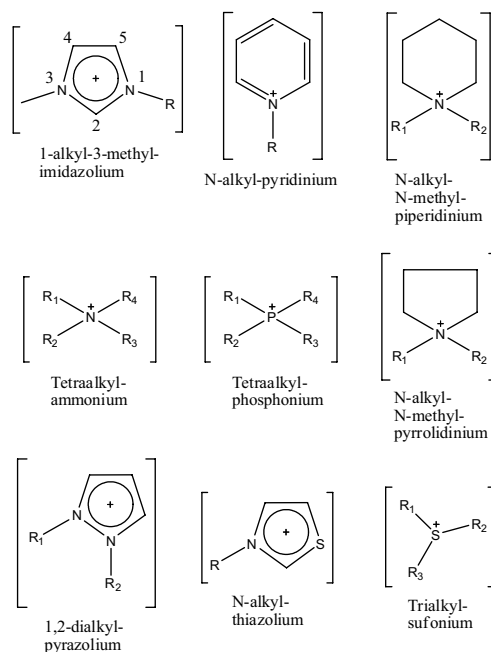


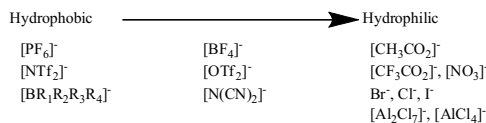
Fig. 1. First purification cycle in PUREX.

2. 소수성 이온성 액체

이온성 액체(IL, Ionic Liquid)는 양이온과 음이온으로 구성된 상온 액체 유기염을 일컫는 용어로 사용되며 양이온-음이온 조합으로 다양한 성질을 구현할 수 있게 된다. 추출 공정에 활용되기 위해서는 수용액에 존재하는 금속이온을 추출한 후 액-액 상분리를 유발시켜야하므로 이온성 액체는 소수성을 지녀야 한다. 이러한 소수성 환경은 이온성 액체의 음이온에 의해 만들어지며 $[\text{PF}_6]^-$, $[\text{NTf}_2]^-$ 등이 음이온으로 사용된다. (Fig. 2 참조)



(a) Cations; R = alkyl group



(b) Anions

Fig. 2. Some cations and anions for ILs.

3. 밀도 측정 및 결과

다양한 이온성 액체에 대한 밀도 자료는 문헌에 나와 있으나 조합 가능한 이온성 액체의 수가 무수히 많기 때문에 아직도 측정해야 할 종류가 많이 있다. 최근, 이온성 액체에 대한 밀도 측정법에 대해서는 Mantz와 Trulove가 잘 정리하였다⁴⁾. 본 연구에서는 U-shape vibrating-tube 밀도계를 사용하여 온도를 증가시키며 밀도 변화를 측정하였으며 주요 결과는 Fig. 3과 같다. 그림에서 보인 것과 같이 온도에 따라 밀도는 감소하였으며 물에 비해 큰 밀도를 나타내므로 액-액 상분리시 하층을 형성할 것으로 예상되었다. 밀도 측면에서는 [Bmin][NTf₂]가 수용액상과 가장 좋은 분리 성능을 나타낼 것으로 측정되었다.

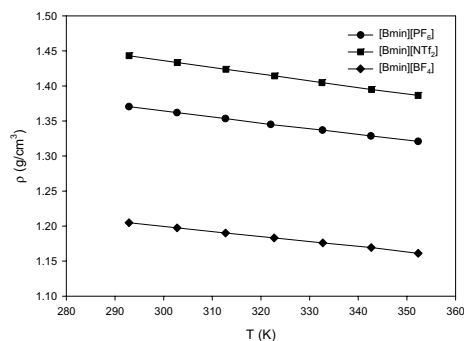


Fig. 3. Density of some hydrophobic ILs.

4. 결론

본 연구에서는 액-액 추출의 희석제로 사용될 수 있는 이온성 액체의 밀도를 측정하였다. 수용액상과의 분리를 고려하여 소수성 이온성 액체들을 대상으로 하였으며 수용액상과 분리되었을 때 하층을 형성할 것으로 예상되었다. 본 연구의 결과와 함께 TBP에 대한 용해도, 점도 등이 측정된다면 이온성 액체의 활용가능성을 판단할 수 있는 물성 자료를 확보할 수 있을 것으로 기대된다.

5. 참고문헌

[1] G. R. Choppin, M.K. Khankhasayev, and H.S. Plendl, Eds., Chemical Separations in Nuclear Waste Management: The State of the Art and a Look to the Future, Battelle Press, 2002.

[2] K. A. Venkatesan et al., J. Nucl. Radiochem. Sci., 10, R1-R6, 2009.
 [3] P. R. Vasudeva Rao et al., Sep. Sci. Technol., 47, pp. 204-222, 2012.
 [4] R. A. Mantz and P. C. Trulove, in Ionic Liquids in Synthesis, P. Wasserscheid and T. Welton Eds., Wiley-VCH, 2003.

소체적 연료의 봉내압 측정시험에 대한 평가

이형권*, 김도식, 전용범, 서형석, 권형문, 장정남, 김성근, 김대호

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*nhklee1@kaeri.re.kr

1. 서론

소체적 연료봉에 대한 봉내압 및 공간체적측정시험을 가압 경수로형 핵연료시험장치에서 수행하였다. 조사후연료시험시설에서 사용 중인 연료봉의 내압 및 공간체적측정 시험장치는 가압 경수로형 사용후 핵연료만을 대상으로 시험할 수 있는 전용장치이다. 그러므로 이제까지는 가압경수로형 연료에 비해 연료봉의 공간체적이 아주 적거나 봉내압이 낮은 실험연료봉들은 시험을 수행할 수 없었다. 그 이유는 가압경수로형 연료봉과 실험연료봉의 기체량 차이가 매우 크기 때문이다. 그러므로 기존장치에서 실험연료봉의 기체압력을 측정할 수 없었다. 그러나 수년전부터 소체적 연료봉에 대한 시험이 필요하게 되었다. 이와 관련하여 조사후연료시험시설에서는 소체적을 갖는 실험연료봉에 대한 봉내압 및 공간체적 측정방안을 수립하고 일차적으로 성능시험을 수행하였다.^[1] 그 결과 가압 경수로형 연료봉시험장치에서도 소체적을 갖는 실험연료봉의 시험이 가능하다는 것을 확인하였다.

일차적으로 수행한 성능시험결과, 봉내압의 측정오차는 1 ~ 24.3 %이며, 공간체적의 측정오차는 0.2 ~ 8 %로 나타났다. 성능시험결과에서 충전압력이 다소 낮은 300 kPa의 연료봉에서 측정오차가 크게 나타난 반면 400 ~ 500 kPa의 압력으로 충전된 연료봉들은 측정오차기 0.9 ~ 2.6 %로 아주 양호하게 나타났다. 또한, 공간체적의 측정오차도 0.2 ~ 8 %로 양호하게 나타났다. 성능시험결과에서 확인되었듯이 가압 경수로형 연료봉시험장치에서도¹ 연료봉의 압력이 낮고 공간체적이 작은 실험연료봉들에 대한 시험의 가능성을 확인하였다.^[2]

실험의 가능성을 확인함에 따라 충전압력이 다소 낮은 300 kPa의 연료봉에 대한 추가 성능시험을 수행함과 동시에 하나로에서 조사된 실험연료봉들을 대상으로 시험을 수행하여 그 결과를 평가함으로써 가압경수로형 연료시험장치에서도 소체적을 갖는 실험연료봉들의 정밀시험을 수행할

수 있다는 사실을 확인하였다..

2. 본론

2.1 표준봉 제작

소체적 연료의 성능시험을 수행하기 위하여서는 시험값과 비교하고 기준이 될 수 있는 표준봉을 제작하였다.

표준봉을 제작하는 방법은 소체적 연료봉을 제작한 다음 우리가 미리 알고 있는 표준가스를 표준연료봉에 충전하는 것이다.

성능시험용 표준봉의 제작사양은 기존에 수행했던 성능시험에서 양호하지 못한 결과가 나타났던 연료봉을 대상으로 하였다. 표준연료봉의 사양은 공간체적이 약 6 cm³, 충전압력은 약 300 kPa 이다. 그리고 충전된 Kr과 Xe가스의 농도는 각각 5% 이다.

2.2 시험 방법

소체적 실험연료봉을 가압 경수로형 연료봉 내압측정 시험장치에서 시험을 수행하기 위해서는 가압경수로 핵연료의 기체량과 비슷한 양이 되도록 시험장치의 천공용기에 일정량의 기체를 미리 충전해야 한다. 즉, 실험연료봉을 천공하였을 때 천공용기내부에 팽창되어 있는 기체량이 가압경수로형 핵연료의 기체량과 유사하게 시험조건을 조성하는 것이다. 이러한 과정을 수행함으로써 가압 경수로형 연료봉과 동일한 시험조건을 조성하는 것이다. 그 다음에는 기존의 실험방법과 동일한 방법으로 시험을 진행한다.

2.3 성능 및 실증시험

소체적 실험연료봉에 대한 성능시험평가를 수행하기 위하여 총 3개의 표준봉을 시험하였다.

제작한 표준봉은 공간체적이 약 6 cm³이고, 충전압력은 약 300 kPa 이다. 그리고 표준봉에 충전된 가스는 Kr과 Xe이 각각 5%인 농도를 갖는다.

Table 1. Results of puncturing test for dummy rods

No.	Calculated	Measured	Error (%)	Inserted	Measured	Error (%)	Kr (%)	Xe (%)
	Void volume (cm ³)	Void volume (cm ³)		gas pressure (kPa)	gas pressure (kPa)			
1	5.97	6.02	0.8	301.8	295.6	-2.1	6.1	13.5
2	6.01	5.79	-3.7	303.7	302.8	-0.3	10.3	16.8
3	5.93	5.75	-3.0	298.3	299.5	0.4	5.9	5.8

Table 1의 시험결과에서 나타났듯이 표준봉에 대한 봉내압의 측정오차는 0.3 ~ 3.7 %, 공간체적의 측정오차는 0.4 ~ 2.1 %로 나타났다. 그리고 포집한 표준가스의 기체성분을 분석한 결과 Kr은 5.9 ~ 10.3 %, Xe은 5.8 ~ 16.8 %의 측정오차를 나타냈다.

소체적 표준봉을 이용한 성능시험결과에서 확인되었듯이 가압 경수로형 연료시험장치에서도 소체적 연료봉에 대한 실험이 가능하게 됨에 따라 하나로에서 조사된 실험연료봉에 시험을 수행하였다. 그 결과는 Table 2에 나타 내었으며, 봉내압측정결과는 비교대상이 아니므로 Table에 나타 내지 않았다. 시험대상 연료봉은 총 6개로 공간체적에 대한 측정오차는 0.2 ~ 7.9 %로 나타났다.

Table 2. Results of puncturing test for irradiated experimental fuel rods

No.	Calculated Void volume (cm ³)	Measured Void volume (cm ³)	Error (%)	Remark
1	4.56	4.57	0.2	
2	4.56	4.59	0.7	
3	4.56	4.2	-7.9	
4	4.56	4.59	0.7	
5	4.56	4.55	-0.2	
6	4.56	4.68	2.6	

2.4 결과 및 고찰

가압경수로형 핵연료봉 내압 및 공간체적측정 시험장치를 이용하여 소체적 연료봉에 대한 성능 시험을 수행하였다. 그리고 성능시험결과를 평가한 결론은 기존 가압경수로형 연료봉시험장비에서도 소체적을 갖는 연료봉들에 대한 시험이 가능하다는 것을 확인하였다.

일반적으로 편치형태의 시험장치는 측정정밀도가 ± 10 % 정도이다. 그러나 금번 성능시험에서

는 최대 오차값이 3.7 % 이내로 매우 양호하게 나타났다. 비록 충전압력이 작은 연료봉에 한정되고, 3개의 연료봉만을 대상으로 평가한다는 것은 데이터수가 부족할 수도 있지만 지난번에 수행했던 성능시험결과와 연계하여 평가한다면 성능시험에 대한 평가는 적절하다고 판단된다. 그리고 하나로에서 조사된 실제 실험연료봉을 대상으로 시험한 결과에서도 6개의 시험연료봉 중 5개의 연료봉의 시험결과는 매우 양호한 것으로 나타났다.

따라서 앞으로는 가압경수로형 연료의 시험장치에서도 소체적을 갖는 실험연료봉에 대한 시험이 가능하다는 것을 확인하였다.

3. 결론

사용후 핵연료봉 내압 및 공간체적측정시험에서 가압 경수로형 연료봉만을 시험하는 전용시험장치에서도 소체적을 갖는 실험연료봉들에 대한 시험을 수행할 수 있다는 것을 성능시험과 실증시험을 수행하여 확인하였다. 표준봉을 이용한 성능 시험에서 봉내압에 대한 측정오차는 0.3 ~ 3.7 %, 공간체적의 측정오차는 0.4 ~ 2.1 %로 나타났다. 그리고 실제 하나로에서 조사된 실험연료봉을 대상으로 시험을 수행한 측정된 오차도 0.2 ~ 7.9 %로 나타났다. 따라서 앞으로는 조사후연료시험 시설에서도 소체적을 갖는 실험연료봉에 대한 내압 및 공간체적측정시험도 원활히 수행할 수 있다.

4. 참고문헌

- [1] 이형권 외, 실험연료봉 내압측정시험 최적시험방법 수립”, 한국방사성폐기물학회 2012 추계학술 발표회 논문요약집, pp. 157-158, 2012.
- [2] 이형권 외, 실험연료봉 내압 및 공간체적 시험 평가”, 한국방사성폐기물학회 2013 춘계학술발표회 논문요약집, pp. 79-80, 2013.

경수로용 사용후핵연료 지지격자 덤플 및 스프링 마모 관찰용 시스템 구축

주용선*, 김길수, 김도식, 백승제, 유병옥, 진영관, 김기하, 박대규, 홍권표, 안상복, 전용범
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*yschoo@kaeri.re.kr

1. 서론

연소 중에 중성자 조사와 냉각수의 고속 흐름으로 인해 핵연료 집합체의 구조체인 지지격자와 핵연료 봉과의 사이에 접촉으로 인한 마모 현상 및 변형이 발생한다. 이러한 발생은 핵연료 집합체의 수명에 절대적으로 나쁜 영향을 주기 때문에 셀(cell)의 크기 변화량, 스프링(spring) 피치 및 덤플(dimple) 피치의 변형 관찰 및 크기측정이 절실하게 요구된다. [1]

본 논문에서는 연소기간 동안 지지격자의 스프링 및 덤플들이 연료봉과 접촉하고 있는 면들의 마모 정도를 촬영하기 위해 조사제시험시설(IMEF)의 M5a 핫셀 내부에 설치되어 있는 3차원 제원측정장치의 기능을 보완하였고, 이를 기술하였다.

2. 본론

2.1 3-D 측정장치 개요[1] 및 스프링/덤플 마모 정도 관찰용 카메라 및 보어스코프 설치

3-D 측정장치는 Fig. 1과 같이 측정부, 콘트롤러(controller) 및 PC로 구성되어 있다.

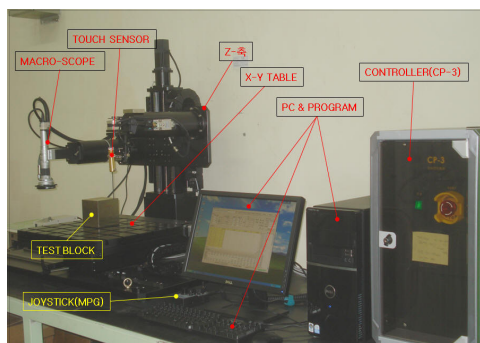


Fig. 1. 3-D measurement system for measuring the cell sizes, springs and dimples of PWR's spent fuel grid.

당초 측정부에는 테이블, 카메라와 접촉식 센서(touch sensor)를 구축하고, 지지격자의 크기를 고려하여 3차원 측정장치의 테이블 크기를 300 mmW x 300 mmD 로 하였고, X-축 및 Y-축 방

향으로 각각 최대 ± 200 mm까지 구동하며, 매크로스코프와 접촉식 센서를 Z-축 상하방향으로 최대 250mm까지 구동하며, 특히 측정 대상물의 내부를 측정하기 위해 접촉식 센서를 360도 회전(U-방향)할 수 있도록 하였다.

3축별 불확도를 작게 하고 정확도를 높이기 위해 스텝 모터(step motor)를 적용하였고, 리미트 스위치(limit switch)는 광센서(photo sensor)를 활용하였다. 측정부의 테이블 상면에는 다양한 종류의 시편을 장착할 수 있도록 홈(groove)을 40mm 간격으로 가공하였으며, 구동부는 선형레일(linear scale)을 적용하였다. 그리고 PC 프로그램에 의한 콘트롤러의 이동량과 구동부의 이동량을 상호 비교 및 확인하기 위해 좌표시스템 장치(coordinator)를 적용하였다.

지지격자의 스프링 및 덤플의 위치는 지지격자의 형태에 따라 다르지만 최대 60 mm 하단에 위치하고 있고, 셀의 단면크기는 10×10 mm 이하이다. 이를 고려하여 보어스코프의 삽입부 직경을 9 mm로 하였고, 기존에 설치되어 있었던 접촉식 센서를 제거한 후 내부관찰용 보어스코프 및 보어스코프의 삽입부와 셀과의 간섭(interface)을 시각적으로 확보하기 위한 CCTV를 Fig. 2와 같이 설치하였다.

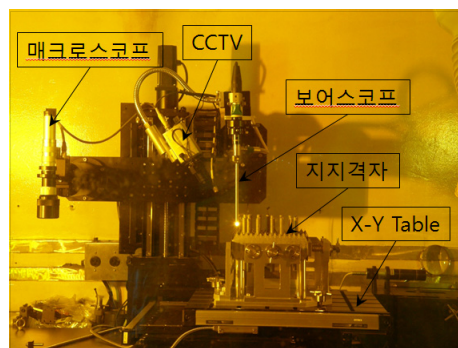


Fig. 2. Modification and installation of the bore-scope and CCTV to observe the surfaces of the springs and dimples.

2.2 보어스코프 및 CCTV 설치 후 성능시험

조사재시험시설 M5a 핫셀 내부에 설치 및 운영하고 있는 3-D 제원측정장치에 간섭 발생 유무 확인용 CCTV 및 보어스코프를 설치 후 성능시험을 각각 수행하였으며, 그의 결과를 Fig. 3 및 Fig. 4에 각각 나타내었다. 특히 보어스코프와 지지격자 간의 간섭 발생을 최소화하기 위해 보어스코프의 직각도를 90 ± 1 도로 설정하였다.

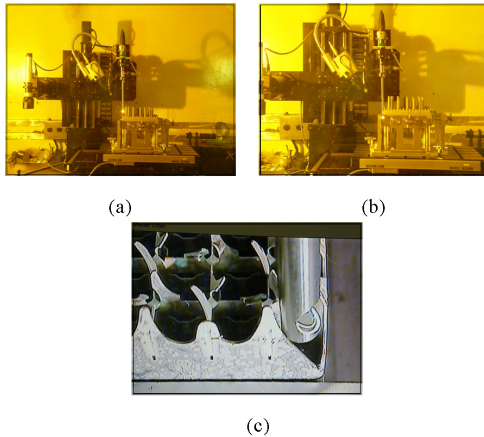


Fig. 3. Performance test of CCTV for observing the interference between the grid and bore-scope. (a) Photo of before inserting the bore-scope to the grid, (b) Photo of after inserting the bore-scope to grid, (c) Photo getting from the CCTV to observe the interference.

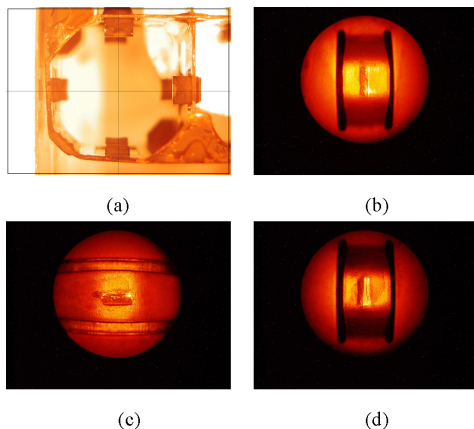


Fig. 4. Performance test of the bore-scope, (a) Photo of cell of the grid having springs and dimples, (b) Photo of the dimple surface at top position, (c) Photo of the spring surface at middle position, (d) Photo of the dimple surface at bottom position.

3. 결론

조사재시험시설의 M5a 핫셀 내부에 설치한 3-D 제원측정장치를 활용해 보어스코프 및 CCTV를 설치 후 Fig. 3 및 4의 성능시험 결과 물체를 식별할 수 있는 고화질의 이미지(image)를 획득하였다.

따라서 이를 통하여 고방사능을 지니고 있는 경수로용 핵연료 집합체 지지격자의 셀 내부에 장착된 스프링 및 덤플의 마모 정도를 확인하는 기술을 구축하였다.

본 시험을 통해 획득하는 시험결과는 지지격자의 셀 스프링 및 덤플과 핵연료봉의 마모 정도를 확인할 수 있을 뿐만 아니라, 핵연료 설계에도 중성자 조사 등에 의한 변형을 반영할 수 있을 것으로 판단한다.

4. 감사의 글

이 연구는 지식경제부의 지원을 받아 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] 2011 한국방사성폐기물학회 춘계학술대회 논문집, pp. 203-204, 2011.

사용후핵연료 건전성 평가를 위한 손상 기준 정립 방안

김소영^{1*}, 김정구¹, 이성기¹, 임채준¹, 김진경², 이상진²

¹한전원자력연료(주), 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 242

²한국원자력환경공단, 경상북도 경주시 북성로 89

*soyoungkim@knfc.co.kr

1. 서론

핵연료는 원자로 내 연소 시 여러 복잡한 환경을 겪음으로 인해 열화가 일어나며, 그로인해 연소되고 나온 사용후핵연료는 진동, 온도 및 압력 변화 등 외부 환경에 의해 상대적으로 쉽게 손상될 수 있는 취약한 상태가 된다. 미국 인허가 요건(10CFR71 및 72)[1]에 의하면 사용후핵연료 중간 저장 시, 사용후핵연료는 저장 후 회수성이 반드시 보장되어야 하며, 중간저장 전/중/후 반드시 수행하게 되는 운반/취급의 경우, 정상운전조건에서 사용후핵연료 건전성이 반드시 보장되어야 한다. 사용후핵연료는 운반/취급 환경에서 가장 위험한 상황에 노출되므로 수십 년 동안 장기저장 후 열화 된 사용후핵연료 특성을 고려한 운반시의 건전성 평가가 보수적 관점에서 수행되고 있다. 그 중 사용후핵연료의 손상 기준 정립은 사용후핵연료 안전 여유도를 평가할 수 있는 핵심 요소 기술 중 하나로서, 필수적으로 구축되어야 한다. 본 논문에서는 사용후핵연료 손상에 관한 해외 자료 분석 후 벤치마킹을 통한 손상 기준 정립 및 거동 예측 방안을 논의 하였다.

2. 본론

2.1 해외 기관 평가 수행 체계 분석

미 EPRI, 국립연구소(SANDIA 등), NRC, 프랑스 AREVA 등 다양한 기관에서 사용후핵연료 건전성 평가 기술 개발을 진행 중에 있다. 고연소도 사용후핵연료 건전성 평가 시 고려해야 할 중요항목 중 피복관 내 반경방향 수소화물은 동적 하중 조건에 영향을 미치며, 수소화물 생성은 사용후핵연료 피복관의 취성을 증가시킨다. EPRI의 경우[2], 고연소도 사용후핵연료 피복관 내 수소화물에 따른 해석적 손상 평가 및 기준을 임계 변형 에너지 밀도(Critical Strain Energy Density, CSED)의 개념을 이용하여 개발하였다. 임계 변형 에너지 밀도란, 하중으로 인한 피복관

파손시점에 피복관이 단위 면적당 흡수한 에너지로 해당 피복관의 응력-변형률 선도를 적분한 값이며, 이 값이 피복관 손상 기준이 된다. 사용후핵연료 피복관 조건에서 파괴인성 등의 다른 손상 기준은 편차가 클 뿐 아니라 값 도출의 어려움이 있으므로 CSED 개념을 사용하여 손상 기준을 도출하였다.

2.2 사용후핵연료 손상 기준 정립 방안

EPRI 손상 평가 및 기준 개발 결과를 벤치마킹하여 국내 사용후핵연료 손상 기준 정립 방안을 제시하였다.

2.2.1 해외 기술 자료 도입 [3]

사용후핵연료 손상 기준 정립 기반을 위해 사용후핵연료의 특성 파악을 하는 것은 중요하며, 많은 사용후핵연료의 PSE, PIE를 통해 신뢰성 있는 데이터를 얻을 수 있다. 하지만 사용후핵연료의 특성 시험을 하는 것은 시간 및 비용 소요, 국내 사정 등에 의해 어려움이 있다. 따라서 이에 대한 방안으로 해외 사용후핵연료 DB를 도입하여야 한다. 해외 기술 자료 도입 범위는 사용후핵연료 시험 과정 및 일부 시험 결과(물성치 DB), 평가 방법 제시 과정 등이다. 하지만 이 자료들은 국내 사용후핵연료를 대상으로 수행한 시험이 아니며 사용후핵연료 시험 환경 및 자료 생산 가능 범위가 상이하다는 도입의 한계가 있으므로 해외 DB 유효성 확인, 국내 사용후핵연료 부분 시험을 통한 해외 DB 적용성 검증 및 보완 시험이 필요 하다.

2.2.2 손상 기준 기반 시험

해외 사용후핵연료 DB 도입 외에도 사용후핵연료를 모사한 피복관을 이용하여 일부 시험을 대체해야 할 수 있다. 단, 모사 피복관 실험 데이터는 실제 사용후핵연료의 데이터와 비교/분석하여 타당성 및 적용가능성을 확인하여야 한다.

피복관 산화막 형성 및 수소화 침투 등 여러 변수에 대한 시험을 통해 사용후핵연료를 모사할 수 있으며, 모사된 피복관을 이용하여 인장/압축/

과열/급열 등의 특성 시험을 수행하여 응력-변형률 선도를 구할 수 있으며, 이는 손상 기준을 위한 기반 데이터로 사용된다.

2.2.3 시험 데이터 분석

피복관 특성시험 데이터를 이용하여 응력-변형률 선도를 생산한 뒤, 선도를 적분하여 임계 변형 에너지 밀도를 계산함으로써 피복관 손상 기준 (CSED 값)을 정립한다. CSED 값을 전산모사 (FEM) 등을 통해 얻은 피복관의 변형 에너지 밀도 (Strain Energy Density, SED) 값과 비교함으로써 피복관의 손상 평가를 할 수 있다.[4] 본 방법을 기반으로, 피복관 내 수소화물(원주, 반경 방향 모두 포함)의 양, 온도, 봉내압 등 다양한 변수를 변화시킨 시편에 대한 각 특성 데이터를 얻어 각 변수에 따른 CSED를 그래프화 한 뒤, 회귀분석을 통해 CSED 산출식을 도출할 수 있다. CSED 그래프 분포 분석을 통한 추정으로 확률 분포를 구한 뒤 확률밀도함수(Probability Density Function, PDF) 또는 누적분포함수(Cumulative Distribution Function, CDF) 등의 통계적 처리 절차를 통해 손상 확률을 계산할 수 있다. CSED 계산 시, 사용후핵연료 특성상 많은 통계 변수와 연계되어 있으므로 통계 처리가 불가피 하다. 상기의 과정을 통한 피복관의 손상 예측 시, 전산모사로 구한 사용후핵연료 피복관 SED 값을 CSED와 비교한 뒤 SED 값이 CSED 값보다 같거나 클 경우 피복관 파손으로 간주할 수 있으며, PDF 또는 CDF 값을 이용 하여 손상 확률을 평가할 수 있다.

2.3 추진체계

사용후핵연료 건전성 평가를 위한 손상 기준 정립을 위한 추진체계를 그림 1과 같이 제시하였다.

3. 결론

사용후핵연료의 손상 기준 정립은 사용후핵연료 안전 여유도를 평가할 수 있는 핵심 요소 기술 중 하나로서 필수적으로 구축되어야 한다. 따라서 이에 대해 연구한 EPRI 보고서를 벤치마킹하여, CSED 개념을 적용한 국내 사용후핵연료 손상 기준 정립 방안을 제시하였다. 국내 사용후핵연료 특성 시험의 한계로 인하여 신뢰성 있는 데이터 구축이 어려움으로 해외 사용후핵연료 DB 도입

및 사용후핵연료를 모사한 피복관을 이용한 손상 기준 기반 시험을 수행하여야 하며, 해외 DB 및 시험 데이터 분석을 통해 CSED 값을 도출함으로써 손상 기준을 정립하여 사용후핵연료의 손상 평가를 할 수 있다.

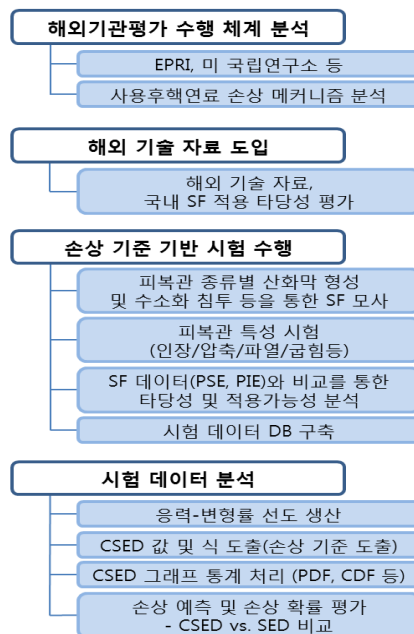


Fig. 1. Scheme for damage criteria and prediction measure of spent fuel(SF).

4. 참고문헌

- [1] NRC, 10CFR71/72, "Packaging and Transportation of Radioactive Material/ Licensing Requirements for the Independent Storage of Spent Nuclear Fuel, High-Level Radioactive Waste, and Reactor", 2013.
- [2] EPRI, Failure Criteria for Zircaloy Cladding Using a Damage-based Metal/Hydride Mixture Model, 1009693, 2004.
- [3] 한국원자력환경공단, 지식관리시스템 설계를 위한 사용후핵연료 특성 평가체계 구축, KORAD/TR/2013-22, 2005.
- [4] EPRI, Application of Critical Strain Energy Density to Predicting High-Burnup Fuel Rod Failure, 1011816, 2005.

PRIDE 전해정련 공정장치 salt test

진형주, 강현우, 황성찬, 박성빈*

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

jinyoungju@kaeri.re.kr

1. 서론

건식 전해정련 공정은 금속 우라늄을 분리 및 처리 용량 증대 및 효율 향상과 관련된 LiCl-KCl 내에서 우라늄의 전기화학 거동에 의한 전해질로 전기분해 증대방법을 위해 많은 연구자들에 의해 수행되고 있다.[1-3] 사용 후 핵연료로부터 순수한 우라늄을 회수하기 위한 방법으로 우라늄의 전해정련의 LiCl-KCl 용융염은 대략 352°C에서 용해되기 시작하고 그 이상의 온도에서만 전하의 이동이 원활하여지므로 전기화학적 반응을 수행할 수 있다. 본 연구에서는 전기화학 거동에 필요한 전해질 충전을 위해 조건에 맞는 염탈수 장치를 이용하였으며, 장치의 글러브박스 안에서 제조된 전해질의 탈수과정을 거친 염은 PRIDE(PyRoprocessing Integrated Inactive DEMonstration facility) 내에 MSM(Master Slave Mainpulator)과 셀크레인을 이용하여 원격으로 LiCl-KCl을 장입을 실시하여 진행 상황을 자세하게 관찰하였다.

2. 실험방법

염 탈수 장치에서 LiCl-KCl(41-59mol%) 탈수를 거친 탈수염은 Fig. 1에서 와 같이 글러브박스 안에서 탈수과정을 걸쳐 탈수염 바스켓으로 옮겨진다.



Fig. 1. salt dehydration process.

옮겨진 탈수염은 LTL을 이용하여 셀내부로 옮겨진다. 셀내부로 옮겨지며, 셀내부에서의 옮겨진 후 MSM과 크레인으로 탈수염바스켓을 이동시키는 Fig. 2에서 보여주고 있다. 바스켓한통에 염의 장입량은 약 30~35kg임을 확인하였으며, 총 200kg을 넣기 위해 동일한 작업을 반복하여 장입하는데 성공하였다.

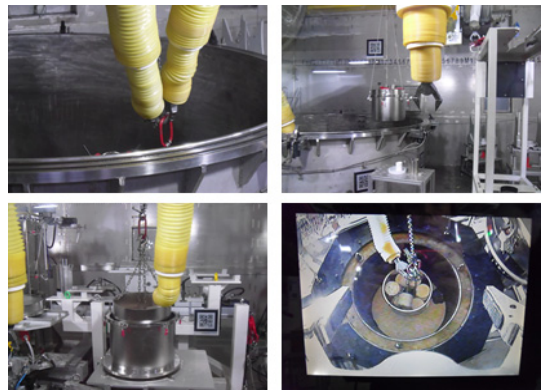


Fig. 2. salt charging process.

3. 결론

본 연구에서는 MSM과 크레인의 장치적인 결합과 염장입시 문제되는 상황을 체크하였다. MSM과 크레인을 이용한 원격작업의 결과 별무리 없이 염장입에는 문제가 없는 것을 확인하였으며, 추후의 100kg을 더 넣을 계획이다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부에서 주관하는 원자력 연구개발사업의 일환으로 수행하였습니다.

5. 참고문헌

- [1] 강영호, 양역석, 황성찬, 이흥기, Applied Chemistry, Vol.2, No.1, pp. 508-511, 1998.

- [2] J.L. Willit, W.E. Miller, J.E. Battles, Journal of Nuclear Materials, Vol.195, pp.229-249, 1992.
- [3] T.C. Totemeier, R.D. Mariani, Journal of Nuclear Materials, Vol.250, pp.131-146, 1997.

파이로 시설 원격취급시스템

김기호*, 김성현, 박병석, 이종광, 류동석, 유승남, 한종희, 조일제

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*khkim5@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에는 파이로 기술개발을 위한 PRIDE (PyRoprocessing Integrated inactive DEmonstration facility), DFDF(DUPIC Fuel Demonstration Facility), 그리고 ACPF(Advanced spent fuel Conditioning Process Facility) 등의 세 개 시설이 있다. PRIDE는 감손우라늄 또는 사용후핵연료 대용물질(surrogate)을 사용하여 공학 규모 파이로 일관공정을 시험 할 수 있는 시설이다. 현재 국내에서 유일하게 사용후핵연료를 취급할 수 있는 DFDF 시설에서는 사용후핵연료를 가공하여 파이로 전해환공정에 사용될 원료물질을 제조한다. ACPF는 DFDF에서 제조된 원료물질을 이용하여 파이로 전해환원공정을 시험하는 시설로, 현재 사용후핵연료를 취급할 수 있는 시설로 사용하기 위해 진행 중에 있다.

PRIDE, DFDF, ACPF 시설들은 가동 중 셀 안쪽으로 작업자의 접근이 불가능하기 때문에 셀 안쪽에서 수행되는 공정장치의 운전 및 유지보수 등 모든 작업은 원격조작기, 원격서보조작기, 크레인 등과 같은 원격취급시스템을 사용하여 원격으로 수행된다.

본 논문에서는 PRIDE, DFDF, ACPF 시설에 설치되어 운용중인 원격취급시스템에 대해 기술한다.

2. 본론

2.1 PRIDE 원격취급시스템

PRIDE 시설(Fig. 1)은 3층 구조물로 공기분위기 셀(1층)과 아르곤셀(2층과 3층)로 구성되어 있다. 아르곤셀의 내부크기(Fig. 2)는 길이 40.3 m, 폭 4.8 m, 높이 6.43 m 이며, 벽과 바닥은 각각 6 mm 와 10 mm 스테인리스 스틸로 구축되어있다. 아르곤셀 전면과 후면에는 각각 17개와 3개의 시각창이 설치되어 있어 셀 안쪽의 작업 상황을 감시 또는 모니터링 할 수 있다.

아르곤셀에는 파이로 공정장치의 원격작업을 위

해 원격조작기(Master-slave manipulator, MSM), 원격서보조작기(remote servomanipulator), 크레인 등이 설치되어 있다. 원격조작기는 셀 전면부 각 시각창의 상부 좌/우측에 1식 씩, 총 34식이 설치되어있다(Fig. 2). 설치된 원격조작기(독일 HWM사의 모델 A110)는 기계식으로 슬레이브 암, 쓰류튜브, 마스터 암 등 세 개의 모듈로 구성된 분리, 기밀형이다. 분리형 모듈로 구성된 원격조작기는 슬레이브 암(셀 안쪽에 설치되어 있음)의 고장 시, 셀의 기밀을 유지하면서 슬레이브 암의 원격 교체가 용이하다. 슬레이브 암의 유효 취급하중은 작업영역 내 임의의 위치에서 15 kg 이며, 최대 25 kg(짧은 시간, 짧은 거리 작업시)을 취급할 수 있다. 천장에는 천장 호이스트 크레인(3 톤)과 블리스터(blisters)가 설치되어 있으며, 크레인 레일 하부에는 원격서보조작기가 설치되어 있다. 원격서보조작기는 셀 바깥쪽에 설치된 양팔 마스터 암과 셀 안쪽에 설치된 천장 이동장치 그리고 천장이동장치의 텔레스코픽 튜브 끝단에 부착된 양팔 슬레이브 암으로 구성된다(Fig. 3). 원격서보조작기는 전동식으로 힘반영 기능을 갖고, 한팔 슬레이브 암은 25 kg을 취급할 수 있다. 아르곤셀에서 원격조작기와 원격서보작기의 협업은 공정장치에 대한 원격 작업성을 크게 향상시킨다.



Fig. 1. Constructed PRIDE.



Fig. 2. MSMs installed in the argon cell of PRIDE.

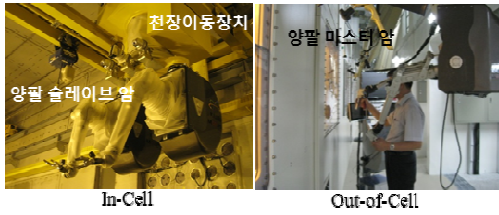


Fig. 3. Remote servomanipulator installed in the argon cell of PRIDE.

2.2 DFDF 원격취급시스템

공기분위기 핫셀인 DFDF(조사재시험시설 1층 M6 핫셀)는 길이 20 m, 폭 2 m, 높이 4 m 이며, 벽과 바닥은 고하중 콘크리트로 구축되어 있다. 핫셀 상부에는 공정장치의 반출입을 위한 스테인리스 스틸 격리실(길이 6 m, 폭 2.6 m, 높이 2.6 m)이 구축되어 있다.(Fig. 4) DFDF 핫셀은 셀 전면부에 10개의 차폐창이 설치되어 있다. 각 차폐창 상부 좌/우에 취급하중이 8kg인 원격조작기(미국 CRL사 모델 L-HD)가 1식씩 장착되어, 총 20식이 설치되어 있다. 설치된 원격조작기 모델 L-HD는 원래 분리형이나 DFDF 핫셀 용도에 적합하게 마스터 암/쓰류튜브/슬레이브암이 금속 테입과 금속 케이블에 의해 폐로로 결합된 일체형이다. 셀 안쪽 천장에는 천장 호이스트 크레인(1 톤)이 설치되어 원격조작기와 함께 협업하여 셀 내 원격 작업을 수행한다.

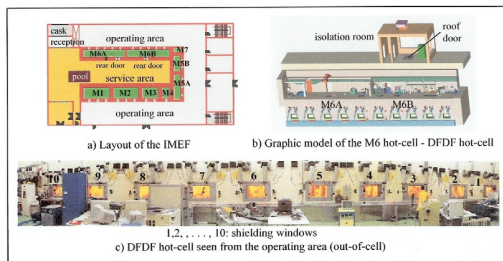


Fig. 4. DFDF hot-cell and installed MSMs.

2.3 ACPF 원격취급시스템

ACPF는 공기분위기 핫셀(조사재시험시설 지하 1층 M8 핫셀, 길이 10.3 m, 폭 2 m, 높이 4.3 m)로, 벽과 바닥은 콘크리트로 구축되어 있다. 핫셀 전면에는 총 5개의 차폐창과 총 10식의 일체형 원격조작기(한국차폐 모델 KTH 200, 취급하중 7kg)가 각 차폐창의 상부 좌/우측에 각각 1식 씩

설치되어있다.(Fig. 5) 현재 ACPF는 공기 분위기 핫셀 안쪽의 일부를 아르곤 분위기 컴파트먼트로 구축하기 위한 개조 작업을 진행 중에 있다. 아르곤 컴파트먼트에는 기밀, 분리형 원격조작기(독일 HWM사 모델 A110)가 2014년 후반기에 설치될 계획이다.

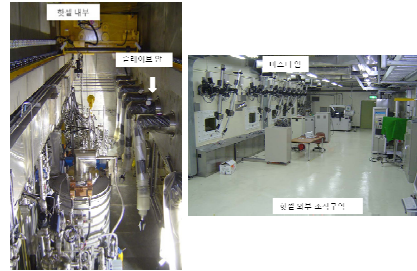


Fig. 5. ACPF hot-cell and installed MSMs.

3. 요약

파이로 시험시설에 설치된 원격취급시스템들은 각 공정장치의 원격 운전 및 원격 유지보수 작업에 활용되고 있으며, 공정의 downtime을 줄이기 위해 원격취급시스템의 상시 유지보수 체계를 확보하고 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 정부가 지원하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

파이로 핫셀시설에 대한 안전시스템 설계요건 분석

서석준*, 문성인, 정원명, 유길성, 구정희, 김호동

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*sjseo@kaeri.re.kr

1. 서론

최근 온실가스로 인한 온난화 문제 및 화석연료 고갈에 따른 에너지 문제를 해결하기 위하여 전세계적인 노력이 많이 진행되고 있으며, 우리 정부도 이러한 세계적인 추세에 대응하기 위해 원자력 발전을 필두로 한 대응책을 모색하고 있다. 원자력을 이용하여 환경·에너지 문제를 극복하기 위해서는 필수적으로 해결해야 할 부분 중에 하나는 사용후 핵연료의 적절한 처리이다. 현재 국내 원자력발전소에서 연소된 사용후핵연료는 원자력발전소 내에 저장되고 있으며, 사용후핵연료의 저장량은 2012년말 기준으로 전체 임시저장시설의 72%에 이른다. 또한, 매년 발생하는 사용후핵연료로 인한 저장용량의 감소 문제를 해결하기 위해, 사용후핵연료의 장기적 처리방안에 대한 논의가 활발히 진행되고 있으며, 효율적으로 관리하는 구체적인 방안을 조속히 수립하는 것이 필요하다.

이러한 문제를 해결하기 위한 방안으로서 대두되는 것 중의 하나가 바로 파이로공정(pyroprocess)이다. 파이로공정은 건식처리공정으로서 사용후핵연료를 고온 용융염 상에서 급속으로 전환하여 누적되는 사용후핵연료의 재고를 감축시키고 폐기물 양을 최소화해서 처분장의 활용을 극대화함으로써 저장시설 포화 문제를 개선하는데 획기적인 방안이 될 수 있다[1]. 또한 기존 습식처리 방법에 비해 민감한 핵물질의 전용가능성이 적어 핵확산저항성 측면에서도 보다 긍정적인 기술로 평가받고 있다[2,3].

현재 한국원자력연구원에서는 공학규모의 모의시험시설(Pyroprocess Integrated inactive DEMonstration, PRIDE)을 구축하였고, 다음 단계로 실증시설의 개발을 진행 중이다. 그러나 핵분열생성물과 초우라늄원소가 다량 함유된 파이로 핫셀 시설의 안정성 유지에 대한 관련 법규가 마련되어 있지 않은 실정이다.

따라서 이번 연구에서는 파이로 단위공정별 공정조건을 살펴보고 각 단위공정별 특성에 따른 위험인자 도출하였다. 이를 토대로 하여 사고 시나리오를 설정 및 가상사고 도출을 위한 기준 자료로 활용하고자 하였다.

2. 본론

국내에서 개발 중에 있는 파이로공정은 Fig. 1에 나와 있는 것처럼 탈피복(decladding)과 분말화(voloxidation), 전해환원(electro-reduction), 전해정련(electro-refining), 전해제련(electro-winning), 염폐기물 정제/회수(salt purification and recovery), 그리고 고화처리(waste form fabrication) 등과 같은 여러 가지 세부공정으로 나누어진다.

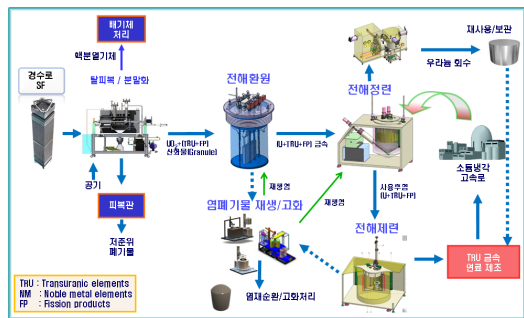


Fig. 1. A schematic diagram of a pyroprocess including various unit operations such as decladding, voloxidation, electro-reduction, electro-refining, electro-winning, salt purification and recovery, and waste form fabrication.

2.1 전처리공정의 특성 및 작업위해 인자

전처리공정의 특성과 이에 따른 작업위해 인자는 Table 1에 나와 있다.

Table 1. Major procedures in the decladding and voloxidation, and their hazardous effects

No.	공정/위험 공정조건	공정/위험 Step	작업위해 인자
1-1	Disassembling & Chopping (SF 집진계 제거/분쇄 및 Rod-cut 작업) 상온, Air Hot cell	1) 집진계 제거/분쇄 2) 집진계 제거/분쇄 3) 연료봉 인출/분쇄 4) 연료봉 용기 충전/조립 5) 집진계 부품 장착 후 Canning/조립	-연료봉 집진계 낙하로 인한 손상 -연료봉 인출 후 gap scrap 누출 -연료봉 Can 충전 중 낙하로 인한 손상
1-2	Oxidative Decladding (연료봉과 SF Pellets 분리 및 UO ₂ 분말 제조) SOOT, Air Hot cell 반송 Air 공급	1) 연료봉 용기 인입/분쇄/분쇄 2) 연료봉 인출/분쇄/분쇄 3) Pellets 용기 반송기 접속/공급 4) 반송기 Air 공급/인입/반송/분쇄 및 제거 5) 산화환원 용기 충전/가열	-Pellets 용기 충전/분쇄/분쇄 중 누출 -반송기 냉각수 공급/조도 제거 시 누출 -냉각수 반송기 내부로 누출 -반송기 제거 시 SF 분말/연료봉 가열로 인한 화재/폭발 위험 -산화환원 용기 충전 중 누출
1-3	Homogenization (제조된 UO ₂ 분말의 균질화, 건조, 핵물질 재조성) 상온, Air Hot cell	1) 산화환원 용기 충전/분쇄/분쇄 2) 균질화 공정/가열 3) 균질화 분말 용기 충전	-산화환원 용기 접속/분쇄 중 누출 -균질화 분말 용기 충전 중 누출 -균질화 분말 용기 접속/분쇄 중 누출
1-4	Pretreatment of Metal oxide (UO ₂ Granule or Pellets 제조, 전해환원공정 공정 조건) 1200°C, Air Hot cell Air/4% H ₂ 공급	1) 균질화 분말 용기 접속/분쇄/분쇄 2) 반송기 Air 공급/인입/반송/분쇄 및 제거 3) 반송기 4% H ₂ 공급/인입/분쇄/분쇄 4) 제조 Pellets 용기 충전	-균질화 분말 용기 접속/분쇄 중 누출 -반송기 냉각수 공급/조도 제거 시 누출 -냉각수 반송기 내부로 누출 -반송기 제거 시 SF 분말/연료봉 가열로 인한 화재/폭발 위험 -제조 Pellets 용기 충전 중 누출

2.2 전해환원공정의 특성 및 작업위해 인자

전해환원공정의 특성과 이에 따른 작업위해 인자는 Table 2에 나와 있다.

Table 2. Major procedures in the electro-reduction and their hazardous effects

[illegible]

2.3 전해정련공정의 특성 및 작업위해 인자

전해정련공정의 특성과 이에 따른 작업위해 인자는 Table 3에 나와 있다.

Table 3. Major procedures in the electro-refining and their hazardous effects

No.	공정명 및 공정조건	공정장비/Step	주요 위험 인자
3-1	Electrolytic Refining (금속정제용 전해질 정제, 금속정제용 전해질 제조) 500T, Ar Hot cell (반압 유지)	1 Lith-KCl 용액 투입 후 투입 500T을 개시 (UCL) "이온교환막"이 glove box	금속정제용 전해질 투입 시 인산염 혼입 문제 발생 가능성 있음 "이온교환막"이 "개"로 "실링"로 교체 필요한 경우 교체 가능
		2 전해질용 금속정제용 Cathode를 전해액에 투입 (Anode의 경우)	전해액에 투입 시 인산염 혼입 문제 발생 가능성 있음 "이온교환막"이 "개"로 "실링"로 교체 필요할 경우 교체 가능
		3 전해액 "1"로 "개"로 "실링"로 교체 가능	전해액에 투입 시 인산염 혼입 문제 발생 가능성 있음 "이온교환막"이 "개"로 "실링"로 교체 필요할 경우 교체 가능
		4 Cathode UCL 투입 후 용출물 제거 시 Salt Distillation, Ar Hot cell	금속정제용 전해질 투입 시 인산염 혼입 문제 발생 가능성 있음 "이온교환막"이 "개"로 "실링"로 교체 필요할 경우 교체 가능
		5 Anode 내 MMA 혼입 (Anode "1"로 교체)	금속정제용 전해질 투입 시 인산염 혼입 문제 발생 가능성 있음 "이온교환막"이 "개"로 "실링"로 교체 필요할 경우 교체 가능
3-2	Salt Distillation (200T을 용출물) 700T, Ar Hot cell (반압 유지)	1 전해질용 "2"로 Salt Distillation 개시 (UCL)	금속정제용 전해질 투입 시 인산염 혼입 문제 발생 가능성 있음 "이온교환막"이 "개"로 "실링"로 교체 필요할 경우 교체 가능
		2 Salt Distillation "2"로 교체 가능	금속정제용 전해질 투입 시 인산염 혼입 문제 발생 가능성 있음 "이온교환막"이 "개"로 "실링"로 교체 필요할 경우 교체 가능
		3 전해질용 "3"로 Salt Distillation 개시 (UCL)	금속정제용 전해질 투입 시 인산염 혼입 문제 발생 가능성 있음 "이온교환막"이 "개"로 "실링"로 교체 필요할 경우 교체 가능
		4 전해질용 "4"로 Salt Distillation 개시 (UCL)	금속정제용 전해질 투입 시 인산염 혼입 문제 발생 가능성 있음 "이온교환막"이 "개"로 "실링"로 교체 필요할 경우 교체 가능
		5 전해질용 "5"로 Salt Distillation 개시 (UCL)	금속정제용 전해질 투입 시 인산염 혼입 문제 발생 가능성 있음 "이온교환막"이 "개"로 "실링"로 교체 필요할 경우 교체 가능
3-3	Ingot Casting (2000T을 Ingot 제조) 1300T, Ar Hot cell (반압 유지)	1 전해질용 "6"로 Ingot Casting 개시 (UCL)	금속정제용 전해질 투입 시 인산염 혼입 문제 발생 가능성 있음 "이온교환막"이 "개"로 "실링"로 교체 필요할 경우 교체 가능
		2 전해질용 "7"로 Ingot Casting 개시 (UCL)	금속정제용 전해질 투입 시 인산염 혼입 문제 발생 가능성 있음 "이온교환막"이 "개"로 "실링"로 교체 필요할 경우 교체 가능
		3 전해질용 "8"로 Ingot Casting 개시 (UCL)	금속정제용 전해질 투입 시 인산염 혼입 문제 발생 가능성 있음 "이온교환막"이 "개"로 "실링"로 교체 필요할 경우 교체 가능
		4 전해질용 "9"로 Ingot Casting 개시 (UCL)	금속정제용 전해질 투입 시 인산염 혼입 문제 발생 가능성 있음 "이온교환막"이 "개"로 "실링"로 교체 필요할 경우 교체 가능
		5 전해질용 "10"로 Ingot Casting 개시 (UCL)	금속정제용 전해질 투입 시 인산염 혼입 문제 발생 가능성 있음 "이온교환막"이 "개"로 "실링"로 교체 필요할 경우 교체 가능
3-4	UCL Chlorination (2000T을 Polymers 제조) 600T, Ar Hot cell (반압 유지) 600T, Ar Hot cell Glove box (반압 유지)	1 전해질용 LITHIUM CAL. UCL, 제조 개시 (UCL)	금속정제용 전해질 투입 시 인산염 혼입 문제 발생 가능성 있음 "이온교환막"이 "개"로 "실링"로 교체 필요할 경우 교체 가능
		2 전해질용 LITHIUM CAL. UCL, 제조 개시 (UCL)	금속정제용 전해질 투입 시 인산염 혼입 문제 발생 가능성 있음 "이온교환막"이 "개"로 "실링"로 교체 필요할 경우 교체 가능
		3 전해질용 LITHIUM CAL. UCL, 제조 개시 (UCL)	금속정제용 전해질 투입 시 인산염 혼입 문제 발생 가능성 있음 "이온교환막"이 "개"로 "실링"로 교체 필요할 경우 교체 가능
		4 전해질용 LITHIUM CAL. UCL, 제조 개시 (UCL)	금속정제용 전해질 투입 시 인산염 혼입 문제 발생 가능성 있음 "이온교환막"이 "개"로 "실링"로 교체 필요할 경우 교체 가능
		5 전해질용 LITHIUM CAL. UCL, 제조 개시 (UCL)	금속정제용 전해질 투입 시 인산염 혼입 문제 발생 가능성 있음 "이온교환막"이 "개"로 "실링"로 교체 필요할 경우 교체 가능

2.4 전해제련공정의 특성 및 작업위해 인자

전해제련공정의 특성과 이에 따른 작업위해 인자는 Table 4에 나와 있다.

Table 4. Major procedures in the electro-winning and their hazardous effects

[illegible]

2.5 염폐기물처리공정의 특성 및 작업위해 인자

염폐기물처리공정의 특성과 이에 따른 작업위해 인자는 Table 5에 나와 있다.

Table 5. Major procedures in the salt purification and recovery, and their hazardous effects

No.	공정기는 및 공정조건	공정기술 Step	작업 위험 인자
5-1	LIC1 Purification (LIC1 용액 정제/제거, CaS/30% 제기 650T, At Hot cell (핵실험 장치))	1) LIC1 용액 정제/제거 시 유해물질인 LIC1과 공해물질인 장석에 작업	반응기 온도 변화에 의해 심할로 격렬한 폭발 위험이 생긴다
		2) 공해물질인 장석 투입 후 정제/제거 시 내부 방사능이 높은 LIC1 용액에 작업	반응기 온도 변화에 의해 심할로 격렬한 폭발 위험이 생긴다
		3) LIC1 용액 정제/제거 후 공해물질인 유해물로 오염된 CaS/LIC1 용액에 작업	CaS과 방사능이 높은 LIC1 용액에 작업 시 심할로 격렬한 폭발 위험이 생긴다
		4) LIC1 용액의 순도를 유해물질인 핵연료정제 후유물로 오염 시 작업	순도 높은 LIC1 용액에 작업 시 심할로 격렬한 폭발 위험이 생긴다
		5) LIC1 용액의 핵 연료정제 후유물(CaS/ 또는) 고기체 정제 장치에 작업	고기체 정제 후유물 또는 CaS에 작업
5-2	LIC1/KCI Purification (유해물질 정제/제거, RE/10% UTRU 제기 650/NOOT, At Hot cell (핵실험 장치))	1) RAR 공해물질이 유해물질인 공해물질인 LIC1/KCI로 혼합된 공해물질에 작업	-Cd 리튬 심할로 격렬한 폭발(Cd) 심할로 온도 변화에 의해 심할로 격렬한 폭발 위험이 생긴다
		2) 심할로 정제/제거 시 유해물질인 CaS/LIC1 용액에 작업	반응기 온도 변화에 의해 심할로 격렬한 폭발 위험이 생긴다
		3) 심할로 정제/제거 후 유해물질인 유해물로 오염된 LIC1/KCI 용액에 작업	반응기 온도 변화에 의해 심할로 격렬한 폭발 위험이 생긴다
		4) LIC1/KCI 용액의 순도를 유해물질인 핵연료정제 후유물로 오염 시 작업	순도 높은 LIC1/KCI 용액에 작업 시 심할로 격렬한 폭발 위험이 생긴다
		5) LIC1/KCI 용액의 핵 연료정제 후유물(CaS/ 또는) 고기체 정제 장치에 작업	고기체 정제 후유물 또는 CaS에 작업
5-3	Waste Form Fabrication (CaS/30% LIC1 제기, CaS 정제/제거 공정 제기, CaS 제기 고정장치 제기 650/NOOT, At Hot cell (핵실험 장치))	1) LIC1 용액 정제/제거 시 유해물질인 LIC1과 공해물질인 장석에 작업	반응기 온도 변화에 의해 심할로 격렬한 폭발 위험이 생긴다
		2) 공해물질인 장석 투입 후 정제/제거 시 내부 방사능이 높은 LIC1 용액에 작업	반응기 온도 변화에 의해 심할로 격렬한 폭발 위험이 생긴다
		3) O ₂ 를 공급하여 정제/제거 후유물(CaS/ 또는) 고기체 정제 장치에 작업	O ₂ 제기 시 심할로 격렬한 폭발 위험이 생긴다
		4) 정제/제거 후유물 정제/제거 후유물로 오염된 CaS/LIC1 용액에 작업	CaS과 방사능이 높은 LIC1/KCI 용액에 작업 시 심할로 격렬한 폭발 위험이 생긴다
		5) 정제/제거 후유물 정제/제거 후유물(CaS/ 또는) 고기체 정제 장치에 작업	고기체 정제 후유물 또는 CaS에 작업

3. 결론

본 연구에서는 파이로공정에서의 세부적인 개별 공정인 탈회복과 분말화, 전해환원, 전해정련, 전해제련, 그리고 염폐기물처리 등에 따른 운전특성과 각각의 운전상황에 따른 위해 요소 인자를 검토하였다. 이러한 세부적인 특성 평가를 기초로 하여 사고 시나리오 설정 및 가상사고 도출을 위한 기준자료로의 사용이 가능하다. 또한 각각의 사고 시나리오에 따라 위험유형을 선정 및 평가하여, 파이로공정 핫셀 시설의 안정성을 확보하기 위한 추가적인 연구에 사용될 것이다.

4. 참고문헌

- [1] C.E. Stevenson, The EBR-II Fuel Cycle Story, American Nuclear Society, Illinois (1987).
- [2] G.-S. You, I.-J. Cho, W.-M. Choung, E.-P. Lee, D.-H. Hong, W.-K. Lee, J.-H. Ku, Concept and safety studies of an integrated pyroprocess facility, Nuclear Engineering and Design, 241 (2011) 415-424.
- [3] S.-I. Moon, W.-M. Choung, G.-S. You, J.-H. Ku, H.-D. Kim, Y.-K. Lim, H.-S. Chang, Preliminary Safety Study of Engineering-scale Pyroprocess Facility, Nuclear Engineering and Technology, 46 (2014) 63-72.

LSDS Development for Isotopic Fissile Assay in used Fuel

YongDeok Lee^{1*}, ChangJe Park², Ho-Dong Kim¹, and KeeChan Song¹

¹Korea Atomic Energy Research Institute, 989-111 Daedeok-daero, Yuseong-gu, Daejeon, Korea

²Sejong University, 209 Neungdong-ro, Gwangjin-gu, Seoul, Korea

*ydlee@kaeri.re.kr

1. Introduction

The lead slowing down spectrometer (LSDS) is under development for analysis of isotopic fissile material contents in recycled fuel material and spent fuel at KAERI[1,2,3]. In spent fuel, the content of uranium and plutonium isotopes is various depending on the burnup history. Therefore, in order to reuse the fissile material in spent fuel for fuel cycle, a content assay is required for safety and economics of fuel burning. However, an isotopic fissile assay in spent fuel and recycled fuel is very difficult in real application because of intense radiation background and weak radiation emission from fissile materials. Therefore, a direct use of emitting radiation from isotopic fissile material is very hard in the material content assay. Normally, an indirect mechanism is used for the content assay of isotopic fissile with the help of burnup code. However, an indirect methodology has a limitation in getting the accurate fissile content.

For future nuclear energy system development, the pyro processing is under development to recycle fissile in spent fuel. LSDS uses external neutron source to get the direct fission signal from each fissile material. The source neutron slowed down continuously in the lead medium and induced fissile fission in fuel. Each fissile material has dominant fission characteristics in the resonance energy region and below resonance. In that energy region, fission measurement has a direct relationship of fissile mass. LSDS does not need burnup history information or burnup code help.

Spectrometer technology and source neutron mechanism is required for optimized LSDS system. For spectrometer design, geometry was determined and neutron spectrum analysis was done. The detector geometry and sensitivity simulation was performed. The source neutron production methodology was

decided and several parameters were determined. The source system consists of target[2] and electron accelerator facility. The neutron is produced by (e, g) (g, n) reaction. The fissile fission will be measured in the spectrometer.

2. LSDS Development

The fissile materials such as U-235, Pu-239 and Pu-241 have their own fission characteristics to neutron energy. The surrounding threshold detectors discriminate the fast fission neutrons in the complex radiation fields. Therefore, the detected signal is proportional to the content of fissile material. The detected signal is expressed as

$$\int_{S_{\text{det}}} \int_{E_1}^{E_2} \sigma_f \phi_f(r, E, t) dE dA,$$

where σ_f is the fission rate at the detector, ϕ_f is the fission neutron arriving at the detector and S_{det} is the detector area A. linear detection model was set up over the slowing down neutron energy

$$Y_{\text{det}} = a * X_{\text{U235}} + b * X_{\text{Pu239}} + c * X_{\text{Pu241}},$$

where Y_{det} is a detector response function. X represents a content of fissile and a, b and c are the reference contribution parameter to detectors. This model assumes that no significant self shielding is present.

The neutron spectrum was analyzed in the lead medium and fuel area to resolve the fission[4]. The source neutron spectrum represents broadening as interacting with the lead and nuclear materials. Fig. 1 shows the energy resolution in the lead medium and fuel area from 100keV to 0.1eV.

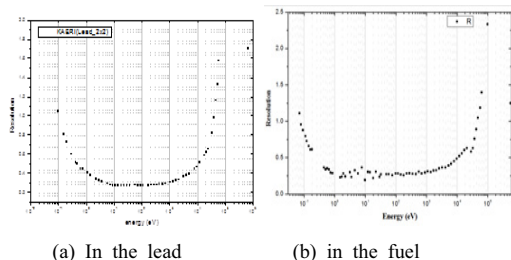


Fig. 1. Resolution of source neutron.

The energy resolution is well defined in the energy range of keV to eV, even in the fuel area.

An electron linear accelerator with a target was decided to generate intense source neutron. A compact, easy maintenance and low cost system is considered. Electron energy, beam width, current and repetition rate are important parameter in neutron production. , $\sim 10^{12}$ n's/sec is required for source neutron. At least, 25MeV electron is necessary to fit $\sim 10^{12}$ n's/sec in the simulation. Accelerator column will be designed. As a first step, electron generator was designed and manufactured. Four parameters (bias and high voltage, pulse width, cathode voltage) were examined to get efficient electron production[5].

3. Results and Conclusion

The LSDS technology is very feasible option to assay isotopic fissile content in spent fuel and recycled fuel. From the calculation, the geometry and parameters were determined for the optimal system. The neutron spectrum was well resolved in the lead and fuel area, from keV to eV energy range. The neutron generation system using electron accelerator is good choice to produce enough source neutron efficiently and economically. 30MeV, 500nsec, 500mA, 240Hz electron can produce $\sim 10^{12}$ n's/sec. The threshold fission detector can discriminate the prompt fast fission neutron from fissile fission in the complex radiation background.

Finally, an accurate fissile material content will contribute to safety of spent fuel reuse in future nuclear energy system and optimum design of spent fuel storage site.

4. Acknowledgement

This work was supported by the Nuclear Research Foundation of Korea(NRF) grant funded by the Korea government(MSIP) (No. 2013036069).

5. References

- [1] Y. D. Lee, et al., Status of Lead Slowing Down Spectrometer Development for Nuclear Fissile Assay, 51st INMM Meeting, Baltimore, July11-15, 2010.
- [2] C. J. Park, K.Y. Noh, and Y. Lee, A New Target Design with a Beryllium Multiplier for a Lead Slowing Down Time Spectrometer (LSDTS) System, Transactions of Korean Nuclear Society Autumn Meeting, Jeju, October 21-22, 2010.
- [3] Y.D. Lee, et. al., "Design of LSDS for Isotopic Fissile Assay in Spent Fuel," Nuclear Energy and Technology, Vol. 45, No. 7, 2013.
- [4] MCNP, D. B. Pelowitz, ed., MCNP: A General Monte Carlo Code for Neutron and Photon Transport, LA-CP-05-0369, Los Alamos National Laboratory, 2005.
- [5] J.D. Kim, et. al, Optimization of operation parameters of 80-keV electron gun, NET, Vol. 47, No. 3, 2014.

Hotcell내 조사후 핵연료의 금속조직시험시편 제작기술

서항석*, 전용범, 김도식, 이형권, 권형문, 장정남, 권인찬
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*nhsseo@kaeri.re.kr

1. 서론

조사후시험시설은 국내 상용 원자력발전소에서 조사된 핵연료를 시험/평가할 수 있는 국내 유일의 시험시설이다. 따라서 원자력발전소의 원자로에서 조사한 핵연료 및 원자력재료에 대한 조사후시험 관련 시험기술의 개선/개발을 통하여 원자력 연구개발을 적기에 효율적으로 지원하고 핵연료의 성능 및 건전성평가, 핵연료의 개발 및 손상 원인 규명 등에 필요한 특성 자료를 생산/제공하는 것이 조사후시험시설의 목적이다. 본 연구에서는 고연소도 사용후 핵연료에 대한 정확한 시편의 정보를 얻기 위해 시편 준비과정 및 시험항목을 기술하고 일부 결과를 분석하였다.

2. 본론

2.1 시편준비공정 및 시험 항목

시편준비 주요공정은 다음과 같다.

가) Sectioning. 나) Mounting. 다) Grinding.
라) Polishing. 마) Etching.

과괴시험의 시험 항목으로는 가) 봉 내압측정 및 핵분열 생성기체 특성 측정. 나) 소결체 조직시험. 다) 피복관 수소함량 분석. 라) 피복관 내,외면 산화막 두께 측정. 마) 전자현미경 분석. 바) 단면 감마스캐닝. 사) 소결체 밀도측정. 아) 피복관 경도측정. 자) 핵연료 연소도측정 등이 있다.

2.2 시편준비과정 및 시험방법

2.2.1 Sectioning 및 Mounting,

0.3mm Diamond blade를 사용하여 시편두께 2mm로 습식 미세절단 후 열가소성인 Phenolic Premold수지를 사용하여 압력 3bar, 온도 130℃로 가열하여 Mounting을 한다.

2.2.2 Grinding 및 polishing.

연마는 연마지 순서에 따라 120grit. 240grit. 400grit. 600grit.로 30분씩 단계별로 연마를 한다.

연마가 끝나면 Diamond paste를 연마천에 발라서 입자크기에 따라 정마를 한다. 정마시간은 15 μ m, 9 μ m, 6 μ m, 3 μ m, 1 μ m은 30분. 1/4 μ m은 20분간 정마를 한다.

2.2.3 Etching.

Etching은 Chemical etching을 하며 etching용액 및 시간. 방법은 다음과 같다.

- UO₂소결체 : H₂SO₄ 1(ml) : H₂O₂ 9(ml).
Immersion. 50sec - 120sec.
- 피복관 : Ethanol 20(ml) : H₂O₂ 50(ml)
HF 1(ml) : HNO₃ 10(ml).
Swab. 15ses - 25sec.

2.2.4 핵분열 생성기체 측정 및 단면 감마스캐닝

핵연료봉을 천공(Puncturing)하여 압력과 온도를 측정하고 핵분열기체를 포집하여 질량분석기(gas mass spectrometer)로 Xe과 Kr양을 측정하며 이 값을 이용하여 핵분열기체 방출비도 결정한다. 핵연료봉의 내압과 핵분열기체량은 약 3 Mpa과 630 cm³ 전후이며 연료봉의 내압은 연소도가 높을수록 높게 나타난다. 단면 감마스캐닝 시편은 두께 약 3 mm 디스크 형태의 시편을 사용하며 9409 핫셀 내부에 설치되어있는 시준기와 검출시스템이 사용된다. 주요 측정핵종은 Cs-137(661.66KeV)이며 측정시간은 대체로 수백초에서 1,000초 사이의 시간을 주고 측정한다.

2.2.5 소결체 밀도측정 및 연소도 화학분석 측정

밀도시편은 연료봉길이 약 10 mm를 피복관을 제거하고 연료봉 소자를 모아서 침전방식으로 측정하며 침전매질은 톨루엔을 사용한다. 핫셀 내부에 설치된 밀도 측정 장치 밸런스의 측정 정밀도는 10⁻⁵g이다. 연소도 화학분석시편은 약 1 mm 두께의 원형디스크 형태로 피복관을 제거한 후 사용한다. 연료봉의 화학 분석적 연소도 결정은 Nd¹⁴⁸원소를 지표원소로 이용하는 Nd동위원소 정량에 의한 연소도 결정 방법을 이용해서 핫셀내에서 수행한다.

2.2.6 피복관 내,외면 산화층 두께 측정

금속조직시험을 하기위한 시편제작이 끝나면 광학현미경을 이용하여 피복관 내,외면 산화층 두께를 원주방향으로 8등분하여 500X로 투영한다. 온도가 낮은 bottom쪽의 외면 산화층 두께는 약 5 μm 정도이고 온도가 높은 곳은 대략 35 μm 정도의 두께를 형성하고 있다. 내면은 전체적으로 8 μm 두께로 형성되어 있다.

2.2.7 소결체 및 피복관에 대한 금속조직시험

시편준비를 마친 시편은 Etching 후 시편 전체의 전반적인 정보를 얻기 위하여 거시조직관찰은 배율 7배로 투영하여 소결체 단면 및 피복관 절단면상태를 관찰한다. 핵연료 미세조직관찰은 배율 500X로 광학현미경을 이용하여 핵연료의 중심부, 중간부, 외곽부 등에 대한 관찰을 따로 따로 수행하면서 핵연료 소자의 조직변화, 즉 입계상태, 결정립의 크기, 조사 성장, 조사 석출물, 기공 등의 형성 등을 관찰한다. 다음 그림은 고연소 조사후 핵연료봉의 중상위치(2,700 mm)의 거시조직 및 피복관,소결체에 대한 조직사진 이다.

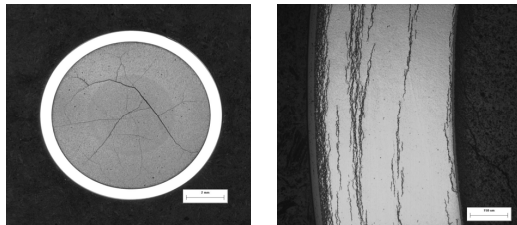


Fig. 1. OM Picture of cladding and Macro.

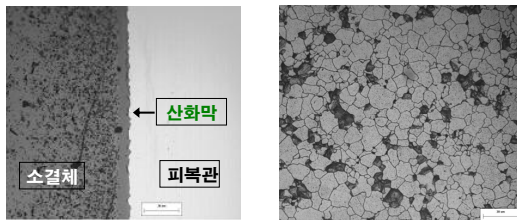


Fig. 2. OM Picture of pellet and cladding.

3. 결론

고연소도 사용후핵연료의 특성시험을 수행함에 있어 시편제작 과정이 매우 중요하다. 시편 제작

과정 중 Grinding 및 Polishing을 할 때 주의할 점은 입자의 크기에 따라 진행하되 한 step이 끝날 때 마다 충분히 Cleaning을 마치고 다음 단계를 수행 하여야 한다. 충분한 Cleaning 없이 시편준비를 하면 이전 단계에서 남아 있던 정마제에 의해 Scream이 발생하여 시편준비를 처음부터 다시 하여야 한다. 그러므로 시편 준비과정 중 세척이 매우 중요하다는 것을 항상 염두에 두고 시편을 제작 하여야 한다.

4. 참고문헌

- [1] 서항석 외 3인, “조사후 핵연료의 시험시편 제작”, 한국방사성폐기물학회 춘계학술 발표회 논문집, 2008.
- [2] 서항석 외 5인, “고연소도 사용후 연료봉에 대한 파괴시험 분석기술”, 한국방사성폐기물학회 춘계 학술 발표회 논문집, 2009.

DRYSIM6 노외성능 및 내구성시험 평가

김대호, 신창환, 양용식, 국동학, 구양현

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

kdh@kaeri.re.kr

1. 서 론

국내 경수로원전의 사용후 핵연료 건식저장 환경에서 장기 저장에 따른 건전성 평가를 위해 한국원자력환경공단(KORAD)이 주관하고 한국원자력연구원(KAERI)을 중심으로 실제 사용후 핵연료봉의 가속시험을 위한 종합시험장치(DRYSIM6)¹⁾가 설계되고 제작되었으며 노외 성능 및 내구성시험이 수행되었다.

사용후 핵연료의 건식환경에서 장기저장을 위해서는 사용후 핵연료의 핵적, 물리·화학적 특성파악이 우선되어야 하고 장기간의 재료적 특성파악이 선행 되어야 한다. 실제 사용후 핵연료를 이용하여 예측한 값을 검증하고 종합평가하는 일련의 과정이 필요하다. 즉, 사용후 핵연료가 저장기간이 종료된 시점까지 저장초기의 건전성을 잘 유지할 수 있는 지를 평가하는 기술이 검증되고 확보되어야 장기 건식저장이 가능하다

본 DRYSIM6를 이용하여 단기간의 열화가속시험을 통해 사용후 핵연료의 성능시험자료를 생산하고 장기간의 저장수명 동안 재료적 결손정도를 예측하여, 장시간 동안 사용후 핵연료가 건전성을 유지할 수 있는 조건들을 제시할 수 있다. DRYSIM6는 실제 사용후 핵연료봉 6개를 사용하여 열화가속상태의 건식저장 환경에서 발생할 수 있는 사용후 핵연료의 각종 열화기구에 대한 거동을 평가하고, 장기간의 재료적 특성자료를 생산하여 평가모델 및 코드개발에 이용하게 된다.

DRYSIM6의 노외성능 및 내구성시험이 한국원자력연구원과 국내 산업체와의 협력을 통해 수행되었다. 시험은 기능별시험과, 종합성능시험 및 내구성시험으로 수행되어 DRYSIM6의 기술적 요건들의 점검하였으며, 실제 사용후 핵연료를 이용한 DRYSIM6 노내시험절차 수립에 활용될 계획이다.

2. 본 론

DRYSIM6의 사용후 핵연료 건식환경 종합시험은 한국원자력연구원 사용후조사시험시설인 PIEF의 사용후핵연료 저장조에서 수행하게 된다. DRYSIM6 용기의 크기와 규모가 직경이 0.75m, 길이가 5m의 규모로 거치 및 운용이 용이하지 않다. 성공적인 시험을 위해서는 시험절차에 따른 각각의 노외성능이 검증되어야하고 장기간의 운전에 따른 시험장치의 내구성이 확보되어야 한다. DRYSIM6의 노외성능시험 및 내구성시험은 국내 산업체인 SE&T(주)의 시험시설을 이용하였다. 시험은 시험절차에 따라 시험용기의 수중작업을 가정하여 기능시험, 종합성능시험 및 내구성시험으로 구분하여 진행하였다. 기능시험은 수중에 장입되는 점을 고려하여 기밀시험, 토수시험 및 건조시험으로 각각의 시험에 따른 계측기 검증 및 히터의 성능을 확인하였다. 종합성능시험은 DRYSIM6의 히터를 가동하여 단계적인 온도상승에 따른 성능시험과 온도하강에 따른 단열기능 등을 평가하였으며, 내구성시험은 장시간의 운전을 통해 DRYSIM6내 설치된 계측기 및 히터 등의 내구성을 평가하였다. 내구성시험시 DRYSIM6 용기내의 열원 분포를 평가하고 실제 사용후 핵연료봉이 겪을 열화 온도분포를 확인하였다. 노외성능 및 내구성시험을 토대로 DRYSIM6의 실제 운전에 필요한 시험절차가 수립되어진다.

2.1 기능시험 결과

DRYSIM6의 기능시험은 토수시험, 기밀시험 및 계측기/히터 등의 성능시험과 건조시험으로 수행하였다. 토수시험은 용기내에 장입된 물(272.58 liter)을 수중에서 배출시키는 시험으로 본 시험의 단순화를 위해 기존에 설치된 수중펌프를 제거하고 수면 1m 아래에 DRYSIM6를 거치하여 Helium Gas압을 이용한 배수시험을 실시하였다. 가압배수결과 3 bar에서 10분, 2

1) 사용후 핵연료 장기건전성 평가 종합시험장치, DRYSIM6(DRY storage SIMulation test system with 6 spent fuel rods)

bar에서 18분 정도 소요되었으며 가스압에 의한 배수절차는 적절한 것으로 판단된다. 단지 배수구에서 발생하는 기포의 최소화를 위해 충분한 배수시간과 버블 사이린스 설치를 고려해야 한다. 기밀시험은 공기 중 5 bar 압력시험을 실시하여 누출여부를 확인하였고, 수증 기밀시험에서 상부에 위치한 자동공압밸브의 하중에 의해 연결된 플랜지 가스켓 위치에서 기포가 발생하여 소형수동밸브와 가스켓 교체 등의 수정작업을 실시하였다. 계측기 및 히터 등은 적절한 성능결과를 확인하였다. 장기간(3년)의 연속운전을 고려하여 히터의 모듈별 가동성능이 확인되었고 DRYSIM6 내 설치된 63개의 열전대가 정상적으로 작동하였다. 건조시험은 투입된 수분을 건조시키는 과정으로 DRYSIM6의 정상운전 최종단계로 중요한 성능시험이다. 건조시 Helium 가스의 지속적인 공급과 100℃미만의 가열 및 적절한 압력상태를 유지하여야 한다. 시험결과 DRYSIM6 내부 구조물에 의한 잔류수분이 원활하게 제거되지 못하였으며 Helium 가스와 수증기 간의 혼합상태를 확인하기 곤란하였으며 상부와 하부에 위치한 고온습도계만으로 건조상태를 판단하기 어려웠다. 시험부의 완전건조를 위해서는 하단밸브의 조작과 장기간의 반복적인 건조절차가 필요할 것으로 판단되며, 진공펌프를 이용한 잔류수분 제거방법을 고려해야 할 것으로 판단된다.

2.2 종합성능시험 결과

DRYSIM6의 제어계통을 이용하여 100℃, 200℃, 300℃, 400℃ 및 500℃의 단계적 온도상승과 각단계에서 30분간의 온도유지 시험이 진행되었다. 12개의 히터 작동과 부착된 63개의 열전대 성능을 확인하고 DRYSIM6내의 온도분포를 확인하였다. 각 온도대를 구성하기 위한 히터의 성능은 정상적으로 작동하였으며, 63개의 열전대 또한 정상적으로 동작되었다. 온도분포에 있어 사전에 실시된 열분포해석과 유사한 결과를 보였으나 상부와 하부에서 입력된 열원보다 낮은 열분포 결과를 보였다. 온도하강시험은 500℃에서 200℃까지의 자연냉각기능을 관찰하였으며, 시험결과 약 15시간이 소요되었다. 히터의 가동을 중지하고 자연냉각기능을 통해 단열성능을 확인하여 추후 히터에 공급되는 열출력 값을 예측할 수 있다. 3개의 카트리지 히터(3 kW/ea)로 구성된 한 개의 히터모듈로 충분한 열원공급이 가능할 것으로 판단된다. 추후

히터의 장기수명을 고려하여 적절한 운전형태가 평가되어야 한다.

2.3 내구성 시험결과

DRYSIM6의 노위성능 및 내구성시험이 수행되어 각각의 기능 및 종합적 성능평가가 진행되었다. 내구성시험은 200℃에서 24시간의 운전유지를 통해 DRYSIM6의 전체적인 운전성능을 확인하고 이후 400℃로 상승시켜 2주간의 연속운전을 실시하였다. 장시간의 운전을 통해 DRYSIM6의 구조적 건전성과 계측기 및 히터 등의 종합적인 내구적 성능을 확인하고 시험부에서의 온도분포를 확인하였다. 시험결과 종합적인 내구성에 특이사항은 발생하지 않았으며, 축방향 온도분포 결과 Uniform Heat Zone이 2m이상 확보된 것으로 나타났다. 대형 시험장치임을 고려하여 운전절차 수립시 Uniform Heat Zone의 확대를 위한 추가적인 온도조절기술이 평가되어야 한다.

3. 결 론

DRYSIM6의 노위성능 및 내구성시험이 성공적으로 수행되어 종합적인 기능 및 성능을 확인하였다. 시험결과 가장 중요한 요소인 열전대와 히터의 정상적인 작동을 확인하였으며, 전체적인 시험 목적에 부합한 것으로 판단된다. 기능상 개선사항으로 DRYSIM6의 복잡한 구조 내에서 Helium 가스와 수증기 간의 혼합 메커니즘을 확인하여 건조기술에 적용될 필요가 있으며, 성능상 축방향의 일정한 온도분포 확보를 위해 온도조절기술이 보완되어야 한다. 추가적으로 조작 프로그램의 용이성이 반영될 수 있는 개선이 필요해 보이며, 방사선구역 내에서의 장기운전에 따른 조작 내구성 고려하여 자동화 시스템 부품 등의 단순화 개선 작업이 필요할 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

- [1] 김대호 외., 사용후 핵연료의 장기건전성 종합 시험장치(SFFA) 개념설계, 한국방사성폐기물학회 2012 춘계학술발표회, 2012. 5.
- [2] 김대호 외., 사용후 핵연료의 장기건전성 종합 시험장치(DRYSIM6) 구조해석 및 제작, 한국방사성폐기물학회 2013 춘계학술발표회, 2013. 5.
- [3] 김대호 외., 사용후 핵연료 장기건전성평가 시험기술, 한국방사성폐기물학회 2013 추계학술발표회, 2013.11.

아르곤셀 냉각시스템 개선 및 성능시험

홍동희*, 조일제, 이원경, 한종희, 장영국, 노선호

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*ndhhong@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로 종합시험 시설(PRIDE)의 아르곤셀에서 수행하는 전해환원 공정, 전해정련공정, 전해제련 공정 등은 공정의 특성으로 인하여 불활성(아르곤) 분위기를 유지하여야 하며, 오염 물질의 확산을 방지하기 위하여 셀은 항상 일정한 부압을 유지하여야 한다. 아르곤셀의 압력 변화 요인은 셀 내부의 온도 변화, 외부기온의 변화, 대기압의 변화가 있으나, 외부 요인에 의한 압력변화는 크지 않다.

따라서, 셀의 일정한 압력(부압) 유지를 위하여 우선적으로 고려하여야 할 사항은 셀 내부에서 발생하는 열량을 제거하여 셀 내부 온도를 일정하게 유지하여야 한다.

PRIDE시설을 준공하여 냉각시스템을 운전한 자료를 분석한 결과에 의하면, 셀 내부에서 공정장치 등에서 발생하는 열량에 의하여 온도 상승이 급격한 경우에 냉각 속도가 떨어져 신속히 셀의 온도를 일정하게 유지 할 수 없었다.

본 연구에서는 아르곤셀의 일정한 온도(25~40℃) 유지를 위하여 아르곤셀의 온도 상승이 급격한 경우에 충분한 냉각 효율 및 성능을 유지하기 위하여 냉각 방식을 변경하여 교체하였으며, 시험을 수행한 후에 결과를 분석하여 최적의 운영 방안을 기술 하였다.

2. 본론

2.1 아르곤셀 냉각 시스템 구성

공정장치 운전중에 과도하게 발생하는 열량을 제거하기 위한 아르곤셀 냉각 및 순환시스템은 냉각팬, 냉각 열교환기(Cooler), 냉동기(Chiller Unit), 배관 및 관련 계측제어로 장치 등으로 구성된다.

시스템의 구성을 위한 P&I는 Fig. 1과 같으며 아르곤셀의 냉각을 위하여 순환하여야 할 유량은 아래와 같다.

$$H = \dot{m} \times c \times \Delta t$$

$$\dot{m} = \frac{H}{C\Delta T} = \frac{80 \times 1000 \text{ J/s}}{521.6 \text{ J/kg}^\circ\text{C} \times 30^\circ\text{C}} = 5.11 \text{ kg/s}$$

$$Q = \frac{\dot{m}}{\rho_{Ar}} = \frac{5.11 \text{ kg/s}}{1.623 \text{ kg/m}^3} = 3.15 \text{ m}^3/\text{s} = 11,300 \text{ m}^3/\text{h} \approx 12000 \text{ m}^3/\text{h}$$

따라서 냉각계통의 순환펌프로 순환하여야 할 아르곤의 양은 12,000 m³/h 이다.

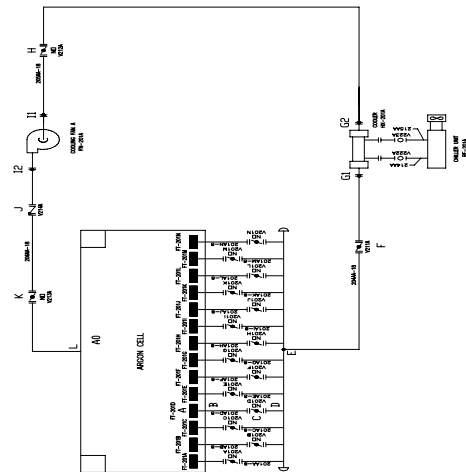


Fig. 1. Cooling system P&ID.

2.2 냉각시스템 개선 방안

아르곤 냉각시스템은 아르곤셀 내의 운전 조건(공정장치, 셀 조명 등)과 무관하게 온도를 일정 범위 (28~40℃) 내로 유지하기 위한 시스템이며, 냉각수에 의한 간접 냉각 방식으로 운전 되었다.

시스템운전결과 아르곤셀의 온도 상승이 급격한 경우에 냉각 속도가 떨어져 신속히 셀의 온도를 유지 할 수없는 문제가 있었다.

충분한 냉각 효율 및 성능을 높이기 위해 Cooler의 냉각 방식을 1개의 Unit에 2개의 D.X

Coil을 설치하고, 냉매가 직접 냉각을 하는 직접 팽창식으로 변경하였다.

냉각용 Chiller는 2대의 Unit을 Cooler의 냉각 Coil에 각각 연결하여 2단 냉각이 이루어지고, 발생된 열은 외부로 방출한다. 아르곤 냉각시스템의 사양은 Table 1과 같다.

Table 1. Specification of Cooling System

아르곤 cooler		아르곤 chiller	
수 량	2 대	수 량	2 대
형 식	Shell & D.X coil	형 식	직접 팽창식
용량	80,352 kcal/hr	용량	90,000 kcal/hr
재 질	SUS		

2.3 냉각시스템 개선 결과

냉각시스템의 냉각용량 증대, 냉매 유체 변경 등 시스템 개선작업을 통하여 셀 내 공정장비 등의 열부하에 무관하게 설계 온도범위(25℃ ~ 40℃) 내에서 운전이 가능하였다.

하절기의 경우에 외부온도의 상승에 따른 열부하가 과도하여 냉각시스템의 운전 빈도가 잦을 것으로 예상이 되며 냉각시스템의 운전이 매우 중요하다. 따라서 주기적으로 열교환기 내부의 응축수를 제거 하여 냉각효율을 극대화 하여야 한다.

냉각시스템의 개선 전/후 효과는 아래 Table 2와 같다.

Table 2. Cooling Capacity of Before & After improvement

	소요 시간 (℃)	냉각기 열량 (kcal)	냉매
개선 전	50	45,000	Cooling Water
개선 후	5	90,720	R22 Freon Gas

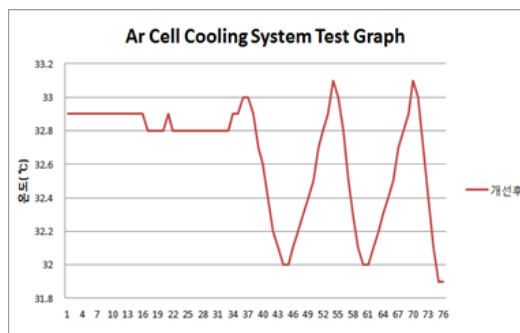
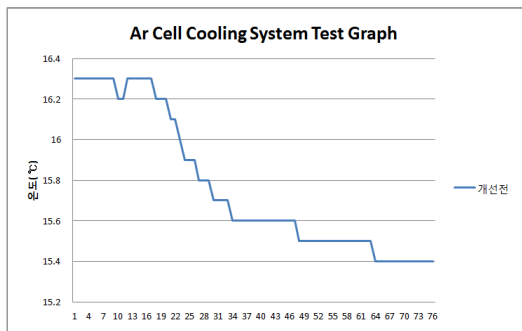


Fig. 2. Cooling system Test Graph.

3. 결론

PRIDE시설 아르곤 냉각시스템의 냉각수에 의한 냉각 방식을 DX 코일을 사용한 직접 팽창식 냉각 방식으로 시스템을 개선하여 지속적으로 운전한 결과 셀의 온도를 설계 목표치(25 ~ 40℃) 보다 안정적인 32 ~ 32.5℃ 범위 내에서 조절이 가능 하였다. 개선한 냉각시스템은 정화시스템과 연계하여 보다 안정적으로 아르곤셀을 운영 할 수 있었다.

추가적으로 시스템을 운전하고 연구를 수행하면 향후 불활성 분위기에서 수행하는 공정 시스템에 매우 유용하게 활용될 것으로 예상된다.

4. 참고문헌

- [1] ANL-7959 Hot Fuel Examination Facility /North Facility Safety Report, February 1975, Argonne National Laboratory pp. 42-53.
- [2] The EBR-II Fuel Cycle Story, Charles E. Stevenson, American Nuclear Society pp. 16-25.

몬테칼로 기법을 적용한 MUF 불확도 검증 방안 연구

원병희*, 안성규, 한보영, 신희성, 박세환, 김호동

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*wonbh@kaeri.re.kr

1. 서론

미계량 핵물질(Material Unaccounted For, MUF) 불확도는 핵물질 처리 시설에서 계량 장치의 측정 오차로 인해 발생하는 MUF의 표준편차이다. 미계량 핵물질은 전용이 없는 정상 운전 상태에서는 존재하지 않지만, 각각의 핵물질 계량 장치는 측정 오차를 항상 내재하고 있기 때문에 정상 운전 중일지라도 오차로 인해 미계량 핵물질의 값이 나타나게 된다. 이러한 이유 때문에 핵물질 전용 여부 평가 시에 MUF 불확도는 중요한 척도가 된다. 시설 건설 이전에 안전조치성 평가를 위해서는 전산모사를 통한 MUF 및 MUF 불확도 평가가 요구되며, 이러한 핵물질 계량 시스템의 시뮬레이션 수행을 위해서는 몬테칼로 기법이 적용된다. 일반적으로 MUF 불확도는 오차 전파(Error Propagation)에 의해 평가되지만 계량 장치의 측정 오차, 핵물질 계량 방법 및 주기, 계량 장치의 교정 주기, 핵물질 양, 운전 시나리오 등 다양한 요소가 MUF 불확도에 영향을 미치기 때문에 다른 방법을 이용한 불확도 검증을 수행할 필요성이 있다. 몬테칼로 기법을 적용한 시설의 핵물질 계량 시스템 시뮬레이션은 안전조치성 평가뿐만 아니라 오과 전파에 의해 결정된 MUF 불확도를 상호 검증하는 수단으로도 이용이 가능하다. 따라서 본 연구에는 핵물질 처리 시스템에서 다양한 인자들에 의해 도출된 MUF 불확도와 몬테칼로 기법을 적용하여 핵물질 계량 시뮬레이션을 통해 도출된 MUF 샘플이 분포된 값을 비교함으로써, 시뮬레이션 및 오과 전파에 의해 평가된 MUF 불확도가 올바르게 평가되었는지 상호 검증하는 연구를 수행하였다.

2. 본론

2.1 MUF 불확도 검증 대상 시설

본 연구는 AGNS(Allied-General Nuclear Services) 시설의 PPP(Plutonium Purification Process)[1]를 대상으로 MUF 불확도 검증을 수행하였다. Fig. 1과 같이, PPP의 측정 지점은 입력 및 출력 물질이 이동하는 유통 주요측정지점

(Flow Key Measurement Point, 2개 지점)과 재고 주요측정지점(Inventory KMP, 7개 지점)으로 구성되어있다. 검증 대상 시설은 정상 상태에서 운전된다고 가정되기 때문에 핵물질 전용은 발생하지 않으며, 재고 KMP에서의 핵물질의 양도 운전기간동안 항상 동일하게 유지된다고 가정하였다. 또한, 본 대상 시설은 매 8시간 주기로 핵물질 계량을 수행한다고 가정하였으며, 측정 주기는 8 시간, 1 일, 1 주일, 2 주일, 1 달로 설정하였다.

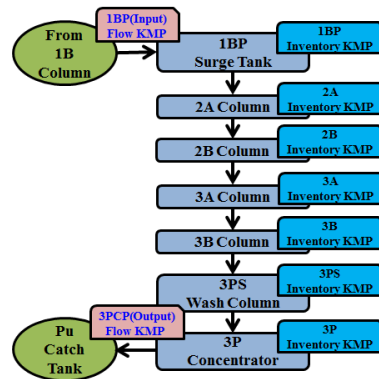


Fig. 1. Plutonium Purification Process Accounting Area.

Table 1는 PPP의 입력 및 출력 측정 지점에서 8 시간동안 이동하는 물질의 양 및 핵물질 농도와 재고 KMP에 존재하는 핵물질 양을 나타내며, 해당 계측 장비의 랜덤오차와 계통오차의 불확도 값을 나타낸다.

Table 1. Plutonium Concentrations, Flow Rates, In-process Inventory, and Material Accounting Measurement for PPP

Stream	Fow (L/h)	Pu Concentration (g/L)	Flow Key Measurement Points	
			Standard Deviation of Random Error (1σ, %)	Standard Deviation of Systematic Error (1σ, %)
1BP	400	5	1.4	0.6
3PCP	8	250	1.4	0.6

Inventory Key Measurement Points			
Identification(i)	Pu Inventory (kg)	Standard Deviation of Random Error (1σ, %)	Standard Deviation of Systematic Error (1σ, %)
1BP Tank	7.4	4.2	0
2A	4.6	10.0	0
2B	2.8	10.0	0
3A	5.4	10.0	0
3B	4.8	10.0	0
3PS	1.2	10.0	0
3P	15	1.5	0

2.2 MUF 불확도 검증

해당 측정 기간 동안 오차 전파에 의한 측정 불확도(σ)는 식 1[1]에 의해 나타내며, N은 Material Balance 수, m는 해당 KMP에서 8 시간 동안 측정되는 핵물질 양을 나타낸다. 첫 번째 항은 입력 물질 계량에 대한 분산, 두 번째 항은 출력 물질 계량에 의한 분산, 마지막 항은 재고 물질의 측정에 오차에 의한 분산 값이다. 모든 핵물질 계량 장치는 공정 운영 중에 교정(Recalibration)을 수행하지 않는다고 가정하였다.

$$\sigma_{MUF}^2 = [N \cdot m_{1BP}^2 (\sigma_{r,1BP}^2 + \sigma_{s,1BP}^2) + N(N-1)m_{1BP}^2 \cdot \sigma_{s,1BP}^2]_{Input} + [N \cdot m_{3PCP}^2 (\sigma_{r,3PCP}^2 + \sigma_{s,3PCP}^2) + N(N-1)m_{3PCP}^2 \cdot \sigma_{s,3PCP}^2]_{Output} + \sum_{i=1}^7 [2m_i^2 \cdot \sigma_{ri}^2]_{Inventory} \quad (1)$$

몬테칼로 기법을 이용한 핵물질 계량 시뮬레이션은 해당 KMP에서의 랜덤 및 계통오차의 표준편차(1σ)에 의해 결정된 정규분포로부터 무작위 난수를 이용하여 오차 값(ϵ , η) 샘플링을 수행하였으며, 해당 값들은 식 2와 같이 측정값을 샘플링 하는데 적용하였다.

$$m_m = m_i (1 + \epsilon + \eta) \quad (2)$$

측정은 매 8시간 마다 입력 및 출력 물질의 측정 위치에서 측정값을 샘플링하고 재고 KMP에서는 처음과 마지막에서만 측정을 수행하여 MUF 값을 도출하였다. 시뮬레이션을 통하여 100,000 번 MUF 값 평가 후, 해당 값들의 분포로부터 MUF 불확도(σ_{MUF})를 결정하였다.

Table 2는 PPP에서 오차 전파와 몬테칼로 기법을 적용한 시뮬레이션을 통하여 도출한 MUF 불

확도 평가 결과를 보여준다. 표에서 보듯이, 서로 다른 방법에 의해 평가된 MUF 불확도 값은 거의 동일한 결과를 나타냈으며, 이는 오차 전파에 의한 평가와 시뮬레이션을 적용한 평가가 모두 오류 없이 수행되었음을 의미한다.

Table 2. MUF Uncertainty in Error Propagation and Simulation

Accounting Period	Number of Material Balance	MUF Uncertainty (1σ, kg)	
		Error Propagation	Monte-carlo Simulation
8 hour	1	1.4391	1.4355
1 day	3	1.5540	1.5533
1 week	21	3.4320	3.4299
2 week	42	6.0794	6.0682
1 month	84	11.5492	11.5706

3. 결론

본 연구에서는 대상 재처리 시설에서 핵물질 계량 시 측정 오차로 인해 발생하는 MUF 불확도 평가를 서로 다른 두 가지 방식으로 진행하여 검증하는 방안에 대해 수행하였다. MUF 불확도 검증 결과, 다양한 측정 기간 동안 오차 전파 식에 의한 값과 시뮬레이션을 통하여 도출한 MUF 불확도와 거의 동일한 값을 보이는 것을 확인하였다. 실제 공학 규모의 파이로 시설은 다양한 핵물질 계량 시스템이 적용되어 있으며, 복잡한 핵물질 흐름 등 MUF 불확도 평가에 영향을 주는 다양한 인자들이 존재한다. 따라서 본 연구를 통하여, 기본적으로 오차 전파에 의해 도출된 MUF 불확도는 시뮬레이션을 통해 도출된 MUF 불확도와 비교 검증을 수행함으로써, 사전에 발생할 수 있는 오류 등을 상호 보완할 수 있을 것으로 기대된다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

5. 참고문헌

- [1] Darryl B. Smith et al., Dynamic Materials Accounting Systems, Los Alamos Science, 1980.
- [2] Jaech, J. L., Statistical Methods in Nuclear Material Control, TID-26298, U.S. Gov't Printing Office, Chpt. 6, 1973.

사용후핵연료 산화처리 이중반응장치 설계

김영환*, 이재원, 이광연, 이주호, 이정원

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*yhkim3@kaeri.re.kr

1. 서론

경수로 사용후핵연료(Spent Fuel : SF)를 재활용할 수 있는 파이로 프로세스(Pyro-process) 공정의 전처리를 위해서는 절단연료봉을 산화 처리하는 공정이 선행되어야 한다. 산화처리 장치는 전기 금속 환원 장치에 원료물질을 공급하기 위하여 U_3O_8 의 미세 분말을 만들어 원료물질 성형기에 공급하기 위한 장치다. 본 연구에서는 산화처리장치 회수율 성능향상을 위해서 기존장치(prototype)의 산화 처리장치 1차 성능시험을 수행하였다. 또한 그 결과를 분석하여 회수율 향상을 위한 반응기 크기를 결정하고 반응기구조를 회전 메쉬형 이중구조 드럼반응장치를 도출하였다. 이 장치의 원리와 구성은 다음과 같다. 투입된 연료봉의 펠렛은 500℃의 반응기A에서 산화되고 반응기B에 투과하여 균질한 분말을 형성한다. 또한 역회전시키면 분말과 피복관은 각각 분리된다. 장치는 반응기모듈, 구동모듈, 히터모듈, 지지대모듈, 배출부 모듈 등으로 구성하였다. 또한 개선사항을 반영하여 산화탈피복 이중반응장치를 설계·제작하였으며, 2차 성능시험을 수행하였다. 30 mm 피복관과 모의분말(구슬)을 이용하여 개선 장치 성능시험을 수행한 결과, 피복관 회수율은 100%, 모의분말 회수율은 99% 이상 되었다.

2. 본론

2.1 산화처리장치(prototype) 성능시험

Fig. 1-a와 같이 산화처리 장치 성능시험을 수행하였다. 그 결과 반응기 가스 누수(leak) 여부 및 반응기 회전구동, 투입/배출밸브 구동 및 원격운전시험이 양호하였다. 또한 승온시험 및 반응가스 공급 시 500℃ 유지시험에서 Fig. 1-b와 같이 500℃ 분위기에 안정화되기까지 온도상승률(heating rate)은 3.3℃/min로서 150분 소요되었고, 온도는 16 시간동안 일정하게 유지되었다. 또한 입력산소농도 (O₂) 50%에서 반응기 포화시간이 37 분 소요됐으며, O₂ 5%에서는 반응기 포화시간이 150 분 소요되면서 정확하게 제어되었다.

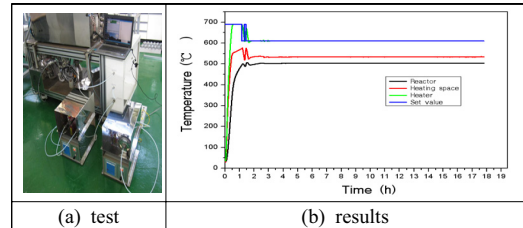


Fig. 1. Heating test of prototype device.

2.2 산화처리장치(prototype) 피복관 회수율시험

Fig. 2와같이 회전로는 5rpm 조건으로 500℃에서 50mm 2.5kg의 Zry-4 피복관 132개를 이용하여 분리시험을 수행하였다. 그 결과, 피복관 회수율이 98%였다. 2%의 피복관이 회수되지 않은 이유는 일부 피복관들이 45°의 투입구 각도에 의한 가속도증가와 회전되는 반응기의 원심력에 의해 회수용기로 미리 들어갔으며, SUS 304 재질인 스크루와 지르칼로이 재질인 연료봉의 열팽창차이로 반응기 내부에 끼임 현상이 발생하였기 때문이다.

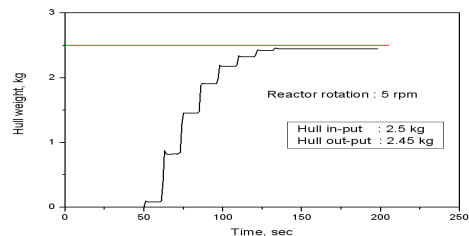


Fig. 2. Recovery efficiency of prototype device.

2.3 산화처리장치(prototype) 개선사항 도출

스크루끼임 현상을 방지하기 위하여 인코넬(Inconel 600)의 열변형량 식 1에서 Solid Works를 이용하여 스크루의 경우 재질이 SUS 304, 인코넬(Inconel 600)의 열변형량과, 연료봉인 Zry-4의 열팽창 변형량(Fig. 3-a)을 계산하고 스크루 피치 크기 결정하였다. 투입구 각도를 45°에서 37°로 변경했으며, SUS 304재질인 반응기를 부식저항이 강한 인코넬(Inconel 600)로 하였다. 또한 PWR 16x16 연료봉크기(φ9.5mm, 길이 3cm)를 기준으로 사용후핵연료 펠렛 부피와 연료봉체적을 고려하여 식 2과 Fig. 3-b에 의해 반응기 크기를

를 결정하였으며 반응기 구조를 회전 메시형 이중구조 드럼반응장치로 개선하였다.

$$\lambda = \alpha (T_2 - T_1) \cdot L \quad (\text{식1})$$

(λ : 변형량, α : 열팽창계수, T_2 : 상승온도, T_1 : 초기온도, L : 길이)

$$V(L, R, h) = L[R^2 \cos^{-1}\left\{\frac{(R-h)}{h}\right\} - (R-h)(2Rh-h^2)^{1/2}] \quad (\text{식2})$$

(RRA: 반응기A 반경, RRB: 반응기B 반경, hRA: 반응기A 피복관 높이, hRB: 반응기B 분말높이)

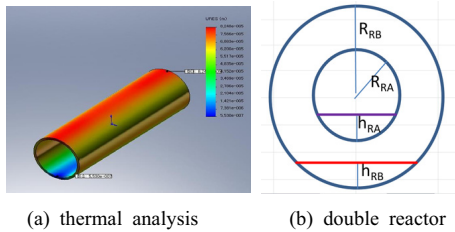


Fig. 3. Thermal analysis of tube and reactor size.

2.4 이중반응기 제작

Fig. 4-a는 헬, 분말회수율과 펠렛 산화효율을 향상시킨 산화탈피복 이중반응기 구조이다. 그림에서 보면 투입구에 투입된 절단 연료봉은 회전되는 반응기A에 투입되어 500℃에서 반응을 하며 절단연료봉 안에 있는 펠렛이 산화되어 분말이 반응기B에 낙하하여 균질 되고 안정된 산화분말을 형성한다. 또한 이중 반응기를 역회전시키면 분말과 피복관은 각각 분리되는 구조이다.

Fig. 4-b와 같이 개선사항을 반영하여 산화탈피복 이중반응기를 설계·제작하였다. 장치의 크기는 길이 150mm x 넓이 120mm x 높이 160mm이며 각각의 반응기모듈, 구동모듈, 히터모듈, 지지대 모듈, 배출부 모듈 등으로 구성하여 원격운전 및 유지보수성을 고려하여 제작하였다.

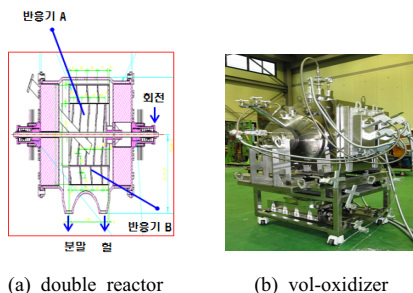


Fig. 4. Improved reactor and device.

2.5 개선 산화처리장치 성능시험

산화탈피복 이중반응기를 이용하여 장치 성능시험을 수행하였다. 분말대응으로 $\phi 3\text{mm}$ 구리구슬

110g을 사용하여 투입대비 저울측정 회수율 결과, 분말회수율은 100%이상 회수되었다(Fig.5-a, Fig.5-c). 또한 Fig. 5-b와 같이 사용후핵연료 1kg에 해당하는 절단 지르칼로이(Zry-4) 피복관 ($\phi 9.5 \times L30\text{mm}$) 53개를 사용하여 회수율 측정시험을 수행하였다. 측정결과 회수시간은 150초 정도 소요됐으며 100% 회수되었다(Fig.5-c).

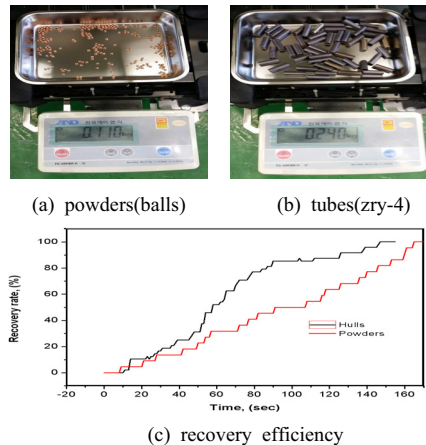


Fig. 5. Recovery efficiency of tube and powders.

3. 요약

산화탈피복 장치 개선 및 성능시험을 위하여 기존 단일반응기 구조의 산화처리 장치(prototype)의 승온시험 및 피복관 회수율 성능시험을 수행하여 펠렛 투입구 각도, 반응기구조 등 원격성을 고려한 산화탈피복 개선사항을 도출하였다. 또한 헬/분말 분리회수율과 펠렛 산화효율을 향상시킨 1 kg/batch 산화탈피복 이중반응 장치를 설계/제작하였다. 개선장치의 피복관 (길이 30mm)과 스테인레스 구슬(SUS: 직경 3 mm)의 분리 회수시험 결과, 피복관은 100%, 분말은 100% 분리 회수됨을 확인하였다. 개선 산화탈피복 이중반응장치를 사용한 산화시험 평가 자료 및 설계자료 확보하였다.

4. 감사의 글

이 논문은 2012년도 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(원자력기술개발사업, No. 2012M2A8A5025696)

5. 참고문헌

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

수정된 Shrinking Cylinder Model에 근거한 저온 Voloxidation 공정모델링에 관한 연구

이주호*, 전상채, 이재원, 김영환, 강상준, 이광연, 박근일
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*jhlee835@kaeri.re.kr

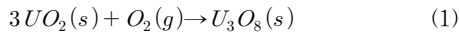
1. 서론

저온 산화회발공정(low-temperature voloxidation process)은 이산화우라늄을 산소와 반응시켜 U_3O_8 형태로의 전환과 동시에 삼중수소를 99%이상 휘발하는 것을 목표로 한다. U_3O_8 로의 전환율은 시간에 대해 sigmoid거동을 보여주는데 이러한 특성들은 주로 핵성장(nucleation and growth)모델에서 구현되므로 저온 산화회발 공정 해석에는 주로 이 모델을 사용하고 있는 실정이다.[1] 하지만 이러한 접근은 UO_2 펠렛의 물리적인 특성을 적절히 반영하지 못하는 문제점을 지닌다. 최근에 UO_2 펠렛의 산화거동을 해석하기 위해서 shrinking core model에 근거한 모델이 제안되었는데[2] 본 연구에서는 이 모델이 실제 현상을 규명하는데 적합한지 검토하고, 실험현상을 규명할 수 있도록 수정된 모델식을 제안하고자 한다.

2. 본론

2.1 Shrinking Cylinder Model

Shrinking core model은 구형의 입자가 시간이 경과할 때 수축하는 현상을 반응과 확산 메커니즘의 수학적 모델링을 통해 구현한다. 크게 5가지의 단계들을 가정하고 이를 통해 수축 현상을 모델링 하고자 하지만 본 연구에서 다루는 주된 반응식이 (1)과 같이 고체생성물이 얻어지는 경우에는 크게 두 단계만 고려해도 위 현상을 규명할 수 있음이 밝혀졌다[2].



첫 번째 단계에서 산소분자는 외부로부터 생성물로 형성된 층을 투과(또는 통과)하여 미반응한 입자와 접촉하며 두 번째 단계에서는 입자의 표면에서 반응을 수반한다. 본 연구에서 다루고자 하는 대상 시스템을 Fig. 1에 나타내었다.

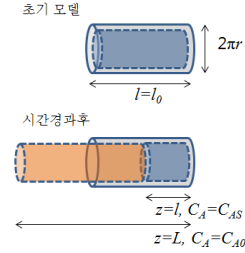


Fig. 1. Shrinking cylinder model.

회색의 원통은 피복관을, 파란색의 원통은 UO_2 를, 주황색의 원통은 반응생성물인 U_3O_8 을 나타낸다. U_3O_8 의 경우 밀도가 UO_2 보다 작으므로 시간경과시 피복관 외부로 방출된다고 가정하였다.

산소분자에 대한 확산속도 w_1 과 UO_2 표면에서의 반응속도 w_2 는 다음과 같다.

$$w_1 = \pi r_2 D_{eff} \frac{dC_A}{dz} = \pi r_2 D_{eff} \frac{C_{A0} - C_{AS}}{L - l} \quad (2)$$

$$w_2 = \pi r^2 k_1 C_{AS} \quad (3)$$

D_{eff} 는 산소분자의 U_3O_8 층으로의 확산계수를, k_1 은 반응속도상수를 나타낸다. 산소분자는 위 메커니즘동안 축적되지 않는다고 가정하면 준 정상상태(pseudo steady state)를 가정할 수 있으며 이러한 조건 하에서 확산속도 w_1 과 반응속도 w_2 는 같은 값을 가진다. 위 제한조건으로부터 UO_2 펠렛의 길이와 시간은 다음과 같은 관계식을 지닌다.

$$\frac{dl}{dt} = - \frac{3k_1 C_{A0}}{\rho_B \left(1 + \frac{k_1(l_0 - l)\rho_B}{D_{eff}\rho_C} \right)} \quad (4)$$

ρ_B 는 UO_2 의 밀도를, ρ_C 는 U_3O_8 의 밀도를 나타낸다. 위 식을 전환율 X의 형태로 표현하면 다음과 같다.

$$\frac{dX}{dt} = \frac{A}{1 + BX} \quad (5)$$

여기서 $A=3k_1C_{A0}/l_0/\rho_B$, $B=l_0k_1\rho_B/D_{eff}/\rho_C$ 를 가진다.

2.2 Modified Shrinking Cylinder Model

UO₂의 산화반응에 대한 실험자료들의 분석결과, 전환율은 시간에 대해 약간 기울어진 S형태를 보이는데 이는 초기 전환 속도와 반응종료 근처에서의 전환속도가 매우 낮은 값을 가진다는 것을 의미한다. 식 (5)를 통한 전환율과 시간의 관계는 Fig. 2에 의해 보여지듯이 이러한 실제 경향을 구현하지 못한다는 문제를 지닌다.

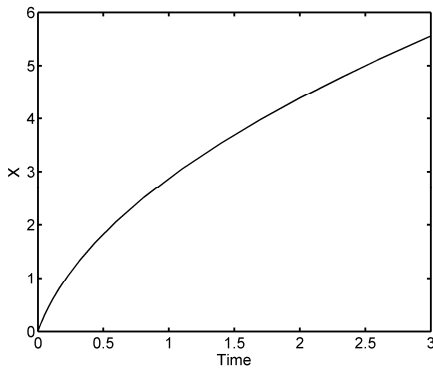


Fig. 2. Calculated conversion curve by eq (5) at $A=7$, $B=1$.

식 (5)가 실제 현상을 규명할 수 있도록 다음과 같은 가정들을 도입하여 수정한다.

- 산소분자의 확산계수는 U₃O₈의 생성층이 성장할수록 감소하며[2] $X=1$ 이 될 때 0이 된다.
- 반응의 초기 단계에서 기체분자는 반응물 표면에 흡착된 후 반응을 하므로 상당한 시간이 소요되며 이러한 현상은 표면 활성화 공정효과(surface activation effect)를 도입하여 고려할 수 있다. [3]

위 두 효과를 고려하면 식 (5)를 다음과 같이 수정할 수 있다

$$\frac{dX}{dt} = \frac{A}{1 + BX/(1-X)} (1 - e^{-t/t_d}) \quad (6)$$

Fig. 3은 수정된 식 (6)으로 계산한 결과를 보여주며 시간이 증가할 때 sigmoid 거동을 보여줌으로 실제 U₃O₈로의 전환율 실험데이터를 해석할 수 있음을 보여준다.

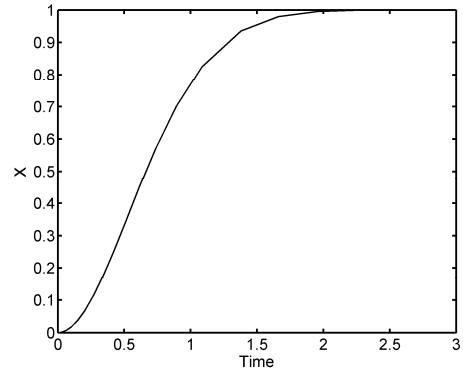


Fig. 3. Calculated conversion by eq (6) at $A=7$, $B=1$, $t_d=2$.

3. 결론

본 연구에서 제안한 수정된 Shrinking Cylinder Model은 최소화된 매개변수를 통해 실험데이터의 경향을 나타낼 수 있음이 밝혀졌다. 추후 실험데이터와의 회귀분석을 통해 Voloxidation 공정 해석에 사용할 수 있음을 보이고자 한다.

4. 감사의 글

이 논문은 2012년도 교육과학기술부의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(원자력기술개발사업, No. 2012M2A8A5025696)

5. 참고문헌

- [1] T.G. Stanford, "Mathematical Modeling of the Voloxidation Process", DOE/ET/00944-1, 1999.
- [2] J.A. Johnson, Ph.D dissertation, University of Tennessee, 2013.
- [3] M.D. Shieh and C. Lee. Chemical Engineering Science, Vol. 47, No. 15-16, pp. 4017-4025, 1992.

500℃ LiCl-KCl 용융염 내 Ce³⁺이온과 Nd 금속 간의 반응에 관한 연구

신정식*, 김택진, 심준보, 백승우, 김광락, 김가영, 정재후
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*jsshin@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료 건식처리 주요공정은 전해환원, 전해정련 및 전해제련 공정 등으로 구성된다. 전해제련 공정은 정련공정 후 LiCl-KCl 염에 있는 우라늄과 TRU 원소들을 액체카드뮴음극(Liquid Cadmium Cathode; LCC)을 이용하여 회수하는 LCC 제련 공정과 LCC 제련 공정 후 용융염으로부터 잔류하는 악티늄족 원소를 최대 회수하는 RAR(Residual Actinides Recovery) 공정으로 이루어져 있다[1]. 본 연구에서는 전해제련 공정의 용융염 내에 이온으로 존재하는 희토류 원소(REs)와 LCC에서 전기화학적으로 환원되어 금속 형태로 존재하는 REs와의 반응성을 확인하기 위한 실험을 수행하였다.

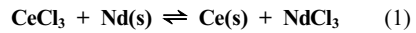
2. 본론

RAR 공정 장치에서 사용하는 LCC를 악티늄족 금속의 선택적 회수 측면에서 보면 LCC 도가니에 들어있는 내용물의 밀도 차이가 RAR 공정에서 악티늄족 금속이 선택적으로 회수되는 고유특성에 기여한다. 전해회수 과정에서 과량으로 공전착된 REs 금속은 액체 Cd에 비해 밀도가 작아 LCC의 상부에 위치하고 악티늄족 금속은 액체 Cd보다 밀도가 훨씬 크기 때문에 LCC 하부에 가라앉아 편재된다. 이러한 환경에서의 액체 Cd위에 REs 금속과 용융염 내 이온으로 존재하는 REs의 반응성을 살펴보기 위해 Gibbs free energy 값의 차이가 적은 Ce와 Nd를 선택하였으며 두 원소의 Gibbs free energy 값은 Table 1과 같다.

Table 1. Chemical property of Gibbs free energy

Reaction at 500℃	Literature	HSC 6.0
	$-\Delta G_f^\circ$ (kJ/g-equiv.-Cl)	$-\Delta G_f^\circ$ (kJ/g-equiv.-Cl)
Ce + 1.5Cl ₂ (g)	287.37	287.828
Nd + 1.5Cl ₂ (g)	281.45	284.232

아래 반응식에서



Ce와 Nd의 ΔG 값을 살펴보면 Ce의 ΔG 값이 더 크기 때문에 Ce³⁺이온과 Nd 금속의 반응은 잘 일어나지 않을 것으로 예상되었다.

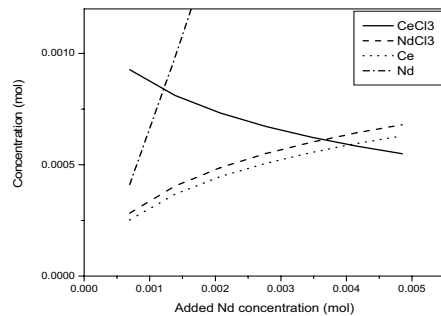


Fig. 1. Calculation result of Ce³⁺ and Nd metal reaction using the HSC 6.0.

이를 좀 더 구체적으로 확인하기 위해서 HSC 6.0 프로그램을 이용하여 Ce³⁺와 Nd 금속의 반응성을 검토하였다. 계산조건은 온도 500℃에서 LiCl-KCl 용융염 대비 1.0wt% CeCl₃와 과량의 Nd 금속을 7회에 걸쳐 계산한 결과 Fig. 1과 같은 그래프를 얻을 수 있었다. Fig. 1을 살펴보면 CeCl₃의 농도는 줄어드는 반면 NdCl₃의 농도는 증가하는 것을 확인할 수 있었다. 따라서 위의 계산 결과를 입증하기 위해서 계산 조건과 동일한 조건에서 실험을 수행하였다.

반응 시간에 따른 Ce³⁺과 Nd³⁺의 농도 변화를 확인하기 위해서 선행 실험에서 UV-Vis 스펙트럼을 이용해서 얻은 Ce³⁺, Nd³⁺의 농도 Calibration curve를 이용하였다[2].

Ce³⁺와 Nd 금속의 반응성에 대한 실험은 산소와 수분의 농도가 5ppm 이하로 유지되는 Ar 분위기의 Glove box 내에 설치된 furnace에서 수행되었다. LiCl-KCl(99.99%)와 CeCl₃(99.9%)의 무게는 HSC 6.0의 계산 조건과 동일하게 적용하였으며

반응기는 알루미늄 재질의 도가니를 사용하였다. 일반적으로 Nd 금속은 표면에 산화막이 존재하게 되는데 반응에 방해요인이 되므로 실험 전에 미리 산화막을 제거한 후 다공성 SiC 도가니에 넣어 대류에 의한 확산으로 Ce^{3+} 와 Nd 금속이 반응하도록 하였으며 두 반응이 평형상태가 되도록 충분한 시간을 두고(약 7일) 실험을 수행하였다. (Fig. 2)



Fig. 2. Experimental preparation of Ce^{3+} and Nd metal reaction.

Fig. 3과 Fig. 4는 Ce^{3+} 이온과 Nd 금속의 반응시간에 따른 흡광도 변화를 나타내는 UV-Vis 스펙트럼이다. Nd 금속을 넣기 전의 LiCl-KCl 용융염 내 Ce^{3+} 의 흡광도는 0.752이며 농도 Calibration curve를 이용하여 계산해 본 결과 1.01wt%가 용융염에 존재하는 것을 확인 하였으며 실제 넣어준 Ce^{3+} 의 농도와 매우 유사한 값을 보여주었다. 실험 종료 후 Ce^{3+} 의 농도는 0.31wt%로 감소하였고 Nd^{3+} 의 농도는 0.39wt%로 증가하는 것을 확인 하였다. 또한 Ce^{3+} 이온과 Nd 금속의 반응이 진행되면서 흡광도의 변화의 폭이 점점 줄어드는 것으로 보아 평형상태에 도달했다는 것을 알 수 있었다.

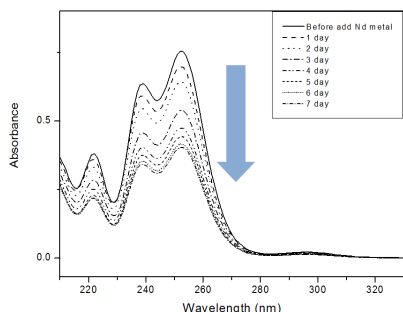


Fig. 3. UV-Vis spectrum of Ce^{3+} at various concentrations.

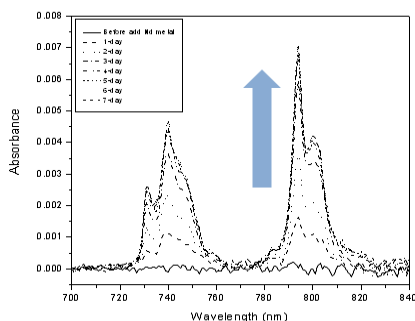


Fig. 4. UV-Vis spectrum of Nd^{3+} at various concentrations.

3. 결론

본 연구는 전해제련공정 중 REs 금속과 용융염 내에 이온으로 존재하는 REs의 반응성을 확인하기 위해 Ce^{3+} 이온과 Nd 금속을 사용하여 실험을 수행하였다. 실험 전에 HSC 6.0 프로그램을 이용하여 두 원소의 반응성을 계산한 결과, Ce^{3+} 이온과 Nd 금속의 반응이 진행되는 것으로 나타났으며 계산 결과와 유사한 실험 결과를 얻을 수 있었다. 따라서 전해제련공정 중 환원된 REs 금속과 용융염에 이온으로 존재하는 REs 간의 반응정도를 공정 시간을 고려해서 예측해 볼 수 있을 것으로 기대한다. 향후 실험에서는 Gibbs free energy 값의 차이가 가장 큰 두 원소를 선택하여 반응여부에 대한 연구를 수행할 예정이다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] J. B. Shim et al., Proceedings of Global 2009, pp.1207-1213, 2009.
- [2] 신정식, 김택진, 심준보, 백승우, 김광락, 김가영, 김시형, 정재후 한국분석과학회 2013년 추계학술대회 p.158.

사용후핵연료 건식저장시설의 염해영향에 대한 잔존내구수명 평가

성낙훈^{1*}, 최규섭¹, 표원삼¹, 정성환²

¹(주)코네스코퍼레이션, 서울특별시 서초구 명달로 65 일홍스포텍스 5층

²한국수력원자력(주)중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1321번길 70

*sung@kones21.com

1. 서 론

건설재료에서 가장 큰 비중을 차지하는 콘크리트는 내구성이 우수하여 반영구적인 구조물의 축조에 사용되어 왔다. 그러나 콘크리트 구조물이 오랜 기간 동안 공기 중의 이산화탄소 등에 노출되어 콘크리트가 탄산화되거나, 겨울철에 눈이나 얼음을 녹일 목적으로 사용되는 제빙화학제 및 해양환경 하에서는 염화물의 침투 및 확산에 의하여 콘크리트 속에 묻힌 철근이나 PS 강재는 부식하게 된다. 또한 철근의 부식으로 인하여 발생하는 체적팽창압에 의하여 콘크리트의 균열 및 박리가 발생하며, 심할 경우 철근콘크리트 구조물은 붕괴하게 된다. 해안가에 위치한 중수로 사용후핵연료 건식저장시설은 염해환경에 노출되어 있으므로, 염소이온의 침투로 인한 철근부식 발생 우려가 일반환경의 콘크리트 구조물에 비해 매우 높은 실정이다. 따라서 염해환경에 노출된 시설의 잔존내구수명을 평가함으로써 콘크리트 구조물의 염해에 대한 건전성 여부를 파악하고 적절한 대책을 수립하면 보다 합리적이고 효율적인 유지관리가 이루어지리라 판단된다. 이를 위하여 중수로 사용후핵연료 건식저장시설의 콘크리트 사일로에 대하여 설계·시공자료와 사일로 본체 구조물에 영향이 없는 부위에서 코어($\phi 50 \times 70\text{mmL}$)를 채취하고 염소이온량 등의 실측자료를 활용하여 미국콘크리트학회 수명평가위원회(Committee 365)에서 개발된 결정론적 방법의 프로그램으로 시설의 염해영향에 대한 잔존내구수명을 평가하였다.

2. 본 론

2.1 평가방법

콘크리트 구조물에 대한 정량적인 내구수명 평가는 크게 결정론적인 방법과 확률론적인 방법으로 구분되는데, 미국 콘크리트학회 수명평가위원회에서 개발된 Life-365 프로그램이 전자에 해당되며, 유럽에서 개발된 DuraCrete 모델이 후자에

해당된다. 콘크리트 사일로로는 정성적인 방법으로 설계·시공되었으므로 결정론적인 방법인 Life-365 프로그램을 사용하여 시설의 잔존내구수명을 평가하였다.

2.2 건식저장시설 개요

중수로 사용후핵연료 건식저장시설인 콘크리트 사일로의 개요는 Table 1과 같다.

Table 1. Summary of concrete silos

시설명	구 분	내 용
콘크리트 사일로	1차분 준공년도	1992.4 (22년 경과)
	피복두께	76mm(3inch)
	물-시멘트비	40%
	설계기준강도	30MPa
	시멘트 종류	내황산염 시멘트
	환경조건	동해안 (해안 430m 이격)

2.3 입력변수

2.3.1 콘크리트 표면 염소이온농도(C_0)

콘크리트 표면의 염소이온농도를 결정하는 방법은 깊이에 따른 염소이온량을 바탕으로 비선형 회귀분석을 통하여 추정하는 방법과 표면에서 가장 가까운 부분의 염소이온량을 측정하는 방법이 있다. 전자는 추정된 표면의 염소이온량이 깊이에 따른 염소이온량의 분포상태에 따라 크게 영향을 받으므로, 후자와 같이 깊이 0~5mm 정도로 표면과 가장 가까운 부분에서 채취한 시편을 사용하여 표면의 염소이온량을 측정하였다.

2.3.2 철근부식 임계 염소이온농도(C_{lim})

콘크리트 표준시방서(내구성편)에서 콘크리트의 철근부식 임계 염소이온농도는 단위결합재량(단위시멘트량)의 0.4%로 규정하고 있다. 콘크리트 사일로의 콘크리트 기준강도가 30MPa이므로 단위

시멘트량을 약 350kg/m^3 으로 추정하여 철근부식 임계 염소이온농도는 $1.4\text{kg/m}^3 (=350\text{kg/m}^3 \times 0.004)$ 으로 선정하였다.

2.3.3 염소이온 확산계수(D)

일반적으로 염소이온 확산계수는 순수확산에 의한 방법과 전기화학적 촉진시험법에 의해 측정된다. 순수확산에 의한 방법 중 하나인 침지시험은 시편을 염소이온용액에 침지시켜 자연상태로 염소이온 농도구배에 의해 침투된 염소이온의 침투 프로파일 또는 침투깊이를 측정하여 염소이온 확산계수를 결정하는 실험방법이다. 여기서는 침지시험 대신 콘크리트 사일로에서 직접 채취한 $\varnothing 50 \times 70\text{mm}$ 코어의 시편 표면으로부터 일정한 간격으로 염소이온량을 측정한 후, 표면 염소이온농도와 함께 Fick의 제2법칙의 일반해인 식 (1)에 대입하여 콘크리트 시편에 대한 염소이온 확산계수를 구하였다.

$$C_{(x,t)} = C_0 \left[1 - \operatorname{erf} \left(\frac{x}{2\sqrt{Dt}} \right) \right] \quad (1)$$

여기서, $C_{(x,t)}$ 는 시간 t , 깊이 x 의 염소이온농도, C_0 는 표면 염소이온농도, D 는 염소이온 확산계수, erf 는 에리함수(error function)이다.

2.3.4 염소이온 확산계수의 시간의존성 지수(m)

시간에 따른 염소이온 확산계수에 대한 추정은 일반적으로 식 (2)와 같이 표현되는데, 현 재령을 기준으로 확산계수를 구하면 재령 28일 확산계수를 추정할 수 있다. 한편, 공용년수가 오래된 구조물은 확산계수 감소효과가 없으므로, 염소이온 확산계수의 시간의존성지수 $m=0$ 으로 설정하고, 현 재령 기준의 염소이온 확산계수를 입력하면 Life-365 프로그램에 의하여 시설의 잔존내구수명을 구할 수 있다.

$$D(t) = D_{28} \left(\frac{28}{t} \right)^m \quad (2)$$

여기서, D_{28} 은 재령 28일에서의 염소이온 확산계수, t 는 재령(일), m 은 재령에 따른 염소이온 확산계수의 변화를 나타내는 염소이온 확산계수의 시간의존성지수(재령계수)이다.

2.4 평가결과

Life-365 프로그램에 의한 콘크리트 사일로의 잔

존내구수명을 평가한 결과를 Fig.1에 나타내었다. 시설의 잔존내구수명은 약 35~40년 정도로 평가되었다. 이는 사일로의 본체에 직접적인 영향을 주지 않도록 최소크기의 코어($\varnothing 50 \times 70\text{mm}$)를 채취하고 이 코어시편의 염소이온함유량으로부터 염소이온 확산계수를 추정하여 잔존내구수명을 계산한 것이다. 따라서, 보다 신뢰적인 잔존 내구수명을 추정하기 위해서는 구조체에서 1개소당 콘크리트 코어($\varnothing 100 \times 200\text{mm}$) 3개를 채취하여 이들의 전기영동에 의한 염소이온 확산실험으로부터 염소이온 확산계수를 측정한 후 이를 바탕으로 잔존 내구수명을 평가하여야 할 것으로 판단된다.

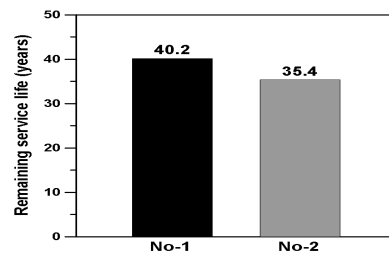


Fig. 1. Evaluation of remaining service life.

3. 결 론

미국 콘크리트학회 수명평가위원회에서 개발된 Life-365 프로그램에 의한 콘크리트 사일로 시설의 잔존내구수명을 평가하였다. 시설의 설계수명 기간에 대하여 염해의 영향으로 인한 건전성은 보장된다고 할 수 있다. 그러나 크기가 작고 적은 수량으로 채취된 코어시편에 대한 염소이온 함유량으로부터 염소이온 확산계수를 추정하여 시설의 잔존내구수명을 계산하였기 때문에 보다 신뢰성이 있는 잔존내구수명을 추정하기 위해서는 콘크리트 사일로의 본체에서 직접 보다 크고 보다 많은 수량의 코어시편을 채취하여 염소이온 확산계수를 측정하고 잔존내구수명을 평가하여야 할 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

- [1] Bentz, E.C, and Thomas, M.D.A. "Manual of Life-365, Computer Program for Predicting the Service Life and Life-Cycle Costs of Reinforced Concrete Exposed to Chlorides", 2001.
- [2] 한국콘크리트학회, "콘크리트 표준시방서 해설", 2009.

염화 우라늄 제조장치의 salt 이송 및 pellet 제조 성능 실험

우문식*, 진형주, 박근일, 박성빈

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*mswoo@kaeri.re.kr

1. 서 론

삼염화우라늄(UCl_3)은 $LiCl-KCl$ 용융염계에서 전기화학적으로 우라늄 전해정련 실시한다. 이때 두 전극 간 전위안정화 및 순수한 우라늄 금속을 전착시키기 위하여 전해정련조 전해질에 약 9wt% 정도의 UCl_3 가 필요하다. 지금까지 UCl_3 제조방법 중 폐기물을 최소화하는 UCl_3 제조방법은 다음 반응식과 같다.

- Cd 염소화반응 : $Cd + Cl_2 \rightarrow CdCl_2$
- U 염소화반응 : $3CdCl_2 + 2U \rightarrow 3Cd + 2UCl_3$

상기 반응식에서 1차적으로 카드뮴(Cd) 금속을 염소가스(Cl_2)와 반응시켜 제조된 이염화 카드뮴($CdCl_2$)를 다시 $LiCl-KCl$ salt에 위치하는 우라늄금속과 반응시켜 UCl_3 을 제조한다.[1] 상기 반응은 반응기에서 동시에 일어나며, 우라늄 금속과 반응 후 우라늄 염소화 반응후 발생하는 카드뮴 금속은 비중차에 의해 반응기 하단으로 이동하여 다시 염소화반응을 거치게 된다. 반응후 UCl_3 salt에 잔존하는 미반응 Cd 금속 및 Cd 금속 화합물은 전해정련 장치에 공급시 고온에서 전기적 문제점을 발생시킬 수 있다. 그리고 UCl_3 salt에 잔존 Cd 물질을 제거한 다음 salt의 정량화 및 이송의 용이성을 향상시키기 위하여 pellet을 제조하는 장치에 salt를 이송하고 pellet를 제조하여야한다. 본 실험은 새롭게 장치를 제작하여 UCl_3 를 제조하기 이전에 salt의 공급 및 용해 그리고 pellet 제조 시험을 통한 장치의 예비 성능 시험을 수행하였다.

2. 본 론

2.1 실험 장치 및 실험

삼염화 우라늄 제조장치의 구성은 UCl_3 제조 반응기, 잔존 Cd 금속 증류 반응기, Pellet 제조 반응 장치로 구성되어 있다. 반응기에 $LiCl-KCl$ 공융염을 공급하고 아르곤 분위기에서 반응기의 내부

온도를 $5^\circ C/min$ 의 승온 속도로 $600^\circ C$ 까지 가열하였다. 3개의 반응기 사이에 salt 이송을 위하여 전기 제어식의 salt 이송관(직경 3/8")을 설치하여 $500^\circ C$ 로 가열된 상태에서 용융된 salt를 감압법으로 잔존 Cd 증류 반응기로 이송하였다. 그리고 CD 증류 장치에서 다시 pellet 제조장치로 용융 salt를 이송하였다. pellet 제조 장치는 $200^\circ C$ 로 예열된 상태에서 mould에 salt를 주입하였고, 주입된 salt는 상온으로 냉각 시킨 다음 pellet 형태의 salt를 mould에서 제거하는 실험을 수행하였다.

2.2 실험 결과

실험 결과 salt의 이송은 이송관의 막힘이 없이 이송이 원활하였고, 이송관 내부에 설치된 온도 측정용 열전대를 통하여 염이송의 전후를 확인할 수 있었다. 이때 온도의 변화는 salt의 이송 전후 $100^\circ C$ 온도 차를 보여 주었다. 이때 salt의 이송을 위한 감압법은 압력 및 salt 이송유량을 조절하는데 어려움이 있으며, 가압법의 경우 유량 조절이 용이하였다. pellet 제조의 경우 mould 및 mould의 내부 온도를 $200^\circ C$ 로 유지시 mould에서 용융 salt의 응고시간이 길어져 mould사이에서 leak가 발생하였다. 따라서 내부 온도를 $90\sim 100^\circ C$ 이하로 운전 할 필요가 있었다. 아래의 그림1은 pellet으로 제조된 salt의 사진으로 mould에서 분리가 매우 양호하게 분리됨을 확인하였다.

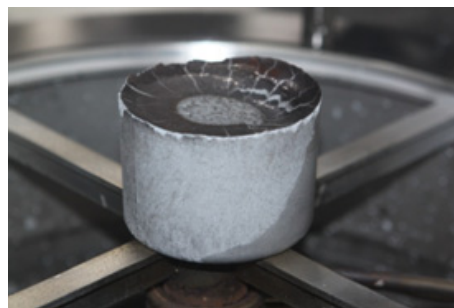


Fig. 1. Salt pellet fabricated by pelletizer.

3. 결 론

UCI3 제조를 위하여 제작된 장치의 주요 반응기의 성능 시험을 위하여 UCI3 제조 반응기와 잔존 Cd 금속 증류기 및 pellet 제조기 사이에 salt의 이송시험 및 pellet 제조 시험을 수행하였다. 실험 결과 LiCl-KCl-UCI₃ salt을 600℃에서 용융시켜 500℃로 예열된 염이송관을 통하여 감압법으로 이송한 결과 이송관의 막힘이 없이 이송되었으나 이송유량을 원활하게 제어하기 위하여 가압법이 양호할 것으로 판단된다. 그리고 pellet 제조를 위하여 mould의 내부 온도는 90℃~100정도로 예열 되는 것이 타당 할 것으로 판단되었다.

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.

후프 응력에 따른 수소화물재배열 현상 및 기계적 물성 변화 평가

김영준*, 국동학

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*yjkim05@kaeri.re.kr

1. 서론

원자로 정상 운전 시 산화반응에 의해 발생한 수소가 피복관 내로 장입되며 원자로 운전 종료 후 사용후핵연료 피복관 내 수소는 습식저장 환경에서 온도가 점차 감소함에 따라 ZrH_x 형태의 수소화물로 석출된다. 이 때 석출되는 수소화물의 방향은 사용후핵연료 피복관의 기계적 물성에 많은 영향을 주며 이에 따라 피복관 제조 시 압연(pilgering) 과정을 통해 수소화물이 원주방향으로 석출되도록 유도한다. 원주방향의 수소화물은 진공건조(vacuum drying) 과정 동안 피복관의 온도가 상승함에 따라 고용되고 건식저장 시 피복관의 온도가 내려감에 따라 서서히 석출된다. 이 때 문턱응력(threshold stress) 이상의 후프 응력(hoop stress)이 발생할 경우 수소화물이 반경방향으로 석출되며 이러한 현상을 수소화물재배열(hydride reorientation)이라 한다. 반경방향의 수소화물은 사용후핵연료 피복관을 취화(embrittlement)시켜 연성-취성 전이온도(Ductile to brittle transition temperature)를 상승시킨다 [1]. 또한 피복관의 취화로 인해 기계적 물성이 급격히 악화되며 사용후핵연료 이송 중 캐스크 낙하 등의 사고에 악영향을 미치게 된다.

이에 따라 건식저장을 시행하는 각국에서는 수소화물재배열의 발생을 억제하기 위하여 피복관의 온도와 피복관 내에 발생하는 후프 응력을 제한하고 있다[2-3]. 수소화물재배열은 후프응력, 온도 이력, 수소농도 등의 영향을 받으며 이에 관한 많은 연구가 진행되고 있다.

본 연구에서는 국내 사용후핵연료의 주요 재료인 지르칼로이-4 피복관을 대상으로 수소화물재배열 시험을 수행하였으며 시험 방법은 튜브에 불활성 기체를 가압하는 방식을 사용하였다. 이를 통하여 후프 응력이 수소화물재배열에 미치는 영향을 평가하고 링 압축 시험을 통해 피복관 기계적 물성 변화를 관찰하였다.

2. 시험재료 및 방법

2.1 시편 준비

본 연구에서는 직경 9.5 mm, 두께 0.57 mm의 응력 이완 열처리 된 지르칼로이-4(stress-relieved Zircaloy-4)를 사용하였으며 기체확산법을 이용하여 약 400℃에서 수소를 장입시켜 수소화된 시편 모사 하였다.

2.2 수소화물재배열 시험

후프응력이 수소화물재배열 현상에 미치는 영향을 평가하기 위하여 Table 1의 시험 조건에서 수소화물재배열 시험을 수행하였다. 250mm 튜브 시편에 아르곤(Ar) 가스를 가압하여 시편에 후프 응력을 가하였으며 시험이 종료된 후 광학현미경을 통하여 수소화물의 조직형태(morphology)를 관찰하였다. 또한 수소화물재배열 시험을 수행하지 않은 시편(ZC20)의 조직형태를 관찰하여 수소화물재배열 시험 전후를 비교 평가하였다.

Table 1. Test condition

	Hydrogen content [ppm]	Temperature [℃]	Hoop stress [MPa]	Cooling rate [℃/min]
ZC20	319±41		-	
ZC05	329±18		90-73	
ZC08	299±27	400	80-66	0.5
ZC14	339±17		70-54	
ZC18	280±9		60-49	

2.3 링 압축 시험

수소화물재배열 현상에 의한 피복관 기계적 물성의 변화를 평가하기 위하여 링 압축 시험을 수행하였다. 링 압축 시험은 10mm의 시편을 이용하여 1mm/min의 변위속도로 상온에서 수행하였으며 시험을 통해 얻은 시험 결과는 시편의 길이에 따른 영향을 최소화하기 위하여 단위면적당 하중(load)으로 나타내었다.

3. 실험결과 및 분석

광학현미경을 통하여 시편의 조직형태를 관찰해 본 결과 최대 후프응력이 90, 80, 70 MPa인 ZC05, ZC08, ZC14 시편의 경우 전체적으로 수소화물재배열이 발생된 것을 확인 할 수 있었다. 최대 후프응력이 60 MPa인 ZC18의 경우 대부분 원주방향의 수소화물 형태를 유지하였으며 일부 미세한 반경방향의 수소화물들이 관찰되었다. 광학현미경을 통해 관찰한 반경방향의 수소화물을 정량적으로 평가하기 위하여 반경방향 수소화물의 평균 길이를 측정하였으며 그 결과 후프응력이 증가할수록 반경방향 수소화물의 길이가 증가하는 것을 확인할 수 있었다. 또한 링 압축 시험을 통해 수소화물재배열 현상에 의한 피복관 기계적 물성 변화를 관찰한 결과 반경방향의 수소화물의 길이가 피복관 연성에 큰 영향을 미치는 것으로 평가되었다. ZC18 시편의 압축 시험 결과를 통해 매우 짧은 반경방향의 수소화물 역시 피복관에 연성에 영향을 미치는 것을 확인하였으며 반경방향의 수소화물의 길이가 증가할수록 피복관의 연성이 감소하는 것을 확인하였다. 특히 400°C, 90 MPa 조건에서 수소화물재배열 시험을 수행한 ZC05 시편의 경우 연성이 크게 감소하였다. 3시와 9시 바깥쪽 부분에서 크랙이 발생하기 시작한 다른 시편들과 달리 ZC05의 경우 크랙이 12시와 6시 안쪽 부분에서 발생하기 시작하였다. 12시와 6시 방향의 크랙이 발생하는 것으로 미루어볼 때 반경방향 수소화물에 의해 취화가 발생된 것으로 판단된다.

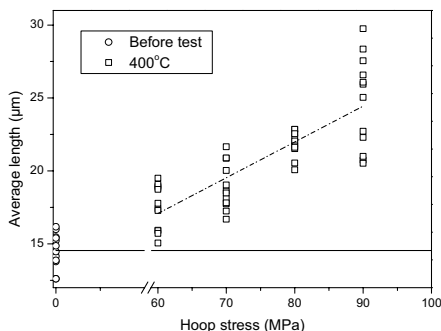


Fig. 1. Radial hydride average length at various hoop stresses.

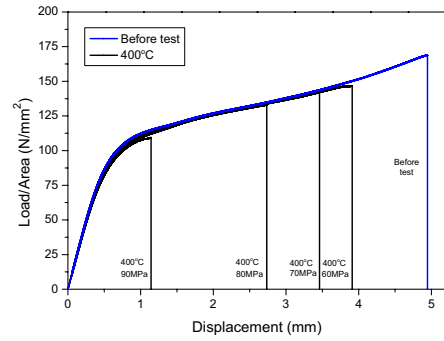


Fig. 2. Load/area-displacement curve of specimen at room temperature.

4. 결론

본 연구에서는 250mm 튜브시편에 불활성 기체를 가압하는 방법을 통해 수소화물재배열 시험을 수행하였으며 후프응력에 따른 수소화물재배열 현상 및 기계적 물성 변화를 관찰하였다. 그 결과 후프 응력이 증가할수록 반경방향 수소화물의 길이가 증가하는 것을 확인하였다. 또한 매우 짧은 반경방향의 수소화물 역시 피복관 연성에 영향을 미치며 반경방향 수소화물의 길이가 증가할수록 연성이 감소하는 것을 확인하였다. 향후 다양한 온도에서 압축 시험을 수행하여 온도에 따른 기계적 물성 변화를 평가할 예정이며 이는 향후 건식저장 건전성 평가 시 기초 자료로 활용될 것으로 기대된다.

5. 참고문헌

- [1] Mike Billone et al, "Ductile-to-brittle transition temperature for high-burnup cladding alloys exposed to simulated drying-storage conditons", Journal of Nuclear Materials, Vol.433, pp.431-448, 2013.
- [2] Interim Staff Guidance 11 (ISG-11 Rev.3), "Cladding Considerations for the Transportation and Storage of Spent Fuel", US NRC, Spent Fuel Project Office, 2003.
- [3] Masaki Aomi et al, "Evaluation of Hydride Reorientation Behavior and Mechanical Property of High Burnup Fuel Cladding Tube in Interim Dry Storage" Journal of ASTM International, Vol.5, No.9.

수송·저장 용기 핵연료집합체 최대 피복관 온도 산출 방법 분석

김형진*, 강경욱, 백창열, 윤시태

한국원자력환경공단, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*hjkim@korad.or.kr

1. 서론

사용후핵연료 수송·저장 용기의 열해석 시 핵연료집합체, 집합체 구조물을 모두 모델링하여 해석을 하는 경우, 전산해석에 많은 시간이 소요되어 설계변경에 의한 재해석을 수행할 경우 효율이 좋지 못하다. 따라서 핵연료소결체, 피복관 및 기타 핵연료집합체를 구성하는 부품들은 실제 열해석 시에는 유효 물성치를 갖는 균질고체로 모델링한다. 이러한 균질고체 모델링에서는 피복관, 소결체, 핵연료봉 사이의 공간 및 소결체와 피복관 사이의 간극에서의 서로 다른 열전달 특성 및 물성치를 구별하지 않는다.

유효물성치를 구하기 위하여 핵연료집합체 단면 2차원 해석을 수행하여 최대 피복관 온도를 산출해야 한다. 최대 피복관 온도를 계산하기 위한 방법은 Two-region 모델, Wooton-Epstein 상관식, ETC(Effective Thermal Conductivity) 모델, CFD(Computational Fluid Dynamics) 방법이 있으며, 계산한 최대 온도를 이용하여 유효물성치를 산출한다.

본 연구에서는 최대 피복관 온도 산출을 위한 방법 중 Two-region 모델, Wooton-Epstein 상관식, CFD 모델에 대하여 살펴보고, 각각의 방법론을 비교해보고자 한다.

2. 최대 피복관 온도 예측 방법

2.1 Two-region 모델

Two-region 모델은 Manteufel과 Todreas에 의하여 개발된 방법[1]으로 사용후핵연료 집합체를 내부 구역(interior region)과 모서리 구역(edge region)으로 나누어 모델링 하는 방법이다. 내부 구역은 유효열전도도, 외부구역은 열 컨덕턴스로 특징 지어진다. Two-region 모델은 2개의 방정식으로 구성되어 있으며, 증진기체 및 핵연료 형태에 따라 다른 상수 값을 갖는다. 본 연구에서는 PWR 15x15(증진기체 헬륨)를 대상으로 하므로, 방정식은 아래와 같으며, 비선형방정식 계산기를

사용하여 값을 산출하였다.

$$Q = 17.38(T_m - T_e) + 3.16(T_m^4 - T_e^4) \quad (1)$$

$$Q = 64.0(T_e - T_w) + 3.83(T_e^4 - T_w^4) \quad (2)$$

2.2 Wooton-Epstein 상관식

Wooton-Epstein 상관식[2]은 17x18 단일 집합체(증진기체 공기)를 사용하여 수행한 실험데이터를 바탕으로 한 실험식이다. 증진기체를 공기로 하여 산출한 식이기 때문에, 증진 기체가 존재할 시 바스켓 온도가 높은 경우에는 보수적인 해석 결과를 보여주며 피복관 온도를 과도하게 예측하는 경향이 있다. 온도 계산을 위하여 사용한 상관식은 아래와 같다.

$$\bar{q} = \sigma \frac{C_1}{\frac{1}{\epsilon_d} + \frac{1}{\epsilon_{ba}} - 1} (T_d^4 - T_{ba}^4) + C_2 (T_d - T_{ba})^{\frac{4}{3}} \quad (3)$$

2.3 CFD(Computational Fluid Dynamics)

CFD 모델의 경우 바스켓 벽 온도에 따른 전도도를 정의하고 이를 최대 피복관 온도를 결정하는데 사용한다. 집합체의 횡단면 모델링 시, 집합체로부터 원주방향 열전달에 미치는 영향이 작기 때문에 집합체 스페이서, 그리드, 엔드 플레이트 등은 무시하고 모델링 하지 않는다[3]. 또한 복사 해석을 위한 방법은 DO 모델을 사용하였으며, 해석시간 및 결과에 영향을 끼치는 DO 모델의 파라미터는 FLUENT 사용자 가이드를 참고하였다.[4]

3. 피복관 최대 온도 계산 결과 비교

3가지 방법의 비교를 위하여 B&W 15x15(증진기체 헬륨)를 선택하였으며, 바스켓 온도 구간은 300 ~ 800K를 사용하였다. Two-region 모델, Wooton-Epstein 상관식은 비선형방정식 solver를 사용하여 피복관 최대온도를 산출하였다.

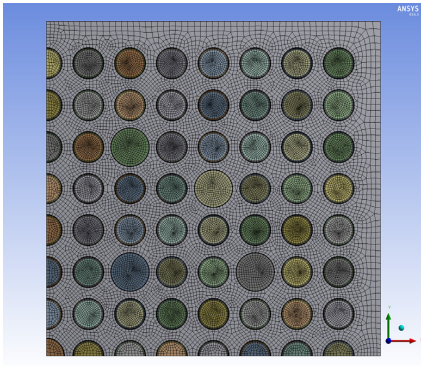


Fig. 1. B&W 15X15 PWR assembly meshing.

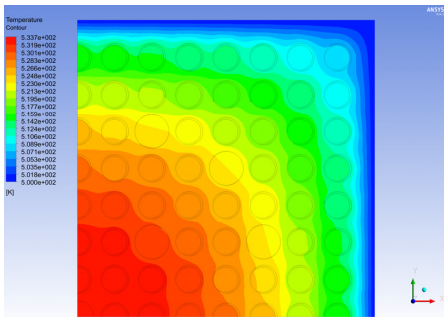


Fig. 2. Temperature distribution of B&W 15X15 PWR spent fuel assembly using FLUENT under assembly heat load of 1000W.

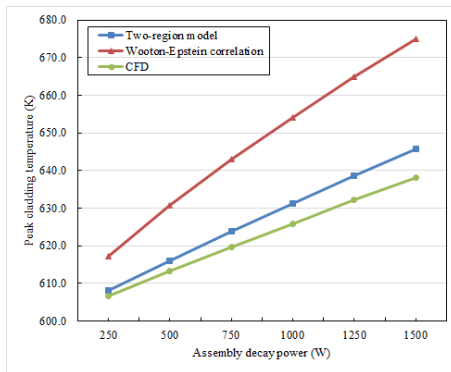


Fig. 3. Temperature prediction model comparison for basket wall temperature of 600K.

CFD 방법은 피복관/핵연료/핵연료와 클래딩 간 간격/가이드 튜브를 모델링하였으며, 에너지/운동 방정식은 second order upwind 이산화를 사용하였다. 해당 핵연료의 격자 생성 및 2차원 해석 결과는 Fig. 1 ~ 2와 같다.

바스켓 온도에 따른 각 방법의 최대 피복관 온

도 예측값은 Fig. 3과 같다. Wooton-Epstein 상관식의 예측 값이 가장 크고, Two-region 모델과 CFD 방법은 결과가 유사함을 알 수 있다. 실험값 대비 Two-region 모델의 경우에도 실제 값보다 온도를 높게 예측하는 경향이 있으므로, 사용후핵연료의 최대 피복관 온도를 계산하는데 있어서 CFD 방법을 사용하는 것이 유효할 것으로 판단된다.

4. 결론

본 연구에서는 최대 피복관 온도를 예측하기 위해서 주로 사용되는 2가지 방법(Two-region 모델, Wooton-Epstein 상관식)과 CFD 방법을 비교하였다. 이를 위해서 B&W 15x15 사용후핵연료를 선택하였으며, 충전기체는 헬륨을 적용하였다.

Wooton-Epstein 상관식이 가장 보수적인 경향을 보였으며, 나머지 방법은 유사한 결과를 보였다. Two-region 모델도 실제보다 높게 예측하는 경향이 있으므로, 유효물성치 산출을 위하여 CFD 방법을 적용하는 것은 유효할 것으로 판단된다.

5. 감사의 글

본 연구는 산업통상자원부 방사성폐기물관리기술평가사업(사용후핵연료 수송/저장 시스템 상용화 기술개발)의 일환으로 수행 중에 있습니다.

6. 참고문헌

- [1] R. D. Manteufel and N. E. Todreas, Effective Thermal Conductivity and Edge Conductance Model for a Spent Fuel Assembly, Nucl. Technol., Vol. 105, p. 421, 1994.
- [2] R. O. Wooton and H. M. Epstein, Heat Transfer from a Parallel-Rod Fuel Assembly in a Shipping Container, Battelle Memorial Institute, Columbus, Ohio, August, 1963.
- [3] R. H. Bahney and T. L. Lotz, Spent Nuclear Fuel Effective Thermal Conductivity Report, U. S. Department of Energy, BBA000000-01717-5705-00010 REV 00, July 11, 1996.
- [4] FLUENT Tutorial Guide, ANSYS Inc., (2012).

ACPF Argon Compartment 열유동 해석

박병석*, 이종광, 유승남, 김기호, 조일제

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*nbspark@kaeri.re.kr

1. 서론

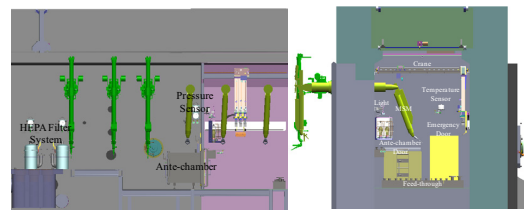
소규모(1kg/batch) 사용후핵연료 우라늄산화물의 효율적인 전해환원 공정(경수로용 사용후핵연료를 금속전환체로 전환하는 공정)을 실증하기 위해 기존 ACPF (Advanced spent fuel Conditioning Process Facility)를 개조 중에 있다. 이의 실증에는 우라늄산화물의 전해환원 반응에 적합한 분위기(조해성/강부식성 염 취급이 용이)가 요구되기 때문에 Air Cell 내부의 일부를 격리시켜 알곤 환경의 셀(Argon Compartment)을 구축하기 위함이다. 알곤 셀의 내부 온도는 25 ~ 35℃로 제어되어야 하기 때문에 본 논문에서는 전산유체역학을 이용한 알곤 셀 열유동 해석을 수행하여 알곤 흡기/배기에 대한 위치, 길이 및 형상에 대한 최적 설계 방안을 제시하였다.

2. 본론

2.1 ACPF Argon Compartment 개요

Argon Compartment는 Fig. 1에서 보는 바와 같이 ACPF 운전지역에서 바라볼 때 셀내 오른쪽 부분에 구축된다(내부 크기 : 1,800L × 2,000W × 2,700H mm). ACPF Cell 내 바닥면(working table, 높이 480 mm) 위에 『 형태로 구축된다. 알곤 셀(Argon Cell) 좌측 공기 셀(Air Cell) 측에는 알곤 셀 구축 및 이후 비상시 활용을 위한 기밀형 Door(600W × 1,000H mm), 전해환원 공정물질의 반입/반출을 위한 기밀형 Ante-chamber(이송물 크기: 600L × 600L × 6000H mm), 공기 셀의 압력 및 공기 셀과 알곤 셀과의 압력차를 측정하는 원격 유지보수형 압력계 모듈이 설치된다. 알곤 셀 내에는 전해환원 공정물질의 취급을 위한 원격 유지보수형 크레인, 전원 및 신호 케이블의 연결을 위한 기밀형 Feed-through, 알곤 셀내 온도 측정을 위한 원격 유지보수형 온도 측정 모듈, 알곤 셀의 조명장치인 원격 유지보수형 Cell Lighting System이 설치된다. 알곤 셀 전면벽 차폐 window 상부에는 기존 한국차폐

MSM(mechanical Master-Slave Manipulator) 2식(1식은 MSM 1 set)이 독일 Walishmiller MSM으로 교체되며, 바로 옆 공기 셀 용 한국차폐 MSM 1 set도 Walishmiller MSM으로 교체된다.



(a) Front View (b) Right Side View

Fig. 1. Argon Compartment.

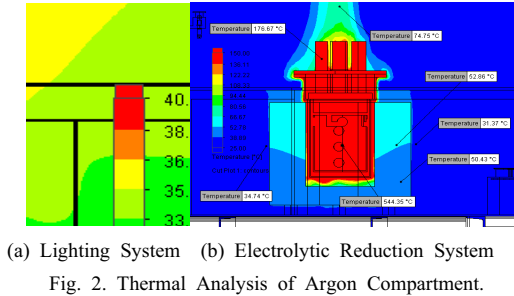
2.2 발열 원에 의한 열유동 해석 및 분석

알곤 셀 내부(초기 온도 25℃)의 발열 원인 조명장치 전구(Lamp) 및 전해환원장치(Electrolytic Reduction System, ERS) 내부 반응기에 의한 온도 상승과 알곤 순환시 흡기/배기의 위치, 길이 및 형상에 따른 열유동 현상을 SolidWorks의 Flow Simulation을 이용하여 해석하고, 최적의 결과를 도출하였다. Table 1은 발열 원에 의한 내부 온도 변화를 보기 위한 해석 조건 및 이의 결과를 보여준다. CASE 1은 조명장치 전구(메탈할라이드, 400W)를 켜둘 때 온도(150℃), CASE 2는 전해환원장치 반응 중 반응기 내부온도(650℃), CASE 3는 전구와 내부반응기 온도를 동시에 고려하였을 때이다. 해석 결과, Table 1에서 보는 바와 같이 알곤 셀 내부의 평균온도는 CASE 2와 3에서 가장 크게 나타났으며, 평균 온도는 거의 차이가 없음을 알 수 있다. CASE 1은 내부 평균 온도를 약 4~5℃ 높이고, CASE 2와 3은 7~8℃ 높이는 것으로 나타났다.

Table 1. Temperature Results from the Thermal Analysis

CASES	LAMP	ERS	Mean Temperature
CASE 1	150℃	X	29.5℃
CASE 2	X	650℃	32.5℃
CASE 3	150℃	650℃	32.6℃

Fig. 2에서 보면 조명장치 주변에서 30~40℃의 온도 분포를 나타낸다. 전해환원장치 반응기 외부는 단열이 잘 되어있기 때문에 30~40℃의 온도 분포를 보이지만, 단열이 되어있지 않은 상부는 180℃ 가까이의 온도 분포도 보인다.



2.3 알곤 순환을 고려한 열유동 해석 및 분석

알곤 셀 내부로의 알곤 흡기는 측면 및 상부로 구분하고, 배기는 파이프(pipe) 길이를 소, 중, 대로 구분하여 열유동 해석을 수행하였다. 흡기의 위치에 따른 유속 분포를 살펴보면, Fig. 3에서 보는 바와 같이 측면 흡기는 흡기 배관을 통과 하면서 유속이 6.0 m/s에서 2.0~3.0 m/s로 낮아지며, 상부 흡기는 배관을 통과 하면서 유속이 6.0 m/s에서 약 4.0 m/s로 낮아진다.

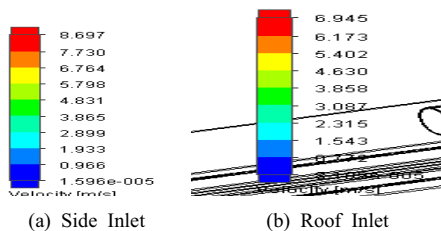


Fig. 3. Velocity Analysis by Inlet Location.

배기 배관의 위치는 중간 정도의 길이(600 mm)가 배관 입구에서 유속이 가장 크게 나타나 가장 적절한 길이로 분석되었다(Fig. 4).

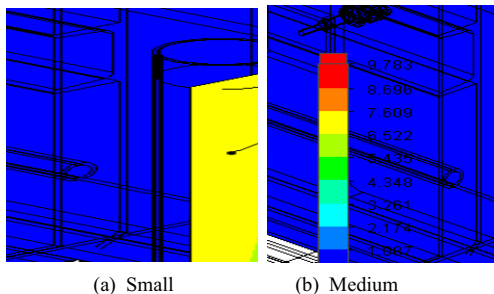


Fig. 4. Velocity Analysis by Outlet Pipe Length.

흡기 노즐(nozzle)의 유무 및 배기 덕트(duct) 유무에 따른 열유동 해석을 수행하였다. Fig. 5 (b)에서 보는 바와 같이 노즐이 있을 때 알곤이 폭넓게 확산되는 현상을 보인다. 덕트 또한 있을 때 Fig. 5 (d)에서 보는 바와 같이 덕트 주변 전체 방향에서 유량을 흡입하는 유속 분포를 보인다.

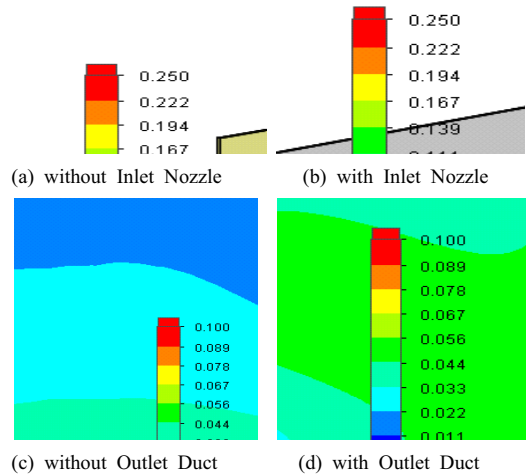


Fig. 5. Velocity Analysis by Nozzle and Duct.

3. 결론

ACPF Argon Compartment에 대한 열유동 해석을 수행한 결과, 천정 상부에서 노즐을 통해 알곤을 흡입하는 것이 알곤을 폭넓게 확산시키고, 속도 분포도 높일 수 있었다. 배기 또한 덕트를 갖는 것이 전체 방향에서 알곤을 흡입하고, 속도 분포도 높이는 것으로 나타났다. 이의 해석 결과는 Argon Compartment 구축에 활용되었다.

4. 감사의 글

이 논문은 미래창조과학부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

5. 참고문헌

- [1] 박병석 외 4인, "ACPF Argon Compartment 및 Purification System 설계", 한국방사성폐기물학회 추계학술대회, pp. 155-156, 2013.

사용후핵연료 안전성 및 건전성 시험시설 개념설계

허성현^{1*}, 이윤재¹, 최종서¹, 선승호², 이상진²

¹(주)대우건설, 서울특별시 종로구 새문안로 75

²한국원자력환경공단, 경상북도 경주시 북성로 89

*sunghyun.heo@daewoenc.com

1. 서론

국내 사용후핵연료에 대한 국가의 관리정책 결정시까지 중간저장을 하는 것으로 결정됨에 따라 이 중간저장시설의 안전한 운영을 위한 방안 마련 또한 중간저장시설의 확보와 함께 병행될 필요가 있다.

본 연구에서는 국내의 상기 현황에 부합하여 사용후핵연료 운반용기의 안전성 검증과 사용후핵연료 및 저장시스템의 건전성 평가를 위한 시험시설의 설계개념을 제시하고자 한다.

2. 본론

안전성 및 건전성 시험시설(Safety and Integrity Test Facility : SITF)은 중간저장시설의 안전 운영에 필요한 안전성 및 건전성 시험자료를 생산하는 것이 주 목적인 시설이며, 건전성시험건물, 안전성시험건물 및 복합건물로 주요 건물을 구성하였다.

2.1 건물별 목적 및 기능

건전성시험건물은 사용후핵연료 및 저장시스템의 건전성 확보를 위한 시험자료 생산 및 특성평가 관련 연구를 위한 시설이며, 안전성시험건물은 사용후핵연료 운반/저장용기의 신규 모델 개발을 위한 설계 검증 및 평가를 위한 시설이다. 또한 운반용기의 사용검사 및 유지보수를 위한 복합건물을 고려하여 본 시험시설의 활용도를 높였다.

2.2 시험항목

국내 법규 및 IAEA 요건에 명시된 운반용기의 안전성시험과 사용검사 항목을 모두 수행할 수 있도록 고려하였고, 건전성시험항목은 미 규제지침 및 국제적 연구 추세를 검토하여 파괴시험을 포함한 항목을 고려하여 본 개념설계에 반영하였다. 상기의 시험항목을 아래 Table 1 과 2에 정리하였다.

Table 1. List for the Safety Tests

구분	시험항목	근거
운반용기	낙하시험	47조 1항
	파열시험	47조 1항
	화재시험	47조 2항
안전성 시험 (원안위 고시 제2012-49호)	침수시험	47조 3항
	치수검사	인허가 자료
	차폐능시험	26조 6항
	열전달시험	26조 12항
	누설시험	26조 6항
운반용기 사용검사 (원안위 고시 제2012-61호)	육안검사	10조 1항
	비파괴검사	10조 2항
	하중시험	10조 1항
	치수검사	검사자료
	최대압력시험	10조 3항
	표면오염도검사	10조 2항
	누설검사	10조 3항
	차폐능시험	10조 1항
	열전달시험	10조 3항

Table 2. List for the Integrity Tests

구분	시험항목
SFA 비파괴시험	집합체 외관검사/제원측정
	집합체 휨/비틀림 측정
	결함 유무 판정시험
SF rod 비파괴시험	집합체 정적 기계시험/동적 응답시험
	SF rod 외관검사/제원측정
	SF rod 휨/비틀림 측정
SF rod 파괴시험	결함 유무 판정시험
	횡방향 인장시험/종방향 인장시험
	수소화물배열 시험
	내압 크립 시험
	지연수소균열 시험
	응력부식균열 시험
	봉 내압시험
	미세조직 시험
	성분분석 시험
SF 건식저장중 시험	피복판 수소함량 측정
	저장용기 모니터링 시험
저장열화 관리 시험	금속용기 - 재질열화
	금속용기 - 금속피로
	콘크리트 용기 - 캐니스터 부식
	콘크리트 용기 - 콘크리트 염해 열화
	콘크리트 용기 - 콘크리트 동결 융해
피복판 조사시편 제작	검사용 시편 제작

2.3 부지 및 건물 배치

시험시설은 건전성시험건물, 안전성시험건물 및 복합건물 등 3개의 주요 건물과 행정동 건물, 유틸리티 건물 등으로 구성되며, 아래의 Fig. 1과 같이 배치하였다.

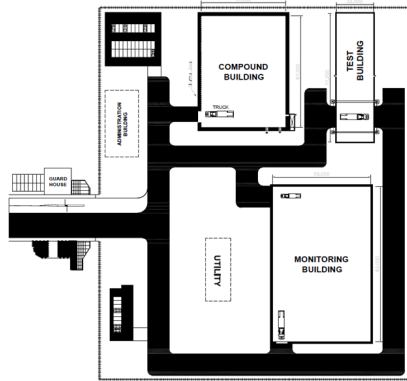


Fig. 1. Plot Plan(186.5m×204m).

건전성시험건물은 SFA 비파괴시험, SF rod 비파괴 및 파괴시험, 조사시험 제작 등 모든 시험이 가능한 설비를 갖춘 건식 콘크리트 핫셀을 고려하였으며, 시험 과정에서 발생하는 방사성폐기물의 포장 및 임시저장이 가능한 공간과 설비 또한 고려하여 Fig. 2와 같이 배치하였다.

또한, 방사선 관리구역과 비관리구역을 구분하여 출입관리를 할 수 있도록 하고, 방사능준위에 따라 구분하여 연구실을 배치하는 등 방사선에 대한 노출을 줄일 수 있도록 설계하였다.



Fig. 2. General Arrangement for the Monitoring Building.

안전성시험건물은 기상에 관계없이 시험이 가능하도록 Fig. 3과 같이 낙하시험설비, 침수시험설비 및 화재시험설비를 건물 내에 배치하였다.

복합건물은 방사능 차폐시험과 운반용기의 제염, 사용검사, 보관 및 유지보수가 가능하도록 설비를 구성하였으며, Fig. 4와 같이 배치하였다.

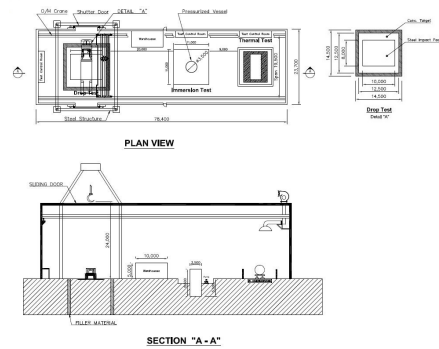


Fig. 3. General Arrangement for the Test Building.

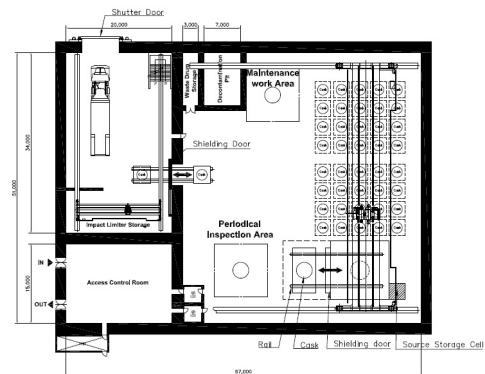


Fig. 4. General Arrangement for the Compound Building.

3. 결론

본 연구에서 수립한 안전성 및 건전성 시험시설의 개념설계 내용은 향후 동 사업을 추진함에 있어 세부 설계를 위한 기초자료로 활용될 수 있을 것이며, 관련 규제의 수립 또는 연구 현황에 따라 이를 반영, 보완할 필요가 있을 것이다.

4. 감사의 글

본 연구는 한국원자력환경공단 과제의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] NUREG-1536 R1, "Standard Review Plan for Spent Fuel Dry Storage Systems at a General License Facility", Chapter 8. Section 4.17.
- [2] IAEA Safety Standards Series No. SSG-15, 2012, "Storage of Spent Nuclear Fuel".

ACPF 알곤 컴파트먼트 운용 원격운전 크레인 개발

이종광*, 박병석, 유승남, 김기호, 조일제

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*leejk@kaeri.re.kr

1. 서론

산업용 크레인은 고장시 작업자가 직접 접근하여 수리하는 것이 가능하나, 고방사선 환경의 핫셀 시설에서는 복층 구조에서 상부층에 위치한 유지보수셀로 끌어 올리거나 또는 이중화 구성을 통해 비상 구동부를 동작시켜 인접 유지보수셀로 이동시키고 제염 작업을 거친 후 수리 또는 교체 작업을 수행하고 있다.

본 논문에서는 작업자의 직접 접근이 불가능할 뿐만 아니라 유일한 원격 유지보수 수단인 기계식 원격조작기(MSM)의 접근이 어려운 천정부에 설치되는 원격 운전 크레인 시스템의 개발을 다룬다. 주행, 횡행, 호이스트를 포함하는 3자유도 크레인의 기구부와 전기 구동부는 동력전달 샤프트를 통해 분리되었다. 기구부는 충분한 내구성을 갖도록 설계되었고, 상대적으로 고장 빈도가 높은 전기 구동부는 기계식 원격조작기를 사용하여 원격으로 교체 가능하도록 개발하였다. 개발된 시스템을 목업 시설에 설치하여 기구부의 내구성, 구동부의 윤활성, 원격 취급성 등에 관한 성능 적합 여부를 확인하였다

2. 설계 요건

2.1 시설 제약조건

소규모 (1 kg/batch) 사용후핵연료 우라늄산화물을 고온 용융염상에서 전기화학적 방법을 통해 금속 형태의 원료로 환원시키는 공정을 실증하기 위해 기 구축된 ACPF 핫셀 내부에 약 1.8 x 2 x 2.6 m의 알곤 컴파트먼트를 설치하는 개조 작업을 진행하고 있다. Fig. 1의 파란색 사각 박스 표시부가 신설될 알곤 컴파트먼트를 나타내고 있으며, 전면벽에는 납유리 창이 설치되고 그 좌우에 기계식 원격조작기(MSM) 2조가 설치된다. 한편, 크레인은 MSM의 고장시 후크로 걸어 분리할 수 있도록 MSM 최상부와 천장 사이에 설치되어야 하며, 이를 위해 후크를 포함한 전체 높이는 300 mm 이내의 초소형으로 제작되어야 한다.

2.2 운전 제약조건

핫셀은 작업자의 접근이 불가능하거나 또는 복잡한 제염작업을 거친 후 극히 제한적으로 접근이 가능하므로 기구부의 내구성을 충분히 고려하여 설계되어야 하며, 유일한 취급수단인 MSM을 사용하여 주요 모듈들을 원격으로 수리 또는 교체 가능해야 한다. 특히 구동요소인 서보모터, 절대 위치 센서, 리밋 스위치 등은 MSM의 작업영역 이내로 설치되어야 하며, MSM만을 이용하여 쉽게 유지보수 할 수 있어야 한다.

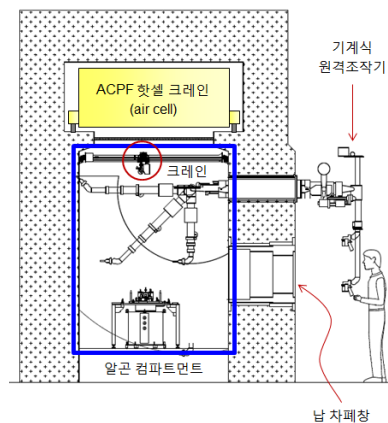


Fig. 1. Argon compartment in ACPF hot-cell.

3. 원격운전 크레인 시스템

3.1 호이스트 모듈 개선

설계된 체인 호이스트는 원거리에 설치된 구동부로부터 스플라인 축을 통해 동력전달을 받아 체인 휠을 구동시켜 후크를 상하로 이동시킬 수 있는 독특한 구조로, 웜 기어 내부에 스플라인 너트가 삽입되는 형태로 상용품이 존재하지 않는다. 프로토타입에서는 극히 제약된 설계 공간 내부에 배치하기 위해 웜과 웜 기어를 외부로 노출하는 방식을 적용하였으나 웜기어의 마찰 구동 특성상 효율이 저하되고 소음과 진동이 발생하였다. 이를 개선하기 위해 웜과 웜기어를 하우징을 구성하여 감싸고 내부에 내방사성 그리스를 삽입하여 윤활

성을 개선하였으며, 워 기어는 고주파 열처리와 연삭을 통해 마찰 특성을 개선하였다.

3.2 원격 탈부착 메커니즘 개선

프로토타입에 대한 목업 검증 시험을 통해 원격 취급성 관점에서 개선 방향을 도출하고 Fig. 2와 같이 주요 모듈에 대한 개량 설계를 수행하였다.

구동부 모듈은 구동축을 단단히 연결할 수 있으면서 고장시 원격으로 쉽게 교체가 가능하도록 캠-슬라이더 방식을 고안하였으며, 센서 모듈은 볼-스프링 구조를 활용하여 기계식 원격조작기로 잡고 단순히 밀고 당기는 동작만으로 기구적 고정뿐만 아니라 쉽게 분리할 수 있도록 하였다.

카메라 모듈은 MSM 그리퍼의 작업 영역을 외부에 설치되므로 크레인 후크만을 이용한 유지보수가 가능하도록 guide 안착 방식을 적용하였으며, 커넥터 모듈은 3점 가이드 슬롯을 형성하여 커넥터를 올바른 방향으로 결합할 수 있도록 하였으며, Lever 방식을 적용하여 적은 MSM 조작력만으로도 쉽게 탈부착 될 수 있도록 하였다.

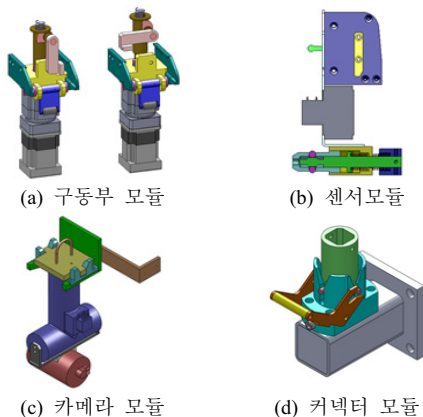


Fig. 2. Improved maintenance concept of crane module.

3.3 제작 및 목업 시험

개선 설계된 크레인 시스템을 제작하고 핫셀과 동일한 실측 규모의 검증 목업에 설치하여 구동 특성 및 유지보수 특성을 살펴보았다. 취급 하중은 설계 목표치인 150 kgf 이상을 취급하는데 있어 구조적 및 기구적 안정성을 확보하였으며, 최대 운전 속도는 주행, 횡행, 호이스트에 대해 각각 4.0, 4.0, 3.8 m/s로 확인되었다. 운전 조건에 따라 속도 설정을 변경할 수 있도록 제어시스템을 구성하였고, 조그 운전, 시퀀스 운전, 반복 운전 및 자동 운전이 가능하도록 프로그램을 개발

하였다. 또한 주요 원격 취급 모듈들에 대한 유지보수작업을 MSM만을 사용하여 용이하게 가능함을 확인하였다(Fig. 4).

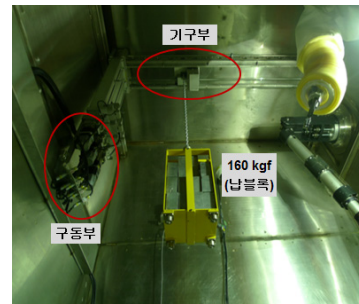


Fig. 3. Remote operation crane system.

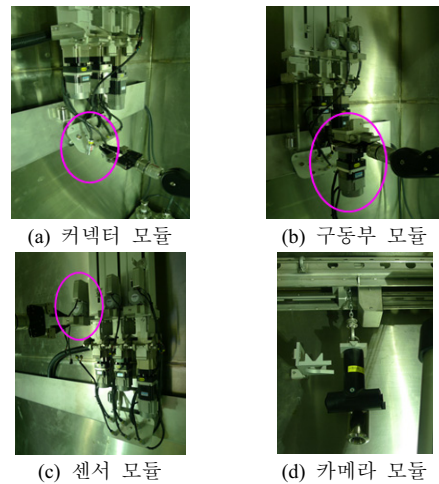


Fig. 4. Evaluation test of remote operation and maintenance.

4. 결론

본 논문에서는 별도의 유지보수 시설이나 견인 수단이 존재하지 않는 특수한 환경의 소형 알곤 컴파트먼트에 적용하기 위한 새로운 형태의 크레인 시스템을 개발하였다. 특히 원격 유지보수성 관점에서 프로토타입 개선을 수행하였으며, 목업 시험을 통해 기구적 안정성을 확보하고 제어적 목표 성능을 충분히 달성함을 확인하였다.

5. 감사의 글

이 논문은 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로부터 지원받았습니다.

PRIDE 수명주기 관리시스템 구축

한종희^{1*}, 홍동희¹, 이원경¹, 조일제¹

¹한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*jhan@kaeri.re.kr

1. 서론

PRIDE는 공학 규모 파이로 공정에 대한 실증 시설로 대형 아르곤셀의 공정 조건을 유지하기 위해 아르곤 공급 및 배기 시스템, 냉각시스템, 정제 시스템 등이 설치되어 있으며, 전기 및 계장, 환기 설비 등과 유기적으로 연결되어 조건에 따라 별개 혹은 동시에 운전된다 [1]. 따라서 PRIDE 운영 중 특정 시스템의 변경을 위해서는 해당 시스템뿐 아니라, 연관된 시스템들에 대한 영향이 종합적으로 검토되어야 하며, 변경된 정보에 대해 모든 자료들이 갱신되어야 한다.

이를 효율적으로 수행하기 위해서는 설계 자료로부터 시스템 상호간의 연관 자료 생산이 용이해야 하며 설계 변경 등에 대한 이력을 체계적으로 관리할 수 있는 시스템이 필요하다. 본 논문에서는 PRIDE의 설계 검토 자료 생산 및 설계 변경 등에 대한 이력의 통합 관리를 위해 구축 중인 PRIDE 플랜트 수명 주기 관리 시스템(Plant Lifecycle Management, PLM)에 관해 서술한다.

2. PRIDE PLM 시스템 구축

2.1 PLM 시스템의 개요

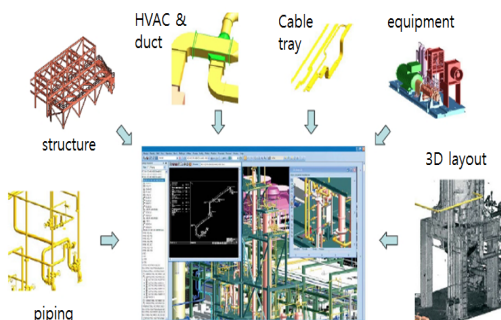


Fig. 1. Overview of PLM system.

PLM 시스템은 Fig. 1과 같이 대형 플랜트의 설계 단계부터 건설, 시공, 운영까지 전 수명 단계

에 걸쳐 플랜트와 관련된 모든 정보를 관리하는 체계를 말한다. PLM 시스템에서는 2D CAD 자료는 물론 각종 자재 정보, 유지보수용 부품 목록 또한 관리되고 있으며, 플랜트의 3차원 모델링 데이터를 활용하여 설계 변경 시 기존 설비와의 간섭 체크 기능까지 제공하고 있다. Intergraph 사의 PDS와 AVEVA 사의 PDMS가 많이 사용되는 상용 PLM 소프트웨어이다.

현재 상용 PLM 시스템의 3차원 모델은 세부 사양들을 포함하고 있는 데이터베이스와 연계되어 있으며 이를 통해 설계 검토는 물론이고, 소요 자재 계산까지 지원하고 있으며 이를 통해 유지보수에 대한 이력 관리를 쉽게 수행할 수 있다.

2.2 PRIDE PLM 시스템 구축 절차

PRIDE PLM 시스템은 AVEVA 사의 PDMS를 기반으로 구축되었으며, 구축 절차는 Fig. 2와 같다.

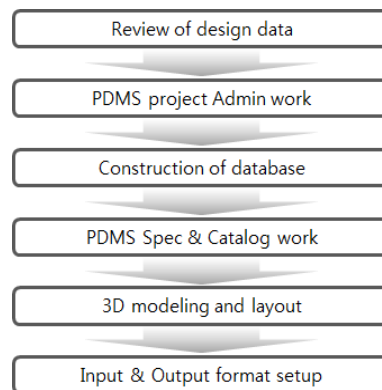


Fig. 2. Procedure of PRIDE PLM system development.

PRIDE PLM 시스템의 구축은 기존 시설을 대상으로 하므로 일반적인 PLM 시스템 구축 절차와는 달리 설계 데이터 검토를 통해 구축 가능 여부 판단 및 설계 데이터 확보가 우선되어야 한다. 이를 통해 구축 가능성이 확인되면, PLM 시스템 운용을 위한 사용자 권한 설정 등 기본적인 프로젝트 설정을 수행한다.

다음으로 파이프, 구조물, HVAC, 장치 등에 대한

설계 변수, 운전 조건 등이 포함되도록 데이터베이스 구조를 설계하고, 템플릿을 작성한다. 개발된 데이터베이스에 설계 데이터 및 각 장치에 대한 세부 사양을 입력하고, 데이터베이스와 연계하여 3차원 모델링을 수행한 다음, 설계 검토 자료 생산을 위한 출력 설정을 하면 PLM 시스템 구축이 완료된다.

2.3 PRIDE PLM 시스템 구축 경과

2.3.1 기존 설계 자료 분석

PRIDE PLM 시스템 구축을 위해 BEDD(Basic Engineering Design Data) 및 구축 당시 진행되던 시설 변경에 대한 설계 자료를 최신 자료로 갱신하여 반영하였다. Fig. 3은 PRIDE PLM 시스템을 위해 갱신된 BEDD 및 P&ID이다.

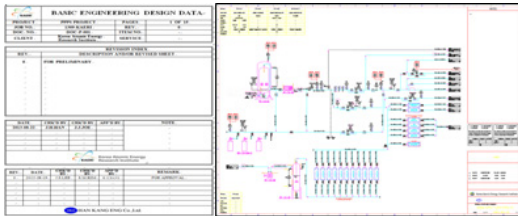


Fig. 3. Review of PRIDE design data (BEDD and P&ID).

2.3.2 데이터베이스 및 Spec & Catalog 작업

기존 설계 자료 분석을 통해 PRIDE PLM 시스템을 위한 기계 장치(압력용기, 열교환기, 필터, 펌프, 팬, 정제시스템 등), 전기, 배관, 밸브 등에 대한 데이터베이스를 구성하였다.

NO.	ITEM NO.	DESCRIPTION	TYPE	FLUID	DESIGN PRESSURE (MPa)	DESIGN TEMP (°C)	DESIGN SPEED (RPM)	DESIGN WEIGHT (kg)	DESIGN VIBRATION (mm/s)	DESIGN CORROSION (mm/yr)	DESIGN LIFE (yr)	DESIGN LOCATION	REMARKS
1	W-10000-01	Water Pump	P	Water	0.1	40	1500	100	1.5	0.1	10	W-10000-01	
2	W-10000-02	Water Pump	P	Water	0.1	40	1500	100	1.5	0.1	10	W-10000-02	
3	W-10000-03	Water Pump	P	Water	0.1	40	1500	100	1.5	0.1	10	W-10000-03	
4	W-10000-04	Water Pump	P	Water	0.1	40	1500	100	1.5	0.1	10	W-10000-04	
5	W-10000-05	Water Pump	P	Water	0.1	40	1500	100	1.5	0.1	10	W-10000-05	
6	W-10000-06	Water Pump	P	Water	0.1	40	1500	100	1.5	0.1	10	W-10000-06	
7	W-10000-07	Water Pump	P	Water	0.1	40	1500	100	1.5	0.1	10	W-10000-07	
8	W-10000-08	Water Pump	P	Water	0.1	40	1500	100	1.5	0.1	10	W-10000-08	
9	W-10000-09	Water Pump	P	Water	0.1	40	1500	100	1.5	0.1	10	W-10000-09	
10	W-10000-10	Water Pump	P	Water	0.1	40	1500	100	1.5	0.1	10	W-10000-10	
11	W-10000-11	Water Pump	P	Water	0.1	40	1500	100	1.5	0.1	10	W-10000-11	
12	W-10000-12	Water Pump	P	Water	0.1	40	1500	100	1.5	0.1	10	W-10000-12	
13	W-10000-13	Water Pump	P	Water	0.1	40	1500	100	1.5	0.1	10	W-10000-13	
14	W-10000-14	Water Pump	P	Water	0.1	40	1500	100	1.5	0.1	10	W-10000-14	
15	W-10000-15	Water Pump	P	Water	0.1	40	1500	100	1.5	0.1	10	W-10000-15	
16	W-10000-16	Water Pump	P	Water	0.1	40	1500	100	1.5	0.1	10	W-10000-16	
17	W-10000-17	Water Pump	P	Water	0.1	40	1500	100	1.5	0.1	10	W-10000-17	
18	W-10000-18	Water Pump	P	Water	0.1	40	1500	100	1.5	0.1	10	W-10000-18	
19	W-10000-19	Water Pump	P	Water	0.1	40	1500	100	1.5	0.1	10	W-10000-19	
20	W-10000-20	Water Pump	P	Water	0.1	40	1500	100	1.5	0.1	10	W-10000-20	

Fig. 4. Database for equipment (pump and fan).

Fig. 4는 기계 장치 중 펌프 및 팬에 대해 구축된 데이터베이스이며, 주요 항목으로는 유체 종류, 유량, 유체 온도, 운전 조건, 용량 등이 포함되어 있다. 이와 유사하게 다른 장치에 대해서도 구축되었으며 세부 사양까지 입력을 완료하였다.

2.3.3 3차원 모델링 및 레이아웃

PRIDE PLM 시스템은 3차원 모델을 포함하고 있으며, 3차원 모델은 이전 단계에서 구축된 데이터베이스와 연계되어 사용자가 손쉽게 장치 정보에 쉽게 접근할 수 있다. Fig. 5는 PRIDE PLM 시스템에 구현된 PRIDE의 3차원 모델 데이터이다. Fig. 5의 위는 PRIDE 유틸리티 시스템에 대한 평면도이며 아래 그림은 단면도이다.

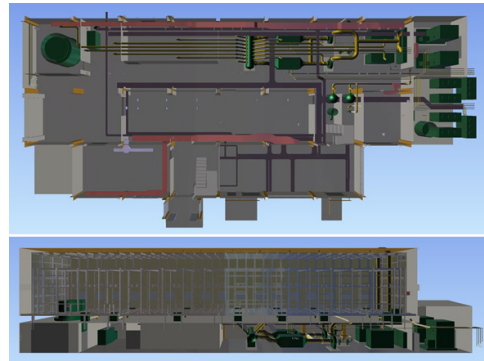


Fig. 5. 3D modeling of PRIDE PLM system.

3. 결론

본 논문에서는 구축 중인 PRIDE PLM 시스템에 대해 소개하였다. 현재 PRIDE PLM 시스템은 설계 검토 자료 생산을 위한 Input & Output 설정이 진행 중이며, 구축이 완료되면 연관 설계 자료 검토 및 변경에 대한 이력 관리가 효율적으로 이뤄질 것으로 기대된다.

4. 감사의 글

이 논문은 미래창조과학부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

5. 참고문헌

- [1] 조일제 외, 파이로 일관공정 시험시설 (PRIDE) 기술개발 현황, 2013년 추계학술발표회 논문요약집, pp.143-144, 2013.

사용후핵연료 건전성관련 장기저장 모니터링 항목 비교

전관식^{1*}, 김지현¹, 서현석¹, 박상훈¹, 육대식²

¹(주)라드웍스, 대전광역시 유성구 대덕대로 530 첨단상가 다308호

²한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 과학로 62

*kschun44@hotmail.com

1. 서론

원자력발전 비중의 증가로 배출되는 사용후핵연료는 계속 증가하고 있는데, 이의 재활용 또는 영구처분과 같은 향후 관리방안의 확립이 지연되고 있어 우선적으로 독립적인 장기저장방안을 채택하는 경향이 두드러지고, 저장기간도 40년에서 더 연장하거나 또는 100년 이상을 고려한 방향도 검토되어 왔다. 그리고 이에 상응하는 저장방법도 기존 습식에서 건식으로 그 비중이 옮겨가고 있으며, 연소도도 과거 ~30,000 MW/MTU에서 ~60,000 MW/MTU에 이르고 있는 실정이다. 이러한 상황 변화에 대응하기 위한 기술 향상을 위해 부단한 노력이 경주되고 있다.

그러나 실제 저장경험이 짧아 오랜 저장기간 동안 사용후핵연료가 건전하게 유지되어 향후 관리에 별 지장 없이 회수가 가능하다는 확증을 얻을 수 있는 기술 정보가 필요하지만, 아직 미비한 상황이다. 이와 관련한 우리나라의 안전규제 기술도 미흡하여 상당한 보안을 필요로 하고 있다.

따라서 사용후핵연료의 건식저장기시 건전성 확인을 위해 수행되어야 할 국제원자력기구 및 원자력 선진국의 모니터링 필요 항목들을 조사/비교하여 우리나라에서 필요로 하는 모니터링 항목을 개발하여 설정하는데 활용하고자 한다.

2. 본론

2.1 국제원자력기구

BEFAST-II와 SPAR-II의 최종보고서와 사용후핵연료 저장 및 수송 캐스크/용기의 운전과 유지에 관한 보고서[1], 사용후핵연료 건식저장시설의 노화관리와 중요 재료들의 열화를 다룬 기술 보고서[2], 및 과거의 사용후핵연료 저장관련 3개 보고서를 종합하고 다양한 사용후핵연료 저장시설의 설계, 안전운전 및 안전성 평가에 관한 최신 지침과 권고를 포함한 보고서[3]에 기술된 내용 중 모니터링에 관한 평가항목을 종합하여 다

음과 같이 정리하였으며, 각 항목의 적용분야에 대해서는 Table 1에 나타내었다[1].

Table 1. Monitoring techniques and applications

항 목	밀폐	차폐	임계	운전성	기타 안전기능
압력	O				
핵분열 기체채취	O				
온도				O	O
방사선계측		O			O
육안검사			O	O	O
기체채취					
연소도			O		O

경년열화관리 방법으로 제시된 사항은 다음과 같으며, 중요 재료로는 지르코늄 피복관, 콘크리트, 중성자 흡수재, 금속/비금속 실(seal), 라인너, 피막 등을 들고 있다[2].

- 설계 및 허가 단계 : 금속 실(seal)과 더불어 건설재료와 관련된 방사선, 온도, 기계적 응력, 환경조건 등의 운전조건을 포함한 어떠한 경년열화영향의 가능성이 고려되어야 한다.
- 운전 단계 : 전 저장기간 동안 모든 안전성과 관련된 기기들의 적절한 운전을 보증하기 위해 적당한 surveillance를 포함할 필요가 있다.

그리고 모니터링과 surveillance 에 관한 개략적인 내용은 다음과 같다[3].

- 사용후핵연료의 건전성은 시설 수명기간 동안 분석과 진행되는 surveillance를 포함한 적당한 방법을 사용하여 검증.
- 지역 감시는 방사선량률과 공기중 방사성핵종의 측정.
- 사용후핵연료 저장시설 외곽 격납의 어떠한 파손도 감지할 수 있는 적당한 감시 제공.
 - (a) 감시 이행을 위한 저장시설의 적절한 설계
 - (b) 각 오염방벽에 가능한 한 근접하여 오염의 효율성에 관한 감시
 - (c) 사용후핵연료의 상태에 관한 주기적 점검
- 감시프로그램에는 감시인자, 감시빈도, 취해진

특정조치는 물론이고 조치에 대한 참고준위 등을 구체적으로 기술.

- 경년열화관리계획은 결합에 관한 조기감지에 필요한 감시를 구체적으로 기술.

2.2 미국

미연방법[4]을 기준으로 하고, 이와 관련된 표준 심사계획들[5,6] 및 ASTM C-1562[7]에 기술된 모니터링 항목들을 조사하여 다음에 기술하였다.

연방법[4]에서 허가기간 종료로 갱신을 요하는 경우 경년열화관리계획을 설명하도록 규정하고 있으며, 허가조건으로 사용후핵연료의 건전성을 보호하는데 필수적으로 갖추어져야 할 연료의 취급 및 저장조건에 관한 제한 값을 포함하도록 규정하고 있다. 그리고 총괄요건에서 저장밀폐계통은 지속적인 감시능력을 가져야 하며, 안전에 중요한 조건들을 감시하기 위한 건식저장캐스크에 대한 측정장비계통은 캐스크 설계요건에 따라 제공되어야 한다고 규정하고 있다.

사용후핵연료 건식저장계통에 대한 표준심사지침[5]에서는 폐쇄 실(seal)에 대한 감시능력과 /또는 감시계획을 확인하도록 규정하고 있으며, 대표적인 감시는 공기배출구의 막힘에 대한 점검 또는 온도 감시를 포함해야 한다고 규정하고 있다. 특히, 용접 밀봉된 저장용기의 경우는 밀폐감시를 요하지 않지만, 볼트로 체결된 저장용기의 경우는 밀폐감시를 요하는데, 압력 감소를 감지할 수 있도록 설계를 요하고 있다. 그리고 안전에 중요한 구조, 계통 및 기기의 성능과 유용성을 확증하기 위해 감시요건의 주기와 범위, 및 제한된 제한조건에 대한 근거의 확증을 포함하도록 하고 있다.

사용후핵연료 건식저장캐스크의 수명연장에 대한 표준심사지침[6]에서는 경년열화관리계획에 포함되어야 할 사항들 중 모니터링과 관련된 내용은 다음과 같이 정하고 있다.

가 감시/검사 인자 : 특정 구조와 기기의 의도된 기능에 관한 경년열화영향과 관계되는 인자들 나. 감지 : 육안, 체적, 표면 검사 등의 방법 또는 기법, 주기, 시료의 크기, 자료 수집, 적기 등.

사용후핵연료 건식중간저장기간 연장에서 사용되는 재료 평가에 대한 표준지침[7]에서는 차폐/방사선방호 및 밀폐계통에서의 성능은 적절한 장비와 제어계통을 사용한 간헐적 또는 연속적 감시 하에 있어야 한다고 하고 있는데, 여기서 감시는 온도, 방사선, 기능성 및/또는 계통을 구성하고

있는 기기의 특성을 포함한 특정인자의 측정을 의미한다. 그리고 용기, 캐스크, 기타 기기들의 부식은 일상적으로 감지되어야 한다고 하고 있다.

2.3 일본

관련 법령[8]에 기술된 모니터링 관련내용들을 살펴본 결과, 시설의 성능은 정기검사를 통해 확인하도록 규정하고 있을 뿐이고, 설계 및 공사방법의 기술기준에 관한 규칙[9]에서 규정하고 있는 모니터링과 관련된 구체적인 내용은 다음과 같이 요약할 수 있다.

캐스크 표면온도, 캐스크 덮개계통(용접된 경우 제외)의 압력, 저장건물의 배기온도, 저장시설 및 주변 감시구역에서의 선량당량률, 배기 및 배수 중 방사성물질 농도 등을 직접 또는 간접 계측할 수 있는 설비를 갖추어야 한다고 규정하고 있다.

3. 결론

미국과 일본의 관련 법령과 규칙 또는 지침들, 및 국제원자력기구에서 발간된 관련 자료들에 기술된 모니터링 항목들을 살펴본 결과, 국제원자력기구에서 권고하고 있는 모니터링 항목이 가장 폭 넓게 그리고 일관성 있게 집약되어 있어 이 항목들을 근간으로 하여 작성하되, 미국과 일본의 관련 내용들을 고려하여 보완하는 편이 바람직할 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

- [1] IAEA, TECDOC-944 (1997), TECDOC-1532 (2007), and TECDOC-1680 (2012).
- [2] IAEA, Understanding and managing of material in spent fuel storage facilities, TR-443 (2006).
- [3] IAEA, Storage of spent nuclear fuel, SSG-15 (2012).
- [4] 10CFR72.
- [5] USNRC, NUREG-1536 (2010).
- [6] USNRC, NUREG-1927 (2011).
- [7] ASTM C-1562-10.
- [8] 核原料物質、核燃料物質及び原子爐の規制に関する法律、施行令.
- [9] 使用済燃料貯蔵施設の設計及び工事の方法の技術基準に関する規則.

가상 공학규모 파이로시설의 물리적방호시스템 예비개념 검토

이호희*, 권은하, 김호동

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*nhhlee@kaeri.re.kr

1. 서론

물리적방호(PP)는 국제사회가 새롭게 주목하고 있는 원자력시설의 안전요건으로서 미래 원자력 시스템을 도입하는 데에 있어서 고려해야 하는 필수 설계요건 중 하나이다. 이와 관련, 국제원자력기구(IAEA)는 지난 2011년 INFCIRC/225/Rev.5를 개정·발간하면서 회원국들에게 보다 강화된 물리적방호 체계의 적용을 권고하고 있다. 물리적방호시스템(PPS)은 공정개발 및 시설의 설계 초기단계에서부터 고려함으로써 설계 변경을 최소화하고 경제적 손실을 방지할 수 있을 것으로 판단된다. 본 논문에서는 INFCIRC/225/Rev.5의 강화된 물리적방호 요건을 반영한 가상 공학규모 파이로시설(ESPF)의 물리적방호시스템 예비개념 검토내용을 기술한다.

2. 본론

2.1 공학규모 파이로시설의 특성

가상 ESPF는 파이로 공정기술을 실증하기 위한 실험시설로 연간 10 톤의 경수로 사용후핵연료를 수납하여 약 9톤의 U 잉곳과 약 180 kg의 U/TRU 잉곳을 생산한다. ESPF는 원자력실증단지 내에 위치한 독립시설로 SF 수납구역, 전처리셀, 파이로셀, 유지보수셀, U/TRU 저장셀, 폐기물셀, 화학분석셀 및 지원시설을 포함하는 주 건물을 중심으로 방사성폐기물 저장고, 수전설비, 가스 저장고, 행정동, 중앙통제실, 유틸리티 및 편의시설 등으로 구성되며, 이 시설의 주요 설계특성은 Table 1에 나타낸 바와 같다고 가정한다.

ESPF의 입력 핵물질은 사용후핵연료이므로 전해정련 공정까지에서 취급/생산되는 핵물질은 II 등급에 해당하고, 전해제련 공정 이후에서 생산되는 U/TRU/RE는 차폐하지 않은 상태에서 1m떨어진 곳에서 방사선량이 100 rad 이하이고, Pu 함량 중 Pu-238의 농도가 80% 이하이므로 이들 핵물질은 I등급에 해당할 것으로 추정된다.

Table 1. Top-tier Design Criteria for ESPF

용량	PWR SF 연간처리량 : 10 tHM
플랜트 유형	연구복합단지 내의 독립시설
연간 이용률	55% (200일/년)
설계수명	40년
입력물질	PWR 사용후핵연료
생산물질	U, U/TRU/RE 금속 잉곳, 폐기물 (세라믹, 금속, 유리화)
주요기능	임시저장(PWR 사용후핵연료, U잉곳, U/TRU/RE 잉곳, 폐기물)
	PWR 사용후핵연료 해체 및 연료봉 절단, 탈피복/산화회말
	전해환원/정련/제련, 카드뮴증류, 음극처리, U 및 U/TRU 잉곳 제조
	염폐기물 재생, 폐기물 처리/저장 등

2.2 공학규모 파이로시설의 목표물 설정

물리적방호시스템을 설계하기 위해 방호목표인 핵심구역(VA)을 설정해야 한다. 핵심구역은 설계기준위협(DBT)을 고려하여 핵물질의 직접 확산, 안전설계기준을 초과한 시설의 운영방해, 완화시스템의 무력화 등 사보타주 시나리오에 따른 방사선영향을 평가하여 고방사선적영향(HRC)을 초과하는 구역을 핵심구역으로 설정한다. ESPF는 개념검토 초기단계인 가상 시설이므로 설계 자료가 부족하여 정량적인 방사선적 영향분석은 불가능한 실정이다. 이에 따라 정성적 분석을 통해 보수적으로 전처리셀(SF 저장볼트 포함), 파이로 공정셀, U/TRU 잉곳 저장셀, 고준위폐기물 저장셀, 중앙통제실, 공정 주제어실, 비상전원공급설비 등을 핵심구역으로 설정하였다. 그러나 향후 시설설계가 더 진척되어 설계 자료가 확보되면, 정량적 분석을 통해 핵심구역의 설정이 필요하다.

2.3 공학규모 파이로시설의 위협정의

ESPF는 현재 개념검토 중인 가상시설이고, 또 실제 설계기준위협(DBT)은 대외비로 관리하고 있으므로 본 분석에 실제 DBT를 적용하는 것은 바람직하지 않으므로 본 분석에서는 가상 DBT를 가정하여 적용한다. 가상 DBT는 자동소총으로 무장한 잘 훈련된 적대자 6명이 내부자 1명의 도움을 받으며 야간에 도보로 침입한다고 가정한다.

2.4 공학규모 파이로시설의 PPS 예비설계

IAEA(INFCIRC/225/Rev. 5)는 방사선적 사보타주 및 핵물질 불법이전을 방호를 위해 3단계 심층방호를 권고하고 있다. ESPF는 외곽으로부터 접근제한구역(LAA), 방호구역(PA), 핵심구역(VA)으로 구분하여 울타리 및 방벽으로 둘러싸여 있고, 출입구를 최소화하여 각 출입구에는 출입관리시스템이 설치되도록 설계하였다. 각 구역의 경계와 주요 지점에는 탐지, 지연, 대응의 기능을 반영한 각종 탐지센서, 경보기, CCTV, 통신설비 및 경비실을 갖추도록 설계하였다. 즉, 적대자는 목표물에 접근하기 위해 이러한 물리적 방벽에 설치된 침입탐지시스템(IDS)과 지연방벽을 우회 또는 무력화시키거나 경비원 또는 대응 인력의 대응을 극복해야 한다. 또한, 방호구역의 출입구와 주 건물 출입구 근처에는 ESPF 물리적방호시스템을 통합관리하는 중앙통제실과 보조중앙통제실을 배치한다. 가상 ESPF의 물리적방호구역 배치도는 Fig. 1에 나타난 바와 같다.



Fig. 1. Site Plot Plan for ESPF.

접근제한구역(LAA)에는 출입관리시설, 행정동, 연구동, 유지보수시설, 유틸리티시설, 실험실, 식당 및 편의시설 등이 위치하며, 핵심구역이 위치한 주 건물의 외벽으로부터 약 200m 떨어져 내부펜스를 설치하고, 경계에는 탐지, 지연 및 대응기능을 수행하기 위해 방벽, 출입관리시설, 탐지기, 경보기, CCTV, 조명시설 및 통신설비를 갖춘다. 방호구역(PA)은 추가적인 물리적 방호조치와 함께 물리적 방벽으로 둘러싸인 접근제한구역 내부에 위치한 구역으로 출입관리시설, 핫셀시설 등을 포함하는 주 건물, 방사성폐기물저장고, 수송용기 저장고, 주 건물의 유틸리티 시설 등이 위치한다. 방호구역은 출입이 최소화되도록 승인을 받은 사람들로 출입을 제한하고, 승인된 화물차량을 제외한 차량출입을 제한한다. 방호구역 경계에는 탐지, 지연 및 대응기능을 수행하기 위해 방벽, 출입관리시설, 탐지

기, 경보기, CCTV, 조명설비, 통신설비를 갖추고 경비원을 배치한다. 방호구역 내의 주요지점에도 조명설비 및 CCTV를 설치한다. 또한 방호구역에는 시설의 모든 물리적방호시스템을 통합 관리·통제하기 위한 중앙통제실(CAS)도 위치한다.

주 건물은 크게 사무실구역과 방사선구역으로 구분하여 운영하며, 최상의 방호요건을 적용한다. 특히, 핵심구역 및 내부구역(1등급 핵물질 취급/보관)이 위치하는 방사선구역은 방사선적 사보타주 및 핵물질의 불법이전을 방지하기 위해 다중의 물리적방호시스템을 설치운영하고, 내부자의 동조를 방지하기 위해 철저히 2인 동행 원칙을 적용한다. 주요 출입지점에는 1인씩 통과할 수 있는 회전문과 이중 인증시스템(스마트카드+지문)을 설치하고, 허가를 받지 않고 침입 시 작동하는 동작감지센서도 설치한다. 사무실구역도 파이로 실증실험 및 방호요원 만이 근무하는 공간으로 제한하여 출입자를 최소화하고, 유지보수 등을 위해 외부자가 출입할 경우에는 사전에 승인을 받고 인가된 근무자가 동행하는 경우에만 출입을 허용한다. 주 건물의 출입구에는 금속 및 폭발물 탐지센서, 핵물질탐지센서를 설치하여 사보타주 및 핵물질 불법이전을 차단한다. 또한, 주 건물 출입구 근처에는 보조중앙통제실(SAS)도 배치한다.

3. 결론

본 연구는 개념검토 단계인 가상 파이로시설의 예비설계 자료를 바탕으로 물리적방호시스템을 바탕으로 설계하여 정확도측면에서 많이 부족하나 본 연구에서 문제점으로 제시한 사항들을 시설의 설계에 반영한다면 더욱 안전하고 경제적인 시설의 구축에 기여할 것으로 생각된다. 특히, 시설의 초기단계부터 핵심구역설계, 탐지, 지연, 대응의 물리적방호 기능을 반영하여 심층방호 및 균형방호 개념을 시설설계에 반영하면 시설의 안전성 및 경제성에 크게 기여할 것으로 생각된다.

4. 참고문헌

- [1] IAEA Nuclear Security Series No. 13, "Nuclear Security Recommendation on Physical Protection of Nuclear Material and Nuclear Facilities (INFCIRC/225/Revision 5)," IAEA, 2011.
- [2] 이호희, 권은하, 권해림, 김호동 "가상 공학규모 파이로시설의 물리적방호시스템 예비개념설계요건", KAERI/TR-5278/2013, 한국원자력연구원, 2013.

가상 파이로시설 물리적방호시스템의 EASI 프로그램을 적용한 유효성평가

이호희*, 권은하, 김호동

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*nhhlee@kaeri.re.kr

1. 서론

물리적방호(PP)는 국제사회가 새롭게 주목하고 있는 원자력시설의 안전요건으로 미래 원자력시스템을 도입하는 데에 있어서 고려해야 하는 필수 설계요건 중 하나이다. 이와 관련, 국제원자력기구(IAEA)는 2011년 INFCIRC/225/Rev.5를 개정·발간하면서 회원국들에게 보다 강화된 물리적방호 체계의 적용을 권고하고 있다. 물리적방호시스템(PPS)은 공정개발 및 시설의 설계 초기단계에서부터 고려함으로써 설계 변경을 최소화하고 경제적 손실을 방지할 수 있다. 본 논문에서는 INFCIRC/225/Rev.5의 강화된 물리적방호 요건을 반영한 가상 공학규모 파이로시설(ESPF)의 물리적방호시스템에 대해 EASI 프로그램을 적용한 성능기반 유효성평가 내용을 기술한다.

2. 본론

2.1 물리적방호시스템의 평가방법

PPS의 평가방법에는 전문가 의견 접근법, 특징 접근법, 서브시스템 기준 접근법, 시스템 성능 접근법 등이 있다. PPS의 평가는 시스템이 만족시켜야 하는 침입탐지, 출입통제, 출입지연, 대응 통신 및 대응군 등과 같은 방호요건의 검토와 이해로부터 시작된다. 이러한 특성에 기초한 고성능 물리적방호시스템을 보장할 수 있도록 엄격한 분석 및 평가기술을 통하여 PPS가 달성할 수 있는 최소 성능을 추정하기 위해 시스템 성능기반 평가방법이 필요하다.

성능기반 PPS 유효성 평가방법은 저지분석, 무력화분석, 시나리오분석, 내부공모자분석으로 구성되며, 저지분석은 적대자경로다이아그램(ASD)과 경로분석으로 나누어진다.

2.2 공학규모 파이로시설의 특성

ESPF는 원자력실증단지 내에 위치한 독립시설로 SF 수납구역, 전처리셀, 파이로셀, 유지보수셀, U/TRU 저장셀, 폐기물셀, 화학분석셀 및 지원시설을 포함하는 주 건물을 중심으로 방사성폐기물 저장고, 행정동, 방호설비, 유틸리티 및 편의시설

등으로 구성된다. ESPF는 물리적방호 요건에 따라 접근제한구역, 방호구역, 핵심구역으로 구분하여 울타리 및 방벽으로 둘러싸여 있고, 출입구를 최소화하여 각 출입구에는 출입관리시스템이 설치되어있고, 각 구역의 경계와 주요지점에는 탐지, 지연, 대응의 기능을 반영한 각종 탐지센서, 정보기, CCTV, 통신설비 및 경비실을 갖추고 있다. 방호구역의 출입구와 주 건물 출입구 근처에는 중앙통제실과 보조중앙통제실을 배치한다.



Fig. 1. Site Plot Plan for ESPF.

2.3 목표물 설정

PPS 유효성을 평가하기 위해서는 시설의 방호목표인 핵심구역을 설정해야 한다. 핵심구역은 안전성분석자료(DSA, PSA 등)를 활용하거나 정량적 분석을 수행하여 설정해야 하나 ESPF는 현재 설계개념을 도출하는 초기단계이므로 정량적 분석은 어려운 실정이다. 이에 따라 정성적 분석을 통해 SF 저장구역, 전처리셀, 파이로셀, U/ TRU 저장셀, 폐용융염 저장셀, 중앙통제실, 공정주제어실, 비상전원공급실 등을 ESPF의 후보 핵심구역으로 설정하였다. 본 분석에서는 이러한 핵심구역들 중에서 사보타주 목표를 전처리 셀에 폭발물 설치하는 시나리오를 가정하여 평가한다.

2.4 위협정의

ESPF는 현재 개념검토 중인 가상시설이고, 또 실제 설계기준위협(DBT)은 대외비로 관리하고 있으므로 본 분석에 실제 DBT를 적용하는 것은

바람직하지 않으므로 본 분석에서는 가상 DBT를 가정하여 적용한다. 가상 DBT는 자동소총으로 무장한 잘 훈련된 적대자 6명이 내부자 1명의 도움을 받으며 야간에 도보로 침입한다고 가정한다.

2.5 평균 대응시간

시설 경비원은 접근제한구역, 방호구역 및 주 건물에 분산 배치되어 출입통제, 순찰, 침입자 저지, 침입 탐지 및 적대자 침입 시 대응 등을 수행한다. 경비원은 비상상황 시에는 30초 이내에 자동소총으로 무장하여 적대자에 대한 대응한다고 가정한다. 경찰과 군 대응팀은 ESPF에서 각각 약 5 km, 10 km 떨어져 위치한다고 가정할 때 시설경비, 경찰 및 군 대응팀의 평균대응시간은 Table 1에 나타난 바와 같이 추정된다.

Table 1. Average Response Time

대응행동(단위: 초)	경비원	경찰	군부대
경보 통신 시간	3	3	3
경보 평가 시간	45	45	45
대동행과의 경보교신 시간	30	30	30
경비원이 핵심구역으로 이동하는 시간	60	90	150
경찰 출동 준비 시간	-	60	-
경찰의 자량을 이용한 이동 시간	-	300	-
군부대 대응 시간	-	-	120
군부대 출동 준비 시간	-	-	480
해당 장소에 도착 후 배치 시간	-	90	90
전체 대응시간	138	528	768

2.6 적대자 경로 다이어그램(ASD)

사보타주 목표물을 전처리 셀로 가정하여 적대자가 탐지확률이 가장 낮은 경로로 침입한다고 가정할 때의 ASD는 그림 2에 나타난 바와 같고, 이때의 임계탐지점(CDP)은 주 건물을 통과한 후 첫 번째 방벽으로 분석되었다.

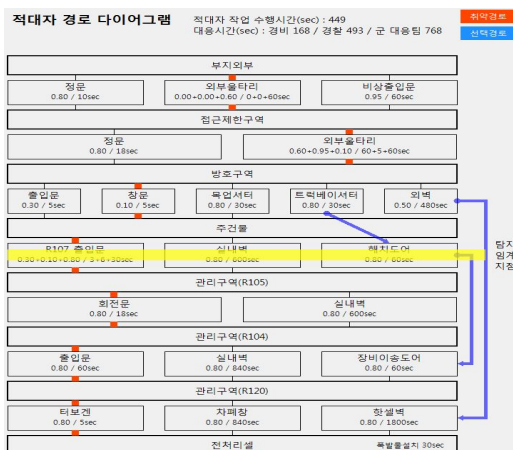


Fig. 2. ASD for ESPF(Head-end Cell).

2.7 PPS 유효성 평가

적대자의 사보타주 목표가 전처리 셀이고, 통신 확률 97%, 경비의 평균 대응시간을 168초라고 가정하여 EASI 프로그램을 사용해서 계산한 저지확률(P_i)은 96%로 계산되었다. 적대자 6명의 작업시간은 440초, 대응군은 경비 13명, 경찰 순찰대 2명, 군 대응팀 8명이고, 평균 대응시간을 경비 168초, 경찰 순찰대 528초, 군 대응팀 768초로 가정하고 적대자와 대응군은 동일한 성능의 무기로 무장한다고 가정할 때 무력화확률 계산 프로그램으로 계산한 무력화 확률(P_N)은 79.8%로 계산되었다. 이때 PPS 시스템의 유효성(P_E)은 저지확률과 무력화확률의 곱이므로 시스템 유효성은 76.6%로 계산되어 ESPF의 PPS 성능기준(가정)인 $PE = 75 \sim 85\%$ 을 만족하는 것으로 평가되었다.

3. 결론

EASI와 무력화확률 계산 프로그램을 적용한 가상 ESPF의 PPS 유효성평가 결과는 가정한 PPS 성능기준($P_E = 75 \sim 85\%$)을 만족하는 것으로 평가되었다. 그러나 부족한 시설설계 자료와 물리적방호 데이터를 바탕으로 PPS를 설계하고 이를 평가하여 했으므로 신뢰성은 낮다고 판단된다. 그러나 본 분석에서 드러난 여러 문제점을 향후 시설설계에 반영하면 사보타주로 부터 더욱 안전하고 경제적인 물리적방호시스템을 구축할 수 있을 것으로 생각된다. 성능기반 PPS에서 성능기준과 평가 프로그램의 선정은 매우 중요하므로 규제기관과의 협의도 필요할 것으로 생각된다. 또한 PPS 설계 및 평가를 위해서는 탐지, 지연, 대응과 관련된 물리적방호 요소들의 신뢰성있는 데이터를 확보하여 데이터베이스를 구축하는 것이 매우 중요하다고 생각된다.

4. 참고문헌

- [1] IAEA Nuclear Security Series No. 13, "Nuclear Security Recommendation on Physical Protection of Nuclear Material and Nuclear Facilities (INFCIRC/225/Revision 5)," IAEA, 2011.
- [2] 이호희, 권은하, 권해림, 김호동 "가상 공학규모 파이로시설의 물리적방호시스템 예비개념평가", KAERI/TR-5280/2013, 한국원자력연구원, 2013.

다성분계 향류 다단 산화추출공정의 수치모사

김광락*, 안도희, 김시형, 김택진, 김가영, 심준보, 정재후, 백승우
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*krkim1@kaeri.re.kr

1. 서론

용융염에 잔류하는 악티늄족 원소를 회수하는 산화추출공법은 고온 용융염 대한 비혼합 액상류인 카드뮴이나 비스무스 등의 용융금속 매질을 접촉시키는 향류 다단공정을 채택하면 그 분리효율을 극대화 할 수 있다[1,2].

용융염과 액체금속은 비중차이로 상간의 자유계면을 형성하여 불균일계 열화학반응을 일으키는 유효 면적을 제공한다. 추출 활성물질로써 사용후핵연료 구성원소의 염화물은 분배계수 만큼 상간의 평형조성을 이루면서 다단에 걸쳐 분리가 이루어진다. 각 단에서의 조성과 용융염 및 금속상의 흐름에서 물질수지는 선형적인 특성을 나타낸다.

앞서 개발한 단순모델에서는 비혼합 액상류 흐름이 일정하고, 산화 추출제의 주입이 용융염의 유량 증가에만 영향이 있음을 가정하였다[3]. 그러나 추출제의 주입으로 각단에서 추출 활성원소의 상간의 분배에 의해 비혼합 액상류의 흐름에 변화를 주게 된다.

본 연구에서는 각 단에서 LiCl-KCl/액체금속 액상류의 향류접촉이 일어날 때 추출제 공급에 대한 추출 활성원소들의 분배 및 물질수지 관련 연립선형 지배식을 설정하고, 다단에 걸쳐 정상상태 다성분 농도추이와 더불어 물질흐름 변화를 예측할 수 있는 전산모델을 개발하였다.

2. 본론

2.1 향류다단추출 모델

상간의 추출은 다음의 분배계수($D_{i,j}$)의 정의에 의해 각 단에 빠져나가는 성분은 평형상태에 있다고 가정한다.

$$D_{i,j} = y_{i,j}/x_{i,j} \quad (1)$$

여기에서 $y_{i,j}$ 는 금속상에서의 추출 활성원소의 농도 그리고 $x_{i,j}$ 는 용융염상에서의 추출 활성원소의 농도이다. 이러한 분배계수는 기준 물질의

분배계수($D_{r,j}$)에 대한 비로 정의되는 분리계수(SF)로 쓸 수 있다. 즉,

$$SF_{i,j} = D_{i,j}/D_{r,j} \quad (2)$$

Fig. 1은 각 단에서는 평형상태로 드나드는 농도와 물질흐름을 나타내었다. 각 단에서 성분 물질수지는 다음 식과 같이 나타낼 수 있다.

$$S_j x_{i,j} + C_j y_{i,j} = S_{j-1} x_{i,j-1} + C_{j+1} y_{i,j+1} + F_j z_{i,j} \quad (3)$$

여기에서 S_j 와 C_j 는 각각 j단을 나가는 용융염 및 금속상의 유량이며 $x_{i,j}$ 와 $y_{i,j}$ 는 조성이다. S_{j-1} 와 C_{j-1} 는 각각 j단으로 들어오는 용융염 및 금속상의 유량이며 $x_{i,j-1}$ 와 $y_{i,j+1}$ 는 조성이다. 그리고 F_j 와 $z_{i,j}$ 는 각각 j단에서 주입되는 추출제의 유량과 조성이다.

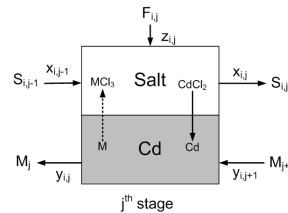


Fig. 1. Single stage of LiCl-KCl/Metal contactor.

전체적인 향류 다단추출공정은 Fig. 2와 같다. 각 단에서 i성분의 분배계수($D_{i,j} = y_{i,j}/x_{i,j}$)를 적용하여 물질수지 식을 $x_{i,j}$ 만의 염화물 조성식으로 쓸 수 있다. 이 들 선형 연립방정식은 $x_{i,j}$ 를 미지수로 하는 $\|A\|x=b$ 의 형태의 삼중대각 선형 행렬방정식과 같다.

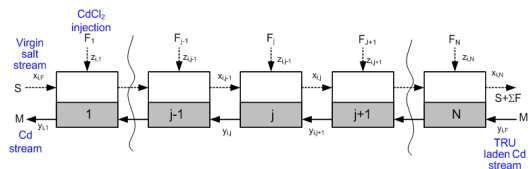


Fig. 2. Multistage of LiCl-KCl/Metal contactor.

$$\begin{pmatrix} B_1 & C_1 \\ A_2 & B_2 & C_2 \\ & A_j & B_j & C_j \\ & & A_{N-1} & B_{N-1} & C_{N-1} \\ & & & A_N & B_N & C_N \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x_{i,1} \\ x_{i,2} \\ x_{i,j} \\ x_{i,N-1} \\ x_{i,N} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} D_1 \\ D_2 \\ D_j \\ D_{N-1} \\ D_N \end{pmatrix} \quad (4)$$

2.2 산화 추출제 주입 모델의 계산 알고리즘

다단 산화추출 공정에서는 용융염상에 BiCl_3 또는 CdCl_2 의 주입이 대표적인 추출제로 알려져 있다. 추출제의 주입으로 용융염 및 금속상에 존재하는 원소들의 조성은 분배계수와 염화물의 물질수지에 의해 각 단을 통하여 재분배 된다. 산화수가 V_O 인 추출제 주입에 의한 추출 활성원소의 염소 물질수지식은 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\begin{aligned} & \sum_i \{S_{j-1}x_{i,j-1} - S_jx_{i,j}\} V_i + F_j z_{i,j} V_O \\ & = \sum_i \{C_{j+1}y_{i,j+1} - C_jy_{i,j}\} V_i \end{aligned} \quad (5)$$

이 식에서 V_i 는 원소의 산화수를 나타낸다.

기준 분배계수는 계산된 i 성분의 조성과 염소 물질수지식을 이용하여 다시 업데이트되며, 각 단계 걸쳐 기준 분배계수 값이 수렴할 때까지 반복계산된다. 기준 원소의 분배계수 값의 수렴조건은 다음과 같다. Fig. 3은 계산 흐름도를 나타내었다.

$$\sum_j (D_{r,j}^{k+1} - D_{r,j}^k) / D_{r,j}^k < 10^{-12} \quad (6)$$

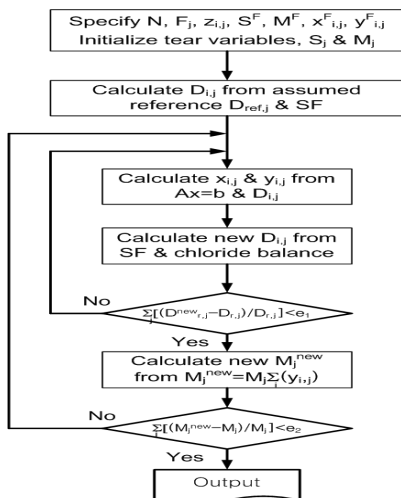


Fig. 3. Algorithms of computer simulation for multistage countercurrent extraction process.

2.3 산화추출 모사

Fig. 4은 몰유량이 각각 100, 50 kmol/hr의 용융염-액체금속 향류 흐름에서 각단에 걸쳐 액체금속상의 흐름에서 조성분포를 나타내었다.

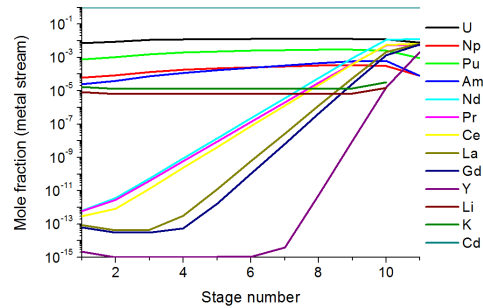


Fig. 4. Composition profiles in metal stream.

예상한 바와 같이 분리계수가 상대적으로 큰 악티늄족 원소들이 금속상 흐름의 출구단 쪽으로 조성이 증가하는 결과를 보여주고 있다.

3. 결론

본 연구에서는 용융염-금속의 비혼합 액상류간의 향류 접촉으로 원소의 재분배가 일어나는 다단 추출공정의 전산모델을 보완하였다. 추출제 공급에 대한 추출 활성원소들의 분배 및 물질수지 변화와 다단에 걸쳐 다성분 농도추이를 예측할 수 있었다.

4. 감사의 글

이 논문은 2014년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 연구 수행 되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] T. Kobayashi, "An Assessment of the Multi-stage Counter Current Extraction of TRUs from Spent Molten Salt, into Liquid Metal," Journal of Nuclear Science and Technology, Vol.43, No.7, pp.819 - 823(2006).
- [2] K. Kinoshita, "Separation of Uranium and Transuranic Elements from Rare Earth Elements by Means of Multistage Extraction in LiCl-KCl/Bi System," Journal of Nuclear Science and Technology, Vol.36, No.2, pp.189 - 197(1999).
- [3] 김광락 외, "용융염 다단추출공정의 전산모델 개발," 2013 한국방사성폐기물학회 추계학술대회 논문요약집, pp.137-138 (2013).

절개탈피복 회수 연료파편의 세습 휘발거동 분석

이재원*, 이도연, 백영희, 이광연, 강상준, 전상채, 박근일
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*njwlee@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로공정의 전해환원용 원료물질은 전처리공정에서 제조 연구를 수행하고 있다. 원료물질의 형태는 사용후핵연료봉으로부터 연료물질을 회수하는 방법에 따라서 달라지며, 회수방법으로 기계적탈피복 및 산화탈피복 방법이 있다. 연료물질은 기계적 탈피복 방법에 의해서 연료파편(fuel fragment), 산화탈피복에 의해서는 U_3O_8 분말 형태로 회수된다. U_3O_8 분말은 성형 및 고온열처리를 통해 다공성 펠렛 형태로 얻어 지기 때문에 전해환원시에 메쉬형 바스켓을 적용할 수 있게 된다. 고온열처리를 하여 Cs, I, Te 핵종을 제거하면, CsI는 배기체처리시에 Cs는 석탄회 필터, I는 AgX 필터에 선택적으로 포집되며, 전해환원시에 반응성 높은 I 및 Te로부터 Pt양극의 보호, 고방열핵종인 Cs이 거의 축적되지 않기 때문에 염교체 주기가 길어지며, 박막결정화법에 의해 염을 정제하여 재활용 할 수 있다는 장점이 있다. 연료파편이 분말화가 되지 않고 핵종 휘발제거율이 높은 조건은 O/U비가 2.20가 된다[1]. 본 연구에서는 기계적 탈피복에 의한 연료파편 회수와 Cs 핵종의 휘발거동 거동을 분석하였다.

2. 실험

실험에 사용된 사용후핵연료는 연소도가 60 GWD/tU이며, 1개의 연료봉에서 균질하게 연소된 영역에서 채취한 길이 25 cm의 절단연료봉을 수직식 절개탈피복장치(Fig. 1.a)를 사용하여 연료파편 형태로 연료물질 회수하였으며 연료파편의 크기는 진동체(Fig. 1.b)를 이용하여 15분간 체질하여 분석하였다. 회수된 연료파편의 크기별 연소도 정도의 분석을 위해 $^{134}Cs/^{137}Cs$ 의 계수비를 감마스펙트로미터를 사용하여 측정하였다. O/U비가 2.20가되는 평형상태 산소분압은 Lindemer와 Besmann [2]의 자료를 이용하여 계산하였다. 운반기체로는 불활성의 Ar을 사용하였다. Cs 핵종의 휘발거동은 감마스펙트로미터를 사용하여 분석하였다.

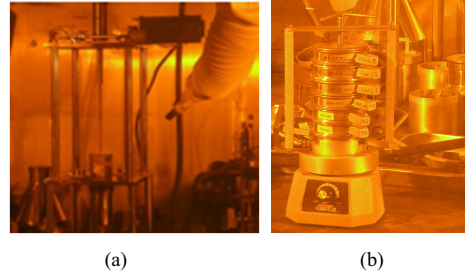


Fig. 1. Mechanical decladder and sieve shaker.

3. 결과 및 토의

진동체를 이용하여 분석된 연료파편의 크기분포는 Fig. 2에 나타내었다. 연료파편의 67%는 2-5 mm에 분포하며, 1-2 mm 크기는 18%가 된다. 연료파편의 0.2 mm 이하는 2.5%로 매우 낮다.

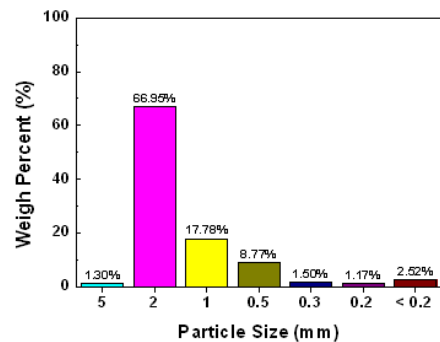


Fig. 2. Size distribution of fuel fragments.

연료파편의 크기별 $^{134}Cs/^{137}Cs$ 계수비는 Fig. 3과 같으며 파편의 크기가 감소함에 따라서 계수비가 증가됨을 보인다. 이는 고연소도 펠렛의 중심에서 가장자리로의 반경방향으로 Pu 농도의 증가와 유사한 형태를 보였다. 따라서 연료파편 크기가 0.2 mm 이하의 생성은 피복관 절개동안 절단날이 펠렛의 기공밀도가 높은 rim 영역과 접촉 시에 가해진 전단력에 의해 파쇄된 것으로 여겨진다.

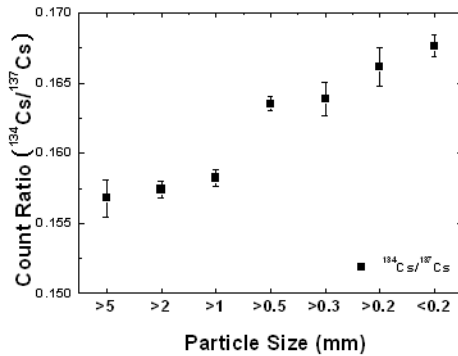


Fig. 3. $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ count ratio with fuel fragment size.

Cs 핵종 휘발거동의 기초실험으로 저연소도들 포함하여 1 mm 이상의 연료파편을 사용하여 1200 및 1500 °C, 불활성분위기(Ar)에서 10시간동안 열처리를 하여 화학분석을 수행하였다. 평균 연소도 35 GWd/tU 연료파편의 경우에 1200 에서 1500 °C로 온도가 증가함에 따라서 Cs 핵종의 제거율은 5.6에서 46%로 증가되며, 평균 연소도 58 GWd/tU 연료파편에서는 1.6에서 6.8%로 증가되나 제거율이 매우 낮았다. 연소도가 60 GWd/tU 이며 크기가 1-2 mm 사이의 연료파편을 사용하여 Cs 핵종의 휘발거동에 대한 산소농도의 효과를 실험하였다. 실험조건은 온도 1300 °C에서 O/U비가 2.20인 산소분압을 계산하여 산소농도를 260 ppm, 운반기체를 Ar으로 하여 10시간동안 Cs 핵종의 휘발거동을 감마스펙트로미터로 분석하였다. 산소와 알곤의 혼합기체의 공급은 등온구간에서만 하였다. 이는 승온 및 냉각시 산소분압이 높아서 펠렛이 과잉으로 산화되어 미립자가 발생하는 것을 방지하기 위한 것이다. Cs 핵종의 휘발은 1100-1230 °C 사이에서 개시되며, 그림의 곡선에서 맞춤형 1300 °C에서의 Cs 제거율은 약 23%가 된다. 이로부터 연료파편의 크기가 핵종의 확산/휘발에 영향을 줄 수 있었다. 등온구간이 끝나는 10시간 후에 Cs 핵종의 휘발제거율은 96%를 보였다.

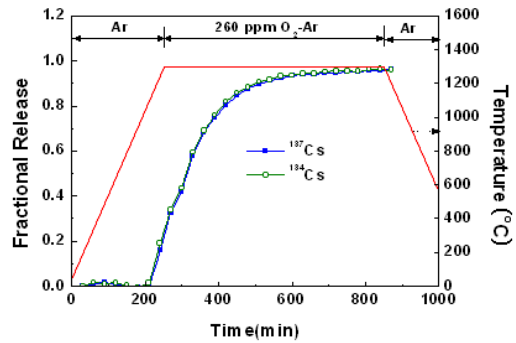


Fig. 4. Fractional release of caesium.

4. 결론

사용후핵연료의 연료파편으로부터 회수된 연료파편의 크기와 크기별 연소도 정도를 분석하였다. 연료파편으로부터 Cs 핵종을 96% 제거할 수 있는 예비 공정조건 자료를 확보하였다. 연료파편의 크기별로 온도 및 산소농도에 따른 추가 실험이 필요하다.

5. 감사의 글

이 논문은 2012년도 교육과학기술부의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(원자력기술개발사업, No. 2012M2A8A5025696).

6. 참고문헌

- [1] K. Shiba, J. Nucl. Mater., 57, pp. 217-279 (1975).
- [2] T. B. Lindemer and T. M. Besmann, J. Nucl. Mater., 130, pp. 473-488 (1985).

우라늄-희토류 함유 LiCl-KCl 공융염에서 우라늄 회수 시험

심준보*, 신정식, 김택진, 김시형, 김가영, 김광락, 정재후, 안도희, 백승우, 이한수, 김인태

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*njbshim@kaeri.re.kr

1. 서론

고속로(SFR)를 기반으로 하는 미래 원자력시스템의 구축 및 원자력발전소에서 나오는 사용후핵연료의 감용을 위해 파이로 공정(Pyroprocess) 기술의 확립이 꼭 필요하다. 파이로 기술의 활용에 있어 매우 중요한 경제성이나 방사선 안전에 대한 신뢰성을 높이려면 처분하는 고준위폐기물에 들어가는 악티늄족 원소의 양을 최소화시켜야 한다. 이미 한국원자력연구원에서는 전해제련 공정에서 나오는 폐 용융염에서 우라늄 및 TRU와 같은 악티늄족 원소를 최대 회수하기 위해 LCC 전해 및 CdCl_2 산화제를 적용하는 “잔류악티늄족 원소 회수(RAR; Residual Actinides Recovery)” 기술을 개발하였다. 최근에는 RAR 기술이 미래에 실용화되도록 효율성 및 경제성이 더욱 개선된 혁신적인 공정 및 장치를 개발하는 연구에 착수하여 희토류(RE) 금속을 환원제로 활용하는 신개념의 RAR 핵심기술을 제시하였다[1].

본 논문에서는 우라늄과 희토류 원소(Ce 및 La)가 들어있는 모의 LiCl-KCl 공융염에서 Nd 금속을 환원제로 활용하여 우라늄이 회수되는 특성을 U의 잔류농도, 용융염 속의 Ce 및 La의 환원 거동, 반응 생성물인 침전물과 부유물의 특성 확인(XRD, SEM-EDS) 측면에서 살펴보았다.

2. 본론

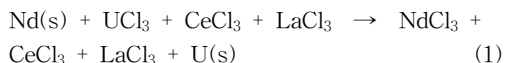
2.1 실험 장치 및 방법

실험은 수분 및 산소의 농도가 5 ppm 이내로 유지되는 아르곤 분위기의 글로브박스에서 진행하였다. 온도 500 °C에서 UCl_3 , CeCl_3 및 LaCl_3 를 각각 0.17, 0.4 및 0.18 wt% 농도로 형성시킨 LiCl-KCl 공융염 속에 Nd 금속봉(길이 25 mm)을 넣고 용융염을 70 rpm으로 교반하면서 U의 환원 반응을 진행시켰다. 용융염 중 U 농도의 변화량을 Cyclic Voltammetry (CV) 기법으로 측정하였으며, 용융염 시료를 채취하여 ICP 분석에 의한 U, Nd, Ce 및 La의 농도를 정량 분석하였다.

또한, 반응 생성물인 용융염 내 침전물과 부유물의 특성을 XRD 및 SEM-EDS 등의 분석 장비로 확인하였다.

2.2 우라늄의 회수 거동 및 잔류 농도

공융염 혼합물 속에서 Nd가 환원제 역할을 하면서 당량적으로 UCl_3 와 Nd가 치환되는 반응이 진행된다. 이로 인해 용융염 속에는 점차 NdCl_3 가 생성되며 이와 동시에 U 이온은 환원되어 U 금속이 생성되며 아래 반응식과 같이 진행된다.



U 회수반응 시작 후 용융염 시료를 처음 4개는 20분 간격으로 나머지 4개는 60분 간격으로 채취하여 U 농도가 감소되는 변화를 측정하였는데 환원반응 시작 후 약 180 분 정도면 환원 반응이 종료되는 것으로 나타났다(Fig. 1).

금속염화물의 형성 Gibbs 자유에너지($-\Delta G$)가 Nd보다 더 큰 Ce 및 La의 경우 환원반응은 HSC 전산코드를 이용한 반응평형 분석 결과로부터 예상한 바와 같이, 금속 이온이 환원되어 금속 입자가 생성되면서 이들 희토류 금속의 농도가 시간에 따라 점점 감소됨을 확인할 수 있다(Fig. 2). 그리고 Fig. 2에서 Ce 및 La의 기울기는 Nd와의 Gibbs 자유에너지 차이에 따른 편차를 보여주고 있다. RAR 핵심기술의 U 회수 시험을 하면서 U와 동반 환원되는 희토류(RE) 양의 측정결과 환원된 생성물의 U/RE 비는 약 1.4로 나타났으며 이 값은 본 연구에서 기대하는 목표치인 4.0 보다 작은 값이다. 그러나 동반 환원된 RE 금속은 대부분 공융염의 표면으로 부유되어 모이는 현상이 실험에서 파악되었기 때문에 공융염 아래로 침전되는 U 회수물 중의 U/RE 비율은 4.0 이상 충분히 향상시킬 수 있을 것으로 예상된다.

Fig. 1에서 볼 수 있듯이 U 회수시험 결과 UCl_3 상태의 U 잔류 농도는 환원반응 시작 3시간 경과 후 약 10 ppm으로 측정되었으며 회수성능이 크게 향상된 실험 자료를 얻을 수 있었다. 환원반응 종료 시간은 실험을 진행하면서 실시간으로 용융염 내부의 금속이온의 농도 변화를 파악하기 위해 CV 기법으로 on-line 측정하였는데, 약 180분이면

U 피크가 나타나지 않았다.

2.3 반응 생성물의 특성 분석

U-Nd-Ce-La 4성분 계의 LiCl-KCl 공융염에서 Nd 뿐만 아니라 Ce 및 La와 같이 자유에너지 값이 악티늄족 원소에서 Nd보다 더 멀리 떨어진 금속을 환원제로 사용하여 U회수 시험을 수행하였다. RE 금속에 의한 환원반응 생성물은 금속 이온 상태에서 나노(nano) 크기의 아주 미세한 입자 상태로 바뀌는데, 실험 결과로부터 금속의 밀도 차에 의해 일어나는 것으로 판단되는 희토류 금속은 공융염의 표면으로 부유되고 밀도가 매우 큰 U는 공융염 아래의 용기 바닥으로 침전되는 회수거동을 관찰할 수 있었다.

U 회수물의 용융염에서 분리를 위해 용융염에 Cd를 첨가하여 냉각한 뒤 U-Cd 잉곳을 제조하였으며, 이와 같이 제조한 잉곳에서 소량의 시료를 채취하여 SEM 촬영과 EDS 성분 분석을 수행하였다. SEM 및 EDS 측정 결과 소량의 환원제 성분인 Nd가 회수물에서 확인되었다. 이 EDS 측정 결과에서 계산된 U/Nd 비는 약 26.18이며 목표값인 4.0을 훨씬 상회하는 만족할 만한 결과이다.

한편, 공융염 표면에 모여 있는 부유물 시료를 채취하여 XRD에 의한 성분 분석을 수차례 하였으며 그 결과를 Fig. 3에 나타내었다. 이 XRD 분석 결과로부터 부유물에는 U 성분은 들어있지 않은 것으로 나타났으며, 부유물의 대부분은 희토류 금속이나 일부 희토류 산화물 및 Cd 합금인 것으로 확인되었다. 따라서 U 회수 반응에 동반되어 환원되는 희토류 금속은 밀도가 공융염에 비해 크지만 환원된 금속의 크기가 나노 수준으로 매우 작기 때문에 용융염의 표면으로 모이는 현상을 본 실험을 통해 밝힐 수 있었다.

3. 결론

우라늄과 희토류 원소(Ce 및 La)가 들어있는 모의 LiCl-KCl 공융염에서 Nd 금속을 환원제로 사용하는 U 회수시험 결과 UCl_3 상태의 U 잔류 농도는 환원반응 시작 3시간 후 약 10 ppm으로 측정되었으며 U 회수능력이 크게 향상된 실험 자료를 얻을 수 있었다.

동반 환원된 희토류 금속 미세 입자는 공융염의 표면으로 부유되어 모이는 현상이 실험에서 관찰되었으며 공융염 아래로 침전되는 U 회수물 중의 U/RE 비율은 4.0 이상 충분히 향상시킬 수 있을 것으로 기대된다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] 심준보 외, 한국방사성폐기물학회, 2013년 춘계학술발표회 논문요약집, pp. 171-172, 2013.

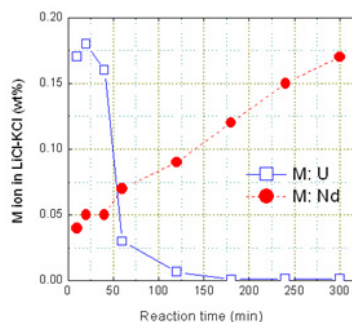


Fig. 1. Change of U and Nd concentrations in an LiCl-KCl salt.

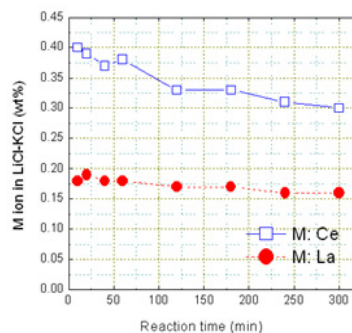


Fig. 2. Change of Ce and La concentrations in an LiCl-KCl salt.

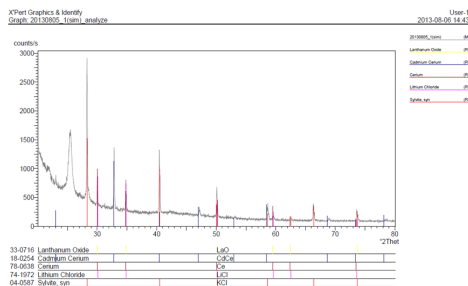


Fig. 3. XRD result of the particles floated on the surface of an LiCl-KCl salt.

사용후핵연료 운반 위험도 평가를 위한 방출선원항관련 조사 연구

신상원*, 김연화, 신상화, 이재민

티유브이라인란드코리아(주), 서울특별시 구로구 디지털로 31길 41

*sangwon.shin@kor.tuv.com

1. 서론

사용후핵연료 운반 안전성 확보를 위해서는 육·해상 운반 수단의 안전성뿐만 아니라 운반용기, 항만, 물량장등을 포함하는 운반시스템, 운반 방법 및 운반 경로에 대한 안전성 및 침몰사고, 임시 저장시설의 항공기 충돌 등과 같은 사고 위험도 평가를 수행할 수 있어야 한다. 한편, 사용후핵연료 운반 위험도 평가를 위해 구축한 시나리오의 가상 사고조건에 따라 방사성 물질이 대기 중 또는 해양으로 방출될 수 있기 때문에 대기확산 및 해양확산모델을 각각 적용해야 하며, 이를 위한 사전작업으로 사용후핵연료 및 용기 특성, 사고 조건에 따른 사용후핵연료 선원항의 방출시나리오 및 방출률(release rate), 방출 분률(release fraction) 등을 재정립할 필요가 있다.

본 논문에서는 사용후핵연료 운반 위험도 평가 연구사례에서 방출선원항관련 내용을 고찰하였다.

2. 본론

2.1 대기확산 모델 적용 방출 선원항 정의

대기확산 모델을 적용해야하는 시나리오는 육상 운반시 충돌, 낙하, 화재 등과 해상운반에서의 충돌, 좌초 등과 같은 초기사고 및 연계 사고 조건에 해당된다.

2.1.1 선원항 방출 시나리오

일반적으로 사용후핵연료 운반용기 방출 선원항(releasable source term)은 1) 사용후핵연료 내부에 포함된 핵종 2) 사용후핵연료 표면에 있는 핵종 3) 용기내부 잔류 오염물로 정의하고 있으며, 장전, 운반 과정 또는 가상 사고에 의해 사용후핵연료 표면에 고착된 크러드(crud)가 떨어져 나가거나, 피폭관 건전성 상실로 인해 용기 내부 공동(cavity)에 방사성 에어로졸(aerosol)이 채워질 수 있다. 이 방사성 에어로졸이 가상사고에 의해 주요 격납경계를 통해 대기 중으로 방출된다고 가정하고 있다.

2.1.2 방출률 및 방출분률

원자력안전위원회 고시 제2012-49호, 10 CFR 71

및 IAEA TS-R-1에서는 운반용기의 격납 안전성을 위해 정상운반조건하에서 방사성물질의 방출률을 $10^{-6} \cdot A_2/h$ 이하로 유지(식1)하고, 운반사고조건하에서는 방사성물질의 방출률을 $A_2/week$ 이하로 유지(식3)하도록 요구하고 있으며, 식2)와 식4)를 이용하여 허용방출률을 계산할 수 있다. 다만, 개별적으로 안전성을 확보한 운반시스템에 대한 통합 위험도 평가시에서는 최근 사고·사례나 규제관점의 변화 등을 고려한 정상조건에서 A_2 값의 백만분의 일과 사고조건하에서 week의 기준 적용성 검토가 필요하다.

$$R_N \leq 10^{-6} A_2 / hour \quad (1)$$

$$R_N = L_N C_N \leq A_2 \times 2.78 \times 10^{-10} / s \quad (2)$$

$$\int_0^T R_A(t) dt \leq A_2, \text{ or } R_A \leq \frac{A_2}{week} \quad (3)$$

$$R_A = L_A C_A \leq A_2 \times 1.65 \times 10^{-6} / s \quad (4)$$

여기서, L_N 은 정상시 최대 허용 누출률 [cm^3/s]이고, C_N 은 누출되는 가스의 방사능 밀도[Bi/cm^3]을 나타낸다. 앞서 언급한 사용후핵연료 방출선원항으로 정의된 기체, 휘발성, 분말 핵종 및 크러드의 방사능 밀도를 계산하기 위한 용기내부 방출분률을 Table 1에 나타내었다.

Table 1. Fraction : Normal and Accident conditions

Variable	PWR	
	Normal conditions	Hypothetical conditions
Fuel assumed to fail	0.03	1.0
Fission Gas released	0.3	0.3
Volatiles Released	0.0002	0.0002
Fuel Mass Released as Fines	0.00003	0.00003
Crud Spallation	0.15	1.0

NUREG/ CR-6487[1]에서 제시한 여러 인자 값을 활용해서 방사능 밀도를 계산할 수 있다. 다만, 특정 사용후핵연료(초기농축도 3.2 wt%, 연소도 33KWd/MTU, 냉각기간 5년)에 대한 인자 값이기 때문에 불확실성을 감안할 필요가 있다.

2.2 해양확산 모델 적용을 위한 방출선원항

해양확산 모델을 적용하는 시나리오는 해상운반 시 충돌, 좌초 및 접촉에 의해 침몰로 연계된 사고 조건에 해당된다.

2.2.1 선원항 방출 시나리오

CRIEPI는 일본 근해 대륙붕에서의 사용후핵연료 가상 침몰사고평가를 위해 그림 1에서 나타낸 것과 같이 가상사고로 인해 운반용기가 침몰 즉시 O-ring 기능 이상으로 밀봉 기능을 상실하게 되고, 운반용기 내부(cavity)로 유입된 해수에 의해 사용후핵연료가 노출되어 용출률(Reaching rate) [Ci/year]로 핵종이 용출되고, 용출된 핵종은 용기 틈(gap)을 통해 방출률[Ci/year]로 해양으로 방출된다는 시나리오를 통해 해양으로의 핵종 방출률을 계산하였다. 용출률이 방출률보다 클 때 해양으로 방출되는 양은 용출률이 아니라 방출률에 의해 조절되며, 또한 용기 내부에서 핵종의 농도가 포화되면, 용기내부에 있는 해수에 의해서는 더 이상 용출되지 못하며 특정한 속도로 틈을 통해 들어오는 해수에 의해 방출된다. 이러한 효과를 장벽효과(Barrier effect)라 부르며, CRIEPI는 이러한 장벽효과 모델(Barrier effect model)로 방출률을 계산하였다[2].

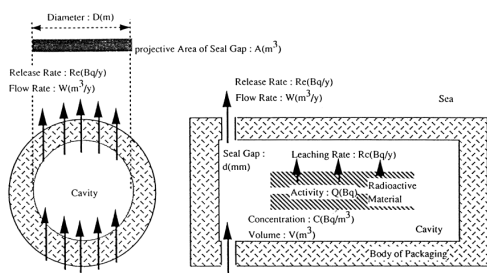


Fig. 1. Release Scenario into the sea.

한편, NRPA(Norwegian Radiation Protection Authority)에서는 북극 해안선을 따라 사용후핵연료 해상 운반 도중 침몰 사고에 따른 방사선생태학적영향평가를 수행하였으며, 사용후핵연료 선원항의 방출 시나리오 설정없이 간단한 가정조건으로 방출률을 설정하였다[3].

- (1) Instant release
: 10% for the total inventory
- (2) slow long-term release
: annual release of 0.09% for the inventory

해상침몰의 경우, 육상과 달리 year의 시간개념을 사용하고 있으며, 이는 해양 유동확산, 퇴적물로의 침적시간 등을 고려한 용기 인양조건과의 연계성을 고려할 필요가 있다.

2.2.2 방출률 및 방출분률

CRIEPI에서는 상기 방출시나리오를 적용하여 식 5)를 사용하여 해양으로의 방출률을 계산하였다.

$$R_e = CW \quad (5)$$

여기서, R_e 는 해양으로의 방출률[Ci/y], C 는 유입된 해수의 방사능 밀도[Ci/cm³], W 는 용기 Gap에서의 유량[cm³/y]을 나타내며, 운반용기 내부로 유입된 200°C 해수 및 0.01mm 틈에서의 9.5E-10 m³/s 의 값을 적용하였다.

3. 결론

사용후핵연료 운반 안전성 확보를 위한 위험도 평가시 구축 시나리오에 따른 가상 사고 조건에서의 방출선원항 정의를 위한 연구 사례를 조사·분석하였다. 대기확산모델 및 해양확산모델 적용을 적용하기 위한 사용후핵연료 선원항의 방출시나리오 및 방출률(release rate), 방출 분률(release fraction) 등을 추출하였다. 이 값은 사용후핵연료 운반 위험도 평가 지침 개발을 위한 대표 시나리오의 위험도 분석시 주민 및 작업자의 방사선영향평가를 위한 기초자료로 활용될 예정이다.

4. 감사의 글

본 연구는 원자력안전위원회의 원자력안전연구 원자력안전연구개발(방사성폐기물 및 사용후핵연료 규제기술개발)사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] NUREG/CG-6487, "Containment Analysis for Type B Packages Used to transport Various Contents", 1996.
- [2] IAEA-TECDOC-1231, "Severity, probability and risk of accidents during maritime transport of radioactive material", 2001.
- [3] Journal of Environmental Radioactivity 100, pp. 184-191, 2009.

Current Status of the INPRO Collaborative Project, Proliferation Resistance and Safeguardability Assessment Tools (PROSA)

H.L. Chang*, E.H. Kwon, W.I. Ko, and H.D. Kim

Korea Atomic Energy Research Institute, 989-111 Daeduk-daero, Yuseong-gu, Daejeon

*hlchang@kaeri.re.kr

1. Introduction

The current methodology of the International Project on Innovative Nuclear Reactors and Fuel Cycles (INPRO) in the area of proliferation resistance (PR) provides a stepwise and iterative process through the five User Requirements (URs), and asks for the implementation of PR intrinsic features and extrinsic measures throughout the full life cycle of nuclear energy systems (NESs) with relevant criteria resulting in specified indicators and acceptance limits. With the objective of making the assessment of proliferation resistance simpler and easier to use, the INPRO collaborative project in the PR area proposes to reduce number of user requirements from five to three. This paper summarizes main results of the collaborative project.

2. INPRO Methodology

The INPRO methodology was developed as the tool to undertake national, regional or global nuclear energy systems assessments [1]. It comprises a three tier hierarchy of Basic Principles, User Requirements and Criteria with Indicators and Acceptance Limits. If all criteria, user requirements and basic principles are met in the assessment areas of economics to environment, the NES represents a source of energy consistent with a country's sustainable development criteria.

The INPRO methodology in the area of PR outlines an evaluation methodology that provides both a framework for assessing PR and guidance to improve PR of a nuclear energy system [2].

3. Discussions on INPRO PR Methodology

The first user requirement (UR1) is whether State's commitments, obligations and policies provide credible assurance on the exclusive peaceful use of the NES and in particular, that the legal basis

enables the IAEA to achieve its safeguards objectives including the detection of undeclared nuclear materials and activities. Evaluation parameters (EPs) for UR1 of the current manual have been restructured to group EPs more logically and to develop a scheme to determine gaps in a given situation. Without an AP in force, the IAEA cannot meet its safeguards objectives for the State as a whole - sustainability gap as defined by INPRO - the IAEA cannot draw a broader conclusion that all nuclear material remains in peaceful use and that there is no undeclared nuclear activity at the State level. Therefore, the term 'international standard' in acceptance limits has been changed to 'best practice' since the international standard is not applicable to AP.

The second question is basically whether the NES could provide nuclear material that can be used for a nuclear weapon and states that the NES should have low attractiveness of nuclear material and technology for use in a nuclear weapons program. However, information regarding the nuclear material quality and quantity, and material production facilities and technologies present in an NES is not a requirement for the State, but is essential information to support a PR assessment. Therefore, UR2 is modified to develop NES information catalogue rather than a user requirement.

The next question is whether the design and operation of the NES facilitate the implementation of the IAEA safeguards, implying that the diversion of nuclear material becomes reasonably difficult and detectable. Diversion includes the use of a NES/facility for the introduction, production or processing of undeclared nuclear material [3].

The technical objective of safeguards is "the timely detection of diversion of significant quantities of nuclear material from peaceful nuclear activities to the manufacture of nuclear weapons or of other nuclear explosive devices or for purposes unknown, and deterrence of such diversion by the risk of

early detection.” Therefore, the assessment of UR3 on safeguardability asks whether design and operation of the NES facilitate the implementation of IAEA safeguards and whether safeguards objectives can be met effectively and efficiently. Effectiveness addresses the completeness and correctness of the safeguards coverage, while efficiency addresses the cost of implementation, i.e., accomplishment of a specified task with a minimum expenditure of time, resources and effort [4]. UR5 on optimization of the combination of intrinsic features and extrinsic measures is therefore merged into UR3.

For the evaluation of effectiveness, current EPs are reformulated to four new parameters: 1) whether the accounting system implemented by the operator provides accurate and complete information on nuclear materials, forms, amounts, flows, locations, transfers and identification of inventory changes; 2) whether all types of nuclear material flows and inventories can be verified adequately by SSAC/SG inspectorates/IAEA methods for the independent verification of operator’s declarations; 3) whether containment and surveillance measures/monitoring can be applied to complement nuclear material accountancy verification as appropriate; 4) whether the use of a safeguarded facility for the introduction, production and processing of undeclared nuclear material is difficult by design and detectable.

For the efficiency evaluation, a comparative assessment approach is proposed. The parameters are directed both to the operator and the IAEA, whether safeguards can be implemented at acceptable burden for the operator, and at equal or lower cost and effort to the IAEA than at a facility of the same type. The SBD concept would enable the safeguards authorities to implement safeguards effectively and efficiently at minimal impact on the operation of the NES.

The final question is whether all technically plausible acquisition paths are (can be) covered by a combination of multiple and mutually supportive intrinsic features and extrinsic measures that enables the IAEA to meet its safeguards objectives effectively and efficiently. For a non-nuclear weapon State with a CSA in force, all plausible acquisition paths should be covered by safeguards measures in the framework of the State-level safeguards

approach. As a measure of enhancing PR, each acquisition path should also be covered by technical features that are suitable for reducing the attractiveness of using the specific nuclear material and that prevent or inhibit the diversion of nuclear material and the undeclared production of direct use material, as well as by extrinsic measures that are described in UR1.

4. Conclusions

This paper summarizes main results of the INPRO PROSA project which took two years from February 2012. The most significant change is to use questionnaire for the evaluation of indicators. Evaluation parameters of each indicator are tested with yes/no findings instead of qualitative evaluation scale of VW, W, M, S, VS for proliferation resistance, thereby avoiding the reliance on expert judgment for the acceptance limit testing. In addition, evaluation of plausible acquisition paths regarding their coverage by multiple intrinsic features and extrinsic measures identifies strengths, weaknesses and/or any R&D needs for improvement of proliferation resistance of the NES.

5. References

- [1] Guidance for the Application of an Assessment Methodology for Innovative Nuclear Energy Systems, INPRO Manual – Overview of the Methodology, Volume 1 of 9 of the Final Report of Phase 1 of the International Project on Innovative Nuclear Reactors and Fuel Cycles (INPRO), IAEA TECDOC-1575 Rev.1, Vienna (2008).
- [2] Guidance for the Application of an Assessment Methodology for Innovative Nuclear Energy Systems, INPRO Manual – Proliferation Resistance, Volume 5 of the Final Report of Phase 1 of the International Project on Innovative Nuclear Reactors and Fuel Cycles (INPRO), IAEA TECDOC-1575 Rev.1, Vienna (2008).
- [3] IAEA Safeguards Glossary 2001 Edition, International Nuclear Verification Series No.3, IAEA, Vienna (June 2002).
- [4] Guidance for States Implementing Comprehensive Safeguards Agreements and Additional Protocols, IAEA Services Series No. 21, IAEA, Vienna (2012).

강건설계 기법을 이용한 사용후연료 수송용기의 구조설계인자 연구

박경원, 신태명*

한국교통대학교, 충북 충주시 대학로 50

gwpark@ut.ac.kr

1. 개요

사용후연료 수송용기의 가상사고조건 중에서 9m 낙하사고는, 보통 수송용기의 구조적 건전성에 가장 지배적인 영향을 주는 것으로 알려져 있다. 본 논문에서는 전산코드를 이용한 해석적 방법으로 낙하해석을 수행하였다. Fig. 1에서 볼 수 있듯이, 본 논문에서는 수송용기의 상·하부에 부착되는 충격완충체 및 용기본체의 치수 비율과 충격흡수체 재료의 탄성계수 및 흡수체 케이싱의 두께를 설계인자로 설정하여 강건설계 기법 중에 다구치 방법을 이용한 직교배열실험을 수행하였다. 여기서는 9m 낙하충격으로 인하여 용기본체의 응력감소에 영향을 주는 최적설계인자를 도출해내어 사용후연료 수송용기의 구조설계 시 반영할 수 있도록 강건설계 기법을 제안하고자 한다.

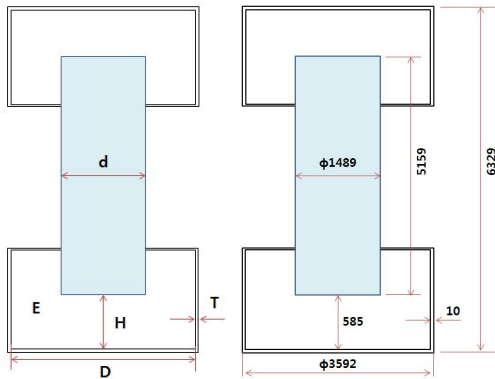


Fig. 1. Definition of the design factors and dimensions of KN-18 SNF transport cask.

2. 강건설계 기법과 유한요소해석

2.1 다구치 방법과 설계인자 선정

다구치 방법은 실험계획법에 의한 시스템 최적화 방법이다. 실험계획법을 수행하기 위한 설계인자를 아래와 같이 선정하였고, 기검증용기와 개발 중인 용기의 도면을 토대로 각 용기의 선정하고자 하는 비율을 구하여 Table 2에 나타냈다. 또한

설계인자(design factor)와 수준(level)을 Table 3에 나타냈다. 인자의 수가 4개이고 각 인자의 수준은 3수준이므로 표준직교배열표인 $L_9(3^4)$ 를 사용하였다.

- D/d : 용기본체 지름에 대한 충격흡수체 지름의 비
- H/d : 용기본체 지름에 대한 용기본체 바닥에서 충격흡수체 바닥까지 길이의 비
- E : 충격흡수체 재료의 탄성계수
- T : 충격흡수체 케이싱의 두께

그리고 특성치(전달되는 충격력의 크기)를 최소화 하는 설계문제를 다루기 때문에 망소특성으로 설정하였고, 식 (1)을 이용하여 직교배열표의 해석결과를 바탕으로 S/N비(signal to noise)를 계산하였다.^[1]

$$SN_i = -10 \log \left[\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n y_i^2 \right] \quad (1)$$

Table 1. Ratio of dimensions

Name	D/d	H/d
KN-12	1.26:1	0.2:1
KN-18	2.4:1	0.4:1
KORAD 21	1.5:1	0.26:1

Table 2. Levels of Design Variables

Design Factor	level		
	1	2	3
A(D/d)	1.2:1	2.4:1	3.6:1
B(H/d)	0.2:1	0.4:1	0.6:1
E	8.1E01	8.1E02	8.1E03
T	0.5	10	15

2.2 유한요소해석 모델링

본 연구의 전산해석을 위해 ABAQUS/Explicit code를 사용하였으며, 해석대상 용기는 KN-18 용기로 정하였다. 해석시간을 효율적으로 줄이기 위

해 단순화된 모델링(용기본체, 용기 덮개, 충격흡수체, 흡수체 케이싱, dummy)으로 구성하였고, 대칭성을 고려한 1/2 형상으로 해석을 수행하였다. 실제 용기 내부를 구성하고 있는 바스켓, 핵연료집합체, 그리고 냉각수는 충격특성에 대한 영향이 상대적으로 적다고 가정하고 가상모델(dummy)의 중량으로 용기내부에 고려하였다. 참고로, 해석에 사용된 유한요소모델의 재료물성치를 Table 1에 나타냈다.

Table 3. Data for FE-simulation

위 치	재 료	탄성계수 (MPa)	밀도 (t/mm ³)	항복응력 (MPa)	프와 송비
용기본체	SA-350	1.91E05	7.62E-09	260.0	0.31
용기덮개(lid) / 흡수체 케이싱	SA-182 GR F6NM	2.01E05	7.81E-09	620.0	0.29
충격흡수체	Balsawo od	8.1E02	1.44E-10	12.2	0.3
dummy	-	2.0E05	4.4E-09	-	0.29

3. 결과 및 고찰

3.1 최적설계인자 도출

직교배열의 실험순서로 낙하해석을 수행하였다. 각 실험의 S/N를 통하여 각 설계인자의 주효과(main effect)를 Fig. 2에 도시하였다. S/N 분석을 통해 충격흡수체 재료의 탄성계수와 충격흡수체와 용기본체 직경의 비율의 영향이 주된 것으로 확인되었고, 상대적으로 충격흡수체 케이싱의 효과가 작다는 것을 알 수 있었다. 그리고 각 인자의 S/N의 최대값이 본 실험의 최적 수준이며 Table 4에 나타내었다.

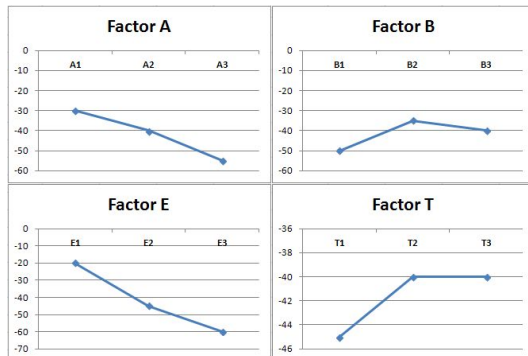


Fig. 2. Main effect plot for SN ratios.

Table 4. Comparison of initial and optimal levels

Div.	Levels of design factor			
Design factor	A(D/d)	B(H/d)	E	T
Initial levels	A2 2.4:1	B2 0.4:1	E2 8.1E02	T2 10
Optimal levels	A1 1.2:1	B2 0.4:1	E1 8.1E01	T3 15

3.2 기존수준과 최적수준의 용기내 응력 평가

기존수준대비 최적수준의 최대응력값은 수직낙하 16% 감소, 수평낙하 2%증가, 그리고 경사낙하 10% 감소하였다. 따라서 충격흡수체와 용기본체의 직경비를 줄이고, 흡수체 재료를 기존 balsawood 보다 연한 재질로 하고, 흡수체 케이싱의 두께를 5mm 늘리는 것이 용기본체의 응력감소에 효과가 있는 것을 적인 것을 알 수 있었으며, 강건설계 기법을 적용한 방법이 구조설계인자 선정에 유효한 것으로 판단된다. 차후에는 도출된 최적설계인자간의 교호작용에 대해서 연구를 할 계획이다.

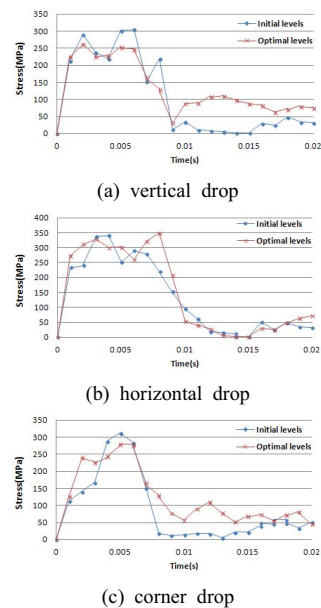


Fig. 3. Time history of stress in cask body.

4. 참고문헌

- [1] Phadke, M. S., Quality Engineering Using Robust Design, Prentice-Hall, New Jersey, 1974. 등

사용후핵연료 건식저장 환경에서의 Hoop Stress별 수소화물 재배열 취성 분석

국동학, 김영준, 김주성, 구양현*

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

syskook@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료는 건식저장 이후에 최종적인 관리 방안으로의 수송의 과정을 필연적으로 거치게 되어 있으며, 이 과정에서 가장 큰 관심은 수송 중 외부 충격에 대한 사용후핵연료의 건전성 유지 여부이다. 횡방향으로 수송되는 사용후핵연료 피복관에 수직의 Pinch Load가 발생할 경우가 가장 핵연료에 damage가 큰 것으로 알려져 있으며^[1], 이때 진공건조 과정 중에 이미 발생했을 것으로 예상되는 반경방향 수소화물(radial hydride)가 사용후핵연료 건전성에 얼마나 영향을 미칠 것인가를 파악하는 것이 매우 중요하다^[2]. 따라서 본 연구에서는 미조사 Zry-4 피복관에 대해서 각 hoop stress 별로 수소화물 재배열(hydride reorientation)을 수행한 후에 그 취성을 파악하기 위한 예비적 링압축실험을 수행하였다.

2. 본론

2.1 수소화물 재배열 튜브 시험

수소화물 재배열 시험은 Fig. 1과 같이 250 cm 길이의 Zry-4 튜브를 대상으로 peak 온도를 400 °C를 목표로 수행하였다. 온도가 안정화 된 이후 Ar 가스를 튜브 내로 가압한 후 0.5 °C/min의 cooling rate로 냉각하였으며, 이때 내부 압력은 온도하강에 따라 자연적으로 감소하도록 하였다.

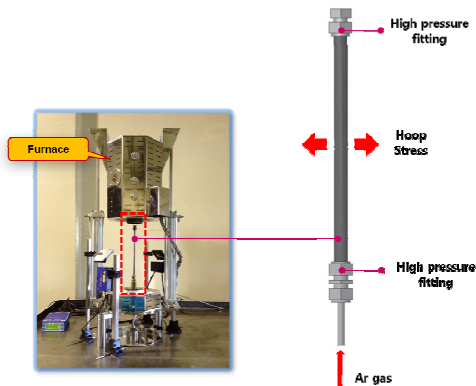


Fig. 1. Hybrid Reorientation Tube Test System.

2.2 수소화물 재배열 튜브시험 결과

미국 NRC 기준^[3]에 의하면 수소화물재배열이 발생하지 않기 위해 Hoop Stress는 90 MPa을 넘지 않도록 제한하고 있다. 그러나, 400 °C, 90 MPa, 0.5 °C/min의 수소화물 재배열 시험결과를 보여주고 있는 Fig. 2에서 상당수의 반경방향 수소화물을 관찰할 수 있었다. 전체 250 cm 길이 중에서 Fig. 2는 정가운데 uniform heat zone 10 cm 내의 서로 다른 위치에 관한 결과이다. 위의 기준이 미조사 Zry-4의 실험을 바탕으로 설정된 점^[4]을 감안하면 본 수소화물 재배열 실험결과는 상당히 흥미롭다.

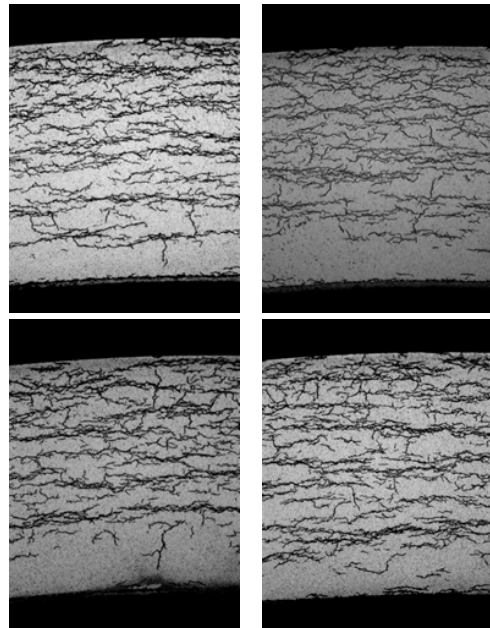


Fig. 2. Example of Hybrid Reorientated Test.

2.3 Ring Compression 시험

위와 같은 방식으로 수소화물 재배열 튜브 실험을 수행한 후에 피복관의 취성의 변화를 알아보기 위해서 링압축(ring compression) 실험을 추가적으로 수행하였다.

Fig. 3은 As Received 피복관, 300 ppm 정도의 수소장입만 수행한 피복관, 300 ppm 정도의 수소

장입 이후 수소화물 재배열 시험을 수행한 피복관의 링압축 시험 결과를 비교하여 나타내고 있다. 실험결과는 일반적인 예상대로 수소화물 재배열을 겪은 시편이 가장 취성이 높은 것으로 나타났다.

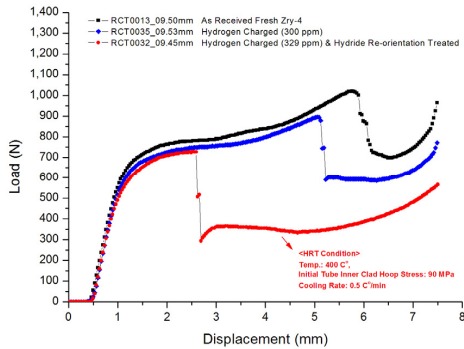


Fig. 3. Example of Ring Compression Result Comparison.

Fig. 4에는 수소화물 재배열을 각 hoop stress 별로 수행한 시편에 대한 링압축 실험결과를 나타내었다. 이 역시 일반적인 예상대로 높은 hoop stress 환경에서 수소화물 재배열을 겪었던 시편의 취성이 가장 높게 나타났다.

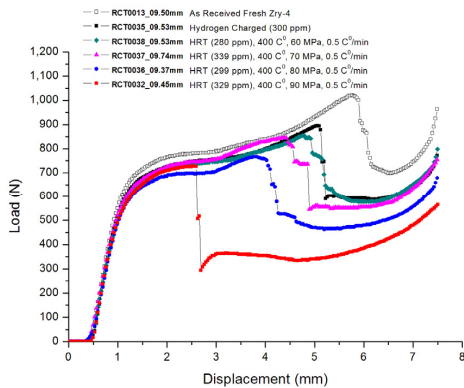


Fig. 4. Ring Compression Test Result for Various Hoop Stress.

3. 결론

사용후핵연료의 취성은 건식저장 이후 수송과정에서 염려되는 부분이며, 본 연구에서는 이를 파악하기 위해 미조사 Zry-4 튜브를 이용하여 수소화물 재배열 시험과 예비적 링압축 실험을 수행하였다. 실험결과 높은 hoop stress 환경에서 수

소화물이 재배열이 된 시편이 가장 취성이 높게 나타났다. 본 실험은 예비적인 단계이며, 향후 여러 조건에 대한 추가적인 실험과 더불어 취성 조건에 대한 보다 심도있는 분석을 지속적으로 수행할 예정이다.

4. 감사의 글

본 연구는 산업통상자원부 방사성폐기물관리기술개발사업의 지원으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

5. 참고문헌

- [1] EPRI, "Spent Fuel Transportation Applications-Assessment of Cladding Performance", EPRI-1015048, 2007.
- [2] M.C. Billone, "Ductile-to-brittle transition temperature for high-burnup cladding alloys exposed to simulated drying-storage conditions", Journal of Nuclear Materials, Vol. 433, 431-448, 2013.
- [3] US.NRC, NUREG-1536, "Standard Review Plan for Spent Fuel Dry Storage Systems at a General License Facility-Final Report", Revision 1, 2010.
- [4] Kese, K., "Hydride Re-Orientation in Zircaloy and its Effect on the Tensile Properties," SKI Report 98:32, 1998.

사용후핵연료 저장 용기의 Fuel guide tube 저변형 용접기술

주성민*, 박광수, 김홍주

(재)포항산업과학연구원, 포항시 남구 효자동 산32번지

*joo@rist.re.kr

1. 서론

국내 원자력발전소의 발전과정에서 발생한 사용 후 핵연료는 원자력 발전소내의 습식 저장조에 임시저장중이나 70% 이상 사용후 핵연료가 이미 저장되고 있어 포화가 임박한 실정이다. 따라서 사용 후 핵연료의 관리방법 중 하나인 건식 저장방식을 적극 검토할 필요가 있다. 이와 같은 건식저장은 vault, silo, module 및 cask방식 등으로 핵연료의 폐기, 재처리 전까지의 중간 저장 방식으로 해외에서 운용되고 있다. 본 논문에서는 가압경수로에서 발생한 사용후 핵연료를 건식 저장할 수 있는 건식저장 용기의 구성품인 fuel guide tube 또는 basket으로 불리는 부재의 용접기술에 관한 것이다. fuel guide tube의 용접은 통상 laser beam용접을 적용하는데 본 논문에서는 GTAW를 적용하면서도 변형은 laser 용접과 동등이상으로 저감할 수 있도록 용접부 후방에 냉각을 가하면서 용접을 진행하였다.

2. 용접부 유한요소해석과 검증

STS304 plate의 후방에 냉각을 하면서 용접이 진행되는 공정이 용접변형에 미치는 영향을 검토하기 위해 실험에 앞서 유한요소해석에 의한 용접해석의 타당성 검증을 해석결과와 실험 결과의 비교를 통해 수행하였다. 해석과 검증실험에 사용된 모델과 경계조건은 Fig. 1과 같다. 해석에 사용한 요소는 8절점 isoparametric 3차원 요소이다. 해석과 실험에서 사용한 용접조건은 Table 1과 같다.

Table 1. Welding conditions of 304 stainless steel

Welding process	Welding current	Welding voltage	Welding speed	Welding heat input
GTAW	100 A	10 V	10 mm/s	1 kJ/cm

Fig. 2는 용접실험과 해석 종료 후 최종 변형 모습이며 동일 지점에서의 온도이력과 변형이력을 Fig. 3과 Fig. 4에 도시하였다. 해석 process는 용접현상을 정도 높게 모사하고 있음을 알 수 있다.

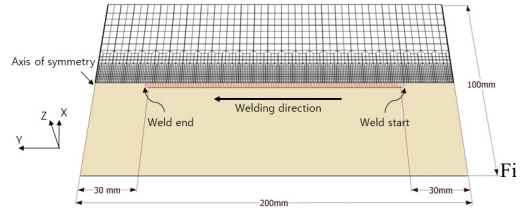


Fig. 1. Finite element mesh of model and coordinate system.

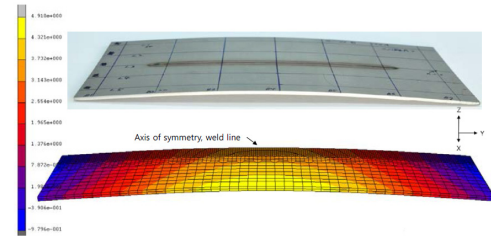


Fig. 2. Final welding deformation comparison of the simulated and the measured results.

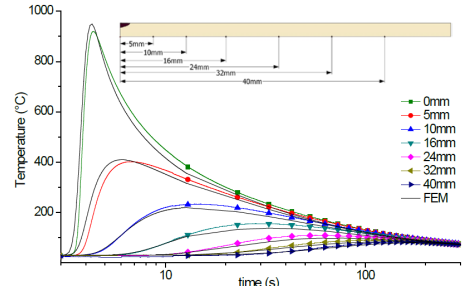


Fig. 3. Temperature history obtained from experiment and numerical simulation.

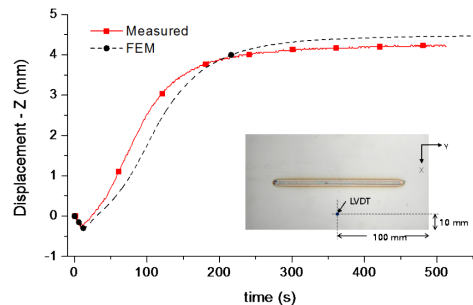


Fig. 4. Experimentally obtained and numerically simulated out-of-plane displacement evolution with time.

다음으로는 개발된 용접해석 process를 이용하여 용접부 후방에 냉각이 가해지는 경우에 대해 해석을 수행하였다.

161-167, 2011.
[2] 한국방사성폐기물학회지 Vol. 4, No. 1, pp. 51-58, 2006.

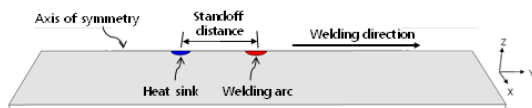


Fig. 5. A schematic of the heat sink welding model for the finite element analysis.

해석은 Fig. 5와 같이 동일한 용접조건과 경계조건, 재료물성을 사용하였으며 용접아크의 후방에 일정한 간격으로 떨어져있는 냉각부를 추가 하였고 이 냉각부의 강도와 거리에 따른 면외변형을 검토하였다.

3. 결론

Fig. 6은 용접부와 냉각부 거리가 20 mm 이격된 경우 냉각부의 온도와 냉각부의 반경에 따른 면외변형량을 도시한 것이다. Fig. 6의 상단의 점선은 냉각부를 적용하지 않은 경우의 면외변형량이다. 이와 비교하여 냉각부의 온도가 30℃인 경우에 냉각부 반경이 8 mm 이상의 범위에서 면외변형량을 최소화 할 수 있다.

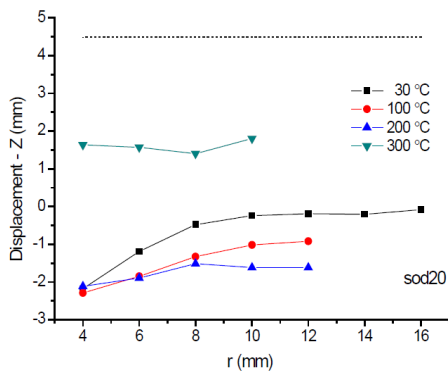


Fig. 6. Out-of-plane displacement according to changes in heat sink temperature and radius.

향후 박판의 basket을 용접시에 GTAW를 적용하면서도 변형량을 줄이는 방법으로 적용이 가능한지 실제 basket 용접부에 실험적용을 진행할 예정이다.

4. 참고문헌

[1] 한국방사성폐기물학회지 Vol. 9, No. 3, pp.

사용후핵연료 Pu 계량을 위한 XRF 시스템의 Compton suppression 적용성 평가

이승규^{1,2}, 서희¹, 원병희¹, 김호동¹, 김용균^{2,3}, 박세환^{1*}

¹한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

²한양대학교, 서울특별시 성동구 왕십리로 222

³기초과학연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1689

*ex-spark@kaeri.re.kr

1. 서론

엑스선 형광분석법(X-ray fluorescence, XRF)은 사용후핵연료에 존재하는 Pu의 양을 직접적으로 측정할 수 있는 여러 기술 중의 하나이다. XRF 기술은 사용후핵연료 내 핵분열 생성물의 붕괴에 의해서 자체적으로 발생된 감마선 등에 의하여 원자의 에너지 준위가 들뜨게 되며 이로 인하여 Pu와 U의 특성 엑스선이 발생한다[1]. 이러한 특성 엑스선은 원소마다 고유한 에너지를 갖기 때문에, Pu와 U의 K-각 엑스선 피크의 비율을 측정하는 것은 사용후핵연료에서의 Pu와 U의 상대적 농도에 대한 정보를 제공한다.

사용후핵연료의 U과 Pu에 의해서 발생하는 엑스선은 100 keV 대의 에너지를 갖고 있으며, 이러한 낮은 에너지 영역의 엑스선 피크는 높은 에너지의 감마선의 컴프턴 산란에 의해 발생되는 Compton continuum에 의한 높은 백그라운드를 갖게 된다. 높은 Compton continuum은 상대적으로 백그라운드 대비 신호의 크기가 작아지는 원인이 되기 때문에 Pu에 의한 엑스선 피크를 측정하기 어렵게 한다. 사용후핵연료에서의 Compton continuum은 fission product 중 ¹³⁷Cs에서 발생하는 감마선에 의한 영향이 지배적이며, 일반적으로 경수로 사용후핵연료의 경우는 Pu 양이 약 1% 정도로 백그라운드 대비 신호가 작아서 Pu의 엑스선 피크를 측정하는 것이 매우 어렵게 된다[2]. 고 에너지에 의하여 발생하는 컴프턴 산란에 대한 효과는 역동시계수 기법을 사용한 Compton suppression 시스템을 사용하여 줄일 수 있다.

본 연구에서는 몬테카를로 시뮬레이션 및 실험 값을 비교 평가하여 Compton suppression 시스템을 적용하였을 경우의 백그라운드 대비 신호의 비율 변화에 대한 분석을 수행하고, BGO guard 검출기의 threshold 에너지에 따른 suppression ratio의 변화를 평가하였다. 향후 추가적인 연구를 통해 사용후핵연료로의 적용성을 평가할 예정이다.

2. 본론

2.1 Compton suppression 시스템 구성

사용후핵연료에서 발생하는 Pu의 K-각 엑스선 피크를 측정하기 위해서는 에너지 분해능이 높은 HPGe (High Purity Germanium) 검출기를 사용하여야 한다. HPGe 검출기의 경우 선원의 에너지에 해당하는 포토 피크 이외에도 컴프턴 산란에 의한 Compton continuum 영역이 크게 발생하게 된다. Compton suppression system은 HPGe에서 모든 에너지를 잃지 않고 빠져나가는 감마선을 검출하여, 역동시계수(Anti-coincidence)를 사용함으로써 컴프턴 산란에 의한 백그라운드를 상당부분 제거하게 된다.

본 연구에서 사용한 Compton suppression 시스템의 구성은 Fig. 1에서와 같이, HPGe main 검출기와 산란되어 탈출하는 감마선의 검출을 위한 환형대의 guard 검출기인 BGO (Bi₄Ge₃O₁₂) 섬광체 검출기로 구성이 되어 있다[3]. 시뮬레이션에 사용한 검출기의 구조는 Fig. 1과 같으며 실험에 사용한 지오메트리와 동일하게 구성하였다.

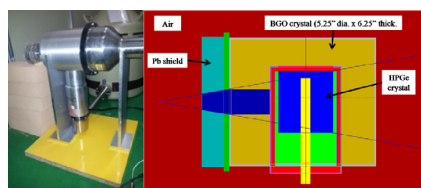


Fig. 1. Compton suppression system (detectors and electronics).

2.2 Compton suppression system 실험 수행

역동시계수 방식을 사용한 Compton suppression 시스템을 구성하여 1.17, 1.33 MeV의 감마선을 방출하는 ⁶⁰Co 점선원에 대한 백그라운드 대비 신호의 비율 변화에 대한 실험을 수행하였다. 실험에서 구성한 역동시계수 모듈은 BGO 검출기의 신호에 게이트를 주어서 동시에 발생된 신호를 제거하는 방식을 사용하였다.

2.3 몬테칼로 시뮬레이션 수행

몬테칼로 시뮬레이션 코드인 MCNP 코드를 사용하여 위의 실험과 동일한 조건을 사용한 시뮬레이션을 수행하였다. 시뮬레이션에서는 보다 정밀한 결과를 얻기 위해 감마선 및 이차전자를 모두 발생시켜 수송하였으며, 붕괴모드를 추가하여 붕괴에 의한 엑스선이 발생되도록 하였다. HPGe 검출기와 BGO 검출기에 모두 반응한 입자는 카운트에서 제외하였고, HPGe 검출기에서만 반응이 있는 경우에 유효반응으로 기록하였다. 시뮬레이션에서는 실험과 동일하게 BGO의 threshold 에너지를 300 keV로 걸어준 값의 결과를 실험 결과와 비교 평가하였다. Fig. 2는 실험값과 시뮬레이션 값을 비교 평가한 그래프이며, Compton suppression에 의하여 컴프턴 산란에 의해서 발생하는 백그라운드를 2배 가량 줄일 수 있는 것을 실험 결과와 시뮬레이션 결과에서 모두 확인할 수 있었다.

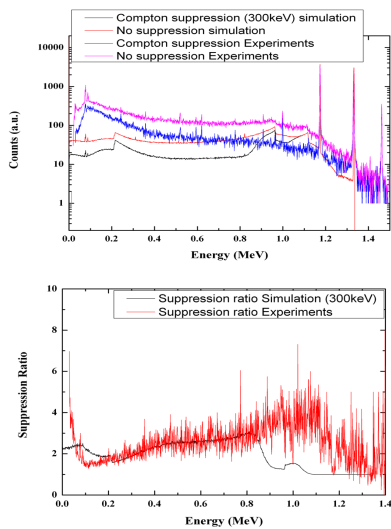


Fig. 2. The results of comparison of experiments and simulation for ^{60}Co gamma-ray source.

XRF를 실제 사용후핵연료에 적용하여 Pu와 U에서 발생하는 엑스선을 측정하기 위해서는 100 keV의 낮은 에너지 영역이므로, BGO의 threshold 에너지를 결정하는 것은 매우 중요한 요소이다. BGO의 threshold 에너지를 너무 높게 설정해 주게 되면 역동시 계수에 의해서 카운트에서 제외되는 에너지의 영역이 너무 높아지기 때문에 낮은 에너지 영역에서의 Compton suppression 효과를 기대하기 어렵다. 따라서 본 연구에서는 BGO에 대한 threshold 에너지에 따른 suppression 효과를 시뮬

레이션을 통하여 평가하였다. Fig. 3은 BGO guard 검출기의 threshold 에너지의 변화에 따른 suppression ratio의 변화 결과 그래프이다.

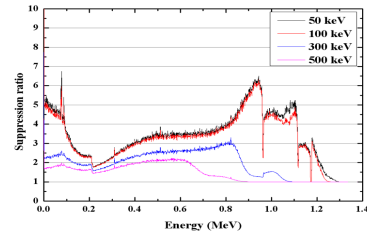


Fig. 3. Compton suppression ratio for threshold energy of BGO guard detector.

시뮬레이션 결과 BGO 검출기의 threshold 에너지가 100 keV 이상으로 커지게 되면 저에너지 영역에서의 suppression 영향이 2배 이상 감소하는 것을 확인하였다.

3. 결론

본 연구에서 시뮬레이션 및 실험을 통하여 Compton suppression 기법의 적용 가능성에 대해 평가한 결과 높은 에너지의 감마선에 의하여 발생하는 컴프턴 산란에 의한 백그라운드를 Compton suppression을 적용하여 효과적으로 줄일 수 있는 것을 확인할 수 있었다. 또한, BGO guard 검출기의 threshold energy가 저에너지 영역대의 suppression ratio에 큰 영향을 준다는 것을 확인할 수 있었다. 향후, 사용후핵연료에 대해 Compton suppression 기법을 적용할 수 있는 최적화된 조건을 찾을 수 있도록 추가적인 연구를 진행할 예정이다.

4. 감사의 글

이 논문은 2014년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임 (No.2012M2A8A502594).

5. 참고문헌

- [1] 김용균 외, “방사선 측정과 취급” 한국원자력연구소, 2004.
- [2] W.S.Charlton, "The use of self-induced XRF to quantify the Pu content in PWR spent nuclear fuel", European Safeguards R&D Association, Vilnius, Lithuania, 2009.
- [3] C.S.Lee, "Characteristic of a Transverse-Type Compton-Suppressed gamma-ray detector", JKPS, Vol. 40, No. 5, pp. 807-811, 2002.

사용후핵연료 CASK의 내부 모니터링 기술

박광수*, 이관희, 주성민, 박신화

(재)포항산업과학연구원, 포항시 남구 효자동 산32번지

*winter@rist.re.kr

1. 서론

사용후핵연료 캐스크의 최대 단점은 장기건전성을 실시간으로 확인 할 수 없음에 있다. 이를 극복하기 위하여 일본에서는 캐스크 내부의 건전성 파악을 위해 모니터링 할 수 있는 연구가 지속적으로 있어 왔다(1-6). 하지만 관련 법규 및 Track record 등의 확보 등의 문제로 인해 아직은 상용화되지 못하고 있다. 캐스크의 장기건전성을 확보하기 위해선 내부 압력과 온도의 모니터링이 중요한데 캐스크의 외형을 최소화 변경하면서 온도와 압력 계측 기능을 실시간으로 구현 할 수 있는 것이 핵심이다. 본 연구는 캐스크를 실시간으로 계측 할 수 있도록 캐스크 자체의 설계사항을 최소화 변경하면서 가스켓 일부를 설계 변경하여 온도와 압력 계측을 구현 할 수 있는 방법에 관한 것으로, 고방사능 물질의 누설이 차단토록 구성된 캐스크 누설감지 적용기술에 관한 것이다.

2. CASK 내부정보 모니터링을 위한 가스켓 구현

종래의 캐스크 누설 감지를 위한 연구는 용기본체에 1,2차 차폐리드가 볼트에 의해 결합되게 된다. 그리고 용기본체와 1,2차 차폐리드간의 밀폐력을 향상시키기 위해 금속제의 가스켓이 설치되게 된다. 그런데, 볼트가 풀리거나 1,2차 차폐리드의 둘레 일부에 국부적인 파손이 발생된 경우, 용기본체의 내부에 저장된 고방사능 물질이 누출되게 된다. 종래의 캐스크의 구조는 이를 차단할 수 있는 별도의 장치가 마련되어 있지 않아, 고방사능 물질은 그대로 누출되게 되고, 이는 심각한 환경적, 유전학적 문제를 야기한다. Fig.1은 일본에서 출원한 캐스크 누설감지 관련 특허로서 사용후핵연료를 수납하는 바스켓 내용기와 차폐리드 사이에 내부를 밀봉하기 위한 기능성 실링재를 적용하여 금속 가스켓과 치수보다 작은 홈부를 설치해 이 홈부의 안에 금속 가스켓을 배치하는 동시에, 저탄성재 금속 시트를 배치해, 단단히 조여 금속 가스켓에 소정의 고정 압력을부여하여

밀봉 능력을 회복시키는 구조이다. 또한 Fig.1의 15와 30에 압력센서를 연결하여 내부 압력의 차이를 읽을 수 있는 구조이다. 하지만 이 경우는 센서를 작동시키는 전원을 계속적으로 전달 할 수 없어 센서의 장기간 동작에 큰 단점이 있으며, 또한 가스켓과 센서를 따로 장착하여야 하는 단점이 있다. 이는 부품수 증가 및 센서의 외부 모니터링에 한계를 가지게 된다.

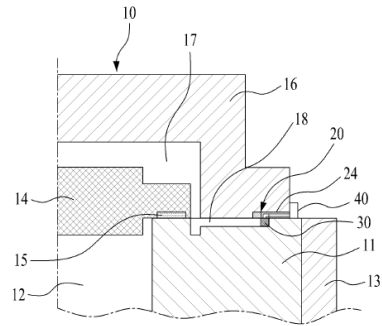


Fig. 1. Conventional sealing device of cask by japan patent.

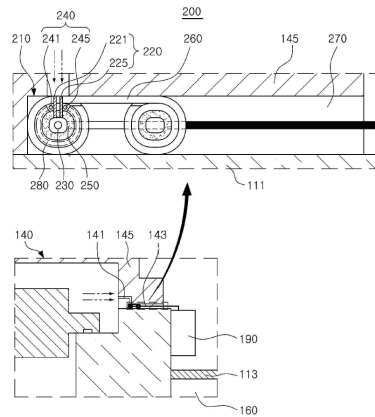


Fig. 2. Multi layer rolled forming gasket for cask.

Fig. 2는 신규로 아이디어를 적용하여 고안한 캐스크 가스켓으로, 모니터링을 위한 센서라인 및 전원 라인을 외부로 가져올 수 있는 구조를 나타낸 것이다. 전원라인과 센서라인을 Multi layer

Roll 형상으로 각각의 중간에 Insulation하여 구현 하였으며 자체의 강성 및 복원력으로 가스켓의 기본기능인 밀폐 기능을 차질 없이 구현 하였으며 그 내부로 센서 및 파워라인을 구현 하였다. 이렇게 적용 할 경우 캐스크 내부 압력을 1차리드, 2차리드 사이에서 전달 받을 수 있으며, 온도 또한 실시간으로 확인 할 수 있다.

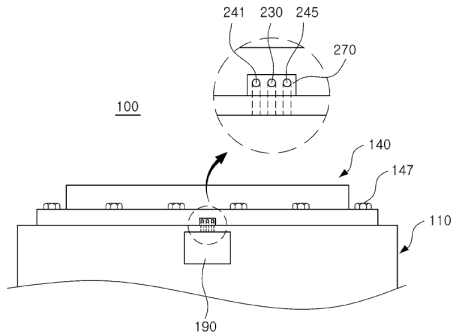


Fig. 3. Formation of Power input line and sensing data output line for cask.

Fig. 3은 외부 라인으로의 연결을 위한 Out line 을 나타낸 것으로 그림의 214, 230, 245 부분이다. 이부분의 Aux Line으로 외부에서 내부로 Power Line을 전송 할 수 있고 내부의 신호를 외부와 연결 하여 실시간 확인 할 수 있다.

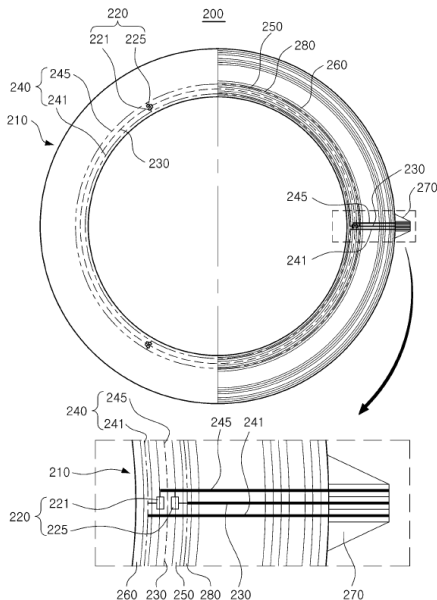


Fig. 4. Detail drawing of Power input line and sensing data output line for cask.

3. 결론

Fig.4는 제작을 구체적 형상을 나타낸 것으로 가스켓의 Channel 형성된 부분의 내부연결에 의해 외부로의 연결 Port 형성 부분을 도식적으로 나타낸 것이다. 아직은 Concept Drawing으로 Pilot mock up Test를 준비중에 있으며 상용화를 위해 내부 압력과 온도, Radition factor에 관한 장기건전성 부분을 보완하여 지속적으로 연구를 수행해 나갈 예정이다.

4. 감사의 글

본 연구는 “산업통상자원부”, “한국산업기술진흥원”, “동남지역사업평가원”의 “광역경제권선도산업육성사업”으로 수행된 연구결과입니다.

5. 참고문헌

- [1] JP 2005-308419, Japan patent.
- [2] JP 2003-279690, Japan patent.
- [3] JP 2004-226385, Japan patent.
- [4] JP 2004-264162, Japan patent.
- [2] JP 2002-116294, Japan patent.
- [3] JP 1994-183470, Japan patent.

주요국 사용후핵연료 관리현황 및 장기관리대안

최성열, 강길범, 이선희, 윤새롬, 루썬, 고원일*

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*nwiko@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력발전소를 운영하는 나라들이 대책 없이 누적되고 있는 사용후핵연료 처리 문제로 인해 사용후핵연료 관리 정책에 대해 많은 관심을 보이고 있다. 이로 인해 후행핵주기(Back-end nuclear fuel cycle) 기술의 중요성이 더욱 높아지는 가운데, 후행핵주기를 개발하고 있는 주요국(미국, 러시아, 프랑스, 중국, 일본)은 각 국가의 국내 및 국제 정세에 맞게 서로 다른 기술 개발 또는 정책을 펼치고 있다. 이번 연구에서는 이들 주요국에 대한 사용후핵연료 관리현황 및 대안에 대해서 조사하였다.[1]

2. 본론

2.1 미국

2.1.1 사용후핵연료 관리 현황

약 74,000 톤의 사용후핵연료가 부지 내 저장중이며, 2017년까지 습식저장소가 포화됨에 따라 건식저장시설이 필요할 것으로 예상된다. 2013년 방사성폐기물 전달기구 설치를 위한 법안이 의회에 상정되었으며, 잠정적으로 2025년까지 중간저장시설 운영을 목표로 하고 있다. 이러한 분위기 속에 Yucca Mountain 건설 및 운영 인허가 신청을 검토하고 있으며, New Mexico 주에서는 중간저장시설 건설 및 운영을 위한 인허가 신청서를 제출하려고 계획하는 등의 움직임이 일고 있다.

2.1.2 장기 사용후핵연료 관리대안

미국은 장기 사용후핵연료 대안에 대해서는 다양한 옵션에 대한 평가가 필요하다고 결론을 내었다. 미 DOE에서는 핵연료주기 대안에 대해 재평가 및 선정 추진을 하고 있다. 많은 전문가들이 참여하는 절차를 통해 장기 투자할 가치가 있는 핵연료주기 대안을 도출 중이며, 직접처분 옵션보다는 일반적으로 재활용주기가 장기 투자할 가치가 높은 것으로 평가하였다. 향후, 최종 핵연료주기 대안 평가 및 선정보고서 출판 예정이며, 2015년부터 옵션들에 대한 동적 핵연료주기 분석을

시작할 예정이다. 또한, 2020년까지 핵연료주기 대안 선정을 완료하고 2050년까지 선정된 핵연료주기의 기술을 검증할 것이다.

2.2 러시아

2.2.1 사용후핵연료 관리 현황

러시아는 2020년까지 약 40,000 톤의 사용후핵연료가 발생할 것으로 예상되고 있다. 재처리 물량 중 93%는 VVER-440에서 발생된 사용후핵연료이며, BN-600 고속로와 잠수함용 원자로가 각각 3%씩 차지하고 있다. RT-1 재처리 발전소에서 연간 400 톤을 재처리하고 있다.

2.2.2 장기 사용후핵연료 관리대안

2016년에 사용후핵연료 재처리 시설 실증센터 완공을 목표로 하고 있으며, 같은 해인 2016년까지 Leningrad 원전 및 Kursk 원전의 건식저장시설을 36,000 톤 규모로 확장할 계획이다. Rosatom은 2015년부터 지하시험시설을 운영하고, 20,000 톤의 장수명 및 고준위 폐기물을 처분하는 저장소를 2025년에 건설 시작하여 2035년부터 운영할 예정이다. 한편, BN-800 고속로는 시험 운전 중이며, 2014년 4월 중으로 임계에 도달할 것으로 보고 있으며, BN-1200 설계는 2014년 말 마무리될 것으로 예상하고 있다.

2.3 프랑스

2.3.1 사용후핵연료 관리 현황

프랑스는 Areva NC에 의해 La Hague 및 Marcoule 재처리 시설에서 4년 간 중간저장 후 재처리를 하고 있다. 연간 1,200 톤의 사용후핵연료가 발생하며, 그 중 850톤은 La Hague로 운송하고 나머지는 비축한다. 2012년 말까지 28,600 톤의 사용후핵연료를 재처리하였다.

2.3.2 장기 사용후핵연료 관리대안

프랑스는 15년 계획 및 3년마다 개정되는 방사성폐기물 관리계획법을 통해 장수명 및 고준위폐기물 관리방안으로 심지층처분 방식을 선정하였

다. 재처리 공정개발에서는 단기적으로 COEX 공정(U-PU를 그룹추출)을 개발하여 PUREX 공정의 핵확산성측면을 보완하였다. 장기적으로는 GANEX 공정(U-PU 및 마이너악티나이드를 그룹추출)의 개발을 추진하고 있다. 또한, DIAMEX 공정을 보완하여 Am과 Cm 등의 장수명 핵종을 선택적으로 추출하여 U와 함께 2020년 원형로 운영예정인 ASTRID 고속로의 연료로 사용하는 기술을 개발 중이다.

2.4 중국

2.4.1 사용후핵연료 관리 현황

중국은 습식중간저장소에 약 2,241 톤의 사용후핵연료를 저장하고 있으며, 건식중간저장소에 약 710 톤의 사용후핵연료를 저장하고 있다. 2003년에 고준위 폐기물이 심지층처분장에 처분될 것임을 선언한 이후, 5곳의 후보부지를 선정하고 이들 후보부지에 대해서 비교 분석하고 있다. 한편, 2010년 CEFR 고속증식 실험로를 운전가동하고 있다.

2.4.2 사용후핵연료 관리 대안

중국은 후행 핵연료주기기술 개발 로드맵을 통해 2020년 심지층처분장 부지 선정을 하고, 2025년 재처리 실증시설(연간 400 톤) 운영 및 상용재처리시설(연간 800 톤)을 운영할 계획을 세웠다. 그리고 2035년에는 가압경수로 및 러시아로부터 도입하는 BN-600 고속로를 통해 재처리된 연료를 활용하는 계획을 세우고 있다. 2050년에 지질학적 처분장을 완성하는 것을 목표로 하고 있다.

2.5 일본

2.5.1 사용후핵연료 관리 현황

일본은 약 13,236 톤의 사용후핵연료가 저장 중이며, 사용후핵연료 저장조 공간의 55%를 차지하고 있는 양이다. 사용후핵연료를 재처리하기 위해 Rokkasho에 U 농축, 저·고준위 폐기물 그리고 재처리시설(PUREX 공정)로 구성된 복합단지를 건설하였고 시험 단계에 있다. 또한, 일본 아오모리현 Mutsu 에 3,000 톤 규모의 사용후핵연료 중간저장시설이 있으며 추가적으로 2,000 톤의 규모를 확장하기 위해 공사 중이다.

2.5.2 사용후핵연료 관리 대안

2012년 6월, 일본 원자력위원회는 3가지 대안을

발표하였다. 3가지 대안은 2030년까지 원자력 발전 비중의 변화량에 따라서 정의되었다. 대안 1은 신규원자력발전소가 건설되지 않거나 2030년까지 원자력 발전 비중이 0%로 줄어들면 모든 사용후핵연료를 직접처분하고 Monju는 해체한다는 대안이다. 대안 2는 만약 2030년까지 원자력 발전 비중이 15%로 줄어들면 재처리와 직접처분 모두를 고려할 수 있으나, Monju는 5년 동안만 운영되고 상용화 고속로는 일단 취소한다는 대안이다. 대안 3은 원자력 발전 비중이 2030년까지 20~25% 수준으로 유지되면 Rokkasho 재처리시설은 전량 가동시키고 Monju는 다음세대 고속로가 운전될 때까지 5~10년 간 운영될 예정(사용후핵연료 일부는 직접처분)을 가지고 있다.

3. 결론

이번 연구에서 조사 된 5개의 주요국은 세계에서 원자력발전 이용률이 가장 높은 나라들이다. 이 때문에, 이들 주요국에서 결정되는 사용후핵연료 관리에 대한 정책에 대해 많은 관심이 모아지고 있다. 미국과 일본인 경우, 아직 사용후핵연료 관리에 대해서 명확한 정책이 나와 있지 않은 상태이며, 러시아, 프랑스, 중국은 고속로 재활용주기에 대한 정책을 보다 구체화시키고 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] World Nuclear Association Country Profiles, (USA, Russia, France, China, Japan).

PRIDE 원격작업을 위한 MSM의 쓰루풋 측정

류동석*, 한종희, 김기호, 조일제

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*sayryu@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에서는 사용후 핵연료를 재활용할 수 있는 파이로 공정을 공학규모에서 실증하기 위한 PRIDE시설을 구축하였으며, 작업자가 접근할 수 없는 대형 알콘셀 내부의 각종 장치들을 유지보수하기 위한 원격작업도구를 갖추고 있다. 기초적인 원격작업 도구로서 MSM (기계식 원격조작기)를 사용하는데, 이는 핫셀에서도 일차적인 원격도구로 널리 사용되고 있다. 본 논문에서는 PRIDE에 설치된 MSM의 조작성능을 가늠할 수 있는 쓰루풋의 측정에 대해 논의하고자 한다.

2. 본론

2.1 Fitt's law와 쓰루풋

인간공학 관점에서 작업성을 정량화 하여 평가하는 다양한 시도 가운데, 시작지점으로부터 목표지점에 도달하는 간단한 실험으로부터 인지능력과 운동능력이 결합된 휴먼팩터의 관점에서 사람의 작업능력을 평가하는 방법이 Fitt에 의해 시도되었으며, 이후 다양한 입력장치의 조작성능을 비교하기 위한 평가지표로서 Fitt's law에 기반한 쓰루풋이 제안되었다. 예를 들어, 컴퓨터의 다양한 입력장치 (i.e. 마우스, 태블릿, 트랙볼, 등)의 쓰루풋을 측정하여 비교적인 우위를 논할 수 있다.

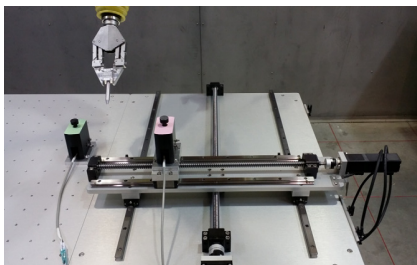


Fig. 1. Experimental setup for through put measuring.

2.2 PRIDE의 MSM 쓰루풋 측정을 위한 실험 계획 수립

PRIDE에 설치된 MSM의 쓰루풋 측정을 위하여 그림과 같은 간단한 실험장치를 준비하였다. 왼쪽에 고정된 붉은 색으로 표시된 출발스위치를 두고, 오른쪽에는 위치를 변경할 수 있는 XY테이블 위에 목표스위치를 두도록 하였다. 피실험자는 누름도구를 쥐고, 출발스위치를 누른채 기다리다가, 목표스위치가 임의의 위치로 이동하면, 팔을 움직여 목표스위치를 누르는 간단한 작업을 하게 된다. 이때, 시작스위치에서 출발하여 목표스위치를 누르는 이동시간을 측정하게 된다. 이동시간은 작업도구의 속도가 빠를수록 짧아진다. 예를 들어, 맨손으로 작업하는 경우, MSM으로 작업하는 것보다 더 빠를 것을 예상해볼 수 있다. 또한, 이동시간은 작업의 난이도와 반비례한다.



Fig. 2. Picking tool and different sizes of target buttons.

준비된 실험에서 목표스위치는 임의의 방향으로 각각 200mm, 300mm, 400mm, 500mm 의 4가지 거리에 놓여지도록 하였으며, 목표스위치 버튼의 크기는 각각 10mm, 20mm, 30mm, 40mm의 직경을 갖는 원형으로 준비하였다. 거리가 멀수록, 직경이 작을 수록 난이도(ID, Index of Difficulty)가 높아지며, 다음과 같은 수식으로 정의한다.

$$ID = \log_2 \left(1 + \frac{A}{W} \right) \quad (1)$$



Fig. 3. Experimental setup in mockup cell and MSM test.

2.3 쓰루풋 실험

30대의 남성 2명이 피실험자가 참여하였으며, 각 위치가 임의의 순서로 3번 반복되어 총 12번 시행되며, 4종류의 버튼에 대해 총 48회가 시행되면 하나의 실험을 마치게 된다. 각 피실험자는 맨손, 창문앞 1미터, 창문앞 2미터 거리에서 3회의 실험을 하도록 하였다. 결과적으로 144회의 이동을 하여야 하기 때문에 각 버튼을 바꿀 때 마다 충분한 휴식을 취하도록 하였다.

Table 1. Through put neglecting start/stop time

W (mm)	A (mm)	ID (bits)	TP(bits/seconds)		
			Hand	MSM 1m	MSM 2m
10	200	5.32	3	0.49	0.43
	300	5.91	2.88	0.59	0.44
	400	6.32	2.53	0.61	0.33
	500	6.64	2.8	0.56	0.42
20	200	4.32	2.68	0.68	0.44
	300	4.91	2.76	0.62	0.43
	400	5.32	2.63	0.59	0.45
	500	5.64	2.64	0.56	0.42
30	200	3.74	2.84	0.79	0.64
	300	4.32	2.95	0.75	0.54
	400	4.74	3.14	0.75	0.59
	500	5.06	3.08	0.79	0.48
40	200	3.32	2.99	0.88	0.55
	300	3.91	3.23	0.82	0.51
	400	4.32	3.13	0.79	0.49
	500	4.64	2.98	0.83	0.58
Average		4.9	2.89	0.7	0.48

2.4 쓰루풋 측정 결과 및 분석

실험결과를 Table 1에 요약하였으며, 제시된 작업의 ID는 각 버튼의 크기와 거리에 대하여 3.32에서 6.64사이의 값으로 나타났고, 평균 ID는

4.9bits 인 것을 알 수 있다. 맨손으로 작업을 하는 경우, MSM으로 작업창 1m 거리에서 작업하는 경우, 2미터 거리에서 작업하는 경우에 대해, 평균 쓰루풋은 각각 2.89, 0.7, 0.48bits/second로 측정되었다. 이는 맨손으로 작업하는 것이 1미터 거리의 MSM작업보다 약 4배 빠른 것을 의미한다. 또한, 같은 MSM을 사용하더라도 1미터 거리에서 작업하는 것이 2미터 거리에서 작업하는 것보다 1.45배 빠른 것을 알 수 있다.

3. 결론

본 연구에서는 PRIDE에 설치된 MSM의 작업성을 휴먼팩터 관점에서 정량화하는 기초적 데이터로서 Fitt's 이론에 기반한 쓰루풋실험을 수행하였다. MSM으로 작업하는 경우, 맨손으로 작업하는 것 보다 4배 이상 작업성능이 떨어졌으며, 작업창에서 멀어질 수록 그 정도가 심해지는 경향을 보였다. 측정결과는 셀내부의 모듈설계 및 작업개선에 유용하게 참고 될 수 있으며, BDSM과 같은 다른 원격도구와의 비교적 실험이 계속해서 이루어질 예정이다.

4. 감사의 글

본 연구는 정부가 지원하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] 류동석, 김기호, 조일제, “오염 확산방지를 위한 IPA기반 비접촉 사용자 인터페이스,” 한국방사성폐기물학회, 2012년 추계학술발표회 논문요약집, pp.475-476, 2012.
- [2] 류동석, 이종광, 한종희, 배명수, 김기호, 조일제, “PRIDE 알곤셀 내부의 3D 영상 인프라 구축,” 한국방사성폐기물학회, 2013년 추계학술발표회 논문요약집, pp.151-152, 2013.

Analysis and Prospect of Regulatory Requirements for Spent Fuel Integrity Evaluation

Yoonhee Lee*, Seongki Lee, and Chaejoon Lim

KEPCO NF Co., 989 beon-gil 242, Daedeok-daero, Yuseong-gu, Daejeon, Korea

*yoonhee@knfc.co.kr

1. Introduction

For the sustainable nuclear energy, spent fuel(SF) management issue requires to be solved. There are two promising options for SF management, reprocessing and direct disposal are suggested. However, none of those options has been decided yet for the SF management policy. Whether any option has been selected, the interim storage of SF and its transfer is inevitable issue. Approximately 750 tons of SF are discharged per year and more than 13,000 tons of accumulated SF are temporarily stored at plant site. Since the SF pool capacity reaches the limitation in domestic are in the foreseeable future, additional spent fuel storage and transport are urgently required. In addition, the nuclear safety trend has been issued due to the Fukushima accident. Therefore, the integrity of SF becomes more important to ensure the safety of SF cask. Especially, the integrity of SF after the long-term storage during the transport could be very vulnerable to the accident. Moreover, there is no fuel integrity evaluation system. And also regulatory requirements during SF transport and storage have to be reviewed to prepare the basis of integrity evaluation system. In this study, the further tasks on the SF integrity are suggested after review of the regulatory requirements.

2. Regulatory Requirements

2.1 Domestic Law (in Korea)

There are not enough and specific laws and regulations for spent fuel management. Some of regulations for SF facility and its management were reviewed in this study. According to Nuclear Safety Law, 'SF intermediate storage' is defined as 'storage of spent fuel safely in a certain period of time before its reprocess or final disposal'. Table 1 shows the domestic regulatory requirements for SF

transport and storage.

Table 1. Domestic Regulations for SF Transport/Storage

Contents	
Enforcement Regulations for Nuclear Facilities, Radiation Safety	→ Technical Standards for Nuclear Fuel Cycle Facilities, Use of Nuclear Material "Transport and Storage of SF" 1. sub-critical 2. sufficient cooling
Nuclear Safety and Security Commission Act	→ #2013-32(2012-58) Provisions for SF Transfer "Article 3 (Terminology)" Damaged Fuel: the spent fuel needed the special care for handling and storage because of its damage "Article 4 (Mechanical Integrity)" The SF must be packaged to secure the mechanical integrity during the handling and transportation. The transport cask must secure the SF integrity during the transportation.

2.2 Overseas Regulations (in U.S.)

In general, SF is supposed to be stored inside reactor site before the operation of eventual storage or disposal facilities. It is called ISFSI (Independent Spent Fuel Storage Installation) or MRS (Monitored Retrievable Storage Installation). The facilities should be approved by NRC (U.S. regulatory body). Fig. 1 shows the structure of regulatory system in the U.S.

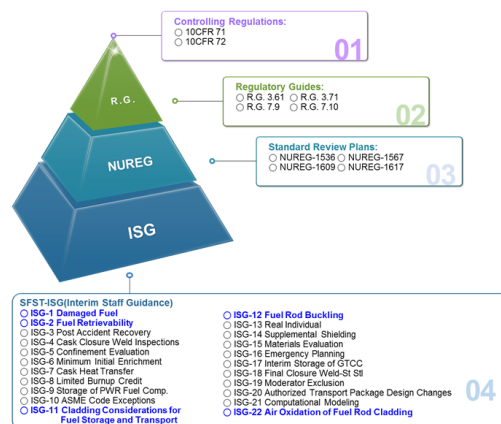


Fig. 1. NRC Regulatory System.

Regulations for packaging and transportation(T) of SF are explained in Title 10 of the Code of Federal Regulations (10CFR) Part 71, while requirements for storage(S) of SF are explained in 10CFR Part72. The general requirements and test conditions for fissile material package which is focused on this study are listed in Table 2.

Table 2. NRC Regulations for SF Transport/Storage

10CFR	Contents
	General Requirements for Fissile Material Packages
T 71.55	A package used for the shipment of fissile material must be so designed and constructed and its contents so limited that under the tests specified in § 71.71 ("Normal conditions of transport") (2) The geometric form of the package contents would not be substantially altered.
	Normal Conditions of Transport
T 71.71	✓ Heat. An ambient temperature of 38°C (100°F) in still air
	✓ Free drop. More than 15,000 kg, 0.3 free drop distance
	Hypothetical Accident Conditions
	✓ Free drop. A free drop of the specimen through a distance of 9m
	✓ Puncture. A free drop of the specimen through a distance of 1m
T 71.73	✓ Thermal. An average flame temperature of at least 800°C for a period of 30 minutes
	✓ Immersion-- under a head of water of at least 0.9m(fissile material)/external pressure of water of 150kpa (all packages)
	Confinement barriers and systems
S 72.122	The spent fuel cladding must be protected during storage against degradation that leads to gross ruptures or the fuel must be otherwise confined such that degradation of the fuel during storage will not pose operational safety problems with respect to its removal from storage.
	Retrievability
S 72.122	Storage systems must be designed to allow ready retrieval of spent fuel, high-level radioactive waste, and reactor-related GTCC waste for further processing or disposal.

The Interim Staff Guidance-11 by NRC, the integrity of the cladding material is mentioned. The maximum cladding temperature and repeated thermal cycling criteria for assuring cladding integrity is as follows;

- (1) Cladding temperature should not exceed 400°C (normal conditions)
- (2) Repeated thermal cycling should be limited to less than 10 cycles, with cladding temperature variations less than 65°C
- (3) Cladding temperature should not exceed 570°C (off-normal conditions)

And in ISG-12, the ‘buckling of irradiated fuel under bottom end drop conditions’ is discussed. It is said that ‘Fuel rod buckling analyses under bottom end drop conditions have traditionally been performed to demonstrate integrity of the fuel following a cask drop accident’. There are some other literatures such as NUREG and safety assessment of fuel reconfiguration by EPRI, ORNL etc..

3. Conclusion

Nuclear safety has been issued since Fukushima accident. SF management is urgent matter for sustainable nuclear energy. Especially the interim storage of SF and its transportation could be essential for any other scenario. Handling and transport integrity evaluation considering long-term storage degradation of high burnup SF and retrievability are emerging issues. However, there is not enough and specific research data for that in Korea. Therefore, it is necessary to establish the regulatory infra which is a basis for research and technical development of SF integrity evaluation.

4. References

- [1] Regulatory Perspective on Potential Fuel Reconfiguration and Its Implication to High Burnup Spent Fuel Storage and Transportation, Waste Management Conference.
- [2] Safety Codes Applicable to Licensing Evaluation/Nuclear Safety Act, KINS, <http://scale.kins.re.kr/service/main/main.do>

핵확산저항성 강화 파이로 시설 설계방안

구정희*, 문성인, 정원명, 유길성, 서석준, 김호동

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*jhku@kaeri.re.kr

1. 서 론

우리나라 원자력분야에 있어서 가장 큰 현안사항인 사용후핵연료의 처리 및 자원의 효율적 이용을 위해 현재 한국원자력연구원에서는 파이로프로세스(pyroprocess) 기술개발을 위한 연구가 활발히 진행 중이다. 파이로프로세스는 불활성기체인 아르곤가스 분위기에서 수행하는 건식처리 공정으로서 사용후핵연료를 고온 용융염 상에서 급속으로 전환하는 방법이다. 파이로프로세스는 공정물질 가운데 민감한 핵물질의 전용가능성이 습식처리 방법에 비해 훨씬 적어 핵확산저항성이 큰 기술로 평가받고 있다.

현재 원자력연구원에서는 공학규모의 파이로공정 시험시설인 PRIDE(Pyroprocess Integrated inactive DEMonstration)를 구축하고, 공정실험이 진행 중이며, 다른 한 편으로는 실증시설의 개발을 진행 중이다. 파이로 핫셀시설의 구축에 있어서 가장 우선적인 것은 파이로 공정을 제대로 구현할 수 있도록 공정운전 환경을 제공하는 것이므로, PRIDE 시설을 이용한 실험을 통하여 많은 설계인자를 확립할 수 있을 것이다. 그러나 파이로 시설의 구축에 있어서는 원자력시설이 가져야 하는 필수적인 요건인 안전성 강화와 더불어 사용후핵연료를 다루는 시설인 만큼 안전조치시스템 및 물리적방호시스템 등 핵확산저항성을 충분히 확보해야만 한다. 최근 원자력시설의 아주 초기단계에서부터 안전성(Safety)은 물론 안전조치성(Safeguards) 및 핵안보성(Security)을 함께 고려하여 설계에 반영하는 3S-By-Design의 중요성이 강조되고 있다[1,2]

따라서 본 연구에서는 Fig. 1과 같은 파이로시설의 개념설계안을 대상으로 안전성은 물론 안전조치성(Safeguards) 및 핵안보성(Security)을 함께 고려한 파이로 핫셀시설의 설계방안을 함께 고려한 핵확산저항성 강화 파이로 시설의 설계방안에 대하여 특성과 설계인자를 파악하고 이를 파이로시설 설계를 위한 기준 자료로 활용하고자 하였다.

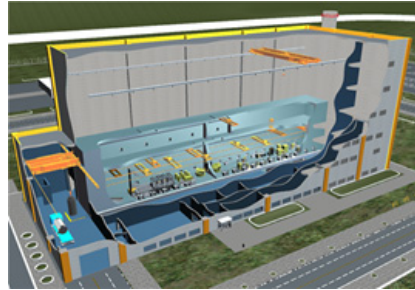


Fig. 1. Pre-conceptual Design of the Pyroprocess Facility.

2. 본 론

2.1 파이로 공정특성 분석 및 위험도 평가

국내에서 개발 중인 파이로공정은 탈피복과 분말화, 전해환원, 전해제련, 전해제련(electro-winning), 염폐기물 정제/회수(salt purification and recovery), 그리고 고화처리(waste form fabrication) 등과 같은 여러 가지 세부공정으로 나누어진다.

파이로시설의 설계에서 가장 중요한 것은 공정의 특성과 위험도를 분석하여 파이로시설에서 발생할 수 있는 모든 가능한 사고에 대해 분석하고, 시설이 자체적으로 확보해야 할 안전시스템을 확보하는 것이며, 안전성은 단계별 심층방호요건을 확보하도록 하는 것이다[3,4] 파이로시설의 위험물질로는 방사성물질과 화학적 독성물질로 구분하였으며, 사용후핵연료 인수구역, 이송터널, 에어셀, 아르곤셀 및 작업구역 등 총 41건의 초기사건을 포괄하는 총10건의 대표 초기사건을 선정하여 안전성을 평가하였다.

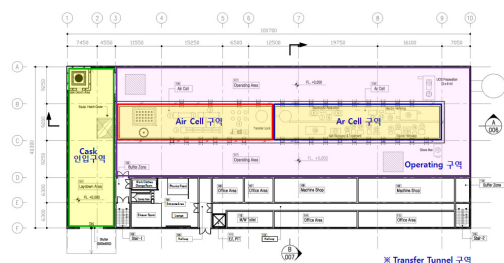


Fig. 2. Hazard Evaluation Areas of the Pyroprocess Facility.

이러한 위해도 평가는 안전성평가 및 안전성강화를 위한 필수요소로서 파이로시설에서 발생가능한 모든 사고를 사전에 평가하여 안전시스템을 확보하기 위한 것이다.

2.2 파이로 핫셀의 분야별 안전기능 도출

구 분	주요 안전기능	특 정
격납안전	차압관리	내진1등급
차폐안전	오염물질 격리/확산 방지 방사선 차폐	차폐체, 밀봉
핵임계안전	핵임계사고 방지 핵분열성 물질량 제한	물질제한, 취급용기제한
화재, 폭발 안전	화재/폭발 물질량 제한 공정장치화재, 급속화재	화재방호계통
방사성물질운반 및 취급안전	SF/핵물질 취급중 주락, 낙하, 전복 방지	single-failure proof
방사선방호 안전	차폐 및 격납, 오염감시 환경배출감시/차단	표면선량감시 RAM, SMS
위해물질 누출 대비 안전	작업자보호, 누출물제거 누출감시/차단/경보시스템	누출감시경보

파이로 핫셀의 분야별 안전시스템은 파이로시설의 안전성을 확보하고, 법적 허용기준을 만족하여 인허가에 필요한 필수사항일 뿐만 아니라 국민들로부터 원자력을 이해시키기 위한 가장 핵심적인 요소이다.

2.3 안전조치 및 물리적방호 시스템 개발

파이로시설의 안전조치시스템에 관해서는 이미 IAEA에서 시설 설계의 아주 초기단계에서부터 핵확산저항성을 강화하고, 시설설계과정에서 미치는 영향을 최소화 하도록 Safeguards-By-Design(SBD) 개념을 도입하여 설계할 것을 권고하고 있고, 우리나라에서는 2008년부터 회원국으로서 이를 도입하여 추진 중이다.

파이로시설의 안전조치시스템은 Fig. 2와 같이 핵물 질수지구역(MBA: Material Balance Area)을 구성하 고, 주요측정지점(KMP: Key Measurement Point)를 설정하였다. 이와 같은 안전조치시스템에 관해서는 IAEA 기준에 따른 FAS(Facility Safeguardability Assessment)를 수행하여 평가를 수행할 예정이다. 이 평가의 특징은 핵확산저항성과 안전조치성이 물 질관리, 계량, 독립적 검증능력, 격납 및 감시 수단 및 감시, 전용의 어려움 및 인지성 등에 대하여 평 가하는 것이다. 또한 핵확산 저항성을 강화하기 위 해 심층방호장벽과 장벽의 견고성 등이 평가된다.

가장 중요한 것은 공정의 특성과 위해도를 분석하여 파이로시설에서 발생할 수 있는 모든 가능한 사고에 대해 분석하고, 시설이 자체적으로 확보해야

할 안전성과 발생가능한 모든 사고에 대해 안전성은 물론 안전조치성과 물리적 방호 시스템을 동시에 확보하도록 설계되어야만 한다.

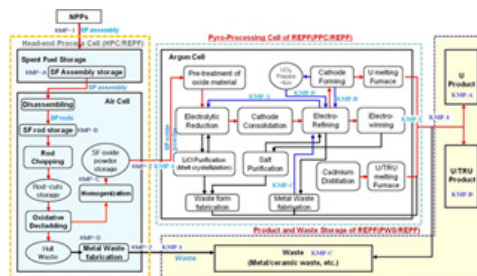


Fig. 3. S/G Design Concept of the Pyroprocess Facility.

3. 결론

본 연구에서는 파이로시설이 갖추어야 할 법적 안전성은 물론 IAEA를 비롯한 국제사회에서 우리나라 원자력의 평화적 이용을 입증하기 위한 안전 조치성 및 핵확산저항성을 강화한 파이로 시설의 설계기술 확립에 핵심적인 설계방안에 대하여 검토하였다. 안전성과 관련한 세부적인 사항에 대하여는 추가의 연구를 통하여 연구결과를 제시할 예정이며, 원자력시설의 설계시 안전초치성과 핵확산저항성에 관해 설계 초기단계부터 이를 반영하는 것은 많은 예산과 인력의 낭비를 막을 수 있으며, 국제사회에서 우리나라의 원자력의 평화적 이용을 확신시키는 데 핵심적인 자료로 활용될 것이다.

4. 참고문헌

- [1] H.D.Kim, Progress and prospects for system engineering and safeguards technology development of a pyroprocessing facility in Korea, 24th KAIF/KNS Annual Conference(2009).
- [2] M. Stein, et. al., Safety, Security, and Safeguards By Design - An Industrial Approach, Paper 9307, Proceedings of Global 2009 (2009).
- [3] DOE-STD-1027-92, Hazard Characterization and Accident Analysis Techniques for Compliance with DOE Order 5480.23, Nuclear Safety Analysis Reports, US DOE (1992).
- [4] NUREG-1513, Integrated Safety Analysis Guidance Document, US NRC (2001).
- [5] Facility design and plant operation features that facilitate the implementation of IAEA safeguards, 2009 IAEA, IAEA-STR-360 (2009).

PRIDE 카드뮴 증류장치를 이용한 카드뮴 증류 실험

정재후*, 김광락, 안도희, 백승우, 심준보, 김택진, 김가영, 김시형
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*njhjeong@kaeri.re.kr

1. 서론

PRIDE 카드뮴 증류장치는 PRIDE(PyRoprocess Integrated inactive DEMonstration facility) LCC(Liquid Cadmium Cathode) 전해제련장치와 RAR(Residual Actinides Recovery) 장치의 음극 전착물인 U/RE/카드뮴/LiCl-KCl 혼합물을 증류하여 카드뮴과 LiCl-KCl은 증발/응축 회수 및 U/RE를 분리하는 장치이다. 이 장치를 이용하여 PRIDE Ar cell 내에서 카드뮴 용량 5kg을 장치에 장입하여 증류 실험을 수행하였다. 카드뮴 증류 실험을 위한 운전 조건은 핵주기 시설의 시험용 카드뮴 증류장치에서 몇 차례에 걸쳐 승온 시험 및 증류 실험에서 도출된 최적의 운전(온도, 진공 등) 값을 적용하였다. 또한 실험에 사용된 용기와 장비 들은 잉곳용기, 잉곳 safety 용기, 카드뮴 회수용기, 물질표준운반용기 및 STL(Small Transfer Lock), 크레인 및 MSM(Master Slave Manipulator) 등을 사용하여 실험을 수행하였다.

2. 본론

2.1 카드뮴 증류 실험에 필요한 잉곳 및 용기

PRIDE 카드뮴 증류 실험을 위해 PRIDE Ar cell 내로 카드뮴 잉곳을 장입하는데 사용되는 용기들은 잉곳용기, 잉곳 safety 용기, 표준운반용기 및 STL 등 이다. 카드뮴 잉곳 용량은 5kg, 순도 99.999%, 잉곳 크기 80(L) x 41(W) x 18(H)mm 이다. 카드뮴 용기의 크기는 300(Ø) x 150(H)mm, 무게는 4.62kg 이다. 카드뮴 safety 용기 크기는 314(Ø) x 145(H)mm, 무게는 2.28kg 이다. 카드뮴 잉곳 운반용 표준운반용기의 중량은 10kg, 내용물의 중량은 15kg, 크기는 440(Ø) x 300(H)mm 이다. STL의 크기는 880(L) x 280(W)mm, 높이 제한은 400mm 이다. Fig. 1은 PRIDE 카드뮴 증류 장치를 나타낸 것이다.

2.2 Cd 잉곳 장입 방법 및 장입 공정

PRIDE Ar cell 내로 카드뮴 잉곳을 장입하기 위한 방법 및 과정은 Fig. 2, 3에 나타낸 바와 같다. PRIDE 1층 glove box 내에서 카드뮴 잉곳을 카드뮴 용기(카드뮴 safety 용기)에 넣은 후 운반 표준용기에 다시 넣어 PRIDE 2층의 STL를 통과

하여 Ar cell 내로 장입한 후, MSM과 크레인을 사용하여 Cd 증류장치에 장입한다.

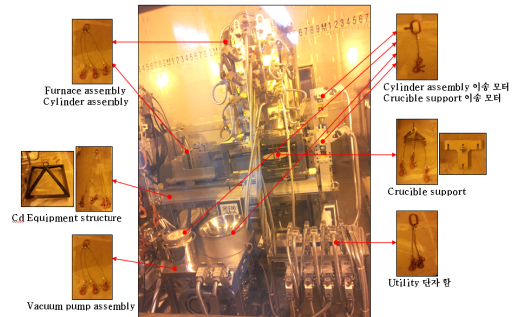


Fig. 1. Cd distillation equipment.

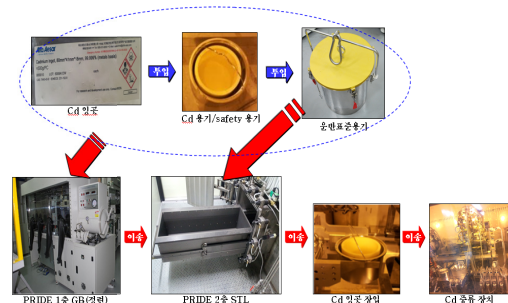


Fig. 2. Cd ingot charging method.

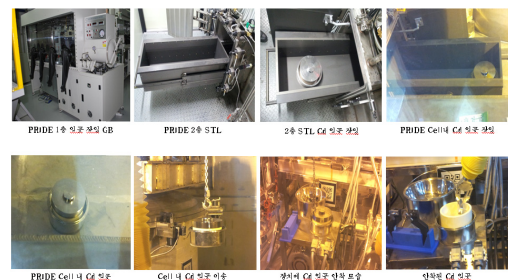


Fig. 3. Cd ingot charging procedure.

3. 실험

3.1 카드뮴 증류장치 증류 실험

PRIDE 카드뮴 증류장치를 이용한 카드뮴 증류 실험은 Table 1에서와 같은 실험값을 적용하여 증

류 실험을 수행하였다. 표 2는 PRIDE 카드뮴 증류 실험 전과 후의 무게를 나타낸 것이다. Fig. 4는 증류 실험 후의 온도 및 압력 변화의 값, Fig. 5는 카드뮴 증류 실험 후의 모습을 나타낸 것이다.

Table 1. Operating condition

상승/유지 시간	Fur.1	Fur.2	Fur.3	Fur.4	Fur.5
상승 80	400	400	18	18	18
유지 20	400	400	18	18	18
상승 120	800	800	18	18	18
유지 300	800	800	18	18	18
상승 100	450	450	400	350	350
유지 240	450	450	400	350	350

Table 2. Experiment results(before/after)

실험 전	실험 후
	Cd 잉곳+Cd 용기+Cd 안전용기+뚜껑=7.81 kg
Cd 잉곳+Cd 용기+Cd 안전용기 = 10.13 kg	Cd 잉곳+Cd 용기+Cd 안전용기 = 5.24 kg
Cd 잉곳+Cd 용기 = 8.40 kg	Cd 잉곳+Cd 용기 = 3.59 kg
Cd 잉곳 = 5.16 kg	Cd 잉곳 = 4.72 kg
Cd 용기 뚜껑 = 2.57 kg	Cd 용기 뚜껑 = 2.55 kg
Cd 안전용기 = 1.72 kg	Cd 안전용기 = 1.65 kg
Cd 회수 용기+팬 = 3.97 kg	Cd 회수 용기+팬 = 8.70 kg

* 증류 회수율 : $4.723 \div 5.163 \times 100 = 91.48\%$

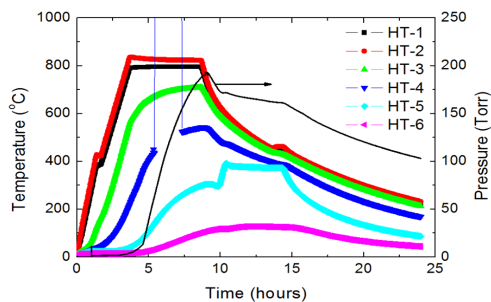


Fig. 4. Monitoring for temperature & vacuum.

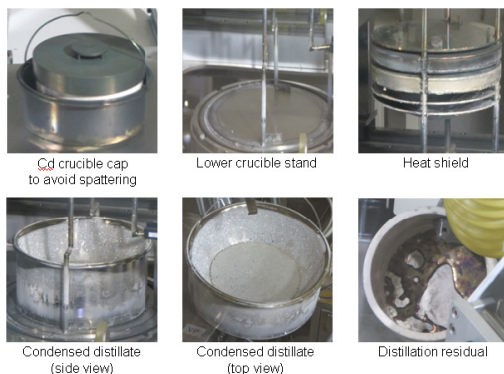


Fig. 5. Experiment results(after).

4. 결론

우리나라의 에너지 소비량은 날로 증가되고 있는 현상과 수입에 의존하고 있는 원자력에너지만이 에너지를 해결할 수 있는 유일한 대안이다. 이를 위하여 사용후핵연료의 효율적 관리 및 안정성 확보를 위하여 필요한 장치가 PRIDE 카드뮴 증류장치이다. 이 장치는 크게 distiller vessel, furnace, vacuum pump 및 control panel assembly로 구성되어 있다. 실험에 사용된 용기 및 장비들은 잉곳용기, 잉곳 safety 용기, 카드뮴 회수용기, 물질표준운반용기, STL, 크레인 및 MSM 등을 사용하였다. 카드뮴 증류 실험의 운전 조건은 핵주기 시설의 시험용 카드뮴 증류장치에서 몇 차례에 걸쳐 승온 시험 및 증류 실험에서 도출된 최적의 운전(온도, 진공 등) 값과 PRIDE Ar cell 에서 수행한 Cd 증류 실험값을 적용하여 실험을 수행하였다. 이와 같은 조건들을 이용하여 실험 한 결과 증류 회수율은 91% 됨을 알 수 있었으며, 향 후 실험 조건 들(온도, 진공 등)을 잘 보완하고 최적의 조건을 찾아 실험에 적용한다면 향후 좋은 실험 결과를 기대할 수 있을 것이다.

5. 감사의 글

이 논문은 2014년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 연구 수행되었습니다.

6. 참고문헌

- [1] K. R. Kim, K. R. Kim, D. S. Yoon, J. Y Kim, D. Y Park, T. J. Kim, S. H. Kim, J. H. Jung, S. W. Paek, J. B. Shim, D. H. Ahn, Radioanal Nucl. Chem., **9**(1), 131-132, 2011.
- [2] J. H. Jung, D. H. Ahn, S. W. Paek, K. R. Kim, T. J. Kim, S. H. Kim, G. Y. Kim, J. B. Shim, T. I. Kim, K. R. Kim, Volume 11(2) 2013, Abstracts of Proceedings of the Korea Radioactive Waste Society Autumn 2013. 139-140, 2013.

2분과

방사성폐기물 처분 및 부지특성 (Oral)

KOREAN RADIOACTIVE WASTE SOCIETY

처분장 공학적방벽 성능실증을 위한 시험설비 디자인

이민수*, 최희주, 이창수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*minm@kaeri.re.kr

1. 서론

고준위폐기물의 심지층 처분에 있어서 공학적 핵심 사항은 수천 년 이상의 오랜 기간 동안 고준위폐기물 내의 방사성 핵종의 유출을 방지할 수 있는 방법의 구축기술 확보와 그 성능의 실험적 확인이다. 따라서 고준위폐기물을 심지층에 처분하고자 하는 다수의 국가에서는 고유의 공학적방벽 (EBS, Engineered Barrier System) 설계와 더불어 그 신뢰성을 확인할 수 있는 장기실증시험을 지하시험시설에서 수행했거나 수행 중에 있다[1, 2]. 이에 한국원자력연구원에서는 고준위폐기물 심지층 처분시스템인 A-KRS (Advanced KAERI Repository System)에서 설계된 공학적 방벽[3]을 KURT (Kaeri Underground Research Tunnel) 내에 실증 시험할 계획을 수립하였다.

이러한 목적으로 본 연구에서는 KURT 내에 A-KRS 1/3 규모의 수평형 공학적방벽 현장실증장치 (In-situ demonstration of Engineered Barrier system, IN-DEBS)를 설계하였다. 세부 설계 항목으로는, 처분공과 완충재, 처분용기의 크기 설정, 시험용기 가열구조 설계, 완충재 배치안 설계, 처분공 입구 플러그 처리 방법 및 공학적 방벽 설치방안 등을 연구하였다. 본 연구는 실제 처분 기술의 실증 및 공학적방벽의 장기 수리-역학적 변화를 확인할 수 있는 자료를 확보할 수 있는 기회를 제공하는 데 그 의의가 있다.

2. 본 론

2.1 IN-DEBS Dimension

IN-DEBS 실증시험 장치의 크기는 A-KRS2 설계와 비교하여 처분공은 약 1/2.4 수준이며, 시험용기는 약 1/3 수준으로 설계되었다. 처분공 직경은 약 805 mm, 처분공 길이(Plug를 제외한 완충재와 용기의 길이)는 약 2,000 mm, 시험용기의 직경은 약 375 mm, 그리고 그 길이는 1,200 mm로 설계되었다.

시험용기는 실제 A-KRS 처분용기를 2개 수직

합체한 크기를 가정하고 규모를 정하였다(Fig. 1).

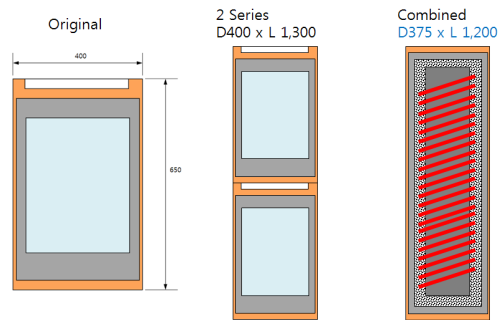


Fig. 1. Dimension of Heating canister for In-DEBS.

처분공은 실제 처분터널에 근접해서 설치하지 않고, 굴착에 의해 형성된 EDZ(Excavation Damaged Zone) 깊이 안쪽에서부터 설치할 예정이다. 최종적인 깊이는 외부 터널온도 영향을 최소화할 수 있는 깊이로서 열해석을 통해 결정하려고 한다. 처분공은 초기 1개 수평공에서 출발하여, 최종적으로 나란한 2개의 수평 처분공을 계획 중이다.

2.2 Heating System

시험용기는 처분공을 가열하기 위한 목적으로, 사용후핵연료가 장입된 처분용기와 같은 역할을 한다. 시험용기는 1.2 kW용량으로서 외부 220V 전압을 공급하여 가열할 계획이다. 가열선의 재료는 Inconel 혹은 Incoloy를 사용하여 고온 내식성이 양호한 재료를 고려하였다. 시험용기 내부에 히팅 케이블이 감긴 관을 삽입하여 용기 내부에서 골고루 외부로 열이 방출되도록 설계 하였다. 초기 시험용기 내부를 열매로 채운 후, 중앙 히팅 봉을 두는 방식은 시험용기 무게의 증가를 우려하여 제외하였다.

2.3 Buffer system

완충재는 경주산 Ca 벤토나이트를 사용할 계획이다. 완충재 블록은 외경 800 mm, 두께 200mm를 기본으로 설계되었다. 용기가 위치하는 곳은

완충재를 도넛형으로 하고, 용기 양쪽은 원통형으로 배치할 계획이다. 블록의 크기와 개수는 향후 사용될 압축 프레스의 용량에 따라 달라질 것이지만, 현재 고려되고 있는 안은 1안) 44개 블록과 2안 88개 블록을 이용한 2개 안이다(Fig. 2). Fig. 2에서 중앙 홈은 전력 및 센서라인을 위한 구멍이다.

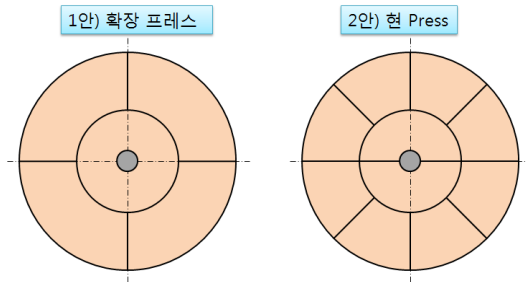


Fig. 2. The cross-sectional view of buffer layout.

2.4 Installation of Power, Sensor Line

시험공은 각종 열-수리-역학 측정용 센서와 가열을 위한 전력선 등이 설치된다. 이러한 센서 및 가열 선은 시험공 벽면을 따라 들어가거나, 별도의 관을 통해 들어갈 수 있다. 현재 계획하고 있는 IN-DEBS는 사람이 들어가서 작업하기에 충분히 크지 않기 때문에, 미리 외부에서 시험공에 들어갈 시험용 히팅용기, 완충재, 라인 등을 한 개 모듈로 조립해서 집어넣어야 한다. 따라서 현재 중압집중식으로 하여 처분공 중앙에 센서선 및 전력선을 위한 관을 설치하는 것으로 설계하였다.

따라서 중앙 라인관은 완충재 및 시험용기를 관통하게 되므로, 시험용기 내부 구조가 복잡한 편이다.

3. 결론

현재 IN-DEBS 공학적 방법 실증시설은 설계 중에 있으며, 여러 가지 설계안의 수정과 열해석을 통해 보완할 예정이다. 2015년경 KURT 확장이 종료되는 시점에 설계를 확정하고, 실제 시설을 설치할 계획이다. 현재 설정된 시험공의 크기를 Fig. 3에 나타내었다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] Svensk Karnbranslehantering AB, Technical Report TR-09-31, "Long term test of buffer material at the Äspö HRL, LOT project, Final report on the A0 test parcel" (2011).
- [2] Irina Gaus, "FEBEXe: Full-scale Engineered Barrier Experiment-extension", 10th International Steering Committee meeting, 2012.
- [3] J.W. choi, et al., "Geological Disposal of Pyroprocessed Waste from PWR Spent Nuclear Fuel in Korea", KAERI Technical Report, KAERI/RR-4525/2011.

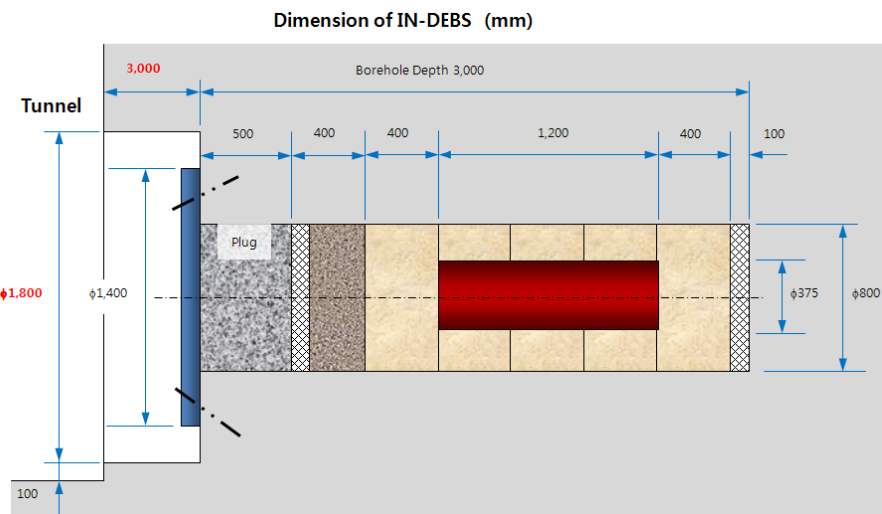


Fig. 3. The Dimension of single borehole in IN-DEBS design.

심부시추공 처분기술 국내 적용성 예비 분석

이종열*, 배대석, 김건영, 이민수, 최희주, 김정수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*njylee@kaeri.re.kr

1. 서 론

현재의 기술수준으로 사용후핵연료를 포함하는 고준위폐기물을 인간환경으로부터 가장 안전하게 장기간 격리시키기 위한 방법으로 고려되고 있는 방식은 지하 심도 500 ~ 1,000 m의 안정한 암반에 공학적방벽 개념을 도입하여 처분하는 심지층처분방식(DGD : Deep Geological Disposal)으로, 스웨덴, 핀란드에서는 실증을 완료하여 상용화를 위한 인허가 심사단계에 있다. 그러나, 미국의 경우 당초 심지층 처분시스템 계획인 YMP(Yucca Mountain Project)가 중지됨에 따라 다양한 처분시스템을 고려하고 있으며, 이의 일환으로 심도 5,000 m 정도에 고준위폐기물을 처분하는 심부시추공 처분(DBD : Deep Borehole Disposal) 연구를 수행 중에 있다[1]. 또한, 스웨덴은 심지층 처분개념의 대안으로서 비교연구를 수행하고 있고, 네덜란드에서는 화강암반이 아닌 암염돔에 심부시추공 처분관련 연구를 수행한 바 있다[2].

본 논문에서는 현재 상용화 단계인 심지층 동굴 형태의 처분시스템에 대한 대안으로 심도있는 연구를 고려하고 있는 심부시추공 형태의 처분시스템에 대한 개념을 살펴보고, 국내 지질특성 및 지온, 지하수 특성에 대한 예비 분석 및 이를 바탕으로 국내 사용후핵연료 대상 예비개념 설정을 통하여 국내에서의 심부시추공 처분 기술 적용가능성을 개념적으로 분석하였다.

2. 심부시추공 처분개념

2.1 심부시추공 처분개념

심부시추공 처분은 지표에서 지하 5 km 심도까지 시추공을 뚫어 3 ~ 5 km 구간에 사용후핵연료 또는 고준위폐기물을 처분하고, 그 상부에서 지표까지 구간은 벤토나이트, 아스팔트 등으로 밀봉하여 생태계와 격리시키는 개념이다(Fig. 1).

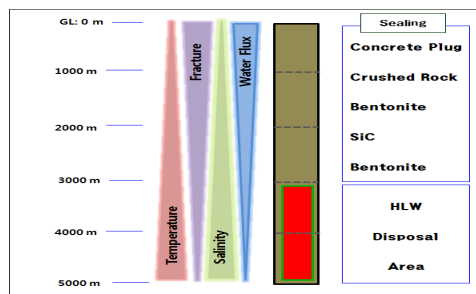


Fig. 1. Deep Borehole Disposal Concept.

2.2 심부시추공 처분 특성

지하심도 3 ~ 5 km 구간에 고준위폐기물을 처분하는 심부시추공 처분의 특성은 처분환경이 환원환경으로서 처분용기 부식 또는 핵종용해 가능성이 거의 없다. 처분심도의 지질 및 지하수 환경은 지각변동 영향을 무시할 수 있고 지질구조 상태는 단열대가 거의 없이 단순하고 균질하며, 심부지하의 고염분 층상 지하수체는 지표 가까운 지하수체와는 혼합되지 않아 지표부로 상승 흐름 불가능하여 지하에 정체된 상태로 부존할 가능성이 높은 특성이 있다. 또한, 폐쇄후 관리를 위한 부지감시가 필요하지 않으며, Safety case가 단순하여 지질 및 지하수 조건에 따른 예비평가 결과는 심지층 동굴처분 대비 안전성 측면에서 상당히 유리한 것으로 나타났다. 그러나, 심부시추공 처분기술은 아직 실증된 바 없으며, 처분된 사용후핵연료의 회수성이 매우 낮은 단점이 있다.

3. 국내 지질환경 분석

3.1 기존자료 분석

한반도 중남부는 크게 4개의 지질구역(Fig. 2)으로 구성되는데 우리연구원의 지하처분연구터널 부지인 KURT를 포함한 3개 지열개발 부지 등 각 지질구역별로 1개 부지의 자료 협조를 받아 전문가 활용 등을 통하여 분석을 수행하였다. 상기 4지역은 한반도 중남부지질을 대표하는 경기북합체(A), 옥천지구대(B), 영남 북합체(C) 및 경상분지(D) 지질 구역으로서 구역별 1개 부지에대한 평가는 지극히 예비적인 평가이고 지열이용 목적의 자료로서 한계가 있지만 그 의미는 큰 것으로 판단된다.

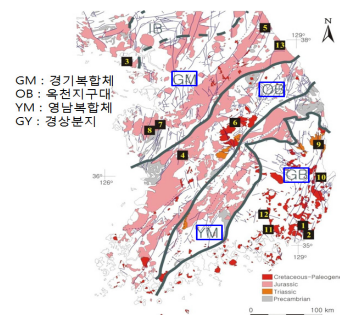


Fig. 2. Geological area.

지질층상구조는 A, B 및 C부지의 경우 지표토, 풍화암대 및 화강암반대로 구성되어 약 100-200 깊이에 화강암반대가 나타나며 간헐적인 균열대가 있으나 D 지열부지의 경우 응회암, 사암, 이암 등 암층이 다양

하고 화강암반대도 2,300 m 심도 정도에서 나타남을 확인하였다(Fig. 3). 또한, 지온경사에 있어서는 B와 C지열부지의 경우 킬로미터당 25도 정도 A와 D 부지의 경우 킬로미터당 35도 이상인 것으로 나타났다.

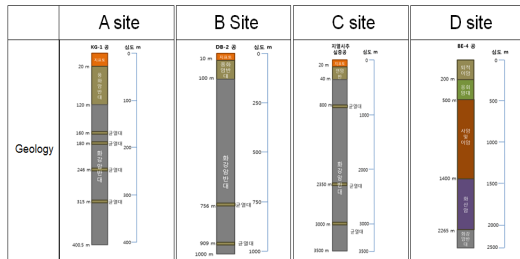


Fig. 3. Geology of each site.

3.2 지하 5 km 심도 특성 예측

다음은 5 km 지질자료 변화예측에 대한 내용으로서, 광주부지의 경우 3.5 km 까지의 실증용 시추공자료로부터 4 km 심도에서 지온은 98도 - 112도의 범위일 것으로 예측된다. Fig. 4에 나타난 바와 같이 한반도 남한부분 전체에 대한 지온 예측은 심도 5 km의 경우 70도에서 180도의 범위를 보일 것으로 예측된다.

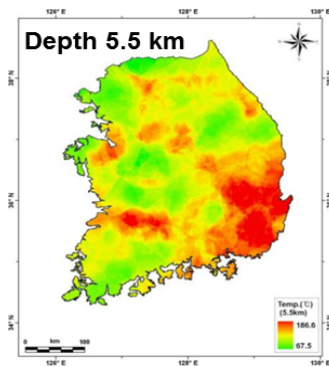


Fig. 4. Temperature(D:5.5 km).

또한, 지하수의 순환을 억제하는 고염지하수(brine water)는 심부시추공 처분시스템 안전성에 영향을 줄 것으로 예상되는데, 우리나라는 산악지형으로서 지형상의 이유로 염수가 없을 가능성도 제기되고 있다. 이러한 고염수 존재유무는 전문가도 판단하기 어려우므로 향후 지속적인 조사 및 연구로 고염수의 존재와 지화학 등 특성분석이 필요하다.

4. 심부시추공 예비 개념설정

이상의 예비분석으로부터 심부시추공 처분 예비 개념을 설정하였다. 본 개념설정을 위한 토대로서 처분대상 기준 사용후핵연료를 PLUS-7, 결정질 화강암반에 심도 5 km, 지온경사 25 °C/km를 설정하였다. 이를 바탕으로 SiC-스텐레스강 이중구조의 처분용기 개념을 제안하였으며, 용량은

Plus-7 1개 집합체 또는 CANDU 핵연료 63번들이다. 이와같은 처분용기 개념으로부터 Fig. 5와 같이 예비 개념을 도출하였다. 심도 5 km의 시추공을 굴착하여 깊이 3-5 km 처분구역에 처분용기를 10개씩 그룹으로하여 40그룹을 처분하고, 그 위 상부 3 km에서 지표까지는 벤토나이트, SiC 및 화강암 채석으로 밀봉하여 격리하는 개념이다.

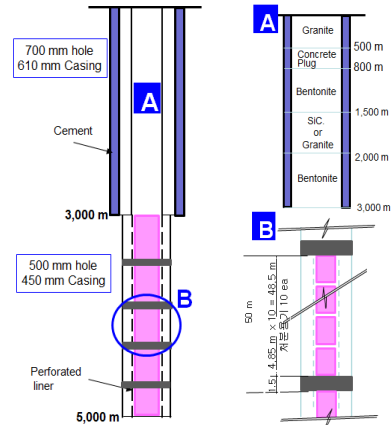


Fig. 5. A preliminary DBD concept.

5. 결 론

최근 심부지층(심도 500 ~ 1,000 m)에 터널형 처분시스템의 대안 개념으로 보다 안전하고 효율적인 방안으로 예측되는 심부시추공 처분기술에 대한 연구가 의미있게 진행되고 있다. 본 연구에서는 심부시추공 처분시스템에 대한 개념을 살펴보고, 국내 지질특성 및 지온, 지하수 특성에 대한 예비 분석 및 이를 바탕으로 국내 사용후핵연료 대상 예비개념 설정을 통하여 국내에서의 심부시추공 처분기술 적용가능성을 개념적으로 분석하였다.

본 분석 결과는 향후 국내환경에서의 심부 시추공 처분기술 연구에 기초자료로 활용될 것이며, 요소기술에 대한 심층 분석과 평가가 필요하다.

6. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

7. 참고문헌

- [1] Brady, P., Arnold, B., "Deep Borehole Disposal of High-Level Radioactive Waste", SAND 2009-4401, SNL, Albuquerque, NM, 2009.
- [2] NIREX, "A Review of the Deep Borehole Disposal Concept for Radioactive Waste", Nirex no. N/108, Oxfordshire, UK, 2004.
- [3] KIGAM, "지열수 자원 실용화 기술 개발", GP2007-002-03-2, KIGAM 2008.

Appropriate Domain Size for Stochastic Discrete Fracture Model

Sung-Hoon Ji* and Yong-Kwon Koh

Korea Atomic Energy Research Institute, 111 Daedeok-daero 989, Yuseong-gu, Daejeon

*shji@kaeri.re.kr

1. Introduction

A statistically conceptualized fracture network is generally used in modeling groundwater flow in the discrete fracture network (DFN) approach. When a DFN is constructed from the statistical conceptualization, an infinite number of networks can be generated with the given statistical parameters, and uncertainty in simulating the hydraulic characteristics of a fracture network can be arisen due to the various geometrical and hydraulic properties among the generated realizations. In this study, we analyzed the statistical properties of background fractures observed at KAERI's (Korea Atomic Energy Research Institute) URT (Underground Research Tunnel), hereafter called KURT, and established a DFN model for simulating groundwater flow. We introduced a criterion to evaluate the applicability of the statistical conceptualization from numerical experiments, and considered the uncertainty from a statistical conceptualization of fractures. Then, we determined the modeling domain size which is appropriate for stochastic DFN modeling at KURT site.

2. Statistical properties of background fractures in KURTsite

The analyzed statistical properties of background fractures in KURT site are summarized. The analysis results show that the rock matrix in KURT site can be categorized two hydraulic rock domain, and Figures 1-3 indicate the analyzed orientation distributions, fracture transmissivity distributions and size distributions, respectively. Then, the fracture intensity, P32, for HRD1 and HRD1 were estimated to 0.44 and 0.09, respectively.

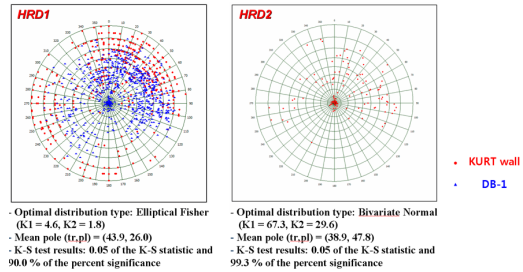


Fig. 1. Analyzed orientation distribution for HRD1 and HRD2.

Estimated fracture transmissivity distribution	
Distribution Type	Lognormal distribution
Mean (m ² /s)	2.52e-8
Standard Deviation (m ² /s)	4.14e-8
P10 of the conductive fractures	0.18

(a)

Estimated fracture transmissivity distribution	
Distribution Type	Lognormal distribution
Mean (m ² /s)	3.39e-8
Standard Deviation (m ² /s)	5.98e-9
P10 of the conductive fractures	0.06

(b)

Fig. 2. Analyzed fracture transmissivity distribution for (a) HRD1; and (b) HRD2.

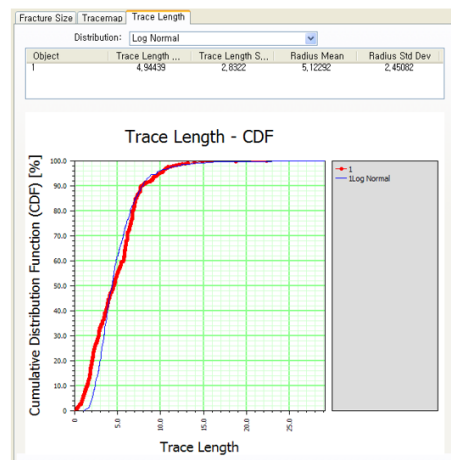


Fig. 3. Analyzed size distribution.

3. Appropriate domain for stochastic DFN modeling at KURT site

Ji et al. (2011) suggested that the correlation length of a fracture network can be a criterion to evaluate applicability of the statistical conceptualization for describing the background fracture distribution because the uncertainty of the conceptualization is not significant when the domain size is larger than the correlation length. Based on their results, we determined an appropriate domain size for stochastic DFN model of KURT site by calculating the correlation lengths for each HRD. Then, we calculated the correlation length of each HRD following Kapitulnik et al. (1983). Figures 4-5 show the processes of estimation of the correlation lengths in north-south (NS), east-west (EW) and top-bottom (TB) directions for HRD1 and HRD2, respectively.

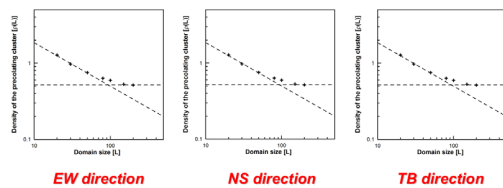


Fig. 4. Estimation of the correlation lengths in EW, NS and TB directions for HRD1.

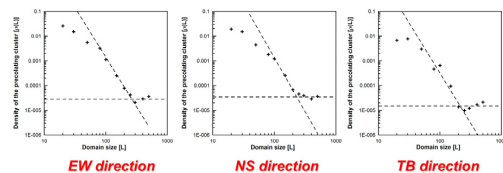


Fig. 5. Estimation of the correlation lengths in EW, NS and TB directions for HRD2.

The estimated correlation lengths of HRD1 in different directions were similar, and were calculated to about 95 m (Figure 4). The correlation lengths of HRD2 in EW, NS and TB directions were estimated to about 120 m, 115 m and 110 m, respectively.

4. Results and discussions

From the results, the appropriate domain sizes for

stochastic DFN modeling of HRD1 and HRD2 were about 95 m and 120 m, respectively, and we can expect that the uncertainty of the stochastically generated fracture network is not significant when the modeling domain size is larger than 120 m. For the future plan, we will verify this expectation by calculating the equivalent permeability from the stochastically generated fracture networks in various domain sizes.

5. Acknowledgement

This study was supported by the Korean Nuclear Energy R&D program of the Ministry of Science, ICT and Future Planning, Republic of Korea..

6. References

- [1] Ji S-H, Park Y-J, Lee KK, 2011, Influence of fracture connectivity and characterization level on the uncertainty of the equivalent permeability in statistically conceptualized fracture networks, *Transport in Porous Media*, 87, 385-395.
- [2] Kapitulnik A, Aharony A, Deutscher G, Stauffer D, 1983, Self similarity and correlations in percolation, *Journal of Physics A*, 16, L269-L274.

고준위폐기물처분장 공학적방벽의 겹채움물질 연구: 기술동향 중심으로

이재완*, 최영철, 김진섭, 최희주

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*jolee@kaeri.re.kr

1. 서론

고준위폐기물처분장에서 굴착 처분공과 처분터널에 각각 완충재와 뒷채움재를 설치하게 되면, 처분용기와 완충재 사이, 완충재와 처분공 벽면 사이, 뒷채움재와 처분터널 벽면 사이에는 빈 공간, 즉 겹 (gap)이 생성하게 된다. 이것은 완충재나 뒷채움재 설치 시 작업의 편의성을 위해서, 또한 굴착된 처분공과 처분터널 암반의 벽면이 고르지 못해 일정한 공간을 두기 때문이다. 만약 완충재와 뒷채움재를 설치하고 처분장 폐쇄 후에도 이러한 겹이 그대로 존재하면, 구성방벽재의 차수능 (water-retarding capacity)과 열전달 효율이 떨어질 뿐만 아니라, 지하수 침식작용 (erosion)에 의한 블록의 건전성 저하와 벤토나이트 콜로이드 생성으로 인한 핵종이동 가속화가 일어날 수 있다. 그러므로 고준위폐기물처분장의 방벽성능 및 처분안전성 확보를 위해서는 겹채움물질 (gap-filling material)에 대한 연구가 필요하고, 그 결과를 처분장 설계 시에 반영하여야 한다. 이와 관련하여, 본 연구에서는 완충재 및 뒷채움재의 겹채움물질 연구에 대한 국내외 기술동향을 분석하고, 우리나라 고준위폐기물처분장 공학적방벽의 설계개념 설정을 위해 향후 수행되어야 할 연구방향을 제시하고자 한다.

2. 본론

2.1 공학적방벽 개념

고준위폐기물처분장에서 완충재와 뒷채움재의 겹채움물질은 수직처분의 경우 (Fig. 1) 처분공 내 처분용기-완충재 사이, 완충재-처분공 암반벽 사이, 처분터널 내 뒷채움재 블록 (pre-compacted backfill block)과 주위 암반벽 사이 빈 공간에 설치되고, 수평처분의 경우 (Fig. 2)에는 수평 처분공 내 처분용기-HCB 받침대 (highly-compacted bentonite pedestal) (혹은, 슈퍼컨테이너 (supercontainer)와 주위 암반벽 사이의 빈 공간에 설치하게 된다 [1]. 그러나 겹채움재의 설치 위치

나 크기는 나라마다 자국의 처분개념에 따라 달랐다.

2.2 겹채움재 물질

겹채움물질로는 대부분 벤토나이트가 사용되었으며, 공학적방벽의 겹채움재로 설치 시에는 펠렛, 과립상 입자, 또는 펠렛-과립상 입자 혼합물 형태로 제조하여 사용되었다.

2.3 겹채움재 제조 및 성형기술

펠렛의 제조기술로는 정압축 (static compaction), 롤러압축 (roller compression), 압출-컷팅 (extrusion and cutting) 방법이 사용되었다. 정압축 방법은 가장 기본적인 제조방법이나 대량 생산에 한계가 있다. 반면에 롤러압축 (Fig. 3) 및 압출-컷팅 방법은 다른 산업분야에서 오래 전부터 사용되어온 기술로서 대량 생산에 유리하기 때문에 처분장 겹채움재용 펠렛 제조방법으로 선호되고 있다. 과립상 입자의 제조기술로는 벤토나이트 원석 분쇄 (raw ore-crushing) 및 압축블록 분쇄 (block-crushing) 방법이 사용되고 있다. 특히, 고밀도 압축 벤토나이트 블록을 분쇄해서 적당한 입도분포를 갖은 과립상 입자를 만드는 블록 분쇄방법 (Fig. 4)은 다양한 크기와 형태를 갖는 겹채움물질을 제조할 수 있기 때문에, 펠렛과 펠렛 사이 공극을 메우는 과립상 입자 제조방법으로 선호되고 있다.

겹채움재 성형특성 연구는 스웨덴의 SKB, 캐나다의 AECL, 스위스의 Nagra, 벨기에의 Hades URL을 중심으로 수행되었으며, 성형특성 실험결과, 펠렛의 건조밀도와 건전성은 수분함량, 구성물질, 제조방법, 펠렛 크기에 민감하였고, 제작 시 압축하중에는 상대적으로 덜 민감하였다.

2.4 겹채움재 설치기술

펠렛 설치기술 (placement technology) 연구는 수직 및 수평처분공 완충재에서 발생하는 겹과 처분터널 내 뒷채움재에서 생기는 겹을 대상으로 하였으며, 주로 스웨덴, 핀란드, 벨지움, 캐나다, 스위스 등을 중심으로 독자연구 또는 공동연구형

태로 연구가 수행 되어 왔다. 그러나 이 분야의 연구는 아직 초보단계로서 지금까지의 기술현황을 요약하면 다음과 같다.

- 펠렛-과립상 벤토나이트를 겹채움재로 사용할 경우, 건조밀도는 주변 환경과 설치방법에 민감하였다.
- 다양한 입자 크기의 펠렛-과립상 벤토나이트의 혼합물을 사용하는 겹채움재는 단일 입자 크기를 갖는 경우보다 충전 건조밀도가 향상되었다.
- 처분터널 내 펠렛 설치방법으로 blowing 방법을 사용할 경우, 작업은 편리하지만 충전 건조밀도를 높이는 데는 한계가 있었다.
- 높은 스멕타이트 함량을 갖는 벤토나이트 펠렛을 겹채움재로 사용할 경우, 10 mm 이하 작은 펠렛에 대해서는 실험 데이터가 많지 않았다.
- 처분공이나 처분터널 암반 벽 부근에서 필터링 역할을 하는 벤토나이트-펠렛 혼합재에 대한 실험 데이터가 많지 않았다.

3. 결론

공학적방벽의 겹채움재에 대한 연구는 스웨덴, 핀란드, 벨지움, 캐나다, 스위스, 일본 등 처분을 고려하고 있는 국가들을 중심으로 이루어졌으며, 실험실 및 현장 시험을 병행하여 수행되었다. 공학적방벽의 겹채움재 개념은 수직 또는 수평 처분방식에 따라 다르고, 그 나라의 처분개념에 따라서도 약간씩 차이가 있었다. 겹채움재의 물질로는 대부분 벤토나이트가 사용되었으며, 겹채움재의 충전밀도 향상을 위해서는 롤러압축 방법이나 압축-컷팅 방법으로 제조된 펠렛과 압축블록 분쇄 방법에 의해 제조된 과립상 입자의 혼합재가 유력하게 고려되고 있었다.

펠렛 성형특성 실험결과, 펠렛의 건조밀도와 건전성은 수분함량, 구성물질, 제조방법, 펠렛 크기에 민감하였고, 제작 시 압축하중에는 상대적으로 덜 민감하였다. 겹채움재의 설치방법으로는 pouring 방법, blowing 방법, auger 방법 등이 제안되고 있으나, 아직 기술적으로 초기단계에 있어, 앞으로 도 지속적인 연구가 이루어질 것으로 예상되었다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부 (한국연구재단)의 원

자력연구개발사업 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] Svensk Kambranslehantering AB (SKB), "Design and production of the KBS-3 repository," SKB TR-10-12 (2010).

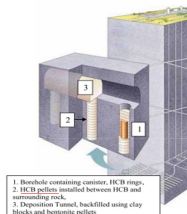


Fig. 1. Disposal concept of KBS-3V, Sweden.

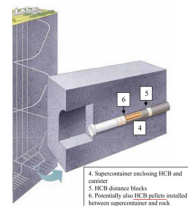


Fig. 2. Disposal concept of KBS-3H, Sweden.

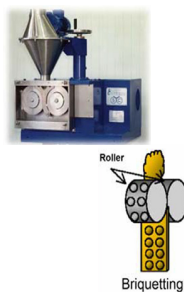


Fig. 3. Roller compression technique of pellets.

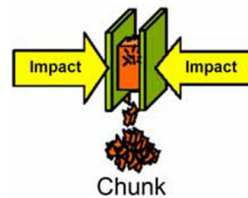


Fig. 4. Block-crushing technique of granules.

지하수 조건에서 $\text{Ca}^{2+}/\text{UO}_2^{2+}/\text{CO}_3^{2-}$ 화학종의 점토광물질에 대한 흡착특성 연구

조용흠*, 이준엽, 윤종일

한국과학기술원, 대전광역시 유성구 과학로 355

*yongheum@kaist.ac.kr

1. 서론

자연 지하수 환경에서 방사성 핵종의 수용액 내 지화학적 반응거동에 대한 명확한 이해는 지하처분장의 신뢰도 있는 안전성 평가를 위해 필수적으로 요구되어진다. 이에 본 연구에서는 Ca^{2+} 이온이 존재하는 중성 및 약염기 환경의 지하수 조건에서 지배적으로 존재하는 우라늄(VI) 화학종인 $\text{Ca}^{2+}/\text{UO}_2^{2+}/\text{CO}_3^{2-}$ 화학종에 대하여 대표적인 점토광물질인 몬모릴로나이트, 일라이트, 그리고 카올리나이트의 시간에 따른 흡착반응을 시간분해 레이저유도 형광분광법(TRLFS)과 유도결합 플라즈마 질량분석법(ICP-MS)을 이용하여 규명하였으며, 이를 통해 흡착분배계수(Kd) 및 흡착된 우라늄(VI) 화학종의 분광학적 특성을 분석하였다.

2. 실험

2.1 흡착대상 점토광물질 시료 준비

IMt-1 일라이트, SCa-3 몬모릴로나이트, kGa-2 카올리나이트가 흡착대상 광물질로 선정되었다. 암석형태의 일라이트와 몬모릴로나이트는 유발을 이용하여 잘게 분쇄되었으며, 처리된 점토광물질 중 크기가 425 μm 보다 작은 입자만이 체를 통해 선별적으로 사용되었다. 걸러진 입자들은 표면의 수용성 염을 제거하고, 충전양이온을 Na으로 교환하기 위해 1 M의 NaClO_4 및 탈이온수를 이용하여 세척하였으며, 이후 소량의 아세톤을 사용하여 분리 및 건조하였다. 최종 처리된 점토광물질은 SEM-EDS, N_2 -BET, 그리고 XRD를 통하여 입자의 외형, 구성성분비 및 비표면적이 분석되었다.

2.2 $\text{Ca}^{2+}/\text{UO}_2^{2+}/\text{CO}_3^{2-}$ 흡착실험

수용액 내 우라늄(VI)의 농도는 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 를 사용하여 10^{-4} M로 유지하였고, NaHCO_3 를 사용하여 HCO_3^- 의 초기농도를 0.05 M로 조절한 후 대기 중의 이산화탄소 농도와 평형을 맞추었다. 수용액 내 Ca^{2+} 의 농도는 $\text{Ca}(\text{ClO}_4)_2$ 를 사용하여 10^{-3} M로 조절되었

으며, 시료의 pH는 TRIS와 MES을 사용하여 7.5, 8.2, 그리고 9.0으로 완충하여 중성 및 약염기 환경을 조성하였다. 모든 용액의 이온세기는 NaHClO_4 를 이용하여 0.1 M로 유지하였다.

점토광물질에 대한 흡착실험은 원심분리용 튜브에서 0.5 g/10 mL의 광물질과 용액의 비율로 최대 100시간 동안 지속적으로 교반시키며 진행되었다. 반응시간에 따른 흡착정도를 알아보기 위해 흡착반응 중 원심분리기(4000 rpm, 5분)를 사용하여 광물질과 상층액을 분리하고, 상층액 100 μL 를 추출한 뒤 다시 균질하게 섞어주었다. 흡착실험 종료 후, 원심분리기를 이용하여 자연광물질과 용액을 분리시킨 뒤, 아세톤을 사용하여 광물질만을 선택적으로 추출하고 자연 건조시켰다.

3. 결과 및 토론

3.1 점토광물질에 대한 흡착현상

흡착실험 전 TRLFS로 얻어진 형광 봉우리 위치 및 형광수명의 분광학적특성을 분석하여 수용액 내 우라늄(VI) 화학종을 확인하였다. 사전 연구된 문헌[1]과 형광특성을 비교한 결과, 수용액 내에 지배적으로 존재하는 우라늄(VI) 화학종은 $\text{Ca}^{2+}/\text{UO}_2^{2+}/\text{CO}_3^{2-}$ 화학종으로 확인되었다. 열역학적 기반자료를 통해 칼슘이온이 존재하는 중성 및 약염기 환경에서 $\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3(\text{aq})$ 화학종이 주로 존재하는 것으로 확인되었으며, pH가 증가할수록 형광수명이 짧아지는 현상은 약알칼리 환경에서 상대적으로 긴 형광수명을 가지는 $\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3(\text{aq})$ 화학종은 줄어들고 형광수명이 상대적으로 짧은 $\text{CaUO}_2(\text{CO}_3)_3^{2-}(\text{aq})$ 화학종은 우세해지는 결과이다.

TRLFS 분석을 통해 자연광물질 시료에 대한 $\text{Ca}^{2+}/\text{UO}_2^{2+}/\text{CO}_3^{2-}$ 화학종의 흡착반응을 관찰하였다. 추출된 상층액 속 우라늄(VI)의 정량분석을 위해 URAPLEX가 사용되었으며, (UO_2^{2+}) (URAPLEX) 화합물의 상대적인 형광세기변화를 통해 상층액에 포함된 우라늄의 양을 밝혀내었다. Fig. 1에 나타난 바와 같이 카올리나이트의 경우

우라늄(VI) 화학종의 시간에 따른 흡착반응을 정량적으로 관찰할 수 있었지만, 일라이트 및 몬모릴로나이트에서는 형광스펙트럼과 형광세기의 변화를 통한 흡착반응이 관측되지 않았다.

우라늄(VI) 화학종의 카올리나이트에 대한 흡착반응은 pH 7.5에서 가장 뚜렷이 관찰되었고, pH가 증가함에 따라 흡착반응은 줄어드는 경향성을 보였다. 이는 pH가 증가함에 따라 광물질의 표면 전하(ζ , zeta potential)가 점차 강한 음전하를 갖게 되고, pH 8 이상의 지하수 조건에서는 음전하를 갖는 $\text{CaUO}_2(\text{CO}_3)_3^{2-}$ 우라늄(VI) 화학종이 주로 존재하게 되므로 이러한 약염기환경에서는 음전하의 정전기적 반발로 인해 흡착반응이 방해받는 것으로 생각된다.

Table 1에 나타난 바와 같이, 교차분석을 위해 ICP-MS를 이용하여 구한 우라늄(VI) 화학종의 흡착반응 결과는 형광측정으로 구한 결과와 거의 유사하였다.

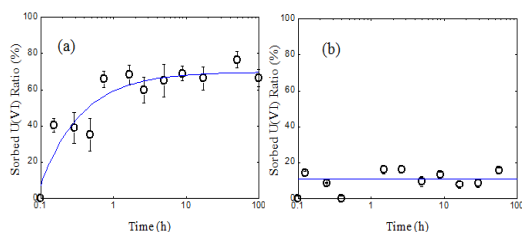


Fig. 1. Sorbed U(VI) ratios onto (a) kaolinite and (b) Illite.

Table 1. K_d values determined by TRLFS and ICP-MS result ($\times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{kg}$)

pH	ICP-MS	TRLFS
7.5	50.7 $\pm$ 0.5	44.5 $\pm$ 4.2
8.2	23.4 $\pm$ 0.4	42.1 $\pm$ 4.4
9.0	9.7 $\pm$ 0.1	17.6 $\pm$ 2.2

3.2 카올리나이트에 흡착된 U(VI) 화학종의 형광분광특성

카올리나이트에 흡착된 우라늄(VI) 화학종의 분광스펙트럼을 Fig. 2에 나타내었다. 흡착실험 전에 측정된 카올리나이트의 형광스펙트럼과 비교한 결과 450 nm와 590 nm 사이의 파장 영역에서 우라늄(VI) 화학종의 특징적인 형광스펙트럼을 얻을 수 있었다.

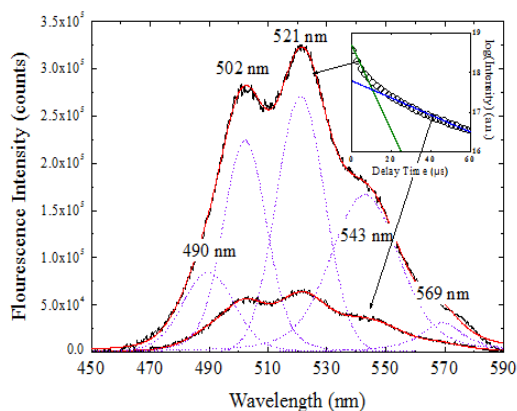


Fig. 2. Fluorescence spectra of sorbed U(VI) species onto kaolinite under groundwater condition.

pH가 증가함에 따라 흡착된 우라늄(VI) 화학종의 형광세기가 줄어드는 현상은 앞서 설명한 바와 같이 약염기환경에서는 $\text{CaUO}_2(\text{CO}_3)_3^{2-}$ 우라늄(VI) 화학종과 카올리나이트의 표면 전하의 반발에 기인하는 것으로 보인다.

4. 결론

본 연구를 통해 지하수 조건에서 지배적으로 존재하는 $\text{Ca}^{2+}/\text{UO}_2^{2+}/\text{CO}_3^{2-}$ 화학종에 대한 자연점토 광물질의 흡착분배계수는 높지 않은 것으로 분석되었다. 특히 카올리나이트를 제외한 일라이트, 몬모릴로나이트의 경우 흡착반응이 거의 이루어지지 않았으며, 이러한 경향성으로 미루어 보아 실제 자연환경 내에서도 우라늄(VI)에 대한 점토 광물질의 이동지연효과는 크지 않을 것으로 사료된다. 따라서 사용후핵연료의 안전한 처분을 위해서 실제 지하수 환경에서 점토광물질의 핵종이동지연에 관한 추가적인 연구 및 검토가 지속적으로 이루어져야 할 것이다.

5. 참고문헌

- [1] J.-Y. Lee and J.-I. Yun, Dalton Trans., vol. 42, no. 27, pp. 9862 - 9, Jul. 2013.

복합처분시스템에서 처분안전기준의 해석과 안전성평가 적용

정찬우*, 정효숙, 서은진, 박진용, 송민철

한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 과학로 34

*jcw@kins.re.kr

1. 들어가는말

경주방폐장은 장기적으로 다음과 같은 복합처분시스템으로 개발될 전망이다.

- 건설/운영/폐쇄 등 개발의 여러 국면이 공존
- 동굴/천층/표층 등 여러 처분방식/처분고가 공존
- 기존 원전부지에 처분시설부지가 인접

본 고에서는 중·저준위폐기물 처분시설에 대한 현행 방사선안전기준과 해당 안전성평가 요건을 이러한 복합처분시스템의 문맥에서 해석하고 그 부합성 입증을 위한 안전성평가의 방향을 검토한다.

2. 복합처분시스템에서 방사선안전기준의 해석

당해 복합시스템은 서로 다른 영향의 방식과 시간대에 대해 각기 안전기준이 설정된 시설들 또는 과정들의 영향이 미래 어느 시점에 중첩될 가능성을 내포한다[1]. 원자력안전법은 원자로시설, 핵연료관련시설, 폐기시설등 주요 원자력시설의 운영단계에 대하여 시설(호기)별로 약 0.1 mSv/y 수준의 동일한 선량제약치를 부과하고 다수호기가 운영되는 부지에 대하여는 0.25 mSv/y의 제약치를 부가하고 있다[2]. 한편, 운영단계보다는 폐쇄 후에 본연의 성능이 요구되는 중저준위처분시설에 대하여는 폐쇄 후 단계에 대한 성능목표로 0.1 mSv/y의 제약치를 덧붙이고 있다[3]. 언뜻 보기에 처분시설의 생애에 걸쳐 0.1 mSv/y 수준의 안전기준이 적용되고 이는 다른 원자력시설의 경우와 마찬가지로 같지만 그 의미는 서로 다르다. 처분에 따른 영향(피폭)의 시간범위는 대부분 폐쇄 후 단계이며 이 기간에 영향의 유형이나 공간적 범위가 상대적으로 불확실하다. 그러므로 처분시설 폐쇄 후 장기적인 영향은 미래에 (당해 처분이 잊혀진 시점 그리고 그 영향을 인지하지 못하는 경우에도) 다른 위해시설의 영향과 중첩될 수 있다. 처분시설의 폐쇄후 단계에 대한 성능목표는 이러한 상황을 커버하여 일정 범위의 시간 및 공간 내 처분시스템에 할당된 제약치이다. 따라서 미래에 시설 주변 한 개인에 대한 방사선피폭에 연계될 수 있는 현재의 모든 처분고들은 선량제약치의 관점에서 1기의 시설로 간주되어야 한다. 즉, 여러 처분고가 있을 때

이들이 시공간적으로 완전히 독립적인 피폭시스템을 형성하는 경우에만 각기 별도의 선량제약치를 점할 수 있다. 그러므로 경주방폐장에 현재에 개발되는 모든 처분고들은 개별특성에 상관없이 폐쇄후 성능목표와 안전성평가의 문맥에서 하나의 처분시설로서 0.1 mSv/y가 통합 적용된다[1].

경주방폐장에 대해 더욱 주목해야 할 부분은 방사선 영향의 측면에서 원자로시설과 중첩될 가능성이다.

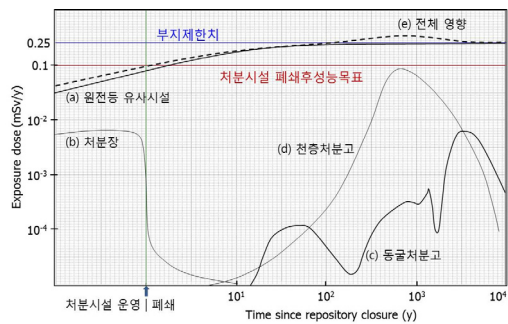


Fig. 1. Possible development of a complex nuclear site.

Fig.1은 인접 원자로시설(또는 미래 유사위해시설)이 장기간(~백년) 존속하는 경우에는 처분시설 폐쇄 후 영향과 원자로시설 운영 중 영향이 미래 동시대에 함께 나타날 수도 있음을 예시한다. 복합방폐장을 개발할 때에는 이러한 상황의 가능성을 잘 검토하여야 하며 그 가능성이 예견되는 경우에는 개발 시점부터 미래의 복합영향에 관한 부지제약치를 추가로 반영하여 해당 시설을 설계해야 할 것이다. 만일 최선의 설계를 적용하더라도 Fig.1과 같이 평가결과에 정량적인 의미를 부여할 수 있는 기간(~수백년)에 부지제약치를 초과할 가능성이 있는 것으로 나타난다면 이는 해당 제도적관리기간과 부지상의 방사선영향에 관한 모니터링이 그러한 시점까지 지속되어야 함을 가리킬 수 있다.

한편, 원자로시설과 처분시설처럼 서로 다른 성격의 시설에 대하여는 부지제약치의 향에서 현재의 동일부지 개념을 재검토해볼 필요도 있다. 이러한 논의에서는 먼 미래에 과거 시설의 존재나 그 후과를 인지하지 못하는 상태에서 새로운 유사위해시설이 도입될 수 있기도 감안하여야 한다[1].

3. 복합처분시스템 폐쇄후안전성평가

복합시스템에 대해 성능목표의 부합성 입증은 대표인 중심의 통합평가를 요한다[4,5,6]. 하나의 피폭시스템에서 대표인의 선량을 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$D(c, w) = \sum_{j=1}^m w_j \sum_{k=1}^n r_{jk} c_{jk} \quad (1)$$

여기서 r_{jk} 는 방사선 또는 방사성핵종 k 의 경로 j 에 따른 선량계수, w 는 피폭경로(매체)에 대한 대표인의 접촉률(예; 연간섭취량), c 는 매체별 방사선준위 또는 핵종농도를 가리킨다(Fig. 2).

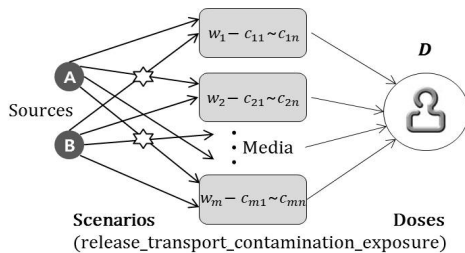


Fig. 2. Representation of the complex exposure process.

복합시스템 내 임의의 두 선원(처분고/원전) 또는 피폭시나리오를 a 와 b 라 하자. 복합시스템에서의 연계성을 일반적인 더하기(+)와 구분하기 위해 $\oplus$ 로 나타내면 시나리오의 전개와 식(1)로 주어지는 결말(선량) 간의 분석으로부터 Table 1과 같은 결론을 얻을 수 있다[4].

Case ①은 매체의 방사선준위에 대해 단순합산이 성립하는 경우이다. 이 경우,

(i) 모든 시스템에 동일한 대표인이 채용된다면 선량에 대하여도 단순합산이 성립한다;

(ii) 만일 서로 다른 대표인이 적절하다면 복합시스템의 선량이 단순합산보다 작게 나타난다.

Case ②는 선원_시나리오 간의 작용으로 매체의 방사선준위에 대해 단순합산이 성립하지 않는 경우이다. 이는 다시 세 경우로 나눌 수 있다.

(iii) 오염준위 상승: $\exists c_{jk}^{a \oplus b} > c_{jk}^a + c_{jk}^b$ 라면

$D^{a \oplus b} > D^a + D^b$ 의 가능성이 있다.

(iv) $\exists w_{jk}^{a \oplus b} \notin (W^a \cup W^b)$ 이면 새로운 피폭경로를 포함하여 $D^{a \oplus b} > D^a + D^b$ 의 가능성이 있다.

여기서 W 는 피폭경로의 집합이다.

상기 두 경우는 함께 나타날 수도 있다.

(v) $W^{a \oplus b} \subset (W^a \cup W^b)$ 이고 $c^{a \oplus b} < c^a + c^b$ 이면

$D^{a \oplus b} < D^a + D^b$ 가 된다.

Table 1. Complex exposure situations

① $C^{a \oplus b} = C^a + C^b$		②
(i) $W^a = W^b$ ($= W^{a \oplus b}$)	(ii) $W^a \neq W^b$	$C^{a \oplus b} \neq C^a + C^b$
$D^{a \oplus b} = D^a + D^b$		$D^{a \oplus b} < D^a + D^b$ (iii, iv, v)

이와 같이 복합시스템의 피폭양상은 다양할 수 있으므로 평가 시에는 선원항 또는 피폭시나리오들의 상호작용 가능성에 특히 유의하여야 한다. 아울러, 처분시설 폐쇄 후 안전성평가[3]에서 확률시나리오(보조성능 목표; 위험도제약치 $10^{-6}/y$)와 침입시나리오(기준; 1 mSv/y)를 분석할 때에는 하나의 공통원인에 의해 다수 선원항_시나리오가 영향을 받을 가능성에 주목할 필요가 있다.

4. 맺음말

중요한 국책시설인 경주방폐장은 장기 마스터플랜과 체계적인 safety case 개발을 통해 복합처분시스템으로서의 안전성을 확보하여야 한다. 본 고에서 검토한 사항들과 기존에 제시된 안전성증진방안들[7,8]은 이를 위한 기초가 될 수 있다.

※ 이 연구는 원자력안전위원회가 시행하는 연구사업 “방사성폐기물 안전규제 핵심기술 개발”의 일환입니다.

5. 참고문헌

- [1] 복합 원자력부지에 대한 지속가능한 방사선안전기준 설정 방안, 방사선방어학회 '12춘계학회 논문요약집.
- [2] 방사선방호등에 관한 기준 고시.
- [3] 중·저준위 방사성폐기물 처분시설에 관한 방사선 위해방지기준 고시.
- [4] 복합 환경피폭시스템의 수학적 구조와 안정성 고찰, 방사선방어학회 '14 춘계학회 논문요약집.
- [5] J. Radiation Protection 35(1) 6-11, 2010.
- [6] J. Nucl. Sci. Tech. 50(5) 534-545, 2013.
- [7] 경주 방폐장 종합개발과 안전성확보를 위한 과제, 방사성폐기물학회 '09춘계학회 논문요약집.
- [8] 중저준위 방폐장 종합개발을 위한 안전성평가 고려 사항, 방사성폐기물학회 '11춘계학회 논문요약집.

중·저준위방폐물 운반용기 설계

김기진^{1*}, 최광섭¹, 김태수², 송양수², 민영선²

¹한국원자력환경공단, 경상북도 경주시 북성로 89

²[주]코네스코퍼레이션, 경상북도 경주시 양정로 251번길 4

*sooper08@korad.or.kr

1. 서론

국내 각 원자력발전소 임시저장고에 저장중인 중·저준위방폐물 및 RI폐기시설에 저장중인 RI폐기물은 내용물의 종류 및 포장용기의 형태가 다양하다. 이와 같이 다양한 원전폐기물 및 RI폐기물을 경주 처분장까지 육상 및 해상으로 안전하고 효율적으로 운반하기 위해서는 국내외 관련 법규 및 기술기준을 만족하고 처분장 여건에 적합한 운반용기가 확보되어야 한다.

현재 한국원자력환경공단에서는 200리터 및 320리터 드럼을 운반할 수 있는 IP-2형 운반용기를 제작하여 운영하고 있으며, 이 운반용기로 운반이 불가능한 나머지 폐기물을 운반하기 위해 다양한 종류의 운반용기를 설계중이다.

2. 본론

2.1 운반용기 개념설계

2.1.1 운반대상 방폐물 현황 분석

원전에서 발생하는 폐기물은 잡고체, 농축폐액, 폐수지, 폐필터로 분류되며, 포장용기의 재질별로는 강재드럼, 콘크리트용기 및 고건전성용기(HIC)로 구분된다. 이 중에서 200리터 및 320리터 드럼의 약 13%와 비규격 포장용기는 공단이 기보유중인 IP-2형 운반용기로 운반이 불가능 하다.

RI폐기시설에 저장중인 밀봉선원 폐기물 및 개봉선원 폐기물도 200리터 드럼을 제외하고는 모두 보유중인 IP-2형 운반용기로 운반할 수 없다.

2.1.2 운반물 분류기준에 따른 운반대상 방폐물 분류
폐기물 중 핵종농도가 낮은 저준위비방사성물질(LSA) 및 방사성물질은 아니지만 표면에 방사성물질이 분포되어있는 고체상태인 표면오염물질(SCO)은 IP형 운반용기로 운반이 가능하다. 원전폐기물 중 잡고체, 농축폐액, 폐수지는 대부분이 제2종 저준위비방사성물질(LSA-II)로 취급가능하

며, RI폐기물 중 개봉선원 폐기물도 LSA-II로 취급이 가능하다. 이와 같이 운반대상 방폐물을 국내외 규정에 따라 방사능량 및 농도, 표면오염도 등의 방폐물 특성을 고려하여 운반물별로 분류하였다(Table 1).

Table 1. Radioactive Contents in Packages

구분	방폐물 종류
IP형 운반물	• 잡고체/농축폐액/폐수지 드럼
	• 고리사각 콘크리트용기
A형 운반물	• 울진 C1, C2형 콘크리트용기(농축폐액, 폐수지)
	• 개봉선원 폐기물 드럼
B형 운반물	• 기존 IP-2형 운반용기의 방사능량 제한치를 초과하는 잡고체/농축폐액/폐수지 드럼 및 폐필터 드럼
	• 울진 C2, C4형 콘크리트용기(폐필터)
C형 운반물	• 밀봉선원 폐기물, 고건전성용기
	• A형 운반물의 방사능량 제한치를 초과하는 드럼, 콘크리트용기, 밀봉선원 폐기물, 고건전성용기

2.1.3 운반용기 개발시 제한조건

운반용기는 운반선박 및 차량을 이용하여 처분장으로 운반되며, 인수저장건물에서 취급이 이루어진다. 따라서 운반차량 적재중량 및 운반선박과 인수저장건물의 취급크레인 정격용량에 따라 운반용기의 총중량 제한이 필요하며, 운반선박 및 차량의 적재공간에 적재할 수 있는 크기로 설계되어야 한다. 표 2에 운반차량과 취급설비의 정격용량 및 크기에 대하여 기술하였다.

Table 2. Design Constraints

항 목	제한조건
총중량	• 운반차량 적재중량 : 12.6톤
	• 운송선박 취급크레인 정격용량 : 7.5톤
	• 인수저장시설 취급크레인 정격용량 : 18.0톤
외부크기	• 폭 : 1.6m / 길이 : 3.4m

2.1.4 설계대상 운반용기 선정

방폐물 포장용기의 형태, 내용물 분류기준에 따라 운반용기 종류가 선정되었고 예비 차폐해석, 제한조건에 따라 운반용기 두께 및 크기, 총중량이 결정되었다. 현재 설계중인 운반용기 종류별 제한 및

운반대상 방폐물을 Table 3에 정리하였다.

Table 3. Specifications of the Cask and the Waste Load

운반용기	제한		운반대상 방폐물
	중량(톤)	크기(m)	
IP2형-III	7.4	1.6×3.4×1.72	고리원형
IP2형-IV	12.4	1.6×3.4×1.72	고리사각, 울진 C1/C2형
IP2형-V	4.4	1.6×3.4×1.2	개봉선원 50L 드럼
IP2형-VI	5.2	1.6×3.4×1.2	개봉선원 100L 드럼
A형-I	6.7	1.6×3.4×1.22	200/320L 드럼
A형-II	9.2	1.6×3.4×1.0	밀봉선원
A형-III	6.4	φ1.1×2.57	선박 액체방폐물
A형-IV	12.0	1.6×3.4×1.82	울진 C2/C4형, HIC 4종
B형-II	17.8	φ1.68×1.57	밀봉선원, 울진 C4형, HIC 2종

2.2 운반용기 안전성해석 및 설계

방사성폐기물 운반용기는 관련 법적요건 및 기술기준을 만족하도록 설계되어야 한다. 해석분야는 방사선차폐, 열전달, 구조, 격납 등을 포함하며 해석결과를 반영하여 운반용기 설계를 진행 중이다. 운반용기 형태별로 수행중인 안전성 해석분야는 표 4와 같다.

Table 4. Safety Analysis of the Cask

운반용기 형태	안전성해석 수행분야				
	구조	열	격납	차폐	임계
IP형 운반용기	O	×	×	O	×
A형 운반용기	O	×	×	O	×
A형 운반용기(액체)	O	O	O	O	×
B형 운반용기	O	O	O	O	×

운반용기는 설계와 관련된 제한 기술기준 및 설계요건에 따라 설계기준이 수립되어 분야별 안전성을 확보하였다. 설계해석에 적용된 주요법규 및 표준은 아래와 같으며, 주요 설계기준 및 해석시 사용한 전산프로그램을 표 5에 제시하였다.

○ 국내 법규

- 원자력안전법/시행령/시행규칙
- 방사선 안전관리 등의 기술기준에 관한 규칙
- 원안위고시 제2013-27호, 방사성물질등의 포장 및 운반에 관한 규정

○ 국외 기술기준 및 표준

- IAEA Specific Safety Requirement NO. SSR-6
- 10 CFR Part 71
- Regulatory Guide 7.4, 7.6, 7.7, 7.8, 7.9

Table 5. Design Criteria and Computer Program

구분	주요 설계기준	전산프로그램
구조 해석	• 격납구조 응력평가 - ASME Section III, Division 3 • 볼트 응력평가 - ASME Section II, Part D	LS-DYNA/Explicit
열 해석	• 설계 최대온도 - ASME Code Sec.II, Part D	ANSYS Fluent
격납 해석	• 정상조건 : $10^{-6}A_2/hr$ • 사고조건 : $A_2/Week$, $10A_2/Week(Kr-85)$	-
차폐 해석	• 정상조건 : 용기표면 2mSv/hr, 2m 이격 0.1mSv/hr • 사고조건 : 1m 이격 10mSv/hr	MCNP5

2.3 안전성입증 시험모델 제작 및 시험

운반용기 중 IP-2형-V/VI을 제외한 IP-2형 2종, A형 4종, B형 1종의 안전성입증시험 수행현황은 표 6과 같다. 시험모델은 한국원자력연구원 시험시설의 크레인 정격용량을 고려하여 1/2 Scale로 축소·제작하여 시험을 수행하였다.

Table 6. Status of Safety Test

운반용기	시험완료: ○, 시험중: O, 예정: △							
	정상운반조건				운반사고조건			
	적층	살수	낙하	관통	낙하	파열	열	침수
IP2형-III	△	△*	△					N/A
IP2형-IV	○	○*	○					N/A
A형-I/II	○	○	○	○				N/A
A형-III	N/A	○	○	○				N/A
A형-IV	△	△	△	△				N/A
B형-II				N/A		△	△	△

* 법적 요건은 아니며 안전성검증을 위하여 추가 수행

3. 결론

앞에서 살펴본 바와 같이 한국원자력환경공단에서는 다양한 종류의 포장용기를 안전하고 효율적으로 경주 처분장으로 운반하기 위해 총 9종의 운반용기를 설계 중이다. 향후 적정수량의 운반용기를 적기에 확보할 수 있도록 2014년에는 운반용기별 안전성분석보고서를 작성하고, B형 운반용기의 설계, 시험 및 인허가를 추진할 예정이다.

4. 참고문헌

- [1] 한국수력원자력[주], 방사성폐기물 운반용기 상세설계 사전분석 최종보고서, 2008.
- [2] 한국수력원자력[주], 중저준위방사성폐기물 IP-2형 운반용기 안전성평가보고서, 2007.

Role of Natural Organic Matter on Radioactive Iodine Fate in Subsurface Environments

Sangsoo Han¹, Wooyong Um^{1,2}, and Sungwook Choung^{1*}

¹Pohang University of Science and Technology (POSTECH), Pohang, Korea

²Pacific Northwest National Laboratory (PNNL), Richland, WA, USA

*schoung@postech.ac.kr

1. Introduction

Radioactive iodines ($^{125/129/131}\text{I}$) are released into environments during nuclear fuel processing, nuclear weapon tests and nuclear accidents such as Chernobyl and Fukushima. Environmental concern is mostly for ^{129}I due to its high toxicity and long half-life, $t_{1/2} = 1.6 \times 10^7$ years [1]. Understanding transport of radioactive iodine in the environment is important to predict the contamination extent, and evaluate the risk to human and ecological systems. In particular, the sorption behavior of iodine species such as iodide (I^-) and iodate (IO_3^-) was dominantly controlled by natural organic matter (NOM) in soil/sediment of subsurface environments [2]. This study was determined the iodide and iodate sorption isotherm for NOM comparing sorption properties between black carbon (BC) and humic acid.

2. Methods

2.1 Materials

A laboratory-produced wood char (a type of BC materials) and commercial humic acid were used as representative of BC and general NOM. The wood char was produced by the following approach. The heartwood of pine tree was cut to 1cm^3 blocks, and the heartwood blocks were pyrolyzed for 30 min in a tube furnace under a constant nitrogen gas at final temperature 600°C with $10^\circ\text{C min}^{-1}$ ramp rate. The produced BC was pulverized, and sieved to the

$75\text{--}150\ \mu\text{m}$ size fraction as a representative of natural BC particle size. Two stable iodine (^{127}I) species (i.e., iodide, iodate) as surrogate for radioactive iodine (^{129}I) were used in the sorption experiments. The concentrations of stock solutions were 0.15 and 15 mM.

2.2 Sorption experiments

The BC and humic acid materials ($\sim 50\text{ mg}$) were independently added into 10 ml vials containing approximately $\sim 10\text{ mL}$ 0.001 M NaNO_3 background solution. Iodide or iodate stock solution was added to individual batch vials. Solid-free control vials were also prepared in parallel to iodine sorption batches to evaluate initial iodine mass and total mass losses. Iodine sorption results were collected to develop isotherms after 168 h reaction. The final iodine concentrations were determined by ICP-MS. Distribution coefficient (K_d) values were determined by the ratio of sorbed (C_{uptake}) and dissolved concentration (C_w). Developed isotherms for iodide and iodate uptake were fitted with the Freundlich model: $C_{\text{uptake}} = K_f C_w^n$, where K_f [$(\mu\text{g kg}^{-1})/(\mu\text{g L}^{-1})^n$] and n denote the Freundlich coefficient and exponent.

3. Results & Discussion

The BC partitioning isotherms for iodide and iodate were nonlinear, showing $n=0.75\text{--}0.78$.

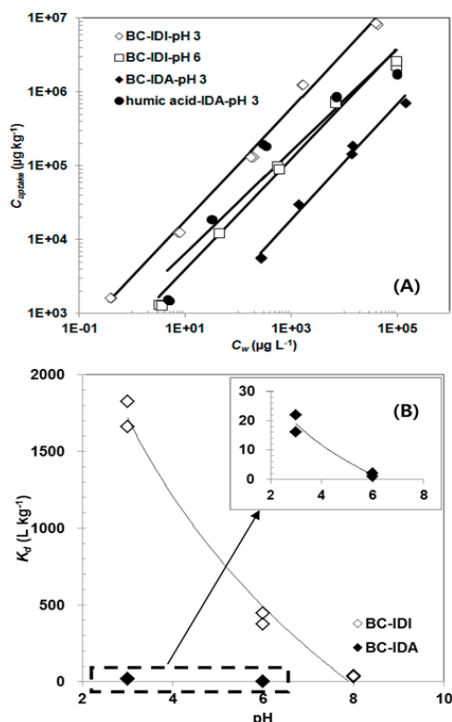


Fig. 1. (A) Iodine isotherms on BC and humic acid at pH ~3 and 6.(IDI: iodide IDA: iodate) The C_w is dissolved iodine concentration, and C_{uptake} is the iodine concentration on solid. (B) Iodine distribution coefficients(K_d values) on the BC material under different pH conditions.

The nonlinear uptake behavior makes NOM more important solids for radioactive iodine species at low dissolved concentrations. Iodine isotherms on the two different solids are illustrated in Figure 1A. The measured iodide K_d value was $\sim 7.0 \text{ L kg}^{-1}$ for humic acid at low target concentration, $C_w \approx 10 \mu\text{g L}^{-1}$, under acidic condition, pH ~3. Iodate K_d value for the humic acid was more than 2 orders of magnitude greater than iodide under identical experimental conditions. In contrast, the BC exhibited approximately >100 times greater uptake for iodide than iodate at low pH~3. Iodide reacted more efficiently with the BC compared to humic acid, Iodide and iodate sorption by BC was also dependent on pH conditions (Figure 1B). The measured K_d value for iodide was $1,700 \text{ L kg}^{-1}$

under acidic condition (pH<3), while the K_d values dramatically decreased to 410 L kg^{-1} near neutral pH~6 and 39 L kg^{-1} under alkaline condition (pH~8) at $C_w \approx 10 \mu\text{g L}^{-1}$ (Figure 1). The positively charged surface of the BC results in greater uptake of iodide and iodate under acidic conditions rather than high pH, because both of iodine species are present as anion (or oxyanion) in solution.

These results suggested that iodide could be significantly retarded by BC under low pH conditions in BC containing environments. Our study provides potential role of the particulate NOM such as BC materials on uptake for iodide in ground water environments.

4. References

- [1] Organo-iodine formation in soils and aquifer sediments at ambient concentrations. Environ. Sci. Technol, 43, pp. 7258–7264, 2009.
- [2] Immobilization of fission iodine by reaction with insoluble natural organic matter, J. Radioanal. Nucl. Chem, 277, pp. 175–183, 2008.

2분과

방사성폐기물 처분 및 부지특성(Poster)

KOREAN RADIOACTIVE WASTE SOCIETY

심부 시추공 처분 안전성 평가를 위한 문헌조사 및 예비 연구

김정우*, 김인영, 최희주, 이종열

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*jw_kim@kaeri.re.kr

1. 서론

고준위 방사성폐기물의 심부 시추공 처분은 기존의 동굴처분방식에 대한 대안개념 비교분석을 위하여 1970년대 이후 스웨덴의 SKB와 미국의 DOE를 중심으로 연구되어 왔다[1]. 하지만, 심부 시추공 처분 방식에 대한 안전성 평가는 동굴 처분 방식과 달리 상당히 미미한 실정으로, 미국의 SNL이 그들의 기준개념에 대하여 최근에 수행한 예비 안전성 평가가 현재로써는 유일하다[2,3]. 본 연구에서는 SNL의 예비 안전성 평가 기술 현황을 조사하였고, 그들의 평가 방법에 국내 폐기물 특성을 고려한 예비 연구를 수행하였다.

2. 본론

2.1 SNL의 심부 시추공 처분 예비 안전성 평가

2.1.1 관련 법규

SNL의 심부 시추공 처분 예비 안전성 평가는 전반적으로 Yucca Mt. 처분장에 적용된 40 CFR Part 197에 근거하였다. 안전성 평가 최종 기준은 가상의 개인에게 미치는 평균연간선량으로, 처분 후 10,000년 동안 0.15 mSv/yr, 10,000년에서 1,000,000년 동안 1 mSv/yr으로 규정되었다. 인간 침입 시나리오를 제외한 관련 FEPs 또한 40 CFR Part 197과 10 CFR Part 63을 따르는 것으로 가정하였다. 이와 함께, 예비 안전성 평가에 적용된 법규관련 가정은 다음과 같다.

- 1) “가상의 개인”은 40 CFR part 197.21에서 정의된 “reasonably maximally exposed individual”이다.
- 2) “가상의 개인”은 처분장 바로 위에 존재한다.
- 3) 폐기물의 회수성은 고려하지 않는다.
- 4) 단일 심부 시추공만을 고려한다.
- 5) 폐기물의 종류를 사용후핵연료로 한정한다.

2.1.2 FEP 및 시나리오

심부 시추공 처분과 관련된 FEP 선별을 위하여 Yucca Mt. 인허가에 사용된 374개의 FEP 목록을 활

용하였다. 그외 새로운 FEP의 추가는 없었고, 다음과 같은 가정 등을 통해 추가적인 선별이 수행되었다.

- 생태계로의 유출은 처분공 주변의 우물을 통한 지하수 사용을 통해 직접적으로 발생한다.
- 폐기물과 저장용기는 방벽기능이 없다.
- 폐기물과 저장용기의 화학적 영향은 재평가 한다.
- 공학적 방벽은 상부의 처분공 밀봉재와 하부의 처분 영역을 포함하지만, 실제 방벽으로써의 역할은 상부 처분공 밀봉재에 제한한다.
- 뒷채움재는 처분 영역의 폐기물 저장용기 주변에 주입되는 물질을 의미한다.
- 유출된 핵종은 1)공학적 방벽, 즉 상부 처분공 밀봉재와 2)포화된 주변 암반을 통해 이동한다.

위에서 정의된 FEP에 근거하여, 심부 시추공 처분 방식의 핵종이동 시나리오는 다음의 세 가지 경로의 조합을 바탕으로 정의 하였다.

- 1) 시추공 상부를 통한 핵종이동,
- 2) 시추공 주변의 굴착손상영역을 통한 핵종이동,
- 3) 시추공 주변 암반을 통한 핵종이동(방사형 지하수 흐름).

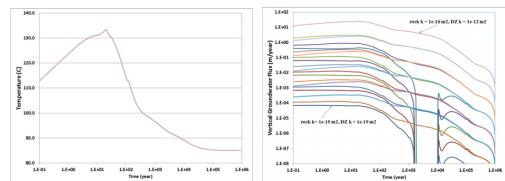


Fig. 1. Temperature(left) and vertical groundwater flux(right) at 3-km depth.

2.1.3 열-수리 해석

Fig. 1은 SNL의 열-수리 해석 결과를 나타내는데, 처분공에서의 온도는 암반 매질의 투수계수와 상관없이 최고 50°C의 온도상승을 보이며 시간에 따라 일정한 경향을 나타내었다. 이러한 결과는 열이동의 주요기작이 대류보다는 전도임을 의미한다. 수직방향의 지하수 유량은 매질의 투수계수에 민감하게 반응하였다. 매질의 투수계수가 10^{-19} m^2 인 경우, 약 2,000년에서 10,000년 사이에 아랫방향으로의 지하수 흐름이 예측되었는데, 이는 지하수의

온도 저하에 따른 수축의 결과로 사료되었다.

2.1.4 핵종이동

Fig. 2는 SNL의 핵종이동 해석 결과를 나타내는데, 전체 평균선량은 각 매질의 투수계수에 크게 영향을 받는 것으로 나타났다. 전체 선량에 크게 기여하는 핵종은 I-129, Cl-36, Tc-99 순이었다.

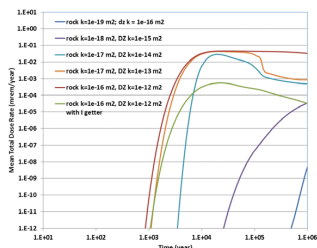


Fig. 2. Mean total dose rate.

2.2 국내 폐기물 특성을 고려한 예비 연구

2.2.1 폐기물 특성

국내의 처분 대상 폐기물은 표준 PWR 사용후핵연료인 PLUS7(어셈블리 639.38kg 중 U 무게 430.8 kg, 초기농축도 4.5 wt.%, 방출연소도 55 GWd/MtU)의 해체후 40년을 기준으로 가정하였다.

2.2.2 열-수리 해석

국내 폐기물 특성을 고려한 열-수리 해석 결과(Fig. 3), 깊이별 시추공 중심에서 처분후 약 10년 이후에 약 30°C의 온도상승을 나타냈다. 붕괴열에 의한 온도 증가는 급격히 감소하여 약 1,000년 이후부터 초기 온도에 수렴하는 경향을 보였고, 시추공 반경방향 약 10 m 부근부터는 붕괴열의 영향이 크게 나타나지 않는 것으로 나타났다.

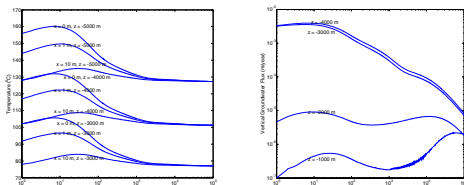


Fig. 3. Temporal distributions of temperature(left) and vertical groundwater flux(right).

2.2.3 핵종이동

Fig. 4와 같이 처분구역으로부터 밀봉구역으로 유입되는 주요 핵종은 초기 재고량이 많은 U-238, U-235, U-236 순으로 나타났다. 밀봉구역에 유입되

는 최대 핵종 유동은 약 1,600 g/yr로 약 100,000년 까지 유지되었다. 하지만, 대부분의 핵종들은 밀봉구역을 통과하지 못하였고, 최종적으로 흡착계수가 0.0 m³/kg인 Cl-36만이 검출되었다. 이때, 최대 선량은 약 1,000,000년에서 약 4×10^{-10} mSv/yr로 나타났다.

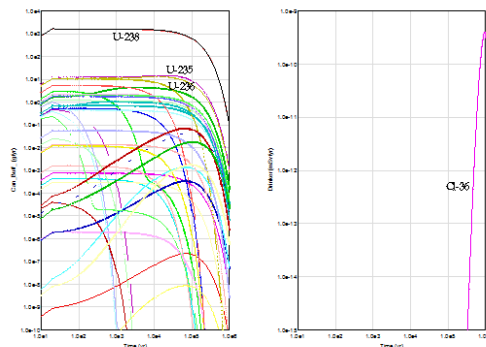


Fig. 4. Radionuclide release rate from the disposal zone(left) and the final dose rate(right).

3. 결론

현재 전 세계적으로 심부 시추공 처분 방식은 개념화 단계에 있기 때문에 이에 대한 안전성 평가 또한 많은 보수적인 가정들을 고려한 예비 연구에 그치고 있다. 앞으로 추가적인 세부 연구들이 진행됨에 따라, 세부 시스템이 정립이 되고 핵종이동과 관련된 주요 기작들이 규명됨으로써, 신뢰도가 더욱 향상된 안전성 평가 모델이 개발될 것으로 기대된다.

4. 감사의 글

이 논문은 2014년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(원자력연구개발사업, No. 2012M2A8A5025589).

5. 참고문헌

- [1] UK Nirex, 2004. A review of the deep borehole disposal concept for radioactive waste. Nirex Report no. N/108.
- [2] Brady, P.V. et al., 2009. Deep Borehole Disposal of High-Level Radioactive Waste, SAND2009-4401, Sandia National Laboratories, Albuquerque, NM.
- [3] Hadgu, T. et al., 2012. Sensitivity Analysis of Seals Permeability and Performance Assessment of Deep Borehole Disposal of Radioactive Waste PSAM11 ESREL 2012 Proceedings, 2138.

최희주*, 이민수, 유광고광계빛나라, 이종열

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*hjchoi@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료를 포함한 고준위폐기물의 영구처분 방식으로 심부 지하를 이용하는 방식이 연구되고 있다. 특히 지하 500미터 정도의 깊이에 처분시스템(Mined Repository)을 건설하여 처분하는 방식을 스웨덴과 핀란드 등 여러 국가에서 추진하고 있다. 국내에서도 한국원자력연구원에서는 이와 같은 방식의 처분시스템 개발에 대한 연구를 수행해 오고 있다. 이와 더불어 지하 5 km 깊이의 시추공을 굴착하고 이곳에 고준위폐기물을 처분하는 심부시추공 처분(Deep Borehole Disposal, DBD)도 각국은 연구하고 있다. 특히 DBD 개념의 경우 처분공 간격에 따라 처분 소요면적을 크게 줄일 수 있다는 강점도 있다.

DBD 개념에 대한 연구는 스웨덴의 SKB에 의해 처분방식 비교 연구[1]를 통해 수행되고 있으며, 미국의 MIT 대학[2]과 영국의 Sheffield 대학 등에서 학술적 차원에서 연구가 수행되었다. 미국에서는 Yucca Mountain에 추진하던 고준위폐기물 처분장 계획이 중지되면서, 샌디아 국립연구소(SNL)를 중심으로 DBD에 대한 연구를 수행하고 있다.

본 논문에서는 국내에서 발생하는 사용후핵연료의 처분을 위해 심부시추공 처분시스템을 개발하기 위하여 공학적방법인 처분용기와 완충재를 제안하였다. 탄화규소의 열전도도를 측정하고, 이를 바탕으로 처분용기를 설계하였으며, 4가지 서로 다른 기능을 제안한 밀봉시스템을 제안하였다. 처분용기 적치 장치 방식 중 최적안을 선정하고, 이에 대한 설계를 수행하였다.

2. 본론

2.1 심부시추공 처분시스템 처분용기

DBD 개념의 처분용기의 가장 큰 특징은 처분 후 처분용기 수명(부식수명)을 인정하지 않는다는 것이며, 따라서 심지층 처분시스템에서와 같이 값비싼 구리용기를 이용할 필요가 없다. 미국의 MIT와 샌디아 연구소의 DBD 개념 연구에서는 처분용기 재료로서 강철(T95 혹은 API 5CT)을 후보 재료로

서 고려하였다. 스웨덴의 DBD 개념연구 단계에서 구리와 티타늄용기가 고려된 적이 있다.

본 논문에서는 탄화규소(SiC)와 스테인레스 스틸 이중구조로 된 처분용기를 DBD 처분시스템을 위해 제안하였다. 처분용기 재료로서 탄화규소는 독일의 Kerber 등[3]에 의해 처음 제안되었으며, 탄화규소는 세라믹 물질이나 열전도도가 우수하여 처분용기로서 장점이 많다.

처분용기 설계에 있어 가장 중요한 파라미터의 하나인 SiC의 열전도도를 측정하였다. SiC 시편(Fig. 1)을 제조하여 열확산도(thermal diffusivity)를 측정하고 비열과 밀도를 이용하여 열전도도를 계산하였다. 열전도도 측정결과 강철의 값보다 훨씬 우수하였다.



Fig. 1. SiC samples for the measurement of thermal diffusivity.

처분용기는 국내에서 발생하는 모든 PWR 사용후핵연료를 넣을 수 있는 크기로 설계하였다. 내부용기는 외압을 견딜 수 있으며, 외부용기는 처분용기 10개의 중량에 의한 하중을 견딜 수 있도록 하였다. 외압은 지하 5 km 심도에서 예상되는 (염분 밀도를 고려한) 57 MPa를 고려하였다. 외압에 따른 내부용기 계산은 KS B 6734를 따라 결정하였다:

$$P = \frac{2\sigma t}{D} \left(1 - \frac{t}{D} \right) \quad (1)$$

여기서 σ 는 항복응력, t 는 용기 두께, D 는 용기 외경이다.

2.2 심부시추공 처분시스템 밀봉

DBD 개념의 또 하나의 중요한 공학적방벽은 폐기물 처분을 위해 굴착한 시추공을 메우는 밀봉 시스템이다. 심지층 처분시스템과는 달리 DBD 개념에서 밀봉시스템은 다양한 기능을 하는 중요한 방벽이다. 이 밀봉시스템은 처분된 폐기물이 지하수와 접촉을 억제하기 위한 기능이 있어야 할 뿐만 아니라 폐기물로부터 누출된 핵종의 이동을 지연시켜야 하는 기능도 있어야 한다. 또한 미래 인간의 우연한 침입(inadvertent intrusion)도 막아야 한다. 인간 침입의 방지를 위해서는 시추공 굴착 이전 상태로의 복원도 고려하여야 한다. Fig.2에는 서로 다른 기능을 갖는 밀봉시스템 개념을 나타내었다. 본 연구에서 제안한 밀봉시스템의 특징은 약 3 km에 달하는 밀봉 구역을 4개의 구역으로 나누고 각 구역별 특성을 구분하고 밀봉 물질을 특성화하는 것이다.

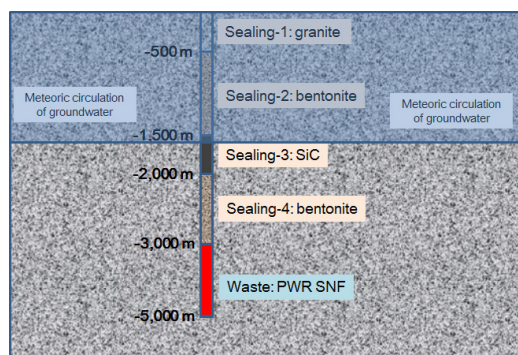


Fig. 2. Schematic of sealing concept.

2.3 심부시추공 처분시스템 운영

심지층 처분과 달리 DBD 개념의 어려움의 하나는 고준위폐기물을 적치하는 것이다. 일반적으로 처분용기를 낱개로 처분공에 넣어 적치하는 것은 쉽지 않다. SNL 개념에 의하면 처분용기 40개를 1개 단위로 묶어 처분하는 개념을 개발하고 있다. 본 연구에서는 보다 현실적으로 적치할 수 있도록 10개의 처분용기를 묶는 것을 제안하였으며, 이를 위해 스테인레스 스틸과 탄화규소로 구성된 이중용기를 제안하였다.

처분용기를 5 km 심부 지하까지 운반하는 방법으로는 드릴 파이프를 이용하는 J-slot 방식, 고장력 케이블을 이용하는 방식[4], 자유낙하 방식 등이 고려되고 있다. 본 논문에서는 제시된 3가지 방식 중에서 케이블을 이용한 방식을 선정하였으며, 이를 바탕으로 적치기구를 설계하였다. 처분용기 10개 묶음에 의한 하중을 고려하여

ISO4308-1에 따라 지름 52 mm를 결정하였다. 케이블 하부에는 Fig. 3에 나타난 바와 같은 보조장비가 설치되어야 한다.

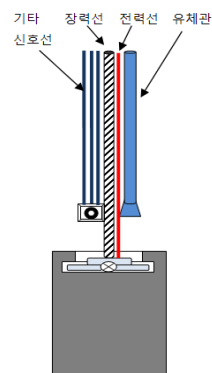


Fig. 3. Auxiliary equipments for the emplacement of disposal canisters.

3. 결론

고준위폐기물 영구 처분할 수 있는 방안의 하나로써 심부시추공 처분에 대해 해외 현황을 검토하고, 새로운 공학적방벽 시스템을 제안하였다. 심지층 처분환경에서의 탄화규소 특성에 대한 문헌 자료와 직접 측정된 열전도도 자료를 바탕으로 탄화규소(SiC)와 스테인레스 스틸로 구성된 이중구조 처분용기를 PWR 사용후핵연료 직접 처분을 위한 용기로 설계하였다. 4가지 서로 다른 기능을 갖는 처분 시추공 밀봉시스템을 제안하였으며, 케이블을 이용한 처분용기 적치 시스템을 설계하였다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] Lars Birgersson, Kristina Skagius, Marie Wiborgh, Hans Widen, SKB, SKB-TR-92- 43, 1992.
- [2] Christopher Ian Hoag, Department of Nuclear Engineering, MIT, 2006.
- [3] Albert Kerber, Jena, and Juergen Knorr, atw 58, pp.8-13, 2013.
- [4] F.G.F. Gibb, N.A. McTaggart, K.P. Travis, D. Burley, K.W. Hesketh, Journal of Nuclear Materials, 374, pp. 370 - 377, 2008.

시간분해 레이저 유도 형광분광학을 이용한 KURT 지하수의 우라늄 농도 및 화학종 결정

백민훈*, 정의창, 정종태

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*mhbaik@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성폐기물의 지중처분의 관점에서 지하수에 존재하는 우라늄의 농도 결정과 화학종 확인은 방사성핵종의 장기거동을 자연유사적 방법으로 예측하는데 매우 유용한 정보를 제공해 준다. 지하수에 존재하는 우라늄의 농도를 결정하는 방법은 방사능 분석방법, 레이저형광법, ICP-MS 등 매우 다양하지만[1], 우라늄 농도와 화학종을 함께 분석할 수 있는 방법은 매우 제한적이다. 본 연구에서는 시간분해 레이저 유도 형광 분광학(TRLFS: Time-Resolved Laser-Induced Fluorescence Spectroscopy) 분석방법을 이용하여 한국원자력연구원 내 지하처분연구시설(KURT)에서 채취한 화강암반 지하수에 존재하는 우라늄의 농도를 결정하고, 우라늄의 화학종을 확인하는 연구를 수행하였다.

2. 본론

2.1 지하수 채취

지하수콜로이드 특성 분석에 사용된 지하수는 한국원자력연구원 내의 KURT(KAERI Underground Research Tunnel)의 다중패커가 설치된 약 500 m 심도의 DB-1 시추공으로부터 심도별로 6가지 지하수를 각각 채취하였다. 채취된 지하수에 대한 정보를 Table 1에 정리하여 나타내었다.

Table 1. Information of the Sampled Groundwaters from KURT (DB-1 borehole)

Sample	Depth(m)	pH	Eh mV	EC μ S/cm	DOC mg/L	TDS mg/L	Na ⁺ mg/L	Ca ²⁺ mg/L	HCO ₃ ⁻ mg/L
I2	41.7~59.7	8.4	495	157	1.040	167	11.5	19.7	100.7
I3	91.7~114.7	8.8	511	130	0.574	126	14.1	14.5	64.1
I4	115.7~198.7	8.4	111	143	1.482	151	16.9	14.5	85.4
I5	199.7~228.7	8.3	108	174	2.223	124	17.1	6.2	64.1
I6	229.7~245.7	8.3	69	172	2.397	176	20.9	15.0	103.7
I7	246.7~299.7	8.5	11	170	1.828	163	26.3	11.7	91.5

2.2 시간분해 레이저유도 형광분석기

광원으로는 266 nm 파장의 Nd:YAG 레이저를

사용하였으며, 레이저 빔에 의해 발생된 형광을 광섬유 다발을 통해 Czerny-Turner 구조의 단색화분광기에 입사시켰다. 단색화 장치의 출구 슬릿에는 광증배관을 장착하였다. 극미량의 우라늄 형광세기를 측정하기 위해 반응시간이 빠른 전치증폭기를 이용하였고, 형광 스펙트럼을 기록하기 위해 게이트 적분기를 이용하였다. 전체 측정을 위한 시스템 제어 프로그램으로는 LabView 프로그램을 이용하였다.

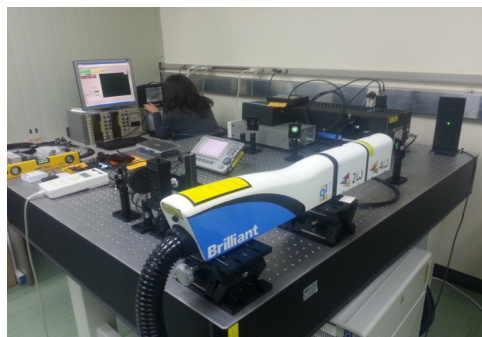


Fig. 1. Time-Resolved Laser-Induced Fluorescence Spectroscopy System Used for U Determination in KURT Groundwater.

2.3 지하수중 우라늄 농도 결정

KURT 지하수에 존재하는 우라늄의 농도를 결정하기 위하여 표준 우라늄 시료($\text{UO}_2(\text{ClO}_4)_2$)를 이용하여 510 nm에서 TRLFS로 측정한 형광세기를 이용하여 검정곡선을 구하였다(Fig. 2). 극미량($\sim 0.1 \mu\text{g/L}$)의 우라늄을 측정하기 위하여 형광의 세기와 수명을 증가시키는 형광증진제로 0.01 M $\text{Na}_4\text{P}_2\text{O}_7 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ 를 이용하였다. TRLFS 방법으로 결정된 KURT 지하수 시료들의 우라늄 농도를 ICP-MS로 측정된 결과와 비교하여 Table 2에 나타내었으며, 대체로 잘 일치함을 알 수 있다.

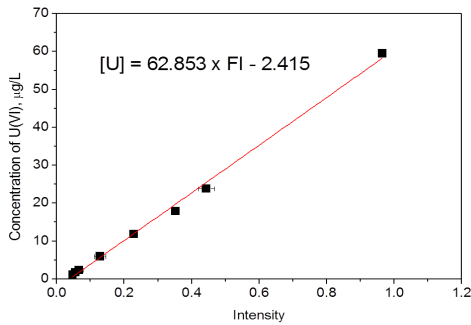


Fig. 2. A Calibration Curve for the Determination of U Concentrations Using TRLFS.

Table 2. U Concentrations and Dominant Species in the KURT Groundwater Samples.

Sample	Concentration (µg/L)		Dominant U species (%)*
	TRLFS	ICP-MS	
I2	33.3	34.0	$\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3(\text{aq})$ (82.6%)
I3	853.5	788.4	$\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3(\text{aq})$ (80.3%)
I4	146.3	151.3	$\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3(\text{aq})$ (79.9%)
I5	0.3	0.2	$\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3(\text{aq})$ (56.6%)
I6	5.0	4.9	$\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3(\text{aq})$ (79.4%)
I7	1.5	1.6	$\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3(\text{aq})$ (76.8%)

* Calculated by Geochemist's Workbench(Ver. 9.07)

2.4 지하수중 우라늄 화학종 확인

KURT 지하수에 존재하는 우라늄의 화학종을 지화학코드인 Geochemist's Workbench(GWB Ver. 9.07)과 열역학자료를 이용하여 계산하였다. $\text{Ca-UO}_2\text{-CO}_3$ 복합체에 대한 열역학자료는 문헌값을 이용하였다($\text{CaUO}_2(\text{CO}_3)_3^{2-}$ 에 대해 $\log\beta^0 = 25.40$, $\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3(\text{aq})$ 에 대해 $\log\beta^0 = 30.55$)[2]. KURT 지하수 시료들 각각의 지화학 조건 및 조성에서 GWB를 이용하여 계산한 우라늄 화학종 분포 계산결과를 Fig. 3에 나타내었다.

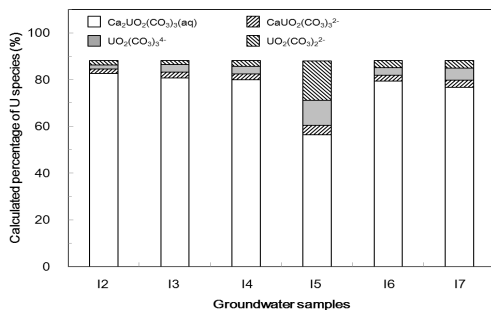


Fig. 3. Major U Species and Their Percentages in KURT Groundwater Samples Calculated by Geochemist's Workbench(Ver. 9.07).

아울러 TRLFS 기술을 이용하여 KURT 지하수 I3 시료에 존재하는 우라늄 화학종을 측정 한 결과를 Fig. 4에 나타내었다. 측정된 우라늄 화학종은 $\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3(\text{aq})$ 로 GWB 계산결과와 잘 일치함을 보여주고 있다.

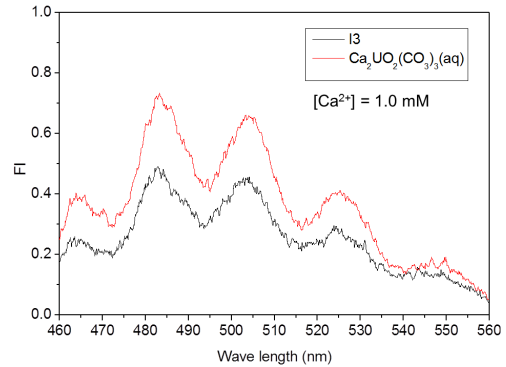


Fig. 4. U Species of KURT Groundwater Sample(I3) Identified by TRLFS.

3. 결론

본 연구에서는 KURT 지하수에 존재하는 우라늄의 농도를 TRLFS를 이용하여 결정하였으며, KURT 지하수에 존재하는 우라늄의 주요 화학종이 주로 $\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3(\text{aq})$ 임을 TRLFS 측정 및 계산결과로부터 확인하였다.

4. 감사의 글

본 연구는 2014년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행되었음 (원자력연구개발사업, No. 2012M2A8A5025589).

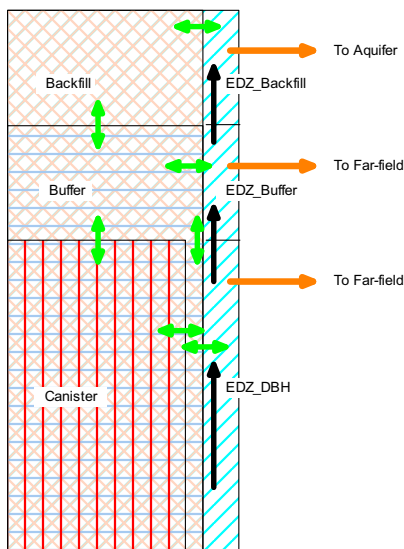
5. 참고문헌

- [1] Z. Tosheva et al., Comparison of different methods for uranium determination in water. J. Environ. Radioact, Vol. 72, pp. 47-55, 2004.
- [2] J.-Y. Lee, J.-I. Yun, Formation of ternary $\text{CaUO}_2(\text{CO}_3)_3^{2-}$ and $\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3(\text{aq})$ complexes under neutral to weakly alkaline conditions. Dalton Trans, Vol. 42, pp. 9862-9869, 2013.

[illegible]

모델 및 프로그램 개발을 위한 방안으로 제안되었다. 이러한 접근 방법은 향후 심부 시추공 처분 안전성평가 방법론으로 제시될 수 있을 것으로 기대된다.

- [1] Deep Borehole Disposal Research: Demonstration Site Selection Guidelines, Borehole SDeals Design, and RD&D Needs, FCRD-USED-2013-000409, SNAD2013-9490P, Sandia National Labs., USA, (2013).
- [2] Youn-Myoung Lee et al., "A GoldSim model for the safety assessment of an HLW repository," *Progress in Nuclear Energy*, 51, 746-759, (2009).
- [3] Youn-Myoung Lee et al., "Evaluation of Nuclide Release Scenarios for a Hypothetical LILW Repository," *Progress in Nuclear Energy*, 53, 760-774, (2011).
- [4] Youn-Myoung Lee, et al., "An Evaluation of an Earthquake Scenario for a Pyroprocessed Waste Repository," *Progress in Nuclear Energy*, 66, 133-145, (2013).
- [5] GoldSim Contaminant Transport Module, User's Guide, Version 4, GoldSim Technology Group, 2006.
- [6] KBS, Final Storage of Spent Nuclear Fuel, KBS-3, Summary SKBF/KBS, Sweden (1983).



3. 결론 및 논의

168 | 2014 한국방사성폐기물학회 춘계학술대회 논문요약집

심부 환경의 단일 단열내 지하수 유동 모의

고낙열*, 지성훈

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*nyko@kaeri.re.kr

1. 서론

심지층 처분시설의 처분 심도로 고려되는 지하 심부에서는 암반 내의 단열의 빈도가 매우 낮기 때문에, 해당 심도에 존재하는 단열은 주변의 지하수 유동 환경에 매우 큰 영향을 끼치게 된다. 이는 처분 시설의 안전성에도 영향을 주기 때문에, 처분 심도의 단일 단열에 대한 수리적 특성 및 지하수 유동을 파악하는 것이 처분 시설의 안전성 평가에도 필요한 사항이 된다.

이 연구에서는 지하 심부에서 확인된 단일 단열과 그것을 통해 이루어진 수리시험 결과를 모의하여 단일 단열에 의한 수리적 영향을 평가하는 방안에 대해 고찰하였다.

2. 처분 심도의 단일 단열이 포함된 지하수 유동 모델

2.1 지하수 유동 모의 현장 환경

사용 후 핵연료의 처분장으로 선정된 핀란드의 Olkiluoto 섬에서 운영되고 있는 지하 환경 연구 시설인 ONKALO의 심도 -250 m 주변에서 확인된 단일 단열을 선정하여 수리간접시험을 실시하였다. 해당 단열은 향후 건설될 심지층 처분 시설의 환기 및 이동용으로 이용될 세 개의 Shaft (KU1, KU2, KU3) 위치에 대한 조사를 위해 설치된 관정들을 통해 확인되었다. 수리간접시험은 KU3 Shaft 위치에 있으며, 심도 -180 m 부근에 설치된 세 관정(PP125, PP127, PP129)을 이용해 실시되었다.

2.2 수리 시험을 위한 투수량계수 분포 작성

이용된 관정에서 이루어진 수리시험 해석을 위해, 투수량계수 분포를 작성하였다. 결정론적 방식의 분석을 위해 kriging 방법을 이용하였고, 불확실성 분석을 위한 확률론적 방식의 분석을 위해 동일한 통계적 특성을 갖는 투수량계수 분포를 다수 작성하여 이용하였다.

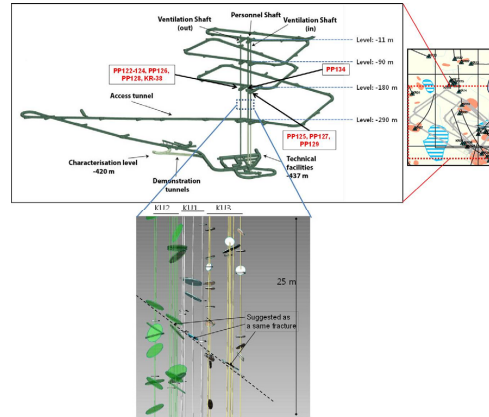


Fig. 1. Outlines of the condition of the single fracture (modified from pictures in Posiva Oy (2009) and “http://www.posiva.fi/en/final_disposal/onkalo”).

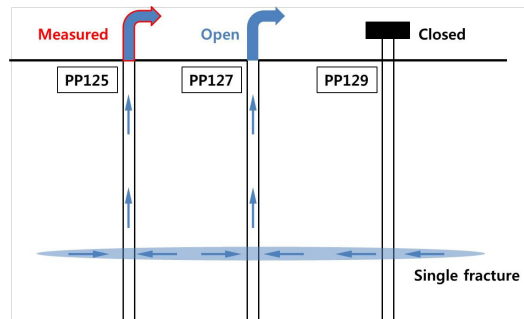


Fig. 2. Schematic illustration of the interborehole hydraulic test.

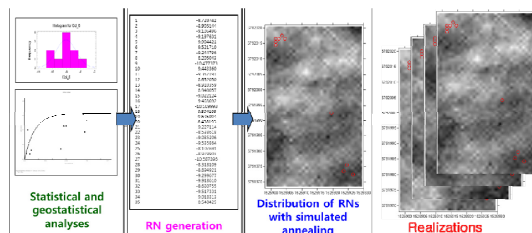


Fig. 3. Method for generating random realizations used in probabilistic analysis.

3. 수리 시험 모의 결과

현장에서 측정된 각각의 관정에서의 지하수 유량 자료를 모의 결과와 비교하였다. 모의 결과와의 보정을 위해 모의 영역의 경계 조건을 조정하였다. kriging 자료를 이용한 모의에서는 대체적으로 관측값보다 모의값이 약간 큰 경향을 보였으나, 확률론적 분석에서는 그런 경향이 약간 줄어들었다. 측정값이 매우 작은 경우에는 상대적으로 차이가 크게 나타났으나, 값이 커질수록 관측값과 모의값이 거의 유사하게 나타나고 있음을 보여주었다.

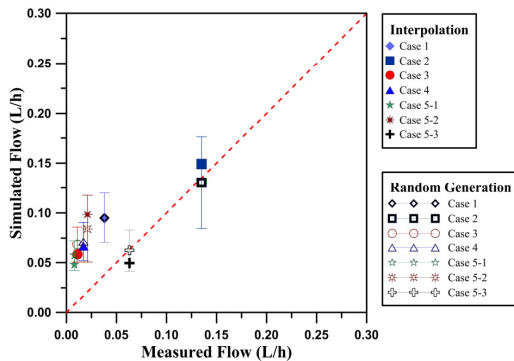


Fig. 4. Comparison of the measured and simulated flows in the used boreholes.

4. 결론

지하 심부의 단열이 드물게 존재하는 환경에서 발견된 단일 단열의 지하수 유동 특성을 분석하기 위해 이루어진 수리시험을 분석하기 위해 지하수 유동 모의가 이루어졌다. 여러 가지 경우의 조건에서 이루어진 수리시험의 수치모의 결과를 보면, 결정론적 및 확률론적 접근법 모두 관측값과 유사한 결과를 보여주었다. 특히, 관측값이 커질수록 모의 결과도 좀 더 유사하게 나오는 경향을 보였다. 이는 수치모의에 이용된 모의 영역이 확인된 단일 단열의 투수량계수 분포를 잘 반영하지 못한 것일 수도 있지만, 관측시의 측정 오차로 인한 것으로 생각해 볼 수도 있다. 이런 현상을 해결하기 위해서는 각 관정 주변의 특성을 고려하여 지하수 유동에 관한 경계 조건을 조정하고, 단열과 암반 경계에서 발생하는 수리지질학적 특성의 불연속성을 보다 잘 표현할 수 있는 모델의 작성이 필요할 것으로 생각되었다.

5. 감사의 글

이 논문은 2014년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(원자력연구개발사업, No. 2012M2A8A5025589).

6. 참고문헌

- [1] Posiva, 2009. Olkiluoto site description 2008. POSIVA 2009-01. Posiva Oy, Finland.
- [2] http://www.posiva.fi/en/final_disposal/onkalo

척도인자 개발을 위한 방사성폐기물 시료 내 ^{90}Sr 분리거동 평가

이창현^{1*}, 김민원², 조형국¹, 이민영¹, 양희룡¹, 안홍주¹

¹한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

²(주)엑트, 대전광역시 유성구 테크노1로 75

*nchlee1@kaeri.re.kr

1. 서론

국내의 원자력발전소뿐만 아니라 핵연료주기 관련 연구시설에서 발생하는 다양한 종류의 방사성폐기물을 현재 경주에서 건설 중에 있는 중·저준위방사성폐기물 영구처분장으로 인도하기 위해서는 폐기물 드럼에 충전되어 있는 폐기물의 핵종 재고량을 평가해야 한다. 이를 위하여 지난 수년간 비파괴분석이 가능한 ^{60}Co , $^{134,137}\text{Cs}$ 및 ^{144}Ce 의 재고량으로부터 비파괴분석이 불가능한 ^{99}Tc , ^{90}Sr , ^{55}Fe , ^{94}Nb 및 $^{59,63}\text{Ni}$ 와 같은 핵종들의 재고량을 신속하고 평가할 수 있는 척도인자(scaling factor)를 개발해 왔다. 규제핵종 중 방사성-Sr은 화학적 특성이 인체의 뼈를 이루는 Ca과 매우 흡사하기 때문에 규제가 필요한 위험한 핵분열생성물질로 취급되고 있다. ^{90}Sr ($E_{\beta, \text{max}}=546 \text{ keV}$)의 재고량을 평가하기 위해서는 시료를 구성하고 있는 매질의 성분원소뿐만 아니라 공존하는 핵종들로부터 순수하게 개별 분리한 후 액체섬광계수법으로 또는 고체 계측시편 (^{90}Sr -source)으로 만들어 기체비례계수법으로 계측해야 한다. 척도인자의 신뢰도를 높이기 위해서는 가능한 많은 시료로부터 이 핵종들에 대한 분석결과를 얻어야 하기 때문에 매우 신속하고 신뢰할 수 있는 분리를 위하여 지난 수년간 ^{99}Tc , ^{90}Sr , ^{55}Fe , ^{94}Nb 및 $^{59,63}\text{Ni}$ 의 분리기술을 개발하여 왔다. 본 연구는 천, 종이, 수지, 보온재, 슬러지 및 비닐 등과 같은 다양한 매질의 방사성 폐기물 시료로부터 ^{90}Tc 를 음이온교환수지법으로 분리한 후 시료의 매질 성분원소들과 공존하는 핵종들로부터 ^{90}Sr 을 개별 분리할 수 있는 기술을 개발하고 계측에 필요한 시편(^{90}Sr -source)을 준비하는 분리절차의 신뢰도를 평가하였다.

2. 실험

2.1 기기, 장치 및 시약

다양한 매질의 중·저준위 방사성폐기물의 매질 성분원소들을 정량하고 이를 모사하여 만든 모의 방사성폐기물 시료 용해액을 제조하는 과정과 이

모의용액으로부터 화학운반자로 첨가한 Sr의 회수율을 측정하기 위하여 유도 결합 플라즈마 원자 방출분광기(ICP-AES, ACTIVA-M, Jobin Yvon, France)를 사용하였다. 중·저준위 방사성폐기물의 화학조성을 평가한 후 시료 용해액과 화학조성이 유사한 모의 방사성폐기물 시료 용해액을 제조하기 위하여 ICP-AES 검정용 표준용액 (Spex, U.S.A.)을 사용하였다. Sr-Resin 분리관은 700 mg의 Sr-Resin (100-150 μm , Eichrom, U.S.A.)을 폴리프로필렌 재질의 분리관(용량: 4 mL, 높이: 65 mm, Alltech, U.S.A.)에 충전시켜 준비하였다.

3. 결과 및 토의

3.1 $\text{NH}_4\text{-Oxalate}$ 매질에서 Sr(Ca-oxalate) 분리

음이온교환수지법에 의한 ^{90}Tc 분리과정에서 ^{90}Sr 분리를 위하여 회수한 0.5 M HNO_3 매질의 용출액에는 ^{90}Sr 과 함께 ^{55}Fe , ^{94}Nb , $^{59,63}\text{Ni}$ 및 방사성폐기물 시료의 매질 성분원소 대부분이 함유되어 있다. 화학운반자로 각각 3 mg의 Fe, Nb, Ni과 50 mg의 Ca을 첨가하고 8 mmole의 옥살산이 함유된 용액의 pH를 조절하면서 Sr을 Sr(Ca-oxalate)로 공침시켜 분리하고^{1~3} 상등액에 남아 있는 성분원소를 정량하였다. Fig. 1에 나타낸바와 같이 pH 3이상부터 Sr(Ca-oxalate) 공침이 완전하였음을 알 수 있으며 Fe과 Ni의 대부분(80-90%)은 조사한 pH 범위에서 상등액에 남아있지만 Nb의 경우에는 pH 4 이상에서 Ni의 50% 정도가 침전에 함유되어 있음을 알 수 있다.

화학운반자로 3 mg의 Fe, Nb, Ni 및 Sr과 50 mg의 Ca 그리고 각각 1 mg의 Al, Ti, Zn, Mn, Zr, Pb, Co, Cr, Mg, Ba, Sn, Sb, Mo, Zr 및 U을 첨가하고 pH 5에서 1~8 mole 범위에서 옥살산의 양을 조절하면서 Sr을 Sr(Ca-oxalate)로 공침시켜 분리하고 상등액에 남아 있는 성분원소의 양을 정량하였다. Fig. 2에 나타낸 바와 같이 화학운반자로 첨가한 Fe, Nb 및 Ni뿐만 아니라 성분원소들의 대부분이 상등액에 남아있음을 알 수 있다. 그러나 Nb의 경우 옥살산이 4 mmole 이상은 되어야 Sr으로부터 분리할 수 있음을 알 수

있다. 또한 그림에는 나타나지 않았지만 연구 대상의 성분원소 대부분을 상등액에서 확인할 수 있었다.

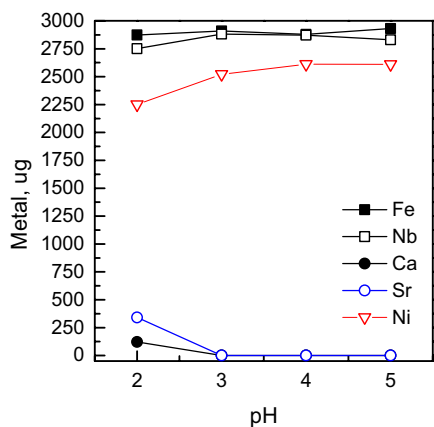


Fig. 1. Effect of pH on the separation of ^{90}Sr from ^{55}Fe , ^{94}Nb , $^{59,63}\text{Ni}$ and matrix elements in oxalate.

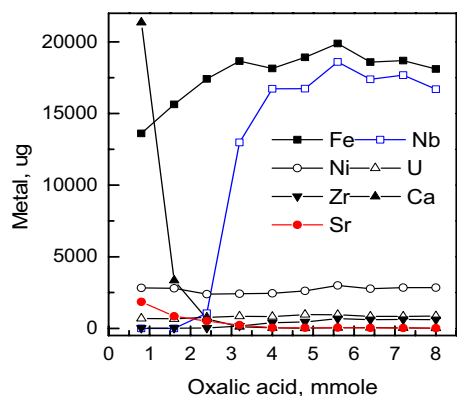


Fig. 2. Effect of oxalic acid on the separation of ^{90}Sr from ^{55}Fe , ^{94}Nb , $^{59,63}\text{Ni}$ and matrix elements at pH 5.

공침시켜 회수한 $\text{Sr}(\text{Ca-oxalate})$ 침전에는 연구대상의 Fe, Nb, Ni 및 매질의 성분원소들이 10~50% 정도 함유되어 있다. 일반적인 이온교환수지법과 침전법으로는 화학특성이 유사한 Ca, Mg 및 Ba으로부터 Sr의 분리하는 매우 어렵다. Sr의 용매추출제로사용하는 DC18C6(bis-t-butyl-cis-dicyclohexano-18-crown-6)를 화학적으로 매우 안정한 유기 담체에 침윤시켜 놓은 Sr-Resin 추출 크로마토그래피 수지는 Sr의 선택적 분리에 매우 큰 적용성을 보여주고 있다.⁴⁻⁵ 본 연구에서는 위에서 사용한 모의용액에 8 mmole의 옥살산을 첨가하고 pH를 5로 조절한 침전조건에서 Sr을 $\text{Sr}(\text{Ca-oxalate})$ 로 공침시켜 분리하고 10 mL씩 30 mL의 0.1 M $\text{NH}_4\text{-oxalate}$ 용액(pH 5)으로 씻은 후 침전을 5 mL의 8 M HNO_3 으로 용해시킨 후 Sr-Resin으

로 순수하게 회수하는 분리거동을 조사하였다.

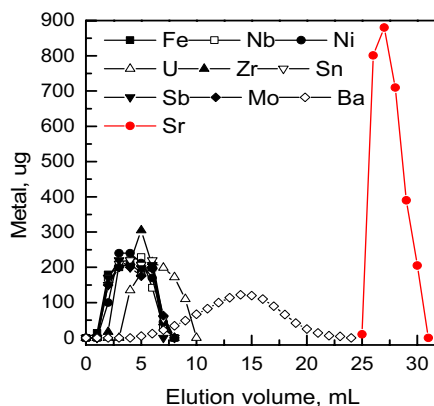


Fig. 3. Separation behaviour of Sr from co-existing elements on the Sr-Resin. Elution; Sample solution: 5 mL of 8 M HNO_3 , Wash: 20 mL of 8 M HNO_3 . Recovery; 10 mL of 0.05 M HNO_3 . Column : ID: 8 mm, Sr-resin ; 700 mg.

Fig. 3에 나타난 용리곡선을 보면 그림에는 나타나지 않았지만 연구대상의 모든 성분원소들을 정량적으로 회수할 수 있어서 공침과정에서 회수한 상등액과 함께 다음 단계에서 Fe Nb 및 Ni을 분리할 수 있음을 알 수 있다.

4. 결 론

20 mg의 Fe과 Nb, 3 mg의 Sr과 Ni 그리고 각각 1 mg의 Al, Ti, Zn, Mn, Zr, Pb, Co, Cr, Mg, Ba, Sn, Sb, Mo, Zr 및 U이 함유되어 있는 5개의 모의용액을 대상으로 확립된 Sr 분리절차에 따라 Sr을 분리하고 회수율을 측정한 결과 평균회수율은 94.3%이었으며 이때의 표준편차는 1.9%이었다.

5. 참고문헌

- [1] Michel H, Schertz M, Barci-Funel G, Ardisson G (2003) J Radioanal Nucl Chem 258:209.
- [2] Tavcar P, Benedik L (2005) Radiochim Acta 93:623.
- [3] Moreno J, vajda N, Danesi PR, Larosa JJ, Zeiller E, Sinojmeri M (1997) J Radioanal Nucl Chem 226:279.
- [4] Horwitz EP, Dietz ML, Fisher DE (1991) Anal Chem 63:522.
- [5] Grahek Z, Zecevic N, Lulic S (1999) Anal. Chim Acta 399:237.

방사성폐기물처분장 주변 환경변화에 있어서 열역학 모델의 활용

민제호*, 김정우, 정종태

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*jhmin1031@gmail.com

1. 서 론

방사성폐기물처분장 주변 환경은 처분장안전성에 상당히 중요한 인자로 작용한다. 이에, 처분장의 폐쇄후안전성을 위해, 주변 환경에서 발생할 수 있는 다양한 지화학반응에 대한 연구가 수행되어지고 있다[1].

처분용기의 부식 및 증진제의 주요 구성광물인 몬모릴로나이트에 U(VI) 흡착은 처분장 주변 환경에서 발생하는 주요 지화학반응이다. 따라서, 본 연구에서 철 부식 생성물 및 몬모릴로나이트에 U(VI) 흡착량을 열역학모델을 이용하여 계산하고, 계산과정의 일부를 실험적으로 증명함으로써 방사성폐기물처분장 환경변화에측에 열역학모델의 활용을 언급하고자 한다.

2. 실험

2.1 Ferrous Hydroxide($\text{Fe}(\text{OH})_2$) 산화실험

0.23 M $\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 100 mL에 0.4 M NaOH 100 mL를 글로브박스($\text{O}_2 < 10$ ppm)에서 천천히 혼합하여 24 시간동안 반응시켜 $\text{Fe}(\text{OH})_2$ 합성하였다. 철 부식과정을 관찰하기 위해 합성한 $\text{Fe}(\text{OH})_2$ 에 H_2O_2 으로 빠르게 산화시키면서 침전된 고체를 채취하여 XRD 분석을 수행하였다.

2.2 몬트몰리로나이트에 U(VI) 흡착실험

경주벤토나이트에서 불순물을 제거한 몬모릴로나이트와 1.4 μM U(VI)간 흡착반응은 0.67 g/L 고액비로 0.1 M NaClO_4 에서 20 시간 동안 $\text{CO}_2(\text{g})$ 가 없는 글로브박스에서 수행하였다. U(VI) 흡착 반응 pH는 4.5 ~ 9.5로 적절히 조절하였다.

3. 열역학 모델

$\text{Fe}(\text{OH})_2$ 산화실험과정 및 몬모릴로나이트에 U(VI) 흡착실험과정과 동일한 지화학조건에서 PHREEQC 3 코드와 열역학 상수값(본 초록에서 밝은 기재안함)을 이용하여 철산화 및 U(VI) 흡착

반응을 묘사하였다.

4. 결과 및 토론

4.1 철의 산화

Fig. 1은 합성한 $\text{Fe}(\text{OH})_2$ 에 H_2O_2 를 0 ~ 0.6 M 농도로 주입하여 빠르게 산화시켜 생성된 고체를 XRD 분석한 결과이다. 초기 pH 7.70 에서는 $\text{Fe}(\text{OH})_2$ 피크가 관찰되었고, pH 7.90 으로 약간 상승한 부근에서는 $\text{Fe}(\text{OH})_2$ 피크가 사라지면서 비결정구조의 철산화물이 형성되었다. 이 비결정철산화물에 H_2O_2 로 더 산화시키니 pH 7.78, 7.54 및 pH 5.68 에서 Fe_3O_4 피크가 나타났다. Fe_3O_4 에 H_2O_2 첨가에 따라 Fe_3O_4 피크는 사라지고 비결정의 붉은색 철산화물이 생성되었다.

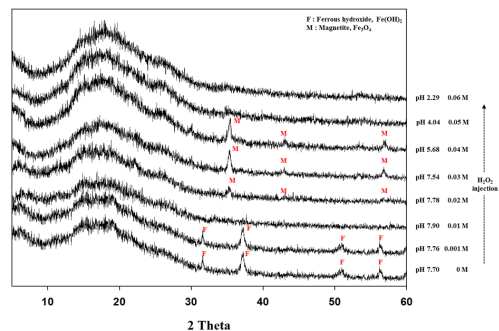


Fig. 1. XRD pattern of the product obtained by fast-oxidising $\text{Fe}(\text{OH})_2$ with H_2O_2 ; here, F is Ferrous hydroxide ($\text{Fe}(\text{OH})_2$) and M is Magnetite (Fe_3O_4).

Fig. 1에 나타난 결과는 단지 철산화물 생성과정에서 생성물의 일부만을 XRD를 이용하여 직접 관찰한 결과이다. 이 결과만으로는 철의 산화과정을 자세히 이해하는 것은 어렵다. 이에 위의 $\text{Fe}(\text{OH})_2$ 산화실험 과정 및 결과를 바탕으로 열역학모델을 이용하여 철의산화과정을 계산한 결과는 Fig. 2에 나타내었다. 열역학모델에서 생성된 철산화물(고체) 위주로 설명하면, H_2O_2 를 첨가하지 않은 조건에서는 $\text{Fe}(\text{OH})_2$ 가, pH가 약간 상승하는 부근에서는 $\text{GR}(\text{Cl})$ 가, pH가 급격히 떨어지는

부근에서는 Fe_3O_4 가 주요 철산화물임을 확인 할 수 있다. Fig. 1의 초기 비결정형 철산화물은 $\text{GR}(\text{Cl})(\text{am})$ 이고, 마지막 생성물인 붉은색 비결정 철산화물은 자철석(Geothite)임을 추정할 수 있다. 또한, $\text{Fe}(\text{II}, \text{III})$ 및 Cl^- 등의 농도변화 역시 예측할 수 있다. 이 열역학모델 계산결과(Fig. 2)는 H_2O_2 양에 따른 $\text{Fe}(\text{OH})_2$ 산화 반응의 일부를 실험적으로 관찰한 Fig. 1 결과와 유사하다.

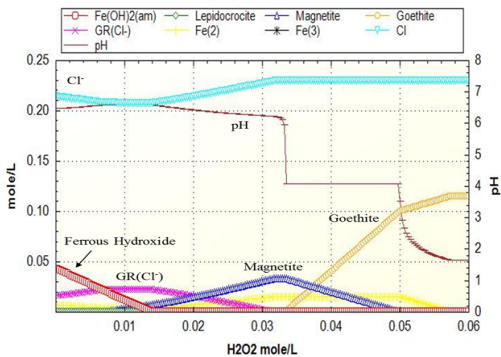


Fig. 2. Thermodynamic model results of product obtained by oxidising $\text{Fe}(\text{OH})_2$ with H_2O_2 .

4.2 U(VI) 평형상수(K_d)

몬모릴로나이트에 U(VI) 흡착실험결과 및 열역학 계산 결과를 Fig. 3에 나타내었다. 몬트몰리로나이트에 U(VI) 흡착실험으로 도출된 흡착평형상수(K_d)값은 흡착실험과 동일한 지화학조건에서 계산된 SC model (A)결과와 유사하다. 이는 실험과 열역학모델에 의해 도출된 K_d 값의 비교함으로써 열역학모델의 신뢰성을 보여주는 것이다.

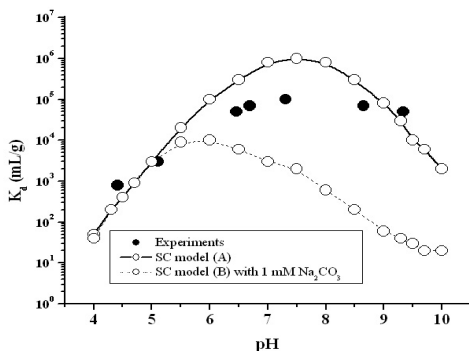


Fig. 3. The equilibrium constants obtained by experiments and thermodynamic model for the U(VI) adsorption onto the montmorillonite with or without 1 mM Na_2CO_3 .

열역학모델에 의해 도출된 K_d 값은 다양한 환경적영향변수 (pH, Eh, 양이온, 음이온, 고체양, 핵종 농도 등)에 따라 변하는 K_d 값으로 계산이 가능하다. 그 예로, 위와 동일한 지화학조건에서 1 mM 탄산이온 존재 할 때 몬모릴로나이트에 U(VI) K_d 값을 계산한 결과가 SC model (B)이다. 1 mM 탄산이온 존재시 U(VI) K_d 값이 pH 6 이상에서 감소하기 시작하는데 이는 탄산이온에 의해 U(VI) 화학종이 U(VI)-탄산이온으로 바뀌어 몬모릴로나이트와 U(VI) 흡착에 기작의 작용으로 인한 것이다. 탄산이온은 몬모릴로나이트와 U(VI) 흡착에 있어서 영향을 주는 이온으로 알려져 있다[2].

5. 결론

철 용기의 부식으로 인한 철산화물 생성 및 몬모릴로나이트에 U(VI) 흡착을 이해하는 것은 처분장안정성 확보에 있어서 중요하다.

철의 용해로 생성되는 $\text{Fe}(\text{OH})_2$ 에서 시작한 철의 산화과정 ($\text{Fe}(\text{OH})_2 \rightarrow \text{GR}(\text{Cl}) \rightarrow \text{Fe}_3\text{O}_4 \rightarrow \text{Fe}_2\text{O}_3$)을 열역학모델로 묘사하였다. 이 열역학모델의 계산결과는 방사성폐기물처분장 환경변화 예측에서 발생할 수 있는 다른 지화학반응과 함께 반영될 수 있는 유연성을 가지고 있다.

몬모릴로나이트에 U(VI) 흡착평형상수 역시 열역학모델을 이용하여 계산하였다. 기존의 고정된 K_d 값은 환경적영향변화에 대한 인자를 반영하지 못하였지만, 열역학모델 계산에 의하여 도출된 K_d 값은 환경적영향변화에 대하여 변하는 K_d 값을 도출할 수 있다. 이는 더 사실적인 핵종의 흡착현상을 묘사하여 처분안전성평가연구에 핵종에 의해서만 결정되는 K_d 값 대신 다양한 지화학조건에 따라 변하는 K_d 값으로 활용이 가능하다.

6. 감사의 글

이 논문은 2014년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임

7. 참고문헌

- [1] G.S. Barney etc.. "Geochemical Behavior of Disposed Radioactive Waste" Vol. 246, (1984).
- [2] B.S. Bachmaf, B.P. Friedrich and B.J. Merkel, Radido. Acta 96, 359-366 (2008).

벤토나이트 압축 방향에 따른 팽윤 특성평가

유광고밝게빛나라*, 이민수, 최희주

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*yoo@kaeri.re.kr

1. 서 론

고준위폐기물처분장은 수백 미터 깊이에 위치하여 수천에서 수 만년 이상 고준위폐기물의 유출을 방지해야한다. 심지층 공학적방벽 처분시스템은 방사성 폐기물을 넣은 처분용기와 처분공의 암반 벽 사이에 충전되는 완충재로 구성되는데[1] 이때 완충재의 주요한 기능은 주위 암반의 균열을 밀봉하고, 지하수나 지화학적 처분 환경에서 안정성을 유지하는 것이다. 이에 벤토나이트는 낮은 수리전도도, 높은 팽윤압과 화학적 완충 수용력으로 방사성폐기물 심지층 처분을 위한 공학적 완충재로 깊이 고려되어져 왔다[2]. 일반적으로 등방성으로 간주되는 고유 팽윤압은 벤토나이트의 팽윤 거동 평가와 공학적방벽 또는 밀봉 시스템 설계 시 고려되고 있다[3]. 다른 저자의 연구를 보면 팽윤압은 벤토나이트의 방향성보다도 건조밀도에 크게 영향을 받는 것으로 나타났다[4].

이에 본 연구는 고준위폐기물 처분 시스템의 안정성 확보를 위해 사용되는 압축벤토나이트의 압축 방향에 따른 팽윤 특성을 명확히 하고자 수행되었다.

2. 실 험

이 연구에 사용된 벤토나이트는 경주시 양남면 소재 광산에서 산출된 것으로 200 mesh ASTM 망체를 통과시킨 벤토나이트 분말을 사용하였다. 분말시료의 함수율을 제한되지 않았으며, 상온에서 약 10~13%의 함수비를 가지고, 광물조성은 몬모릴로나이트 70%, 장석 29%, 약 1%의 석영을 함유한다.



Fig. 1. GyeongJu bentonite powder and its compacted cubic block.

압축벤토나이트 블록 제작은 3 ton의 용량을 가지는 프레스를 사용하였으나, 1 ton용량의 이상이라면 제한 없이 사용이 가능하다.

압축벤토나이트 블록 제작용 몰드는 SKB 61 합금강으로 가공하고 열처리를 하여 고밀도의 압축력이 가해지더라도 변형이 발생하지 않도록 하였고, 실험을 위해 제작한 압축물의 크기는 가로×세로×높이가 각각 25 mm인 정육면체로, 함수율 약 11%, 28.6 g의 벤토나이트 분말로 제작한 압축벤토나이트 블록으로 건조밀도는 약 1.60 g/cm³이다.

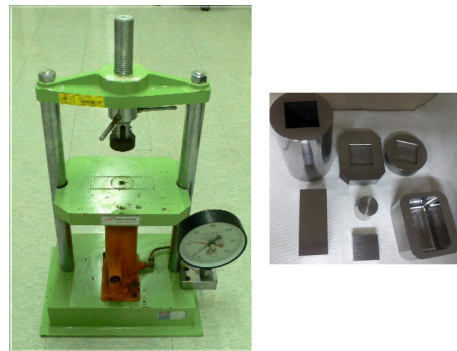


Fig. 2. The press and molds for the bentonite compaction.

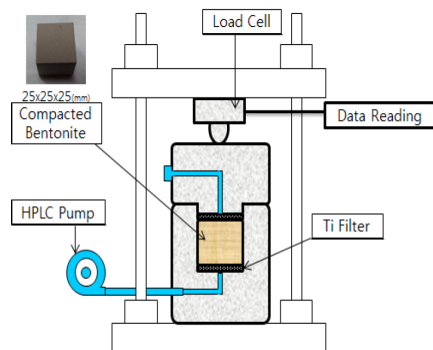


Fig. 3. Illustration of the swelling pressure measuring module.

Fig. 3의 모듈 구조도에서 보는 바와 같이 압축

벤토나이트는 몰드 내부에 10 μm 기공을 가진 티타늄 금속필터 사이에 놓이게 된다.

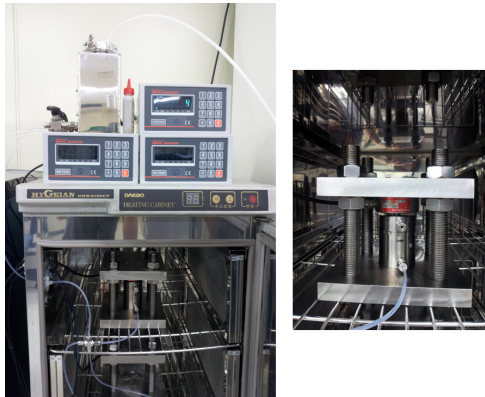


Fig. 4. Photographs of swelling pressure module in a environmental chamber.

팽윤셀은 Fig. 4에서 보는 바와 같이 항온 챔버에 넣어 peripatetic pump를 이용하여 초기 팽윤셀에 저속으로 물을 공급하고, 벤토나이트가 팽윤되어 물의 흐름이 막히면, 일정 공급수압을 유지하도록 한다. 초기 물의 공급이 빠른 경우, 벤토나이트 외곽으로 channeling이 발생하여 콜로이드상의 분말과 함께 세어나갈 수 있으므로 주의할 필요가 있다. 실험은 30℃의 항온 챔버에서 시작하여 Saturation이 되었다고 판단되면 50℃, 70℃로 점차 변화를 주면서 압축방향에 따른 벤토나이트의 팽윤성을 조사하였다.

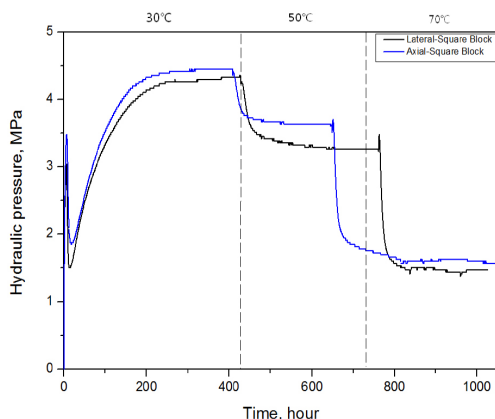


Fig. 5. Pressing-direction effect of the swelling pressure of the bentonite with different temperature.

3. 결 과

그 동안 사각 블록형 압축벤토나이트의 경우 방향성을 가지지 않을 것이라는 예상을 해왔다. 원형의 압축벤토나이트 블록의 경우 역시 상하의 방향성을 가지지 않기 때문이다.

현재 측방향의 팽윤압 시험결과는 온도에 따른 팽윤압 변화가 기존의 압축벤토나이트의 경우와 대동소이하게 나타났으며, 더욱이 원형 벤토나이트와도 거의 같은 양상을 보였다. 결과적으로 건조밀도가 약 1.60 g/cm^3 인 벤토나이트 분말 시료를 사용하여 압축블록을 만들 경우, 팽윤압은 블록의 모양이나 방향성에 크게 영향을 미치지 않음을 실험적으로 확인할 수 있었으며, 압축 방향정보다는 압축 블록의 건조밀도에 크게 영향 받는 것을 확인하였다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력연구개발사업의 지원을 받아 수행되었으며 이에 감사드립니다.

5. 참고문헌

- [1] 조원진 외, "압축벤토나이트의 수리전도도에 미치는 염도의 영향", 한국원자력연구원, KAERI/TR-1914/2001.
- [2] Yifeng Chen, Song Zhou, Ran Hu, Chuangbing Zhou, International Journal of Heat and Mass Transfer, Volume 72, May 2014, pp.656-667.
- [3] Simona Saba, Jean Dominique Barnichon, Yu Jun Cui, Anh Minh Tang, Pierre Delage, Journal of Rock Mechanics and Geotechnical Engineering, Volume 1-7, February 2014.
- [4] Jae Owan Lee, Jin Gyu Lim, Il Mo Kang, Sangki Kwon, Engineering Geology, Volume 129-130, March 2012, pp.20-26.

무산소 조건에서 구리부식과 가스생성에 대한 방사선과 염소의 영향

이재광*, 민제호, 정종태

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*jkleel@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력발전소를 운영하고 있는 대부분의 국가들은 발생하는 사용후핵연료를 포함하는 고준위 방사성폐기물을 생태계로부터 안전하게 격리시키기 위하여 심지층 처분을 고려하고 있다. 우리나라는 고준위 방사성폐기물을 내부식성 금속용기에 담아 심부 암반층에 처분하는 것을 고려하고 있다 [1]. 일반적으로 처분용기의 내부 재질은 주철로 하여 강도를 유지하고 외부를 구리로 감싸 지화학적 안정성을 유지할 수 있도록 하고 있다. 처분용기는 외부에서의 선량율이 1.0 Gy/hr 이하가 되도록 설계되었으나, 방사성폐기물 처분 후 초기 100년간 약 100 kGy의 총 선량을 처분용기 외벽에 받을 수 있다[2]. 처분용기 주변이 지하수로 포화되면 용기를 투과하여 나온 감마선과 포화된 지하수를 방사선 분해시켜 가스를 생성할 뿐만 아니라 용기를 부식시킬 수 있다.

본 연구에서는 무산소 조건의 수용액에 처분용기 재질의 금속시편을 담아 다양한 지화학적 조건에서 감마선 조사에 의한 가스발생과 구리의 용출과 부식 생성물을 관찰하였다.

2. 실험재료 및 방법

2.1 실험재료

방사선 조사실험을 위하여 상업적으로 생산되는 압연구리(KS 규격 1201)를 직경 5 mm, 두께 1 mm의 크기를 갖는 쿨론 모양의 시편을 사용하였다. 금속시편의 산화피막을 제거하기 위하여 sandpaper(#2,000)로 연마 후, 표면에 부착된 미세 입자를 제거하기 위하여 증류수에 담아 2분간 초음파 세척을 하였다. 세척한 구리 시편을 즉시 Ar 분위기의 글로브박스로 옮겨서 충분히 건조하여 시료를 준비하였다. 질소를 폭기하여 산소를 제거한 증류수 또는 염화나트륨(1 mol/L)을 일정량 취하여 구리 시편과 함께 serum 병에 담은 후, 외부 공기를 차단하기 위하여 모든 시료를 부틸합성 고무마개로 밀폐하였다.

2.2 감마선 조사

감마선 조사실험은 한국원자력연구원 산하 방사선과학연구소의 저준위 조사시설에서 수행하였다. Co-60을 감마선 선원으로 하여 각각 101과 201 Gy/hr의 선량율로 총 441 시간 동안 조사하였으며, 이때의 총 조사량은 각각 약 45와 94 kGy이다. 감마선 조사 및 염소이온에 의한 가스발생을 측정하기 위하여 실험용기 상부의 기체를 일정량 취하여 가스크로마토그래피-열전도도검출기를 이용하여 분석하였다. 금속시편에서 용출된 구리 또는 철은 유도결합플라즈마-질량분석기를 이용하여 분석하였으며, 주사전자현미경을 이용하여 구리부식생성물을 관찰하였다.

2.3 실험 디자인

가스생성과 구리부식에 미치는 조사선량, 구리 표면적, 그리고, 염소이온의 독립변수에 대한 영향을 평가하기 위하여 3-변수, 3-준위의 Box-Behnken 실험법을 사용하였다[3]. 중심점으로 3개의 반복실험을 포함하여 전체 시험 개수는 15개로 하였으며, 각 변수와 그에 따른 준위 설정은 Table 1에 요약하였다.

Table 1. Variables and Levels for Box-Behnken Design

Variables	Levels		
	-1	0	+1
Total Dose (kGy)	0.0	44.6	93.6
Cu (mm ²)	0.0	55.0	110.0
NaCl (mol/L)	0.0	0.5	1.0

3. 결과 및 논의

3.1 수소가스 발생

물분자의 방사선 분해는 물리적 단계, 물리화학적 단계 그리고, 화학적 단계를 거치며 e^-_{aq} , $H\cdot$, H^+ , H_2 , $OH\cdot$, $HO_2\cdot$, H_3O^+ , H_2O_2 등의 다양한 화학종이 형성된다[4]. 감마선 조사에 의한 방사선 분해에 의하여 주로 수소가스가 검출되었으며, 산소와 이산화탄소도 미량 검출되었다. Fig. 1에는 수

소가스 발생에 대한 조사선량, 구리표면적 그리고, 염소이온의 영향을 평가 결과를 나타내었다. 수소 가스 생성의 주요 영향인자는 조사선량과 염소이온으로 확인되었으며 구리표면적은 거의 영향을 주지 않았다. 따라서 수소가스의 생성은 구리 부식보다 물의 방사선 분해에 기인한 것으로 판단된다.

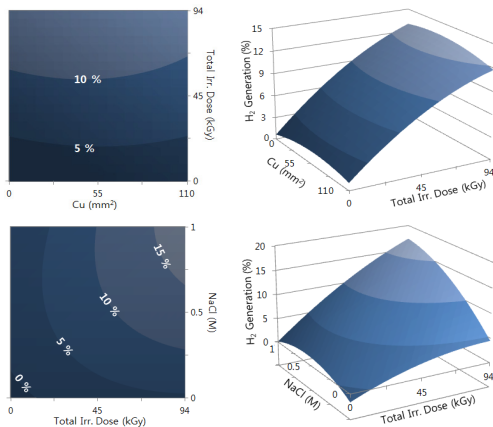


Fig. 1. Influence of irradiation dose, NaCl, and surface area of Cu on H_2 generation (%).

3.2 구리 용출

감마선조사, 구리표면적, 염소이온에 의한 구리 부식특성 평가 결과를 Fig. 2에 나타내었다. 조사선량과 구리표면적은 거의 비슷한 정도로 구리의 용출에 영향을 많이 주는 것으로 판단되며, 염소이온은 상대적으로 영향이 약간 적게 확인되었다. 따라서 구리용출은 주로 물의 방사선 분해산물에 의한 산화반응에 기인하며 염소에 의한 산화반응도 일부 참여하는 것으로 생각된다.

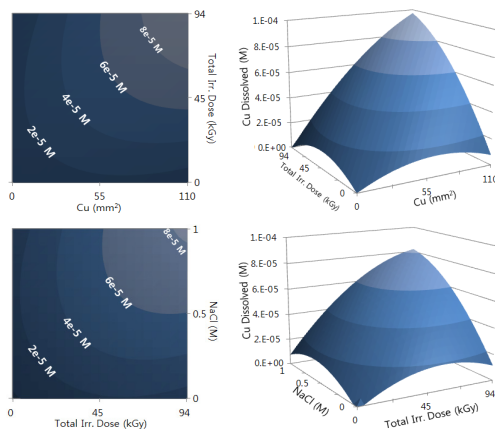


Fig. 2. Influence of irradiation dose, NaCl, and surface area of Cu on Cu dissolution (%).

3.3 부식생성물 형성

감마선을 조사하였을 때 증류수 조건에서 구리 용출 부유물이 관찰되지 않았으나, 1M NaCl 용액에서 Cu-O-Cl 화합물 형태의 구리 용출부유물이 확인되었다. 감마선을 조사하였을 때 주로 Cu_2O 형태의 부식생성물이 구리시편 표면에 형성되었으며, 조사선량 증가 시 더 많은 Cu_2O 결정이 형성되었다. 1M NaCl 용액 보다 증류수에서 감마선 조사 시 구리 표면 결정이 보다 크게 형성되었다.

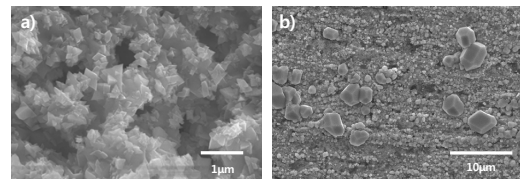


Fig. 3. SEM images of Cu corrosion product in the solution (a) and on the surface (b).

4. 결론

실험조건에서 수소가스의 생성은 주로 물의 방사선 분해에 의한 것으로 확인되었다. 그러나, 구리 부식은 감마선뿐만 아니라, 염소이온 농도에 많은 영향을 받는다. 실험 조건에서 구리는 산화되어 수용액에 부유되어 있다가 다시 Cu_2O 의 형태로 구리 표면에 침착되어 산화막을 형성하는 것으로 판단된다. 본 연구에서는 처분용기 설계기준 보다 높은 선량율로 감마선을 단시간 동안 조사하였으나, 정확한 구리 부식을 평가하기 위하여 낮은 선량율로 장시간 감마선을 조사할 때 진행되는 반응에 대한 추가적인 실험이 향후 수행되어야 할 것이다.

5. 감사의 글

이 논문은 2014년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임. (원자력연구개발사업, No. 2012M2A8A5025589)

6. 참고문헌

- [1] Nucl. Eng. Des., Vol. 241, pp.3348-3356, 2011.
- [2] Radat. Phys. Chem., Vol. 92, 80-86, 2013.
- [3] Technometrics, Vol. 2, 455-475, 1960.
- [4] Water, Vol. 3, pp.235-253, 2011.

심부처분환경조건의 생지화학 가스에 의한 우라늄 수작 거동 영향

이승엽*, 이지영, 차완식, 이재광, 정종태, 김경수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*seungylee@kaeri.re.kr

1. 서론

우리는 고준위방사성폐기물을 지하 심부(대략 500m 이하)에 처분하는 것을 향후 여러 대안 중의 하나로 고려하고 있으며, 결정질 암반(예: 화강암)에 폐기물 용기를 넣고 벤토나이트 완충재로 보호하는 구조로 설계할 예정이다[1]. 이러한 지하 심부처분환경조건에서는 다양한 혐기성미생물들이 생존하고 있으며 이들의 활동에 따른 영향들을 면밀히 고려할 필요가 있다. 특히, 지하수의 황산염을 환원시키는 황산염환원미생물(SRB; sulfate-reducing bacteria)이 미치는 영향은 상당할 것으로 예상된다. 즉, 이러한 SRB들은 지하심부에서 지속적으로 황화수소(H_2S) 가스를 생산한다. 또한, 처분환경에서는 폐기물 금속용기의 부식에 따른 가스(예: H_2 수소가스) 및 심부지각 기원의 수소가스 등이 존재해 누출 핵종들의 지화학적 거동에 영향을 줄 것이다.

지금까지는 단순히 생물기원 혹은 금속부식기원 가스 생성 기작에만 관심이 있어왔다. 하지만, 최근 지하 심부에서 생성된 황화수소 혹은 수소 가스 등이 전자공여체(electron donor)로 작용하고 금속환원미생물(metal-reducing bacteria)에 의한 우라늄과 같은 핵종들의 산화/환원 반응에 이들이 관여하고 활용된다는 사실이 밝혀지고 있다[2]. 따라서, 생지화학적으로 생성된 가스가 핵종들의 거동, 즉 산화/환원 및 수작 반응에 얼마만큼 영향을 미치는지 이해하는 것이 매우 중요해 졌다.

본 연구에서는 우라늄 핵종을 대상으로 가스에 의한 우라늄의 산화수(oxidation state) 및 암석/광물 수작량 변화 등을 살펴보고 이에 관한 기초 자료를 얻고자 한다.

2. 본론

2.1 실험방법

실험에 사용된 암석은 KURT 지하연구시설의 기반암을 이루는 화강암의 일부이며, 실험용 광물로는 경주벤토나이트 분말시료를 사용하였다. 채취된 화강암 시료는 파쇄하여 0.075~0.150 mm

크기의 입자만을 선별하였다.

우라늄과 암석/광물과의 수작 실험을 위해 버퍼 용액(1 mM $NaHCO_3$)을 준비하였고, 용액 100 ml 당 화강암과 벤토나이트를 각각 50 mg과 10 mg 씩 넣어주었다. 우라늄은 초기 농도를 50 μM 로 하였으며, SRB 미생물은 0.5 ml씩 넣어 주었다. 세럼병에 주입된 가스는 황화수소와 수소 가스이며, 주사기로 동일하게 10 ml씩 채워주었다. 실험은 약 일주일 정도 진행하였으며, 필요시마다 주사기를 이용하여 용액시료를 채취하였고 0.2 μm 필터로 여과한 후, 시간별로 우라늄의 산화수와 농도를 각각 측정 및 분석하였다.

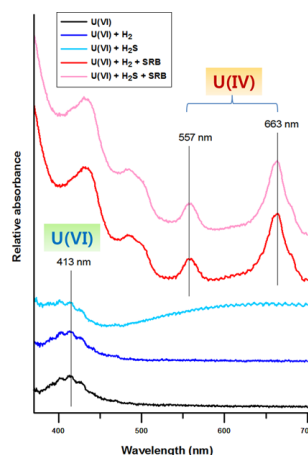


Fig. 1. Characteristic changes of uranium oxidation state from U^{6+} to U^{4+} due to the influence of gas in the presence of SRB.

2.2 가스에 의한 우라늄 산화수 변화

황화수소와 수소 가스가 존재할 때 우라늄의 산화수 변화를 살펴보았는데, SRB 미생물의 존재 유무에 의해 변화가 나타났다. 즉, 가스만 있고 SRB가 존재하지 않을 때에는 우라늄의 산화수 변화가 없었지만, 가스와 SRB가 공존할 때에는 우라늄 U^{6+} 가 U^{4+} 로 환원되는 기작이 발현되었다(Fig. 1).

2.3 가스에 의한 우라늄 수작량 변화 특성

화강암과 벤토나이트에 대한 우라늄의 수작량 측정 실험에서 미생물과 가스의 역할을 살펴보았다. 미생물이 일부 투입된 경우 우라늄의 수작량이 약 2.5배 정도 증가하였으며, 이는 미생물만의 우라늄 수작력이 존재하고 그 영향이 상당함을 알 수 있다. 그리고, 미생물을 따로 넣어주지 않은 경우, 화강암 시료에서 수소 가스의 존재 유무에 상관없이 우라늄의 수작량 변화에 거의 차이가 없었다. 하지만, 벤토나이트 시료의 경우 미생물이 존재하지 않더라도 수소 가스에 의해 우라늄의 수작량이 약 5~8% 정도 증가하는 특성을 나타내었다. 이는 벤토나이트 자체적으로 일부 토착미생물(indigenous bacteria)을 내부에 이미 가지고 있기 때문에[3] 수소 가스 존재시 수작 우라늄의 환원을 촉진하고 우라늄 수작량을 증진시킨 것으로 사료된다.

[3] 이지영, 이승엽, 백민훈, 정종태, 2013. 고준위 폐기물 완충재로 사용되는 벤토나이트의 미생물의 존재 및 특성, 방사성폐기물학회지 11, 95-102.

3. 결론

지금까지는 지하심부 생지화학적 가스에 의한 우라늄의 장기 거동에 관한 연구가 국내외적으로 많지 않았다. 본 실험에서는 가스의 핵종 거동에 관한 영향을 살펴보았으며, 실험결과 황화수소나 수소와 같은 가스들은 자체적으로 핵종에 관한 큰 영향력은 없었지만, 공존 미생물의 활동에 의해 전자공여체로 활용되었을 때 용존 핵종들(예: 우라늄)을 쉽게 환원시킬 수 있음을 알 수 있었다. 또한 이러한 가스들이 핵종들의 암석/광물에 대한 수작량에도 상당한 영향을 미침을 알 수 있었다.

4. 감사의 글

본 연구는 2014년도 미래창조과학부의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행되었습니다(원자력연구개발사업, No. 2012M2A8A5025589).

5. 참고문헌

- [1] Choi, H.J., Lee, J.Y., Choi, J.W., 2013. Development of geological disposal systems for spent fuels and high-level radioactive wastes in Korea. Nucl. Engin. Technol. 45, 29-40.
- [2] Konhauser, K., 2007. Introduction to Geomicrobiology. Blackwell publishing, 425p.

황동석(chalcopyrite) 존재 시 산화환원 조건에 따른 우라늄 핵종 이동 특성 이해

박태진*, 민재호, 이재광, 이승엽, 정종태

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*etjpark@kaeri.re.kr

1. 서론

처분관련 연구 분야에서 방사성폐기물은 오랜 시간이 경과하면 결국 처분장에 유입된 지하수와 접촉하고, 용해된 방사성 핵종들은 지하수 흐름을 따라 주위 매질과의 상호반응을 하며 유출될 것으로 예상된다. 지하수에 용해된 방사성 핵종들의 이동은 주어진 조건에 따른 다양한 고체 매질과의 반응에 의해 영향을 받게 된다[1]. 이런 다양한 고체 매질 중, 심부 처분환경에서 존재할 수 있는, 처분관점에서의 장기적인 변이과정에 의한 부식생성물에 대한 핵종의 이동 특성에 대한 연구가 처분장의 장기안전성 평가와 관련하여 상당한 관심을 받고 있다. 그러나 현재 부식생성물 중, 처분환경에서 풍부할 뿐 아니라 처분용기에서 유출될 수 있는 철, 구리 및 황과 관련한 광물에 관한 핵종이동연구는 상당히 부족한 것이 현실이다. 이런 연구를 위해선, 처분환경에 따른 핵종과 관심 광물들과의 상호반응 특성 및 관심 광물들의 장기 안정성에 대한 이해가 필수적이다.

본 연구에선 철-구리-황 함유 대표광물들에 대해 산화환원조건에 따른 광물 안정성과 우라늄 핵종과의 상호반응 특성에 대해 고찰했다. 대표광물로 철-구리-황 함유 광물인 황동석(chalcopyrite, CuFeS_2), 구리-황 함유 대표광물인 휘동성(chalcopyrite, Cu_2S), 철-황 함유 대표광물인 맥키나와이트(mackinawite, FeS)가 처분환경에서의 존재 가능성에 따라 선정되었다[2,3]. 심부 처분환경 조건에서 용존 환산염(SO_4^{2-})에 의해 황화이온(S^{2-})이 존재할 수 있는데, 이 경우 방사성 폐기물 처분용기의 주 소재인 주철의 표면에 mackinawite (FeS) 이차황화물이 생성될 수 있다. 반면 구리로 코팅한 처분용기의 경우, 구리표면에 역시 황화이온이 결합하면서 구리 부식과 더불어 황화구리광물인 chalcocite (Cu_2S) 이차생성물이 생성될 수 있다. 또한, 처분관점에서의 장기간 변이과정을 거치면 이들 황화철 및 황화구리 광물들은 열역학적으로 보다 안정한 철-구리-황 함유 chalcopyrite (CuFeS_2) 광물로 상변화가

예상된다. 따라서, 처분환경에 따른 부식 이차생성물에 대한 영향을 평가하기 위해, 이들 세 광물에 대해 동일 조건에서 화학적 안정성을 고찰하였다. 아울러, 특히 가장 중요한 구리원광석이며 철-구리-황 함유 복합광물인 chalcopyrite (CuFeS_2)에 대한 우라늄의 수작특성을 수작속도 및 등온 수작반응을 통해 고찰하였다. 또한 도출된 결과를 토대로 심부 처분환경에서 부식에 의한 CuFeS_2 존재 시, 방사성 핵종 중 대표핵종인 우라늄 핵종의 거동을 이해하고자 하였다. 참고로 대표적인 철-구리-황 광물시스템을 Table 1 나타내었다.

Table 1. Corrosion-related secondary phases: Fe-Cu-S mineral system

이차생성물 구성요소	철(Fe)	구리(Cu)	철-구리 복합
황(S)	$\text{Fe}_{1-x}\text{S}_2$ (pyrrhotite) FeS_2 (pyrite) FeS_2 (marcasite) $(\text{Fe,Ni})_{1-x}\text{S}$ (mackinawite) $\text{FeS}_{1.2}$ (alazanite) Fe_3S_4 (greigite) Fe_3S_4 (melnikovite) Fe_7S_8 (pyrrhotite) $(\text{Fe,Ni})_{1-x}\text{S}_4$ (smythite)	Cu_2S (chalcocite) CuS (covellite) Cu_7S_4 (anilite) $\text{Cu}_{1.8}\text{S}$ (digenite) $\text{Cu}_{1.6}\text{S}$ (neodigenite) $\text{Cu}_{1.5}\text{S}$ (djurleite) $\text{Cu}_{1.5}\text{S}$ (geerite) $\text{Cu}_{1.78}\text{S}$ (roxbyite) $\text{Cu}_{1.32}\text{S}$ (spionkopite) CuS_2 (villamaninite) $\text{Cu}_{1.2}\text{S}$ (yarrowite)	Cu_2FeS_4 (bornite) Cu_2FeS_4 (erubescite) CuFeS_2 (chalcopyrite) CuFeS_2 (cubanite) Cu_2FeS_3 (fukuchilite) Cu_2FeS_8 (haycockite) Cu_2FeS_4 (idaite) $(\text{Fe,Cu})\text{S}$ (isochalcopyrite) CuFeS_3 (isocubanite) $\text{Cu}_2\text{Fe}_3\text{S}_{16}$ (nukundamite) $\text{CuFeS}_2\cdot\text{nH}_2\text{O}$ (orickite) $\text{Cu}_{1.1}\text{Fe}_{1.2}\text{S}_2$ (putoranite) $\text{Cu}_2\text{Fe}_3\text{S}_{16}$ (talnakhite) $\text{Cu}_2\text{Fe}_3\text{S}_{16}$ (mooshoekite) $\text{Cu}_2\text{FeS}_{1.2}\cdot\text{nH}_2\text{O}$ (wilhelmramsayite)
Case Study	$(\text{Fe,Ni})_{1-x}\text{S}$ (mackinawite)	Cu_2S (chalcocite)	CuFeS_2 (chalcopyrite)

2. 본론

2.1 Redox 조건에 따른 철-구리-황 함유 광물들의 안정성

세 대표 광물, 즉 chalcopyrite, chalcocite, mackinawite에 대한 화학적 내구성 평가 실험은 혐기조건을 유지할 위해 글로브박스 조건에서 수행되었다. 아울러, 환원조건은 차아황산나트륨(sodium hydrosulfite, $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$)를 통해 조성하였다. 우라늄과의 상호반응에 영향을 미치는 주요 지화학인자(pH, Eh)의 변화를 모니터링한 결과를 Fig. 1에 정리하였다.

환원조건에서, chalcopyrite, chalcocite는 pH에 큰 변화가 없는 반면, mackinawite의 경우 3일 이내에 상대적으로 큰 변화(pH 6 → 8)가 관찰되었

다. Eh의 경우, mackinawite가 상대적으로 변화가 작으며 chalcopyrite, chalcocite 순으로 변화가 나타났다. 혐기조건의 경우 역시, 전반적으로 비슷한 경향을 나타내었다. 따라서, 환원조건, 즉 심부 처분환경에서 mackinawite와 chalcopyrite가 철-구리-황 광물시스템 중 상대적으로 안정한 이차 생성물로 평가되었다.

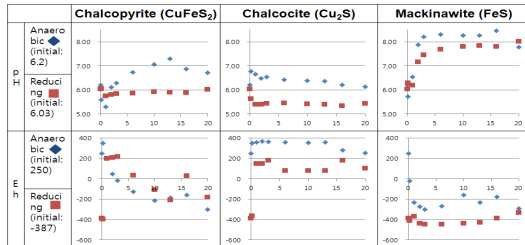


Fig. 1. Geochemical stability test (pH, Eh monitoring) for Fe-Cu-S mineral system.

2.2 황동석(chalcopyrite, CuFeS₂)에 대한 방사성핵종의 이동특성

황동석(chalcopyrite)에 대한 우라늄 핵종 수착 반응론 실험을 통해 나타난 수착 특성을 Fig. 2에 나타내었다.

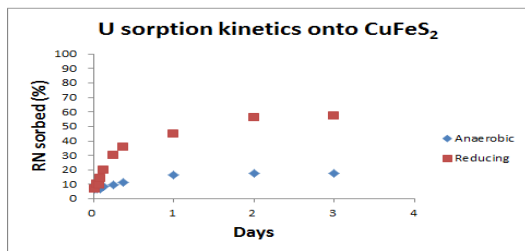


Fig. 2. Sorption kinetics of uranium onto chalcopyrite (CuFeS₂).

환원조건 및 혐기조건 모두에서 chalcopyrite에 대한 우라늄 수착은 반응 초기에 대부분의 수착이 이뤄지고 3일 이내에 완료되는 것을 확인하였다. 아울러, 혐기조건에서 보다 환원조건에서 우라늄의 수착이 상대적으로 많이 일어남을 확인할 수 있었다.

보다 세부적인 우라늄 수착특성을 고찰하기 위해 등온 수착실험을 수행하였고, 그 결과를 Fig. 3에 정리하였다. chalcopyrite의 우라늄 수착은 환원조건/혐기조건 및 pH에 상관없이 Langmuir isotherm 모델을 가장 잘 따르는 것으로 관찰되었다. 아울러, 우라늄 수착능은 pH가 증가할수록 높아지고, 환원조건에서 보다 높아지는 것이 관찰되었다. 이 결과의 해석을 위해 pH에 따른 우라늄

화합물 형성에 대한 추가적인 연구가 필요하겠지만, 큰 틀에서 화강암 기반 지하수 조건에서 얕은 깊이에서보다 깊은 심부에서 우라늄의 이동이 chalcopyrite에 의해 상대적으로 더욱 지연될 것으로 예상된다.

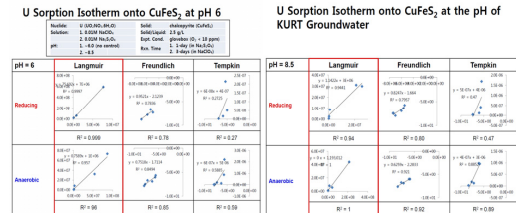


Fig. 3. The sorption isotherm of uranium onto chalcopyrite (CuFeS₂) at pH 6 and at 8.5 (the pH of KURT groundwater).

3. 결론

처분장 장기 안전성 평가와 관련하여, 심부 처분 환경에서 처분관점의 장기 변이과정에 의해 존재하는 철-구리-황 광물시스템과 지하수에 존재하는 주요 핵종 중 하나인 우라늄 핵종과의 상호반응 특성을 핵종 수착 속도론 및 등온 수착 실험을 통해 고찰하였다. 황동석(chalcopyrite, CuFeS₂)에 대한 우라늄의 수착반응은 Langmuir 모델이 비교적 잘 모사함을 확인하였고, 우라늄 수착능은 pH가 증가할수록 높아지고, 환원조건에서 상대적으로 높음을 확인하였다. 따라서 우리나라 심부 처분환경으로 고려되는 화강암 기반 지하수 조건(pH ~8.5, 환원조건)에서 황동석이 이차생성물로 존재할 경우, 얕은 깊이에서 보다 깊은 심부에서 우라늄의 이동이 상대적으로 더 지연될 것으로 예상된다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력연구개발사업(No. 2012M2A8A5025589)의 일환으로 연구비를 지원을 받아 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] Kim, J.-I., Nucl. Eng. Technol. 38(6), 459-82 (2006).
- [2] Vaughan, D. J.; England, K. E. R.; Kelsall, G. H.; Yin, Q. (1995) Am. Mineral. 80, 725-31 (1995).
- [3] Yin, Q.; Kelsall, G. H.; Vaughan, D. J.; England, K.E.R., Geochim Cosmochim Acta 59(6), 1091-100 (1995).

KURT 연구용터널 확장에 따른 지하수 장기모니터링 시스템 구축

권장순*, 류지훈, 고용권, 김정수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*jskwon@keari.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원(KAERI)은 국내 처분환경연구를 위한 연구용터널 KURT(KAERI Underground Research Tunnel)을 보유하고 있다. 또한 2014년 4월부터 지하수주유동로(MWCF) 지하수의 특성 평가 및 추가 연구용 모듈의 확보를 위하여 KURT는 확장예정에 있다. 이에 확장으로 예상되는 심부지질의 수리특성 및 지하화 환경 변화를 모니터링하고 확장 이전 KURT 부지의 수리·지화학 특성 배경치와 지하수주유동로(MWCF) 초기 자료 확보를 위하여 수리·지화학 모니터링용 관측공을 KURT 내부 및 외부에 설치하여 운영하고 있다. 본 연구에서는 KAERI 내 모니터링시스템을 구축하여 원거리의 각 구역에 설치된 장비 및 센서에서 수집된 수리·기상·지구화학 자료를 실시간으로 사무실에서 총괄 수집하여 저장하고, 이를 개발된 프로그램을 이용하여 도시화함으로써 자료의 시계열 흐름 및 분석이 용이하도록 하였다.

2. 본론

2.1 장기모니터링 시추공

연구지역의 기존 시추공으로부터 확보되어 있는

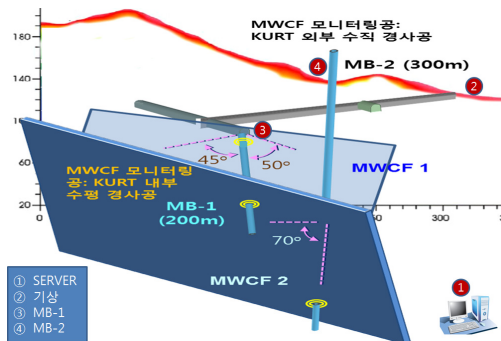


Fig. 1. Spatial distribution of MWCFs predicted and boreholes for a long-term monitoring in and out of KURT.

자료를 활용하여 단일분석 및 지표 지질조사를 수행하여 KURT 장기모니터링 시추공의 위치와 심도를 결정하여 KURT 내 수평경사시추 모니터링공(MB-1, 200m) 및 지상부 수직경사시추 모니터링공(MB-2, 300m)을 설치하였다(Fig. 1).

Table 1. Long-term monitoring system around KURT

Hardware	Role	Position
Server	통합 모니터링 시스템	Office
Meteorological	기상관측 DB 수집	KURT 입구
MB-1	수리 및 수질 데이터 수집	KURT 내부
MB-2	압력 및 온도 데이터 수집	KURT 외부

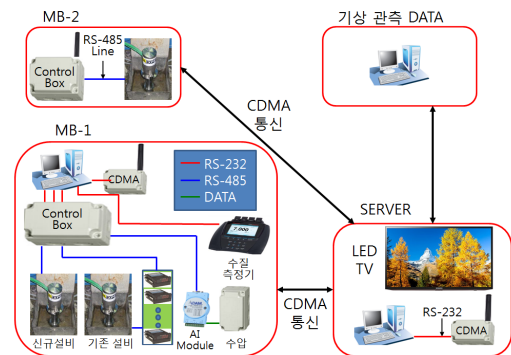


Fig. 2. Block diagram for monitoring system in KAERI.

2.2 모니터링 시스템 구성

KURT를 중심으로 한 모니터링 DB는 기상·수리·수질 요소이며, 원거리 모니터링을 위하여 Table 1 및 Fig. 2와 같이 각 시스템을 구성하였다. 사무실에 중앙서버를 위치하게 하였으며, CDMA 통신장비 및 인터넷(LAN)망을 이용하여 각 자료를 실시간 수집할 수 있도록 하였다. 또한 중앙서버에서는 모니터링 각 구간의 PC를 통제할 수 있도록 하였다.

2.3 모니터링 프로그램 개발

KURT를 기반으로 한 장기모니터링 시스템을 구축하며, 현장 관측자료의 수집 및 자동 전송,

도시화를 위하여 다음과 같이 6개의 프로그램을 개발하여 등록을 완료하였다: 1) KURT(쿠르트) 기상데이터 디스플레이용 소프트웨어(C-2013-015025); 2) 지하처분연구시설 온라인 기상모니터링 프로그램(C-2013-017669); 3) 지하수 수리지화학 자료 획득 및 전송 프로그램(C-2014-003346); 4) 수질 측정자료 자동 기록 및 도시화 프로그램(C-2014-003345); 5) 기상·수리·수질 장기모니터링 프로그램(C-2014-003347); 6) ADAM-4501 용 12 채널 데이터 취득 및 자동전송 프로그램(IP14031701KR1, 등록준비중).

각 프로그램은 중앙서버 및 현장 DB 로거에서 실행됨으로서 원활한 모니터링이 실시될 수 있도록 하였다.

2.4 DB 저장 및 도시화

중앙서버 내 DB 자동 저장 및 도시화를 위한 프로그램은 [Display]와 [Setup] 두 개의 화면으로 구성된다. [Display] 화면에서는 측정 DB를 실시간으로 표시하며, 도시화하고, [Setup]화면에서는 프로그램에 필요한 각종 설정을 실시할 수 있도록 구성하였다(Fig. 3).

[Display] 화면은 [메인메뉴], [인디게이터], [통신상태], [그래프 표시부], [그래프 옵션], [메시지 표시부]로 구성되며, [Setup] 화면에서 이용자의 설정 내용에 따라 실시간 시계열 자료를 도시할 수 있도록 하였다.

또한 [조희] 기능을 통하여 이용자가 선택한 기간동안의 시계열 도시 및 자료의 백업을 가능하게 설계하였다.

3. 결론

KURT 확장에 따른 심지층 지하수의 수리지화학 변동 특성을 파악하기 위하여 건설 중 출입이 어려운 환경 하에서 원거리 모니터링을 실시하기 위하여 자동 모니터링 시스템을 구축, 그 운영을 시작하였다. 연구를 진행하면서 다수의 프로그램을 개발 등록하였으며, 이는 향후 처분장 및 건설현장의 모니터링 기반 사업 및 연구에 효과적으로 이용될 수 있을 것이다. 본문에 기재하지 않았지만 본 모니터링 프로그램과 더불어 자동으로 현장 지하수의 시료채취장비를 설치하여 동시에 운영할 수 있도록 하였다.

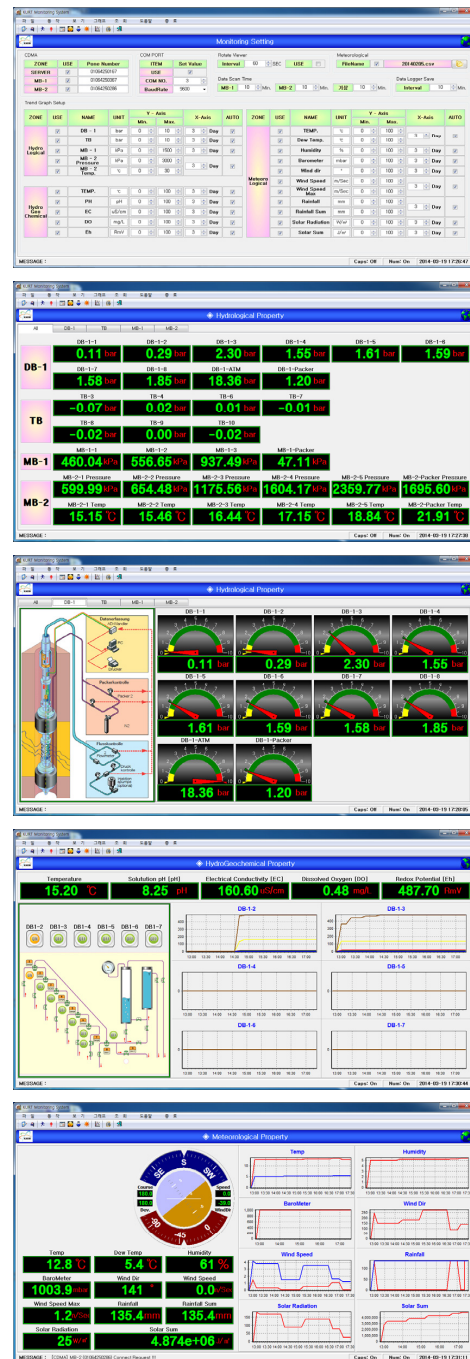


Fig. 3. The program for meteo-hydro-chemical monitoring in main-server.

4. 감사의 글

본 연구는 2014년도 미래창조과학부의 재원으로 한국연구재단의 지원(핵연료주기사업)을 받아 수행되었다.

국내 결정질암반 내 지하수의 수리지화학 특성 예비 평가

권장순*, 박경우, 김지연, 고용권

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*jskwon@keari.re.kr

1. 서론

국내 결정질암반 내 지하수의 수리지화학 특성을 평가하기 위하여 화강암반(이하 AH) 및 편마암반(이하 BH) 대표지역 내 장심도 심부 지질환경 조사지점을 지표로부터 400~500m를 굴착하여, 심부영역에 대한 지하수 및 조사코어에 대한 지구화학 분석을 실시하였다. 각 1개 지역을 대표 지역으로 선택하였으나 이 또한 지역의 지질학적 특성에 따라 그 결과가 상이할 수 있으므로 산출된 자료가 해당 암반을 대표하는 값이라 추정하는 것은 불합리하며, 상대적인 경향성 분포를 파악하는데 사용될 수 있음을 서론에서 밝히는 바이다.

2. 본론

2.1 평가항목

자연수(지표수, 지하수) 및 지질시료의 지구화학 특성평가 및 기초자료 제공을 위하여 아래와 같이 상세조사를 실시하였다.

○ 자연수

- 현장 수질측정, 주성분 및 미량원소 함량 분석
- 수리지화학적 유형
- 안정 동위원소 및 방사성 동위원소 분석
- 콜로이드, 미생물, 유기탄소 분석

○ 지질시료

- 광물동정을 위한 XRD 분석
- 주사전자현미경 관찰
- 주성분 및 미량원소 함량 분석
- 양이온교환능력
- 동위원소 및 연대측정

2.2 지하수 수리특성

AH/BH 조사지역 내 수리토양영역(HSD)에 대한 투수성은 유사하게 나타난다. 수리암반영역(HRD)의 경우 AH에 비해 BH에서 투수성이 현저히 크게 관찰되었다. BH에서 HCD 영역이 다수 존재하며, 투수성 또한 양호하였다. 조사기간 내 BH 지

역의 구간에서 지하수 자분의 특성을 보였다.

2.3 조사지역의 지질

AH지역은 류라기 복운모, 흑운모 화강암 및 제3기 맥암류로 구성되어 있다. 주구성광물은 사장석, 각섬석, 흑운모, 알칼리 장석, 석영 등이며, 부지규모 단열충전광물로 녹니석, 일라이트가 관찰되었다.

BH지역은 고원생대 변성암 지역으로 변질시키는 중생대로 추정되었다. 염기성 편마암의 경우 주구성광물은 각섬석, 흑운모, 정장석이었으며, 흑운모 편마암의 경우 석영, 운모, 장석이 주구성광물이었다. 단열충전광물로는 녹니석, 일라이트, 몬모릴로나이트, 운모류가 관찰되었다.

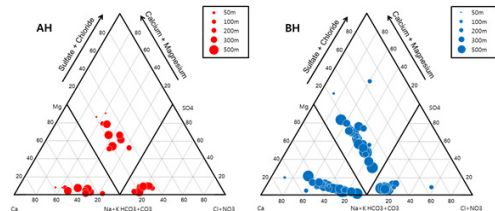


Fig. 1. Piper's diagram of groundwaters from AH and BH sites (bubble size shows the sampling depth).

2.4 지하수 수질유형

AH지역에 비해 BH지역의 지하수의 용존이온성분의 함량이 전반적으로 높게 관찰되었으며, 이는 암반 내 존재하는 지하수가 더 많은 물-암석반응을 겪었음을 지시한다. 지하수의 수질유형은 Na-HCO₃와 Ca-HCO₃ 혼합형으로 두 지역 모두 관찰되며, BH지역의 경우 심도에 따라 Ca 유형에서 Na 유형으로의 진화양상이 관찰된다(Fig. 1).

AH/BH 모두 인위적인 활동에 의한 오염의 형태는 관찰되지 않았다. 주요 용존성분은 전부 물-암석반응에 의해 기인하였으며, 음이온의 경우 대부분을 탄산염(HCO₃+CO₃)이 차지하고 있다(Fig. 2, 1)을 통해 AH지역 지하수는 규산염광물의 풍화가 우세하며, BH지역 지하수의 형성은

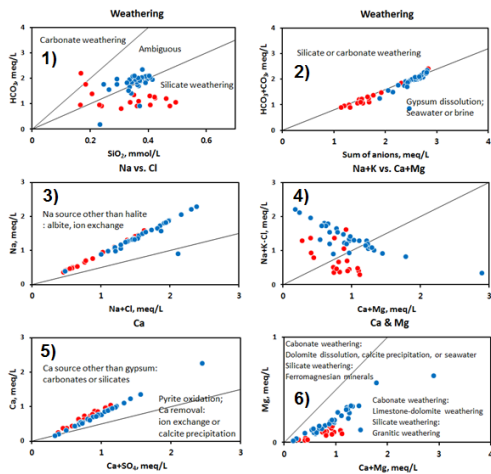


Fig. 2. Ion-ion plots of groundwaters from AH and BH sites.

규산염 및 탄산염광물의 풍화가 동시에 발생하며 수질을 형성하였음을 알 수 있다. Na, Ca-광물의 용해반응에 의해 지하수 내 Na 및 Ca 성분의 농도가 결정되며(Fig. 2, 3) 및 5), 황산염의 농도는 매우 미량으로 관찰되었다(Fig. 2, 5)). BH지역의 심도에 따른 Ca 유형으로부터 Na 유형으로의 진화는 Fig. 2, 4)에서 관찰할 수 있다. Mg 함량의 비가 BH지역에서 높게 관찰되었으며(Fig. 2, 6)), 이는 Mg이 많은 각섬석 등의 용해반응이 추가됨으로서 나타나는 결과로서 광물동정의 결과가 일치한다.

2.5 동위원소 분포 특성

AH/BH지역 모두 산소/수소 동위원소 분포는 전세계순환수선(GMWL)에 따라 잘 나타난다. AH 지역에 비해 BH지역에서 산소/수소 동위원소 분포가 낮게 관찰되었으며(Fig. 3, 1)), 특히 BH지역에서는 심도에 따른 고도효과가 관찰되었다.

황산염의 농도는 양 지역에서 모두 낮게 관찰되었다. 황산염의 황 동위원소 분포를 Fig. 3 내 2)에 도시하였다. 상대적으로 황산염의 농도는 BH에서 AH에 비해 높게 관찰되었으며, AH지역의 경우 황동위원소 값이 농도에 따른 큰 경향성을 보이지는 않으나, BH지역의 경우 황산염의 농도가 감소하면서 황동위원소 값이 증가됨이 관찰되었다. 이는 박테리아에 의한 황산염의 환원기작에 따른 결과이다.

탄산염의 탄소 및 산소 동위원소 결과(Fig. 3, 3))로부터 탄산염의 형성이 대기 기원으로부터 토

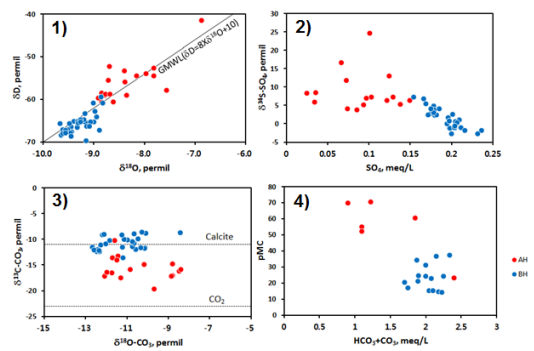


Fig. 3. Isotopic properties in groundwaters from AH and BH sites.

양 내 이산화탄소의 용해, 특히 BH 지역의 경우 탄산염광물의 용해에 의해 기인하였음을 살펴볼 수 있다. 이는 Fig. 2, 1)에서 나타난 바와 같이 BH지역의 수질 형성이 규산염광물 및 탄산염광물의 복합용해반응에 의해 기인되었다는 해석과도 일치한다.

지하 심부로 지하수가 유동함에 따라 물-암석의 정도는 많아지고, BH지역의 경우처럼 탄산염의 농도가 AH에 비해 높아질 경우 지질학적으로 오래전 침전되었던 탄산염광물로부터 탄소가 지하수 내로 공급되면서 탄산염의 농도와 pMC (percent of modern carbon) 간 역의 상관관계가 관찰된다 (Fig. 3, 4).

3. 결론

국내 결정질암반 심부환경의 수리지화학특성 평가를 위하여 심부지층의 주요 투수성 단열대를 중심으로 지하수 및 지질시료의 다항목 분석을 실시하였다. 상대적인 경향성에 대한 비교분석이 가능하였으나, 각 1개의 지점에 해당되는 자료로서 절대적인 수치를 적용하는 것은 곤란하다. 분석항목 중 미생물, 콜로이드 등 수 개의 자료에 대한 설명은 지면의 부족함으로 발표자료에 포함하기로 한다.

4. 감사의 글

본 연구는 2013년도 지식경제부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행되었음을 밝힌다.

국내 결정질 암반에서 조사한 심부 영역의 단열대 분포(화강암, 편마암 지역) 연구

박경우*, 고용권, 김정수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*woosbest@kaeri.re.kr

1. 서론

처분 영역에 대한 지질구조의 특성을 조사하기 위해서 조사되는 영역의 차원에 따라 1차원 지질 조사 (지표면 지질조사), 2차원 지질조사 (시추공 지질조사) 및 3차원 지질조사 (터널 지질조사)로 구분 가능하다. 특히, 방사성폐기물 처분을 위한 심부 지질환경의 특성을 파악하기 위해 지표면, 시추공, 터널 조사 순으로 순차적으로 진행해야 하며, 각 조사가 완료된 후 조사 지역에 대한 심부 지질구조를 예측하여 상위 단계에서 이를 보완해 나가는 과정이 필요하다. 본 연구는 상기 기술한 지질 조사 중 국내 분포하는 결정질 암반 중 화강암과 편마암으로 대상으로 2차원 지질조사인 시추조사를 수행하여 도출된 결과를 이용하여 지하 500m 심도 까지에 대한 단열대에 대한 특성을 암종별로 비교하였다. 본 연구 결과는 각 조사지점에 대한 지질구조모델 구축에 이용될 것이다.

2. 본론

2.1 연구 방법

화강암, 편마암 지역에 굴착된 시추공 5곳(화강암 2곳, 편마암 3곳)에서 시추공 텔레뷰어를 이용하여 단열조사를 수행하였다. 이 결과를 바탕으로 조사지역에 존재하는 단열간의 공간 분석을 수행하였고, 이를 이용하여 단열대를 정의하였다. 단열대의 정의에 따라 각 암종별 조사지점에 존재하는 단열의 빈도 분석을 통해 예비 단열대를 구분하였다. 이렇게 구분된 예비 단열대가 초음파 주사검층을 통해서 획득할 수 있는 미세 단열로만 구성되었는지 아니면, 실제 큰 규모의 단열들을 포함하는지 확인하기 위해 조사 코어의 영상 비교하였으며, 심부 환경을 구성하고 있는 매질의 특성 및 부존하는 지하수의 유동성을 간접적으로 지시하는 물리검층 결과를 검토하여 조사지역의 단열대를 결정하였다.

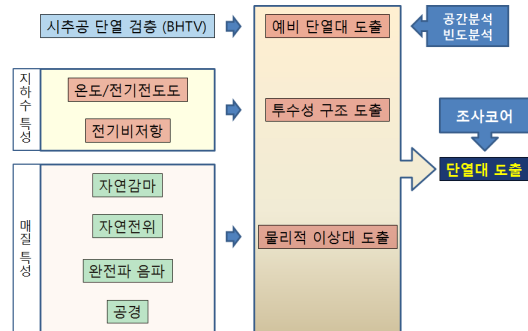


Fig. 1. Procedure for analysis of fracture zone.

2.2 화강암 지역의 단열대

화강암 지역에 굴착된 심부 시추공 2공 (AH-1 : 450m, AH-2 : 400m 각 1공)에서 수행한 시추공 텔레뷰어 결과, 화강암 조사 지역은 남북, 북서 방향의 단열이 주로 분포하고 있다(Fig. 2).

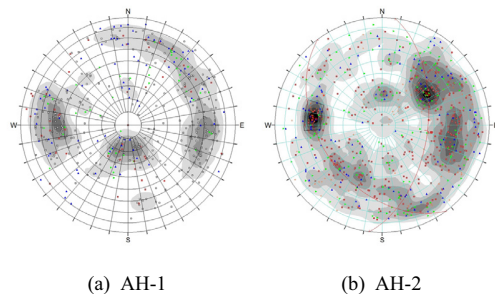


Fig. 2. Orientation of fractures in granitic rock.

Fig. 1에 제시된 단열대 분석 방법을 이용하여 단열대를 분석한 결과, 총 7개의 단열대를 구분할 수 있었으며, 각 시추공 별로 AH-1은 3개, AH-2은 4개의 단열대를 도출하였다(Table 1). 단열대의 방향은 남북, 북서 방향이 주를 이루었으며 그 폭은 2.5m~20.7m로 다양하게 분포하고 있다. 주로 고경사를 갖는 수직 방향의 단열대가 주를 이루며 분포하고 있는 특징이 있다. 단열대 빈도는 약 100m당 1개의 단열대가 분포하고 있었다.

Table 1. Fracture zones in granitic area

시추공	구분	조사지점	심도	방향	폭
AH-1	1	54 ~ 66.6m	남북	N16°E, 69°S	4.5m
	2	179.5 ~ 190m	북서	N26°W, 74°S	2.9m
	3	397 ~ 447m	북북서	N17°W, 68°N	18.7m
AH-2	1	118 ~ 130m	동서	N70°E, 71°N	3.9m
	2	190 ~ 214m	북서	N55°W, 69°S	2.5m
	3	330 ~ 341m	북서	N63°W, 49°N	7.2m
			북동	N31°E, 74°N	3.3m
	4	363 ~ 400m	동북동	N75°E, 57°N	20.1m
			북서	N58°W, 56°S	20.7m

2.3 편마암 지역의 단열대

편마암 지역에 굴착된 심부 시추공 3공 (BH-1,2,3 : 500m)에서 수행한 시추공 텔레뷰어 결과, 화강암 조사 지역은 동서, 북동 방향의 단열이 주로 분포하고 있다(fig. 3).

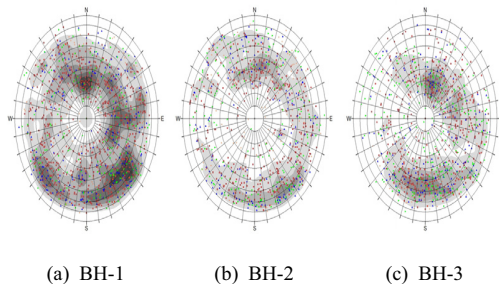


Fig. 3. Orientation of fractures in gneiss.

Fig. 3에 제시된 단열대 분석 방법을 이용하여 단열대를 분석한 결과, 총 23개의 단열대를 구분할 수 있었으며, 각 시추공 별로 BH-1은 8개, BH-2은 7개, BH-3은 8개의 단열대를 도출하였다(Table 2). 단열대의 방향은 북서, 북동 방향으로 수직인 분포를 이루었으며 그 폭은 2.3m~21.7m로 다양하게 분포하고 있다. 주로 고경사를 갖는 수직 방향의 단열대가 주를 이루며 분포하고 있으나, 40° 이하의 저경사 단열대도 심부에 분포하고 있다. 편마암 지역의 단열대 빈도는 약 100m당 2~3개의 단열대가 분포하고 있었다.

3. 결론

화강암, 편마암 조사지역에서 단열대를 분석한 결과, 화강암지역에서 100m당 1개, 편마암지역에서 100m당 2~3개의 단열대를 도출할 수 있어 편마암 지역의 단열대의 빈도가 큰 값으로 도출되었다. 각 단열대의 폭은 유사하였다. 조사지역의

단열대 방향성은 그 지역에 대한 지질구조를 형성한 지구조적 응력에 기인한다고 고려했을 때, 지역적 특성을 갖는 것으로 암종별로 특성화할 수 없다. 그러나, 단열대의 빈도나 폭은 편마암보다 오히려 화강암이 작게 도출되었으며 방사성폐기물의 처분을 고려할 때 유리하다고 판단된다. 이 또한, 편마암을 포함한 다수의 변성암 지역에서 조사 결과 최종 결론지어야 사항으로, 본 연구 방법을 통해 다수의 지역에서 연구를 수행한다면 국내의 모암을 기준으로 처분에 적합한 암종을 도출할 수 있을 것이다.

Table 2. Fracture zones in gneiss area

시추공	구분	조사지점	심도	방향	폭
BH-1	1	73 ~ 79m	북서	N47°W, 67°N	2.3m
	2	93 ~ 100m	북서	N58°W, 69°S	2.5m
	3	196 ~ 205.3m	서북서	N61°W, 68°N	3.5m
	4	221 ~ 253m	남북	NS, 62°W	15.0m
	5	334 ~ 364m	북동	N50°E, 74°N	8.3m
				N74°E, 65°S	12.7m
	6	420 ~ 435m	북동	N43°E, 60°N	7.5m
	7	443 ~ 450.7m	북서	N36°W, 73°S	2.0m
AH-2	8	460 ~ 500m	북동	N45°E, 75°S	10.3m
	1	53 ~ 65m	북동	N55°E, 76°S	2.9m
	2	133 ~ 143m	북동	N23°E, 60°N	5.0m
	3	178 ~ 217m	북서	N32°W, 74°S	11.4m
			동서	N81°E, 73°S	
	4	256 ~ 268m	북동	N54°E, 79°S	2.3m
	5	343 ~ 359m	북동	N67°E, 79°N	3.1m
			북서	N54°W, 67°S	6.3m
	6	405 ~ 466m	북서	N38°W, 75°N	15.8m
				N67°W, 69°N	21.9m
	7	485 ~ 500m	동북동	N34°E, 62°S	7.0m
				N75°E, 77°S	3.4m
BH-3	1	32 ~ 38m	동북동	N75°E, 66°N	2.4m
	2	48 ~ 85.3m	동서	N86°E, 69°N	13.4m
	3	91 ~ 100m	북동	N22°E, 76°N	2.2m
			북서	N51°W, 71°N	2.9m
	4	115 ~ 130m	북서	N42°W, 63°N	6.8m
			북동	N48°E, 76°S	3.6m
	5	137 ~ 150m	북북동	N18°E, 67°N	5.1m
	6	230 ~ 247m	북서	N23°W, 53°S	10.2m
	7	303 ~ 319m	서북서	N68°W, 59°N	8.2m
	8	382 ~ 393m	동서	N84°W, 64°N	4.8m

4. 감사의 글

본 연구는 2012년도 산업통상자원부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다(No.2012171020001D).

처분밀도 향상을 위한 방사선원향 최적화 가능성 연구

조동건*, 정종태

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*dkcho@kaeri.re.kr

1. 서론

국내에서 발생한 각 사용후핵연료 집합체는 방출 연소도 및 냉각기간이 다르므로 방사선원향 또한 집합체별로 다르다. 효율적인 사용후핵연료 처분시스템을 설계하기 위해서는 다양한 이력을 갖는 사용후핵연료 집합체의 방사선원향을 각각 고려하여 설계에 반영해야 하나, 이는 지금까지 사실상 불가능하였다. 따라서 이의 대안으로 모든 사용후핵연료를 대표할 수 있는 기준 사용후핵연료를 보수적으로 선정하고, 모든 사용후핵연료가 이 사용후핵연료와 제원 및 이력이 같다는 전제하에 설계안을 도출하였다. 2006년에 제시된 한국형 사용후핵연료 기준 처분시스템 (Korean Reference Disposal System, KRS)은 이와 같은 접근방법으로 도출된 것이다.

그런데, 최근 한국원자력연구원에서 선진핵주기에서 발생하는 고준위폐기물의 방사선원향을 도출하기 위해 ASOURCE 코드를 개발하였다. 아직까지 개선할 것이 많지만 이 코드의 두드러진 특징은 서로 다른 원자로 조건, 초기농축도, 방출연소도, 냉각기간을 갖는 여러 개의 사용후핵연료가 파이프로 건식처리되도 각각의 연소 및 냉각이력, 물질수지를 고려하여 방사선원향을 도출할 수 있다는 것이다. 국내 발생 모든 사용후핵연료에 대한 방사선원향 또한 도출할 수 있으며, 이는 기존에 기준사용후핵연료 선정시 적용된 보수성을 줄일 수 있음을 의미한다.

따라서 본 연구에서는 사용후핵연료 각각에서 발생하는 붕괴열을 고려하여 방사선원향 최적화를 수행할 경우, 처분면적이 어느 정도 감소할 수 있는지를 평가하였다.

2. 본론

2.1 KRS 처분시스템

2.1.1 붕괴열

KRS 설계시 기준 사용후핵연료는 2006년 말까지 발생한 사용후핵연료를 분석하여 설정하였으며, 선정된 제원은 초기농축도 4.0 wt.%, 방출연소도 45 GWd/tU, 냉각기간 40년이며, 이 경우,

붕괴열은 890 W/tHM의 값을 갖는다.

2.1.2 처분시스템

Fig. 1은 경수로 사용후핵연료를 처분하기 위한 KDC-1 처분용기 개념 및 처분개념을 나타낸다. 처분용기는 4개의 사용후핵연료를 적재할 수 있는 형상을 갖고 있다.

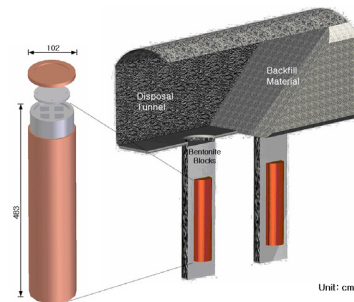


Fig. 1. Concept of KDC-1 Disposal Canister.

핵종이동을 제한하기 위한 벤토나이트의 반경방향 두께는 50cm이며, 건조밀도는 1.6 g/cm³이다. 완충재가 팽윤압을 유지하기 위해서는 최대 온도 100℃를 넘지 않아야 하므로 처분공간 간격은 6m, 처분터널 간격은 40로 설계되어 있다. 처분터널은 지상에서 500m 심도에 위치하고 있으며, 완충재에서의 최대 온도는 98.6℃이다[1].

2.2 방사선원향 최적화

2.2.1 평가코드

일반적으로 방사선원향 계산에는 ORIGEN-S 코드가 많이 사용된다. 그러나 이 코드는 단일의 이력, 즉 한 개의 연소이력 및 냉각이력만을 이용하여 방사선원향을 평가할 수 있다. 즉, 이 코드를 이용할 경우, 여러 사용후핵연료를 대표하는 기준 사용후핵연료를 보수적으로 선정하여 방사선원향을 생산할 수밖에 없다.

최근 개발된 ASOURCE 코드는 파이프 각 공정에서 발생하는 폐기물의 방사선원향, 각 원자로 수조에 보관된 사용후핵연료내 장반감기 핵종 및

초우라늄의 재고량, 저장 및 처분시설 설계를 위한 사용후핵연료의 총(또는 평균)방사선원향 등을 도출하는 기능을 갖고 있다[2]. 즉, 여러 기능 중의 하나로서 연소 및 냉각이력이 다른 여러 개의 사용후핵연료 집합체에 대한 평균 방사선원향을 평가할 수 있다. 따라서 이 코드를 사용하면, 국내 발생 모든 사용후핵연료를 대상으로 평균 붕괴열을 산출하고, 이를 처분용기의 열원으로 적용할 수 있다. 이렇게 할 경우, 이전에 적용된 보수적을 획기적으로 줄일 수 있다. 물론 여기에는 향후 처분용기에 사용후핵연료를 적재할 때, 붕괴열이 높은 사용후핵연료와 낮은 사용후핵연료를 조합하여 적재함을 전제로 하고 있다.

2.2.2 방사선원향 최적화

본 논문에서 방사선원향 최적화란 사용후핵연료 집합체의 방사선원향을 각각 고려하여 기존의 보수성을 줄였을 경우, 완충재 최대 온도 100℃를 유지하면서 얼마만큼의 처분밀도 증가를 가져올 수 있는지를 의미한다.

고려대상 사용후핵연료는 고리 1호기에서 2007년까지 발생한 사용후핵연료만을 대상으로 하였으며, 고리 1호기를 선택한 이유는 기존 KRS 설계시 고려된 전체 사용후핵연료의 연소특성이 고리 1호기에서 발생한 사용후핵연료와 유사하기 때문이다. 발생한 사용후핵연료의 총 수는 960다발이며, 초기 농축도 분포는 1.6 ~ 4.5 wt.%이며, 연소도는 12,000 ~ 54,000 MWd/셔의 분포를 갖는 것으로 나타났다.

이 사용후핵연료 전체를 대상으로 각각의 연소 및 냉각이력을 고려하여 평균 방사선원향을 평가한 결과, Fig. 2와 같이, 기존에 선정한 기준사용후핵연료의 붕괴열이 본 논문에서 새로이 평가된 붕괴열에 비해 1.5배 정도 높은 것으로 나타났다.

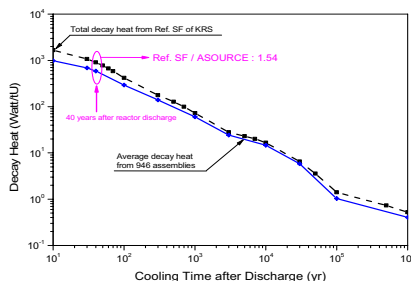


Fig. 2. Comparison of Decay Heat.

2.2.3 방사선원향 최적화 가능성

앞서 새로이 도출된 시간에 따른 방사선원향을

기존에 개발된 KRS 처분시스템 개념에 적용하여 최대온도 100℃를 만족하는 처분공 간격 및 터널 길이를 평가하였다.

열해석은 ABAQUS6-10을 사용하였으며, 완충재에서의 시간에 따른 최대온도분포를 계산하였다. 모델에서 최대심도는 1 km 까지 고려하였으며, 1/4 모델을 사용하여 중앙 2개의 면에 단열조건을 적용하였다. 지상 온도는 KRS 설계시와 동일하게 10 ℃로 설정하였으며, 1 km에서의 온도는 40 ℃를 적용하였다

터널간격 및 처분공간격을 변화시켜가면서 완충재에서의 최대온도를 평가한 결과, 터널간격 30m, 처분공 간격 4m를 갖는 설계안은 최대온도 94.5℃로서 기존 설계안의 최대온도보다도 낮게 유지되는 것으로 나타났다.

이는 높은 붕괴열을 갖는 사용후핵연료와 낮은 붕괴열을 갖는 사용후핵연료를 조합하여 처분용기에 적재할 경우 처분면적으로 최대 50%까지 줄일 수 있음을 의미한다.

3. 결론

각 사용후핵연료의 연소 및 냉각특성을 고려하여 처분시스템을 설계할 경우, 처분면적 측면에서 어느 정도 효율성을 나타내는 지를 평가하였다. 평가 결과, 높은 붕괴열을 갖는 사용후핵연료와 낮은 붕괴열을 갖는 사용후핵연료를 조합하여 처분용기에 적재할 경우 처분면적으로 최대 50%까지 줄일 수 있는 것으로 나타났다. 이는 각 사용후핵연료의 연소 및 냉각 특성을 고려한 방사선원향 최적화는 처분시스템 설계시 매우 중요한 인자임을 의미한다.

4. 감사의 글

이 논문은 2014년도(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(원자력연구개발사업, No. 2012M2A8A5025589)

5. 참고문헌

- [1] J.Y. Lee, *et al.*, "Concept of a Korean Reference Disposal System for Spent Fuels," *Journal of Nuclear Science and Technology*, 44 (12), 1565-1573 (2007).
- [2] D.K. Cho, *et al.*, "Advanced Hybrid Analysis System for Nuclear Facility Design with Best Estimate Source Terms." *Nuclear Engineering and Design*, 256(2013), 274-284 (2013).

지하수위 강하에 따른 해수침투 및 지하수의 예비 유동 모델: 제주도 서부 해안지역

김대회^{1*}, 고용권¹, 구민호², 정일문³

¹한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

²공주대학교, 충남 공주시 공주대학로 56

³한국건설기술연구원, 경기도 고양시 일산서구 고양대로 283

*kdh2803@kaeri.re.kr

1. 서론

제주도 서부지역은 가을철 농업용수를 목적으로 일시적으로 대량의 지하수를 사용한다. 이 시기는 갈 수기와도 일치하여 지하수위 하강이 크게 발생한다. 더불어 지하수 수질 검사결과 해안선인근에서는 해수의 침투 또한 관찰되고 있다.

본 연구에서는 지하수 하강으로 인한 제주도 서부지역 내 지하수 유동 모델을 개발하여, 내륙으로의 해수침투의 양상을 모사하고자 하였다.

2. 본론

2.1 지하수 유동 모델 개발

2.1.1 모델 영역

모델영역은 제주도 서부지역인 한경유역과 대정유역이 포함되도록 25km×25km로 설정하였다. 모델 격자의 크기는 125m×125m로 세분화 하여 설정하였으며, 총 200행, 200열로 구성하였다. 대수층은 1개의 자유면 대수층으로 단순화하였으며, 상부경계는 지표면, 하부경계를 U층으로 설정하였다.

2.1.2 경계조건

모델의 경계조건은 해안선을 통하여 지하수의 유출 또는 해수의 유입이 가능하도록 일정수두경계(Constant head boundary)로 설정하였으며, 나머지 경계(유역경계)는 불투수경계로 설정하였다.

2.1.3 함양량

Park et al.(2014)의 논문에서 제시된 대정 및 한경 유역의 강수량 대비 지하수 함양비율인 19.2%와 15.6%를 각각 곱하여 소유역별 함양량을 산정하였다.

2.1.4 관측정

연구지역에 위치하는 관정 중 지하수위가 주변

관정에 비하여 매우 높거나 낮아 이상값을 보이는 일부 관정을 제외한 262개소 관정과 제주도 수자원본부의 19개소 관정을 모델에 입력하여 모델 보정에 이용하였다.

2.1.5 양수정

대정 및 한경 유역에는 908개의 농업용 관정 및 148개의 비농업용 관정을 포함하는 총 1,056개의 관정이 설치되어 있다. 비농업 양수정의 양수량 산정을 위하여 기존 조사 자료를 활용하였다. 사용량이 조사되지 않은 비농업용 관정의 경우, 사용량이 조사된 관정의 취수허가량 대비 사용량 비율의 평균값을 일괄적으로 적용하여 양수량을 산정하였다.

농업용 관정의 양수량은 정류모델의 경우 취수허가량의 일정 비율을 양수하도록 하였으며, 유역 내 관정의 총 양수량이 함양량의 40, 50 및 60%가 되도록 설정하였다. 한편, 부정류 모델에서는 농업용 관정을 통하여 1년 중 50일만 집중 양수하는 시나리오를 가정하였다.

2.2 모델 보정

Visual MODFLOW의 역산 모델인 PEST를 이용하여 모델보정을 수행하였다. RMSE가 약 3.45%로 보정된 모델이 관측 결과와 잘 일치하는 결과를 보여주었으며, 그결과는 Fig. 1에 도시하였다.

2.3 모델 분석 및 예측

Fig. 2는 양수량을 지하수 함양량 대비 40-60%로 증가시켰을 때 수두의 변화를 보여준다. 양수량이 증가함에 따라 해수침투 발생지역이 확대되는 것을 볼 수 있고, 이 지역은 실제 서부 지역에서 발생한 해수침투 지역과 일치한다. 양수량이 함양량의 35-40%일 때 해수침투가 시작되는 것으로 관찰되었다.

본 모델에서는 기존 문헌에서 제시한 비산출률

중 한국수자원공사(2003)의 제주도 서부지역 평균
저유계수 값인 0.12의 값을 참조하여 0.1의 값을
모델에 적용하였다.

정류 모사 결과를 초기조건으로 이용하여 20년의
부정류 모사를 수행하였다. Fig. 3은 1년차, 5년
차, 및 10년차의 50일 집중 양수 직후의 모델 결
과이다. 모델 결과 1년차부터 해수침투가 발생한
것으로 분석되었고 10년 후 거의 변화가 없었다.

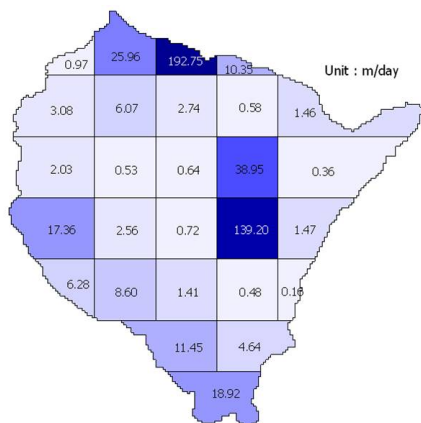


Fig. 1. Distribution of hydraulic conductivity of after calibration in study area.

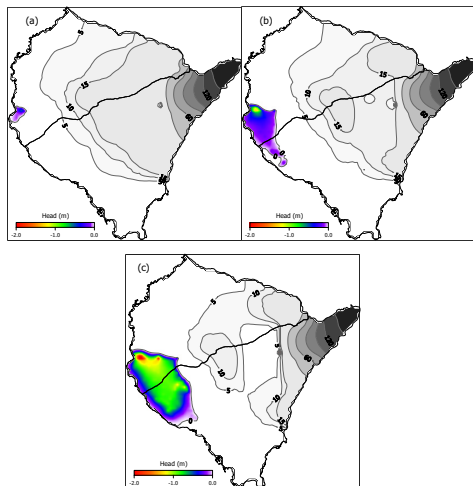


Fig. 2. Distribution of seawater intrusions : (a) pumping rate = 40% of recharge, (b) pumping rate = 50% of recharge, (c) pumping rate = 60% of recharge.

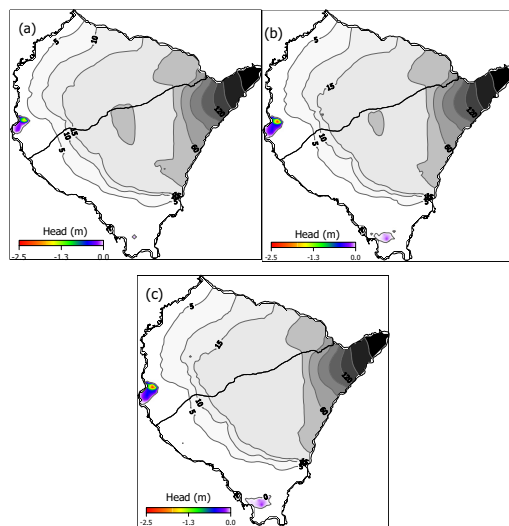


Fig. 3. Distribution of seawater intrusions : (a) 1 year, (b) 5 year, (c) 10 year.

3. 결론

지하수 모델링 기법을 이용하여 개발한 지하수
유동 모델을 통하여 제주도 서부지역 해수침투가
지하수 양수 및 수위 강하와 밀접한 관련이 있는
것을 확인하였다. 본 연구의 모델링 결과는 향후
해안에 인접한 환경에서 지하처분장 등의 건설에
따른 지하수위 강하와 해수침투에 대한 지하수의
유동을 모사하는데 사용될 수 있을 것이다.

4. 감사의 글

본 연구는 ‘제주형 물순환 해석 및 수자원 관리
기반 구축’ 연구단의 제2세부과제 ‘제주형 지표수-
지하수 통합수문해석 모형 개발’의 연구결과이
며, 2014년도 미래창조과학부의 재원으로 한국연
구재단의 지원(핵연료주기사업)을 받아 일부 수행
되었다.

5. 참고문헌

- [1] 제주도, 한국수자원공사, 2003, 제주도 수문지
질 및 지하수자원 종합조사(3) 보고서.
- [2] Park, C.H., Seo, J.A., Lee, J.J., Ha, K.C., and
Koo, M.H., 2014, A distributed water balance
approach to groundwater recharge estimation for
Jeju Volcanic Island, Korea, Geosciences
Journal, in press.

시계열분석과 요인분석을 통한 결정질 암반 지하수위 변동 분석

이정환*, 정재열, 정해룡

한국원자력환경공단, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*oathway@korad.or.kr

1. 서론

우리나라의 경우 지하 구조물 굴착이나 건설의 대상이 되는 매체는 거의 대부분 결정질 암반에 해당되기 때문에 미고결 충적층이나 다공질 매질과 비교하여, 지하수는 극히 제한적인 공간에서 유동한다[1]. 이는 지하수 유동을 지배하는 가장 중요한 인자가 결정질 암반내에 분포되는 불연속면의 수리·역학적 특성임을 의미한다[2]. 본 연구는 18개의 관측공의 상세 수리 시험 결과 자료와 장기적인 지하수 변동 모니터링 자료를 종합하여 시계열분석과 요인분석 기법을 활용하여 단열대를 포함하는 결정질 암반 지역의 지하수위 특성을 규명하고자 한다.

2. 본론

2.1 지질환경

지질은 하부로부터 상부로 백악기 퇴적암, 제3기 관입암류에 포함되는 섬록암, 화강섬록암, 반상질 조면암질 안산암과 이들 모두를 피복하고 있는 제4기 충적층이 계곡부를 따라서 분포한다[3]. 한편, 연구지역에는 국지규모의 5개(Z21, Z22, Z23, Z31, Z32) 수직 단열대들이 발달하고 있다[4].

2.2 연구방법

2.2.1 시계열분석

수리 수문자료 특성 분석을 위해 일반적으로 적용하는 자기상관분석(auto-correlation analysis)과 교차상관분석방법(cross-correlation analysis)을 사용하였다[5]. 자기상관분석은 자기의 유사성을 계산함으로써 반복성이나 그 외 특별한 성질을 파악하며, 교차상관분석은 입력 시계열 자료와 출력 시계열 자료 간의 시간영역에서 상관성으로부터 인과관계에 대한 정보를 평가한다.

2.2.2 요인분석

요인분석은 대규모 자료집단을 단순화하고 체계화하여 일반화시킴으로서 자료의 의미를 고찰하

는 다변량 기법의 일종으로서[6], 요인분석은 Q-모드분석과 R-모드분석으로 구분된다. Q-모드 분석은 다변량 공간에서 변수들을 집단화하여 측정값들 간의 관련성을 평가하는 기법이며, R-모드 분석은 공분산으로부터 고유값과 고유벡터를 추출하여 각각의 변수들간의 관계를 규명하는 것이다. 본 연구에서는 Q-모드 분석을 실시하여 지하수 변동 유형을 평가하였다.

2.3 장기적인 지하수위 변동 특성

지하수위 변동 패턴을 평가하기 위해서 2007년 1월부터 2007년 11월까지 1시간 간격으로 측정된 지하수위 자료를 일평균 자료로 변환하여 분석하였다. DB1-1과 DB1-2의 지하수위는 강수 사건에 의해 직접적으로 영향을 받아 민감하게 변동하고 있으며 지하수위 감쇠도 빠르게 일어난다. DB1-3, DB1-5, DB1-6, DB1-7, DB2-2과 KB-1, KB-2, KB-3, KB-7, KB-14, KB-15, KB-10, KB-11, KB-13의 지하수위는 강수 사건에 의한 변동 반응 영향이 작고 강수 사건 후 완만한 지하수위 감쇠 특성을 나타내어, 강수의 영향과 결정질 암반을 통한 지하수의 계절적 유동의 영향도 동시에 반영되어 나타나는 것으로 판단된다. 한편, DB1-8과 KB-9의 지하수위는 지표고도 아래로 41m(DB1-8)와 18m(KB-9)에 각각 위치되어, 주변의 인위적인 요인이나 암반의 불균질성 등의 영향을 받아 불규칙한 변동 특성을 보인다.

2.4 시계열분석

자기상관함수를 분석한 결과, 4가지 변동 유형으로 뚜렷하게 구분된다. 유형 1(Type 1)에 포함되는 시추공(DB1-1, DB1-2)의 자기상관함수는 지연시간이 약 30일 이내로 빠르게 0으로 수렴하여 가장 약한 선형성과 기억효과를 보인다. 유형 2(Type 2)의 경우(DB1-3, DB1-7, DB2-2, KB-1, KB-2, KB-3, KB-7, KB-11, KB-14, KB-15), DB2-2을 제외하고는 자기상관함수가 0일부터 30일까지는 빠르게 감소되지만 약 30일부터 60일까지는 감소율이 완만해진 후 다시 급해지며, 지연

시간은 모든 시추공에서 약 73일 이상을 다양하게 나타낸다. 유형 3(Type 3)의 경우(DB1-5, DB1-6, KB-10, KB-13), 유형 2와 다르게 자기상관함수가 변곡점 없이 일정하게 감소되는 패턴을 나타내며, 지연시간은 64일~100일로 다양하다. 한편, 유형 4(Type 4)의 자기상관함수의 분포(DB1-8, KB-9)는 특정한 경향성 없이 불규칙한 분포를 보인다.

2.5 요인분석

Q-모드 요인분석 결과, 요인 1(고유값 : 9.28)에 대해 높은 양(+)의 적재량을 보이는 시추공은 DB1-5, DB1-6, KB-1, KB-13로서, KB-13을 제외하고는 전체 심도에 대한 기하평균 수리전도도 값이 $1.00 \times 10^{-7} \text{m/s}$ 을 이하이다. 따라서 요인 1에 포함되는 시추공들은 단열대와 단열대 사이의 결정질 암반에 분포되어 지하수투수특성대 요소들이 상대적으로 적게 포함되어 수리적 특성이 작은 것으로 판단된다. 요인 2(고유값 : 3.59)에 대해 높은 양(+)의 적재량을 보이는 시추공은 DB1-3, DB1-7, KB-3, KB-10, KB-14로서, KB-10을 제외하고는 굴착 전체 심도에 대한 수리전도도의 기하평균 값이 $1.00 \times 10^{-7} \text{m/s}$ 을 초과하고 포화대 깊이에 대한 지하수 유입지점 길이 비율도 80%이상이다. 요인 3(고유값 : 1.95)에 양의 적재량을 나타내는 시추공은 DB2-2, KB-2, KB-7, KB-11, KB-15이며 요인 1과 요인 2의 중첩된 특성을 나타낸다. 한편, 요인 4(고유값 : 1.07)에는 DB1-1, DB1-2, 강우가 포함되며, 연구 지역의 저지대에 분포하고 있다. 요인 5(고유값 : 0.73)은 KB-9를 포함한다.

3. 결론

18개 시추공 지하수위 모니터링 자료를 시계열 분석과 요인분석을 통하여 지하수위 변동 특성을 분석한 결과, 수리지질 특성과 강우 사건에 반응성을 고려한 5가지 지하수 변동 그룹으로 분류할 수 있다. 그룹 1(DB1-5, DB1-6, KB-10, KB-13)의 시추공들은 모두 결정질 암반에 분포하기 때문에, 소규모 단열대를 통한 계절적인 지하수 유동의 영향이 우세하게 일어난다. 그룹 2(DB1-3, DB1-7, KB-3, KB-14)의 지하수위는 주단열대 주변에 위치하여 지표 파쇄대를 통한 강우의 직접적 유입과 단열대를 유동의 영향을 동시에 받

는다. 그룹 3(DB2-2, KB-2, KB-7, KB-11, KB-15)은 그룹 1과 그룹 2의 중첩된 영향을 반영하나 그룹 2의 영향이 더 우세하게 반영되며, 그룹 4(DB1-1, DB1-2)은 강우 사건의 직접적인 영향을 받으며 그룹 5(DB1-8, KB-9)는 인위적인 요인과 결정질 암반의 불균질성과 이방성에 의해 지하수위가 영향을 받고 있는 것으로 판단된다.

4. 감사의 글

본 연구는 2012년도 지식경제부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다(No. 2012171020001A).

5. 참고문헌

- [1] Domenico, P.A., Schwartz, F.W., 1990, Physical and Chemical Hydrogeology, John Wiley & Sons, New York, 824 p., 1990.
- [2] Leckenby, R. J., Sanderson, D. J., and Loneragan, L., Estimating flow heterogeneity in natural fracture systems, Journal of Volcanology and Geothermal Research, 148, pp. 116-129, 2005.
- [3] Hwang, J.H., Kihm, Y.H., Kim, Y.B., and Song, K.Y., Tertiary hydroexplosion at Bonggil-ri, Yangbuk-myeon, Gyeongju, Journal of the Geological Society of Korea, 43(4), pp. 453-462, 2007.
- [4] Kim, K.-S., Kim, C., Bae, D.-S., Ji, S.-H., and Yoon, S.-T., Hydrogeological characteristics of the LILW disposal site, Journal of the Korean Radioactive Waste Society, 6(4), pp. 245-255, 2008.
- [5] Cheong, J.-Y., Hamm, S.-Y., Kim, H.-S., Son, K.-T., Cha, Y.-H., Jang, S., and Baek, K.-H., Characteristics of waterlevel fluctuation in riverside alluvium of Daesan-myeon, Changwon City, The Journal of Engineering Geology, 13(4), pp. 457-474, 2003.
- [6] Davis, J.C., Statistics and data analysis in geology, 3rd ed., John Wiley & Sons, 638 p, 2002.

해수침투와 그라우팅에 의한 심부 지하수의 지화학적 특성 평가 및 예측

오승주*, 류지훈, 고용권

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*ohseungju@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성폐기물처분장은 방사성 폐기물을 인간 생활권에서 안전하게 격리시키기 위하여 다중방벽 개념을 이용하여 낮은 지하수 유동속도, 낮은 핵종 이동도의 환경을 갖고자 한다. 지하 심부에 처분장을 건설할 경우 시멘트를 사용하게 되는데 처분장 매립 이후 처분시설 주변의 지하수와 장기적이고 지속적인 반응이 불가피하며 이에 따른 지하수의 지구화학적 특성 변화는 시멘트의 변질을 야기시킨다. 또한 시멘트와 지하수의 반응으로 형성되는 강알칼리성 환경은 주변 암석에도 영향을 미칠 뿐 아니라 폐기물에 포함된 핵종의 거동을 변화시키는 요인이 된다[1]. 또한 공학적 방벽 시설이 해수의 영향을 받을 경우 물-암석 반응의 촉진과 더불어 보다 복잡한 반응을 야기한다. 본 연구에서는 해안 인근의 그라우팅을 실시한 시추공의 심부지하수를 이용하여 해수의 유입에 의한 시멘트의 특성 변화와 심부지하수의 수리지구화학적 진화과정을 해석하고자 하였다.

2. 본론

2.1 연구지역

연구 지역은 경주시 양남면 봉길리 지역으로 해안에 접하고 있으며 서쪽의 해발고도가 동쪽에 비해 상대적으로 높아 동쪽으로 완만하게 경사를 이루고 있다. 처분부지의 반경 1km의 모암은 화강암류로서 화강섬록암 및 섬록암으로 산출된다[1].

2.2 연구방법

연구지역의 시료 채취대상은 지표수, 시추공 지하수, 해수로 시추공 지하수의 경우 다중패커 시스템을 적용하여 시추공을 구간별로 격리하여 심도별 시료채취가 이루어졌다.

현장 측정은 모든 시료에 대해 온도(T), pH, 전기전도도(Electrical conductivity, EC), 용존산소(dissolved oxygen, DO), Eh를 측정하였다. 알칼

리도는 0.05N 염산을 이용하여 산-염기 적정법으로 측정하였다. 모든 시료는 0.45 μ m 셀룰로즈 막 필터로 여과하였고 양이온은 고순도 질산을 이용하여 pH를 2이하로 유지하였다. 음이온분석은 IC (Ion Chromatography)를 이용하여 한국원자력연구원에서 분석하였으며 양이온 분석은 한국기초과학연구원에서 분석하였다. 양/음이온 분석은 물의 전하 균형 오차 $\pm 5\%$ 이내로 분석의 신뢰도를 보였다.

2.3 지구화학 모델 및 열역학 자료

본 연구에서는 PHREEQC 2.0[3]을 사용하였으며 Nagra, PIS에서 연구 개발한 열역학 데이터베이스를 이용하였다. 이는 시멘트의 수화 및 열화 과정을 모델링하기 위해 개발된 것으로 PHREEQC, MINEQL, MINSORB 그리고 GEMS cords를 포함하고 있다.

3. 결과 및 토의

지표수에 총용존고체함량(TDS)은 110~380mg/L의 범위를 나타내었으며, 대부분 Ca-Na-HCO₃형을 나타낸다. 지하수의 전기 전도도는 (EC)은 7,350~39,000 μ S/cm의 범위를 나타내었으며 pH의 경우 8.29~12.5로 상부구간 보다 하부 구간에서 강한 알칼리성 환경을 보이고 있다. 또한 해수의 영향으로 Na-Cl형의 진화 양상을 보이고 있다. 연구지역 인근의 해수의 전기 전도도 (EC)은 51,500 μ S/cm를 나타냈다.

이러한 진화 양상을 연구지역의 지표수와 해수의 혼합으로 모사하여 확인해보고자 모델링을 실시하였다. 모델링 결과를 지표수와 해수의 단순 혼합의 선상을 따라 Na와 Cl이 증가하는 것과는 달리 Ca 이온은 고농도의 함량을 보였다. 이것은 시추공의 안정성을 높이기 위해 실시한 그라우팅에 의한 지하수와 시멘트의 상호 반응에 의한 것으로 판단된다.

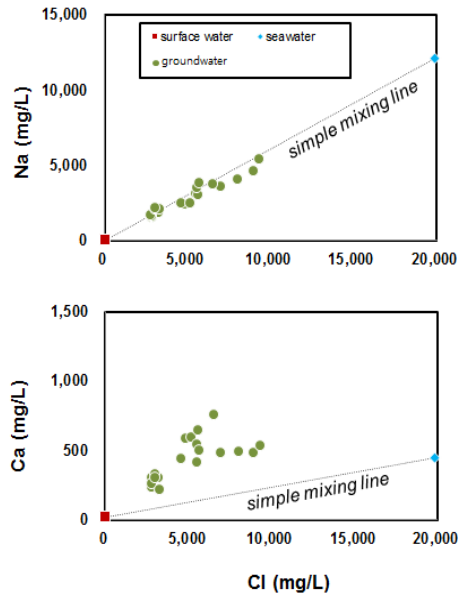


Fig. 1. Plot of Na and Ca vs. Cl with simulated mixing lines.

이에 시멘트 열화에 의한 지하수의 용존 이온의 농도 변화를 확인하기 위하여 장기간에 걸친 모델링을 실시하였다. 폐기물 처분 환경은 지하 심부의 환원 조건이므로 연구지역의 해수의 오염을 받지 않은 심부 지하수를 이용하였으며 이는 지하로 유입된 지표수가 물-암석반응에 의하여 평형된 상태로 해수의 영향이 아닌 심부지하수와 시멘트의 반응에 의한 변화를 알아보기 위함이다. 또 시멘트 내의 지하수의 유입은 확산으로 가정하였으며 확산계수는 $10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 로 하였다. 시멘트의 경우 시멘트의 방벽으로의 점진적인 변화양상을 파악하고자 0.05m의 cell 20개로 총 1m로 모사하였으며 모사 기간은 10000년으로 하였다(Fig. 2). 반응 초기부터 시간이 지날수록 물-암석반응이 활발하게 진행되는 cell에서 부터 pH의 증가와 pe의 증가를 보였으며 특히 Ca의 함량이 증가하는 것을 알 수 있다. 이것은 portlandite의 용해에 의한 것으로 판단된다. 반면 해수의 오염의 영향을 받은 지하수와 시멘트의 경우 portlandite, ettringite의 감소로 인한 용존 이온 함량이 높음을 알 수 있었다.

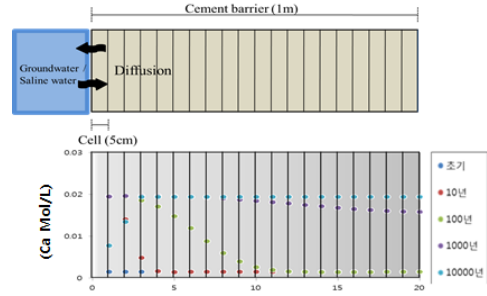
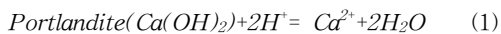


Fig. 2. Schematic diagram of the cement degradation modeling.

4. 요약

지하수와 시멘트의 상호반응은 시멘트의 열화와 공극수와 고체상의 성분의 변화를 야기한다. 본 연구에서는 경주의 방사성 폐기물 처분 부지의 시멘트의 장기간의 변질을 예측하고자 열역학적 모델에 의하여 평가 되어 졌다. 장기간의 걸친 지하수와 시멘트의 반응은 주요 광물을 용해시키고 공극률을 증가시키게 되며 이로 인한 부피 감소를 알 수 있었다. 또한 지하수의 해수 혼합으로 인한 시멘트 열화속도를 비교하고자 하였다. 심부로의 해수 유입은 시멘트와 지하수의 복잡한 반응을 야기할 수 있으므로 해안지역 지하공동시설의 안정성을 평가하기에 더 많은 연구와 실험이 바탕이 되어야 할 것이다.

5. 감사의 글

본 연구는 2014년도 미래창조과학부의 재원으로 한국연구재단의 지원(핵연료주기사업)을 받아 수행되었다.

6. 참고문헌

- [1] 김진영, 고용권, 최병영, 신선호, 김두행 (2008) 중 저준위 방사성폐기물 처분부지의 지구화학 특성 II. 암석 및 광물, 방사성폐기물 학회지, 6, 307-327.
- [2] 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.

Xylenol Orange 비색법에 의한 H₂O₂ 정량법 최적화

김종구*, 장은실, 운영상, 하영경, 송규석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*njgkim@kaeri.re.kr

1. 서론

지하수의 방사분해 생성물로는 산화력이 있는 OH·, H₂O₂, HO2·, O₂와 환원력이 있는 e⁻_{aq}, H·, H₂ 등이 있고, 이들은 지하수가 사용후핵연료와 접촉시 침출 특성에 영향을 준다. 많은 연구결과에 의하면 라디칼이 쉽게 형성되는 감마선 조사 시스템에서도 이들 방사분해생성물 들 중 분자형태 즉 H₂O₂이 산화용해에 가장 큰 영향을 주는 것으로 알려져 있다. 따라서 방사선 장 (radiation field)에서 사용후핵연료의 용해 및 침출메커니즘과 반응속도를 규명하기 위한 연구에서 H₂O₂의 농도를 결정하는 기술이 필요하다.

Jiang, Z. Y. 등은[1] sorbitol이 H₂O₂와 반응하여 peroxy radical을 생성함을 알아냈다. 이 peroxy radical은 정량적으로 Fe²⁺를 Fe³⁺으로 산화시키므로 이 Fe³⁺을 정량하면 H₂O₂의 농도를 결정할 수 있다. Fe³⁺의 정량법으로는 Xylenol Orange에 의한 비색법($\lambda_{\max}$ = 560 nm)이 잘 알려져 있다.

본 연구는 $1 \times 10^{-5} \sim 1 \times 10^{-4}$ M H₂O₂ 및 $1 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-5}$ M H₂O₂ 농도범위의 수용액 시료에 이 분석법을 적용함에 있어 가해주는 sorbitol 농도 및 Fe²⁺농도가 발색시간에 미치는 영향을 조사하였다. 또한 H₂O₂ 농도범위에 대한 적절한 Xylenol Orange 양의 도출을 위한 목적으로 Xylenol Orange 농도/ H₂O₂ 농도 비에 따른 영향을 조사하였다.

2. 본론

2.1 Xylenol Orange-Sorbitol-Fe²⁺-H₂O₂

Fig. 1은 Xylenol Orange (1×10^{-4} M), Sorbitol (0.1M), Ammonium Iron(II) sulfate (1×10^{-4} M), H₂O₂ (8×10^{-5} M)의 조건에서 발색을 시간에 따른 흡광도를 보여준다.

564nm에서 흡광도가 시간에 따라 증가함을 보여주고 100분의 시간 후에도 지속적으로 증가하여 3시간 정도의 시간이 지난 후에야 증가함을 멈추었다. 따라서 이 분석방법을 적용하기 위하여서는

적절한 발색시간을 정하여 한다.

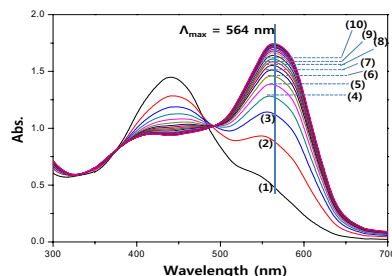


Fig. 1. Color development depending on time, (1)10min; (2)20min; (3)30min; (4)40min; (5)50min; (6)60min; (7)70min; (8)80min; (9)90min; (10)100min.

2.2 발색시간에 미치는 Sorbitol의 영향

Fig. 2는 Xylenol Orange (1×10^{-4} M), Ammonium Iron(II) sulfate (1×10^{-4} M), H₂O₂ (8×10^{-5} M)의 조건에서 sorbitol 농도에 따른 흡광도의 변화를 보여준다.

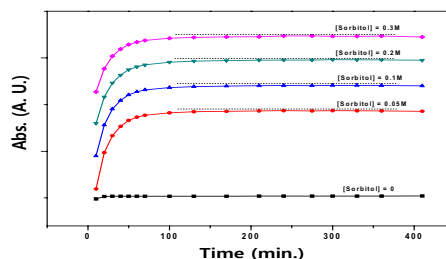


Fig. 2. Color development depending on concentration of sorbitol, (1) 0; (2) 0.05M; (3) 0.1M; (4) 0.2M; (5) 0.3M.

2.3 발색시간에 미치는 Fe²⁺농도의 영향

Fig. 3은 Xylenol Orange (1×10^{-4} M), Sorbitol (0.1M), H₂O₂ (8×10^{-5} M)의 조건에서 Ammonium Iron(II) sulfate 농도에 따른 흡광도의 변화를 보여준다.

2.4 Xylenol Orange 농도/ H_2O_2 농도 비에 따른 영향

Fig. 4는 $1 \times 10^{-6} \text{ M} - 1 \times 10^{-5} \text{ M}$ H_2O_2 농도에 대한 Xylenol Orange의 농도비가 $100 > [\text{XO}]/[\text{H}_2\text{O}_2] > 10$ 일 때 각 표준용액들에 대한 스펙트럼이고, Fig. 5는 $10 > [\text{XO}]/[\text{H}_2\text{O}_2] > 1$ 일 때 각 표준용액들에 대한 스펙트럼이다.

Fig. 6 및 Fig. 7은 각각의 스펙트럼에서 얻은 흡광도를 사용한 검정곡선들이다.

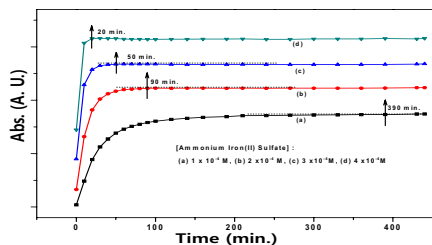


Fig. 3. Color development depending on concentration of Iron(II), (1) $1 \times 10^{-4} \text{ M}$; (2) $2 \times 10^{-4} \text{ M}$; (3) $3 \times 10^{-4} \text{ M}$; (4) $4 \times 10^{-4} \text{ M}$.

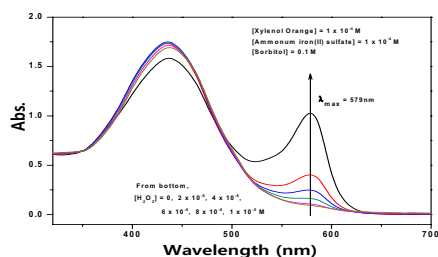


Fig. 4. Spectrum when the concentration of Xylenol Orange was $1 \times 10^{-4} \text{ M}$.

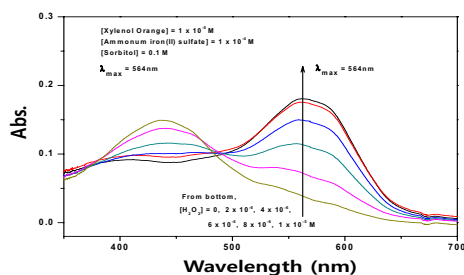


Fig. 5. Spectrum when the concentration of Xylenol Orange was $1 \times 10^{-5} \text{ M}$.

3. 결과 및 논의

- Fig. 2에서 sorbitol의 양이 발색시간에 미치는 영향은 없었다.

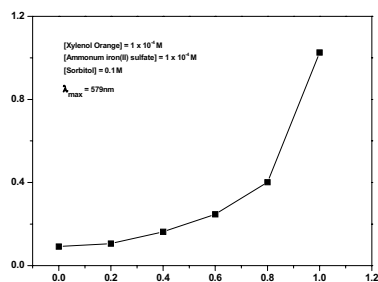


Fig. 6. Calibration curve for $100 > [\text{XO}]/[\text{H}_2\text{O}_2] > 10$, Xylenol Orange: $1 \times 10^{-4} \text{ M}$; H_2O_2 : $1 \times 10^{-6} \text{ M} - 1 \times 10^{-5} \text{ M}$.

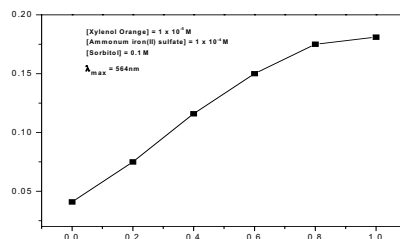


Fig. 7. Calibration curve for $10 > [\text{XO}]/[\text{H}_2\text{O}_2] > 1$, Xylenol Orange: $1 \times 10^{-5} \text{ M}$; H_2O_2 : $1 \times 10^{-6} \text{ M} - 1 \times 10^{-5} \text{ M}$.

- Fig. 3에서 Fe^{2+} 의 농도가 커질수록 발색시간이 빨라져, $1 \times 10^{-4} \text{ M}$ 일 때 6시간이 $4 \times 10^{-4} \text{ M}$ 일 때 20분으로 단축되었다.
- 검정곡선 Fig. 6, Fig. 7을 비교하였을 때 Xylenol Orange의 H_2O_2 에 대한 비가 큰 경우 ($100 > [\text{XO}]/[\text{H}_2\text{O}_2] > 10$) 보다 작은 경우 ($10 > [\text{XO}]/[\text{H}_2\text{O}_2] > 1$) 가 적절한 검정곡선을 얻을 수 있었다.

4. 감사의 글

이 논문은 2013년도 정부의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(원자력기술개발사업, No. 2013000731).

5. 참고문헌

- [1] Jiang, Z. Y., Hunt, J. V., and Wolff, S. P., Analytical Biochemistry 202, 384-389 (1992).

전해정련을 이용한 Zr합금 폐 피복관 처리기술 연구

이창화*, 이유리, 전민구, 최용택, 강권호, 박근일

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*chwalee@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료의 효율적인 처리를 통해 폐기물의 감소를 극대화할 수 있는 파이로공정은 우라늄(U)과 초우라늄(TRU) 원소들을 전기화학적으로 회수하여 재활용할 수 있는 비핵확산성 처리기술이다[1]. 파이로공정은 핵연료집합체를 해체, 인출, 절단하여 원료 물질을 제조하는 전처리 공정과 생산된 원료물질을 전해환원, 전해정련, 전해제련 등을 통해 U ingot을 제조하는 후처리 공정으로 이루어진다. 전처리 공정에서는 사용후핵연료를 제외한 피복관 및 구조재가 금속폐기물로 발생하게 되는데, 그 발생량이 U 10톤 처리를 기준으로 했을 때, 폐 피복관과 구조재폐기물이 각각, 2.5 톤, 1톤에 이른다. 특히, 폐 피복관의 경우 노내에서 핵분열 및 방사화에 의한 고 방사성 핵종들이 발생되기 때문에 기존에 잘 알려진 압축법이나 용융법을 통해 처리할 경우, 발생된 폐기물 전량이 중준위 기준을 초과할 것으로 예상된다. 따라서, 파이로 공정에서 발생하는 금속 폐기물의 양을 효과적으로 줄이기 위해서는 새로운 방법의 처리법이 필요하다.

이러한 처리법 중 하나인 전해정련은 피복관의 약 98 wt.%를 구성하고 있는 Zr을 용융염 내에서 전기화학적으로 회수함으로써, 폐기물의 준위 및 발생량을 감소시킬 수 있는 기술이다[2]. 특히, 용융염 내에서 금속형태의 Zr으로 회수되기 때문에 공정수가 적다는 장점이 있다. 이렇게 회수한 Zr을 재활용할 경우, 추가적인 경제적 이득도 취할 수 있다.

Zr의 전해정련을 위해 공정온도가 상대적으로 낮은 LiCl-KCl-ZrCl₄ 용융염이 주로 사용되어 왔으나, chloride 기반의 용융염 특성으로 인해 Zr 전착물 내 염의 함유량이 높다는 문제가 있다.

본 연구에서는 이를 해결하기 위해 LiCl-KCl 용융염에 fluoride 화합물을 첨가함으로써 그 효과가 어떻게 나타나는 지 살펴보았다. 또한, 탈피복시 피복관에 잔류할 수 있는 방사성핵종이 전해정련을 통한 Zr의 회수에 어떠한 영향 미치는지 예측하기 위해 대표적인 surrogate 화합물을 첨가하여 전기화학적 거동을 살펴보았다.

2. 본론

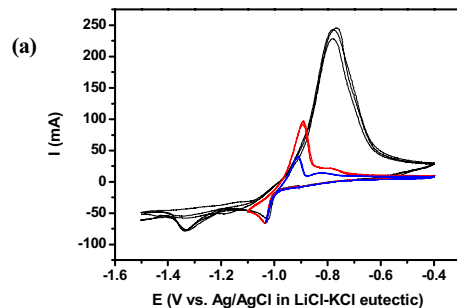
2.1 실험방법

LiCl-KCl 용융염 내에서 fluoride의 첨가효과를 살펴보기 위하여, 600 °C의 LiCl-KCl-ZrCl₄-LiF, LiCl-KCl-ZrF₄를 전해액으로 사용하였다. 양극과 음극은 각각 Zirlo 튜브 및 텅스텐 선(W wire)를 각각 사용하였으며, 기준전극은 Ag/AgCl (1 wt.%)를 mullite 튜브에 넣어 사용하였다. 용융염 내에서 Zr의 전기화학적 거동을 살펴보기 위해 Potentiostat/galvanostat (BioLogics, SP-150)을 사용하였으며, 음극에 전착되는 Zr의 형상관찰 및 성분 분석을 위해 SEM-EDX, ICP-AES, XRD 등을 사용하였다. 또한, 피복관에 잔류할 수 있는 방사성핵종이 Zr 전해정련에 미치는 영향을 살펴보기 위해서 대표적인 희토류 원소인 La, Ce, Nd, Y의 산화물을 비롯하여, 알칼리금속인 Cs, 주요 합금원소인 Nb를 surrogate로 첨가하였다.

2.2 실험결과

2.2.1 Fluoride 첨가효과

Fig. 1은 600 °C의 LiCl-KCl-ZrCl₄에서 fluoride 화합물인 LiF가 첨가되었을 때 나타나는 cyclic voltammetry를 보여준다. LiF가 첨가되기 전에는 Fig. 1(a)과 같이 약 -1.02 V와 -1.32 V에서 환원 peak가 관찰되는데, 이는 all-chloride계 용융염의 특징으로 다전자가로 존재하는 Zr이온의 다단계 환원반응을 보여준다(Zr(IV)/Zr(II), Zr(IV)/Zr(I), Zr(II)/Zr(0), Zr(IV)/Zr(0) 등).



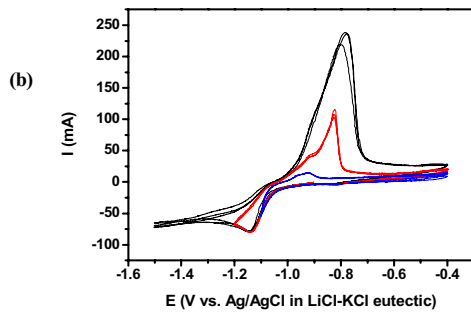


Fig. 1. Cyclic voltammeteries for Zr reduction/oxidation in (a) LiCl-KCl-ZrCl₄ and LiCl-KCl-ZrCl₄-LiF at 600 °C at a scan rate of 50 mV/s.

반면, 용융염에 LiF를 첨가했을 때는 Fig. 1(b)에 보인 바와 같이 약 -1.15 V에서 Zr(IV)/Zr(0)에 대한 환원 peak가 단일하게 나타남을 알 수 있다. 또한, 각각의 용융염에 대하여 일정전위 또는 일정전압에서 Zr전착을 수행한 결과, fluoride 첨가에 의해 Zr 전착물이 dendrite 형상을 갖는 것으로 확인되었으며, Fig. 2와 같이 전착물 내 Zr의 결정성도 향상되는 것으로 나타났다.

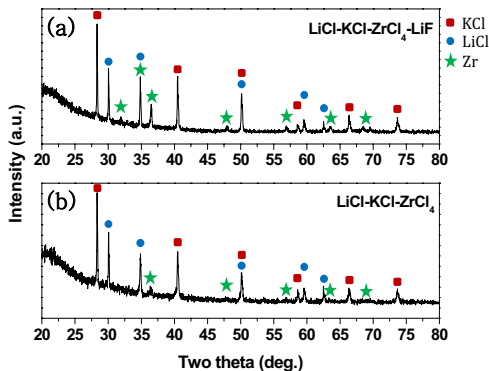


Fig. 2. XRD patterns of Zr deposited at (a) -1.1 V for 3 hrs in 600 °C LiCl-KCl-ZrCl₄-LiF and (b) -1.0 V for 3 hrs in 600 °C LiCl-KCl-ZrCl₄ salts.

2.2.2 Surrogate 산화물의 영향

폐 피복관으로부터 Zr 전해정련 시 잔류할 수 있는 방사성물질의 영향을 살펴보기 위해 먼저, 대표적인 희토류 금속인 Y, La, Ce, Nd를 surrogate로 사용하였으며, 파이로 전처리공정에서 산화탈피복을 수행함을 가정하여 희토류를 산화물 형태로 예상 잔류량의 1,000배 과량 첨가하. 여 Fig. 3과 같이 cyclic voltammetry를 나타내었다. ZrCl₄가 포함되는 전해정련조에서 희토류 산화물이 염소화가 될

가능성이 있는 것으로 알려져 있으나, 실험 결과 cyclic voltammetry에서는 Zr의 환원 및 산화 반응에 거의 영향이 없는 것으로 나타났다. 또한, -1.15 V의 일정전위를 3시간동안 가하여 Zr을 Zirlo 피복관에서 회수한 결과, 표 1에서 보인 바와 같이 희토류는 검출한계 이하로 나타났다. 이는 희토류 산화물의 염소화 반응이 매우 느려 산화물 형태로 안정하게 남아 있고, 또한 염소화가 되더라도 환원전위가 매우 낮기 때문인 것으로 생각된다.

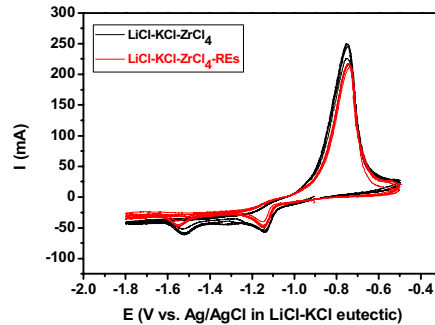


Fig. 3. Cyclic voltammograms in the presence and absence of 1,000 fold-REs (Y₂O₃, La₂O₃, Nd₂O₃, CeO₂) of estimated residue in 500 °C LiCl-KCl-ZrCl₄.

Table 1. ICP results of Zr deposits

Element	wt. %	Element	wt. %
Zr	61.85	Fe	<0.002
Li	7.54	Ce	<0.002
K	30.6	Nd	<0.002
Sn	<0.0005	La	<0.002
Nb	<0.0005	Y	<0.001

3. 결론

폐 피복관 처리를 위한 Zr 전해정련에서 fluoride 첨가를 통해 전착물 개선 및 염 포함량 감소효과를 얻을 수 있었으며, 희토류 surrogate의 영향은 거의 없음을 확인하였다.

4. 참고문헌

- [1] J. J. Laidler, J. E. Battles, W. E. Miller, J. P. Ackerman, and E. L. Carls, Prog. Nucl. Energ., Vol. 31, pp. 131-140. 1997.
- [2] C. H. Lee, Y. L. Lee, M. K. Jeon, Y. T. Choi, K. H. Kang, G. I. Park, J. Nucl. Mat., Vol. 449, pp. 93-100, 2014.

흑운모의 풍화 및 Cs 흡착에 미치는 수용액 내 양이온의 영향

김지연^{1*}, 권장순¹, 고용권¹, 김영규²

¹한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

²경북대학교, 대구광역시 북구 대학로 80

*jykim0205@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성폐기물을 심지층 처분하는데 고려되고 있는 대표적인 암종 중 하나가 화강암과 같은 결정질 암석이다. 화강암질 암석의 조암광물 중 흑운모는 층상형 규산염광물로서 층간 구조내로 핵종들이 수착될 수 있다. 또한 모서리가 풍화되어 K 이온이 방출되면서 마모된 모서리 자리(frayed edge site)를 형성하는 것으로 알려져있는데 이 흡착자리는 Cs과 크기가 비슷하여 Cs이 선택적으로 흡착이 되고 이는 다른 원소에 의하여 쉽게 탈착되지 않는 특징을 가진다고 알려져 있다. 수용액 내 다양한 양이온의 존재, pH 및 풍화 기간의 차이에 의한 흑운모 풍화양상과 풍화된 흑운모들의 Cs의 흡착 특성을 알아보고자 하였다.

2. 본론

2.1 실험 방법 및 분석

본 실험을 위해 사용된 흑운모는 브라질 미나스 제라이스주에서 산출된 흑운모로써, Minservice를 통해 구입하였다. 풍화 실험을 위한 시료를 만들기 위해 신선한 흑운모를 파쇄한 뒤 체를 이용하여 55~100 μ m 크기의 입자를 선별하여 사용하였다. 광물의 풍화에 미치는 양이온의 영향을 알아보기 위해 1몰 농도의 KCl, CaCl₂, NaCl, MgCl₂, RbCl, CsCl 용액 50mL에 파쇄된 흑운모 0.2g을 각각 넣은 뒤 HNO₃용액을 사용하여 pH 2, 4로 조절하여 40 $^{\circ}$ C 온도에서 20일, 40일, 60일, 80일, 100일, 120일 간의 기간 동안 반응시켰다.

반응이 끝난 후 최종 pH(Orion 420A)를 측정하였고, 45 μ m 필터로 필터링 하여 상등액과 고체 시료를 분리하였다.

풍화된 흑운모 시료는 Cs과의 흡착반응을 알아보기 위해 1×10^{-5} M의 CsCl 수용액 농도, pH 7의 환경에서 수착 실험을 실시하였고, 이때 0.01M의 NaCl 배경용액을 사용하였다. 흑운모 시료에 대한 CsCl 수용액의 비를 0.1g/50ml로 하여 항온

수조기에서 25 $^{\circ}$ C, 80rpm 속도로 36시간 동안 교반반응시켰다. 반응 후 각각의 용액의 상등액을 분리시킨 후 Cs이온의 농도를 측정하였다.

반응 후 흑운모의 화학조성과 광물변화를 평가하기 위하여 전자현미분석, XRD분석을 실시하였고, 수용액의 양이온과 Cs의 분석은 AAS, ICP-MS를 이용하여 각각 실시하였다.

2.2 흑운모 풍화 실험 결과

일반적으로 판상 흑운모의 용해는 구조 내 Si가 용해되면서 점점 풍화가 일어나며 용출된 Si의 농도는 풍화정도에 대한 정량적인 근거를 제시한다. 용출된 Si의 농도(Fig. 1 (a))는 수용액 내 pH가 낮을수록, 반응 시간이 길어질수록 증가함을 확인할 수 있다. 양이온 중에 따른 영향은 Na 수용액, Ca 수용액, Mg 수용액에서 반응시킨 경우 순으로 높은 Si 농도를 나타남을 확인할 수 있다.

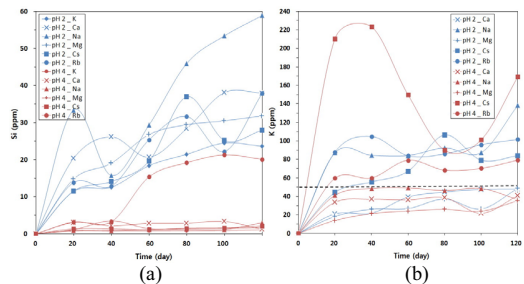


Fig. 1. Si(a), K(b) concentrations in solution after weathering reactions with biotites.

흑운모의 반응 실험 중 Si 풍화양상과는 별도로 수용액 내의 수소이온 또는 양이온과 흑운모 내 K간의 치환이 일어나 K이 수용액으로 용출되어 나온다. 하지만 K 농도의 경우(Fig. 1 (b)) Si 농도와는 달리 pH나 반응 시간에 따른 영향은 크게 나타나지 않았다. 양이온이 K의 용출에 미치는 영향을 살펴보면 Cs, Rb, Na 수용액에서 반응시킨 경우가 나머지 양이온 수용액에서 반응시켰을 때보다 K의 농도가 조금 더 높게 관찰되었다.

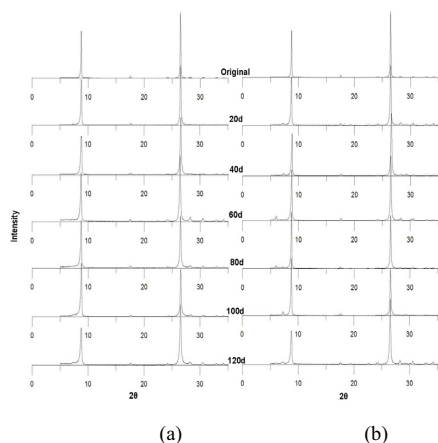


Fig. 2. XRD patterns of biotites reacted in Na solutions at pH 2(a), pH 4(b).

K, Ca, Cs과 Rb 수용액에서 반응시킨 흑운모의 XRD 패턴에서는 특이할만한 변화가 나타나지 않았다. 하지만 Na 수용액에서 반응시킨 시료의 경우 pH 2 조건에서 20일, 60일, 100일, 120일 동안 반응시킨 시료에서, pH 4 조건에서는 반응 초기부터 말기까지 모든 시료에서 $12\text{\AA}$ 과 $14\text{\AA}$ 층간격의 추가적인 피크가 관찰되었으며, 이는 팽윤층(expandable layer)의 형성을 지시한다(Fig. 2 (a), (b)).

2.3 Cs 흡착 실험 결과

다양한 pH 및 양이온 조건하에서 물리화학적 풍화반응을 거친 각각의 흑운모를 사용하여 Cs 흡착실험을 실시하였고, Fig. 3에 풍화조건별 흑운모에 대한 Cs의 흡착률을 도시하였다. K 및 Rb 수용액 내에서 최초 반응시킨 흑운모의 경우 pH 조건에 상관없이 흡착률이 30% 미만으로 가장 낮게 관찰되었다. 이를 제외한 Na, Mg, Ca 수용액에서 풍화과정을 겪은 흑운모의 경우 pH 4 조건에서 pH 2 조건에 비해 흡착률이 양호하였으며, $\text{Na} > \text{Mg} > \text{Ca}$ 순위를 따랐다. 대부분 풍화반응 실험조건하에서 풍화반응 기간(weathering time)에 상관없이 Cs의 흡착률이 동일하게 관찰되나, Mg 수용액에서 반응시킨 흑운모의 경우 풍화반응 기간이 길어질수록 Cs의 흡착률이 증가되어 나타나고 있다. 특히, pH 4, Na 수용액 내에서 풍화과정을 겪은 흑운모의 경우, 수작실험 조건하에서 90% 이상의 Cs 흡착률을 보여, 상세 해석을 위한 추가적인 실험이 준비중에 있다.

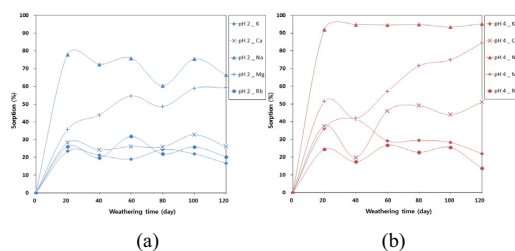


Fig. 3. Cs sorption percentage of biotites reacted in Na solutions at pH 2(a), pH 4(b).

3. 결론

서로 다른 양이온 종과 반응 시간, pH 조건에 따른 흑운모의 변질 양상을 평가하였다. 또한 자연조건에서 단열대 내 풍화반응으로 인해 변질된 흑운모의 Cs 수작을 모사하였다. 풍화반응의 시간이 길어질수록, pH가 낮을수록 흑운모의 비조화 용해반응은 증가하지만, 흑운모 내 K의 이온교환에는 각 조건이 큰 영향을 미치지 않는 것으로 관찰되었다. 하지만 수용액 내 다양한 양이온 중 Na은 흑운모 판의 용해에 가장 큰 영향을 주는 이온이며, 또한 K와 이온교환도 증가시켰다. Na와 Mg의 경우 흑운모와 반응하여 팽윤층을 형성하여, 이러한 경우 Cs 흡착량 역시 높게 나타남을 실험결과에서 도출하였다. 이는 지하수 내 다양한 양이온 종의 농도에 따라 발생할 수 있는 흑운모의 구조의 변화가 흑운모 내 Cs 흡착에 영향을 미치고 있음을 지시한다.

4. 감사의 글

본 연구는 2014년도 미래창조과학부의 재원으로 한국연구재단의 지원(핵연료주기사업)을 받아 일부 수행되었다.

조사재시험시설 공기조화 제어반 개조

백상열*, 백승제, 유병옥, 김길수, 정양홍, 안상복, 전용범
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*sybaek1@kaeri.re.kr

1. 서론

조사재시험시설은 하나로 및 상용발전소에서 중성자에 조사된 원자력재료(핵연료 및 재료)를 시험하는 시설이다. 따라서 각종 방사성물질의 시험 및 취급과정에서 발생한 고방사성 물질로부터 주변의 환경을 보호하고 작업자의 피폭을 방지하기 위하여 오염된 공기를 정화하기 위한 특수 공기조화설비를 운영한다. 당시설의 공기조화설비계통 제어반은 장기간 사용으로 성능이 저하되었으므로, 안정적인 가동을 위해 기존 제어반을 철거하고 신규제어반으로 교체하였다. 또한 새로운 제어반에서는 공정계통 가동상태의 감시가 필요한 장소에서 원격감시 및 제어가 가능하도록 기능을 보완하고 성능시험을 완료하였다. 본 논문에서는 신규 제작 사양, 설치과정에서 얻어진 기술자료 등에 대하여 논하였다.

2. 본론

2.1 설치장비 규격 및 사양

2.1.1 신규 제어반 공급 부품

신규로 제작한 제어반의 공급부품은 Table 1 과 같다.

Table 1. Parts list of HVAC control panel newly installed

순번	물품명	수량	단위
1	이중화 PLC (입출력모듈 및 통신모듈 등 일체포함)	1	식
2	온도 인디케이터	14	EA
3	온습도 트랜스미터	4	EA
4	시스템모니터링용 50인치 LCD	1	EA
5	HMI 소프트웨어 패키지	1	COPY
6	HMI 시스템용 PC	1	SET
7	CDMA 모뎀	1	EA
8	CCTV 카메라	5	EA
9	CCTV 녹화용 PC	1	SET
10	리모트 PLC (안전관리실 I/F용)	1	식
11	광컨버터 (RS485 To Fiber)	8	EA
12	누액 감지 센서	6	SET

2.1.2 신규제어반 개조 내용

(1) 기존 공기조화제어반 철거

최단 기간 내에 기존 제어반을 철거하고, 철거 위치에 연구원 감독자의 지시에 따라 신규 제어반을 설치하였다.

(2) 제어반설치 전 입출력시험 및 PLC 프로그램 검토 및 보완

- 기존 제어반 철거 전에 PLC(Programable Logic Control) 프로그램 및 I/O 입출력에 대한 검토를 완료하였다.
- 기존 제어반 철거 전에 라벨링이 되어 있는 와이어에 대해서 라벨링을 실시하였다.
- 기존 제어반 철거 시 사전에 준비한 새로운 라벨투 브을 추가 삽입하여 결선의 오류를 사전 방지하였다.

(3) 신규 공기조화 제어반 및 HMI시스템 설치

(4) 핫셀 배기팬 LOP 제작

기존제어반 철거 후 신규제어반에 대한 시운전 까지 핫셀 배기팬에 대하여 강제적으로 조작이 가능하도록 LOP(Local Operation Panel)를 제작 운영하였다.

(5) 방사능 안전관리실 알람취합용 PLC 제어반 제작/설치

동위원소동 내 방사선안전관리실에 각종 알람 신호를 감시하는 판넬이 설치되어 있다. 금번 개조공사 시에 조사재시험시설 공기조화제어반과 해당제어반을 통신 접속하여 원격으로 알람 신호를 감시하여 신속한 안전대책 마련이 가능하도록 하였다.

(6) HMI 소프트웨어 개발

(7) 시스템 알람 SMS 전송 시스템 구축

HMI(Human Machine Interface) 시스템을 통하여 시스템 입출력신호에 대한 실시간 모니터링을 실시하며, 알람에 대한 SMS(Short Message Service) 전송이 가능한 HMI 소프트웨어를 개발하였다. 중요한 상황 발생 시에 지정된 직원에게 문자메세지가 발송되어 조치토록 하였다.

(8) 신규 공기조화 제어반 시운전

- 각 장치에 대한 수동운전 조작을 검토 실행하였다.

- 수동운전 조작이 정상적으로 확인된 후 자동 운전에 대한 시운전을 시행하였다.
- PID 제어가 필요한 제어기에 대하여 오토 튜닝을 실시하고 최적의 제어가 되도록 제어 계수에 대한 보정을 시행하였다.
- 임의로 강제 알람을 발생시킨 후 정상적으로 알람발생 및 SMS전송이 되는지 확인하였다.
- 클라이언트 버전의 HMI 소프트웨어를 통해서 중앙제어시스템이 실시간으로 모니터링 되는지 확인하였다.

(9) HMI 시스템을 이용한 공기조화 제어시스템 가동 정상화

(10) 누수가 우려 되는 부분의 누액 감지 센서 설치
현장의 누수가 우려되는 부분에 누액 센서를 설치하였다. Leak 발생 시 사용자에게 메시지를 보내도록 하여, 타 시스템에 미치는 영향이 최소화 되도록 하였다.

2.2 기존 제어반 철거 및 신규 제어반 설치

기존 제어반(Fig. 1)은 철거하고, 새로 제작한 제어반(Fig. 2)을 설치하였다. 새 모니터 화면은 Fig. 3과 같고, 새 제어반의 구성도는 Fig. 4와 같다.

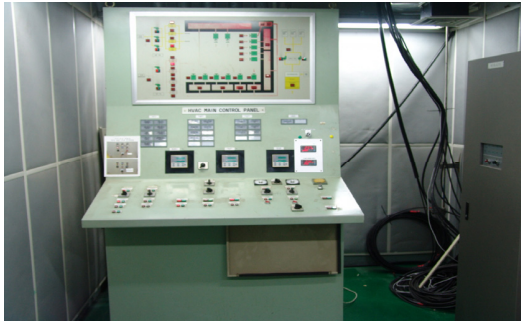


Fig. 1. Former HVAC control panel.



Fig. 2. Newly installed HVAC control panel.

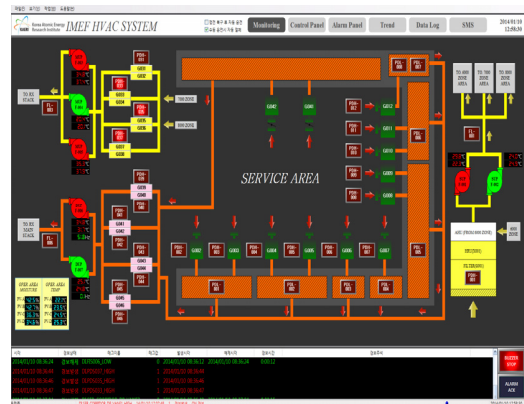


Fig. 3. Schematic diagram of control panel monitor.

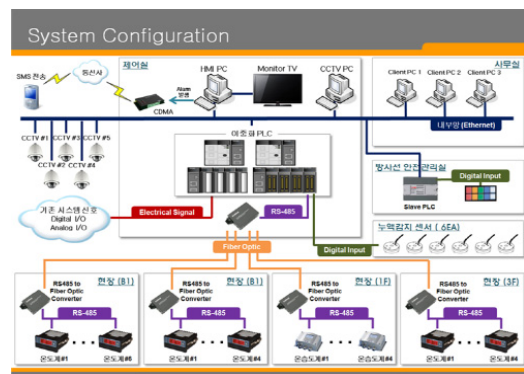


Fig. 4. System configuration of newly installed control panel.

3. 결론

조사재시험시설의 공기조화설비계통 제어반은 장기간 사용으로 성능이 저하되었으므로, 안정적인 가동을 위해 기존 제어반을 철거하고 신규제어반으로 교체하였다. 새로운 제어반에서는 실내 온, 습도 모니터 및 컨트롤 밸브 제어, 베어링 온도 감시, 중요 설비에 대한 CCTV 원격 감시, 누수 우려부분에 대한 누액 센서 설치 및 중요 설비 이상 시 문자 메시지 발송 등 기능을 보완하고 성능시험을 완료하였다. 본 논문에서는 신규 제작 사양, 설치과정에서 얻어진 기술자료 등에 대하여 기술하였으며, 유사 원자력시설의 공기조화제어반 제작 등에 참고가 되기를 기대한다.

경주 처분장 사일로 폐쇄 후 내부환경 변화 연구

하재철*, 정해룡, 정재열

한국원자력환경공단, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*icha@korad.or.kr

1. 서론

2014년 6월 완공을 목표로 건설 중인 중·저준위 방사성폐기물 처분장은 해수면 기준 (-)80~130m 깊이의 대수층에 정치될 예정이다. 6개의 콘크리트 사일로로 구성되며, 사일로는 내부의 방사성핵종의 유출과 지하수 유입을 제한하는 역할을 수행하게 된다. 사일로별 차이는 있지만 콘크리트의 평균두께는 약 1 m로 설계되었다. 사일로 콘크리트 내부에는 매우 미세한 공극 (~100nm)이 생성되어 있어, 높은 모세관 압력이 발생할 것으로 예측된다.

경주 처분장 폐쇄 후 콘크리트 사일로 내부는 구조적으로 안정적인 상태를 유지할 것으로 판단되지만 방사성폐기물이 물과 접촉시 발생하는 기체로 인한 사일로 내부 환경변화 예측은 안정성 측면에서 고려될 필요가 있다. 따라서 본 연구에서는 폐쇄 후 사일로 내부의 환경변화를 대변할 수 있는 압력분포와 가스포화도를 예측하고자 한다. 이를 위해 사일로를 구성하는 각 매질의 특성을 고려하여, 사일로 내부영역으로 국한된 기체이동 상세 모델링을 수행하였다.

2. 본론

2.1 해석대상

시뮬레이션 대상영역은 경주 처분장 전 영역 중, 단일 사일로를 중심으로 하였다. 도메인 영역은 Fig. 1과 같이 방사성폐기물, 쇄석 (crushed-rock), 사일로 콘크리트 (concrete lining), 자연암반 (host rock) 등 총 4개의 매질로 구성되며 2-dimension을 기본으로 한다. 총 1,600개의 격자로 구성되어 있으며 방사성폐기물 격자는 총 220개로 시뮬레이션 기간 동안 일정한 기체발생률을 가진다.

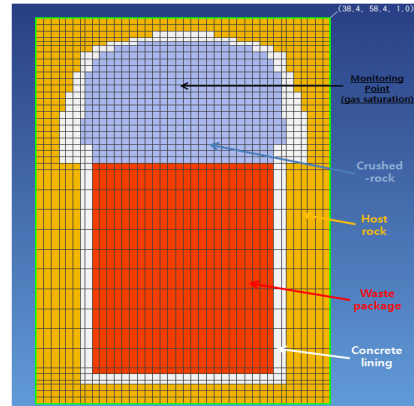


Fig. 1. Domain area.

각 매질별 특성 값은 문헌 값을 참고하였고, 사일로 콘크리트의 relative permeability와 gas entry pressure는 실험에서 직접 도출된 실험값을 사용하였다.

2.2 경계조건 및 초기조건

영역을 둘러싼 경계 조건으로는 불투수 모암층으로 설정하였고, 발생한 기체가 이동 후 경계층에서 발생할 수 있는 오류를 최소화하기 위하여 도메인 가장자리 모암 격자의 체적인자 (volume factor)를 10^{50} 으로 충분히 크게 설정하였다. 폐쇄 후 사일로 내부는 담수로 채워지기 때문에 주위의 수두압과 같은 초기조건을 갖는 조건으로 설정하였고, 실제 지표의 경사와 같은 압력구배를 표현하기 위하여 좌에서 우로 가면서 압력이 감소하는 양상을 띠게끔 압력 초기조건을 설정하였다.

2.3 해석방법

본 연구에서는 범용 다차원 다상 열-수리학적 수치 모델로써 cell-centered 유한체적법을 기반으로 도메인을 구성하는 각 격자의 질량, 에너지 보존 방정식을 해석하였다. 본 모델링에서는 water-hydrogen의 물리학적 특성을 고려하기 위하여

EOS5 모듈을 이용하였고, 모델링 결과의 시각화를 위하여 후처리 프로그램으로 Tecplot을 이용하였다. 다공성 매질의 다상 유동 특성을 결정짓는 모세관압과 상대투과율 함수는 van Genuchten 함수를 사용하였다. 사일로 콘크리트는 내구수명이 1,400년으로 예측이 되는바, 시뮬레이션 종료시점을 사일로 콘크리트의 건전성이 유지되는 1,400년 까지 평가 하였다.

모델링의 선원인 방사성폐기물로부터의 기체발생량은 처분장 안전성분석보고서 (SAR : safety analysis report)를 기준으로 하였다.

2.4 결과

Fig. 2와 같이 시뮬레이션 종료시점인 처분장 폐쇄 후 1,400년에서 압력의 증가는 더 이상 일어나지 않는 것으로 보인다. 수소기체는 계속해서 발생을 하고 있고 콘크리트 방벽의 공극망을 통해 수소기체의 이동이 정상상태에 도달하였기 때문에 전체 압력변화는 나타나지 않는다.

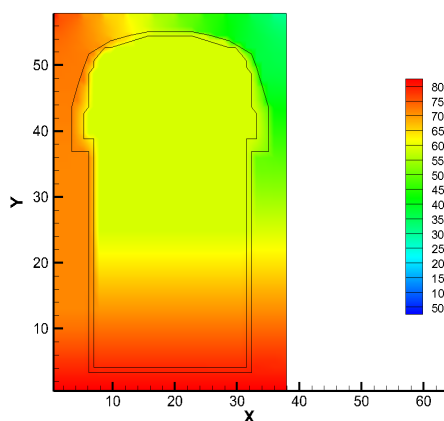


Fig. 2. Spatial distribution of pressure after 1,400 years [Pa].

기체포화도는 수소기체의 특성상 모델링 영역의 상부부터 증가하는 경향을 나타낸다. 사일로 내부의 발생기체가 사일로 상부부터 포화되어 폐기물 부분까지 포화도가 증가하는 현상을 Fig. 3에서 확인할 수 있다. 폐기물부분의 중간 정도까지 포화도의 증가가 확인되고 시뮬레이션 종료시점인 1,400년까지 사일로 내부 전체 포화는 이루어지지 않았음을 확인할 수 있다.

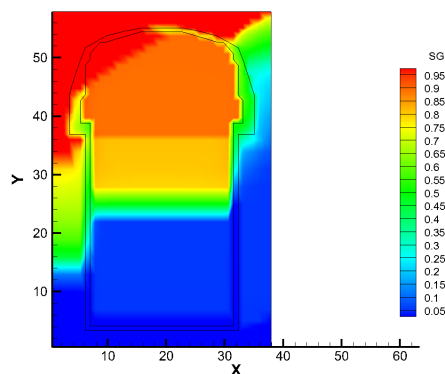


Fig. 3. Spatial distribution of gas saturation after 1,400 years.

3. 결론

사일로 내부압력 변화는 처분시설 폐쇄 직 후부터 사일로 콘크리트 열화 시점인 1,400년 후의 시간까지 내부의 담수에 용해되어 소폭 감소하다 압력이 다시 증가하는 경향은 보이지만 콘크리트 사일로 내구성에 심각한 영향을 줄 정도로 압력이 증가하지 않았다. 또한 기체포화도는 10년을 기점으로 사일로 상부부터 포화도가 증가하는 것을 확인하였다. 포화도 역시 압력변화와 마찬가지로 1,400년이 지난 시점까지 내부 전체가 포화되지 않아 사일로 건전성에 심각한 영향을 끼치지 않는 것으로 고려된다.

4. 감사의 글

본 연구는 2011년도 지식경제부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다.(20111720100010)

5. 참고문헌

- [1] van Genuchten, M. Th. "A closed-Form Equation for Predicting the Hydraulic Conductivity of Unsaturated Soils", Soil Sci., Vol. 44, (1980).
- [2] 한국원자력환경공단, "중·저준위 방사성폐기물 처분시설 안전성분석보고서" (2008).
- [3] 김주엽, "중·저준위 방사성폐기물 처분시설 사일로 콘크리트의 기체이동특성인자 실험연구", 서울대학교 에너지시스템공학부 (2013).

방사성폐기물처분시설 3D 지질환경 모델 구축(1)

이태엽*, 이정환, 정해룡

한국원자력환경공단, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*tylee@korad.or.kr

1. 서론

심지층처분 개념으로 방사성폐기물처분시설을 건설할 경우 지하 심부에 대한 이해가 필요하다. 심부의 지질 분포와 단열대 방향성에 대한 정보는 처분시설의 설계와 안전성 평가 등에 이용된다. 직접적인 지하 심부에 대한 정보는 시추공 자료에 의해 수집될 수 있으며, 간접적인 정보는 물리탐사 등에 의해 수집될 수 있다. 하지만 이들 정보는 평면상에서 표현되며, 지질환경에 대한 정보를 보다 효율적으로 표현하기 위해서는 3D 모델링 구축이 필요하다.

현재 지질학적 대상의 3D 모델링을 위해 GOCAD, 3D GeoModeller, Lynx v4.99와 같은 다양한 S/W들이 개발되어 활용되고 있으며, 본 연구에서는 GOCAD S/W를 활용하였다.

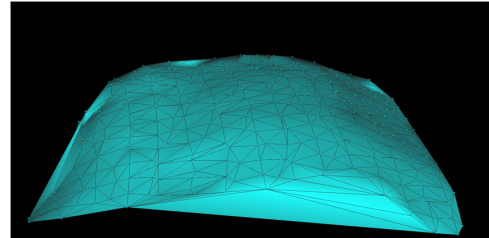
해발고도 -130 m에 건설 중인 중·저준위 방사성폐기물처분시설 부지에 대한 조사는 다양하게 이루어져 있다. 본 연구는 부지 조사 자료를 활용하여 3D 지질환경 모델을 구축하는데 목적이 있다.

2. GOCAD S/W

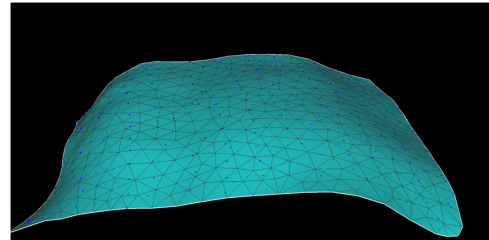
Paradigm사의 GOCAD 프로그램은 최초 석유 탐사에 의한 지질자료를 활용하여 심부 지질 구축을 위해 만들어졌다. 이후 석유 및 가스 탐사뿐 아니라 지질학적 대상의 3D 모델로 발전하였다. 이 S/W는 제한적인 지질 자료가 주어지더라도 지질요소를 이루는 면을 자연스럽게 모델링할 수 있는 DSI(Discrete Smooth Interpolation) 도구를 제공한다. 이 도구는 노드(node) 집합, 연결정보, 벡터 함수, constraint로 구성된 자료를 이용하여 입력된 자료에 영향을 받지 않으면서도 그 값에 근접한 면을 구현하는 특징을 가진다.

다른 3D S/W와 같이 GOCAD S/W도 점(Point)과 선(Curve)을 이용한다. Point와 Curve는 모두 XYZ 좌표를 가지고 있으며, 벡터 함수를 가지고 있다. 이 Point와 Curve 정보와 DSI 도구를 이용하여 면을 생성함으로써 모델링한다(Fig. 1).

국외에서는 “GOCAD 컨소시엄”을 통해 연구 및



(A) direct method



(B) DSI method

Fig. 1. Interpolation method.

응용이 이루어지고 있고, 석유 및 가스, 자원 탐사 기관에서 많이 활용되고 있다. 국내에서는 지질 모델링을 통해 포항 분지에 대해 정량적으로 특성화하고 시각화, 국내 금광상이나 티탄철석광산에 대해 모델링 및 매장량 평가를 시도하였다.

3. 3D 지질모델링

3D 지질모델링은 조사지역을 3D로 표현하여 지질 정보를 가시화하여 나타내는 방법이다. 3D로 표현하기 위해서, 지질 조사를 통해 얻어진 지질 자료를 정리하고, 이 데이터를 활용하여 모델을 구축하였다.

지질자료는 경주 중·저준위 방사성폐기물처분시설 건설과정에서 수행된 자료를 이용한다.

3.1 지질 자료 준비

GOCAD에 입력할 수 있는 지질 자료와 형식은 방대하다. 현재 활용가능한 자료는 지형도, 지질도, 지질단면도, 시추공 자료이다.

지형도는 부지에 대한 위치 정보를 확인하기 위

해 국토지리정보원에서 판매하고 있는 수치지형도를 이용하였다. AutoCAD를 이용하여 GOCAD에 입력할 수 있는 .dxf 파일로 변환하였다.

지질도는 부지에 해당하는 구역만 따로 저장하였다. 또한, 지질단면도 축선 위치를 지질도에 표시하였다. 저장 형식은 이미지 파일이다. 지질단면도 역시 이미지 파일로 준비한다.

부지 내에는 부지조사를 위해 31개의 시추공이 있다. 시추공 입력자료는 시추공 이름, X, Y, Z, marker, MD, 방위각, 경사로 구성된다. Z 값은 해발고도를 나타내며, MD(Measured Depth)는 시추공 최상부에서의 거리를 나타낸다. marker는 지질경계면이나 단열대며 방위각과 경사는 지질경계면과 단열대 방향을 나타낸다. 각 marker에 대한 XYZ좌표와 MD값을 입력한다. 자료 정리의 용이성을 위해 Excel로 작성하였고 메모장 형식으로 다시 저장하였다.

3.2 지질 모델링

최초 수치지형도를 입력하여, 등고선을 추출하였다. 등고선은 Curve로 하여 지형모델을 구축하였다. 지형면에 지질도를 투시하여 이후에 작성된 자료에 대한 위치 확인을 할 수 있게 하였다(Fig. 2).

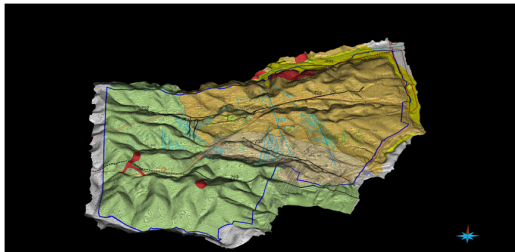


Fig. 2. Topography surface model.

시추공 자료를 입력한다. 시추공 최상부는 시추 위치가 표시되며, 시추 경로가 표시된다. 지질 경계면과 단열대를 표시한 marker는 원반으로 표시된다.

이미지 형식으로 저장된 지질도와 지질단면도는 지도 정치가 필요하다. 지질도를 해발고도 0 m로 설정하고 지질단면도를 축선에 맞게 위치시킨다.

지질도와 지질단면도를 이용하여 단열대와 지질경계면에 대해 Point와 Curve를 입력한다. 입력한 PointsSet과 Curve를 이용하여 구조 모델을 구축하였고, Fig. 3에 나타냈다.

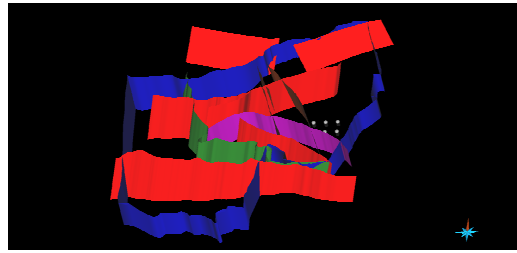


Fig. 3. Structural model for geological interface and deformation zone.

구축범위는 상부는 지표면, 하부는 입력자료가 있는 해발고도 -200m까지이며, 부지경계까지 표현했다. 파란 면은 부지경계를 나타내며 빨간 면은 단열대를 나타낸다. 녹색은 퇴적암과 그 외 암석에 대한 지질경계면이고, 주황색 면은 섬록암과 화강섬록암 경계이다.

4. 향후 계획

구축된 지질 모델을 이용하여, 지질 특성 값을 입력하여 지질환경 정보를 보다 효율적으로 관리, 시각화 한다. 또한, 입력 특성에 따른 영역을 구분하고 구축된 3D 모델을 지하수 유동 모델링, 암석 역학 모델링 등에 활용할 수 있도록 할 예정이다.

5. 참고문헌

- [1] G. Caumon, P. Collon-Drouaillet, C. Le Carlier de Veslud, S. Viseur, J. Sausse, Surface-Based 3D Modeling of Geological Structure, International Association for Mathematical Geoscience, 2009.
- [2] Guillaume Caumon, Francois Lepage, Charles H. Sword, Jean-Laurent Mallet, Building and Editing a Sealed Geological Model, Structure, International Association for Mathematical Geoscience, 2004.

압축드럼 생성시점을 고려한 원전 재포장드럼의 방사능 규명

신성규^{1*}, 문주현², 성석현¹, 권민철¹, 이상훈¹, 김수진¹, 이기형¹

¹한국원자력환경공단, 경상북도 경주시 북부동 116-3

²동국대학교, 경상북도 경주시 석장동 707

*skshin@korad.or.kr

1. 서론

원전에서 초고압 압축설비의 운전으로 생성한 재포장드럼(320ℓ)에는 생성시기가 다른 두 개의 이상의 압축드럼이 장입되어 있다. 재포장드럼의 방사능을 규명하기 위하여 드럼핵종분석기와 더불어 척도인자 방법을 적용하는데, 척도인자는 드럼 생성시기에 적용하는 상관계수라고 할 수 있다. 지표핵종의 방사능이 같더라도 생성시기가 다르면 평가시점에서 각각의 방사능은 다르게 평가된다. 즉, 방사능 평가시점에서 두 드럼의 생성시점에 척도인자를 적용하였을 때 지표핵종(Key nuclide ; 감마핵종)과 DTM(Difficult to measurement nuclide ; 알파-베타핵종) 핵종[1]의 반감기 차이에 의해 방사능이 다르게 평가된다.

따라서 이 논문에서는 압축드럼의 생성시점과 지표핵종 및 DTM핵종 간의 반감기의 차이를 고려하여 실제 재포장드럼의 방사능을 평가하고 그 값이 다르게 평가되는 경우와 그러한 경우 합리적인 방사능 평가 방법을 제시하고자 한다.

2. 본론

2.1 연구 내용 및 방법

2.1.1 하나의 재포장드럼에는 2개의 압축드럼이 내장된 것으로 가정하였으며, 재포장드럼 측정시점으로부터 경과시간이 가까운 드럼은 Drum-1, 경과시간이 먼 드럼은 Drum-2로 나타내었다. 지표핵종 및 DTM 핵종의 방사능 그리고 드럼 생성일은 실제 한울원전 재포장드럼의 생성일을 참고하였다. DTM 핵종의 반감기가 지표핵종의 반감기 보다 긴 경우 척도인자가 적용되면 Drum-1의 방사능이 Drum-2의 방사능보다 높게 나타나고, 지표핵종의 반감기가 DTM 핵종의 반감기보다 긴 경우 Drum-2의 방사능이 Drum-1의 방사능보다 높게 평가되는 반감기 차이에 따른 영향을 고려하였다[2]. 먼저 재포장드럼의 방사능 평가과정

을 도출하였으며, 도출한 과정에 따라 방사능을 평가하여 Drum-1과 Drum-2의 방사능을 비교·분석하였다.

2.1.2 재포장드럼의 방사능 평가과정 도출

재포장드럼 지표핵종 방사능을 측정한다.

- ^{60}Co A : 드럼핵종분석기 측정값

- ^{137}Cs A : 드럼핵종분석기 측정값

압축드럼 생성시점의 지표핵종 방사능을 평가한다.

$$^{60}\text{Co}A_0 = ^{60}\text{Co}A / e^{-\lambda t} \quad (1)$$

$$^{137}\text{Cs}A_0 = ^{137}\text{Cs}A / e^{-\lambda t} \quad (2)$$

압축드럼 생성시점 DTM 핵종의 방사능을 평가한다.[3]

$$^{DTM}A_0 = ^{60}\text{Co} \text{ or } ^{137}\text{Cs}A_0 \times S \cdot F \text{ (Scaling Factor)} \quad (3)$$

재포장드럼 생성시점 DTM 핵종의 방사능을 평가한다.

$$^{DTM}A = ^{DTM}A_0 e^{-\lambda t} \quad (4)$$

생성시점이 다른 2개 압축드럼 각각의 생성시점을 고려하여 재포장드럼 측정시점의 DTM 핵종 방사능을 평가한다.

$$^{DTM}A_1 = ^{DTM}A_{10} e^{-\lambda t_1} \quad (5)$$

$$^{DTM}A_2 = ^{DTM}A_{10} e^{-\lambda t_2} \quad (6)$$

(5), (6)의 방사능을 핵종별로 비교하여 높은 값을 가지는 방사능을 재포장드럼에 포함된 방사능으로 선택한다.

2.2 방사능 산출 및 평가

2.2.1 Co-60이 지표핵종인 경우 방사능 산출

핵종분석기로 측정한 Co-60의 방사능으로 드럼 생성 시점의 방사능을 평가한 값과 이 값에 척도인자를 적용하여 평가한 H-3의 방사능 그리고 H-3의 반감기로 붕괴보정한 핵종분석 시점의 H-3의 방사능 값을 Table 1에 나타내었다.

Table 1. Radioactivity estimation of Co-60 & H-3

Drum	G-day	A-day	Elapsed days	Co-60 Activity at G-day	Co-60 Activity at A-day	H-3 Activity at G-day	H-3 Activity at A-day
Drum-1	2005.03.22	2007.12.04	987	0.17321	0.12140	0.34816	0.29898
Drum-2	2005.08.25	2007.12.04	831	0.16375	0.12140	0.32914	0.28953

* G-day : Generation day, A-day : Assessment day

** Elapsed days : Elapsed days Between G-day and A-day

핵종분석 시점(A-Day)의 Co-60의 방사능과 H-3의 방사능을 합산하여 Drum-1, Drum-2 각각의 방사능을 구하면 0.46956, 0.45054으로서 Drum-1의 방사능이 Drum-2의 방사능 보다 4.05% 높게 나타나는 것을 확인할 수 있었다.

2.2.2 Cs-137이 지표핵종인 경우 방사능 산출 (Cs-137 & I-129)

- 지표핵종의 반감기가 DTM 핵종의 반감기보다 짧은 경우

핵종분석기로 측정한 Cs-137의 방사능으로 드럼 생성 시점의 방사능을 평가한 값과 이 값에 척도인자를 적용하여 평가한 I-129의 방사능 그리고 I-129의 반감기로 붕괴보정한 핵종분석 시점의 I-129의 방사능 값을 Table 2에 나타내었다.

Table 2. Radioactivity estimation of Cs-137 & I-129

Drum	G-day	A-day	Elapsed days	Cs-137 Activity at G-day	Cs-137 Activity at A-day	I-129 Activity at G-day	I-129 Activity at A-day
Drum-1	2005.03.22	2007.12.04	987	0.11108	0.10440	0.0004	0.000433
Drum-2	2005.08.25	2007.12.04	831	0.11000	0.10440	0.0004	0.000428

Table 2에서와 같이 핵종분석 시점(A-Day)의 Cs-137의 방사능과 I-129의 방사능을 합산하여 Drum-1, Drum-2 각각의 방사능을 구하면 0.10044433, 0.100044429으로서 Drum-1의 방사능이 Drum-2의 방사능 보다 0.0004% 높게 나타나는 것을 확인할 수 있었다.

2.2.3 Cs-137이 지표핵종인 경우 방사능 산출 (Cs-137 & Sr-90)

- 지표핵종의 반감기가 DTM 핵종의 반감기보다 긴 경우

Table 3은 핵종분석기로 측정한 Cs-137의 방사능으로 드럼 생성 시점의 방사능을 평가한 값과 이 값에 척도인자를 적용하여 평가한 Sr-90의 방사능 그리고 Sr-90의 반감기로 붕괴보정한 핵종분석 시점의 Sr-90의 방사능 값을 나타낸다.

Table 3. Radioactivity estimation of Cs-137 & Sr-90

Drum	G-day	A-day	Elapsed days	Cs-137 Activity at G-day	Cs-137 Activity at A-day	Sr-90 Activity at G-day	Sr-90 Activity at A-day
Drum-1	2005.03.22	2007.12.04	987	0.11108	0.10440	0.00179	0.00125
Drum-2	2005.08.25	2007.12.04	831	0.11000	0.10440	0.00177	0.00131

Table 3에서와 같이 핵종분석 시점(A-Day)의 Cs-137의 방사능과 Sr-90의 방사능을 합산하여 Drum-1, Drum-2 각각의 방사능을 구하면 0.10565, 0.10571으로서 Drum-2의 방사능이 Drum-1의 방사능 보다 0.06% 높게 나타나는 것을 확인하였다. 즉, Co-60의 경우와 반대로 Drum-2의 방사능이 높게 나타나는 것을 확인할 수 있었다.

3. 결론

이 연구에서는 재포장드럼에 내장된 압축드럼의 생성시점을 고려하여 방사능을 평가해 본 결과 척도인자를 각각의 생성시점에 적용할 경우 방사능이 다르게 평가되는 것을 실제 원전 방폐물의 방사능을 통하여 입증하였다. 즉, 방사능 평가 시점에서 지표핵종의 반감기가 DTM 핵종보다 짧으면 오래된 드럼의 방사능이 높고, 지표핵종의 반감기가 DTM 핵종보다 길면 덜 오래된 드럼의 방사능이 높게 나타났다. 따라서 방사능의 저평가를 방지하기 위하여 두 방사능 중 높은 값을 선택하여 방사능을 구해야 할 것이다.

4. 참고문헌

- [1] IAEA nuclear series No. NW-T-1.18(Determination and use of scaling factor for waste characterization in nuclear power plant), 2009.
- [2] 한국방사성폐기물학회, 2013년 추계학술발표회 논문요약집, pp.293-294, 2013.
- [3] 한수원(주) 발전기술원(과거 발생폐기물의 척도인자 적용방안), 2007.

방폐물 신분류체계를 고려한 동굴처분시설 폐기물 정치방안 설정

박종걸*, 박상수, 김 현

한국원자력환경공단, 경상북도 경주시 북성로 89

*theokhan@korad.or.kr

1. 서론

국내 방사성폐기물은 지난 1994년 국제원자력기구(IAEA)에서 권고한 분류체계[1]를 준용하여 폐기물의 방사능 농도 및 열 발생률 기준에 따라 고준위와 중·저준위 방사성폐기물로 구분하여 관리되고 있다. 그러나 1994년 권고된 분류체계는 모든 종류의 방사성폐기물을 다루고 있지 못하며, 방사성폐기물의 위험도와 처분방식과의 직접적인 연관성을 제공하지 못하는 한계가 있었다.

이러한 단점을 해결하기 위해 IAEA는 2009년 ‘IAEA GSG-1, Classification of Radioactive Waste’[2]를 개정·발간하여 권고하였으며, 방사성폐기물의 장기 안전성과 잠재된 위험성을 고려하여 6개 범주로 분류하고, 각각의 범주에 대한 일반적인 처분방식을 함께 제시하였다.

이에 국내에서도 IAEA 신분류체계를 반영하여 기존의 중·저준위 방사성폐기물 범주를 극저준위, 저준위 및 중준위폐기물로 세분화하여 구분하고, 적합한 처분방식을 제시함으로써 방폐물 관리 및 처분측면의 효율성을 제고하고자 법 개정을 추진 중에 있다.

한편, 2014년 6월 준공을 앞두고 있는 동굴처분방식의 1단계 처분시설은 당초 중·저준위 방사성폐기물을 처분대상으로 하였으나, 방폐물 신분류체계의 국내 적용 및 향후 천층처분방식의 2단계 처분시설 건설을 고려할 때 처분대상 폐기물의 재설정 및 정치계획의 변경이 필요하다.

이러한 대내외적 환경변화를 반영하여 이 논문에서는 1단계 동굴처분시설에 대한 방사성폐기물 처분 기본방향을 설정하고, 이를 바탕으로 중장기 폐기물 정치방안을 제시하였다.

2. 본론

2.1 동굴처분시설 처분 기본방향 설정

다음의 3가지 사항을 고려하여 방사성폐기물 처분 기본방향을 설정하였다.

2.1.1 방사성폐기물 신분류체계 적용

원자력안전위원회에서 준비 중인 방사성폐기물 분류기준(‘방사성폐기물 관리 및 규제해제 기준에 관한 규정’ 고시[3])을 살펴보면, 방사성폐기물을 고준위, 중준위, 저준위, 극저준위 및 규제해제로 구분하며, 각 준위별 처분방식을 규정하고 있다.

Table 1. Revised domestic classification of Rad-waste

분류기준		처분방식 및 처분제한
기존	개정	
고준위	고준위	천층/중간층처분 불가
	중준위	천층처분 불가
중·저준위	저준위	단순매립 형태의 천층처분 불가
	극저준위	단순매립 형태의 천층처분
자체처분	규제해제	소각, 매립 또는 재활용

위 신분류체계를 적용하여 중·저준위 방사성폐기물의 처분방식별 대상폐기물을 설정하였다.

Table 2. The target waste for various disposal method

처분방식	대상폐기물
동굴처분방식	중준위 및 상대적으로 고선량의 저준위 방사성폐기물
천층처분방식	저준위 및 사일로 내 정치가 어려운 방사성폐기물
단순천층방식	극저준위 방사성폐기물

또한, 향후 폐기물 예상발생량 및 동굴처분시설 처분용량을 고려하여 각 처분방식별 대상폐기물의 정량적 분류기준을 설정하였다.

Table 3. Quantitative classification of radioactive waste

처분방식	처분대상	정량적 분류기준
동굴처분방식	중준위/저준위	향후 안전성평가를 통한 처분제한치 재설정
천층처분방식	저준위	표면선량률 0.2mSv/h 이하
단순천층방식	극저준위	규제해제농도 100배 이하

2.1.2 처분시설 단계별 확보계획 고려

중·저준위 방사성폐기물 처분시설의 단계별 확보계획은 아래 표와 같다.

Table 4. Phased construction plan for disposal facility

구분	처분방식	준공예정일	처분규모
1단계	동굴처분방식	'14. 6월	10만 드럼
2단계	천층처분방식	'16.12월	12.5만 드럼
3단계	단순천층방식	'20년 이후	미정

현재 발생자(원전) 여건을 고려할 때 처분시설 운영 초기에는 저선량의 잡고체 및 농축폐액이 주로 인수될 예정이며, 천층처분시설 준공이전에는 동굴처분시설에 우선 처분하고, 향후 동굴처분시설에는 고선량의 폐수지 및 폐필터를 위주로 처분한다.

2.1.3 동굴처분시설 운영 효율성 고려

동굴처분시설 내 사일로 6기 중 2기씩 동시에 운영하며, 200ℓ 드럼(16-pack 처분용기)과 320ℓ 드럼(9-pack 처분용기)은 정치 시 효율성을 고려 가능한 한 각각의 사일로에 구별하여 정치한다.

또한, 울진·고리원전 콘크리트용기 및 고건전성용기 등은 처분용기 없이 사일로 상단에 적재한다.

2.2 동굴처분시설 중장기 폐기물 정치방안

위에서 고려한 방사성폐기물 처분 기본방향을 바탕으로 중장기 방사성폐기물 정치방안을 수립하였다.

2.2.1 2014년 ~ 2017년

2단계 천층처분시설 준공 이전의 기간으로써 발생자(원전) 여건을 고려할 때 '04년 이후 발생한 저선량의 잡고체 폐기물 및 농축폐액 폐기물이 주로 인수될 예정이다. 이러한 폐기물은 천층처분시설 인수대상 폐기물이나, 아직 준공 이전임을 고려할 때 동굴처분시설에 우선 처분한다.

사일로별 방사능 농도를 균등하게 하기 위하여 각각의 사일로에 고르게 분배하여 정치한다. 320ℓ 드럼의 경우 6번 사일로에 정치한다.

2.2.2 2018년 ~ 2024년

복합처분시설(동굴/천층처분) 운영이 본격적으로 시작되는 기간이다. 중준위 폐기물 및 상대적으로 고선량의(0.2mSv/h 초과) 저준위 폐기물을 동굴 처분시설에 처분한다. 고선량의 잡고체, 폐수지 및

폐필터, 폴리머콘크리트 고건전성용기에 포장되거나 폴리머고화 처리된 고선량의 농축폐액이 예상되는 주요 처분대상 폐기물이다.

2.2.3 2025년 ~ 2034년

폐기물 인도규정 수립 이전에 발생한 폐기물이 인수될 것으로 예상된다. 폐기물 인수기준 수립 이전에 발생한 폐기물인 만큼 적용방안에 대한 연구 및 준비가 필요하다.

동굴처분시설에는 상대적으로 방사능량이 높은 폐수지 및 폐필터를 주로 처분한다.

2.2.4 2035년 이후

원자력발전소 해체과정에서 다량의 폐기물이 발생할 것으로 예상되며, 대부분의 경우 단순매립 방식의 천층처분시설에 처분될 것으로 예상되지만, 일부 고방사능의 폐기물의 경우 동굴처분시설에 처분한다.

200ℓ 및 320ℓ 드럼을 처분용기에 적재하여 처분 후(약 24~27단), 각 사일로 상단에 고리 콘크리트용기, 울진 콘크리트 용기 및 고건전성용기(HIC) 등을 처분(약 2~3단)한다.

3. 결론

IAEA 신분류체계의 국내 적용 및 다양한 처분 방식의 처분시설 확보계획을 고려할 때, 기존의 동굴처분시설 처분 및 정치계획은 변경이 필요하다. 본 논문에서는 이러한 대내외적 환경변화를 고려하여 동굴처분시설의 중장기 정치방안을 수립해 보았으며, 향후 각 사일로별 처분대상 폐기물의 Inventory를 세부적으로 설정하고, 처분안전성을 재평가하여 정치계획을 확정할 계획이다.

4. 참고문헌

- [1] International Atomic Energy Agency, IAEA Safety Series No. 111-G-1.1, Classification of Radioactive Waste, 1994.
- [2] International Atomic Energy Agency, IAEA GSG-1, Classification of Radioactive Waste, 2009.
- [3] 원자력안전위원회, 방사성폐기물의 자체처분에 관한 규정 전부개정고시안, 2014.

연소도 이득효과 적용 시 핵연료 오장전으로 인한 핵임계 영향 정량 분석

차길용^{1*}, 김순영¹, 김태만²

¹(주)레드코어, 대전광역시 유성구 테크노중앙로 65 남정빌딩 2차 503호

²한국원자력환경공단, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*mars1222@radcore.co.kr

1. 서 론

사용후핵연료의 수송 및 저장시스템을 대용량화하여 경제성을 향상시키는 방안으로써 국내외에서 연소도이득효과(Burnup Credit, BUC)에 관한 연구가 진행 중이다.

IAEA-TECDOC-1547[1]에서는 연소도이득효과 적용 용기의 핵임계적 불확실도를 평가하기 위해 사용후핵연료의 동위원소 함량 계산에 영향을 주는 전산코드 불확실도, 노심운전이력, 핵연료 특성 등에 대한 핵임계 영향을 고려해야 할 뿐만 아니라, 핵연료 장전 시 작업자 오류를 통해 발생하는 사용후핵연료 오장전도 고려해야함을 명시하고 있다.

이에 본 연구에서는 현재 한국원자력환경공단에서 설계하고 있는 사용후핵연료 21 다발 운반용기를 대상으로 핵연료가 오장전되는 시나리오를 도출하고 그에 따른 핵임계적 영향을 정량적으로 분석하였다.

2. 본 론

2.1 오장전 영향 정량화 평가를 위한 모델링

본 연구에서 핵임계 계산은 MCNP5(build 1.60)[2] 코드를 이용하여 수행되었으며, 계산에 사용된 핵단면적 자료는 ENDF/B-VII를 적용하였다. 핵연료는 600 K 온도의 핵단면적 자료를, 그 외의 물질에 대해서는 상온에서의 핵단면적 자료를 사용하였다. 핵임계 계산을 위한 물질정보 생산에는 ORIGEN-ARP[3]가 이용되었다.

운반용기는 100% 침수된 상태에서 평면방향으로는 용기가 무한하게 배열되어 있다고 가정하였으며, 용기 상·하부는 30 cm 두께의 물로 가정하였다. 용기 내 중성자흡수체는 75%의 성능을 보인다고 가정하였다.

2.2 오장전 시나리오

핵연료는 설계용기의 기준연료인 WH17×17

OFA를 대상으로 선정하였으며, 초기 농축도 4.5 wt%, 연소도 45000 MWd/MTU, 냉각기간 10 년을 기준으로 적용하였다.

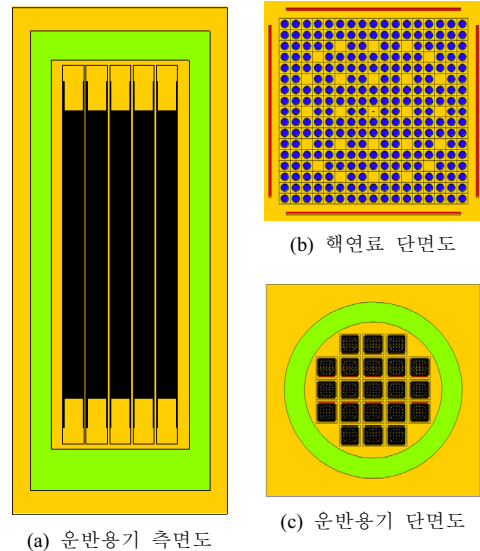


Fig. 1. Modeling for Criticality Calculation by MCNP.

오장전 시나리오 중 기준연료 이하 연소도에 대한 분석은 미 원자력 규제위원회에서 제공하는 NUREG-6955[4]의 방법론과 같이 기준연료의 90%, 80%, 50%, 25%, 10%를 적용하였으며, 신연료의 경우 국내에서 생산되는 경수로 핵연료가 현재 4.5wt%이며, 가까운 미래에 최대 5.0wt%가 될 것으로 예측하여 Table 1과 같이 시나리오를 선정하였다. 각각의 사례에 대해 최대 4개 핵연료집합체가 오장전되는 경우를 가정하여 평가를 수행하였다.

Table 1. Scenarios of Fuel Assemblies Misloaded in transport cask

Case	분류	초기농축도 (wt%)	연소도 (MWd/MTU)
Case 1	기준연료	4.5	40500
Case 2		4.5	36000
Case 3		4.5	22500
Case 4	연소도	4.5	11250
Case 5		4.5	4500
Case 6	신연료	4.5	0
Case 7		5.0	0

오장전에 대한 핵임계 영향 정량화를 위해 식 1과 같이 각각의 사례와 기준 연료가 장전되었을 때의 차를 정의하였다.

$$\Delta k = k_{eff}(Case) - k_{eff}(Reference) \quad (1)$$

2.3 오장전으로 인한 핵임계 영향 정량화 결과

기준연료 21다발이 모두 장전되었을 때 유효증배계수는 0.70357 ± 0.00067 으로 계산되었으며, 이를 적용하여 각 사례에 대한 핵임계 영향을 정량화하면 Fig. 2와 같다. 사례별 핵임계 계산의 표준편차는 모두 0.00080 이하이다.

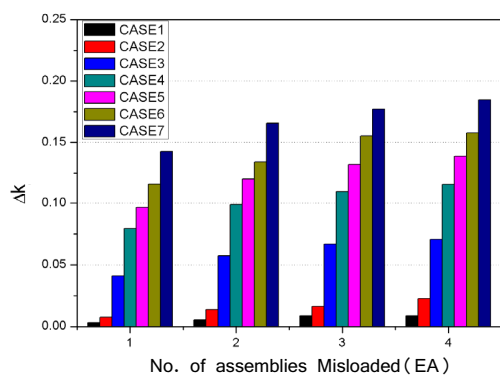


Fig. 2. A Quantitative Analysis of Criticality for Fuel Assemblies Misloaded.

평가 결과 기준연료 이하 연소도 오장전의 경우 Case 1과 2의 Δk 는 0.003 ~ 0.009, 0.005 ~ 0.022 수준으로 유효증배계수가 소폭 증가하였으며, 연소도가 낮아질수록 유효증배계수의 증가량이 커져서 Case 5의 Δk 는 0.09 ~ 0.14 수준임을 알 수 있다.

특히, 신연료가 장전되는 Case 6과 Case 7의 경우, 1개의 집합체가 오장전되는 경우에도 0.12 이상의 높은 유효증배계수 증가량을 보이며, 4개 집합체 오장전 시 최대 0.18 이상 유효증배계수가 증가하였다.

3. 결 론

본 연구에서는 한국원자력환경공단에서 설계하고 있는 21 다발 운반용기를 대상으로 사용후핵연료 오장전으로 인한 핵임계 영향을 정량적으로 분석하였다.

분석 결과, 반응도가 높은 저연소도 핵연료 및 신연료가 장전되는 경우 유효증배계수가 최대 0.18 까지 크게 증가함을 확인하였다. 이는 BUC 적용을 위해 주요 인자로 다루고 있는 노심운전 인자, 축방향연소도 분포 등에 의한 핵임계적 영향을 수 배 ~ 수십 배 상회하는 값이다.

따라서, 국내에서 BUC를 적용하는 용기개발 시 신연료 및 저연소도 핵연료가 오장전되는 사건을 배제할 수 있는 사용후핵연료 운반 및 저장 시스템을 갖추어야만 BUC 적용으로 인한 핵임계적 이득을 기대할 수 있을 것으로 사료된다.

4. 감사의 글

본 연구는 산업통상자원부 산업기술혁신사업의 일환으로 수행되었음.

5. 참고문헌

- [1] IAEA, Advances in Applications of Burnup Credit to Enhance Spent Fuel Transportation, Storage, Reprocessing and Disposition, IAEA-TECDOC-1547, 2007.
- [2] MCNP: A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5 US. LA-CP-03-0245, 2003.
- [3] ORIGEN-ARP: Automatic Rapid Processing For Spent Fuel Depletion, Decay, and Source Term Analysis. Us. ORNL/TM-2005/39, 2009.
- [4] J. C. Wagner, Criticality Analysis of Assembly Misload in a PWR Burnup Credit Cask, NUREG/CR-6955, 2004.

3분과

제염해체 및 방사성폐기물 처리(Oral-1)

KOREAN RADIOACTIVE WASTE SOCIETY

연구로 1호기 해체 및 해체폐기물 관리 현황

황두성*, 정경환, 홍상범, 문제권

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*dshwang@kaeri.re.kr

1. 서론

연구로 1·2호기는 1995년 가동을 중지하고 1997년부터 해체사업을 착수하여, 2009년 1차 사업으로 연구로 2호기와 부속시설의 해체를 종료하였다. 연구로 1호기는 국내 최초의 원자로로서 기념관으로 추진 중이었으나, 그 과정에서 2009년 8월 원자로의 방사선차폐 역할을 하는 수조수가 누출되었다. 그러나 누출된 수조수의 방사능농도는 1.54×10^3 Bq/m³으로 환경에 미치는 영향은 무시할 정도인 것으로 평가되었다. 따라서 연구로 1호기의 모든 방사성물질은 모두 제거하고 대신에 차폐수조 콘크리트 내부에 실물과 동일한 모양의 모형을 설치하는 기념관화 추진 방안으로 변경하게 되었다. 이로써 2011년부터 2014년까지 연구로 1호기 원자로의 해체를 위한 2차 사업을 추진하게 되었다.

본 논문에서는 완료 단계에 이른 연구로 1호기의 해체현황과 연구로 2호기 및 부속시설 발생 해체 폐기물과 연구로 1호기 발생 해체폐기물의 관리현황을 소개하고자 한다.

2. 본론

연구로 1호기 해체의 주요 사업 내용은 원자로심을 포함한 원자로 내부의 모든 구조물과 원자로 내부의 방사화된 콘크리트를 제거하는 것이다. 이와 더불어 발생한 방사성폐기물량을 최대로 감용하고 방사성폐기물 처분장의 인도요건에 적합하게 폐기물을 포장하는 것이다.

연구로 내의 구조물은 Fig. 1과 같이 원자로 내 배관류, 회전시료조사대(RSR), Thermal column 내의 흑연블록 및 알루미늄 컨테이너, 노심주변의 빔포트, 노심구조물, 원자로 내 알루미늄 라이닝, 차폐콘크리트 내부에 삽입되어 있는 철제 차폐판, 빔포트 튜브, 방사화된 콘크리트의 순서로 해체하였다. 원자로 내 구조물은 먼저 제어봉을 위한 유도 및 안내관과 같은 배관류를 제거한 후, 방사능농도

가 높은 RSR을 해체하였다. RSR은 방사능농도가 약 5mSv/h로 높기에 원자로 탱크옆에 위치해 있는 실험수조에 넣고 원격으로 해체 절단하였다.

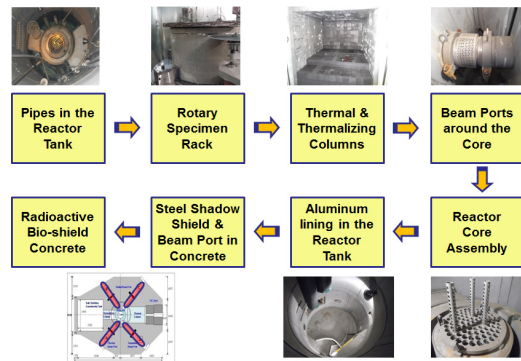
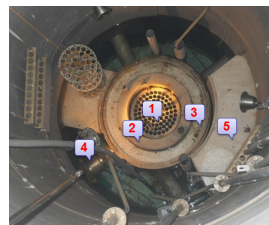


Fig. 1. Dismantling order of KRR-1.



No.	Name	Radioactivity
1	Core grid	0.10 mSv
2	RSR	5.00 mSv
3	Graphite reflector	3.50 mSv
4	Beam port	1.50 mSv
5	Thermal column	0.30 mSv

Fig. 2. Radioactivity of reactor component.

Thermal column을 해체하기 위해서 그 앞에 그린하우스를 설치하였고, column 내의 흑연블록을 빼내어 4M³ 컨테이너에 포장하였다. 그리고 그 안의 알루미늄 컨테이너는 원격으로 작동하는 휠쏘를 사용하여 제거하였다. 원자로심 구조물을 해체하기 위하여 로심 주변의 벨로우즈 및 튜브 형태의 빔포트를 제거하였다.

원자로심 구조물은 로심지지체로부터 해체하여 실험수조로 옮긴 후 로심의 상부와 하부의 grid를 제거한 후 흑연반사체의 알루미늄 용기를 해체 절단하였다. 일체형으로 가공된 흑연반사체는 빼내어 4M³ 컨테이너에 포장하였다. 그리고 로심

지지체를 원자로바닥 콘크리트로부터 해체하였다. 원자로 탱크의 알루미늄라이닝은 글라인더를 사용하여 상부로부터 가로 세로 1.5m의 크기로 절단 해체하였다. 콘크리트 벽과 라이닝 사이에는 약 10 mm 크기 이하의 잡석으로 충전 되어있으며, 이들은 라이닝 가로 세로 20 cm 크기로 구멍을 내서 쉽게 제거할 수 있었다. 콘크리트의 상부는 전혀 오염되지 않았으며, 바닥으로부터 약 1.7m 높이까지 방사화로 오염된 상태였다. 원자로 탱크내의 콘크리트는 철망이 삽입되어 시멘트 모르타르로 마감되어 있어, 이들은 브레이커를 사용하여 제거하였다. 가로 세로 101.6cm, 두께 10.2cm의 철제 차폐판이 차폐 콘크리트 내에 삽입되어 있고 4개의 빔포트 튜브는 각 철제 차폐판을 관통하고 있다. 연구로 1호기의 구조물은 기념관으로 사용될 예정이기에 방사화된 부분만 제거해야만 한다. 따라서 방사화된 콘크리트와 철제 차폐판은 노심 내에서 브레이커를 사용하여 제거하였다. 또한 차폐 콘크리트를 관통하는 빔포트 튜브는 직경 40cm의 코아보링을 사용하여 Fig. 3과 같이 제거 하였다. 현재는 원자로의 내외부의 오염된 콘크리트를 제염 완료한 상태이며, 연구로실 내부 콘크리트를 제염 중에 있다.



Fig. 3. Dismantling of beam port tube.

모든 제염 작업을 완료한 후에는 건물 및 부지를 규제해제하기 위하여 최종방사선능 조사를 수행할 예정이다.

연구로 2호기 및 부속시설 해체공사로부터 발생한 방사성폐기물은 200L 드럼으로 환산할 경우 1,460 드럼에 해당한다. 이들 폐기물은 중,저준위 방사성폐기물 인도규정[1]에 따라 폐기물을 표준화된 포장용기 포장하고 포장물의 구조적 건전성을 입증해야만 한다. 이들 폐기물은 해체 당시 사업기간 및 한정된 예산으로 폐기물의 분류가 제

대로 이루어지지 않아 폐기물의 분류 및 재포장 작업을 수행하였다. 폐기물 중 토양, 콘크리트, 금속폐기물의 경우 오염도 측정 등의 분류 작업을 통하여 방사능농도가 0.4Bq/g 이하인 폐기물에 대해서는 자체처분대상폐기물로 분류 전환하여 폐기물을 감용 처리하였다.

한편 콘크리트 분진이나 집진기에 포집된 잡고체 등과 같은 미세입자 폐기물은 시멘트 모르타르를 사용하여 고정화하였다. 이 같이 95드럼의 미세입자 폐기물을 시멘트 고정화하여 135드럼이 발생하였다.

이들 폐기물은 분류작업을 통하여 재분류 대상 폐기물 1,292드럼 중 45% 폐기물을 감용할 수 있었다. 따라서 연구로 2호기 및 부속시설 해체로부터 발생한 방사성폐기물은 총 649드럼이다. 또한 연구로 1호기를 해체하면서 발생한 폐기물은 119드럼으로 현재까지 발생한 총폐기물량은 726 드럼이다.

이들 폐기물 중 흑연 등 처분장 인도규정에 부적합한 폐기물 등을 제외한 처분 가능한 폐기물은 총 505드럼이며, 이후 해체 마무리과정에서 추가로 발생할 것으로 추정된다.

한편 연구로 2호기 및 부속시설 방사성폐기물의 분류작업과 연구로 1호기 해체를 통하여 발생한 규제해제 대상폐기물은 약 250톤 발생하였다.

3. 결론

국내 최초의 원자로인 연구로 1호기는 기념관으로 추진 중 수소수 누출로 2011년부터 2014년까지 2차 해체사업을 추진하게 되었다. 연구로 1호기는 2호기와 비교하여 낮은 열출력과 적은 가동시간 등으로 인해 방사화 정도가 2호기에 비해 낮은 수준이다. 연구로 2호기의 해체 경험과 낮은 방사능 농도로 예상된 해체계획보다 쉽게 해체할 수 있었다. 또한 그동안의 해체 경험을 통하여 기존에 발생한 폐기물 또한 해체와 병행하여 단순 분류 처리로 감용할 수 있었으며, 1호기의 해체에서도 폐기물량을 2호기 해체와 비교하여 크게 줄일 수 있었다. 막바지에 이른 해체공사를 마무리하고 방사성폐기물을 처분장으로 이송하고 건물 및 부지의 최종 방사선능을 조사할 예정이다.

4. 참고문헌

- [1] 원자력안전위원회고시 제2012-53호, 중,저준위 방사성폐기물 인도규정, 2012.

MCNP/ORIGEN2를 이용한 월성1호기 노심구조물 선원항 계산

노경호*, 김창락, 하창주

한국전력국제원자력대학원대학교, 울산광역시 울주군 서생면 해맞이로 658-91

*nohkyounggho@gmail.com

1. 서론

중수로형 원자로인 월성 1호기는 1983년 4월 22일 최초로 상업운전에 돌입하여 2012년 10월 운전정지할 때까지 약 30년 동안 출력운전을 하였다. 원자력 발전소가 설계수명에 도달하면 설계보강을 통해 운전허가를 갱신하여 계속운전을 하거나, 출력운전을 영구 정지하여 해체하게 된다. 원자력발전소를 해체할 경우 발생하는 폐기물의 분류, 처리, 처분에 막대한 비용이 소요된다. 따라서 폐기물을 처분기준에 따라 합리적으로 분류하고 폐기물 별로 방사선 특성을 평가하여 합리적이고 경제적인 해체시기를 결정하는 전략을 수립하는 것이 중요하다.

중수로형 원자로 내 구조물 중 가장 중성자조사를 많이 받게 되는 부분은 압력관과 칼란드리아관이다. 본 논문에서는 출력운전을 영구 정지하여 해체할 경우를 대비하여, 전산코드를 이용하여 월성1호기 압력관과 칼란드리아관에서 해체시점부터 시간에 따른 방사능의 변화를 계산하여 가장 합리적인 해체시기를 결정하는데 필요한 정보를 제공하고자 한다.

2. 본론

2.1 방사선원항 평가 코드 체계

월성 1호기의 압력관과 칼란드리아관에서의 방사선원항 평가를 위하여 MCNP/ORIGEN2 코드 체계를 사용하였다. 구조물내 방사화 핵종의 시간에 따른 변화는 식 (1)과 같이 표현할 수 있다.

$$\frac{dX_i}{dt} = \sum_{j=1}^N l_{ij} \lambda_j X_j + \Phi \sum_{k=1}^N f_{ik} \sigma_k X_k - (\lambda_i + \Phi \sigma_i) X_i \quad (1)$$

여기서, X_i = atom density of nuclide i,
 N = number of nuclides,
 l_{ij} = decay fraction of nuclide j to i,
 λ_i = radioactive decay constant,
 f_{ik} = neutron capture fraction of nuclide k to I,
 σ_k = spectrum-averaged neutron absorption cross section of nuclide k, and
 Φ = neutron flux,

ORIGEN2 코드는 연소 및 냉각에 의한 핵종 i의 시간에 따른 변화율을 식 (1)을 통해 계산한다. 식

(1)에서 중성자속과 중성자흡수단면적을 제외한 변수들은 모두 상수이다. MCNP 코드를 사용하여 중성자속 및 균축약된 중성자흡수단면적을 계산하면 구조물 내 방사화 핵종량을 계산할 수 있다.

2.2 월성 1호기 노심특성

월성 1호기는 가압중수형 원자로로서 천연우라늄을 핵연료로 사용하기 때문에 냉각재, 감속재, 반사체로 중수를 사용한다. 수평형의 칼란드리아 탱크 안에는 냉각재와 핵연료를 포함하는 핵연료 채널이 380개 존재한다. 각 핵연료 채널은 압력관 및 칼란드리아관으로 구성되어 있고 압력관과 칼란드리아관 사이에는 열차폐를 위하여 이산화탄소 기체가 채워져 있다. 각 압력관 안에는 12개의 핵연료 다발이 장전된다. Table 1에서 핵연료 채널 및 번들에 대한 설계자료를 확인할 수 있다.

Table 1. Design data of Fuel Channel and Bundle

핵연료 채널수	380
핵연료 채널 길이	594.4 cm
압력관 (Zr-2.5% Nb) 내경	10.3378 cm
평균 압력관 두께	0.4343 cm
칼란드리아관 (Zr-2) 내경	12.8956 cm
평균 칼란드리아관 두께	0.1397 cm
냉각재 평균 온도	290℃
Bundle design	37 elements UO ₂
Elements 내경	1.3081 cm
평균 두께	0.0419 cm
UO ₂ 펠렛 외경	1.2154 cm
길이	48.03 cm
UO ₂ 밀도	10.6 g/cm ³

2.3 단일채널 MCNP 모델링

MCNP를 이용하여 단일채널에 대하여 모델링을 수행하였다. 단일채널에서 12개의 연료다발이 묘사되었으며 연료는 모두 신연료를 사용하였다. 채널 내 12개의 영역 중에 중심부에서 압력관과 칼란드리아관에서의 일군 중성자속과 핵반응단면적들을 계산하였다.

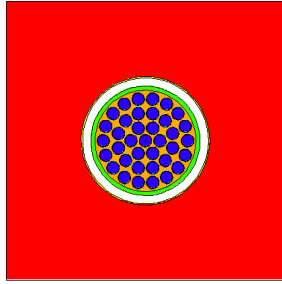


Fig. 1. One Channel Model.

Table 2. One Group Neutron Flux on PT and CT

Element	Neutron Flux($\text{cm}^{-3}\text{s}^{-1}$)
Pressure Tube	4.75E+14
Calandria Tube	1.85E+14

2.4 ORIGEN2 계산 결과

MCNP에서 얻어진 중성자속과 중성자흡수단면적을 이용하여 압력관과 칼란드리아관에 시간 에 따른 방사능의 변화를 계산하였다. 중성자조사 기간은 계속운전을 가정하여 40년으로 계산하였다. 이용률은 계속운전을 위한 정비기간('09~'11)을 제외한 기간의 평균 이용률값(85.8%)을 사용하였다. Table 3에 계산된 결과를 정리하였다.

3. 결론

예비조사를 위하여 MCNP/ORIGEN2 코드체계를 사용하여 월성 1호기의 압력관과 칼란드리아관에 대해 운전정지시점에서부터 시간에 따른 구조물내 방사선택종 변화량을 계산하였다. 구조물 위치에 따른 중성자속의 차이, 물질 조성의 차이, 방사성 물질의 반감기 차이로 인한 방사능 변화 양상을 확인할 수 있었다.

예비조사에서 계산된 압력관과 칼란드리아관의 경우는 Nb-94나 Ni-63의 핵종별 농도가 처분 농도 제한치 이상이므로 중저준위 처분장에 처분될 수 없다. 이러한 결과는 중성자 조사기간, 방사화 핵종의 반감기, 냉각기간에 따라 달라질 수 있다.

Table 4. Activity concentration limit for LILW

핵 종	반감기	처분 농도 제한치 (Bq/g)
H-3	12.32y	1.1E+6
C-14	5730y	2.22E+5
Co-60	5.2714y	3.70E+7
Ni-59	7.4E+4y	7.40E+4
Ni-63	100.1y	1.1E+7
Sr-90	28.90y	7.40E+4
Nb-94	2.03E+4y	1.1E+2
Tc-99	2.11E+5y	1.1E+3
I-129	1.57E+7y	3.70E+1
Cs-137	30.17y	1.1E+6
전알파	-	3.70E+3

보다 더 정확한 계산을 위해 MCNP를 이용한 전노심 모델링을 수행할 예정이다. 압력관 및 칼란드리아관 뿐만아니라 칼란드리아 동체나 외부구조물(End plug, Out side tube 등)에 대해서도 선형항 계산을 수행할 것이다. 구조물 별로 중성자 조사시간과 영구정지 이후 냉각기간을 달리하여 선형항 계산을 한다면 추후에 해체전략을 수립하는데 많은 도움이 될 수 있을 것이다.

4. 감사의 글

본연구는 산업통상자원부의 재원으로 한국에너지기술평가원의 지원을 받아 수행한 연구과제입니다.

5. 참고문헌

- [1] G. Croff, A User's Manual for the ORIGEN2 Computer Code, ORNLTM-7175, Oak Ridge National Laboratory (1980).
- [2] X-5 Monte Carlo Team, MCNP-A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5, LAUR-03-1987, LosAlamos National Laboratory (2003).
- [3] "Design Manual: CANDU 600 Generation Station Physics Design Manual," DM-59-01100, Atomic Energy of Canada Limited, (1980).

Table 3. Specific Activity (Bq/g) of Important Radionuclides in PT and CT at Various Decay Times

	정지 직후	1년	3년	5년	10년	20년	30년	50년
PT	1.05E+11	1.34E+09	5.24E+07	3.79E+07	2.21E+07	1.45E+07	1.31E+07	1.26E+07
Nb-95	5.86E+10	8.76E+08	3.06E+05	1.12E+02	2.86E-07	1.87E-24	0.00E+00	0.00E+00
Co-60	2.17E+07	1.91E+07	1.46E+07	1.13E+07	5.83E+06	1.57E+06	4.20E+05	3.03E+04
Nb-94	9.26E+06	9.26E+06	9.26E+06	9.26E+06	9.26E+06	9.26E+06	9.25E+06	9.25E+06
CT	7.20E+10	2.01E+09	3.04E+08	1.74E+08	5.88E+07	1.42E+07	8.88E+06	7.10E+06
Zr-95	2.00E+10	3.83E+08	1.40E+05	5.12E+01	1.31E-07	8.54E-25	0.00E+00	0.00E+00
Co-60	3.65E+07	3.20E+07	2.46E+07	1.89E+07	9.81E+06	2.63E+06	7.06E+05	5.09E+04
Ni-63	5.94E+06	5.90E+06	5.81E+06	5.72E+06	5.51E+06	5.11E+06	4.74E+06	4.08E+06

원자력시설 해체 부지복원 전략 및 사례 분석

홍상범*, 서범경, 문제권

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*sbhong@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력시설의 해체 후 부지의 재이용하기 위해서는 오염된 부지 및 지하수 등의 영향을 저감하기 위한 부지복원 활동이 요구된다. 부지복원은 해체의 최종 단계로 모든 방사성물질을 제거하여 부지를 운영 전 상태로 되돌리기 위한 활동으로 해체 목적을 달성하고, 부지 및 건물의 재이용을 통해 가치를 창출하는 측면에서 그 중요성이 대두되고 있다. 부지복원은 관련하여 중요한 쟁점은 부족한 문제의 정의, 관련자의 참여 부족 및 부적절한 특성조사 등이 있다. 문제의 정의를 통해서 부지의 최종상태 및 부지복원의 목표를 명확하게 하고, 규제기관, 주민 및 사업자 등의 종합적인 이해당사자의 참여는 부지복원을 위해 필수적인 요소이다. 많은 국가에서 부지복원을 효율적으로 수행하기 위해 국가 정책 및 개방기준을 수립하기 위해 노력하고 있다 [1,2].

본 연구에서는 OECD/NEA CPD(Co-operative Programme on Decommissioning)의 Task Group on Nuclear Site Restoration에서 2012년부터 2년 간 수행한 결과를 요약하였고 실제 부지복원 경험을 바탕으로 해체사업의 준비 및 수행과정에서 고려해야 사항을 검토하였다. 국내의 경우 해체 및 관련제도를 준비하는 단계에서 해외 선진국의 부지복원 전략 및 경험을 바탕으로 관련 정책을 수립하는데 유용하게 활용될 수 있을 것으로 판단된다.

2. 본론

2.1 해체 부지복원 단계

원자력시설의 해체 후 부지복원을 효율적으로 수행하기 위해서는 위해물질이나 방사선학적 물질의 접근방식에 사용된 선원-경로-피폭자의 관계를 고려해야 한다. 이를 위해서는 다양한 단계로 구분하여 정보를 수집 분석하고, 수행내용을

확인하여 문제 해결 방안을 도출하여야 한다.

부지복원은 아래의 Fig. 1과 같이 6단계로 구분하여 수행하게 된다. 문제의 정의, 복원 조사, 복원 계획 수립, 복원 활동, 사업종료 및 제도적 관리 단계로 구분할 수 있다.

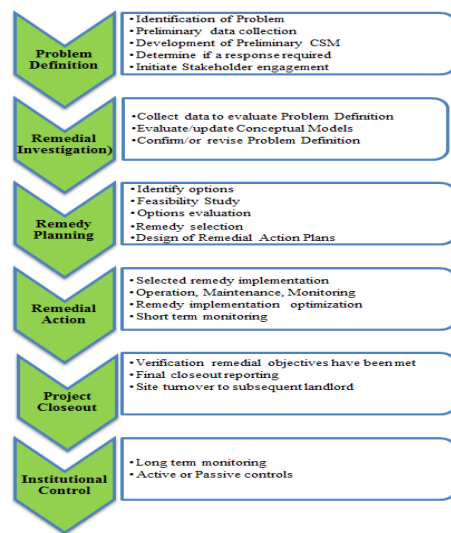


Fig. 1. Site remediation phase of project.

2.2 해체 부지복원 전략 및 사례

원자력시설의 해체 후 부지복원을 위한 규제체계, 정책에 대하여 분석을 수행하였다. 미국, 프랑스, 독일은 부지 복원의 목적은 부지 및 지하수를 보존하여 녹지(Green field)를 조성하고 효율적으로 위해도(Risk)를 저감하는 것을 목표로 하고 있으며, 캐나다 등과 같이 부지의 재이용 목적에 따라 사안별로 목표를 정하기도 한다. 부지복원에 소요되는 비용은 상용시설의 경우 사업자가 부담하고, 핵무기 관련 시설에 대해서는 정부가 부담하고 있다. 대부분의 국가에서 부지 복원을 위해서 규제기관 및 이해당사자의 참여를 통해 부지복원 계획을 수립하고 허가 신청 및 승인 과정이 필요하다. 부지복원 시점과 관련하여 규제제도,

환경보전, 위해도 저감 및 국가 전략 등이 중요한 인자로 평가되었다. 부지복원을 저해하는 요인으로 시급성, 규제제도, 처분장의 부족 및 이해당사자의 의견 등이 제시되었다. 구체적으로 부지 개방기준에 대한 합의, 경제적 제원, 폐기물처분을 위한 기술 등이 있다.

부지복원 경험을 바탕으로 조사에 참여한 12개 국가 28개 부지복원 사례에 대하여 분석을 수행하였다. 미국의 Hanford 및 영국의 Sellafield 등의 광역부지에 대한 복원이 수행되고 있으며 소규모(10,000m²)이하의 부지도 전체 부지 중 60% 이상을 차지하고 있다. 부지 복원 기간과 관련하여 30년 이내에 사업을 종료할 것으로 예상되는 부지가 48%인 반면 60년을 초과할 것으로 평가된 부지도 30%로 조사되었다. 부지 조사과정에서 ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, 우라늄 동위원소 등이 부지 및 지하수에서 검출되었고, 그 이외에 ³H, ¹⁴C, ⁶⁰Co, ⁹⁹Tc, ¹²⁹I, ²²⁶Ra 및 TRU 핵종이 조사대상으로 평가되었다. 부지복원 후 재이용과 관련하여 47%는 원자력시설 부지로 유지하고 있으며 무제한적 규제해제는 13% 정도이다. 이러한 부지복원 경험을 바탕으로 진행 중인 복원사업의 및 향후 해체 사업의 비용 최적화를 위해서는 오염의 확산을 방지하고 폐기물 발생을 저감, 상세한 특성조사, 부지복원 계획수립, 부지복원 후 부지 및 지하수 감시(monitoring), 규제제도의 수립 및 이해당사자의 관계 등이 중요한 인자로 평가된다.

Table 1. Case studies of task group members

국가	대상 부지	세부 사항
프랑스	CEA, Grenoble STED	액체폐기물처리 시설 복원
영국	Windscale Trenches, Sellafield	폐기물 처분시설 복원
미국	648-10 Burial Ground, Hanford	재처리 시설 복원
한국	Uranium Conversion Plant, Daejeon	핵연료 제조시설 해체 후 복원

해체 부지 복원을 효율적으로 수행하기 위해서 요구되는 연구 개발과 관련하여 부지 특성조사, 감시 및 복원 기술 등이 요구된다. 부지 특성조사 및 감시 기술과 관련하여 요구되는 연구개발 주

제는 다음과 같다.

- 부지오염특성에 대한 3차원 오염지도 작성
- 시료 채취 저감을 위한 측정
- 토양 및 지하수 오염 이동 평가
- 접근이 어려운 지역에 대한 특성조사
- 원격센서 및 위성기술을 이용한 부지 감시
- 부지의 오염을 제거하기 위한 복원 기술 개발에 요구되는 연구개발 주제로는
- 이동성 핵종(³H, ³⁶Cl 및 ¹²⁹I) 제거
- 지하수 정화, 폐기물 부피저감
- 오염 확산 방지를 위한 지하수 유입 방지
- 운영시설 부지 내부 복원 기술

3. 결론

원자력시설 해체 후 광역 부지 및 건물에 대한 부지복원 효율적으로 수행하기 위한 단계별 수행내용을 확인하였고, OECD/NEA에서 수행한 국가별 부지복원 정책 및 사례분석을 수행하였다. 부지복원의 최종 목표는 무제한적 개방을 통한 녹지를 조성하는 경우가 많고, 사안별로 평가하는 경우도 있다. 해체 및 복원에 소요되는 비용은 부지 특성에 따라 상용시설의 경우 사업자가 부담하고 핵무기 관련 시설의 경우 정부가 부담하고 있다. 실제로 부지복원이 수행된 국가별로 사례를 조사하였고 부지복원 최적화를 위해서는 특성조사를 통한 복원계획을 수립하고 관련 제도를 수립하여야 한다. 또한 특성조사 및 감시 기술, 오염제거를 위한 복원기술 등에 대한 연구개발과 더불어 부지복원 초기 단계에서 이해당사자의 참여를 통한 복원계획의 수립이 요구된다.

4. 참고문헌

- [1] OECD/NEA, RWM, Nuclear site remediation and restoration during Decommissioning of Nuclear Installations, 2014. 04(under publication).
- [2] U. S. NRC, EPA, DOE: MARSSIM, Multi-Agency Radiation Survey and Site Investigation Manual, NUREG-1575, Rev1, EPA 402-R-97-016, Rev.1, DOE/EH-0624, Rev.1 (2000).

원자로압력용기 해체를 위한 일체형 원격 절단 시스템 연구

현동준*, 이성욱, 서용철, 김근호, 이종환, 정관성, 최병선, 문제권

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*dongjunn@kaeri.re.kr

1. 서론

장기간 운전으로 인해 수명이 다하여 해체 대상이 된 원전 핵심설비는 고준위로 방사화되어 작업자의 접근이 매우 제한되므로 해체 시 원격 절단 시스템이 적용되어야 한다. 작업자의 피폭을 줄이기 위해 원격 절단 시스템에 적용되어야 함에도 불구하고 원격 절단 시스템의 설치 및 제거와 같이 복잡한 작업에는 작업자가 투입될 필요가 있으며 이러한 작업들은 전체 해체 공정의 경제성과 안전성을 매우 악화시킨다. 기존의 원격 절단 장비들은 하나의 단위 공정만을 처리하기 위해 개발되었기 때문에 전체 해체 공정을 진행하는 동안 수차례의 원격 절단 장비의 설치 및 제거 작업이 필요하므로 해체 공정의 경제성과 안전성을 향상시키기 위해 새로운 개념의 원격 절단 시스템에 대한 연구가 필요하다.

본 연구에서는 해체 공정 초기에 한 번 설치하여 설치된 장비의 제거나 추가 장비의 설치 작업 없이 원자로압력용기와 관련된 원격 해체 전 공정을 취급할 수 있는 일체형 원격 절단 시스템의 개념과 구조를 제안하고자 한다. 본문에서는 이 일체형 원격 절단 시스템의 구성을 제안하고 3D 그래픽 공정 시뮬레이션을 통해 시스템의 가능성을 검증한 내용을 기술한다.

2. 본론

2.1 일체형 원격 절단 시스템 구성

본 연구에서 제시한 일체형 원격 절단 시스템은 Fig. 1과 같이 원자력 발전소 격납건물 내 원자로 수조에 핵연료 재장전 작업 시 내부구조물집합체를 저장하기 위해 확보해 놓은 7.2 m × 5.5 m 공간에 설치된다. 이 시스템은 circular saw와 band saw와 turn table과 gantry manipulator와 waste container로 구성되며 Fig. 2에 도시된 바와 같이 Turn table을 제외한 모든 구성요소는 원자로압력용기와 같은 대형 구조물의 동선을 확보하기 위해 한 쪽 벽면에 배치된다. 배치 순서는 원자로 공동에 가까운 쪽부터 circular saw, gantry

manipulator, waste container, band saw 순서이다.

Circular saw가 원자로 공동 쪽으로 가장 가까이 배치되는 이유는 circular saw의 높이가 가장 낮기 때문에 원자로압력용기와 같이 대형 구조물을 원자로 공동에서 인양하여 일체형 원격 절단 시스템의 turn table로 이송할 때 원자로압력용기를 들어 올리는 높이를 최소화하기 위함이다. 원자로압력용기와 내부구조물집합체는 고도로 방사화되어 있기 때문에 원자로수조의 수중에서 이송 및 절단 작업이 이루어져야 하나 길이가 매우 길기 때문에 인양 높이를 최소화하여 이송해야 원자로수조 밖으로 노출되는 부분을 최소화할 수 있다. 따라서 대형 구조물이 반입되는 입구에 높이가 가장 낮은 circular saw를 배치해야 대형 구조물의 인양 높이를 최소화할 수 있다.

Gantry manipulator는 gantry를 통해 원자로수조의 수면 위로 올라올 수 있고 원자로수조의 바닥까지 내려갈 수 있고 수중에 배치된 circular saw의 톱날을 원격으로 교체할 수 있는 유일한 수단이 되기 때문에 circular saw 옆에 배치된다. 또한, turn table의 중심에 가까이 배치되어야 팔길이를 최소화할 수 있기 때문에 Fig. 2에 배치된 위치가 최적이다.

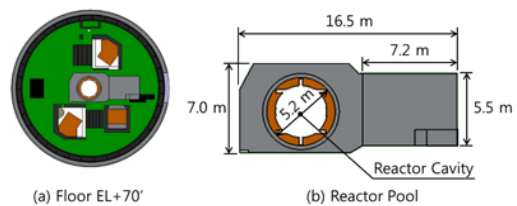


Fig. 1. Reactor Pool.

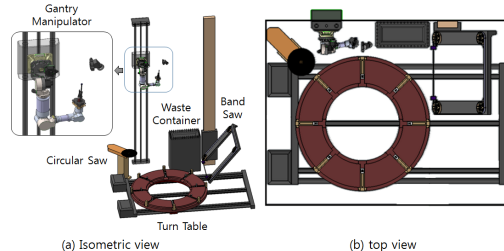


Fig. 2. Seamless Remote Dismantling System.

Waste Container는 최종으로 세절된 폐기물을 저장 하므로 세절된 폐기물의 동선을 단순화하기 위해 세 절 장비와 가까이 배치된다. Gantry manipulator는 유압 절단기와 워터젯으로 세절을 하고 band saw는 절단된 원통형 구조물과 판형 구조물을 세절하기 때 문에 최종 세절장비에 해당되므로 waste container는 gantry manipulator와 band saw 사이에 배치되는 것 이 최적이다.

Band saw는 절단 장비 중 가장 큰 부피를 차지하 므로 대형 구조물과 간섭을 피하기 위해 작업 공간 의 모서리에 배치되어야 한다. 특히 높이 방향으로 큰 부피를 차지하므로 원자로압력용기와 같이 높이 방향으로 부피가 큰 구조물과 간섭을 피하기 위해 서는 가능한 모서리에 치우치도록 배치되어야 한다. 단 절단된 원통형 구조물을 효율적으로 세절하기 위 해서는 원통형 구조물의 중심과 band saw의 톱날이 일치될 수 있도록 배치되어야 한다.

Turn table은 일체형 원격 절단 시스템의 핵심이 되는 장비로 각 절단 장비로 절단 대상 구조물을 회 전 및 직선 이송한다. Circular saw로 원통형 구조물 을 절단하기 위해서는 turn table의 회전 이송 기능 이 필요하고 gantry manipulator로 내부구조물집합체 의 튜브를 절단하기 위해서도 turn table의 회전 이 송 기능이 필요하다. 특히 gantry manipulator와 turn table의 협업은 manipulator의 팔 길이를 최소화 하 면서 큰 작업영역을 구현할 수 있도록 한다. Band saw로 절단된 원통형 구조물과 판형 구조물을 세절 하기 위해서는 turn table의 직선 이송 기능이 필요 하다.

2.2 원격 절단 공정 시뮬레이션 결과

본 논문에서는 제시된 일체형 원격 절단 시스템 의 기능을 검증하기 위해 3D 그래픽 공정 시뮬레 이션을 사용하였다. (Fig. 3 - 5 참조)

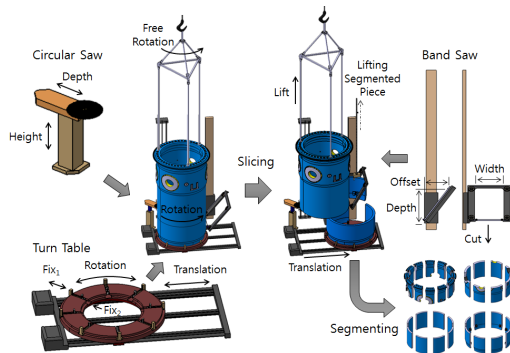


Fig. 3. Segmenting Process for Reactor Vessel.

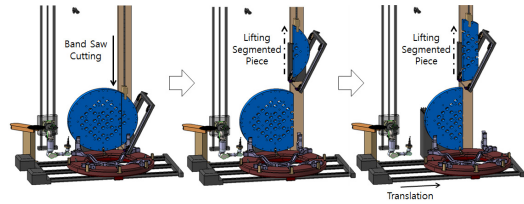


Fig. 4. Segmenting Process for Plate.

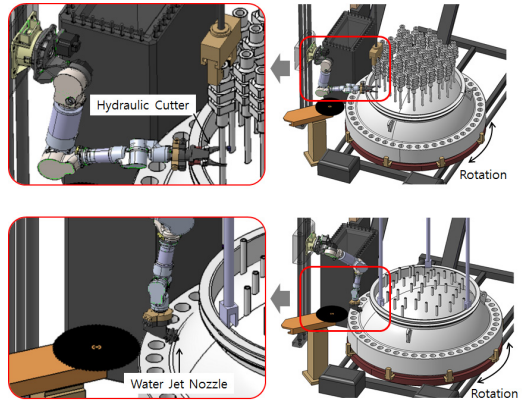


Fig. 5. Cutting Process of Gantry Manipulator.

3. 결론

본 일체형 원격 절단 시스템은 해체가 진행되는 중에 설치된 장비의 제거나 추가 장비의 설치 작 업을 필요로 하지 않고 원격 절단 대상을 한 번 고정하여 절단 및 세절 작업을 수행하므로 해체 공정에 소요되는 시간과 비용의 절감 뿐 아니라 작업자의 안전성과 피폭량 저감에 크게 기여할 것으로 기대된다.

4. 감사의 글

The research was supported by the Nuclear R&D Program through the Ministry of Science, ICT & Future Planning.

5. 참고문헌

- [1] Radioactive Waste Management Committee, Remote Handling Techniques in Decommissioning, 2011.
- [2] Chabal et al., , Virtual Reality Technologies: A Way to Verify and Design Dismantling Operations. International Journal on Advances in Intelligent Systems 4, 343-356, 2011.

원자력 발전소 주요 부품의 해체 시뮬레이션을 위한 CAD모델의 절단 방법

김익준*, 김근호, 문제권, 서재석, 이종환, 정관성, 최병선, 현동준
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*ikjunekim@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력 시설 해체공정은 비용 및 시간이 많이 소요되고 위험한 공정이므로, 시뮬레이션을 통한 공정 최적화 과정을 통해서, 비용과 시간을 절감하고 공정의 위험성을 미리 평가하여, 안전성을 향상시키는 과정이 필수적이다. 원자력 시설 해체공정에는 반드시 대형 구조물을 절단하는 공정이 포함되지만 기존의 공정 시뮬레이션 프로그램에는 절단공정을 시뮬레이션할 수 있는 기능이 없기 때문에 해체공정에 적용하기 힘들다.

본 연구는 공정 시뮬레이션 프로그램이 원자력 시설 해체 모든 공정을 다룰 수 있도록 절단공정 시뮬레이션 알고리즘을 제시한다.

2. 본론

2.1 모델 절단 방법

원자력 시설의 주요 부품의 절단공정 시뮬레이션 알고리즘은 다음 요구 조건을 만족하여야 한다.

- 절단공정에서 발생하는 절삭 현상을 표현
- 발생하는 2차 폐기물의 양을 예측
- 절단된 구조물을 반복적으로 다시 절단하더라도 안정성을 보장

이와 같은 요구 조건을 만족하도록 본 연구에서는 절삭 형상을 절삭 공구와 절삭 경로를 이용하여 solid로 모델링하고 절단 대상으로부터 Boolean remove 연산을 수행함으로써 두께와 깊이가 있는 물리적 절삭 형상을 표현하였다.

절단 대상과 절삭 형상을 Boolean intersect 연산을 수행하여 교차하는 형상의 부피를 구하고 절단 대상의 밀도를 곱하여 2차 폐기물의 발생 중량을 예측하였다.

일반적인 CAD파일은 specification history에 과거 연산 정보를 저장하여 형상을 변경 시 파라미터 수정으로 손쉽게 형상을 변경할 수 있으나 연산을 반복하는 회수 만큼 specification history의 용량이 증가

하므로 원전 해체공정과 같이 대형 구조물을 수백회 이상 절단할 경우 데이터 용량 증가로 인한 불안정성을 야기할 수 있다. 따라서 본 연구에서는 specification history를 갖지 않는 geometry 정보만을 사용하여 반복적으로 절단하더라도 용량이 증가하지 않도록 하였다.

2.2 알고리즘의 구현

모델 절단 방법은 다음의 개발 환경에서 구현되었다.

- OS: Windows 7 x64
- 개발 언어 및 라이브러리: C++; CAA
- 시뮬레이션 SW: Delmia V5R21

Delmia는 Dassault System에서 개발한 시뮬레이션 도구로써 공정 계획, 개선 및 검증 분야에 주로 사용된다[1]. CAA (Component Application Architecture)는 Delmia의 API로써 개발 플랫폼에 독립적으로 프로그램 개발을 가능하게 한다.

Fig. 1은 band saw를 이용하여 원통형 절단 대상을 절단하는 예제이다. Fig. 1의 절삭 형상이 절삭 공구와 이송 경로를 기반으로 생성된 모델이다.

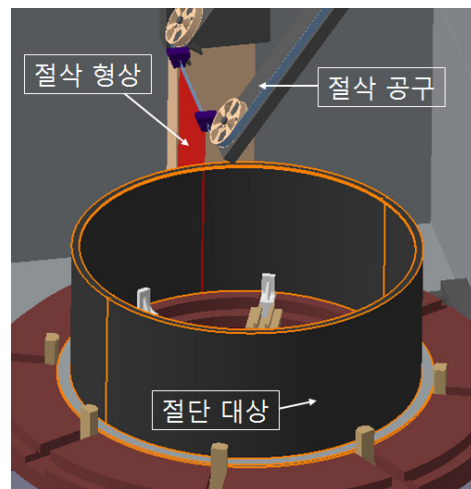


Fig. 1. An Example of the cutting simulation.

Fig. 1의 절단 대상과 절삭 형상을 기반으로 시뮬레이션을 실행하게 되면 Fig. 2의 결과를 얻을 수 있다. Fig. 2의 점선으로 표시한 부분에서, 원통형의 절삭 대상이 절삭 공구의 이동 경로에 따른 절삭 형상에 따라 절단된 모습을 확인할 수 있다.

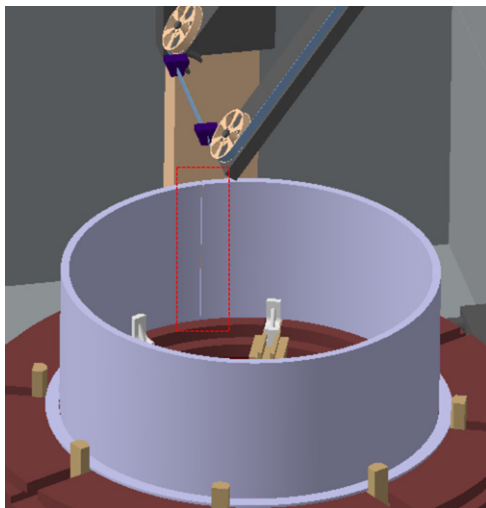


Fig. 2. Cutting simulation result.

Fig. 1과 Fig. 2를 이용해 나타낸 Band Saw의 경우뿐만 아니라, 원전 주요 부품 해체에 사용될 수 있는 Circular Saw, Hydraulic Cutter 등의 경우에 대해서도 본 연구의 절단 알고리즘을 적용하여 구현하였다.

3. 결론

본 연구는 기존 공정 시뮬레이션 프로그램이 갖고 있지 않는 절단 시뮬레이션 모듈을 개발하기 위해서 수행되었다. 원전 해체 시뮬레이션 과정에 필요한 정보를 기반으로, 모듈의 작동 요구 조건을 정의하였고, 요구 조건을 기반으로 상용 CAD kernel을 이용해서 절단 시뮬레이션 알고리즘을 구현하였다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 재원으로 시행하는 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고 문헌

[1] 류근영, 김천영, 정나현, 주현준, 김병수. DELMIA

을 이용한 유도 무기 조립 시뮬레이션. 2008년 한국항공우주학회 학술발표회 논문집, pp. 1220-1223, 2008.

원자력시설 해체계획서 작성지침 개발방향에 대한 고찰

안상면*, 이정준, 육대식, 정찬우, 이병수

한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 과학로 62

*k270asm@kins.re.kr

1. 서론

국내 가동중인 원전의 경우, 2030년까지 12기의 원전이 설계수명 만료 예정(계속운전 미반영)이며, 월성 1호기의 경우, 현재 계속운전 여부에 대한 심사가 진행 중에 있다[1,2]. 또한, 2011년 3월 발생한 일본 후쿠시마 원전사고 이후 노후 원전에 대한 안전성과 해체에 대한 일반인의 관심이 급속히 증가하면서 1978년 국내 최초로 상업운전을 시작하여 2007년 계속운전 승인 후 운영 중인 고리 1호기의 안전성을 우려하는 분위기가 있다.

2011년 7월, IAEA 통합규제검토서비스(IRRS, Integrated Regulatory Review Service) 수검 결과, 아래와 같은 권고사항이 도출되었다[3]. 이는 “규제체계가 원자력시설의 건설 및 운영에 대하여 해체계획을 요구해야 하고, 해체계획은 주기적으로 개정되어야 한다.”는 내용이며, 이와 관련하여 국내 원자력시설의 해체제도 및 규정 정비의 필요성이 대두되었고 후속조치가 진행 중에 있다.

본 연구에서는 국내 원자력시설 해체 관련 규제 제도개선의 일환으로 원자력시설 해체계획서 작성지침에 관한 기술기준 개발을 위한 기본방향을 수립하였다.

2. 본론

2.1 원자력안전법령의 해체계획서

원자력안전법 제28조(발전용원자로 및 관계시설의 해체)제2항에 해체계획서에 포함될 내용을 다음과 같이 규정하고 있다[4]. 1) 발전용원자로 및 관계시설의 해체방법 및 공사일정, 2) 방사성물질 및 그에 따른 오염의 제거방법, 3) 방사성폐기물의 처리·처분방법, 4) 방사선으로부터의 재해를 방지하는 데에 필요한 조치, 5) 방사성물질등이 환경에 미치는 영향의 평가 및 그 대책, 6) 발전용원자로 및 관계시설의 해체에 관한 품질보증계획, 7) 그 밖에 위원회가 정하는 사항

연구용원자로의 경우에는 원자력안전법 제34조(준용)에 따라 원자력안전법 제28조의 규정을 준

용하며 원자력안전법 제42조(핵연료주기시설의 해체) 제2항에 핵연료주기시설의 해체계획서에 포함될 내용이 규정되어 있고 그 내용은 발전용원자로 및 관계시설과 유사하다. 원자력안전법령에 해체계획서에 포함될 내용들을 포괄적으로 언급하였지만 원자력시설 해체계획서 작성을 위한 상세지침이 없는 실정이다. 원자력시설은 생애(lifetime)에 따라 부지선정, 설계, 건설, 시운전, 운영 그리고 해체로 구분 가능하며 해체계획서는 해체단계에서 가장 중요한 안전성관련 문서이다. 국제원자력기구는 원자력시설 설계단계부터 해체를 고려한 해체계획서가 작성되고 운영자는 시설의 생애(lifetime)에 따라 주기적으로 해체계획서를 업데이트(갱신)하도록 권고하고 있다[5].

2.2 국외 원자력시설에 대한 해체계획서

국제원자력기구는 시설해체 관련 일반안전요건(GSR Part 6, Decommissioning of Facilities)을 개발하여 조만간 안전기준으로 발간할 예정이며 해체계획서와 관련된 작성양식과 내용에 대한 안전보고서(Safety Report Series No.45, Standard format and content for safety related decommissioning documents)를 2000년대 중반에 발간하였다. 그 보고서에 따르면 해체계획서에 포함될 상세내용 뿐만 아니라 해체 안전성과 연관된 관련 문서들에 대한 내용도 상세히 언급하였다. 예를 들면, 방사성특성화계획(Characterization plan), 최종방사성조사보고서(Final radiological survey report) 등이 포함된다[6].

미국의 경우, 허가소지자(licensee)는 원자로의 영구정지를 결정하는 날로부터 30일 이내에 규제기관(NRC)에 영구정지증명서 제출을 통해 영구정지일을 통보해야 하며, 영구정지 결정일로부터 2년 이내에 규제기관(NRC)에 영구정지후 해체활동보고서(PSDAR, Post-Shutdown Decommissioning Activity Report)를 제출해야 한다[7]. NRC의 관련 규제지침(Reg. guide 1.185)에 따르면, 영구정지후 해체활동계획서(PSDAR)에 기재될 사항은 다음과 같다. 1) 계획된 주요해체활동, 2) 해체활

동 종결일정, 3) 예상해체비용, 4) 논의-환경영향평가. 규제기관(NRC)은 허가자가 제출한 영구정지후 해체활동보고서를 연방관보에 게재하고 대중설명회(public meeting)을 개최한다. 원전해체 규제체계 및 절차가 미국의 상황에 맞게 특성화되어 있기 때문에 영구정지후 해체활동보고서를 국제원자력기구가 권고한 해체계획서에 상응하는 문서로 간주하기에는 무리가 있다.

독일의 경우, 원자력법에 허가받은 원자력시설을 해체하고자 하는 경우에는 인허가를 받아야 한다고 규정하고 있다. 원자력시설 해체에 적용되는 규정은 원자력법을 근거로 방사선방호령, 원자로 인허가 설치령, 환경영향평가법, 해체지침 등이 있고 해체전략(방식)은 해체(dismantling)와 안전저장(safe enclosure)이 가능한 것으로 원자력법에 규정하고 있다. 원자력법에 따른 해체지침 부록 4(Annex 4)에 원자력시설 해체 인허가신청을 위한 문서 목록이 제시되어 있다. 여기에는 신청서식, 안전성분석보고서, 해체기술 및 절차, 재정확보방안, 잔여방사성물질, 환경영향평가보고서 등 많은 문서가 원자력시설 해체인허가 신청시 요구된다[8].

프랑스의 경우, 원자력안전투명법에 기본원자력시설의 영구정지와 해체는 허가를 받도록 규정하고 있다. 규제기관(ASN)은 원자력시설 운영자가 즉시해체(immediate dismantling)를 해체전략(방식)으로 선정할 것을 권고하는 내용의 정책을 2009년에 발표하였다. 관련 시행령(Decree 2007-1557 of 2 November 2007)에 따르면, 운영자는 예상영구정지일로부터 적어도 3년 전에 갱신된 해체계획을 규제기관(ASN)에 제출해야 하며 적어도 예상영구정지일로부터 1년 전에 해체허가를 신청해야 한다. 운영자는 영구정지된 원자력시설에 대한 문서, 갱신된 해체계획, 환경영향평가서, 영구정지 및 해체활동에 대한 안전사례 및 위험도관리평가 등과 같은 문서들을 제출해야 한다고 규정하고 있다. 또한, 규제기관(ASN)의 Guide No. 6(2009)의 부록 1(Annexe 1)에 해체계획서 목차 및 내용이 언급되어 있다[9].

캐나다의 경우, 규제기관(CNSC)이 발간한 해체관련 지침서(G-219, 2000)에 따르면, 시설 또는 행위의 전수명 내에서 가능한 빨리 예비해체계획이 작성되어야 하고 여기에는 해체전략과 목표, 주요 제염/철거/복원 단계, 발생하는 폐기물의 종류와 양, 기본적 위험 및 방호전략의 개요, 비용

평가, 해체활동을 위한 재정보증 방법 등이 기재된다. 상세해체계획은 해체활동을 시작하기 전에 규제기관의 적절한 인허가 조치를 결정하기 위해 작성되어야 한다. 상세해체계획에는 해체전략, 해체작업과 일정, 폐기물관리계획, 환경영향평가, 재정보증계획, QA프로그램, 방사선방호 등 예비해체계획에 상세내용을 추가하고 보완해서 작성된다[8].

3. 결론

국내의 경우, 원자력발전소 해체경험이 전무한 상태이며 해체의 인허가단계에서 주요 문서가 해체계획서라는 점을 고려할 때 보수적인 관점과 접근이 요구된다고 판단하였고 국내외 원자력시설의 해체계획서와 관련된 기본양식과 내용 등을 비교·분석하였다. 이를 바탕으로 원자력시설 해체계획서 작성지침을 위한 기술기준개발을 위해 다음과 같이 1) 국제기준에 부합하고 2) 일반적·보편적인 내용을 준수하고 3) 보수적 관점을 유지하는 것으로 기본방향을 설정하였다. 이러한 기본방향 위에 원자력시설 해체계획서 작성지침을 위한 기술기준 개발이 완료된다면 국내 원자력시설 해체관련 규제제도 개선과 해체안전성 확보에 기여할 것으로 기대한다.

4. 감사의 글

본 연구는 원자력안전위원회의 연구사업 “방사성 폐기물 안전규제 핵심기술개발”의 일환입니다.

5. 참고문헌

- [1] <http://opis.kins.re.kr/>
- [2] 김학수, 원전해체를 대비한 해체사업자의 노력, 제16회 원자력안전 기술정보회의 발표자료.
- [3] IAEA IRRS 수검결과 보고서 초안 (2011).
- [4] 원자력안전법령(2013.10).
- [5] IAEA GSR Part 6 (Draft, 2014).
- [6] IAEA Safety Report Series No. 45 (2005).
- [7] US NRC Reg. guide 1.184 & 1.185 (2013).
- [8] KINS/GR-525 원전해체 및 방사성폐기물규제 기술개발(2013).
- [9] ASN guide No.6 (2010).

부식생성물 평가코드 CRUDTRAN을 이용한 국내 원전의 해체선원량 예측연구

윤태빈*, 송종순

조선대학교, 광주광역시 동구 서석동 필문대로 309

*taebin@tank.co.kr

1. 서론

방사화부식생성물은 증기발생기 세관에 사용되는 니켈합금이나 스테인레스강이 부식되면서 발생하는 부식생성물이 대부분이며 조성은 주로 니켈페라이트($\text{NiFe}_3\text{-O}_4$)로 되어있지만 부착량 및 분포 등은 노형, 크기, 구조재, 재질 등에 따라 상이하므로 정확한 표면오염 재고량 산정은 쉽지 않다.

본 연구에서는 CRUDTRAN 코드를 이용하여 발전소내의 1차 계통에서 생성되는 부식생성물과 방사성 핵종의 이동에 대해 비교, 분석하고 계산된 값과 Westing House 타입 원전의 실측자료와 비교하여 결과값의 신뢰도를 높이고자 한다.

2. 본론

2.1 방사화부식생성물의 정의

원자력발전소 해체 시 방사선원으로 고려되는 표면오염은 방사성물질은 크게 방사화부식생성물, 방사화물질로 구분할 수 있고 특히 이 중에서도 방사성부식생성물이 주요 선원으로 존재한다. 원자력발전소에서 방사성물질의 이동 경로는 Fig. 1과 같이 표현할 수 있으며, 방사화부식생성물의 거동 또한 Fig. 1로 나타낼 수 있다.

방사화부식생성물은 1차냉각계통 내에서 생성

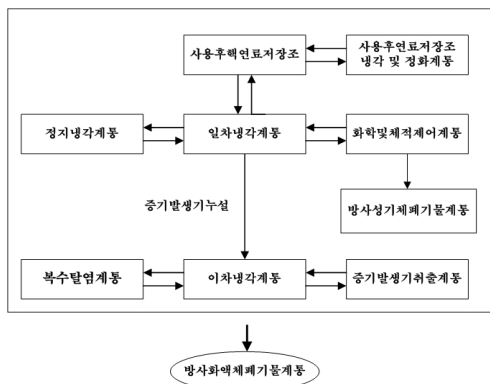


Fig. 1. Flow of corrosion product.

된 부식물이 1차냉각재를 통해 노심에 유입된 후 중성자에 조사되어 생성되며, 생성된 방사화부식생성물은 1차냉각계통 배관이나 증기발생기 세관 내부표면에 침적되어 1차냉각계통을 오염시키거나 기타 연계계통으로 이동, 확산되어 관련된 전 계통을 오염시킨다. Fig. 2는 1차냉각계통에서의 메커니즘을 설명한다.

원자로 1차 및 2차 RCS계통 내 고온에 노출되는 금속들은 침식되거나 부식 또는, 중성자와의 상호작용에 의해 방사성 물질이 된다. 부식생성물의 방사선원들은 주로 감마 방출체들로서 Co-60, Co-58, Cs-137, Fe-55, Mn-54 등이 있다.

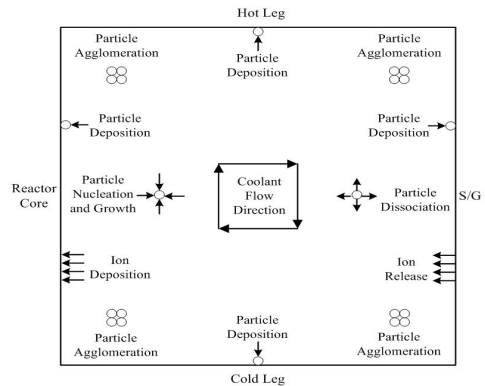


Fig. 2. Flow of corrosion products in a PWR primary circuit.

2.2 내부표면오염도와 원전실측자료와의 비교

해체 시 작업자의 피폭에 가장 큰 영향을 미치는 방사화부식생성물은 Co-58과 Co-60이다. 이 중 Co-58핵종은 반감기가 짧아 평형상태를 띄게 되어 중첩효과를 보이지 않으나 Co-60핵종은 운전년수가 늘어날수록 누적 량이 증가하게 된다. Westing House형 원전의 Co핵종 방사능은 Table 1에서 보이는 바와 같이 Co-58 핵종은 운전 후 2~3년 이내에 평형상태에 도달하나, Co-60핵종은 운전이력이 늘수록 계통 내 방사능이 계속적으로 증가한다.

Table 1. Westing House Type Measurement Data of Co nuclide

년	1차냉각계통 [uCi/cm2]		증기발생기세관 [uCi/cm2]	
	Co-58	Co-60	Co-58	Co-60
1	56	12	5	0.5
2	90	28	7	2.0
3	110	30	7	3.5
4	110	35	7	4.0
5	110	40	7	5.0
6	110	45	7	5.5

Co-58과 Co-60 두 핵종을 다룰 수 있는 CO RA, PACTOLE, CREAT, CRUDSIM 등의 코드 보다 이론적 접근법과 모델링이 간단하며 입자에 의한 예측이 가능한 CRUDTRAN 모델을 기본 모델로 채택하여 1차계통내 생성되는 부식생성물과 방사성핵종의 이동에 대한 비교, 분석에 적용하고자 한다.

2.3 CRUDTRAN 코드

CRUDTRAN코드는 한국원자력연구원에서 개발한 코드로서 PWR의 1차 냉각계통의 부식생성물의 거동과 방사능의 과의 상관관계에 대한 분석 및 예측을 위한 코드이다. CRUDTRAN코드는 1차 계통수 내에서 일어나는 수화학을 계산하기 위하여 냉각수에 대한 자료(Lithium, Boric acid, H₂, 온도, 출력) 등을 이용하였고, 부식물의 거동은 온도차이로 인한 용해도 차이에 의해 지배받는 것으로 해석하였다.

CRUDTRAN코드는 1차냉각계통을 핵연료표면, 냉각재, 증기발생기로 분리해 각각에 대하여 부식물의 거동과 방사화부식생성물의 거동을 별도의 관점에서 해석한다. CRUDTRAN 코드의 부식생성물 및 방사화부식생성물 거동 분석 모델은 다음 Fig. 3과 같다.

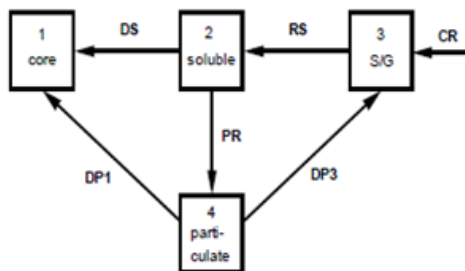


Fig. 3. Modeling in CRUDTRAN.

다음과 같은 거동을 보이는 이유는 부식물은 증기발생기 세관에서 생성되어 노심으로 이동하는 반면 방사화부식생성물은 노심에서 증기발생기로 이동하기 때문이다.

3. 결론

현재 CRUDTRAN코드 구동에 필요한 자료들을 확보하였으며 최종적으로는 CRUDTRAN 코드를 이용한 분석과 고리1호기의 1차냉각재 내 방사화부식생성물의 실측자료와 비교평가를 목표로 하고 있다. 본 연구를 통해 코드 계산 값과 원전 측정 자료와의 유사성이 확인되면 CRUDTRAN 평가코드의 적용 타당성을 충분히 확보할 수 있을 것으로 판단한다. 또한 그렇게 타당성을 얻은 평가모델은 향후 제염해체 해체 선원향 예측 연구에 있어 실질적으로 기여할 수 있을 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

- [1] Lee CB. "Evaluation of CRUDTRAN Code to Predict Transport of Corrosion Products and Radioactivity in the PWR Primary Coolant System, CHIMIE 2002 International Conference on Water Chemistry in Nuclear Reactors Systems, 22-26 Avignon, France, April, 2002.
- [2] EPRI. "Evaluation of Cobalt Sources in Westing house Designed Three and Four Loop Plants", EPRI NP-2681, 1982.
- [3] IAEA-TECDOC-1672. "Modelling of Transport of Radioactive Substances in the Primary Circuit of Water-Cooled Reactors, INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY VIENNA, 2012.
- [4] 성병욱, 박광현, 이찬복, "1차 계통수 내의 부식생성물과 거동에 관한 연구 : 고리4호기에 적용", 재료과학기술연구논문 제9권:103-107, 1996.

연구용 원자로 해체비용 평가 프로그램 (REDCAP) 개발

정재훈*, 최광순, 박정수, 이병식

한국전력기술(주), 경기도 용인시 기흥구 용구대로 2354

*amagedon@kepco-enc.com

1. 서론

본 논문에서는 연구용 원자로 해체비용평가 프로그램 REDCAP을 OECD/NEA ISDC¹를 기초로 개발하였고 TRIGA Mark-III형 연구용 원자로의 해체비용을 평가하고 그 결과와 수계산한 것을 비교하여 검증하였다.

2. 본론

2.1 프로그램 개요

REDCAP (REsearch reactor Decommissioning Cost Assessment Program) 프로그램은 연구용 원자로 해체 비용 평가를 위해 최적화된 해체 비용 평가 프로그램으로, 해체 계획부터 부지 복원까지 모든 연구로 해체 작업에 대한 비용을 평가할 수 있도록 개발하였다.

REDCAP은 WBS(Work Breakdown Structure)를 연구용 원자로에 적합하게 3단계 체계로(Level 1, Level 2, Work Activity) 최적화하여 구성하였으며, 모든 비용을 WA(Work Activity), UCF(Unit Cost Factor), Plant Inventory를 통해 계산이 가능하도록 하였다. 또한 사용자가 연구용 원자로 해체 평가 참조 사례로 사용할 수 있도록 TRIGA Mark III 기준 Reference WBS를 개발하였다.

Visual Basic을 통해 개발된 REDCAP은 비용 평가를 위한 입력 단계를 최소화하고, Microsoft Excel File에 대상 프로젝트의 WBS, UCF, Plant Inventory 등의 비용 평가 입력 데이터와 전체 공정별 비용 평가 결과 등을 저장하여 사용자가 손쉽게 활용할 수 있도록 작성되었다.

2.2 비용 평가 이론

REDCAP에서는 WBS, UCF, Crew를 구성하여, 각 데이터들이 유기적으로 연동되도록 하였다. 해체 비용은 우선 WBS, UCF, Crew의 각 데이터들을 결합하여 UCF의 인건비, 장비비, 기타비 등을 계산하고, 계산된 단위 비용에 Work Activity (WA)의 Inventory 를 곱하여 총 해체비용을 도출하였다.

2.3 WBS, UCF, Crew 구성

2.3.1 WBS 구성

WBS는 Level 1, Level 2, WA, Contingency, WDF(Work Difficulty Factor), UCF, UCF Unit, 작업시작일, Inventory-RT (Regular Time), Inventory-OT (Over Time), Cost Category로 구성되며 그 내용은 아래와 같다.

- Level 1 : WBS의 최상위 계층으로 주로 해체 작업 Phase가 해당됨.
- Level 2 : 각 해체 작업 Phase별 주요 작업 공정이 해당됨.
- WA : 비용평가를 위한 단위 작업 공정
- Contingency : 예비비
- WDF : 총 6개의 WDF, 즉 접근성, 방독면 착용, 방사선/ALARA, 방호복, 휴식시간, 작업생 산성이며 인건비 계산시 가중치로 사용
- UCF : WA의 비용 및 작업기간을 계산하기 위한 단위비용항목
- Cost Category : 해당 WA의 비용 카테고리

2.3.2 UCF 구성

UCF는 UCF Category, UCF 이름, UCF 설명, UCF 단위, 입력 폐기물 카테고리, 입력 폐기물 이름, 작업조 카테고리, 작업조 이름, 작업기간, 단위 장비비, 단위 기타비, 발생 폐기물로 구성된다. UCF내의 단위 인건비, 단위 장비비, 단위 기타비 및 작업 기간과 WA의 Inventory, WDF, Contingency를 사용하여 WA의 인건비, 장비비, 기타비, 총 해체비용 및 총 작업기간을 계산한다.

2.3.3 Crew 구성

Crew (작업조)는 작업조 카테고리, 작업조 이름 및 각 작업자별 인원수로 구성된다. 또한 각 작업자별 인건비 일당이 입력되어 있다.

2.4 평가 프로세스

2.4.1 WA 비용 평가 프로세스

비용 평가를 위해서는 해당 UCF의 단위 인건비, 단위 장비비, 단위 기타비를 계산한다.

- 총 인건비 = 단위 인건비 * (Inventory(RT) + Inventory(OT) * OT 추가율) / UCF 처리단위 * WDF
- 총 장비비 = 단위 장비비 * (Inventory(RT) + Inventory(OT)) / UCF 처리단위
- 총 기타비 = 단위 기타비 * (Inventory(RT) + Inventory(OT)) / UCF 처리단위
- Contingency = (총 인건비 + 총 장비비 + 총 기타비) * 예비비율
- 총비용 = 총 인건비 + 총 장비비 + 총 기타비 + Contingency

2.4.2 WA 작업기간 계산 프로세스

작업조는 하루에 8시간의 RT와 4시간의 OT까지만 근무가 가능하다. 여기에서 계산된 WA 작업 기간과 WA의 작업 시작일을 사용하여 해체 프로젝트의 작업 Schedule을 구한다.

2.4.3 폐기물 Inventory 계산 프로세스

해당 UCF의 입력폐기물이 존재하는 경우 해당 WA의 Inventory RT 및 OT는 다른 WA에서 발생한 폐기물량이 된다.

2.4.4 기타 계산 프로세스

- Cost Category별 해체 비용
- 월별 발생 해체 비용
- 각 폐기물별 발생량

전술한 비용평가 프로세스는 Fig. 1과 같다.

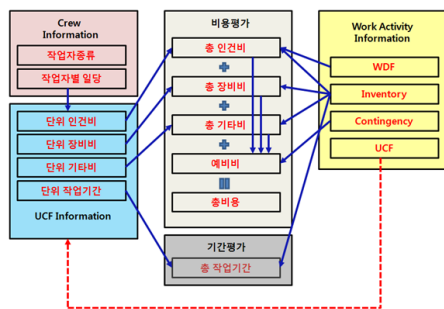


Fig. 1. REDCAP Cost Estimation Process Flow.

2.5 입력문

입력문은 Level 1&2&WA List, WBS List, UCF List, Crew List, Waste List, Etc List로 구성된다. 그 중 WBS List의 예시는 Table 1과 같다.

Table 1. Example of WBS List

Level 1	Level 2	Work Activity	Contingency	WDF I-6	UCF	Start Day	Inven RT	OT	Cost Category
1.	1.1	1.1.1 Preliminary planning			UCF1.01 Planning	120	128	0	Management & Support
		1.1.2 Final planning			UCF1.01 Planning	300	128	0	Management & Support
		1.1.3 License applications and license approvals			UCF1.02 Licensing	480	128	0	Management & Support

2.6 출력문

출력문은 WA, Level 2, Level 1별 평가비용과 해체공정, 비용 Category, 월별 비용, 폐기물 발생량 등의 결과로 나온다. 평가 비용을 제외한 나머지 결과는 각각 도표로 제공된다. 그 중 Level 1 해체 비용평가 결과는 아래 Table 2와 같다.

Table 2. Output of Level 1 Cost Estimation

Level 1	Man Power Cost	Equipment Cost	Other Cost	Contingency	Total
1. Pre-decommissioning actions	645	0	0	97	742
2. Facility shutdown activities	36	0	0	5	41
3. Dismantling activities within the controlled area	2,706	448	279	979	4,411
4. Waste processing, storage and disposal	3,816	231	14,696	4,834	23,578
5. Conventional dismantling, demolition and site restoration	190	3	2	41	236
6. Project management, engineering and support	6,118	0	0	918	7,036
7. Research and development	896	0	500	209	1,605
8. Miscellaneous expenditures	0	0	100	10	110
Total	14,407	682	15,577	7,094	37,760

2.7 프로그램 검증

REDCAP으로 평가한 연구용 원자로 해체비용과 수계산한 결과를 비교하는 방식으로 검증한 결과 계산 결과는 서로 일치하는 것으로 나타났다.

3. 결론

TRIGA MARK-III형 연구용 원자로의 해체비용 평가 프로그램인 REDCAP을 개발하였으며 2013년 12월 한국저작권위원회에 저작권 등록을 완료하였다(등록번호 제 C-2013-024965호).

4. 참고문헌

- [1] OECD/NEA, International Structure for Decommissioning Costing (ISDC) of Nuclear Installations, 2012.

3분과

제염해체 및 방사성폐기물 처리(Oral-2)

KOREAN RADIOACTIVE WASTE SOCIETY

고염도 해수폐액에서 실리코티타네이트의 Cs, Sr 선택적 흡착제거 성능 평가

이지훈*, 백석민, 조항래, 박승철, 양호연

한수원중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70

*jihoon@khnp.co.kr

1. 서 론

일본 후쿠시마 원전에서 일어난 중대사고와 같이 원자로의 심각한 손상으로 원자로 냉각에 필요한 냉각수의 양이 다량으로 필요하게 되어 해수를 냉각수로 이용한 중대사고 긴급 대처 프로세스가 가동될 수 있다. 이러한 경우 기존의 세슘 및 스트론튬에 대한 흡착 성능이 뛰어난 흡착물질이라 할 지라도 해수의 조건에서는 세슘 및 스트론튬에 대한 선택성이 낮아 실제 세슘 및 스트론튬의 제거 성능이 상당히 감소되는 현상이 나타날 수 있다. 그러므로 중대사고 시 적용할 수 있는 방사성 액체 폐기물 처리 시스템은 고전도도의 고염의 조건인 해수와 유사한 조건에서도 방사성 세슘 및 스트론튬의 제거율이 높게 나타나는 신흥흡착물질을 적용할 필요가 있으므로, 본 연구에서는 해수와 같은 조건을 모사하여 고농도의 NaCl이 존재할 경우에 신흥흡착물질인 실리코티타네이트의 Cs 또는 Sr의 흡착 성능을 평가하였다.

2. 본 론

2.1 실험 방법

본 연구에서는 세슘 및 스트론튬에 대한 선택적 신흥흡착물질로 국내 최초로 합성한 실리코티타네이트의 흡착 성능평가를 수행하였다. 실리코티타네이트는 $TiO_2 : SiO_2 : Na_2O : H_2O = 1 : 1 : 4-8 : 140-160$ 의 비율로 titanium isopropoxide와 tetraethylorthosilicate와 NaOH와 H_2O 를 혼합한 후 1시간동안 교반한 후 150~200℃의 온도범위에서 50~100 시간동안 고온로에서 수열합성하였으며 합성 후 물과 에탄올로 세척 한 다음 건조시켜 silicotitanate 계열의 신흥흡착물질을 합성하였다.(Fig. 1)

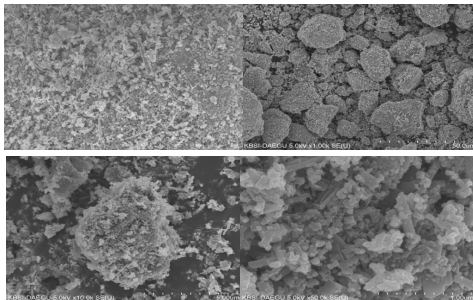


Fig. 1. SEM Image of Synthesized Silicotitanate by 10 L autoclave.

모의 세슘 용액의 제조를 위해 $CsNO_3$ (99%, Sigma-Aldrich Chemical Co.,Korea)를 이용했으며, 모의 스트론튬 용액의 제조를 위해 $Sr(NO_3)_2$ (99%, Sigma-Aldrich Chemical Co.,Korea)를 이용하였다. 모의 비방사성 용액의 pH는 조정하지 않았다. 고농도의 NaCl 염이 존재할 시 10 L autoclave에서 합성된 silicotitanate 신흥흡착물질에 대한 세슘 또는 스트론튬의 제거효율에 미치는 영향을 평가하는 회분식 흡착 실험을 수행하였다. 흡착제의 양은 0.1 g으로 하였으며, 세슘 또는 스트론튬의 초기농도를 2 mM로 고정하고 NaCl의 농도를 0.03%, 0.3%, 3%(해수 조건)로 변화시켜 그 영향을 평가하였다. 흡착실험은 15 mL의 코니칼 튜브(Polypropylene, SPL Co., Korea)를 이용해 25℃에서 200 rpm으로 24시간동안 교반하였다. 교반 후, 용액은 20분동안 3000 rpm에서 원심분리하고 상등액은 0.2 μm 실린지 필터(Whatman, cellulose nitrate membrane filter, $\phi=25$ mm)를 이용하여 여과하였으며, 유도결합플라즈마 원자발광분광기(ICP-OES)를 이용하여 세슘 농도를 분석하였다. 흡착 처리 후 상등액 내의 고농도의 세슘 및 스트론튬의 농도는 ICP-OES로 분석하였으며 이 때 고농도의 세슘의 경우 ICP-OES의 측정 감도가 낮아 표준물질가법(standard addition method)을 적용하여 분석하였다(Standard Methods). 저농도의 세슘 농도는 유도결합플라즈마 질량분석기(ICP-MS, NexION 300X, Perkin Elmer, USA)를 이용하여 분석하였다.

고농도의 염이 존재할 시 세슘과 스트론튬의 흡착용량(the sorbed amount of metal ion, q , mmol/g)은 수용액 상의 초기 목표 이온의 농도와 과 흡착 수행 후 흡착되지 않고 남아있는 수용액 상의 목표 이온의 농도의 차이를 이용하여 계산하였으며 다음의 식(1)과 같다.

$$q = (C_0 - C_e) * \frac{V}{m} \quad (1)$$

여기서 C_0 는 흡착제와 접촉 전 물질의 초기 농도(mg/L), C_e 는 흡착제와 접촉 후 물질의 농도(mg/L), V 는 용액의 부피(mL), m 은 흡착제의 무게(g)이다.

3. 실험 결과

3.1 Silicotitanate의 NaCl 존재시 Cs 흡착평가
고염(NaCl)의 농도 변화에 따른 silicotitanate의 Cs 흡착 성능을 평가하였으며 그 결과는 다음의 Table 1과 Fig. 2와 같다. NaCl이 존재 하지 않을

때 Cs의 흡착 용량(q)은 0.76 mmol/g으로 나타났으나, 0.03%의 NaCl이 존재할 때는 0.64 mmol/g, 0.3%의 NaCl이 존재할 때는 0.54 mmol/g, 3%의 NaCl이 존재할 때는 0.36 mmol/g으로 50% 정도의 흡착 용량(q)이 감소하였다. 이를 통해 silicotitanate에서 세슘과 비방사성 이온인 나트륨과의 경쟁에서 나트륨이 세슘의 흡착에 영향을 미치지만, 이는 다른 물질과 비교하여 Cs에 대한 선택성이 매우 높은 것으로 사료된다.

Table 1. Adsorption Amount of Cs by Crystalline Silicotitanate according to NaCl Concentration

실험조건				흡착실험 측정치(ICP OES)		실험결과 산정치	
실험번호	Reactor 부피, [mL]	Na 농도 (wt.%)	흡착제 (g)	Co 농도 (ppm)	Ce 농도 (ppm)	qe (mg/g)	qe (mmol/g)
1	55	0	0.1	272.50	80.13	105.8035	0.79605
1반복	55	0	0.1	272.50	94.75	97.7625	0.73555
2	55	0.03	0.1	271.90	111.70	88.1100	0.66293
2반복	55	0.03	0.1	271.90	123.70	81.5100	0.61327
3	55	0.3	0.1	263.20	128.00	74.3600	0.55948
3반복	55	0.3	0.1	263.20	137.30	69.2450	0.52099
4	55	3	0.1	266.70	179.10	48.1800	0.3625
4반복	55	3	0.1	266.70	179.50	47.9600	0.36085

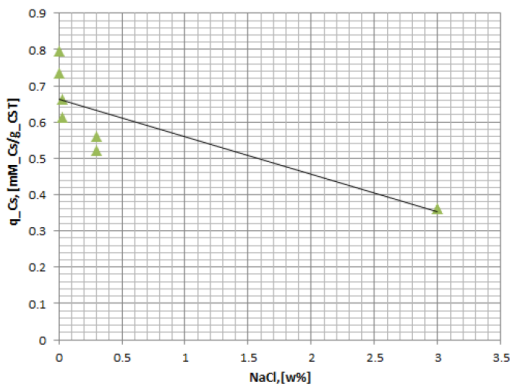


Fig. 2. Adsorption Amount of Cs by Crystalline Silicotitanate according to NaCl Concentration.

3.2 Silicotitanate의 NaCl 존재시 Sr 흡착평가

고염(NaCl)의 농도 변화에 따른 sodium titanate의 Sr 흡착 성능을 평가하였으며 그 결과는 Table 2와 Fig. 3과 같다. NaCl이 존재하지 않을 때 Sr의 흡착 용량(q)은 0.33 mmol/g으로 나타났으나, 0.03%의 NaCl이 존재할 때는 0.26 mmol/g, 0.3%의 NaCl이 존재할 때는 0.20 mmol/g, 3%의 NaCl이 존재할 때는 0.09 mmol/g으로 70% 정도의 흡착 용량(q)이 감소하였다. 이를 통해 sodium titanate에서 스트론튬과 비방사성 이온인 나트륨과의 경쟁에서 나트륨이 세슘에 비해 스트론튬의 흡착에 더 큰 영향을 미치는 것으로 나타났다.

Table 2. Adsorption Amount of Sr by Crystalline Silicotitanate according to NaCl Concentration

실험조건				흡착실험 측정치(ICP OES)		결과치	
실험번호	reactor 부피, [mL]	Na 농도 (wt.%)	흡착제 (g)	Co 농도 [ppm]	Ce 농도 (ppm)	qe (mg/g)	qe (mmol/g)
1	55	0	0.1	184.60	131.00	29.480	0.337
1반복	55	0	0.1	184.60	130.75	29.618	0.338
2	55	0.03	0.1	162.40	119.70	23.485	0.268
2반복	55	0.03	0.1	162.40	120.30	23.155	0.264
3	55	0.3	0.1	159.60	126.60	18.150	0.207
3반복	55	0.3	0.1	159.60	127.10	17.875	0.204
4	55	3	0.1	162.50	149.20	7.315	0.084
4반복	55	3	0.1	162.50	146.10	9.020	0.103

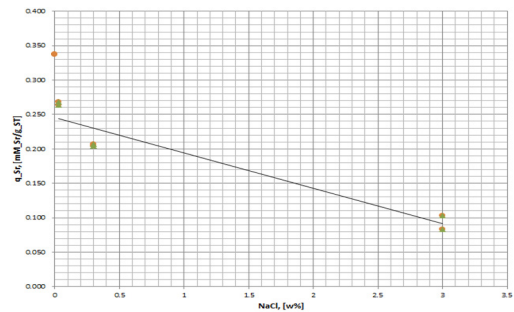


Fig. 3. Adsorption Amount of Sr by Crystalline Silicotitanate according to NaCl Concentration.

4. 결 론

후쿠시마와 같은 원자력발전소 사고 시에는 Cs, I, Sr 같은 휘발성 핵종이 제일 많이 환경에 방출되고, 이중 반감기가 길고 위험도가 높은 Cs, Sr 방사성핵종은 액체폐기물로 대량 발생된다. 이 액체 폐기물에는 NaCl과 같은 염의 농도가 Cs, Sr보다 수배~수천배 많고 Cs^{+1} , Sr^{+2} 와 같은 양이온이기 때문에 기존의 방사성 액체폐기물 처리기술로는 Cs, Sr의 선택적 분리제거가 불가능하다. 본 연구에서는 고염함유 방사성 액체 폐기물에서 Cs, Sr을 선택적으로 분리 제거할 수 있는 신흥착분리 물질인 실리코티타나이트를 합성 및 제조하여 NaCl 농도에 따라 Cs 및 Sr의 흡착능을 비교평가한 결과 NaCl의 농도가 증가함에 따라 Cs과 Sr의 흡착능은 감소하지만 NaCl성분이 다량 함유된 해수내에서 신흥착분리 물질인 실리코티타나이트는 Cs과 Sr의 선택적 흡착능이 매우 우수한 것으로 확인되었다.

5. 참고문헌

- [1] Anthony. R.G., et. al, Use of silicotitanates for removing cesium and strontium from defense waste, Ind. Eng. Chem. Res. 33 (1994) 2702-2705.
- [2] Anthony. R.G., et al., Selective adsorption and ion exchange of metal cations and anions with silico-titanates and layered titanates, Waste Manage. 13 (1993) 503-512.

우라늄화합물로 오염된 금속폐기물의 용융처리시 우라늄의 거동 조사

전관식*, 유성현

(주)유이엔지, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 242

*kschun44@hotmail.com

1. 서론

원자력시설의 해체중 다량의 금속폐기물이 발생되는데, 방사성물질의 오염도는 비교적 낮은 편이다. 그러나 가치있는 재원의 회수를 위해 용융처리는 처분공간을 감소시킬 수 있어 유용하게 사용되어 왔다. 오염된 방사성물질의 대부분은 슬래그와 여과기에 농축되어 극미량으로 오염된 최종생성물인 금속의 주괴(ingot)는 연구개발시설의 차폐물벽으로 또는 처분용기로 재활용될 수 있고, 오염정도가 아주 낮아 비방사성물질로 분류된다면 다른 분야에도 재활용이 가능하게 될 수도 있을 것이다. 따라서 여기서는 우라늄으로 오염된 철을 주성분으로 하는 금속폐기물의 용융처리시 우라늄의 거동에 대해 여러 문헌에 나타난 현상들을 살펴보고자 하였다.

2. 본론

2.1 주성분이 철인 금속폐기물의 물성

원자력시설에서 주로 사용하고 있는 금속재료의 대부분은 탄소강과 스테인레스강을 들 수 있으며, 이 밖에도 특수강인 니켈합금도 있다. 이러한 금속재료의 주성분은 철이다. 따라서 철 또는 철합금의 용융처리와 관련한 물성을 개략적으로 살펴보면 Table 1과 같다.

Table 1. Viscosity of Fe-Nb alloys [1]

Nb 농도 wt.%	용융물 온도 ℃	온도범위	vt=Av*exp(Ev/RT)	
			Av*10 ⁷ (m ² /c)	Ev KJ/mol
0	1535	1535-1630	0.264	51.5
		1630-1800	0.522	40.9
4.1	1490	1490-1575	1.126	31.9
		1575-1800	0.579	41.9
10.0	1445	1445-1575	0.408	47.4
		1575-1800	0.317	51.5

이 표에서 보는 바와 같이, Shunyaev 등[1]에 의하면, Nb의 함량이 증가함에 따라서 용융물의 점도가 증가하는 경향을 나타내고 있으며, 특히

4.1wt.%에서 20%정도 증가하는 특성을 보이고 있다[1]. 한편, Wright와 Zhang[2]은 실리카의 양이 증가함에 따라서 용융철의 점도도 평탄하고 단조로운 증가경향을 나타낸다고 보고하였다.

사용되는 철의 종류별 용융온도를 살펴보면, 탄소강의 경우는 저탄소강이 1410℃이고, 고탄소강이 1425-1540℃이며, 스테인레스 강은 1510℃이고, 특수강의 경우는 저합금강이 1432℃이고, 고합금강이 1415℃를 보편적으로 나타내고 있다[3].

그리고 철산화물의 밀도와 용융온도는 Fe₂O₃가 5.24g/cm³이고, FeO가 5.7g/cm³로 각각 보고되어 있다[4].

용융철의 밀도는 다음과 같이[5], 온도가 증가함에 따라서 감소하는 경향을 나타내고 있다.

1500℃에서 7.21g/cm³

1600℃에서 7.16g/cm³

1700℃에서 7.06g/cm³

2.2 우라늄 산화물의 물성

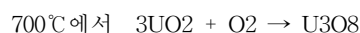
금속용융물 중에서 중요한 물성은 이 금속에 오염된 우라늄산화물의 밀도와 용융온도로서 Table 2와 같다[6,7].

Table 2. Densities and melting points of uranium oxides

화학종	밀도(상온), g/cm ³	용융온도, ℃
UO ₂	10.95	2865
U ₃ O ₈	α	8.395
	β	8.326

2.3 철강의 용융물 중 우라늄의 거동

상용원자로에서 사용되는 우라늄의 초기 화학종이 이산화우라늄이어서 연료제조과정에서 발생하는 금속폐기물에는 주로 우라늄 산화물이 포함되어 있다. 따라서 이러한 철 합금으로 된 금속폐기물의 용융과정에서 일어날 수 있는 우라늄의 화학반응을 살펴보면 다음과 같다.



이와 같은 반응으로 이루어보면, 궁극적으로 철의 용융물 중에서 우라늄은 UO_2 로 존재할 것으로 예상할 수 있어 UO_2 가 철에 비하여 밀도가 상당히 낮기 때문에 용융철 내에서 다음과 같은 속도(Vp)로 침강되어 철괴의 바닥에 침적될 수 있을 것이라 예상할 수 있다.

$$V_p = \frac{dm^2(\rho_s - \rho)}{18v}$$

여기서, dm은 UO_2 입자의 직경(cm)이고, ρ_s 는 UO_2 의 밀도(g/cm^3)이고, ρ 는 용융철의 밀도(g/cm^3)이고, v는 용융철의 점도(cp)이다.

그러나 Anigstein 등[8]의 보고에 의하면, 탄소강의 물질수지는 용융로형에 따라서 Table 3과 같은 결과를 보이고 있으며, 오염된 우라늄의 92-98%가 슬래그(slag)에 결집되는 것으로 평가되었다.

Table 3. Recovery and slag generation depending on the furnace types

Furnace	BOF	EAF	Induction
Main metal	CS	CS, SS	CS, S
Temperature	1600℃	1600℃	1550℃
Recovery	91%	90%	98-99%
Slag generation	5.0-22.0%	12-14%	1.57%

[Note] BOF : Basic Oxygen Furnace ;
EAF : Electric Arc Furnace ;
CS : Carbon Steel ; SS : Stainless Steel

한편, 송평섭 등[9,10]은 금속과 반응하지 않는 핵종(U)은 슬래그의 구성성분과 화학적 결합을 통하여 슬래그 층에서 안정화되며 우라늄의 제거율은 염기도에 의존한다고 간략히 언급하고 있을 뿐, 구체적으로 우라늄이 슬래그 층의 구성성분과 반응하여 어떤 형태로 안정화되는지는 밝혀져 있지 않다.

따라서 우라늄과 슬래그의 구성성분과의 화학반응에 관한 메카니즘이 명확히 규명된다면, 우라늄의 제거효율 뿐만이 아니라 주괴의 활용도도 더욱 향상시킬 수 있을 것이라 생각된다.

3. 결론

철강재의 용융처리 시 철의 밀도에 비하여 상당히 큰 우라늄산화물이 용융철 중에 침강되지 않고 오히려 슬래그에 결집되는 경향을 나타내고

있음을 확인하였다. 이 우라늄이 슬래그에 결집되는 메카니즘을 명확히 규명한다면, 용융처리시 폐철강재에 오염된 우라늄의 제거효율과 주괴의 활용도를 더욱 향상시킬 수 있을 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

- [1] K.Yu. Shunyaev, N.V. Korchemkina, V.L. Lisin, V.P. Chentsov and N.V. Pechischeva, The iron-niobium phase diagram and the viscosity of liquid alloys in this system.
- [2] S. Wright and L. Zhang, The influence of Fe^{3+}/Fe^{2+} ratio on the viscosity of iron silicate slags, International Conference on molten slags fluxes and Salts, 2004.
- [3] <http://www.buzzle.com/articles/carbon-steel-properties.html> and <http://www.buzzle.com/articles/melting-point-of-steel.html>
- [4] [http://en.wikipedia.org/wiki/Iron\(III\)_oxide](http://en.wikipedia.org/wiki/Iron(III)_oxide) and http://web1.caryacademy.org/facultywebs/gray_rushin/StudentProjects/CompoundWdbSites/2003/ironoxide/Properties%20of%20FeO.htm
- [5] The concept of viscosity, Chapter 3 <http://www.columbia.edu/itc/ideo/lacker/E4900/Themelis3.pdf>
- [6] L.R. Morss, N.M. Edelstein, J. Fuger and J.J. Katz, edited, The chemistry of the actinide and transactinide elements, 3rd edition, Chapter 5 of Vol.1, 2008.
- [7] Triuranium octoxide or octaoxide, http://en.wikipedia.org/wiki/Triuranium_octaoxide
- [8] R. Anigstein et al., Radiological assessments for clearance of materials from nuclear facilities, NUREG-1640, Vol.1, 2003.
- [9] 송평섭 등, 방사성 금속 폐기물의 용융처리 기술 및 방사성 핵종의 분배 특성, 한국폐기물학회지, 제22권, 제3호, p.213, 2005.
- [10] B.Y. Min et al., Partitioning ratio of depleted uranium during a melt decontamination by arc melting, Nuc. Eng. and Tech., Vol.40, No.6, p.497, 2008.

LiCl-KCl 용융염에서 CeCl_3 , PrCl_3 의 전기화학적 거동 연구

김범규, 이애리, 김용일, 박병기*

순천향대학교, 충남 아산시 신창면 읍내리 646

qu@sch.ac.kr

1. 서론

사용후핵연료에는 우라늄, 플루토늄 등 악티나이드 원소뿐 아니라 세륨, 프라세오디뮴 등 다양한 란타나이드 원소가 서로 존재한다. 사용후핵연료의 처리공정인 파이로공정은 이러한 원소들 중 우라늄을 비롯한 초우라늄 원소를 회수하여 부피감소와 독성 저감을 달성할 수 있다. 고온 용융염에 용해된 다양한 원소들은 전극에 따라 산화환원 반응과 생성물간의 열역학적, 전기화학적 반응이 나타난다. [1-3] 이에 본 연구는 LiCl-KCl 고온 용융염에서 전기화학적 순환전류전압법(Cyclic Voltammetry; CV)을 이용하여 액체금속과 CeCl_3 와 PrCl_3 의 산화-환원반응에 대한 특성을 관찰하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

고온의 전기화학 실험은 Glove Box($\text{H}_2\text{O}<1\text{ppm}$, $\text{O}_2<1\text{ppm}$)에서 수행하였다. Glove Box하단에 전기로를 부착하여 고온으로 온도 조절을 할 수 있도록 Fig. 1처럼 실험환경을 구축하였다. 시료는 Sigma Aldrich사의 LiCl-KCl, CeCl_3 , PrCl_3 과 액체금속으로 사용할 Cd, Bi를 사용하였다. 작업전극과 상대전극은 Alfa aesar사의 직경 1 mm의 텅스텐선이며, 기준전극은 직경 1 mm의 은(silver)선 제품을 사용하였다. 전기화학 셀은 Quartz를 이용하여 제작되었다. 작업전극과 상대전극은 양쪽이 뚫린 Pyrex의 유도관을 사용하였고 기준전극은 한쪽 끝이 막힌 Pyrex tube에 LiCl-KCl과 1wt% Ag를 녹인 Ag/AgCl(1wt%)로 하였다.

전기화학 측정은 Solatron사의 1470E Cell Test System 장치를 이용하였다.

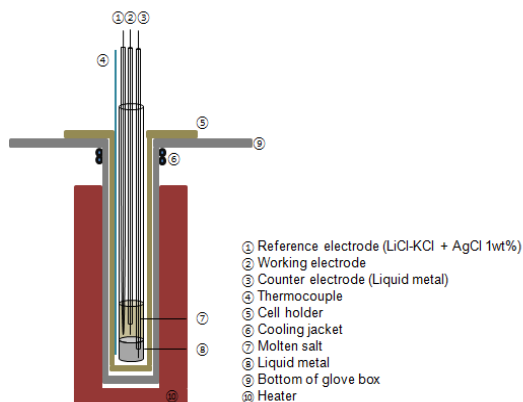
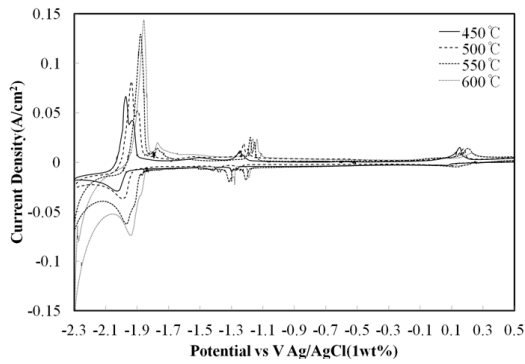


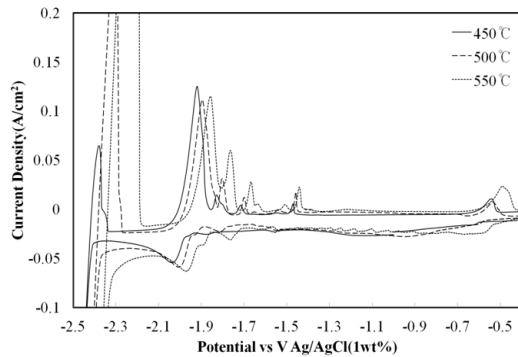
Fig. 1. Schematic of electrochemical experiment.

2.2 실험결과

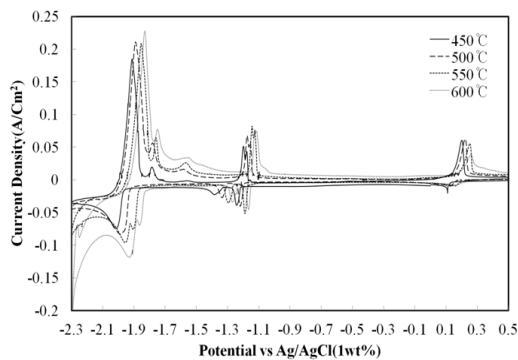
Fig. 2(a)는 용융염에 함유된 란타나이드 원소 세륨 Ce의 CV를 측정한 결과로 금속전극으로 비스무스를 사용하였다. 주사속도 100 mV/s로 온도의 변화에 따라 측정을 실시하였고, Fig. 2(b)(c)는 프라세오디뮴원소에 따라 각각 카드뮴과 비스무스 전극에 대한 결과이다. 액체금속과 란타나이드 금속의 산화환원반응을 확인할 수 있었으며, Table 1과 2에 양극의 금속 화합물의 분해에 따른 산화피크전위를 P_n 에 대하여 표시하였다. 액체금속과 란타나이드에 대한 이종금속합금은 ASME Hand Book-Alloy Phase Diagrams를 참고하였다. 전극에 산화주사전위를 걸어주어 액체금속 농도가 분해에 따라 전기적인 양으로 산화 피크로 확인하였다.[2] 이에 따라 액체금속과 란타나이드간 이종금속에 따른 조성임을 파악하였다.



(a) LiCl-KCl/Bi+CeCl₃



(b) LiCl-KCl/Cd+CeCl₃



(c) LiCl-KCl/Bi+PrCl₃

Fig. 2. Cyclic voltammograms for the redox reaction of the lanthanide elements(1wt%) for liquid metal electrode in molten salts LiCl-KCl at high temperature.

3. 결론

본 연구는 순환전류전압 측정을 통해 액체 금속 전극에서 일어나는 란타니드의 산화환원과정을 확인하였고, 이결과에 따라 합금의 형성분해반응에 참여하는 화학종은 확산에 지배함을 보인다. 또한, 온도변화에 따라 합금의 전위생성유무가 나

타나는 것을 보아 온도의 영향을 미치는 것을 알 수 있었다.

Table 1. Cd-Ce alloy

Reaction formula		450 °C	500 °C	550 °C	600 °C
Ce	Ce	-1.974	-1.937	-1.878	-1.878
P ₁	Ce ₂ Bi	-1.932	-1.897	-	-
P ₂	Ce ₃ Bi ₃	-	-1.801	-1.775	-1.769
P ₃	Ce ₄ Bi ₃	-1.504	-1.549	-	-
P ₄	CeBi	-1.247	-1.222	-1.180	-1.163
P ₅	CeBi ₂	-1.223	-1.198	-1.153	-1.137
Bi	Bi	0.151	0.176	0.204	0.224

Table 2. Cd-Pr alloy and Bi-Pr alloy

Reaction formula		450 °C	500 °C	550 °C	
Pr	Pr	-1.921	-1.897	-1.858	
P ₁	PrCd	-1.83	-1.80	-1.763	
P ₂	PrCd ₂	-1.80	-1.70	-1.665	
P ₃	PrCd ₃	-1.716	-1.653	-1.638	
P ₄	Pr ₁₃ Cd ₅₈	-1.546	-1.542	-1.516	
P ₅	PrCd ₁₁	-1.47	-1.458	-1.44	
Cd	Cd	-0.544	-0.536	-0.491	
Reaction formula		450 °C	500 °C	550 °C	600 °C
Pr	Pr	-1.913	-1.891	-1.855	-1.831
P ₁	Pr ₂ Bi	-1.785	-1.781	-1.759	-1.749
P ₂	Pr ₅ Bi ₃	-1.552	-1.583	-1.569	-1.551
P ₃	Pr ₆ Bi ₃	-1.199	-1.175	-1.143	-1.125
P ₄	PrBi	-1.178	-1.156	-1.126	-1.115
Bi	Bi	0.200	0.221	0.252	0.258

4. 감사의 글

이 연구는 미래창조과학부의 재원으로 한국연구재단의 지원을 통한 원자력기초공동연구소사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] 방사성폐기물학회지, 2012년 춘계 학술대회 논문요약집, pp.59-60, 2012.
- [2] Osamu Shirai, Akihiro Uehara, Toshiyuki Fujii, Hajimu Yamana, Journal of Nuclear Materials 344, pp.142-145, 2005.
- [3] Kumar Sridharan, M. Simpson, J. Bresee, "Thermal Properties of LiCl-KCl Molten Salt for Nuclear Waste Separation", NEUP, Project NO. 09-780, 38p., 2012.

파이로 공정에서 발생하는 산화희토류 폐기물 담지용 Ca-apatite 결정화유리 고화체

김미애, 허 중*

포항공과대학교, 포항시 남구 효자동 산 31

kmapl@postech.ac.kr

1. 서론

파이로 공정은 가압경수로(PWR)의 사용후 핵연료를 Pu의 분리 없이 재처리하여, 핵연료의 활용성을 크게 증대시킬 수 있는 공정이다[1]. 파이로 공정은 기존공정에 비해 폐기물 발생량이 적으나 CeO_2 , Nd_2O_3 등으로 구성된 희토류 폐기물이 발생한다. 본 폐기물은 기존의 사용후 핵연료에 존재하는 폐기물 조성과 다르므로, 이에 적합한 담지체가 요구된다.

희토류산화물을 담지하기 위해 본 연구에서는 Ca-apatite 함유 결정화유리를 개발하였으며, 본 담지체의 특성을 XRD, SEM, EDS 등을 통해 분석하였다.

2. 본론

2.1 Ca-apatite 함유 결정화 유리 제조

기본유리 조성은 $46\text{SiO}_2 - 12\text{Na}_2\text{O} - 12\text{B}_2\text{O}_3 - 24\text{CaO} - 3\text{CeO}_2 - 3\text{Nd}_2\text{O}_3(\text{mol}\%)$ 이다. 혼합 분말을 1300°C 도에서 30분 동안 녹인 후 급냉하여 갈색의 유리를 제조하였다. $500-800^\circ\text{C}$ 에서 3시간 동안 열처리 하여 결정화 유리를 제조한 후 특성을 분석하였다.

2.2 유리와 결정화 유리의 실제 조성

Table 1은 유리와 750°C 에서 3시간 열처리한 결정화 유리의 실제 조성을 XRF로 분석한 결과이다. nominal 조성과 비교하였을 때, 큰 차이가 없으므로 실험과정에서 특정원소의 유의미한 휘발이 발생하지 않은 것으로 판단된다.

2.3 결정화 유리 내 결정상 규명

Fig. 1은 모유리와 750°C , 800°C 에서 열처리한 결정화 유리의 XRD 분석 결과이다. 열처리를 하지 않은 (a) 시편은 결정상이 없는 비정질, 부가적인 열처리를 한 (b) 와 (c) 시편은 Ca-apatite

($\text{Ca}_2\text{Nd}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$) [vitusite] 결정상을 함유하고 있는 것으로 나타났다. 800°C 에서 열처리한 시편이 750°C 에서 열처리한 것보다 XRD peak의 강도가 증가하였다.

Table 1. Nominal and analyzed compositions (wt.%) of as-prepared glass and glass-ceramics heat-treated at 750°C for 3 h analyzed by x-ray fluorescence spectroscopy. Error: $\pm 0.01\%$

Element (oxide form)	Nominal Compositio n (wt.%)	As-prepare d glass (wt.%)	Glass-ceramics after HT (750°C , 3h)
SiO_2	38.31	39.51	39.56
Na_2O	10.31	11.45	11.19
Al_2O_3	-	6.71	6.01
CaO	18.66	19.98	19.74
CeO_2	7.16	7.37	7.95
Nd_2O_3	13.99	14.99	15.56
B_2O_3	11.58	-	-
Total	100	100	100

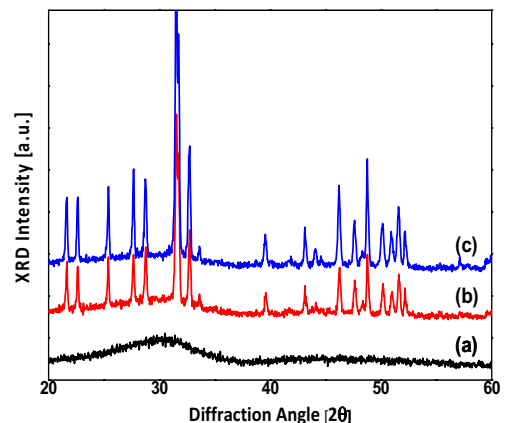


Fig. 1. X-ray diffraction patterns of (a) as-prepared glass and after heat treatment at (b) 750°C and (c) 800°C for 3h. Patterns are vertically shifted for clear presentation.

2.4 결정화 유리 내 결정의 모양

Fig. 2는 800℃에서 3시간동안 열처리한 결정화 유리 내에 형성된 Ca-apatite 결정을 SEM 으로 분석한 사진이다. 형성된 결정은 Hexagonal 구조이며, 약 100um 크기로, 유리 매트릭스 전체에 균질하게 분포하고 있다.

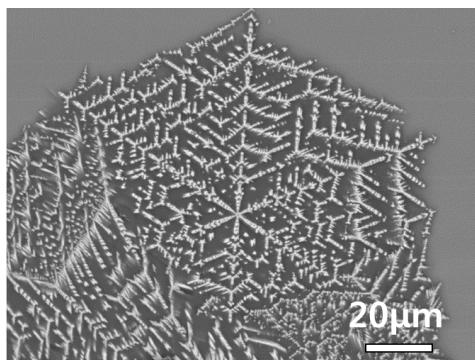


Fig. 2. Back-scattered SEM images of $\text{Ca}_2\text{Nd}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$ crystals in glass-ceramics after heat treatment at 750°C for 3h.

2.5 결정화 유리 내 결정과 매트릭스의 조성 분석

Table 2는 EDS를 이용하여 800℃에서 3시간 열처리한 결정화 유리내 결정과 매트릭스 각각의 조성을 분석한 결과이다. 유리 매트릭스에서 17wt%의 Ce과 Nd이 존재하는 반면, vitusite 결정 내에서는 44wt%에 육박하는 희토류가 존재하고 있어 2.6배의 차이를 나타낸다.

Table 2. Concentration of elements obtained from the energy dispersive spectroscopy (EDS) analysis in crystalline and glass phases in $\text{Ca}_2\text{Nd}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$ -based glass-ceramics. The specimen was heat-treated at 750°C for 3 h. Error limits $\pm 2\%$

Elem ent	$\text{Ca}_2\text{Nd}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$ crystalline phase		Glass matrix	
	Weight %	Atomic %	Weight %	Atomic %
Ce	15.32	3.97	6.18	1.07
Nd	29.54	7.44	11.42	1.93

2.6 기계적 특성 분석

Table 3은 유리와 Ca-apatite 함유 결정화 유리의 Vickers 경도를 측정한 결과이다. 결정화 유리의 비커스 경도 값은 676.84 kgf/mm²으로, 유리

(686.52 kgf/mm²)에 비해 소폭 증가했으나 유의미한 차이라고 보기는 어렵다.

Table 3. Measured hardness of glass and glass-ceramics by Vickers hardness tester. Average is calculated from five measured data except for maximum and minimum values

		Average
Glass	[kgf/mm ²]	674.84
	[GPa]	6.61
Glass-ceramics	[kgf/mm ²]	686.52
	[GPa]	6.73

2.7 화학적 내구성 평가

Ce, Nd 등 주요 원소가 유리 또는 결정화 유리로부터 침출된 양을 Table 4에 나타내었다. 희토류(Ce, Nd) 침출량은 모두 ICP-AES 검출한계(0.1ppm)이하로 평가되었고, Si, Na, Ca 침출량 또한 wasteform과 비견할 만한 수준이다,

Table 4. Normalized elemental mass release $r(\text{g/m}^2)$ calculated from the concentration $C_i(\text{ppm})$ of element I in solution measured by ICP

		Element				
		Ce	Nd	Si	Na	Ca
Glass	C_i	LOD*	LOD*	21.9	41.4	12.5
	r	-	-	0.039	0.167	0.028
Glass-ceramics	C_i	LOD*	LOD*	32.6	53	13.3
	r	-	-	0.06	0.22	0.03

*LOD : Limit of detection (< 0.1ppm)

3. 결론

파이로 공법에서 발생하는 희토류산화물을 처리하기 위한 고화체로 Ca-apatite 결정이 함유된 결정화 유리를 제조하였고, Ca-apatite 결정 내부에 희토류원소가 농축되어 있음을 규명하였다.

4. 참고문헌

- [1] LEE et al., Pyroprocessing Technology Development at KAERI, NUCLEAR ENGINEERING AND TECHNOLOGY, VOL.43 NO.4 AUGUST 2011.

Cs 오염수 처리를 위한 hybrid 흡착제의 합성과 특성 연구

이근영*, 박민성, 이일희, 김광옥, 정동용, 문제권

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*lky@kaeri.re.kr

1. 서론

후쿠시마 원전사고를 통해 Cs 오염수에 대한 처리기술의 중요성이 다시 강조되고 있고, 비정상 중대사고 시 발생하는 대용량의 고방사성 오염수를 신속하게 처리하여 발생량을 최소화하고 환경으로의 방사성 누출을 최소화하는 기술의 개발이 요구되고 있다.

따라서 본 연구에서는 중대사고 시 발생할 수 있는 고염 조건의 Cs 오염수를 대상으로 고효율의 흡착-침전법(adsorption-precipitation) 기반 처리기술 개발을 위한 최적 물질의 합성 및 Cs 제거 특성 평가를 목표로 하고 있다.

현재까지 Cs 제거를 위한 흡착제로써 매우 다양한 물질들이 연구되었는데, 각각의 물질들이 갖는 단점을 상호 보완하는 hybrid 물질의 개발이 대두되고 있고, 이와 관련한 연구가 국내외에서 일부 진행중에 있다. Cs를 선택적으로 제거하는 zeolite와 metal ferrocyanide의 조합은 그 한 가지 예로 볼 수 있고, 본 연구에서는 이들을 이용한 hybrid 흡착제를 합성하고 Cs 제거효율을 각각의 개별물질 및 기존의 Cs 흡착제들과 상호 비교를 통해 평가하고자 하였다.

2. 본론

2.1 실험

본 실험을 위하여 동해안의 해수시료를 직접 채취하였고 여기에 Cs를 1~100mg/l가 되도록 녹여 모의 오염수를 제조하였다. 초기 시료 분석 결과 해수 내 Na과 Cl 농도는 각각 10,675 mg/l, 19,700 mg/l 인 것으로 나타났다.

사전 문헌연구와 기초실험을 통해 potassium chabazite와 potassium cobalt ferrocyanide의 hybrid 흡착제(CHA-CoFC)를 합성하였고, 합성된 hybrid 흡착제는 주사전자현미경(SEM)을 이용하여 입자형태 및 크기를 확인하였고, 에너지분광분석(EDS)를 통한 구성성분 분석 및 X선 회절분석(XRD)을 통해 광물상 분석을 수행하였다.

개별물질인 potassium chabazite(K-CHA)와 potassium cobalt ferrocyanide(CoFC)는 물론 sodium chabazite(Na-CHA) 그리고 chabazite 상용제품인 IE-96을 이용한 Cs 흡착실험을 진행하였고, 2시간동안 교반 후 채취한 용액 시료 내 Cs 농도를 분석하여 흡착효율(adsorption yield, %), 흡착용량(adsorption capacity, q) 및 분배계수(distribution coefficient, Kd) 등을 계산하였다. 용액상의 Cs 농도는 원자흡광분석기(AAS) 또는 유도결합플라즈마 질량분석기(ICP-MS)를 이용하여 정량하였다.

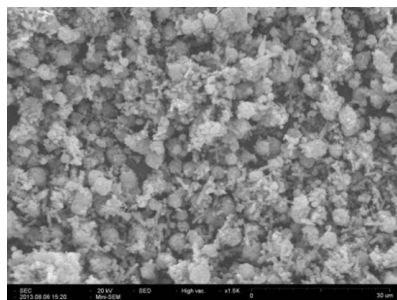
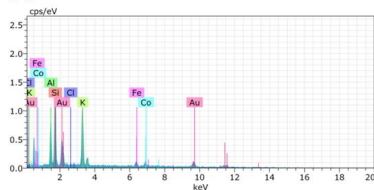


Fig. 1. SEM image of synthesized CHA-CoFC hybrid adsorbent.

(A) CHA-CoFC



(B) CoFC

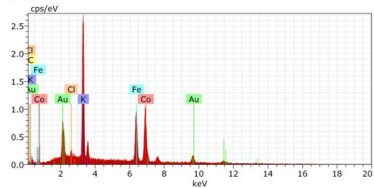


Fig. 2. EDS results of synthesized (A) CHA-CoFC and (B) CoFC.

2.2 결과 및 토의

합성한 hybrid 흡착제의 SEM image를 통해 수 ~수십 μm 수준의 미세입자들이 서로 붙어 집합체를 형성하고 있는 것이 관찰되었고 (Fig. 1), EDS 분석 결과 CoFC 단일물질과는 달리 CHA-CoFC는 chabazite 내 Si, Al 성분이 CoFC 구성 성분과 함께 존재함을 확인하였다 (Fig. 2). Hybrid 흡착제의 XRD 분석결과 역시 결정상의 potassium chabazite와 potassium cobalt ferrocyanide가 시료 내에 공존하고 있는 것으로 나왔고 (Fig. 3), 이는 hybrid 흡착제의 합성이 잘 이루어졌음을 나타낸다.

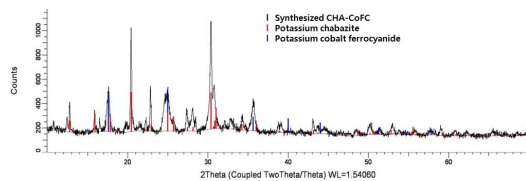


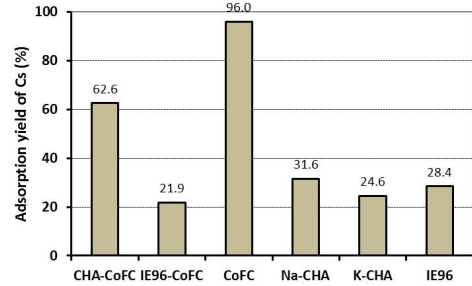
Fig. 3. XRD peak of synthesized CHA-CoFC hybrid adsorbent.

Fig. 4는 여러 흡착제들을 대상으로 다양한 m/V 비에 따른 Cs 흡착효율을 비교한 결과로써, CoFC 단일물질이 가장 높은 Cs 제거효율(m/V=1에서 96%)을 보였고, 합성 chabazite 및 상용 chabazite 단일물질은 서로 유사한 수준의 제거효율(m/V=1에서 약 25~32%)을 보였다. Hybrid 흡착제의 경우 chabazite 단일물질보다 향상된 제거효율을 보였다. CoFC는 매우 높은 Cs 흡착용량을 갖고 있는 것으로 알려져 있으나 고온 환경에서 불안정한 단점을 갖고 있으므로 고방사성 오염수 처리를 위해 단독으로 사용하기 어려운 한계가 있고, chabazite는 상대적으로 낮은 Cs 흡착효율을 보이는 단점을 갖고 있으므로, 이들의 hybrid 물질을 적용하였을 시 상호보완의 효과를 기대할 수 있다.

3. 결론

Hybrid 흡착제의 합성을 통해 기존 chabazite 대비 향상된 Cs 제거효율을 얻을 수 있었고, 또한 Cs를 흡착한 potassium cobalt ferrocyanide의 안정성 향상을 기대할 수 있어 고염 및 고방사성 Cs 오염수 처리에 hybrid 흡착제가 활용 가능할 것으로 사료된다.

(A) Cs removal % (m/V=1g/l)



(B) Cs removal % (m/V=1~20g/l)

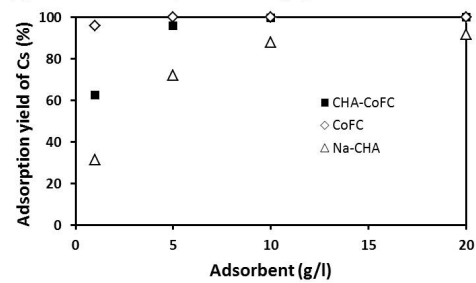


Fig. 4. Cs adsorption yield % of various adsorbents with different m/V ratio.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력연구개발 중 장기 계획사업 일환으로 수행된 연구결과입니다.

5. 참고문헌

- [1] Water, Vol.3, pp. 551-565, 2011.
- [2] Zeolites, Vol.11, pp. 745, 1991.
- [3] Separation Science and Technology, Vol.34, pp. 17-28, 1999.
- [4] Advanced Powder Technology, Vol.23, pp. 757-760, 2012.
- [5] Journal of Hazardous Materials, Vol.166, pp. 1148-1153, 2009.

원전해체 시 요구되는 일차계통 방사성 물질 오염제거를 위한 HYBRID-II 제염제 ($\text{Cu}^+/\text{N}_2\text{H}_4/\text{H}_2\text{SO}_4$)의 개발

김선병*, 원휘준, 이우성, 문제권, 최왕규

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*sbkim@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력발전소는 원칙적으로 구조 재료의 건전성 및 시스템의 안정성 보장을 위해 설계당시 가동 수명을 30년에서 40년으로 제한되어 건설/운용 되어오고 있다. 미국 APS (American Physical Society)를 비롯한 여러 연구결과에 따르면 원전의 수명은 주기적인 유지 보수와 안정성 관련 기술의 발달로 현재 60-80년까지도 연장이 가능하다고 보고되고 있으나 [1], 안정성이 확보되지 않은 경우뿐만이 아니라, 수명연장을 위한 대규모 교체작업에 투입되는 경제적인 비용이 새로운 원전의 건설을 뛰어넘는 경우도 있기 때문에 원전의 해체는 필수적으로 요구되며, 90% 이상의 원전이 1987년 이전에 건설된 점을 고려하면 [2], 2020년 이후 많은 가동 원전의 해체가 예상된다. 따라서 원전해체에 요구되는 제반기술들의 확보는 기술적 자립과 국내 연구소 및 산업체의 해체 시장 선점을 가능케 하여 결과적으로 막대한 해체비용을 저감시킬 수 있는 필요조건이 된다.

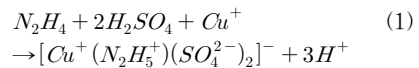
원전 일차계통의 해체 제반기술의 확보를 위해 국내의 제염분야는 1982년 고리 1호기 증기발생기의 유지보수 시에 기존 화학제염법을 적용한 이래 다양한 구성품 제염 및 화학제염에 대한 연구가 진행되어 오고 있다 [3]. 제염폐액의 저감 및 처분장의 수용정책을 고려하여 유기산 및 유기킬레이트제가 함유되지 않은 N_2H_4 기조에 저농도의 무기산을 함유한 전계통제염(Full System Decontamination, FSD)을 위한 HYBRID (HYdrazine Based Reductive metal Ion Decontamination) 제염법이 2012년도에 개발되었으며 [4], 최근에는 HYBRID 제염제에서 사용되는 질산을 황산으로 교체하여 제염폐액 처리의 용이성을 증대시키고 제염효과 또한 향상된 HYBRID-II 제염제의 개발이 진행되고 있다. 따라서 이 논문에서는 HYBRID-II 제염제 개발의 일환으로 마그네타이트 용해성능을 평가하였고 그 결과를 기존의 HYBRID 제염제와 비교하여 분석하였다.

2. 본론

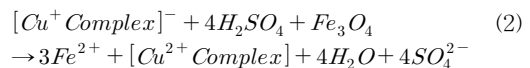
2.1 HYBRID-II 화학제염제

HYBRID-II 화학제염제는 hydrazine을 강한 환원 제염제로 사용하고 H_2SO_4 용액에 의한 산성조건에서 Cu^+ 이온을 $[\text{Cu}^+(\text{N}_2\text{H}_5^+)(\text{SO}_4^{2-})]^-$ 배위화합물 형성의 촉매로 사용하여 제조하였다. 산성조건에서 하이드라지늄(N_2H_5^+)의 형성은 X선 단결정 구조 분석을 통해 확인하였고, N 원자와 Cu^+ 이온의 배위결합은 Far-FTIR을 통해 확인하였다. HYBRID-II 용액의 배위결합 형성 및 금속산화물 (e.g. Fe_3O_4) 용해는 아래와 같은 메커니즘을 따르는 것으로 파악되었다.

Formation of coordination complex



Decontamination



2.2 HYBRID-II 화학제염제에 의한 마그네타이트 용해거동

HYBRID-II 무착화성 화학제염제를 적용하여 pH 및 Cu^+ 이온의 농도 변화에 따른 마그네타이트 용해거동을 살펴보았다. 0.01M과 0.1M 농도의 hydrazine 용액을 준비하여 일정온도(95℃)에서 2시간 후의 용해도를 측정하여 비교하였다. 제염용액에 의해 용해된 마그네타이트의 Fe 이온은 Atomic Spectroscopy를 이용하여 분석하였고 전체 Fe 이온의 양은 36 ppm 이었다. 분석결과는 그림 1과 같다. Cu(I) 이온의 미량 첨가에 따라 용해속도가 크게 증가하였고, 이는 형성된 배위결합물의 N_2H_5^+ 이온이 Cu^+ 이온의 전자를 마그네타이트의 ferric ion 으로 전달시켜 ferrous ion으로 환원시키는 가교역할에 기인된 것으로 추측된다.

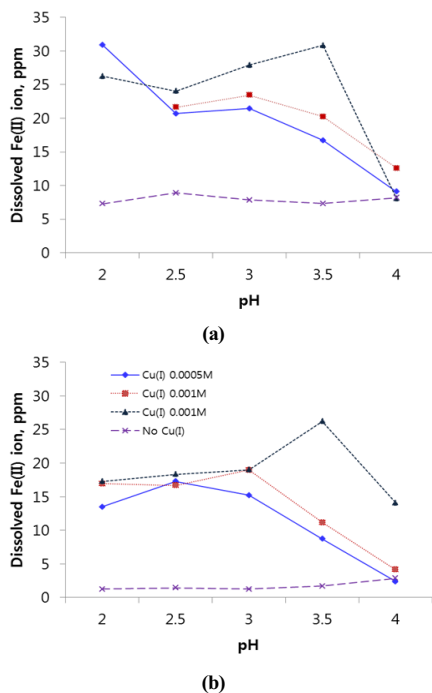


Fig. 1. The dissolved magnetite by HYBRID-II decontamination in terms of pH and Cu(I) ion (hydrazine concentration (a) 0.1M, (b) 0.01M).

2.3 HYBRID-II 화학제염제 용해성능 비교

기 개발된 HYBRID 제염제의 nitrate 이온의 제염후 처리문제를 해결하기 위하여 대체 개발중인 HYBRID-II 제염제의 경우, 기존의 HYBRID 제염제와 비교하였을 때 마그네타이트 용해성능이 향상됨을 확인하였고 그 결과를 그림 2에 도시하였다. 이는 황산의 sulfate 이온의 이온반경이 nitrate 이온의 반경보다 커서 반응성이 증가되는 것으로 설명될 수 있다.

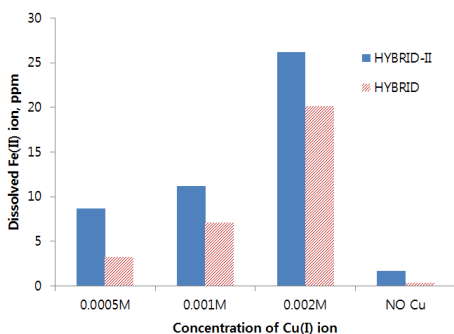


Fig. 2. The comparison of magnetite dissolution by HYBRID-II and HYBRID decontamination solutions (pH 3.5, [N₂H₄]=0.01M).

3. 결론

본 연구로부터 H₂SO₄ 무기산과 N₂H₄ 환원제 기초의 화학제염제의 마그네타이트 용해성능이 기존에 개발된 HYBRID 제염제에 비교하였을 때 향상됨을 확인 할 수 있었고, HYBRID 제염제에서와 마찬가지로 Cu(I) 이온의 미량 첨가는 배위결합 형성으로 인한 용해속도 증가에 결정적 요인임을 확인할 수 있었다. H₂SO₄를 사용하여 발생한 sulfate 함유 제염폐액은 Ba 또는 Ca 이온에 의한 침전법으로 제거되기 때문에 원전 제염 시 이온교환 수지에 의하여 발생하는 방사능 폐액의 양을 저감시킬 수 있다. 차후 부식산화막의 용해 및 방사능 오염 대상에 대한 심도있는 제염연구를 통해 개발중인 제염제의 성능을 보다 향상시키고, 원전 해체 시에 최적화된 제염제로서 HYBRID-II 화학제염제가 활용될 것으로 기대된다.

4. 감사의 글

이 논문은 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임 (NRF-2012M2A8A5025655).

5. 참고문헌

- [1] APS, Renweing Licenses for the Nation's Nuclear Power Plant, Report of APS panel on public affairs, (2013).
- [2] IAEA, Nuclear Power Reactors in the World, in Reference Data Series No 2 (2013).
- [3] Won-Jin Oh, et al., Decontamination and Restoration Technology Development, Technical Report of Korea Atomic Energy Research Institute, pp. 343-379, KAERI II/RR-22/90 (1990).
- [4] Hui-Jun Won, et al., Dissolution of Magnetite by the Hydrazine Base Solution, Proc. of Transactions of the Korean Nuclear Society Spring Meeting. 235, Gwangju, Korea (2013).

방사성 세슘 제거를 위한 자성흡착제/하이드로젤 복합소재의 제조

양희만*, 홍상범, 최용석, 이근우, 서범경, 문제권

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*hmyang@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력시설의 중대사고로 인하여 오염된 환경을 원래의 깨끗한 상태로 되돌리기 위해서는 안전하고 효과적이며, 신속하고 정확하게 오염을 제거할 수 있는 기술이 필요하다. 특히 엄청난 재앙을 불러온 체르노빌 원전 사고와 후쿠시마 원전 사고와 같은 원전 중대 사고시 초기에 대응하지 못할 경우 광범위하게 오염이 확산될 수 있으며 시간이 경과할수록 지하수, 지표수, 토양 오염과 같은 2차 오염을 야기하여 인체 및 생태계에 치명적인 영향을 미친다. 특히, 방사성 오염 물질로 오염된 건물 표면, 지하수, 지표수, 공기, 토양 등에서 방사성 오염 물질을 제거할 수 있는 흡착제 제조 기술의 확보가 매우 중요하다. 이를 위해 지하수, 강 하천 등의 물환경이나 건물 도로위 오염표면에 존재하는 방사성 세슘만을 선택적으로 포집하여 제거하기 위해 hydrogel/자성흡착제 하이브리드 기능성 소재를 이용하면 초상자성을 가지는 자성입자가 자기장에 의해 쉽게 회수가 가능하다는 장점을 가질 수 있어 다양한 오염 환경에 적용이 가능하다.

본 연구에서는 자성 나노입자 기반의 방사성 핵종의 흡착제를 제조하고 제조된 자성흡착제를 물 흡수력이 뛰어난 친수성 고분자 소재로 구성된 고분자 비드에 봉입하여 hydrogel/자성흡착제 복합소재를 제조하는데 있어 중요한 인자를 살펴보고 그 에 따른 복합 소재의 특성 성질을 살펴보았다.

2. 본론

2.1 제조 방법

흡착제/하이드로젤 복합소재는 크게 자성입자 제조, 구리페로시아나이드 도입, 마지막으로 흡착제의 하이드로젤에 봉입으로 총 세 단계로 제조된다.

먼저, 1단계로, iron acetylacetonate와 triethylene glycol을 질소 분위기 하에서 278°C로 온도를 올려 준 후, 30분 동안 반응을 유지시켜준다. 그 뒤 100°C로 온도를 낮추어 준 후, citric acid를 첨가하여 1시간 이상 교반한다. 반응기의 온도를 실온

으로 낮추어 준 후 제조된 결과물에 ethyl acetate를 첨가하며 자기장을 이용해 미반응물과 과량으로 넣었던 용매를 제거한다. 침전물을 60°C에서 가압 건조하여 자성입자 분말을 수득한 후, 증류수를 첨가하여 10 mg/mL의 농도의 자성나노입자 stock solution을 만든다.

2단계 합성과정으로, 자성나노입자 stock solution에 PEI aqueous solution을 첨가하여 90분 동안 마이크로초음파 처리를 하여 PEI가 코팅된 자성나노입자를 제조한다. 이때 첨가되는 PEI의 양은 자성나노입자의 무게비를 조절하여 실험을 진행하였다.¹ PEI가 코팅된 자성나노입자를 물에 다시 재분산시킨 후, CuCl₂를 첨가하여 Cu 이온이 충분히 입자 표면에 접목될 수 있도록 6시간의 충분한 시간 동안 균일하게 교반시켜주었다. 그 뒤, 자기장을 이용하여 solid 형태의 침전물을 얻는다. 0.25 mol/L의 Na₄Fe(CN)₆ solution을 첨가한 후 1시간 이상 교반하고, 위와 같은 방법으로 자기장을 이용하여 생성물을 얻는다.

앞에서 합성된 페로시아나이드가 접목된 자성나노입자를 하이드로젤 비드안에 봉입하여 흡착제/하이드로젤 비드 소재를 제조하는 방법은 다음과 같다.²

먼저, 적당량의 alginate를 NaOH 용액에 녹여준다. 그 뒤 위에서 제조한 구리페로시아나이드가 접목된 자성흡착제를 다양한 농도로 alginate NaOH 용액에 첨가해준다. NaOH 용매에서 두 첨가물이 잘 녹도록 30분 이상 교반시켜준다. 위에서 제조한 혼합 용액을 주사기를 이용하여 시간당 첨가량을 조절해가면 CaCl₂ 수용액에 첨가해준다. 위 용액을 1 - 5시간동안 반응시간을 조절해가며 교반시킨다. 반응이 모두 끝난 후, 증류수를 이용하여 미반응물을 제거한다. 그 후 동결건조하여 파우더 형태의 합성물을 얻는다.

제조된 자성흡착제와 흡착제/하이드로젤 복합소재는 Dynamic light Scattering (DLS), Zeta-potential analyzer, X-ray diffraction (XRD), Transmission Electron Microscope (TEM), Fourier transform-infrared spectroscopy (FT-IR), Vibrating sample

magnetometer (VSM), Thermo gravimetry analysis(TGA)를 이용하여 특성 및 화학분석을 수행하여 제조조건을 도출하였다.

2.2 실험 결과 및 고찰

TEM, XRD, VSM 등의 화학분석을 통해 제조된 FC-MNPs가 초상자성을 가지는 자성나노입자임을 확인하였다. 그림 1에서 보는바와 같이 2050 cm^{-1} 위치에서 매우 강한 흡수 peak를 보여주는 데 이는 cyanide group (CN)을 나타내는 특정 band로 ferrocyanide가 성공적으로 접목되었음을 보여준다. 제조된 자성흡착제의 세습 흡착특성 실험 결과 99% 이상의 세습 제거 효율을 확인하였다.¹

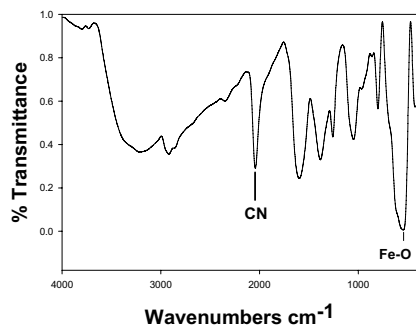


Fig. 1. FT-IR Spectrum of Cu-FC-MNPs.

제조된 Cu-FC-MNPs의 alginate 비드 내부로의 봉입을 위해 다양한 제조 조건에서 실험을 수행하였다. 즉 흡착제 양과 alginate의 양의 비, Ca 이온의 농도, 반응 시간, 첨가 시간 등의 조건을 변화해가며 최적의 제조 조건을 도출하였다. 그림 2는 제조된 자성흡착제/하이드로젤 비드의 그림을 보여주고 있다. 수십 마이크로미터 크기의 비드 안에 자성흡착제가 봉입되어 자성입자의 색인 검은색을 띠고 있으며, 첨가되는 흡착제의 양이 증가할수록 흡착제/하이드로젤의 색깔이 진해지는 것을 쉽게 확인할 수 있다.

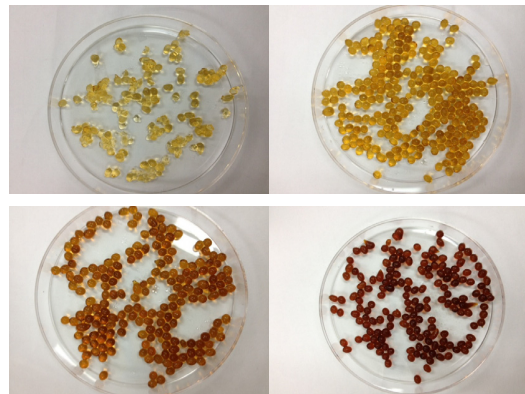


Fig. 2. photo images of magnetic absorbent/hydrogel hybrid materials fabricated by various weight ratio of absorbent to hydrogel (0.2:10, 0.5:10, 1:10, 2:10).

3. 결론

본 연구에서는 방사성 핵종으로 오염된 지하수, 하천 강 등의 물 환경과 건물 표면 등의 주거환경에서 다용도로 적용될 수 있도록 물 흡수성이 뛰어난 하이드로젤을 지지체로 하여 자성흡착제를 지지체 내부에 봉입하여 흡착제/하이드로젤 복합소재를 제조하고자 하였다. 위 복합 소재의 제조 조건을 도출하기 위해 alginate 비드에 반응 조건에 따른 복합 소재의 특성 변화를 살펴보았다. 제조된 페로시아나이드가 접목된 자성입자는 원자력 시설의 사고 시 발생하는 강, 하천 수영장 등의 세습 제거용 흡착제 그리고 원자력 시설에서 발생할 수 있는 방사성 오염물질의 제거를 위한 제염제로 활용 될 수 있다.

4. 감사의 글

This research was supported by the Korea Ministry of Education, Science, technology Grant funded by the South Korean government.

5. 참고문헌

- [1] H.-M. Yang, S. H. Hong, K.-W. Lee, B.-K. Seo, J.-K. Moon, Journal of Nanoscience and Nanotechnology, submitted.
- [2] B. Y, Kim, J. H. Jeong, J. D. Kim, J. Control. release, 102, 525-538 (2005).

파이로 공정에서 발생하는 129-I 담지용 유리 고화체 개발

이청원*, 허 중

포항공과대학교, 포항시 남구 청암로 77

*schwarz@postech.ac.kr

1. 서론

파이로 공정은 가압경수로의 사용후 핵연료를 Pu의 분리 없이 재처리하여, 핵무기의 위험성을 없애고 핵연료의 효율성을 증대시킬 수 있는 공정이다[1]. 이 공정 중 전처리 공정인 voloxidation 단계에서 Cs, Tc 그리고 I이 휘발하게 되는데 이는 off-gas treatment 시스템 내부의 각각 다른 필터를 통하여 선별적으로 포집된다. 이 중 129-I은 AgX zeolite 필터를 이용하여 AgI의 형태로 포집한다. AgI는 다른 두 원소에 비해 저온인 558℃에서 분해되며 129-I 원소는 이동성이 높고 반감기가 길어 (1.57×10^7 년) 특별히 안정된 담지체가 필요하다.

본 연구에서는 129-I을 담지하기 위해 용융 공정을 통한 유리화 및 유리 분말과의 혼합을 통한 소결체를 제조하고 X-ray diffraction (XRD), Scanning electron microscope (SEM), energy dispersive spectroscopy (EDS)를 이용하여 담지체의 여러 특성을 평가하였다.

2. 본론

2.1 용융 공정

Table 1은 off-gas treatment 시스템에서 AgI 형태로 흡착되어 있는 AgX zeolite 필터를 재현한 조성이다. 해당 조성은 실험 결과 1200℃ 이상의 고온에서도 거의 녹지 않는다. 따라서 용융 온도를 낮추면서도 유리 제조가 가능한 B₂O₃와 Na₂O를 첨가하였다.

Table 2는 Table 1의 조성을 가진 waste를 각각 (a) 50wt.%, (b) 25wt.%, (c) 12.5wt.% 첨가하여 제조한 유리의 조성이다. (a)의 조성으로 부터 waste 첨가량이 감소하면 동시에 전체 시료내 SiO₂, Al₂O₃, Na₂O의 함량이 감소하므로 이를 별도로 추가하여 Table 2와 같은 조성의 유리를 제조하였다. 또한 은이 고온에서 쉽게 환원되어 Ag 금속으로 석출되므로 이를 방지하기 위해 산화제로 NaNO₃를 첨가하였다. 혼합한 powder는 커버를 사용하여 1100℃에서 30분 동안 가열하여

용융한 후 공기중에서 냉각하여 유리를 제조하였다.

Table 1. Composition of AgX zeolite filter with adsorbed AgI

Element	Composition (wt.%)
Ag	13.0
I	15.0
Na ₂ O	14.4
Al ₂ O ₃	21.6
SiO ₂	36.0
Total	100.0

Table 2. Compositions of as prepared glasses containing (a) 50 wt. %, (b) 25 wt.% and (c) 12.5 wt % of AgI-zeolite wastes

Element	Compositions (wt.%)		
	(a)	(b)	(c)
Ag	6.24	3.19	1.61
I	7.20	3.68	1.86
Al ₂ O ₃	10.37	11.45	12.00
SiO ₂	17.28	19.08	20.00
Na ₂ O	35.71	39.42	41.32
B ₂ O ₃	19.20	21.20	22.22
Na ₂ NO ₃	4.00	2.00	1.00
Total	100.00	100.00	100.00

2.2 소결 공정

Table 3은 상업용 유리 프리트 (50PbO - 35B₂O₃ - 15SiO₂, wt.%) 에 wastes 를 10wt.% 첨가하고 은의 환원을 방지하기 위해 소량의 NaNO₃를 첨가하여 제조한 소결체의 조성이다. 혼합한 powder는 100℃ 이상에서 10시간 이상 건조한 후 mold에 넣고 프레스로 400 kg/cm²의 압력을 가하여 pellet을 제조하였다. 이를 1℃/min의 속도로 550℃까지 가열한 후 10시간 동안 유지하여 소결체를 제조하였다.

Table 3. Composition of as prepared sintered glass

Element	Composition (wt.%)
PbO	44.55
B ₂ O ₃	31.19
SiO ₂	16.93
Ag	1.29
I	1.49
Na ₂ O	1.43
Al ₂ O ₃	2.14
Na ₂ NO ₃	1.00
Total	100.00

2.3 유리내 결정 형성

Fig. 1은 1100℃에서 30분동안 용융한 각기 다른 조성의 유리의 XRD 분석 결과이다. Waste를 50 wt.%, 25wt.% 첨가한 유리에서 나타나는 peak는 AgI 결정체에 기인한 것이며 유리 매트릭스 내에 불균일하게 분포되어 있다. Fig. 2는 550℃에서 10시간동안 소결한 유리를 powder 형태로 분쇄하여 측정한 XRD 결과이며 전체적으로 비정질상의 형태를 나타내고 있다.

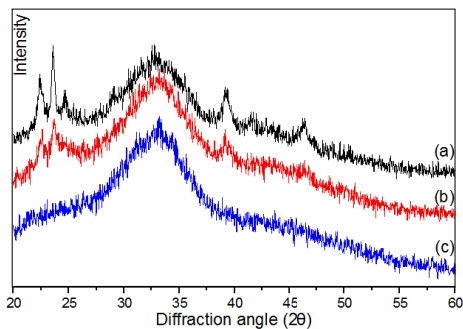


Fig. 1. XRD patterns of the melt-quenched glasses. Each glass contains (a) 50wt.%, (b) 25wt.% and (c) 12.5wt.% of wastes.

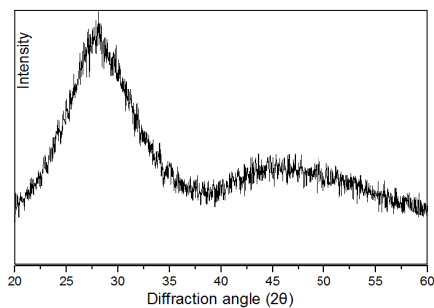


Fig. 2. X-ray diffraction (XRD) pattern of the sintered glass.

2.4 유리내 I 존재

Fig. 3은 550℃에서 10시간동안 소결한 소결체내 AgI가 집중 분포되어 있는 부분에 대한 SEM 이미지이며 Table 4는 해당 영역의 EDS 분석 결과이다. 전체적으로 고르게 분포되어 있지는 않지만 I이 휘발하지 않고 다량 잔존함을 확인할 수 있다.

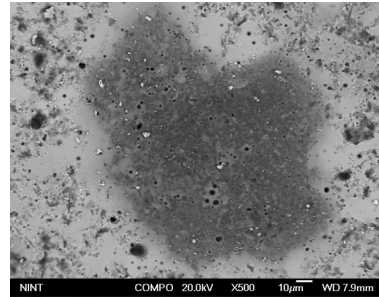


Fig. 3. Back-scattered SEM Image of sintered glass.

Table 4. Elemental composition of sintered glass surface analyzed by EDS

Element	weight %	atomic %
O K	46.24	67.45
Na K	6.67	6.78
Al K	9.66	8.36
Si K	17.63	14.66
Ag L	4.51	0.98
I L	0.72	0.13
Pb M	14.56	1.64
Totals	100.00	100.00

3. 결론

파이로 공정에서 발생하는 I-129를 처리하기 위한 고화체로, 소결법을 이용한 소결체와 용융법으로 제조한 붕규산염 유리에 대해 XRD와 EDS를 이용하여 특성을 평가하였다. 두 가지 시편 모두 유리 기지내에 I와 Ag의 담지 가능성이 높음을 확인할 수 있다.

4. 참고문헌

- [1] LEE et al., Pyroprocessing Technology Development at KAERI, NUCLEAR ENGINEERING AND TECHNOLOGY, VOL.43 NO.4 AUGUST 2011.

3분과

제염해체 및 방사성폐기물 처리(Poster)

KOREAN RADIOACTIVE WASTE SOCIETY

동전기 폐액의 재사용을 위한 처리방법

김승수*, 한규성, 박옥량, 김계남

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*nsskim@kaeri.re.kr

1. 서론

동전기 기술 (Electrokinetic Technology)을 이용하여 우라늄으로 오염된 토양을 제염하는 과정에서 많은 양의 산 폐액이 발생한다. 이 방사성 폐액은 처리되거나 재사용되어야 하는데, 폐액을 증발건조시킬 경우 너무 많은 에너지가 소요되므로 본 과제에서는 폐액을 적절한 처리하여 재사용하고자 하였다.

중성 혹은 약염기 용액에서 우라늄의 용해도가 낮으므로 폐액의 pH를 6-9로 높이기 위하여 폐액에 CaO 혹은 NaOH를 첨가하였다. 그러나 NaOH를 사용할 경우, 폐액처리 후 재사용시 소듐 농도가 계속 농축되어 결국 고체상태로 석출된다. 대부분의 소듐 화합물은 수용액에서 용해도가 매우 커서 용액중에서 이를 선택적으로 제거하기가 쉽지 않다. CaO를 사용하면 용해속도가 느려 pH 조절에 시간이 많이 소요되나, 재생액에 용해되어 있는 칼슘이온이 소듐 이온보다 침전물을 형성하기 쉬우므로 제거가 쉽다. 따라서 본 연구에서는 동전기 폐액의 중화를 위하여 CaO를 사용하였고, 이 폐액으로부터 칼슘을 제거하여 이 용액을 동전기 장치에 재사용하는 방법을 시도하였다.

2. 실험

2.1 실험 재료

실험에 사용한 용액은 실제 동전기의 폐액처리 장치에서 발생된 재생액을 그대로 사용하였다. 이 용액은 동전기 폐액에 CaO를 넣어 pH를 9까지 높인 다음, 우라늄을 제거하기 위하여 황산알루미늄과 마그네사이트를 넣고 필터프레스로 고형물을 분리한 용액이다. 이 재생액에 녹아있는 주 원소는 Ca, Fe, Ni 이며, 특히 칼슘 농도가 3.8%로 매우 높았다.

칼슘을 침전시키기 위하여 흔히 사용할 수 있는 무기 음이온은 carbonate와 sulfate이다. 즉,

CaCO₃와 CaSO₄는 수용액에서 낮은 용해도를 갖는다. 따라서 본 실험에서는 황산을 사용하였다.

2.2 실험 방법

CaSO₄를 형성시키기 위하여 재생액에 진한 황산을 천천히 저어주면서 가하였다. 침전형성에 사용될 황산의 적절량을 알기 위해 재생액 1 L에 황산을 각각 10, 50, 100, 150 mL를 가하였다. 반응 후 원심분리하여 여액과 고형물을 분리한 다음, 고형물을 105℃에서 2시간동안 건조하였다. 황산 첨가 전후의 칼슘 농도 변화와 고형물의 무게를 측정하여 칼슘 제거량을 측정하였다.

우라늄의 농도가 약 7 Bq/g로 오염된 토양을 발생폐액량을 줄이기 위해 동전기 폐액을 2주 동안 동전기에 사용한 다음, 소동전기에 7~10일 동안은 칼슘이 제거된 재생액으로 제염하였다. 동일한 방법으로 칼슘을 제거하지 않은 용액으로 실험하여 토양제염 효과를 비교하였다.

3. 결과 및 토의

칼슘이온 농도가 높은 재생액을 동전기에 사용할 경우, 용액이 동전기 내의 토양층을 잘 통과하지 못하며, 음극표면에 부착하여 전극에서의 전류의 흐름을 방해시켜 제염 효율을 낮춘다. 또한, 이 재생액을 우라늄 침전후 계속적으로 재사용할 경우, 칼슘의 포화도 때문에 CaO가 폐액 내에 잘 녹지 않고 pH의 변화에 민감하게 반응하지 않아 더 많은 양을 넣게 되고, 결국에는 슬러지의 양까지 증가시키는 결과를 낳는다.

이러한 현상을 방지하기 위하여 황산을 사용하여 재생액 중 칼슘을 제거하고자 하였는데, Fig. 1은 가해진 황산의 양에 따른 CaSO₄의 무게변화를 나타낸 그래프이다. 이 그림에서 보듯이 CaSO₄의 생성은 황산 100 mL를 넣었을 때 더 이상 침전의 무게가 변하지 않았으므로 대부분의 칼슘이 침전된 것으로 판단된다. 황산으로 처리한 최종 용액 중 칼슘의 농도가 750 mg/L로 초기

재생액의 칼슘이온 농도와 비교하였을 때, 칼슘이 약 98% 제거되었다.

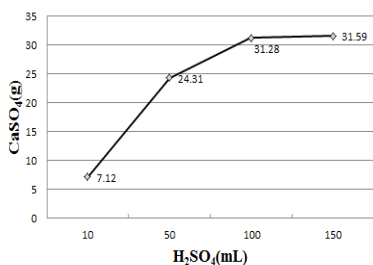


Fig. 1. The amount of calcium sulfate precipitation as a function of added volume of sulfuric acid.

재생액 중 칼슘 제거의 영향을 알아보기 위해 2주간 폐액을 사용한 다음, 10일 동안 서로 다른 동전기에 칼슘을 제거한 재생액과 제거하지 않은 재생액으로 각각 제염한 결과, 제거한 재생액의 오염농도는 0.35 Bq/g으로 95% 이상의 효율을 나타냈다. 그러나 칼슘을 제거하지 않은 재생액을 사용한 경우는 0.43 Bq/g으로 제염효율이 조금 낮게 나타났다. 이상의 결과로부터 칼슘이 제거된 재생액을 사용하면 동전기의 제염효율을 높이고, 폐기물 양을 크게 줄일 수 있음을 확인하였다.

한편, 알칼리금속을 선택적으로 흡착하는 이온교환수지가 최근에는 개발되어 있고 [1], 폐액처리과정에서 발생하는 2차방사성폐기물에 상당량의 칼슘이 포함될 가능성이 있으므로 이에 대해서는 향후 연구가 더 필요한 실정이다.

4. 결론

방사능 오염 폐액을 처리한 칼슘이 많이 포함된 재생액을 재사용할 경우 동전기 양극실과 음극실의 물흐름이 늦어 여과포 부식, 전극 부식, 음극 표면에 많은 양의 금속산화물이 부착되어 전류흐름을 방해하는 문제점이 발생하였다. 그러나 이 재생액에 황산을 넣어 CaSO₄ 침전 형태로 칼슘을 제거한 경우, 이들 문제점이 해결되었으며, 토양 내 우라늄의 농도도 20일 만에 규제해제농도인 1.0 Bq/g 이하로 감소하였다.

따라서 실제공정에서 폐액처리장치 다음에 칼슘 침전을 형성시키는 장치를 첨가하고 필터프레스로 칼슘침전물을 제거하는 장치를 추가 배치하면 폐액발생량을 상당히 줄일 수 있을 것이다.

5. 참고문헌

- [1] 이온교환수지 목록표, 판매원: 이온텍주식회사, 제조원: 미쓰비시케미칼, (주)삼양사, <http://www.iontec.co.kr/pds.files/%EC%9D%>

암모늄폴리브도포스페이트 지지체로써의 폴리에터술폰의 적용 가능성

박재일*, 김정석, 박용준

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*jaipark@kaeri.re.kr

1. 서론

Cs-137 은 중요한 방사성 핵종으로 약 30년의 반감기를 갖으며 핵분열 반응의 주된 생성물이다. 따라서 발전소를 포함한 핵분열을 이용하는 원자력 관련 시설의 폐액에는 다량의 Cs-137이 포함되어 있다. 이는 2011년 발생한 후쿠시마 원전 사고로 인한 오염수가 특히 Cs-137를 포함하고 있는 사실에서도 알 수 있다. 이에 따라 방사성 폐액을 일반 환경으로 방출하기 전에 폐액 중에 포함된 Cs-137을 분리하는 방법 개발하는 일의 중요성이 대두되고 있다 [1].

액체 방사성 폐액중에 Cs-137을 분리하는 방법은 cyanoferrate와의 착물 형성을 이용한 침전방법 crown ether 등을 이용한 추출법, 그리고 zeolite 등을 이용한 이온교환법 등이 존재한다. 이러한 방법들 중에 이온교환법은 Cs의 연속적인 분리 공정에 효과적인 응용성으로 인하여 많은 연구가 수행되어 왔다 [2]. 지금까지 알려진 여러 무기이온교환체 중 ammonium molybdophosphate (AMP)는 산성의 방사성 폐액에서 Cs를 선택적으로 흡착하는 성질을 갖는 것으로 널리 알려져 있다. 그러나, 작은 입자 크기로 인해 컬럼 크로마토그래피에서의 응용성이 떨어진다. 이에 따라, 불활성 (inert)의 유기 혹은 무기지지체 (support)를 사용하여 AMP를 포함한 입자 형태로 합성하는 방법들이 개발되어왔다 [3]. 여기에서 사용되는 지지체는 사용된 무기흡착제의 Cs에 대한 선택 및 분리 능력에 영향을 미치지 않아야한다. 일반적으로, 무기 지지체를 사용하는 방법에서는 이미 합성된 무기 입자(예, silica gel, titanium phosphate, alumina, zirconium phosphate, silicon oxide)에 AMP의 전구체(예, phosphomolybdic acid, ammonium salt)를 이용하여 고온 조건 장시간동안 지지물질에 흡착시킨다. 유기 지지체(예, polyacrylonitrile, alginate, polymethylmethacrylate, resorcinol formaldehyde)를 사용하는 경우에는, 위의 무기지지체에서 적용된 방법과 같은 고온 흡착법 혹은 AMP와 고분자가 혼합된 용액을 고분자의 비용매 혹은 고분자를 물리적으로 가교 (cross-linking)시킬 수 있는 성분이 포함된 용액에 적하 (dropping)시켜

고체화(solidification)하는 방법을 따른다. 위에 언급된 유기지지체 중 polyacrylonitrile (PAN) 고분자가 가장 널리 연구되어 왔으며, 이는 PAN의 내산성 및 방사선에 대한 안정성에 기인한다. 그러나, PAN의 니트릴 (-CN)의 그룹은 강한 산성이나 염기성 용액에서 가수분해를 일으켜 카복실릭 그룹으로 변환될 수 있다. 장기 안정성 측면에서, 이는 수용액에서 고분자 지지체의 팽창 (swelling) 이나 용해 (dissolution)를 일으킬 수 있는 가능성이 있다 [4].

본 연구에서는 위에 언급된 PAN의 단점을 보완하고자 산성 및 염기성 환경에서 가수분해에 매우 강하며 높은 기계적 물성을 갖는 고분자로 알려진 polyethersulfone (PES)를 이용하여 산성 용액에서 Cs를 분리할 수 있는 혼성 (AMP-PES) 이온교환체를 합성법을 개발하였다.

2. 실험재료 및 실험방법

2.1 시약 및 기구

Ammonium phosphomolybdate hydrate (Sigma), N,N-Dimethylacetamide (DMAc, Sigma), PES (BASF, Mw~75,000), Tween-80 (polyethylene glycol sorbitan monooleate, Sigma) 시약은 특별한 정제 과정 없이 사용되었다. 전체 실험과정 중에는 탈이온화 (de-ionized) 물을 사용하였다.

AMP-PES 합성을 위해 아래와 같은 액체/에어 분사 노즐을 제작하여 사용하였다 (Fig. 1). 노즐의 재질은 polyether ether ketone (PEEK)이다. 노즐은 T-자 형태로 에어 주입구와 AMP가 포함된 고분자 용액 주입구로 구성되어 있다. 고분자 용액은 dual-syringe infusion (Cole-Parmer) 펌프를 이용 테프론 튜브와 23-gauge 바늘을 통해 노즐 토출 부위로 이송되었다. 용액의 적절한 점도를 얻기 위해 New Era사의 syringe heater를 사용하였다. 합성된 AMP-PES는 광학현미경 (i-camscope) 및 SEM(scanning electron microscope)을 이용해 분석하였다.

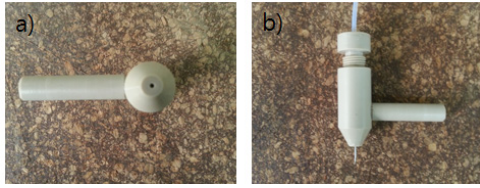


Fig. 1. Photograph of T-shaped nozzle for the preparation of AMP-PES composite resin.

2.2 실험방법

10-15 wt.%의 PES를 DMAc에 상온에서 300 rpm으로 2 시간 교반하여 용해하였다 (PES/DMAc). 이 용액에 Tween-80 계면활성제(2 wt.%) 및 AMP(15 wt.%)를 첨가하여 고분자 용액에 분산시킨 후 약 30 분간 500 rpm으로 교반하였다. 준비된 혼합용액을 20 mL 주사기에 채우고 syringe pump에 위치시킨 후 테프론 튜빙, 23 gauge-needle 및 위에 언급된 T자형 노즐 장치에 결합하였다. 노즐에 주입되는 고분자 용액의 주입 속도는 5-8 mL/h로 조절되었으며, 에어는 Bellofram사의 압력 조절계를 이용해 압력을 0.5-3 psi로 고정하였다. 노즐로부터 분산된 액적(은 약 5 cm 아래의 물로 적하되었으며, 고체화된 입자들은 약 2시간 동안 500 rpm으로 상온에서 교반하였다 (Fig. 2).

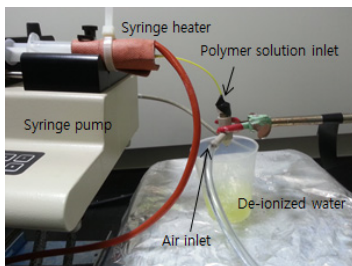


Fig. 2. Photograph of experimental set-up for the resin synthesis.

3. 결과

광학 현미경 사진을 통해 살펴본 결과, 합성된 PES-AMP 이온교환체는 구형으로 약 500-800 μ m의 지름을 갖는다. 적하 과정 중에 고분자 용액의 주입 속도를 syringe pump로 조절함에 따라 다른 크기의 이온교환체를 합성하는 것이 가능하였다 (Fig3 a,b). 또한, 에어 분사 과정에서 불안정한 고분자 액적 형성으로 인하여 작은 크기(70 μ m)의 이온교환체도 동시에 형성되었음이 나타난다.

SEM imaging을 통해 이온교환체의 내부는 스폰지 형태의 매크로포러스 구조로 나타났다. 또한, AMP가 합성된 이온교환체 내부에 분포되어 있음을 확인하였다 (Fig. 3c,d).

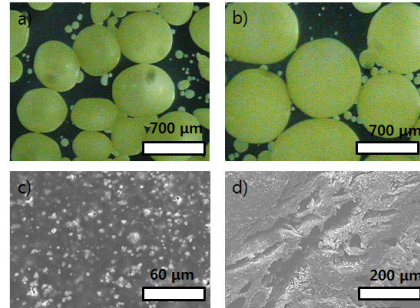


Fig. 3. Optical (a,b) and scanning electron microscope (c,d) images of the prepared resins.

4. 결론

본 연구를 통해 PAN이외에도 PES가 AMP의 고분자 지지체로 사용될 수 있음을 확인하였다. 제조된 입자는 방사성 Cs에 대한 분리분석 실험에 유용할 것이며, 산업 오폐수나 토양에 함유된 방사성 Cs를 제거하는 목적으로 사용될 수 있을 것으로 보인다.

5. 참고문헌

- [1] S. Inan, H. Tel, Y. Altas, "Adsorption studies of strontium on hydrous zirconium dioxide", J. Radioanal. Nucl. Chem. 267, pp. 615-621 (2006).
- [2] A. Nilchi. R. Saberi. M. Moradi. H. Azizpour. and R. Zarghami, "Evaluation of AMP.PAN composite for adsorption of Cs⁺ ions from aqueous solution using batch and fixed bed operations", J. Radioanal. Nucl. Chem. 292, pp. 609-627 (2012).
- [3] F. Sebesta, "Composite sorbents of inorganic ion-exchangers and polyacrylonitrile binding matrix", J. Radioanal. Nucl. Chem., 220, pp. 77-88 (1996).
- [4] Batty, N.S. and J.T. Guthrie. Polymer, 19, pp. 1145-1148 (1978).

원전 핵심설비 해체 계획 수립을 위한 3차원 CAD 모델 기반 공간선량률 가시화 기술 개발

이종환, 김근호, 현동준, 서재석, 김익준, 정관성, 최병선*, 문제권
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
jhl@kaeri.re.kr

1. 서론

원전 내 핵심설비의 해체는 폐기물의 운송 적합성, 방사능 재고량, 저장용기 크기 등을 종합적으로 검토를 한 뒤 그 계획이 마련된다. 방사화 재고량에 기반을 둔 원전 내 공간선량률은 핵심설비의 해체 계획을 수립할 때 참고해야하는 주요한 기반 정보이다. 대표적인 공간선량률 해석 도구인 MCNP는 산출한 데이터에 3차원 공간정보를 포함하고 있으나, 그 정보가 일반적인 텍스트 형식으로 출력되어 원전 내부의 공간선량률을 직관적으로 파악하기 어렵다[1]. 또한 MCNP의 해석 결과를 3차원적으로 도시 가능한 일부 전용 도구들이 존재하나, 선원 모델의 실제 외형을 포함하여 시각적으로 표현하는 도구는 찾기 어렵다. 특히 본 연구팀에서 개발중인 실감형 해체 시뮬레이터에서 직접 MCNP의 결과 데이터를 3차원 가시화하기 위해서는 별도의 데이터 전처리 및 가시화 기술이 필수적이다. 본 연구에서는 MCNP를 이용하여 산출한 공간선량률을 3차원 실시간 가시화를 하기 위하여, MCNP의 결과 데이터를 전처리하고, 실감형 해체 시뮬레이터에서 가시화 할 수 있는 기술을 개발하였다.

2. 본론

2.1 공간선량률 데이터의 추출

MCNP에서 산출되는 공간선량률 데이터는 Fig. 1 에서 보는 바와 같이 기본적으로 x , y , z 좌표계를 기반으로 하며, z 방향에 대한 단위 구간에서 x , y 방향에 대한 선량치를 포함하는 구조이다. Fig. 1 에서 각 좌표계(구간: Z, 행: X, 열: Y)의 단위는 cm 이며, 각 구간에 포함하고 있는 공간선량률의 단위는 mSv/hr 이다. 또한 이 텍스트 형식의 데이터에는 각 구간에서 산출된 공간선량률에 대한 상대 오차(Relative Error)를 포함한다. MCNP에서 산출되어 기록된 다수의 데이터 중 본 연구에서 필요한 데이터는 관심 위치에 대한 공간선량률이므로, 각 좌표계의 값과 그에 해당하

```
mcnp version 5 ld=09282010 probid = 09/10/13 19:51:05
:
Tally bin boundaries:
  X direction: -1603.20 -1553.10 -1503.00 -1452.90 ...
  Y direction: -1603.20 -1553.10 -1503.00 -1452.90 ...
  Z direction: 0.00 67.51 135.03 202.54 ...
:
Z bin: 0.00 - 67.51

Tally Results: X (across) by Y (down)
-1578.15 -1528.05 -1477.95 -1427.85 ...
-1578.15 2.12239E+00 2.15410E+00 2.18773E+00 2.23370E+00 ...
-1528.05 2.15203E+00 2.16816E+00 2.21232E+00 2.23165E+00 ...
:
Z bin: 67.51 - 135.03

Tally Results: X (across) by Y (down)
-1578.15 -1528.05 -1477.95 -1427.85 ...
-1578.15 2.20077E+00 2.22146E+00 2.26717E+00 2.29798E+00 ...
-1528.05 2.23919E+00 2.24848E+00 2.28453E+00 2.32399E+00 ...
:
```

Fig. 1. Space Dose Rate from MCNP.

는 공간선량률 값의 추출이 필요하다. 이를 위하여 미리 정의한 임시 메모리 공간에 공간좌표의 값과 공간선량률 값을 분리하여 저장하였다.

2.2 공간선량률 가시화를 위한 3차원 모델 구성

추출된 공간선량률 데이터는 일정 공간에 위치한 직육면체 형태의 3차원 단위 볼륨(volume)이 그 속성으로 공간선량률을 포함하고 있는 것으로 볼 수 있다. MCNP에서 추출한 공간선량률 데이터는 해석 대상이 되는 공간을 얼마나 조밀하게 나누는가에 따라 단위 볼륨의 개수에 큰 차이가 있다. 예를 들어 본 연구에서 시험한 증기발생기(Steam Generator; SG) 주변의 공간선량률 데이터의 경우, 50cm 단위로 해당 공간을 나누어 해석을 했는데, 여기에는 약 40만개 이상의 3차원 볼륨이 필요하였다. 이러한 다량의 3차원 볼륨을 효과적으로 가시화하기 위해서 단위 볼륨에 해당하는 모델을 먼저 전처리하는 것이 필요하다. 이를 위해 먼저 일정 범위의 속성, 즉 공간선량률 수치 범위를 정의하고, 그에 해당하는 속성을 가지는 볼륨들을 해당 범위별로 분류하였다. 이는 공간선량률 값을 3차원 공간에서 가시화 할 때, 그 농도에 따라 색상을 달리하여 해당 공간에 대한 공간선량률 직관적으로 쉽게 파악하는 동시에,

다량의 3차원 볼륨 데이터를 효율적으로 관리하기 위해서이다. 분류가 완료된 공간선량률 범위별 3차원 볼륨은 추출된 공간 위치와 볼륨 크기에 맞게 각각의 3차원 CAD 모델로 구성하고 범위별 특정 색상으로 지정하였다. 또한, 조밀하게 위치한 다량의 3차원 모델을 가시화할 경우, 뒤쪽에 위치한 모델이 앞에 위치한 모델에 가려 보이지 않으므로 이를 방지하기 위해서 각 3차원 모델에 투명(transparency) 속성을 지정하였다. 상기 일련의 작업에는 본 연구가 적용되는 시뮬레이션 도구에서 사용하는 API가 이용되었다. MCNP에서 산출된 공간선량률 데이터를 입력받고, 전처리과정을 거쳐 전용 시뮬레이션 도구에서 실시간 가시화하기 위한 모델로 가공하는 일련의 과정은 Fig. 2에서 보는 바와 같이 개념적으로 도식화할 수 있다.

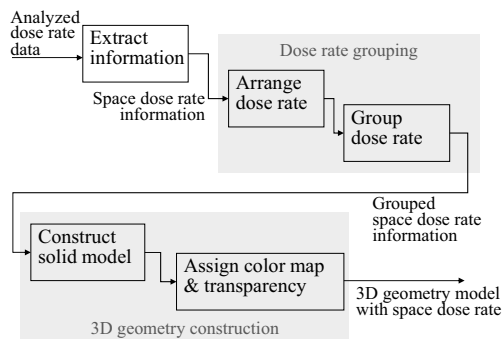


Fig. 2. Pre-processing for visualization of space dose rate.

2.3 공간선량률의 3차원 가시화

공간선량률 데이터의 전처리 및 3차원 모델 생성 과정을 거쳐 전용 시뮬레이션 도구에서 해당 결과를 가시화 하면, Fig. 3과 Fig. 4에서 보는 바와 같이, 사용자는 관심 영역에서 3차원적으로 분포된 공간선량률을 원하는 방향에서 실시간 관찰할 수 있다. Fig. 3은 원전 내 SG 2 기의 3차원 공간

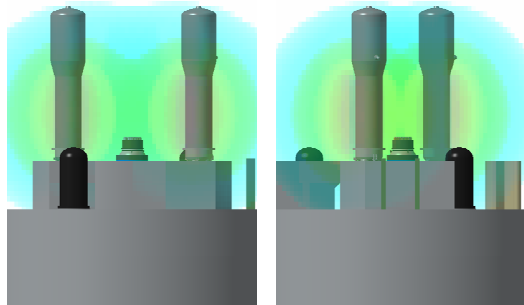


Fig. 3. 3D Visualization of dose rate around SGs (Side view).

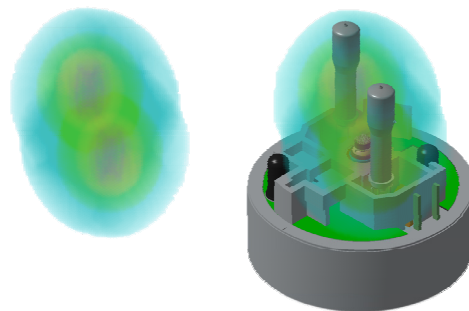


Fig. 4. 3D Visualization of dose rate around SGs (Isometric view).

선량률을 가시화 한 것으로, 좌측은 SG 주변의 공간선량률만을 가시화 한 것이며, 우측은 공간선량률과 함께 원전 내부 모델을 중첩시켜 사용자가 원전 내 SG 주변 공간선량률을 더욱 직관적으로 파악할 수 있도록 한 것이다. Fig. 4는 측면에서 2기의 SG 주변의 공간선량률을 가시화 한 것이다. 본 연구의 결과로 실감형 해체 시뮬레이터는 MCNP의 공간선량률 해석 결과를 직접 입력받아 가시화하므로 실시간으로 3차원 디지털 공간을 탐색하며 공간선량률을 관찰 가능하다.

3. 결론

본 연구에서는 원전 핵심설비의 해체를 위한 실감형 해체 시뮬레이터에서 3차원 공간선량률을 가시화할 수 있는 기술을 개발하였다. 개발된 기술은 공간선량률 데이터의 직접 입력 받은 후, 데이터 전처리 및 3차원 모델 구성을 일괄적으로 수행함으로써, 해체 시뮬레이터에서 간편하게 3차원 공간선량률을 관찰 가능하게끔 한다. 현재 본 연구는 데이터의 변환 및 정합 과정에서 발생 가능한 좌표계 오차 등을 최소화하고, 실시간 가시화 성능을 개선시킬 수 있는 기술을 후속 개발 중으로, 향후 더욱 향상된 공간선량률 가시화가 가능할 것으로 기대된다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 재원으로 시행하는 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] Los Alamos National Laboratory, 'MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5 - Volume II: User's Guide', 2008.

RIPF 방사성 액체/고체폐기물 처리

윤동원*, 이문, 윤병주

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*dwyoun@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성동위원소생산시설(RIPF)은 연구용 원자료를 이용한 산업용/의료용 RI 생산 및 제법 개발, 신규 방사성의약품 개발 및 생산, 고비방사성물질 취급 기술 지원, 방사화 분석 이용 기술 개발 및 지원을 위한 시설이다. RIPF는 Bank-1 콘크리트 Hot Cell에서 Ir-192, Co-60 등 산업용 선원을 생산하고 있으며 Bank-2 납 Hot Cell에서는 진단 방사성의약품인 Tc-99m, P-32, Cr-51, S-35의 생산과 연구실험을 통해 공학 및 의학계에 활용되고 있다. Bank-3 납 Hot Cell은 진단 및 치료용 방사성의약품인 I-131 용액과 캡슐을 생산하여 병원에 공급하고 있으며, 간암 및 피부암 치료용 Ho-166의 생산에도 활용하고 있다. 또한 Bank-4에서는 Tc-99m Generator를 생산하여 암 진단에 이용되고 있다. 이러한 방사성동위원소의 생산 증가로 방사성폐기물의 발생량도 증가됨에 따라 주로 발생하는 방사성 액체 및 고체폐기물 처리와 절차를 고찰하고 방사성폐기물의 발생량 저감과 오염발생 억제 및 방사선 피폭으로부터 안전하게 처리되고 관리되는지 검증하고자 한다.

2. 본론

2.1 동위원소생산시설(RIPF)의 폐기물 발생

동위원소생산시설(RIPF)과 우수의약품 제조 시설인 KGMP는 방사성동위원소의 생산, 공급 및 방사선원 연구개발을 통해 의학, 생명공학 등 국민복지 향상에 기여하고 있다. 이러한 산업발전 과정에서 방사성폐기물의 발생도 지속적으로 증가되는 추세에 있으며 동위원소생산시설(RIPF) 내에서 이뤄지는 방사성동위원소의 생산 및 연구개발 과정에서 발생하는 방사성폐기물의 처리과정과 그 결과를 확인함으로써 안전하게 저장처리 되는지 검증이 필요하다. 방사성 액체/고체 폐기물의 발생은 Ir-192, Co-60 등 산업용 선원을 생산하는 Bank-1과 Tc-99m, P-32, Cr-51, S-35을 생산/연구하는 Bank-2, 간암/피부암 치료용 Ho-166과 진단/치료

용 방사성 의약품인 I-131을 생산하는 Bank-3, Tc-99m Generator를 생산하는 Bank-4에서 주로 발생하고 있다. Table 1, 2는 방사성 액체 및 고체 폐기물의 연도별 처리 현황을 정리하였다.

Table 1. The Annual Treatment of Radioactive Liquid Waste

구 분	2009년	2010년	2011년	2012년	2013년
극저준위(m ³)	27.4	30	23	40.65	0
저준위(m ³)	33	8.2	19.95	17	15.65

2.1.1 방사성 액체폐기물 처리

방사성액체폐기물의 경우 연구실험실, 원자로실, IMEF, 핫셀, 핫싱크 등에서 다양하게 발생되고 있으며 수집된 액체폐기물은 화학분석을 통해 핵종 및 방사능 농도를 각 준위별로 분석하였다. 15개 항목의 분석핵종 중 주로 검출되는 핵종은 Cs-134, Cs-137, Co-60, H-3, I-131, Mn-54, Mo-99, Gross-β 등이 검출되고 있으며 분석 결과는 관련 고시 방사성물질의 연간섭취한도, 유도 공기중농도 및 배출관리기준에 적합함을 확인하고 폐기물처리시설로 이송처리 하였다. 액체폐기물은 저장탱크에서 배관을 통해 이송처리 되므로 오염 확산이나 피폭의 우려 없이 안전하게 분석 및 관리하였으며 2009년부터 2013년까지 연도별 처리량을 보면 극저준위는 매년 비슷한 발생량을 보이고 있고 저준위의 경우는 조금씩 감소함을 알 수 있다. 대부분의 핵종이 극저준위 저준위 관계없이 배출기준을 만족하고 있으나 H-3는 반감기가 12.3년으로서 배출기준을 초과하고 있으며 극저준위 탱크 #1, 2 와 저준위 탱크 #2의 H-3 농도는 그래프에서 알 수 있듯 기준치보다 약간 높아 회석하여 처리하였다. 저준위 탱크 #1의 H-3는 그 농도가 100배 정도로 높아 제거장치를 별도로 개발하지 않으면 처리가 불가하여 수년째 유입을 막고 저장 보관하고 있다. Fig. 1은 극저준위 및 저준위의 분기별 삼중수소 방사능 농도 값을 정리하였다.

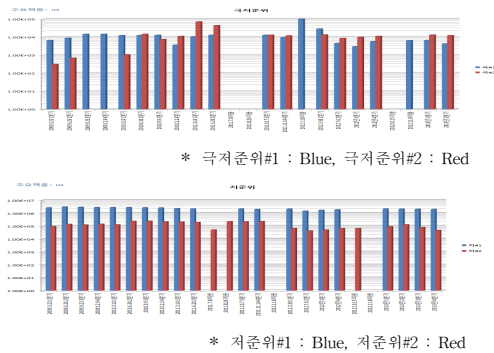


Fig. 1. Quarterly Concentration of Very Low Level and Low Level of Tritium.

2.1.2 방사성 고체폐기물 처리

방사성 고체폐기물의 분류는 가연성 및 비가연성, 폐필터 그리고 고준위 방사성폐기물로 분류되며 RIFP에서도 Ir-192, I-131의 생산 및 실험에 따라 고준위 폐기물을 비롯하여 다량의 고체폐기물이 발생된다. Table 2에서 고체폐기물의 연도별 처리 내역을 보면 가연성이 2011년을 기점으로 1/2로 감소하고 있고 비가연성은 크게 변화가 없음을 알 수 있다. 폐필터의 경우 짝수년도에는 많은 양이 발생되고 홀수년도에는 발생이 없는 데 이는 필터 성능시험 및 교체 주기가 18개월인 점과 상호 연관성이 있는 경향을 보이고 있다. 가/비가연성은 연구원의 방사성폐기물 관리규정에 따라 200L 드럼에 포장하고 표면 및 1M 거리에서 선량측정을 하였으며 운반 규정의 적합성과 표면 오염검사를 수행하였고 오염도가 기준에 적합한지를 확인 후 이동차량을 이용하여 처리하였다. 폐필터는 별도의 드럼이 없으며 포장재로 포장하여 처리하였으며 주요 발생하는 핵종들이 단반감기이기 때문에 일정기간 임시저장고에 보관하면 방사선량이 아주 낮은 값으로 감소하기 때문에 처리작업에 따른 개인 피폭은 미미하여 안전하게 처리할 수 있었다.

Table 2. The Annual Treatment of Radioactive Solid Waste

구분	2009년	2010년	2011년	2012년	2013년
가연성(200L)	4400	4800	4200	2200	2800
비가연성(200L)	400	0	400	200	3400
폐필터(100L)	10000	0	5000	0	14000
고준위폐기물(50L)	0	150	150	0	0

2.1.3 고준위 방사성 고체폐기물 처리

의료용(I-131) 및 산업용(Ir-192, Co-60) 동위원소 생산과정에서 발생하는 폐표적의 폐기물이 대표적인 고준위 방사성폐기물이다. 고준위 방사성폐기물의 처리는 방사선량이 매우 높기 때문에 별도의 절차와 사전에 처리방법을 협의하여 처리하였다. 원자로에서 조사된 알미늄 표적이 RIFP Hot Cell로 운반되어 동위원소 생산 후 남은 폐표적은 고선량으로서 저장실 보관이 불가하여 핫셀 내부에 저장하였다가 제작된 Cask에 담고 이를 차폐체에 넣어 직접 모노리스 처리시설로 처리하였다. 폐표적인 고준위 폐기물은 부피가 크지 않기 때문에 Table 2에서 보는바와 같이 2010년과 2011년 두 차례에 걸쳐 각각 150L씩 처리하였다.

3. 결론

동위원소생산시설 내에서 이뤄지는 동위원소 생산 및 실험 그리고 관련시설에서 발생하는 다양한 폐기물들은 RIFP 내 저장실에 모두 수집되어 포장, 운반, 이송과정을 거쳐 처리되고 있다. 가/비가연성 및 폐필터 등의 고체폐기물 처리는 포장 방법과 절차가 기준에 적합하게 처리하였으며 고준위 고체폐기물은 별도의 절차에 따라 핫셀 내부에서 직접 Cask에 담아 선량평가 후 모노리스로 안전하게 처리하였다. 방사성액체폐기물 또한 저준위 및 극저준위 저장 탱크별로 화학분석을 통해 방사능 농도 분석을 거친 후 배출기준에 적합한 과정을 거쳐 처리하였다. 이와 같이 방사성 액체/고체폐기물 처리는 안전하게 규정을 준수하여 처리절차를 밟는 것으로 평가 및 검증되었다. 저준위 탱크 #3의 H-3가 포함되어 있는 액체폐기물은 향후 별도의 처리장치를 제작하거나 화학적 또는 물리적 방법으로 처리해야 할 것으로 사료된다.

4. 참고문헌

- [1] 하나로 안전성 분석보고서 제3권, 2011년.
- [2] 연구원방사성폐기물관리규정, 2008년.
- [3] 방사선안전관리 등의 기술기준에 관한 규칙 (과학기술부령 제30호), 2001년.
- [4] 원자력안전위원회 고시 제 2013-49호, 2013년 방사선방호등에 관한 기준.

TGA 장치를 이용한 Zircaloy-4 피복관의 염소화 반응 속도 연구

전민구*, 최용택, 강권호, 박근일

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*minku@kaeri.re.kr

1. 서론

폐 피복관은 사용후핵연료 대비 25 wt%를 차지할 정도로 많은 비중을 차지하는 방사성 폐기물이다 [1]. 실험 결과 및 전산 코드를 이용한 계산 결과를 토대로 볼 때 사용후핵연료 폐 피복관은 습식 혹은 건식 탈피복 공정 후에도 높은 방사능을 유지한다 [2, 3]. 이러한 방사능의 주요 원인은 피복관 표면에 남아있는 잔류 사용후핵연료와 피복관 소재의 방사화로 인해 발생한 핵종들의 방사능 두 가지로 분석된다. 현재 방사성 폐기물 분류기준을 근거로 폐 피복관 폐기물은 미국의 경우 GTCC, 프랑스의 경우 ILW-LL로 분류되지만, 국내 기준으로는 발열량이 작아 중준위 폐기물로 분류되고 있다. 하지만, 높은 방사능 농도 때문에 취급 및 보관에 있어서 많은 주의가 필요하다.

폐 피복관 소재로 사용되는 Zr 합금 소재는 97 wt% 이상이 Zr으로 구성되어 있고, Zr은 방사화 생성물로 β -붕괴를 하는 ^{93}Zr 이 주로 생성되기 때문에 Zr을 선택적으로 회수할 경우 폐기물의 양을 대폭 감소시킬 수 있다. Zr 회수 기술로는 염소화 공정, 전해정련 공정, 액체 금속 추출법 등이 알려져 있으며, KAERI에서는 염소화 공정을 이용한 Zr의 선택적 회수 연구를 수행하고 있다.

그 동안 KAERI, ORNL (미국), IRI (일본) 등에서 g 규모의 실험을 통해 염소화 공정의 가능성에 대해서는 보고된 바 있다. 하지만 염소화 반응의 체계적인 분석 결과는 전무한데, 반응 특성 자료는 반응 메커니즘을 이해하고 향후 scale-up에 필수적인 자료이다. 따라서, 본 연구에서는 TGA 장치를 개발하고 이를 이용하여 Zircaloy-4 피복관의 염소화 반응 속도 연구를 수행하였다.

2. 실험방법

기존의 TGA 장치들은 대부분 mg 단위의 시료에 적합하도록 설계되어 있다. 이러한 장치들은 intrinsic reaction rate을 얻기에는 적합하지만, 실제 피복관의 반응 거동을 분석할 수 없다. 따라

서, 본 연구에서는 피복관을 직접 사용할 수 있는 TGA 시스템을 구축하여 실험에 이용하였다. 반응에 사용된 시료는 Zircaloy-4 피복관으로 길이 3 cm의 시료를 사용하였다. 반응 조건은 온도 (300 ~ 450 °C) 및 염소 기체의 분압을 (9.21, 16.9, 23.4 kPa) 변수로 수행하였다.

3. 결과 및 논의

아래 Fig. 1에는 본 연구에서 제작한 TGA 시스템의 안정성을 확인하기 위해 측정한 blank test 결과를 나타내었다.

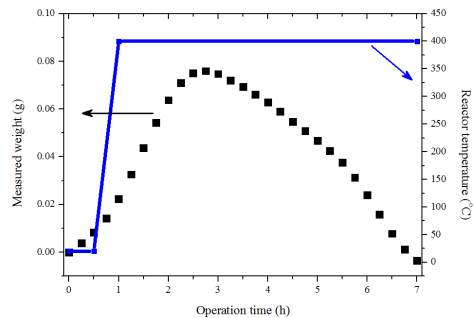


Fig. 1. Blank test results of the TGA system.

온도 상승에 따른 무게 증가는 약 0.08 g으로, 이는 피복관 무게의 2wt%에 해당하는 값이다. 따라서, 온도에 의한 무게 변화는 없는 것으로 가정하고 실험을 수행하였다.

아래 Fig. 2에는 염소 분압 23.4 kPa에서 반응 온도에 따른 반응 속도 실험 결과를 나타내었다. 그림에서 볼 수 있듯이, 온도에 따른 반응 속도는 거의 차이가 없었는데, 이는 온도에 따른 변수인 확산 속도 및 activation energy 부분이 본 연구에서 수행한 온도 범위 (300 ~ 450 °C)에서는 거의 차이가 없음을 나타낸다. 따라서, 반응 속도식은 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$\frac{d\alpha}{dt} = F(pCl_2) G(\alpha) \quad (1)$$

여기서 α 는 reaction progress, $F(pCl_2)$ 는 염소 기체의 분압이 반응 속도에 미치는 영향의 함수, $G(\alpha)$ 는 반응물의 구조 변화가 반응 속도에 미치는 영향의 함수이다.

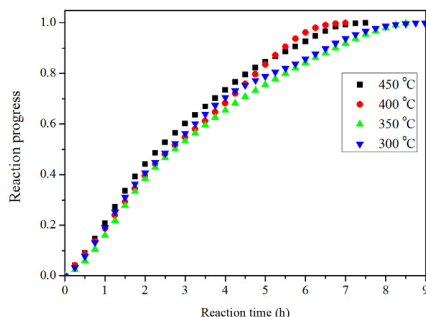


Fig. 2. Effect of reaction temperature on the chlorination reaction rate of Zircaloy-4 cladding hulls.

고상-기상 반응에서 반응 모델은 주로 nucleation, geometrical contraction, diffusion, reaction-order의 4가지 모델로 표현될 수 있다. 본 연구에서는 각 모델과 실험결과를 비교하여 2차원 geometrical contraction model, 즉 surface contraction model을 이용하여 반응을 해석하였다. 따라서 다음과 같은 반응식을 이용할 수 있다.

$$g(\alpha) = 1 - (1 - \alpha)^{1/2} = k_{app}t \quad (2)$$

염소기체의 분압에 대한 영향은 power law를 이용하여 해석하였다. 다음의 식 (3)을 이용하면 $\ln(t)$ 와 $\ln(pCl_2)$ 의 그래프를 이용하여 기울기 m 을 구할 수 있으며, 이 m 값이 염소기체의 분압에 대한 영향이 된다.

$$-\ln(t) = \ln\left[\frac{k_0 A}{1 - (1 - \alpha)^{1/2}}\right] + m \times \ln(pCl_2) \quad (3)$$

식 (3)을 통해 구한 m 값은 1.12였다. 따라서 식 (2)는 다음과 같이 새로 쓸 수 있다.

$$g(\alpha) = 1 - (1 - \alpha)^{1/2} = k_0' \times (pCl_2)^{1.12} \times t \quad (4)$$

여기서 k_0' 값은 앞의 식 (3)을 계산하는 과정에서 얻을 수 있으며, 본 연구에서는 $0.00327 \text{ kPa}^{-1.12} \cdot \text{h}^{-1}$ 을 얻었다. 따라서 최종적으로 얻어진 반응 속도식은 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$\alpha = 1 - (1 - 0.00327 \times (pCl_2)^{1.12} \times t)^2 \quad (5)$$

아래 Fig. 3에는 식 (5)를 이용하여 얻어진 계산결과와 실험 결과를 비교하여 나타내었다.

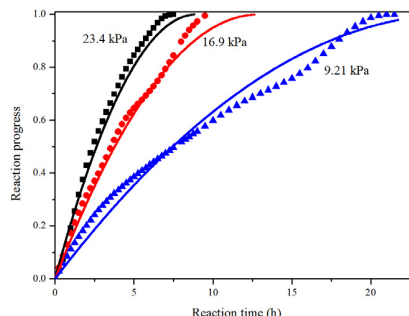


Fig. 3. Experimental and calculation results achieved using Eq. (5).

4. 결론

본 연구에서는 Zircaloy-4 피복관의 염소화 반응 속도를 연구하기 위해 자체적으로 제작한 TGA 시스템을 도입하였다. 그 결과, 300 ~ 450 °C 범위에서 온도는 반응 속도에 영향을 미치지 않는 것을 확인되었다. 또한, surface contraction model을 이용하여 염소 기체의 분압과 시료의 구조적 변화가 반응 속도에 미치는 영향을 분석하여 아래와 같은 반응 속도식을 얻을 수 있었다.

$$\alpha = 1 - (1 - 0.00327 \times (pCl_2)^{1.12} \times t)^2 \quad (5)$$

5. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력연구개발사업을 통해 수행 되었습니다 (NRF No. 2012M2A8A5025802).

6. 참고문헌

- [1] H. Lee, G.I. Park, K.H. Kang, J.M. Hur, J.G. Kim, D.H. Ahn, Y.Z. Cho, E.H. Kim, Nuclear Engineering and Technology, Vol. 43, No. 4, pp.317-328, 2011.
- [2] T.S. Rudisill, Journal of Nuclear Materials, Vol. 385, pp.193-195, 2009.
- [3] M.K. Jeon, C.H. Lee, C.J. Park, J.H. Choi, I.H. Cho, K.H. Kang, H.S. Park, G.I. Park, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 298, No.3, pp.1629-1633, 2013.

EU-APR1400 방사성폐기물계통 설계특성

하각현*, 김성환, 황도현

한수원(주)중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70

*kyeonh@khnp.co.kr

1. 서론

한수원은 APR1400의 UAE원전 수주 이후 유럽 시장을 개척하기 위하여 유럽규제요건에 부합되는 유럽형 APR1400 표준설계(이하 EU-APR1400)를 개발 중 이다. 본 논문에서는 EU-APR1400 방사성폐기물 계통의 설계특성에 대하여 살펴보고자 한다.

2. 본론

현재 건설 중인 신고리3,4호기(APR1400)와 규제요건, 설계기준이 다른 EU-APR1400의 기체, 액체, 고체방사성폐기물계통의 설계 차이를 중심으로 기술하고자 한다. APR1400 경우는 2기 기준 대한 방사성폐기물계통 설계를, EU-APR1400은 1기 기준에 대한 방사성폐기물계통 설계내용을 기준으로 비교하였다.

2.1 기체방사성폐기물계통

APR1400 대비 EU-APR1400의 기체방사성폐기물계통(Gaseous Radwaste System, GRS)설계특성은 헤더배수탱크(Header Drain Tank, HDT)용량 증대 설계로 처리능력의 완충기능을 확보하고, 기체방사성폐기물이 직접 헤더배수탱크를 통과하여 기체폐기물처리패키지로 이송된다는 점이다.

Table 1. Comparison of GRS

항목	APR1400	EU-APR1400
HDT 용량	• 0.6 m ³	• 8.5 m ³
GRS 패키지 후단 방출밸브	• 1 개	• 2 개
계통구성	-	• APR1400과 동일

2.2 액체방사성폐기물계통

APR1400 대비 EU-APR1400의 액체방사성폐기물계통(Liquid Radwaste System, LRS)의 설계특성은 증발기 패키지 설비 채택, 각종 탱크의 용량 증대 및 확장수집탱크(Extension Collection

Tank, ECT)신설에 있다.

Table 2. Comparison of LRS

항목	APR1400	EU-APR1400
처리용량	1일 최대 발생량 수집 및 처리	2주 최대 발생량 수집 및 처리
바닥배수탱크	2 개	2 개
기기폐액탱크	2 개	2 개
화학폐액탱크	2 개	2 개
감시탱크	2 개	2 개
RLS배수탱크	2 개	2 개
확장수집탱크	없음	2 개
자동격리밸브	1 개	2 개
처리설비	역삼투압 설비	증발기 설비

2.3 고체방사성폐기물계통

APR1400 대비 EU-APR1400의 고체방사성폐기물계통(Solid Radwaste System, SRS)설계 특성은 저방사성폐수지탱크 대수의 추가, 저장용량 확대가 되겠다. APR1400의 경우는 계통내 폐기물 저장용량은 6개월이지만 발전소 소내에 방사성폐기물저장고가 있어 임시저장 후 경주방폐장으로 주기적으로 처리하고 있다. 주처리설비는 APR1400은 폴리머고화설비이고, EU-APR1400은 시멘트고화설비이다.

Table 3. Comparison of SRS

항목	APR1400	EU-APR1400
저방사성 폐수지 탱크	• 대수: 1 • 용량: 22.6 m ³ • 최대발생원 2배 저장 용량	• 대수: 2 • 용량: 42.4m ³ /대 • 모든 발생원의 5년 저장 용량
폐기물 저장 용량	• 6개월	• 저준위폐기물:2년 • 중준위폐기물:4년
폐수지 장기저장 탱크	• 개수: 2/2기 • 용량: 87 m ³ /대	• 개수: 2/1기 • 용량: 90 m ³ /대
처리설비	폴리머고화설비	시멘트고화설비

2.4 방사성폐기물계통 배치설계

EU-APR1400 방사성폐기물계통은 APR1400과 같이 복합건물에 배치되었다. 그림 1은 APR1400의 Ground Level 에서의 방사성폐기물계통 배치를 보여 주고 있다.

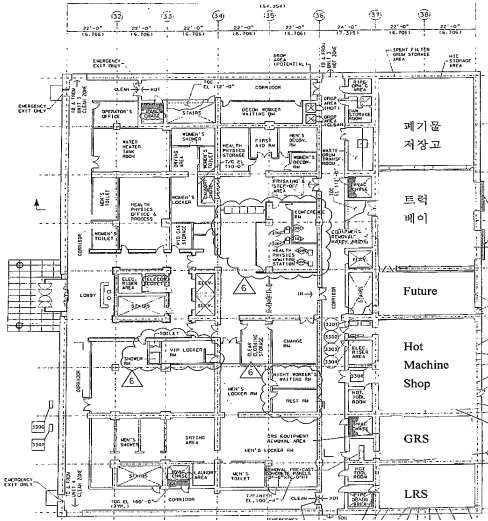


Fig. 1. Compound Building GA of APR1400.

Fig. 2는 EU-APR1400의 Ground Level 에서의 방사성 폐기물계통 등의 배치를 보여주고 있다.

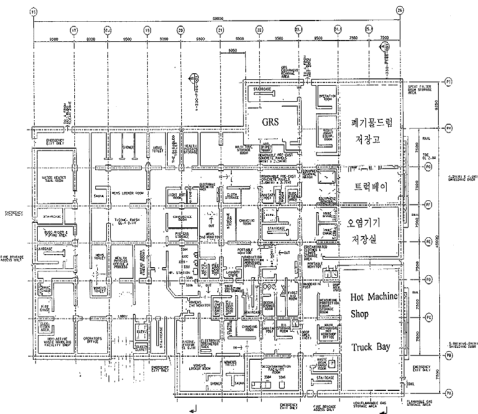


Fig. 2. Compound Building GA of EU-APR1400.

APR1400과 EU-APR1400의 배치설계상 공통점은 지하에 폐기물계통을 위치시킨 점이고, 다른 점은 APR1400과 달리 EU-APR1400은 그라운드레벨에 트럭베이를 두 곳 설계한 점이다.

3. 결론

EU-APR1400 방사성폐기물계통의 공통적인 특징은 탱크용량의 증대, 탱크대수의 증가설계이다. 처리설비의 경우 LRS의 증발기처분설비 채택, SRS의 경우 시멘트 고화설비의 채택 등을 EU-APR1400의 APR1400 대비 설계특성이라 하겠다.

4. 참고문헌

- [1] 한국방사성폐기물학회, 2010년 추계학술발표회 논문요약집, pp.137-138, 2010.
- [2] EU-APR1400 GRS, LRS, SRS의 System Functional Description(SFD), Rev. 0, 2013.10.
- [3] 신고리3,4호기 GRS SFD, Rev.0, 2004.10.
- [4] 신고리3,4호기 LRS SFD, Rev.1, 2009.12.
- [5] 신고리3,4호기 SRS SFD, Rev.1, 2009.12.

Characteristics of Perovskite $\text{Ca}(\text{La}, \text{Gd})\text{TiO}_3$ Nano-Powder as a HLW Ceramic Form Using Combustion Synthesis

Yeon-Ku Kim*, Young-Min Han, Sooji Jung, and Choong-Hwan Jung

Korea Atomic Energy Research Institute, 111 Daedeok-daero 989, Yuseong-gu, Daejeon

*ykkim@kaeri.re.kr

1. Introduction

The management of nuclear waste is the great challenge faced by the nuclear industry. Glass has been considered as a HLW immobilization matrix; however, several research has shown that crystalline ceramics are a better matrix compared to glass owing to their chemi-mechanical durability. CaTiO_3 (perovskite) is one of the crystalline hosts for the disposal of HLW because it can immobilize La, Gd and Sr by forming solid solutions. Most of the radioactive waste elements were treated as a nitrate form, therefore, the solution combustion synthesis process which uses metal nitrates as the reactant materials, is applied to immobilize the Lns-based radioactive wastes elements. During the combustion process, an externally initiated reaction is self-sustained owing to the exothermic reaction. A high temperature of up to 1000°C , inherent to the highly exothermic nature of the redox reaction, leads to well-crystallized powder in a short reaction time.

In this study, the combustion process was applied to form a solid solution of La and Gd doped CaTiO_3 . Glycine consisting of carboxylic acid and an amine group was used as fuel in order to investigate the effects of fuel on the combustion reaction. The synthesized powders are characterized by XRD, SEM, and TEM.

2. Experimental Procedure

Ca, La, Gd and Ti nitrate were used as the source materials. La nitrate or Gd nitrate with equivalent amounts of up to 20% of CaTiO_3 was mixed with Ca nitrate and Ti nitrate. The mixed solution was heated to evaporate water. The evaporation of water was completed, and the ignition of the mixture was

initiated and spontaneously underwent combustion with an exothermic reaction to form $\text{Ca}(\text{La}, \text{Gd})\text{TiO}_3$ powders. X-ray diffraction analysis, SEM, and TEM with the selected area diffraction (SAD) pattern were performed on the synthesized powders to confirm the formed phases and morphology, as well as the particle size of the synthesized powders.

3. Results and Discussion

The ligand groups (amine and carboxyl acids) of the fuel can strongly influence the behavior of the combustion and the phase formation on the synthesized powders. If only nitrates were dissolved in a precursor solution without fuels, then hard lumps remained without any heat or flames. However, when the fuels were mixed along with nitrates, the precursor could be reacted with a flame. During the synthesis, glycine fuel strongly reacted with nitrates, while urea brought a rare reaction and citric acid brought a weak reaction without a flame. That is, the selection of the fuel types and composition is a very important parameter, which means that the reaction is strongly dependent on the ligand groups of fuel, as reported by L.A. Chick. Figure 1 shows the XRD patterns for $\text{Ca}(\text{La})\text{TiO}_3$ with various La content, respectively. No evidence of the existence of un-reacted or second phases was observed at a composition of up to 20% of La doped. This means that a solid solution of CaTiO_3 with La has been formed during the combustion reaction without any further heating step. SEM/EDS micrographs of the as-synthesized $\text{Ca}(\text{La})\text{TiO}_3$ made with glycine fuel are shown in Fig. 2. In the as-synthesized condition, a continuous porous network of agglomerates is formed. Pore and voids can be seen, which results

from the escaping gases. This type of porous network is typical of the combustion of synthesized powders. The primary particle size of as-synthesized powders is about 20nm, which can be correlated with the flame temperature reached during the combustion reaction. EDS mapping results showed the well- distribution of La in the crystalline as a results of solid solution of CaTiO_3 and La.

4. Conclusions

Using the solution combustion synthesis, we synthesized the solid solutions of $\text{Ca}(\text{La,Gd})\text{TiO}_3$ powders.

Following conclusions are obtained which are; Up to 20mol% of La or Gd contained $\text{Ca}(\text{La,Gs})\text{TiO}_3$ powders synthesized under the air atmosphere have primary particle sizes in the range of ~30 nm having a good crystallinity. The fuel, Glycine, affects on the crystallinity of powders and successfully produce single phase of $\text{Ca}(\text{La, Gd})\text{TiO}_3$. The combustion process using Ca and Ti-nitrates form as starting materials was proven to be a simple approach to prepare a solid solution of La or Gd into perovskite (CaTiO_3) for immobilizing the radioactive elements of high level radioactive wastes.

5. 감사의 글

This work was supported by the National Research Foundation of Korea (NRF) grant funded by the Korea government (MSIP) (No. 2013M2A8A1041124)

6. 참고문헌

- [1] C.H. Jung and S.B. Bhaduri: J. Nanoparticle Research, V 5, (2003), p.383.
- [2] L.A. Chick, G.D. Maupin and J.L. Bates: Mater. Lett. V 10, (1990), p.6.
- [3] S. Bhaduri and S.B. Bhaduri: Nano- structured Materials, V11, (1999), p.469.

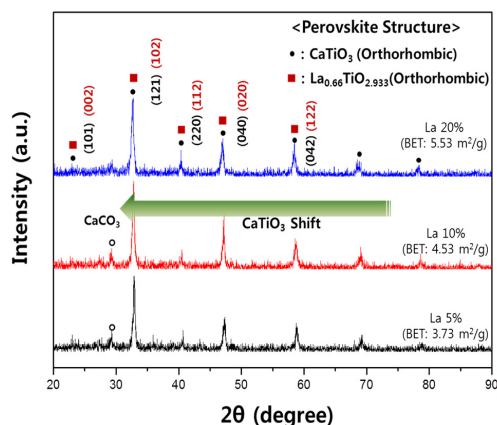


Fig. 1. XRD patterns of as-synthesized $\text{Ca}(\text{La})\text{TiO}_3$ powders with various La contents.

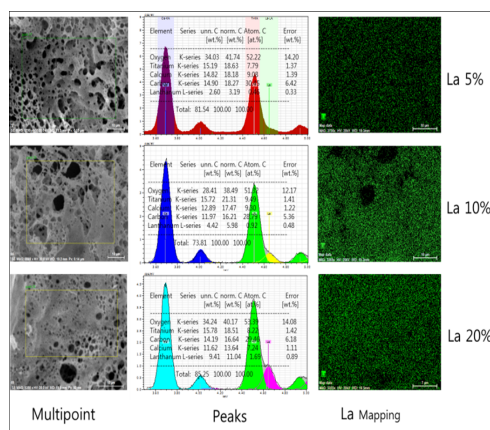


Fig. 2. SEM (EDS) photographs of as-synthesized powders with various content of La.

국내 원자력발전소 해체비용 규모의 적정성 검토

김학수^{1*}, 문주현²

¹한수원(주)중앙연구원, 대전광역시 유성대로 1312번길 70

²동국대학교, 경상북도 경주시 동대로 123

*hskim007@khnp.co.kr

1. 서론

원자력발전소가 설계수명에 도달하게 되면 안전성을 평가하여 계속운전을 하던가, 아니면 원자력시설을 고유기능으로부터 안전하게 제거하고 무제한적 또는 제한적 자산으로 활용하기 위해 허용수준까지 잔류방사능을 감소시켜 운영허가를 종료하는 "해체(Decommissioning)" 과정을 겪게 된다. 원자력발전소 해체는 원전건설에 버금가는 규모의 사업으로 장기간에 걸쳐 막대한 자금의 소요가 예상되어 해체비용의 안정적 확보를 위해 1983년부터 관련고시에 해체비용을 제정하여 주기적으로 재산정해 왔다. 2012년도에 방사성폐기물관리법 시행령에 따라 호기당 6,033억원으로 해체비용을 재산정하였다. 본 논문에서는 최근 해외 해체비용 사례와 비교하여 국내 해체비용 규모의 적정성에 대하여 검토하였다.

2. 본론

2.1 현행 국내 원전해체비용 구조 및 내용

현행 해체비용은 아래와 같은 가정 사항을 기준으로 산출되었으며 산정구조 및 내용은 Table 1과 같다.

- 원전(WH 900MWe PWR) 운영종료 후 10년 밀폐관리 후 해체
- 해체폐기물처분비는 호기당 14,500트럼에 여유도 30% 적용하여 '12년 방사성폐기물처분단가 적용

Table 1. Decommissioning Cost of KNPP

단계	내용	기간	비용 (억원)
1	운전 종료전 사전준비	(-2~0년)	3,098
2	밀폐 연료이송, 냉각수 제거	(0~1년)	
3	관리 저장조 냉각 후 연료 반출	(1~6년)	
4	시설유지 및 밀폐관리	(6~10년)	
5	철거 원자로 등 주요계통 철거, 오염계통 및 건물제염, 건물 철거, 부지복원	(10~13년)	2,470
6	폐기물 처분 해체폐기물 처분	-	
기타	예비비(밀폐관리+철거비)의 15%	-	465
합계			6,033

2.2 해외 원전 해체비용 규모

• **OECD/NEA** : 2003년도 기준으로 회원국 자료를 바탕으로 노형별 평균 해체비용을 평가하였다. PWR의 경우 평균 해체비용은 kWe당 320 US\$이며 표준편차는 kWe당 195 US\$이었다. 이 평균비용을 이용하여 1,000 MWe PWR의 해체비용을 계산하면 약 3.2 억\$(최대 5.15 억\$) 정도가 된다.

• **프랑스** : 원전산업위원회(PEON)는 Top-down 방식으로 원전 건설비에 일정비율을 적용하여 해체비용을 책정해 왔다. 하지만 Dampierre(900 MWe X 4기)를 대상으로 1996~1999년까지 해체비용을 정밀 조사하여 2005년 감사원보고서에 해체비용(PWR 58기)을 171.14 억€(2.97 억€/호기, 건설비의 19%)로 기술하였다. 2009년에는 Dampierre 해체조사 사업을 기반으로 1,300 MWe와 1,450 MWe로 Scale-up하고 국내의 참고자료를 반영하여 2012년 감사원보고서에 PWR 58기 기준으로 약 184 억€(3.18 억€/호기)로 기술하였다. 해체비용에는 사용후핵연료관리비가 포함되어 있지 않다.

• **미국** : 최근 영구정지를 결정한 1,772 MWth Kewaunee(PWR) 원전은 지연해체전략을 채택하였다. 사용후핵연료 저장조는 영구정지 7년 후 운전종료하고, ISFSI를 건설하여 사용후핵연료를 보관하기로 하였다. 해체사업은 Decommissioning Operation Contractor(DOC)가 수행하는 것으로 하였다. 이런 가정을 토대로 해체비용을 평가한 결과, PSDAR에 기술된 사용후핵연료 관련비용 342,228 k\$를 포함하여 919,872 k\$이 해체비용으로 평가되었다. Table 2는 Kewaunee 원전의 해체비용이다. 국내 해체비용 산정 시 가정 및 구조와 비교하기 위해 지연해체관련 비용과 사용후핵연료 관련비용을 제외하면 481,285 k\$이다. 또한 1997년 2월 21일 영구 정지한 Zion 1&2 발전소는 당초 지연해체 전략을 채택하였으나 내·외부 환경변화로 즉시해체 전략으로 해체방식으로 변경하고 해체비용을 재평가하였다. 2006년 기준으로 Zion 1&2호기에 대해 각각 512,073 k\$ 및 530,603 k\$로 평가되었다. 지연해체 관련 비용과 사용후핵

연료 관리비용을 제외하면 각각 447,168 k\$ 및 460,525 k\$로 예상된다.

Table 2. Decommissioning Cost of Kewaunee NPP

Decommissioning Activities with SAFSTOR	Cost k\$
1. License Termination	
- SAFSTOR Planning, Preparations and Deactivation	99,274
- SAFSTOR Preparation Delay During Wet Fuel Storage	25,105
- Completion of SAFSTOR Preparation	15,899
- Dormancy With Dry Storage	51,910
- Dormancy Only	28,550
- Decommissioning Planning During Dormancy	42,755
- Dismantlement Site Modifications and Preparations	64,972
- Systems Removal	153,318
- Site Decontamination	61,058
Sub Total	542,841
2. Spent Fuel Management	
- Spent Fuel Planning, Cooling and Transfer to Dry Storage	175,227
- Dry Storage During Completion SAFSTOR Preparation	2,665
- Dry Storage During Dormancy	161,714
- ISFSI Demolition	2,622
Sub Total	342,228
3. Green Field	
- Clean Building Demolition	30,827
- Site Restoration	3,976
Sub Total	34,803
Total	919,872

● **스웨덴** : 2013년 3월 SKB에서는 Ringhals 부지에서 가동 중인 4개 원전(1호기 BWR, 2, 3, 4호기는 PWR)에 대한 해체비용을 평가하였다. 해체비용을 산정하기 위해 고려된 해체전략은 즉시해체이며 해체기간은 Fig. 2에서 보듯이 해체준비기간 2년, 사용후핵연료 제거 1년, 제염해체활동 2.5년 및 부지복원 2년으로 총 7.5년을 가정하였다.

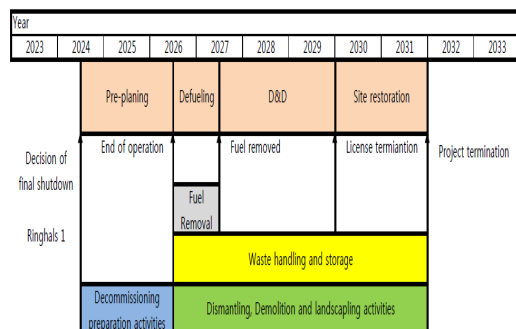


Fig. 1. Decommissioning Plan of Ringhals 1 Unit.

4개 호기에 대한 해체비용은 6,744,763 kSEK으로 호기당 1,686,191 kSEK로 평가되었다. 스웨덴의 경우에도 국내와 마찬가지로 사용후핵연료 관리

비가 제외되어 있으며, 특히 해체폐기물에 대한 관리전략으로 대부분의 금속류는 가능한 한 용융을 통한 재활용으로 감용 효과를 극대화하는 전략을 고려하였다.

2.3 국내의 원전 해체비용 규모 비교

국가별로 평가된 해체비용에서 지연해체 관련 비용, 사용후핵연료 관리비용 등을 제외하고 물가 상승률을 고려하여 2012년을 기준으로 재평가하였다. 그 결과와 국내 해체비용을 Table 3에 정리하였다. 국내 원전 해체비용인 호기당 6,033억원 은 해외사례와 비교해서 적은 규모가 아니라는 것을 알 수 있다.

Table 3. Decommissioning Cost Comparison

구분	해체 전략	해체기간	해체비용
KHNP (900 MWe PWR)	즉시 해체	15년 (준비기간 2년 포함)	6,033 억원
OECD/NEA (1,000 MWe PWR)	PWR 평균 및 최대 해체비 적용		4,603억원 7,409억원
프랑스 Dampierre (900 MWe PWR)	즉시 해체	14년 (준비기간 5년 포함)	4,680 억원
스웨덴 Ringhals	즉시 해체	7.5년 (준비기간 2년 포함)	2,873 억원
미국 Kewaunee (556 MWe PWR)	지연 해체	60년	5,515 억원
미국 Zion 1&2 (1,040 MWe PWR)	즉시 해체	20년 (휴면기간 11년 포함)	6,098 억원

3. 결론

원전 해체비용 규모는 국가별 정책, 사회·문화적 측면에 따라 다르며, 노형, 방사성폐기물 처분 단가, 해체전략 등에 따라 큰 차이를 보인다. 비록 단순 비교를 하기는 어렵지만, 국내 원전 해체비용 규모는 해외사례와 비교했을 때 적지 않은 규모임을 확인하였다.

4. 참고문헌

- [1] 산업통상자원부 고시 제2013-63호, 방사성폐기물 관리비용 및 사용후핵연료관리부담금 등의 산정기준에 관한 규정, 2013.
- [2] OECD/NEA, Decommissioning Nuclear Power Plant-Policies, Strategies and Costs, 2003.
- [3] Kewaunee NPP, Post-Shutdown Decommissioning Activities Report, 2013.

해체 부지 잔류방사능 측정용 컴프턴 억제형 검출기 설계 및 성능 평가

유지현*, 서범경, 홍상범, 문제권

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*yjh1015@kaeri.re.kr

1. 서론

수명이 다한 원자력시설의 해체 후 부지를 재사용 또는 자연 녹지화하기 위해서는 부지의 방사능 양이 부지개방기준(Site Release Criteria) 이하임을 입증해야 하며 이를 위해 부지에 대한 정확한 잔류방사능의 측정이 필요하다.

부지 잔류방사능 측정 시 지각 중에 존재하는 자연 방사성 핵종이나 우주선, 측정 시 생성되는 산란 감마선으로 인해 백그라운드 계수가 증가되어 컴프턴 연속부(Compton continuum)를 형성하게 되고, 이는 저준위 영역의 측정에 대한 불확도를 증가 시키게 된다. 이런 이유로 백그라운드를 저감시켜 부지의 정확한 잔류방사능 측정 및 보정을 위한 저준위 방사선 측정 시스템이 요구된다. 현장 측정에서의 이동성과 편의성을 고려한 시스템 설계를 위해 블록형의 플라스틱 보조(guard) 검출기를 사용하고, 신호 회로장치를 구성하여 주(main) 검출기와 보조(guard) 검출기에서 동시에 검출된 신호를 스펙트럼에 기록하지 않는 방법인 컴프턴 억제형 검출(anti-coincidence detection) 시스템을 구성하였다.

본 연구에서는 저준위 부지 방사능 측정 시에 요구되는 낮은 검출하한 값을 얻기 위한 컴프턴 억제형 검출(anti-coincidence detection) 시스템을 설계하고 이에 대한 성능 평가를 위해 실험한 것과 동일하게 MCNP를 통해 모사하여 결과에 대해 비교 평가 하였다.

2. 본론

2.1 컴프턴 억제형 검출 시스템의 설계

컴프턴 산란에 의한 저준위 영역의 백그라운드 연속부를 저감시키기 위하여 Fig. 1과 같이 main 검출기(Det. 1)의 주위에 guard 검출기(Det. 2)를 배치하였으며, main 검출기에서 산란된 감마선을 guard 검출기에서 다시 검출한 후 역동시계수(anti-coincidence)를 이용하여 main 검출기에서의 산란 감마선의 효과를 제거할 수 있도록 하였다.

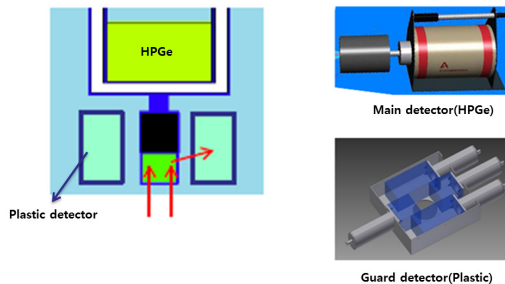


Fig. 1. Design of Compton suppression detector.

2.2 Monte Carlo 방법에 의한 효율 계산

컴프턴 억제형 검출시스템의 성능 평가를 위해 Monte Carlo 방법을 이용하여 주 검출기인 HPGe의 측정 효율을 계산하였다. 먼저 실제 주어진 HPGe 검출기 도면의 규격과 원통형의 450mL Marinelli 표준 선원을 Monte Carlo 방법으로 모사하였다. 그 다음 계산한 검출기 규격의 타당성을 검증하기 위해 모사한 것과 동일한 450mL Marinelli 표준선원을 이용하여 효율의 측정값과 계산값을 비교하였다. 그리고 계산된 결과와 실제 측정값의 오차범위를 줄이기 위해 검출기의 기하학적 조건을 변화시켜가며 최적의 검출기를 모사하였다.

Fig. 2는 HPGe 검출기로 직접 측정한 것과 Monte Carlo 방법으로 모사한 검출 효율을 비교한 결과를 나타낸 것이다.

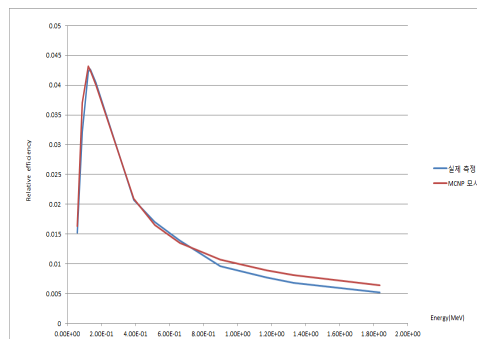


Fig. 2. Compare direct measurement with MCNP.

감마선 분광분석용 표준선원 핵종에 대한 각각의 에너지별 검출 효율을 분석한 경우, 1 MeV 이하의 저에너지 영역 에너지 영역에서는 3% 정도의 오차 범위를 보였으며, 전체적으로 7.3% 정도의 오차를 보였다. 이 때 가장 큰 변화를 보인 dead layer의 경우 0.1 mm 씩 증가시켜가며 계산하였는데, 변화에 따라 효율이 저에너지영역에서 크게 변하는 것을 알 수 있었다.

또한 실제 측정된 효율과 Monte Carlo 방법을 이용해 계산한 효율을 비교하여, 오차범위가 가장 작은 규격을 최적의 HPGe 검출기로 모사하였다. 또한, 기존에 모사한[참고문헌] 플라스틱 검출기를 이용하여 컴프턴 억제 검출기를 구성하고, MCNP를 이용하여 컴프턴 억제비를 계산하였다. 계산한 결과는 Table 1과 같다.

Table 1. Compare direct measurement with MCNP in RF

		Total Count	Suppression Count	RF
측정 효율	total	1057397	978242	1.081
	continuum	847808	772757	1.097
계산 효율	total	0.06399	0.05456	1.173
	continuum	0.05320	0.04507	1.181

Table 1은 실제 측정된 것과 Monte Carlo방법을 이용해 계산한 컴프턴 억제형 검출 시스템에 대한 성능 평가를 나타낸 것이다. 각각 총 계수치와 연속부의 계수치에 대해 컴프턴 억제비(RF)로 계산하여 비교한 결과 측정값과 계산값은 9% 미만의 오차 범위를 보여 유효한 결과를 얻을 수 있었다.

3. 결론

해체 후 부지를 재사용 또는 자연 녹지화하기 위해 환경 보건학적 측면과 밀접하게 연관되어 있기에 부지의 오염에 대한 정확한 잔류방사능의 측정이 요구된다. 이런 이유로 부지 측정 시 사용되는 저준위 방사능 측정 시스템의 개발이 요구되었고, 이를 위해 컴프턴 억제형 검출 시스템 설계하고 그에 대한 성능 평가를 위해 Monte Carlo 모사를 통해 비교 평가 하였다.

컴프턴 억제형 검출 시스템에 대한 성능 평가를 위해 실제 측정된 값은 물론 실험에 대한 정확성을 평가하기 위해 Monte Carlo 방법을 이용하여 이를 검증하였다. 그 결과 컴프턴 억제형 검출 시

스템은 컴프턴 연속부에 대한 저감 효과를 얻을 수 있었으며 결과적으로 검출하한 값을 상당 부분 낮출 수 있었기 때문에 스펙트럼 분석 시 저준위 영역의 불확도를 감소시킬 수 있어 부지 잔류방사능 측정 결과의 신뢰도를 높일 수 있을 것으로 기대된다.

4. 참고문헌

- [1] M. Tsutsumi, T. Oishi, N. Kinouchi, R. Sakamoto and M. Yoshida, "Design of an Anti-Compton Spectrometer for Low-level Radioactive Wastes using Monte Carlo Techniques", J. Nucl. Sci. & Tech. 39(9), pp. 957-963 (2002).
- [2] A. de Vismes, R. Gurriaran and X. Cagnat, "Anti-Compton gamma spectrometry for environmental samples", Radioprotection 44(5), pp. 613-618 (2009).
- [3] Y. H. Kang and S. Y. Lee, SAEMULLI 11, 97 (1971).
- [4] S. T. Park, Y. S. Kang, T. K. Yang, G. D. Kim, D. W. Lee, T. I. Ro abd S. Y. Lee, SAEMULLI 36, 572 (1996).
- [5] Yuan-qing Fan, Shi-lian Wang, Qi Li, Yun-gang Zhao, Xin-jun Zhang, Huai-mao Jia, "The performance determination of a Compton-suppression spectrometer and the measurement of the low level radioactive Samples", Appl. Radiat. Isotopes (2013).
- [6] 유지현 외, "해체부지 방사능 측정을 위한 백그라운드 저감형 플라스틱 검출기 제작", 한국방사성폐기물학회 2013 추계학술발표회 논문요약집, pp. 327-328, 2013.

음이온교환수지 분리관에서 ^{55}Fe 및 ^{94}Nb 의 분리에 미치는 옥살산의 영향

조형국^{1*}, 이창현¹, 김민원², 이민영¹, 양희룡¹, 안홍주¹

¹한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

²(주)엑트, 대전 유성구 테크노 1로 75

*chk9258@kaeri.re.kr

1. 서론

콘크리트 및 철재등과 같이 다양한 매질의 원전 해체 방사성폐기물을 안전하고 효율적으로 관리하기 위하여 ^{55}Fe , ^{94}Nb 및 ^{63}Ni 과 같은 규제 핵종의 재고량 평가를 위하여 비파괴분석이 가능한 ^{60}Co , $^{134,137}\text{Cs}$ 및 ^{144}Ce 와 같은 핵종의 재고량으로부터 정량에 많은 시간이 소요되는 ^{55}Fe , ^{94}Nb 및 ^{63}Ni 과 같은 규제 핵종들의 재고량을 신속하고 정확하게 평가할 수 있는 원전 해체 선원항 평가기술개발 연구가 수행되고 있다.¹⁻⁵ 방사선적 특성에 따라 이 규제 핵종들을 정량적으로 분석하기 위해서는 공존하는 핵종들뿐만 아니라 방사성폐기물의 매질 성분원소로부터의 개별분리가 요구된다.

^{55}Fe 와 ^{94}Nb 는 원자로 안에서 중성자에 의해 각각 $^{56}\text{Fe}(n, \gamma)^{55}\text{Fe}$ 및 $^{95}\text{Nb}(n, \gamma)^{94}\text{Nb}$ 핵반응으로 생성되며 반감기가 각각 2.7년 및 2.0×10^4 년으로 생성량이 많거나 반감기가 매우 길어서 방사성폐기물 처분에 관련해서 중요하게 취급되는 핵종들이다. ^{55}Fe 와 ^{94}Nb 를 음이온교환수지법으로 분리할 수 있다.^{3,4} 그러나 ^{60}Co 등과 같은 공존 핵종과 매질 성분원소들로부터 이들을 선택적으로 분리하기 위해서는 ^{55}Fe 와 ^{94}Nb 의 분리에 적합한 매질의 용액을 만들어야 하기 때문에 분리를 위한 전처리에 과도한 시간이 소요된다. 따라서 본 연구에서는 단순히 옥살산 매질 용액의 농도만을 조절한 후 화학운반자로 첨가한 Fe과 Nb를 음이온교환수지 분리관에 흡착시킨 후 HF 그리고 HF와 HCl 또는 HNO_3 의 혼합산을 사용하여 순차적으로 분리할 수 있는 기술을 개발하고 신뢰도를 평가하였다.

2. 실험

2.1 분리관 준비

Fe과 Nb를 순차적으로 분리하기 위하여 폴리프로필렌 재질의 분리관(Econo-Pac Disposable Chromatography Column, 20 mL, Bio Rad,

U.S.A.)에 10 mL의 음이온교환수지(Bio Rad, AG 1×8, 100~200 mesh)를 충전시켜 사용하였다.

2.2 기기 장치 및 시약

화학운반자로 첨가한 Fe과 Nb의 회수율을 측정하기 위하여 유도 결합 플라즈마 원자방출분광기(ICP-AES, ACTIVA-M, Jobin Yvon, France)를 사용하였다. 모의 방사성폐기물 시료 용해액을 제조하기 위하여 ICP-AES 검정용 표준용액 (Spex, U.S.A.)을 사용하였다. 음이온교환수지 분리관은 10 mL의 Bio Rad 1×8(100~200 mesh)을 폴리프로필렌 재질의 분리관(20 mL, Alltech, U.S.A.)에 충전시켜 준비하였다.

3. 결과 및 토의

3.1 방사성폐기물 시료로부터 Fe 및 Nb의 분리

^{55}Fe , ^{94}Nb 및 $^{59,63}\text{Ni}$ 의 분리 회수율 측정을 위한 화학운반자로 Fe과 Nb 및 Ni 그리고 각각 매질 성분원소로 Co와 Cu가 함유되어 있는 모의 방사성폐기물 용해액을 사용하여 Fig. 1의 절차에 따라 순차적으로 분리하였다. Fe과 Nb를 비롯한 여러 성분원소들은 옥살산과 음이온 착물을 형성하며 음이온교환수지에 대해 이들의 분배계수 차이를 이용하여 Fe과 Nb를 신속하게 분리하도록 하였다.

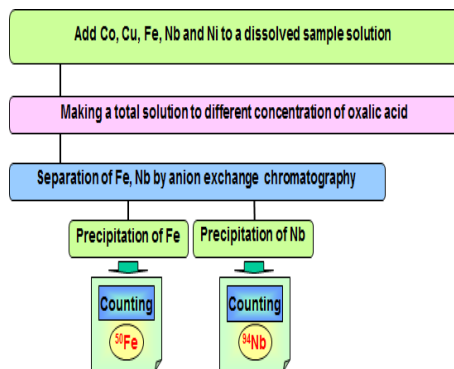


Fig. 1. Separation procedure of Fe and Nb.

3.2 Fe 및 Nb의 분리 미치는 옥살산의 영향

20 mg씩의 Fe 및 Nb 그리고 1 mg씩의 Ni, Co 및 Cu가 함유되어 있는 용액의 옥살산 농도를 0.1~0.3 M 범위로 조절하고 pH를 4.5~5로 조절하였다. 준비된 70 mL의 모의용액과 70 mL의 0.3 M 옥살산 세척액(pH 4.5~5)을 흘려 넣어 Fe 및 Nb으로부터 Ni, Co 및 Cu의 분리하였다. 분리관에 흡착되어 있는 Fe과 Nb은 각각 4 M HF와 0.2 M HF/5 M HNO₃을 흘려 넣어 용출시키고 이 때 얻은 회수율을 Table 1에 나타내었다. Fe은 옥살산의 농도에 거의 영향을 받지 않았다. Nb은 옥살산의 농도가 증가할수록 감소하였으나 Ni의 회수율이 증가하는 경향을 보였다. 또한 Co와 Cu는 옥살산의 농도와 관계없이 Ni과 함께 용출되었다.

Table 1. Recovery yield of Fe, Nb and Ni

Oxalic acid, M	Recovery, %		
	Fe	Nb	Ni
0.11 M	99.8	96.0	92.7
0.17 M	98.8	91.0	93.9
0.23 M	99.2	78.0	96.1
0.28 M	97.5	85.9	95.5

3.3 Fe 및 Nb의 분리거동

Fig. 2로부터 Ni과 함께 Co와 Cu는 옥살산과 음이온 착물 형성계수가 크지 않은 것을 알 수 있다. 따라서 모의용액과 세척액을 흘려 넣은 초기에 대부분이 분리관으로부터 용출되었다. HF 및 HCl 또는 HNO₃의 HF 혼합산 매질에서 음이온교환수지에 대한 흡착 및 탈착거동⁵⁻⁷을 보이고 있는 Fe과 Nb의 흡착거동을 조사하고 그 결과를 그림 2에 나타내었다. 약 70 mL의 0.17 M NH₄-oxalate (pH 4.5~5)의 모의용액을 음이온교환수지 분리관에 통과시킨 후 100 mL의 0.1 M NH₄-oxalate (pH 4.5~5) 용액과 100 mL의 증류수로 세척하였다. 이 후 25 mL의 4 M HF를 통과시켜 분리관을 씻은 후 계속해서 60 mL의 4 M HF를 흘려 넣어 Fe을 선택적으로 회수시킬 수 있었으며 이 후 100 mL의 3 M HCl/20% HF를 통과시켜 세척한 다음 50 mL의 0.2 M HF/5 M HNO₃을 흘려 넣어 Nb을 회수할 수 있었다.

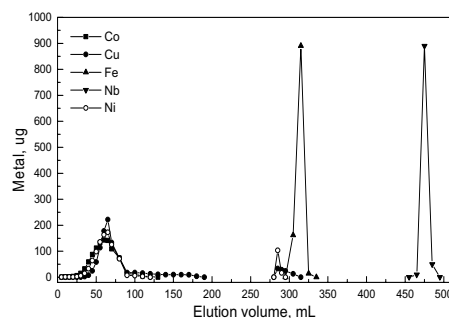


Fig. 2. Separation behaviour of Fe and Nb from matrix metals in a synthetic radioactive waste dissolved solution on the anion exchange resin column.

4. 결론

음이온교환수지법에 의한 Fe 및 Nb 분리 미치는 옥살산의 영향을 조사하였다. Fe의 회수율은 옥살산의 농도에 영향을 받지 않았지만 Nb의 회수율은 옥살산의 농도가 증가할수록 오히려 감소하는 경향이 나타나서 옥살산의 농도가 약 0.11~0.17 M의 NH₄-oxalate(pH 4.5~5)가 적합하였다. Ni은 Co 및 Cu가 함께 분리되었으며 Fe과 Nb은 개별분리가 가능하였다. Fe과 Nb의 회수율은 각각 93.2±1.1% 및 87.3±0.8%이었다.

5. 참고문헌

- [1] Ministry of Science and Technology in Korea, Notice No. 2005-18(18 June, 2005).
- [2] H. J. Hong, "Correlation of radionuclides assayed in radwastes from Korea", IECM '05 Conference, 2005.
- [3] Chang Heon Lee, et. al., J. Radioanal. Nucl. Chem., 272, 187 (2007).
- [4] Chang Heon Lee, et. al., J. Radioanal. Nucl. Chem., 288, 319 (2011).
- [5] Chang Heon Lee, et. al., J. Radioanal. Nucl. Chem., 298, 1221 (2013).

다양한 형태의 실리카 나노입자를 포함한 복합유체의 안정성 평가

윤인호¹, 윤석본², 김초롱¹, 정중현¹, 양한범¹, 박상윤¹, 문제권¹, 최왕규^{1*}

¹한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

²한수원(주)중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70

ihyoon@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력 시설의 해체시 작업자의 작업 수행을 위해 대형기기와 대면적 표면에서 발생하는 방사능을 줄이기 위한 제염 작업이 필요하다. 이러한 제염작업은 방사성 핵종으로 오염되어 있는 대형기기와 대면적 표면을 제염하기 위해 화학제염제를 사용하고 있다. 그러나 화학제염제를 사용한 제염공정은 화학제염 폐액이 다량 발생하기 때문에 이차폐기물 양을 줄일 수 있는 공정이 필요하다.

복합유체 (거품) 제염 공정은 90%인 기체와 10% 액체의 두 가지 유체로 구성되어 있기 때문에, 이차폐기물의 양을 크게 감소시킬 수 있다. 또한 복합유체 제염 공정은 대형/대면적의 표면에 기술 적용이 용이하고, 구조가 복잡하여 작업자의 접근이 어려운 시설 및 기기에 적용이 가능한 장점이 있다 [1]. 하지만 상대적으로 제염 계수가 낮은 단점이 있다 [2]. 이러한 낮은 제염 계수를 높이기 위해서는 오염된 표면에 복합유체 제염제의 접촉 시간을 증가시켜야 한다. 이를 위해 계면활성제와 고분자 물질 또는 무기 물질과 같은 점도제 등을 첨가하여 복합유체 제염제의 안정성을 증가시킬 수 있다 [3-5].

본 연구에서는 나노복합유체 제염제의 안정성을 증가시키기 위해 유기물의 사용을 최대한 줄이고, 기존의 실리카 나노입자의 성능을 증가시키기 위해 다양한 형태의 실리카 나노입자를 제조하여, 복합유체의 안정성을 평가하였고 부식 산화막 시편의 용해 시험을 통해 제염제를 포함한 나노복합유체의 제염성능을 평가하였다.

2. 본론

본 실험에서는 복합유체의 제조를 위한 계면활성제로 비이온 계면활성제인 Elotant™ Milcoside 100 (EM 100, LG Household & Health Care)을 사용하였고, 다양한 형태의 실리카 나노입자를 합성하여 사용하였다.

복합유체의 안정성을 평가하기 위해 Foamscan (TECLIS, France)을 사용하여 이미지 분석과 전도도 측정을 수행하였다 (Fig. 1). 생성된 복합유체의 안정성 척도인 복합유체 양과 복합유체 내에 존재하는 액체량의 변화를 평가하였다. 유리 컬럼에 계면활성제와 나노물질을 포함한 용액을 채운 후에 질소가스를 주입하여 거품을 발생시켜 실시간으로 측정하였다. 나노복합유체의 안정성 평가는 1% (v/v) EM 100 계면활성제만 포함한 복합유체와 1%(v/v) EM 100 계면활성제와 다양한 형태의 1wt.% 실리카 나노입자를 넣어 제조된 나노복합유체에 대해 평가하였다.

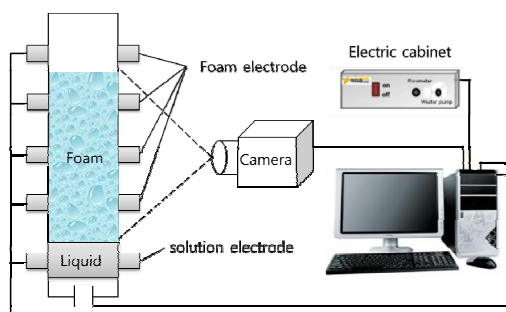


Fig. 1. The scheme of Foamscan instrument.

부식 산화막 시편은 실제 1차 계통내부의 용액과 유사한 환경에서 산화막이 생성될 수 있게 제작한 semi-loop를 이용하여 제조하였고, 산화막 시편은 SUS 시편을 사용하였다. 나노복합유체를 이용한 부식 산화막 시편의 용해 평가를 위해, 1M HNO₃ 제염제에 안정성 평가시 제조된 나노복합유체와 똑같은 비율로 제조한 나노복합유체 30 mL를 제조하였다. 100 mL의 시험 용기에 나노복합유체를 넣고 흔들어서 거품을 생성시키고 부식 산화 시편이 나노복합유체에 충분히 접촉될 수 있도록 용기의 가운데에 위치시켰다. 복합유체의 성능 평가를 위해 용해 시험 후 용해된 철의 양을 Flame Atomic Absorption Spectroscopy를 이용하여 분석 하였다.

나노복합유체의 안정성은 생성된 복합유체 양과 복합유체내 존재하는 액체량을 통하여 평가하였다. Fig. 2(a)에서 나타난 것처럼 다양한 형태의 나노입자가 첨가된 나노복합유체가 1% EM100만 포함된 복합유체에 비해 생성된 거품 양이 높게 유지되는 것으로 나타났다. 특히 다공성 실리카 나노입자가 포함된 나노복합유체는 약 160 mL로 복합유체 양이 가장 높게 존재하는 것으로 나타났다.

Fig. 2b에서는 복합유체내 존재하는 액체량을 나타내었고, 계면활성제인 1% EM 100만 포함한 복합유체와 비다공성 실리카 나노입자를 포함한 나노복합유체에서는 1시간 후에 액체량이 전혀 남지 않은 것으로 나타났다. 하지만 코어-셸 구조의 실리카 나노입자를 포함한 나노복합유체는 1시간 후에 약 2 mL, 다공성 실리카 입자의 경우에는 약 3 mL이 존재하는 것으로 나타났다. 이 결과로부터 실리카 나노입자의 다공성이 증가할수록 넓은 비표면적과 큰 기공부피로 인해 실리카 나노입자의 밀도가 낮아지면서, 복합유체내 액막에 분산성이 높아져서 복합유체 안정성이 증가하는 것으로 사료된다.

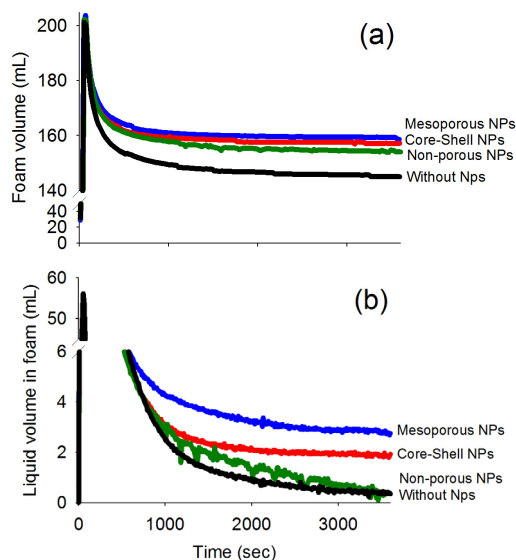


Fig. 2. The (a) foam volume and (b) liquid volume in foam for various structures of silica nanoparticles (NPs) compared with that using surfactant only.

부식 산화막 용해 실험에서는 1% EM100만 포함된 복합유체와 1wt.%의 다양한 실리카 나노입자를 포함한 나노복합유체를 사용하여 용해되는 부식산화막의 철의 양을 통해 비교분석하였다. 실험결과를 통해서, 용해되는 철의 양이 1% EM100

만을 포함한 복합유체에 비해 1wt.% 다공성 실리카를 함유한 나노복합유체가 약 2배 정도 증가하는 것으로 나타났다. 본 결과를 통해서 다공성 실리카 나노입자를 첨가함에 따라 안정성이 높아지고, 나노복합유체 제염제와 오염된 표면의 접촉시간이 증가함에 따라 부식 산화막의 용해가 증가하는 것으로 사료된다.

3. 결론

본 연구에서는 새로운 나노복합유체 제염제를 개발하기 위해 다양한 형태의 실리카 나노입자를 제조하여 나노복합유체 안정성과 부식산화막 용해평가를 수행하였다. 다양한 형태의 실리카 나노입자의 첨가에 기인하여 복합유체의 안정성이 증가하는 것으로 나타났고, 특히 다공성 실리카 나노입자를 사용하는 경우 복합유체의 안정성이 가장 높게 나타났다. 또한 나노복합유체의 안정성이 높아질수록, 화학제염제와 오염된 표면의 접촉시간이 증가되어 부식 산화막 시편의 용해가 증가함을 확인하였다.

4. 감사의 글

이 논문은 2014년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구입니다.

5. 참고문헌

- [1] C. Dame, et al., "Relations between physicochemical properties and instability of decontamination foams" *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 263 210-218 (2005).
- [2] L. Nunez, and M. Kaminski, "Foam and gel methods for the decontamination of metallic surfaces" *US Patent 7,166,758 B2* (2007).
- [3] B.P. Binks, "Particles as surfactants - Similarities and differences" *Current Opinion in Colloid and Interface Science*, 721-41 (2002).
- [4] S.B. Yoon, et al., *Morphological Control of Mesoporous Silica Nanoparticles and Their Application for Foam Stability*, *Asian Journal of Chemistry*, in press (2014).
- [5] I.-H. Yoon, et al., *Decontamination Foam Containing Silica Nanoparticles of Various Structures*, *Asian Journal of Chemistry*, in press (2014).

우라늄오염자갈의 제염실험

박옥량*, 김계남, 김승수, 문제권

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*uks@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력시설의 운전이나 가동 중단에 따른 해체 시 많은 양의 방사능오염토양이 발생된다. 특히 방사능오염토양에는 각각 다른 크기 및 종류의 자갈이 포함되어있으며, 방사능의 오염으로부터 자유롭지 못하다. 실제로 원자력연구원의 우라늄 변환시설 해체 시 발생한 방사능오염토양에 포함된 자갈을 채취하여 방사능을 분석한 결과 대부분의 자갈이 우라늄으로 오염되어 있음을 확인하였다. 우라늄오염자갈의 양은 토양 대비 약 10% 정도이며, 종류와 부피가 서로 다르기 때문에 어떠한 처리없이 그대로 처분하기에는 막대한 비용이 발생할 수 있다. 또한 현재까지 우라늄오염자갈을 처리하기 위한 방법이나 기술들이 확보되지 못하고 있는 것이 사실이다. 따라서 우라늄으로부터 오염된 자갈을 제염하기위한 기초실험 및 연구를 수행 중이며, 몇 가지 실험결과를 얻었다. 주요 제염방법은 토양세척법을 적용한 산세척으로, 우라늄오염자갈을 그 자체로 세척하였을 경우 대부분의 자갈에서 굉장히 낮은 제염효율을 나타냈다. 이에 따라 우라늄이 자갈의 내부까지 오염된 것으로 판단하고 우라늄오염자갈을 파쇄하여 세척하였으며, 그 결과는 자체세척을 한 것보다 월등히 높은 제염효율을 보임에 따라 파쇄하여 세척하는 것이 효과적인 제염방법으로 확인되었다. 그러나 평균 농도의 우라늄오염자갈을 대상으로 얻어진 결과이며, 평균농도 이상으로 오염된 고농도오염자갈이 확인됨에 따라 이를 제염하기 위한 연구가 필요하다.

따라서 본 연구에서는 고농도 우라늄오염자갈을 효과적으로 처리하고 높은 제염효율을 확보하기 위하여, 자갈을 분쇄한 후 세척실험을 수행하고 제염효율을 확인하고자 하였다.

2. 본론

연구원에 보관 중인 우라늄오염토양에서 자갈을 채취한 후 조크러셔(jaw crusher)장치로 파쇄하였

다. 파쇄한 자갈의 입자가 1.5 mm이하가 될 때까지 분쇄 한 시료 50 g을 준비한 후 Multi-Channel Analyzer(MCA) 방사능을 측정하였다. 이 시료에 고액비 1 g:2 mL로 HNO_3 를 사용하여 pH가 0이 될 때까지 주입하고, 2시간동안 회분식 교반으로 세척 한 후 정지한 다음 상등액을 분리하였다. 105℃ 건조기에서 완전히 건조 시킨 후 MCA로 방사능을 측정하였다.

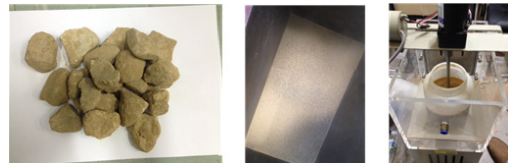


Fig. 1. Crushing and Washing.

분쇄한 오염자갈의 초기우라늄농도는 7.3 Bq/g이었으며, 오염자갈의 제염효율을 높이기 위해 수회 반복세척을 실시하였다. 세척횟수를 4회까지 반복하였을 때 우라늄농도는 0.75 Bq/g이었으며, 제거효율은 89.7%를 나타냈다. 비교적 높은 제염효율을 보이는 결과로 1회 제염에서 많은 우라늄이 분쇄자갈로부터 제거되었으며, 2회 세척부터는 제염되기는 하나 제염효율이 떨어졌으며, 우라늄오염토양에서의 자체처분허용기준농도인 0.4 Bq/g 이하를 만족하기에는 다소 무리가 있었다. 이는 자갈 분쇄 후 표면적이 넓어짐에 따라 1회 세척시 우라늄을 제거하기가 쉬웠으나, 자갈의 내부에 깊숙이 오염된 우라늄은 세척이 되질 않아 2회 세척부터는 제염효율이 떨어진 것으로 판단된다.

Table 1. Removal efficiency for Uranium in gravel

	Ci (Bq/g)	1st	2nd	3rd	4rd
U (conc.)	7.3	2.44	1.75	0.91	0.75

따라서 오염자갈의 세척횟수를 줄이고 높은 제염효율을 얻기 위해 작은 크기로 분쇄할 필요가 있다. 오염자갈을 분쇄한 후 체분리를 실시하여 0.075 mm이하, 0.075-0.45 mm, 0.45 mm-1.0 mm 기준으로 구분한 후 방사능을 측정하고 세척실험을 수행하였다. 입경별 방사능 분포는 많은 차이는 아니지만 0.075 mm이하의 분쇄자갈에서 다른 크기의 분쇄자갈보다 높게 나타났다. 3회에 걸친 세척실험을 수행한 결과 0.075 mm이하 분쇄자갈은 초기우라늄농도 8.75 Bq/g에서 0.36 Bq/g으로 제염효율은 95.8%를 보였다. 또한 0.075-0.45 mm 크기의 초기우라늄농도는 5.58 Bq/g에서 0.51 Bq/g으로 제염효율 90.8%를 나타냈으며, 0.45 mm-1.0 mm 크기의 초기우라늄농도 5.12 Bq/g에서 0.56 Bq/g으로 제염효율은 89.1%를 보였다. 이는 대부분의 분쇄자갈크기에서 자체체분허용기준 농도와 비슷한 범위의 제염 후 농도를 보였으며, 분쇄자갈의 크기가 0.075 mm이하에서는 1회 세척 시 우라늄을 제거하는 데 좀 더 효과적인 것을 확인할 수 있었다.

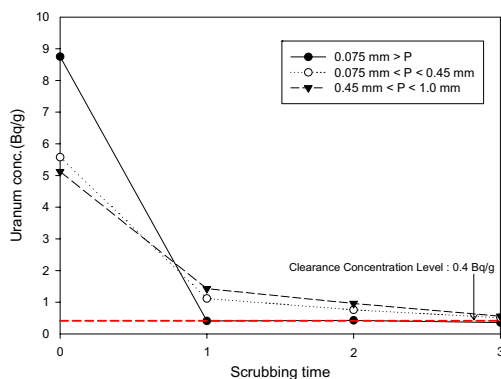


Fig. 2. Removal efficiency for uranium in gravel each size.

3. 결론

우라늄오염토양과 함께 오염된 우라늄오염자갈을 중 평균농도 이상으로 오염된 자갈을 제염하기 위하여 세척방법으로 제염을 실시하고 제염효율을 높이기 위해 분쇄하여 세척실험을 수행하였다. 그 결과 우라늄오염자갈의 분쇄크기가 1.5 mm이하에서 89%의 제염효율을 얻었으나, 최종 세척 후 우라늄농도가 만족할 수준으로 제거되지는 않았다. 이에 따라 1 mm이하로 분쇄하고 크기를 구분하여 제거경향을 살펴본 결과 0.075

mm이하에서 95.8%의 제염효율을 보였으며, 특히 1회 세척만으로도 만족할만한 농도를 나타냈다. 결론적으로 우라늄 농도가 높은 자갈의 경우에도 입자의 크기를 충분히 작게 분쇄하여 세척한다면 효과적인 제염이 가능한 것으로 확인되었다.

4. 참고문헌

- [1] U. R. Park, G. N. Kim, S. S. Kim, H. M. Park, W. S. Kim, J. K. Moon, "A Study on the Removal of Cesium in Soil Contaminated with Radiation Using a Soil Washing Process", Transactions of the Korean Nuclear Society Spring Meeting, Vol. 1, pp. 279 (2013).
- [2] 박옥량 외, "방사능오염자갈의 제염을 위한 기초실험", 한국지하수토양환경학회 추계학술대회, pp.471-472 (2013).

석탄회 필터를 이용한 기체상세습의 포집 반응속도 모델

박장진*, 신진명, 양재환, 백영희, 유재욱, 박근일

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*jjipark@kaeri.re.kr

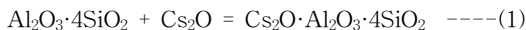
1. 서론

기체상 세습이 파이로프로세스 전처리 공정의 고온 휘발성산화공정에서 휘발된다. 한국원자력연구원에서는 석탄회필터를 이용하여 기체상세습을 안전하게 포집하는 연구를 수행하고 있다[1]. 그러나, 석탄회필터를 이용한 세습포집반응 모델에 대한 연구는 처음이다. 고체상 물질을 이용한 기체상 물질을 포집하는 반응 모델의 예로는 산화칼슘을 이용한 기체상 셀레늄을 포집한 반응 모델[2], meta-kaolinite를 이용한 기체상 염화세습 반응 모델[3]이 있다. 본 연구에서는 상기 모델과 기존 실험결과[4, 5]를 바탕으로 반응속도 모델을 도출하고자 하였다.

2. 본론

2.1 반응속도 모델

석탄회는 Si/Al의 비가 약 2.1로 pollucite를 형성하는데 적합하다. Al_2O_3 와 SiO_2 를 제외한 나머지 성분은 약 13%이다. 사용후핵연료의 열처리 분위기에 따라 휘발하는 Cs의 화학종은 Cs_2O , Cs 등 다양할 수 있으나 본 보고서에서는 편의상 Cs_2O 로 가정하였고, 석탄회 필터를 이용한 세습 포집반응을 (1)식과 같이 일어난다고 가정하였다.



(1)식의 화학반응속도는 Cs_2O 의 분압과 석탄회 필터의 표면적에 비례한다고 정의하였다.

$$dx/dt = \eta k P_{Cs_2O}^m S \quad \text{------(2)}$$

단,

x= 석탄회의 전환율(conversion of fly-ash)

η = 유효 인자(effectiveness factor)

k= 임의의 Cs_2O 분압에 기초한 반응속도상수

P_{Cs_2O} = Cs_2O 분압

S= 이용가능한 석탄회필터의 비표면적

한편, 이용가능한 석탄회필터의 비표면적이 전환율에 비례한다고 가정하였다.

$$S=S_0 (1-x) \quad \text{------(3)}$$

반응속도 상수 Arrhenius 식으로 표현된다고 가정하면,

$$k = k_0 \cdot \exp(-E_a/RT) \quad \text{------(4)}$$

단, k_0 = 빈도 인자(frequency factor), E_a = 활성화에너지(activation energy)

(3), (4) 식을 (2)식에 넣고, 적분하면

$$\ln(x/t) = \ln(\eta k_0 S_0) - m \ln(P_{Cs_2O}) - (E_a/R)(1/T) \quad \text{------(5)}$$

(5)식으로부터 일정한 온도에서 $\ln(x/t)$ 와 $\ln(P_{Cs_2O})$ 는 직선관계를 나타내고, 일정한 (P_{Cs_2O}) 에서는 $\ln(x/t)$ 와 $(1/T)$ 는 직선관계를 나타낸다. 즉, 이식으로부터 세습분압의존지수 m과 활성화에너지 E_a 를 구할 수 있다.

2.2 모델에 사용한 실험 자료

본 연구에서 사용한 세습 포집 반응 실험자료는 신 등[4, 5]의 실험 자료를 사용하였다. 이 실험은 두 영역 관형 반응기를 이용하여 휘발영역은 1000℃로 유지하였고, 포집영역은 700℃, 800℃, 900℃, 1000℃로 유지하여 휘발하는 세습을 포집하는 실험을 수행하였다. 이때 사용된 석탄회 필터는 디스크형태로 30 ppi(pores per inch), 직경 45mm, 무게 7 g 이었다.

신 등[4]의 실험자료 중 공기분위기하 700℃, 800℃, 1000℃에서의 fly-ash 필터 첫 번째 단의 세습 포집량 자료를 보면, 반응 3시간까지 선형적으로 진행됨을 알 수 있다. 필터 단위무게당 포집량을 전환율로 나타내기 위하여 100% 전환될때의 포집량을 1.166 g- Cs_2O /g-filter로 가정하였다. 이 포집량은 필터의 건전성이 유지되는 최대의 양을 기준으로 하였다. 이 양을 기준으로 환산한 전환율을 Fig. 1에 나타내었다.

Fig. 2는 1000℃에서의 세습 분압을 매개변수로

한 시간에 따른 전환율 변화를 나타내었다. 신 등 [4]의 실험에서 사용한 세슘 분압은 22.1 Pa이었고, 역시 Cs-silicate를 사용한 실험[5]의 세슘분압은 11.6 Pa 이었다. CsNO₃을 이용한 세슘 분압 30.4 Pa, 60.4 Pa 일때 1000℃ 공기분위기하 자료를 추가로 Fig. 2에 나타내었다.

2.3 모델 파라미터의 결정

Fig. 3은 (5)식에서 세슘 분압의존도 m 을 구하기 위하여 $\ln P$ 값과 $\ln(dx/dt)$ 값을 각각 x, y 축에 나타내었다. 이 그림의 기울기로 부터 구한 m 값은 2.94이었다. Fig. 4에는 (5)식에서 활성화에너지를 구하기 위하여 $1/T$ 값과 $\ln(dx/dt)$ 값을 각각 x, y 축에 나타내었다. 이 그림의 기울기로 부터 구한 활성화에너지 E_a 값은 2.49 kcal/gmol로서 kaolinite로 CsCl 세슘을 포집하는 경우[5]의 2.86 kcal/gmol, 칼슘으로 SeO₂를 포집하는 경우 [6]의 4.03 kcal/gmol 과 비슷한 값을 보였다.

(5)식에서 유효인자(n)는 기공내에서의 확산에 의해 반응속도가 늦어짐을 나타내는 인자로서 본 필터의 경우 기공 크기가 약 0.5mm 이고 작은 기공은 거의 없는 상황이다. 따라서 기공내 확산에 의해 반응속도가 거의 영향이 없다고 판단되어 유효인자를 1로 보았다. 한편, 비표면적은 0.01 m²/g으로 n, So, m, E_a 값들을 대입하여 정리하면 다음과 같다.

$$\ln (x/t) = -14.50 + 2.94 \ln (P_{Cs2O}) - 1254(1/T) \quad \text{----- (6)}$$

3. 결론

본 연구에서는 기체상 세슘을 석탄회 필터로 포집하는 반응에 대하여 반응속도는 세슘농도 지수 m 에, 비표면적에는 지수 1에 비례한다는 가정하에 반응속도를 모델링하였다. 모델식의 세슘분압 의존계수는 2.94였고 활성화에너지는 2.49 kcal/gmol 였다.

4. 감사의 글

이 논문은 미래창조과학부의 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, Global 2009, Paris, 2009.

- [2] R. Agnihotri, S. Chauk, S. Mahuli, and L. S. Fan, "Selenium removal using Ca-based sorbents: reaction kinetics", *Environ. Sci. Technol.*, **32**, 1841(1998).
- [3] H. C. Yang, J. S. Yun, M. J. Kang, Y. Kang, and J. H. Kim, "High -Temperature cesium sorption in calcined kaoline packed beds", *Environmental Engineering Science*, **21**, 73 (2004).
- [4] J. M. Shin, J. J. Park, K. C. Song, and J. H. Kim, "Trapping behaviour of gaseous cesium by fly ash filters", *Applied Radiation and Isotopes*, **67**, 1534 (2009).
- [5] J. M. Shin and J. J. Park, "Trapping characteristics of cesium in off-gas stream using fly ash filter", *Korean J. Chem. Eng.*, **18**, 1010(2001).

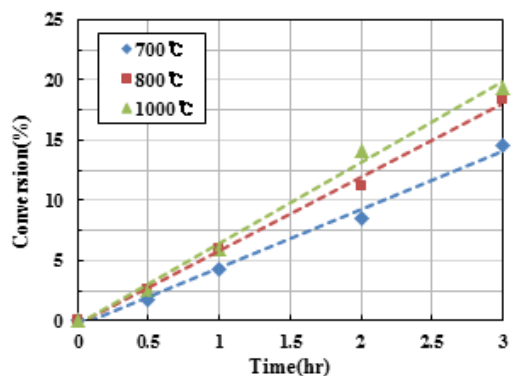


Fig. 1. Conversion of fly-ash into pollucite at 700℃, 800℃, and 1000℃.

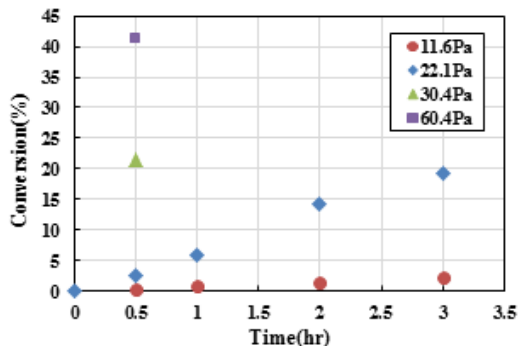


Fig. 2. Conversion of fly-ash into pollucite at 11.6Pa, 22.1Pa, 30.4Pa, and 60.4Pa.

기체상 테크네튬(레늄) 포집을 위한 칼슘 그레놀 필터

박장진*, 신진명, 양재환, 백영희, 유재욱, 박근일

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*jjpark@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원은 경수로 사용후핵연료 파이프 공정에 대하여 연구하고 있다. 파이프 공정은 크게 전처리공정, 전해환원공정, 전해정련공정, 전해제련 공정 등으로 이루어져 있다. 이 중 전처리 공정에서는 전해환원공정에 사용될 원료 입자를 제조하기 위해 경수로 사용후핵연료 집합체를 해체, 인출, 절단, 탈피복, 분말화, 입자제조가 수행된다. 이 과정에서 Cs-137, Tc-99, I-129 등 상온에서 고체상으로 존재하는 휘발성 핵종과 Kr-85, Xe, C-14, H-3 등 휘발성 핵종이 방출된다[1]. 이중 기체상 테크네튬(레늄) 핵종은 칼슘 화합물인 칼슘 필터(calcium based filter)를 이용하여 포집하고 있다. 지금까지 칼슘 필터는 스폰지 구조를 가지고 있는 디스크형태의 필터를 개발하여 이를 이용 테크네튬(레늄)을 포집하는 연구를 수행하여왔다.

그러나, 디스크형 필터는 포집능력이 좋은 반면, 필터 콘테이너에 필터장입시 조업 기체의 channeling 방지를 위해 콘테이너와 필터 사이의 실링 등에 많은 노력이 필요하고, 조업 후 폐필터의 고화체 제조를 위해 필터 콘테이너로부터 원격으로 필터를 배출시 디스크형 필터는 상당한 불편한 점이 있다. 방사선 테크네튬(레늄)을 함유하는 폐필터는 방사성 물질이다. 이와 같이, 폐필터는 핫셀에서 원격조종기와 같은 특별한 도구로 취급해야 한다. 또한, 고화체 제조시 glass frits와의 혼합 효율 향상을 위해 디스크형 필터는 조분쇄 공정이 필요하다. 이와 같은 이유로 그레놀형 필터 개발이 필요하다. 그레놀형 필터의 경우 콘테이너와 필터사이의 실링 문제가 없으며, 원격으로 필터 주입 및 배출이 용이하고, 고화체 제조시 조분쇄 공정 없이 Glass frits와 혼합이 용이하게 된다. 상기 조작은 모두 원격으로 이루어지기 때문에 한 종류 조작의 생략 및 단순화는 공정의 효율을 향상시키는 측면에서 매우 중요하다고 할 수 있다.

본 논문에서는 이를 위해 칼슘 분말을 이용하여 볼 형태, 스폰지 구조 형태 등을 갖는 4 가지형태의 그레놀을 제조하였으며, 제조한 그레놀을 간단하게 수행할 수 있는 “도가니를 이용하여 예비 포집성능시험”을 수행하였다. 예비 성능 시험에서 가장 우수한 성능을 보인 그레놀을 선정하여 선정된

그레놀을 이용, two-zone 관형로에서 포집성능이 우수한 기준 디스크필터와 성능비교 실험을 수행하였다. 기준 디스크 필터는 칼슘함량을 높이고 필터의 강도 등 건전성을 높인 칼슘필터를 이용하였다.

2. 본론

2.1 그레놀 제조

4가지 제조방법을 시도하였다. 첫 번째는 기공형성제를 사용하지 않고, 물과 PVA 결합제, 수산화칼슘을 이용 직경 5mm의 국수처럼 말아서 이를 길이 약 5mm 되게 절단하여, 건조하고 1280℃에서 소성하였다. 이렇게 제조된 그레놀의 Bulk density는 1.35 g/cm³, Skeleton density는 2.57g/cm³, Porosity 11.1%였다. 두 번째는 물과 PVA 결합제, 수산화칼슘, 활성탄(기공제)을 이용하여 역시 약 5mm 되게 뭉쳐서 이를 1,280℃에서 열처리하였다. 두 번째 그레놀은 Bulk density 0.51 g/cm³, Skeleton density 1.02 g/cm³, Porosity 63.5%이었다. 첫 번째 그레놀보다 porosity가 많이 향상되었다. 세 번째는 기공제로 폴리에틸렌을 49% 주입하여 역시 약 5mm 되게 뭉쳐서 이를 1,280℃에서 열처리하였다. 세 번째 그레놀은 Bulk density 0.40 g/cm³, Skeleton density 0.65 g/cm³, Porosity 72.7%이었다. 첫 번째 그레놀보다 porosity가 크고 활성탄을 기공형성제로 쓴 경우와는 비슷하였다. 네 번째 방법으로는 물과 PVA 결합제, 수산화칼슘, 스폰지를 이용하여 디스크형태의 스폰지 구조를 갖도록 만든 스폰지구조 그레놀이다. 각 변의 길이가 5mm가 되도록 제조하였다. 이 그레놀은 Bulk density 0.24 g/cm³, Skeleton density 0.44 g/cm³였다.

2.2 도가니를 이용한 예비 성능시험

알루미나 도가니를 이용하여 공기분위기 전기로 700℃에서 2시간 유지하여 4가지 그레놀 시료와 기준 디스크 필터를 이용하여 예비 포집성능 실험을 하였다. 가열은 10℃/min 으로 하였다. 기준 디스크 필터는 칼슘함량을 높이고 필터의 강도 등 건전성을 높인 칼슘필터를 이용하였다. 테크네튬은 인공원소이기 때문에 본 실험에서는 테크네튬대신 화학적 특성이 같은 레늄을 이용하였다. 레늄화합물로서는 산화공정에서 휘발이 가능한

Re 금속 2 그램을 사용하였다. 실험후 Re 금속은 99%이상 휘발되었다. 실험결과 첫 번째 시료는 0.05 g-Re/g-filter, 두 번째 시료는 0.18 g-Re/g-filter, 세 번째 시료는 0.24 g-Re/g-filter, 네 번째 시료는 0.62 g-Re/g-filter이었고, 기준으로 설정한 디스크 형태의 필터는 0.76 g-Re/g-filter 이었다.

그레놀 필터 중에는 디스크필터의 스폰지 구조를 갖는 그레놀의 포집능력이 가장 우수하였다. 스폰지구조의 그레놀 필터는 디스크필터의 82% 만큼 포집되었다. 육안으로볼 때 스폰지구조의 그레놀 필터와 디스크필터 만이 레늄이 노랗게 다량 포집되었음을 알 수 있다. 스폰지구조의 그레놀 필터 포집량이 디스크필터에 비해 약간 작지만 높은 수준의 포집량을 보여 주었다. 여하튼 실험결과로 볼 때 기고 접촉효율이 가장 좋은 스폰지 구조가 레늄 포집에 가장 유리한 것으로 판단되었다. 기체상 레늄을 효율적으로 포집하기 위해서는 포집재의 비표면적을 증가시키는 것보다 기고 접촉을 원활하게 만들어 주는 구조가 더욱 중요하다고 사료된다.

2.3 Two-zone furnace를 이용한 성능시험

도가니를 이용한 예비실험결과 가장 우수한 포집능력을 갖는 그레놀인 스폰지 구조의 그레놀 필터(4차)와 칼슘 디스크 필터를 이용하여 내경 5 cm 알루미늄 튜브가 장착된 two-zone 관형로에서 성능 비교 실험을 수행하였다. 이 전기로는 레늄화합물을 휘발하는 휘발존과 휘발된 레늄화합물을 장착된 필터로 포집하는 포집존 두영역으로 이루어져있다. 실험 분위기 가스는 항후 전처리 공정의 고온 열처리로가 아르곤분위기하에서 이루어짐을 감안하여 아르곤가스 분위기하에서 수행하였다. 실험조건은 아르곤 가스 유량 2.7 liter/min였고, 휘발온도는 900℃, 포집온도는 700℃, 800℃, 각 필터 단수는 10단이었다. 실험에 사용된 레늄화합물은 Re_2O_7 로 8.28그램을 이용하였다. 이양은 초기U-235 농축도 4.5%, 연소도 55,000 MWD/MTU, 10년 냉각 가압 경수로 사용후핵연료 2.7kg에 해당한다. 포집존 온도가 700℃/800℃ 도달 후 Re_2O_7 휘발존을 10℃/min 로 700℃까지 가열하여 700℃ 도달후 2시간을 유지하도록 하였다. 이때 포집존은 700℃/800℃에서 190분에서 200분정도 유지하게 된다. 실험결과 Fig. 1과 같이 디스크 필터는 3단내에 레늄이 포집 되었지만, 그레놀 필터는 뒤로 퍼지는 현상을 보였다. 세습 포집 석탄회 그레놀 필터의 경우는 포집효율이 디스크 필터와 동등 하였으나[2] 칼슘필터의 경우는 레늄 포집반응이 세습 포집반응에 비해 느리기 때문이

라고 사료된다. 칼슘필터의 레늄효율은 700℃보다는 800℃에서 좋았다. 700℃에서는 1, 2단 포집량이 800℃ 디스크 필터의 50%이고, 800℃에서는 1, 2단 포집량이 디스크 필터의 80%이다.

3. 결론

칼슘 디스크필터의 문제점을 해결하기 위하여 3가지 ball 형태의 그레놀과 1가지 스폰지 구조의 그레놀 등 총 4가지 형태의 그레놀 필터를 제조하였다. 4 가지 시료에 대하여 도가니를 이용한 예비성능검사를 수행하였다. 이중 스폰지 구조의 그레놀이 0.62 g-Re/g-filter로 가장 포집성능이 좋았다. 가장 성능이 좋은 스폰지 구조의 그레놀과 기준 디스크필터를 이용하여 two-zone furnace에서 성능 시험한 결과 기준 디스크필터는 3단내에 레늄이 모두 포집되었지만, 그레놀 필터는 비해 뒤로 퍼지는 현상을 보였다. 이는 레늄 포집반응이 느려 기고 접촉이 나쁜 그레놀 필터의 경우 뒤로 퍼졌다고 사료된다. 800℃에서 1, 2 단 포집효율은 디스크필터의 80%였다.

4. 감사의 글

이 논문은 미래창조과학부의 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.
- [2] 박장진 등, "기체상 세습포집을 위한 석탄회 그레놀 필터", KAERI/ TR-5277/2013, 한국 원자력연구원, 2010.

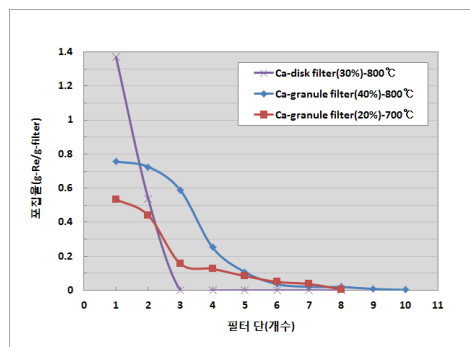


Fig. 1. Re trapping capacity of calcium granule and disk filters.

미국 상용 원자력발전소 해체 사례 조사 및 분석

이성철*, 김창락

한국전력 국제원자력대학원대학교, 울산광역시 울주군 서생면 해맞이로 658-91

*sclee@kings.ac.kr

1. 서론

국내 가동 및 미래 원자력시설의 환경 관리 및 보존을 위한 안전규제 기반 구축을 위해서는 원전 해체에 대한 안전규제 정책 수립 기반 기술을 개발하고, 원전 부지 제염 및 복원을 위한 안전규제 기술을 개발해야 한다. 안전규제 정책 수립을 위해서 원전 해체 경험이 있는 미국, 독일 등의 사례에 대해 조사 및 분석을 한 후, 국내 원전에 대한 해체 방안을 마련하고 그에 대한 타당성을 평가하는 것이 필요하다. 본 논문에서는 미국의 주요 상용원전 해체 사례 중 총 5개의 PWR 노형의 원전 해체 사례¹⁻⁵를 조사 및 분석하고, 특히 원자로, 증기발생기 및 가압기 등과 같은 1차 계통 주요 대형 기기에 대한 해체 방안을 검토하고자 한다.

2. 미국 해체 원전 사례

2.1 미국 해체 원전 일반 사항

이미 해체된 미국 원전들 중 총 5개의 해체 원전들에 대해 원자로 용량, 상업운전 기간, 그리고 해체 프로젝트 기간을 Table 1에 정리하였다. 조사 대상 해체 원전들은 모두 PWR 노형이며, Maine Yankee와 San Onofre는 3개의 루프로, Connecticut Yankee와 Trojan 원전은 4개의 루프로 1차 계통이 구성되어 있다.

Table 1. General Information of Decommissioned Nuclear Power Plants

NPP	Reactor Capacity	Commercial Operation	Decommission
Trojan ¹	1,130 MWe	1976~1993	1996~1999
Maine Yankee ²	860 MWe	1972~1996	1997~2004
Connecticut Yankee ³	619 MWe	1968~1996	1996~2006
Rancho Seco ⁴	913 MWe	1975~1989	1989~2007
San Onofre ⁵	450 MWe	1968~1992	1999~2008

2.2 원자로 해체 방법

원자로 해체 방안은 원자로 용기와 내부를 분리하여 처분하는 방법, 또는 분리하지 않고 원자로 자체를 일체로 해체하는 방법 등 크게 두 가지로 구분할 수 있다. Table 1에 정리된 미국 해체 원전 사례 중 Trojan에서만 원자로 일체 해체 및 처분 방안이 적용되었으며, 그 외의 원전에서는 원자로 내부를 용기로부터 분리한 후 원자로 용기와 내부를 따로 처분하는 방법이 적용되었다.

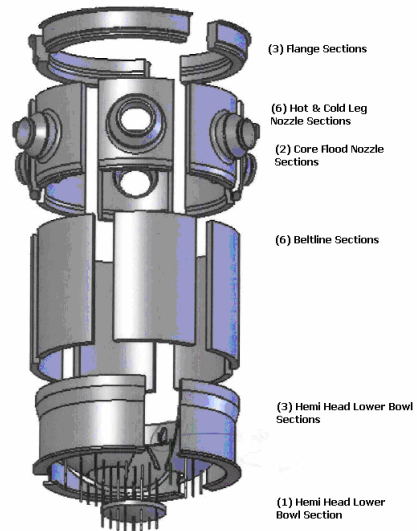


Fig. 1. Reactor Vessel Segmentation, Rancho Seco.



Fig. 2. Reactor Package, Trojan.

2.3 주요 기기 반출 방법

일반적으로 비교적 최근에 건설된 원전 격납건물의 경우 원자로 및 증기발생기의 반입 및 향후 반출을 위한 장비반입구가 반영되어 있다. 장비반입구가 있을 경우 원전 주요 기기 해체 후 격납건물로부터 반출 과정이 비교적 용이하게 된다. 하지만, 장비반입구가 없거나 크기가 작을 경우 원자로 및 증기발생기 반출을 위해 원자로 격납건물에 별도의 개구부를 만들어야 한다.

San Onofre 원전의 경우 강제 격납 구조 밖을 콘크리트 구조물이 감싸고 있는 2중 형태로 되어 있었으며, 주요 기기 반출을 위해 콘크리트 구조 지붕을 완전 제거 후 철로 구성된 격납 구조물의 지붕에 개구부를 뚫어 이동식 크레인을 이용해 격납 건물 내부로부터 증기발생기 및 가압기 등의 대형 기기를 반출하였다.

Trojan 원전의 경우 원자로를 절단하지 않은 채 처분하는 방법이 고려되어 상대적으로 큰 개구부가 필요하였다. 이때 원자로 격납 건물이 포스트 텐션 방식으로 되어 있어, 격납 건물 내 모든 텐션의 응력 이완 및 제거 작업이 선행된 후 개구부 부위 콘크리트 및 철근의 절단 작업을 통해 개구부를 만들었다. 이후 개구부를 통해 원자로의 해체 및 반출이 이루어졌다.

3. 결론

본 연구에서는 이미 해체된 미국 원전 중 PWR 노형 원전 5개의 해체 사례를 조사 및 분석하였다. 본 연구 결과, 원자로 해체 및 반출 등에 대해 다양한 방안이 고려될 수 있으며 각 원전 특성에 적합한 방안을 선정한 후 해체 작업이 이루어진 것으로 나타났다. 본 연구 결과는 향후 국내 원전 해체 방안 설정에 매우 유용할 것으로 사료된다.

4. 감사의 글

이 논문은 2013년도 정부 원자력안전위원회 원자력안전연구사업의 지원을 받아 수행된 연구임 (1305009-0113-HD120).

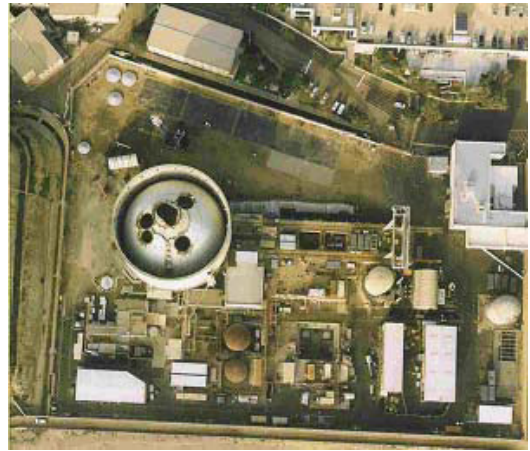


Fig. 3. Containment Opening, San Onofre.

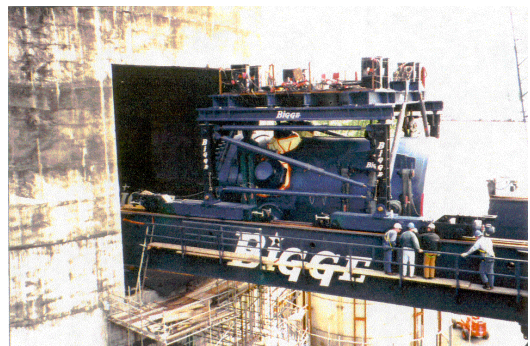


Fig. 4. Reactor Moved Outside, Trojan.

5. 참고문헌

- [1] EPRI, Trojan Nuclear Power Plant Reactor Vessel and Internals Removal - Trojan Nuclear Plant Decommissioning Experience, 2000. 10.
- [2] EPRI, Maine Yankee Decommissioning Experience Report - Detailed Experiences 1997-2004, 2005. 5.
- [3] EPRI, Connecticut Yankee Decommissioning Experience Report - Detailed Experiences 1996-2006, 2006. 11.
- [4] EPRI, Rancho Seco Nuclear Generating Station Decommissioning Experience Report - Detailed Experiences 1989-2007, 2007. 12.
- [5] EPRI, San Onofre Nuclear Generating Station - Unit 1 Decommissioning Experience Report - Detailed Experiences 1999-2008, 2008. 12.

고염/고방사성 해수폐액에서 CST에 의한 Cs의 흡착특성

이일희*, 소지양, 백예지, 박민성, 이근영, 김광욱, 김익수, 정동용, 문제권

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*nehlee@kaeri.re.kr

1. 서 론

고염/고방사성 폐액은 일본 후쿠시마의 원전사고와 같이 비정상상태의 중대사고 시 발생하는 즉, 원자로 및 원자로 내 장전된 핵연료의 냉각을 위하여 냉각수로 바닷물을 다량 주입하여, 단시간에 대량 발생한 것으로 이를 신속하게 대용량으로 처리할 수 있는 기술은 현재까지 충분히 개발되지 못한 상태이며, 특히 원자력을 주 에너지원으로 사용하고 있는 우리나라의 경우 비정상 비상상태 대처차원에서 이의 처리기술의 확보가 요구되고 있다. 본 연구는 이의 일환으로 CST (crystalline silicotitanate)의 일종인 IE911에 의한 고염 해수폐액에서 고방사성핵종의 흡착특성을 고찰한다.

2. 본 론

2.1 실험

2.1.1 모의 고염/고방사성 폐액

모의 고염/고방사성 폐액은 Table 1과 같이 해수에 상업용 특급시약인 CsCl 및 SrCl₂를 그리고 NaI를 각각 약 100 ppm 정도를 첨가하여 제조하였다. 그리고 Table 2는 본 연구에서 사용한 CST IE911의 물성이다.

Table 1. Composition of high radioactive liquid waste with high-salt contents

Element	Concentration (ppm)	Element	Concentration (ppm)
Ca ⁺⁺	420	Cs ⁺	(100)
K ⁺	424	Sr ⁺⁺	(100)
Mg ⁺⁺	1,200	I ⁻	(100)
Na ⁺	10,675		
Br ⁻	73		
Cl ⁻	19,700		
SO ₄ ⁻²	2,610		

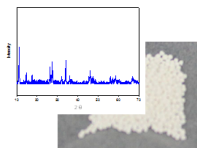
2.1.2 실험방법

모든 실험은 25±1℃, 회분식으로 수행하였다. 각각의 실험조건에 맞추어 CST를 화학저울로 정확히 칭량한 후, 미리 준비한 모의 고염/고방사성 폐액

40mL에 첨가하여 온도, 교반속도 및 시간 등의 조절이 가능한 다중교반기를 이용하여 약 3시간 동안 교반한다. 그런 다음 원심분리기로 고-액 분리하여 여과 상등액 내 존재하는 금속이온의 농도를 분석하여 각 원소의 흡착능을 측정하였다.

Table 2. Physical properties of IE911 crystalline silicotitanate

(Na ₂ O, SiO ₂ , TiO ₂)+secret oxides (ZrO ₂ , NbO ₅ 등)	
Average particle diameter, (μm)	210~297
Specific surface area (m ² /g)	80.02
Average pore diameter, (nm)	4.44
Total pore volume, (cm ³ /g)	0.0889



2.1.3 분석

고염/고방사성 폐액 및 흡착 여과 상등액 내 함유되어 있는 Ca, Mg, Sr은 ICP-AES로, K, Na, Cs는 AAS로, 기타 Cl⁻, SO₄⁻², Br⁻ 등은 IC로 각각 농도를 분석하였다. 그리고 용액의 pH는 pH meter을 이용하여 측정하였다. Zeolite의 입자크기는 체분석법에 의해 각 실험조건에 맞게 선별하였으며, 결정구조는 XRD에 의해, 비표면적 및 세공 크기/부피는 N₂ 가스 흡착에 의한 BET법으로 각각 측정하였다.

2.2 결과 및 토의

Fig. 1은 V/m (mL/g) 비 변화에 따른 Cs과 Sr의 분배계수 (K_d)이다. 입자크기는 48~65 mesh이고, 25℃, 400rpm에서 수행하였다. 이때 용액 내 pH 변화는 V/m <400 이하에서는 pH가 4 이하이지만, V/m >1000 이상에서는 pH가 약 6.4~7.0로 증가하였다. Cs의 경우 V/m이 증가할수록 K_d 값이 감소하고 있다. 이는 V/m이 증가할수록 흡착제의 양이 감소하기 때문이며, 즉, 포화흡착 량에 거의 도달하였기 때문이다. 그리고 V/m= 4000mL/g 에서도 K_d 값이 2,137로 여전히 높은 값을 유지한다.

이는 IE911이 pH 3~6에서 최고의 K_d 값을 보이다가 pH 6 이상에서 급격히 감소한다는 결과와 동일하다. 한편 Sr 경우는 V/m 비 증가에 따라 K_d 가 증가하고 있으며, V/m < 400 mL/g 이하에서는 K_d 가 거의 10 이하인데 반하여 V/m > 2000 mL/g 이상에서는 330 정도의 K_d 값을 지니고 있다. 이는 흡착제의 양이 감소에 따라 용액 내 pH가 증가한데 기인하는 것 같으며, IE911의 경우 중성이나 알칼리 영역에서 Sr의 흡착이 가능하다는 결과와 유사하다. 이로부터 Cs만을 선택적으로 제거하기 위해서는 V/m의 비가 400 mL/g 이하에서, Cs과 Sr을 함께 제거하기 위해서는 V/m의 비가 약 2,000 mL/g 정도에서 수행하면 가능할 것으로 보인다. Fig. 2는 V/m=400 mL/g에서 용액의 pH 변화에 따른 Cs과 Sr의 분배계수이다. Cs의 경우 pH 6까지는 서서히 증가하다가 6 이상에서는 급격히 감소하고 있으나, 본 실험 영역에서는 약 $10^4 \sim 10^5$ 정도의 매우 높은 K_d 값을 보이고 있다. 그러나 Sr의 경우는 pH 6까지는 K_d 값이 거의 10~20 정도로 낮았으나, pH 8 이상에서는 $\sim 10^2$ 이상의 K_d 값을 보여 Cs은 물론 Sr과의 공제거도 가능함을 보이고 있다. Fig. 3는 V/m 비 변화 및 입자크기 변화에 따른 Cs과 Sr의 분배계수로 4시간 동안 수행하였다. 평균 입자크기는 각각 $254\mu\text{m}$ (48~65 mesh) 및 $56\mu\text{m}$ (200~400 mesh)이었으며, V/m 변화에 따른 용액 내 pH 변화는 $254\mu\text{m}$ 의 경우 pH 3.01~4.81 이었고, $56\mu\text{m}$ 경우는 pH 2.96~4.56으로 크기에 무관하게 거의 비슷하였다. 그리고 Cs 및 Sr의 K_d 값 모두 흡착제 크기에 거의 영향을 받지 않으며, Cs은 $10^4 \sim 10^5$, Sr은 10 이하였다. Fig. 4는 용액 내 pH 변화에 따른 해수 및 증류수에서의 Cs 및 Sr의 K_d 값이다. 증류수에서의 Cs의 K_d 값은 (V/m=80) pH에 증가에 따라 다소 증가 (pH 3~6에서 거의 비슷한 값을 유지) 하다가 그 이상에서는 다시 감소하는 형태를 보이나 모두 $\sim 10^4$ 이상이며, Sr 경우는 용액 내 pH 증가에 따라 급격히 증가하여 pH 7.57에서 $\sim 10^4$ 의 값을 가지고 있다. 반면에 해수에서 Cs의 경우 V/m=80 mL/g 및 V/m=400 mL/g 모두 pH 6 까지 K_d 값이 서서히 증가하다가 그 이상에서는 다시 감소하는 형태로 증류수와 유사한 거동을 보여 주고 있으며, pH 8 이상에서도 K_d 값이 모두 $\sim 10^3$ 정도로 증류수보다는 많이 감소하였으나 양호한 값을 보이고 있다. 한편 Sr의 경우 V/m 비가 작을 때는 (V/m=80 mL/g) K_d 값이 $\sim 10^2$ 미만이지만 용액 내 pH가

증가함에 따라 K_d 가 증가하는 증류수와 거동이 유사하고, V/m 비가 높을 경우 (V/m=400 mL/g) K_d 는 $\sim 10^3$ 정도이다. 이는 V/m 비가 적을수록 흡착제의 양이 증가되어 Sr의 흡착이 증가된 것으로 사료된다. 그리고 Cs 및 Sr 모두 증류수에서의 K_d 가 해수에서의 K_d 보다 order가 1 이상이 더 크다. 이는 해수 내 공존하는 염농도가 높아, Cs 및 Sr의 흡착장소에 기타 염 이온들이 흡착된데 기인하는 것 같다.

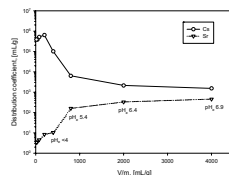


Fig. 1. Effect of V/m ratio.

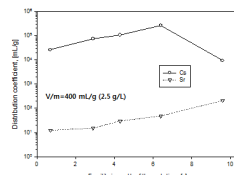


Fig. 2. Effect of pH.

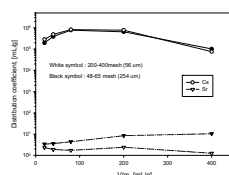


Fig. 3. Effect of particle size.

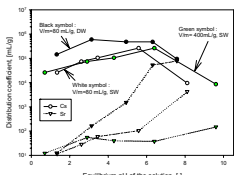


Fig. 4. Compare SW with DW.

3. 결론

IE911에 의한 고염/고방사성 폐액으로부터 Cs를 제거하기 위해서는 V/m 비는 약 800mL/g 이하, 용액의 pH는 약 2~6, 흡착시간은 약 2시간, 교반 속도는 약 400rpm 정도에서 수행하는 것이 효과적이다. 이때 입자크기(40~300 μm)는 흡착속도에는 영향을 끼치나, 흡착량에는 별영향이 없다. 그리고 높은 pH 영역 (pH > 9)에서는 Sr이 공흡착되고 있다.

4. 감사의 글

연구는 미래창조 과학부의 원자력연구개발 중장기 계획사업 일환으로 수행된 연구결과입니다.

5. 참고문헌

- [1] K. Volchek, M. Yusufmiah, W. Kuang, Z. Demaleki, and F. H. Tezel, J. Hazardous Mat., 194, 331-337 (2011).
- [2] M. Y. Miah, K. Volchek, W. Kuang etc., J. Hazard. Mater., 183, 712-717 (2010).
- [3] D. M. Ruthven, "Principles of adsorption and adsorption", Wiley-Intersci. res., NY,(1984).

압축성 방사성 폐기물의 감용처리

강일식*, 홍대석, 손종식, 김태국, 광경길, 김기홍, 이범철
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*niskang@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원의 방사성폐기물 저장시설에는 하나로, 핵주기시설, 동위원소 생산시설 및 연구실에서 발생된 작업복, 제염지 및 비닐 등의 가연성폐기물, 실험장비의 노후화로 해체 폐기된 철재류 및 초자류 등의 비가연성폐기물, 그리고 방사선 관리구역의 공기정화용으로 사용된 폐필터 등의 다양한 방사성 잡고체 폐기물들을 임시저장하고 있다. 이들 폐기물은 금년도 상반기에 완공예정인 경주 처분장의 운영계획에 따라 향후 처분을 위하여 중·저준위 방사성폐기물 인도규정 및 제반 관련기준에 따라 폐기물의 내용물을 형태별로 분류하면서 유해물질의 함유 여부를 확인하는 등의 적절한 방법으로 감용 처리하였다. 방사성폐기물의 특성평가 수행 및 핵종별 방사능 분석을 위한 척도인자 도출을 위하여 대표시료를 채취하였다. 재포장과정에서 새로 생성된 드럼은 통합안전경영시스템(ANSIM)에 자료를 입력하여 원활하고 투명한 이력관리가 되도록 하였으며, 특히 재포장작업과정에서 발생된 빈 드럼은 제염후 오염도 확인결과에 따라서 재활용 또는 압축감용처리하여 방사성 폐기물 저장시설(이하 저장고)의 저장공간을 확보하였다.

2. 처리 절차

2.1 저장폐기물드럼의 하역, 운반 및 분류

원내의 방사성폐기물 발생부서에서 관리의뢰하여 저장고에 임시보관 되어 있는 방사성고체폐기물은 2014년 2월말 현재 200ℓ 기준으로 10,967드럼에 이른다. 이중 가연성폐기물은 3,821드럼으로 전체의 약 35%에 해당한다. 연구원의 방사성폐기물 종합처리계획에 따라 우선적으로 압축성폐기물을 방사성폐기물처리시설(이하 처리시설)로 운반하여 처리하였다. 작업대상 폐기물 드럼을 저장고의 적재구역에서 하역 후 발생시설별, 연도별 및 핵종별로 구분하여 전용 트럭을 이용하여 처리시설로 운반하였다. 재포장대상 드럼의 표면에

부착되어 있는 방사성표지의 기록사항을 확인한 후 개봉하여 처리시설의 절단실에 설치된 작업 부스의 트레이에 펼쳐 놓고, 트레이에 놓여진 폐기물중에서 수분을 함유한 폐기물은 분리하여 별도의 트레이에서 건조하고, 또한 철재, 유리류 및 토양 등의 비가연성을 제거하면서 연구원의 방사성폐기물관리규정의 가연성폐기물 분류기준에 따라 먼류, 종이류, 비닐류, 고무류 및 플라스틱류로 분류하여 수거비닐에 넣어 재포장하였다.

2.2 시료채취

압축성폐기물을 형태별로 분류하여 재포장이 완료된 각각의 드럼에서 대표시료를 채취하였으며 처분장 인수기준의 방사선적 및 물리화학적 특성평가를 수행할 목적으로 채취과정은 다음과 같다. 대표시료를 채취하고자하는 폐기물의 발생시설, 발생일, 선량률, 무게 및 관리번호 등을 확인하여 기록하고, 가연성 폐기물드럼을 개봉하여 비닐 소포장내에 있는 가연성 폐기물을 모두 트레이위에 올려놓고 일정하게 분포시킨다. 육안검사를 통하여 이물질, 유리수를 함유한 폐기물, 그리고 킬레이트제, 발화성, 유해성, 폭발성, 부식성 및 인화성 물질을 함유했거나 함유하고 있는 시약통 등의 존재여부를 확인한다. 서베이메터에 의한 오염 측정결과 오염정도가 높은 부위를 중심으로 대표시료를 채취한다. 채취한 대표시료를 시료 보관용 폴리에틸렌에 담아 무게를 측정한다. 대표시료를 담은 폴리에틸렌에는 해당 가연성 폐기물의 발생시설 및 관리번호를 표기하고 겉면에 이물질이 없도록 하여 처리시설내 별도의 장소로 이송하여 보관한다. 채취된 일부 대표시료는 척도인자를 구하기 위하여 연구원의 타부서에 분석 의뢰하였다.

2.3 재포장 및 압축

발생시설별로 먼류, 비닐류 및 플라스틱류 등의 폐기물 조성에 따라 분류하여 수거용 비닐봉지에 담아 재포장된 200ℓ 드럼에 넣고 처리시설내 소형압축기에서 1차적으로 압축한 후 다시 60톤 용량의 압축기로 내용물을 압축하였다. 방사성폐기

물의 분류, 재포장, 시료채취 및 압축작업은 방사능 오염 분진이 주변으로 확산되지 않도록 공기정화설비가 구비된 별도의 구역에서 작업을 실시하였다. 이때 과압에 의한 드럼 외형의 변형이 발생할 수 있으므로 적절한 압축력으로 압축한다. 내용물을 분류하는 과정에서 수분을 함유한 제염지 등은 별도로 수집하여 건조용 스테인레스 스틸의 트레이에 널거나 제염실에 설치되어 있는 전기건조기에서 충분히 건조한 후 수거봉지에 넣어 재포장한다. 이와 같이 총 2,843드럼을 재포장하여 1,973드럼을 감용, 870드럼을 처분용 드럼으로 생성하였으며(Fig. 1) 감용비는 3.3이었다.

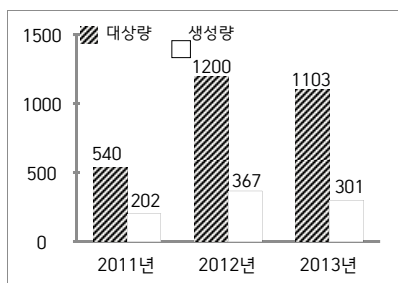


Fig. 1. Comparison of No. of drums before and after repackaging and compaction.

2.4 폐플라스틱 파쇄

원내의 실험실에서 발생된 방사성 액체폐기물은 20ℓ 플라스틱통에 수집하여 처리시설로 운반한다. 이들 액체폐기물은 처리시설의 액체저장탱크에 넣어 증발농축 처리한다. 이 때 발생된 빈 플라스틱 통은 과거에 200ℓ 드럼내에 4개씩 직접 포장하여 임시 저장하였으나 부피감용을 위하여 처리시설에 설치되어 있는 대형파쇄기를 활용하여 8개 단위로 절단처리하여 200ℓ 드럼에 수집하였다. 이때 소형 파쇄기로 1차 절단된 플라스틱을 약 2mm 정도로 잘게 썰어 감용 효과를 크게 향상 시켰다.

2.5 처분전 임시저장

재포장 드럼은 선량률과 오염도를 측정한 후 발생시설, 내용물, 핵종과 폐기일자 등이 기록된 방사성표지를 드럼표면에 부착하고, 처분재포장대장과 저장관리대장에 발생이력을 입력한 후 별도의 저장공간에 임시 적재하였다. 이들 폐기물은 향후 저장드럼 평가시설로 운반하여 핵종분석 및 방사능량 평가를 통하여 처분할 예정이다. 이와 같이 폐기물의 재포장을 수행하여 저장공간을 확보하

고 장기보관에 따른 부식 방지 및 방사능 유출 예방으로 저장 건전성을 유지하며 향후 처분비용을 절감하였다.

2.6 처분드럼 표시사항

중·저준위 방사성폐기물 인도규정의 포장물 표지 및 중저준위 방사성폐기물처분시설 안전성분석보고서(SAR) 폐기물 인수 기준의 폐기물 포장물의 일반요건에서 폐기물 포장물은 쉽게 식별될 수 있도록 외부에 총 방사능량, 고유번호, 폐기물 발생일자 및 발생장소, 표면선량률 등의 정보를 읽기 쉽고 내구성 있도록 표시되도록 요구하고 있으며, 방사성폐기물 운반물 번호는 중저준위 방사성폐기물 인도규정의 방사성폐기물 인수의뢰 신청서에 제시된 포장물의 일련번호와 대조가 가능하도록 요구하고 있다.

원자력연구원에서 발생된 방사성폐기물 운반물 번호는 AR - 0000-B00-0000과 같이 표기하며 이것은 발생기관-발생년도-폐기물종류-일련번호를 표시한다.

2.7 공드럼 처리

압축성폐기물의 재포장과정에서 빈 드럼형태로 남은 공드럼을 재활용하거나 향후 금속물의 자체 처분을 위하여 모래분사연마기에서 고압의 물을 분사하여 제염을 수행하였다. 제염전후 드럼 내외부의 오염도를 측정하여 재활용 여부를 판정하였으며, 오염되지 않으면서 드럼의 상태가 양호한 드럼은 원내의 방사성폐기물을 수집하는 드럼으로 재사용하였다. 한편 처분제한치 미만의 방사성폐기물에 대해서는 자체처분을 위하여 드럼 외부의 표지를 제거하고 지름 50mm의 시료채취와 방사능농도 및 핵종을 분석하였으며 압축감용한다.

3. 결론

연구원에 임시저장중인 압축성폐기물은 영구처분을 위하여 중저준위방사성폐기물 인도규정 및 제반 기준에 따라 내용물을 분류하고 재포장하여 안정적으로 처리하고 있다. 본 처리를 통하여 기존 저장고의 저장공간을 확보하였으며 또한 장기보관에 따른 부식방지와 저장 건전성을 유지하였고 향후 폐기물의 처분비용을 절감할 수 있었다. 이의 경험을 바탕으로 비압축성폐기물에 대하여도 처리할 계획이다.

고방사화 원자로압력용기 하부내부구조물 해체 시나리오 평가

서재석*, 최병선, 정관성, 현동준, 이종환, 김익준, 김근호, 문제권
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*sjs0330@kaeri.re.kr

1. 서론

수명을 다한 원자력발전소의 해체 시 원자로냉각재 계통에 설치된 증기발생기, 원자로압력용기, 가압기 및 원자로냉각재펌프 등과 같은 원전 핵심설비는 고방사화로 인해 작업자 접근이 불가능하여 원격 해체가 필수적이다. 다양한 형상과 재질로 구성된 설비와 구조물로 구성된 핵심설비들의 해체 작업은 비반복적이고 비정형화된 작업이 많은 특징을 지니고 있다. 원자로압력용기의 하부내부구조물은 반복 작업으로 절단 시간 및 절단 비용이 상당히 많이 소요된다[1].

본 연구에서는 하부내부구조물 해체 시 반복적인 작업으로 인한 작업시간 및 비용을 바탕으로 최적의 해체 절단 시나리오를 평가하였다.

2. 본론

2.1 원자로 하부내부구조물 절단

원자로 하부내부구조물은 핵연료를 지지하고 원자로냉각재가 핵연료와 열 교환을 하는 원자로의 가장 중심부이다. 하부내부구조물은 Fig. 1와 같이 노심을 지지하는 core barrel과 핵연료에서 발생하는 열을 차폐하는 thermal shield와 핵연료를 지지하는 baffle과 baffle의 진형을 유지시키는 former, 핵연료의 바닥을 지지하는 lower core plate와 원자로용기에서 core barrel을 받치는 노심지지 구조물 집합체로 구성된다. 하부내부구조물은 핵연료와 맞닿아 있는 구조물이므로 가장 방사화가 많이 되어 있고 구조가 복잡한 구조물이다.

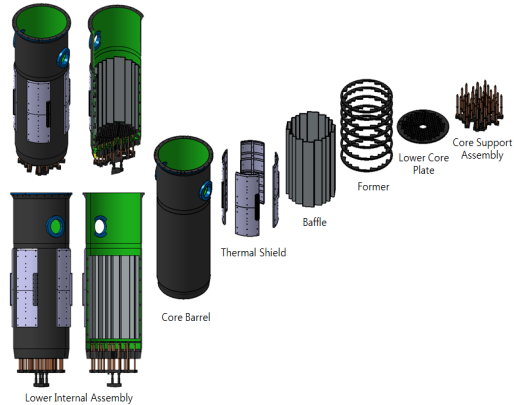


Fig. 1. Lower internal Assembly.

2.2 하부내부구조물 절단 시나리오

하부내부구조물 절단 시나리오 Fig. 2와 같다. 시나리오 1은 baffle 과 core barrel을 각각 절단하는 것이고, 시나리오 2는 baffle과 core barrel을 동시에 절단 하는 시나리오를 비교 검토 하였다.

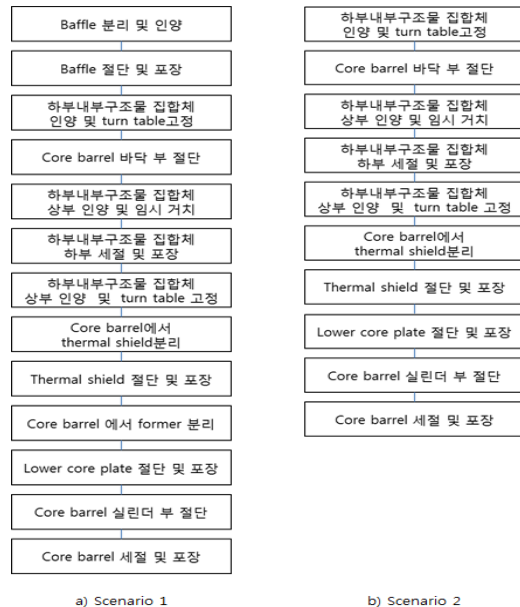


Fig. 2. cutting scenario process of Lower internal Assembly.

Table 1과 Fig. 3은 시나리오 별 절단 대상물들의 구성 요소 및 세절 형상을 나타내고 있다.

Table 1. Component of Scenario

	절단대상	두께	절단높이
		(mm)	(mm)
scenario 1	baffle	30	1800
			358(하부)
	core barrel	60	1880
scenario 2	baffle +	80	560 ~ 1880
			354(하부)
	core barrel		

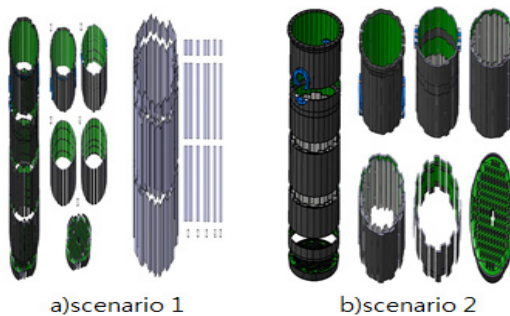


Fig. 3. Segment of scenario.

2.3 하부내부구조물 절단 시나리오 평가

하부내부구조물 절단 장비는 circular saw, band saw, turn table을 이용하여 절단하고, circular saw와 band saw의 절단 속도 30mm/min으로 동일하다. 방사성 수송물 표면선량 허용기준 2mSv/hr를 만족하고, 구비되어 있는 이송 crane의 성능을 고려하여 20 ton 용기로 크기는 100×100×250 cm이다. 용기의 두께는 35cm, 내부 용적 162,000cm³이다. 20 ton 저장 용기의 세절 결과를 고려하여 원통형상의 세절각도는 12~15도이고 높이는 354~1880mm로 세절한다[2].

Table 2는 시나리오별 표면선량과 절단 시간 및 저장용기 개수를 비교 검토한 것이다. 저장 용기 표면선량은 MCNP를 이용하여 각각의 절단 대상 폐기물의 수량에 따라 계산 되었다. 작업시간은 8hr/일을 기준으로 순수한 절단시간만을 산정한 것으로 장비 설치 및 준비/마무리 시간, 이송 시간 및 고정은 포함하지 않았다. 저장용기에 수납할 수 있는 최대 개수는 최대 수용 가능 폐기물의 부피와 각 대상별 두께를 기초로 하여 계산하였다.

Table 2. Comparison of scenario

Scenario		표면선량 (mSv/hr)	절단길이 (mm)		절단시간 (일)	수납폐기물 최대 개수 (개)	세절 개수(개)	저장용기 개수 (개)
Scenario 1	Baffle	1.926	164,034	423, 839	29.4	10	144	15
	Core barrel	1.934	259,805			8	124	16
Scenario 2	Baffle + Core barrel	1.934	268,966		18.7	8	158	20

3. 결론

본 연구에서는 고방사화 원자로압력용기 하부 내부구조물을 절단 시 해체시나리오를 표면선량, 저장용기 및 절단 시간 측면에서 비교 검토하였다. 방사성 운송물 표면선량 허용기준에 따라 비교 하였을 때, 시나리오별 표면 선량이 크게 변화가 없음을 알 수 있었다. 또한, 각각의 구조물에 대해서 절단하는 방법보다 한꺼번에 절단 하는 방법이 저장용기 및 시간적인 측면에서 유용한 것으로 검토되었다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 재원으로 시행하는 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] Fr.-W Bach, H. Haferkamp, J. Lindemaier, M. Rachkov, "Underwater climbing robot for contact arc metal drilling and cutting", Industrial Electronics, Control and instrumentation, Proceedings of the IEEE IECON 22nd International Conference on Vol. 3, 1996.
- [2] 원전 핵심설비 해체공법 평가기술 개발, 산업통산자원부, 2013.

밀봉선원폐기물 폐기용기 표준화 방안

김윤복*, 한은덕, 이정민

한국원자력환경공단, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*yunbok@korad.or.kr

1. 서론

RI, 즉 방사성동위원소(Radioisotope)의 사용영역은 병원을 비롯한 연구기관, 그리고 교육기관과 일반 산업체까지 그 범위가 넓고 다양하며 이들 기관에서 발생하는 방사성동위원소 폐기물(RI 폐기물 : Radioisotope waste) 또한 다양한 형태로 발생한다. 현재 국내 6,193개 기관에서 RI 등을 이용하고 있으며[1], 지금까지 3,091개 기관에서 발생된 3,200여 드럼(200리터 기준)의 RI폐기물이 대전에 있는 RI 폐기시설에 임시 보관되어 있고, 이 중 약 286드럼 분량이 밀봉선원폐기물이다.

한국원자력환경공단에서는 중·저준위 방사성폐기물 처분시설이 준공(2014년 6월 예정)되면 대전 임시 저장시설에 보관되어 있는 RI폐기물을 이전하여 처리·처분할 계획이다. 잠고체류의 개봉선원폐기물은 처분시설 인도기준에 적합하도록 재포장하여 처분이 가능하나 고방사능의 장반감기 핵종을 포함한 밀봉선원폐기물은 처분제한치 초과 등의 제약으로 직접 처분이 곤란하여 시설 내 장기저장이 불가피한 실정이다. 이에 본 논문에서는 현안사항으로 대두된 밀봉선원폐기물의 장기 저장공간 확보를 위해 1990년부터 2013년까지 24년간 인수한 밀봉선원 폐기물 인수 데이터를 바탕으로 폐기용기 표준화 방안에 대해 고찰해 보고자 한다.

2. 본론

2.1 밀봉선원폐기물 관리현황

개봉선원폐기물은 산업통상자원부 고시 규정에 따라 20ℓ, 50ℓ, 100ℓ의 표준용기로 인수하는 반면 밀봉선원폐기물은 밀봉선원의 다양한 형태를 고려하여 비표준용기로 인수하고 있으며, RI폐기시설의 밀봉선원폐기물 저장량은 허가용량(200ℓ 기준 360드럼) 대비 약 79%(285.7드럼)의 저장량을 나타내고 있다(Fig. 1).

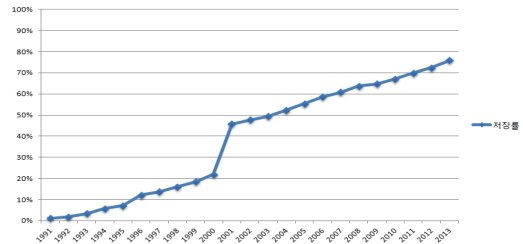


Fig. 1. Storage percentage of sealed source wastes since 1991.

현재까지 밀봉선원폐기물의 총 인수량은 49,837개/3,542상자 55,700ℓ이고 연평균 인수량은 2,076개/148상자 2,320ℓ이며, 총 인도 기관수는 2,171개 기관으로 해마다 증가추세를 보이고 있다(Fig. 2).

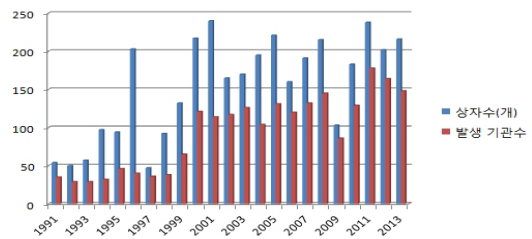


Fig. 2. Acceptance state of sealed source wastes by year.

2.2 밀봉선원폐기물 비표준용기의 문제점

밀봉선원 폐기용기의 규격은 상자당 최저 1ℓ ~ 최고 520ℓ로 다양하며 용기 재질은 철판, 목재 등으로 구성되어 있다. 폐기용기 형태는 크게 직사각형 타입과 원기둥 타입으로 나뉜다(Fig. 3).



Fig. 3. Repository picture of sealed source waste.

Fig. 3에서 보는 바와 같이 밀봉선원폐기물 폐기용기는 규격이 일정하지 않아 저장랙의 효율적인 활용이 어려우며 작업 또한 용이치 않다. 특히 운반을 위한 인양장치 위치가 제각각이어서 저장랙에 많은 빈공간이 발생한다. 반면 개방선원폐기물 폐기용기는 20ℓ, 50ℓ, 100ℓ의 표준용기로 조밀 적재가 가능하여 저장공간의 효율적인 활용이 가능하다(Fig. 4).



Fig. 4. Repository picture of open source wastes.

2.3 밀봉선원폐기물 폐기용기 규격 및 형태 분석
RI폐기시설에 임시저장 중인 밀봉선원을 부피별로 분석한 결과는 다음과 같다.

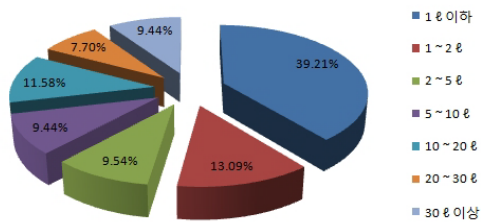


Fig. 5. Storage percentage of sealed source wastes by volume.

밀봉선원폐기물 폐기용기 부피가 1ℓ이하인 것은 전체의 39.21%를 차지하며, 1~2ℓ 13.09%, 2~5ℓ 9.54%, 5~10ℓ 9.44%, 10~20ℓ 11.58%, 20~30ℓ 7.70% 순으로 총 90.56%를 차지한다. 용기 형태는 직사각형 타입이 약 80%이며 원기둥 타입 등이 약 20%이다.

2.4 밀봉선원폐기물 폐기용기 표준화 방안

폐기용기 표준화를 위한 첫 번째 개선사항은 규격과 형태의 통일이다. 현재 다양한 규격 및 형태로 제작되어 인수되는 30ℓ이하의 밀봉선원폐기물 폐기용기를 직사각형 타입을 기본으로 6가지 규격(1ℓ, 2ℓ, 5ℓ, 10ℓ, 20ℓ, 30ℓ)로 표준화할 경우 2.3에서 분석한 바와 같이 약 72% 정도의 밀봉선원폐기물 폐기용기에 적용할 수 있으며, 저장공간의 효율성을 극대화하고 이동 및 적재 등 작업안전성을 높일 것으로 예상된다(Fig. 6).



Before

After

Fig. 6. Key map of loading on sealed source wastes.

두 번째는 외부로 심하게 돌출된 장식과 시건장치 및 인양장치의 개선이다. 장식과 시건장치의 돌출 범위를 10mm로 제한하고 집시형 고정볼트를 사용하여 뚜껑과 본체를 고정한다. 인양장치는 탈부착이 가능한 I형 볼트(10, 20, 30mm)로 제작하여 운반·적재시 부착하여 활용하고 적재 후에는 탈착하여 데드 스페이스를 줄여 적재공간 확보 및 적재 안전성을 높일 수 있다(Fig. 7).

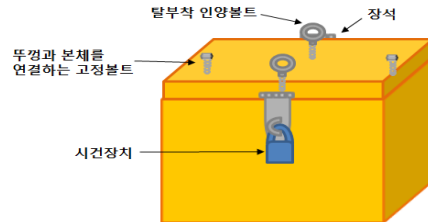


Fig. 7. Container drawing for disuse on sealed source waste.

3. 결론

중·저준위방사성폐기물 처분시설 준공에 따라 금년 하반기부터 RI이용기관에서 발생한 RI폐기물은 경주 처분시설에서 인수할 예정이다. 밀봉선원폐기물은 국내외적으로 처분방식이 결정되지 않아 우선 장기 저장방식으로 관리되어야 하므로 안전성을 기본으로 한 효율적 저장이 매우 중요하다.

따라서 앞에서 제시한 밀봉선원폐기물 폐기용기 표준화 방안은 처분시설의 효율적 운영과 안전성 제고는 물론 RI폐기물 발생자가 부담하던 밀봉선원폐기용기 설계 및 제작비용을 절감하고, 핵종별 방사능 세기를 고려한 차폐체(납, 파라핀 등) 적용으로 작업자 피폭방사선량의 저감에도 기여할 것으로 기대된다.

4. 참고문헌

- [1] 한국원자력안전기술원 방사선안전관리 통합정보망 인허가통계정보(<http://rasis.kins.re.kr>)
- [2] 한국원자력안전기술원 유관기관안전관리시스템 밀봉선원 저장관리(<http://gate1.kins.re.kr>)

국내신규원전 폴리머 고화 설비 국산화 개발 적용

김동균*, 이세엽, 문기원

한국원자력엔지니어링, 경기도 성남시 분당구 야탑남로 280 C-504

*kdk5109@hanmail.net

1. 서론

원자력 발전소 운영 중 필수적으로 발생하는 방사성 고체폐기물 중 농축폐액 과 폐수지 이온이 발생 처리되고 있다. 이를 효과적으로 처리하기 위해 국내 신규 원자력 발전소에서는 농축폐액 과 폐수지 이온을 폴리머 고화로 처리하는 방식을 국내 최초로 국산화에 성공 현재 신고리 1,2,3,4 발전소 및 신월성1발전소에 설치 운영 하고 있다. 이는 원자력 발전소에서 나오는 폐 이온 교환 수지 및 농축폐액 처리 비용 및 발생량을 획기적으로 절약 및 줄일수 있는 장비로 국내 신 기술로 볼 수 있을 것이다.

영구 처분될 방사성폐기물은 그 형태가 보존되고 분해되지 않아야 되며, 국내 방폐장 인수 기준에 의한 각종 시험과 미국 NRC규정에 만족하는 폐기물 처리 조건을 만족하기 위한 일련의 검증 시험을 실시하였다. 시험은 Lab Scale Test 와Full Scale Test로 시험했으며 공장성능 시험 등 모든 부문에서 순차적으로 실시 만족한 결과를 얻었다.

2. 본론

2.1 폴리머 고화 설비

가압경수로의 농축폐액 및 사용 후 이온교환수지는 중 저준위 수준의 방사성 폐기물로 분류되고, 농축폐액은 파라핀을 사용하여 농축 및 과립(불산 정광)의 형태로 건조, 고화되고, 사용 후 이온교환수지는 저장탱크에 저장된다.

이온교환수지 및 농축폐액을 탈수하여 폴리머 고화설비로 보내져 안전한 고화체를 만들고, 폴리머 혼합체는 에폭시 수지와 아민 화합물 및 삼산화안티몬으로 이루어져 이온교환수지 와 농축폐액을 고화하는데 사용한다. 고분자 폐기물의 안전성을 평가하기 위해, 표준화 된 성능 테스트를 시행하였고, 또한 한국의 규제 기관의 요구에 의해, 고화폐기물의 연소저항을 평가하기 위해 추가시험을 수행하였다.

2.2 폴리머 고화 설비 시스템 설명

농축폐액 폴리머 고화설비 시스템(PWPSS)에는 Polymer/Hardener Skid, Fill Head Skid, Vacuum Skid, Capping Skid로 구성이 되어 있으며, 이온교환수지폴리머 고화설비 시스템(SRPSS)에는 Polymer/Hardener Skid, Fill Head Skid, Dewatering/Vacuum Skid, Capping Skid로 구성이 되어 있다.

폐기물 드럼 취급/이송 시스템(WDS)은 컨베이어 롤러 및 모터로 작동을 하고 있고, 고정식 장비(PWPSS) 및 이동식 장비(SRPSS)는 현장 운영의 원활함을 위해 자동 시스템과 반자동 시스템을 적용 할 수 있게 운전의 편리성을 한층 더했다.

2.2.1 농축폐액 폴리머 고화설비 (RWPSS)

농축폐액건조설비(CTS) 에서 생산된 건조비드 고화처리 하는 설비로 농축폐액을 효과적으로 종합처리 할 수 있음은 물론이고, 그 특징기능으로는 건조된 농축폐액(과립 및 구슬타입)을 하루 근무(8시간)기준 4개 드럼(55갤런) 드럼 생성을 할 수 있고, 농축폐액 폴리머 고화체의 압축강도는 3000PSI 이상의 강도를 가지며, 장비가 소형이고, 자동형, 고정식으로 이루어져있다.

2.2.1.1 시스템 운영

농축폐액(bead)을 폐기물 드럼(55갤런)에 채움→주제/경화제를 일정비율로 Fill Head 교반기로 보냄 → 교반된 폴리머를 폐기물 드럼에 주입 → 진공펌프를 이용하여 폴리머를 일정하게 주입 → 주입 완료 드럼 양생 → 일정시간 경화후 드럼의 덮개를 체결 → 저장 공간으로 이동

2.2.2 이온교환수지 폴리머 고화설비(SRPSS)

발전소 폐수지(양이온, 음이온, 혼상이온) 고화처리 하는 설비로 사용 후 이온교환수지를 효과적으로 종합처리 할 수 있음은 물론이고, 그 특징기능으로는 하루(8시간근무) 기준 50cf 드럼을 1드럼을 처리 할 수 있으며, 고화체의 압축강도는 2000PSI 이상의 강도를 가지고 있다. 그리고, 소

형 자동화된 장비이며, 이동이 가능한 장비로 설계가 되어서 이동시에는 이동형 전용 트레일러에 실어서 운반이 아주 용이하다.

2.2.2.1 시스템 운영

폐기물 드럼(50cf)에 이온교환수지를 채움 → 탈수펌프를 이용하여 폐기물 드럼 내 수지의 물을 배출 → 주제/경화제를 일정비율로 Fill Head 교환기로 보냄 → 일정비율로 교환된 폴리머를 폐기물드럼(50cf)에 주입 → 진공펌프를 이용하여 폴리머 주입 시 수지에 남아있는 물을 배출시키면서 빠르고 일정하게 주입 → 주입 완료 드럼을 일정시간 양생 → 경화 완료 후 드럼의 덮개를 체결 → 저장 공간으로 이동

2.3 고화설비 및 폴리머 성능시험

성능 시험은 공인기관 및 대학에 의뢰 독립적으로 3차에 걸쳐 반복 수행 하였으며 사용 시편은 모사 시편과 실제 장비운전 후 발생된 과립물 및 수지를 이용 시험을 하였다.

2.3.1 성능입증

Table 1. Tte criteria of performance demonstration : US NRC "Technical Position on Waste Form, Rev.1"(1991), performance demonstration (Seoul nationl University)

항 목	US NRC 허용기준	시험방법	결과	
			농축배액	수지
Lab Scale Test	압축강도 >500psi	압축기를 이용한 압축강도시험	만족	만족
	열순환 >500psi	-40°C~60°C 열순환 후 압축강도 측정	만족	만족
	생분해 >500psi	공명 및 열 벡테리아 증식여부 및 압축강도 측정	만족	만족
	난연성 -	불꽃 점화(180초이상)후 난연성 확인	난연성	난연성
	침수 >500psi	90일 침수 후 압축강도 시험	만족	만족
	침출 침출지수 > 6	90일 침수 후 침출지수 측정	만족	만족
	방사선조사 >500psi	방사선조사 후 압축강도 시험 (매역 : 10°rad, 수지 : 10°rad)	만족	만족
	가스발생 -	시편삽입한 유리관에 방사선조사 후 가스측정	가스분석 완료	
Full Scale Test	압축강도 >500psi	압축기를 이용한 압축강도시험	만족	만족
	유리수 부피<0.5% pH>9	Full Scale 배덕 구멍을 통해 측정	만족	만족
	침수 >500psi	90일 침수 후 압축강도 시험	만족	만족

Table 2. Performance test and methods on polymer waste forms

Test	Method	Results
Compressive strength	- ASTM C39 [1], ASTM D5731 [2]	Satisfied
Thermal stability	- ASTM B533 [3]	
Irradiation stability	- Exposure to total accumulated dose of 10 ⁶ rad	
Biodegradation stability	- ASTM G21 [4] and ASTM G22 [5]	
Water immersion	- 90 days immersion in water - ASTM C39	
Leaching	- ANS 16.1 [6]	
Free water	- ANSI 55.1 [7]	
Burning resistance	- KS M 3015(A) [8]	

Table 3. Compressive strengths of polymer waste forms

Waste form	Surrogate	After curing MPa (psi)	After thermal stability test MPa (psi)	After irradiation stability test MPa (psi)	After water immersion test MPa (psi)
Lab. scale waste forms	boric acid concentrates	53.14±3.86 ^(a) (7,707±560)	48.4±0.4 ^(a) (7,015±55)	23.44±0.94 ^(d) (3,400±136)	43.37±0.42 ^(e) (6,290±61)
	Spent resins	30.73±3.91 ^(a) (4,457±567)	30.0±1.8 ^(a) (4,346±256)	20.11±0.81 ^(d) (2,917±117)	28.75±0.117 ^(e) (4,170±170)
Full scale waste forms	boric acid concentrates	39.70±3.16 ^(a) (5,738±459)	-	-	31.59±1.18 ^(e) (4,582±171)
	Spent resins	26.97±15.95 ^(b) (3,912±2,313)	-	-	21.08±5.66 ^(e) (3,057±821)

2.3.2 설비 구성도

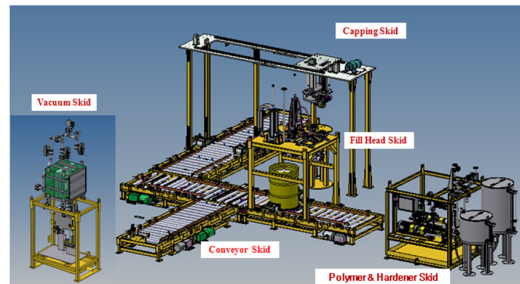


Fig. 1. Composition of RWPSS.

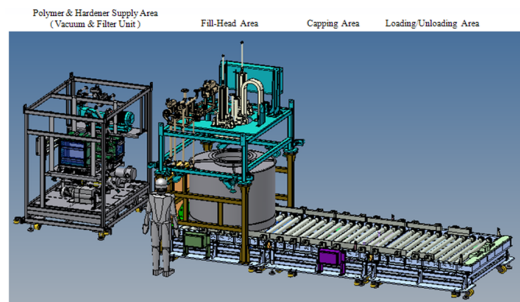


Fig. 2. Composition of SRPSS.

3. 결론

원자력 발전소 운영상 방사선 관리구역에서 발생하는 폐기물의 농축건조 폐기물과 폐수지를 폴리머를 이용한 고화처리를 국산화 초도품으로 발전소에 적용하는 성과를 거두었다. 그간 많은 시행착오와 시간을 투자하여 만족할만한 성과를 얻음은 국내 폐기물처리의 기술 향상에 크게 기여하였다 할 수 있을 것이다. 국내 폐기물 포장의 고형화 조건에서 규정한 여러 조건과 함께 시험기준에서 말하는 구조적 안전성, 침출성, 유리수 측정 등 9가지의 시험 항목에서 동일 시편으로 만족한 결과를 얻어야 하며, 그 시험기간 만 1년 이상이 소요되는 장시간의 검증 기간이었다. 적용된 폴리머 고화설비가 현장에서의 운영의 원활함과 함께 효율적으로 사용되기 위해서는 설비에 대한 교육과 함께 최적의 운전변수 적용으로 운영되어야 할 것이다.

고분자 전해질 고정화제에 대한 제조 특성 분석

최용석*, 이근우, 서범경, 문제권

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*yschoi@kaeri.re.kr

1. 서론

후쿠시마 원자력 시설의 대형사고로 유출된 방사성 오염 물질은 주변 수십 킬로미터의 임야, 농경지, 도로, 주거지역을 오염시켰고, 방사성 오염 물질이 흡착된 토양, 나뭇잎 등 작은 입자가 강한 바람이나 강우에 의해 이동, 확산되며 2차적 오염도 발생시키고 있다. 사고 3년이 지난 현재도 오염지역의 오염원 제거와 오염 부지를 복원하기 위한 노력이 계속되고 있다. 이에 사고 초기에 방사성 오염원의 제거와 오염된 입자의 이동 확산을 막기 위한 다양하고 적절한 제염과 부지복원 기술에 대해 연구가 요구된다.

오염부지 복원기술 중 하나인 방사성 오염토양 고정화는 토양표면에 존재하는 방사성 오염물들을 물리화학적 방법을 이용하여 토양과 점착 또는 점착시켜, 오염 토양 표층의 제거와 더불어 비, 바람 등 기타 물리적인 충격에 의한 오염 토양 입자들이 다시 공기 중으로 부유하는 것을 막아서 이미 제염된 지역이나 청정 지역으로 오염이 확산되는 것을 방지할 수 있다.

고분자 전해질 기반의 토양 고정화제는 물에 대한 용해도가 뛰어난 친수성으로, 많은 양이온 또는 음이온 전하를 가지고 있어 토양을 서로 결합시키고 고분자 전해질 복합체(polyelectrolyte complex, PEC)을 형성하여 토양과 상호 결합하여 토양 표면에 있는 방사성 핵종을 고정화시켜 비산을 억제할 수 있고, 토양 표면의 고정화제는 물에 씻기지 않으면서 물과 공기를 잘 투과시켜 오염 확산 억제 방법 중 하나로 사용된다[1,2].

본 연구에서는 다양한 토양 종류와 토양의 물리화학적 특성에 따라 적용 가능한 고분자 전해질 기반의 고정화제 연구를 위해서 고정화제의 제조 과정에 영향을 주는 인자 중에서 pH와 염농도 변화에 따른 고정화제 제조에 미치는 영향을 분석하였다.

2. 본론

2.1 실험 방법

PEC 제조시 양이온으로 Polydiallyldimethyl ammonium chloride(PDADMAC, 약 10%)를 사용하였고, 음이온으로는 Polyacrylic acid(PAA, 10%, 분자량=24만)을 사용하였다. 또한 염 농도 조절을 위해 KCl, NaOH를 사용하였다. 물 100mL에 0.6M KCl 농도조건에, NaOH 0.24g을 첨가하여 용해시켰다. 여기에 PDADMAC 4.2g을 넣어 약 1시간동안 교반시켜 주었다. 그리고 PAA를 교반시키면서 천천히 첨가하였다. 완전히 용해되는 것을 확인한 뒤 PEC 용액을 얻었다. PEC 용액의 pH변화에 따른 제타전위와 염 농도 변화에 따른 복합체의 입자 크기를 Zeta Nano 장비를 이용하여 측정하였다.

2.2 실험 결과

고분자 전해질의 카르복실기는 수용액상에서 해리도가 pH값에 따라서 달라지는 특성을 가지고 있다. 제타전위는 입자의 표면이 음전하 가지게 되면 -값을 양전하를 가지게 되면 + 값을 갖는다. 낮은 pH에서는 전혀 해리 되지 않고 -COOH 형태 그대로 존재하여 주변의 고분자 전해질이나 고분자 내에서 수소결합을 형성한다. 이는 고분자 전해질 복합체 형성에도 영향을 준다. 그러나 pH가 중성에 가까워지면서 -COO⁻ 형태로 완전해리되면서 정전기적 인력에 의한 고분자 전해질 복합체를 형성한다.

Fig. 1은 실제 PAA를 이용하여 pH 변화에 따른 제타전위를 측정한 결과이다. 초기 pH 2 근처에서는 카르복실기가 해리되지 않아서 Zeta 값이 0mV 근처의 값을 보여 주고 있지만, 점점 pH값이 증가하면서 카르복실기의 수소가 해리되어 -COOH 형태에서 -COO⁻ 형태로 이온화되면서 제타전위가 꾸준히 증가하면서 pH 6이상에서는 -50에서 -60 mV의 범위에서 안정적인 값을 나타내고 있다.

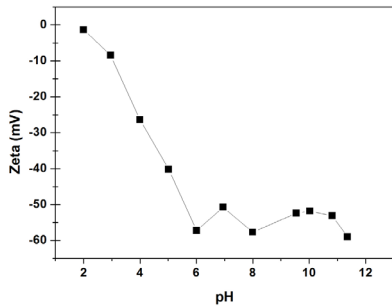


Fig. 1. The changes of Zeta potential with pH of Polyacrylic acid.

토양 고정화에 사용된 음이온 고분자인 PAA과 양이온 고분자인 PDADMAC를 사용하여 물 추가에 의한 염 농도 변화에 따른 입자 크기를 DLS 장비를 이용하여 측정하였다. Fig. 2에서 나타난 것처럼, 초기에는 수십 나노미터 사이즈의 입자로 존재하던 고분자들이 물 추가에 의한 염 농도가 낮아짐에 따라서 입자 사이즈가 3400 나노미터까지 증가한 후 다시 점점 감소하는 경향을 보인다.

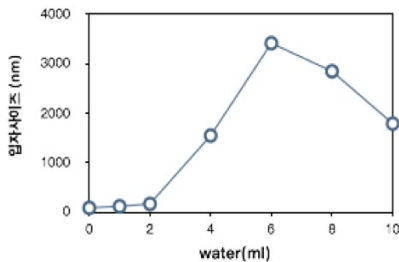


Fig. 2. The change of polyelectrolyte complex size with salt concentration.

고분자 전해질 복합체는 염 농도와 pH에 따라서 점도가 변화된다. 염 농도가 높아짐에 따라서 점도 값이 상대적으로 작아지는 것을 알 수 있다. 그 이유는 양이온 또는 음이온 주변에 상대 이온의 농도 증가하여 음이온 고분자와 양이온 고분자의 결합과 응집이 약해지면서 고분자의 움직임이 자유스러워짐에 따라서 용액의 상대적 점도가 낮아지기 때문이다. 또한 pH 변화 역시 카르복실기를 갖는 음이온 고분자의 해리도에 영향을 주어 점도에 영향을 준다. 이런 특징들은 토양 고정화에 영향을 미치는 요소들 중 하나이며 염 농도에 따른 고정화의 안정성에 영향을 미친다.

3. 결론

고분자 전해질 복합체 수용액상에서 pH와 염 농도를 변화 따른 고분자 전해질 복합체의 물리화학적 영향을 분석하였다. 제타전위 측정 결과로부터 pH 6이상에서는 -50에서 -60 mV의 범위에서 안정적인 값을 보여주고 있어 고정화제가 중성 이상의 pH를 가지는 범위가 제조되어야 함을 확인하였다. 또한 염 이온에 의해서 안정적으로 용액상 존재 하던 고분자 전해질이 물이 추가됨에 따라서 염 농도가 낮아지면서 복합체 형성이 되고 여기에 추가적으로 물이 더해지면 염 농도가 낮아지면서 복합체끼리의 응집 현상이 추가적으로 일어나는 결과로부터 필요에 따라서 염 농도 조절함으로써 토양의 특성에 맞는 고정화제 제조가 가능할 것으로 판단된다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발 중장기 계획사업 일환으로 수행된 연구결과입니다.

5. 참고문헌

- [1] S. Mikheikin, et al., "Interpolyelectrolyte complexes for contaminated soil immobilization and remediation", WM'00 Conference, February 27-March 2, (2000).
- [2] H. Naganawa, N. Kumazawa, H. Saitoh, N. Yanase, H. Mitamura, T. Nagano, K. Kashima, T. Fukuda, Z. Yoshida and S. Tanaka, Journal of Atomic Energy Society of Japan, 10, 227 (2011).

이질동상 침전법을 이용한 방사성 폐액의 처리

소지양*, 이일희, 박민성, 백예지, 이근영, 김광욱, 김익수, 정동용, 문제권
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*jiyang@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성폐액 내 방사핵종을 제거하기 위한 방법으로 는 추출분배비를 이용한 용매추출법, 이온교환법이 있으며, 가장 보편적으로 사용되는 기술로는 화학적 침전법이 있다. 이와 같은 기술은 고방사성 핵종 취급 및 극저농도의 용액취급이 불가능하여 근래 화두가 되었던 후쿠시마 원전 사고와 같은 비정상 원전 사고 시 초기 대응량 처리에 신속하게 대응할 수 없다. 따라서 근래에는 흡착법이나 공침전 응집 침전법 등이 고려되고 있다[2].

공침전은 방법이 단순하여 작업이 용이하며[3] 일본 후쿠시마 원전 사고와 같이 비정상 상태에서 대응량으로 발생하는 고염 해수폐액에도 적용이 가능하다. 고방사성 해수폐액에는 ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{131}I , ^{89}Sr , ^{90}Sr 등의 방사성 핵종이 포함되어 있으며 ^{90}Sr 은 고방사성 고염 해수 폐액의 담수화 처리한 냉각수의 재순환에 의해 원자로 핵연료 내 Sr의 용해도가 증가되어 carbonate 및 sulfate계 침전물을 만들어 제거하는 단순 침전법의 적용이 어렵다.

이에 본 연구에서는 비정상 상태 원전사고에 대처하기 위한 처리기술에 관한 연구의 일환으로 Ba^{2+} 를 사용한 이질동상 침전법에 의한 고염·고방사성 폐액 내 Sr의 공침 특성을 고찰하였다.

2. 본론

2.1 실험

2.1.1 모의 고염·고방사성 폐액

모의 고염·고방사성 폐액은 Table 1과 같은 조성을 가진 해수에 상업용 특급시약 SrCl_2 를 사용하여 Sr의 농도를 100ppm으로 하였다. 또한 증류수를 사용하여 위와 같은 방법으로 모의폐액을 만들어 해수조건에서의 공침전과 비교하고자 하였다.

Table 1. Composition of sea water

Element	Ca^{2+}	Cl^-	Na^+	K^+	Mg^{+}	Br^-	SO_4^{2-}
Conc. (ppm)	420	19700	10675	424	1200	73	2610

2.1.2 실험방법

모든 실험은 상온에서 회분식(400rpm, 3h)으로 수행하였으며 pH에 따른 공침전 양상을 살피기 위해 HNO_3 및 NaOH 를 사용하여 pH를 조절하였다. 공침제로는 상업용 특급시약인 $\text{BaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 및 Na_2SO_4 을 정제과정 없이 그대로 사용하였다.

2.1.3 분석방법

모의 폐액을 만들기위해 사용한 해수의 조성은 ICP-AES로, Ca, Mg, Sr을 분석하였으며 AAS로, K, Na, Cs의 농도를 알아보았다. 기타 Cl^- , SO_4^{2-} , Br^- 등은 IC로 각각 농도를 분석하였다.

침전 후 상등액과 침전물의 분리는 $0.2\mu\text{m}$ 필터를 사용하였으며 상등액내 남아있는 Sr농도측정을 위해, AAS(Atomic Absorption spectrometer, perkimelmer 900F)를 사용하였다.

2.2 결과 및 토의

Ba를 이용한 공침전에 관한 연구는 우라늄 및 알칼리 금속을 중심으로 이루어져 왔다. 대부분의 중금속들은 pH가 증가하면 침전되었던 침전물이 재용해되어 공침제거율이 감소하나[1] Sr의 경우 pH가 증가할수록 급격히 증가하였다. 또한 고염의 방사성 폐수의 pH영역인 7~8 부근에서 Sr 제거효율이 99%로 높은 것을 확인하였다(Fig. 1).

초기 농도에 따른 Sr의 공침 경향을 살펴보았다(Fig. 2). 초기 농도가 높아질수록 공침이 감소하였으며 $[\text{Ba}^{2+}]/[\text{SO}_4^{2-}]$ 비에 상관없이 효율이 감소되는 경향을 띄었다.

황 이온은 용액 속에서 중금속과 안정한 황 화합물을 형성하여 침전 형성이 용이한 것으로 알려져 왔다. 침전이 용이하여 황화물 침전이 형성되면 공침제로 인하여 공침을 유도하여 용액내 대상핵종을 신속하고 효과적으로 제거할 수 있다. Fig. 3.은 증류수와 해수에서의 Sr공침특성을 알아본 그래프이다.

Sr의 공침은 해수와 증류수 조건 모두에서 $[\text{Ba}^{2+}]/[\text{SO}_4^{2-}]$ 비가 증가할수록 공침율도 급격히 증가하는 경향을 보였으나 증류수의 경우 $[\text{Ba}^{2+}]/[\text{SO}_4^{2-}]$ 비가 1이상일 경우 급격히 감소하는 것을 알 수 있었다.

$[Ba^{2+}]/[SO_4^{2-}]$ 비가 1이상일 경우 해수에서도 Sr의 공침율이 다소 감소하는 경향을 보이는데 이는 $BaCl_2$ 의 주입량이 많아져 pH가 산성으로 떨어져 침전물에 영향을 준 것으로 사료된다. pH 변동이 있는 동일한 환경에서 해수조건은 증류수 조건보다 공침에 영향이 적은 것으로 판단된다. 이는 실제 고염·고방사성 폐액에 적용 시 원활한 제거효과 및 작업 효율을 높일 것으로 판단된다.

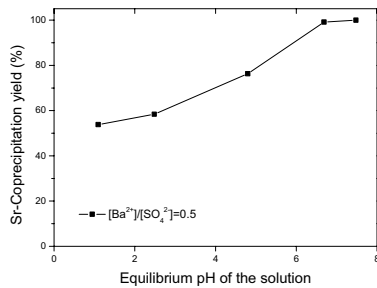


Fig. 1. Effect of pH on coprecipitation of Sr^{2+} with Barium Sulfate.

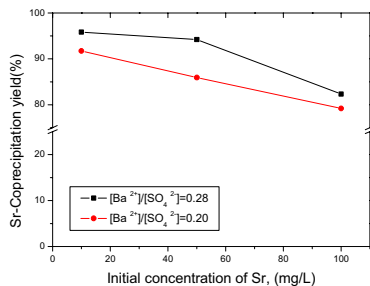


Fig. 2. Effect of initial Sr concentration on coprecipitation of Sr^{2+} with Barium Sulfate.

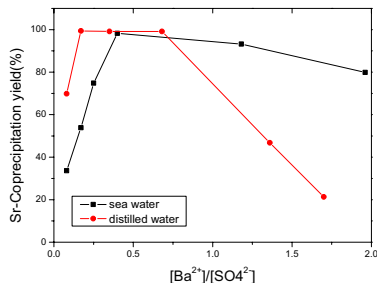


Fig. 3. Coprecipitation yield of Sr^{2+} in sea water and distilled water.

3. 결론

이질동상 침전법을 이용한 Sr폐액의 처리는 폐액내 Sr의 농도가 낮을수록 처리효율이 좋으며, $[Ba^{2+}]/[SO_4^{2-}]$ 비 0.6~1.0에서 가장 효과적이었다. 해수의 pH영역인 7~8부근에서의 처리효율(99%)이 높음을 확인하였다. 또한 공침전체의 과량 주입에 의한 pH변동에도 해수 폐액 내 Sr 공침전 효율은 증류수에서와 같이 급격히 하락하지 않고 공침현상이 유지되는 것을 알 수 있었다. 이로써 비정상상태에서 발생한 폐액내 Sr의 제거를 위해 공침전법을 적용할 경우 매우 효과적인 처리를 기대할 것으로 사료된다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력연구개발중장기 계획사업의 일환으로 수행된 연구결과입니다.

5. 참고문헌

- [1] 임현성, 이석근, "황산바륨의 공침현상을 이용한 중금속 이온의 제거" 한국분석과학회, 9(4), pp.280-284, 2006.
- [2] S. H. Cho and H. C. Yoo, J. of Kor. Soc. Env. Eng., 10(1), 59-68(1988).
- [3] Divrikli and L. Eli, Anal. Chim. Acta, 452, 231-235(2002).

나노입자 복합유체의 화학제염제 특성에 대한 제염효과 고찰

양한범*, 윤인호, 박상운, 김선병, 김초룡, 최왕규

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*nhbyang@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력 시설의 해체 또는 대규모 보수시 발생하는 대용량 탱크, 기기 및 대면적 설비를 기존의 화학 제염제를 이용한 습식 제염을 사용할 경우, 많은 2차 폐기물이 발생하는 문제점이 있다. 본 연구원에서는 이러한 문제점을 해결하기 위하여 2차 폐기물 발생량을 80 ~ 90% 감소시킬 수 있는 나노 복합유체를 이용한 거품제염 기술개발 연구를 수행하고 있다. 거품제염 기술은 나노 복합유체 안정화 기술과 제염 공정 기술개발이 핵심 연구과제다 [1, 2]. 나노 복합유체 제염제 성능 향상 연구로 계면활성제, 점도제, 화학제염제, 기능성 나노입자와 같은 구성성분이 거품안정성과 제염 성능 향상과 관련된 제염용 무기산에 대한 금속 시편의 부식 용해도 측정, 계면활성제, 점도제 화학제염제 및 나노입자에 의한 거품안정성, 오염물질에 제염에 미치는 영향을 연구하였다.

2. 실험재료 및 방법

2.1 시약 및 기기

HNO₃(덕산화학), FeCl₃ · 6H₂O(Showa), H₃PO₄(Junsei), 비이온 계면활성제(ElotantTM Milcoside 100, LG 생활건강), 실리카 나노입자(Fumed silica, M-5, Cabosil), 99.99% N₂ 가스를 사용하였다. 부식 용해도 측정용 금속시편 재료는 20mm x 20mm x 1.5mm 규격의 Stainless Steel 304, Inconel 600, Copper, Aluminium 판을 사용하였다.

2.2 금속시편의 용해도 실험

금속시편에 5가지 농도의 질산 및 인산용액, 0.5M, 1.0M, 1.5M, 2.0M, 및 3.0M 용액과, 질산과 인산이 같은 농도인 0.5M, 1.0M, 1.5M 씩 함유되어 있는 혼합용액, 그리고 질산 1.5M과 인산 함유량이 0.5M, 1.0M, 1.5M 농도로 혼합된 용액 각각에 대해 용해시간 0 ~ 5 시간 동안 용해시간 별로 무게를 측정하여 금속시편 용해도를 무게 백분율(%) 표시하였다.

2.3 거품 특성실험

본 실험에서는 거품 분석기 (KRUSS, Model DFA 100)와 실험실에서 자체 제작한 실험장치[내경 50mm, 높이 1000mm 유리관과 Sintered glass(40~100μm)]를 이용한 실험은 유리관에 계면활성제, 화학제염제, 실리카 나노입자를 포함한 실험 용액(180ml~350ml)을 채운 다음 질소가스(유속: 400 cc/min.)를 주입하여 발생하는 거품이 일정 높이에 도달되면 질소가스 주입을 정지한 다음 액체상의 높이 변화를 실시간으로 측정하였다.

2.4 분석기기 및 실험장치

원자흡광분석기(Perkin Elmer, Model Analyst 400), 거품분석기(KRUSS, Model DFA 100), 거품 특성 실험장치, 전자저울(Mettler, Model TOLEDQ), 초순수 제조기(Milipore, Model Direct-Q), Digital Timer를 사용하였다.

3. 결과 및 논의

3.1 용해도

(1) 알루미늄 금속시편의 용해도를 무게백분율(%)로 측정한 결과, 질산용액의 농도와 용해시간이 증가할수록 용해도는 증가하였다. 용해도는 $HNO_3 < H_3PO_4 < (xM HNO_3 + xM H_3PO_4) < (1.5M HNO_3 + xM H_3PO_4)$ 순서로 증가하였다.

(2) Inconel 금속시편의 용해도를 무게백분율(%)로 측정한 결과, 질산용액의 농도와 용해시간이 3~4 시간까지는 용해시간이 증가할수록 용해도(%)는 증가하는 경향을 나타내다가 용해시간이 4~5 시간 영역에서는 용해도(%)는 정체되는 현상이 나타났다. 그리고 질산농도가 1.5M일 때 최고 용해도를 보이며, 0.5M 질산용액에서는 용해도 측정이 오차범위 내에서 용해되지 않았다. 용해도는 $HNO_3 < (xM HNO_3 + xM H_3PO_4) \leq H_3PO_4 \leq (1.5M HNO_3 + xM H_3PO_4)$ 순서로 증가하였다.

(3) Stainless Steel 304 금속시편의 용해도를 무게백분율(%)로 측정한 결과, 모든 용액조건에서 용해도 측정이 오차범위 내에서 용해되지 않

왔다. 용해도는 $\text{HNO}_3 \cong \text{H}_3\text{PO}_4 \cong (\text{xM HNO}_3 + \text{xM H}_3\text{PO}_4) \cong (1.5\text{M HNO}_3 + \text{xM H}_3\text{PO}_4)$ 과 같이 특별한 차별성이 없었다.

(4) 구리 금속시편의 용해도를 측정결과, 인산용액보다 질산용액에서 용해도가 상당히 큰 차이를 보였다 (Fig. 1). 질산농도와 용해시간이 증가할수록 구리의 용해도는 증가하였다. 용해도는 $\text{H}_3\text{PO}_4 < (1.5\text{M HNO}_3 + \text{xM H}_3\text{PO}_4) < (\text{xM HNO}_3 + \text{xM H}_3\text{PO}_4) < \text{HNO}_3$ 로 증가하였다.

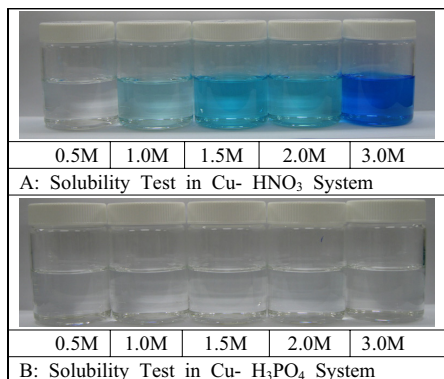


Fig. 1. Solubility Test in (A) Cu- HNO_3 System and (B) Cu- H_3PO_4 System.

3.2 기포용액의 거품 안정성 측정

3.2.1 계면 활성제 농도 영향

계면활성제 농도가 거품 안정성에 미치는 영향을 알아보기 위한 실험은 계면활성제와 화학제염제 또는 증류수로 만든 X wt. % M 100 - H_2O 계에서 계면활성제 농도를 변화시켜 만든 5 종류의 기포용액 (1, 5, 10, 15) wt. % M 100 - H_2O 계를 대상으로 거품 안전성을 측정하였다.

(1) 컬럼장치에 의한 거품 안정성 실험

생성 거품이 설정높이 100cm에 도달되는데 걸리는 시간은 계면활성제 농도가 증가될수록 증가하다가 일정농도 이상에서는 동일한 시간이 소요되었다. 거품생성 후 약 30분 경과되면, 기포용액의 액체높이가 같아지므로 거품이 붕괴(decay) 단계에 도달되었다고 판단된다. 계면활성제 농도가 증가할수록 액체높이 증가속도가 느리므로 거품의 안전성은 더 크다는 현상을 의미하며, 동일한 거품생성에 소요된 기포용액 양이 증가되었다. 거품에서 액체상과 기체상 관계는 팽창도 (expansion, F)로 표시된다.

$$\text{팽창도}(F) = \text{거품부피}(V_m) / \text{액체부피}(V_L)$$

팽창도(F)의 역수는 액체분율 (liquid fraction, ϵ)를 나타내며, $\epsilon=1/F$ 표시된다. 일반적으로 제염에

사용되는 거품 팽창도는 10 ~ 20이며, 기포는 구형구조이므로 다면체 기포구조의 건식거품(dry foam) 보다는 습식거품(wet foam)에 해당하였다.

(2) 거품분석기에 의한 거품 안정성 실험

X wt. % M 100 - H_2O 계에서 계면활성제 (M 100)의 농도를 변화시켜 만든 5 종류의 기포용액 (1, 5, 10, 15) wt. % M 100 - H_2O 계에서 거품안전성 측정결과, 계면활성제의 농도가 증가할수록 액체높이 증가속도는 느린 결과를 보이므로, 계면활성제의 농도가 증가할수록 거품 안정성도는 증가하였다. 거품의 붕괴과정에서는 충돌 (collision), 응집 (flocculation), 합체 (coalescence), 불균등화 (disproportionation), 중력 분리 (gravitational separation)의 결과를 보면 계면활성제 (M 100)의 농도 5가지 경로에 의해 거품이 붕괴되면서 거품이 완전히 붕괴되어 소멸될 때까지 시간경과에 따라 액체높이는 지속적으로 증가된다 [3].

4. 결론

나노 복합유체 제염기술 개발 목적으로 화학 제염제에 대한 금속시편의 용해도 시험하여 제염대상물질의 금속재질에 따라서 거품을 만드는 기포용액의 구성성분이 차별화된 효과적인 특성화 거품계의 제염결과를 얻기 위한 기초자료를 확보하였다. 나노 복합유체 거품안전성에 미치는 기포용액 구성성분의 영향 평가 시험결과 계면활성제, 화학 제염제, 점도제와 나노입자의 농도 계면활성제 농도가 증가할수록 거품 안정성이 증가하고, 점도제와 나노입자 첨가 시 액막이 두꺼워지면서 거품크기가 작아져 거품안전성이 증가하였다. 나노복합유체 제염기술 현장적용 타당성 평가목적으로 나노복합유체의 거품으로 방사성오염물 건조기내부 부속물을 3회 제염시험 후 측정된 최종 제염계수 6~14의 긍정적인 실험성적을 바탕으로 향후 개선연구를 통해 제염공정 확립하고자 한다.

5. 참고문헌

- [1] 정중헌, 윤인호, 최왕규, 윤석본, 김창기, “나노복합유체 제염기술 현황”, KAERI/AR-928/2012, (2012).
- [2] 양한범, “오염 고체표면의 제염처리 연구”, KAERI/OT-2587/2013, (2013).
- [3] Robert K. Prud'homme and Saad A. Khan (Ed.), “Foams: Theory, Measurements and Applications”, Marcel Dekker, Inc. New York. Bassel. Hong Kong, 1996.

방사성 소각재의 가열처리가 소각재 특성에 미치는 영향

이윤지*, 나상호, 이기원, 문제권

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*yj1024@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력시설에서 발생하는 방사성폐기물 중 가연성 폐기물은 가능한 한 부피를 줄이기 위하여 즉 감용시키기 위하여 압축이나 소각방법을 사용하지만, 일반적으로 감용비가 큰 소각방법에 의해 소각재의 형태로 전환된다. 이러한 소각재에는 방사성 핵종이 함유되어 있어 처분에 적합한 고형·안정화처리가 수반되어야한다[1]. 소각재의 처분비용은 점점 증가되는 추세이므로, 처분비용을 줄이기 위해 처리 기술의 고도화가 요구된다. 기존에는 소각시에 강열감량 기준(원자력안전위원회 고시; 650 ℃에서 5% 이하)에 부합하는 조건하에서 방사성 가연성 폐기물을 소각하였으며, 이러한 조건에서 발생된 소각재를 이용하여 고화처리를 진행해왔다.

본 연구에서는 고화처리에 효율적이고 감용에 효과적인 근본적인 방법을 강구하고자 일차적으로 소각재의 특성을 개량하기 위해 소각재를 가열하여 소각재의 특성을 분석하고자 하였다.

2. 실험 방법 및 결과

2.1 실험 방법

본 연구에 사용된 소각재는 서울연구로의 해체 현장에서 발생한 가연성폐기물을 소각시킨 소각재이다. 소각재는 일반적으로 소각과정에 따라 바닥재, 후연소로 비산재, 포대여과기 비산재로 분류되며, 그 구성비율은 대략적으로 각각 약 85%, 7.5% 그리고 7.5%이다. 이렇게 생성된 소각재는 후처리를 고려하여 균질하게 혼합된다. 혼합된 소각재는 감마선 분광계(low energy gamma-ray spectrometer, Canberra 사)를 이용하여 방사선량을 측정하였고, pH 및 수분함량을 조사하였다.

혼합 소각재는 공기 분위기하에서 가열처리 온도(800, 1000 ℃)에 따라 각각 12시간 가열하였다. 열처리 유무 및 열처리 온도에 따른 소각재의 특성을 분석하기 위해 강열감량 및 소각재의 겉보기밀도를 구하였으며, SEM사진으로 분말의 형태

를 관찰하였다. 강열감량과 더불어 혼합소각재의 pH와 수분함량은 폐기물공정시험법의 고상폐기물 강열감량, pH 및 수분함량 측정법에 준하여 소각재의 특성을 조사하였다[2]. 겉보기밀도는 ASTM 213에 기술된 방법대로 측정하였으며, 감용비는 밀도의 비로 환산하였다.

2.2 실험 결과

2.2.1 소각재의 물리적 특성

바닥재, 후연소로 비산재, 포대여과기 비산재의 배합비가 85:7.5:7.5 wt%인 혼합 소각재의 방사선량을 분석한 결과, U은 8.27 Bq/g, Co-60은 7.76 Bq/g, Cs-137은 2.76 Bq/g으로 나타났다. 또한 혼합 소각재 시료의 pH 및 수분함량은 각각 12.30과 0.34%로 측정되었다.

2.2.2 가열처리에 따른 감용 효과

열처리 하지 않은 소각재 분말의 겉보기밀도 0.72 g/cm³을 기준으로 열처리온도에 따른 감용비를 구하여 Fig. 1에 도시하였다. 그림에서 보는 바와 같이 가열처리 온도가 증가하면 밀도는 1.5~1.6배 증가하는 경향을 보여준다. 그리고 밀도의 증가는 감용비 증가를 의미한다. 이는 소각재의 구성 성분의 일부가 휘발되기 때문으로 사료된다. Table 1은 소각재의 고유결정수, 대부분의 유기물 이외에 염화물, 황산염, 질산염의 분해에 의한 변화 등을 포함하고 있는 강열감량 측정값의 변화를 나타내었다. 800, 1000 ℃에서 가열처리 한 소각재의 경우, 각각 0.15, 0.10%으로 나타났다. 가열처리 하지 않은 소각재의 강열감량 4.09%에 비해 크게 감소한 것을 알 수 있다.

Table 1. Loss on Ignition of incineration mixed ash

Temp, ℃	0	800	1000
Loss on Ignition(%)	4.09	0.15	0.10

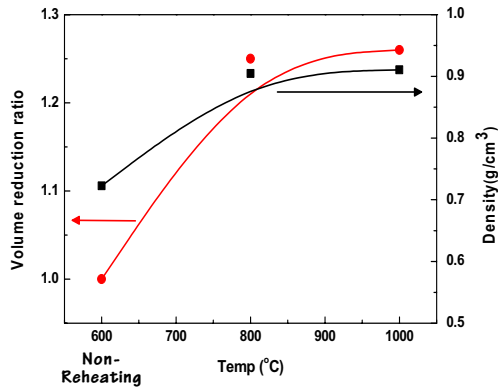


Fig. 1. Reheating temperature vs. volume reduction ratio.

Fig. 2는 혼합소각재의 열처리 유무 및 열처리 온도에 따른 분말의 형태를 SEM 사진으로 나타낸 그림이다. 그림에서 보는 바와 같이, 열처리하지 않은 소각재의 경우, 불연성 및 불완전 연소 물질이 다량 포함되어 있지만, 가열처리 된 소각재는 시료가 균질하다. 또한 가열처리 온도가 증가할수록 감용비는 증대됨을 보여준다. 결과적으로 강열감량 기준에는 적합하지만 감용비를 높이고 좀 더 안정한 소각재를 얻기 위해서는 소각 후에 추가적으로 열처리를 하거나 소각과정에서 좀 더 보완된 소각공정이 필요할 것으로 사료된다.

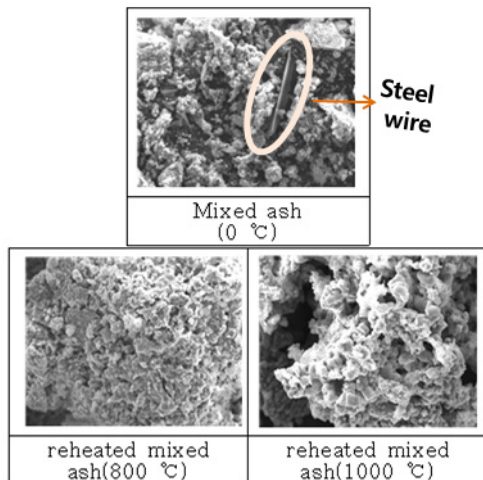


Fig. 2. SEM images of Ash depending on whether preheating or not.

3. 결론

- 소각재 분말의 특성계량은 열처리 공정의 추가가 요구됨.
- 열처리 온도가 증가하면 소각재 분말의 감용비는 증대됨.

4. 참고문헌

- [1] 고화처리한 유해 및 방사성폐기물 소각재의 물성 및 침출특성연구, 김인태, 2002.
- [2] 폐기물공정시험방법, 환경부고시 제 2007-151호, 2007

유기물의 오존 산화처리 연구(1)

김기홍*, 강일식, 홍대석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*nkhkim@kaeri.re.kr

1. 서론

오존은 강력한 산화력($E^{\circ} = 2.07 \text{ V}$)을 갖고 있고, 오존처리과정에서 생성되는 하이드록실기(OH 라디칼)는 대부분의 유기물을 매우 빠르게 산화시킬 수 있기 때문에 매우 매력적인 물질이다(Table 1). 그러나 오존은 일부 유기물과의 반응이 느리거나 반응하지 않는 단점도 갖고 있다.

Table 1. Standard Redox Potential of Oxidant Species

Oxidant Species	E° , Volts	Relative Potential of Ozone
Fluorine	3.06	1.48
Hydroxyl radical	2.80	1.35
Atomic oxygen	2.42	1.17
Ozone	2.07	1.00
Hydrogen peroxide	1.77	0.85
Hydroperoxide radical	1.70	0.82
Permanganate	1.67	0.81
Chlorine dioxide	1.50	0.72

따라서 이러한 단점을 보완하기 위하여 H_2O_2 , UV, Peroxide 및 촉매 등과 조합하여 사용하기도 한다. 이러한 조합된 공정들은 OH 라디칼의 생성량을 증가시키는데 목적을 갖고 있어서 고도 산화처리공정(AOP, Advanced Oxidation Process)이라 일컬어진다. 본 연구에서는 LSC Cocktail 용액의 산화처리 가능성에 대하여 오존/과산화수소법을 이용하여 살펴보았다. 오존산화시 적정량의 과산화수소 주입은 유기물의 산화처리 효율을 증가시킬 수 있지만 적정량 이상으로 주입된 과산화수소는 오히려 오존처리공정에서 발생된 OH 라디칼을 흡수하여 소모시키는 scavenger로 작용할 수도 있기 때문에 적정한 과산화수소의 주입

량을 구하는 것은 매우 중요하다. 그리고 폐액의 pH, 온도, 유량 및 유기물의 농도, 그리고 주입되는 오존 기체의 농도와 유량, 과산화수소의 농도 그리고 폐액내의 scavenger의 존재 유무에 따라 유기물의 산화처리효율은 커다란 영향을 받게 된다. 본 연구에서는 오존접촉기를 이용하여 유기물 산화처리에 대하여 오존의 적용 가능성을 평가할 목적으로 기초적 실험을 수행하였다. 즉, 오존단독 및 과산화수소량을 변화시키고, 용액의 pH에 따른 산화정도를 평가하고, 그 결과를 이용하여 실제의 방사성 유기폐액의 처리를 위한 기초자료를 확보하여 향후 처리방향을 설정하고자 하였다.

2. 본론

오존의 용해는 소수성 PTFE 오존 막접촉기(membrane contactor, Table 2)를 이용하였고, 그의 오존산화 처리공정도를 Fig. 1에 나타냈다. 외부에서 발생된 오존 가스는 막접촉기의 중공사막 내로 공급되도록 하고, 순수물은 중공사막 외부의 모듈내로 흐르도록 하여 시간에 따른 발생 오존 기체 농도(IN USA사의 gFFOZ)와 용해된 오존의 농도(IN USA사의 dFFOZ)를 Fig. 2에 나타냈다. Fig. 2에서 보듯이 오존 용해도는 대략 29 ~ 31 ppm으로 유지되었다.

산화대상인 유기물로 선택한 LSC Cocktail 용액은 Packard 사의 Scint-A XF이었다. 본 연구는 오존 산화처리 가능성을 평가하기 위한 기초실험인 이유로 100 배 정도로 희석하여 사용하였다. 이때의 TC(Total Carbon)는 5,835 ppm 이었다.

보통 LSC Cocktail은 solvent, scintillates 및 surfactants의 조합으로 구성되어 있으며, total

Table 2. Membrane Contactor Module Characteristics

Membrane material	Pore size(μm)	Membrane porosity(%)	Fiber i.d./o.d (mm)	Effective module length(mm)	Internal specific area(m^2)	Number of fiber
PTFE	0.1	25	1.0/2.0	30	0.21	100

carbon은 80 ~ 90%로 알려져 있다.

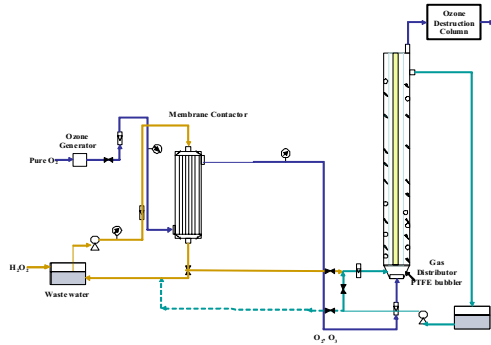


Fig. 1. Experimental setup for ozonation in a membrane contactor.

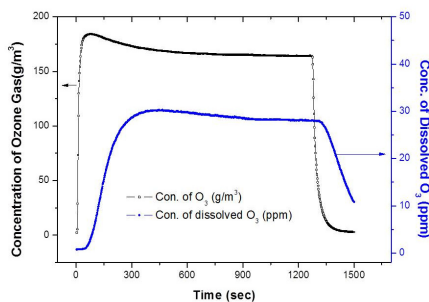


Fig. 2. Concentration of O_3 gas(g/m^3) and dissolved O_3 in water(ppm).

Fig. 3에 과산화수소의 첨가량 변화에 따른 산화율을 나타냈고, Fig. 4에는 용액의 pH를 4와 12에서 오존처리에 따른 산화율을 나타냈다. 두 개의 그림은 일정한 산화처리 패턴을 보여주고 있다. 처리액내의 총 유기탄소(TC)를 분석 평가하여 산화율을 계산하였는데 이를 위하여 일정 시간마다 일정량의 시료를 채취한 후 24시간이 지난 후에 분석하였는데 이는 오존의 소멸과 상분리 가능성을 고려하였기 때문이다. 그림에서 보듯이 반응초기의 산화율은 81 ~ 83%을 보이고 이후 40% 정도까지 감소하다가 이후 대략 45% 정도의 산화율을 보였는데, 이는 시료를 24시간동안 방치한 결과 고분자량 또는 polyaromatic 계열의 solvent가 폐액으로부터 분리되어 가라앉았기 때문이다. 즉, 반응초기에는 surfactant 등의 저분자량의 유기물이 분해되고, 이어서 polyaromatic 계열인 solvent의 산화가 일어나기 때문일 것으로 판단하였다. Polyaromatic 계열의 유기물은 그의 화학적 안정성 때문에 산화가 매우 어렵기 때문인데, 본 연구에서도 surfactants가 산화된 이후부터는 산화반

응이 매우 느려져 총괄 산화율도 감소됨을 알 수 있었고, 이들이 저분량의 물질로 산화 전환됨에 따라 다소 총괄 산화율이 증가함을 알 수 있었다. 그리고 Fig. 4에서 보듯이 용액의 pH가 4에서 보다는 12에서 산화처리 패턴이 분명하였고, 산화율도 다소 높았는데 이는 오존이 산성에서보다는 알칼리성에서 쉽게 분해되어 유기물을 분해하는데 참여하였기 때문이다.

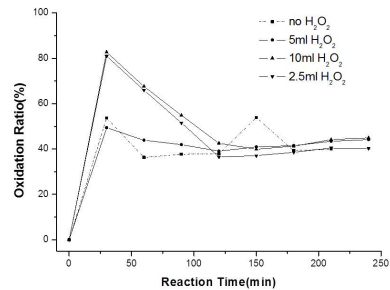


Fig. 3. Oxidation ratio(%) of LSC Cocktail according to the changes of volume of H_2O_2 .

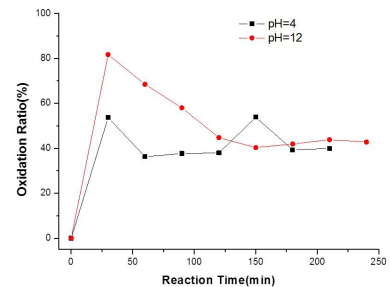


Fig. 4. Oxidation ratio(%) of LSC Cocktail according to the changes of pH.

3. 결론

기초실험을 통하여 LSC Cocktail 용액의 오존산화처리의 가능성을 살펴보았다. 화학적 구성성분 중 surfactants의 산화처리는 용이하지만(산화율 80% 이상), polyaromatic solvent는 강력한 산화제인 오존을 최대한 활용하고, 최적의 과산화수소 양, pH 조건하에서 산화처리가 가능할 것으로 판단하였다. 그리고 폐액의 양을 최대한 감용시킬 목적이라면 계면활성제를 산화처리하고 미산화처리되고 분리가 용이한 polyaromatic solvent를 폐액으로부터 분리하는 방법도 고려할만하다고 판단된다.

압축성 경금속 드럼 감용장치 적용개선

이건화^{1*}, 박우용¹, 장대성¹, 신현종²

¹하나검사기술(주), 부산광역시 기장군 장안읍 길천길 96-1번지

²한국수력원자력(주), 부산광역시 기장군 장안읍 길천길 96-1번지

*nada9i0i@nate.com

1. 서론

현재 압축성폐기물(비닐, 먼류 등)은 잡고체폐기물 감용설비인 압축기를 사용하여 드럼내 부피감소 후 처리하고 있으며 압축이 불가능한 철재류, 목재류 등은 사전에 세부절단 및 전처리 후 드럼에 단순저장하고 있다. 그리고 압축이 가능한 경금속(보온재 커버, 철망, 캔류 등)은 폐기물 특성에 따라 드럼처리 또는 별도보관을 위해 수작업으로 부피감용을 한다. 본 경금속 폐기물 처리 시 감용효율 측면에서 다소 불만족스러워 현실적으로 효과적인 폐기물 감량을 위하여 경금속 전용 압축장치의 필요성이 제기 되었다. 이에 잡고체드럼 채움을 향상 및 별도 임시보관물품 등의 부피감용을 위한 경금속 압축 보조 장치의 적용이 필요한 실정이다.

2. 본론

현재 압축성 경금속폐기물은 수작업에 의한 부피를 감소시킨 후 처리하고 있으나 작업의 어려움 및 감용 효과 미흡 등의 문제점이 발생되어 보다 효율적인 경금속드럼 발생 저감을 위하여 기존의 압축기에 추가적인 압축 감용장치를 적용하여 압축성 경금속 처리방안을 개선하고자 한다. 아래 그림은 현재 압축성 경금속 처리현황을 Fig.1에 나타내었다.



Fig. 1. Work process(Before).

위의 문제점을 보완하기 위해 압축성 경금속폐기물 드럼 감용장치를 개발하게 되었다. 본 개선으로 작업시간 단축과 작업효율 증대로 방사성폐기물 발생을 저감하기 위함이며, 개선 시 고려사항은 아래와 같다.

- 가) 경금속 감용장치와 기존 압축기의 호환성
- 나) 압축성 경금속폐기물 드럼 발생량 감소
- 다) 작업환경 개선 및 경제적 비용절감 효과
- 라) 작업 효율 및 편의성 증대 등

2.1 장치의 구성

- 가)본체 : 방사성폐기물 압축기 하부에 설치되는 감용장치의 상부로 본체가이드, 육안감시창, 투입구 등으로 구성되었고 경금속을 압착하는 공간
- 나) 압착부 : 이중구조의 강판재질의 압착판으로 하부 지지대와 분리 및 조립이 가능하도록 체결 고리가 있으며 이동 및 취급이 용이한 구조로 제작되었음.
- 3) 하부 지지부 : 하부 지지대는 수직하중을 지지하는 6개의 지주관 및 감용장치 안착판으로 구성되어 있으며, 잡고체폐기물 압축기의 유압실린더 하향 안전성(20cm 이상 공간확보) 및 작업 편의성을 고려하여 약 50cm 의 높이로 제작됨.
- 4) 주요 부속설비 : 잡고체 압축기, 절단기, 컷소 등의 보조장비가 있음.

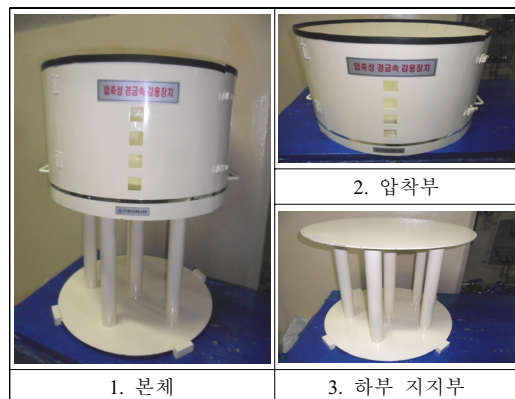


Fig. 2. Main attachment.

2.1.1 주요구성 세부사항

위 경금속 드럼 감용장치의 주요 규격 및 세부 내역은 아래표와 같다.

Table 1. Machine specific

항 목	규격 및 사양	수량	비 고
본체가이드	Ø564 × 350(t:1.6)	1	SS
주입부	400 × 300(t:1.6)	1	SS, STS
감시창	30 × 30(t:1.6)	1	강화유리
하부지대대	Ø50 × 495(t:3)	6	SS
압착판	Ø560(t:2), Ø564(t:3)	2	SS
안착부	Ø560(t:2)	1	SS

2.2 압축성 경금속 감용장치 적용공정

개선된 공정은 기사용중인 잠고체 압축기 내부에 감용장치를 설치하여 선정된 대상물을 넣어 최대한 부피감용 후 드럼처리 또는 임시보관 한다. 감용장치 개선 후 작업공정은 아래와 같다.



Fig. 3. Work process(After).

2.2.1 압축성 경금속 감용장치 적용 전/후 비교

경금속 감용장치를 적용하여 압착된 대상물의 전·후 사진을 아래에 나타내었다.

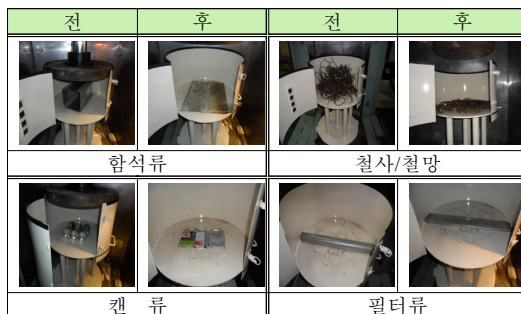


Fig. 4. Work application.

2.2.2 압축성 경금속폐기물 압착 작업결과

Table 2. Work result

구 분	종 류	감용(ℓ)		시간 (분)	감용비 (%)
		전	후		
수작업	합석	200	60	70	70 ↓
	철사/철망	150	30	50	80 ↓
	알루미늄	100	30	60	70 ↓
감용 장치	합석	200	20	20	80 ↓
	철사/철망	150	15	15	90 ↓
	알루미늄	100	20	10	80 ↓

☞ 감용장치 유압하중 : 10~20kg/cm²

2.3 적용 효과

가) 정량적 효과 : 27,189,496원/년 절감

(27,189,496원/년 × 10년=27,189,960원/10년간)

(1) 드럼처리비용 : 2,054,496원

▪ 드럼구입(2드럼 × 123,000원/드럼= 246,000원)

▪ 인건비(2드럼 × 904,248원/드럼= 1,808,496원)

(2) 드럼 처분비용 : 25,135,000원

▪ 처분(2드럼 × 11,930,000원/드럼= 23,860,000원)

▪ 수수료(2드럼× 637,500원/드럼= 1,275,000원)

나) 정성적 효과

(1) 전사 확대 적용으로 경금속 처리기술 정착 및 관리수준 향상

(2) 기계적 압착으로 인한 작업시간 단축 및 작업 편의성 증대

(3) 수공구 취급작업 부하경감 및 위험요인 배제

3. 결론

본 압축성 경금속 감용장치 적용실험 결과를 정리해 보면 첫째, 폐기물 특성에 따라 선택적 적용으로 감용효율 증대 및 드럼 발생량 감소효과가 예상되고 둘째, 최적 운영으로 작업효율 향상으로 인한 작업환경이 개선되며 셋째, 공정별 장점을 최대한 활용한 감용처리 방법 병행 활용으로 처리기술 향상이 기대되고, 마지막으로 드럼처리가 불가능한 압축성 경금속을 별도보관 시 폐기물의 부피감량에도 기여할 것으로 보인다.

4.참고문헌

- [1] 중·저준위 방사성폐기물 관리(한수원 표준방사-8620).
- [2] 관리구역내 고체방사성폐기물 관리(한수원 고리1발 운영절차서 방사선-8610).
- [3] 잠고체폐기물 압축기 운영 MANUAL.

He 분위기하 AgX를 이용한 Xe, Kr 포집 특성

백영희*, 박장진, 신진명, 양재환, 유재욱, 박근일

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*byh@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료 파이로 전처리공정에서는 Cs 등 준휘발성 핵종뿐만 아니라 Kr, Xe 등 휘발성 핵종이 발생된다. 이들 핵종 중 Kr, Xe 핵종을 포집하기 위한 극저온 증류법, 용매 흡수법, 멤브레인법, 흡착법 등 많은 연구가 수행되었다[1]. 최근의 연구에서는 미국 FCR&D (Fuel Cycle Research & Development) 배기체처리 시그마팀을 중심으로 무기흡착제를 이용한 흡착연구가 활발하다[2]. 이들 연구에서는 Xe를 포집하기 위한 NaZ 그래놀을 제조하고 이를 은침착시켜 AgZ 그래놀을 제조하는 연구가 진행되고 있으며 이 공정이 미국 FCR&D의 Xe 포집 기준공정이다.

본 연구에서는 파이로 전처리공정에서 NOx 가스가 발생하지 않아 산성분위기에 강한 mordenite를 굳이 사용할 필요가 없어 요오드 포집에 이용되고 있는 AgX를 이용하여 Xe 포집특성을 실험하여 이를 미국 FCR&D의 결과와 비교하고자 하였다.

2. 본론

2.1 실험

Xe와 Kr의 분리 포집 특성실험을 위하여 내경 3cm, 높이 15cm의 SUS 304로 된 포집장치를 제작하였다. 포집온도를 조절하기 위하여 포집장치를 이중관으로 설계하였다. 포집장치 냉각을 위하여 냉각장치(Thermo사, ULT-80)를 이용하였고 냉매는 에탄올을 이용하였다. 실험에 사용된 가스는 Kr 200 ppm, Xe 2000 ppm, He balance 가스를 이용하였다. 조성은 파이로 전처리 공정의 배기체중 Kr, Xe 농도를 고려하여 정하였다. He balance 가스를 선택한 이유는 미국 FCR&D 결과를 비교분석하기 위해서다. 가스유속은 126 cc/min, 매질은 높이 11.6 cm(L/D= 3.87, D는 3 cm)이다.

Kr, Xe 분석은 가스크로마토그래피(DS과학, GC-DS6200)를 이용하였으며, 사용 Column은

ValcoPLOT Molesieve 5A(30m length, ID 0.53 mm), 감지기는 TCD(Thermal conductivity Detector)를 이용하였다. Carrier gas는 He 30 cc/min 이었으며, 오븐온도는 60℃이었다.

본 실험에 이용할 AgX를 만들기 위해 Aldrich 사 입도 1~2 mm molecular sieve 13X를 사용하였다. 이를 AgNO₃ 용액에 담가 어두운 곳에서 24시간 동안 침적시켰다. 침적 후 이를 증류수 용액에 5회 세척한 후 건조시켜 AgX 그래놀을 만들었다. 이때 은 침착율은 20%였다. MS 13X 비표면적은 799 m²/g 이었으며, AgX는 720 m²/g 이었다. AgX의 사진을 Fig. 1에 나타내었다.

2.2 실험결과

AgX를 이용하여 20℃, 0℃, -73℃에서 Xe, Kr 혼합가스의 분리도 실험을 수행하였다(Fig. 2). 이를 정리하여 Table 1에 나타내었다. Table 1과 같이 온도가 낮은 수록 Kr/Xe 비율, 선택도가 증가하였다. 여기서 선택도란 매질의 Xe/Kr 몰비를 가스상 Xe/Kr 몰비로 나눈 값이다. 즉, 가스상에서는 Xe/Kr 비가 10인데 선택도가 10이면 매질상에서 Xe/Kr비가 100이 된다는 뜻이다. 즉 Kr 비율이 1%로 된다는 말이다. 선택도가 높을수록 고순도의 Xe를 얻을 수 있다. 고순도의 Xe의 경우 반감기 10.5년의 Kr-85의 함유가 떨어져 어느 순도이상에서는 대기 중 방류도 가능하며 Xe의 가격이 매우 높아 Xe 회수 공정의 경제성이 있게 된다.

INL 실험결과 -82℃에서 Xe 흡착량 864 mmol/kg, Kr 흡착량 51.3 mmol/kg, 선택도 2.5이다[2]. 본 실험 결과는 -73℃에서 Xe 흡착량 449.46 mmol/kg, 선택도 22.93이다. 본 실험결과 포집 온도차가 +9℃ 높기 때문인지 흡착량은 0.52배로 적었다. 그러나 선택도는 9.2배로 매우 우수한 성능을 나타내고 있다. 이는 AgX를 이용할 때는 AgZ를 이용할 때보다 고순도의 Xe 가스를 제조할 수 있음을 의미한다. 미국 INL AgZ의 은침착율은 8.1%, 비표면적은 250 m²/g이며, 본 실험 AgX의 은침착율은 20%, 비표면

적은 720 m²/g 이다. 본 연구에서 이용한 AgX는 비 NO_x 분위기에서만 사용가능하며, INL의 AgZ 보다 은침착율과 비표면적이 높다. 미국은 NO_x분위기에서 사용가능한 AgZ을 개발하고 있다. 한국은 건식 전처리공정을 택하고 있기 때문에 비 NO_x 분위기에서 사용할 수 있는 AgX를 사용할 수 있는 이점을 갖고 있다.

3. 결론

Kr, Xe 회수 및 분리 공정에 적용될 수 있는 NaX의 은침착 실험과 이를 이용 Kr, Xe 분리실험을 한 결과 다음과 같은 결과를 얻을 수 있었다.

- 1) AgNO₃ 용액을 이용하여 NaX 13X에 은침착을 한 결과 은침착량 20%, 비표면적 720 m²/g 의 AgX그라놀을 제조할 수 있었다. 이는 INL의 AgZ 보다 비표면적은 2.9배 크고, 은침착량은 2.5배 컸다.
- 2) 상기의 AgX를 이용하여 -73℃에서 분리도 실험을 한 결과 Xe 흡착량 449.46 mmol/kg, 선택도 22.93로 INL Xe 흡착량의 0.52배, 선택도 9.2배였다.

Table 1. AgX break-through time, adsorption capacity, selectivity

Adsorption temperature	20℃	0℃	-73℃
Kr			
break-through time, min	7.5	15	100
Xe			
break-through time, min	60	240	2300
Kr trapping			
capacity, mmol/kg	0.147	0.294	1.96
Xe trapping			
capacity, mmol/kg	11.725	46.9	449.46
Kr/Xe ratio	0.0125	0.00627	0.00436
Selectivity	7.98	15.95	22.93



Fig. 1. AgX granules.

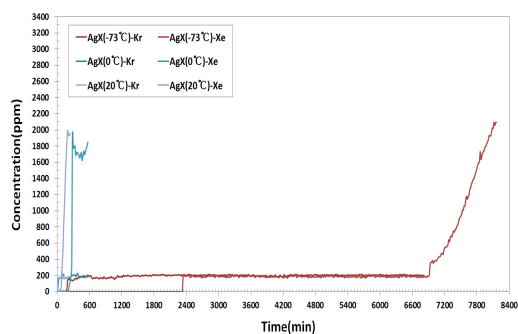


Fig. 2. AgX break-through curves according to adsorption temperature.

4. 감사의 글

이 논문은 미래창조과학부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

5. 참고문헌

- [1] 백영희, 박장진, 신진명, 양재환, 유재욱, 박근일, "파이로공정 배기체처리를 위한 Kr/Xe 회수 및 분리공정 선정", 2013년도 춘계 방사성 폐기물학회, 299-300 (2013).
- [2] T.G. Garn, M.R. Greenhalgh and J. D. Law, "FY-12 INL Krypton Capture Activities Supporting the Off-Gas Sigma Team", INL/EXT-12-26994 (2012).

복합유체 제염 시 실리카 나노입자의 코발트 흡착 거동

김초룡^{1*}, 정종현¹, 윤인호¹, 윤석본², 양한범¹, 최왕규¹, 문제권¹,

¹한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

²한수원(주)중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70

*chorong@kaeri.re.kr

1. 서론

복합유체 제염 (Foam decontamination) 공정은 90% 이상이 기체로 구성되어 있어 제염 후 발생하는 방사성 폐액의 양을 저감할 수 있는 장점을 가지고 있다. 또한 구조적으로 적용하기 어려운 대형기구나 대면적 시설의 제염에 사용될 수 있으며, 원격으로 작업이 가능하다. 일반적으로 제염은 오염된 표면과 화학 제염제 사이의 접촉시간이 증가함에 따라 제염 효율이 높아진다. 따라서 복합유체 제염제의 제염효율을 높이기 위해서는 복합유체 내 계면활성제와 고분자 물질 또는 나노입자 등이 첨가된다. 그리하여 거품의 안정성을 확보된 다음 제염효과를 좀 더 향상시키기 위해 방사성 핵종을 흡착시킬 수 있는 다양한 기능이 부착된 나노입자 및 고분자 물질 등이 첨가될 수 있다.

본 연구에서는 복합유체제염 공정에서 나노입자의 적용하기에 앞서 표면개질된 실리카 나노입자의 방사성 핵종에 대한 흡착능과 계면활성제 존재할 때 방사성 핵종의 흡착영향을 평가하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

본 연구에 사용된 표면개질된 실리카 나노입자의 합성과정은 다음과 같다. 암모니아수와 양이온 계면활성제인 cetyltrimethylammonium bromide (CTABr)을 사용하여 tetraethylorthosilicate (TEOS)와 유기 amino 기능기를 가진 (3-aminopropyl)trimethoxysilane(APTMS), N-[3-(trimethoxysilyl)propyl]ethylenediamine(AAPTMS), N1-[3-(trimethoxysilyl)propyl]diethylenetriamine(AEPTMS)을 넣고 혼합하여 표면개질된 실리카 나노입자를 합성하였다[1-2]. 합성 시, 유기 amino기능기의 함량은 Si source[TEOS+유기 amino기능기]의 질량 대비 5 wt%로 하였다. 이때 APTMS를 이용하여 합성된 나노입자를 K-N으로 나타냈으며,

AAPTMS으로 합성된 나노입자는 K-N2, AEPTMS으로 합성된 나노입자는 K-N3로 나타내었다.

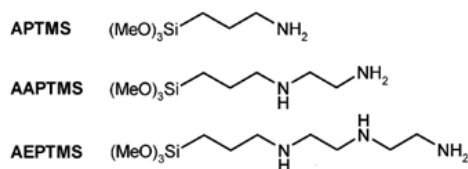


Fig. 1. A variety of organic functional groups.

표면개질된 실리카 나노입자의 amino기능기 종류에 따른 코발트에 대한 최대흡착량을 평가하기 위해 흡착제량과 모의 폐액량의 비를 1: 10으로 하여 회분식 흡착실험을 수행하였다. 방사성 모의 폐액은 $\text{Co}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (98%, Aldrich Chemical)을 이용하여 2, 5, 10 ppm의 농도로 제조하였다. 흡착실험은 15 mL의 코니칼튜브(SPL, Korea)를 이용하여 25℃에서 150 rpm으로 24시간동안 교반하였다. 교반 후, 용액은 10분동안 3000 rpm에서 원심분리하고 상등액은 0.2 μm 실린지 필터(Whatman, cellulose nitrate membrane filter, $\phi=25$ mm)로 여과하였다. 흡착처리 후 상등액 내의 코발트의 농도는 원자흡수분광광도기(AAS, PerkinElmer, AAnalyst 400)를 이용하여 분석하였다. 표면개질된 실리카 나노입자와 무기 나노입자인 건식실리카(Fumed silica, M5, Cabosil)의 코발트와 비이온 계면활성제가 공존할 때 코발트에 대한 흡착영향을 평가하기 위해 비이온 계면활성제인 ElotantTM Milcoside 100 (EM100, LG Household & Health Care)과 코발트 용액을 혼합하여 실험을 수행하였다. 이때 계면활성제의 농도는 1 wt%로 하였으며, 코발트의 농도는 2, 5, 10 ppm으로 하여 회분식 흡착실험과 동일하게 실험을 진행하였다.

2.2 결과

표면개질된 실리카 나노입자의 amino 기능기 중

류에 대한 코발트의 등온흡착 실험결과를 Fig. 2와 Table 1에 나타내었다. 이 결과를 Langmuir 모델로 fitting 하였을 때 K-N의 코발트에 대한 최대흡착량은 0.329 mg/g으로 나타났고, K-N2의 경우 코발트에 대한 최대흡착량은 0.451 mg/g으로 나타났으며 K-N3의 경우 최대흡착량이 0.708 mg/g으로 나타났다. 이를 토대로 실리카 나노입자의 표면에 개질된 유기기능기 내 아민기가 증가할수록 코발트에 대한 흡착능이 증가하는 것으로 나타났다.

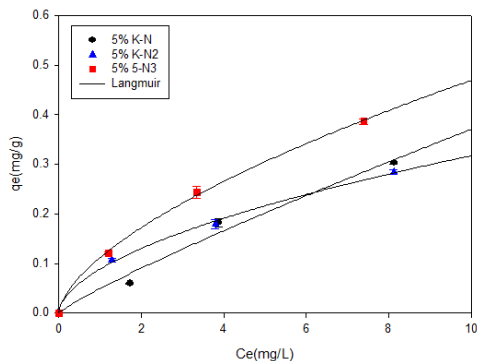


Fig. 2. Sorption isotherm of Co onto K-N, K-N2 and K-N3.

Table 1. The model parameters of sorption of Co onto K-N, K-N2 and K-N3

	Langmuir		R^2
	b (L/mg)	Q^0 (mg/g)	
K-N	0.037 ± 0.035	0.329 ± 1.016	0.988
K-N2	0.199 ± 0.068	0.451 ± 0.074	0.989
K-N3	0.161 ± 0.015	0.708 ± 0.035	0.999

Fig. 3은 비이온 계면활성제(EM100)가 존재할 때 표면개질된 실리카 나노입자(K-N3)와 무기 나노입자(M5)에 대한 코발트의 최대흡착량을 비교하여 나타낸 것이다. 그 결과 계면활성제를 주입하지 않았을 때 K-N3에 대한 코발트의 흡착량이 0.387 mg/g으로 가장 높게 나타났으며, 계면활성제를 주입하였을 때에는 0.278 mg/g으로 주입하지 않았을 때와 비교하여 흡착량이 0.11 mg/g 감소한 것으로 나타났다. 이는 계면활성제의 영향으로 코발트의 흡착량이 감소한 것으로 사료된다. 거기에 반해 M5의 경우 코발트가 거의 흡착되지 않은 것으로 나타났는데 이를 통해 K-N3의 경우 계면활성제의 영향으로 코발트에 대한 흡착량이 감소하지만 무기 나노입자인 M5와 달리 코발트에 대한 흡착능을 가지는 것으로 나타났다.

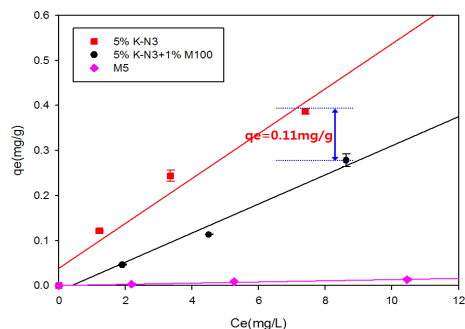


Fig. 3. Effect of surfactant on the adsorption capacity of Co.

3. 결론

본 연구에서는 표면개질된 실리카 나노입자를 이용하여 유기기능기 종류에 따른 코발트 흡착과 표면개질된 실리카 나노입자의 코발트 흡착 시 계면활성제의 영향에 관한 연구를 수행하였다. 그 결과 유기기능기 내 아민기의 수가 증가할수록 코발트에 대한 흡착능이 향상되는 것으로 나타났다. 또한 흡착능이 가장 높게 나타난 K-N3를 이용하여 계면활성제가 존재할 때 코발트의 흡착능을 평가한 결과 계면활성제가 존재할 때의 흡착능이 계면활성제가 존재하지 않을 때보다 감소하였지만 무기나노입자(M5)와 달리 코발트에 대한 흡착능을 가지는 것으로 나타났다.

4. 감사의 글

이 논문은 2014년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구(NRF-2012M2A8A5025655)입니다.

5. 참고문헌

- [1] L. Bois, A. Bonhomme, A. Ribes, B. Pais, G. Raffin and F. Tessier., Functionalized silica for heavy metal ions adsorption, Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects 221, 221-230, 2003.
- [2] Q. Cai, Z.-S. Luo, W.-Q. Pang, Y.-W. Fan, X.-H. Chen, and F.-Z. Cui, Dilute Solution Routes to Various Controllable Morphologies of MCM-41 Silica with a Basic Medium, Chem. Mater., 13, 258, 2001.

산화제염조건에서 원전 일차계통 구조재의 crevice 부식특성평가

정준영^{1,2*}, 박상윤¹, 원휘준¹, 최왕규¹, 문제권¹, 박소진²

¹한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

²충남대학교, 대전광역시 유성구 대학로 99

*jjy87@kaeri.re.kr

1. 서론

PWR일차계통 제염을 수행할 경우 제염제에 의한 내부표면의 산화막 용해 뿐 아니라 재료부식의 가능성도 존재한다. 이러한 재료부식을 최소화하기 위해서는 제염제에 의한 원전 재료의 부식특성을 확인하고 개선하는 것이 필요하다.

본 연구에서는 PWR전체 표면적의 약 75 %를 차지하며 steam generator의 주재료로 사용되는 I-600과 PWR 일차계통 구조재료로 사용되는 304 stainless steel을 대상으로 하여 부식특성을 알아보고자 하였다. 제염제는 원전내부에 형성되는 산화막 내층의 Cr^{3+} 를 제거하기 위한 산화 전처리 공정으로 사용되는 AP, NP와 MONAP(Modified nitric acid permanganate)를 선정하였다.[1, 2] 일반적으로 AP는 NP에 비해 부식이 덜 형성되는 것을 알려져 있다.[3] 연구를 통해 AP와 NP에 의해 재료가 부식되는 정도의 차이를 확인하고, NP의 재료부식을 개선하기 위해 개발 중인 MONAP의 효과를 실험을 통해서 확인하고자 하였다. 실험은 제염제가 재료에 어떤 영향을 끼치는지 짧은 시간에 pitting이나 IGA(Intergranular attack) 같은 부식특성이 뚜렷하게 나타나는 결과를 얻기 위해 최대한 가혹한 환경에서 부식실험을 진행하고자 하였다. 따라서 일반부식에 비해 부식이 빠르고 심하게 발생하는 것으로 알려진 crevice에서의 부식실험을 진행하고 부식의 정도를 비교하였다.

2. 실험방법

실험에 사용된 시편은 20 mm × 20 mm × 2 mm의 크기로 가공한 것을 사용하였다. 시편의 부식이 잘 될 수 있도록 600℃에서의 열처리를 진행하였고 시편의 모든 면은 #1200의 사포로 polishing 하였다. 시편에 약 지름 3mm로 구멍을 뚫어서 두 개의 시편을 겹쳐지게 놓고 한쪽에 얇은 1mm 두께의 테프론 시트를 댄 후 나사로 조

여서 Fig. 1과 같이 두 시편이 비스듬하게 틈을 두고 겹쳐진 crevice가 형성되도록 하였다. 이러한 Inconel-600과 304 stainless steel 재질의 crevice 시편을 제작하여 실험에 사용하였다. 실험의 대상이 되는 환원제염제는 Table 1에 나타내었다.



Fig. 1. Crevice specimen.

Table 1. Chemical condition for corrosion test

AP	63.3mM $KMnO_4$ + 1.25M NaOH
NP	3.86mM $KMnO_4$ (pH=3.0)
MONAP	3.86mM $KMnO_4$ + 0.5mM Cu^{2+} (pH=3.0)

실험은 각 시편을 95℃ 온도로 유지된 각 제염제에 20시간 동안 부식시키는 방법으로 수행되었다. 이때 시편을 넣기 전에 약 30분간 N_2 purge를 해서 용액 내부의 산소 농도를 떨어뜨린 후에 실험을 진행하였다.

3. 실험결과

실험 후에 시편의 표면을 OM(Optical Microscope)으로 관찰하였다. Fig. 2는 각 제염제에서 부식된 후의 crevice 시편의 표면을 OM으로 분석 관찰한

것이다. AP에서 실험한 시편의 경우에 Inconel-600에서는 부식의 흔적 없이 깨끗했고 304 stainless steel에서는 약간의 흠집이 있지만 전체적으로 깨끗했다. NP에서 실험한 시편의 경우에는 Inconel-600의 표면에서 다수의 pitting이 발견되었다. 304 stainless steel에서도 부식흔적이 발견되었다. MONAP에서 실험한 경우에는 Inconel-600 표면에서 매우 작은 사이즈의 pitting이 발견되었다. 그에 반해 304 stainless steel의 표면은 깨끗했다. 모든 제염제에 대해서 Inconel-600에 비해 304 stainless steel에서 부식이 적게 발생하였다.

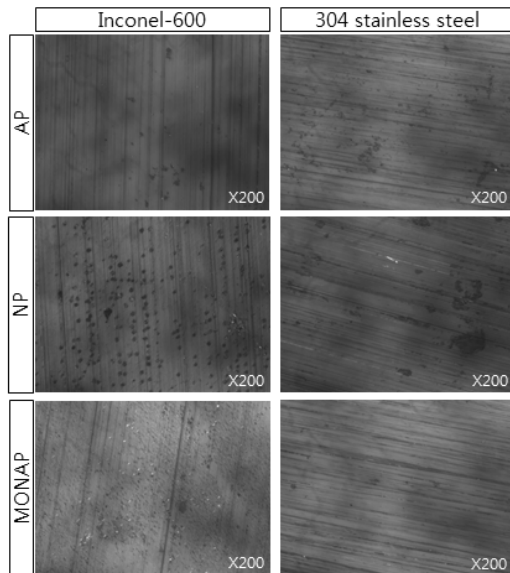


Fig. 2. Surface appearance of crevice corrosion specimen observed by optical microscope.

4. 결론

실험을 통해 얻은 OM과 무게변화 결과를 볼 때, Inconel-600의 경우에 AP를 사용하면 부식이 매우 적게 일어난다는 것을 알 수 있다. 또한 NP를 사용하였을 때 가장 많은 pitting이 관찰되는 것으로 보아 재료부식에 가장 취약하다는 점을 확인할 수 있었다. 재료부식의 취약점을 해결하고자 NP에 Cu ion을 첨가한 MONAP의 경우에는 pitting 발생을 효과적으로 억제하는 것을 확인하였다. 304 stainless steel의 경우에는 대체로 Inconel-600에 비해 부식이 적게 나타났으며 MONAP의 경우에는 AP보다도 표면이 깨끗하게 나타났다. 제염제들의 부식의 정도는 AP <

MONAP < NP의 순서로 정리할 수 있다. 본 연구의 결과를 통해 MONAP에 의한 재료부식이 AP만큼 적게 나타나지는 않았지만 NP보다 재료부식이 억제된 결과를 통해서 MONAP가 NP의 재료부식 문제점을 해결할 수 있는 산화제염제로 활용될 수 있다는 것을 확인하였다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] M.E. Pick, "Decontamination of Nuclear Facilities" International Joint Topical Meeting ANS-CAN, p.3-5, 1982.
- [2] D. Bradbury, Review of Decomtamination Technology Development 1977-2000, Water Chemistry of Nuclear Reactor Systems 8. BNES 2000, p.173.
- [3] A. P. Murray, J. Roesmer, Waste Management Aspects of Entire PWR Loop Decontamination, PWR Loop Decontamination, 1988.

복합공정을 이용한 BM 폐수지의 자체처분 기술

성진현¹, 허준¹, 김현기¹, 김승일¹, 안희진², 서봉수², 김대성², 정연하², 강덕원^{1*}

¹하지방사선공학센터, 경기도 시흥시 공단1대로 322번길 16

²한국수력원자력(주), 전라남도 영광군 홍농읍 홍농로 846

sungjh@haji.co.kr

1. 서론

증기발생기 취출수(Blow Down) 계통 탈염탑은 증기발생기 세관누설 시 방사성물질을 제거하여 2차계통의 오염확산을 방지하기 위한 수질정화 계통으로서 호기 당 연간 약 5,000 ℓ 정도의 폐수지가 발생되고 있다. 한빛 1발전소는 2007년부터 2010년까지 교체된 폐수지에서 방사능 준위가 매우 낮게 검출되어 향후 자체처분을 위해 40 Kg 용 마대에 포장된 상태로 약 200,600 ℓ (2011년말 기준)를 발전소 내에 별도구역을 정하여 보관·관리해 오고 있다. 보관중인 폐수지 시료에 대한 핵종분석결과, ⁶⁰Co와 ¹⁴C 핵종의 방사능 농도가 규제기관에서 제시하는 자체처분 규제기준값과 절차서상의 기준값인 0.1 Bq/g과 1 Bq/g을 약간씩 초과하고 있는 것으로 나타났으며 일부 폐수지에서는 극미량의 ¹³⁷Cs 핵종도 검출되었다. 이들 방사성폐수지의 자체처분 유도를 위해 기초연구를 수행하였다. 폐수지 내에 함유된 ⁶⁰Co 핵종 제거를 위해 초음파와 초임계이산화탄소를 이용한 분리, 추출기술을 적용하였으며, ¹⁴C 핵종은 황산을 이용한 제거가 가능한 것으로 확인되었다[1-4]. Lab 실험에 적용하였던 초음파, 황산 및 초임계 기술이 오염핵종의 추출, 제거가 가능한 것으로 확인되었으며 도출 실험 결과물은 증기발생기 취출수 계통에서 발생한 폐수지의 자체처분을 위한 공정 확립과 파일럿 장치 제작시에 활용하였다. 본 연구에서는 적용 공정별 실험 결과에 대해 기술하였다.

2. 실험 및 결과

2.1 대상시료의 조성비 분석

증기발생기 취출수 계통 탈염탑에는 양이온, 음이온 및 혼상수지가 장입되어 있어, 2차측 수질정화뿐 만 아니라 배관부식으로 발생한 입자성물질의 여과기능도 하고 있다. 따라서 취출수 정화계통에서 발생한 폐수지에는 양·음이온수지와 함께 이물질이 균일하지 않은 비율로 혼합되어 있기

때문에 폐수지의 조성에 따른 공정별 제염성능의 파악은 매우 중요하다. 본 실험에서는 폐수지를 구성하는 양·음이온수지와 이물질의 혼합비율이 서로 다른 세 종류의 시료를 선정하여 활용하였으며, 이들 시료의 조성비율 분석결과를 Table 1에 정리하였다.

Table 1. Composition ratio of the spent resin

Resin	Components ratio (Vol%)		
	Cation	Anion	Impurity
BM “0”	4	93	3
BM “1”	80	19	1
BM “2”	3	97	0

2.2 단계별 제염공정

방사성폐수지를 제염하기 위한 장치를 Fig. 1과 같이 초음파, 약품공정 및 초임계공정 순으로 구성하여 실험을 수행하였다. 먼저 선정된 각각의 폐수지 시료에 대해 물을 첨가한 후 Horn형 초음파 장치(1 MHz, 300 Watt)로 1시간 정도 수지표면에 부착된 이물질을 탈착시킨 후 폐수지 내에 잔류하고 있는 ⁶⁰Co과 ¹³⁷Cs 핵종의 방사능농도를 측정하였다. 그 다음 초음파 처리된 폐수지를 5% 황산수용액에 90℃에서 1시간동안 반응시킨 후 폐수지 내 ⁶⁰Co, ¹³⁷Cs 핵종과 ¹⁴C 핵종의 방사능농도를 측정하였으며, 마지막으로 초임계이산화탄소와 함께 ⁶⁰Co용 보조추출제(Cyanex-272, DEA)를 사용하여 200 bar, 60 ℃의 초임계 조건에서 초음파/황산처리된 폐수지에 잔류하는 ⁶⁰Co 핵종을 추가로 추출한 후 폐수지 내에 얼마만큼의 방사능이 잔류하고 있는지를 확인하기 위해 γ핵종분석기로 방사능농도를 측정하였다.

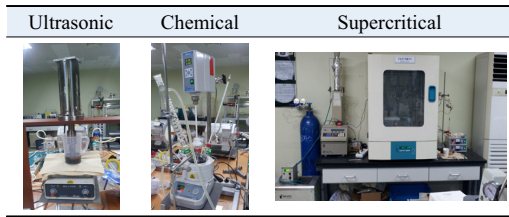


Fig. 1. Configuration of experimental apparatus for contaminated resin decontamination.

2.3 방사성폐수지 제염실험결과

선정 폐수지의 제염 전(Before)과 초음파/황산으로 제염한 후(After) 수지 성상의 변화된 모습을 Fig. 2에 나타내었다. 제염 후 폐수지가 제염 전에 비해 원상태에 가깝게 깨끗한 수지형태를 나타냈으며, 특히 이물질들을 많이 포함하고 있던 폐수지인 BM "0" 시료는 더욱 깨끗해진 것으로 나타났다.

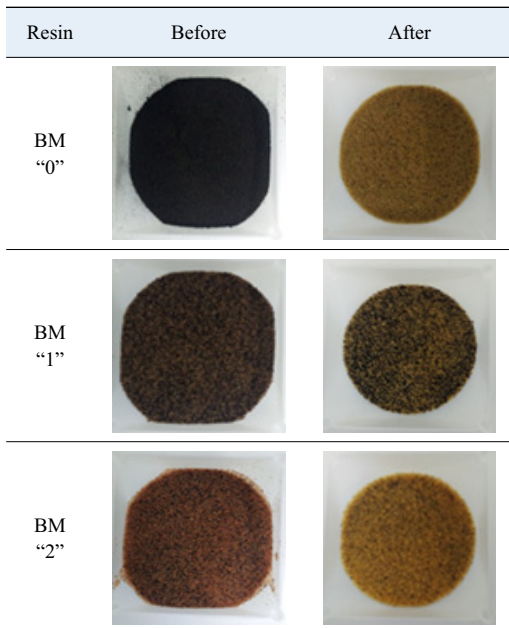


Fig. 2. Shape of resin before and after ultrasonic and sulfuric acid decontamination processing.

제염 전 폐수지(Before)와 초음파(1st step), 황산(2nd step) 및 초임계(3rd step) 기술을 단계적으로 적용하여 제염을 수행한 다음 각각의 폐수지 시료에 대한 핵종별 방사능농도 측정결과를 Table 2에 정리하였다.

Table 2. Specific activity after each step decontamination processing

Resin	Nuclide	Specific Activity (Bq/g)			
		Before	1st	2nd	3rd
BM "0"	Co-60	0.60	0.15	0.07	MDA
	Cs-137	MDA	MDA	MDA	MDA
	C-14	2.85	-	0.36	-
BM "1"	Co-60	0.06	0.03	MDA	MDA
	Cs-137	0.05	0.05	0.04	0.04
	C-14	0.78	-	0.56	-
BM "2"	Co-60	MDA	MDA	MDA	-
	Cs-137	MDA	MDA	MDA	-
	C-14	1.29	-	0.13	-

BM "0" 시료의 경우는 1단계 공정인 초음파 제염 후 ^{60}Co 핵종의 방사능농도값이 0.15 Bq/g로 자체처분 기준값을 약간 초과하였으나 2단계인 황산제염 공정 후에는 자체처분 기준값 미만으로 낮아졌으며 3단계인 초임계제염 공정을 거친 후에는 MDA로 나타났다. ^{14}C 핵종의 경우는 1, 2단계인 초음파/황산제염 공정을 거치면서 대상 시료 모두 자체처분 기준값 미만으로 나타났다.

3. 결론

초음파로 이물질을 탈착·분리시킨 후 두 번째 단계인 약품을 이용한 제염공정 후 ^{60}Co 과 ^{14}C 핵종의 방사능농도는 자체처분 기준값 미만으로 낮아져 제염효과가 양호한 것으로 나타났다. 극미량의 잔류 ^{60}Co 방사능 제거를 위해 초임계이산화탄소와 보조추출제를 이용한 제염공정을 적용한 결과 MDA 이하의 안전한 방사능농도까지 저감시킬 수 있는 것으로 확인되었다. 이러한 복합 제염공정은 이물질을 함유하고 있는 방사성폐수지의 자체처분을 위한 제염공정으로 매우 유용하게 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

4. 참고문헌

- [1] 오염수지의 초음파 제염에 따른 물성평가, 한국방사성폐기물학회 2013 춘계학술대회.
- [2] 마이크로버블 및 초음파를 이용한 오염폐수지 제염연구, 한국방사성폐기물학회 2013 춘계학술대회.
- [3] 초임계 이산화탄소를 이용한 방사성 폐수지 중의 ^{60}Co 추출기술, 한국방사성폐기물학회 2012 춘계학술대회.
- [4] 초음파와 화학약품을 이용한 다공체 중의 ^{14}C 제거실험, 대한방사선방어학회 2013 춘계학술대회.

초음파 기술을 이용한 폐수지 중 ^{60}Co 제염 실험

김현기, 김승일, 성진현, 허준, 강덕원*

HaJI 방사선공학센터, 경기도 시흥시 공단1대로322번길 16

hkim@haji.co.kr

1. 서론

원자력발전소에서는 취출수 계통을 포함하여 계통수의 수질정화를 위하여 상당량의 이온교환수지를 사용하고 있으며 연간 약 5,000~7,000 ℓ 정도의 폐수지가 발생되고 있다. 그러나, 증기발생기의 세관 누설이 있을 경우는 2차측이 방사능으로 오염되어 2차측 취출수 계통에서 사용된 폐수지에서도 반감기가 긴 방사성탄소(^{14}C), 방사성세슘(^{137}Cs) 및 방사성코발트(^{60}Co)와 같은 방사성핵종이 검출되기도 한다. 방사능으로 오염된 폐수지는 자체처분하지 못하고 방사능 준위에 따라 마대나 탄소강 드럼에 담아 영구처분을 위해 발전소 내에 임시저장하고 있다. 따라서, 방사능으로 오염된 폐수지에서 자체처분이 가능한 수준으로 방사능을 분리/제거할 수 있는 기술개발이 시급한 실정이다.

이전 연구에서는 증기발생기 취출수 계통에서 사용된 폐수지로부터 방사성핵종을 제거하기 위해 마이크로버블과 초음파를 적용하여 Lab scale의 연구를 수행하여 대부분의 방사능이 폐수지의 이물질에 부착되어 있는 것으로 확인하여 보고한 바 있다[1].

본 연구에서는 이전의 연구결과를 바탕으로 폐수지에 부착된 이물질을 제거하기 위하여 30 ℓ/hr의 처리용량을 가진 Pilot scale의 초음파 제염장치를 제작하여 실제 원자력발전소 취출수 계통에서 사용된 방사능 오염 폐수지를 대상으로 방사성코발트(^{60}Co)의 제거효율 평가하였다.

2. 본론

2.1 폐수지 초음파 처리장치

폐수지 초음파 처리장치는 크게 수지저장조, 초음파처리조, 용수저장조, 수지이송펌프 및 수지배출펌프로 구성되어 있으며, 수지용량을 기준으로 시간당 30 ℓ 까지 처리할 수 있도록 설계하였다. 초음파 발생장치는 원전 핵연료봉 제염시 Crud 및 이물질의 탈착 효과가 매우 우수한 것으로 알

려져 있는 Push-pull 타입의 초음파 발생장치를 사용하였고, 각 처리조건 수지의 이송을 위하여 Hose pump를 사용하였다. 제거된 이물질은 1개의 Bag filter와 3개의 Cartridge filter를 거쳐 제거되도록 하였으며 수지의 이송 및 초음파 처리를 위해 사용된 용수는 재활용할 수 있도록 설계되었고 작업자의 피폭 및 오염을 방지하기 위해 전 공정을 자동화 프로그램으로 구동되도록 구성하였다(Fig. 1).



Fig. 1. Ultrasonic Waste Resin Treatment System.

2.2 폐수지 초음파 제염공정

2.2.1 수지공급공정

수지저장조에 오염 폐수지와 용수를 1:1 비율로 투입한 후 수지이송펌프를 이용해 수지저장조의 오염폐수지를 초음파처리조로 용수와 함께 이송시킨다.

2.2.2 초음파처리공정

초음파처리조로 오염폐수지의 이송이 완료되면 용수공급펌프가 작동하여 용수저장조에 저장된 용수를 초음파처리조로 이송한다. 용수는 초음파처리조를 채운 후 상단으로 배출되며 순환되고 이와 동시에 Push-pull 타입(Fig. 2)의 초음파 발생장치와 교반기가 작동되어 폐수지에 부착된 방사성 Crud 및 이물질이 탈착된다. 초음파처리조 내부에는 존스스크린을 설치하여 탈착된 Crud와 이물질은 통과하고 폐수지는 통과하지 못하도록

구성하였고 탈착된 이물질은 백필터와 카트리지 필터를 거쳐 제거된 후 용수는 다시 용수저장조로 투입되면서 순환된다.

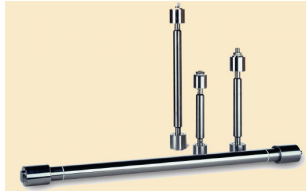


Fig. 2. Push-pull Type Ultrasonic Transducer.

2.2.3 수지배출공정

초음파처리조에서 폐수지의 처리가 완료되면 수지배출펌프를 이용하여 초음파처리조의 수지를 용수와 함께 배출하며 배출된 용수는 다시 용수저장조로 이송하여 재활용하도록 구성하였다.

2.3 실험결과

실험에는 원자력발전소 증기발생기 취출수 계통에서 사용된 후 저장중인 폐수지를 시료로 사용하였으며 HPGe Detector(ISOCS, Canberra)를 이용하여 핵종을 분석한 결과 ^{60}Co 가 검출되었으며 비방사능은 0.811Bq/g 으로 나타났다.

초음파 조사시간에 따른 제염효과를 비교하기 위하여 10분 간격으로 시료를 채취하여 분석을 수행하였고 그 결과를 Table 1에 나타내었다.

Table 1. Analytical Result of ^{60}Co for Decontaminated Waste Resin by Push-pull Ultrasonic.

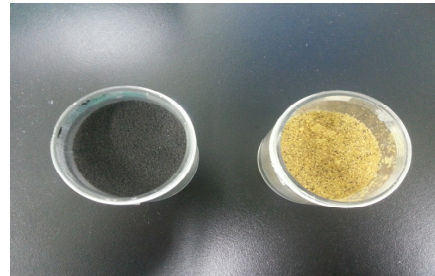
No.	Treating Time (min)	Analysis Time(s)	Specific Activity for ^{60}Co (Bq/g)	Removal Eff.(%)
0	untreated	3,600	0.811	-
1	10	3,600	0.041	94.9
2	20	3,600	0.029	96.4
3	30	3,600	0.03	96.3
4	40	10,000	0.016	98.0
5	50	10,000	0.026	96.8
6	60	10,000	0.011	98.6

HPGe Detector를 이용하여 3,600초간 분석을 실시하였으나 초음파가 40분 이상 조사된 시료의 경우 3,600초에서는 MDA미만으로 분석되어 분석시간을 10,000초로 설정하여 분석하였다.

초음파를 10분간 조사하여 처리한 경우, 오염폐수지의 비방사능은 0.041Bq/g 으로 폐수지에 부착

되어 있는 방사성핵종의 약 95%가 제거되었으며 시간의 경과에 따라 다소 제거율이 다소 향상되는 경향을 확인할 수 있었다. 초음파를 40분 이상 조사한 경우의 비방사능은 $0.011\sim0.026\text{Bq/g}$ 으로 제염효과가 비슷한 것으로 나타났으며 IAEA에서 제시한 규제해제농도인 0.1Bq/g 의 약 1/5~1/10수준인 것으로 확인되었다.

Fig. 3은 처리전 폐수지와 초음파를 60분간 조사시킨 폐수지의 사진으로 초음파 처리 후 폐수지에 부착된 이물질이 완벽히 제거된 것을 확인할 수 있다.



(a) before (b) after
Fig. 3. Untreated and Decontaminated Resin.

3. 결론

본 연구를 통하여 방사능으로 오염된 폐수지에서 ^{60}Co 은 초음파 처리기술을 이용하여 자체처분 기준치인 0.1Bq/g 의 1/10수준으로 제염이 가능함을 확인하였다. 그러나, 원전 발생 폐수지는 ^{60}Co 이외의 감마핵종 및 극미량의 베타핵종(^{14}C , ^3H 등)도 존재하고 있어 이를 제거하기 위한 산처리, 마이크로버블 및 산화건조 등의 공정을 적용한 추출실험이 추가적으로 필요할 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

- [1] 김현기 외, 한국방사성폐기물학회, 2013년 춘계학술발표회 논문요약집, pp.379-380, 2013.

해체 비용 산정시 해체 과도기 비용에 대한 고려

손정희*, 신상화, 이재민

TUV Rheinland Korea, 서울특별시 구로구 디지털로31길 41

*junghee.son@kor.tuv.com

1. 서론

해체 과도기 기간 동안 소요되는 비용을 산정하기 위해서는 해당 기간 동안 수행되는 각각의 활동이 해체 비용의 범위에 포함되는지 여부를 우선 결정해야 할 필요가 있다. 이러한 포함 여부는 해당 국가의 관련 법령이나 규제에 의하여 결정되는 경우가 많다. 따라서 향후 원자력 발전소 해체 시 정확한 해체 비용을 산정하고 안전하게 해체를 수행하기 위해서는 과도기 기간의 활동 특성과 그 범위에 대한 고찰을 통하여 해체 과도기 기간 동안 소요되는 비용에 대한 명확한 기준을 수립할 필요가 있다.

2. 본론

2.1 해체 과도기 기간의 활동

원자력 발전소가 운영을 정지한 이후부터 실질적인 해체 활동이 착수되기 이전까지의 해체 과도기 기간 동안 해체 프로젝트에 대한 전반적인 준비 활동이 필요하다. 이러한 해체 과도기 기간의 활동은 주로 해체 준비 활동(Pre-decommissioning actions)과 시설 정지 활동(Facility shutdown activities)으로 구성되며 그에 수반되는 보안, 물품조달, 폐기물 관리 활동 등이 부수적으로 수반된다. 해체 과도기 기간의 활동을 Table 1에 나열하였다. 이러한 과도기 활동들의 주된 목적은 향후 해체 수행시 위험요소들을 시설에서 제거하여 시설을 안정화 시켜 안전한 해체가 수행될 수 있도록 하는 것이다.

Table 1. List of Transition activities

활동	내용
해체준비활동 (Pre-decommissioning actions)	해체 계획 수립
	시설 특성 조사
	인허가 관련 안전, 보안 및 환경평가
	폐기물 관리 계획 수립
	해체 인허가
	관리 및 입찰 준비

시설정지활동 (Facility shutdown activities)	시설 정지 및 점검
	시스템 배수 및 건보
	폐쇄 시스템(losed systems) 제염
	방사학적 재고량 조사
	운영폐기물 및 잔여 물질, 시스템 배수액제 제거

2.2 해체 과도기 기간의 비용

Table 2는 미국 NRC에서 제시하는 해체 기간별 비용을 나타낸 것이다.

Table 2. Decommissioning cost distribution by time period - PWR [1]

해체 비용 (단위: 백만달러, 2000년도 기준)					
단계	1단계	2단계	3단계	4단계	총합
기간(년)	2.5	0.6	6.3	1.7	11.1
비용	14.3	56.9	10.8	151.7	233.7
비율	0.06	0.24	0.05	0.65	

표에 표시된 1단계, 2단계, 3단계, 4단계는 각각 계획수립 및 준비 단계, 시설 안정화단계, 안전 보관 단계, 해체 수행 단계를 의미한다. 계획 수립 및 준비 단계에서는 전반적인 엔지니어링 관련 활동과 계획수립 활동 등을 포함하며, 시설 안정화 단계에서는 이와 더불어 일차적인 건물 제염 활동 및 원자로 압력용기 내부 구조물 제거 활동 등을 포함한다. 안전 보관 단계에서는 시설의 안정화 단계가 완료되고 난 후 해체 작업이 시작되기 전까지의 시설 모니터링 및 관련 비용 등이 포함되어 있다. 마지막으로 해체 수행 단계에서는 실제적인 구조물에 대한 해체 활동이 포함된다. 이중 과도기에 속하는 1단계, 2단계 비용이 차지하는 비율은 전체의 약 30%로 그 비중이 적다고 보기 어렵다. 특히 해체 과도기 기간에 수행하는 시설 특성 조사는 시설의 핵종 재고량 조사 및 해체 작업 계획 수립, 폐기물량 산정 등을 위한 기초 자료가 된다. 따라서 부정확한 시설 특성 자료는 해체 비용 산정시 추정 비용과 실제 비용의 차이를 유발하는 원인이 될 수 있으며 이

를 고려하여 볼 때 해체 과도기 기간 동안 수행되는 활동은 해체 비용 산정의 정확성과 관련되며, 따라서 해체 과도기의 활동은 전체 해체 비용에 있어서 중요한 부분을 차지하고 있다고 볼 수 있다.

2.3 해체 과도기 기간 활동의 특성

상대적으로 일상적인 작업이 없고, 수행 경험 자체가 부족한 해체 활동의 특성상, 시설에 대한 경험과 지식을 갖추고 있는 기존 운영인력에 의한 작업 지원이 필요하며 특히 해체 과도기 활동에서 이러한 점이 두드러진다. 다음은 IAEA에서 제시하고 있는 해체 과도기 활동시의 주요 현안이다.

- 사용후 핵연료의 제거 (Removal of spent fuel)
- 시스템 세척운전 (System clean out operation)
- 제염 및 오염 고착(Decontamination or fixing of contamination)
- 방사성 물질 및 위험물질 재고량 및 특성 조사 (Characterization and inventory of radioactive and hazardous material)
- 시스템 제거시 시설 기능 및 안전성 (Consideration of system)
- 시설내 이동 경로 설정(Preparation of a facility's rooms and buildings during transition)
- 내,외부 사고 방어 (Protection from external or internal events)
- 부품 제거 (Removal of minor components)
- 발생 폐기물 처리

상기 언급된 항목들 중에 대부분의 항목이 원활한 진행을 위하여 시설의 내부 구조 및 운전 이력 등의 정보를 요구하며 특히 시설 구조물 및 시스템을 직접 다루어야 하는 시설정지활동 (Facility shutdown activities) 항목에서 이러한 기존인력의 필요성이 커진다.

2.4 해체 과도기 기간비용에 대한 고려

앞서 언급한 바와 같이 해체 과도기 활동은 해체 활동 작수에 앞서 시설 내의 위험요소를 제거하고 시설을 안정화 시켜 해체 활동에 있어 안전을 도모하는 중요한 활동이다. 또한 이러한 활동을 위해서는 기존 인력의 지식 및 경험을 필요로 하는 경우가 많다. 그러나 시설 운영 단계에서 해체 단계로 넘어가는 과도기에는 시설 운영 조직

의 개편 및 축소가 동반될 수밖에 없으며, 이러한 과정에서 지식과 경험을 보유한 인력의 이탈은 해체의 안전성을 저해할 뿐만 아니라 불필요한 노력과 비용을 소비하게 하는 원인이 될 수 있다. 또한 IAEA 에서도 해체 수행을 위해 고려되어야 할 인자중의 하나로써 이와 같은 지식 및 인적 자원의 가용성 여부를 제시하고 있다. 따라서 해체 비용 산정과 그 결과를 검토하는 입장에서는 이러한 관점에서 과도기 활동 중 기존인력에 대한 의존도가 높은 활동, 즉 시설 정지 활동 (Facility shutdown activities) 에 대한 인력 확보 및 지식관리 방안 등을 고려해야할 필요가 있다.

3. 결론

해체 과도기 비용은 다른 비용항목들에 비하여 기존 인력에 대한 의존도가 높으며 따라서 과도기 활동을 수행할 때에는 자격을 갖춘 기존인력들의 지원이 필요하다. 그러므로 해체 비용 산정과 그 결과를 검토함에 있어서는 이와 같은 상황에 대한 고려가 필요하다. 향후 실무적인 차원에서 기존인력의 지원이 필요한 구체적인 작업 항목을 도출 하고 이러한 항목들이 원활하게 진행되기 위해서 고려되어야 할 사항들에 대한 추가적인 논의가 필요할 것으로 보인다.

4. 감사의 글

본 연구는 2013년도 원자력안전연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다. (원자력안전연구센터사업/ 원전 해체 안전성 및 지속성 확인을 위한 요소기술개발)

5. 참고문헌

- [1] U.S. NRC, Standard Review Plan for Decommissioning Cost Estimates for Nuclear Power Reactors, NUREG-1713, 1986.
- [2] U.S. NRC, Standard Format and Content of Decommissioning Cost Estimates for Nuclear Power Reactors, Regulatory guide 1.202, 2005.
- [3] IAEA, Transition from Operation to Decommissioning of Nuclear Installation, Technical Reports Series No. 420, 2004.
- [4] OECD/NEA, IAEA, EC, Cost Estimation for Decommissioning, 2010.

삼중수소 취급 핫셀의 구조

홍권표^{1*}, 서기석¹, 손종식¹, 안상복¹, 주용선¹, 조승연², 이현곤², 정기정²

¹한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길111

²국가핵융합연구소 ITER 한국사업단, 대전광역시 유성구 과학로 113

*kp8452@gmail.com

1. 서론

국제핵융합실험로(ITER)에 조사될 예정인 한국형 TBM(Test Blanket Module)은 조사 후에 한국으로 운송되어 핫셀 내에서 조사후시험을 거치게 된다. 이를 위해서는 시험핫셀에 적절한 반입설비와 삼중수소 취급설비 등이 갖추어져 있어야 하는데, 현재의 국내 핫셀시설은 구조상 TBM 반입이 불가능하고 또한 삼중수소 제거시스템 등이 갖추어져 있지 않다. 본 연구에서는 TBM 조사후시험을 위한 신규 핫셀시설 구축의 필요성과 반입설비의 개념 및 삼중수소 처리시스템의 개념을 제시하였다.

2. 본론

2.1 TBM 전용 핫셀의 필요성

현재 국내의 조사후시험 핫셀시설은 조사된 핵연료나 재료를 시험하기 위한 시설로서, 조사물질의 주된 핫셀 반입경로는 수조를 통과하는 습식 반입이다. 핵연료 절편, 재료시편 등 조사물질이 소형인 경우에는 건식경로로서 핫셀 측벽이나 천정에 매립된 시편 반입구를 이용하기도 한다.

ITER에서 조사되어 국내핫셀에 반입될 TBM은 Fig. 1에서 보듯이 직경 약 760 mm, 높이 약 1,700 mm 이고 무게는 약 1.2톤이다. 또 TBM을 운반하는 국제수송용기로는 현재 사용이 유력시되는 IR-800 수송용기는 외부직경이 1,300 mm (충격흡수재 제외) 이고 무게는 25톤이다.[1]

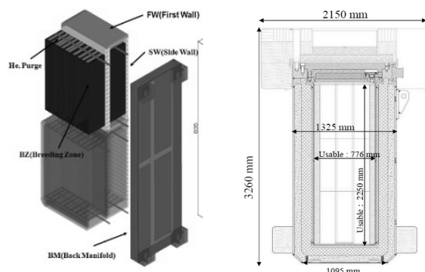


Fig. 1. Korean TBM(left) and IR-800 cask(right).

이 TBM의 크기는 국내 기존 핫셀의 반입구 크기보다 크므로 반입이 불가하다. 또한 TBM에 함유된 삼중수소의 오염확산 문제로 수조를 이용한 습식반입은 부적절하다.

이러한 문제를 해결하는 방안으로 기존시설을 개조할 수도 있으나, 공간부족 등의 기술적 문제가 있으며 경제적 측면, 이용효율적 측면에서도 부적절한 것으로 분석되었다. (Table 1 참조)

Table 1. Necessity of TBM hot cell

	Option 1 (신규핫셀 구축)	Option 2 (기존시설 활용)
시설의 적합성	TBM시험에 알맞은 시설을 구축하게 되므로 매우 적합	기존의 시설에 반입설비 및 삼중수소 취급설비를 추가해야 함.
시설의 활용도	4차례의 TBM 시험을 목적 외에 향후 핵융합관련 연구개발이 지속적으로 따르면 활용도를 높일 수 있음.	기존의 핫셀을 활용하므로 활용도는 높으나, 타 시험과 병행해야 하므로 시간적/공간적 여유가 부족.
비용편 익성	비용 많음. 활용도 좋음.	비용 적음. 활용도 적음.
종합평 가 및 제안	장기적인 측면에서 설을 구축하는 것이 바람직함.	핵융합연구용 전용핫셀을 구축하는 것이 바람직함.

본 연구에서는 신규시설 확보를 가정하여 필요한 설비 및 구조 등을 연구하였다.

2.2 TBM 핫셀의 반입설비

TBM 조사후시험의 전체 주요공정은 그림 2에 나타냈듯이 일반적인 핫셀시험과 마찬가지로 “반입 -> 해체 -> 시험준비 -> 시험 -> 폐기물처리”이다. 세부적인 내용에서 기존 조사후시험과 비교하여 특이한 점은 건식반입공정과 삼중수소 처리라 할 수 있다.

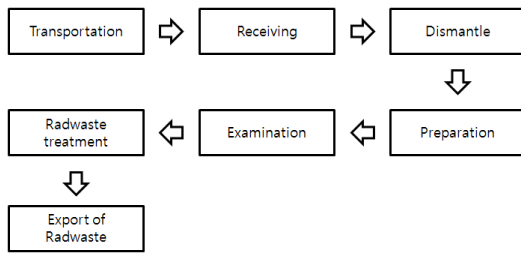


Fig. 2. PIE concept for TBM.

건식반입공정에 있어서는 공기분위기인 핫셀 바닥(지하층쪽)에서 핫셀 내부로 반입되는 방식을 선택하였으며, 이중차폐개념을 적용하여 반입과정 중에 방사선이 외부로 유출되지 않도록 하였다.

Fig. 3은 TBM 반입준비 상태의 핫셀 및 수송용기의 배치를 보여준다. 지하층에 위치한 수송용기는 지하층 측벽 개방 후 핫셀 하부로 이동되며 이후, 측벽 폐쇄 및 핫셀 바닥문 개방, 수송용기 뚜껑 개방, TBM 핫셀반입, 핫셀 바닥문 폐쇄의 과정으로 반입된다. Fig. 4에 반입과정을 순차적으로 나타내었다.

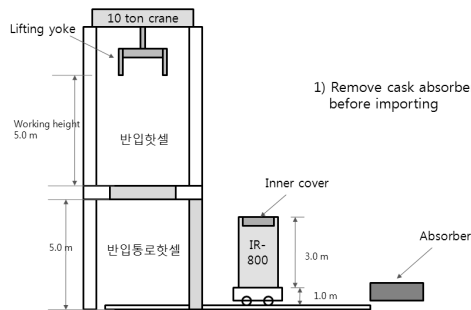


Fig. 3. Vertical view of hot cell and TBM cask.

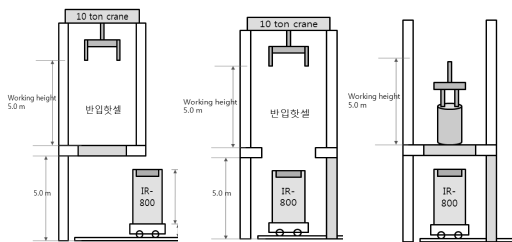


Fig. 4. TBM Receiving procedure.

2.3 삼중수소 처리설비

TBM을 핫셀내에서 다루는 과정에서 핫셀내부의 공기는 삼중수소에 오염되므로 이를 지속적으로 순환시키면서 삼중수소를 제거해야 한다. 삼중수

소 제거시스템(ADS, Air Detritiation System)은 핫셀 공기조화계통에 병합하여 구축하면 되는데, ADS의 구축시에는 핫셀 환기횟수를 대폭 줄이고 (~0.01 turn/h) 순환되는 핫셀 공기를 촉매 및 분자여과기 등에 통과시켜 삼중수소를 제거하고 이를 삼중수소수로 만든다. 핫셀 내에서 수집된 삼중수소수는 별도의 처리시설로 이송된다. Fig. 5는 핫셀 공기내 삼중수소 제거시스템의 개념을 보여준다.

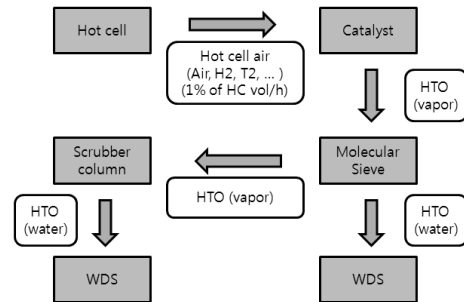


Fig. 5. Concept of ADS for TBM hot cell.

3. 결론

TBM 조사후시험을 위해 국내의 기존 핫셀 활용을 검토하였는데 기존 핫셀의 개조, 이용보다는 신규핫셀을 구축하는 것이 기술적으로나 경제적으로 적합한 것으로 분석되었다. 신규 TBM 핫셀 구축시, 필요한 건식반입설비의 개념을 제시하였다. 또한 TBM 취급 핫셀에서 공기 내 삼중수소를 지속적으로 제거하는 삼중수소 제거설비의 개념을 제시하였다.

현재의 TBM 조사시험계획에 따르면 조사된 TBM 반입예정은 2028년 11월인데, 약 10년간의 신규 핫셀시설의 설계, 건설, 시운전 기간 등을 고려하면 2018년 경에는 설계가 착수되어야 한다.

4. 감사의 글

이 연구는 국가핵융합연구소 ITER 한국사업단의 지원을 받아 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] S. Cho et. al., Design and R&D Progress of Korean HCCR TBM, Fusion Eng. Des. (2014).

산성용액에서 과산화수소의 분액첨가에 의한 Hydrazine 분해

이우성, 원휘준*, 김선병, 최왕규, 박상윤, 문제권

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*nhjwon@kaeri.re.kr

1. 서론

한국 원자력 연구원에서 개발된 화학제염제의 주성분은 Cu 이온과 hydrazine이다. 제염 후 hydrazine을 분해함으로써 2차 방사성폐기물의 발생량을 저감할 수 있다. Wellman등은 pH가 9~10인 조건과 Cu 이온의 존재 하에서 hydrazine은 질소와 물로 분해되는 것으로 보고하였다[1]. 또한 산성 조건에서의 분해연구도 물과 질소로 분해되는 경향을 보였다[2]. 그러나 과산화수소를 초기에 과량 투입한 조건에서 초기 20분 동안 과산화수소는 hydrazine의 분해제로서의 역할을 하지만 이후 분해속도가 급격히 감소하였다. 본 연구에서는 과산화수소를 분액 첨가함에 따른 hydrazine의 분해특성을 실험적으로 살펴보았다. Hydrazine 농도가 일정한 상태에서 pH와 온도를 변화시켰으며 Cu 이온이 hydrazine의 분해에 미치는 영향을 파악하였다.

2. 본론

2.1 실험 조건

Junsei사에서 제조한 80%의 hydrazine 용액, DUKSAN사에서 제조한 65% 질산용액을 사용하였다. Junsei사에서 제조한 35%의 과산화수소를 사용하였다. Cu 이온은 SHOWA에서 제조한 $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ 를 사용하였다.

Erlenmeyer flask에 0.04M hydrazine 100ml를 첨가한 후 water-bath 내에 넣었다. 50~80℃의 온도범위로 조정된 후 과산화수소를 10분 간격으로 분액 첨가하였다. 실험조건을 Table 1에 수록하였다.

Table 1. Experimental conditions

[N ₂ H ₄]	[Cu ²⁺]	[H ₂ O ₂]	pH	온도, °C
0.04M	0.0005M	초기 : 0.4ml		
	0M	10분 이후 : 0.3ml	2~5	50~80

2.2 N₂H₄ 농도 분석

Hydrazine은 p-dimethylaminobenzaldehyde와 산성용액에서 반응하여 노란색으로 변한다. UV spectrometer로 455nm 파장에서의 흡광도를 측정함으로써 hydrazine 농도를 분석하였다.

2.3 실험 결과

2.3.1 온도의 영향

분액첨가에 따른 hydrazine의 분해율 변화를 용액온도를 변화시키며 측정하였으며 이를 Fig. 1에 나타내었다. pH 4인 조건에서 온도상승에 따라 hydrazine의 분해율이 증가함을 나타낸다. Hydrazine 1mol은 정량적으로 과산화수소 2mol과 반응한다. 80℃에서 0.0046mol의 hydrazine을 사용하였으므로 hydrazine의 분해에 필요한 과산화수소의 양은 0.0092mol이지만 실험에서는 0.0292mol로 3배 이상의 차이를 보인다. 이는 0.02mol의 과산화수소가 열로 인해 분해되었음을 나타낸다. 낮은 온도에서도 hydrazine의 분해속도가 느린 것으로 나타났는데 이는 과산화수소의 열에 의한 분해가 많이 발생한 것에 의한 것으로 판단된다.

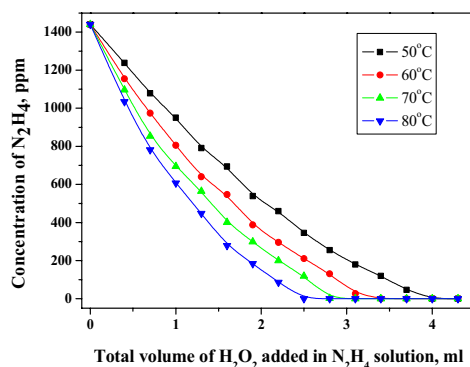


Fig. 1. Variation of [N₂H₄] against added volume of H₂O₂ under various temperatures([N₂H₄]=0.04M, [Cu²⁺]=0.0005M, pH 4).

2.3.2 pH의 영향

pH변화에 의한 hydrazine의 분해경향을 파악하

기 위해 과산화수소의 소량투입에 따른 분해율을 측정하였으며 그 결과를 Fig. 2에 도시하였다. 과산화수소의 양이 일정할 때, pH가상승함에 따라 hydrazine의 분해율이 증가하는 경향을 보여준다.

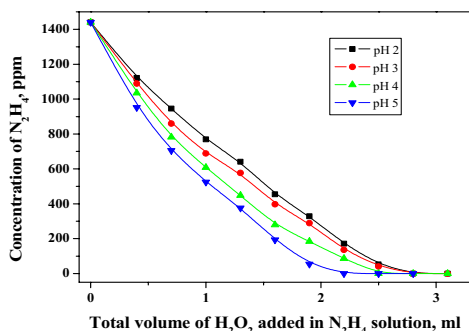
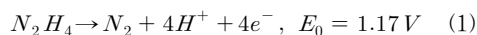


Fig. 2. Variation of $[N_2H_4]$ against added volume of H_2O_2 under various pHs ($[N_2H_4]=0.04M$, $80^\circ C$, $[Cu^{2+}]=0.0005M$).

pH 및 온도 상승에 따른 hydrazine의 분해율 증가는 hydrazine의 반쪽분해반응에 대한 산화전위 개념으로 설명이 가능하다. 이를 아래의 식(1), (2)에 나타내었다.



$$E = E_0 + \frac{RT}{F} pH + \frac{RT}{4F} \log \frac{[N_2H_4]}{P_{N_2}} \quad (2)$$

여기서 E_0 는 표준산화전위, F 는 Faraday상수, R 과 T 는 각각 기체상수와 절대온도를 나타낸다. Nernst식에서 보여 지는 바와 같이, 온도와 pH가 산화전위와 비례 관계에 있으며 산화전위가 높아짐에 따라 과산화수소와 hydrazine의 반응도 빠르게 진행함을 설명할 수 있다.

2.3.3 Cu 이온의 영향

Hydrazine의 분해에 미치는 Cu 이온의 효과를 파악하기 위해 과산화수소의 소량투입에 따른 분해율을 측정하였으며 그 결과를 Fig. 3에 도시하였다. 일정 양의 과산화수소를 첨가한 조건에서 Cu 이온이 포함된 용액이 포함되지 않은 용액에 비해 hydrazine의 분해율이 다소 높음을 보여준다. Zhong 등은 과산화수소에 의한 hydrazine의 분해에 Cu 이온이 영향을 미치는 것으로 보고하였다[3]. 하지만 본 실험에서는 Cu 이온이 포함된 용액과 포함되지 않은 용액의 차이는 실험오차

범위 내에 있으므로 Cu 이온이 분해반응에 거의 영향을 미치지 않는 것으로 파악된다.

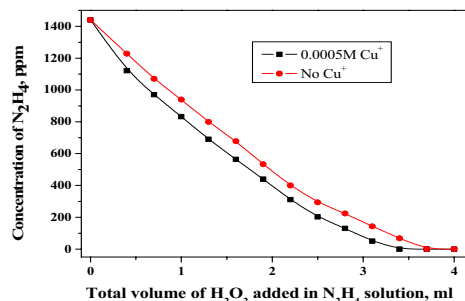


Fig. 3. Effect of Cu^+ ion on the decomposition of hydrazine ($[N_2H_4]=0.04M$, $60^\circ C$, pH 3).

3. 결론

본 연구로부터, 무착화성 화학제염제의 주성분인 hydrazine이 과산화수소의 분해첨가에 의해 100% 분해됨을 확인하였다. 본 결과를 적용함에 의해 제염 후 발생하는 hydrazine 함유 폐액의 처리에 있어서 2차 방사성 폐기물의 양을 크게 저감할 수 있음을 확인했다. 온도 및 pH 변화에 따른 분해율 차이를 hydrazine의 산화전위개념으로 설명할 수 있었다.

4. 감사의 글

본 논문은 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(NRF-2012M2A8A5025655).

5. 참고문헌

- [1] C. R. Wellman, "Kinetics of the Oxidation of Hydrazine by Hydrogen, Catalyzed by Hydrated Copper(II)", J. Am. Chem. Soc., Vol. 98, No. 7, pp.1683-1684(1976).
- [2] 이우성 등, "산성용액에서 과산화수소에 의한 Hydrazine의 분해 특성", 2013 한국방사성폐기물학회 추계학술대회 논문요약집, pp.397-398(2013).
- [3] Y. Zhong, "The Copper-Catalyzed Redox Reaction between Aqueous Hydrogen Peroxide and Hydrazine", J. Am. Chem. Soc., Vol. 111, No. 22, pp.8398-8404(1989).

용융제염 공정 후보선택을 위한 AHP식 접근법

조봉비, 김철민, 안석영*

부산대학교 부산광역시 금정구 장전2동 산30번지

*sahn@pusan.ac.kr

1. 서론

설계수명이 종료되었거나 원전정책의 변경, 사고 등의 이유로 해체되는 원전에서는 다량의 방사성 금속폐기물이 발생한다. 원전해체 과정에서 발생하는 방사성금속폐기물들은 부피감용이 1차 목표이며 용융공정을 통하여 방사능 오염도를 저감시키는 경우 재활용도 가능하다. 다양한 용융공정들은 각각의 장단점을 갖고 있으며, 미국, 독일, 일본, 프랑스 등 원전해체기술 선진국들은 각 해당 국가의 실정에 가장 적합한 용융공정을 이용하여 방사성금속폐기물에 대한 제염처리를 수행해 오고 있다. 국내에서는 용융제염에 관한 기초연구가 수행되었으며 원전 해체에 필수적인 기술인 용융제염에 대한 기술 확보가 시급하므로 다양한 용융공정에 대한 이해를 통하여 우리 실정에 가장 적합한 모델을 찾아야 한다. 본 연구는 각종 금속용융공정의 제염 응용 시 기술적 특성, 제염도(DF), 경제성, 안전성 및 효율성 등에 근거한 AHP의사 결정법을 이용한 평가를 통하여 적합한 금속용융제염 방안을 제시하고자 한다.

2. 본론

2.1 금속용융공정에 관한 선행연구 및 평가

2.1.1 금속용융공정의 선행연구

금속용융에 있어서 사용되고 있는 대표적인 공정들은 모두 적절한 설계변경 등을 통하여 제염 용융공정으로 변형될 수 있다. 원전해체 선진국에서 미리 선행 연구가 있었고 실제 개발된 공정들이 사용되어 지고 있다. 그 중에는 AIM의 사용빈도가 가장 높다. 그 다음 순위는 EAM이지만 단순히 제염효과만 본다면 VIM+ESR 및 PACHM이 더 뛰어나다고 볼 수 있다. [1-4]

2.1.2 용융공정에 대한 평가

각 용융공정은 장단점을 가지고 있으므로 어떤 공정을 선택하는가에 대한 적합한 평가를 하기 위해서 우선 해외선행연구를 통하여 조사, 평가하였다. PACHM공정은 열역학적 및 화학적 원리를 바탕으로 용융제염을 수행할 수 있으므로 뛰어난 제염효과가 기대되지만 설비비용이 다른 용융공정에 비하면 높다. VIM+ESR의 조합은 slag의 역할을 최대화 활용할 수 있으며 VIM공정은 밀폐된 진공시스템에서 수행하기 때문에 휘발성 방사성물질 및 먼지의 방출을 최소화 시킬 수 있다, 하지만 추가된 ESR 공정 및 공정 사이의 취급용이성 등을 본다면 경제성이 떨어진다. IM은 현재까지 가장 널리 쓰이는 용융방법이며 설비비용이 상대적 저렴하고 slag를 추가하여 용융제염에 특화된 개량된 IM공정은 경쟁력을 가지고 있다. 하지만 여전히 Co-60 등 제거하기 어려운 핵종들에 대한 효과는 부족하다. EAM은 가장 저렴하고 공정이 상대적으로 단순한 장점이 있지만 제염효과가 상대적으로 낮으며, 교차오염이 발생한 경우가 많았다.[1-4]

2.2 AHP기법의 적용

각 용융공정은 장단점이 있으므로 어느 공정이 더 용융제염에 적합하다고 판단하기 도구로서 복잡한 문제의 의사결정을 위한 AHP(계층분석법)를 이용하여 보았다.

2.2.1 계층구조 생성

용융제염공정의 후보 용융공정을 선정하는 절차에서 검토해야할 기준의 선택항목은 PACHM, EAM, AIM, VIM, VIM+ESR이며 안전성, 경제성, 제염도, 기술성, 효율성의 1단계 평가항목을 단계별 속성으로 세분화하여 평가하였다. Fig. 1과 같이 계층구조를 생성하였고 1차 요인에 영향 미치는 하위 요인들은 Fig. 2와 같다.[5]

Table 1. Melting Processes

IM	AIM	Air Induction Melting
	VIM	Vacuum Induction Melting
EAM		Electric Arc Melting
PACHM		Plasma Arc Cold Hearth Melting
ESR		Electroslag Melting

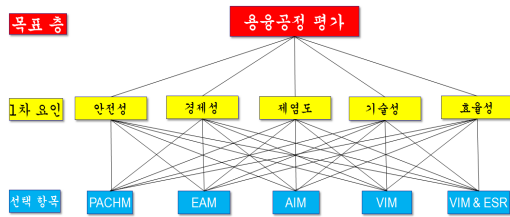


Fig. 1. AHP hierarchy structure for choosing a melting process.

상위 평가요소	안전성	경제성	제염도	기술성	효율성
하위 평가요소	작업자의 안전 용융공정의 안전 환경의 안전 교차오염	설비 및 설비 유지 비용 2차 폐기물 처리 비용	폐발성 핵종 및 방사성 연기에 제어 평균 제염도 제거하기 어려운 핵종에 제염도	공정의 복잡도 기술 난이도 기술 활용도	용융 속도 용융량 유연성

Fig. 2. The assessment factors of 1st and 2nd factors.

2.2.2 평가요소 간 쌍별 비교

Fig. 3의 상호비교 등급지수를 이용하여 1차 요인 간 쌍별 비교를 통하여 Fig. 4와 같은 결과를 얻었다. 즉 1차 요인의 중요도 순서는 안전성, 경제성, 제염도, 기술성, 효율성이 된다. CR값은 0.1보다 작으므로 분석한 결과는 일관성이 있고 유효하다.

등급연자	의미(2개의 선택기준 A와B의 중요도 상대등급)
1	동등하게 중요
3	약간 중요
5	매우 중요
7	확실하게 중요
9	절대적 중요
2,4,6,8	위 값들의 중간 값

Fig. 3. Definition of the scales.

	안전성	경제성	제염도	기술성	효율성	평균값	λ_{max}	W	W ₁	W ₂	W ₃	W ₄	W ₅	CI	CR
안전성	1.00	4.76	5.00	5.88	5.56	778.089	3.78622	0.53477	2.899511	5.421975					
경제성	0.21	1.00	1.33	4.55	3.70	471.3805	1.36356	0.193591	1.00022	5.189484					
제염도	0.20	0.75	1.00	4.00	2.33	1.395349	1.068099	0.150973	0.771673	5.11136					
기술성	0.17	0.22	0.25	1.00	0.69	0.008493	0.365166	0.051576	0.271274	5.259651					
효율성	0.18	0.27	0.43	1.44	1.00	0.030093	0.496242	0.070091	0.357536	5.101116					
							7.080087		5.217519	0.05403	0.046991				

Fig. 4. 1st Factor analysis results.

1차 요인 간 쌍별 비교와 같이 1차 요인에 대한 선택 항목 간 쌍별 비교를 수행한 최종 분석 결과는 다음과 같다. 5개의 용융공정의 순위는 VIM, VIM+ESR, PACHM, AIM, EAM이 된다. 최종 CR값은 0.039이며, 0.1보다 작으므로 일관성 조건을 만족하여 신뢰성이 있다고 볼 수 있다. [5]

Table 2. The results of final evaluation with weights

공정	가중치(W)
PACHM	0.20036
EAM	0.10094
AIM	0.16266
VIM	0.26686
VIM&ESR	0.17158

Table 3. Consistency review check

CI	RI	CR
0.04423	1.12	0.03949

3. 결론

- 과거 공학자들의 용융제염 공정의 주관적 및 객관적 판단으로 평가하던 각 용융공정에 대하여, 다중인자들의 선호도를 선정하고 보다 합리적으로 평가하여 적합한 용융공정을 선정할 수 있었다.
- 분석결과는 VIM이 용융제염 공정으로 가장 적합하다고 도출되었지만 PACHM 공정을 이용한 용융제염 기술개발, 기존 AIM을 용융제염에 적합하도록 개량한 형태 등 다양한 형태의 시도가 이루어지고 있으므로 추후 검토가 되어야 할 것이다.

4. 감사의 말씀

이 연구는 한국연구재단의 지원 (No. NRF-2012M2B2B1055503)과 방사선안전재단 (No. 1305009-0113-HD130)으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] Buckentin J. M., B. K. Damkroger, M. E. Schlienger, Radioactive Scrap Metal Decontamination Technology Assessment Report, Sandia Report, SAND96-0902, 1996.
- [2] Worchester S. A., L.G. Twidewell, D.J. Paolini, T.A. Weldon, R.E. Mizia, *Decontamination of Metals by Melt Refining/Slagging An Annotated Bibliography: Update on Stainless Steel and Steel*, Lockheed Idaho Technologies Company, INEL-95/0123, 1995.
- [3] Worchester S. A., L.G. Twidewell, D. Webber, D.J. Paolini, T.A. Weldon, R.E. Mizia, Editor, *Decontamination and Decarburization of Stainless and Carbon Steel by Melt Refining*, Lockheed Idaho Technologies Company, INEL-96/0146, 1996.
- [4] Seokyoung Ahn, *Decontamination of Radioactively Contaminated Metal Scrap by Plasma Arc Cold Hearth Melting (PACHM) Process*, 1999.
- [5] 이응찬, 채명신, *A Study on Key Success Factors of SCM Applying AHP*, 서울 벤처정보대학원, 2009.

우라늄함유 TBP 유기폐액 열분해 가스의 수증기개질 촉매로서 Rh₂O₃-CeO₂ 촉매 제조 연구

이민우*, 양희철, 황호상, 정동용, 문제권

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*mwlee27@kaeri.re.kr

1. 서론

Kerosene 이나 dodecane 으로 희석된 TBP(tributyl phosphate: (C₄H₉O)₃PO)는 핵연료변환공정에서 질산에 용해된 우라늄이나 플루토늄과 토륨 등의 추출에 사용된다. 이 공정에서 발생하는 폐유기용제는 가연성이므로 고온의 소각처리가 유효할 것으로 생각되나, TBP의 분해 시 발생하는 P₄O₁₀(g)가 인산으로 응축되어 부식이나 관 막힘 등을 일으켜 소각처리가 어렵다[1, 2]. 이를 개선하기 위하여 인성분의 회발 없이 저온에서 폐TBP 유기용제를 분해처리하고 발생하는 열분해 가스의 수증기개질 처리 공정을 개발하고 있다. 본 연구에서는 수증기개질 촉매로서 가장 효율성이 높은 것으로 알려져 있지만, 열적 안정성이 낮은 로듐계 촉매를 개선하기 위하여 Ceria를 첨가한 다양한 조성의 Rodium-Ceria계 수증기개질 촉매를 제조하고 그 열적 안정성을 분석하였다.

2. 실험 및 결과

2.1 실험

Aldrich사의 γ-alumina (입자크기<50 nm), 고순도 rhodium chloride (RhCl₃ · H₂O)와 cerium carbonate (C₃Ce₂O₉ · H₂O)를 사용하여 혼합용액 RhCl₃ · H₂O와 C₃Ce₂O₉ · H₂O를 γ-alumina 함침하여 Ce 함량이 각각 0, 1, 6, 12wt%로 조성이 다른 Rh₂O₃/CeO₂ 촉매를 제조하였다. 샘플을 함침 후에 120℃에서 24 시간 건조하고 각각 500℃와 800℃로 4 시간 동안 공기 분위기에서 소성하여 촉매를 제조하였다. 촉매의 제조 과정은 Fig. 1에 나타내었다. 촉매의 물리 화학적 특징은 XRD (Rigaku, D/MAX 2500H), XPS (Thermo Scientific, Multilab 2000), TEM (TEOL, 2100F), TEM/EDX (Oxford, INCA),TPR (Micromeritics, AutoChem II 2920)과 BET (Micromeritics, Tristar II 3020)를 이용하여 분석하였다.

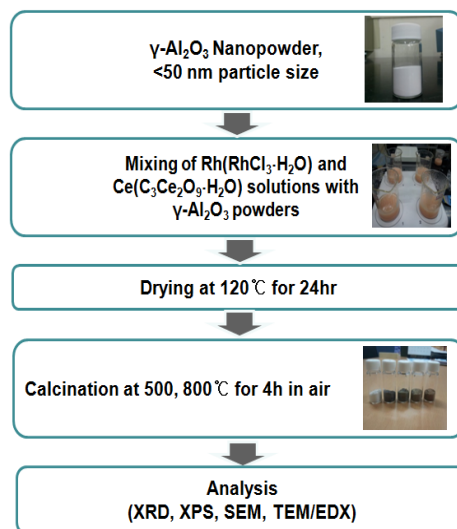


Fig. 1. The manufacturing process of the catalyst for steam reforming.

2.2 결과

소성온도 500℃와 800℃에서 소성된 Rh₂O₃와 CeO₂의 X선 회절분석을 Fig. 2에 나타내었다. 소성 온도가 증가함에 따라 Rh₂O₃와 CeO₂의 특성 피크의 intensity가 증가하였는데 intensity값의 증가는 결정구조의 결정성, 결정의 배향성 및 크기가 증가함을 의미한다. Cerium 첨가량이 증가함에 따라 CeO₂의 intensity가 증가함과 동시에 Rh₂O₃의 intensity는 감소하였다.

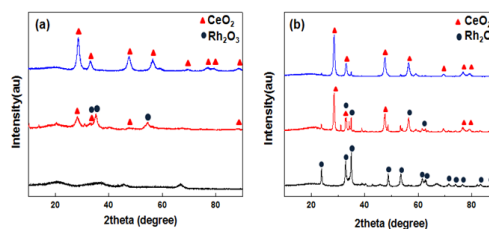


Fig. 2. X ray diffraction patterns of catalyst samples calcined at 500℃ (a) and 800℃ (b).

Fig. 3와 4은 촉매시료의 미세구조를 관찰하기 위하여 500℃와 800℃에서 소성시킨 촉매의 TEM 이미지를 나타낸 것이다. Fig. 3에서 볼 수 있듯이 500℃에서 소성된 모든 시료에서 rhodium 입자의 뭉침 현상이 보이지 않았지만 800℃에서 소성된 시료의 경우, Rh-Al 촉매에서는 rhodium 입자의 뭉침 현상을 보였다.

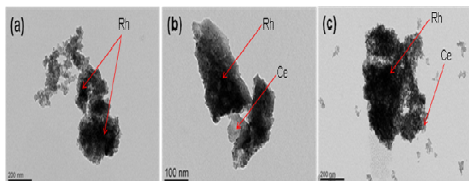


Fig. 3. TEM images of catalyst samples calcinated at 500 °C; (a) Rh/Al₂O₃, (b) Rh/Ce, (c) Rh/12Ce-Al₂O₃.

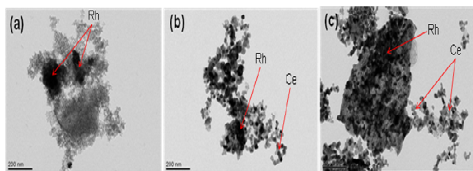


Fig. 4. TEM images of catalyst samples calcinated at 800°C; (a) Rh/Al₂O₃, (b) Rh/Ce, (c) Rh/12Ce-Al₂O₃.

그러나 cerium이 첨가된 촉매의 경우, 800 °C 소성된 시료도 입자의 뭉침 현상을 나타내지 않았다. 중요한 점은 Fig. 4(c)와 같이 cerium 첨가에 따라 촉매 표면에 rhodium 미세입자의 분산이 잘 이루어져 촉매입자가 형성된다는 것이다[3].

3. 결론

기존 열적 안정성이 낮은 로듐계 촉매에 Ceria와 나노 알루미늄을 적절히 첨가함으로써 고온에서의 안정성과 표면특성을 개선하여 고온용 수증기 개질 촉매로 사용가능함을 확인하였다.

4. 감사의 글

본 연구는 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(원자력연구개발사업, No. NRF-2012M2A8A5025658)

5. 참고문헌

- [1] Sasaki, T., Sone T., Koyama H. and Yamaguchi, H., J. Nucl. Sci. Technol. 2009, 46, 232-238.
- [2] Yang, H.C., Choi, W.K., Lee, K.W., Int. J. Chem. Reactor Eng., 2011, 8, 1-18.
- [3] H.C. Yang., M.W. Lee., H.S. Hwang., J.K. Moon., D.Y. Chung., Study of cerium-promoted rhodium alumina catalyst as a steam reforming catalyst for the treatment of spent solvents, Journal of Rare Earths., accepted., 2014.

원전해체용 로봇시스템에서의 실시간 방사선 및 핵종 측정 기술개발 동향

김민수*, 이용래, 박정원

(주)엑트알엠티, 대전광역시 유성구 테크노1로 11-3

*lyhkms@nate.com

1. 서론

해외원전해체시장은 2050년도에 약 1,000조의 시장으로 예측되고 있고 국내도 제6차 전력수급계획이 확정되어 34기의 원전이 해체 된다고 보면 향후 약 20조의 시장이 형성될 것으로 보인다. (6,033억원/호기 기준) 원전해체기술은 극한상황에서 적용하는 고 난이성 기술(특히 고방사선 구역), 다양한 분야의 기술이 결합된 종합엔지니어링 기술, 원전현장 특성을 반영해야하는 현장 특화기술의 성격이어서 원전해체에 경험이 있는 선진국도 이의 특성을 반영한 기술 개발에 주력 중이다. 본 논문은 원전해체시장에서 각광받게 될 로봇시스템 중에서 최근 개발되기 시작한 실시간 방사선 및 핵종을 측정할 수 있는 기능을 갖춘 로봇시스템의 기술 개발 동향을 알아보고자한다.

2. 본론

원전해체시장에서의 극한상황(고방사선 구역 및 현장접근성)에서의 로봇시스템은 선진국을 주축으로 많이 개발되고 있고 특히 작업모니터링 로봇의 경우, 세계 시장 규모는 현재 4,700억, 국내 시장 규모는 약 10억 정도로 추정하고 있다. 원전해체용 로봇 시스템의 경우, 모니터링기술, 내방사선기술, 공간인지기술, 통신기술, 로봇운용기술 등이 융합되어지며, 특히 미국의 MIT, CMU GATECH, Stanford 대학, 영국의 Oxford 대학, 독일의 Freiburg 대학 등과 일본의 Honda 등에서 다중센서 융합기반의 Visual SLAM 연구가 진행 중이다. 이외에도 iRobot, QinetiQ, North America, Kraft TeleRobotics 등이 다양한 크기와 형태의 로봇시스템을 개발 중이다. 국내도 한울로보틱스, 퍼스텍, ETRI, KAIST, 서울대, 유진로봇, 삼성종합기술원 등이 관련 기술개발에 주력하고 있다. 최근에는 모니터링기술, 내방사선기술, 공간인지기술, 통신기술, 로봇운용기술 기능의 특히 원전해체용으로 실시간으로 방사선 및 핵종을 측정할 수 있는 로봇이 개발 중인데 이러한 로봇의

경우, 원전 해체 시 작업자의 수동 측정에 의한 방사선 피폭을 감소시키고 정확한 핵종을 규명할 수 있는 이점이 있어 향후 기술 개발이 더 발전 될 것으로 예측된다.

로봇시스템에서 방사선 및 핵종 측정을 위하여는 감마선 Spectro-meter(MCA장착)가 로봇에 장착되어야하는데 현재 국내의 기술은 방사선량만을 측정하기 위하여 반도체 다중 목합 방사선 탐지기(PIN Diode 및 pMOSFET 방사선 센서 탑재-Fig. 1 “Configuration of the multi-component radiation dosimeter” 참조)를 장착하여 경수로용 및 중수로용으로 구분하여 사용코자 있으나 (Fig. 2 “Environmental monitoring robot system development work” 도면 참조) 해외의 경우 영국을 중심으로 최근 방사선 및 핵종을 동시에 잴 수 있는 장치가 개발되었다. (Fig. 3 The latest measurements of radiation and radionuclides robot system(Wall Crawl Type) 참조)

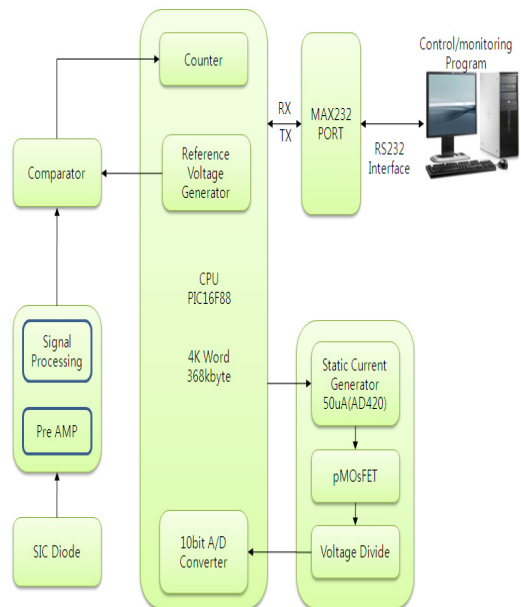


Fig. 1. Configuration of the multi-component radiation dosimeter.

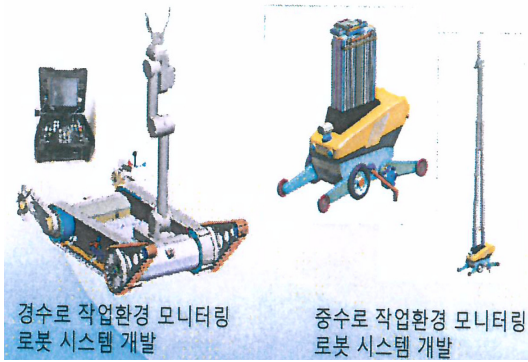


Fig. 2. Environmental monitoring robot system development work.

Table 1(British radiation and radionuclides measured robot system specifications)은 영국에서 개발된 최신 방사선 및 핵종 측정 로봇시스템의 일반 제원을 나타내었다.

Table 1. British radiation and radionuclides measured robot system specifications

구 분	제 원
크기	25x25x63mm
무게	60g
Detector 종류	CZT
Detector 크기	10mm3
측정에너지 범위	30keV-3MeV
분해능	<2% FWHM@662keV
최대측정치수(CPS)	30,000
Channel 수	4096
전기노이즈	<10KeV
비례비선형도	±1%

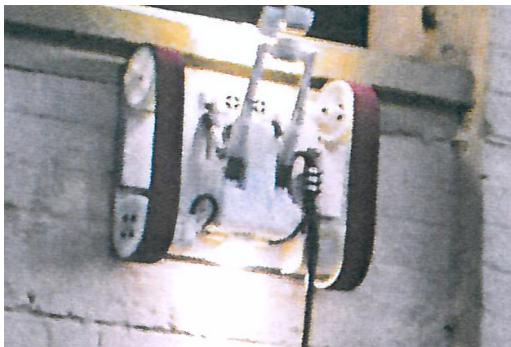


Fig. 3. The latest measurements of radiation and radionuclides robot system(Wall Crawl Type).

3. 결론

원전해체용 방사선 및 핵종 측정 로봇시스템은 후쿠시마 사고 이후 개발이 본격화되었고 방사선량만을 측정하는 것을 넘어서 핵종을 측정할 수 있는 로봇시스템이 선진국을 중심으로 개발되고 있다. 이러한 기술 개발은 초소형 및 초경량화 되는 Spectrometer 기술 개발에 기인하는 것이며 또한 반도체 검출기의 성능 개선도 기술 개발에 일익을 담당한다고 할 수 있다. 국내도 해외의 기술에 부합하는 방사선센서 기술을 한국 원자력연구원 중심으로 개발 중(반도체형 및 섬광체형 방사선 센서제작기술개발)이며 이러한 연구결과와 성과들은 향후 원전로봇시스템 시장에서 유용하게 적용되어질 전망이다.

4. 참고문헌

- [1] 원전해체안전연구센터 개소기념 학술심포지움 Proceeding.
- [2] 영국 Kromek Catalog.
- [3] 방사선기기 연구기반 구축사업 보고서, 2013, 한국 원자력연구원.
- [4] 원전고방사선구역 작업환경 모니터링 로봇시스템 개발 기획보고서.
- [5] 원전해체 기술역량 강화 워크샵 자료, 2013.5 한수원.
- [6] 2013 중소기업 기술로드맵(로봇응용), 한국산업기술평가관리원.

원전 일차계통 산화막의 반도체 특성에 따른 제염효과 고찰

박상윤^{1*}, 정준영^{1,2}, 원휘준¹, 황두성¹, 최왕규¹, 문제권¹

¹한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

²충남대학교, 대전광역시 유성구 대학로 99

*nsypark@kaeri.re.kr

1. 서론

원전 일차계통을 가장 효과적으로 제염하는 것은 모재 손상 없이 오염 산화막만을 제거하는 것이다. 그러나 실제 제염시에는 국부적으로 혹은 전체의 모재가 제염제에 노출되어 부식에 의한 손상이 어느 정도 발생하게 된다. 그러므로 모재의 손상을 최소화하고 오염 산화막만을 효과적으로 제거하기 위해서는 산화막의 물리화학적 특성을 잘 알아야 한다. PWR 일차 계통 표면에 형성되는 오염 산화막은 이중층으로 이루어졌으며, 외층은 Fe_3O_4 , NiFe_2O_4 등이고, 내층은 FeCr_2O_4 , Cr_2O_3 등 크롬성분이 주요 원소인 불침투성 산화막으로 되어있다[1]. 이와 같이 화학적 성분이나 결정구조 등의 물리적 특성이 유사해도 제염효과는 대상 발전소나 모재의 종류 등에 따라 많은 차이가 나는 것으로 알려져 있다[2]. 그러므로 본 논문에서는 산화막의 기계적 특성이나 물리 화학적 특성 이외에 산화막의 반도체 특성이 제염효과에 미치는 영향에 대한 고찰을 문헌연구를 통하여 수행하고자 한다.

2. 본론

Table 1은 원전 일차계통에서 채취한 304 스테인리스강과 Inconel-600 시편에 대하여 상요화된 여러 가지 제염방법으로 제염실험을 수행하여 얻은 제염결과를 나타낸다[3,4]. 동일한 NP-LOMI 제염공정을 적용한 경우라도 304 스테인리스강의 경우는 방사성 물질의 90 ~ 95%가 제거된 반면, Inconel-600은 30 ~ 67% 정도만 제거되었다. 오염산화막의 화학적 조성은 스테인리스강이나 Inconel-600의 경우 서로 비슷하여 외층은 Fe_3O_4 , NiFe_2O_4 등의 철 성분이 다량인 산화막이고, 내층은 FeCr_2O_4 , Cr_2O_3 등 크롬성분이 주요 원소인 불침투성 산화막으로 되어있는 것으로 알려져 있다.

반면에 스테인리스강 표면에 형성된 산화막과 Inconel-600 표면에 형성된 산화막의 반도체 특성

은 많은 차이를 나타내는 것으로 알려져 있다. 전해질내의 산화막의 반도체 특성은 다음과 같이 Mott-Schottky 관계식으로 표현된다[5].

$$\frac{1}{C^2} = \frac{1}{C_H^2} + \frac{2}{\epsilon_0 e N} \left(U - U_{FB} - \frac{kT}{e} \right) \quad (1)$$

여기서 N 는 주계 및 받계 밀도, ϵ 및 ϵ_0 는 산화막의 진공중의 유전상수, e 는 전자전하, k 는 볼츠만 상수, T 는 절대온도, U_{FB} 는 flat band 전위, C 및 C_H 는 산화막 및 Helmholtz layer의 capacitance이다. 산화막의 capacitance와 전위의 관계로부터 반도체 특성이 n형 혹은 p형이 결정된다.

Table 1. Effect of base metal on DF for the various decontamination process

Decon. Process	제염계수		참고 문헌
	304 SS	Inconel-600	
NP-LOMI	10 ~ 20	1.5 ~ 3	3, 4
AP-LOMI	2 ~ 10	2 ~ 4	3, 4
NP-Citrox	5 ~ 10	1.5 ~ 3	3, 4
AP-Citrox	2 ~ 5	2 ~ 4	3, 4
AP-NP-LOMI	-	4 ~ 8	3, 4

Fig. 1은 Ferreira[6] 등이 얻은 부동태 산화막에 가해진 전위와 C^2 의 관계를 나타낸 그림이다. Borate 완충용액에서 304 스테인리스강과 Inconel-600을 담그고 passive 영역의 전위를 2 시간동안 걸어주어 형성시킨 부동태 산화막을 가지고 수행한 실험 결과이다. 이 그래프에 의하면 선형특성을 나타내는 영역이 두 곳에서 나타나는데, 산화막내의 에너지 band가 휘어서 주계 혹은 받계의 결핍층이 형성되어 나타나는 Mott-Schottky 거동이다. 전극전위를 상대적으로 높은 양전위로 가해진 경우는 기울기가 양의 값을 가지므로 n형 반도체의 거동을 보이고 있으며, 상대적으로 낮은 음전위를 가해진 경우는 기울기가 음의 값을 가

지므로 p 형 반도체의 거동을 나타내고 있다. 두 합금의 경우 서로 비슷한 거동을 보이거나 capacitance 값은 큰 차이를 보이고 있다.

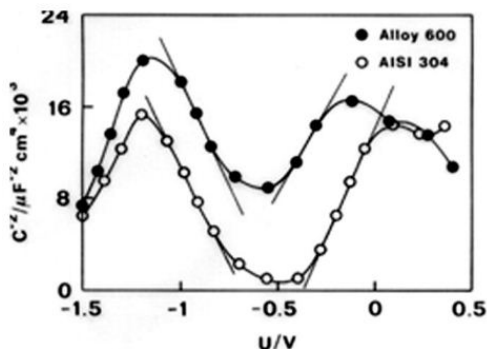


Fig. 1. Plots of C^2 vs. U for passive films on Alloy 600 and 304 SS[6].

Fig. 2는 전위에 따른 304 스테인리스강, Inconel-600 및 Ni의 capacitance 값을 나타낸 그래프인데 flat band potential 인 -0.5 V 근처에서 큰 차이를 보이고 있다. 즉 Inconel-600의 경우는 Ni 산화막과 거의 동일한 거동을 보여 Ni oxide 가 Inconel-600의 산화막 특성을 지배하고 있으나 304스테인리스강의 경우는 전혀 다른 거동을 보이고 있다. Flat band potential 근처에서 304 스테인리스강의 capacitance 값은 $30 \mu\text{F}/\text{cm}^2$ 으로써 이 값은 Helmholtz capacitance 값과 같아서 산화막의 capacitance 가 전혀 기여를 못하고 있다. 즉 이 경우 산화막은 부동태 특성이 아닌 전도체처럼 작용하게 된다.

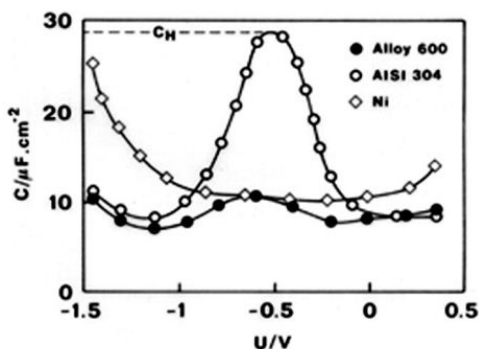


Fig. 2. Plots of C vs. U for passive films formed on Alloy 600, 304SS and Ni[6].

이 같은 현상은 제염용액의 전기화학적 포텐셜

에 따라 다양한 반응을 보일 수 있음을 의미한다. 그러므로 제염제-산화막 및 산화막-금속 간의 Mott-Schottky 거동을 측정함으로써 산화막 용해 거동을 해석하는 데, 즉 제염기구에 대한 좋은 정보를 제공할 수 있을 것이다. 또한 선형구간의 기울기로부터 구해지는 주계 및 반계의 농도, 내외층의 이질접합특성 등 다양한 반도체 특성이 측정되면 제염특성 해석 및 효과적인 화학제염방법 개발에 활용될 수 있을 것이다.

3. 결론

모재의 종류에 따른 산화막의 반도체 특성을 조사하여 제염효과와의 관련성을 파악해 보고자 하였다. 모재에 따라 flat band potential에서 capacitance 측정이 큰 차이를 보이고 있는데, 이는 제염효과의 차이와도 상관성이 있는 것으로 판단된다. 특히 제염효과가 큰 304 스테인리스강의 산화막은 capacitance 특성을 거의 나타내지 못하여 전도체처럼 거동을 하고 있었다. 추후 제염제 내에서 유사한 실험을 통해 Inconel-600 산화막의 효과적인 제염조건을 도출하고 또한 모재 손상을 최소화 할 수 있는 방안을 도출하고자 한다.

4. 참고문헌

- [1] Rolf Riess, Decontamination and Steam Generator Chemical Cleaning, Advanced Nuclear Technology International Europe AB, 2009.
- [2] D. Bradbury, Proceedings of the conference organized by the British Nuclear Energy Society and held in Bournemouth, UK, on 22-26 October 2000, Water Chemistry of Nuclear Reactor Systems 8., p.173, 2000.
- [3] VTT-R-00299-08 : ANTIOXI - Decontamination techniques for activity removal in nuclear environments.
- [4] EPRI NP-5522M: LOMI decontamination reagents and related preoxidation process, 1987.
- [5] L.A.S. Ries et al., Chemical composition and electronic structure of passive films formed on Alloy 600 in acidic solution, 50, pp.676-686, 2008.
- [6] M.G.S.Ferreira et al., Semiconducting Properties of oxide and passive films formed on AISI 304 stainless steel and Alloy 600, J. Braz. Chem. Soc., 13, 4, pp.433-440, 2002.

원자력시설 해체 작업환경 숙련도 향상을 위한 훈련 시스템

정관성*, 문제권, 최병선, 현동준, 이종환, 김익준, 김근호, 서재석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*ksjeong1@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력시설 해체 작업은 고방사능 및 고난이도의 환경에서 수행되기 때문에 작업 안전성 확보가 중요하다. 이를 위해서는 해체 작업자가 현장에 투입되기 전에 작업환경에 대해 충분한 훈련이 필요하다. 하지만, 지금까지는 해체 작업자의 숙련도를 향상시킬 수 있는 훈련 장치가 없었으며, 게다가 단순히 작업자 피폭선량을 법적 허용수치 이하로 유지하는 정도의 해체 작업 계획을 수립하는 게 전부였다. 따라서 기존 방법으로는 원자력시설 해체 작업을 수행하는데 있어서 사전 훈련 도구로써 한계가 많다[1][2].

본 연구에서는 원자력시설 해체 작업환경에 대하여 숙련도를 향상시킬 수 있는 해체 작업자 훈련 시스템을 개발하였다.

2. 본론

2.1 훈련 시스템 요건

해체 작업자 숙련도 향상을 위한 시스템을 설계하고 제작하기 위해 기능 및 성능 구현에 필요한 요건을 Table 1과 같이 도출하였다.

Table 1. Requirements of the training system

요건 항목	요건 내용
해체 시물레이션 처리	• 다양한 시나리오 시물레이션
해체 구조물 및 설비 자료 처리	• 해체 시나리오 변경에 따라 다양한 구조물 및 설비에 대한 데이터에 대한 변경이 용이하도록 유연한 시스템으로 설계
해체 작업자 동선에 따른 실시간 3D 가시화	• 해체 작업자가 작업경로를 따라 움직이게 되면 이와 함께 해체 구조물 및 설비 장면도 실시간으로 변경되어 작업자(1 인칭 모드)에게 보일 수 있도록 설계
해체 작업자 동선에 따른 실시간 측정	• 해체 작업자가 작업경로를 따라 이때 측정하고자 하는 자료가 실시간으로 측정될 수 있도록 설계
해체 작업자 동선에 따른 모니터링	• 해체 작업자의 동선을 관리자(3 인칭 모드)에게 모니터링 정보를 제공할 수 있도록 설계

해체 작업자 훈련 시스템은 해체 시나리오를 자유롭게 변경하여 해체 작업자의 숙련도를 높이기 위해서는 해체 시나리오를 가시화할 수 있을 뿐만 아니라 작업자 동선을 실시간으로 추적하고 이와 관련된 자료를 측정하여 분석 및 평가할 수 있도록 훈련 장치 설계에 대한 요건을 설정하였다.

2.2 훈련 시스템 구성

해체 작업자 훈련 시스템은 Fig. 1과 같은 구성으로 설계되었다. 해체 작업자가 HMD(Head Mounted Display)를 착용하게 되면, 해체 작업자 동선에 따라 3D 데이터가 HMD 및 모니터링 장치를 통해 실시간으로 변경 및 가시화되도록 가상환경의 시나리오 기반으로 개발되었으며, 해체 작업자가 실제 작업현장과 동일한 환경에서 작업하는 것처럼 체험할 수 있게 된다. 해체 작업자가 시나리오에 따라 이동하게 되면, 작업자 시선의 방향에 대한 변화 정보가 graphic server로 제공이 된다. 이때 graphic server는 방향에 상응하는 영상을 HMD에 1 인칭 모드로 표시해 주게 되며, 이때 작업 동선에 소요된 작업시간과 작업자 피폭 선량에 대한 정보가 HMD에 표시가 된다.



Fig. 1. Configuration of the training system.

2.3 훈련 시스템 적용

‘원자로 수조 밀봉환 설치’ 시나리오를 선정하여 해체 작업자 훈련 시스템에 적용함으로써 성능에 대한 검증작업을 수행하였다.

Fig. 2는 가상현실 속에서 해체 작업자가 HMD를 착용하여 1 인칭 모드로 움직임에 따라 '원자로 수조 밀봉환 설치' 시나리오의 작업경로에 대한 시뮬레이션 영상을 GUI(Graphic User Interface) 화면으로 보여주고 있다. Fig. 2를 살펴보면, 크레인으로 밀봉환 장치를 설치하는 장면을 해체 작업자가 HMD를 착용하여 1 인칭 모드로 바라보는 화면을 보여주고 있으며, 해체 작업자가 원자로 상부 플로어에 위치하여 물이 채워지는 모습을 내려다보는 장면을 화면으로 보여주고 있다.



Fig. 2. Operation of the training system in first mode.

Fig. 3은 해체 작업자가 원자로 상부 플로어에 있는 모습을 관리자(3 인칭 모드) 측면에서 바라보는 영상을 모니터링 장치를 통해 보여주고 있으며, 이때 해체 작업자의 피폭선량 및 작업시간에 대해 실시간으로 측정된 자료를 GUI 화면을 통해 보여주고 있다.



Fig. 3. Operation of the training system in third mode.

3. 결론

본 연구에서는 원자력시설 해체 작업자가 실제 작업환경과 동일하게 체험하여 훈련할 수 있는 시스템을 개발하였다.

본 연구는 원자력시설 해체 환경을 사전에 숙지함으로써 해체 안전성을 확보하는데 효과적인 방법이다. 따라서 본 연구는 해체 작업의 효율성을 높여 해체 안전을 극대화할 수 있을 뿐만 아니라 해체 비용 또한 크게 절감할 수 있을 것으로 예상된다.

4. 감사의 글

The research was supported by the Nuclear R&D Program through the Ministry of Science, ICT & Future Planning.

5. 참고문헌

- [1] Freitas V.G.G., Mol A.C.A., Shirru R., 2014, "Virtual reality for operational procedure in radioactive waste deposits", Progress in Nuclear Energy, 71, 225-231.
- [2] Mol A.C.A., Aghina M.A.C., Jorge C.A.F., Lapa C.M.F., Couto P. M., 2009, "Nuclear plant's virtual simulation for on-line radioactive environment monitoring and dose assessment for personnel", Annals of Nuclear Energy, 36, 1747-1972.

HVAC 필터를 유리화하기 위한 알루미늄 용융 조건 분석

장인선*, 이해현, 조현제

한수원(주)중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70

*insun@khnp.co.kr

1. 서론

원전에서 발생하는 HVAC 필터 내 알루미늄 호일을 유도가열식 저온용융로(CCIM)를 이용해 유리화하기 위해서 붕규산 유리 frit 및 $\text{Na}_2\text{O}(\text{Na}_2\text{CO}_3 \text{ 형태})$ 와 섞어 유리화 가능성을 평가하였다. 알루미늄 호일의 용융 조건을 알아보기 위해 실험실에서 전기로를 이용해 실험하였다.

2. 본론

2.1 실험 조건

보통 알루미늄 금속에 산소를 퍼징(purging) 해주면 산화되어 Al_2O_3 가 된다. 따라서 필터 폐기물에 포함된 알루미늄 호일은 CCIM으로 용융할 경우 산화물이 되어 유리 matrix로 전환된다. 실험에 사용한 유리 frit은 알루미늄 호일을 고려해 CE-8700으로 결정했고 조성은 B_2O_3 25.52%, SiO_2 57.14%, Na_2O 17.35%이다[1].

알루미늄 호일의 용융 조건을 알아보기 위해 Table 1과 같이 알루미늄 호일의 양과 유리 frit의 양을 달리하여 용융시켜보았다. 알루미늄 호일을 단독 용융할 경우 점도가 높게 나타나는 것으로 계산되어서 $\text{Na}_2\text{O}(\text{Na}_2\text{CO}_3 \text{ 형태})$ 를 첨가제로 사용해서 점도를 조절하였다.

Table 1. Mixed ratio of Al foil and glass frit(wt%)

	frit	Al foil	Na_2O
Al-20	80	20	-
Al-10	80	10	10
Al-40	50	40	10
Al-35	60	35	5
Al-25	70	25	5

실험 조건별로 예상되는 용융유리의 조성은 Table 2와 같다. 물리적 특성인 PCT(product consistency test), 점도(viscosity), 전기전도도(electric conductivity)는 GlassForm 1.1을 이용해 계산했다. 점도와 전기전도도 값은 1,150℃에서 예상되는 값이다.

Table 2. Composition and physical properties of candidate glass for sample(Al foil and glass frit)

Oxide	Al-20	Al-10	Al-40	Al-35	Al-25
Al_2O_3	32.08	17.35	55.75	50.43	38.65
B_2O_3	17.33	18.74	9.41	11.67	14.61
Na_2O	11.78	21.93	13.77	11.75	14.03
SiO_2	38.81	41.98	21.07	26.15	32.72
Sum	100	100	100	100	100
Si	> 0.01	0.13	> 0.01	> 0.01	> 0.01
PCT	B	> 0.01	0.89	> 0.01	> 0.01
(g/m ²)	Li	0.01	0.78	> 0.01	> 0.01
	Na	> 0.01	0.78	> 0.01	> 0.01
V(poise)	1153.13	87.07	4446.75	4179.53	1294.46
E.C.(S/cm)	0.12	0.31	0.14	0.12	0.15

2.2 실험 방법

실험 순서는 다음과 같다.

- ① 알루미늄 호일을 잘게 자른다.
- ② 알루미늄 호일과 frit을 비율에 맞게 섞어 점토 도가니에 넣는다.
- ③ 점토 도가니를 전기로에 넣고 10℃/min로 1,200℃까지 온도를 올린다.
- ④ 1,200℃ 전기로서 한 시간 유지시킨 뒤 꺼내어 잘 저어준다.
- ⑤ 다시 1,200℃ 전기로에 넣어서 한 시간 유지시킨 후 꺼내어 흑연 몰드에 부어준다.

2.3 실험 결과

2.3.1 시료 채취

Al-10을 제외한 나머지 시료들은 pouring할 때 잘 부어지지 않거나 아예 부어지지 않았다. 아예 부어지지 않은 Al-40, Al-35, Al-25는 점토 도가니를 깨서 단면을 살펴보니 알루미늄 호일이 모두 산화되어 금속이 생성되지 않았지만 재료 남아 존재했다.

HVAC 필터를 유리화 할 때 알루미늄의 양을 일정량 이상 첨가하면 고점도와 용해되지 않고 남은 재가 CCIM 운전할 경우 문제가 될 것으로 판단된다.

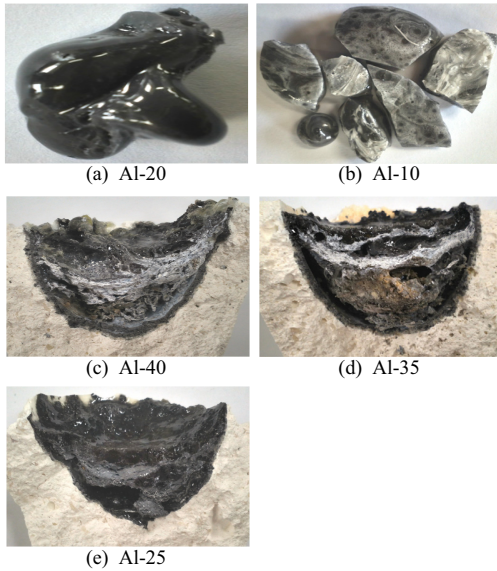


Fig. 1. Final products of sample(Al foil and frit).

2.3.2 SEM/EDS 분석

알루미늄 호일이 산화되어 유리 frit에 잘 녹아들어갔는지 알아보기 위해 시료 일부를 취해 SEM/EDS 분석을 실시하였다. Al-40, Al-35, Al-25의 경우 재를 제외한 유리부분을 분석했다.

EDS 분석결과 알루미늄 호일은 모두 산화되어 Al 금속결정이 발생하진 않았지만, Al-40, Al-35, Al-25는 Al_2O_3 의 양이 20wt% 정도로 나타났다. 이는 알루미늄 호일이 모두 산화되었지만 유리 frit에는 20wt% 정도만 용해되고 남은 산화물은 도가니 내부에 남아있던 것으로 확인된다.

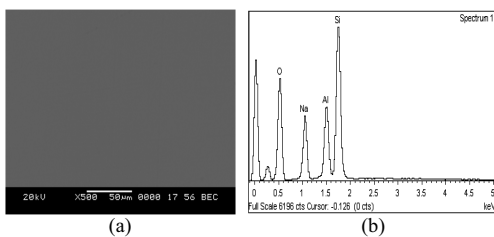


Fig. 2. Al-20: (a) SEM micrograph, (b) EDS spectrum.

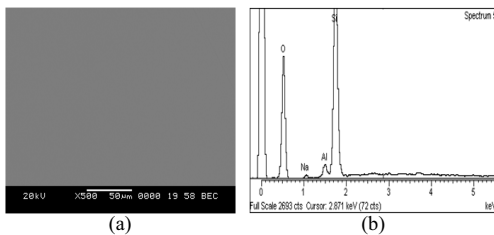


Fig. 3. Al-10: (a) SEM micrograph, (b) EDS spectrum.

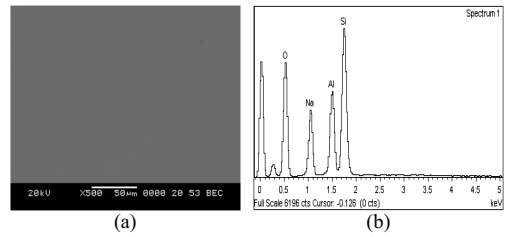


Fig. 4. Al-40: (a) SEM micrograph, (b) EDS spectrum.

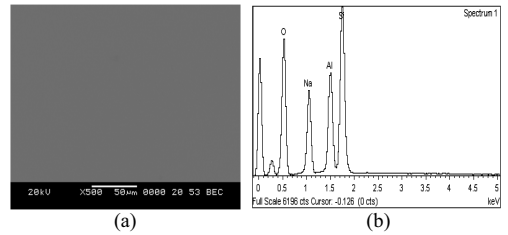


Fig. 5. Al-35: (a) SEM micrograph, (b) EDS spectrum.

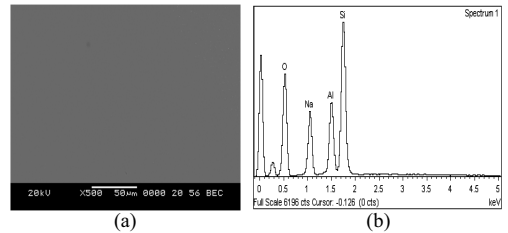


Fig. 6. Al-25: (a) SEM micrograph, (b) EDS spectrum.

3. 결론

5가지 조성의 실험 결과 Al-10 유리조성의 경우 점도와 전기전도도등의 운전변수가 양호하고 상안정성도 우수한 것으로 확인되었다.

알루미늄 호일은 Al_2O_3 로 잘 산화되지만 Al_2O_3 의 함량이 20wt%를 넘어가면 유리구조 속으로 모두 용해되지 않고 재로 남아있음을 확인되었다. 따라서 CCIM을 이용해 HVAC 필터 폐기물을 유리화할 경우 알루미늄 호일의 양은 예상되는 용융유리의 조성에서 Al_2O_3 의 양을 고려해 투입해야 할 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

- [1] 한국수력원자력(주) 중앙연구원, “한울 유리화 설비 운영기술 및 설비최적화 연구개발”, 중간 보고서(2014).

표면온도제어장치를 이용한 LiCl 염폐기물의 탈염화 특성

조인학^{1*}, 박환서², 이기락², 은희철², 박근일², 이영석¹

¹충남대학교, 대전광역시 유성구 대학로 79

²한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*choinhak@kaeri.re.kr

1. 서론

사용 후 핵연료의 우라늄을 회수하면서 동시에 부피감용과 처분 전처리 대안공정으로 개발되고 있는 건식처리(pyroprocessing)는 일련의 전해공정을 기반으로 하기 때문에 LiCl 또는 LiCl-KCl로 구성된 염화물계 방사성 폐기물이 발생된다. 금속염화물은 높은 휘발특성과 높은 용해특성으로 인하여 유리고화 공정이나 시멘트 고화공정과 같은 기존의 고화방법에 적용하기 어렵기 때문에, 금속염화물의 물리화학적 특성을 변화시켜 고화에 용이한 물질로 전환하는 것이 필요하다. 미국의 ANL에서는 제올라이트를 이용하여 염화물을 sodalite($\text{Na}_8\text{Al}_6\text{Si}_6\text{O}_{24}\text{Cl}_2$)로 전환하는 방법을 제안하였는데, 수화학적 안정성은 우수한 반면 최종처분부피가 10배 이상 증가하는 단점을 가지고 있다. 또한 인산염유리를 이용한 고화방법도 연구되었지만, 최종 처분되는 부피는 상대적으로 낮으나 낮은 수화학적 안정성과 아울러 용융장치의 부식에 대한 문제가 발생된다. 이러한 직접 고화방법과 아울러 최종처분부피의 감소를 위해 공용용염 내 핵종분리를 통하여 배출되는 폐기물을 최소화하는 방법이 연구되어 지고 있다. 이러한 공정을 통해 배출되는 폐기물은 여전히 공용용염이 잔존하여 배출되므로, 직접고화 및 핵종분리를 통한 고화를 고려할 때, 항상 공용용염의 안정화에 대한 고려가 필요하다. 이러한 특성을 고려하여, 공용용염이 가지는 열적 화학적 불안정성을 제거하는 방법으로, 무기합성복합체를 이용하여 탈염화 후, 고화매질을 이용하여 고화하는 방법이 연구, 개발되었다.

본 연구에서는 염화물계 폐기물인 LiCl 염폐기물의 탈염화를 효과적으로 수행하기 위해 무기합성매질인 U-SAP을 이용하여 Lab-scale 반응기의 표면온도 변화에 따른 모의 LiCl 염폐기물의 탈염화 특성을 관찰하였다.

2. 본론

무기합성매질인 U-SAP($\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-P}_2\text{O}_5$)은 원료 물질로서 TEOS(tetraethyl orthosilicate), aluminium(III) chloride(AlCl_3), phosphoric acid(H_3PO_4), FeCl_3 그리고 boric acid(H_3BO_3)를 사용하여, 에탄올/중류수에 녹인 혼합물을 졸겔법(sol-gel)으로 70℃~90℃에서 5일간 숙성 및 겔화, 110℃에서 2일 동안 건조시킨 후, 650℃에서 6시간 열처리하여 제조하였다. 시험에 사용된 모의 염폐기물은 LiCl 90wt%, CsCl 6.8wt%, SrCl_2 3.2wt%이며, 무기합성매질과 금속염화물의 혼합비는 무게비로 2:1로 수행하였다. 반응 시간은 50~70 h, 반응온도는 표면온도를 기준으로 600~750℃까지 단계적으로 증가시켰다.

Fig. 1은 무기합성매질 1.2kg과 LiCl계 금속염화물을 0.6kg 혼합한 시료의 온도에 따른 탈염화반응의 결과를 나타낸 것이다. 반응온도는 초기에 600℃부터 시작해서 50℃간격으로 단계적으로 700℃까지 수행하였다. Fig. 1에서 볼 수 있듯이, 반응온도에 따라 변곡점이 나타났다. 초기 600℃에서 반응속도는 급격하게 증가되었으며, 이 때 금속염화물의 탈염화 반응율은 약 50%였고, 반응속도는 $31\text{g}/\text{min}\cdot\text{m}^2$ 이었다. 650℃에서도 반응속도와 반응율은 큰 폭으로 증가되지는 않았다. 반응온도가 700℃ 이상일 때는 반응율이 크게 증가되었다.

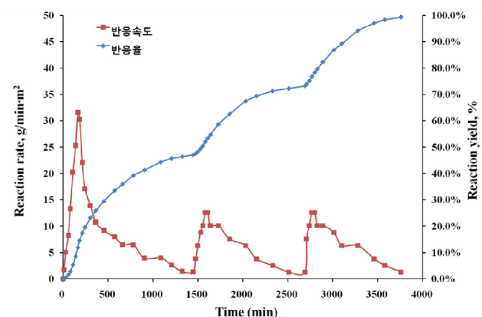


Fig. 1. Results of LiCl dechlorination by using U-SAP at 600℃~700℃.

Fig. 2는 무기합성매질 1.2kg과 LiCl계 금속염화물을 0.6kg 혼합한 시료의 온도에 따른 탈염화반응의 결과를 나타낸 것이다. 반응온도는 초기에 650℃부터 시작해서 50℃간격으로 단계적으로 750℃까지 수행하였다. Fig. 2에서 볼 수 있듯이, 반응온도에 따라 변곡점이 나타났다. 초기 650℃에서 반응속도는 급격하게 증가되었으며, 이 때 금속염화물의 탈염화 반응율은 약 55%였고, 반응속도는 37g/min·m²이었다. 700℃와 750℃에서는 반응속도와 반응율은 큰 폭으로 증가되지는 않았다.

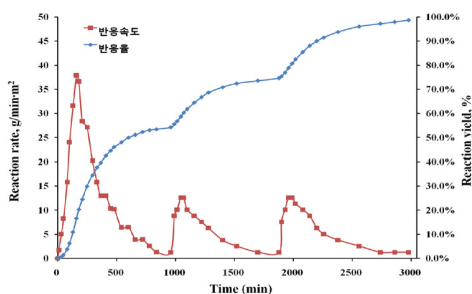


Fig. 2. Results of LiCl dechlorination by using U-SAP at 650℃~750℃.

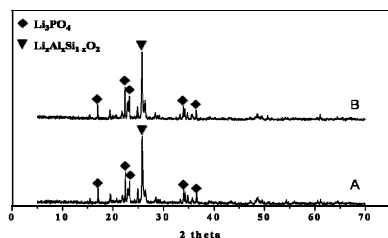


Fig. 3. XRD pattern of reaction products after dechlorination by U-SAP/Salt.

U-SAP과 salt의 탈염화반응 생성물의 XRD결과를 Fig. 3에 나타내었다. A는 반응온도 600℃~700℃까지, B는 반응온도 650℃~700℃까지 탈염화 생성물이다. 주 결정상은 Li₃PO₄, Li_xAl_xSi_{1-x}O₂로 기존의 SAP시스템을 이용한 생성물의 구조를 유지하고 있음을 확인하였다. 탈염화 반응온도에 따른 생성물의 결정상은 크게 다르지 않음을 확인할 수 있었다.

Fig. 4는 탈염화반응 후의 생성물의 열중량분석 결과를 나타낸 것으로 A는 반응온도 600℃~700℃까지, B는 반응온도 650℃~700℃까지의 생성물이다. B보다 A의 감량이 상대적으로 낮게 나타남을 확인할 수 있었다. 금속염화물의 탈염화를

위해서는 용융온도 이상으로 설정해야 높은 탈염화 반응속도와 반응율을 얻을 수 있음을 알 수 있었다. 하지만, 반응 초기부터 금속염화물의 용융온도 근처의 온도로 설정할 시 초기에만 급속한 탈염화 반응이 진행되고, 반응에 소요되는 시간이 늘어나는 경향이 확인되었다.

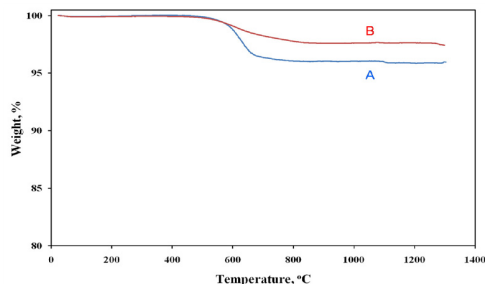


Fig. 4. Thermo gravimetric analysis of reaction products.

3. 결론

본 연구에서는 금속염화물의 열적 및 화학적으로 안정한 형태로 전환하기 위해 Lab-scale 반응기에서 표면온도를 제어함으로써 U-SAP을 이용한 LiCl 염폐기물의 탈염화 특성을 관찰하였다. 그 결과 초기에는 표면온도를 금속염화물의 용융온도보다 높은 온도로 탈염화 반응을 수행해서 단계적으로 온도를 올리는 것이 반응율과 반응속도가 효과적임을 확인하였으며, 이 때 배출된 생성물의 열적 안정성이 보다 높음을 알 수 있었다.

4. 참고문헌

- [1] Environmental Science and Technology, "Stabilization/solidification of radioactive molten salt waste via gel-route pretreatment", 41, 1345-1351, 2007.
- [2] Journal of Non-Crystalline Solids, "Candidate wasteforms for the immobilization of chloride-containing radioactive waste", 348, pp. 225-229, 2004.
- [3] Environmental Science and Technology, "Stabilization/solidification of radioactive salt waste by using xSiO₂-yAl₂O₃-zP₂O₅ (SAP) material at molten salt state", 42, 9357-9362, 2008.

파이로그린 공정 발생 회토류 산화물 유리화 특성 연구

이혜현*, 이병관, 조현준

한수원(주)중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70

*hvehyun@khnp.co.kr

1. 서론

파이로프로세싱의 종전 제염계수를 20배 이상 증가시켜 사용후핵연료 재활용공정에서 발생하는 모든 고준위폐기물을 중준위로 변환하는 파이로그린(PyroGreen)공정에 대한 검증연구가 수행되고 있다. 파이로그린공정의 염폐기물처리과정에서 Y, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd 등 회토류 핵종을 포함하는 공용염폐기물이 발생하는데 여기서 회토류 핵종을 분리하여 적정한 방법으로 고화 처리하여야 한다. 따라서 본 연구에서는 PWR 사용후핵연료 속에 포함된 회토류의 구성비율을 이용하여 회토류 산화물 8핵종 폐기물을 붕규산 유리계 내에서 유리화 하고 용해도, 상안정성, 점도 및 전기전도도 측정 등을 통해 유리화 타당성을 평가하고자 하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

베이스유리 산화물 4종 B_2O_3 , Li_2O , Na_2O , SiO_2 와 회토류 산화물 8종 CeO_2 , Eu_2O_3 , Gd_2O_3 , La_2O_3 , Nd_2O_3 , Pr_2O_3 , Sm_2O_3 , Y_2O_3 을 20~40wt% waste loading하여 붕규산 유리계 PG4~PG9을 제조하였다. 주요 성분 조성을 Table 1에 나타내었으며, 회토류 산화물 조성은 사용후핵연료 속에 포함된 회토류폐기물의 핵종별 비율에 근거하였다[1].

회토류폐기물 유리고화체 조성에 맞게 혼합되어진 화학시약을 알루미늄 도가니에 담아 전기로에 넣은 후 분당 10℃로 상승시켰다. 용융온도 1,200℃에서 1시간 유지 시킨 후 도가니를 꺼내 용융물을 혼합한 후 다시 전기로에 넣어 15분 후 흑연몰드에 부어 자연 냉각하였다.

2.2 실험결과

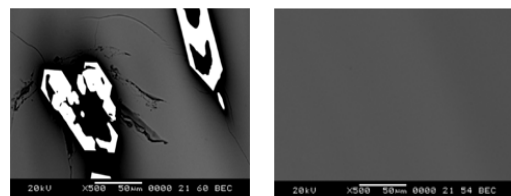
2.2.1 용해도 평가

회토류 산화물을 20~40wt%로 변화를 주어 1,20

0℃에서 용융 제조된 시료를 SEM/EDS 측정하여 Fig. 1에 결과를 나타내었다. 25~40wt% waste loading한 PG4~PG8의 경우 유리세라믹으로 회토류-oxide-silicate의 이차상이 형성되었으나, 20wt% waste loading한 PG9은 결정상 없이 균질한 유리상을 나타내었다. 따라서 붕규산 유리계 내 회토류 8종 혼합에 대한 solubility는 1,200℃에서 25wt% 미만 waste loading인 것으로 판단되었다.

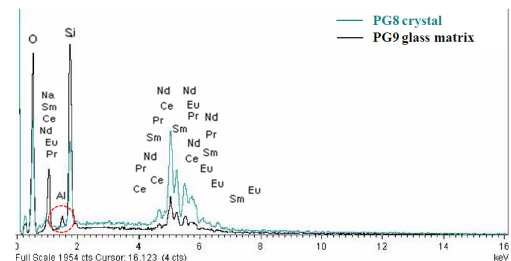
Table 1. Compositions of candidate glasses(wt.%)

Oxides	PG4	PG5	PG6	PG7	PG8	PG9
B_2O_3	7.38	8.00	8.00	10.00	10.71	11.43
Li_2O	2.77	3.00	3.00	3.00	3.21	3.43
Na_2O	15.69	17.00	24.00	22.00	23.57	25.14
SiO_2	34.16	37.00	35.00	35.00	37.51	40.00
CeO_2	9.51	8.32	7.13	7.13	5.94	4.75
Eu_2O_3	0.54	0.48	0.41	0.41	0.34	0.27
Gd_2O_3	0.46	0.40	0.34	0.34	0.28	0.23
La_2O_3	4.67	4.08	3.50	3.50	2.92	2.33
Nd_2O_3	15.42	13.50	11.57	11.57	9.65	7.71
Pr_2O_3	4.47	3.91	3.35	3.35	2.79	2.23
Sm_2O_3	2.98	2.61	2.24	2.24	1.86	1.49
Y_2O_3	1.95	1.71	1.46	1.46	1.22	0.98
Waste Loading	40	35	30	30	25	20



(a) PG8

(b) PG9



(c) EDS spectrum of PG8 crystal and PG9 glass matrix

Fig. 1. SEM/EDS analysis for solubility evaluation.

2.2.2 상안정성 평가

PG9의 EDS 측정 결과 Fig. 1(c)에서 Al이 분석된 것을 볼 수 있다. 알루미나 도가니에서 Al_2O_3 가 붕규산 유리계로 녹아 들어온 것으로 판단된다. 동일한 조건으로 PG9을 백금 도가니를 사용하여 제조하여 SEM/EDS를 측정한 결과 Fig. 2에서 직경 $5\mu m$ 이하, nodule 형태의 상분리(phase separation)가 관찰되었다. 이는 당초 PG9 성분의 경우 상분리가 발생하는데 Al_2O_3 로 인해 상분리가 방지될 수 있음을 알 수 있었다. 다시 말해, 상분리를 방지하기 위해서는 Al_2O_3 를 첨가해 주어야 한다. Al은 3가 양이온이기 때문에 구조상 사면체를 형성하지 못해 주변 Na^+ 이온을 소유하기 때문이다. 상분리된 부분을 EDS 측정한 결과 Na, Si의 함량 차이가 크게 나지 않는 것으로 보아 B의 차이에 의한 것으로 보인다. PG9의 EDS 측정 결과를 바탕으로 B/Li+Na=0.648 mol%의 Al_2O_3 를 첨가해 주었더니 1% 미만으로 상분리가 현저히 감소되었지만 유리 용융시 점도가 비교적 높았다. Al_2O_3 량이 많으면 점도가 높아져 운전용이성에 문제가 되므로 B/Li+Na=0.508~0.648 mol% 범위 내로 Al_2O_3 량을 조절해야 할 것으로 판단된다.

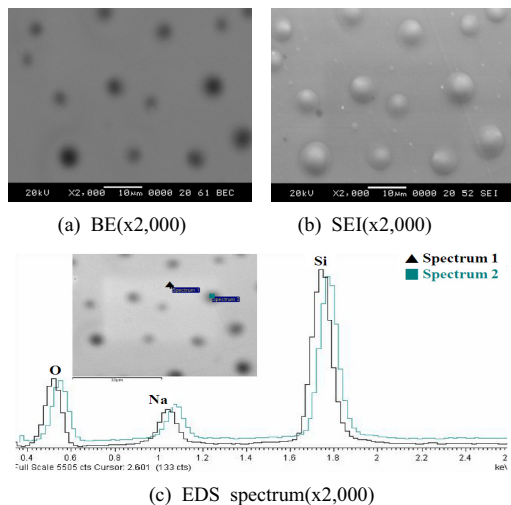


Fig. 2. SEM/EDS analysis for phase separation(B/Na=0.508).

2.2.3 운전 용이성 평가

유리제조의 운전용이성 평가에 필요한 점도와 전기전도도를 측정한 결과를 Fig. 3에 나타내었다. 일반적으로 운전이 용이한 점도는 100 poise 이하, 전기전도도는 1 S/cm 이상으로 PG9의 경우 용융온도 1,200에서 점도 100 poise 이하, 전기전도도 1 S/cm 이상을 나타내고 있어 유도가열식

저온용융설비에서의 운전 용이성이 매우 양호한 것으로 평가되었다.

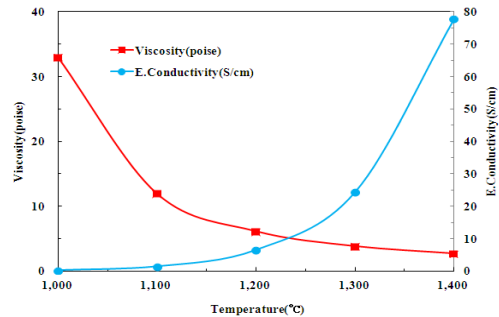


Fig. 3. Viscosity and Electrical conductivity.

3. 결론

PWR 사용후핵연료 속에 파이로그린공정 중 발생하는 희토류 8핵종 폐기물의 유리화 타당성 평가를 위하여 6종의 붕규산 유리조성을 개발하였다. 8종의 희토류 산화물 혼합에 대한 solubility는 1,200°C에서 25wt% 미만 waste loading으로 나타났으며 점도 100 poise 이하, 전기전도도 1 S/cm 이상으로 유도가열식 저온용융로설비에서의 운전 용이성이 매우 양호한 것으로 평가되었다.

향후 연구에서는 상분리가 용이한 조성으로 확인됨에 따라 Al_2O_3 를 첨가하여 새로운 base glass 성분변화를 통한 추가 20wt% waste loading 후보유리조성 개발, 유리의 화학적 내구성 평가를 위한 침출시험(PCT) 수행, 유리세라믹 내 결정의 미세구조 분석을 위한 XRD (X-ray Diffraction) 측정, 고온 환경에서의 희토류 원소별 휘발특성에 관한 문헌조사 등을 계획하고 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 지원을 받아 2014년도 원자력연구개발사업 및 원자력선진기술연구센터과제를 통해 수행되었음(NRF-2011-0031839).

5. 참고문헌

- [1] Tae-Gyo Lee, Yong-Jun Jo, Hee-Cheol Yang, Han-Su Lee and In-Tae Kim, "Recycling technology of eutectic salt waste generated in oxide spent fuel pyroprocessing", Proceedings of the Korean Radioactive Waste Society Conference, pp. 169-170, November 2009.

Imidazolium을 기반으로 하는 이온성 액체를 이용한 우라늄추출

박민성, 김익수, 소지양, 백예지, 이일희, 김광욱, 이근영, 정동용*, 문제권

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

minsung4958@kaeri.re.kr

1. 서론

일반적으로 용액중 U, Pu 등의 악티나이드 원소는 물론 Cs, Sr, 란타나이드등의 방사성 핵종 제거와 악티나이드와 란타나이드와의 상호 분리 등을 위해 용매추출법이 사용되는 경우 각 방사성 핵종에 맞는 추출제를 선택하는 것과 더불어 추출상의 희석제로 n-dodecane, kerosene, chlorinated solvent 등이 사용된다. 그렇지만 이들 희석제들 대부분은 낮은 발화점에 의한 안전성과 휘발성으로 인한 잠재적인 폭발위험 그리고 공정작업자와 환경에 대한 독성을 가지고 있다. 이온성 액체는 낮은 증기압과 비발화성으로 추출상의 증발에 의한 손실이 거의 없고 기존 유기상들보다 발화 등의 문제에서 더욱 안전하다. 이와 같이 방사성핵종의 분리나 제거에 용매추출법이 사용되는 경우 이온성 액체를 추출상으로 사용하는 경우 기존의 추출상보다 중요한 이점이 있다. 이온성 액체는 Fig. 1과 같이 양이온과 음이온의 다양한 조합에 의해 용해도, 소수성, 극성 등 다양한 물성을 변화시킬 수 있기 때문에 매우 적절한 추출 용매이다. 본 연구에서는 우라늄의 추출에 이온성 액체가 사용될 때 추출 메커니즘과 다른 용매계와의 추출능 비교 등의 실험을 수행하였다.

2. 본론

2.1 실험 방법

Imidazolium을 기반으로 하고 알킬 사슬 길이가 다른 양이온들과 $[C_n\text{mim}]^+$ ($n=2, 4, 6, 8$)(1-alkyl-3-methylimidazolium), 음이온으로는 $[PF_6]^-$ (Hexafluorophosphate)와 $[TFSI]^-$ (Bis(trifluoromethylsulfonyl)imide)로 구성된 이온성 액체를 사용하여 실험하였다. 추출상으로 이온성 액체와 TBP(Tributylphosphate)를 부피비 70:30 비율로 혼합하여 실험하였으며 질산 용액의 농도는 0.01M부터 8M까지 우라늄의 농도는 5g/l로 실험하였다. 실험 방법은 각각 같은 부피의 유기상과 수용상을 바이알에 넣고 3시간 정

도 셰이커로 강력하게 교반해준다. 그런 뒤 원심분리기를 사용하여 두층으로 분리시켜 수용상의 우라늄의 농도를 분석하였다. 우라늄의 농도 분석은 UV-Vis Spectroscopy(Agilent 8453)를 사용하였다. 이러한 방법으로 기존에 사용되었던 n-dodecane (30% TBP)과의 추출 효율을 비교하였고, 각각의 이온성 액체들의 추출 효율을 비교하였다.

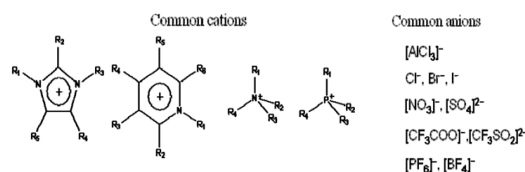


Fig. 1. General structure of ionic liquid.

2.2 실험 결과

수용상과 유기상으로 분리된 두층에서 초기 수용액상에 존재하였던 우라늄은 교반하는 동안 추출제인 TBP에 의해 추출되어 유기층에 존재하게 된다. 이때 추출량은 질산의 농도에 따라 또 이온성 액체의 종류에 따라 달라지게 된다. 이온성 액체 시스템에서 우라늄 추출 효율을 나타내는 분배계수 D(U)로 계산하여 나타내었고, 이 값은 질산농도가 높아짐에 따라 증가하는 것을 알 수 있었다. 이온성 액체에서 양이온의 알킬 사슬 길이와 질산 농도에 따라 추출율의 결과는 달라질 수 있는데 그 이유는 낮은 질산 농도에서의 우라늄 추출과 높은 질산 농도에서의 추출 메커니즘이 다르기 때문이다. 낮은 질산 농도에서는 양이온 교환 반응이 일어나게 되는데 이때는 Fig. 2와 같이 알킬 사슬 길이가 짧은 이온성 액체에서의 추출 효율이 높다. 그 이유는 알킬 사슬 길이가 길수록 소수성이 커져 수용상에 대해 용해도가 떨어져 양이온 교환반응이 일어나기 힘들기 때문이다. 하지만 이러한 현상은 질산 농도가 증가함에 따라 줄어들게 되는데 질산 농도가 진해 질수록 dodecane과 같은 중성 화합물 메커니즘

또는 음이온 교환반응으로 우라늄의 추출이 이루어진다고 이미 많은 문헌에서 발표 한 바 있다.[1]

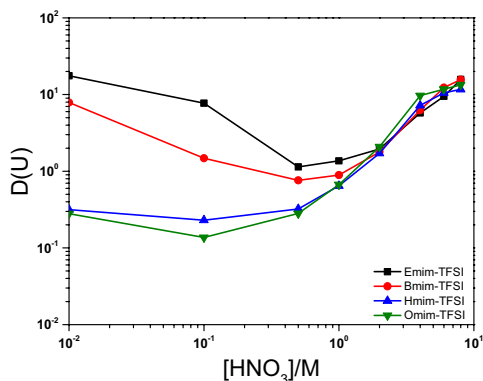


Fig. 2. Dependent of $D(U)$, on $[HNO_3]$ at constant TBP(1.2M) concentration in ionic liquid.

이는 우라늄 추출제인 TBP의 농도를 다르게 하고 고정된 질산 농도에서의 추출 실험을 통해서도 알 수 있는데, Fig. 3과 같이 $D(U)$ 값이 질산 농도가 높아질수록 증가하는 현상으로 NO_3^- 에 의한 것이라 예상되며 따라서 앞서 말한 음이온 교환 반응의 메커니즘을 뒷받침할 수 있다. 이온성 액체들 중에서 양이온은 같지만 음이온이 다른 이온성 액체인 C_4 mim-PF₆와 C_4 mim-TFSI의 실험에서는 C_4 mim-TFSI가 추출 용매로 사용하기에 좀 더 적합하다는 사실을 알 수 있었는데, C_4 mim-PF₆의 경우 점도가 너무 높아 취급하는 것의 어려움이 있었고, 높은 질산 농도에서는 안정성과 조성이 변화하여 시간이 지나면 하나의 상으로 섞여 버리는 문제점이 있었다. 이러한 문제점은 가수분해에 대한 음이온의 손상에 의해 나타난다고 문헌에 발표된 바 있다.[4] 이렇듯 추출시스템에서 두상이 분리되지 않는다면 사용하는 것에 어려움이 있을 것이라 생각된다. 마지막으로 우라늄이 추출되는 반응 시간을 조사하기 위해 시간에 따른 우라늄 추출량을 비교하였는데 교환 시간을 5분에서 90분까지 추출 효율을 비교한 결과 20~30분이 지나면 반응이 끝나 3시간동안 교환해주었던 시료와 같은 추출 효율을 보였다. 따라서 반응 시간도 빨라 좀 더 효과적인 용매로서 사용이 가능할 것 같다.

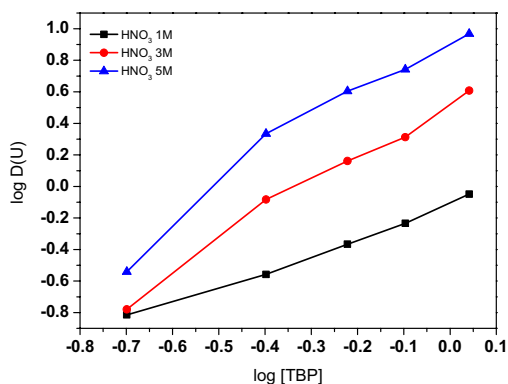


Fig. 3. Log-log plot of $D(U)$ as a function of $[TBP]$ for C_4 mim-TFSI.

3. 결론

우라늄 추출에 친환경적 용매인 이온성 액체 사용 시에는 dodecane과는 다른 우라늄 추출특성을 나타내었다. 또한 이온성 액체의 화학적 구조에 따른 물성 등에서 변화를 보이는데 그로 인해 C_4 mim-PF₆보다 C_4 mim-TFSI가 우라늄 추출시 용매로서 좀 더 적합하다는 것을 알 수 있었다. 추출에 의한 우라늄 등의 핵종 분리에 이온성액체의 사용 가능성에 대한 추가적 연구를 수행할 것이다.

4. 감사의 글

본 연구는 정부 (미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임 (NRF-2012M2A8A5025658, NRF-2012M2B2B1055496).

5. 참고문헌

- [1] T. J. Bell, Y. Ikeda, *Dalton. Trans.*, 2011, 40, 10125-10130.
- [2] P. Giridhar, K. A. Venkatesan, T. G. Srinivasan, P. R. Vasudeva Rao, *J. Radio and Nuclear. Chem.*, 265, 1, 2005, 31-38.
- [3] M. L. Dietz, Dominique C, Stepinski, *Talanta.*, 75, 2008, 598-603.
- [4] R. P. Swatloski, J. D. Holbrey, R. D. Rogers, *Green. Chem.*, 2003, 5, 361-363.

한울유리화설비 유리고화체 건전성 평가

조현준^{1*}, 이혜현¹, 장인선¹, 심준휘², 정정수², 김종관², 곽경길³

¹한수원(주)중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70

²한수원(주)한울원자력본부, 경북 울진군 북면 울진북로 2040

³한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*chohyunji@khnp.co.kr

1. 서론

2009년부터 상업운전을 시작한 한울유리화설비의 유리화과정 건전성을 검증하기 위해 한울유리화설비에서 발생하는 유리고화체 특성시험을 수행하였다. 방사성폐기물 고화체의 건전성 검증시험은 실 고화 공정에서 채취한 시편을 이용하여 수행되어야 하나, 실 공정에서 직경 5cm 이상의 원통형 시험시편을 가공하는 것은 유리의 열응력으로 인해 어려운 것으로 확인되었다. 따라서 본 시험은 잡고체폐기물 유리화실증시험에서 채취한 비방사성 유리고화체(DG2)를 전기로에서 재용융하여 흑연몰드에 부은 후 서냉하여 제작된 시편을 이용하여 수행하였다.

2. 본론

2.1 시험 항목

처분시설 안전성분석보고서의 방폐물 인수기준에 따라 방사성폐기물 유리고화체 특성검증 시험항목은 압축강도시험, 침출시험, 침수시험, 열순환시험, 방사선조사시험, 유리수시험이다. 이중 유리수시험은 유리고화체의 특성상 불필요한 것으로 제외되었다.

2.2 시험 방법

각 시험항목에 대한 시험법은 처분시설 방폐물 인수기준에 명시되어 있으며 다음과 같다.

2.2.1 시험시편 가공

유리고화체 특성시험을 위해 비방사성 유리고화체를 전기로에서 용융한 후 직경 5 cm의 원통형 흑연몰드에 부어 서냉하여 제작하였다. 냉각된 원통형 유리고화시편을 다이아몬드 절단기로 길이 5 또는 10 cm로 절단하여, 총 13개의 시편을 제작하였다.

2.2.2 압축강도시험

압축강도시험은 「KS F2405, 콘크리트의 압축강도 시험방법」 시험법으로 수행하며, 기준값은 콘크리트나 유리고화체와 같은 경질고화체는 500psi 이상이어야 한다.

2.2.3 침출시험

침출시험은 「ANS 16.1, Measurement of the Leachability of Solidified Low-level Radioactive Wastes by a Short-term Test Procedure」 시험법으로 수행하며, 기준값은 90일 시험기간 동안 총 10개의 침출수를 샘플링하여 Cs, Co, Sr 핵종에 대하여 침출지수 6 이상이어야 한다.

2.2.4 침수시험

침수시험은 「NRC, Waste Form Technical Position」 시험법으로 수행하며, 기준값은 90일 침수 후에 압축강도가 500psi 이상이어야 한다.

2.2.5 열순환시험

열순환시험은 「ASTM B553, Thermal cycling test for evaluation of electroplated plastics」 시험법으로 수행하며, 기준값은 -40~60℃ 열순환을 30 cycle 실시한 후에 압축강도가 500psi 이상이어야 한다.

2.2.6 방사선조사시험

침수시험은 「NRC, Waste Form Technical Position」 시험법으로 수행하며, 기준값은 10⁷ Gy의 방사선을 조사한 후 압축강도가 500psi 이상이어야 한다.

2.3 시험 수행

시험은 한수원 유리화실증시험을 통해 생산된 비방사성 유리고화체를 이용하여 한수원 중앙연구원에서 수행하였다. 중앙연구원에 자체 시험설비가 없는 방사선조사, 열순환, 압축강도 측정, 화학분석은 한국원자력연구원과 한국기계연구원 등

외부 기관에 의뢰하여 수행하였다.

침출시험의 침출지수 계산은 핵종별 초기방사능 대 침출방사능의 비율로 평가하여야 하나, 비방사성 유리고화체로 시험이 실시되어 Cs, Sr, Co, Na의 초기원소질량 대 침출원소질량의 비율로 평가하였다.

2.4 시험 결과

압축강도시험 결과는 기준값 500psi를 크게 만족하는 것으로 평가되었으며 Table 1과 같다.

Table 1. Results of Compressive Strength Test

Sample No.	Compressive Strength (psi)	Remarks
DG2-C 1	> 18,889	
DG2-C 2	13,006	
DG2-C 3	16,365	

침출시험 결과 Cs, Sr, Co, Na 원소의 침출지수는 모두 13이상으로 기준값 6을 크게 상회하는 것으로 분석되었으며 Table 2와 같다.

Table 2. Results of Leaching Test (DG2-L 1)

Elements	Leachability Index	Remarks
Cs	14.10	
Sr	14.62	
Co	∞	불검출
Na	13.64	

침수시험 결과는 90일 침수 후 압축강도가 기준값 500psi를 크게 만족하는 것으로 평가되었으며 Table 3과 같다.

Table 3. Results of Immersion Test

Sample No.	Compressive Strength (psi)	Remarks
DG2-I 1	> 19,723	
DG2-I 2	18,561	
DG2-I 3	18,344	

열순환시험 결과는 30 Cycle 열순환 후 압축강도가 기준값 500psi를 크게 만족하는 것으로 평가되었으며 Table 4와 같다.

Table 4. Results of Thermal Cycling Test

Sample No.	Compressive Strength (psi)	Remarks
DG2-T 1	> 18,858	
DG2-T 2	> 18,741	
DG2-T 3	> 18,812	

방사선조사시험 결과는 10^7 Gy 방사선조사 후 압축강도가 기준값 500psi를 크게 만족하는 것으로 평가되었으며 Table 5와 같다.

Table 5. Results of Irradiation Test

Sample No.	Compressive Strength (psi)	Remarks
DG2-R 1	> 18,968	
DG2-R 2	> 18,892	
DG2-R 3	> 18,640	

3. 결론

한울유리화공정 중 잡고체폐기물 유리고화체의 건전성 평가를 위한 특성시험을 유리화설증시험에서 발생한 비방사성 유리고화체를 이용하여 수행하였다. 처분시설 안전성분석보고서 폐기물인수기준에서 요구하는 압축강도시험, 침출시험, 침수시험, 열순환시험, 방사선조사시험을 수행한 결과 모든 시험항목에서 기준값을 크게 만족하는 것으로 확인되었다. 따라서 한울유리화설비의 잡고체폐기물 유리화공정에서 발생하는 유리고화체는 처분시설 고화체 요건을 모두 만족하며 건전한 것으로 평가되었다.

4. 참고문헌

- [1] 한국원자력환경공단, 중·저준위방사성폐기물처분시설 안전성분석보고서, 8.3 폐기물인수기준, pp. 8.3-1, 2011.

원자력시설 해체 후 부지 재이용을 위한 방사선학적 기준 개발 계획

이정준*, 안상면, 육대식, 정찬우, 이병수

한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 과학로 62

*lee@kins.re.kr

1. 서론

해체가 완료된 원자력시설은 부지 내 잔류하는 오염물질을 제거하고, 잔류오염도 조사 및 평가를 통해 부지의 향후 활용 계획에 적합하게 재이용할 수 있다. 특히, 대형 원자력시설의 해체 시에는 시설 운전 기간보다 더 다양하고 많은 양의 폐기물이 발생하며, 이들 대부분은 방사선학적 위해도가 미미한 수준으로 자체처분을 통해 일반폐기물로 무제한적 재활용이 가능하다.

원자력시설의 해체 완료 후 부지에 대한 방사선학적 안전성 평가 방법을 확립하기 위해 부지의 개방기준(Release Criteria)을 도출하고, 부지에 대한 잔류오염도를 신뢰성 있는 측정기술 및 광범위한 부지의 최적화된 조사방법에 대한 기술개발은 필수적이다. 또한, 국내의 원자력시설의 해체 부지의 재이용에 대한 관심이 증대되고 있으므로 부지의 개방을 위한 잔류방사능 측정, 방사선학적 안전성확보 및 잔류오염도 조사 방법을 수립하기 위한 기술 기준 및 검증 지침의 개발이 필요한 상황이다.

따라서, 본 연구에서는 IAEA 국제기준 및 해외 사례 등을 조사하고, 의견 수렴 등의 절차를 거쳐서, 원자력시설 해체 후 부지 재이용을 위한 방사선학적 기준을 수립하기 위한 추진 계획에 대해 서술하고자 한다.

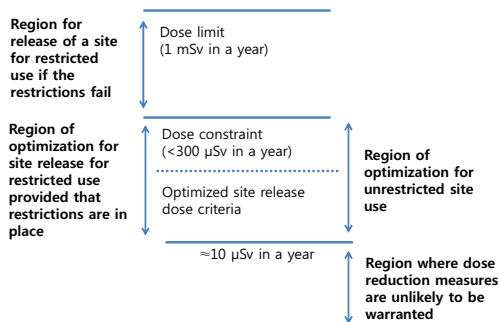


Fig. 1. Constrained optimization and regions of effective dose for members of the critical group in the release of sites (IAEA WS-G-5.1)[1].

2. 본론

2.1 부지 재이용 기준 개발의 필요성

원자력시설 해체의 최종단계는 부지 내에 잔류되어 있는 모든 방사성물질에 의한 오염을 조사 및 제거하여 최종적으로 해체가 완료된 부지를 그 목적에 맞게 재활용할 수 있도록 하는 것이다. 해체부지의 재이용 방안이 해체범위, 일정, 최종목표단계 설정 및 비용에 영향을 미치는 중요한 요소로 작용하게 된다. 이를 위해 건물 및 부지개방(Site Release)을 위해 부지해제기준(Site Release Criteria)을 수립하고, 잔류방사능 평가를 위한 측정조건을 계획·수행을 통해 얻어진 결과를 바탕으로 잔류 방사성물질을 제거하기 위한 복원활동(Remedial Action)의 수행 여부를 판단하여, 최종적으로 부지를 개방하기 위한 최종현황조사를 수행하는 일련의 절차가 필요하다. IAEA에서는 원자력시설의 해체계획서 기재사항으로 부지재이용 계획을 포함하도록 권고하고 있다[2].

2.2 IAEA 및 해외 각국의 부지 재이용 기준

원자력시설 해체후 부지를 자유롭게 재이용할 수 있는 부지해제기준에 대해서는 IAEA는 제한 없이 부지를 해제하는 경우 선량제한치(Dose constraints) 0.3mSv/y를 권고하고 있고, 부지해제를 제한하는 경우 일반인 선량인 최대 1mSv/y를 권고하고 있다 (Fig. 1). IAEA의 경우 10 ~ 300 μ Sv/y, US NRC의 경우 250 μ Sv/y 및 US EPA의 경우 150 μ Sv/y를 부지 재이용에 따른 선량기준으로 적용하고 있다. 각국의 부지 재이용 선량기준은 0.01 ~ 0.3mSv/y 범위로 요약할 수 있다[3].

2.3 국내 원자력시설 해체시 적용된 부지재이용 기준

원자력시설 해체 후 잔류하는 건물 및 부지를 원자력안전법의 규제대상이 아닌 일반 건물 및 토지로 제한적 또는 무제한적 재이용하기 위한 방사선학적 기준이 수립되어 있지 않은 상태이다. 따라서, 연구용 원자로(연구로 1, 2호기), KAERI 내의 우라늄변환시설 해체 부지에 대하여, IAEA, US NRC, EPA

등에서 적용한 기준 및 사례 조사를 비교 평가하여 부지해제기준을 수립·적용한 바 있다(100 μ Sv/y).

3. 결론

3.1 해체 후 부지재이용 기준 개발 내용

해체 후 잔류부지 등을 재이용하는 경우, 잔류방사능으로 인한 모든 가능한 피폭경로를 통해 일반인이 받게 될 최대 피폭방사선량은 유효선량을 기준으로 선량 제약치를 초과하지 않도록 제시하고, 피폭방사선량을 초과할 것으로 예상되는 해체후부지등은 잔류방사능에 의한 방사선피폭이 가능한 한 합리적으로 낮게 유지될 수 있음이 입증되는 경우에 한하여 재이용 여부를 결정할 필요가 있다. 다만, 이 경우에도 잔류방사능으로 인한 모든 가능한 피폭경로를 통해 일반인이 받게 될 최대피폭방사선량은 유효선량을 기준으로 선량한도를 초과하지 아니하도록 규정할 필요가 있다[4].

3.2 해체 후 부지재이용 기준 개발계획

향후, IAEA 국제 기준 및 해외 기준, 국내 적용 사례 등을 참조하여, 부지재이용 기준(초안)을 개발하고, 설명회 등의 의견수렴 및 전문가 검토 등의 절차를 통해 기준을 개발하고자 한다.

Table 1. Site release criteria after decommissioning of nuclear facilities in each countries [3]

국가	부지 재이용 요건
캐나다	- 선량한도 이하 - 광산 이외의 시설: 수 0.01mSv/y 수준
독일	- 0.01mSv/y and 1man-Sv/y - 300종 이상의 핵종에 대한 농도기준 규정
헝가리	- 0.3mSv/y (광산에 적용) / 표층농도 : 0.18Bq/g 상당
이탈리아	- 반감기 75일 미만에 대해 1Bq/g - 이외의 경우, 0.01mSv/y and 1man-Sv/y and optimized
노르웨이	- 하천 침적물에 대해, Am-241 : 10 Bq/g, Cs-137 : 100 Bq/g
스페인	- Andujar : 0.1mSv/y, 표층농도 0.2 Bq/g
스웨덴	- 사안별 적용 - Agesta PHWR : 0.5 Bq/cm ² (베타/감마), 0.05 Bq/cm ² (알파)
영국	- 규제기관이 허용하는 수준

미국	- EPA : 0.15mSv/y
	- NRC : 0.25mSv/y and ALARA

4. 감사의 글

본 연구는 원자력안전위원회의 원자력안전연구 개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] IAEA WS-G-5.1 (2006).
- [2] IAEA Safety Report Series No. 45 (2005).
- [3] KINS/GR-479, 방사성폐기물 리스크 최적 검증 기술 개발(2011).
- [4] KINS/GR-297, 방사성폐기물 규제기술 개발(2007).

2013년 가연성폐기물 처리시설을 이용한 감용처리 시험 결과

윤경수*, 이기원, 민병연, 문제권

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*ksyun@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에서는 2010년 12월 폐기시설로 인허가를 받은 가연성폐기물 처리시설을 이용하여 연구로 1, 2호기 및 우라늄변환시설 해체 작업에서 발생한 가연성폐기물의 감용처리 작업을 수행해 왔다. 가연성폐기물은 다량의 유기물을 함유하고 있기 때문에 이를 안정한 물질로 바꾸는 것이 필요하며, 이에 대한 방식 중 가장 효율적인 방법으로 소각의 방식을 추천한다. 본 논문에서는 실증규모의 가연성폐기물 처리시설을 이용하여 감용처리한 결과와 처리 중 발생한 소각재 등에 대한 처리결과에 대하여 언급하였다.

2. 본론

2.1 개요

연구로 1, 2호기 및 우라늄변환시설 해체과정에서 Table 1과 같은 방사성폐기물 및 자체처분 대상폐기물이 발생하였으며, 본 논문에서는 이 중 가연성폐기물 처리와 관련한 부분을 논하였다.

표에서 보는 바와 같이 연구로 1, 2호기 해체과정에서 가연성폐기물은 총 10.7톤이 발생하였고, 우라늄변환시설 해체과정에서는 17.6톤이 발생하였다. 가연성폐기물의 처리를 위해 시간당 20kg 규모의 소각시설을 활용하여 이를 처리하고 있으며, 발생된 바닥재와 비산재를 포함하는 소각재는 우리나라 독자적인 기술인 압축/성형 및 소결 방식과 소결조제를 이용한 비압축성 방식을 이용하여 각각 안정화 관련 연구를 진행하고 있다.

Table 1. The decommissioning waste of KRR 1, 2 and UCF

분 류	KRR(톤)		UCF(톤)	
	방사성	자체처분	방사성	자체처분
금속	40.2	212.3	69.0	139.6
콘크리트	268.9	1,856.6	310.0	3.7
토양	52.6		2,502.2	
가연성	10.7	32.3	17.6	
비가연성	22.6	84.8	51.7	
합 계	395.0	2,185	2,950.5	143.3

2.2 가연성폐기물 감용처리 결과

2011년 8월부터 연구로 1, 2호기 및 우라늄변환시설 해체과정에서 발생한 가연성폐기물 감용을 위한 실증시험을 계속하고 있으며, 2013년 12월 현재 총 13톤을 감용 처리하였으며, 이를 Table 2에 나타내었다. 2013년도에는 총 141일 운전하였으며, 평균감용비는 114를 기록하였다.

Table 2. The result of operation of incinerable waste treatment facility(As 2013.12)

구분	소각량		소각재		감중비	감용비
	무게(kg)	부피(L)	무게(kg)	부피(L)		
11년	818	5,193	129	170	6.3	30.5
12년	4,453	19,470	372	597	7.5	32.6
13년	7,809	38,760	145	341	53.9	113.7
합계	13,080	63,423	646	1,108	20.3	57.3

2.3 소각재 고형화 실증 결과

소각재 등 분산상물질은 고형화하는 방식은 시멘트, 아스팔트, 폴리머, 유리화 등 매우 다양하다. 그러나 이러한 방식들은 소각재에 고화시킬 수 있는 매질을 첨가하여야 하기 때문에 부피가 늘어나는 단점이 있다. 또한 아스팔트 및 폴리머에 의한 고화방식도 처분조건에 맞지 않아 사용이 곤란하게 되었다. 본 논문에서는 이러한 방식을 사용하지 않고, 소각재를 직접 압축·성형하여 이를 소결하는 방식과 소결조제를 사용하여 고화하는 방식을 택하였다. 이러한 방식은 부피가 늘어나지 않을 뿐 아니라 최대 12배까지 감용 효과를 얻을 수 있어 소각재 등 분산상의 물질을 고형화하는데 매우 유용한 기술임을 입증하였다.

2.3.1 압축·성형 및 소결을 이용한 고화처리

본 실험을 위해 사용한 소각재는 연구로 및 우라늄변환시설에서 발생한 가연성폐기물로서 조성비는 목재 93%, 섬유 4%, 플라스틱 0.5% 및 비닐 2.5%이며, 바닥재, 후연소로 비산재 및 포대여과기 비산재의 비율을 70:15:15wt%로 하였다. Fig. 1에서 보는바와 같이 사전 열처리를 할 경우 휘발성

물질의 휘발로 인해 감용비가 증가하고, 예비성형 및 성형, 소결의 단계로를 거치면 최종적으로 8.97 배의 감용효과를 얻을 수 있다. 즉 겉보기 밀도가 최초 0.29g/cm³에서 2.60g/cm³으로 증가하였다.

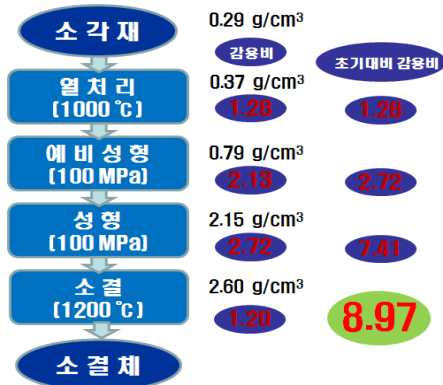


Fig. 1. The final result of compression and sintering on ash.

2.3.2 비가압 고상 소결방법에 의한 고화처리

본 고화 방법은 소결조제를 이용한 고화방식으로 소결조제(sintering Agent)는 고화연구로부터 개발한 물질로 구성비는 B₂O₃:NHP = 1:4이다. 다양한 가연성폐기물 소각재에 소결조제를 5wt% 첨가하고, 비교적 저온인 1,100℃ 소결하여 최초 겉보기 밀도 0.29g/cm³에서 치밀한(d>3.0g/cm³) 고감용 고화체(1/12 이상) 제조하였다. 이를 SEM/EDX 분석해 보면, Fig. 2와 같이 유리상 형성에 의한 치밀한 구조, 구성 원소의 균일한 분포로 균질 고화체가 형성되었음을 알 수 있다.

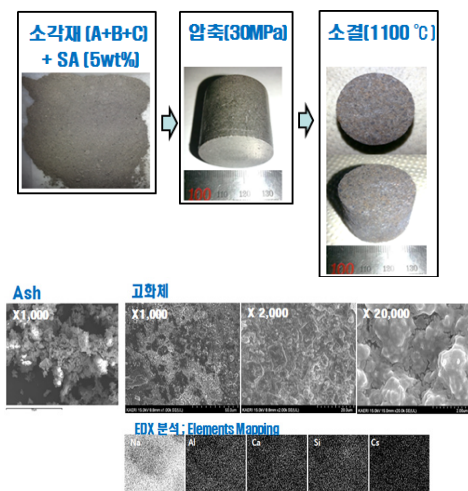


Fig. 2. The result of SEM/EDX on solid product.

2.3 이동형 방사성폐기물 처리장치 개념설계

가연성폐기물 등 방사성폐기물 처리장치는 처리 완료 후 또 다른 방사성폐기물로 처리해야 하므로 이를 재활용하는 것이 중요하며, 본 논문에서는 Fig. 3과 같은 이동형 방사성폐기물 처리장치를 고안하였다.



Fig. 3. The schematic diagram of the movable radio-active waste treatment apparatus.

2.4 2013년 주민피폭선량 평가 결과

가연성폐기물 처리시설 운전으로 인한 주민피폭선량을 ICRP-60에 근거한 선량계수(내부피폭 및 외부피폭) 적용하여 ENDOS 코드를 사용하여 평가한 결과 분기중 입자상 물질, H-3, C-14 및 방사성옥소에 의한 등가선량 값은 2013년 4/4 분기 기준치 1.99E-10 mSv, 연간누적치 1.04E-7으로 나타나 원자력안전위원회 고시 제2012-29호서 정한 연간 기준치 0.15 mSv에 0.0000693%에 불과해 무시할 정도로 적은 양임을 알 수 있었다.

3. 결론

2013년 12월까지 폐기시설인 가연성폐기물처리시설을 이용하여 13톤의 가연성폐기물을 처리 하였고, 시설의 운전으로 인한 주민 피폭선량은 거의 전무함을 알 수 있었으며, 가연성폐기물의 처리과정에서 발생한 소각재를 압축·성형 및 소결의 방법을 이용하여 처리할 경우 약 9배의 추가 감용효과를 얻을 수 있으며, 소결조제를 사용하여 처리할 경우에는 12배의 감용효과를 얻을 수 있었다.

질산용액으로부터 이온성 액체를 이용한 우라늄 금속의 추출 특성

김익수*, 박민성, 정동용, 이일희, 양한범, 문제권

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*niskim@kaeri.re.kr

1. 서론

화학공정에서 폭넓게 이용되고 있는 휘발성 유기화합물은 대부분 인체에 유해하며, 휘발성과 폭발성이 높고, 대기 오염물질을 배출하는 등 지구 환경 파괴요인의 하나로 지목되면서 이의 사용에 대한 규제가 점차 강화되고 있다. 이에 따라 이들을 대체할 수 있는 환경친화적인 물질로서 이온성 액체에 대한 연구가 활발히 진행 중이다[1].

이온성 액체는 유기 양이온과 유기 또는 무기 음이온의 이온결합으로 이루어진 염으로서, 100 °C 이하에서 액체로 존재하며, 특히 상온에서 액체로 존재하는 이온성 액체를 상온 이온성 액체(Room Temperature Ionic Liquid ; RTIL)라고 한다. 이온성 액체가 주목을 받는 이유는 여러 가지 특이한 성질을 가지고 있기 때문이다. 이온성 액체는 넓은 온도범위에서 액체로 존재하며, 비휘발성, 비가연성이고, 우수한 열적 안정성과 이온 전도도를 지니고 있을 뿐만 아니라, 무기 및 유기 금속 화합물을 잘 용해시키고, 광전위창(wide electro-chemical window)의 성질을 갖고 있다. 양이온과 음이온을 조합하여 이온성 액체의 물성을 조절할 수 있는 것도 중요한 특성 중의 하나이다. 수많은 양이온과 음이온을 다양하게 조합하여 사용목적에 적합한 이온성 액체를 합성할 수 있기 때문에 디자이너 용매(designer solvent)라고도 불리우며, 청정용매, 분리, 전해질, 바이오 분야에서 다양하게 응용되고 있다.

원자력 분야에서도 방사성 폐기물로부터 악티늄족 원소들의 분리, 재처리공정에 사용되는 유기용매의 대체 등을 위하여 이온성 액체에 대한 연구가 미국과 인도 등을 중심으로 많이 수행되고 있다 [2, 3]. 본 연구에서는 PUREX공정에서 기존에 사용 중인 n-dodecane을 이온성 액체로 대체 사용하여 질산용액으로부터 우라늄 금속의 추출거동과 특성을 조사하고, 이온성 액체의 대체물질로서의 활용가능성을 살펴보았다. 이를 위해 이미다졸리움 계열의 이온성 액체를 이용하여 우라늄 추출시의 분배계수를 질산용액의 농도와 TBP(Tri-

n-butyl phosphate)의 농도의 함수로서 구하였으며, 질산농도와 이온성 액체의 종류에 따른 우라늄 추출 메커니즘을 규명하고자 하였다.

2. 본론

2.1 실험

실험에 사용한 이미다졸리움 계열의 이온성 액체는 $[C_4mim][PF_6]$ (1-butyl - 3-methylimidazolium hexafluorophosphate)와 $[C_nmim][Tf_2N]$ ($n=2, 4, 6, 8$) (1-alkyl-3-methylimidazolium bis(trifluoromethylsulfonyl)imide)이며, (주)씨트리 제품을 구입하여 별도의 정제과정 없이 그대로 사용하였다. 우라늄(VI) 이온의 추출실험은 우라늄을 함유한 수용상과 TBP를 함유한 이온성 액체 유기상의 부피비가 1:1이 되도록 하여 모두 상온에서 실험을 수행하였다. 미리 준비해 놓은 1.1 M TBP/ $[C_nmim][Tf_2N]$ 과 5 g/L의 우라늄을 포함한 0.01~8 M의 질산 용액을 각각 1 mL씩 취하여 바이알에 주입한 후 60분간 진탕하여 우라늄이 질산용액으로부터 이온성 액체로 추출되도록 한다. 추출 평형에 도달한 시료는 30분간 방치하여 유기상과 수용상으로 분리하고, 상부에 부유하는 수용상에 존재하는 우라늄 이온의 농도를 UV-Vis 분광법에 의해 분석하였다. 유기상에 존재하는 우라늄 이온의 농도는 측정된 수용상의 농도로부터 물질수지식에 의해 구하였고, 유기상으로 추출된 우라늄의 추출 분배계수(D)를 다음 식에 의해 계산하였다.

$$D = [U(VI)]_{org} / [U(VI)]_{aq} \quad (1)$$

여기서 $[U(VI)]_{org}$ 및 $[U(VI)]_{aq}$ 는 각각 유기상 및 수용상에서의 우라늄 금속의 농도이다.

2.2 결과

일반적으로 이온성 액체는 추출 공정에서 통상적으로 사용하는 n-dodecane이나 kerosene과 같은 유기용매보다는 점성이 높기 때문에, 수용상에서 유기상으로의 물질전달 속도가 느릴 것으로

예상된다. 따라서 이온성 액체를 이용한 금속 이온의 추출에 있어서는 추출 속도가 중요한 변수 중의 하나가 될 수 있다. 질산용액으로부터 점성이 서로 다른 이온성 액체로 우라늄 금속이 추출될 때 추출 속도의 변화를 알아보기 위하여 추출 시간을 달리하며 우라늄 금속의 분배계수를 측정하였다. 추출 조건은 추출제인 TBP와 질산용액의 농도를 각각 1.1 M과 1 M로 하였고, Fig. 1에 결과를 나타냈다. 그림에서 보는 바와 같이 $[C_n\text{mim}][\text{Tf}_2\text{N}]$ 에 비해 점도가 훨씬 높은 $[C_4\text{mim}][\text{PF}_6]$ 도 추출평형 도달시간이 약 15분 정도로 비교적 짧은 시간이고, $[C_n\text{mim}][\text{Tf}_2\text{N}]$ 은 알킬기의 탄소사슬길이 가 길수록 점도가 높지만 추출평형 도달시간이 10분 내외로 모두 비슷하다. 이와 같이 이온성 액체의 종류에 따라 약간의 차이는 있지만 모두 20분 이내에 평형에 도달하므로 이후의 실험에서는 추출시간을 모두 충분히 평형에 도달하는 60분으로 하였다. 이온성 액체를 이용한 우라늄 추출 시에 질산용액의 농도가 우라늄 추출율에 미치는 영향을 조사하기 위하여 질산용액의 농도를 0.01~8 M로 변화시키며 추출실험을 수행하였다. 질산용액 내 우라늄 금속의 농도는 5 g/L였으며, 추출제인 TBP의 농도는 PUREX 공정에서 확립된 조건과 같은 1.1 M로 하였다. 실험결과 우라늄 추출 분배계수 D는 이온성 액체의 종류와 질산농도의 변화에 따라 판이하게 나타났다. 기존의 n-dodecane이나 kerosen과 같은 분자성 유기용매 계에서는 금속이온이 수용상으로부터 유기용매로 이동할 때 전기적 중성을 유지해야 하므로 수용상의 음이온이 공침출되며, 질산농도 4M까지는 농도가 높을수록 추출률이 높아지며 이온쌍 추출(ion-pair extraction) 메카니즘에 의해 중성의 우라늄·TBP복합착물로서 추출된다[2]. $[C_4\text{mim}][\text{PF}_6]$

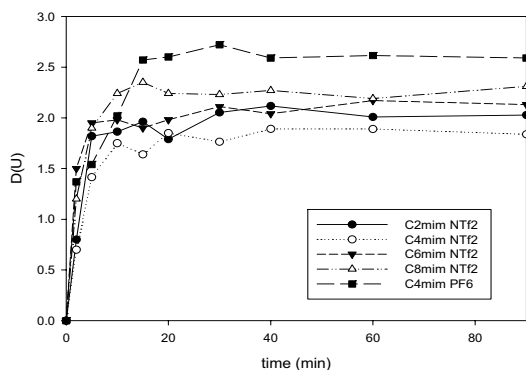


Fig. 1. Kinetics of extraction of U(VI);
[TBP] = 1.1 M, $[\text{HNO}_3] = 1\text{M}$.

를 사용한 경우에도 질산농도 4M까지는 이와 동일한 경향을 나타냈다. 그러나 $[C_n\text{mim}][\text{Tf}_2\text{N}]$ 의 경우에는 아주 다른 추출 거동을 보이는데, 질산용액의 농도가 낮은 범위에서는 농도증가에 따라 추출율이 감소하고, 농도가 높은 범위에서는 농도증가에 따라 추출율이 증가한다. 또한 질산농도가 낮은 범위에서는 $[C_n\text{mim}]^+$ 양이온의 알킬사슬(allyl chain)수가 클수록 추출률이 감소한다. $[C_n\text{mim}][\text{Tf}_2\text{N}]$ 를 사용한 경우의 이같은 우라늄 추출거동은 질산농도의 조건과 $[C_n\text{mim}][\text{Tf}_2\text{N}]$ 의 알킬사슬 길이에 따라 우라늄의 추출 메카니즘이 다르기 때문이다. 즉, 질산농도가 낮은 범위에서는 양이온교환(cation-exchange) 메카니즘에 의해 추출반응이 일어나고, 질산농도가 높은 범위에서는 분자성 유기용매와 같이 이온쌍 추출 메카니즘에 의해 추출반응이 일어나며, 질산농도가 낮은 범위에서도 알킬사슬수가 크면 이온쌍 추출 메카니즘에 의해 추출반응이 일어나기 때문이다. 추출 메카니즘은 TBP의 농도 또는 수용상 $[C_n\text{mim}]^+$ 양이온의 농도를 달리할 때 나타나는 분배계수 값으로부터도 확인할 수 있는데, 이에 대한 추가의 실험을 진행 중에 있다.

한편, 양이온 교환 메카니즘은 우라늄 추출 시 이온성 액체가 수용상으로 이동하여 손실되는 것을 나타내므로 이온성 액체 사용의 부정적인 면이다. 소수성(hydrophobic)일수록 손실이 적으므로[2], 양이온과 음이온의 변화에 의해 소수성이 큰 이온성 액체를 조합하고 분배계수도 큰 최적의 추출 조건을 찾기 위한 연구가 필요하다.

3. 감사의 글

본 연구는 정부 (미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임 (NRF-2012M2A8A5025658, NRF-2012M2B2B1055496).

4. 참고문헌

- [1] X. Sun, H. Luo, and S. Dai, Chem. Rev. 2012, 112, 2100-2128.
- [2] M. L. Dietz, D. C. Stepinski, Talanta, 2008, 75, 598-603.
- [3] P. Giridhar, K. A. Venkatesan, T. G. Srinivasan, P.R. V. Rao, J. Radioanal. Nucl. Chem., 2005, 265, 31-38.

Fluoride계 용융염에서 전해정련을 이용한 Zr 회수 연구

이유리, 이창화*, 강권호, 박근일

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*chwalee@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로 공정은 고온의 용융염에서 전기화학적 방법을 사용하여 사용후핵연료로부터 우라늄(U)을 회수하고, 초우라늄계 원소(TRU)와 같은 고방사성 물질들을 회수하여 차세대 원자로인 SFR(Sodium-cooled Fast Reactor)의 연료로 재사용할 수 있도록 하는 비핵확산성 건식 처리 기술이다[1]. 현재 한국원자력연구원에서 개발 중인 파이로 공정에서는 전처리 공정의 기계적 탈피복 혹은 산화탈피복 과정을 통해 사용후핵연료를 폐피복관으로부터 분리한 뒤, 후속공정을 위한 산화우라늄 원료물질을 생산한다[2]. 이 과정에서, 지르코늄 합금 계열의 피복관 폐기물이 발생되는데, 발생하는 양이 우라늄 10톤 처리를 기준으로 약 2.5톤에 이르며, 지르코늄 합금 계열의 피복관 내면에 극미량의 사용후핵연료가 잔류할 수 있고, 고 방사성 핵분열생성물이 침투할 수 있기 때문에 전량 고준위폐기물로 분류된다[3]. 따라서, 파이로 공정을 통한 고준위 사용후핵연료의 처리 및 부피감소를 위해서 폐 피복관과 같은 고준위 2차 폐기물의 부피 및 질량 감소가 필요하다.

현재 피복관재로 사용되는 Zircaloy나 Zirlo는 약 98% 정도가 지르코늄이기 때문에 폐 피복관으로부터 지르코늄만을 선택적으로 회수하여 중저준위화할 경우, 고준위 폐기물의 양을 크게 줄일 수 있을 것이다.

지르코늄 회수를 위한 방법 중에 하나가 전해정련법이다. 전해정련법은 고온의 용융염 내에서 피복관이 담긴 basket을 양극으로 하고 염화물생성 에너지 차이를 이용하여 음극에 지르코늄을 석출하는 것이다. 전해정련법은 파이로 공정과의 연계성이 뛰어나고 지르코늄을 고순도로 분리해 낼 수 있다는 장점이 있지만, 반응속도가 다른 방법에 상대적으로 느리고, 일반적으로 사용되는 LiCl-KCl 등과 같은 chloride계 용융염 내에서의 산화/환원 반응이 다단계로 복잡하며 얻어진 전착물 내 염 포함량이 높다는 단점이 있다.

따라서, 본 논문에서는 이러한 단점을 개선하기

위해 fluoride계열의 용융염인 LiF-KF-ZrF₄를 사용하여 지르코늄의 전기화학적 거동 및 회수되는 전착물의 특성에 대한 연구를 수행하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

본 연구에서는 공용염으로 99% 순도의 LiF와 KF를 각각 약 10시간 동안 250도의 가열로에서 수분을 제거한 뒤, 32 : 68의 wt.% 비로 혼합하여 사용하였다. 모든 전기화학 실험은 수분과 산소를 5 ppm 이하로 조절할 수 있는 Ar분위기에서 글로브박스 내에서 수행하였다. Fluoride계 용융염의 경우 용융점이 높기 때문에 전해액의 온도를 700℃로 유지하였다. 개시제로 사용한 ZrF₄의 농도를 2.3wt.%, 4wt.%로 조절하였고, 작업전극(WE)은 W wire를 사용하였으며, 기준전극(RE)은 Ag/AgCl을 사용하였다. 상대전극(CE)으로는 Zirlo 피복관을 사용하였다. Potentiostat/ galvanostat (BioLogics, SP-150)을 이용하여 cyclic voltammetry와 chronoamperometry를 측정하였으며, 음극에서 회수된 전착물은 SEM-EDX, XRD 및 ICP-AES로 분석을 수행하였다.

2.2 실험결과

염의 종류에 따른 Zr의 전기화학 거동을 살펴보기 위해 cyclic voltammetry를 측정하였다. Fig. 1의 (a)는 개시제로 ZrCl₄를 사용한 600℃의 LiCl-KCl 염에서, (b)는 개시제로 ZrF₄를 사용한 700℃의 LiF-KF 염에서 voltammogram을 나타낸다. LiCl-KCl 염에는 Ag/AgCl 기준전극 대비 약 -1.0 V와 -1.35 V에서 peak가 나타난다. 이것은 Zr 이온의 다단계 환원반응들을 의미한다. 반면, fluoride계 염에서는 chloride계 염과 다르게 -1.35 V 하나의 peak만 나타나는데, 이는 단일한 반응경로를 통해 Zr 이온의 환원됨을 보여준다. 각각의 peak에서는 다음과 같은 반응이 주요하게 일어나는 것으로 예상된다.

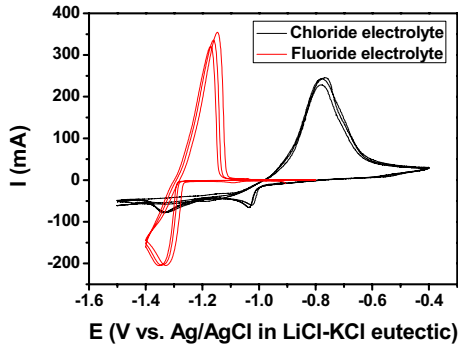


Fig. 1. Cyclic voltammograms for W working electrodes in 600°C LiCl-KCl-ZrCl₄ and in 700°C LiF-KF-ZrF₄ molten salts.

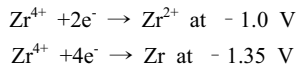


Fig. 2의 (a)는 chloride계의 염에서 Ag/AgCl 기준 전극 대비 -1.0 V로 3시간 동안 Zr을 전착시킨 SS wire, (b)는 fluoride계 염에서 -50 mA로 4시간 동안 Zr을 전착시킨 W wire 사진이다. Chloride계의 염에서 생성된 전착물보다 fluoride계 염에서 생성된 전착물이 더 dendritic함을 육안으로 관찰할 수 있으며, 용융염의 종류에 따라 전착물 형상이 변화했음을 보여준다.

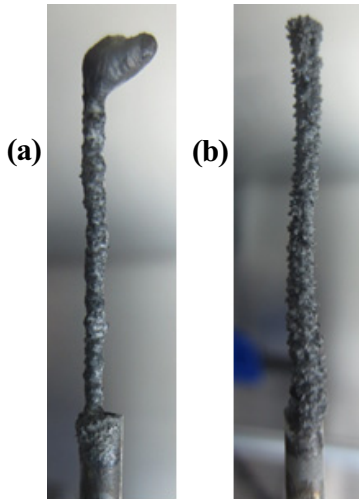


Fig. 2. Photo images of working electrodes deposited with Zr (a) at -1.0 V for 3 hrs in 700°C LiCl-KCl-1wt.% ZrCl₄ molten salts and (b) at -50 mA for 4 hrs in LiF-KF-2.3wt.% ZrF₄ molten salts.

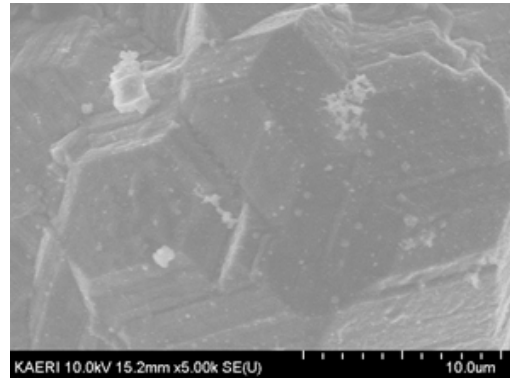


Fig. 3. SEM image of Zr deposited in LiF-KF-2.3wt.% ZrF₄ molten salts.

Fig. 3은 Fig. 2(b)의 전착물에 대한 표면을 SEM으로 관찰한 결과이다. 일정한 방향의 결정성을 지닌 전착물이 금속 Zr임을 EDX를 통해 확인할 수 있었으며, XRD 분석결과 chloride염에서 회수된 Zr에 비해 Zr의 결정성이 향상된 것으로 나타났다. 또한, ICP를 통해 Zr 전착물 성분을 분석한 결과 chloride계 용융염과 비교해 염함량이 상대적으로 적은 것으로 나타났다.

3. 결론

LiF-KF계 용융염에서 Zr 전해정련 시, Zr 이온의 단일한 환원반응거동을 확인할 수 있었으며, 회수된 Zr의 형상 및 결정성이 chloride계 용융염에서 보다 향상되었으며, 염함량도 상대적으로 적은 것으로 나타났다.

4. 참고문헌

- [1] J. J. Laidler, J. E. Battles, W. E. Miller, J. P. Ackerman, and E. L. Carls, "Development of pyroprocessing technology", *Prog. Nucl. Energ.*, 31, pp. 131-140 (1997).
- [2] H. Lee, G.-I. Park, K.-H. Kang, J.-M. Hur, J.-G. Kim, D.-H. Ahn, Y.-Z. Cho, and E. H. Kim, "Pyroprocessing technology development at KAERI", *Nucl. Eng. Tech.*, 43, pp. 317-328 (2011).
- [3] Dong-Keun Cho, Seok-Kyun Yoon, Heui-Joo Choi, Jongwon Choi and Won Il Ko, "Reference Spent Nuclear Fuel for Pyroprocessing Facility Design", *J. of the Korean Radioactive Waste Society*, 6(3), pp.225-232 (2008).

후쿠시마 원전사고와 같은 재난적 원전사고에서 발생하는 대용량 고염 방사성 폐액 처리를 위한 방사성 핵종의 복합응집 침전연구

김광욱*, 백예지, 이근영, 소지양, 박민성, 이일희, 정동용, 문제권

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*nkwwkim@kaeri.re.kr

1. 서론

2011년 3월 일본 후쿠시마 원전사고와 같은 재난적 원전사고 시, 대용량 고염 방사성 폐액이 발생하는 경우에 대비하기 위한 연구가 한국원자력연구원에서 수행되고 있다. 대규모로 발생하는 폐액을 효과적으로 처리하기 위하여 재난 대응기술은 단순성과 신속성 및 높은 제염효과를 가져야 하며, 이를 위해 본 연구에서는 Fig. 1과 같이 일련의 단위 침전을 조합하여 방사성 폐액 처리 기술을 개발하고 있다. 이러한 연구를 위해 가장 먼저 필요한 대상 핵종 선정은 그간 일본 원전사고 진행과정과 TEPCO에서 발표하는 자료를 참고하여 Table 1과 같이 선정하였다. 대상 핵종으로 비방사능이 크고, 반감기가 1년 이상인 Cs, Sr, (I), Co, Mn, Sb, Ru를 선정하였다. I은 비방사능은 매우 크기만 반감기가 짧아 초기에만 대상이 되고 시간이 경과하면 그 위해성은 매우 낮아진다. TRU 핵종은 그 농도가 무시할 만큼 작은 것으로 알려져 대상에서 제외하였다. 침전제의 선정은 대상핵종의 화학적 특성을 고려하여 Cs은 Chabazite zeolite에 의한 흡착침전, Sr은 4A zeolite 흡착침전 또는 Ba-SrSO₄ 이질동상침전, I은 Ag-침착 알루미나 흡착침전을 시키고 있다. 이들 침전제의 침전특성을 높이기 위하여 각 침전제는 마이크 수준 이상 크기의 침전제를 사용하고 있다. 이후 나머지 핵종인 Co, Mn, Sb, Ru들은 응집침전을 통해 복합제거하는 것으로 설정하였다. 본 연구에서는 무기응집제, 유기응집제를 사용한 Co, Mn, Sb, Ru 복합 응집 기구의 해석 및 최적 응집제 도출을 위한 연구를 수행하였다.

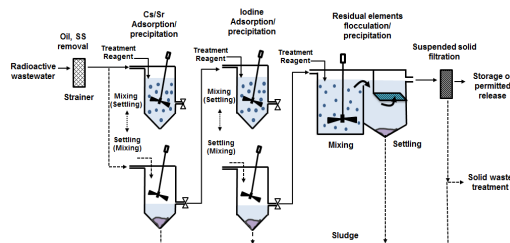


Fig. 1. Schematic process diagram for emergency treatment of huge, highly salt-laden, and radioactive wastewater using sequential precipitations.

Table 1. Selected radio-nuclide elements and their concentrations

Nuclides	Cs-134	Cs-137	Sr-90	I-131	Sb-125	Co-60	Mn-54	Ru-106
Activity (Bq/ml)	~10 ⁶	~10 ⁶	~1x10 ⁵	~10 ⁶	<50	<10	<10	<10
Spec. activity (Bq/g)	4.8x10 ¹³	3.6x10 ¹²	5.2x10 ¹²	5.2x10 ¹²	5.2x10 ¹³	4.1x10 ¹³	3.1x10 ¹⁴	1.3x10 ¹⁴
Half life (yr)	2.1	30	29	0.022	2.8	5.3	0.86	1.02
Conc. (ppm)	~0.02	~0.31	~0.02	~2.2x10 ⁻⁴	<1.4x10 ⁻⁴	<2.5x10 ⁻⁷	<3.5x10 ⁻⁸	<8.2x10 ⁻⁸

2. 실험

본 연구 응집실험에서는 대상핵종의 초기 농도를 분석의 편의성을 위하여 각 10 ppm으로 하였으며, 무기 응집제인 100 ppm Fe 응집제를 생성시키기 위하여 FeCl₃를 대상 용액에 첨가 후 pH를 조절하였고, 이후 유기 응집제인 양이온성 또는 음이온성 유기응집제인 PAA (Poly acrylamide)를 첨가하였다. 각 응집제 첨가 후 5분간 300 rpm의 급속교반과 이후 15분간 80 rpm의 완속교반을 수행하여 floc를 형성시켰고, 이후 용액의 NTU 변화, ICP-mass에 의한 각 농도 변화, 최종 floc 부피, 용액 내 floc 크기 등을 측정하였다.

3. 결과 및 토의

일반적인 응집(Coagulation) 침전은 표면전하가 음전하를 갖는 입자성 물질을 양이온성의 응집제를 첨가하여 입자를 중화시켜 침전을 시키는 것이지만, 본 연구는 각 핵종의 농도가 용해도보다 훨씬 낮은 이온들을 응집 침전시키기 위한 것으로, 어떤 조건의 응집제가 적절한지를 알기 위하여 먼저 pH에 따른 각 대상 핵종과 Fe 무기응집제의 이온종 변화를 문헌자료와 MINEQL 프로그램을 이용하여 평가하였다. Fig. 2는 pH에 따른 Fe(+3)의 이온종 변화와 Fe 용해도가 나타나 있다. Fe는 pH 8에서 Fe(OH)₃ 침전물 형태를 가지며 최저 용해도를 보인다. 해수의 pH가 거의 pH 8이므로, Fe 응집제의 효율적인 사용과 2차폐기물 발생의 최소화를 위하여, 본 연구에서는 pH 8에서의 대상 방사성 핵종의 복합응집 특성을 조사

하였다. Fig. 3에는 Fe 용액계와 Fe와 대상핵종 혼합계의 침전물과 및 양이온성과 음이온성 유기 응집제의 pH따른 제타전위 값이 나타나 있다. pH 8부근에서 Fe 단일 침전물과 혼합 침전물의 제타 전위가 모두 약 +10 mV 값을 보이고, 양이온성 PAA는 높은 +값을, 음이온성 PAA는 낮은 -값을 보여 pH 8에서 Fe floc에 유기응집제를 첨가하는 경우 음이온성 PAA가 적합함을 알 수 있었다. 그러나 본 연구에서는 Fe floc 침전물의 제타 전위가 크게 높질 않아 양이온성, 음이온성 유기 응집제를 같이 사용하여 대상핵종의 응집제거 시 여러가지 응집특성을 비교하였다.

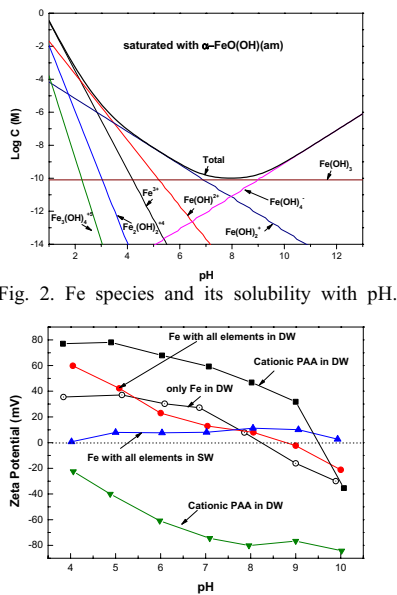


Fig. 2. Fe species and its solubility with pH.

Fig. 3. Zeta potentials of Fe coagulated precipitates and PAAs with pH.

Fig. 4에는 각 Co, Mn, Sb 용액에 Fe 첨가 유무 및 양이온성 및 음이온성 PAA와의 혼합 유무에서 pH 변화에 따른 용액에서 각 핵종 농도 변화가 나타나 있다. 단일 Co, Mn 용액에서는 pH 8 이후에서 가수분해 침전이 일어나고 Sb는 전 pH 범위에서 침전이 일어나질 않는다. 반면에 Fe가 혼합된 계에서는 Fig. 4의 빗금친 부분만큼 핵종의 농도 변화가 증가한다. 이것은 Fe-M 공침에 의한 용액에서의 핵종 제거가 증가하는 것을 알 수 있다. 양이온성 및 음이온성 PAA 혼합에서 각 핵종 농도 변화는 각 핵종의 pH에 따른 가수분해 침전에 의한 농도변화와 차이가 없다. 이것은 각 핵종 제거는 Fe의 공침에서 가능하고 있고, 유기 응집제 자체는 이들 핵종을 제거시키지 못함을 의미한다. 이러한 결과로부터 방사성 폐액의 극미량 혼합 핵종군은 Fe와의 공침에 제거될 수 있으나, 형성된 Fe floc은

미세하여 침강속도가 느리고 고-액분리 효율 나쁘게 한다. 이 경우 유기 응집제를 사용하여 Fe floc 자체의 크기를 증대시켜 침전속도의 증대와 고-액 분리 효율 증대시킬 수 있다. Fig. 5는 해수에서 Fe 공침 floc과 Fe 공침-PAA floc 계서 시간에 따른 용액의 NTU 변화를 보여준다. Fe 공침에 비하여 음이온성 PAA를 사용한 경우 침전속도가 훨씬 증가하며, 최종 NTU는 Fe 공침 floc 용액에서는 8.5인 반면 음이온성 PAA를 사용하는 경우 2.3으로 낮아진다. ICP-mass로 측정된 최종 용액 중에 각 핵종의 농도제거율은 95% 이상임을 확인하였다.

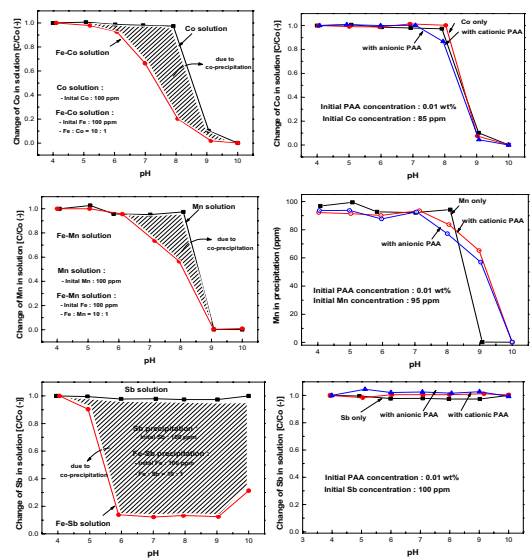


Fig. 4. Changes of concentrations of Co, Mn, Sb in solution with and without Fe, and with PAAs with change of pH.

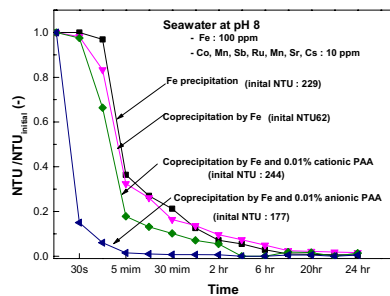


Fig. 5. Changes of NTU in settlement of Fe-metal floc and Fe-metal-PAA floc in solution with time.

4. 결과 및 토의

후쿠시마 원전사고와 같은 경우 발생하는 폐액 중 Co, Mn, Ru, Sb 핵종은 Fe-anionic PAA에 의한 coagulation-flocculation 계에 의해 동시에 효과적으로 제거될 수 있음을 알 수 있었다.

감압조건에서 LiCl-KCl-NdCl₃ 시스템의 열적무게감량특성

은희철^{1*}, 최정훈¹, 조인학², 박환서¹, 박근일¹

¹한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길111

²충남대학교, 대전광역시 유성구 대학로 79

*ehc2004@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료로부터 유용한 자원을 회수하기 위해 한국원자력연구원에서 개발하고 있는 사용후핵연료 파이로프로세싱(Pyroprocessing)은 전처리, 전해환원, 전해정련, 전해제련 등의 공정으로 구성되어 재활용이 가능한 U 및 TRU 금속을 회수하는 공정이다[1-6]. 그러나 이 파이로프로세싱에서 방사성 회토류 핵종들을 염화물 형태로 함유하고 있는 LiCl-KCl 공용염폐기물이 상당량 발생되며, 파이로프로세싱에서 발생하는 방사성 폐기물 발생량을 저감하기 위해서는 LiCl-KCl 공용염폐기물 내 방사성 회토류 핵종을 분리하는 것이 가장 효과적이다.

이러한 문제점을 해결하기 위해 한국원자력연구원에서는 회토류 핵종 산화침전 또는 인산화공정과 잔류공용염 감압휘발/응축회수공정으로 구성된 공용염 재생시스템을 개발하였으며, 이 시스템을 통해 회토류 핵종을 효과적으로 분리할 수 있고, 발생된 공용염폐기물의 대부분을 재활용이 가능한 형태로 회수할 수 있음을 확인하였다[7,8]. 특히, 회토류 핵종 산화침전 또는 인산화공정에서 발생하는 회토류 핵종 화합물 함유 LiCl-KCl 공용염 감압휘발/응축회수공정은 정제/회수되는 LiCl-KCl 공용염의 순도를 증진시키는데 크게 기여하는 공정이며, 감압휘발/응축회수공정의 전단계인 회토류 염화물의 산화 또는 인산화공정에서 산화물 또는 인산화물로 형태로 전환되지 않고 잔류하는 회토류 핵종들이 존재하기 때문에 감압휘발조건에서 이들의 거동을 관찰하는 것은 최종처분을 위해 고화처리되어야 하는 회토류 핵종 잔류물 내 미전환된 회토류 염화물의 존재형태를 파악하는데 필요하며, 이는 곧 회토류 잔류물의 고화처리를 위한 고화체 제조조건을 결정하는데 도움이 될 수 있다.

본 연구에서는 감압조건에서 LiCl-KCl 공용염 내 존재하는 회토류 염화물의 열적거동특성을 살

펴보고자 회토류 핵종 중 가장 많은 함량을 보유한 NdCl₃를 이용하여 감압조건에서 LiCl-KCl-NdCl₃ 시스템의 온도에 따른 열적거동을 관찰하였다.

2. 실험 및 결과

감압조건에서 LiCl-KCl-NdCl₃ 시스템의 열적거동을 관찰하기 위한 실험은 감압식 열중량 변화 분석장치를 이용하여 수행하였으며, 감압식 열중량변화 분석장치의 개략도는 Fig. 1에 나타내었다. Fig. 1에서 보는 바와 같이 감압식 열중량변화 분석장치는 크게 로드셀, 반응기, 전기히터, 감압장치 등으로 구성된다. 장치 내부를 비활성 분위기로 조성하기 위해 장치 상부에서 Ar 가스를 주입할 수 있도록 하였고, 휘발용기로 사용되는 도가니가 위치하는 부근의 온도를 정확히 파악하기 위해 Fig. 1에서와 같이 도가니 인근에서 온도 센서(TC-1)를 설치하였다. 장치 상부에는 로드셀을 높은 온도조건에서 보호하기 위한 방안으로서 충분한 두께의 단열재를 로드셀 바닥부에 설치하였다. 장치 내부의 압력조건을 제어하기 위해서 진공펌프 전단부에 바이패스 밸브를 설치하였다. 감압식 열중량변화 분석장치는 내부온도 기준으로 최대 1,100°C까지 가열할 수 있고, 내부압력을 0.001 Torr까지 감압할 수 있다.

감압조건에서 LiCl-KCl-NdCl₃ 시스템의 열적거동을 관찰하기에 앞서 LiCl과 KCl 및 회토류 염화물의 증기압차를 살펴보았다. Fig. 2는 Westphal 등의 연구결과에서 확인된 자료이다[9]. 이 자료에 따르면 700에서 800°C 사이의 온도에서는 KCl과 NdCl₃의 증기압은 약 100배의 차이를 보이고, 온도가 증가할수록 증기압 차이는 감소하는 것으로 확인되었으며, 900°C에서 NdCl₃의 증기압은 약 0.1 Torr인 것으로 예상되었다. 이상의 증기압 자료를 바탕으로 5 Torr 이하의 감압조건에서 온도 변화(~ 850°C)에 따른 NdCl₃의 거동을 분석하였다. 3~6 Torr의 감압조건과 약 850°C까지의 가열

후 1시간 유지하는 조건에서 NdCl_3 는 무게는 유지되는 것으로 확인되었다. 이러한 NdCl_3 의 열적 거동을 바탕으로 감압조건에서 LiCl-KCl-NdCl_3 시스템의 열적거동을 관찰하였으며, 800°C 의 운전 온도와 1 Torr의 감압조건에서 LiCl-KCl 공융염은 모두 휘발되었으나 NdCl_3 의 거의 대부분은 도가니 내에 잔류하는 것으로 확인되었다.

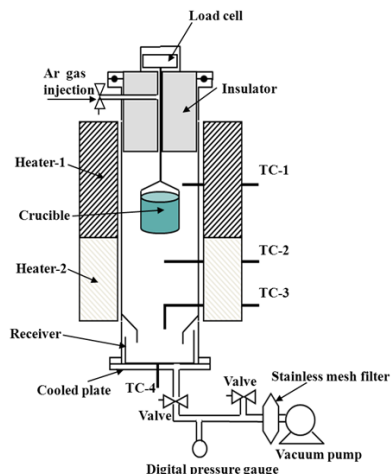


Fig. 1. A schematic diagram of the vacuum thermal gravimetric analyzer.

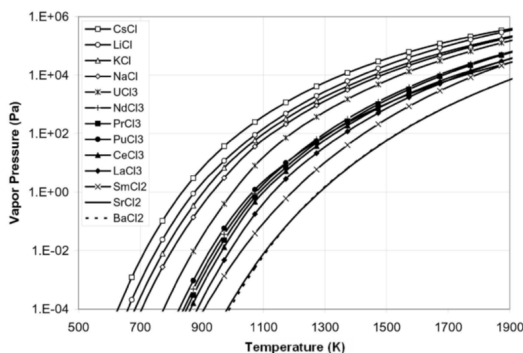


Fig. 2. Vapor pressures of chloride species[9].

3. 참고문헌

- [1] T. R. Griffiths, V. A. Volkovich, S. M. Yakimov, I. May, C. A. Sharrad, J. M. Charnock, J. Alloy and compound, 418, 116-121, 2006.
- [2] V. A. Volkovich, T.R. Griffiths, R.C. Thied, J. Nucl. Mater., 323, 49-56, 2003.

- [3] M. Matsumiya, H. Matsuura, J. Electroanal. Chem., 579, 329-336, 2005.
- [4] O. Shirai, M. Iizuka, T. Iwai and Y. Arai, Anal. Sci., 17, 51-57, 2001.
- [5] J. P. Ackerman, Ind. Eng. Chem. Res., 30, 141, 1991.
- [6] T. Kato, T. Inoue, T. Iwai, Y. Arai, J. Nucl. Mater., 357, 105-114, 2006.
- [7] Y.Z. Cho, H.C. Yang, G.H. Park, H.S. Lee, I.T. Kim, J. Nucl. Mater. 384, 256-261, 2009.
- [8] H.C. Eun, J.H. Kim, Y.J. Cho, J.H. Choi, T.K. Lee, H.S. Park, G.I. Park, J. Nucl. Mater., 442, 175-178, 2013.
- [9] B.R. Westphal, K.C. Marsden, J.C. Price, D.V. Laug, Nucl. Engineer. Technol. 40(3), 163-174, 2008.

소결조제에 의한 소각재 고화연구

안병길*, 이기원, 민병연, 이윤지, 나상호, 윤경수, 문제권
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*bgan@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력시설에서 발생하는 가연성 고체 폐기물을 소각 처리하면 최종적으로 안정한 무기물질인 소각재가 발생된다. 소각처리에 의해 약 1/40의 감중비를 나타내므로 소각재에는 방사성 물질이 농축되어 비방사능이 높아지게 된다. 또한 소각재는 밀도가 낮아 비산에 따른 위험성 등이 존재하므로 최종 처분을 위해서 안정된 고화체로 제조되어야 한다. 고화체 제조 매질로 시멘트, 플라스틱, 아스팔트 등이 사용될 수 있으나 감용 및 안정성 측면의 고찰이 필요하다.

본 연구에서는 연구용 원자로 해체공정에서 발생된 3종의 가연성 폐기물 혼합물을 소각하여 발생된 소각재를 대상으로 고화체 제조에 대한 연구를 수행하였다. 고화방법은 붕산과 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ (NHP)로 구성된 소결조제를 소각재와 혼합, 압축 성형 및 소결하여 고화체를 제조하였으며, 제조된 고화체에 대한 물리적 특성 및 SEM/EDS 분석을 수행하여 고화체 특성을 연구하였다. 이러한 결과들을 이용하여 실 규모 소각재 고화체 제조 공정에 대한 개념설계 결과를 나타내었다.

2. 본론

2.1 실험방법

본 연구에 사용된 구용 원자로 해체공정에서 발생된 3종의 소각대상 가연성 폐기물과 소각후 발생된 소각재(혼합물)에 대한 구성 조성을 Table 1에 각각 나타내었다. 나타내었으며, 주요 구성물은 나무이며 아크릴 판, 플라스틱 등으로 구성되어 있다. 이들 가연성 폐기물 소각재는 유리화를 유도할 수 있는 CaO, Na_2O , K_2O , 등이 많이 함유되어 있음을 알 수 있다. 저온에서 유리화 또는 세라믹 고화체를 제조하기 위해서 소결조제는 SiO_2 , B_2O_3 및 NHP 각각 또는 혼합물을 사용한 실험 결과 하였다. 그 결과 소결조제로서 B_2O_3 /NHP = 4 인 적정 조성을 도출하였다. 이러한 소

결조제를 3종의 소각재 혼합물에 약 5wt% 첨가, 혼합, 30 MPa로 압축 성형 후 1100℃에서 4시간 소결하여 고화체를 제조하였다. 소결조제에 의한 소각재 고화공정에 대한 개념을 Fig. 1에 나타내었으며, 소결조제와 소각재의 접촉면에서 물질 전달이 일어난 후 bulk 상으로 용융현상이 전달되며 최종적으로 유리상, 세라믹 혹은 혼합상이 공존하는 고화체를 형성하게 된다.

Table 1. (a) Incineration waste of TRIGA decommissioning (b) elements composition of mixed ash

(a)			(b)			
Waste		wt%	Elements		wt%	
A	wood	87.9	CaO	26.7		
	plastics	9	Na2O	3.8		
		acrylate plate	1.8	K2O	4.1	
				Al2O3	12.4	
		mixture	1.3	Fe2O3	27.5	
B	wood	72.4	SiO2	12.1		
	plastics	3	MgO	3.0		
	acrylate plate	24.6	TiO2	3.0		
				ZnO	2.0	
				Cr2O3	1.9	
C	wood	58	Ni2O	0.8		
	acrylate plate	32.1	Mn2O3	0.4		
	PVC	1.2	CuO	0.2		
	cotton glove	2.1	PbO	2.1		
	paper	6.6	CdO	0.1		

2.2 결과

소각재와 소결조제(5wt%) 혼합물, 30MPa 압축 성형체 및 소결체의 사진을 Fig. 2에 나타내었다. 압축성형체는 표면 및 모서리 부분이 손상없이 잘 형성됨으로서 롤 컴팩터를 이용한 대량 제조 공정의 적용이 가능함을 알 수 있다. 제조된



Fig. 1. Model for immobilization process of ash and sintering agent mixture.

최종 고화체는 압축강도가 15.2 MPa, 밀도가 3.0 g/cm³ 으로서 치밀한 구조의 고감용 고화체를 형성하였다. 소각재와 고화체 절단면에 대한 SEM 분석 결과를 Fig. 3에 나타내었다. 고화체에 대한 SEM 분석결과를 보면 유리상 형성에 치밀한 구조로 구성되어 있음을 알 수 있다.

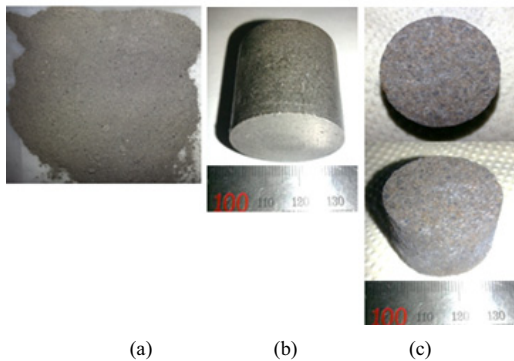


Fig. 2. (a) mixture of incineration ash and 5wt% sintering agent, (b) green body of 30 MPa compression and (c) waste form after sintering(1100°C).

이러한 결과들로 부터 실규모 고화체 제조 공정에 대한 개념을 도출하여 Fig. 4에 나타내었다. 이 그림을 보면 소각재와 소결조제의 혼합/ 분쇄 공정, 롤러 컴팩터에 의한 성형체 연속 제조공정 및 소결 공정으로 구성됨을 알 수있으며, 분체의 비산을 막기 위해 glove box 내에 구성 되어야 한다. 또한 구성품의 보수가 용이하도록 모듈 형태로 제작되어야 한다.

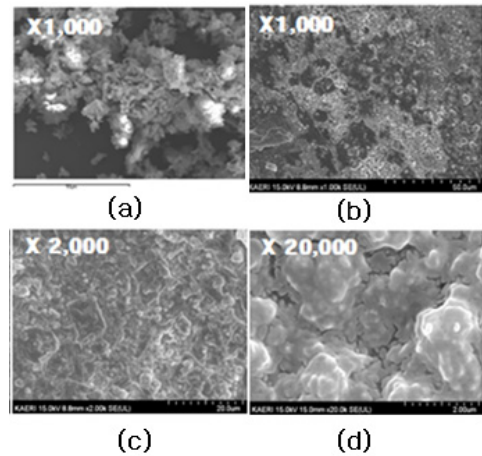


Fig. 3. SEM images of (a) ash, fracture surface of waste form (b) x1000, (c) x2000 and (d) x20000.

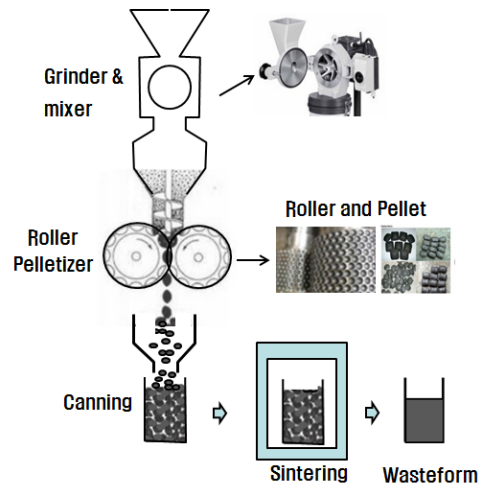


Fig. 4. Schematic drawing of immobilization of incineration ash.

3. 결론

소각재 고화에 있어서 소량(5wt%)의 소결 조제 첨가 및 1100°C에서 소결하여 약 3.0 g/cm³ 의 밀도를 갖는 우수한 고화체를 제조할 수 있었으며, 실규모 고화공정에 적용할 수 있는 혼합/ 분쇄 공정, 롤러 컴팩터에 의한 성형체 연속 제조공정 및 소결 공정에 대한 개념을 도출하였다.

유도가열식저온로 하부챔버의 열피로 수명평가

이병관*, 이해현, 장인선, 김천우

한수원(주)중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70

*leebkw@khnp.co.kr

1. 서론

유리용탕을 형성하여 폐기물을 유리화하는 유도가열식저온로(CCIM : Cold Crucible Induction Melter)의 하부챔버는 약 1,150℃의 고온에 노출된다. 하부챔버 재질은 유도가열 성능, 내부식성 등을 고려 STS 304L을 사용하였다.

중저준위 유리화설비는 연간 약 30회 운전이 예상되며 1회 운전은 운전온도인 1,150℃에 도달 후 약 일주일 정도 연속운전 후 정지된다. 이를 기준으로 하여 CCIM 하부챔버의 열피로(Thermal Fatigue) 수명평가를 수행하였다.

2. 본론

2.1 열피로(Thermal Fatigue)

고온에서 피로파괴를 발생시키는 응력은 기계적 원인들로부터만 발생하지는 않는다. 피로파괴는 기계적 원인들로 발생하지 않는 환경에서 열응력의 요동에 의해서도 발생할 수 있다.

온도변화의 결과로부터 대상물의 치수변화가 구속에 의해 방해 받을 때 열응력이 발생한다. 이는 열피로 파괴의 경향을 나타내는 식(1)의 변수관계 [1]를 보면 알 수 있다. 식(1)의 변수 값이 높으면 열피로 파괴에 대한 저항성이 높아지게 된다. 스테인레스강의 경우 k(열전도도)값이 낮고 α(선팽창계수)값이 높기 때문에 식(1)의 값은 낮아지게 된다. 즉 스테인레스강의 열피로에 대한 저항성이 우수하지 않음을 알 수 있다.

$$\sigma_{fk} / E\alpha \text{ -----(1)}$$

σf : 피로강도, k : 열전도도, α : 선팽창계수, E : 탄성계수

열피로는 열원의 요동에 의한 피로손상기구로 대표적인 저주기피로(low cycle fatigue)에 해당하는데, 반복응력보다는 반복변형으로 수명평가가 용이한 피로현상이다[2].

2.2 시뮬레이션 결과

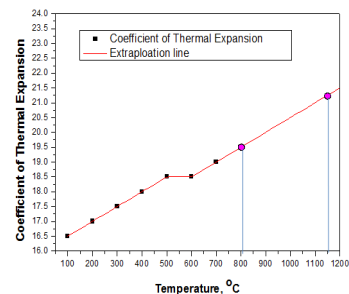
CCIM 하부챔버는 48개의 sector가 원통형을 형성함으로써 sector간에 구속이 발생하는 구조를 갖는다. 시뮬레이션(프로그램: ANSYS 13.0)을 통하여 하부챔버의 strain(ε)을 구하기 전에 구속이 없는 상태(condition of free body)에서 STS304L의 열팽창을 통한 strain(ε)을 계산하여 하부챔버의 피로수명을 평가하는데 참조하였다.

열팽창을 통한 strain(ε)은 구속이 없는 조건하에서 다음과 같은 관계를 나타낸다.

$$\varepsilon = \alpha \Delta T \text{ -----(2)}$$

α : 선열팽창계수(℃⁻¹), ΔT : 온도변화(℃)

운전온도인 1,150℃에서의 strain(ε)을 계산하기 위하여 STS304L의 700℃ 이상에서의 열팽창계수 값은 외삽법(extrapolation)을 통하여 구하였다. Fig. 1에 외삽법을 통하여 700℃ 이상에서의 열팽창 계수값을 나타냈으며, 여기서 구속이 없는 조건하에서 계산된 strain(ε)은 1,150℃에서 0.0212로 계산되었다. 하부챔버에 대한 시뮬레이션을 통하여 구조적인 구속력 하에서 열팽창을 통하여 생성되는 strain(ε)값을 계산하여 수명을 평가하고자 하였다.



Temperature, °C	Coefficient of thermal expansion, °C ⁻¹	Strain _{max} (ε=αΔT)	비고
500	18.5 X 10 ⁻⁶	0.0087	Free body
800	19.5 X 10 ⁻⁶ (extrapolation)	0.0151	Free body
1150	21 X 10 ⁻⁶ (extrapolation)	0.0236	Free body

Fig. 1. Coefficient of thermal expansion of STS304/304L.

Fig. 2는 시뮬레이션을 위한 하부챔버의 모델링 결과를 나타내었다. DASSAULT SYSTEMES사의 SolidWorks 프로그램을 사용하여 1,150℃ 온도 구역에 해당하는 부분에 대해서 모델링을 수행하였다. 이때 하부챔버를 구성하는 sector의 두께는 20 mm, 냉각수 홀의 직경은 10 mm이다.

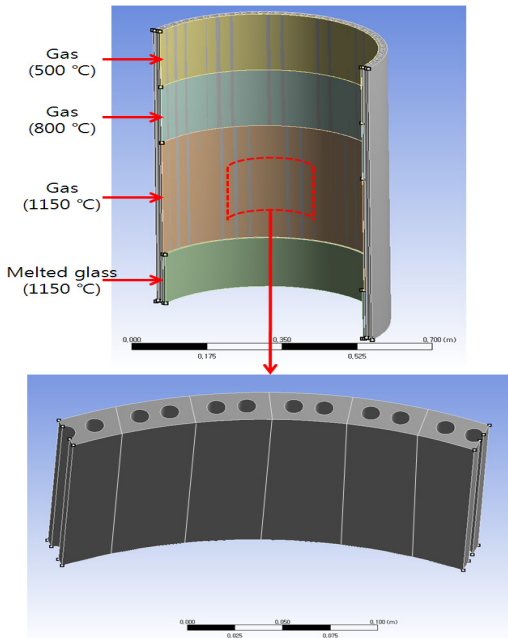


Fig. 2. Modeling of Low chamber of CCIM for simulating thermal fatigue.

ANSYS Code(프로그램 버전: ANSYS 13.0)를 사용하여 하부챔버에 대한 Finite Element Meshing을 수행한 결과 Nodes는 398,625개였으며, Elements는 81,000개였다.

1,150℃ 온도 구역에서 시뮬레이션(프로그램 : ANSYS 13.0)을 통하여 얻어진 strain(ϵ)결과는 0.00719로 계산되었다.

Fig. 3은 2007 ASME BOILER & PRESSURE VESSEL CODE[3]에서 제시하는 STS304/304L에 대한 Strain-Number of Allowable cycles 곡선으로 strain(ϵ)이 0.00719일 때 최대 허용주기수가 약 1,660회가 되는 것을 확인할 수 있다. 즉 1,660회 이상이 되면 피로균열이 발생하는 것을 나타내는데, 이는 년 30회로 계산했을 때 약 55년에 해당한다.

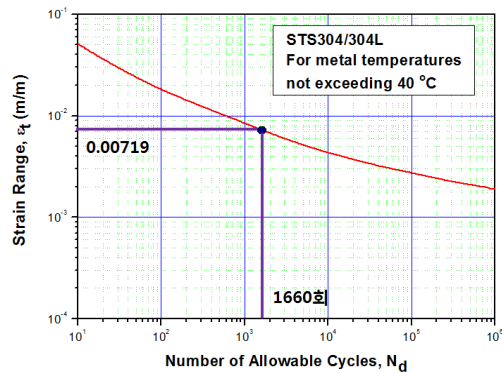


Fig. 3. Strain-Number of Allowable cycles curve[4] for STS304/STS304L at 1.150℃ in low chamber of CCIM.

3. 결론

CCIM 하부챔버의 운전온도인 1,150℃에서 열피로 수명을 평가한 결과 열팽창을 통한 strain(ϵ)은 0.00719로 계산되었다. ASME Code[4]에서 STS 304/304L의 strain(ϵ)이 0.00719일 때 허용주기 횟수가 약 1,660회가 된다. 이는 CCIM의 일년 동안의 운전횟수를 30회로 할 때 약 55년에 해당한다. 하부챔버의 구조적 구속과 운전 중 하부챔버 내부에 형성된 압력이 대기압 수준이므로 열팽창 이외 추가적으로 strain(ϵ)을 일으키는 요소가 존재하지 않는 점을 고려하면 열피로 관점에서의 하부챔버 수명은 약 55년으로 평가된다.

4. 참고문헌

- [1] George E. Dieter, Mechanical Metallurgy, p.430.
- [2] George E. Dieter, Mechanical Metallurgy, p.390.
- [3] 2007ASME BOILER & PRESSURE VESSEL CODE, Division 1-Subsection NH, p.109.
- [4] Ronald Lesley Plaut, A Short Review on Wrought Austenitic Stainless Steels at High Temperatures: Processing, Microstructure, Properties and Performance, Materials Research 2007, Vol.10, No. 4, 453-460.

LiCl-KCl 공융염 폐기물 내 희토류 핵종의 인산화침전반응 거동 분석

최정훈*, 은희철, 이기락, 박환서, 박근일

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*mrchoijh@kaeri.re.kr

1. 서론

후행 핵연료주기에서 발생하는 방사성 폐기물은 고방사성, 고방열성 특징으로 인해 큰 사회적 이슈이며, 폐기물의 처분 방법에 관하여 활발히 연구가 수행되고 있다. 사용후핵연료로부터 우라늄 (U) 및 초우라늄계 원소 (TRU) 등을 회수하여 차세대 원자로의 연료로 재사용하고, 방사성 폐기물의 발생량 및 처분면적을 줄이고자 하는 목적으로, 한국원자력연구원에서는 파이로 건식처리공정 (Pyrochemical process)을 개발 중에 있다.[1,2] 고온의 용융염을 전해매질로 사용하는 파이로 건식처리공정은 사용후핵연료를 재활용할 수 있는 기술로서 전해환원, 전해정련 및 전해제련 공정으로 구성되며, 일련의 전기화학 공정처리 후 전해매질 내에는 방사성 불순물 핵종이 누적되게 된다. 구체적으로는, 전해환원 공정에서는 LiCl 염이, 전해정련 및 제련공정에서는 LiCl-KCl 공융염이 염폐기물로 발생하게 된다. 특히 공정이 누적됨에 따라 LiCl-KCl 공융염 내에는 방사성 희토류 핵종이 다량 농축되어 존재하게 되며, 이러한 희토류 염화물을 함유한 공융염 폐기물 감축을 위해서는 희토류 핵종을 분리/제거한 후 정제된 공융염을 전해정련 공정에서 재사용하고, 분리된 희토류 핵종은 장기건전성이 확보된 형태의 고화체로 제조하여 최종 처분해야 한다.

본 연구에서는 희토류 염화물의 인산화침전반응 거동 분석을 제일원리계산을 통하여 수행하였다. 염폐기물 내의 핵종거동에 대한 분석[3] 등에 응용되고 있는 양자역학 시뮬레이션을 이용하여, K_3PO_4 - Li_3PO_4 인산화제 하에서 La, Ce, Pr, 및 Nd 희토류 핵종의 인산화반응에 관한 energy profile 분석을 수행하였으며, 이를 통하여 인산화제인 K_3PO_4 - Li_3PO_4 와 희토류 핵종 간의 반응 거동을 분석하였다.

2. 본론

2.1 계산 및 결과

결정구조의 구조 최적화 및 에너지 계산은 제일 원리계산 (First-Principles Calculation) 방법인 양자역학 시뮬레이션 (Quantum mechanical simulation)을 이용하여 수행하였다. 구조를 최적화하기 위하여 GGA (Generalized Gradient Approximation)를 이용하였으며, exchange correlation functional로서 Perdew Burke Ernzerhof (PBE) functional을 이용하였다. 결정구조를 모사하기 위하여 periodic boundary condition을 이용하였으며, 모든 원소의 포텐셜은 ultrasoft-pseudopotential을 이용하였다. 전자 파동함수는 300.0 eV의 cut-off energy 하에서 plane wave basis set을 이용하여 전개되었으며, k-point sampling은 Monkhorst-Pack scheme을 이용하였다. 인산화제인 K_3PO_4 , Li_3PO_4 및 희토류 인산화물인 $LaPO_4$, $CePO_4$, $PrPO_4$, $NdPO_4$ 의 구조 최적화는 실험값으로 보고된 결정구조로부터 초기 구조를 형성하여 수행되었으며, Li^+ , K^+ , Cl^- , $(PO_4)^{3-}$, La^{3+} , Ce^{3+} , Pr^{3+} , 및 Nd^{3+} 는 periodic boundary condition에서 plane-wave basis set의 영향이 없도록, 셀 사이즈를 $10 \times 10 \times 10 \text{ \AA}$ 으로 고정하여 계산을 수행하였다.



위의 계산방법을 이용하여 energy profile 계산하였고, (Fig. 1 참조) 이를 종합하여 K_3PO_4 - Li_3PO_4 인산화제를 이용한 희토류 인산화물 전환반응의 거동을 다음과 같이 도출할 수 있다. 우선 K_3PO_4 및 Li_3PO_4 인산화제의 경우 발열반응을 통해 인산화가 진행되는 것과 역반응의 에너지 장벽이 매우 큰 것으로부터 희토류 이온을 인산화하여 에

너지적으로 안정한 결정(침전)을 형성하게 되어 효율적으로 희토류 핵종을 분리할 수 있는 것을 확인할 수 있었다. 하지만 Li_3PO_4 인산화제의 경우 이온화 에너지가 K_3PO_4 인산화제 보다 다소 높은 것으로부터 반응의 kinetic은 반응식 (1)이 우세한 것이 예상된다. 또한 반응식 (3)의 energy profile 분석을 통하여, K_3PO_4 인산화제의 경우 희토류 이온뿐만 아니라 Li^+ 이온에 대하여도 인산화제 역할을 하여 Li_3PO_4 를 형성하는 것을 확인할 수 있었다. 이러한 초기반응을 통하여 K_3PO_4 인산화제는 희토류 인산화물 및 Li_3PO_4 인산화제로 전환이 되어 소멸되고, 나머지 희토류 이온은 반응식 (2)를 통하여 최종적으로 희토류 인산화물로 전환이 되게 된다. 기존의 실험결과에서 희토류 이온대비 과량의 K_3PO_4 - Li_3PO_4 인산화제를 넣었을 경우 최종생성물이 희토류 인산화물 및 Li_3PO_4 인 것으로부터도 위의 반응경로가 타당함을 확인할 수 있으며, 따라서 본 energy profile 분석은 신뢰성이 있음을 확인할 수 있었다.

3. 결론

본 연구에서 사용한 흡열/발열반응 에너지, 이온화 에너지, 및 역반응 에너지 장벽 계산 등을 통한 energy profile 분석을 이용하여 La, Ce, Pr, Nd 이외의 다른 희토류 핵종을 분리하기 위한 인산화반응에 대한 효율성을 예측할 수 있고, K_3PO_4 - Li_3PO_4 이외의 인산화제를 이용할 경우의 반응경로 예측을 통하여 효율적인 희토류 인산화물 전환반응을 디자인할 수 있을 것으로 사료된다.

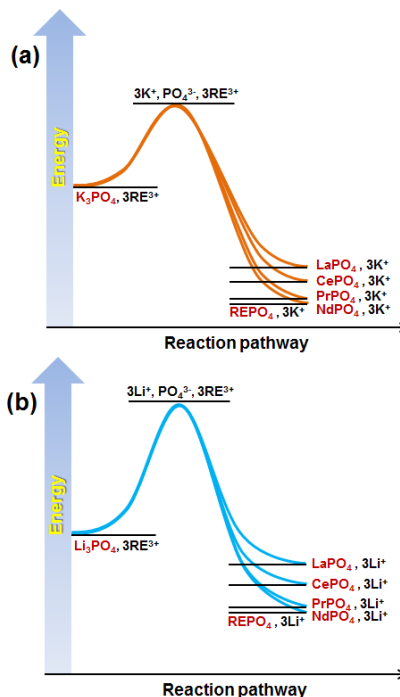


Fig. 1. Energy profiles of rare-earth phosphorylation reaction promoted by (a) K_3PO_4 and (b) Li_3PO_4 .

4. 참고문헌

- [1] H.S. Lee, J.M. Hur, J.G. Kim, D.H. Ahn, Y.Z. Cho and S.W. Paek, Energy Procedia, 7, pp. 391-395 (2011).
- [2] H.S. Lee, G.I. Park, K.H. Kang, J.M. Hur, J.G. Kim, D.H. Ahn, Y.Z. Cho and E.H. Kim, Nucl. Eng. Technol., 43, pp. 317-328 (2011).
- [3] J.H. Choi, Y.Z. Cho, T.K. Lee, H.C. Eun, J.H. Kim, I.T. Kim, G.I. Park and J.K. Kang, J. Cryst. Growth, 371, pp. 84-89 (2013).

석탄회필터 포집 방사성 세슘 분석

김정석*, 김영복, 신진명, 최광순, 박재일, 박용준

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*njskim1@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료를 재활용하기 위해서는 사용후핵연료를 탈피복 후 후속공정을 수행해야 한다. 후속공정이 건식공정(Pyroprocessing)인 경우 전처리공정으로 핵분열생성물을 제거하는 휘발성 산화공정(Voloxidation)이 필요하며 또한, 이러한 공정으로부터 휘발되는 기체상의 핵분열생성물을 안전하게 포집하는 배기체 처리기술 개발이 요구된다. 특히 휘발성 산화공정 중 휘발되는 핵종 중에서 세슘(^{137}Cs)은 긴 반감기(30.17년)의 고방열 고방사성 핵종이므로 공정 중 테크네튬(^{99}Tc) 등 다른 핵분열생성물로부터 분리 포집하는 기술은 매우 중요하다. 세슘의 분리 포집을 위하여 석탄회(Fly ash) 필터가 많이 사용되었다[1]. 세슘의 포집효율을 평가하기 위해서는 화학분석에 의한 공정 전 사용후핵연료 중의 세슘과 공정 중 석탄회 필터에 포집된 세슘의 측정이 반드시 필요하다. 석탄회필터에 포집된 세슘분석을 위해서는 마이크로 용해장치 등을 이용한 시료의 완전 분해가 효과적이다[2]. 그러나 공정 후의 석탄회필터는 매우 고방사성이므로 핫셀 내에서의 작업이 필수적이며 이러한 장비의 사용이 불가능하다. 플랜트에서 사용한 석탄회 잔유물 중에서 알루미늄 및 여러 금속성분을 회수하기 위하여 염산용액 등으로 환류시키는 산추출법이 이용되었다[3,4]. 이 경우 석탄회 성분 중 실리콘은 거의 불용이었으나 다른 주성분인 Al, Fe, Ca, Mg, Na, K, Ti 및 P 등은 대부분 용해하였다.

본 연구에서는 열처리공정에 사용된 석탄회필터의 세슘 제거율을 화학적 방법으로 측정하고자 하였다. 먼저 열처리공정을 거치지 않은 사용후핵연료(평균 연소도 : 60 GWd/tU) 시편과 열처리공정을 거친 사용후핵연료 시편 중의 방사성 세슘 및 다른 감마 방출체들을 측정하였다. 이어 열처리공정 중 휘발된 세슘을 포집한 석탄회필터를 배치별로 각각 준비하여 각 시료에 함유된 방사성 세슘을 측정하였다. 분석시료 준비를 위한 산용해 및 산침출을 포함한 모든 전처리는 화학핫셀을 이용한 원격작업으로 수행하였다.

2. 실험 및 결과

2.1 사용후핵연료시료 전처리 및 핵종분석

화학핫셀로 반입된 사용후핵연료는 셀내에 설치된 핵연료 용해장치를 이용하여 8M HNO_3 용액으로 90℃에서 12시간 환류 용해하였다. 일정농도로 희석하여 인출 후 방사능계측실로 옮겨 감마선분광분석에 의한 감마 방사성핵종을 측정하였다(Table 1).

2.2 석탄회필터시료 전처리 및 핵종분석

화학핫셀로 반입된 고방사성의 석탄회필터 시료는 Fig. 1의 과정에 따라 시료전처리 및 핫셀로부터 인출 후 감마선분광분석에 의한 방사성 세슘

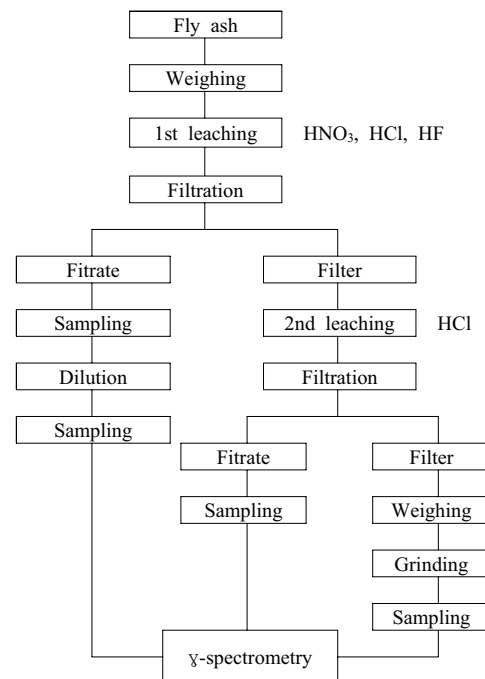


Fig. 1. Analytical processes for the determination of radioactive cesium in a fly ash filter.

Table 1. Distribution of gamma emitters in the dissolved solutions of spent fuel samples

Nucl.	Activity (Bq/g-sample)		
	SF-1	SF-2	SF-3
^{134}Cs	$5.40 \times 10^8 \pm 1.24 \times 10^5$	$9.80 \times 10^5 \pm 1.36 \times 10^5$	$1.24 \times 10^6 \pm 1.71 \times 10^5$
^{137}Cs	$4.84 \times 10^9 \pm 4.34 \times 10^6$	$9.05 \times 10^6 \pm 4.48 \times 10^5$	$1.23 \times 10^7 \pm 8.28 \times 10^5$
^{144}Ce	$1.75 \times 10^7 \pm 2.16 \times 10^6$	$1.60 \times 10^7 \pm 1.44 \times 10^6$	$1.97 \times 10^7 \pm 2.42 \times 10^6$
^{154}Eu	$1.86 \times 10^8 \pm 2.13 \times 10^6$	$1.72 \times 10^8 \pm 9.13 \times 10^5$	$1.83 \times 10^8 \pm 8.93 \times 10^5$
^{155}Eu	$5.83 \times 10^7 \pm 8.66 \times 10^5$	$6.54 \times 10^7 \pm 6.42 \times 10^5$	$8.30 \times 10^7 \pm 1.93 \times 10^6$
^{106}Ru	$6.90 \times 10^7 \pm 1.31 \times 10^7$	$< 2.35 \times 10^6$	$< 3.30 \times 10^6$
^{125}Sb	$3.11 \times 10^7 \pm 2.38 \times 10^6$	$3.05 \times 10^7 \pm 9.54 \times 10^5$	$3.28 \times 10^7 \pm 1.09 \times 10^6$
^{95}Zr	$1.33 \times 10^7 \pm 5.22 \times 10^5$	$1.35 \times 10^7 \pm 9.47 \times 10^5$	$1.42 \times 10^7 \pm 4.39 \times 10^5$

(^{134}Cs 및 ^{137}Cs)을 측정하였다. 5종의 시료(Cs-1, -2, -3, -4, -5) 각각을 혼산을 이용하여 1차 침출하고 침출액에 잔류하는 불용잔유물을 수집하기 위하여 Glass microfibre filter(Whatman, 934-AHTM 47mm)를 이용하여 여과하였다. 여과필터(Fig. 2)에 대해 방사능을 측정한 결과, 20-500 μSv 범위이었으며(Fig. 2), 이어서 염산용액을 이용하여 2차 침출한 후에는 여과필터의 방사능이 5-250 μSv 범위이었다. 침출 후 고방사능을 보이는 3종(Cs-1, Cs-3, Cs-4)의 필터는 핫셀 내에서 분쇄하여 균질하게 만든 다음 일정량을 취하여 감마선분광분석을 하였다. 석탄회필터 각 시료에 대한 세습의 총 방사능은 1차 및 2차 침출액(Table 2) 및 여과필터에 대하여 측정된 방사능의 합으로 산출하였다.

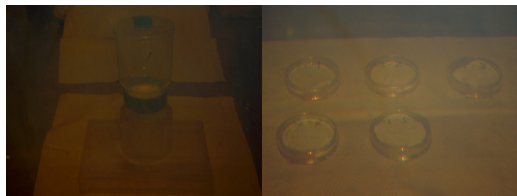


Fig. 2. Collection of insoluble residues after acid leaching of fly ash filter samples.

3. 결론

각 배치로부터 준비한 여러 석탄회필터 모두 고방사성의 세습이 검출되었다. 혼산 환류법을 이

Table 2. Distribution of radioactive cesium in the leached solutions of fly ash filter samples

Nucl.	Activity (Bq/g-sample)	
	1st leach. soln'	2nd leach. soln'
Cs-1	^{134}Cs $1.48 \times 10^9 \pm 3.99 \times 10^6$	$3.80 \times 10^6 \pm 1.03 \times 10^4$
	^{137}Cs $1.31 \times 10^{10} \pm 1.38 \times 10^7$	$3.42 \times 10^7 \pm 3.41 \times 10^4$
Cs-2	^{134}Cs $5.38 \times 10^8 \pm 2.29 \times 10^6$	$2.55 \times 10^4 \pm 6.29 \times 10^2$
	^{137}Cs $4.74 \times 10^9 \pm 6.86 \times 10^6$	$2.15 \times 10^5 \pm 1.93 \times 10^3$
Cs-3	^{134}Cs $3.19 \times 10^8 \pm 1.63 \times 10^6$	$3.77 \times 10^4 \pm 9.68 \times 10^2$
	^{137}Cs $2.78 \times 10^9 \pm 5.52 \times 10^6$	$3.20 \times 10^5 \pm 3.80 \times 10^3$
Cs-4	^{134}Cs $2.25 \times 10^8 \pm 6.38 \times 10^5$	$4.04 \times 10^4 \pm 6.15 \times 10^2$
	^{137}Cs $2.02 \times 10^9 \pm 2.13 \times 10^6$	$3.52 \times 10^5 \pm 2.10 \times 10^3$
Cs-5	^{134}Cs $3.89 \times 10^7 \pm 2.64 \times 10^5$	$2.08 \times 10^4 \pm 3.78 \times 10^2$
	^{137}Cs $3.42 \times 10^8 \pm 9.11 \times 10^5$	$1.85 \times 10^5 \pm 1.29 \times 10^3$

용하여 공정 석탄회필터를 침출할 경우 필터에 포집된 세습을 대부분 회수할 수 있었다. 세습 침출과정을 1차로 간소화하고 효율을 높이기 위해서는 침출 온도(예, 110 $^{\circ}\text{C}$) 및 시간(예, 24시간 이상)의 적절한 조정이 필요하였다. 석탄회필터의 주성분인 실리카 분해를 위하여 불산의 사용은 용기의 부식에 의한 불용잔유물의 양을 증가시키므로 과량의 사용은 효과적이지 못하였다.

4. 참고문헌

- [1] 신진명 외, Optimization of Off-gas Trapping Capabilities for Pyroprocessing at KAERI, KAERI/TR-3884/2009.
- [2] 최광순 외, 한국분석과학회, 2012년 한국분석과학회 추계학술대회 논문요약집, p. 102, 2012.
- [3] R.T. Hemmings et al., Direct Acid Leaching of Fly Ash: Recovery of Metals and the Use of Residues as Fillers, ERA-13-007176, 1987.
- [4] A.D. Kelmers et al., Direct Acid Dissolution of Aluminum and Other Metals from Fly Ash, CONF-810203-6, 1981.

Lab 규모 밴드히터형 농축폐액 증발건조기 개발 · 실험을 통한 실증설비 최적설계 연구

조항래*, 백석민, 이지훈, 박승철, 양호연

한수원(주) 중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70

*hang@khnp.co.kr

1. 서론

원자력발전소 운영중 발생할 수 있는 비정상 방사성폐액이나 후쿠시마와 같은 중대사고로 발생하는 고준위 방사성폐액을 처리하기 위하여 막분리, 선택적 흡착, 전기 탈염 등 다양한 기술을 적용하여 처리범위와 성능이 우수한 이동식 액체방사성 폐기물 처리기술이 개발되고 있다. 이러한 복합공정에는 막분리에 의해 배제된 농축폐액을 안정적인 형태로 최종 처리할 수 있는 공정이 반드시 포함되어야 한다. 따라서 농축폐액의 처리에 적용할 수 있는 기술들에 대해 실증 또는 상용 규모로의 확대 제작과 유틸리티 사용, 최종 잔류물 건조 및 저장, 이동성, 방사선 차폐, 원격제어, 처리성능, 운영 및 취급의 편의성 등 다양한 설계조건을 고려하여 기술별 특성을 검토하였다. 독일에서 개발된 마이크로 웨이브를 이용한 드럼 내 건조기술은 가열매체의 열전달 효율과 무관하게 용액에 대한 열전달이 가능하며 건조시 건조물 내 온도 구배가 적고 균일한 결정화가 용이하며 증발용기의 세정이 불필요하여 유지관리가 용이하다는 장점이 있다[1]. 그러나 철재 드럼 내 최종건조물이 국내의 방폐물 처분적합성을 만족키기 어렵고 처리용량이 작아서 규모 확대시 기술적용의 리스크가 크다는 단점이 있다[2]. 또한 기계식 증기 재압축기(MVR Mechanical Vapor Recompressor)를 이용한 감압증발기술은 해수 담수화와 폐수처리에 적용된 사례가 많고 에너지 절감효과가 크고(일반 증발기 대비 약 40% 수준) 저온(60~80℃)에서 증발처리가 가능한 반면 고가의 MVR 유지관리 기술이 필요하고 소음이 크다는 단점이 있다[3]. MVR과 열교환기를 이용하는 이 기술은 최종 잔류물을 건조처리할 수 있는 별도의 건조기가 필요하며, 진공도가 높아서 캐리오버에 의한 응축수의 수질저하 우려가 있다. 또한 원전의 전처리설비에 적용 실적이 있는 밴드히터를 이용한 전기식 증발건조기술은 증발기와 건조기가 단일 용기로 구성되어 있어서 콤팩트한 설계가 가능하고 상압 증발이므로 응축수의 수질이 상대적으로 좋고 압력, 온도 등의 운전변수

제어가 용이하나, MVR을 이용한 증발기에 비해 에너지 소모량이 크고, 증발온도가 높아 단일 및 부식관리가 필요하므로 효율적인 세정 장치가 구비되어야 하는 단점이 있다. 종합적인 검토결과 처리대상이 비정상 폐액이고 이동식에 적합한 콤팩트 설계가 중요한 점을 감안하여 밴드히터를 이용한 전기식 증발건조기술을 최적 기술로 선정하였다. 따라서 본 논문에서는 다양한 운전특성을 실험할 수 있는 Lab 규모 전기식 증발건조기를 개발·설치하고 1차 실험과 보완 작업을 통하여 전기식 증발건조기술의 에너지 효율을 개선하고 기존의 장점을 향상시킬 수 있는 방법을 모색하였다.

2. 본론

2.1 에너지 효율 개선

증발되는 증기의 잠열을 유입되는 원수로 전달하기 위해 재생열교환기를 적용하여 에너지 회수 효율을 실험한 결과, 25~30℃의 원수 온도가 약 95℃까지 상승하여 약 70℃(70 Kcal/kg)의 열이 회수되는 것을 확인하였다(Fig. 1). 또한 열전달의 지속성과 효율을 유지하기 위해 유입되는 원수의 유량이 응축수의 유량을 따라 제어되도록 유량제어용 자동밸브와 제어 로직을 적용하고 유량제어의 적절성과 지속성을 확인하였다(Fig. 2).

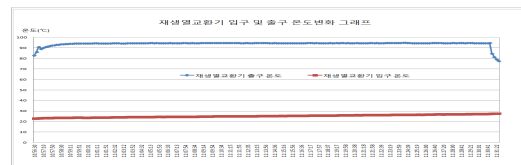


Fig. 1. Comparison of Inlet and Out-let Water Temperature of Regenerative Heat Exchanger.

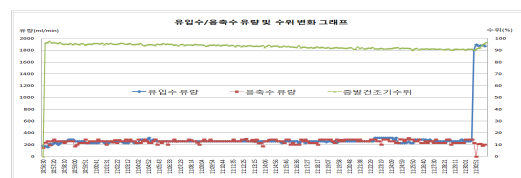


Fig. 2. Trend of Feed Water Flow and Water Level of Evaporator Vessel Following Condensate Flow.

2.2 운전압력 대비 응축수 유량 변화 확인

방사성 핵종을 다량 함유하고 있는 농축폐액이 처리대상이며 이동식 설비인 점을 감안하면 처리효율과 처리유량(용량)의 적절한 조화가 요구되므로 먼저 운전압력에 따른 응축수 유량의 변화를 시험한 결과 운전압력이 진공상태($-0.2 \sim -0.4 \text{ kgf/cm}^2$)로 갈수록 응축수 유량이 급격하게 증가한 후 안정을 찾아 약 2.5배까지 증가하는 것을 확인하였다(Fig. 3).

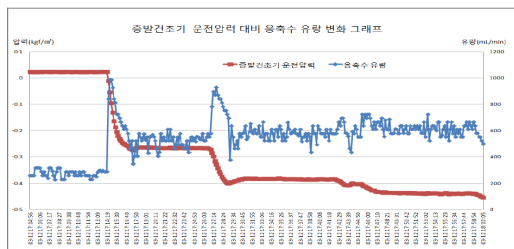


Fig. 3. Trend of Condensate Flow Change Following Operation Pressure of Evaporator.

2.3 스케일 억제 및 잔류물 배출 성능 개선

증발운전 중 증발용기 내면의 스케일 생성을 억제하고 건조후 최종 잔류물의 원활한 배출을 위해 스크래핑 기능을 가진 교반기를 설치하고 수차례의 시험운전과 개선작업을 통해 업그레이드된 교반 및 배출장치를 개발하였고(Fig. 4), 스크래핑과 배출기능이 업그레이드된 것을 확인하였다(Fig. 5).

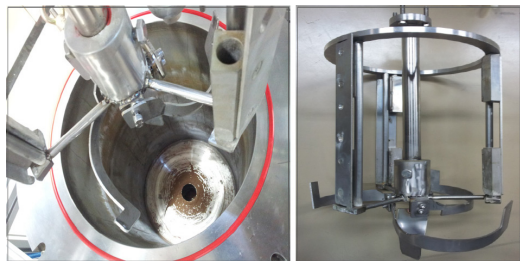


Fig. 4. Picture of Improved Agitating Device with Scraping and Emitting Function.

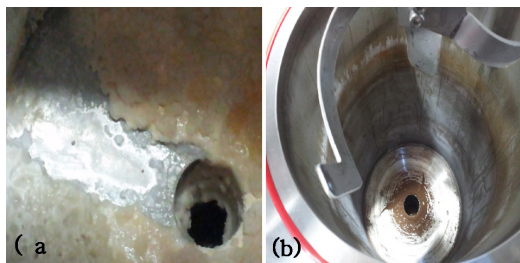


Fig. 5. Bottom View of Evaporator Vessel Before(a) and After(b) Improvement of Agitating Device.

3. 결론

원전의 비정상 방사성폐액이나 중대사고시 발생하는 고방사성 고염 폐액을 처리할 수 있는 이동식 복합공정이 개발되고 있다. 몇 가지 농축폐액 처리기술에 대한 장·단점 분석과 종합적인 기술검토를 통하여 밴드히터형 증발건조기술을 복합공정에서 발생하는 농축폐액을 안정적으로 처리할 수 있는 처리기술로 선정하였다. 밴드히터형 증발건조기술의 에너지 효율을 개선하고 기술의 장점을 향상시키기 위하여 다양한 운전특성을 실험할 수 있는 Lab 규모의 증발건조기를 개발·설치하였다. 재생열교환기의 에너지 회수 성능 실험을 통하여 약 70°C (70 Kcal/kg)의 열이 회수되는 것과, 열 회수의 효율과 지속성을 유지하기 위한 응축수 유량을 주종하는 유입수 유량제어의 적절성과 지속성을 확인하였다. 또한 진공펌프를 이용한 효과적인 운전압력 제어 방법과 감압에 따른 응축수 유량의 증가도 실험을 통해 알 수 있었다. 밴드히터형 증발건조기 특성상 증발건조 용기 표면의 고온운전에 따른 스케일 축적을 억제함으로써 열전달 효율을 유지하고 최종 잔류물의 배출을 원활하게 할 수 있는 교반장치를 수차례의 시험운전과 보완작업을 통해 고안하였다. Lab 규모 밴드히터형 증발건조기를 이용한 본 실험은 1차 실험과 보완작업을 완료한 상태이며, 향후 일정기간 동안 감압운전과 건조운전 단계로 진행함께 따른 응축수 수질(전도도, 탁도, 화학성분 농도 등)과 전력소모량 변화, 최종 건조 잔류물의 함수율, 적정 함수율 유지를 위한 건조운전 종료 시기 확인 방법(교반기 부하전류, 건조시간, 내부 또는 히터온도 변화 등), 습분 분리기 및 열교환기 등의 스케일 생성 및 세정효과, 이동식과 차폐를 고려한 배치 등에 대한 추가 실험과 기술분석을 통하여 실증규모의 이동식 밴드히터형 농축폐액 증발건조기 제작을 위한 최적의 설계변수를 도출할 예정이다.

4. 참고문헌

- [1] Radwaste Solution 21, Microwave In-Drum Drying, By Christian Giessmann, 2007.
- [2] ELSEVIER, Chemical Engineering and Processing, 49(2010), 389-395, 2010.
- [3] 대한환경공학회, 2003년 춘계학술연구발표회 논문집, pp. 790-794, 2003.

방사성 요오드 기체의 포집을 위한 비스무스와 요오드의 반응친화성 탐색

양재환*, 신진명, 박장진, 유재욱, 백영희, 박근일

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*yjh98@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료를 재활용하는 기술인 파이로프로세스는 전기화학적 방법을 통해 산화물핵연료를 금속핵연료로 전환한다. 전기화학적 방법으로 금속핵연료를 얻기 위해서는 전해질인 염을 사용해야 하는데, 만약 사용후핵연료에 포함된 핵분열생성물이 미리 제거되지 않는다면 염에 포함된 핵분열생성물 농도가 높아져서 염의 교체주기가 짧아진다. 따라서 사용후핵연료에 포함된 핵분열생성물을 미리 제거하는 것이 파이로프로세스의 공정 효율을 위해 유리하다.

사용후핵연료에 포함된 핵분열생성물은 고온 voloxidation이라는 전처리 공정을 거쳐 제거되는데, 이 때 Cs-137, Tc-99, H-3, C-14, Kr-85, I-129 등의 방사성 핵종이 배기체의 형태로 휘발된다 [1]. 방사성 배기체는 다양한 필터를 이용하여 선택적으로 제거할 수 있다.

사용후핵연료에서 발생하는 I-129 기체를 제거하기 위해 스크립 용액, 활성탄, 은 함유 제올라이트 (AgX, AgZ) 등이 사용되었다 [2]. 그 중 은 함유 제올라이트가 뛰어난 성능으로 말미암아 많이 연구되었고 현재 AgZ가 I-129 기체를 제거하는 기준 포집제로 인정받고 있다 [3].

은 함유 제올라이트의 I-129 포집 성능은 우수하지만 가격이 비싼 은을 사용하기 때문에 공정 비용이 상승하여 경제적이지 않다는 단점이 있다. 게다가 제올라이트의 미세기공에 요오드 기체가 많이 포집되어 있는데 이는 열적 안정성이 약해서 낮은 온도에서도 쉽게 휘발되기 때문에 장기적 저장을 고려할 때 적합하지 않다. 따라서 은 함유 제올라이트의 단점을 극복할 수 있는 새로운 I-129 포집제 개발이 반드시 필요하다.

본 연구는 은 함유 제올라이트를 대체하는 포집제를 개발하기 위한 첫 단계로서 열역학적 관점에서 비스무스와 요오드의 반응친화성을 조사한 연구이다.

2. 본론

2.1 문헌조사

2.1.1 요오드 화합물의 용해도

방사성 요오드를 장기 저장하기 위해서는 물에 잘 녹지 않는 요오드 화합물로 변환하여 저장하는 것이 유리하다. 이런 관점에서 다양한 요오드 화합물의 용해도를 기존 문헌을 통해 조사하였다. Table 1에서 다양한 요오드 화합물의 용해도를 나타내었다.

Table 1. Solubility of various iodide compounds [4]

Compound	Solubility of [I], g-atoms/L	[OH] g-atoms/L in corresponding hydroxide	Is the solubility of [I] less than that of [OH]?
Hg ₂ I ₂	9.7×10^{-15}	1.4×10^{-12}	Yes
AgI	9.1×10^{-9}	1.4×10^{-4}	Yes
PdI ₂	3.7×10^{-8}	5.8×10^{-11}	
CuI	1.0×10^{-6}	1.0×10^{-7}	
BiI ₃	3.9×10^{-5}	3.0×10^{-8}	
HgI ₂	1.3×10^{-4}	7.4×10^{-5}	
TlI	2.5×10^{-4}	1.6	Yes
PbI ₂	2.4×10^{-3}	1.3×10^{-5}	

Table에서 나타난 것처럼 은이 요오드와 반응하여 생성된 AgI는 물에 대한 용해도가 매우 낮아 장기 저장에 유리하다. 그러나 AgI 외에도 용해도가 낮은 화합물로서 Hg₂I₂, PdI₂, CuI, BiI₃ 등이 있는 것을 알 수 있다.

2.1.2 방사성 요오드 장기 처분을 위한 비스무스의 활용 가능성

최근 미국의 SNL을 중심으로 비스무스를 이용한 요오드 화합물을 방사성 요오드의 장기 보관에 활용하고자 하는 연구가 진행되었다 [5]. 비스무스를 수용액 반응을 통해 BiOI나 Bi₅O₇I 등의 화합물로 합성하여 그 특성을 연구하였는데, 특정 조건에서 비스무스로 구성된 요오드 화합물이 수화학적으로 안정하게 유지될 수 있음을 확인하였다.

이 연구는 상당히 흥미로운 결과로서 현재 사용하고 있는 비싼 은 대신 비스무스를 사용한다면 방사성 요오드 관리에 소요되는 비용을 획기적으로 낮출 수 있을 것이다.

2.2 HSC 코드 계산

HSC 코드는 화학반응 전후의 각종 열역학적 인자의 값을 계산하는 소프트웨어로서 열역학적 관점에서 화학반응의 자발성을 손쉽게 예측할 수 있는 장점이 있다. 본 연구에서 HSC 코드를 통해 비스무스와 요오드 기체와의 반응시 나타나는 Gibbs free energy의 변화를 계산하여 Table 2에 나타내었다.

Table 2. Change of Gibbs free energy related to the formation of bismuth iodine or silver iodine compounds

Reaction equation	ΔG (kcal)
$\text{Ag} + 0.5\text{I}_2 (\text{g}) = \text{AgI}$	-16.059
$\text{Bi} + 0.5\text{O}_2 (\text{g}) + 0.5\text{I}_2 (\text{g}) = \text{BiOI}$	-52.428
$\text{Bi} + 1.5\text{I}_2 (\text{g}) = \text{BiI}_3$	-33.376
$5\text{Bi} + 3.5\text{O}_2 (\text{g}) + 0.5\text{I}_2 (\text{g}) = \text{Bi}_5\text{O}_7\text{I}$	-274.993
$2.5\text{Bi}_2\text{O}_3 + 0.5\text{I}_2 (\text{g}) = \text{Bi}_5\text{O}_7\text{I} + 0.25\text{O}_2 (\text{g})$	-5.867
$2\text{Bi}_2\text{O}_3 + 2\text{I}_2 (\text{g}) = 4\text{BiOI} + \text{O}_2 (\text{g})$	5.588
$\text{Bi}_2\text{O}_3 + 3\text{I}_2 (\text{g}) = 2\text{BiI}_3 + 1.5\text{O}_2 (\text{g})$	40.898

Table 2에서 ΔG 가 음의 값을 갖는 것은 반응을 통해 생성된 화합물이 열역학적 관점에서 더 안정하다는 것을 나타낸다. 따라서 HSC 계산 결과를 통해 판단할 때, Bi, O, I가 반응하여 BiOI, BiI₃, Bi₅O₇I의 화합물을 생성하는 반응은 열역학적 관점에서 매우 선호되는 반응이라 말할 수 있다. 더욱이 AgI가 생성되는 반응의 ΔG 값과 비교할 때, 은보다 비스무스가 요오드와 반응하려는 경향이 더 우세하다. 흥미로운 것은 비스무스와 대조적으로 비스무스 산화물은 요오드와 자발적으로 반응하려는 경향이 약하다는 것이다. 이는 비스무스와 산소가 단단한 결합을 형성하고 있어서 이것을 끊기 위해서는 추가적인 에너지를 공급해야 하기 때문이다. 이번 계산 결과는 요오드 기체와 비스무스가 매우 쉽게 반응하여 안정한 화합물을 형성한다는 것을 의미하므로, 요오드 기체 포집에 비스무스를 사용하는 것도 좋은 연구가 될 것이다. 현재 비스무스를 사용한 포집제를 제조하여 요오드 기체 포집에 사용하고자 하는 연구가 활발히 진행되고 있다.

3. 참고문헌

- [1] H. Lee et al., "Pyroprocessing Technology Development at KAERI", *Nuc. Eng. Tech. Vol.* 43, No. 4, pp. 317-328, (2011).
- [2] D. R. Haefner et al., "Methods of Gas Phase Capture of Iodine from Fuel Reprocessing Off-Gas: A Literature Survey", Idaho National Laboratory, INL/EXT-07-12299, (2007).
- [3] T.J. Garino et al., "Low-Temperature Sintering Bi-Zn-Oxide Glasses for Use in Either Glass Composite Materials or Core/Shell ¹²⁹I Waste Forms", *J. Am. Ceram. Soc.*, 94[8] 2412-2419, (2011).
- [4] M.S. Yim, "Evaluation of Waste Forms for Immobilization of ¹⁴C and ¹²⁹I", EPRI, TR-110096, 1998.
- [5] J.L. Krumhansl et al., "Hydrotalcite-like Layered Bismuth-Iodine-Oxides as Waste Forms", *Applied Geochemistry*, 26, 57-64, (2011).

LiCl-KCl 용융염에서 액체금속 Bi에 대한 LaCl₃의 전기화학적 거동연구

김범규, 이애리, 김용일, 박병기*

순천향대학교, 충남 아산시 신창면 읍내리 646

qu@sch.ac.kr

1. 서론

원전에서 발생하는 사용후핵연료의 부피 감소 및 특성저감을 위한 파이로처리공정은 용융염매질기반 전해공정을 이용한다.[1] 파이로공정의 개발에서 고온용융염에 용해되는 란타니드 및 악타니드에 대한 거동을 파악하는 것은 공정설계를 위하여 매우 중요하다. 본 연구는 란타넘의 물리화학적 거동특성을 파악하기 위해 고체금속전극(Tungsten)과 액체금속(Bismuth)에 대한 LaCl₃의 전기화학적 거동을 평가하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

실험은 산소와 수분이 1 ppm 이하로 유지되는 Glove Box에서 수행하였다. 용융염 및 액체금속을 고온에서 실험하기 위해 Glove Box하단에 전기로를 이용하여 온도 조절을 할 수 있도록 하였다. 전기화학 측정장치는 Solatron사의 1470E Cell Test System으로 Cyclic Voltammetry(CV)와 Chronopotentiometry(CP)를 수행하였다.

실험은 Quartz의 재질로 된 셀에 Sigma Aldrich사의 LiCl-KCl, LaCl₃, Bi를 담아 사용하였다. Working Electrode와 Counter Electrode은 Alfa aesa사의 직경 1 mm의 Tungsten wire이며, Reference Electrode은 직경 1 mm의 Silver wire이다. WE와 CE의 Guide tube는 Pyrex 재질로 하였고, RE은 한쪽 끝이 Pyrex tube에 LiCl-KCl과 1wt% Ag를 녹인 Ag/AgCl(1wt%)로 하였다.

2.2 실험결과 - 고체금속전극

주사속도(Scan Rate)를 변화해주며 측정 한 Cyclic Voltammetry의 산화환원 피크전위는 Fig. 1과 같이 -2.10~-2.12V의 부근과 -1.99~-2.02V에서 확인되었다. Equilibrium potential에 따라 E⁰ vs Ag/AgCl 은 -3.19V의 값을 도출하였다.

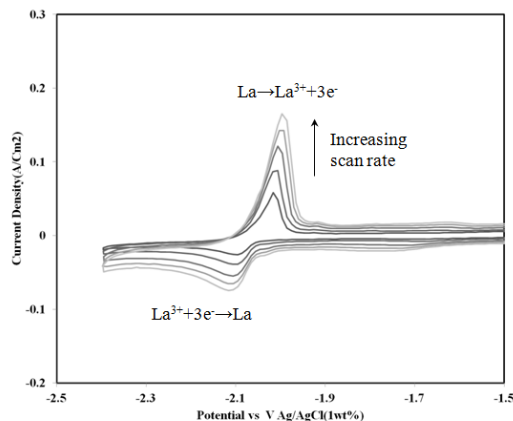


Fig. 1. Cyclic voltammograms for the redox reaction of the LaCl₃ (1wt%) in molten salts LiCl-KCl at 450°C (Scan Rate: 20, 50, 100, 150, 200mV/s).

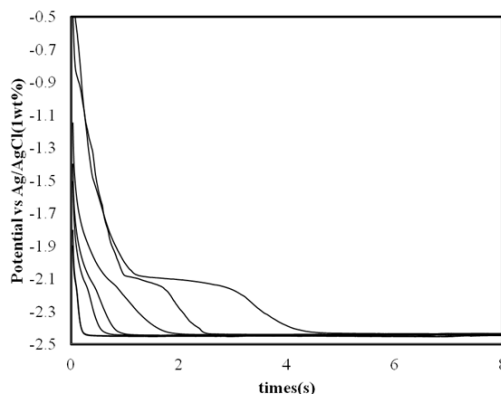


Fig. 2. Chronopotentiogram of the LaCl₃ (1wt%) in molten salts LiCl-KCl at 450°C (Applied Ampere: -0.05~-0.02 A).

시간에 따라 측정한 Chronopotentiogram은 i<0A의 전위 조건을 적용하였다. Fig. 2에서 나타나는 전이시간(Transition time, τ)은 5초 이내에 나타났으며 potential은 -2.47V에서 평형을 유지하였다. 두 전기화학측정법은 확산계수를 도출이 가능하다. CV는 Randle-Sevcik의 식(1)에 따라 피크전위와 주사속도간 기울기를 이용해 도출할

수 있으며, CP는 Sand식 (2)의 전류와 전이시간을 이용하여 얻을 수 있다.

$$i_p = 0.61 (nF)^{3/2} (RT)^{-1/2} AD^{1/2} CV^{1/2} \quad (1)$$

$$i \sqrt{\tau} = \frac{nFCA \sqrt{\pi D}}{2} \quad (2)$$

활동도 계수는 표준전위를 이용하여 도출할 수 있으며, 열역학적 계수들을 Table 1에 나타내었다.

Table 1. Thermodynamic coefficient of LaCl_3 with Electrochemical method

Diffusion coefficient [$D \times 10^5 \text{ cm}^2/\text{s}$]			
CV methode	0.55	CP Method	0.55
Standard Potential [E^0 vs Cl_2/Cl^- (Volts)]		Activity coefficient (log γ)	
-3.19		-3.03	

2.3 실험결과 - 액체금속전극

액체금속 bismuth와 LaCl_3 의 CV를 온도별로 측정한 Fig. 3은 산화환원에 대한 반응을 확인할 수 있었고, 양극의 금속산화물 분해에 따른 피크전위를 Table 2에 표시하였다. 전극에 산화의 주사전위를 걸어주어 액체금속 농도가 분해에 따라 전기적인 산화피크로 나타나 이에 따라 Bi와 La간 이중금속에 따른 조성임을 보인다.

Table 2. Bi-La alloy reaction between intermetallic compound and the peak potential

Reaction formula		450 °C	500 °C	550 °C	600 °C
La	La	-1.993	-1.942	-1.913	-1.919
P ₁	La_2Bi	-1.907	-1.850	-1.753	-
P ₂	La_5Bi_3	-1.788	-1.632	-1.634	-1.624
P ₃	La_4Bi_3	-1.29	-1.223	-1.196	-1.209
P ₄	LaBi	-	-1.183	-1.161	-1.170
P ₅	LaBi_2	-	-	-	-
Bi	Bi	0.124	0.188	0.230	0.208

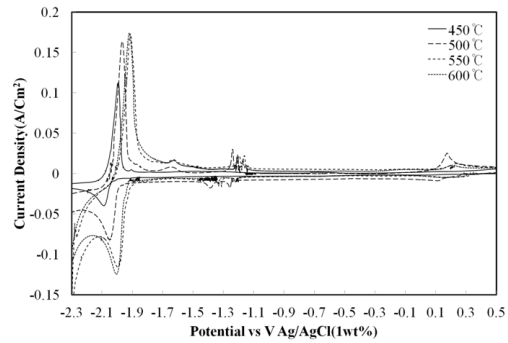


Fig. 3. Cyclic voltammograms for the redox reaction of the LaCl_3 (1wt%) for Bismuth electrode in molten salts LiCl-KCl at high temperature.

3. 결론

본 연구는 전기화학측정을 통해 LaCl_3 의 전기화학적 거동을 분석해 보았다. 전기화학적 방법으로 측정된 확산계수는 농도, 면적 및 온도가 동일한 조건임에도 약 7배의 차이가 나는 것을 보아 오차를 줄일 수 있는 추가연구 및 분석이 필요하다. 다른 계수는 문헌[2]과 유사한 값을 나타내었다. bismuth와 LaCl_3 의 전기화학 측정결과를 통해 La-Bi의 합금 형성분해반응을 확인하였으며, 온도 변화에 따라 피크가 생성, 소멸을 보이므로 온도가 영향을 미침을 알 수 있다.

4. 감사의 글

이 연구는 미래창조과학부의 재원으로 한국연구재단의 지원을 통한 원자력기초공동연구소사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] 김광락 외, 한국방사성폐기물학회, 2013년 춘계 학술대회 논문요약집, pp.121-122, 2013.
- [2] P. Masset et. al., "Thermochemical properties of lanthanides (Ln = La, Nd) and actinides (An = U, Np, Pu, Am) in the molten LiCl-KCl eutectic", J. Nucl. Mater. 344, pp.173-179 (2005).

LiCl-KCl 용융염에서 NdCl₃의 전기화학적 거동연구

김범규, 이애리, 김용일, 박병기*

순천향대학교, 충남 아산시 신창면 읍내리 646

qu@sch.ac.kr

1. 서론

원전에서 발생하는 사용후핵연료의 부피 감소 및 특성저감을 위한 파이로처리공정은 용융염매질기반 전해공정을 이용한다.[1] 파이로공정의 개발에서 고온용융염에 용해되는 란타니드 및 악타니드에 대한 거동을 파악하는 것은 공정설계를 위하여 매우 중요하다. 본 연구는 핵분열생성물중 하나인 NdCl₃을 LiCl-KCl 고온 용융염에서 전기화학적 순환전류전압법을 이용하여 거동을 관찰하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

LiCl-KCl 고온 용융염내 전기화학 실험은 아르곤으로 채운 글러브 박스에서 모든 실험을 수행하였으며 산소와 수분의 농도는 1ppm 이하로 유지 되도록 하였다. 글러브박스 하단에 전기로에서 고온의 용융염 실험을 할 수 있도록 실험환경을 구축하였다. 시료는 Sigma Aldrich사의 LiCl-KCl 용융염과 NdCl₃, Cd, Bi를 구매하여 전처리 없이 사용하였다.

전기화학 셀은 Quartz를 이용하여 제작하였고, 작업전극과 상대전극은 양끝이 뚫린 Pyrex의 유도관에 텅스텐 와이어를 넣어 사용하였다. 기준전극은 한쪽 끝이 막힌 Pyrex tube에 AgCl이 1wt% 녹아있는 LiCl-KCl을 채운 후 은선을 넣어 제작하였다. 전기화학측정장치는 Solatron사의 1470E Cell Test System를 사용하였다.

2.2 실험결과

Fig. 1은 450℃의 LiCl-KCl에 NdCl₃을 녹인 후, 텅스텐을 작업 전극으로 사용하여 50mV/s부터 200mV/s까지 주사속도를 변화를 주며 측정한 결과이다. Fig. 2는 주사속도의 제곱근 대 피크 전류 값으로 온도에 따라 나타냈으며 선형으로 도시하면 기울기 값으로부터 확산계수를 도출할 수 있다.

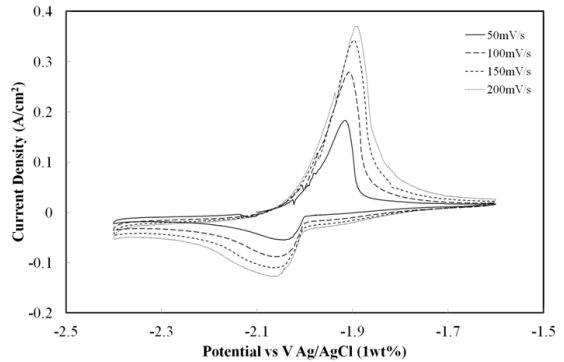


Fig. 1. Cyclic voltammograms of the 1wt% Neodymium for Ag/AgCl electrode in molten salts LiCl-KCl at 450℃.

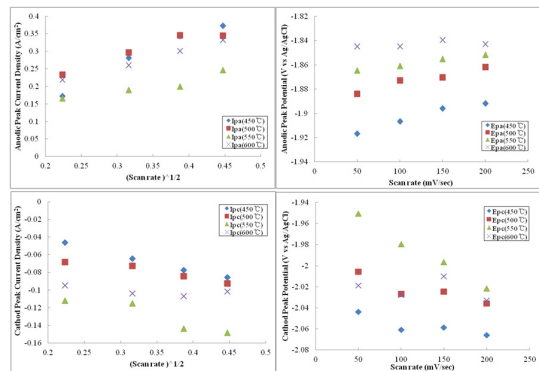
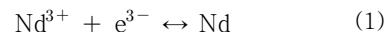


Fig. 2. Dependence of peak current on square root of sweep rate at high temperature.

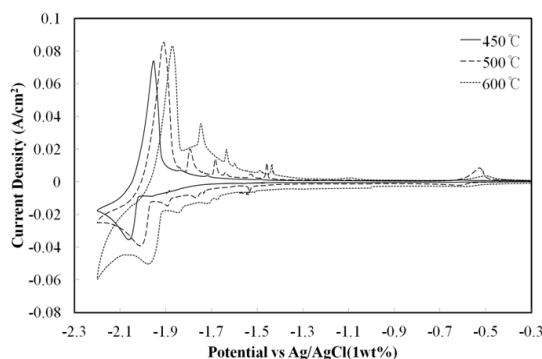
식 (1)에 따라 네오디뮴의 정반응은 Nd³⁺의 전기전착반응으로 Nd이 형성되며 이에 대한 환원전류로 -2V ~ -2.2V부근에서 피크가 보이며, 전착되어 있던 Nd이 다시 Nd³⁺로 산화되는 반응은 -1.8V ~ -2V 영역에서 피크를 나타내고 있다.



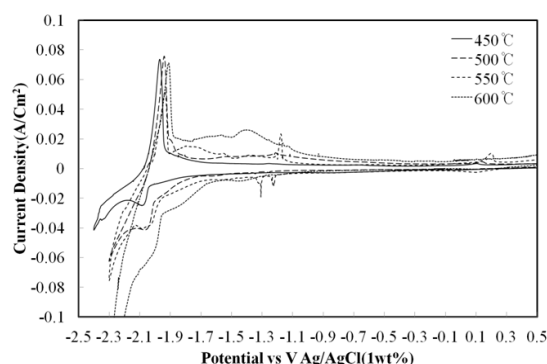
CV측정결과를 토대로 Table 1에 피크 전위 값과 피크 전류 값을 이용하여 물리화학계수를 도출하였다.

Table 1. Thermodynamic coefficient of Neodymium with Electrochemical method

온도 (K)	Standard Potential [E ⁰ vs Cl ₂ /Cl ⁻ (Volts)]	Activity coefficient (log γ)	Diffusion coefficient [D × 10 ⁵ cm ² /s]
723	-3.15	-3.34	1.1
773	-3.12	-3.41	1.78
823	-3.1	-3.44	3.44
873	-3.14	-4.68	5.75



(a) LiCl-KCl/Cd+NdCl₃



(b) LiCl-KCl/Bi+NdCl₃

Fig. 3. Cyclic voltammograms for the redox reaction of the lanthanide elements(1wt%) for liquid metal(a:Cadmium, b:Bismuth,) electrode in molten salts LiCl-KCl at high temperature.

또한, Fig. 3는 용융염에 포함된 NdCl₃을 액체금속전극(Cd,Bi)을 이용하여 주사속도를 100mV/s으로 설정하여 온도의 변화를 주어 측정하였다. 그 결과 액체금속과 네오디뮴의 산화환원반응으로 양극의 금속 화합물의 분해에 따른 산화피크전위를 보였으며 Table 2에 표시하였다.

Table 2. (Cd, Bi)-Nd alloy

Reaction formula		450℃	500℃	550℃
Nd	Nd	-1.954	-1.910	-1.872
P ₁	NdCd	-1.839	-1.794	-1.747
P ₂	NdCd ₂	-1.718	-1.684	-1.635
P ₃	NdCd ₃	-1.486	-1.639	-1.598
P ₄	Nd ₁₃ Cd ₅₈	-	-1.528	-1.487
P ₅	NdCd ₁₁	-	-1.458	-1.436
Cd	Cd	-0.59	-0.526	-0.501

Reaction formula		450℃	500℃	550℃	600℃
Nd	Nd	-1.968	-1.939	-1.934	-1.911
P ₁	Nd ₂ Bi	-1.847	-1.903	-1.794	-
P ₂	Nd ₃ Bi ₃	-	-1.551	-1.551	-1.401
P ₃	Nd ₄ Bi ₃	-	-	-1.377	-1.256
P ₄	NdBi	-1.253	-1.212	-1.176	-1.163
P ₅	NdBi ₂	-	-	-	-1.129
Bi	Bi	0.106	0.170	0.201	-

3. 결론

본 연구는 순환전류전압 측정을 통해 액체 금속전극에서 일어나는 NdCl₃의 산화환원과정을 확인하였고, 네오디뮴 원소의 표준전위 및 활동도 계수는 문헌[2,3]과 유사하였다. 액체금속을 이용한 순환전류전압 측정은 Bi 혹은 Cd과 Nd의 이온농도가 변함에 따라 전기적인 피크전위가 보이며, 이에 따라 Bi-Nd, Cd-Nd 간 이중금속합금에 따른 전위로 파악된다. 온도변화에 따라 전위생성유무가 나타나므로 온도의 영향을 받는 것을 알 수 있었다.

4. 참고문헌

- [1] 김광락 외, 한국방사성폐기물학회, 2013년 춘계 학술대회 논문요약집, pp.121-122, 2013.
- [2] Kumar Sridharan, M. Simpson, J. Bresee, "Thermal Properties of LiCl-KCl Molten Salt for Nuclear Waste Separation", NEUP, Project NO. 09-780, 38page, 2012.
- [3] P. Masset et. al., "Thermochemical properties of lanthanides (Ln = La, Nd) and actinides (An = U, Np, Pu, Am) in the molten LiCl-KCl eutectic", J. Nucl. Mater. 344, pp.173-179, 2005.

콘크리트 저장용기 Mock Up 공시체 분석을 통한 제작성 평가 결과

도호석^{1*}, 백창열¹, 윤시태¹, 강동인²

¹한국원자력환경공단, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

²주대왕콘, 경상남도 함안군 칠원면 유원리 1435-5

*ehghtjr@korad.or.kr

1. 서론

한국원자력환경공단에서 주관하여 수행하고 있는 사용후핵연료 수송/저장 시스템 상용화 기술 개발 중 사용후핵연료 콘크리트 건식저장용기 (Storage Cask)에서 콘크리트용기의 형상은 Fig.1과 같다. 용기의 구조, 차폐, 임계, 열, 격납 안전성과 콘크리트 건전성 및 저장 안전성 확보를 위하여 본체 및 두께 내·외부에 스틸케이싱과 그 내부에 철근콘크리트가 배치된 구조를 적용하였고 ACI 349 등의 관련 기술 기준에 따라 제작된다[1],[2].

본 연구는 설계기준에 따라 콘크리트 용기 Mock Up의 공시체를 분석하여 용기의 제작성 결과를 분석하였다.

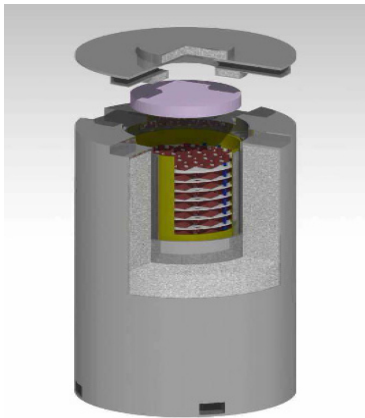


Fig. 1. Spent fuel concrete dry storage cask.

2. 본론

2.1 기술기준

- ACI 349 ; Requirements for Nuclear Safety related Concrete Structures
- ASME B&PV Sec.III ; Rules for Construction of Nuclear Power Plant Components

- KEPIC SNC.SNG ; 원자력 철근콘크리트구조, 원자력 강판콘크리트구조(SC구조) 등

2.2 콘크리트 배합설계 및 물성시험결과

콘크리트 생산/타설/다짐/양생은, ACI 349-06 References Chapter 5 「콘크리트의 품질, 비비기 및 타설」에 따르고, Mix Type 19-300-10 과 19-350-10 배합으로 제작되었다[1]. 모든 기준과 절차는 “콘크리트 용기 제작 기술규격서”에 따라 수행되었다[3].

Table 1. Concrete mix design

Mix Type			Proportion (kg/m ³)							
골재 크기 (mm)	압축 강도 (kg/cm ²)	슬럼프 (cm)	W	C	F/A	20mm Agg.	Sand	wra (oz)	AEA (oz)	
19	300	10	40.5	296	74	939	875	2.3	0.3	
19	350	10	38.5	318	79	942	844	2.5	0.3	

배합설계는 ACI 301, ACI 232.2R의 기술 요건에 근거하여, ACI 211.1을 기준으로 배합 시험을 수행하였다[1]. 물성시험 공시체는 Batch Plant에서 기초 물성을 확인 후 제작하였다.

Table 2. the property of matter test results

Mix Type	Test Result				
	공시체 (개)	슬럼프 (cm)	공기량 (%)	압축강도 (kg/cm ²)	
				7일	28일
19-300-10	3	11.7	4.4	236	354
19-350-10	3	11.4	4.7	268	397

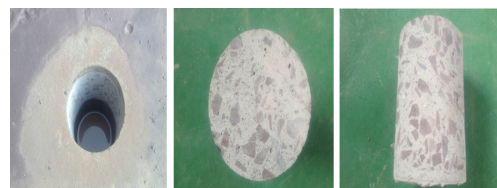


Fig. 2. cylinder specimen.

2.3 Mock Up 콘크리트 시험

Mock Up 콘크리트 시험(콘크리트 재령 : 28일)은, ACI 349-06 References Chapter 3 「재료」에 따르고, ASTM C 94 (레디믹스트 콘크리트에 관한 표준시방서. 콘크리트) Code로 실시하였다. 압축강도 시험은 실린더 공시체($\varnothing 100 \times 200\text{mm}$) 및 코어기를 사용하여 코어 공시체($\varnothing 100 \times 100\text{mm}$)를 제작하여 압축강도 시험을 수행한 결과, 설계 기준에 만족하는 결과를 나타내고 있다.

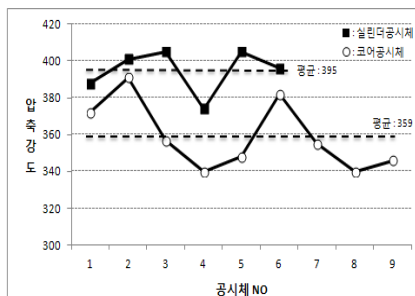
Table 3. Mock Up test results

구분	단위중량 (kg/m ³)	슬럼프 (cm)	공기량 (%)	염소이온농도 (%)
설계기준	2,350 이상	10 ± 2.5	5 ± 1.5	0.15 이하
시험결과	2,364	10.5	4.3	0.0357

Table 4. Mock Up compressive strength test results

구분\No	Test Result (kg/cm ²) (콘크리트 재령: 28일 . 설계기준 : 300 이상)									평균
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	
실린더 공시체	372	391	357	340	348	382	355	340	346	359
코어 공시체	388	401	405	374	405	396	-	-	-	395

비 고



3. 결론

사용후핵연료 콘크리트 저장용기 제작성 검증을 위한 콘크리트용기 Mock Up 을 수행하였고, 기술적인 제한 사항을 제작에 적용하여 절차에 따라 제작한 결과, 콘크리트 성능은 설계기준에 만족하고 있었다.

현재 국내 기술 기준 KEPIC-SNG(강판콘크리

트구조 「SC구조」)의 제조공정 따라 콘크리트 저장용기 제작이 진행 중이며, 그 결과를 토대로 이상적인 한국형 콘크리트 저장용기가 제작될 수 있을 것이다[4].

4. 감사의 글

본 연구는 산업통상자원부 방폐물관리기술개발 중장기 기획과제의 일환으로 수행되었음.

5. 참고문헌

- [1] ACI 349 ; Requirements for Nuclear Safety related Concrete Structures.
- [2] ASME B&PV Sec.III ; Rules for Construction of Nuclear Power Plant Components.
- [3] 제작성평가 항목 도출 및 평가기준 수립 보고서; 14220-P1-K-TR (KRMC.2012).
- [4] 전력산업기술기준(KEPIC) : SNC(원자력철근 콘크리트구조), SNG(원자력 SC구조).

사용후핵연료 수송저장용기 개발 차폐체 원주형 시편 제작특성

전종선^{1*}, 이종욱²

¹(주)에네시스, 대전광역시 유성구 구암동 328번지

²비에이치아이(주), 경남 함안군 군북면 장지리 165-2

*nunkijs@gmail.com

1. 서론

현재 국내 사용후핵연료는 소내 임시저장시설에 저장하고 있으며 국내 사용후핵연료 수송저장용기 개발은 소내운반 목적으로 한국원자력연구원과 한국수력원자력에서 개발하고 있다. 향후 사용후핵연료를 중간저장시설을 이용 시에는 수송저장용기의 수요에 따라 용기를 제작하게 될 것이다. 용기 제작시 필요로 한 중성자 차폐체는 이전까지 수입 차폐물이 사용되었으나 기술확보 및 기술자립을 위해 국산 차폐체를 개발중에 있다.

개발차폐체는 에폭시고분자 매질에 중성자 흡수재를 포함한 금속/금속합금 첨가체를 혼합하여 사용후핵연료에서 방출되는 방사선 차폐 뿐만 아니라 수송저장 용기의 구조재 및 용기내 사용후핵연료에서 발생하는 붕괴열을 용기외부로 열전달 역할 등을 동시에 수행할 수 있는 장점이 있다. 에폭시 차폐체가 수송용기의 차폐체로 제작이 적합한지에 대한 평가를 위해 원주형 시편을 제작하였고 기계적, 열전달능이 최적화 될 수 있는 조건을 선정하여 제작하였다.

2. 본론

2.1 차폐체 재료물질 특성

수송저장 용기는 800℃ 복사열에 30분 노출시키는 화재시험을 통과해야 하므로 내열도가 높은 Novolac Type Epoxy 수지를 사용하였고 주요 첨가제로 사용한 발포금속은 재료내부의 기공들이 서로 연결된 형태로 단위 체적당 표면적비가 크고 기계적강도가 우수하다. 이런 장점을 활용하여 사용후핵연료 붕괴열을 외부로 확산시킬 수 있는 열전달핀의 역할을 수행한다.

2.2 차폐체 제작도구

차폐체는 여러 재료를 혼합하여 제작되며 각 재료의 분산도 및 내부기포가 없어야 한다. 분산도를 높이기 위해서는 적절한 혼합시간이 필요하

며 분말형태의 첨가체는 계면에 기포가 붙어있어 혼합시 일부기포가 남아 차폐체 성능을 하락시키는 요인이 된다. 따라서 이러한 내부기포를 제거 및 적절히 혼합하여 분산도를 높이기 위해 Fig. 1과 같이 재료혼합 시 진공으로 기포를 제거할 수 있는 탈포교반기를 제작하여 적용하였다.

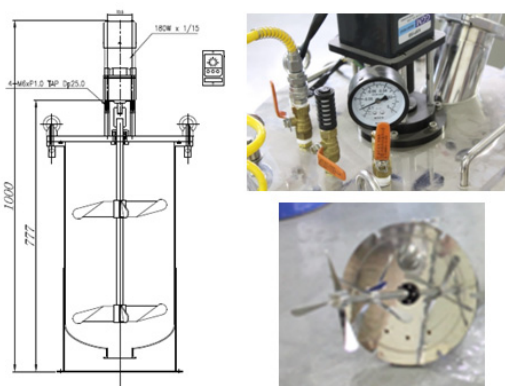


Fig. 1. Bubble removal stirrer.

CASK에 차폐체가 주입되는 부분의 크기는 AREVA의 TN24기준으로 ID 2m, OD 2.3m, 높이 4.6m 이므로 가사시간내에 차폐체를 한번에 주입하기에는 차폐체의 양이 많아 작업성이 떨어질 뿐만 아니라 주입과정에서 기포유입이 발생하여 차폐체 성능을 저하시킬 수 있다. 이러한 문제점을 가사시간 내 주입가능한 차폐체를 분할 제작하여 주입하고 주입시 유입되는 낙하기포를 차단하기 위해 튜브연동펌프를 제작하여 사용하였다.

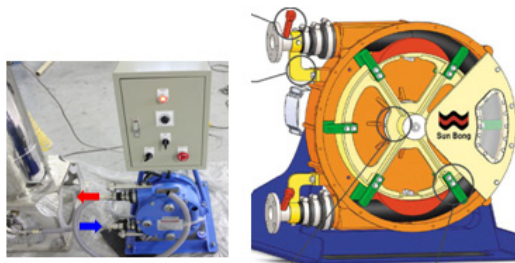


Fig. 2. Peristaltic Pump.

2.3 차폐체 제작

혼합물 배합 시 기포발생을 최대한 억제하기 위해서 경화온도는 40℃ 미만으로 유지하도록 하였고 주형틀 주입 전에 에폭시 혼합물을 진공탈포하여 에폭시와 첨가물간의 미세기포를 최소화 하였고 주형틀 주입 시에도 튜브연동펌프를 사용하여 기포의 발생원인을 최소화 하였다.

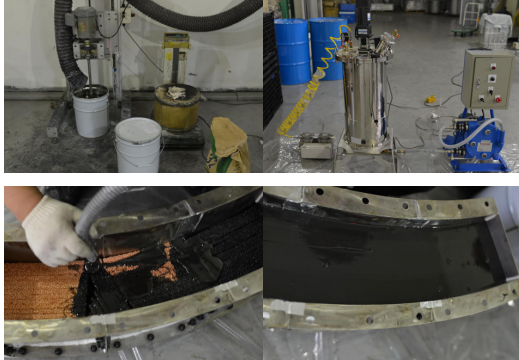


Fig. 3. Shielding production process.

2.4 차폐체 특성평가 열전달 해석

상용수송용기인 Transnuclear社의 TN24는 중성자 차폐체 열전도도 0.172W/mK와 61개의 알루미늄 열전달 핀으로 구성되어 식 (2)에 의해 계산된 통합열전도도는 약 7.22W/mK이다.

$$R = \frac{L}{k} \quad (1)$$

$$K_{total} = \frac{L}{A} \times \frac{R_{Al} + R_{Epoxy}}{R_{Al}R_{Epoxy}} \quad (2)$$

여기서, k는 열전도도, L는 용기높이, A는 열전달 단면적이다. 발포금속이 적용되어 있는 차폐체의 열전도도는 1.272W/mK로 TN24 차폐체에 비해 7.3배 높아 열전달 핀의 수를 줄일 수 있을 뿐만 아니라 기존 구리나 알루미늄과 같이 열전도도가 높은 재질을 가격이 저렴한 재료로 구성할 수 있는 장점이 있다. Table 1은 발포금속 차폐체 적용에 따른 열전달 핀의 수와 열전도도를 계산하였다. 사례 1에서 발포금속 적용 차폐체는 TN CASK에 비해 열전달의 수를 10개 정도 줄일 수 있으며 사례 2와 사례 3과 같이 상대적으로 가격이 저렴한 Carbon steel을 적용하여 제작이 가능할 것으로 판단된다.

Table 1. Thermal conductivity of the shield

	Material	Conductivity [W/mK]	Heat transfer fin	Thermal Conductivity
TN CASK	Aluminum	145.38	61 (0.05t)	7.22 W/mK
	Epoxy	0.235		
Case 1	Aluminum	145.38	51 (0.05t)	7.12 W/mK
	Metal Epoxy	1.272		
Case 2	Carbon steel	60.5	41 (0.15t)	7.07 W/mK
	Metal Epoxy	1.272		
Case 3	Carbon steel	60.5	31 (0.2t)	7.12 W/mK
	Metal Epoxy	1.272		

- Metal Epoxy : Metal foam + Epoxy mixture

3. 결론

본 연구에서 발포금속이 첨가된 에폭시 차폐체를 개발하였고 수송용기의 차폐체로 제작성이 적합한지에 대한 평가를 위해 원주형 시편을 제작하였고 제작 특성을 확인하였다. 더불어 대표 수송용기의 열전도도와 개발제품의 열전도도를 비교하여 개발 차폐체의 열전달 물성에 대한 특징점을 확인하였다. 열교환 구조물의 열전도 계수가 차폐체에 비하여 100~1000배 가량 크므로 단위면적 당 열교환 구조물을 많이 적용하는 것이 열전달 측면에서는 유리하다.

개발된 차폐체를 실측크기 수송용기에 적용 및 제작하여 시험을 통한 차폐성능과 물성 등을 분석하여 상용화 가능성을 평가 할 필요성을 확인하였다

4. 감사의 글

본 연구는 지식경제부 기술혁신사업 중 방사성 폐기물관리기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다. (No. 2010T00100839)

5. 참고문헌

- [1] Korean Journal of materials Research Nuclear, Vol.8, No.5, pp.457-463, 1998.
- [2] Evaluation of Effect of Fuel Assembly Loading Patterns on Thermal and Shielding performance of a spent Fuel Storage/Transportation Cask., PNNL-13583, 2001.
- [3] NRC NUREG/CR-6886, Rev. 2, 2009.

고화유리제작용 Cold Crucible Melter 유리용융조건 도출

김윤호*, 김진태, 한경식, 이종후

(주)KHPT, 경상남도 창원시 의창구 중안대로 263, 오피스 프라자 309호

*vhkim@khpetro.com

1. 서론

용융물이 도가니에 붙지 않고 self-cleaning 기능 [1]을 가지고 있는 CCM을 이용하여, 목적 유리의 조성적 차이에서 기인하는 전기저항 특성이 CCM을 사용하는데 있어서 주요한 변수로써 고려하고, 주파수 가변 운전중의 power balance 관계를 확인하며, 양질의 용융유리를 제조하고자 하였다. 이를 위해 먼저 알칼리 첨가유무에 따라 전기전도도를 다르게 가지는 2가지 유리조성을 선택하였고, 주파수의 변동에 따른 P_{to} (전체 인가된 power)에 대한 P_{me} (melt에 흡수되는 power), P_{cr} (crucible로 손실되는 power), P_{co} (coil로 손실되는 power)의 power balance의 상호 관계를 확인하였으며, 두 조성의 유리에 대한 특성 검토결과를 바탕으로 전기전도도에 따른 power balance의 결과를 상호 비교, 분석하였다.

2. 본론

2.1 CCM 실험 방법

본 연구에 사용된 유리 조성은 PbO base의 무알칼리조성(A)과 Li_2CO_3 를 5wt%이상 첨가한 알칼리조성(B)으로써, 두 조성 batch를 이용하여 150 kW, 450 kHz 반도체 고주파 발생기와 CCM 용기, 주변장치(matching box, chiller)등의 일체화된 장비를 가지고 유리제작을 수행하였다. 실제 유리의 용융을 위한 pilot system을 그림1에 나타내었으며, 그림 2에서는 cooling water circuit를 나타내었다. 유리의 용액 상태에서의 전기전도도는 준비된 100 g batch를 electrical furnace를 통해 분당 15의 승온 속도로 가열하면서 600℃~1,200℃까지의 온도범위 내에서 측정하였다. 비저항은 TER2000(Ulvac Sinku Riko)을 사용하여, 5 V의 인가전압 하에서 측정하였다.

P_{me} (melt에 흡수되는 power), P_{cr} (crucible로 손실되는 power), P_{co} (coil로 손실되는 power)에 흡수된 전기값은 cooling water circuit에서 inlet 온도와 outlet 온도 차와 유량에 의해 계산하였다.

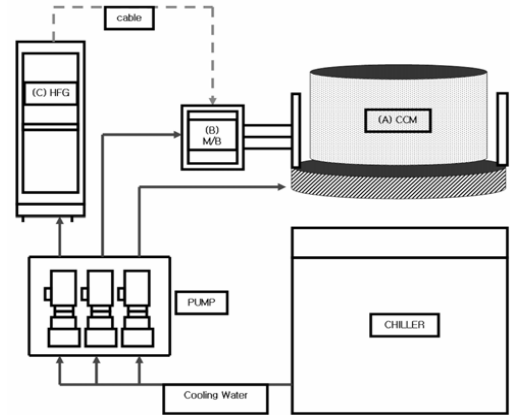


Fig. 1. Schematic diagram of lab scale CCM system [(A) Cold crucible melter, (B) Matching box, (C) High frequency generator] and water cooling system.

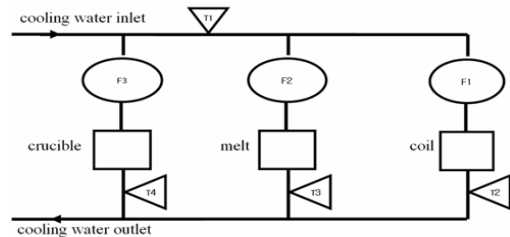


Fig. 2. Schematic diagrams of the cooling water circuits. (F1, F2 and F3: flow meters, T1, T2, T3 and T4 : temperature sensors).

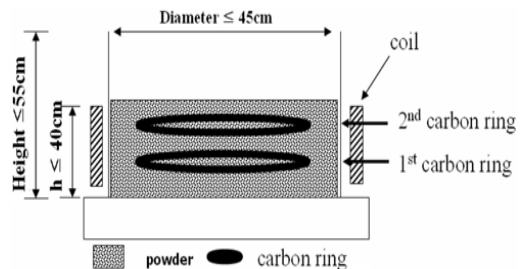


Fig. 3. Schematic packing structure of the raw glass powder in cold crucible melter.

Fig. 3에서는 본 연구의 CCM용융을 위한 원료 및 초기 착화기능을 위해 사용한 탄소링의 장착 과정에 대해 나타내었다. 각각의 조성에 대하여 십 수kg단위로 기밀 보관한 출발 batch 원료를 높이 ≤ 55 cm, 직경 ≤ 45 cm인 copper crucible에 투입하였다. 코일의 높이는 20cm의 one turn 코일이며 도가니 바닥으로부터 전자기장의 영향을 받지 않는 지점에 위치시켰다.

2.2 Power balance 이론

산화물과 전기전도도를 가지는 물질의 유도가열 용융은 CCM system에 있어 각각에 인가되는 power balance [2]를 고려해 주어야 한다. 전체 고주파 발생기에 인가된 Pto는 Pme, Pcr, Pco와 열전도 및 radiation으로 인한 열손실 Pth의 합으로써 다음과 같이 표현할 수 있다고 하였다.

$$R_{to} = R_{co} + R_{cr} + R_{me}, \quad P_{to} = P_{co} + P_{cr} + P_{me} \quad (1)$$

2.3 실험 결과

2.3.1 전기전도도

그림 4은 본 실험에서 제조된 유리의 온도에 따른 전기전도도를 측정된 결과이다. A, B조성의 경우는 비저항값은 각각 $8.13 \Omega \cdot \text{cm}(900^\circ\text{C}) \sim 3.0 \Omega \cdot \text{cm}(1,100^\circ\text{C})$, $3.62 \Omega \cdot \text{cm}(900^\circ\text{C}) \sim 1.36 \Omega \cdot \text{cm}(1,100^\circ\text{C})$ 이었다. A, B 두 조성의 유리용액상의 전기저항값은 $8.13 \sim 1.36 \Omega \cdot \text{cm}(900^\circ\text{C} \sim 1,100^\circ\text{C})$ 의 범위에 있었으며, 이후 실제 CCM용융[4-9] 조작시, 소정의 운전주파수하에서 지속적인 용융이 가능하게 하는 임계저항치도 이러한 범위내에 있는 것으로 확인하였다.

2.3.2 주파수에 따른 부분별 powder 흡수 및 손실

그림 5는 조성 A의 주파수에 따른 부분별 power 흡수 및 손실 비율을 나타내었다. 주파수가 증가할수록 Pme가 증가하는 것을 확인하였으며, 반대로 Pcr과 Pco의 손실은 줄어드는 것을 확인하였다. 특히 100 kHz에서 Pme가 20%정도 흡수되었고, 300 kHz에서는 Pme이 50%정도 흡수되었다. 주파수가 약 3 배 증가하는 동안, Pme는 약 2.5배 증가하였음을 알 수 있었다. 하지만 이는 A조성의 비저항값이 고온 900°C 에서도 여전히 8.13 으로 높아 Pme보다 Pcr 및 Pco가 많은 것으로 판단된다. 지속적인 안정적인 용융공정의 관리를 위해서는 유리의 전기전도도에 따라, melt, crucible, coil에 흡수 및 손실되는 power balance를 충분히 고려해야 함을 알 수 있었다.

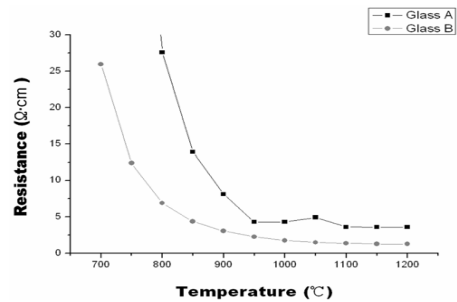


Fig. 4. Electrical resistance of both non-alkali glass (A) and alkali glass (B) via temperature.

3. 결론

이상과 같이 전하운반자 역할을 하는 알칼리산화물 함유유무에 따라 전기전도도가 구분되며, 상이한 전기전도도값을 가지는 2종의 유리를 CCM을 이용하여 용융하기 위해서는, 용액상에서의 전기전도도 특성, 운전주파수, power balance등은 매우 중요한 운전인자가 된다는 사실을 이론과 실험적 검증을 병행하여 확인하였다.

성공적인 용융을 위해서는 Pme가 높아야 하며, Pme를 높이기 위해서는 주파수를 올려 주어야 함을 알 수 있었다. 그리고 주파수는 피용융물의 전기전도도와 밀접한 관계가 있음을 알 수 있었으며, 본 연구에서는 전기전도도가 높은 B조성은 300 kHz이상, Pme는 60%이상, 전기전도도 $3.62 \Omega \cdot \text{cm}(900) \sim 1.36 \Omega \cdot \text{cm}$ 등의 운전조건에서 용이하게 용융, 유지가 가능하였으며, 상대적으로 전기전도도가 낮은 A조성유리는 동일한 운전조건하에서 용융이 불가하였고, 이를 성공적으로 용융하기 위한 조건은 최소한 주파수 400 kHz 이상, Pto 중 Pme가 60%이상 인가되어야 한다고 판단되었다.

4. 참고문헌

- [1] Andrei V. Demine, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., p.663. Mater. Res. USA (2001).
- [2] Sekerka, R.F, J. Crystal Growth 50, 783 (1980).
- [3] Muiznieks, A., Cryst. Res. Technol. 34, 329 (1999).
- [4] A. Gagnoud I. Leclercq, IEEE Transactions on magnetics, 24, 573 (1988).

Study on the Leaching Characteristics of Simulated Nuclear Waste Glass

Y.H. KIM*, K.S. HAN, J.H. LEE, J.H. KIM, and J.T. KIM

KHPT Co., No. 309, Office Building, Jungangdae-ro 263, Uichang-gu, Changwon-si, GyeongNam

*yhkim@khpetro.com

1. Introduction

Glass and Glass-Ceramics are an attractive waste form for the permanent disposal of high-level radioactive waste. Although typical waste sludge from the processing of spent reactor fuel contains more than 30 elements of wildly different ionic sizes and properties, these elements are chemically soluble in many glass-forming compositions of reasonable chemical durability. The chemical corrosion of the waste by water is of considerable importance since this corrosion could ultimately release biologically toxic radionuclides to the biosphere. The objective of this study is to show what is Na leaching mechanism in Fe_2O_3 and Al_2O_3 containing waste glass and whether the controlled surface crystallization was effective in increasing the chemical durability.

2. Experimental procedure

The complex composition of simulated nuclear waste glass PNL-7668 was simplified to a composition of the sodium-borosilicate glass. Starting with this glass, the amount of Al_2O_3 was changed. CaO , TiO_2 , and MgO in D-1 glass were contained for crystallization. Glasses were made by melting in Pt crucible in air at 1500°C for 3h. The melt was poured into a steel mould to make block specimens (about $10\times10\times15\text{mm}$) and annealed at 500°C .

The complicated bonding-characteristics of glass prior to and after leaching was examined by means of IRRAS. For infrared measurements, a model Mattson 5000 FT-IR spectrometer with high sensitivity was used in all measurements.

For the crystallization, D-1 glass was nucleated at

650°C for 5h and crystallized at 900°C for 10h. Energy dispersive spectroscopy (EDS) was also used to determine the relative elemental composition of various phases.

The leach tests were performed according to the Materials Characterization Center, MCC-1, Static Leach Test Procedure[1].

3. Results and Discussion

S-1, A-1 and A-2 were respectively leached at pH 1.5(HCl) for 14 day. Fig. 1 shows the results of the amount of Na release after leaching for the glasses. When the content of Al_2O_3 is increased in glass, the Na release is rapidly increased. The transmission spectra of glass was measured using the infrared microscope combined with FT-IR in the wave length region $400\sim4000\text{cm}^{-1}$ for characterizing of this phenomenon[2].

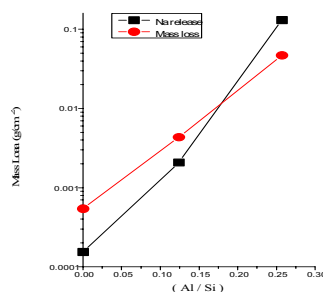


Fig. 1. Effect of Al_2O_3 on Na Release and Mass Loss in HCl(pH=1.5) for 14 day.

A comparison of infrared spectra in Fig. 2 shows the effect of Al_2O_3 in untreated glasses. In the case of Al_2O_3 -containing glass, the tetrahedral Al-O stretching band in around 700cm^{-1} is absolved. This result explains that Al_2O_3 , as network former, take part in the glass network.

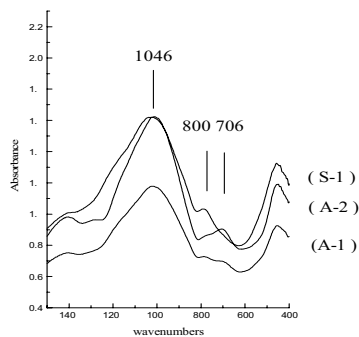


Fig. 2. Comparison of Al_2O_3 effect on IRRAS Spectra of untreated.

In order to increase the Na release protecting of Al_2O_3 -containing glass, controlled surface crystallization is performed. A XRD analysis shows that this glass crystallized into Diopside ($\text{CaMg}(\text{SiO}_3)_2$) and Rankinite ($\text{Ca}_3\text{Si}_2\text{O}_7$).

Fig. 3 shows the result of leaching test of devitrified glass and as-annealed glass. Devitrified glass showed a greater chemical resistance to acid attack than as-annealed glass.

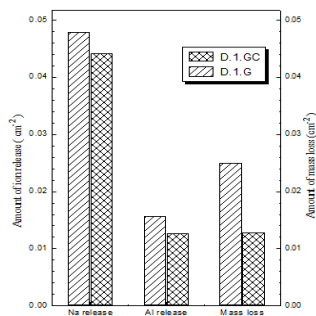


Fig. 3. Results from modified toxic constituent leaching procedure of quenched and devitrified glass.

From EDS analysis of annealed glass, a devitrified sample shows the crystalline regions of the devitrified microstructure contain a small amount of Al as compared to the glassy regions.

During extraction, most of the surface exposed to the acidic extraction fluid is a Al-deficient crystalline matrix.

This microstructure can protect the dissolution of the glass network in Al_2O_3 -containing glass matrix.

4. Conclusions

When the content of Al_2O_3 is increased in nuclear waste glass, the Na release was rapidly increased. In our previous study (Title: Study on the leaching characteristics of simulated nuclear waste glass(I))[3], we reported only some results about the concentrations of Na release for the same composition glass in the leachant solution by ICP, and we tried to explain its postulated mechanism from this results. In the present study, FT-IR analysis clearly shows that Al_2O_3 takes part in the glass network and the leaching mechanism in the Al_2O_3 -containing glass is the dissolution of the glass network.

By controlled surface crystallization, a favorable microstructure was developed where high-Al glassy phase was shielded from the extraction fluid by a Al-free crystalline matrix. This microstructure protects the dissolution of glass network in Al_2O_3 -containing glass matrix and decreases the Na release.

5. Reference

- [1] D. M. Strachan, R. P. Turcotte, and B. O. Barnes, Nucl. Tech., 56, 306-12(1982).
- [2] H. H. Ernsberger, J. Am. Ceram. Soc., 60, 91-92(1977).
- [3] H. Han, B. Ryu, Proc. Korean Ceram. Soc. at Spring, Kwangju, Korea, (1995).

4분과

방사선환경 및 안전 (Oral)

KOREAN RADIOACTIVE WASTE SOCIETY

생활·건축자재에서 방출되는 라돈가스 측정 및 분석

송미숙*, 주명훈, 임성규, 김현도, 안창석, 장동철, 서승범
한일원자력(주), 경기도 안양시 만안구 덕천로 45
*smsdr@hanilnuclear.co.kr

1. 연구배경

현대인들은 과거와 달리 발전된 과학 및 기술로 보다 안전하고 보다 편안한 삶을 영위하고 있으며 거주의 대부분을 일정한 온도와 습도가 유지되는 실내에서 생활하고 있다. 외부 기후환경 변화에 대응하는 기술 및 기기의 발달은 열에너지 효율의 극대화에 따른 에너지 저감 등 큰 장점을 가지나 건축 설계 시 효율적인 에너지 절약을 위해 실내단열재, 마감재, 친환경 건축자재 등을 활용함으로써 인한 실내 공기 환기율이 감소되며, 미세먼지 등의 환경요인으로 실내 공기 환기를 기피하고 있는 실정이다. 실내 공기의 오염을 일으키는 주된 물질로는 각종 건축자재로부터 발생하는 가스 및 유해물질들이 있으며, 이산화탄소, 일산화탄소, 휘발성 유기화합물, 석면 그리고 라돈 등이 대표적인 실내 공기 유해물질이다. 그 중 라돈은 폐암을 일으키는 원인물질 중 하나이며, 라돈을 방출하는 건축자재들이 실내인테리어 등의 목적으로 설치되어 실내공간에서 모핵종인 ^{226}Ra 의 방사평형에 의해 지속적으로 라돈을 방출하게 된다. 따라서 실내공기와 외부공기의 교환을 차단할 경우 라돈농도는 증가하게 되며 사람의 호흡에 의해 인체 호흡기인 폐의 기저세포에 흡착되어 연속붕괴를 통해 약 4~8MeV인 고 에너지의 알파선을 방출함으로써 폐 기저세포에 악영향을 미친다. 또한 담배의 흡연에 의해서도 라돈가스가 폐 속으로 흡입되어 동일한 영향을 주고 있다. 흡연 시 라돈피폭의 원인은 담배 원재료인 식물재배 시 사용되는 비료에 천연방사능 물질인 폴로늄이 포함되어, 뿌리를 통해 잎사귀로 전달되며 담배 잎에 축적됨에 의해 흡연 시 라돈피폭이 발생하는 것으로 알려져 있다. 이와 같이 자연환경 중에 존재하는 천연방사성 핵종인 라돈은 토양이나 건축자재, 물에 함유되어 있다가 공기 중으로 방출되는데 공기 중에 작은 입자 상태로 존재하다가 분진과 같은 미세먼지입자와 결합하여 호흡 시 호흡기를 통해 폐 속의 폐 기저 세포에 침착해서 연속붕괴를 통해 에너지를 방출하면서 내부피폭을 유발하여 폐암을 일으키는 유해

한 물질로 알려져 있다.

이에 본 연구에서는 알파비적수동형 검출기를 이용하여 국내에서 사용되고 있는 건축자재 3종과 생활주변에서 쉽게 구할 수 있는 3가지의 물질을 선정하여 라돈가스를 측정하여 비교 평가하였다.

2. 실험방법

2.1 건축자재에 함유된 Ra-226농도

실생활의 건축물에 대부분이 라돈방사능을 방출하는 콘크리트나 석고보드 등을 많이 사용하고 있다. 미국 환경보호청(EPA)과 우리나라 환경부에서는 실내 라돈농도를 4pCi/L로 권고하고 있다. 현재 국내에서 사용되고 있는 건축자재의 라돈농도를 표1에 정리하였다. 이중 일반 벽돌(Brick)과, 석고 보드(Gypsum board), 목재 합판(plywood)을 무작위로 선정하여 라듀엣(Raduet)을 설치하고 재료에서 방출되는 라돈가스를 측정하였다.

Table 1. The amount of ^{226}Ra from construction material

Materials	$^{226}\text{Ra}(\text{Bq/kg})$
Brick	18~42
Red Brick	28~45
Tile	41~75
Gypsum Board	211~331
Concrete	30~70
Cement	32~36
Plywood	4~9
Granite stone	20~85
Sand	10~17
Concrete Block	12~17
Yellow soil	36~42
Yellow block	31~35

2.2 검출기 설치 및 분석

본 연구에서는 수동형검출기인 Raduet을 사용하여 자연 순환방법을 적용하였으며, 시중에서 쉽게 구할 수 있는 생활 건축자재 및 용품들을 무작위로 선정하여 10~30일 동안 라돈 가스를 측정하였다. 측정이 끝난 Raduet은 회수한 후 CR-39칩을

분리하여 각각 검출기 홀더에 고정시킨다. 6.25M NaOH 용액을 에칭 중탕기(Eching Bath)에 넣고 90℃까지 가열한 다음 슬라이드 검출기 홀더를 에칭 중탕기에 넣고 90℃의 6.25M NaOH 용액에서 4.3시간 동안 화학적 에칭을 수행 하였다. 에칭이 끝난 후 CR-39칩이 더 이상 화학적 반응을 멈추기 위해 20분 동안 약 1% 초산용액에서 중화한 후 깨끗한 곳에서 하루 동안 상온 건조시킨 후 라도시스(Radosys) 자동화 측정 장비를 사용하여 비적(Track)을 계수하였고, 측정된 비적은 다시 Bq/m³로 환산하여 라돈 농도(pCi/L)를 산출하였다.

3. 실험 및 결과

Table 1의 건축자재중 일부를 실험재료로 하여 Table 2에 그 결과를 나타내었다. 함유된 농도와 비교하면 짧은 측정기간에 비해 석고보드를 제외한 나머지 자재에서는 높은 라돈 농도를 보이고 있다. 석고보드와 달리 목재와 벽돌에서는 4.3 ~ 4.9% 높게 나타나는 현상을 보이고 있다. 이는 실험에 사용된 벽돌이나 합판의 원재료에 라듐성분이 높은 것으로 판단된다. Table 1과 비교하여볼 때 Table 1은 챔버에 일정량의 재료를 넣고 공기를 진공으로 뽑아내어 측정한 결과이며 Table 2는 실험방법에서와 같이 자연 방출되는 라돈의 농도를 측정한 값이다. 실제 우리가 지내고 있는 환경에서는 공기를 강압적으로 뽑아내고 있지는 않기 때문에, 공기를 강압적으로 뽑아내지 않은 자연 상태의 재료에서 방출되는 라돈가스가 실질적으로 사람에게 영향을 미치는 것이므로 자연 상태에서 측정된 값이다.

Table 2. The amount of ²²⁶Ra from construction materials

Material	²²⁶ Ra(Bq/m ³)	²²⁶ Ra(pCi/L ³)
Brick	205.9	5.6
Gypsum Board	143.5	3.9
Plywood	38.4	1.0

Fig. 1과 Fig. 2에서 라돈 농도를 나타내었다. 백등유는 해외에서 수입하는 원유를 증류하여 만들기 때문에 증류되는 동안 라돈농도가 감소되었을 것으로 판단된다. 담배의 결과는 태운 재보다는 원재료에서 라돈 농도가 높게 나왔으며, 흡연 시 연기를 통해 배출되거나 희석된 것으로 판단된다. 환경부에서는 집안에 틈새가 있을 경우 실리콘으로 틈새를 매워 라돈 방출을 낮춘다고 설명되어있다. 추가적으로 연구가 필요하지만 실리콘에서도 라돈

농도가 측정되기 때문에 다른 대안이 필요할 것으로 판단된다. 합판은 나무가 주원료이기 때문에 라듐이 포함되어 있을 것으로 판단된다. 벽체에 들어가는 벽돌, 라텍스는 라돈방출량이 다른 자재보다 높게 나타났으며 이는 실내 주거 환경 또는 직업 환경에서 라돈가스가 지속적으로 방출되기 때문에 이에 대한 보완책이 필요할 것으로 판단된다.

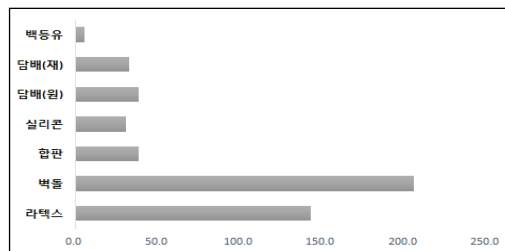


Fig. 1. The amount of ²²²Rn from materials(Bq/m³).

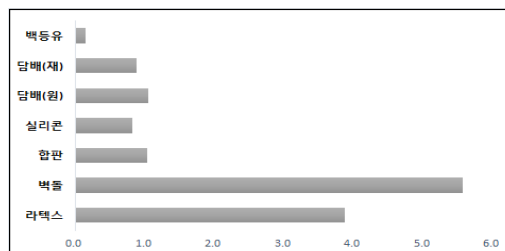


Fig. 2. The amount of ²²²Rn from materials(pCi/L).

4. 결론

본 실험에서 생활·건축자재에서 방출되는 라돈 가스를 측정, 분석하였다. 타 실험에 비해 측정기간이 짧아 라돈 농도가 낮을 것으로 예상하였으나, 본 실험에서는 벽돌과 석고보드를 제외하고는 낮은 라돈 농도를 보이는 것으로 나타났다. 이를 토대로 현재의 연구방법과 비교가 가능할 것으로 판단되며, 추후의 연구에서는 다양한 자재를 선정하여 챔버 실험을 병행하고자 한다.

5. 참고문헌

- [1] Nationwide Survey of Indoor Radon In Korea, *Kins*, 2010.
- [2] Study on the indoor radon concentration of elementary school in Korea, *J. of the Korean Society for Indoor Environment* Vol.9 127-133(2012).
- [3] Effect of Black Charcoal and Activated Carbon for Reduction of Radon Radio activity that Emitted from Building Materials, *J. of the Korean Furniture* Vol.22 13-17(2011).

추출크로마토그래피법을 이용한 해수 중 방사성 스트론튬 및 플루토늄의 축차 분리 기술 연구

김현철*, 정근호, 장미, 박효국, 강문자, 최근식

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*hckim3@kaeri.re.kr

1. 서론

비상시 해수 중 방사성물질의 거동을 추적하는 것은 매우 중요하다. 대부분의 원자력시설이 해안에 인접해 있기 때문에, 체르노빌 사고나 후쿠시마 사고처럼 다량의 방사성물질이 해양으로 유출될 수 있다. 사고 초기 해양으로 유출된 방사성물질의 농도와 그 경로를 파악하는 것은 자국민 안전 및 주변 국가의 안전을 위해 반드시 필요하다. 방사성핵종 축차분리 기술은 환경방사성유출물 긴급분석, 고방사능시료 오염평가시 분석자 피폭최소화, 다수 방사능시료 신속분석등에 적용할 수 있는 분석 기술이다. 특히 사고시 신속분석을 위해서는 하나의 시료에서 여러 관심핵종을 동시에 분리/정제할 수 있는 축차분리 기술의 중요성이 더욱 크다. 따라서 본 연구에서는 해수 중 주요 방사성핵종의 축차분리 기술개발을 모색하였다.

Sr-90은 U-235 핵분열시 약 6%의 생성율을 갖는 주요 핵분열 생성물질이다. 플루토늄도 원자력 시설에서 발생하는 주요 생성물로서 환경방사능 오염 정도를 평가할 때, 매우 중요한 인공 방사성핵종이다. 이 연구에서, 원자력 시설 사고시 해수 중에 유출된 스트론튬과 플루토늄을 신속 분석하기 위해 본 실험실에서 개발한 모듈식 자동 방사성핵종 분리기 (MARS, Module Automated Radionuclide Separator)를 이용하였다 (Chung et al).

2. 재료 및 방법

본 연구에서 사용한 모든 시약은 analytical grade급이다. 해수 중 플루토늄과 스트론튬을 농축한 후, 정제를 위해 TEVA (Eichrom), Sr-resin (Eichrom)을 각각 사용하였다. 농축 및 정제 단계에서 플루토늄과 스트론튬의 회수율을 평가하기 위해 Pu-241과 Sr-85를 각각 사용하였다.

해수 중 플루토늄 및 스트론튬을 농축/정제하기에 앞서, 입자성 물질을 제거하기 위해 여과 (0.45 μ m)하고, HNO₃을 이용해 해수의 pH를 2이하로 낮춘다(Fig. 1). 플루토늄과 같은 actinide 핵종은 pH를 낮추지 않을 경우, 일부 actinide species가 시료가 담긴 용기 내벽에 흡착될 수 있다. Lovett et al에 의하면, pH를 2로 낮춘 여과해수와 그렇지 않은 여과해수를 25L polyethylene 용기에 보관한 뒤 Am-241을 분석한 결과, 산처리하지 않은 여과해수 중 Am-241의 50%가 용기에 흡착되었다고 보고하였다.

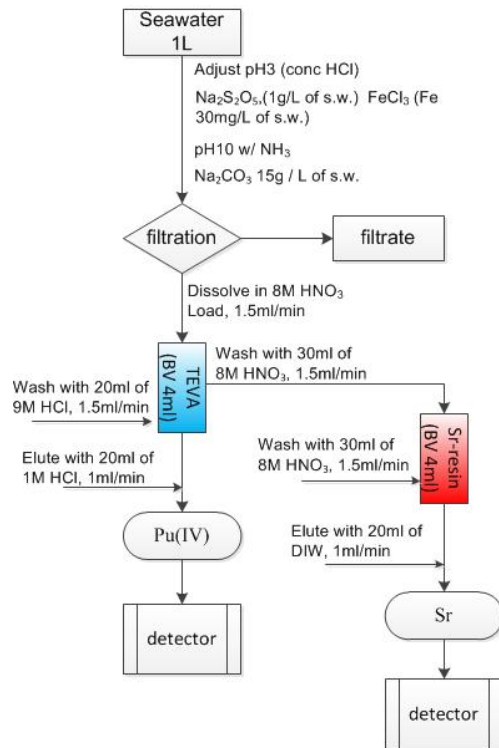


Fig. 1. Schematic representation of separation of Pu and radiostrontium from seawater.

3. 농축

플루토늄을 Fe(II)과 공침시키기 위해서, 플루토늄을 Pu(III)로 환원시켜야 한다. 환경 중 플루토늄은 Pu(III), (IV), (V)형태로 존재하기 때문에 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_5$ 를 넣어 Pu를 모두 Pu(III)형태로 환원시킨다. 암모니아수로 pH를 9까지 높인다. 이 때, Pu(III)은 $\text{Fe}(\text{OH})_2$ 와 함께 공침한다. Na_2CO_3 를 넣어, Sr을 SrCO_3 로 침전시킨다. 1L 해수(염분 3.5%)는 Ca 10mmol, Mg 50mmol, Sr 0.1mmol을 포함한다. 세 이온들은 CO_3^{2-} 와 반응하여 탄산염 형태로 침전한다. 이론적으로 위 세 이온을 탄산염으로 침전시키기 위해 필요한 탄산이온은 60mmol이고, Na_2CO_3 6.3g가 이에 해당한다. 그러나 6.3g의 Na_2CO_3 를 넣어도 80% 이하의 Sr만이 침전된다. 그보다 2.5배에 해당하는 15g의 탄산나트륨을 해수 1L에 넣었을 때, 약 94%의 회수율을 보였다.

4. 정제

침전물을 포함한 시료를 GF/F(nominal size 0.7 μ m)를 이용해 여과한다. 8M HNO_3 으로 여과지 위의 침전물을 용해시킨다. TEVA resin (4ml, Bed volume)과 Sr-resin(4ml, Bed volume)이 차례로 연결된 MARS에 시료를 통과시킨다. 8M HNO_3 매질에서 Pu(III)은 Pu(IV)로 산화되어 TEVA resin에서 시료에서 분리할 수 있다. 한편 8M HNO_3 매질에서 Pu은 Sr-resin에 결합될 수 있기 때문에, TEVA resin으로 시료 중 Pu을 먼저 분리해야 한다. Sr은 TEVA resin에서 어떤 반응도 일어나지 않기 때문에, TEVA resin 통과 후 Sr-resin에서 분리한다. TEVA resin 4ml (Bed Volume)에서 Sr은 약 8 BV의 8M HNO_3 을 흘려 보내면 TEVA resin에서 모두 용출된다 (Fig. 2). TEVA resin을 통과한 Sr이 Sr-resin에 결합되었을 때, TEVA resin과 Sr-resin을 분리한다. 9M HCl과 8M HNO_3 을 이용해 Pu과 Sr에 대한 방해 핵종들을 제거한다. 1M HCl과 초순수로 TEVA resin에서 Pu을, Sr-resin에서 Sr을 용출한다.

각 단계 회수율 평가를 위해 사용한 추적자 Pu-241은 베타 핵종이기 때문에 LSC (Quantulus 1220)로, Sr-85는 HPGe 검출기로 계측하였다

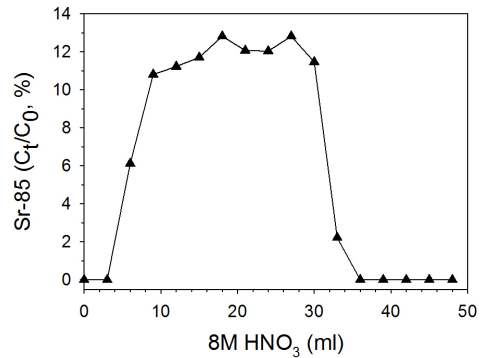


Fig. 2. Behavior of Sr on TEVA resin (BV 4ml). (C_0 : initial concentration of Sr-85, C_t : conc. of Sr-85 at each volume of 8M HNO_3).

5. 결과

Fig. 1의 절차를 따랐을 때, 해수 1L 농축과정에서 스트론튬의 회수율은 91%이다. Pu-241의 경우, Fe과 같은 quenching 인자가 많아 농축과정에서의 회수율을 측정하지는 못했다. 정제 과정까지 모두 진행했을 때, Pu은 82%, Sr은 90%의 회수율을 보였다. 해수 1L에 대해 전처리부터 정제까지 소요된 시간은, 약 2.5hr이다. 해수 중 Pu과 Sr의 정제 과정은 MARS를 이용하기 때문에, 분석자의 노력과 시간을 줄일 수 있고, 분석 때마다 동일한 절차를 수행할 수 있는 장점이 있다.

해수 용량이 증가하면, 해수 중 스트론튬의 안정 동위원소가 증가하기 때문에 Sr-resin의 양을 적절히 선택해야 한다. 추후 해수 용량을 증가시켜 대용량 해수에 대한 Pu, Sr 측차 분석법을 개발하려고 한다.

6. 참고문헌

- [1] K.H. Chung et al., Design and performance of an automated radionuclide separator: its application on the determination of ^{99}Tc in groundwater. *Appl. Radia. Isot.* 2013. doi:10.1016/j.apradiso.2013.03.080.
- [2] M.B. Lovett et al. The determination of alpha-emitting nuclides of Pu, Am and Cm in environmental materials, 1990, Ministry of Agriculture, Fisheries and Food. Directorate of Fisheries Research.

퍼프모델을 이용한 월성원전부지 확산실험 해석

정효준*, 김은한, 박미선, 정해선, 황원태, 한문희

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*jeong1208@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력시설에서 배출되는 기체상 방사성물질의 방사선환경영향평가에 대기확산모델을 이용하는 것은 비정상운영으로 인한 방사성물질의 거동 및 주민 위해 정도를 추정해 볼 수 있어 매우 유용하다. 그러나 방사성물질의 거동을 해석하기 위한 대기확산모델은 사용되는 수학적 모델의 특성에 따라 공기 중 농도를 과소 혹은 과대 추정할 수 있어 적용하는 과정에 많은 논란이 있을 수 있다. 본 연구에서는 월성원자력부지에서 방사성물질의 회석에 불리한 기상조건에서 추적자의 원전부지 내 거동 특성을 파악하기 위해 야외확산실험을 실시하였다. 또한 대기확산모델인 가우시안 퍼프 모델로 추정된 추적자의 농도와 실측농도와의 비교를 통해 모델의 현실 반영 정도 및 보수성을 평가하였다.

2. 본론

2.1 확산실험

야외확산실험은 2013년 12월 3일 22시 30분부터 1시간 동안 실시하였으며 사용된 추적자는 SF₆이다. 월성원자력부지의 도로를 따라 150개의 샘플링지점을 선정하여 샘플러를 배치하고 10분 간격으로 샘플링하여 분석하였다. 추적자의 방출량은 0.5069 g/sec였다. 추적자의 방출지점은 실험 당시의 풍향과 접근성을 고려하여 정하였으며 7개의 간이 기상 측정장치를 설치하여 풍향과 풍속을 측정하였다.

2.2 가우시안 퍼프 모델

방사능을 포함한 퍼프의 확산이 가우시안 분포를 따른다고 가정하면 관심지점에서 방사성 물질의 공기 중 농도는 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$C_{(x,y,z)} = \frac{Q\Delta t}{(2\pi)^{1.5}\sigma_x\sigma_y\sigma_z} \exp\left(\frac{-(x-Ut)^2}{2\sigma_x^2}\right) \exp\left(\frac{-y^2}{\sigma_y^2}\right) \left[\exp\left(\frac{-(z-H_e)^2}{2\sigma_z^2}\right) + \exp\left(\frac{-(z+H_e)^2}{2\sigma_z^2}\right) \right] \quad (1)$$

여기서, $C_{(x,y,z)}$ 는 추적자의 농도(g/m³), Q 는 추적자 방출률(g/s), Δt 는 퍼프의 방출 간격, σ_x , σ_y , σ_z 는 확산계수(m), H_e 는 유효방출고도(m)를 나타낸다. 확산계수 σ_x , σ_y , σ_z 는 Beychok의 식을 이용하였으며 확산계수 σ_x 는 σ_y 와 같다고 가정하였다[1].

2.3 확산실험 해석

실험장소의 중앙에 위치한 기상측정 장치에서 관측된 바람은 전체적으로 북서풍과 서풍이 우세하였다. Fig. 1은 1분 간격으로 방출된 퍼프의 궤적을 추적한 것으로 주풍하 방향인 남동방향으로 퍼프가 움직이고 있음을 확인할 수 있다. Fig. 2는 1분 간격으로 방출된 퍼프를 시간의 경과에 따라 추적한 후, 계산도메인 내에 존재하는 모든 퍼프의 농도를 1시간 평균한 것이다. 방출된 SF₆ 퍼프는 전체적으로 북서풍의 영향을 크게 받은 것으로 보인다. 주풍하 방향에서 추적자의 농도는 가우시안퍼프 모델 추정값과는 달리 높은 농도의 퍼프가 분산되어 분포하고 있으며 이는 퍼프가 방출되는 동안 발생한 풍향 변화에 기인한 것으로 판단된다. Fig. 2에 나타난 +는 샘플러의 위치는 나타낸 것이다. 가우시안 퍼프 모델로 추정된 농도분포와 샘플러의 위치를 비교해 보면 실험장소인 월성원자력부지의 도로를 따라 배치된 샘플러 중 북쪽에 배치된 샘플러에서 추적자의 포집이 유리했을 것으로 판단된다. Fig. 3은 Fig. 2에 나타난 샘플러 중 방과제부분에 배치된 샘플러를 제외한 부지내 중앙도로를 따라 배치한 샘플러의 SF₆농도와 가우시안퍼프 모델로 추정된 농도를 나타낸 것이다. 도로의 남쪽에 위치한 샘플러에서 수집된 SF₆의 농도는 매우 낮은 것으로

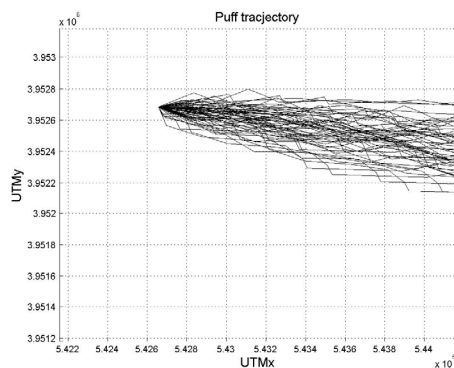


Fig. 1. Puff trajectories during the experimental period at the Wolsong nuclear site on Dec. 3 in 2013.

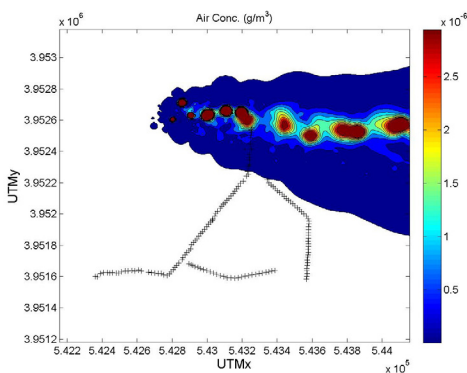


Fig. 2. Hourly averaged SF₆ concentration estimated by the puff model at the Wolsong nuclear site.

나타났으며 북쪽에 배치된 샘플러에서 측정된 농도가 비교적 높게 나타났다. 실측값은 가우시안 퍼프모델로 추정된 값보다 비교적 큰 경향을 보였다. Fig. 4는 샘플러가 배치된 모든 지점의 측정농도와 계산농도를 비교한 것이다. 계산값과 실측값의 상관계수는 매우 작지만 가우시안 퍼프모델의 계산값이 실측값에 비해 상당히 높아 보수적 추정을 하고 있는 것을 확인할 수 있다.

3. 결론

본 연구에서는 월성원자력부지의 방사성물질 확산특성을 파악하기 위해 추적자를 이용한 확산실험을 실시하였으며, 기상측정 자료와 추적자의 방출률을 이용하여 가우시안 퍼프 모델로 추적자의 농도를 추정한 후 실험결과와 비교분석하였다. 포집된 추적자의 농도는 가우시안 퍼프 모델로 추정된 농도보다 전체적으로 낮은 경향을 나타냈다.

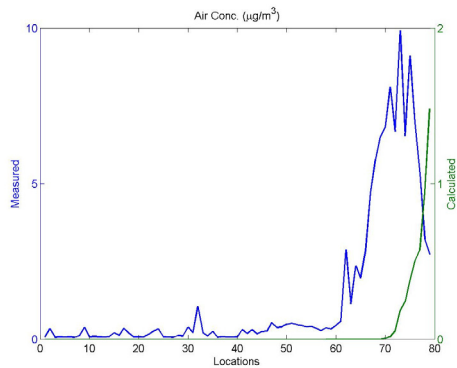


Fig. 3. Comparison of measurements and estimations for SF₆ concentration in the main road.

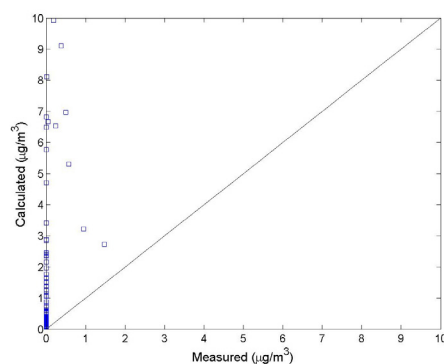


Fig. 4. Correlation of measurements and estimations for SF₆ concentration.

원자력시설의 인허가에 사용되는 방사성물질의 대기확산 해석프로그램의 대부분이 가우시안 플룸모델에 기반에 있어, 현재 가우시안 플룸모델의 결과와도 비교를 진행 중에 있다. 본 연구결과를 바탕으로 원자력시설의 인허가에 사용되는 대기확산 모델들의 해석 능력의 비교와 보수적 추정의 정도를 확인할 수 있을 것으로 판단된다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부와 원자력안전위원회의 연구비 지원으로 수행되었습니다. 더불어 실험에 협조해 주신 월성원자력본부에 감사드립니다.

5. 참고문헌

- [1] Beychok, M.R., Fundamentals of stack gas dispersion, ISBN 0-9644588-0-2, 2005.

월성원전 주변지역 식물의 방사능 오염에 관한 연구

정진욱^{1*}, 정성일¹, 국성도¹, 강태호²

¹경주시월성원전환경감시센터, 경북 경주시 양북면 능골연당길 19-6

²동국대학교, 경북 경주시 동대로 123

*forever0224@wsnec.or.kr

1. 서론

원자력 시설에서 환경 생태계로 방출된 인공핵종은 고유 반감기에 의해 감쇄되어 방사능 농도가 감소되기도 하나 핵종 자체의 거동특성과 환경 요인에 따라 환경 중에서 각각 다른 분포를 보일 수 있다. 지금까지 생태계 중에 방사성핵종에 대한 식물의 흡수, 억제 및 전이효과에 대한 연구는 활발한 편이고 많은 연구 결과들이 발표되었다[1]. 또한, 식물소재의 흡수, 정화 능력을 이용한 식생복원기술을 통하여 원전사고 지역 및 원전 주변 지역의 방사성 오염 저감을 위한 연구도 활발히 진행되고 있다.

식생복원 기술은 식물과 공생 미생물체를 이용하여 오염된 환경에서 오염물을 제거하는 친환경적 치유 기술 방식이다. 식생복원의 개념은 자연적이거나 인위적인 간섭에 의해 훼손된 중요 서식처나 생물종을 훼손 이전의 상태 또는 유사한 생태계의 종 다양성과 역동성으로 되돌리는 노력을 의미한다. 국외에서는 원전사고 후 식물을 이용한 방사성 핵종 저감화 연구가 적극적으로 진행되고 있지만 국내에서는 이 분야에 대한 연구가 미흡한 실정이다.

본 연구에서는 월성원자력시설 주변지역의 방사능 오염 저감을 위한 식생복원기술 개발을 위해 동국대 조경학과와 함께 식물 소재에 따른 방사능 분석을 시행하였다. 이를 통해 식물종에 따른 방사능 흡수 정도를 파악하고 방사능 오염지역에 식물 이식의 생활을 확보하기 위한 번식기술 및 재배기술뿐만 아니라 원전 주변지역 환경중의 방사능 저감 능력의 기초자료를 제공하고자 한다.

2. 본론

2.1 식물소재 선정

방사능 분석을 위한 식물소재는 침엽수인 소나무와 활엽수인 아왜나무를 각각 선정하였다. 채취 지점은 Fig. 1과 같이 월성원자력발전소 근접지역과 원전으로부터 10km에 있는 양북 및 30km 이상 떨어진 경주의 건천지역으로 구분하고 각 3개소

에 Test-bed를 설치하여 지역에서 자생중인 식물을 채취하였다. 본 실험에서는 시료채취 시 대기 확산 인자는 고려하지 않았으며 채취된 시료는 물리화학적 전처리 과정을 통해 감마방사능과 삼중수소 방사능 분석을 시행하였다.

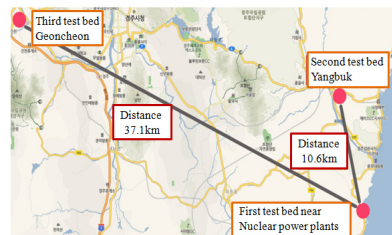


Fig. 1. Locations of Test bed.

2.2 감마방사능 분석결과

토양과 공기 중에 존재하는 방사성핵종의 식물체 흡수 정도를 알아보기 위해 솔잎과 아왜나무에 대한 감마 방사능을 분석한 결과, Table 1에서 보는 바와 같이 3개소 지점 모두에서 감마선을 방출하는 핵종이 검출되지 않았다.

Table 1. Gamma Radioactivity of viburnum awabuki/pinus thunbergii by distance from NPP

구분	채취장소 (거리)	결과(Bq/kg-fresh)		
		I-131	Cs-134	Cs-137
아왜 나무	건천(>30km)	N/D	N/D	N/D
	양북(10km)	N/D	N/D	N/D
	원전주변	N/D	N/D	N/D
솔잎	건천(>30km)	N/D	N/D	N/D
	양북(10km)	N/D	N/D	N/D
	원전주변	N/D	N/D	N/D

대부분 입자형태로 존재하는 감마핵종은 원전사고 및 원전 가동으로 환경으로 유출된 후 지상에 침적하고 토양 내에서 이동, 토양에서 식물로 이행 및 토양에서 대수층으로 이동하는 경로를 거친다. 방사성세슘 및 플루토늄과 같이 토양입자에 강하게 결합하는 핵종은 이동속도가 느리며 일반적으로 유기물의 양이 많은 토양에서 방사능 축

적이 높고 이들 농도 사이에는 양의 상관관계가 있다. 토양에 존재하는 핵종은 식물체로 흡수되는데 이를 전이라 하며 방사성 테크니슘은 토양 내 수용성이 커서 이동이 좋고 식물체에 흡수가 빨라 전이가 큰 편이다[2]. 3개소 지점 모두에서 감마방사능이 검출되지 않은 것은 이러한 감마핵종의 특성에 기인하며 식물체 내로 직접 전이가 이루어지지 않은 결과로 판단된다.

2.3 삼중수소방사능 분석결과

삼중수소 방사능의 식물체 흡수 정도 즉 전이 정도를 파악하기 위해 월성원전으로부터 거리별로 솔잎 및 아왜나무를 채취하여 그 방사능 분석 결과를 Table 2에 나타내었다. 분석결과 원전에서 가까운 원전 근접지역에서 채취한 아왜나무와 솔잎 모두에서 삼중수소 방사능이 각각 39.8Bq/L 및 8.51Bq/L로 가장 높게 검출되었으며 원전으로부터 30km 이상 떨어진 건천에서는 삼중수소가 검출되지 않았다.

Table 2. ^3H concentrations of viburnum awabuki /pinus thunbergii by distance from NPP

구분	채취장소(거리)	결과(Bq/L)
viburnum awabuki (아왜나무)	건천(>30km)	불검출
	양북(10km)	2.22±0.40
	원전주변	39.8±0.77
pinus thunbergii (솔잎)	건천(>30km)	불검출
	양북(10km)	1.31±0.38
	원전주변	8.51±0.49

이러한 결과는 감시센터에서 과거 2005년에서 2008년까지 빗물에 대한 삼중수소를 분석·비교한 Fig. 2a와 그 경향이 일치한다. 또한, 주 풍하 방향이며 원전에서 가까운 상봉지역과 원전에서 10 km에 위치한 양북 지역의 빗물 분석결과를 나타낸 Fig. 2b와도 일치함을 알 수 있다[3].

발전소에서 대기 중으로 방출된 삼중수소는 공기 중에서 산화하거나 물과 치환하여 삼중수소물(HTO)형태로 변화하며 대기중의 HTO는 식물체의 기공을 통하여 빠르게 생체내로 흡수되어 조직자유수로 존재한다. 이러한 원인으로 방출원에서 가까울수록 삼중수소의 농도가 높게 검출되며 방사능 분석결과 잎이 넓은 아왜나무가 소나무보다는 삼중수소의 흡수 및 제거에 유리할 것으로 판단된다.

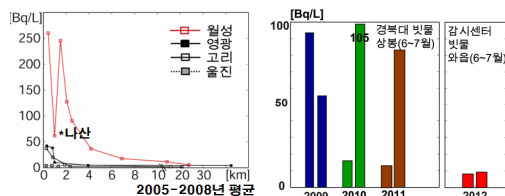


Fig. 2. H-3 concentrations of rain water.

3. 결론

상기 분석결과에 따라 향후 식생복원 기술을 통한 지속적인 삼중수소 저감화를 위해서는 삼중수소의 흡수 및 제거에 상대적으로 유리한 식물들에 대한 광범위한 지역으로의 확대 및 연구가 필요하며 그 결과에 따라 효과적이며 친환경적인 삼중수소 감소가 가능할 것으로 기대된다. 다만 대중에 대한 신뢰성 확보 측면에서 원전 주변지역에 더 많은 식물에 대한 연구가 필요하다. 한편, 지금까지의 환경방사능 분석결과로 볼 때, 월성원전 주변지역의 빗물에서 삼중수소 농도가 타 원전 지역에 비하여 상대적으로 높음을 확인할 수 있었다. 그 결과 월성원전 주변의 삼중수소에 대한 지속적인 모니터링이 요구되며 나아가 삼중수소 방사능 저감화 노력이 필요하다고 판단된다. 본 연구는 국내에서 적용 가능한 상록교목을 찾아내기 위해 제한적으로 수행되었으므로 2종의 실험 식물 종으로 한정하였다. 향후 후속 연구를 통해 보다 광범위한 식물 종에 대한 검증이 필요할 것으로 보인다.

4. 참고문헌

- [1] Choi, Y. H. et. al., Plant uptake and downward migration of $^{85}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ after their deposition on to flooded rice fields, Journal of Environmental Radio- activity, 2005, pp. 35-49.
- [2] '환경방사능 측정 및 분석', 경북대 방사선과학연구소, 2008.
- [3] '원전주변 주요 환경시료의 삼중수소농도 분석 결과에 대한 고찰', 방사선방어학회 추계학술대회, 정진욱 외, 2010. 11., pp.138-139.

사용후핵연료 건식저장시설 콘크리트 균열에 따른 차폐영향평가

고재훈^{1*}, 성낙훈¹, 박제호¹, 정성환²

¹(주)코네스코퍼레이션, 대전광역시 유성구 장대동 341-4번지

²한수원(주)중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1321번길 70

*kojh4@kones21.com

1. 서 론

콘크리트 구조물의 열화는 내구성의 저하와 외관의 손상은 물론, 균열로 인해 철근이 대기나 습기에 노출될 경우 부식이 발생할 수 있으며, 구조물의 건전성에 문제를 일으킬 수 있다. 월성원전의 사용후핵연료 건식저장시설 콘크리트 사일로에는 90년대 초부터 현재까지 20여년 이상 건식저장 분위기에서 핵연료가 저장되고 있으며, 콘크리트가 방사선차폐체로 사용되는 경우 균열은 차폐능의 저하를 유발한다[1]. 콘크리트 균열의 크기에 따른 사일로 표면에서의 방사선량률의 변화는 균열단면적에 생성된 주름의 영향 및 균열의 생성형상 등이 다양하게 발생하기 때문에 이를 수치적으로 계산하기는 매우 힘들다[1]. 따라서 콘크리트 사일로에 적용된 콘크리트 조성을 고려하여 동일한 물성치를 갖는 시편을 제작한 후, 강제로 균열을 발생시켜 이들에 대한 표면선량의 변화를 실험을 통해 선량률을 측정하여 균열이 표면선량에 미치는 영향을 살펴보았다.

2. 본 론

콘크리트 균열부위를 통한 방사선조사시험은 2조각으로 강제균열이 발생한 시편에 일정한 세기의 방사선을 입사시켜 시편의 반대편에 설치된 계측장비를 통하여 결과를 판독하였다.

2.1 시험변수

콘크리트 균열에 대한 방사선조사시험은 균열의 깊이와 크기의 상관관계를 통한 표면선량률 변화를 살펴보았으며, 시험변수는 Table 1에 나타내었다.

Table 1. Variable of test

Variable	Test Conditions
Crack depth	35, 75, 150mm
Crack size	0.0, 0.2, 0.5, 1.0mm

2.2 시험시편

시험시편은 균열이 없는 조건에서 선량률값(참조값

으로 활용)을 확보하기 위한 reference block과 Table 1에 제시한 균열크기에 따른 균열시편으로 구분하였다. 시험시편은 가로x세로 각각 20x20 cm으로 선정된 후, 균열의 깊이에 따라 35, 75, 150 mm의 3가지로 제작하였으며, 이를 Fig. 1에 나타내었다.

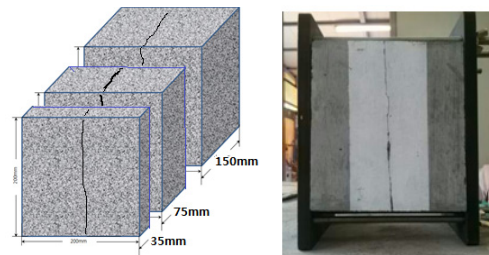


Fig. 1. Test specimen for concrete.

2.3 방사선조사시험

콘크리트 균열에 대한 방사선조사시험은 Cs-137 (0.662MeV의 γ 선 방출)선원이 내장된 시험장비를 이용하였으며 각 균열시편에 대하여 0.2, 0.5, 1.0 mm의 균열 폭을 조절하며 1.0, 2.5, 5.0mSv/h의 세기로 조사하였다. 시험을 수행하는 동안 시험시설 외부에서 계측결과를 판독할 수 있도록 조사시설 내에 CCTV를 설치하여 작업자에 대한 피폭을 방지하였다. Fig. 2는 방사선조사시험을 나타낸 것이다.

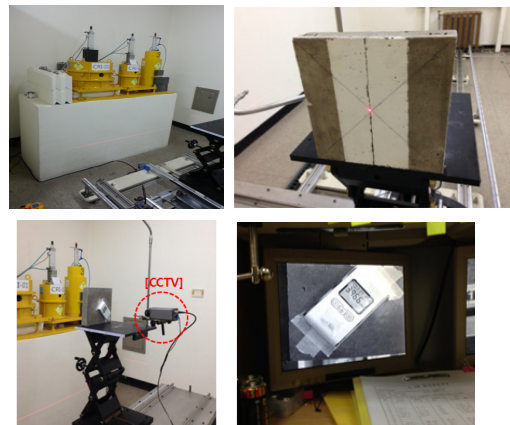


Fig. 2. Radiation irradiation test for concrete.

2.4 시험결과

콘크리트 균열부위를 통한 방사선조사시험은 동일한 시편 및 동일한 시험조건에서 각 10회 조사 후 계측된 결과의 평균값을 측정값으로 선정하였다. 균열깊이에 대한 기준선량률 별 균열크기 변화에 따른 방사선량률은 Table 2에 나타내었다.

Table 2. Results of Radiation irradiation test

[Unit : mSv/h]				
Crack depth : 35mm				
Reference dose	Crack size[mm]			
	0.0	0.2	0.5	1.0
5.0	3.989	4.036	4.220	4.382
2.5	1.979	1.962	2.089	2.171
1.0	0.783	0.788	0.827	0.865
Crack depth : 75mm				
Reference dose	Crack size[mm]			
	0.0	0.2	0.5	1.0
5.0	2.748	2.806	2.835	2.912
2.5	1.350	1.375	1.392	1.429
1.0	0.548	0.554	0.560	0.576
Crack depth : 150mm				
Reference dose	Crack size[mm]			
	0.0	0.2	0.5	1.0
5.0	1.075	1.177	1.238	1.313
2.5	0.540	0.591	0.526	0.668
1.0	0.217	0.237	0.247	0.263

콘크리트 시편의 균열부위를 통한 방사선 조사시험 결과, 균열의 크기에 따라 선량률이 증가하는 양상을 나타냈으며 기준 선량률이 증가할수록 증가경향은 뚜렷하게 나타났다.

2.5 콘크리트 사일로 균열에 대한 선량률 예측

콘크리트 균열진전에 따른 모사시험결과를 월성원전의 콘크리트 사일로에 적용하기 위하여 동 시설의 균열을 진행성 균열로 가정 후 균열진전에 따른 방사선적 영향을 예측하였다. 이를 위하여 균열깊이별 균열크기의 진전에 따른 선량률 증가분 중 최대값을 산출하였으며, 설계기준연료 바스켓이 저장된 콘크리트 사일로 외부표면에서의 방사선량률을 평가하였다. 균열깊이별 균열진전에 따른 선량률 증가분 및 콘크리트 사일로의 최대선량률을 반영한 균열크기 진전에 따른 선량률은 Table 3과 같다.

Table 3. Dose rates for crack size of concrete silo

[Unit : mSv/hr]				
Crack depth	Crack size[mm]			
	0.0	0.2	0.5	1.0
35mm	0.015*	0.015	0.016	0.017
75mm	0.015*	0.015	0.016	0.016
150mm	0.015*	0.016	0.017	0.019

* Maximum dose rates for concrete silo surface

Table 3의 결과로부터 선형회귀분석을 통한 콘크리트 사일로에 대한 표면선량률 제한치(0.025μSv/h)에 준하는 균열의 깊이 및 크기를 예측하여 Fig. 3에 나타내었다.

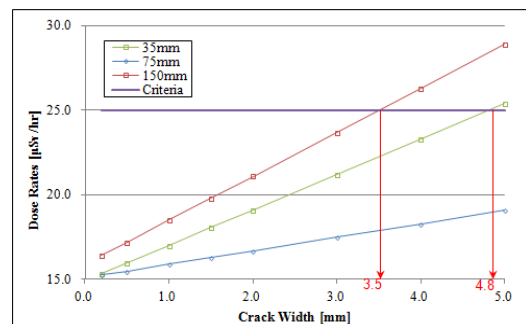


Fig. 3. Prediction of dose rate by crack of silo.

3. 결 론

균열의 진전에 따른 방사선조사시험 결과를 콘크리트 사일로 외부의 균열로 반영하여 예측한 결과, 35 mm 및 150 mm의 균열깊이에서 각각 4.8 mm 및 3.5 mm의 균열크기에서 선량률의 제한치에 도달하는 것으로 나타났다. 그러나 75 mm의 균열깊이에 대한 선량률의 변화는 콘크리트 균열단면 조도의 불규칙성으로 인하여 현저히 낮게 증가하는 경향을 나타내었다.

추후 이와 동일한 시험방법을 이용한 추가시험 및 콘크리트 구조물 노화에 따른 균열진전 등 심도있는 분석을 통하여 콘크리트 사일로의 건전성 평가가 진행되어야 할 것으로 사료된다.

4. 참고문헌

- [1] 한국수력원자력, “사용후핵연료 저장기반기술 개발(최종보고서)”, 2008.02.

방사성폐기물 보관용기 건전성 확보를 위한 비접촉 측정방법

이병일*, 홍용호, 김숙관

(주)엑트, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*byunglee@actbest.com

1. 서론

원자력 이용시설 또는 일반산업 시설을 운영하는 과정에서 불가피하게 발생하는 방사성 또는 강한 독성물질 등을 장기간 보관하거나 운반하는 경우가 종종 있다. 이때, 보관물 상태 또는 보관 환경에 따라 보관용기 전체 또는 일부의 두께가 부식 또는 마모에 의해 균일하지 않게 얇아질 수 있다. 최악의 경우 보관용기에 천공이 생겨 보관하고자 하는 내용물이 외부로 누출되기도 한다. 보관하고 있는 위험 물질의 누출은 산업 발달에 따른 보관 용기와 기간의 증가로 불가피한 측면이 있다. 그러나 독성이 강한 내용물질이 환경으로 누출되는 경우에는 자연과 생태계 파괴는 물론 인체에 까지 악영향을 미칠 수 있다. 그러므로 위험 물질이 외부로 누출될 수 있는 긴급상황을 미연에 탐지하여 위험물질의 누출 가능성을 최소화 하는 것이 매우 중요하다.

보관물질의 누출 원인 중 하나는 보관용기의 불량에 의한 것이다. 보관용기의 불량은 부식 또는 마모 등에 의한 천공을 고려할 수 있다. 천공을 눈으로 확인할 수 있는 정도라면 이미 보관용기 외부로 누출이 발생하고 난 후가 될 것이다. 이런 상황을 방지하기 위하여 천공이 발생하기 전에 천공 발생이 임박한 보관용기를 사전에 발견하는 것이 필요하다.

보관용기에 저장된 물질이 누출되었을 때 인체에 치명적인 해를 끼치는 화학물질 또는 방사능성 물질인 경우, 사람이 직접 보관용기를 눈으로 검사하거나 장비를 이용하더라도 보관용기에 근접하여 검사하는 경우에는 방사선 피폭을 포함한 여러 가지 위급한 상황을 언제든 배제할 수 없다는 문제가 있다.

또한 검사를 수행하여야 하는 보관용기의 수가 상당히 많은 경우, 사람이나 카메라등 육안에 의한 검사는 검사 시간에 따른 막대한 비용이 요구되며 천공이 발생하기 전에는 발견할 수 없다는 단점이 있다.

본 논문에서는 인체 또는 환경에 매우 유해한

물질을 포함한 보관용기의 두께 편차 영상을 얻기 위하여 보관용기에 비접촉식 방식으로 열 에너지를 전달하고 보관용기가 외부로 복사하는 열 에너지를 측정하는 장치와 측정된 신호로부터 두께 편차를 영상화하는 방법을 제안하고자 한다.

2. 본론

2.1 폐기물 보관용기

중 저준위 방사성 폐기물은 일반적으로 원기둥 형태의 드럼에 보관하며 여러 적용기술 기준 요건들을 만족해야한다[1,2,3]. 드럼의 동체 재질은 1.2 mm의 냉간압연 강판을 사용하며 외부와 내부는 일반적으로 방청프라이머(10 μm)+페라민도료(26 μm)와 에폭시도료(15 μm)로 각각 도장된다. 그러나 드럼의 사용목적에 따라 도장의 두께와 안료는 다를 수 있다. 또 이들 드럼은 수압, 기밀, 살수, 압축, 낙하 등의 검사 및 시험요건들을 만족해야한다.

2.2 열적 거동 특성

시간이 지남에 따라 드럼 내부의 저장물과 드럼 용기와의 다양한 물리 및 화학적 상호작용으로 부식, 마모 등의 열화가 발생할 수 있다. 그 결과 드럼 용기의 두께가 불균일하게 변화하며 열전달 계수와 열용량 변화가 일어난다. 이때 드럼 용기에 일정시간 동안 에너지를 인가한 후 자연 냉각시키면 드럼 용기의 온도 역시 증가 후 감소하게 된다. 이때 드럼용기의 온도 변화는 열적 거동 특성 정보를 포함하며 드럼 용기의 열화 정도에 따라 다르게 나타난다.

2.3 측정 장치의 구성

Fig. 1은 본 장치에 따른 비접촉식 두께 편차 측정 장치의 개념도이다. 이 장치는 회전판, 열공급기, 적외선 측정기 등으로 구성된다. 회전판은 상부에 안착된 드럼을 일정한 속도로 회전시킨다. 열공급기는 드럼의 표면에 일정한 양의 열을 공급한다. 적외선 측정기는 드럼 표면을 동일한 크

기의 복수 개의 화소로 구분하고, 각각의 화소의 표면온도를 비접촉 상태로 일정한 시간 동안 연속적으로 측정한다. 이때 시간에 따라 측정된 각각 화소의 표면온도를 식(1)의 수학적 모델에 비선형 회귀분석을 수행하여 α 와 β 를 계산한다. 이들의 영상은 드럼의 두께 변화에 대한 정보를 포함하게 된다.

$$T(t) = \alpha(i) \exp[-\beta(i) \times t] \quad (1)$$

이때 열공급기에 의한 에너지 전달 방법은 연속적, 주기적 및 임펄스식 공급 중 하나의 형태를 선택할 수 있다. 어떠한 형태로 열을 공급하더라도, 드럼 표면에 동일한 열에너지가 공급되도록 하는 것이 중요하다. 이 방법은 드럼 표면이 다른 물질의 여러 겹으로 구성되었다라도 각각의 겹이 2차원으로 균일하다고 가정하면, 용기의 두께가 동일할 경우 열 전달능력, 또는 열적 거동 특성의 변화가 동일하다는 사실을 전제하고 있다. 보관용기의 표면에 동일한 에너지를 공급한 후, 일정시간 동안 보관용기 표면의 열적 거동 특성의 편차 검출을 통해 두께 변화를 예측할 수 있다.

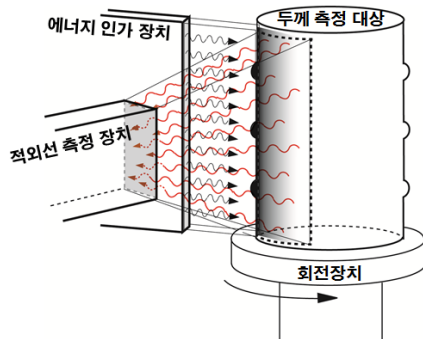


Fig. 1. Non-contact measurement system for the container thickness change.

2.4 영상복원 방법

Fig. 2는 본 발명에 따른 비접촉식 두께 편차 영상화 개념도이다. Fig. 2(a), (b), (c)는 각각 보관용기의 사시도, 보관용기의 일부를 복수 개의 화소로 구분한 것이고, 복수 개의 화소의 일부에 부여한 고유번호를 나타낸다. Fig. 2(d)는 Fig.(c)에 도시된 세 개의 화소에서 측정된 시간에 따른 표면온도와 이들에 대한 비선형 회귀분석 결과이다.

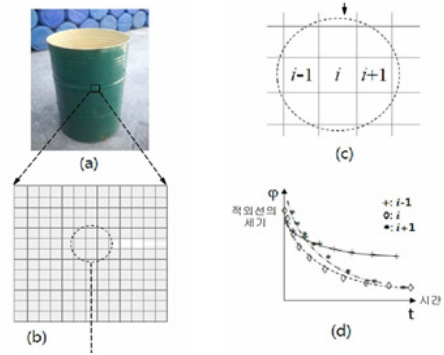


Fig. 2. Imaging concept.

같은 방법으로 측정하고자 하는 영역의 각 화소에서 측정된 시간에 따른 온도에 대하여 비선형 회귀분석을 실시하면 각 화소에서의 α 와 β 를 구할 수 있고, 결국 α 와 β 에 대한 영상화가 가능하다

3. 요약 및 향후과제

본 논문에서 위험물 보관용기의 건전성 중 하나인 두께 변화를 비 접촉으로 측정하는 방법을 제안하였다. 이 기술은 위험물 보관 용기의 두께 변화 뿐 아니라 사람이 접근하기 어려운 고 방사능 또는 좁은 영역에 위치한 기기 내부의 구조물 등의 부식, 마모, 열화 등에 의한 건전성 평가에 적용할 수 있다.

향후 유한요소법에 의한 열전달 모델을 이용하여 수치적 시뮬레이션을 수행할 예정이다. 이 시뮬레이션에서는 적외선 측정 장치 정밀도에 따라 두께변화의 측정 한계를 제시하고자 한다. 또한 열전달 방정식에 기초하여 열적 특성 변화와 두께 변화와의 정량적 관계 해석을 통해 보다 정밀한 두께 변화를 영상화하고자 한다.

4. 참고문헌

- [1] 원안위고시 제2013-27호 “방사성물질의 포장 및 운반에 관한 규정”.
- [2] 10 CFR 71 Packing and Transportation of Radioactive Materials.
- [3] 한국산업규격(KSA 1603, KSD 3506, KSD 35163).

사용후핵연료 21다발 운반용기 장전형태에 따른 선량을 비교 연구

이우교¹, 이준훈¹, 김이수¹, 김순영^{1*}, 김태만², 백창열²

¹(주)래드코어, 대전광역시 유성구 테크노중앙로 65

²한국원자력환경공단, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*sykim@radcore.co.kr

1. 서론

국내 원전에서 배출된 사용후핵연료가 원전 습식 저장고에 점차 포화되고 있어 일단 중간저장시설로 운반하여 저장하는 방안이 모색중이다. 이에 따라 운반, 저장용기 및 중간저장시설에 대한 다양한 연구가 진행되고 있으며, 21다발 운반용기에 대한 개념 설계가 끝난 단계이다.

사용후핵연료를 중간저장시설로 운반하기 위하여 운반용기에 장전하는 형태에 따라 방사선량률이 달라질 수 있으며, 특히 용기 표면 및 2 m 지점에서의 선량률은 운반 및 중간저장시설에 종사하는 작업자 피폭선량에 관계되므로 중요한 사항이다.

본 연구에서는 개념 설계된 21다발 금속용기[1]에 장전되는 사용후핵연료 장전형태에 대하여 표면 및 2 m 거리에서의 선량률을 MCNP로 계산하였다.

2. 본론

2.1 선원항 계산

본 연구에 사용된 사용후핵연료는 현재까지 가장 많이 배출된 WH형 집합체를 선정하였다. 운반용기에 장전되는 집합체는 연소도 5000 MWd/MTU, 냉각기간 1000일을 기준으로 분류한 3900 개를 대상으로 난수를 발생시켜 21다발을 선정하였다. 선정된 21다발은 WH14X14 3개, WH16X16 4개 WH17X17 14개로 Table 1에 나타내었다. 21다발에 대한 감마방사선 강도는 ORIGEN-ARP[2]를 사용하여 계산하였고 Table 1에 나타내었다.

2.2 운반 용기

개념 설계된 21다발 금속용기는 용기 본체와 외부 중성자 흡수재 레진으로 구성되어 있으며, 기준 핵연료(4.5wt%, 45000 MWd/MTU, 냉각기간 10년) 21다발이 장전되었을 때 용기 표면 및 2 m

지점에서의 선량 제한치를 만족한다. Fig. 1은 개념 설계된 21 다발 금속 운반용기를 나타낸 것이다.

Table 1. Burnups, Cooling Times, and Calculated Gamma Intensities per Assembly for the 21 Assemblies

번호	집합체	연소도 (MWd/MTU)	냉각기간 (일)	강도 (Photon/s)
1	WH17X17	15000	10000	6.42E+14
2	WH17X17	15000	9000	6.85E+14
3	WH16X16	20000	7000	9.80E+14
4	WH14X14	35000	11000	1.31E+15
5	WH17X17	30000	8000	1.49E+15
6	WH17X17	30000	8000	1.49E+15
7	WH14X14	35000	9000	1.50E+15
8	WH17X17	30000	7000	1.60E+15
9	WH16X16	30000	5000	1.74E+15
10	WH16X16	35000	7000	1.74E+15
11	WH17X17	35000	7000	1.85E+15
12	WH17X17	40000	7000	2.11E+15
13	WH17X17	40000	7000	2.11E+15
14	WH17X17	40000	7000	2.11E+15
15	WH17X17	40000	6000	2.28E+15
16	WH17X17	40000	6000	2.28E+15
17	WH17X17	45000	7000	2.35E+15
18	WH17X17	45000	7000	2.35E+15
19	WH14X14	45000	6000	2.36E+15
20	WH16X16	45000	5000	2.59E+15
21	WH17X17	45000	5000	2.78E+15

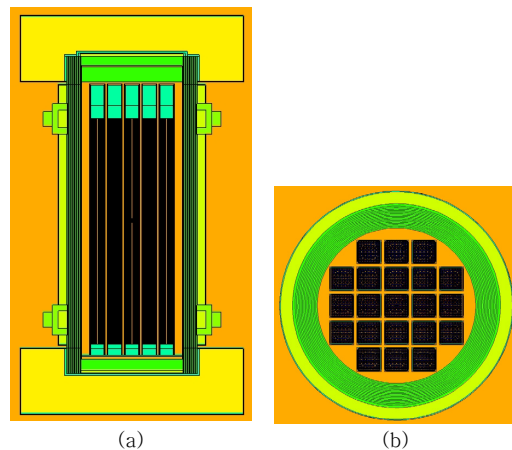


Fig. 1. MCNP Modeling of Transport Cask (a) Front View and (b) Top View.

2.3 사용후핵연료 장전형태

개념 설계된 21다발 금속용기에 대한 장전형태는 감마방사선 강도순에 따라 배열하는 것을 원칙으로 하였다. Fig. 2는 21다발 사용후핵연료 감마방사선 강도에 따른 장전형태를 나타낸 것이다.

그림에서 보는바와 같이 case1은 21다발을 감마방사선 강도순에 따라 강도가 큰 다발을 바깥부분에 장전하고 작은 다발을 가운데 부분에 장전하였다. Case2는 case1과 반대로 강도가 큰 다발을 가운데 부분에 장전하고 작은 다발을 바깥부분에 장전하였다. 그리고 case3, case4 및 case5는 난수를 발생시켜 순서에 따라 21다발을 장전하였다.

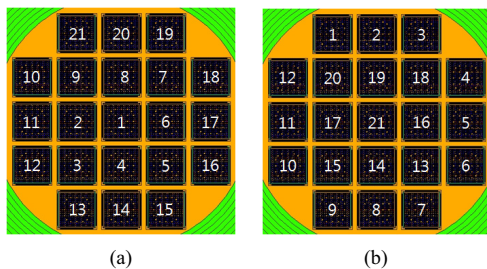


Fig. 2. Cases of the Loading Patterns for the Transport Cask (a) Case1 and (b) Case2.

2.4 21다발 용기 방사선 차폐 결과

차폐 계산에 사용된 선원항은 선량률에 가장 많은 영향을 주는 감마방사선만 계산에 적용하였고, 장전형태 case1 ~ case5에 따라 장전된 21다발 운반용기에 대한 방사선 차폐 결과는 Table 2에 나타내었다. 이는 사용후핵연료 유효길이의 중간 높이에서 계산된 결과 값이다.

Table 2. Calculated Dose Rates at Surface and 2 m from Transport Cask for the 5 Cases of Loading Pattern

Case	Surface		2 m	
	mSv/h	R.E.*(%)	mSv/h	R.E.*(%)
Case 1	1.31E-01	6.84	2.64E-02	5.17
Case 2	7.30E-02	9.95	1.66E-02	5.72
Case 3	9.65E-02	7.38	2.09E-02	5.17
Case 4	1.10E-01	7.27	2.40E-02	5.33
Case 5	9.40E-02	9.33	2.00E-02	5.47

* R.E. = $\frac{\hat{\sigma}}{\hat{x}}$, 여기서 $\hat{\sigma}$ 는 표준편차, $\hat{x}$ 는 평균임

Table 2에서 보는바와 같이 장전형태 case2로 장전되었을 때 2 m 지점에서 선량률은 case1에 대한 선량률의 약 60% 정도로 나타났다. 또한,

case3, case4 및 case5와 같이 난수를 발생시켜 장전되었을 때 2 m 지점에서 선량률은 case1에 대한 선량률의 약 75% ~ 90% 정도로 나타났다.

사용후핵연료 운반 작업에 종사하는 작업자가 하루 4시간, 1주에 3번, 일년에 40회 작업할 경우, 장전형태 case1에 대하여 2 m 지점에서 예상피폭 선량은 12.7 mSv로 나타났고, case2에 대한 작업자 예상피폭선량은 7.96 mSv로 case1에 대하여 약 40% 정도 저감됨을 알 수 있다.

3. 결론

본 연구에서는, 개념 설계된 21다발 사용후핵연료 운반용기에 장전형태를 달리하여 용기 표면 및 2 m 지점에서 선량률을 MCNP로 계산하였다.

Case1인 경우 2 m 지점에서 선량률은 0.026 mSv/h로 가장 높게 나타났고, case2의 경우 2 m 지점에서 선량률이 0.017 mSv/h로 case1에 대하여 약 40% 낮게 나타났다. 난수에 따라 장전된 case3 ~ case5의 경우, case2에 대하여 약 1.2배 ~ 1.5배 정도 높게 나타났다.

21다발 운반용기에 장전되는 사용후핵연료의 장전형태에 따라 용기 표면 및 2 m 지점에서의 선량률이 달라지므로, 연소도 및 냉각기간에 대하여 장전형태 적용 시 작업자 피폭선량을 낮추는데 효과가 있을 것으로 사료된다.

4. 감사의 글

본 연구는 통상자원부 방폐물관리기술훈개발 중장기 기획사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] 김순영, 이우교, 김이수, 차길용, 임현경, "사용후핵연료 운반용기 임계 및 차폐 예비안전성 연구", KAERI/CM-1731/2012, 2012.
- [2] S. M. Bowman and L. C. Leal, "ORIGEN-ARP: Automatic Rapid Processing for Spent Fuel Depletion, Decay, and Source Term Analysis", Oak Ridge National Laboratory, Vol. 1, ver. 6, 2000.

사용후핵연료 저장조 냉각기능 상실사고시 피복관 공기중 산화거동 연구

김전기*, 방제건, 전태현, 구양현

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*kimsk@kaeri.re.kr

1. 서론

Zircaloy-4 핵연료 피복관의 산화거동을 규명하기 위한 연구는 주로 원자로내 냉각수상실사고(LOCA)와 같은 설계기준사고 조건에서의 고온의 수증기 분위기에서 수행되어 왔으며, 이에 대한 많은 연구결과들이 발표되어 왔다. 그러나 공기분위기에서의 산화에 대한 연구는 사용후핵연료의 건식저장 조건에서 사용후핵연료의 열화를 규명하기 위한 연구를 위해 주로 사용해 왔으며, 건식저장 조건 특성 상 상대적으로 낮은 400℃~600℃ 온도 범위에서 주로 연구가 수행되어 왔기 때문에, 사고 특성 상 고온의 조건에 도달하는 사용후핵연료 저장조 냉각기능 사고의 특성상 고온의 공기중 산화에 대한 시험자료는 필수적이라 할 수 있다. 그러나 후쿠시마 사고 이후 일부 이에 대한 연구에 관심이 집중되면서 일부 연구가 수행되었을 뿐 다양한 조건에서의 체계적이고 방대한 시험DB는 매우 부족한 실정이다.

공기중에서의 산화거동을 규명하기 연구는 1970년대 초 Evans 등[1]이 1050℃ 이상에서 산화과정이 산소와 질소에 의해 강한 영향을 받는다는 연구결과를 발표하였으며, 이후 Leistikov와 Berg(1987)[2]는 750~1250℃ 온도범위에서 Zircaloy 합금의 산화에 nitride가 지배적인 영향이 있음을 증명하였다. 그러나 zirconium nitride가 Zircaloy-4 피복관의 산화에 미치는 정확한 역할에 대해서는 거의 증명이 되지 않았다. 또한 이때까지 대부분의 연구결과들은 as-received Zircaloy-4 피복관을 대상으로 수행된 시험결과들이었다. 산화된 피복관을 대상으로는 2000년대 초에 미국 ANL에서 연구가 수행된 바 있으며, 국내에서는 고온에서 공기분위기에서의 산화시험은 거의 수행되지 않았으며 일본 후쿠시마 원전사고 이후 이에 대한 연구가 수행되고 있다. 사고시 고온 공기분위기에서의 피복관 산화는 재료의 취화와 열화와 밀접하기 때문에 파손과 직결되는 중요한 현상이며, 이러한 열화속도를 정확히 예측할 필요가 있다.

이에 본 연구에서는 저장수조의 냉각기능 상실사고를 가정하여 공기 중에 사용후핵연료봉이 노출되는 경우의 공기 중 산화거동과 산화속도를 도출하고자 한다.

2. 실험방법

2.1 실험방법

저장조 냉각기능 상실사고시 가능한 시나리오 가운데 분당 50℃의 속도로 온도가 상승한다고 가정하고, 온도 상승 과정 및 등온과정에서 600~1400℃ 온도영역에서 각 온도별로 공기분위기에서의 공기와의 노출시간에 따른 무게증가(weight gain) 거동을 TGA를 이용하여 실시간으로 측정하였다.

2.2 실험결과

공기중에서의 Isothermal 초기 산화시험 결과를 Fig. 1에 나타내었다. 제시된 그래프의 경우 초기 거동을 보기 위해 전체 산화시간의 초기 구간에서의 거동만을 제시하였는데, 시간에 따라 산화속도가 다소 느려지는 거동을 보여주었다. 고온에서의 공기중산화에 대한 이러한 초기거동은 기존에 보고된 바와 같이 고온의 수증기산화 거동과 마찬가지로 산화속도지수가 대략 2에 가까운 2차속도법칙을 따르는 것으로 나타났다. 다시 말해, 공기와의 산화반응시간에 따른 무게증가거동은 공기와의 노출시간에 따라 초기에 반응속도가 감소하는 거동을 보여주었으며, 산화시간에 4배가 될 경우 산화량은 약 2 배를 보여주었다.

2차속도법칙을 따르는 산화거동에 따라 Arrhenius plot을 통해 반응속도식을 도출하였다. 그 결과, 본 연구에서 수행한 600~1,400℃ 영역에서 1개의 직선으로 표현되지 않고, 기울기를 다른 2개의 직선으로 fitting하는 것이 적합한 것으로 나타났다. 이는 주어진 온도 영역에서 1개의 반응 mechanism만이 작용하는 것이 아니라 2개의 반응 mechanism이 작용함을 의미하며, 따라서 각 온도 영역에서 2개의 반응속도식을 도출해야

함을 의미한다. 따라서 상대적으로 저온 영역인 600~1,000℃ 구간에서의 직선의 기울기와 상대적으로 고온 영역인 1,100~1,400℃ 구간에서의 직선의 기울기가 서로 다른 2개의 직선으로 나타낼 수 있다. 기존 연구[3-4]에서는 본 연구에서의 온도 구간에서 1개의 식으로 혹은 2개의 식으로 또는 3개의 식으로 산화속도를 도출함으로써 연구자들마다 다른 approach를 하고 있다.

본 연구에서 수행한 Zircaloy-4 피복관의 공기중 산화반응에 대한 Parabolic rate constant를 다음과 같이 도출하였다.

$$k=97.51\exp(-109,524/RT) \quad (873K<T<1373K) \quad (kg/m^2s^{1/2})$$

$$k = 0.69\exp(-46,365/RT) \quad (1373<T<1673K) \quad (kg/m^2s^{1/2})$$

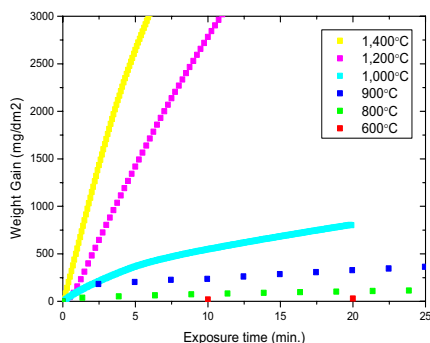


Fig. 1. Air oxidation behaviors of Zircaloy-4 cladding.

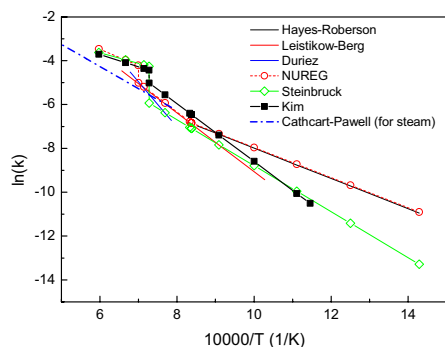


Fig. 2. Arrhenius plot for air oxidation kinetics of Zircaloy-4.

3. 결론

본 연구에서는 다음과 같은 주요 결론을 도출하였다.

첫째, Zircaloy-4 피복관의 공기와의 산화반응시간에 따른 산화거동은 2차함수에 가까운 무게증가 거동이 나타나며 그 후 특정시점을 지나 반응속도가 증가하는 천이현상이 나타난다.

둘째, Zircaloy-4 피복관의 공기중 반응속도는 600~1,400℃ 영역에서 두 개의 온도 영역에서 각각의 산화반응식을 도출하였다.

4. 참고문헌

- [1] E.B. Evans et al., Critical role of nitrogen during high temperature scaling of zirconium, in: Proceedings of the Metallurgical Society of AIME Symposium on High Temperature Gas - Metal Reactions in Mixed Environments, Boston, 9 - 10 May 1972.
- [2] S. Leistikow, H.V. Berg, Investigation under nuclear safety aspects of Zircaloy-4 oxidation kinetics at high temperatures in air, in: Proceeding of the 2nd Workshop of German and Polish Research on High Temperature Corrosion of Metals, Julich, 2 - 4 December 1987.
- [3] M. Steinbrück, M. Böttcher, Air oxidation of Zircaloy-4, M5₁ and ZIRLOTM cladding alloys at high temperatures, Journal of Nuclear Materials 414, 276 - 285(2011).
- [4] C. Duriez a., T. Dupont, B. Schmet, F. Enoch, Zircaloy-4 and M5 high temperature oxidation and nitriding in air, Journal of Nuclear Materials 380, 30 - 45(2008).

4분과

방사선환경 및 안전(Poster)

KOREAN RADIOACTIVE WASTE SOCIETY

원전에서 발생하는 기체 유출물의 ^{14}C 채취 및 측정방법 조사연구

김지현^{1*}, 서현석¹, 전관식¹, 박상훈¹, 김성일²

¹(주)라드웍스, 대전광역시 유성구 대덕대로 530 첨단상가 다308호

²한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 과학로 62

*jhkim9775@gmail.com

1. 서론

^{14}C 은 5,730년의 반감기를 갖고 β 붕괴(최대에너지 156 keV)를 하는 방사성핵종이며, 대기권 위에서 자연적으로 계속 생성되는 것을 제외하고 원자력발전소 운영에 의해 발생되고 있다. 이러한 ^{14}C 의 긴 반감기, 환경적 이동성 및 생물체로의 흡수 용이성 때문에 원자력시설로부터 ^{14}C 의 방출 속도 뿐만이 아니라 생성속도에 대한 지식의 필요성을 인식하고 있다[1]. 원자력발전소에서 발생하는 직접적인 ^{14}C 방출은 기체 및 액체 상태로 방출 되고 있으나, Regulatory Guide 1.21[2]에 따르면 액체 유출물의 ^{14}C 선량기여도가 기체 유출물에 의한 것보다 훨씬 낮기 때문에 액체 유출물의 ^{14}C 평가를 따로 요구하고 있지 않다. 본 논문에서는 원자력발전소에서 발생하는 기체 유출물 중 ^{14}C 의 다양한 화학종에 따른 채취방법과 ^{14}C 의 측정방법을 조사하였다.

2. 본론

2.1 ^{14}C 발생원

^{14}C 은 핵연료, 핵연료 피복관, 냉각재, 감속재 및 원자로의 구조물 내에 존재하는 탄소, 질소 및 산소 동위원소의 중성자유도반응을 통하여 주로 모든 원자로에서 생성된다[1]. 특히 원자력발전소에서 방출되는 ^{14}C 은 대부분 원자로냉각재에서 생성된 것으로 냉각재 내의 산소 및 질소 불순물에 의한 영향에 기인한다.

2.2 ^{14}C 채취방법

원자력발전소에서 발생하는 기체 유출물 중에 포함된 ^{14}C 은 주로 무기탄소(즉, CO_2)와 유기탄소(즉, CO , C_nH_m , 그 외 탄소화합물 등)의 혼합물로 존재하며, 이들을 분리하여 채취하는 것이 주요 핵심이다. 크게 NaOH 용액이 들어 있는 bubbler 또는 molecular sieve를 이용한 채취방법을 들 수 있다 [3].

NaOH bubbler를 이용한 ^{14}C 채취방법은 기체 유출물을 NaOH 용액에 통과시켜 Na_2CO_3 로 침출시켜 포집한다.

Molecular sieve를 이용한 ^{14}C 채취방법은 제올라이트와 같은 나노크기의 세공을 갖고 있는 molecular sieve에 모든 화학종의 ^{14}C 을 물리적으로 흡착한 후 이를 가열하여 다시 탈착시킨 ^{14}C 을 $\text{Ba}(\text{OH})_2$ 용액에 침전시켜 BaCO_3 로 포집한다.

기체 유출물은 무기탄소 및 유기탄소의 혼합물로 구성되어 위와 같은 ^{14}C 채취방법을 통하여 각 화학종을 분리할 때에는 먼저 무기탄소를 NaOH 또는 $\text{Ba}(\text{OH})_2$ 용액에 포집하고, 유기탄소는 후단에 설치된 pt/pd 또는 CuO 등의 산화촉매관을 통과시켜 무기탄소로 모두 전화시킨 다음 각 용액에 흡수시킴으로써 두 가지 화학종을 분리하여 채취한다[3].

Table 1. Comparison of ^{14}C sampling methods used at korean and abroad nuclear power plants

원전	채취방법	분석주기
국내 원전	bubbler type	4 weeks period
Ringhals (스웨덴)	bubbler type	2 weeks period
Isar 2 (독일)	bubbler type	quarterly
Grafenrheinfeld (독일)	molecular sieve type	quarterly
Neckarwestheim 2 (독일)	molecular sieve type	quarterly
Philippsburg 2 (독일)	bubbler type	4 weeks period
Biblis B (독일)	molecular sieve type	quarterly

국내 및 해외 원전에서 사용하고 있는 ^{14}C 채취방법을 조사하여 Table 1에 나타낸 결과에 따르면[4], 독일 원전의 경우는 대부분 molecular sieve 채취방법을 채택하고 있는 반면, 우리나라와 스웨덴은 NaOH bubbler 채취방법을 채택하고 있

음을 알 수 있다. 그리고 분석주기는 각 원전의 특성에 따라 결정하고 있는 것으로 판단된다.

2.3 ^{14}C 측정방법

화확종을 분리하여 채취한 ^{14}C 의 양을 측정하는 방법은 gas proportional counting(GPC), liquid scintillation counting(LSC) 및 accelerator mass spectrometry(AMS) 방법으로 구분된다[3].

GPC 방법은 초기의 방사성탄소 연대측정방법으로 측정 전에 탄소를 CO_2 기체로 전환하고 5~7.5 ℓ의 비레관을 사용하여 $^{14}\text{CO}_2$ 에 대해서 90% 이상의 효율과 0.1 cpm 백그라운드를 얻을 수 있다.

LSC 방법은 현재 대부분의 실험실에서 도입하여 사용되고 있으며, 일상적으로 80%이상의 효율과 5 cpm 백그라운드가 가능하다. 섬광혼합용액은 측정샘플의 형태와 사용된 용기에 따라 다르게 분말 상태의 샘플에 산을 떨어뜨려 CO_2 를 발생시키고 이를 CO_2 흡수제에 흡수시킨 후 섬광체와 혼합 측정하는 직접흡수법과 포집용액과 섬광체를 직접 혼합하여 측정하는 직접혼합법이 있다. 이 방법은 AMS 방법에 비하여 측정시간이 짧고 또한 측정비용이 저렴한 장점을 갖고 있다.

AMS 방법은 위에 언급한 2가지 측정방법과 달리 베타입자를 측정하는 것이 아니라 탄소원자의 수와 동위원소와의 비율을 직접적으로 측정한다. 이 방법은 매우 적은 양의 샘플에 대부분 사용하기 때문에 희귀하거나 귀중한 샘플인 경우에 유용하며, 높은 고정밀도를 요구하는 경우에 적합하다.

2.3.1 ^{14}C 측정방법의 추이[5-6]

William F. Libby가 최초로 개발한 방사성탄소 연대측정방법은 방사능을 측정하여 고체샘플의 양을 분석하는 것이었다. 이 방법은 곧바로 GPC 방법이 개발되면서 대체되었다. 그리고 1950년에 ^{14}C 방사능을 측정하기 위해 LSC 방법이 고안되었으나 효율적인 벤젠합성 방법이 개발되기까지 GPC 방법이 주로 사용되었다. 1970년대 이후로는 LSC 방법이 더 일반화되어 앞에 언급된 방법들보다 더 효과적이며 널리 사용되고 있다. 그리고 가장 최근에 개발된 AMS 방법은 가장 향상된 최신 방사성탄소 연대측정방법으로 알려져 있다.

그리고 EPRI 기술보고서[4]에 따르면, GPC 방법은 Kunz 등이 1974년에 Ginna, Indian Point 1과

2 PWR에서의 ^{14}C 을 측정하는데 이용하였고, 또한 Kunz 등이 1976년에 Nine Mile Point 1 BWR에서의 ^{14}C 을 측정하는데 이용하였다. 그 이후로 LSC 방법은 Hays 등이 1977년에 Savannah River HWPR에서의 ^{14}C 을 측정하는데 이용하였고, Kunz는 Fitzpatrick BWR 그리고 Indian Point 3 및 Ginna PWR에서의 ^{14}C 을 측정하는데 이용하였다.

3. 결론

본 논문에서는 원전으로부터 발생되는 기체 유출물에 포함된 ^{14}C 에 대한 채취방법을 조사하였다. 그리고 국내 및 해외 원전에서 실제로 도입하고 있는 ^{14}C 채취방법을 비교한 결과 독일에서는 NaOH bubbler 또는 molecular sieve 채취방법을 모두 채택하고 있는 반면, 우리나라와 스웨덴은 NaOH bubbler 채취방법을 채택하고 있는 것을 확인하였다.

그리고 채취된 ^{14}C 에 대한 측정방법 및 이러한 측정방법들의 추이를 조사한 결과, 초창기에는 GPC 방법으로 ^{14}C 을 측정하였으나 1970년대 후반 이후로는 LSC 방법이 널리 사용되고 있음을 확인하였다.

4. 참고문헌

- [1] Magnusson, Carbon-14 Generated by Nuclear Power Reactors - Investigations Including Ion Exchange Resins and Environmental Samples, 2005.
- [2] Regulatory Guide 1.21, Measuring, Evaluating and Reporting Radioactive Material in Liquid and Gaseous effluents and Solid Waste, 2009.
- [3] IAEA-TRS-421, Management of Waste Containing Tritium and Carbon-14, 2004.
- [4] EPRI-TR-1021106, Estimation of Carbon-14 in Nuclear Power Plant Gaseous Effluents, 2010.
- [5] <http://voices.yahoo.com/radiocarbon-dating-overview-1796627.html>
- [6] http://en.wikipedia.org/wiki/Radiocarbon_dating#Measurement

사무공간에서 방출되는 라돈/토론가스 측정 및 분석

주명훈*, 송미숙, 임성규, 김현도, 안창석, 장동철, 서승범

한일원자력(주), 경기도 안양시 만안구 덕천로 45

*smsdr@hanilnuclear.co.kr

1. 연구배경

라돈은 지반, 용수, 건축재료, 가스, 옥외 공기 등 방출되는 경로는 다양하며, 그 중 지반에서 방출되는 라돈이 압도적이다. 시멘트, 콘크리트는 건축 재료로 다양하고 폭넓게 사용되고 있으며 특히 최근에는 별도의 마감재를 생략한 채 콘크리트 벽체를 노출한 인테리어도 늘어나는 추세이다. 또한 에너지 절감을 위한 내장재 사용이 증가함에 따라 외부와의 환기시간도 작아지며 이는 실내 라돈농도 증가의 원인이 되고 있다. 라돈의 실내 유입의 주된 원인은 사무공간 천정 마감재로 널리 사용되는 라텍스 석고보드 자체와 균열에 의한 유입, 일반 벽지의 손상된 부분과 벽지로 마감 처리된 내부 콘크리트 벽의 균열점 등 다양한 것으로 파악되고 있다. 사무실 내 책상, 책장 등 목재로 만들어진 물건들 및 공기의 흐름이 제한되어있는 밀폐구역 또한 라돈 농도의 증가 및 주 유입원이라 할 수 있다. 따라서 여러 형태의 공간 및 가구배치 등을 고려하여 사무공간 내 총 12포인트를 Fig. 1에 나타난 바와 같이 설정하여 알파비적수동형 검출기인 라듀엣(Raduet)을 설치하여 2013년 12월부터 2014년 3월까지 라돈 농도를 측정된 다음 회수하여 각각의 포인트별 라돈농도를 라도시스(Radosys, Hungary) 자동 측정계수장치를 사용하여 측정 하였다.

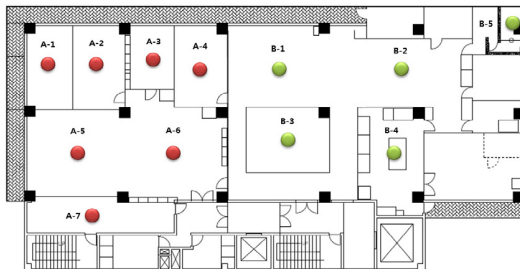


Fig. 1. Set Raduet position in Office.

2. 실험방법

2.1 알파비적 수동형 검출기 특징

본 실험에 사용된 알파비적 수동형 검출기는 헝가리 라도시스사에서 개발하였고 일본 NIR에서 개량한 라돈/토론 검출기를 사용하였다. 토론 농도는 라돈, 라돈+토론을 측정한 후 라돈+토론에서 라돈농도를 감하는 방법으로 산출하였다. 토론 역시 천연방사성핵종이며 라돈과 마찬가지로 인체에 영향을 주는 알파 입자를 방출한다. 하지만 반감기가 매우 짧아 라돈 붕괴 시 방출되는 알파입자만큼 영향을 미치지 않는다. 본 실험에서는 측정된 토론의 농도 값을 전체 측정 농도에서 제외시켜 순수한 라돈만의 농도 값만 적용 하였다.



Fig. 2. Raduet passive-type detector.



Fig. 3. Radosys: Auto counting for Radon & Thorium.

2.2 알파비적 수동형 검출기 설치 및 분석

라듀엣은 라돈의 밀도 및 공기의 흐름을 고려하여 바닥으로부터 1.2~1.5 m 떨어진 곳과 창문에서 최소 50 cm 떨어진 지점 중 12포인트를 선정하여 설치하였다. 설치기간인 12월부터 3월까지 약 3개월 동안 사무실내 온도는 8~20℃, 습도는 15~40%를 유지하였다. 공기의 흐름은 온풍기의 영향으로 전체적으로 순환되었으며, 환기는 주중 2~3회 약 10~15분간 아침시간에 실시하였다.

측정이 끝난 검출기는 바로 회수하여 검출기내 CR-39칩을 분리한 후 CR-39칩 슬라이드 검출기

홀더에 삽입시키고 믹서틀에 고정시켰다. 미리 준비한 에칭 중탕기(Eching Bath)에 6.25M NaOH의 에칭용액을 채운 후 슬라이드 홀더를 포함한 믹서틀을 중탕기에 넣고 90℃에서 4.3시간 동안 화학적 에칭을 하였다. 에칭이 끝난 후 CR-39칩이 더 이상 화학적 반응을 멈추기 위해 20분 동안 약 1% 초산 용액에서 중화한 후 깨끗한 곳에서 하루 동안 상온 건조시킨 뒤 라도시스 측정장비로 비적(Track)을 계수하였고, 측정된 비적은 다시 방출율로(Bq/m³) 환산하여 라돈 농도(pCi/L)를 산출하였다.

3. 실험 및 결과

Table 1은 각 설치 지점별 라돈 측정값을 나타낸 것이며 이 값에 대한 그래프를 Fig. 4와 Fig. 5에 나타내었다. 그리고 Fig. 6는 도면에 라돈가스 농도를 나타낸 값이다.

Table 1. Radon concentration in office

# room	Radon		Thoron	
	Bq/m ³	pCi/L	Bq/m ³	pCi/L
A-1	46.21±7.64	1.25±0.21	¹ n	n
A-2	49.42±8.37	1.34±0.23	18.53±24.72	0.50±0.67
A-3	30.24±5.18	0.82±0.14	n	n
A-4	34.80±6.33	0.94±0.17	n	n
A-5	13.99±3.00	0.38±0.08	8.24±9.40	0.22±0.25
A-6	10.81±2.73	0.29±0.07	5.57±8.73	0.15±0.24
A-7	32.64±6.30	0.88±0.17	23.10±19.72	0.62±0.53
B-1	10.51±2.61	0.28±0.77	11.59±8.75	0.31±0.24
B-2	12.81±3.11	0.35±0.08	11.42±10.03	0.31±0.27
B-3	24.34±4.77	0.66±0.13	2.83±14.05	0.08±0.38
B-4	19.13±3.94	0.52±0.11	n	n
B-5	28.32±4.77	0.77±0.13	n	n

¹n: none detect

각 지점별 라돈측정값은 대체적으로 권고치 미만의 값을 보였다. 하지만 비교적 라돈농도가 높게 측정된 지점은 사람이 거의 체류하지 않으며 공기순환이 거의 없는 곳이다. 토론의 경우 검출되는 곳과 검출되지 않는 곳의 토론 검출에 대해 특이점은 찾을 수 없었다. 이번 실험에 사용된 Raduet이외의 대부분의 수동형 검출기는 라돈과 토론이 동시 측정되기 때문에 라돈농도의 측정결과와 과대평가의 원인이 될수 있다고 판단된다. 따라서 정확한 라돈농도의 측정을 위해서는 라돈과 토론을 분리하여 측정하는 것이 바람직할 것으로 판단된다.

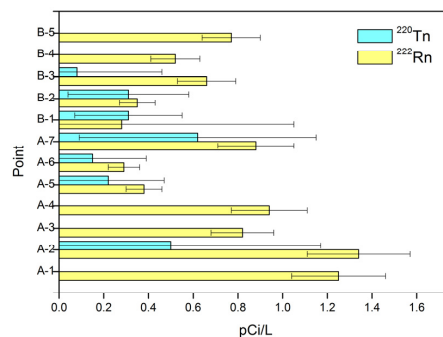


Fig. 4. Results of Radon concentration(Bq/m³).

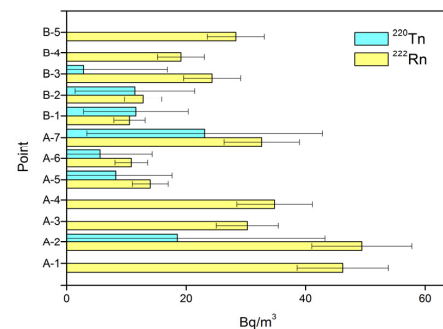


Fig. 5. Results of Radon concentration(pCi/L).



Fig. 6. Radon concentration in office (pCi/L).

4. 결론

본 실험 결과에서 사무실 공간에 방출되는 라돈과 토론 농도를 측정하였으며, 그 결과 권고치 4pCi/L 미만으로 나타났다. 라돈의 농도변화는 여러 요인에 의해 수시로 발생할 수 있으며 직무상 피폭의 발생이 가능한 건물, 공간 등에 대해서는 주기적인 라돈농도 측정 및 유입원의 차단을 위한 보수 등이 꾸준히 이루어져야 할 것으로 판단된다.

5. 참고문헌

- [1] A.Guhr, Architektenkammer Niedersachsen.
- [2] Radosys User manual, Radosys, Hungary.
- [3] ICRP 115, Lung Cancer Risk from Radon and Progeny and Statement on Radon.
- [4] Radon project report, WHO, 2005.

NaI(Tl) 방사선수송 코드설계와 전력밀도 이론적 산출

주명훈*, 송미숙, 임성규, 김현도, 안창석, 장동철, 서승범

한일원자력(주), 경기도 안양시 만안구 덕천로 45

*jooz81@hanilnuclear.co.kr

1. 연구배경

NaI(Tl)은 고체 무기섬광체로써 감마핵종분석 용으로 널리 사용되고 있다. 또한 항만, 공항등에 설치하여 운영중인 관문형 모니터에 사용 중인 고체섬광체 PVT(Polyvinyl toluene)와 병행하여 사용되어지기도 한다. 고체 무기섬광체의 광자 발생율에서 PVT는 MeV당 발생하는 광자수가 약 55,000개로 NaI(Tl)의 38,000개와 비교하여 광자 발생수가 많다. 광자의 수는 PMT(photo multiplier tube), SiPM(silicon photo multiplier)등으로 증폭하여 전류, 전압으로 전환시키기 때문에 중요하다. 현재 관문형 모니터 등에 사용되는 PVT는 방사성 물질의 탐지시 사용되며 탐지된 방사성물질의 핵종분석에 사용하기에는 분해능이 나쁜 단점이 있다. NaI(Tl)는 비록 PVT에 비해 가격이 고가이나 상대적으로 높은 분해능을 가지고 있어 핵종분석이 필요한 관문형 모니터에 점차 도입되고 있는 추세이다.

본 논문에서는 관문형 모니터에 사용되는 NaI(Tl) 검출기 크기를 방사선 수송해석 프로그램(MCNP 2.5.0)를 통해 시뮬레이션 하였다. 방사선은 NaI(Tl)를 통과 시 상호작용을 통해 425 nm 파장의 광자를 방출한다. 이때 NaI(Tl)에서 발생하는 광자수를 변환하여 이론적으로 생성되는 전력 밀도를 계산하였다. ANSI N42.38-2006 (for Spectroscopy Based Portal Monitors Used for Homeland Security)의 미국국토안보부에서 사용되는 분광학 기반의 관문형 모니터에 대한 성능기준에서 Reference gamma-ray radiation인 16 μ Ci의 ¹³⁷Cs선원을 모델로 사용 하였다. 분석에 방해가 될 수 있는 복잡한 형상은 제외시킨 뒤 MCNP 코드를 설계하고 시뮬레이션을 실시하였다. MCNP 코드 설계에서 선량환산인자는 ICRP 113을 적용하였다.

2. 재료 및 방법

2.1 방사선 수송해석 설계(MCNP)

관문형 모니터에 사용되는 NaI(Tl)의 형상은 가로×세로×두께가 각각 40.64 × 10.16 × 5(cm)를 확인하고 MCNP code 설계 시 참조하였다. 코드

설계 시 형상의 두께를 1.0 cm에서 20.0 cm까지 0.1 cm단위로 설계하여 결과 값의 변화를 확인할 수 있도록 하였다. 또한 실제 선원이 통과 시 검출기의 반응시간은 5~10초 사이 이기 때문에 코드설계 시 선원이 통과하는 시간을 섬광셀 중심에서 1.5 m 떨어진 곳에 선원이 머무르는 시간으로 바꾸어 1초에서 10초까지 측정하였다. 이격거리를 1.5 m로 설정한 이유는 양쪽에 섬광셀이 위치 할 때 선원이 가장 멀리 떨어진 위치로 가정했기 때문이다. 최종 형상은 Fig. 1과 같다. 전체적으로 형상을 간소화 하여 섬광셀 1개로만 측정하였다. 실제 관문형 모니터에 사용되는 NaI(Tl)의 셀 수는 총 6개가 사용된다.

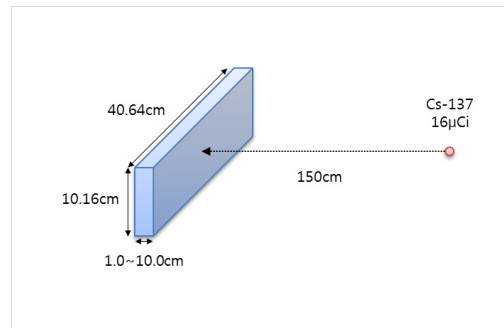


Fig. 1. Geometry of Scintillator (MCNP).

2.2 전력 밀도 측정

방사성물질 측정에 필요한 시간인 5~8초의 정의는 상용화되어 사용되고 있는 관문형 모니터의 제품 사양에 의거 하였다. 본 실험에서는 최대 10초를 적용하였다. MCNP결과로 NaI(Tl)에서 MeV당 38,000개 광자수로 변환하여 ¹³⁷Cs에 의해 발생하는 광자수를 곱하여 면적당 초당 발생하는 광자 수(photon flux)를 구하였다.

Photon flux는 단위 면적당 시간당 광자수로 정의 되며 다음과 같은 식으로 나타낸다.

$$\Phi = \frac{\text{number of photons}}{\text{sec } m^2} \dots\dots\dots(1)$$

발생된 광자의 파장 에너지를 적용하지 않았다. (1)식은 광자의 파장에 대한 에너지 정보가 없으

므로 NaI(Tl)에서 발생되는 425 nm 파장의 광자 에너지를 대입하여 주었다. NaI(Tl)에서 발생된 425 nm 파장의 광자 1개의 에너지는 다음과 같다.

$$E = \frac{h\nu}{\lambda} = \frac{1.24}{\lambda(\mu\text{m})} \dots\dots\dots(2)$$

그리고 (1)식에 대입하면 전력밀도(power density, W/m²)다음과 같다.

$$H\left(\frac{w}{m^2}\right) = \Phi \times Q(C) \frac{1.24}{\lambda(\mu\text{m})} \dots\dots\dots(3)$$

Q(C) : 1.602×10⁻¹⁹C, Electro charge

3. 실험 및 결과

3.1 방사선 수송해석 평가(MCNP)

Table 1은 MCNP를 통해 얻은 방사선 발생 수 결과를 나타내었다.

Table 1. Population in Scintillator Cell (MCNP, ¹³⁷Cs)

s	NaI(Tl) depth (population in NaI(Tl) cell)				
	1cm	3cm	5cm	7cm	10cm
1	765	839	911	949	987
2	1,508	1,677	1,820	1,899	1,973
3	2,286	2,549	2,758	2,884	3,006
4	3,048	3,397	3,673	3,837	4,002
5	3,851	4,296	4,649	4,854	5,054
6	4,607	5,128	5,569	5,809	6,046
7	5,367	5,977	6,484	6,768	7,045
8	6,108	6,802	7,377	7,705	8,021
9	6,905	7,717	8,355	8,723	9,086
10	7,681	8,603	9,299	9,706	10,115

3.2 Photon flux

Table 2는 NaI(Tl)에서 에너지(MeV)당 생성되는 광자 수를 대입한 결과를 나타내었다.

Table 2. Photon flux for 425nm [NaI(Tl)]

s	NaI(Tl) depth, (#×10 ⁶ of photon)				
	1cm	3cm	5cm	7cm	10cm
1	19.24	21.11	22.92	23.87	24.83
2	37.94	42.19	45.78	47.77	49.63
3	57.51	64.12	69.38	72.55	75.62
4	76.68	85.46	92.39	96.52	100.67
5	96.88	108.07	116.95	122.11	127.14
6	115.89	129.00	140.09	146.13	152.09
7	135.01	150.36	163.11	170.26	177.22
8	153.65	171.11	185.58	193.83	201.78
9	173.70	194.13	210.18	219.44	228.57
10	193.22	216.42	233.93	244.16	254.45

3.3 전력 밀도(H)

Table 3은 식 (3)을 대입한 값이다. 측정결과 0.21 ~ 0.28 w/m² · s로 값이 산출되었다.

Table 3. Power density(w/m²)

s	NaI(Tl) depth, (w/m ²)				
	1cm	3cm	5cm	7cm	10cm
1	0.2179	0.2389	0.2594	0.2702	0.2811
2	0.4294	0.4776	0.5183	0.5408	0.5619
3	0.6510	0.7259	0.7854	0.8213	0.8560
4	0.8680	0.9674	1.0459	1.0927	1.1396
5	1.0966	1.2234	1.3239	1.3823	1.4392
6	1.3119	1.4603	1.5859	1.6542	1.7217
7	1.5283	1.7021	1.8464	1.9273	2.0062
8	1.7394	1.9370	2.1007	2.1941	2.2841
9	1.9663	2.1975	2.3792	2.4840	2.5874
10	2.1873	2.4498	2.6480	2.7639	2.8804

4. 결론

NaI(Tl) 섬광체에서 발생되는 광자에 대한 전력 밀도는 섬광체의 두께가 커질수록 값이 증가하는 것을 확인하였다. 섬광체의 두께가 커질수록 구입 가격도 상승하기 때문에 광자 발생량을 고려한 적절한 크기의 섬광체가 필요할 것이라 판단하여 본 실험을 진행하였고, 현재 상용화 제품에서 제시한 5~8초 사이 측정하는 것을 가정하여 10초 이내로 설정하여 실험을 진행하였다.

현재 IAEA, WTO, INTERPOL에서는 ITRAP (불법추적방사선평가 프로그램)를 통해 관문형 감시시스템을 도입하여 국가간 불법거래 방사성물질 검색 데이터 등을 제공하고, 위험을 사전방지하기 위해 관문형 모니터를 도입하고 있는 실정이다. 미국에서는 2002년 세계무역센터 항공기 테러이후 Megaport 계획을 추진하여 핵 밀수 및 테러리즘에 대항하기 위해 세계 주요 항구, 공항 및 국경통과지점에 핵 및 방사성 물질 검색장비를 설치하는 등 유통량이 많은 항구에 많은 수의 고성능 관문형 감시시스템을 설치하였다. 따라서 관문형 모니터의 많은 수요가 예측 되고 있다.

5. 참고문헌

- [1] 공항만 방사선 감시시스템, KINS.
- [2] Scintillation Detector Operating Manual, Physical properties of common inorganic scintillators, Saint-Gobain Crystal.
- [3] 공항·항만 방사성물질 검색체제 구축방안 연구, KINS, 과학기술부, 2005.
- [4] K. A. Miller., An Inverse source location algorithm for radiation portal monitor applications, Doctor of Philosophy, Texas A&M UNIV., 2010.
- [5] ANSI N42.38-2006 American National Standard Performance Criteria for Spectroscopy Based Portal Monitors Used for Homeland Security.

안전관리규정 세부지침 내용을 반영한 방사선안전관리 표준절차서 개발

박병목^{1*}, 채경선¹, 신경욱¹, 이윤종², 이진우²

¹세안기술주식회사, 서울특별시 금천구 가산디지털2로 184, 910호

²한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*pbm@sae-an.co.kr

1. 서론

원자력안전법은 최초 1958년 3월에 원자력법으로 제정되어 여러차례 개정을 통해 현재에 이르고 있다. 법의 개정은 시행령, 시행규칙 및 고시의 개정에 영향을 미치게 되는데 본 연구에서 다루어지는 안전관리규정내 절차화 할 수 있는 내용을 표준절차서로 개발하는 것과 직접적인 관련이 되는 원자력안전위원회고시 제2013-22호 “안전관리규정 작성지침”의 최근 연혁을 보면 ●“안전관리규정 작성지침” 시행 2008.04.18 제2008-39호 전부개정, ●“안전관리규정 작성지침” 시행2009.09.23 제2009-37호 타법개정, ●“안전관리규정 작성지침” 시행2011.11.11 제2011-41호 타법개정, ●“안전관리규정 작성지침” 시행2012.01.20 제2012-41호 일부개정, ●“안전관리규정 작성지침” 시행2013.07.24 제2013-22호가 타법개정에 따라 개정되었다. 관련 고시 등이 변경되어진다고하여 반드시 안전관리규정이 변경되는 것은 아니지만 변경될 확률은 높아진다[1].

본 연구에서는 이러한 문제를 해결하기 위해 개정이 쉽고, 단일 또는 복합 원자력이용시설에 적용이 용이한 안전관리규정내 절차화가 요구되는 부분을 표준절차서로 개발하였다.

2. 본론

2.1 안전관리규정에 명기된 절차의 내용

원자력안전위원회고시 제2013-22호 “안전관리규정 작성지침”의 제4조(세부지침)을 보면 절차화 할 수 있는 내용이 수록되어져 있으며, 주요내용으로는 1) 방사선관리구역의 설정기준 및 관리절차, 2) 교육훈련계획의 수립 및 승인절차, 3) 개인선량계의 지급 및 회수 등 관리절차, 4) 위험시 조치에 관한 사항, 5) 방사선량률, 방사능오염 측정방법, 주기 및 절차, 6) 밀봉선원을 사용하는 경우 선원의 누설점검 방법 및 절차, 7) 방사선안전관리장비의 점검 방법, 주기 및 절차, 8) 방사성동위원소 처리 및 배출, 9) 방사성동위원소 자체처분, 10) 방사

선원의 구매, 인수, 인계, 저장, 반입, 반출 및 판매 절차, 11) 방사성동위원소의 분배, 보관 및 저장 12) 방사성동위원소 운반, 인도, 취급 및 승인 13) 방사성동위원소 등의 분실, 도난 등 사고시의 조치 및 사고예방에 관한 사항으로 정리 할 수 있다[2].

2.2 개발된 표준절차서 제목 및 내용

원자력안전위원회고시 제2013-33호 “방사성폐기물의 자체처분에 관한 규정” [서식 1]에 “방사성폐기물 자체처분 절차서 표준안”이 제시되어져 있으며[3], 그 외의 절차서 표준안은 제시되어져 있지 않아 신규로 방사선안전관리자에 선임된자 또는 안전관리자가 다른 원자력이용시설로 옮기는 경우 어려움이 따를 수 있다. 이러한 문제 해결을 위해 총 11종의 표준절차서를 개발하였으며, 절차서 제목 및 주요내용은 Table 1과 같다.

Table 1. Standardized procedures and It's contents

순서	표준절차서 제목	내용
1	출입관리 절차	● 방사선관리구역 출입절차 ● 방사선작업허가서 작성 ● 긴급시 방사선안전관리 ● 교육훈련 ● 건강진단
2	방사선(능) 측정	● 방사선(능) 측정
3	제염	● 개인오염검사 및 제염 ● 지역 및 장비제염
4	누설점검	● 누설점검 절차
5	방사선(능) 측정기 운영	● 방사선(능) 측정기 관리절차 ● 방사선(능) 측정기 교정 등
6	방사성폐기물관리	● 방사선관리구역내 방사성물질 처리 ● 방사성물질 저장 및 보관 ● 기체 및 액체 폐기물 배기 배수
7	자체처분	● 자체처분 절차
8	방사성동위원소 관리	● 방사성동위원소 구매, 사용
9	방사성물질 운반	● 방사성물질의 운반 ● 방사성물질의 인수 및 포장운반
10	비상대응	● 비상시 대응절차 ● 방사선 응급의료 구호 ● 방사선관리구역 유해물질 등의 관리
11	피폭관리	● 선량계 훼손 또는 분실자 선량 평가 절차 ● 내부피폭 방사선량 측정 및 평가 ● 방사선 피폭최소화 운영

2.3 표준절차서와 안전관리규정의 연관성

개발된 표준절차서는 제2013-22호 “안전관리규정 작성지침”의 제4조(세부지침)의 내용을 수록하고 있으며, 절차서별 수록내용은 Table 2와 같다.

Table 2. Standardized procedures including the writing guidance of the regulation of safety management

순서	표준절차서 제목	안전관리규정 내용
1	출입관리 절차	• 방사선관리구역의 설정기준 및 관리절차 • 교육훈련계획의 수립 및 승인 절차 • 개인선량계의 지급 및 회수 등 관리절차 • 위험시 조치에 관한 사항
2	방사선(능) 측정	• 방사선량률, 방사능오염 측정 방법, 주기 및 절차
3	제염	-
4	누설점검	• 밀봉선원을 사용하는 경우 선원의 누설점검 방법 및 절차
5	방사선(능) 측정기 운영	• 방사선안전관리장비의 점검 방법, 주기 및 절차
6	방사성폐기물관리	• 방사성동위원소 처리 및 배출
7	자체처분	• 방사성동위원소 자체처분
8	방사성동위원소 관리	• 방사선원의 구매, 인수, 인계, 저장, 반입, 반출 및 판매 절차 • 방사성동위원소의 분배, 보관 및 저장
9	방사성물질 운반	• 방사성동위원소 운반, 인도, 취급 및 승인
10	비상대응	• 방사성동위원소 등의 분실, 도난 등 사고시의 조치 및 사고예방에 관한 사항
11	피폭관리	-

2.4 표준절차서의 표준작성 내용

개발된 표준절차서의 작성 방법으로는 첫째, “절차 개정 이력지”가 있어 개정번호, 개정일자, 개정내용 및 개정사유 등을 기재함으로써 이력의 추적관리 및 개정사유를 알 수 있도록 하였으며, 둘째, “절차 공람 기록지”를 통해 표준절차서 내용에 따라 관련부서에 절차서를 공람시킴으로써 방사선작업종사자가 필요한 절차를 숙지할 수 있도록 하였다. 셋째, 모든 절차서의 순서는 1.목적, 2.적용범위, 3.참고 및 유의사항, 4.정의 및 근거, 5.책임, 6.절차, 7.붙임 순으로 획일화 하였다. 넷째, 서술된 내용과 관계된 근거를 하단에 명기함으로써 개정 및 근거자료를 찾는 데 편리하도록

하였으며, 다섯째, 한 장으로 작성된 흐름도를 통해 업무를 한눈에 파악할 수 있도록 하였다. 여섯째, 절차서에서 사용되어지는 모든 양식 및 보고서에 대해 예시를 들어 작성함으로써 작성 경험이 없는 안전관리자가 쉽게 양식 및 보고서를 작성할 수 있도록 하였다.

3. 결론

최근 교육훈련 및 건강진단 분야의 원자력안전법 시행령, 원자력안전법 시행규칙 등이 개정됨에 따라 안전관리규정에 명기된 내용의 개정이 불가피하게 되었다. 그러나 교육훈련 및 건강진단의 내용은 안전관리규정의 일부에 지나지 않지만 하나의 서류로 된 안전관리규정을 개정하고, 타부서에 공람시키는 것은 어려움이 따를 수 있다. 그러나 방사선안전관리 표준절차서 사용시에는 “출입관리 절차”만을 개정하고, 공람시킴으로써 이러한 문제를 간단하게 해결 할 수 있다. 뿐만 아니라 11종의 방사선안전관리 표준절차서는 방사선작업종사자의 직장교육 내용에 포함되는 “이용업체의 방사선안전관리규정”, “이용업체의 방사선원 및 방사선장비의 특성”, “그 밖에 이용업체의 특성에 따른 교육” 교재로 활용할 수 있다.

본 연구로 개발된 방사선안전관리 표준절차서는 단일 또는 복합 원자력이용시설 모두에 적용이 용이할 것이며, 신규로 방사선안전관리자에 선임된 자 또는 다른 원자력이용시설로 옮긴 안전관리자에게 실용성 및 편리성을 제공함으로써 원자력이용시설의 안전성에 기여할 것으로 본다.

4. 감사의 글

본 연구는 원자력안전위원회 재원으로 방사선안전재단의 지원을 받아 수행중인 과제입니다.

5. 참고문헌

- [1] 법제처 홈페이지, <http://www.moleg.go.kr>
- [2] 원자력안전위원회고시, 제2013-22호, 안전관리규정 작성지침.
- [3] 원자력안전위원회고시, 제2013-33호, 방사성폐기물의 자체처분에 관한 규정.
- [4] 원자력안전법 시행규칙, 제1030호.

중성자 조사실 산란선 영향 측정

원유호*, 조문형, 강기두

한수원(주)중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70

*won8387@khnp.co.kr

1. 서론

2012년 한수원 중앙연구원은 Fig. 1과 같은 $7 \times 7 \text{ m}^2$ 규모의 중성자 조사실을 구축하였다.

중성자 선량계를 교정하기 위한 중성자 조사실은 산란 중성자의 기여도가 40 % 이하가 될 것을 요구하고 있다.^[1] 중성자 선원은 산란 중성자의 영향을 작게 하기 위하여 조사실의 중앙에 위치하도록 하며 실제 선량계 교정에서는 산란선의 영향을 잘 알고 이를 보정하여야 한다.

본 논문에서는 BMS 및 새도우 콘을 이용하여 선량계 교정 거리에서의 산란선 기여도를 실험적으로 측정하였다.



Fig. 1. CRI's ^{252}Cf Irradiator.

2. 본론

2.1 산란중성자

선원으로부터 방출된 중성자가 주위의 물질과 충돌하여 발생하는 중성자를 산란 중성자라 하며, 벽산란, 공기감쇄, 공기효과, 실험실 내의 구조물에 의한 산란선으로 구분할 수 있다.

벽 산란 중성자는 산란 중성자의 대부분을 차지하며, 이를 줄이기 위해서 교정은 조사실의 정 중앙에서 수행하여야 한다. 선원으로부터 방출된 중성자가 공기와의 탄성 산란됨에 따라 피교정기기

에 입사되는 양이 줄어드는 효과를 공기감쇄라 하며 선원과의 거리가 증가함에 따라 증가하게 된다.

공기효과는 피교정기기과 다른 방향으로 방출된 중성자가 공기와의 산란에 의하여 피교정기기에 입사하는 경우로 거리가 증가함에 따라 증가하게 된다. 이 밖에 조사실 내의 구조물에 의한 산란이 있는데 이를 줄이기 위하여 수소원자를 포함한 구조물을 최대한 줄이도록 하여야 한다.

2.2 재료 및 방법

측정에 사용한 중성자조사장치, BMS 및 새도우 콘의 주요 사양은 Table 1과 같다.

Table 1. The Specification of Neutron Irradiator, BMS and Shadow cone

구분	사양
선원	$3 \times 10^8 \text{ n/sec}$
BMS	6LiI(Eu) , PE 구(20.3 cm)
새도우콘	SUS + PE

중성자 선량계 교정시의 수학적 모델은 다음과 같다.

$$N = \frac{\dot{H}}{(M_T - M_S) \cdot K_S}$$

여기서, N 은 중성자선량계에 대한 교정인자, $\dot{H}$ 은 기준 중성자 선량당량률, M_T 는 새도우콘을 사용하지 않고 측정한 값, M_S 는 새도우콘을 설치하고 측정한 값, K_S 는 산란선 보정인자를 의미한다. 1일 이내 측정 시 $\dot{H}$ 가 일정한 것으로 간주하고 산란 중성자선 기여도를 측정하기 위해서 Fig. 2와 같이 새도우콘과 BMS를 이용하여

1,200 mm 지점에서 중성자 계수율을 측정하였다.

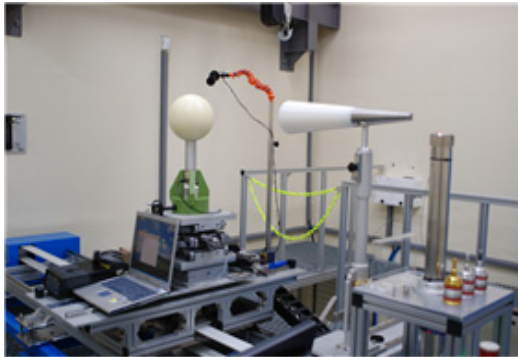


Fig. 2. BMS & Shadow Cone.

측정은 원자력발전소에서 사용하고 있는 중성자 선량계(직경 22.86 cm)와 가장 유사한 크기인 20.3 cm 직경의 PE 구를 이용하여 두 가지 방법으로 수행하였다. 중성자 선원에 PE 구를 완전히 노출시킨 상태에서 계수율을 측정 후 Primary 빔에 의한 영향을 배제하기 위해 새도우콘을 사용하여 PE 구를 차폐 후 측정하였다. 새도우콘은 중성자 선원에서 방출되는 직접 빔을 충분히 차폐할 수 있도록 20 cm 두께의 SUS 및 30 cm 두께의 PE로 제작되었으며^[2], 중성자 선원과 검출기 사이에 설치되어 검출기가 새도우콘에 의하여 모두 가려질 수 있도록 하였다.

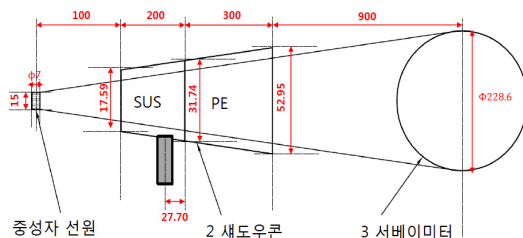


Fig. 3. Schematic diagram of neutron source, shadow cone & spherical instrument.

두 대의 PC를 이용하여 측정프로그램(Maestro 32)의 원격 기능을 사용하여 측정하였으며, 측정 결과를 Table 2에 나타내었다.

2.3 결과 및 고찰

Table 2에서 Without Shadowcone 은 Primary Beam 및 산란된 중성자선을 모두 측정한 것이고, With Shadowcone은 Primary Beam을 차폐한 산란된 중성자만의 계수율이다.

Table 2. The Measurement Result of Neutron count rate and Uncertainty

without shadowcone		with shadowcone		net	
Value (cps)	Uncertainty (%)	Value (cps)	Uncertainty (%)	Value (cps)	Uncertainty (%)
337.02	0.6	67.35	0.01	269.67	0.6

즉, 두 조건에서 측정한 계수율의 비(ratio)가 산란중성자의 기여도가 되며, 본 실험에서 산출된 값은 24.9%로 ISO에서 제시한 값(40%) 이내임을 알 수 있다.

3. 결론

BMS 및 새도우콘을 이용하여 중성자 선량계를 교정할 때 산란되는 중성자선의 기여도를 실험적으로 측정하였다. 측정결과 산란 계수율의 비가 24.9%로 ISO에서 제시한 값 이내이며, 교정 시 새도우콘을 이용하여 보정할 경우 정확한 측정값을 얻을 수 있을 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

- [1] ISO 8529-2 Calibration fundamentals of radiation protection devices related to the basic quantities characterizing the radiation field.
- [2] KASTO 04-26-2060-056 Standard Calibration Procedure for Neutron Survey meters.

알파분광분석시 전기전착 두께에 따른 스펙트럼 변화

장미*, 임종명, 김원영, 강문자, 최근식

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*mjang@kaeri.re.kr

1. 서론

생활주변방사선안전관리법의 시행에 따라 원료 물질, 공정부산물 및 가공제품에 대한 우라늄-238, 우라늄-235, 토륨-232 및 그 딸핵종에 대한 방사능농도 분석이 필요하다. 방사능 농도 분석은 두 가지 방법이 가능한데 감마핵종분석을 통해 딸핵종의 방사능 농도로 모핵종의 방사능 농도를 유추하는 간접분석방법과 알파핵종분석을 통한 직접분석방법이 있다. 전처리나 소요시간 측면에서 간접분석방법이 많은 장점이 있으나 종종 비평형 상태(disequilibrium state)에 의해 직접분석이 필요한 경우가 존재한다.[1]

2. 본론

2.1 알파스펙트로미터

직접분석법인 알파스펙트로미터는 방사성핵종으로부터 방출되는 알파선을 반도체 검출기로 측정하여 알파선 방출 핵종을 분석하는 대표적인 분석 방법이다. 알파선은 입자성이 있으며 반응성은 좋으나 투과력이 낮고 공기 중 이동거리가 짧기 때문에 스테인레스 디스크에 전기전착하여 진공 상태에서 계측을 한다. 그러나 정확한 알파방출핵종을 확인하기 위해서는 가능한 얇으면서 평평하고 균질하게 전착이 이루어져야 자기 흡수(self-absorption)가 최소화 될 수 있다.

2.2 전기전착

특히 선원의 두께와 균질성은 스펙트럼에 영향을 미치게 되는데 두꺼울수록 낮은 에너지 영역에서 넓은 tail을 가지게 된다. 이는 핵종판별을 어렵게 하거나 방사능 농도 계산 시 오차를 가져오게 된다. 그러므로 전기전착 시 주의가 요구되는데 특히 원료물질이나 공정부산물, 가공제품 같이 시료의 매트릭스가 다양한 경우 이에 대한 고려가 필요하다. 이를 위해 전기전착시 전착 두께와 균질성에 따른 스펙트럼 변화를 몬테카를로 코드를 이용하여 계산하였다.

2.3 시뮬레이션

알파핵종 모사를 위해 사용할 수 있는 몬테카를로 코드는 AASI(Advanced Alpha-Spectrometric Simulation)[2]를 비롯하여 여러 종류가 있으며 그 중 MCNPX를 이용하여 전착 두께와 균질성에 따른 스펙트럼 변화를 모사하였다.

2.3.1 교정

알파 스펙트럼 모사를 위해서는 먼저 전착두께, 밀도 및 측정거리 등 전착디스크 및 측정조건에 대한 정보가 필요하다. 이를 위해 Eckert & Ziegler의 교정선원을 이용하여 Fig. 1과 같이 측정 스펙트럼과 모사 스펙트럼을 비교함으로써 전착디스크와 측정조건을 가정하였다. 교정선원의 특성은 Table 1과 같다.

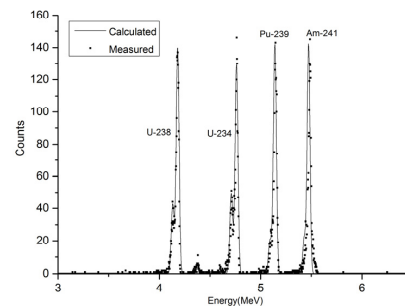


Fig. 1. Calibration of the alpha-spectrometer system and the comparison between measurement spectrum and calculated results.

Table 1. Characteristics of calibration source

Isotope	Activity (Bq)	Energy	Half-life (years)
		Range(keV)	
U-238	1.679	3900-4270	4.470E+09
U-234	1.645	4580-4860	2.460E+05
Pu-239	1.550	4950-5240	2.410E+04
Am-241	1.504	5280-5600	4.326E+02

*Reference Date : 15-Jul-2010 12:00PM EST

실제 측정 스펙트럼과 계산한 결과를 비교하여 전착의 특성을 결정하고, 이를 바탕으로 전착 두

께와 균질성을 변화시켜 스펙트럼 변화를 살펴보았다.

2.3.2 전기전착 두께에 따른 스펙트럼 변화

전기전착 두께를 고정 스펙트럼과 가장 유사하였던 0.45 μm 를 기본으로 하여 1.0 μm 와 1.5 μm 로 전착되었을 경우를 가정하였다. 핵종은 실제 우라늄 분석시 얻게 되는 우라늄-238, 우라늄-235, 우라늄-234에 대한 스펙트럼을 계산하였으며 결과는 Fig. 2와 같다. 두께가 증가할수록 스펙트럼의 피크는 에너지가 낮은 쪽으로 이동하며 피크의 분리가 어려워진다. 따라서 스펙트럼 분석 및 카운트 수에 따른 방사능 농도의 계산시 주의가 필요하다.

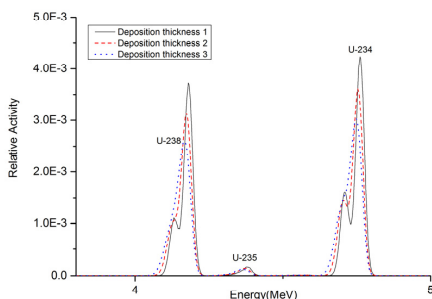


Fig. 2. Variation of the spectrums by deposition thickness (0.45 μm , 1.0 μm and 1.5 μm).

2.3.3 전기전착 균질성에 따른 스펙트럼 변화

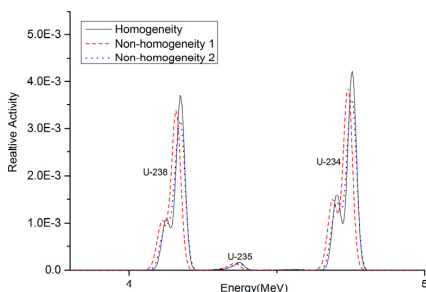


Fig. 3. Variation of the spectrums by non-homogeneity.

전착시 전착부분의 균질성은 스펙트럼에 영향을 미치는 요인 중의 하나이며 그 영향은 Fig. 3과 같다. 디스크의 끝부분으로 갈수록 두꺼워지는 경우인 1번과 중앙이 두껍고 끝으로 갈수록 얇아지

는 경우인 2번을 균일한 경우와 비교하였을 때 그 차이가 확연히 드러나게 된다. 1번의 경우 피크 자체가 이동하면서 낮아지는 모습을 보이며, 2번의 경우에는 피크의 이동은 없으나 피크가 낮아지며 굴곡 부분이 완만해지는 것을 알 수 있다. 그러나 두 가지 경우 모두 균일하게 전착된 경우에 비해 피크가 잘 분리되지 않아 스펙트럼 판별시 주의가 필요하다.

3. 결론

알파분광분석시 정확한 스펙트럼을 얻기 위해서는 전기전착 과정에서 얇고 균질한 선원을 얻는 것이 매우 중요하다. 이 연구에서는 전착 두께나 균질성이 달라질 경우 스펙트럼의 변화를 조사하고 그 결과를 비교하였으며, 두께가 두꺼워지거나 균질하지 못한 경우 피크 분리 및 계측에 영향을 미침을 확인하였다. 따라서 실제 계측시 스펙트럼이 넓어지거나 예상되는 피크의 모양과 다를 경우 샘플의 특성 혹은 실험과정에 대한 고려가 필요하다.

4. 참고문헌

- [1] 한국원자력연구원, 원료물질 또는 공정부산물 중의 U-235, U-238, Ra-226, Th-232, K-40 분석방법개발, KAERI-CR-529, 2013.
- [2] T.Siiskonen, R. Pollanen, "Advanced simulation code for alpha spectrometry", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 550, pp.425-434, 2005.

수생식물이용 방사능 흡수 연구

김병호^{1*}, 최용호¹, 임광목¹, 금동권¹, 서강옥²

¹한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

²국립수목원, 경기도 포천시 광릉수목원로 415

*bhkim1@kaeri.re.kr

1. 연구 배경

선진국에서는 현존하는 식물의 낮은 방사능 오염물질 흡수율과 식물의 오염물질에 대한 독성으로 인한 식물체의 성장 둔화와 같은 기술적 현안을 해결하기 위하여 토양 미생물 기술과 유전자 조작기술을 접목하여 기술한계를 극복하려는 연구가 수행하고 있다. 따라서 국내에서는 이러한 기술 문제를 해결하여 보다 방사성 핵종의 흡수력과 독성에 대한 내성을 높이는 방안으로 근권 여과법에 의한 후보식물의 세습 제거 연구를 계획하고 있다. 본 연구에서 이를 위한 연구를 본격적으로 수행하기 전에 국내 후보식물들의 종자들에 대한 발아 특성을 알아보았다.

2. 실험조건

험을 수행하기 위하여 국립수목원에 보관된 종자를 확보하여 이를 국립수목원 생장상에서 배양하였다. 종이배지로 채워진 원형 배양조에 증류수를 첨가하여 종자들을 발아시켰다. 종자들의 발아 조건은 영국 KEW 식물원 종자 정보 서비스(SID; Seed Information Service, <http://data.kew.org/sid/sidsearch.html>)를 참고하여 온도 15~25℃, 습도 75%, 광주기는 14시간으로 하였으며, 발아 후 활착조건은 규사배지에 증류수를 첨가하여 온도 25℃, 습도75%, 광주기는 12시간으로 하였다.

3. 실험결과

3.1 후보 수생식물의 일반 생육특성

본 연구에 사용된 큰 고랭이, 미나리, 애기부들, 줄은 정수식물로서 비교적 유속이 낮고 안정한 얕은 수심으로 이루어진 육역과 수역이 접하는 곳에서 자라기 때문에 유속이 빠른 지역에서보다 식물 정화 환경이 좋다. 각 후보식물의 세습 흡수능력을 평가하는 한편, 식물들이 성장하면서 수용액 중 세습을 제거할 수 있는 흡수 효율 변화를 파악하

고, 최종적으로 각 식물의 흡수 한계범위를 조사하는 것이 이 연구의 목적이기 때문에 사용될 각 후보식물의 일관성 있는 출발 묘목을 선별하는 것이 중요하다.

따라서 본 연구에서는 계절적 환경에 따른 성장영향을 배제하고 균일한 크기를 갖는 식물군을 확보하기 위하여 국립수목원에서 각 식물의 종자를 확보하여 배양, 발아시켜 일정시간 동안 생장시킨 실험묘를 실험 대상으로 하였다. 영국 KEW 식물원 종자 정보 서비스의 자료를 참고하여 후보식물들의 발아율, 저장성 및 발아법 등에 대한 종자특성을 조사하였고 그 결과를 Table 1에 보여 주고 있다.

식물명	발아율	Kew SID 발아율	Kew SID 저장성	발아법(국립수목원 기준)
큰고랭이	19.2% (25℃/15℃)	24-25.0%	orthodox	저온 수분 처리 5주, 약 40% 발아
미나리	0%	0.4-28.3%	orthodox ~ uncertain	30/100, 광발아성
애기부들	발아 실험자료 없음	17.9-20.0%	orthodox	
줄	발아 실험자료 없음	없음	intermediate	
민초	발아 실험자료 없음	없음	orthodox	발아 전 주정중의 절단면 발아, 절단
특정고 자료 : 영국 KEW 식물원 종자 정보 서비스 (http://data.kew.org/sid/sidsearch.html)				
- 용어 설명 :				
· orthodox : 건조 복수분할량 3-7% 장기 저온저장 가능 종.				
· orthodox ~ uncertain : 50% 이상 orthodox 종자의 저장특성을 나타낸 종. FGR의 장기저장조건종자발아율 3-7%, -18℃에서의 저장 시험이 필요.				
· intermediate : 건조 내성은 orthodox와 residualism 중간 특성, 저온 내성은 중간적 약함				
· residualism : 종자 수분함량 10-15%까지 건조 가능, 건조 후 저온 저장시 불발 실패				

Table 1에 나타난 것처럼 각 식물들의 종자 특성을 검토한 결과 전처리에 1개월, 발아에 1개월 가량 걸릴 수 있는 종들이 있는 것으로 나타났다. 줄의 경우 저장성이 떨어져 발아가 잘될지 예측 불가능하였고 나머지 종자들도 발아율이 아주 낮거나 발아 실험 자료가 없어서 발아여부가 불투

명하여 여러 발아조건에서 발아실험을 수행하여야 할 것으로 보인다.

나머지 종자들도 발아율이 낮아 자연 상태에서 발아된 싹묘를 획득하거나, 특히 줄과 미나리의 경우 뿌리 번식이 우선하는 종들이기 때문에 이를 통하여 싹묘를 확보하는 방안도 제기되었다. 큰고랭이의 경우 충분한 종자를 확보하지 못하여 발아율 산정에 어려움이 예상되었다.

3.2 후보 수생식물의 종자 발아 및 성장실험

후보식물의 종자특성을 검토한 결과를 바탕으로 Table 2와 같이 다양한 발아조건에서 1차 발아실험을 수행하였다. 큰고랭이의 경우, 종이배지에서 100립의 종자를 4반복으로 발아실험을 수행한 결과 3%의 낮은 발아율을 보이면서 발아립 12립중 9개의 싹묘를 확보하였다.

Table 2 Germination experiment of candidate plants

식물명	발아실험 방법	발아 실험 결과	발아 후 활용
큰고랭이	25/15℃ (12/24시간), 14시간 광주기로 배양 (종이 배지, 100립 4반복)	발아율 3% 발아립 12립 중 9개 싹묘 확보	규사 배지, 25℃, 12시간 광 조건으로 증류수를 공급
미나리	25/15℃ (12/24시간), 14시간 광주기로 배양 (제논등광처리(8%) 100립 후 30/20℃ (12/24시간), 14시간 광주기로 배양 (종이 배지, 100립 4반복)	저온 습윤 처리 후 치상 실험	
애기부들	30/20℃ (12/24시간), 14시간 광주기로 배양 (종이 배지, 100립 4반복)	발아율 14.8% 발아립 59립 중 50개 싹묘 확보	
전복	25/15℃ (12/24시간), 14시간 광주기로 배양 (종이 배지, 100립 4반복)	발아율 1.3% 발아립 5립, 전량 부패로 싹묘 싹묘 없음	

미나리의 경우 종자를 저온 습윤 처리 후 치상하였으나 발아하는 데는 실패하였다. 애기부들은 발아율 14.8%로서 발아립 59립중 50개의 싹묘를 확보하였고, 줄의 경우 발아립 5립을 확보하였으나 전량부패로 싹묘를 확보하는 데는 실패하였다.

큰고랭이와 애기부들의 싹묘를 규사 배지로 옮겨 온도 25℃, 12시간 광 조건으로 증류수를 공급하면서 배양하였으나 시간이 지나면서 생장력이 떨어져 성체를 확보하지 못했다. 이는 성장에 필요한 비료성분의 결핍으로 인한 것으로 보인다. 따라서 2차 발아실험에서는 종자확보가 가능한 미

나리와 애기부들에 대하여 2차 발아실험을 수행하여 미나리의 경우 종자 400립에서 싹묘 108개를 획득하였고, 애기부들의 경우 1000립의 종자 중 200개의 싹묘를 획득하였다. 1차 발아실험 후 획득한 싹묘들이 비료 결핍으로 쇠퇴하였다는 결론을 바탕으로 2차 발아실험에서 획득한 싹묘들에게 중성비료를 투여한 결과 Fig. 1과 같이 지속적인 생존성을 보였다. 이후 발육성이 양호한 싹묘를 선별하여 각각의 성체를 개별 트레이에 옮겨 심어 성장실험을 진행하고 있다.

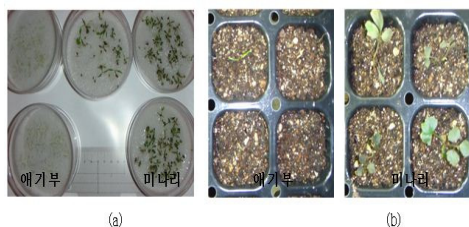


Fig. 1. Seedlings of typha angustifolia and water parsley.

4. 결론 및 향후계획

식물의 세습 흡수력을 조사하기 위하여 사용될 후보식물의 1차 및 2차 발아실험을 수행한 결과 종자 특성 및 발아방법에 관련된 정보 부족에도 불구하고 애기부들과 미나리의 성체를 확보하는데 성공하였다. 하지만 큰 고랭이의 종자수 부족으로 인하여 실험에 필요한 성체를 확보하지 못했다. 특히 줄의 경우 발아율이 낮아 뿌리 번식에 의한 성체 식물의 확보방안도 제기되었다. 앞으로 현재 성장중인 애기부들과 미나리를 대상으로 근권여과법에 세습 제거 실험을 수행함과 아울러 실험에 필요한 큰 고랭이와 줄의 종자를 확보하여 이의 연구를 수행하고자 한다.

5. 감사의 글

이 논문은 미래창조과학부가 시행한 원자력중장기연구개발사업의 결과물입니다.

사용후핵연료 중간저장시설에서의 직접방사선량 계산 시 선원항의 모사 방법에 따른 차폐건물 외벽에서의 민감도 평가

노경용¹, 차길용¹, 김이수¹, 이준훈¹, 김태만², 백창열², 김순영^{1*}

¹(주)래드코어, 대전광역시 유성구 관평동 784

²한국원자력환경공단, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*sykim@radcore.co.kr

1. 서론

국내 사용후핵연료 소내 임시저장시설이 2024년 이면 포화상태에 이를 것으로 예상되므로, 사용후핵연료를 저장할 수 있는 별도의 중간저장시설이 요구되고 있다. 중간저장시설 건설을 위해서는 수 km 지점까지의 직접방사선량이 평가되어야 한다. 정확한 방사선량 계산에 최근 몬테칼로 방법이 많이 사용되는 데, 수 km에서의 방사선량을 몬테칼로 방법으로 평가하기 위해서는 전산시간이 상당히 소요되는 단점이 있다. 본 연구에서는 가상의 5000 MTU 중앙집중식 중간저장시설의 차폐건물 안에 있는 사용후핵연료 저장용기를 대상으로 한 직접 방사선량 계산에 있어서 선원항 모사 방법이 건물 외벽에 미치는 방사선량의 민감도를 평가하였다.

2. 본론

2.1 연구방법

본 연구에 적용된 사용후핵연료 저장용기는, 산업통상자원부 산업기술혁신사업의 일환으로 한국원자력환경공단이 주관하는 “사용후핵연료 수송/저장 시스템 최적화 기술개발”과제에서 개념 설계된 사용후핵연료 집합체의 단순화 모델을 적용한 콘크리트 용기를 대상으로 하였다. 방사선량평가를 위해서 5000 MTU의 사용후핵연료 저장용기가 중간저장시설에 12 × 44 배열로 별도의 차폐건물 내에 저장되었다고 가정하였다. 용기 간 pitch는 5 m, 용기표면에서 차폐건물 내벽까지의 거리는 3.4 m 이고, 차폐건물은 가로 66 m, 세로 226 m 및 두께가 3.4 m로 모델링하였으며, 이를 Fig. 1에 나타내었다.

저장용기 내 장전되는 사용후핵연료는 초기농축도 4.5 wt%, 연소도 45000 MWd/MTU, 냉각기간 10년인 WH17×17 OFA 사용후핵연료를 대상으로 하였으며, 사용후핵연료에서 방출되는 감마선원과 물

질정보는 SCALE 코드시스템 내 ORIGEN-ARP[1] 모듈로 계산한 후, MCNP5(build 1.60) 전산코드[2]의 선원항에 적용시켰으며, 핵단면적 자료로는 ENDF-B/VI를 사용하여 방사선량 계산을 수행하였다.

방사선량 평가는 1 월 ~ 12 월까지의 용기를 저장하는 경우 건물 외벽에서의 선량을 F2 tally를 사용하여 각각 평가하였다. 이때 효율적인 계산을 위하여 Geometry splitting and Russian roulette를 적용하였다.

2.2 연구내용

저장시설 내에 Fig. 1과 같이 1 월 ~ 12 월까지 배치 되어있는 용기를 대상으로 건물의 외벽에서 방사선량을 계산한 결과 같은 history 수의 감마선원을 기준으로 상대오차는 1 월만을 선원으로 모사하였을 경우가 가장 작고 12 월 모두를 선원으로 하였을 경우 그 상대오차가 크게 나타나므로 신뢰성 있는 상대오차의 값을 가지는 방사선량을 계산하기 위한 시간을 Table 1에 나타내었다.

월의 개수 별 건물 외벽에서의 방사선량은 Fig. 2에서 볼 수 있듯이 3 월 이후의 용기는 측정값에 미치는 영향이 미미하며, 신뢰성 있는 상대오차 범위 내에서 유사한 값을 가지고 있으나, 전산시간이 약 5 배 차이가 났다.

차폐 건물이 있는 대용량 사용후핵연료 중간저장시설의 방사선량 계산 시 3월 이후의 용기를 선원항으로 둔다면 유효한 상대오차까지 계산하기 위한 전산시간의 효율성이 떨어진다.

따라서, 2 월까지만 계산하는 것이 12월 모두를 계산하는 것 보다 신뢰성 있는 상대오차를 가지면서 방사선량의 계산시간을 감소시킬 수 있다는 것을 확인하였다.

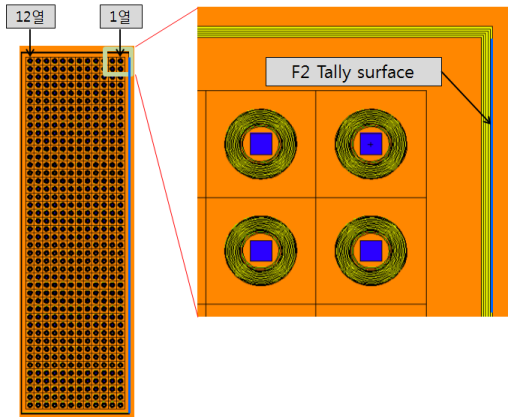


Fig. 1. Geometry.

Table 1. Calculating time with a variation of the number of line

Number of line	History	Calculating time	Relative Error
1	1e10	2	0.0592
2	1e10	2	0.0901
3	2e10	3.5	0.0725
4	2e10	3.5	0.0795
5	2e10	3.5	0.0919
6	3e10	5.5	0.0804
7	3e10	5.5	0.0867
8	3e10	5.5	0.0904
9	4e10	7	0.0950
10	4e10	7	0.0986
11	4.5e10	10	0.0965
12	5.4e10	11	0.0986

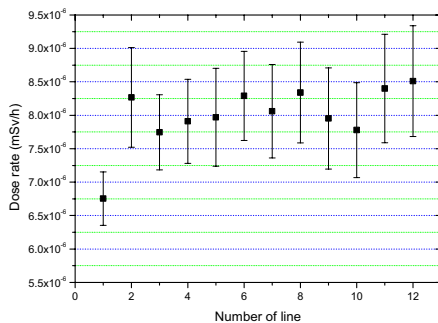


Fig. 2. Dose rate according to the number of line.

3. 결론

본 연구에서는 차폐건물이 있는 대용량 사용후 핵연료 중간저장시설의 직접 방사선량 계산 시 선원항 모사 방법에 따른 차폐건물 외벽에서의 민감도 평가를 하였다. 차폐건물 외벽에서 직접 방사선량의 민감도평가를 수행한 결과 방사선량을 계산하는데 있어서 1열과 2열의 영향이 지배적임을 확인할 수 있었다.

차폐건물 내벽에서의 민감도 평가[3]에서는 1 열 ~ 5 열까지의 선원항이 지배적인 영향을 나타내었으나 차폐건물 외벽에서는 50 cm의 콘크리트 벽에 의해 민감도가 떨어져 1열과 2열의 영향이 지배적이었다. 그리고 차폐건물 외벽에서 영향이 지배적인 2열까지의 용기를 선원항으로 방사선량을 계산하는데 소요되는 전산시간은 2시간이며, 영향이 미미한 3 열 ~ 12 열까지의 용기를 선원항으로 방사선량을 계산하는데 소요되는 시간은 최대 11시간이 소요되어 동일 수준의 결과 및 상대오차에서 전산시간은 5 배 이상 증가하였다.

따라서 향후 대용량 사용후핵연료 중간저장시설에서 이루어질 방사선량 평가에서 민감도 평가를 통해 지배적인 영향을 미치는 배열까지만 선원항으로 계산을 한다면 상당한 전산시간을 단축할 수 있을 것으로 기대된다.

4. 감사의 글

본 연구는 산업통상자원부 산업기술혁신사업의 일환으로 수행되었음.

5. 참고문헌

- [1] ORIGEN-ARP : Automatic Rapid Processing For Spent Fuel Depletion, Decay, and Source Term Analysis. Us. ORNL/TM-2005/39, 2009.
- [2] MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5 US. LA-CP-03-0245, 2003.
- [3] 노경용 외5명, “대용량 사용후핵연료 건식저장 시설의 직접 방사선량 계산 시 몬테칼로 계산 효율성 향상 방안 연구”, 대한방사선방어학회 2013년 추계학술발표회, pp.276-277, 수원, 2013.

Comparative Study of the ^{90}Sr Separation via Ion-Exchange and Solvent Extraction

Mumtaz Khan^{1,2*}, Babar Hussain¹, Tania Jabbar¹, Jinmo Ahn², and Wooyong Um²

¹Pakistan Institute of Nuclear Science and Technology, Islamabad, Pakistan

²Pohang University of Science and Technology (POSTECH), Pohang, Korea

*mumtazkhan03@postech.ac.kr

1. Introduction

The main sources of Strontium-90 in the environment are atmospheric nuclear weapons testing, releases from nuclear accidents, waste tanks and nuclear facilities. It has a physical half-life of 28.8 years and undergoes β -decay (max. beta energy of 545.96 keV) and transforms into its daughter ^{90}Y . Owing to its long physical half-life, ^{90}Sr is one of the most dangerous radionuclides. Its allowed activity in the body is 74 kBq (2 μCi). [1,2]

Numerous methods have been developed for ^{90}Sr analysis. Of these, Ion-exchange method is the simplest one. The objective of present study is to compare solvent extraction using Tributyl Phosphate and the newly developed ion exchange method using cation exchanger with SO_3H . Strontium was found to have strong exchange capacity for the locally developed resin and ^{90}Y was eluted in 3mM EDTA under specified pH conditions.

2. Method

2.1 Ion Exchange Separation

Glass column with 1cm diameter and 8 cm height was prepared. The column was loaded with the DVB- SO_3H resin. Resin was washed with distilled water to get rid of water soluble impurities and was conditioned with 30 mL of 0.5M NaOH. The conditioning was confirmed with basic pH of the column. Approximately, 25-30 mL of 3 mM EDTA was passed through the column to change its pH to 4-5 after neutralizing with millipore water. Loading solution was prepared by pipetting 100ppm 0.5 mL of $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ and 0.5 mL of $\text{Y}(\text{NO}_3)_3$ in a small glass beaker. The solution was evaporated till

dryness, and adjusted to pH at 4-5 by adding 10 mL of 3 mM EDTA. The solution was then passed through the column at the flow rate of 0.3 mL/min and waste was collected in the vial. The column was washed 6 times with equal volume (10 mL) of 3 mM EDTA to elute all yttrium. Each fraction was collected in a separate glass vial. From each fraction, 0.25 mL of sample was taken for determination of yttrium concentration. After eluting whole of Y^{3+} , column pH adjusted to 9-11 by NaOH solution. Finally, strontium was eluted with approximately 30 mL of 3 mM EDTA (pH=9-11). This step was repeated three times. Recovery of each step was determined by ICP-OES.

2.2 Solvent extraction

A solution of 100ppm Sr^{2+} and Y^{3+} mixture was dissolved in 50mL of 14.4 M HNO_3 . Tributyl phosphate (90 mL of TBP in two steps) was used to extract Y^{3+} from Sr^{2+} in concentrated HNO_3 (14.4M). Yttrium was stripped in water from TBP in five steps, each of 20 mL. Chemical recovery of Y^{3+} in water and Sr^{2+} in Nitric acid was found by ICP-OES.

3. Results & Discussion

Liquid-liquid and ion exchange separation procedure were tested using stable carriers of Sr^{2+} and Y^{3+} . Radioactive tracer of $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ (3.32 Bq) was also prepared and both isotopes were separated using above procedure. After separation of both isotopes, ^{90}Sr activity was calculated by ^{90}Y counting on LSA under standard counting conditions shown in table 1. Ion exchange and solvent extraction methods showed different recoveries of ^{90}Sr . Ion exchange showed

better recoveries as compare to solvent extraction as shown in table 2.

The tested resin showed better results than conventional TBP separation method. Current ion-exchange method may be applied further for synthesis of $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ generators which is used as therapeutic nuclear medicine in hospitals.

4. References

- [1] Usha Pandey, Perm S.Dhami, Poonam Jagesia, Meera Venkatesh, "Extraction Paper Chromatography Technique for the Radionuclidic Purity Evaluation of Y-90 for Clinical Use," Applications and Chemistry Section, Division of Physical and Chemical Sciences, IAEA, vol. 80, pp. 801-807, 2008.
- [2] W. V. Mayneord, Radiation and Health, 1st ed., New Jersey: Nuffield Provincial Hospitals Trust, 2012.

Table 1. Counting conditions of LSA

Method	Countung Time	Volume	pH of medium	Energy Window	Vial Type
Cerenkov Counting	200 minutes	15 mL	3 in HCl	0-32	Polythene Plastic Vial

Table 2. Determination of ^{90}Sr through ^{90}Y

Method	^{90}Sr activity added (Bq)	^{90}Sr activity recovered (Bq)	Chemical Yield (%)	Lower detection Limit (Bq/kg)
Solvent extraction	3.32	2.95	70	2.27
Ion exchange	3.32	3.0	80	2.03

EDR을 이용한 폐순환 계통의 NaNO_2 제거기술

이만길^{1*}, 박종석², 이세만², 김승일², 강덕원²

¹한국수력원자력(주), 전남 영광군 홍농읍 계마리 514

²HaJi 방사선공학센터, 경기도 시흥시 정왕동 1281-2

*mglee@khnp.co.kr

1. 서론

원자력발전소 폐순환계통은 부식관리를 위해 고 농도의 아질산염(NaNO_2)을 사용한다. 계통수에는 NO_2 농도가 1000 ppm 정도되며, 정기보수(O/H) 시 계통에서 일부가 배수되어 액체폐기물 처리계통(LRS)의 이온교환수지를 조기에 포화를 시키고, 일부 배수되어 나온 물은 종합폐수처리장으로 보내어져 총 질소의 증가를 초래한다. 환경으로 방출되는 폐액 중의 총 질소 농도가 제한치를 초과할 가능성이 높으며 폐기물 처리계통의 정화수지도 조기에 포화되어 폐기물 발생량이 증가하기 때문에 대차약품으로 하이드라진(N_2H_4)의 주입을 권고하였으나, 제한된 O/H 기간동안 완전교체 제거가 어려운 형편이고, 또한 운전 중에는 배수과정이 기술지침서상의 저축을 받기 때문에 교체가 매우 어렵다. 2차 냉각계통의 경우 Feed & Bleed 방식으로 교체시 많은 시간과 다량의 회석수가 소요되며 특히 용존산소가 포화된 물을 사용하기 때문에 부식의 위험성에 노출되어 있으며 정화설비도 없어 한번 보호막이 이탈될 경우는, 계통 내 심한 부식물질이 쌓여 탁도가 증가하는 문제가 발생한다.

따라서, 본 연구에서는 운전 중에 계통 내에 비이온성 탈산소제인 하이드라진(N_2H_4)을 먼저 투입시켜 마그네틱 필터로 입자를 제거한 후, 역전기탈이온장치(EDR)를 통하여 Na^+ 과 NO_2^- 염만을 제거하는 EDR 기술에 대해 언급하고자 한다.

2. 본론

2.1 처리대상 계통 개요

원전 주기기 냉각계통인 폐순환 냉각계통(Component Cooling Water, CCW)은 대부분 A, B 계열로 이루어져 있으며 한 계열당 약 40~700톤 정도의 물이 방식제와 함께 들어가 있다. 대부분의 NaNO_2 를 쓰는 발전소는 교체상의 어려움과 교체에 따른 총 부유물의 증가로 교체를 망설이

고 있으며 N_2H_4 로의 교체를 추진 중이나 최근들어 N_2H_4 의 환경유해성으로 인해 환경 유해가 덜하며 방식효과가 좋은 새로운 방식제의 접근을 권하고 있다.

2.2 폐순환계통의 NaNO_2 사용현황

폐순환냉각 계통은 크게 1차계통과 2차계통으로 나누며 일부 발전소는 N_2H_4 로 바꾸어 사용 중에 있으나 상당 발전소는 약품 교체상의 어려움으로 교체를 망설이고 있다. NaNO_2 을 부식방식제로 사용하는 발전소에서 가장 체적이 큰 계통인 1차측의 기기냉각계통(Component Cooling Water System, CCW)(Fig. 1참조)은 발전소의 용량에 따라 체적이 다르지만 약 400~680톤 정도의 냉각수가 들어 있다. 2차측의 경우는 터빈건물냉각계통(Turbine Component Cooling Water System, TB CCW)의 체적이 제일 크며 전 원전이 동일한 체적인 397톤으로 구성되어 있다. 모든 냉각계통에 함유되어 있는 NO_2 의 농도는 약 700~1,000 ppm의 범위 내에서 운전하도록 지침서상에 언급되어 있다.

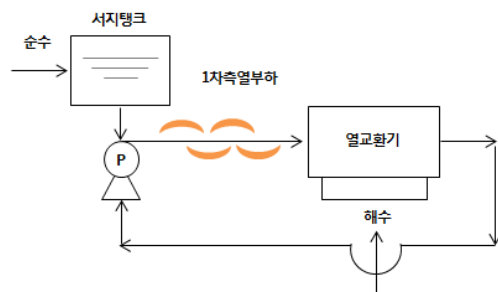


Fig. 1. Flow Sheet of CCW.

2.3 각 원전의 부식방식제 관리 현황

폐액처리용 증발기를 보유하고 있는 고리 1, 2발전소와 한빛 1발전소는 N_2H_4 로의 교체에 별반 어려움이 없으나 폐액증발기가 없고 이온교환수지탑을 이용하는 정화설비를 보유하고 있는 한빛 2발, 한울 3발 및 신고리 1발전소는 폐액 처리시

폐기물 처리시스템의 과부하로 새로운 폐액처리 방안이 제시되지 않는 한, N_2H_4 로의 교체는 사실상 어려운 실정이다.

2.4 예상 폐기물 발생량

2.4.1 수지탑 사용시 예상 폐기물발생량 산정

염농도가 높을 경우 연속제거 운전시에는 pH가 4이하로 떨어져 계통의 부식가능성이 높으며 다량의 폐수지가 발생한다.

- NO_2 eq: $46g, 500\text{톤} \times 200g/\text{톤} = 100,000g$
- $100,000g / 4.6g/L \text{수지} = 2,000L$

실제 양/음이온 수지비가 1:5혼합비 이상 되어야 출구 측 pH가 유지되므로 $2,000L \times 5 = 10,000L$ 폐수지가 발생한다.

2.4.2 EDR 적용시 예상 폐기물발생량 산정

- EDR를 이용한 분리 농축 처리시; 약 100배 가정
- NO_2 $200\text{ppm} \rightarrow 200\text{ppm} \times 100\text{배} = 20,000\text{ppm}$
- $500\text{톤} \times 200\text{ppm} / 20,000\text{ppm} = 5\text{톤}$ 의 분리, 농축폐액
- 5톤(2%)의 폐액을 7일간 자연증발시킬 경우 약 80%(1톤)까지 증발감용이 가능함

2.5 EDR를 이용한 처리시스템 구성

2.5.1 EDR 기술개요

EDR(Electronic Deionization Reverse)은 물속의 염류를 (+), (-) 이온교환막을 설치하고, 양 끝단에 동일한 재질의 전극에 직류 전류를 흘리며, 운전 중 이물질에 의하여 효율이 떨어지면 전류를 역전시켜 이물질의 이동방향을 바꾸어 효율 향상과 이물질의 제거가 가능한 on-line 제거기술이다.

2.5.2 EDR 설비 구성방법

Fig. 2와 같이 우선 마그네틱 필터를 사용하여 제거하고, EDR 셀에 유입된 계통수는 전극측에는 고농도의 전해질을 직체 순환시켜 전기 전도를 유지시키면서 염류만 농축시키고, 고농축시 일정부분을 제거한다. 회석부위는 계통수와 같으며, 특히 이온은 교환막을 통해서 회석 부위에서 농축부위로 이동하는데, 비이온성인 N_2H_4 는 회석부위를 지나는데 과정에서 계통수에 같은 농도로 유지되므로, 장기 $NaNO_2$ 제거 운전기간 동안 계통 내에 남아있는 유입된 용존산소 제거에 용이하고, pH를 9.3까지 유지시킬 수 있어서 부식을 방지한다.

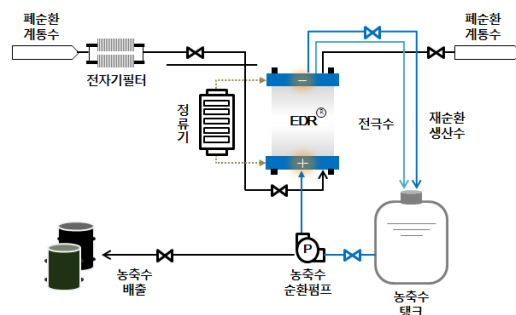


Fig. 2. Schematic diagram of EDR system.

2.5.3 모사폐액을 이용한 EDR 실험결과

양이온과 음이온 전극은 $Ru+$ 사용하고, 양이온 교환막 5장 (200×300 mm)과 음이온교환막 4장 (200×300 mm)을 사용하여 각 전도도를 측정한 결과는 Table 1 다음과 같다.

Table 1. Analysis of conductivity using EDR system

Time(min)	Conductivity(us/cm)			note
	C	D	E	
60	150	1628	7468	2L
120	1747	180	7363	
180	1883	100	7306	

3. 결론

폐수원 냉각계통 방식제 교체의 경우, 저온에 산소 포화수를 희석수로 사용하므로, 교체 중 보호피막이 파괴되어 파손된 보호피막의 탈락으로 탁도 증가현상과 함께 교체약품의 낮은 신뢰도를 가져온다. 따라서, 저온에서 반응도가 뛰어난 중성 아민제를 함께 사용하여 EDR로 $NaNO_2$ 를 제거하는 동안 발생할 수 있는 문제점 해결과, 마그네틱필터로 지속적으로 처리하므로 교체 전후의 계통의 탁도 제거와 EDR 시스템의 제염효율을 증가시킬 수 있다. EDR 시스템은 수위변동이 없어 산소로 포화된 외부 희석수에 의한 보호피막이 파괴되지 않고 약품을 안정적으로 교체하는 대안기술이라 판단되며, 이러한 기술을 적용시 수지 처리공정보다 폐기물 발생량이 약 90% 정도 저감될 수 있을 것으로 기대한다.

4. 참고문헌

- [1] 한국방사성폐기물학회, 2013년 추계학술논문요약집, pp.419-420, 2013.
- [2] Y. Oren, Y. Egozy, Desalination, Vol. 86, No. 2, pp. 155-171, 1992.

한울원전 주변해역 3차원 해양확산평가 모델링

양양희*, 이갑복, 손욱, 손순환

한수원(주)중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70

*vhyang@khnp.co.kr

1. 서론

원자력안전위원회 고시 2012-4호에 원전 운영허가시 해양으로 유입되는 방사성물질에 대해 해양확산을 평가할 것을 제시하고 있다. 일반적으로 원전에서 액체유출물에 의한 선량이 작고 해황변화가 크게 변하지 않는다는 가정 하에 해양희석인자가 결정되면 그 값을 계속 적용해오고 있다. 한울원전에서 적용중인 해양희석인자는 '90년대 중반 미국 규제지침에 제시된 가우시안 모델에 따라 계산된 값으로, 최근의 해양조건에 적합한지 검토할 필요가 있다. 본 연구에서는 한울원전 주변해역의 방사성유출에 대한 해양희석인자의 유효성을 검토하기 위해 해수순환에 대해 3차원 수치모델링을 수행한 내용에 대해 기술하였다.

2. 본론

2.1 모델링 체계

한울원전 가동에 따른 해양확산 평가를 위하여 동해전체를 포함하는 광역모델, 동해중간역 모델 및 원전인근의 협역모델을 구축하여 희석인자(Dilution factor)를 산정한다. 광역모델은 중간역 모델의 초기자료 및 경계조건을 설정하기 위함이다. 중간역 모델에서 부지반경 10~80 km 영역에 대해 해양확산을 평가한다. 격자간격이 3 km인 중간역 모델결과를 가지고 부지경계 약 1 km 부근의 세밀한 평가를 하기에는 한계가 있다. 따라서 협역 모델을 이용하여 부지반경 10 km 이내의 해양확산 평가를 수행한다. 본 수치모델에서는 EFDC 모델을 사용하였다. EFDC 모델은 연안, 하구 등 좁은 지역에서 유동 및 물질수송을 모의할 수 있는 3차원 수치모델링 시스템이다. 해양확산 모델링 체계를 Fig. 1에 제시하였다.



Fig. 1. Dispersion Modeling System.

2.2 모델 보정 및 검증

광역모델의 신뢰성을 위해 속초 등의 동해안 조위관측소의 표층수온과 G1SST(Global 1-km Sea Surface Temperature)의 모델결과를 비교하였다. 비교결과, 관측자료 RMS 오차는 평균 1.67℃, R-square값은 0.91, 모델결과-G1SST RMS 오차는 평균 1.93℃, R-square값은 0.91을 보였다.

중간역 모델은 해·조류 및 수온 검증증을 통하여 모델의 신뢰성을 확인하였다. 해·조류 검증결과를 Fig. 2에 제시하였다. 연안해류조사 RMS 오차는 50 m에서 24.2 cm/s, 50 m에서 19.2 cm/s로 나타났다. 수온검증 결과, RMS 오차의 경우 0.98℃, R-square값은 0.901로 나타났다.

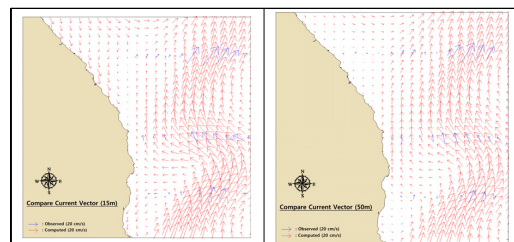


Fig. 2. Results of Intermediate current (L: 15m, R: 50m).

협역모델 검증결과, 해·조류 RMS 오차는 전계절에 걸쳐 평균 8.37 cm/s의 오차를 보였다. 관

측된 해·조류와 계산된 해·조류를 일대일로 대응해 비교한 결과 Fig. 3와 같이 R-square값이 0.707로 나타났다. 협역 모델의 수온 RMS 오차는 하계에 최대 0.86℃, 동계에 최소 0.65℃를 보였으며, 전 계절 평균 0.77℃의 오차를 보였다.

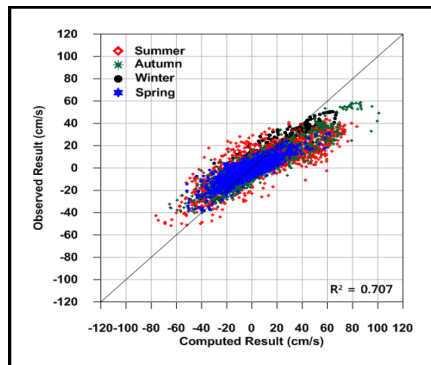


Fig. 3. Distribution of Narrow current.

2.3 해양확산 수치모델링 결과

광역 해수순환모델을 수행한 결과를 Fig. 4에 도시하였다. 그 결과 방사성유출물은 온배수와 함께 배출되어 주변 해수와의 밀도차이로 표층에 부상하여 이류-확산하게 될 것으로 보인다. 동해의 경우 영구 수온약층의 깊이가 약 150~200 m 정도에서 표층과 저층간에 교환이 활발하지 않아 상부에서 확산이 이루어질 것으로 판단된다.

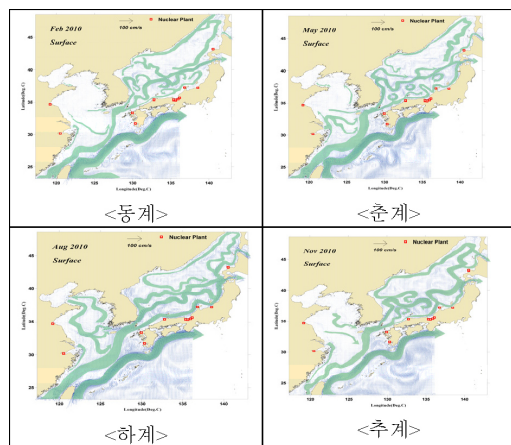


Fig. 4. Wide Hydrodynamic.

광역 해수순환은 부지 인근해역을 전선대로 하여 남, 북방향의 흐름이 서로 만나 동쪽으로 이안하는 흐름을 보이고 있다. 이러한 특성은 남쪽에서 북쪽으로 이동하는 동한난류가 부지 인근에서

이안하여 동진하고, 북쪽에서 남쪽으로 이동하는 북한난류도 남하하다가 이안하여 동진함으로써 확산의 주방향은 동향으로 나타나기 때문인 것으로 판단된다.

단위농도의 방사성 유출물이 해양으로 유출될 경우 그 확산양상을 파악하기 위하여 희석인자(DF, Dilution Factor)를 산정하였다. 희석인자는 방사성물질이 해수중에 이류·확산되어 희석되는 단위를 의미한다. 계산된 확산농도의 역수를 희석인자로 환산하였으며, 계산식은 다음과 같다.

$$D_F = (\chi/Q)^{-1} \quad (1)$$

여기서 D_F 는 희석인자, χ 는 확산농도, Q 는 방류량이다. 해양확산 및 희석인자 분포는 계절별 특성에 많은 영향을 받는 것으로 나타났다. 희석인자는 심층배수구로부터 북쪽 및 남쪽 방향으로 0.5 km 거리에서 각각 25.7, 13.7로 계산되었다.

3. 결론 및 향후 계획

한울원전 해양확산평가를 위하여 수치모델을 이용하였다. 수치모델은 동해 광역, 동해 중간역 및 한울원전 주변의 협역의 3단계 모델을 수행하였다. 동해광역 모델은 동해 중간역 모델의 초기 및 외해경계자료로 활용되었다. 중간역 모델은 부지 반경 10~80 km, 협역 모델은 부지반경 0.5~8 km의 범위에 대하여 평가하였다. 해양확산 평가 결과 한울원전 정상운영시 부지반경 0.5 km에서의 희석인자는 남북 방향으로 각각 연평균 현재 적용중인 값보다 높은 것으로 나타났다.

4. 참고문헌

- [1] 한전전력연구원, “원전 액체 방사성 유출물 해양확산 평가기술 개발 최종보고서”, 산업자원부, R-2004-A-064, 2006.
- [2] 이갑복, 양양희, 손욱, “월성원전 주변 해역의 해양확산 특성 연구”, 한국방사성폐기물학회 춘계, 2005.
- [3] 한울원전 방사능 해양확산평가체계 개발(최종 보고서), 2014, 한국수력원자력(주).

지표면 침적된 방사성핵종의 공중방사선탐사를 위한 NaI(Tl) 검출기 반응함수의 고도에 따른 각도 의존성 평가

지영용^{1*}, 정근호¹, 이완로¹, 김창중¹, 장미¹, 최희열², 김병직², 강문자¹, 최상도¹, 최근식¹

¹한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

²한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 과학로 62번길

*vyji@kaeri.re.kr

1. 서론

방사능 재난 발생시 광범위한 오염지역을 신속하게 탐사하기 위한 방법은 공중방사선탐사 방법 [1, 2, 3]이 가장 효과적인 방법이며, 이는 원자력 사고로부터 plume의 진행 방향 및 크기를 파악할 수 있고 방사성낙진에 의한 지표면 방사능농도의 지도를 제작하는데 아주 유용한 수단이 된다. 공중탐사를 위해 방사선 계측기를 항공기에 탑재하여 운영할 경우 직면하는 가장 큰 문제는 계측기의 현장 교정에 관한 것으로써, 높은 고도에서 측정된 계수율을 지표면의 방사성핵종농도 또는 선량률로 환산하는 인자를 구하는 것이다. 이를 위해 방사성물질의 지표면 침적상태, 항공탐사 고도, 계측기 반응함수 등은 계측기 현장 교정시 반드시 고려해야 할 중요한 변수들이 된다.

본 연구에서는 직육면체 형태의 4x4x16 인치 NaI(Tl) 검출기 4 대가 배열된 공중방사선탐사용 계측기의 반응함수에 대한 각도 의존성을 MCNP 코드를 이용하여 고도별로 평가하였다. 이를 위해 지표면에 침적된 방사성핵종의 분포함수에 대하여 계측기 고도별로 방사선 플루언스의 각도분포를 계산하였다. 그리고 공중방사선탐사용 계측기의 반응함수를 방사선 입사 각도에 따라 평가함으로써 최종적으로 계측기 고도에서 계측기 반응함수에 대한 각도 보정인자를 도출하였다.

2. 본론

2.1 MCNP 모델링 개념

먼저 공중방사선탐사를 위하여 제작된 4x4x16 인치 NaI(Tl) 검출기 4대의 배열 구조에서 입사방사선의 각도에 따른 반응함수의 변화를 확인하기 위하여 Fig. 1의 (a)와 같이 입사 방사선의 각도를 0에서부터 85도까지 x-, y-, 및 xy-방향으로 각각 변화시켜 얻은 전에너지흡수 피크면적의 평

균을 계측기 반응함수 특성으로 평가하였다. 그리고 지표면에 침적된 방사성핵종의 분포함수에 기인한 계측기 고도에서 방사선 플루언스의 각도분포를 구하기 위하여 Fig. 1의 (b)와 같이 300 m까지의 고도별로 계측기 입사창을 지나는 방사선의 각도분포를 평가하였다.

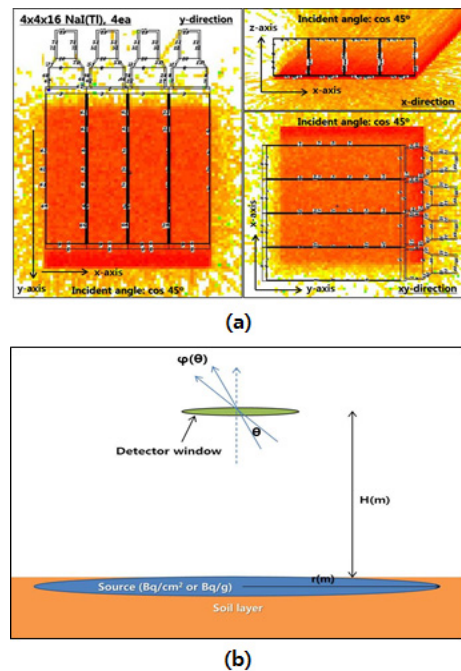


Fig. 1. Modeling concepts for angular responses of a detector (a) and angular distributions of photon flux (b).

2.2 반응함수의 각도 의존성 평가

계측기 반응함수에 대한 각도 보정은 방사선의 수직입사($\theta=0$)에 대하여 임의의 각도(θ)로 입사할 때의 계수율 비, $R(\theta)$ 와 실제 계측기 고도에서 방사선 플루언스의 각도분포를 이용하여 식 (1)과 (2)에서와 같이 최종적인 각도 보정인자를 유도할 수 있다.

$$\frac{N}{N_0} = \frac{\int R(\theta)\phi(\theta)d\theta}{\int \phi(\theta)d\theta} \quad (1)$$

$$R(\theta) = \frac{cps(\theta)}{cps(\theta=0)} \quad (2)$$

여기서, N은 계측기 고도에서 실제 측정된 전에너지 흡수피크 면적, N₀는 계측기 고도에서 수직 방향으로만 입사하는 감마선에 대한 전에너지 흡수피크 면적, R(θ)는 계측기 반응함수의 각도 의존성, 그리고 ϕ(θ)는 계측기 고도에서 방사선 플루언스의 각도 분포를 의미한다.

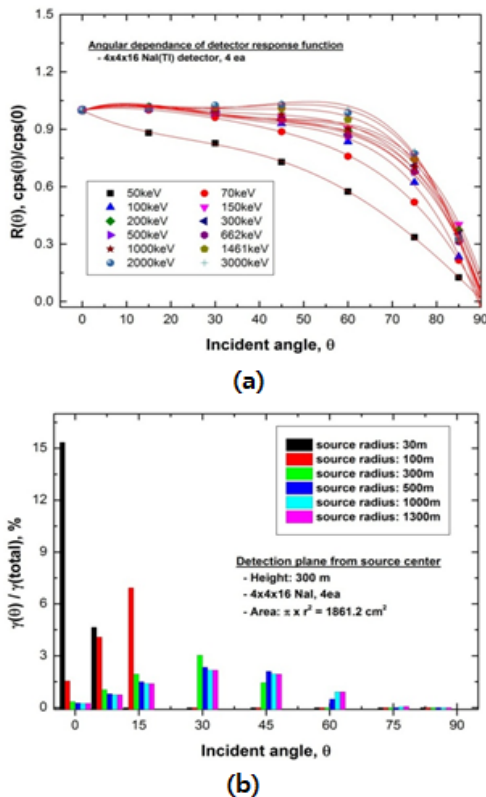


Fig. 2. Calculation results for angular responses of a detector (a) and angular distributions of photon flux (b).

Fig. 2 (a)에 4x4x16 인치 NaI(Tl) 검출기 4대의 배열 구조에서 입사방사선의 각도에 따른 반응함수의 변화를 방사선 에너지별로 계산한 결과를 나타내었다. 약 60에서 70도 범위에서 입사방사선의 에너지에 대한 각도 의존성의 변화가 가장 크게 나타났으며, 입사 각도에 따른 전에너지 흡수

피크의 면적이 수직 입사보다 큰 경우가 관찰되었다.

그리고 계측기 고도 300 m에서 지표면 방사성핵종의 분포에 따른 방사선의 각도 분포에 대한 평가를 Fig. 2의 (b)에 나타내었으며, 이때, 감마선의 에너지를 50에서 3000 keV까지 변화시켜 얻은 결과의 평균을 최종 고도에서의 각도 분포로 활용하였다. 그림에서 보듯이, 지표면 선원 분포의 반경이 고도에 비해 아주 작은 경우, 수직으로 입사하는 감마선의 비율이 약 15%로 최대였으며, 7.5 도로 입사하는 감마선은 약 4.5%, 그리고 15도 이상의 입사각에서는 감마선의 비율이 거의 0으로 떨어졌다. 그리고 선원 분포 반경이 고도와 거의 같을 때는 약 30 도의 입사각을 가진 감마선의 비율이 약 3%로 최대였으며, 지표면 선원 분포가 고도보다 커질 경우, 대부분 45 도 부근에서 최대의 감마선 분포를 보였다.

3. 결론

공중방사선탐사를 위하여 제작된 4x4x16 인치 NaI(Tl) 검출기 4대의 배열 구조에 대하여 계측기 반응함수의 고도별 각도 의존성을 평가하였다. MCNP 코드를 이용하여 방사선의 고도별 각도 분포와 계측기 반응함수의 각도 의존성을 계산하였으며, 이로부터 계측기 반응함수에 대한 각도 보정인자를 고도별 및 계측기별로 도출할 수 있었다. 이를 바탕으로 지표면에 침적된 방사성핵종의 농도 및 선량률을 환산하는데 신뢰성 있는 결과를 제공할 수 있을 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

- [1] A. E. Proctor, "Aerial Radiological Surveys", DOE/NV/11718-127, UC-702, (1997).
- [2] A. E. Proctor, "An Aerial Radiological Survey of the Nine Mile Point and James FitzPatrick Nuclear Power Plants and Surrounding Area", DOE/NV/11718-021, (1997).
- [3] IAEA, "Guidelines for radioelement mapping using gamma ray spectrometry data", IAEA-TECDOC-1363, (2003).

소형 CMOS 카메라 모듈을 이용한 감마선 검출

장재석, 신상훈, 장경원, 심혁인, 홍승한, 김선근, 전해수, 김재석, 권구원, 유육재, 이봉수*

건국대학교, 충청북도 충주시 충원대로 268

*bslee@kku.ac.kr

1. 서론

1986년 체르노빌 사고를 비롯해 최근 2011년 일본 후쿠시마에서 일어난 방사능 누출사고로 인해 인명과 환경에 큰 피해를 주었다. 그로인해 일본뿐만 아니라 한국을 포함한 주변국까지 방사능 오염 위험으로부터 노출되어 있는 상황이다. 이에 따라 환경 방사능 오염여부를 손쉽게 판단할 수 있는 휴대용 방사선 검출기에 대한 관심이 점차 증가하고 있다.

현재 휴대용으로 방사능 측정을 위한 검출기로는 가이거 뮐러 계수관 (Geiger - Müller tube, GM tube), 섬광 검출기 (scintillation detector) 등이 있다. 가이거 뮐러 검출기는 쉽게 방사능 검출이 가능하지만 불감 시간이 길고, 수명이 짧으며 검출 오차가 큰 단점을 가진다. 섬광 검출기는 고전압의 광증배관을 필요로 하고, 직사광선의 노출에 주의해야 하는 단점을 가지고 있다.

본 연구에서는 소형 상보형 금속산화 반도체 (complementary metal-oxide semiconductor, CMOS) 카메라 모듈을 이용한 휴대용 방사선 검출기 개발의 일환으로 ^{137}Cs 의 감마선에 의한 소형 CMOS 카메라의 영상 노이즈와 방사능 세기와의 관계를 분석하였다. 실험에 사용된 CMOS 카메라 모듈 (SHW-M100S)은 생산 공정이 간단하고 대량생산이 가능하기 때문에 가격이 저렴하다. 그리고 대부분의 구동 회로가 부피가 작은 하나의 칩으로 구성되므로 소형화가 가능하고 휴대성이 뛰어나며 간단한 시스템 구조로 인해 저 전력으로 동작이 가능하다. 또한 낮은 방사능에서도 영상 노이즈를 생성하기 때문에 휴대용 환경 방사선 검출기로의 활용이 가능하다[1].

2. 본론

2.1 실험 재료 및 방법

Fig. 1은 실험에 사용된 소형 CMOS 카메라 모듈을 보여준다. SHW-M100S의 화소는 720×480 (H×V)이며, 초당 29프레임의 성능을 가지고 있다.

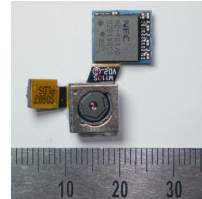


Fig. 1. Structure of the CMOS camera module.

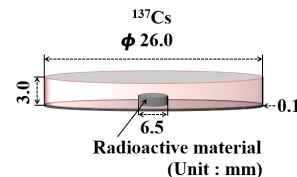


Fig. 2. Structure of disc type ^{137}Cs radioisotope.

Fig. 2는 실험에서 사용한 방사성동위원소 (radioisotope)의 구조를 보여준다. 실험에서는 $0.2 \sim 5 \mu\text{Ci}$ 의 방사능을 가진 ^{137}Cs 방사선원을 사용하였다. ^{137}Cs 은 85.1% 확률로 661.7 keV의 감마선을 방출한다. 본 연구에 사용된 ^{137}Cs 방사선원은 디스크 (disk-type)형태이며 방사성핵종의 누출과 오염을 막기 위해 0.1 mm 두께의 플라스틱으로 외부와 차단되어 있다.

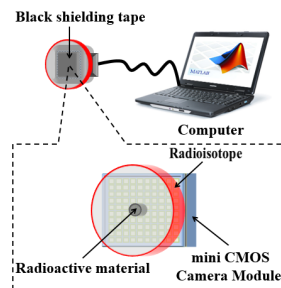


Fig. 3. Experimental setup for detection of gamma-rays using the CMOS camera module.

Fig. 3은 소형 CMOS 카메라 모듈을 이용하여 방사선을 검출하기 위한 실험구성을 보여준다. 외부로부터 가시광의 유입을 차단하기 위해서 카메라

라 모듈을 차광 테이프 (black shielding tape)를 이용하여 차폐하였다. 소형 CMOS 카메라 모듈의 중앙에 방사선원이 위치하도록 고정시킨 후 실험을 수행하였다.

본 실험에서는 소형 CMOS 카메라 모듈을 5분 동안 ^{137}Cs 방사선원에 노출 시키고 영상을 획득 후, MATLAB (Mathworks, Natick, MA, USA)을 이용하여 영상의 백그라운드 노이즈 제거 및 백색 픽셀 카운트(방사선에 의한 영상 노이즈)를 분석하였다.

2.2 실험 결과

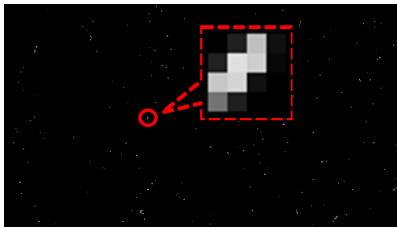


Fig. 4. Output image of the CMOS module exposed by gamma-ray of ^{137}Cs .

Fig. 4는 사진의 백그라운드 노이즈를 제거 후, 백색 점을 중첩시킨 사진을 보여준다. 감마선이 소형 CMOS 카메라 모듈 내에 입사하면 전자-전공쌍이 생성되고 발생한 전자-전공쌍은 영상소자의 순간 출력 광전류로 변화되어 백색 점 형태의 영상 잡음으로 나타나게 된다. 이때 발생한 백색 점을 이루는 픽셀 수는 방사능 세기에 비례하여 증가하는 특성을 보인다. 모든 실험은 소형 CMOS 카메라 모듈에서 ^{137}Cs 방사선원에 의해 발생한 백색 픽셀을 카운트하여 방사능 세기와 비교, 분석하였다[2].

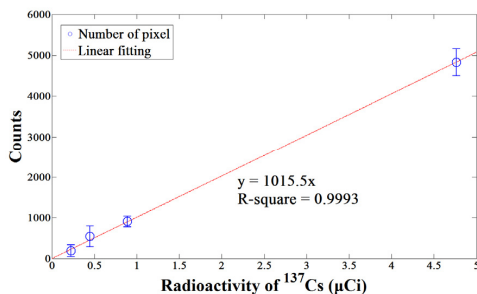


Fig. 5. Relationship between activities of ^{137}Cs isotopes and counts of white pixels.

Fig. 5는 방사능 세기에 따른 소형 CMOS 카메라 모듈의 영상 노이즈 계수 결과를 보여주고 있

다. 방사선에 의해 소형 CMOS 카메라 모듈 내의 반도체형 영상소자는 영상 노이즈를 출력하고 방사선원의 방사능 세기가 증가함에 따라 영상 노이즈가 증가하여 백색 픽셀 수가 선형적으로 증가함을 확인하였다.

3. 결론

본 연구에서는 소형 CMOS 카메라 모듈을 이용한 휴대용 방사선 검출기 개발을 위한 목적으로, 소형 CMOS 카메라 모듈을 이용하여 방사능 세기에 따라 획득된 영상의 노이즈를 비교, 분석하였다.

소형 CMOS 카메라 모듈이 방사선에 노출되면 백색의 영상 노이즈가 발생된다. 실험 결과, ^{137}Cs 방사선원의 방사능 세기가 증가함에 따라 측정되는 백색 점을 이루는 픽셀 수가 선형적으로 증가하는 것을 확인하였다. 본 연구를 통하여 소형 CMOS 카메라 모듈을 이용한 방사능 측정 가능성을 확인하였고, 지속적인 연구를 통하여 환경 방사능 및 적은 양의 누설 방사능 역시 검출이 가능할 것으로 기대된다.

앞으로의 연구는 신속한 방사선 검출을 위하여 다양한 종류의 CMOS 및 CCD 카메라를 이용하여 영상 획득 시간을 감소시키는 것이다.

4. 감사의 글

이 논문은 2013년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 원자력연구사업임(No. 2013004348). 또한, 이 논문은 2013년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 기초연구사업임(No. 2013R1A1A1061647).

5. 참고문헌

- [1] Shunsuke Inoue, Katsuhito Sakurai, Isamu Ueno, Toru Koizumi, Hiroki Hiyama, Tetsue Asaba, Shigetoshi Sugawa, Atsushi Maeda, Keiichi Higashitani, Hisayuki Kato, Koji Iizuka, and Masao Yamawaki, Proc. 2001 CCD & AIS workshop, pp. 16-19, 2001.
- [2] P. Colas, A.P. Colijn, A. Fornain Y. Giomataris, H. van der Graaf, E.H.M. Heijne, X. Llopart, J. Schmitz, J. Timmermans, J.L. Visschers, Nucl. Instrum. Phys. Res. A, vol. 535, pp. 506-510, 2004.

2014 **춘계**학술논문요약집

발행인 송명재
발행처 한국방사성폐기물학회
주 소 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
한국원자력연구원 원자력성과확산관(53A) 202호
연락처 Tel +82-42-861-5851, +82-42-866-4205
Fax +82-42-861-5852 E-mail krs@krs.or.kr
인쇄처 신진기획인쇄사 / Tel +82-42-638-7887

Abstracts of Proceedings of the
Korean Radioactive Waste Society **SPRING 2014**

www.krs.or.kr



사단 **한국방사성폐기물학회**
법인 Korean Radioactive Waste Society