ISSN 1738-1142

Volume 13(1) **2015**

KOREAN RADIOACTIVE WASTE SOCIETY

2015 춘계학술논문요약집

Abstracts of Proceedings of the
Korean Radioactive Waste Society SPRING 2015

일 시

2015. **5.27**(수) – **5.29**(금)

장 소

인천 송도 컨벤시아

후 원

한국과학기술단체총연합
한국수력원자력㈜
두산중공업㈜
한국원자력연구원

사단법인 한국방사성폐기물학회
Korean Radioactive Waste Society

2015 **춘계**학술발표회

이 발표논문집은 2015년도 정부재원(과학기술진흥기금 및 복권기금)으로
한국과학기술단체총연합회의 지원을 받아 발간하였음

KOREAN RADIOACTIVE WASTE SOCIETY

2015
춘계학술논문요약집

Abstracts of Proceedings of the
Korean Radioactive Waste Society **SPRING 2015**

일 시

2015. **5.27**(수) – **5.29**(금)

장 소

인천 송도 컨벤시아

후 원

한국과학기술단체총연합
한국수력원자력㈜
두산중공업㈜
한국원자력연구원

사단 법인 한국방사성폐기물학회
Korean Radioactive Waste Society

목 차

1분과 후행핵연료주기기술 및 정책 (Oral)

09:00~09:20 전해환원을 위한 염화리튬계 전극 순환주사 실험 결과 분석 ····· 15
박병흥[한국교통대학교], 임현숙, 최은영, 허진목[한국원자력연구원]

09:20~09:40 물과 KNO_3 용융염을 이용한 원형 액체 수위 측정 시스템의 최적화 ····· 17
이진홍, 김종윤, 박태홍, 배상은[한국원자력연구원]

09:40~10:00 파이로시설 예비개념설계를 위한 안전조치시스템 요건 개발 ····· 19
안성규, 권은하, 김봉영, 서희, 송대용, 원병희, 이채훈, 조광호, 박세환, 박근일[한국원자력연구원]

10:00~10:20 Stand-off Telescopic LIBS 장치를 이용한 란탄족 원소들의 정량분석 ····· 21
최대웅, 박세환, 박근일, 한보영[한국원자력연구원]

10:40~11:00 고농도 염소이온(Cl^-) 용액환경에서 악틴-Cl 및 란탄-Cl 이온간 화학결합 특성연구 ·· 23
조영환, 김대현, 배상은, 박태홍[한국원자력연구원]

11:00~11:20 Raman Spectroscopic Study of Dysprosium(III) Chloride in Molten LiCl-KCl Eutectic ····· 25
Seung Park and Jong-Il Yun[KAIST]

11:20~11:40 사용후핵연료 건식저장 초장기화에 따른 주요 열화기구 및 연구방향 ····· 27
국동학, 양용식, 구양현[한국원자력연구원]

11:40~12:00 Selection Strategy of Representative Spent Nuclear Fuel ····· 29
S.K.Lee, S.Y.Kim, Y.H.Lee, N.G.Park, D.U.Choi, and C.J.Lim[KEPCO NF]

1분과 후행핵연료주기기술 및 정책 (Poster)

P0101 연소도이득을 적용한 핵임계안전성평가를 위한 Depletion 계산코드의 검증 ····· 33
윤형주, 홍서기, 박광헌[경희대학교]

P0102 Monte Carlo Codes (KENO-Va, MCNP-X, SERPENT) 임계실험 검증 ····· 35
김광봉[조선대학교], 차균호[한수원㈜중앙연구원]

P0103 네오디뮴 및 방사성 핵분열생성물 지표원소를 이용한 SFR 금속핵연료 연소도측정 ·· 37
김정석, 김영복, 전영신, 박양순, 강병만, 박재일, 하영경[한국원자력연구원]

P0104 사용후 핵연료봉의 천공장치에 대한 성능평가 ····· 39
이형권, 김도식, 전용범, 서항석, 권형문, 장정남, 김성근[한국원자력연구원]

P0105 XRF를 이용한 사용후핵연료 측정시 저에너지 영역에서의 Compton Suppression System 성능 평가 ····· 41
이승규, 서희, 원병희, 이채훈, 김호동, 권형문, 박세환[한국원자력연구원]

P0106 **카드뮴 염소화 반응을 이용한 UCl_3 제조방법** ····· 43
우문식, 안도희, 백승우[한국원자력연구원]

P0107 **ACPF 알곤 셀 정제기 개발** ····· 45
박병석, 이종광, 유승남, 조일제, 김기호[한국원자력연구원]

P0108 **ACPF 개조 핫셀의 원격조종기** ····· 47
김기호, 김성현[한국원자력연구원]

P0109 **Hotcell내 조사후핵연료봉 소결체 제거 자동제어장치 개발** ····· 49
서항석, 전용범, 김도식, 이형권, 권형문, 장정남, 권인찬, 정상희[한국원자력연구원]

P0110 **광섬유케이블을 이용한 핫 셀 내 LIBS 적용 및 성능평가** ····· 51
한보영, 최대웅, 박세환, 박근일[한국원자력연구원]

P0111 **OPC 통신을 활용한 PRIDE 원격시스템 시뮬레이션 아키텍쳐** ····· 53
류동석, 김성현, 조일제, 김기호[한국원자력연구원]

P0112 **PRIDE 시설 Argon Tank 내 상부 기체분석** ····· 55
노선호, 장영국, 조일제[한국원자력연구원]

P0113 **PRIDE 아르곤셀 작업창의 유지보수 체계 수립** ····· 57
한종희, 장영국, 노선호, 이원경, 홍동희, 조일제, 김기호[한국원자력연구원]

P0114 **공학규모 파이로 일관공정 시험시설(PRIDE) Exhaust Vent Seal Pot 성능개선** ····· 59
장영국, 노선호, 조일제[한국원자력연구원]

P0115 **PRIDE 통합비파괴장치를 이용한 DU 농축도 측정** ····· 61
이채훈, 조광호, 서희, 박세환, 나상호, 이승규, 원병희, 안성규, 김호동[한국원자력연구원]

P0116 **PRIDE 핵물질 재고관리 시스템** ····· 63
송대용, 노선호, 장영국, 강희석, 박세환, 조일제[한국원자력연구원]

P0117 **대용량 경사형 절개탈피복장치 공학설계** ····· 65
김영환, 조용준, 이재원, 안도희[한국원자력연구원]

P0118 **폐 피복관 처리기술선정** ····· 67
강권호, 이창화, 전민구, 한승엽, 박환서, 안도희[한국원자력연구원]

P0119 **방사화 지르코늄 피복관 전해정련 3차원 전산모델링** ····· 69
박재영[한국원자력안전기술원], 최성열[UNIST], 손성준, 황일순[서울대학교], 김광락[한국원자력연구원]

P0120 **온도와 후프응력에 따른 수소화물재배열의 정량적 평가** ····· 71
김영준, 김주성, 장정남[한국원자력연구원]

P0121 **파이로시설 예비개념설계를 위한 안전조치 격납/감시시스템 설계요건 개발** ····· 73
조광호, 안성규, 박세환, 박근일[한국원자력연구원]

P0122 **사건수목을 이용한 파이로시설의 안전성 분석 방안** ····· 75
서석준, 문성인, 정원명, 유길성, 구정회, 이효직[한국원자력연구원]

P0123 **파이로 안전조치를 위한 준실시간 계량관리 시스템 적용 방안 연구** ····· 77
원병희, 신희성, 안성규, 한보영, 박세환, 박근일[한국원자력연구원]

P0124 공학규모 파이로 일관공정 시험시설 운영 ····· 79
조일제, 장영국, 노선호, 강희석, 송대용, 안도희[한국원자력연구원]

P0125 Analysis of Safety Evaluation Guidelines for Pyrprocessing Facilities ····· 81
Seong-In Moon, Seok-Jun Seo, Gil-Sung You, Won-Myung Chong, Jeong-Hoe Ku, Hyo-Jik Lee, Ho-Dong Kim, Geun-Il Park[KAERI], and Chad Pope[Idaho State Univ.]

P0126 파이로시설의 안전성 평가체계 분석 ····· 83
유길성, 문성인, 정원명, 서석준, 구정회, 이효직[한국원자력연구원], 전관식[㈜라드웍스]

P0127 고온 용융염 내 Nd 이온의 농도에 대한 전기화학 측정법 연구 ····· 85
김대현, 배상은, 김종윤, 박태홍, 연제원[한국원자력연구원]

P0128 공기분위기하에서 온도에 따라 소결한 펠렛의 환원시 O/U비 변화 ····· 87
나상호, 송대용, 박세환[한국원자력연구원], 유명준[한전원자력연료㈜]

P0129 열처리분위기에 따른 우라늄산화물 압분체의 소결 거동 ····· 89
이재원, 전상채, 강상준, 이도연, 이영순, 조용준[한국원자력연구원]

P0130 고온 용융염 매질 내 일정 면적을 유지하는 전극 제작 연구 ····· 91
이나리, 박태홍, 배상은, 김대현, 연제원[한국원자력연구원], 김종원[충북대학교]

P0131 고온 용융염 측정용 액체 수위 공정 분석 시스템 설계 ····· 93
김종윤, 이진홍, 박태홍, 배상은, 김택진, 김시형, 백승우[한국원자력연구원]

P0132 고온 휘발 산화공정에서의 안정상 검토를 위한 상도 분석 ····· 95
강조홍, 박병흥[한국교통대학교]

P0133 Impact of High Burnup on the Management of PWR Spent Fuel ····· 97
Phina Thauge, Chang Lak Kim[KINGS], and Yong Deog Kim[KHNP CRI]

P0134 중간저장시설용 사용후핵연료 금속겸용용기의 안전설계 및 검사기준 수립에 대한 고찰 ····· 99
김태만, 도호석, 조천형[한국원자력환경공단]

P0135 사용후핵연료 저장조에서의 운반용기 낙하사고 검토 ····· 101
정성환, 김기영[한수원㈜중앙연구원]

P0136 사용후핵연료 저장방식 고찰 ····· 103
정성환, 김용덕, 김기영[한수원㈜중앙연구원]

P0137 사용후핵연료 중간저장시설 피폭선량평가를 위한 평가반경에 대한 고찰 ····· 105
이동진, 윤형준, 이병식[한국전력기술㈜]

P0138 방사성폐기물 포장용기 열 유속 검사장치 예비성능시험 ····· 107
방경식, 유승환, 이상훈, 이주찬, 최우석[한국원자력연구원]

P0139 LiCl-KCl 공융염에서 음극재의 종류에 따른 U 전해정련 특성연구 ····· 109
이창화, 강덕윤, 이성재, 박성빈, 백승우, 안도희[한국원자력연구원]

P0140 사용후핵연료 관리공정 실증시설의 HVAC 및 알곤 공급계통 성능평가 ····· 111
유승남, 한종희, 류동석, 이종광, 김성현, 박병석, 조일제, 김기호[한국원자력연구원]

P0141 사용후핵연료 중간저장시설 설계기준 초과사고시 방사성물질 확산기간 및 평가면적에 따른 영향 분석 ····· 113
최광순, 이동진, 정완일, 이병식[한국전력기술㈜]

P0142 파이로 안전조치시스템 예비개념설계를 위한 시료분석실 요건 개발 ····· 115
김봉영, 안성규, 박광준, 박세환, 박근일[한국원자력연구원]

2분과 방사성폐기물 처분 및 부지특성 (Oral)

09:00~09:20 Electrochemical Studies on Aqueous Uranium Redox Reactions and Nanoparticle Formation using Boron-doped Diamond Electrode ····· 119
Wansik Cha, Euo Chang Jung, and Hye-ryun Cho[KAERI]

09:20~09:40 환원조건에서 KURT 단열충전물의 우라늄 수착거동 영향 ····· 121
이승엽, 이재광, 류지훈, 백민훈[한국원자력연구원]

09:40~10:00 중성자 흡수능을 갖는 합금 제작을 위한 Fe-Gd 모합금에 관한 연구 ····· 123
이상욱, 임재한, 안지호, 정현도, 문병문[한국생산기술연구원]

10:00~10:20 A Study on Applicability of a New Neutron Absorber Based on Radioactive Vitrified Forms for PLUS7 and WH17x17 Spent Fuel Storages ····· 125
Jae Hyun Kim, Song Hyun Kim, Chang Ho Shin[Hanyang Univ.]
Jung Hun Choe, In Hak Cho, and Hwan Seo Park[KAERI]

10:40~11:00 경주 중·저준위 방사성폐기물 복합처분시스템의 원계영역 내 상호의존적 안전성평가 ····· 127
한솔찬, 조용흠, 이준엽, 윤종일[KAIST]

11:00~11:20 우라늄 장기거동 이해를 위한 우라늄 함유 광물의 메타믹트화 작용 해석 연구 ··· 129
박태진, 신주도, 백민훈, 김경수[한국원자력연구원], 임준혁, 이용재[연세대학교]

11:20~11:40 Design of a Tracer Test Equipment Minimizing the Experimental Errors ····· 131
Sung-Hoon Ji and Yong-Kwon Koh[한국원자력연구원]

11:40~12:00 해안지역 암반대수층의 침투수량 산정 평가 ····· 133
이정환, 정해룡, 박주완[한국원자력환경공단]

2분과 방사성폐기물 처분 및 부지특성 (Poster)

P0201 극저준위 해체 폐기물 최소화를 위한 자체처분 규정 분석 ····· 137
최윤지, 김창락[한전국제원자력대학원대학교]

P0202 파이로 공정 폐기물 물질특성 분석 ····· 139
김현민, 서중석, 이효직[한국원자력연구원]

P0203 첨단흡수소재를 이용한 사용후핵연료 저장 수조에서의 핵적 성능 분석 ····· 141
김미진, 이희재, 손동성[UNIST]

P0204 처분대상 방사성폐기물의 방사선 및 구조적 건전성을 위한 장치 현황 ····· 143
장원혁, 곽경길, 김태국, 신기백, 홍대석[한국원자력연구원]

P0205 한국원자력연구원 핵주기시설 폐기물의 분류 및 처분방안 연구 ····· 145
장원혁, 강일식, 신기백, 안홍주, 홍대석[한국원자력연구원]

P0206 처분공 위치에 대한 지하수 유동 관련 변수 분포 평가 ····· 147
고낙열, 김경수, 김건영[한국원자력연구원]

P0207 국내 심부 결정질암반 조사지역 지구화학환경 특성 평가 ····· 149
권장순, 김지연, 정수림, 고용권[한국원자력연구원], 박성민[㈜모음과나눔]

P0208 월성원자력환경관리센터 건설중 수문분야 부지감시 ····· 151
권장순, 김지연, 고용권[한국원자력연구원], 박성민[㈜모음과나눔], 옥순일[한국원자력환경공단]

P0209 수리간섭시험을 통한 지하처분연구시설(KURT) 확장 영역의 투수성 지질구조 도출 ····· 153
박경우, 김건영, 고용권, 권장순[한국원자력연구원]

P0210 연속화학추출법을 이용한 KURT 화강암에서 천연우라늄의 분포 특성분석 ····· 155
신주도, 백민훈, 박태진[한국원자력연구원], 민제호[한국방사선진흥협회]

P0211 화재 시뮬레이션을 통한 지하처분연구시설(KURT) 내 피난안전성 연구 ····· 157
윤찬훈, 김건영[한국원자력연구원], 민대기[㈜범창종합기술]

P0212 압축벤토나이트 완충재의 열팽창특성 ····· 159
이재완, 최영철, 이민수, 최희주[한국원자력연구원]

P0213 압축벤토나이트의 장기 팽윤 거동 ····· 161
이민수, 유맑고밝게빛나라, 최희주[한국원자력연구원]

P0214 터널 손상도 평가를 위한 암반 균열 신호 특성 분석 ····· 163
최영철, 김진섭[한국원자력연구원]

P0215 트렌치 처분장 지진 발생에 따른 이동 경로 민감도 ····· 165
이연명, 최희주[한국원자력연구원]

P0216 핵종선택에 따른 처분시스템 핵임계 민감도 분석 ····· 167
김인영, 최희주[한국원자력연구원]

P0217 KBS-3 처분개념의 국내 적용 경험과 전망 ····· 169
최희주, 김인영, 이종열, 이민수[한국원자력연구원]

P0218 국외 폐밀봉선원 관리현황 고찰 ····· 171
이승희, 김주열, 김석훈, 김주엽, 윤태빈, 이은용[㈜미래와도전]

P0219 원전 주요국의 사용후핵연료 관리정책 최근 동향 ····· 173
조현진, 김수진, 박원홍, 하재철, 이정환, 권기정, 박주완, 정해룡[한국원자력환경공단]

P0220 해외 고준위방사성폐기물 심층처분시설의 폐쇄 후 안전 규제검증현황 ····· 175
김지현, 한경원, 박상훈[㈜라드웍스], 서은진, 정찬우[한국원자력안전기술원]

3분과 제염해체 및 방사성폐기물 처리 (Oral-1)

09:00~09:20 원전 중대사고 발생 폐액 내 방사성 I의 제거를 위한 Ag함침 흡착제의 특성연구 ··179
이근영, 이일희, 김광욱, 정동용, 문제권[한국원자력연구원]

09:20~09:40 화학제염제를 함유한 나노복합유체의 이미지 분석을 통한 거품 구조 및 안정성 평가 ····181
윤인호, 정종헌, 김초롱, 양한범, 문제권, 최왕규[한국원자력연구원]

09:40~10:00 금속방사성폐기물 제염 기술 개발 현황 ····183
최영구, 안승건, 김대환, 유석준, 강정기[㈜선광티앤에스]

10:00~10:20 Decommissioning Waste Classification of Bioshield Concrete for Wolsong Unit 1 ····185
Young-kyu Jung and Chang Lak Kim[KINGS]

10:40~11:00 환원 제염에서의 Crevice 부식에 미치는 pH의 영향 ····187
정준영, 박상윤, 원휘준, 최왕규, 문제권[한국원자력연구원], 박소진[충남대학교]

11:00~11:20 실감형 원격절단 시뮬레이터를 위한 준대형 가시화 시스템의 구축 ····189
이종환, 현동준, 김익준, 김근호, 서재석, 정관성, 최병선, 문제권[한국원자력연구원]

11:20~11:40 해체 안전성평가 방법론에 관한 IAEA의 접근법 분석 ····191
안상면, 이정준, 육대식, 정찬우, 이병수[한국원자력안전기술원]

11:40~12:00 부지의 잔류오염도 평가를 위한 현장 측정기술의 적용 ····193
홍상범, 최용석, 남종수, 서범경, 문제권[한국원자력연구원]

3분과 제염해체 및 방사성폐기물 처리 (Oral-2)

09:00~09:20 LiCl 방사성 염폐기물 처리를 위한 U-SAP 고화체의 물리화학적 특성 분석 ····197
이기락, 박환서, 조인학, 은희철, 최정훈[한국원자력연구원]

09:20~09:40 인산암모늄과 초음파 복합공정을 이용한 오염 수지중의 ^{14}C 제거실험 ····199
김현기, 박종석, 김승일, 허준, 이세반, 조영수, 강덕원[㈜휴비스워터]

09:40~10:00 국내의 원자로 방사선 특성평가 준비사항 ····201
임석남, 채경선, 정도영, 이종철[세안기술㈜]

10:00~10:20 오염표면 내 방사성 세슘을 제거하기 위한 흡착제/하이드로젤 복원소재 제조 ····203
양희만, 홍상범, 이근우, 서범경, 문제권[한국원자력연구원]

10:40~11:00 FISPACT 중성자 에너지 그룹 형태에 따른 방사화 영향 분석 ····205
차길용, 김순영[㈜래드코어], 이재민[TUV라인란드코리아], 김용수[한양대학교]

11:00~11:20 나트로라이트의 고압 물성을 이용한 다중 핵종 이온의 격리 반응 연구 ····207
임준혁, 성동훈, 이용재[연세대학교], 이승엽[한국원자력연구원]
Douglas A. Blom, Thomas Vogt[Univ. of South Carolina], Chi-Chang Kao[SLAC]

11:20~11:40 생체 콘크리트 불순물 함량에 따른 방사화 영향 분석 ····209
차길용, 김순영[㈜래드코어], 이재민[TUV라인란드코리아], 김용수[한양대학교]

11:40~12:00 염소화 열중량분석기를 이용한 CsI의 염소화 반응속도 분석 ····· 211
전민구, 최용택, 허진목, 박환서, 안도희[한국원자력연구원]

3분과 제염해체 및 방사성폐기물 처리 (Poster)

P0301 방사성 농축폐액 시료 전처리 및 감마선 방출핵종 측정 ····· 215
박용준, 손세철, 김영복, 최계천, 송병철, 안홍주, 하영경[한국원자력연구원]

P0302 테크네튬 측정을 위한 고방사성 칼슘필터 용해 ····· 217
최광순, 김영복, 이창헌, 김정석, 하영경[한국원자력연구원]

P0303 삼중수소 시료분석용 PE 바이알 처리방법의 최적화 ····· 219
주광태, 이대수, 박세준, 이진한, 서지웅[㈜코라솔]

P0304 한국표준원전 증기발생기 전열관 가동중검사의 X-Probe 검사 수행 시 예상되는 방사성폐기물 감소량 분석 ····· 221
심은섭[㈜오르비텍]

P0305 Hybrid 흡착제를 이용한 누설 오염수중의 ^{137}Cs, ^{60}Co 핵종 제거기술 개발 ····· 223
허준, 김승일, 박종석, 김현기, 이세반, 조영수, 강덕원[㈜휴비스워터], 이만길[한국수력원자력㈜]

P0306 Copper Ferrocyanide가 고정된 메조포러스 실리카 자성 흡착제를 이용한 세슘의 제거 ····· 225
양다솜, 이기원[한국원자력연구원], 이현규, 오원진, 최상준[경북대학교]

P0307 세슘이온의 선택적 제거를 위한 Metal Ferrocyanide/MWCNTs 복합체의 제조 및 특성연구 ····· 227
이현규, 김동연, 최정원, 오원진, 최상준[경북대학교]

P0308 Imidazolium 및 Pyridinium 계열의 이온성 액체를 이용한 세슘, 스트론튬 추출 연구 ····· 229
최정원, 김동연, 이현규, 오원진, 최상준[경북대학교]

P0309 Microstructure of Synroc Nano-crystalline Powders as a Waste Ceramic Forms by a Solution Combustion Synthesis ····· 231
Choong-Hwan Jung, Young-Min Han, and Yeon-Ku Kim[KAERI]

P0310 전기화학 기반 세슘 분리용 복합체 합성을 위한 Antimony-doped Tin Oxide 나노섬유 제조 연구 ····· 233
박태홍, 조영진[한국원자력연구원]

P0311 나노흡착제와 실리카 나노입자의 혼합에 따른 나노복합유체의 방사성 핵종 제거 ··· 235
김초롱, 윤인호, 정종헌, 양한범, 최왕규, 문제권[한국원자력연구원]

P0312 스테인레스강 표면제염공정 발생 나노입자 복합유체 폐액의 Ce 침전물 특성 ····· 237
양한범, 정종헌, 윤인호, 김초롱, 최만수, 최왕규[한국원자력연구원]

P0313 광역의 세슘 오염토양 잔류 방사능 측정을 위한 대용량 연속식 측정 시스템의 개념설계 ····· 239
서민우, 김봉주, 송정호, 신진성, 박현균[㈜오르비텍]

P0314 토양제염 방법의 현장 적용을 위한 기술평가 및 성능평가 Code 분석 ····· 241
김선일, 이상헌, 송종순[조선대학교]

P0315 고분자 전해질에 따른 토양 고정화 특성 ····· 243
최용석, 서범경, 문제권[한국원자력연구원]

P0316 초임계 이산화탄소와 Catechol Amine 유도체를 이용한 오염토양 내 금속 추출 연구 ····· 245
박지혜, 박광헌[경희대학교]

P0317 MARSSIM 방법론에 따른 핵연료물질 사용시설의 잔류방사능 측정 및 평가 ····· 247
한희정, 조남찬, 한승훈, 이진행[한전원자력연료㈜], 서민우, 김봉주, 김현권, 송정호[㈜오르비텍]

P0318 U-SAP 조성 변화에 따른 LiCl 염폐기물의 고화특성 평가 ····· 249
김나영, 조인학, 이기락, 은희철, 박환서, 안도희[한국원자력연구원]

P0319 무기매질을 이용한 공용융염(LiCl-KCl) 내 희토류 염화물의 고화특성 ····· 251
조인학, 이영석[충남대학교], 박환서, 은희철, 김나영, 안도희[한국원자력연구원]

P0320 희토류 인산화물 고화를 위한 Calcium Phosphate Glass Waste Form 제조 및 특성분석 ····· 253
최정훈, 은희철, 이기락, 조인학, 이태교, 김나영, 박환서, 안도희[한국원자력연구원]

P0321 무기-고분자 혼성레진을 이용한 핵연료재료 용액 내 방사성 세슘의 흡착 및 회수 연구 ····· 255
박재일, 김정석, 김영복, 박용준[한국원자력연구원]

P0322 Study on Separation and Vitrification of Group II Nuclides (Ba, Sr) from LiCl Waste Salt ····· 257
Hee-Chul Eun, Jung-Hoon Choi, Tae-Kyo Lee, Ki-Rak Lee, Seung-Yeop Han, Jae-Wook You, Hwan-Seo Park, Do-Hee Ahn[KAERI], and In-Hak Cho[CNU]

P0323 LiCl 염폐기물 처리를 위한 경막결정화 장치 Scale-up에 따른 공정 운전 특성 ··· 259
이태교, 최정훈, 은희철, 박환서, 안도희[한국원자력연구원]

P0324 유리화설비 배기조성 해석을 위한 프로그램 개발 ····· 261
황석주, 황영환, 김천우[한수원㈜중앙연구원]

P0325 방사성폐기물 처리용 대용량 유리용융로 개발 ····· 263
조현준, 김천우[한수원㈜중앙연구원]

P0326 파이로그린 희토류폐기물 유리고화체의 처분적합성 평가 ····· 265
황영환, 황석주, 이병관, 김천우[한수원㈜중앙연구원]

P0327 중대사고 대처용 이동식 액체 방사성폐기물 처리공정 개발 ····· 267
김승은, 박지은, 조항래, 이지훈[한수원㈜중앙연구원]

P0328 원전 공기정화계통 활성탄내 ^{14}C 흡착 매커니즘 고찰 ····· 269
김덕기, 소지양, 박승철[한수원㈜중앙연구원]

P0329 첨착활성탄 성능검사시 방사능 측정요인 불확도 평가 ····· 271
성기방, 최종락, 권혁철[한수원㈜중앙연구원]

P0330 **전자가속기 시스템의 Pre-buncher, Buncher 장치 성능 평가** ····· 273
김정동, 김영국, 이용덕[한국원자력연구원]

P0331 **그라파이트 미세분말의 질소 및 공기분위기에서 가스화 특성** ····· 275
최윤정, 양희철, 양인환, 김형주, 이시영, 정동용, 문제권[한국원자력연구원]

P0332 **M/W 플라즈마 제염장치를 이용한 제염에 대한 연구** ····· 277
유석준, 최영구, 김대환, 안승건[㈜선광티앤에스]

P0333 **방사성 세슘으로 오염된 오염수 처리를 위한 철-페로시아나이드가 코팅된 자성흡착제** ····· 279
양희만, 장성찬, 홍상범, 이근우, 서범경, 문제권[한국원자력연구원]

P0334 **원심력추출장치를 이용한 용융염-액체금속 계면 추출공정 연구** ····· 281
김범규, 한화정, 박병기[순천향대학교]

P0335 **초고압 워터젯을 이용한 방사성금속폐기물 제염장치 개발** ····· 283
안승건, 최영구, 김대환, 유석준[㈜선광티앤에스]

P0336 **이미다졸리움 계열의 이온성 액체를 이용한 우라늄 금속의 추출 메카니즘** ····· 285
김익수, 정동용, 이일희, 문제권[한국원자력연구원]

P0337 **방독면의 성능평가 시 고려할 요오드 및 세슘 핵종의 거동 및 특성 고찰** ····· 287
신진명, 이기원, 나상호, 최병선, 문제권[한국원자력연구원]

P0338 **초임계 CO_2를 이용한 방호복 제염의 타당성 연구** ····· 289
조영수, 김승일, 박종석, 김현기, 허준, 이세반, 강덕원[㈜휴비스워터]

P0339 **무 착화성 화학제염제에 의한 Type 304 SS 모사 산화막 용해** ····· 291
원휘준, 박상윤, 김선병, 최왕규, 문제권[한국원자력연구원]

P0340 **우라늄오염 자갈 제염기술 개발** ····· 293
김계남, 김승수, 한규성, 문제권[한국원자력연구원]

P0341 Waste Volume Evaluation Considering Disposal Containers for Reactor Vessel Dismantling ····· 295
Yujeong Choi, Seong-Cheol Lee, and Chang-Lak Kim[KINGS]

P0342 **방사성 폐파이프의 절단·평판화 장치 개발 및 적용** ····· 297
신기백, 이은표, 장원혁, 홍대석[한국원자력연구원]

P0343 **실감형 원격절단 시뮬레이터를 위한 사용자 공간조작 부하 저감 기술 연구** ····· 229
현동준, 김익준, 이종환, 김근호, 정관성, 최병선, 문제권[한국원자력연구원]

P0344 **매립 복토층 깊이에 따른 자체처분 허용농도 측정** ····· 301
구대서, 김근호, 김계남, 김승수, 박욱량, 한규성, 문제권[한국원자력연구원]

P0345 **폐공기정화제 자제처분을 위한 처리기술 분석** ····· 303
소지양, 김덕기, 박승철[한수원㈜중앙연구원]

P0346 원자력발전소 중대사고 초기 대응 격납건물내 방사성기체 폐기물 감압 Venting Scrubber System 개발 ····· 305
정철영, 윤덕호, 김민수, 박정원[㈜엑트알엠티]

P0347 원전사고대비 공기부상공정(DAF) 적용 방안 평가 ····· 307
이지훈, 김승은, 박지은, 조항래, 박승철[한수원㈜중앙연구원]

P0348 이동식 농축폐액 증발건조기술의 증발잔류물 배출에 대한 고찰 ····· 309
조항래, 박지은, 이지훈, 박승철[한수원㈜중앙연구원]

P0349 원전 중대사고 시 발생 폐액에 함유된 극미량 방사성 금속 핵종의 증류수와 해수에서 응집 제거 특성 비교 ····· 311
김광욱, 백예지, 이근영, 김형주, 이일희, 정동용, 문제권[한국원자력연구원]

P0350 해체공정 통합평가 시뮬레이터를 위한 격납용기 내 공간선량률 평가 방법 연구 ··· 313
김근호, 최병선, 정관성, 현동준, 이종환, 김익준, 서재석, 문제권[한국원자력연구원]

P0351 원자로 압력용기 해체 작업용 고하중 매니퓰레이터 설계 ····· 315
김창회, 서용칠, 이성욱, 최병선, 문제권[한국원자력연구원]

P0352 원전시설 해체활동 분류체계 확립을 위한 기술현황 분석 ····· 317
박희성, 송찬호, 진형곤, 박승국, 문제권[한국원자력연구원]

P0353 KRR-2 해체사업과 해외 해체경험자료에 기반한 해체단위비용 산출방법 ····· 319
송찬호, 박희성, 진형곤, 박승국[한국원자력연구원]

P0354 원전 주기기 해체순서 사례분석 ····· 321
정완일, 권용범, 정재훈, 이병식[한국전력기술㈜]

P0355 미국 NRC 해체 추정 비용 평가 현황 ····· 323
이재민, 김진환, 김연화, 박진호[TUV 라인란드 코리아]

P0356 미국의 원전 해체 비용 평가 기초 자료 분석 ····· 325
이재민, 신상화[TUV 라인란드 코리아]

P0357 해외 원전 해체 사례 및 국내 원전 부지특성 분석을 통한 부지 재이용 방안 ····· 327
이후석, 이승준, 홍상현, 이종세[한양대학교]

P0358 신 분류기준을 적용하기 위한 원전 해체폐기물량 및 처분 비용 산정에 대한 사전 연구 ····· 329
이상헌, 정민영, 송종순[조선대학교]

P0359 국외 원자력시설 대형 금속폐기물의 관리시스템 및 시사점 ····· 331
민병연, 양다솜, 윤경수, 이기원, 문제권[한국원자력연구원]

P0360 사용후연료 저장대 제작 공차가 임계안전에 미치는 영향 분석 ····· 333
손희동, 한슬기, 이강욱, 이상동, 조충래, 박화규[두산중공업㈜], 박창제[세종대학교]

P0361 사용연한이 만료된 경수로용 원전연료 운반용기의 자체처분을 위한 잔류방사능 측정 평가의 통계학적 접근 ····· 335
추연철, 조남찬, 주영종, 설증군, 김정명[한전원자력연료㈜]
송정호, 서민우, 김봉주, 신진성, 김현권[㈜오르비텍]

P0362 원전폐로와 관련된 추정비용과 기간, 방사성 폐기물 발생량에 대한 고찰 ····· 337
박동원, 김병래, 박근택, 김승재[고려검사㈜]

P0363 건식저온플라즈마를 이용한 금속방사성폐기물 재활용 기술 ····· 339
김경민, 이재용, 김효섭, 손대선, 김용수[한양대학교]
전제근, 전상환, 심진호[㈜에이치앤에너테크]

4분과 방사선환경 및 안전 (Oral)

09:00~09:20 제주지역 TSP 에어로졸 중의 ^{40}K, ^{232}Th과 ^{238}U 조성 특성 ····· 343
한충훈, 이영규, 박연현, 박재우[제주대학교]

09:20~09:40 미나리를 이용한 세슘 흡수 연구 ····· 345
김병호, 임광묵, 전인, 최용호, 금동권[한국원자력연구원]

09:40~10:00 원료물질 또는 공정부산물의 전처리법에 따른 Th과 U 회수율 비교 ····· 347
이훈, 임종명, 정근호, 최근식[한국원자력연구원], 이진홍[충남대학교]

10:00~10:20 우라늄 스와이프 시료 측정용 MMXRF의 최적화를 위한 연구 ····· 349
한기택, 최정윤, 윤종호, 안길훈[한국원자력통제기술원]

10:40~11:00 액·기체 방사성물질 배출규제 관련 국내·외 현황 분석 ····· 351
이관희, 이호진, 이정준, 육대식, 이종국, 이병수[한국원자력안전기술원]

11:00~11:20 광역의 방사능 오염 부지내 일반인 피폭 방사선량 평가를 위한 피폭 시나리오 구성 ····· 353
고아라, 김시영, 김민준, 김광표[경희대학교], 설증군[한전원자력연료㈜]

11:20~11:40 사고대응 소형 현장감마분광시스템 및 분석알고리즘 개발 ····· 355
지영용, 정근호, 김창종, 이완로, 최상도, 강문자[한국원자력연구원]

11:40~12:00 사용후핵연료 운송 중 사보타주 영향 평가 ····· 357
황미정[한국원자력연구원], 유양선, 홍정욱[KAIST]

4분과 방사선환경 및 안전 (Poster)

P0401 X-gamma 동시합산을 고려한 N-type HPGe 검출기의 효율결정 ····· 361
김창종, 지영용, 이완로, 정근호, 강문자[한국원자력연구원]

P0402 광역 중성자에너지 측정 가능한 SiC 반도체 센서의 ^{6}LiF와 HDPE 결합 Converter 설계 ····· 363
서민우, 권민우, 이상미, 민병혁, 박승현[㈜오르비텍]

P0403 사이클로트론실 콘크리트벽의 방사화 영향 민감도 분석 ····· 365
노경용, 김순영[㈜래드코어], 김재홍, 남신우[한국기초과학연구원], 신창호[한양대학교]

P0404 잔류방사능 유도농도기준에 대한 기술적 검토 ····· 367
손욱, 이갑복, 손순환[한수원㈜중앙연구원]

P0405 GEANT4를 이용한 선량 측정 시뮬레이션 ····· 369
한화정, 박병기, 김범규[순천향대학교]

P0406 CALPUFF 모델을 이용한 핵종누출의 대기확산평가 연구 ····· 371
이상헌, 김선일, 송종순[조선대학교]

P0407 원(연) 조사후시험시설 사고시 굴뚝 방출농도에 대한 EAL 한계 분석 ····· 373
이관엽, 이해초, 김봉석, 김종수, 최평규[한국원자력연구원]

P0408 원자력발전소 방사성 유출물관련 안전규제지침 조사 및 분석 ····· 375
서현석, 한경원, 박상훈[㈜라드웍스], 육대식, 김성일[한국원자력안전기술원]

P0409 방사성물질 해양확산 및 선량평가용 전산프로그램 조사 ····· 377
김연화, 신상원[TUV 라인란드 코리아]

P0410 KAERI에서의 IAEA 사찰 및 국가계량관리검사 수검 ····· 379
김현숙, 김인철, 이성호[한국원자력연구원]

P0411 일차냉각재 pH 조절법 개선에 따른 영향 평가 ····· 381
이두호, 권혁철, 성기방[한수원㈜중앙연구원]

P0412 OTDR 기반의 고온 광섬유 온도 센서 개발 ····· 383
장재석, 신상훈, 이동은, 김재석, 권구원, 전혜수, 유욱재, 장경원, 이봉수[건국대학교]

P0413 사용후핵연료 저장조의 실시간 수위 측정용 휴대용 초음파 센서 시스템의 개발 ··· 385
이동은, 신상훈, 전혜수, 장재석, 권구원, 김재석, 유욱재, 장경원, 이봉수[건국대학교]

P0414 CESEUM 코드를 이용한 한빛3호기 손상연료집합체 연소도 평가 ····· 387
김기영, 정성환, 이은기[한수원㈜중앙연구원]

P0415 ITER 삼중수소 저장공급시스템을 위한 검증시험설비 개발 ····· 389
송규민, 이정민, 고병욱, 김정미, 손순환[한수원㈜중앙연구원], 윤세훈, 장민호, 강현구[국가핵융합연구소]

1분과

후행핵연료주기기술 및 정책(Oral)

KOREAN RADIOACTIVE WASTE SOCIETY

전해환원을 위한 염화리튬계 전극 순환주사 실험 결과 분석

박병흥[1*], 임현숙[2], 최은영[2], 허진목[2]
[1]한국교통대학교 화공생물공학과, 충청북도 충주시 대학로 50
[2]한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
[*]b.h.park@ut.ac.kr

1. 서론

전해환원 공정은 산화물 사용후핵연료를 금속으로 전환시켜 전해정련 및 전해제련 공정과 연계시키기 위해 도입되는 공정이다. 전해환원 공정은 고온 염화리튬을 전해질로 사용하며 금속산화물 자체를 환원전극으로 하여 전기화학적 방법으로 금속 전환체를 얻는 공정이다. 이 공정은 파이로 공정을 구성하는 일련의 전기화학 공정들 중 맨 처음 위치하며 이에 대한 연구는 국내에서 뿐만 아니라 국외에서도 활발히 진행되고 있다.

전기화학 연구 방법 중 하나인 순환주사법은 전해 셀을 구성하는 각 전극에서의 특성을 분석하기 위한 기초적인 방법이다. 따라서, 국내외 연구 모두 전해환원 실험의 첫 단계로 각자의 반응 시스템에서 순환주사법 실험을 수행하였으며 그 결과를 발표하였다. 전해환원은 공통적으로 고온 용융 염화리튬을 전해질로 사용하여 수행되기 때문에 순환주사법 역시 염화리튬계에서 수행되었다. 그러나, 사용된 기준전극의 차이, 소모성 산화전극의 사용 등의 상이한 조건에 의해 각 실험 결과들에 대한 일관성 있는 자료로의 해석과 취합이 필요한 상황이다. 본 연구에서는 국내외 전해환원 공정을 위한 순환주사법 실험 결과를 분석하여 전해환원 공정에서의 산화/환원 특성을 분석하였다.

2. 자료 수집 및 분석

용융 염화리튬계에서 전해환원 공정을 연구하는 대표적인 국가들은 한국, 미국, 일본이다. 본 연구에서는 저널에 발표된 이들 국가들의 대표적인 논문 자료를 기초로 순환주사법 결과를 정리하였다.

일본에서 수행된 연구들은[1-4] MOX 연료의 환원에 관심을 둔 연구들이 많았으며 기준 전극으로는 Bi-Li를 사용하였다. 미국에서 수행된 대표적인 연구는[5] Ni-NiO를 기준전극으로 사용하여 실제 사용후핵연료를 대상으로 실험하여 다양한 핵종들의 거동을 분석하였다. 한국에서 진행된 연구[6]는 대용량화를 목표로 전해환원 반응기를 개발했으며 Li-Pb를 기준전극으로 사용한 특징이 있다.

3. 환원전극 순환주사 실험 결과 비교

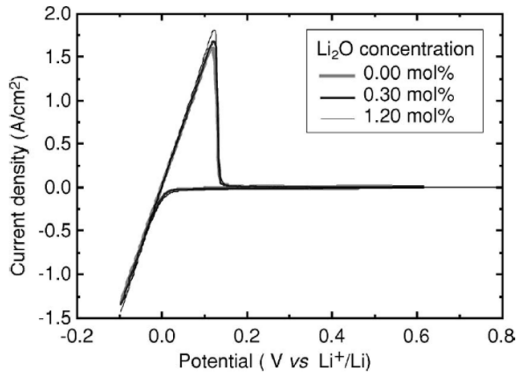
수집된 자료 모두 기본적으로 염화리튬을 전해질로 사용하였다. 전해환원은 염화리튬 계에 소량의 산화리튬을 용해시켜 산소 이온의 활성도를 높인 상태에서 진행된다. 따라서, 자료 모두 공통적으로 염화리튬 계와 산화리튬-염화리튬 계에서 순환주사 실험을 하였으며 이 후 각 연구의 목적에 맞춰 MOX, SF, U_3O_8 등을 환원전극으로 사용하여 실험을 수행하였다.

대표적으로 산화리튬의 유무에 따른 순환주사 결과는 Fig. 1과 같다.

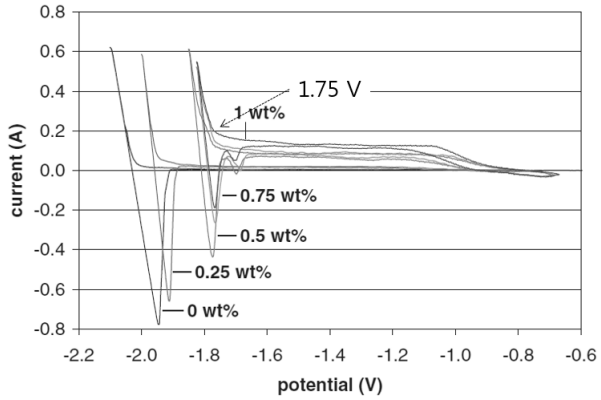
Fig. 1에 비교된 것과 같이 일본의 연구에서는 산화리튬의 농도가 증가하여도 Li의 환원은 동일한 전위에서 발생하는 것으로 나타났다. 반면, 미국의 연구에서는 산화리튬의 농도가 증가함에 따라 Li의 환원전위가 양의 방향으로 이동하는 것으로 측정되었다. 이는 두 실험의 기준전극 차이에 기인하는 것으로 기준전극에 Li이 포함되어 있는 경우는 전해질에 용해된 산화리튬에 의해 기준전극의 위치가 환원전극의 위치와 함께 움직이기 때문이다.

4. 산화전극 순환주사 실험 결과 비교

산화전극은 모두 공통적으로 비소모성 전극으로는 Pt를 사용하여 실험하였다. 실험결과들은 기준전극의 종류에 따라 다른 전위를 표시하고 있지만 일관되게 모든 실험 결과들이 Pt의 용해가 염소 기체 생성 이전에 발생되며 산화리튬이 추가된 경우 Pt는 화학적으로 안정하지 않아 비교적 낮은 산화전위에서 산화리튬과 반응하여 리튬 복합 산화물을 형성하는 것으로 나타났다. (Fig. 2)



(a) Cathode CV results of Japan study[2)]



(b) Cathode CV results of US study[5)]

Fig. 1. Comparison of cathode CV results.

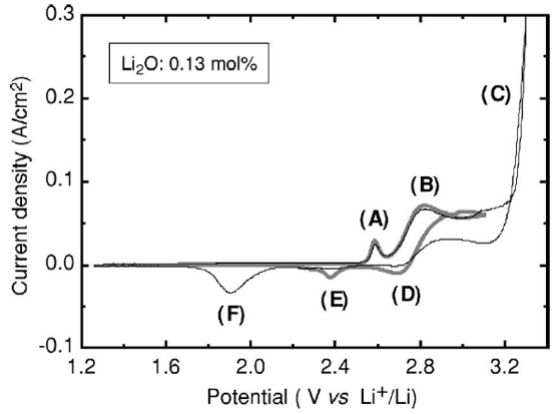


Fig. 2. Representative CV result on Pt anode.[2)]

결과적으로 산화전극에서는 산화리튬이 염화리튬에 첨가되었을 때 낮은 전위부터 Li_2PtO_2 생성, O_2 발생, Pt 용해, Cl_2 발생의 순서로 분석되었다.

5. 참고문헌

[1] M. Kurata et al., J. Nucl. Mater., 328, pp. 97-102, 2004.

[2] Y. Sakamura et al., J. Elect. Soc., 153, D31-D39, 2006.

[3] M. Iizuka et al., J. Nucl. Mater., 359, pp. 102-113, 2006.

[4] S. Kitawaki et al., Nucl. Technol., 164, pp. 433-441, 2008.

[5] S. Herrmann et al., Nucl. Sci. Technol., 44, pp. 361-367, 2007.

[6] S. M. Jeong et al., Electrochim. Acta, 55, pp. 1749-1755, 2010.

물과 KNO_3 용융염을 이용한 원형 액체 수위 측정 시스템의 최적화

이진홍, 김종윤*, 박태홍, 배상은
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*kjy@kaeri.re.kr

1. 서론

액체의 레벨 측정은 많은 산업 공정에서의 안정성 및 수익성에 대한 물질의 프로세스 모니터링, 제어 및 저장뿐만 아니라 원자력 안전을 위해 아주 중요하다. 액체의 레벨을 측정하는 주된 이유는 탱크 안의 액체의 부피나 중량을 지속적으로 파악하여 유체가 넘치는 거나 새는 것을 방지할 수 있다[1]. 액체의 레벨 측정에는 잘 알려진 정수압 측정법, 차압 측정법, 그리고 버블러 측정법등 세 가지 방식의 압력을 기반으로한 방법들이 있다[2-5].

본 연구에서 제안된 동적 관압력 측정 시스템은 누수의 위험이 적은 top down측정방식의 액체의 레벨 측정 장비이다. 스테퍼 모터와 차등압력센서가 장착된 장비는 초기지점에서 액체의 표면까지의 튜브의 이동거리를 측정한다. 최적의 조건은 다양한 기본압력, 한계압력변화, 튜브의 하강속도를 변화하여 각 변수들이 고온 용융염의 레벨 측정에 미치는 영향을 알아보았다.

2. 본론

2.1 실험장치

동적 관압력 측정 시스템은 스테퍼 모터, 공기압축기에 연결 된 스테인레스 스틸 튜브와 압력센서로 구성된다. 측정에 사용된 튜브의 직경은 0.85 mm 이다. 용융염 측정을 위해 사용된 스테인레스 용기는 소형 전기로 안에 설치하였다. 스테퍼 모터는 programmable logic controller(PLC)에 의해 제어되며, 튜브로 나오는 흐름과 압력은 니들 밸브에 의해 제어된다. 튜브 안의 압력은 차압 스위치와 송신기를 사용하여 모니터링 하였다.

2.2 실험방법

물과 KNO_3는 스테인레스 용기에 담고 물은 상온에서 측정하였고, KNO_3는 500℃에서 녹인 후 측정에 사용되었다. 튜브는 정밀한 위치제어를 위해 스테퍼 모터를 사용하여 액체의 표면까지 움직이며, 튜브가 액체의 표면에 닿았을 때에 변하는 압력차로 인해 원래의 위치로 이동한다.

첫 번째 단계에서는 설정한 기본압력이 안정화가 되면 측정이 시작된다. 측정 시작 후 튜브가 하강하여 액체의 표면에 닿으면 기본압력이 첫 번째 단계에서 한계압력변화 설정값을 초과하면 튜브가 멈춘 다음, 1 cm 상승한 후 5 초 동안 대기한다. 두 번째 단계에는 튜브가 다시 아래로 하강한 후, 액체의 표면에 닿아 기본압력이 두 번째 단계에서 한계압력변화 설정값을 초과하면 측정이 끝난다. 물과 KNO_3를 동일한 조건과 레벨에서 상온일 때의 물의 레벨 측정과 고온일 때의 KNO_3의 레벨을 측정하였을 때 압력변화를 비교해 보았다. KNO_3를 500℃에서 가열하였을 때, 기본압력, 한계압력변화, 튜브의 하강속도를 변화하여 각 변수들이 고온 용융염의 레벨 측정에 미치는 영향을 조사하였다.

2.3 실험결과

본 연구는 동적 관압력 측정 시스템을 사용하여 용융염의 액면 측정을 위한 최적의 조건을 결정하는 것이다.

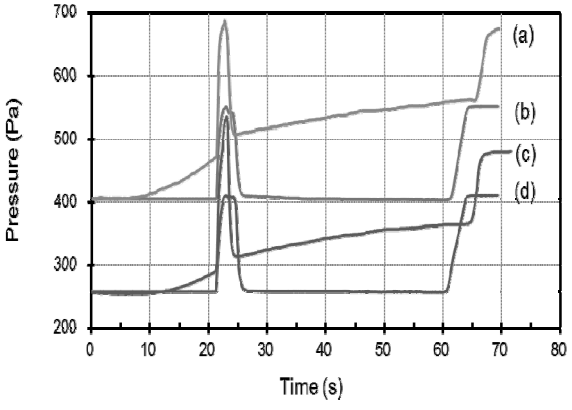


Fig. 1. Effect of base-pressure and temperature on the tube pressure versus time curve. (a) 500℃ KNO_3; (b)18℃ water; (c)500℃ KNO_3; (d)18℃ water.

상온에서 물의 레벨 측정과 고온에서 KNO_3의 레벨 측정에 대한 압력변화는 Fig. 1과 같이 나타내었다.

상온에서 측정시 튜브가 하강할 때 액체의 표면에 닿기 전에는 압력이 일정한 것에 비해 고온에서 측정시 튜브가 하강할 때 액체의 표면에 닿기 전에 압력이 증가하는 것을 볼 수 있다. 이는 고온에서 최적의 압력변화에 대한 설정값이 있다는 것을 나타낸다.

500℃에서 KNO_3의 레벨을 측정할 때 기본압력을 150, 250, 400 Pa로 변화시키며 튜브의 이동거리를 비교하였다. 기본압력의 변화가 측정이 미치는 영향은 미세하나 150 Pa이하의 낮은 압력으로 측정시 튜브가 막히는 현상이 나타난다.

500℃에서 KNO_3의 레벨을 측정할 때 한계압력변화 설정값을 변화시켜 튜브의 이동거리를 비교하였다. 설정값이 증가할수록 KNO_3의 표면에 닿는 튜브가 표면보다 깊이 들어가 튜브의 이동거리가 증가하였다.

500℃에서 하강속도의 설정값을 0.25, 0.75, 1.25, 2 mm/s로 변화시키며 튜브의 이동거리를 비교하였다. 튜브의 하강속도가 증가할수록 KNO_3의 표면에 닿는 튜브가 표면보다 깊이 들어가 튜브의 이동거리가 증가하였다.

3. 결론

본 연구는 고온 용융염의 레벨을 측정하기 위하여 동적 관압력 측정 시스템을 사용하였으며 이때 사용된 용융염의 레벨 측정을 위한 시스템의 최적의 조건을 결정하였다.

상온에서 물의 레벨 측정과 고온에서 KNO_3의 레벨 측정할 때의 압력변화를 비교해 보았다. 상온에서는 튜브가 하강할 때 압력변화가 일정한 것에 비해 고온 용융염에서는 튜브가 하강할수록 압력이 증가하는 것으로 나타난다. 이는 고온 용융염 측정시 한계압력변화 설정값이 중요변수로 작용한다는 것을 나타낸다.

고온에서 KNO_3의 레벨 측정시 최적의 조건을 알아보기 위하여 500℃에서 시스템의 주요변수인 기본압력, 한계압력변화, 하강속도를 변화하여 측정에 미치는 영향에 대하여 조사하였다. 기본압력이 고온 용융염의 레벨측정에 미치는 영향은 미세하나 150Pa보다 낮은 압력으로 측정시에는 튜브의 막히므로 기본압력은 150Pa이상으로 설정하는 것이 최적의 조건이다. 한계압력변화 설정값이 클수록 KNO_3의 표면에 닿는 튜브가 표면보다 깊이 들어가 튜브의 이동거리는 증가한다. 이는 한계압력변화 설정값이 튜브가 KNO_3의 표면에 닿았을 때에 변하는 압력보다 더 크게 설정되어 있기 때문이므로 한계압력변화 설정값은 기본압력에서 튜브가 액면에 닿았을 때 변하는 압력보다 10 ~ 20 Pa 높게 설정하는 것이 최적의 조건이다. 튜브의 하강속도가 증가할수록 KNO_3의 표면에 닿는 튜브가 표면보다 깊이 들어가 튜브의 이동거리는 증가한다. 이는 고온에서 변하는 압력변화보다 더 빠르게 튜브가 하강하여 KNO_3 포면보다 더 깊이 잠기기 때문이다. 동적 관압력 시스템의 주요변수 중 하나인 튜브의 하강속도는 0.25 mm/s일 때 가장 정확한 측정값을 도출하였다.

4. 감사의 글

이 논문은 2015년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(No. 2012M2A8A5025923).

5. 참고문헌

[1] Emerson process Management, The Engineer's Guide to Level Measurement, USA(2013).

[2] M.C. Miller and D.A. Vega, Nucl. Eng. Technol. 45(6), pp. 803-810 (2013).

[3] R.D. Mariani and D. Vaden, J. Nucl. Mater. 404, pp. 25-32 (2010).

[4] G.L. Yoder Jr., A. Aaron, B. Cunningham, D. Fugate, D. Holcomb, R. Kisner, F. Peretz, K. Robb, J. Wilgen, and D. Wilson, Ann. Nucl. Energy 64, pp. 511-517 (2014).

[5] T.J. Tanaka, F.J. Lutz, J.M. McDonald, R.E. Nygren, K.P. Troncosa, M.A. Ulrickson, and D.L. Youchison, Fusion Eng. Des. 72, pp. 83-92 (2004).

파이로시설 예비개념설계를 위한 안전조치시스템 요건 개발

안성규*, 권은하, 김봉영, 서희, 송대용, 원병희, 이채훈, 조광호, 박세환, 박근일
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*skahn76@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료의 독성 및 부피 저감을 통한 사용후핵연료 누적문제를 해결하고 방사성폐기물의 효율적인 관리 옵션으로서 파이로기술 개발연구가 활발하게 진행되고 있다. 또한 미래형원자력시스템 개발 로드맵[1]에 따라 종합파이로시설을 2025년까지 구축하기 위한 예비개념설계를 본격적으로 착수하였다. 시설설계는 공정장치 및 시설구조는 물론 핵물질 취급에 필요한 안전조치 방안과 이에 필요한 시스템 설계까지를 포함한다.

합리적이고 올바른 시스템 설계를 위해서는 요건에 대한 명확한 정의를 정립하는 것이 중요하다. 그렇지 않을 경우 설계 과정에서 잦은 설계변경이 이루어지며, 이것은 곧 비용 증가 및 일정 지연의 결과를 가져올 수 있다. 시스템 엔지니어링 연구에 따르면 설계 변경 시 오류 발생 원인으로 초기 요건이 잘못 정의되었거나 불완전한 경우가 30%나 차지한다[1].

본 연구에서는 안전조치시스템 설계를 위한 첫 단계로서, 요건을 도출하기 위해 용어와 시스템 구성 범위를 명확히 정의하고 요건 초안의 예를 소개하고자 한다.

2. 본론

2.1 용어 정의

우리나라의 경우 핵물질을 취급하는 시설은 IAEA에 의해 안전조치접근방안이 개발되고 적용된다. 안전조치접근방안(safeguards approach)은 안전조치 이행을 위해서 선택된 안전조치 수단들의 집합이며, 시설설계정보를 고려한 구체적인 안전조치 활동을 포함하며 적용·검증 절차를 포함한다. 이 때, 안전조치수단(safeguards measures)은 안전조치 이행을 위해 사용가능한 방법들로서, 핵물질계량(NMA), 격납감시(C/S), 환경시료채취(ES) 등을 포함한다. 전통적인 형태의 안전조치는 핵물질계량을 기본 수단으로, 격납·감시 및 모니터링 수단에 의해 보완된다. 안전조치시스템 개발을 위한 요건이 될 수 있는 것 중 하나가 IAEA 안전조치기준이다. 안전조치(이행을위한)기준(safeguards criteria)은 IAEA에 의한 핵물질 검증 행위들의 집합으로서 시설 유형별로 다르다. 적시적 · 정량적 사찰목표를 만족시키기 위해 요구되는 검증활동들의 범위, 주기, 정도 등을 명시하고 있다.

특정 시스템 구축은 요건을 정의하고 그 요건을 만족시키도록 설계하는 것과 설계대로 구축하는 두 부분으로 구성된다. '요건(requirement)'은 말 그대로 요구되는 조건이나 상태, 요소를 뜻한다. 기능요건, 성능요건, 설계요건, 인터페이스요건, 규제요건 등 시스템 개발을 위한 '요구사항'으로서 '주문서'에 해당한다고 볼 수 있다. 경우에 따라서는 요건 대신 제약 이라는 용어로 표현되는 경우도 있다. '제약 (constraint)'이란 요건의 '여집합'으로서, 요건과 동일하게 옵션 선택 또는 설계에 지침이 되는 사항이다. 요건 도출 시 제약사항 도출도 포함해야 한다. 유사한 용어로 일반적으로 사용되는 '사양(specification)'은 구체적으로 명시된 요건으로 정의된다. 본 연구에서는 기능사양, 성능사양, 설계사양 등 요건을 만족시키기 위해 구체적인 '개발결과물'의 특성을 뜻하는 용어로 정의했다.

좋은 시스템 설계를 위해서는 좋은 요건이 필요하다. 좋은 요건은 명백하여 모호하지 않고, 일관되고 추적 가능해야 하며, 복합적이지 않고 일원적이어야 한다. 요건별로 중요도를 함께 정의하면 부득이한 설계변경 상황에 대처하기 용이하다.

2.2 시스템 구성 및 요건

안전조치시스템(safeguards system)은 넓은 의미에서는 안전조치접근방안과 같은 의미로 사용될 수 있으나, 시스템을 구축하는 좁은 의미에서는 NMA시스템, C/S시스템을 포함한 서브시스템들을 종합한 시스템으로 구성한다. 안전조치접근방안 개발 및 적용은 IAEA의 역할이지만 파이로에 대한 안전조치 적용 경험이 없다. 따라서 본 연구에서 '안전조치시스템 설계'에서는 가능한 범위까지 IAEA 안전조치접근방안을 고려하고자 한다. IAEA가 파이로에 대한 안전조치방안을 수립할

수 있음을 보이고 이 때 필요한 기술을 지원하고자 하는 목적이다. 시스템설계는 아래와 같은 사항을 포함할 수 있다.

- 시설자의 NMA 측정시스템 + 안전조치 강화를 위한 준실시간계량시스템(NRTA)
- 사찰검증에 필요한 시스템 (예 결손 검증 NDA 측정 환경, 시료채취·전송 시스템 등)
- 사찰검증을 위한 C/S시스템 + 안전조치 강화를 위한 모니터링시스템
- 안전조치수단을 이행하기 위해 필요한 핵심요소 (예 물질수지구역, 주요측정지점 등)

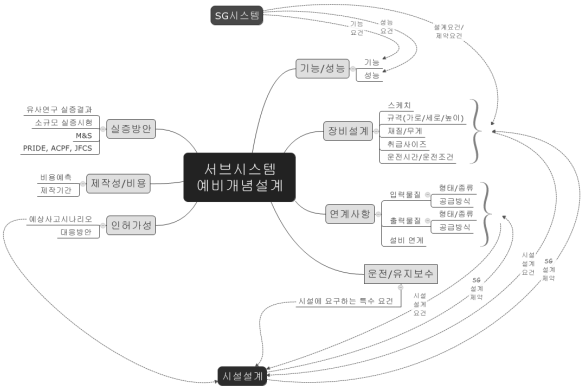


Fig. 1. Elements and relationship between them for the safeguards system requirements.

Fig. 1은 안전조치시스템을 서브시스템에서 고려해야할 요건 항목들의 체계와, 이러한 요건들이 전체 시스템설계와 다른 시설설계와 피드백을 주고받는 요소들을 도식으로 보여준다.

2.2.1 핵물질계량관리(NMA) 시스템

NMA시스템은 핵물질 계량을 위한 절차, 인력, 장비로서, KMP, 성능명세, 기술명세, 장비명세, 절차(측정, 교정, 유지보수) 모두를 포함한다. NMA 시스템은 그 아래 서브시스템 또는 장비로 구성될 수 있다(예 시료분석시스템 >> (샘플링)시스템 >> (샘플채취)장비 >> (염 긁어내는)장치).

Table 1은 NMA시스템의 서브시스템의 일례로서 입력물질계량시스템을 위한 상위레벨 요건초안을 보여준다. 향후 설계요건 개발은 상위레벨의 요건을 만족시킬 수 있도록 세부적인 요건 도출을 진행할 계획이다.

2.2.2 격납감시모니터링 (C/S&Monitoring) 시스템

격납 또는 감시 수단의 조합인 격납감시시스템의 요건은 전용경로를 고려한 적용대상 물질 및 지점 선정이 우선적으로 요구된다. 그리고 그에 따른 탐지속성(시각정보, 방사선 등) 측정을 위한 환경(조명, 방사선강도 등) 등을 성능요건에 고려해야 하며 유지보수 요건도 중요한 항목이다. 격납감시시스템에 대한 요건개발 및 설계연구는 참고문헌 [4]에 별도로 소개하였다. 모니터링시스템은 안전조치를 강화 목적의 부가적인 시스템으로서 별도의 요건개발 연구를 진행하고 있다.

Table 1. Example Requirement for Input Accountancy System

분류	요건세부사항
기능 요건	• 입력력물질에 포함된 Pu, U-235 계량 • 계량 분석(DA/NDA) 위한 대표시료 채취·분석
성능 요건	• 물질수지기간동안 미례량물질(MUF) 불확도 만족 • 핵연료1다발/3일 해당 입력물질 계량불확도 1%
검증 요건	• 사찰검증 시 장치 내 물질존재 여부 확인 가능 • 사찰검증 시 재고 용기에서 시료채취 가능

3. 결론

종합파이로시설 구축을 위한 안전조치시스템을 구성하는 NMA시스템, C/S시스템에 대한 요건 개발을 시작하였다. 각 시스템에는 서브시스템이 포함되어 있으며 서로 간의 요건 충돌이 발생할 수 있다. 또한 안전조치시스템이 공정운전이나 시설구조에 영향을 미치거나 받을 수 있다. 따라서 이러한 각 서브시스템의 요건을 종합하고 시설설계 요건에 따른 제약을 반영한 피드백 과정을 반복하는 과정이 필수적이다. 시설설계와 공정운전설계를 고려한 안전조치시스템 요건을 도출하고, 이를 만족시킬 수 있는 시스템에 대한 예비개념설계를 2016년도 까지 완료할 계획이다.

4. 감사의 글

이 연구는 2015년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행되었다 (원자력기술개발사업, NRF-2012M2A8A5025947).

5. 참고문헌

[1] 원자력진흥위원회, 미래형원자력시스템 개발로드맵, 2011.11.21.
[2] 민성기, 권용수, 시스템엔지니어링 원론, 2004.
[3] IAEA Safeguards Glossary 2001.
[4] 조광호 외, "파이로시설 예비개념설계를 위한 안전조치 격납감시시스템 요건 개발", 방사성폐기물학회 춘계학술대회, 2015.

Stand-off Telescopic LIBS 장치를 이용한 란탄족 원소들의 정량분석

최대웅, 박세환, 박근일, 한보영*
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*byhan@kaeri.re.kr

1. 서론

현재 한국원자력연구원은 사용후핵연료의 효율적 처리를 위하여 파이로 건식공정 기술을 개발 중이다. 그리고 이 건식 공정 기술의 완성을 위해 여러 가지 부수적인 기술들이 개발되고 있으며, 그 중 하나로 공정시설의 핵비확산성을 강화하기 위한 안전조치 모니터링 시스템의 한 부분으로 Stand-off Telescopic Laser-Induced Breakdown Spectroscopy(ST-LIBS)에 대한 연구가 진행되고 있다.

LIBS는 레이저 펄스를 시료표면에 집속시켜 플라즈마를 발생시키고 이 때 방출되는 빛을 파장 분해하여 얻은 스펙트럼의 원자 및 이온 방출선들의 세기를 통해 시료의 원소 조성을 알아내는 원소분석법의 하나이다. LIBS는 간편한 전처리, 빠른 분석속도, 다원소 동시분석능, 원격분석과 같은 장점들 때문에 공정시설의 실시간 모니터링 기술로 적합할 것으로 사료된다. 실제로 이러한 장점들 때문에 산업현장을 비롯한 다양한 분야에서 LIBS를 실시간 모니터링 기술로 적용시키려는 연구들이 도처에서 활발하게 진행되고 있다.[1]

ST-LIBS는 응용 LIBS의 한 분야로써, 일반적인 LIBS의 광학배열을 변형시켜 최대 ~100 m 떨어진 시료에 대한 원거리 측정을 가능하게 한다. 이 응용LIBS 기술은 레이저 펄스를 시료에 집속시키는데 일반적인 LIBS에 사용되는 포커싱 렌즈에 비해 상대적으로 긴 초점거리를 갖는 렌즈가 사용되고, 원거리에 위치한 시료로부터 발생되는 빛의 수광효율을 향상시키기 위해 대구경망원경이 사용된다.

본 발표에서는 ST-LIBS 장비의 구성 및 분석능에 대해 보고하고자 한다.

2. 본론

2.1 ST-LIBS 장비 구성

Fig. 1은 ST-LIBS 장치의 사진이다. 이 장치에는 레이저 빔의 높은 에너지 출력 밀도에 의해 발생될 수 있는 공정시설 내 차폐창의 손상을 방지하고 시료의 원자화 효율을 증대시켜 향상된 LIBS 신호를 수집하기 위해 1장의 오목렌즈와 2장의 볼록렌즈의 조합이 사용되었으며, 렌즈 간의 거리 조절을 통해 장치의 초점 거리를 조절할 수 잇도록 설계되었다. ST-LIBS 장치의 광원으로 사용된 Nd:YAG 레이저(Quantel, Brilliant b)의 2차 조화파인 532 nm 파장의 빔은 오목렌즈(FL -50 mm, dia 25.4 mm)를 통과하며 확대되고, 2개의 볼록렌즈(FL 300/1500 mm, dia 76.2 mm)를 통과한 후 차폐창 안 쪽에 있는 시료 표면에 집속된다. 시료 표면에 발생된 플라즈마에서 방출되는 빛은 슈미트-카세그레인 방식의 대구경 반사 망원경(dia 279 mm)을 통해 수광되고, 이 빛은 볼록렌즈(FL 70 mm, dia 50.8 mm)를 통과하여 광섬유 단면에 집속된다. 수광된 빛은 광섬유를 통해 50 cm 길이의 Czerny-Turner 방식의 분광기로 보내져 파장 분해되고 ICCD 검출기를 사용하여 스펙트럼으로 기록된다.

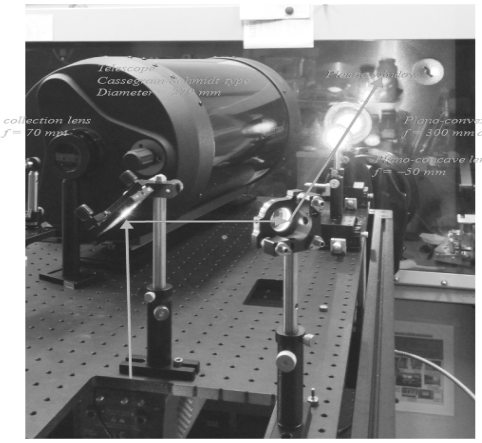


Fig. 1. ST-LIBS setup.

2.2 시료 제작 및 실험 조건

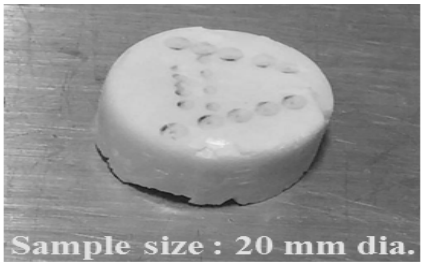
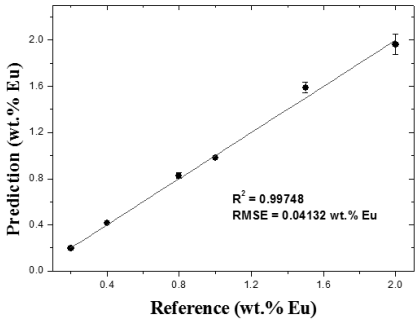


Fig. 2. Molten salt sample.

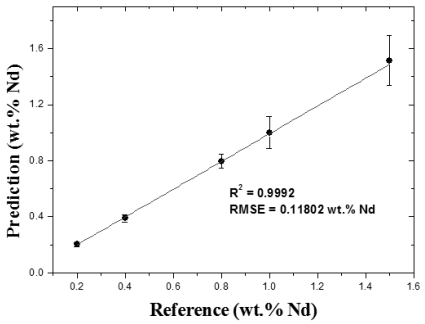
LIBS는 고체시료와 액체시료 모두 측정 가능하나 일반적으로 고체시료에 대한 분석능이 더 좋다고 알려져 있다. 이러한 이유로 LIBS 측정을 위해 LiCl-KCl 용융염과 0.2-2.0%의 Nd, Eu, Pr을 혼합 가열 후 급냉하여 고체화 시키는 샘플링 방법이 사용되었다. Fig. 2는 실험에 사용된 용융염 시료로, PRIDE 시설과 같은 재질의 창이 사용된 글로브 박스 내부에 위치되었고 ST-LIBS 장치로부터 1.0 m 떨어진 곳에 위치되었다. 각 시료 당 12회의 측정이 실시되었고, 1회 측정 당 200 shot의 레이저 펄스가 사용되었다.

2.3 란탄족 원소들에 대한 ST-LIBS 측정 정밀도 평가

(a)



(b)



(c)

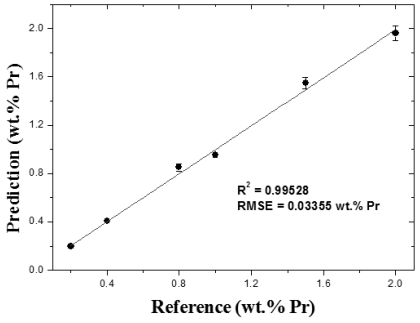


Fig. 3. Calibration curves of (a) Eu, (b) Nd, and (c) Pr.

측정 정밀도는 화학분석 장비의 분석능을 평가함에 있어 가장 중요한 것 중 하나이다. ST-LIBS 장치의 측정 정밀도 평가를 위해 란탄족 원소인 Eu, Nd, Pr에 대한 농도 검정곡선을 그렸고, 이를 이용하여 평균제곱근 편차(RMSE)를 산출하였다. 측정 파장영역은 세 가지 란탄족 원소들의 방출선과 내부표준선으로 사용된 K의 방출선이 모두 위치하는 403 - 413 nm로 설정되었고, 404.4136 nm K I, 412,970 nm Eu Ⅱ, 410.072 nm Pr Ⅱ, 410.9448 nm Nd Ⅱ 방출선이 농도 검정곡선을 얻기 위해 사용되었다. 얻어진 농도 검정곡선은 각 시료 별 예상농도와 표준편차 값을 산출 하는데 이용되었다. Fig. 3은 실제 농도와 산출 값 사이의 관계를 나타낸 검정곡선 그래프로 R^2 값이 좋을수록 측정 정확도가 좋다는 것을 의미한다. ^{2} 값은 세 검정곡선 그래프에서 모두 0.99 이상의 좋은 값을 보였으며, 각 시료의 농도 편차로부터 얻어진 RMSE는 0.03355-0.11802wt%의 값으로 특히 Eu와 Pr이 좋은 값을 보였다.

3. 결론

공정시설의 실시간 모니터링 장비의 하나로 ST-LIBS 장치를 설계 및 제작 하였고, 아르곤 분위기와 폴리 카보네이트 재질의 차폐창을 갖는 글로브 박스 내에 위치된 시료의 LIBS 측정을 실시하였다. 시료는 LiCl-KCl에 소량의 란탄족 원소들(Eu, Nd, Pr)이 혼합된 고체 용융염 상태로 준비되었고, 이 시료를 대상으로 측정 정밀도와 정확도를 산출하기 위한 검정곡선들을 얻었다. 실제 농도와 산출 값 사이의 관계를 나타내는 검정곡선은 세 가지 란탄족 원소들 모두에서 선형성과 0.99 이상의 높은 R^2 값을 보였고, 각 원소들의 농도 표준편차들을 사용하여 얻어진 RMSE는 0.03355-0.11802wt%였다. 이를 통해 세가지 원소들에 대한 ST-LIBS의 측정 정확도와 정밀도가 상당히 좋은 수준임을 알 수 있었다.

4. 감사의 글

본 논문은 미래창조과학부의 재원으로 한국연구재단의 지원을 통한 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

5. 참고문헌

[1] D.W. Hahn, N. Omenetto, Appl. Spectrosc. 64(4), 347-419, 2012.

고농도 염소이온(Cl^-) 용액환경에서 악틴-Cl 및 란탄-Cl 이온간 화학결합 특성연구

조영환*, 김대현, 배상은, 박태홍
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*yhcho@kaeri.re.kr

1. 서론

고농도 Cl^- 용액환경에서 악틴 및 란탄이온과의 화학적 상호작용은 고준위 폐기물처분 및 파이로프로세싱 매질 환경조건과 유사하기 때문에 많은 관심을 끈다. 고준위방사성폐기물 처분장 Near-Field 에서 예상되는 화학적 환경은 고농도의 Cl^- 수용액 조건이다. 또한, 사용후핵연료 재순환을 위한 파이로프로세싱 공정은 ~25 M Cl^- 농도의 고온 무수 전해질환경에서 진행된다. 사용후핵연료의 처분 및 파이로프로세싱 공정중 위와 같은 조건에서 악틴 및 란탄 이온의 화학거동은 처분의 장기적 안전성평가 및 파이로프로세싱공정 개발에 중요한 정보를 제공한다. 이에 본 연구에서는 전자흡수분광 측정 및 다양한 분광학적 자료를 바탕으로 고온 용융염 환경하에서 금속-Cl 간 상호작용특성을 조사하였다.

2. 본론

모든 실험은 수분과 산소량이 1 ppm 이하로 유지된 글러브박스 내에서 이루어졌다. 금속이온의 화학종 변환 및 조절은 전기화학적 방법을 이용하였다. 전자흡수분광 측정은 광섬유 다발을 이용하여 빛을 유도하였다. 상세한 실험내용은 기발표된 논문의 기술된 내용과 동일하다[1].

3. 결과 및 토의

Siloh 등은 악틴족 이온과 Cl^- 이온간 상호작용의 주요성을 인식하여 Cl^- 농도가 U 및 TRU 이온의 전자흡수스펙트럼에 미치는 영향을 0 ~ 12 Mole LiCl 수용액 조건에서 측정하여 보고하였다[2]. 결과, ~ 10 Mole 고농도 Cl^- 환경에서 An-Cl 착물형성을 확인하였다. 최근에 Allen 등은 Siloh의 연구와 동일한 조건하의 실험을 X-선 흡수분광법 (XAS) 로 체계적으로 연구하였다[3]. 결과적으로 서로 보완적인 동일한 결론을 얻었다. 그 결론은 고농도 Cl^- 수용액환경에서 2개의 배위자리에 H_2O 대신 Cl 이 치환되며 M-Cl 간에 공유결합특성을 나타낸다는 것이었다.

LiCl 혹은 LiCk-KCl 고온 용융염매질은 M-Cl 결합특성을 체계적으로 이해할 수 있는 최적의 화학적 환경을 제공한다. 그 이유는 앞서 LiCl 수용액과는 달리 용융염자체가 용매이자 동시에 유일한 Cl^- 리간드를 제공하는 가장 단순한 화학계이기 때문이다.

악틴 및 란탄 이온의 f-d 궤도간 전이는 양자역학적으로 허용되 전이로서 세기가 강하고 화학적 환경 변화에 매우 민감하기 때문에 이온의 산화상태 및 구조, 결합의 정보를 얻기 위한 탐침의 역할을 한다. 그럼에도 그 연구사례는 많지 않았다. 그 이유는 대부분 란탄, 악틴 금속이온에서 f-d 전자전이가 일반 UV-VIS 분광계에서 얻기 불가능한 높은 에너지영역에서 일어나기 때문이다. 하지만 고온의 무산소 용융염 매질에서 U(Ⅲ/Ⅳ) 및 Np(Ⅲ/Ⅳ) 경우처럼 낮은 산화상태에서 5f-6d 전이가 UV-VIS 범위에서 관측되었다. 란탄이온의 경우 Ce(Ⅲ) 이온 외에는 Eu(Ⅱ), Sm(Ⅱ), Yb(Ⅱ) 같은 일부원소의 +2가 상태에서도 4f-5d 전자전이가 관측되었다.

금속-Cl 간 이온성 결합의 경우 f-전자전이는 원자궤도의 f-전자 특성을 따르지만, 금속-Cl 간 결합의 세기가 커져 공유결합의 특성이 증가할수록 M-L 궤도혼합으로 단일 원자궤도 f-전자특성을 잃어버리고 MO 궤도 f-전자특성을 나타낸다. 결과로, 금속-Cl 간 공유결합특성이 강해지면서 허용된 f-d 전이의 세기는 감소하면서, 금지된 f-f 전이의 세기가 증가한다. 따라서 f-d 및 f-f 전이의 상대적세기는 공유결합의 지표가 된다.

Fig. 1 에 U(Ⅲ), U(Ⅳ), Eu(Ⅱ) 이온의 예를 들어 f-d 및 f-f 전이의 실측스펙트럼 세기변화를 나타내었다.

U(Ⅲ) 의경우 상당한 공유결합특성을 나타내었다. U(Ⅳ) 의 경우 U(Ⅲ) 보다는 상대적으로 약한 공유결합특성을 나타내었다. 같은 산화상태에서 Np 의 경우 U 보다는 약한 공유결합 특성을 나타내었다. 결합특성의 차이는 각 악틴이온의 전자

구조 (electronic configuration) 차이에 기인한다. 반면에 Ce(III) 및 2가 란탄족원소들은 사실상 이온성 결합특성을 나타내었다.
금속-리간드 공유결합의 차이의 결과는 화학반응성의 차이로 나타난다. U 의 경우 산화-환원 반응속도를 측정한 결과 공유결합이 강한 U(III)-Cl 착물의 경우 상대적으로 약한 U(IV)-Cl 에 비해 높은 화학적 안정성을 나타내었다.

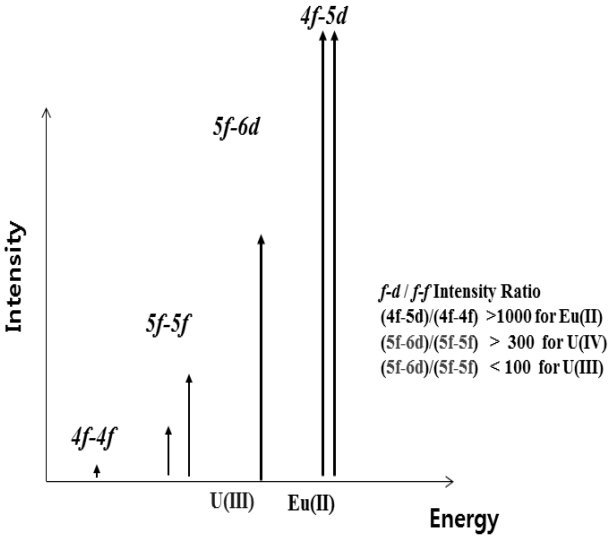


Fig. 1. Schematic diagram of *f-d* and *f-f* transition patters for lanthanide and uranium ions measured in a LiCl-KCl eutectic melt at 450℃.

일반적으로 LiCl 같은 이온성 전해질 매질에서 금속-C 간 상호작용은 이온성으로 여겨졌다. 하지만 고온용융염 매질에서 낮은산화상태의 악틴족 금속-Cl 결합은 공유결합성임을 전자흡수 분광법으로 규명하였다.

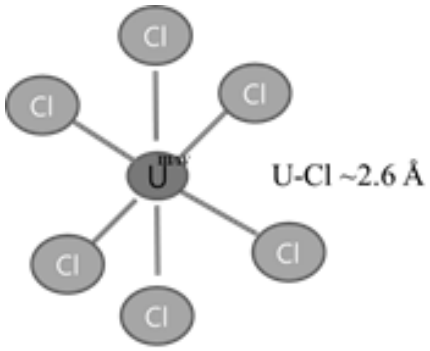


Fig. 2. Simplified molecular structure of U(III)- and U(IV)-Cl species in a LiCl-KCl eutectic melt at 450℃ Based on recent EXAFS Results.

최근 XAS 측정 및 악티나이드 계산화학기술의 발달로 밝혀지고 있는 결과는 본 전자흡수분광 연구의 결과를 보완적으로 뒷받침하고 있다[4]. (Fig. 2.)

4. 결론

고온 LiCl, LiCl-KCl 용융염에서 f-d 및 f-f 전자전이를 측정함으로써 악틴 및 란탄이온의 결합상태를 측정하였다. 결과 악틴족의 경우 같은 산화상태에서 U 은 Np 보다 강한 공유결합을 형성하였다. 모든 란탄족이온은 대부분 이온결합 특성을 나타내었다.

5. 감사의 글

이 논문은 2015년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(사업명, No. 2012M2A8A5025923)

6. 참고문헌

[1] Y. H. Cho, S. E. Bae, Y. J. Park, S. Y. Oh, J. Y. Kim, Kyuseok Song, "Electronic structure of U(III) and U(IV) ions in a LiCl-KCl eutectic melt at 450℃", Microchem. J. 102, 18 (2012).

[2] M. Shiloh Y. Marcus, "A spectro- photometric study of trivalent actinide complexes in solutions-II: Neptunium and plutonium", J. Inorg. Nucl. Chem. 28, 2725 (1966).

[3] P.G. Allen, J.J. Bucher, D.K. Shuh, N.M. Edelstein, I Craig, Coordination chemistry of trivalent lanthanide and actinide ions in dilute and concentrated chloride solutions, Inorg. Chem. 39 (2000) 595.

[4] Young-Hwan Cho, Sang-Eun Bae, Dae-Hyeon Kim, Tae-Hong Park, Jong-Yun Kim, Kyuseok Song, Jei-Won Yeon, "On the Covalency of U(III)-Cl, U(IV)-Cl bonding in a LiCl-KCl eutectic melt at 450℃: Spectroscopic evidences from their 5f-6d and 5f-5f electronic transitions", Microchemical J. In press (2015).

Raman Spectroscopic Study of Dysprosium(III) Chloride in Molten LiCl-KCl Eutectic

Seung Park and Jong-Il Yun*
KAIST, 291 Daehak-ro, Yuseong-gu, Daejeon, Korea
*jiyun@kaist.ac.kr

1. Introduction

Raman spectroscopy has been employed for analyzing the molecular structure and coordination complex. The Raman spectroscopic studies for rare earth halides and their binary melt systems with alkali halides have shown that the predominant species of YCl_3-ACl binary system rich in ACl (X_{YCl3} < 0.25, A = alkali metal) are the YCl_6^{3-} octahedra [1]. It was reported that the octahedral symmetry of rare earth metal halides is distorted in small-cation-rich systems having larger polarizing power [2]. In the present study, $DyCl_3$-LiCl-KCl ternary system was investigated with high-temperature Raman spectroscopy to identify the ionic species in chloride melts.

2. Experimental

2.1 Sample preparation

Anhydrous LiCl-KCl (LiCl 44wt%, 99.99% purity) and $DyCl_3$ (99.99% purity) purchased from Sigma-Aldrich were used without further purification. Samples were prepared in a hermetically sealed glove box under anhydrous and anaerobic atmosphere of Ar gas (99.9999% purity, H_2O and O_2 < 1ppm).

The $DyCl_3$-LiCl-KCl samples at various concentrations of $DyCl_3$ were melted in the furnace at 773 ~ 823 K, which is attached to the bottom of the glove box under the same atmosphere. In the present work, a quartz tube was used as crucible. The melted $DyCl_3$-LiCl-KCl was sampled using a thin pyrex tube, and both sides were blocked using paraffin film. The tube was hermetically sealed by melting the thin top with an open flame of gas torch outside glove box.

2.2 Measurement of Raman spectra

The chloride samples were excited by Ar ion laser (514.5 nm, continuous wave, 40 mW maximum power) and the scattered light was measured with LabRAM ARAMIS Raman microscope system (Horiba scientific). The sealed pyrex tube was located on a temperature-controlled stage, THMS600 (Linkam Scientific Instruments), and the laser was focused with an object lens of 50x magnification. The Raman scattering from pyrex tube was eliminated by focusing incident laser beam onto the sample in the middle of tube.

3. Results

Figure 1 shows the Raman spectra of $DyCl_3$-LiCl-KCl melt at 500°C. The Raman bands at 133 cm^{-1} (line 1 in graph) and 267 cm^{-1} (line 3) were assigned to the T_{2g} and A_{1g} symmetry species, respectively [3]. At lower concentration of $DyCl_3$, Raman peaks were observed only at T_{2g} and A_{1g} bands.

As the mole fraction of $DyCl_3$ was raised (≥ 31 mol%), the intensity ratio of A_{1g} to T_{2g} was increased, and a new Raman band (line 2) appeared. The new band's rising was obvious when X_{DyCl3} was larger than 0.44, while it was slow below that fraction. The Raman frequency

around the T_{2g} band was gradually decreased with increasing mole fraction of $DyCl_3$. The Raman peaks and their assignment for all mixtures are listed in Table 1.

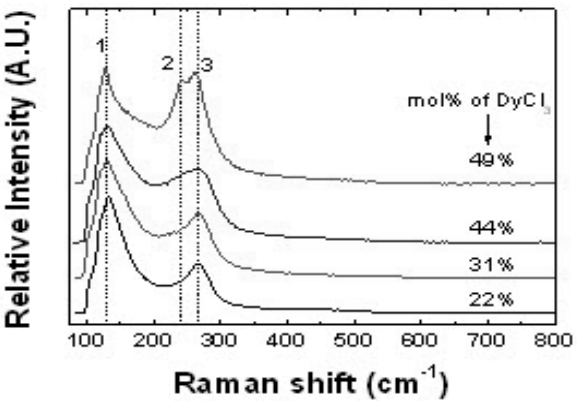


Fig. 1. Raman spectra of $DyCl_3$-LiCl-KCl mixture at 500℃.

The A_{1g} band is a totally symmetric stretching vibration (ν_1). The shape change of the A_{1g} band due to the appearance of the new band (line 2) may indicate the distortion of octahedral structure of $DyCl_6^{3-}$, which has higher symmetry.

Table 1. Observed Raman bands in $DyCl_3$- LiCl-KCl mixtures at various concentrations at 500℃

Concentration of $DyCl_3$ (mol%)	Raman band (cm^{-1})		
	T_{2g}	E	A_{1g}
22	133	-	266
31	131	-	268
44	131	245	267
49	129	241	262

The local symmetry of yttrium and some lanthanides (La, Nd, Gd) chlorides was reported to be changed to the distorted octahedral D_3 for compositions rich in YCl_3 [1] or $LnCl_3$ [2]. According to the correlation table of point groups [2], the symmetry change occurs as $A_{1g}(3) \rightarrow A_1(3)$, $E_g \rightarrow E(2)$, and $T_{2g}(1) \rightarrow A_1(3) + E(1)$. The scheme assigns all the bands observed. The numbers in parentheses represent the lines in Figure 1. This distorted symmetry can be considered as a loose network-like structure, and each octahedron ($DyCl_6$) shares edges with three other octahedra, similar to $SmCl_3$ in LiCl or KCl [4].

4. Conclusions

The Raman spectra of dysprosium chloride lithium-potassium chloride ternary system was characterized at various $DyCl_3$ concentrations. The corner- or edge-sharing species of distorted octahedral $DyCl_6^{3-}$ complexes have been observed in the melts of high $DyCl_3$ concentration (≥ 31 mol%).

5. Acknowledgement

This work was supported by the National Research Foundation of Korea (NRF) grant funded by the Korea government (No. NRF-2013M2B2A9A03050604).

6. References

[1] G.N. Papatheodorou, J. Chem. Phys. 66, 2893 (1977).

[2] G. Photiadis, B. Borresen, G. Papatheodorou, J. Chem. Soc. Faraday Trans. 94, 2605 (1998).

[3] M. Choca, J.R. Ferraro, K. Nakamoto, Coord. Chem. Rev. 12, 295 (1974).

[4] K. Fukushima, H. Yamoto, Y. Iwadate, J. Alloys Compd. 290, 114 (1999).

사용후핵연료 건식저장 초장기화에 따른 주요 열화기구 및 연구방향

국동학*, 양용식, 구양현
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*syskook@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료 관리에 대한 국가정책이 처분 혹은 재처리와 상관없이 현재 대규모로 건식저장하고 있는 나라들의 건식저장의 기간이 최근 초장기화되고 있는 실정이다. 이러한 경향을 살펴보고 그에 따른 핵연료 연구방향을 제언하고자 한다.

2. 본론

2.1 건식저장의 장기화

미국은 현재 전 세계적에서 가장 많은 건식저장 시스템을 운영중이며, 2014년 9월 미국 NRC는 Waste Confidence의 최종 결과물로써 General Environmental Impact Statement[1)]를 발간하였다. 가장 중요한 내용은 Waste Confidence를 구체화하기 위하여 이름을 Continued Storage로 변경한 것과, 60년 건식저장을 short-term, 100년을 추가한 160년을 long-term, 그리고 처분장이 끝내 운영을 시작하지 못했을 경우에도 건식저장이 가능할 수 있다는 indefinite storage를 새롭게 정의하였다는 점이다 (Fig. 1). 아울러 두 번째로 많은 양의 건식저장을 수행중인 독일 역시 초기 40년의 인허가 종료를 앞두고 이의 연장을 위한 연구에 착수하고 있는 상황이다. 이와같이 건식저장은 처분 혹은 재처리 등의 국가 정책과 별도로 도입 초기의 'interim' 성격을 넘어서 초장기화하고 있는 추세이다.

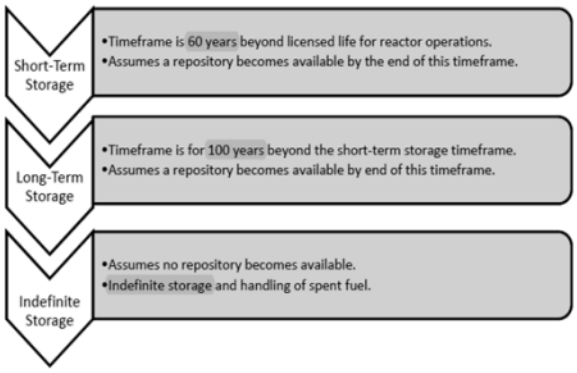


Fig. 1. New definition of spent fuel dry storage duration from US NRC.

2.2 다목적 개념의 Packaging

사용후핵연료는 관리순서 상 저장용기, 수송용기, 처분용기로 옮겨지게 된다. 그러나, 현실적으로 저장용기의 용량 (PWR 기준으로 24~37 개)과 처분용기의 용량 (PWR 기준으로 미국의 유카마운틴은 21개, 핀란드/스웨덴은 4개)이 서로 상이하기 때문에 밀폐된 용기의 개봉은 필연적이다. 이에 따른 관리의 부담을 줄이기 위하여 최근에는 Fig. 2[2)]와 같이 canister에 기반한 단일한 최초의 packaging 이후에는 밀봉을 해체하지 않는 개념이 선호되고 있다. 이러한 환경은 곧바로 최초 저장용기 장입전의 사용후핵연료 상태를 제대로 파악해야만 한다는 요구사항으로 이어지게 된다.

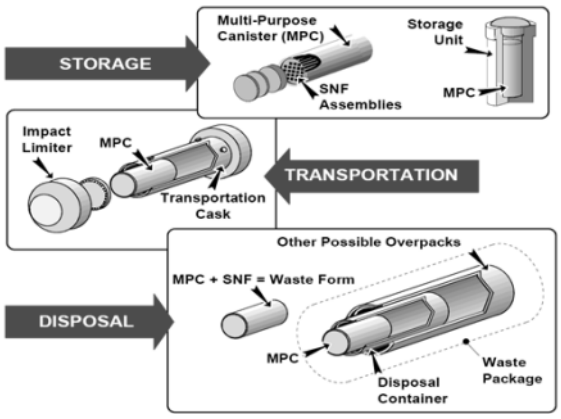


Fig. 2. Spent fuel management in series by just one packaging.

2.3 수소화물의 영향

Fig. 3은 실제 사용후핵연료 건식저장시스템[3)]의 시간(년)에 따른 온도감소 경향을 보여주고 있다. 건식저장 초기에는 진공건조과정 이후에 높은 온도에 의해 봉내압 응력이 크기 때문에 creep에 의한 영향이 지배적인 반면, 수십년 이후에 온도가 충분히 감소된 영역에서는 낮은 온도에 따라 수소고용농도가 낮아지고, 그만큼 수소화물 침전이 심화됨으로써 피복관 취화가 진행되게 된다. 그중에서도 가장 대표적인 열화과정은 hydride reorientation과 delayed hydride cracking으로 판단된다. Hydride reorientation은 피복관이 고온상

태의 진공건조를 겪은 후에 온도하강에 따른 수소화물 재침전시 침전 방향을 피복관의 건전성에 취약한 반경방향(radial)으로 생성되는 열화과정을 의미하며, delayed hydride cracking은 최초 이미 존재하고 있던 crack 주변으로 수소가 지속적으로 몰려들어 취성이 강한 수소화물을 침전시키고 파쇄됨으로써 최초의 crack을 더욱 진전시키고 최종적으로 심각한 failure로 연결되는 열화기구이다.

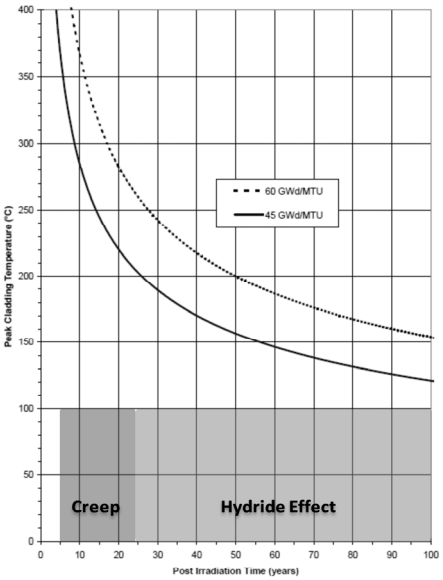


Figure 4.3-3 - PWR Fuel Peak Cladding Temperature Decay

Fig. 3. Temperature decrease by time-year (from commercial dry storage cask SAR).

2.4 연구방향

앞서 언급한 건식저장기간의 증가에 따라 수소화물관련 연구의 중요도가 매우 높아졌으며, 다목적 packaging 요구에 따라 연구의 정밀도 역시 높아졌다. 과거에는 containment 개념 중심의 용기의 건전성이 우선시 되었던 반면, 이제는 저장의 대상인 사용후핵연료의 거동을 매우 잘 이해하고 미리 제대로된 처리를 수행하는 것이 중요해졌다. 따라서 사용후핵연료 관련 연구는 아래와 같은 방향으로 추진되는 것이 바람직하다.

Hydride reorientation과 관련해서는 수소농도 분포에 대한 보다 정확한 검증이 필요하고, thermal cycling 효과, 미조사 피복관의 단점인 hydride rim 없음의 효과, 소결체 없이 피복관만으로 수행된 mechanical test 효과, creep에 의해 가속화된 효과 등을 파악하기 위한 심도있는 실험 진행이 필요하다.

Delayed hydride cracking에 관해서는 여러 농도의 수소와 지르코늄 합금간의 TSS(Terminal Solid Solubility) 이력에 대한 정확한 값을 알아내는 것이 필요하다. 그리고 건식저장에서 허용하고 있는 pinhole crack과 hairline crack이 DHC의 초기 crack으로써의 역할을 수행할 가능성에 대한 검토가 필요하며, 그동안 많은 논란이 진행되어온 수소 확산의 주요 driving force에 대한 원인 규명 작업도 필요하다. 특히나 기존의 연구는 중수로 압력관을 중심으로 진행된 반면, 실제 사용후핵연료를 대상으로 진행된 자료는 거의 없는 실정이다. 서두에 언급한 바와 같이 건식저장이 200년 단위로 진행될 경우에 대한 DHC 진행 예측도 필요함은 물론이다.

3. 결론

사용후핵연료 건식저장은 초기의 예상과는 달리 저장기간이 초장기로 길어지고 있는 상황이다. 경수로 사용후핵연료 건식저장을 준비해야하는 우리나라의 입장에서는 이러한 변화된 상황을 충분히 고려하여 국내 사용후핵연료 연구의 방향과 실험 조건을 잘 반영할 필요가 있다. 후발주자는 앞선 주자의 경험을 받아들임으로써 시간과 투자비용을 절약할 수 있는 반면에, 최신의 상황을 반영한 결과물을 만들어내야하는 부담을 갖기 때문이다. 최근의 초장기 저장 및 다목적 개념의 packaging 환경은 사용후핵연료 피복관의 수소화물 관련 연구의 중요성을 더욱 높이고 있으므로 이 분야에 대한 연구노력이 매우 필요한 상황이다.

4. 감사의 글

본 연구는 산업통상자원부 방사성폐기물관리기술개발사업의 지원으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

5. 참고문헌

[1] "Generic Environmetal Impact Statement for Continued Storage of Spent Nuclear Fuel-Final Report", NUREG-2157, 2014.9, US NRC.
[2] "Perspectives on the Role of Retrievability and Clad Integrity", US DOE, 2012, NEI Conference.
[3] FuelSolutions W21 Canister Storage FSAR, Revision 5, April 2007.

Selection Strategy of Representative Spent Nuclear Fuel

S.K.Lee, S.Y.Kim*, Y.H.Lee, N.G.Park, D.U.Choi, and C.J.Lim
KEPCO Nuclear Fuel, 282 Daedeok-daero 989 beon-gil, Yuseong-gu, Daejeon, Korea
*soyoungkim@knfc.co.kr

1. Introduction

The spent nuclear fuel(SF) is to be an urgent issue since the storage capability of each domestic nuclear power plant will reach a saturated state in the near future. To solve this facial problem, a dry storage is one of the realistic countermeasures other than many other SF management options. To this end, the SF integrity evaluation is main activity among many matters that shall be peformed. By the way, unfortunately, various kinds of SF in Figure 1 have been stored in Korean nuclear power plants. This situation could be burden to the related evaluation. Most of the international leading institutes have approached this matter from a selection of representative SF(RSF) at first stage for the effectiveness of evaluation and thereafter the detailed evaluations are executed targeted on one[1,2]. There might be many kinds of methodologies to select RSF. In this paper a promising suggestion is to be proposed considering diverse parameters and also Korean situation.

2. Selection Approach of RSF

Major parameters are selected considering technology development activities such as structural strength(weakness), out-of-reactor test for fresh fuel, examination(pool side, hot cell, etc), computational modeling/analysis, manufacturability of specimen, extraction of SF fuel rod, reassembly of SF, SF amount, etc. The backgrounds of picking them up are addressed as following sections for each parameter.

2.1 Structural Strength

For the conservatism, bounding approach, parametric analyses are performed to select the RSF among target SF types. Through these analyses, the most limiting SF is to be determined for postulated transportation event and accidents described in 10CFR71[3]. SF characteristics affect geometry and material composition have a large impact on fuel rod and SF response. For example, a critical dimension of SF is the distance between spacer grids that affects fuel rod impact response in all orientation. From the viewpoint of material strength, there might be many uncertainties since nuclear fuels are manufactured in a variety of specifications and irradiated under different reactor conditions.

2.2 Manufacturability

At the stage of evaluation methodology development, specific works are required to produce some technical information employed in modeling SF behavior during its transportation and storage. Manufacturing is one of the important service for required component-wise or assembly-wise tests. Sometimes, however, reproducibility can not be guaranteed for old type SF, which is not produced any longer by fuel vendor(KEPCO Nuclear Fuel in Korea) since manufacturing zigs and tools is not available.

2.3 Reconstitution/Reassembly

Physical and geometrical examinations of SF are also necessary to get some information for a computational modeling and setting up the equivalent test conditions to conduct out-of-reactor test since SF data is very rare and expensive. To this end, SF fuel rod or components shall be separated from assembly and transferred to hot cell examination facility. Some SF designs, however, are not allowed to extract fuel rod and reassembly with dummy rod to make up empty rod position.

2.4 Others

Other parameters considered are the amount of

SF, the urgency of SF transportation and interim storage, etc. Those depend on the plant-by-plant and socio-political situation.

2.5 Final Determination Strategy of RSF

The RSF shall be chosen by considering all the parameters described in sections 2.1 thru 2.5. Some parameters conflict with the others, and this makes it difficult to choose RSF. In this case, a general engineering approach is to be applied to select RSF. To evaluate the integrity of SF, it is impossible to perform test with SF directly in assembly-wise so the evaluation is generally carried out by modelling and simulating SF under the postulated accident/event environments during the handling and/or transportation. To get a credible model and analysis results, simulating SF response behavior, this modelling shall reflect the proper physical condition(geometry, material etc.) using the reliable tests, literature technical information and data base. Thus, using available fuel components and assembly manufactured by authorized QA procedure and reconstitutable SF, reliable model can be accomplished. With this model, the SF integrity evaluation can be extensively applicable to other SFs even if the selected SF is not the weakest SF from the standpoint of Section 2.1. Rather, satisfying Sections 2.2 and 2.3 is more important since evaluating Section 2.1 has a lot of uncertainties such as the SF kinematic nonlinear, material property definitions strongly contingent on the in-reactor history and manufacturing specifications, etc. Therefore, the items of Sections 2.2 and 2.3 shall be in the order of priority.

3. Conclusion

Many parameters shall be considered for selecting RSF to cover various kinds of SF and to simplify lots of evaluation work. Considering technology development step and other circumstances, SF manufacturing ability and reconstitution/reassembly shall be higher priority than other parameters. First above all, development of reliable model is to be prioritized and then this model can be applied to other SFs such as the weakest SF in strength.

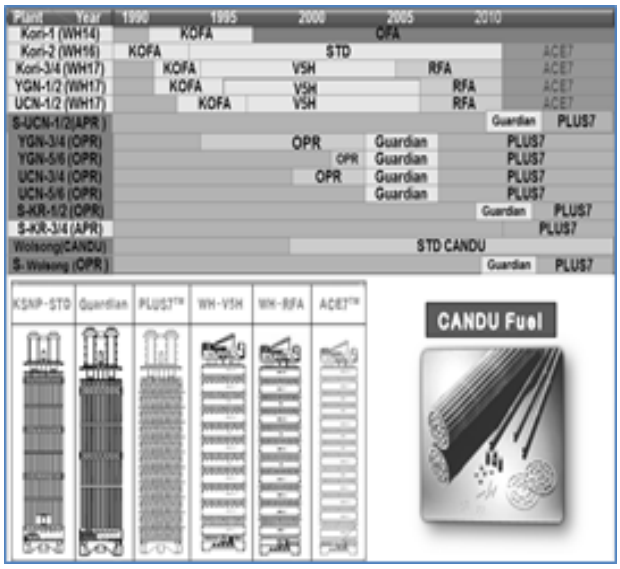


Fig. 1. Nuclear Fuel Loading History in Korea.

4. Acknowledgement

This work is supported by Korea Institute of Energy Technology Evaluation and Planning (KETEP) grant funded by Ministry of trade, industry & energy.

5. References

[1] T. L. Sanders et al., “A Method for Determining the Spent Fuel Contribution to Transport Cask Containment Requirements”, SAND902406, DOE (1992).

[2] “Fuel-Assembly Behavior under Dynamic Impact Loads due to Dry-Storage Cask Mishandling”, NP-7419, EPRI (1991).

[3] CFR(US Code of Federal Regulations), Title 10, “Packaging and Transportation of Radioactive Material”, Part 71, 1990.

1분과

후행핵연료주기기술 및 정책(Poster)

KOREAN RADIOACTIVE WASTE SOCIETY

연소도이득을 적용한 핵임계안전성평가를 위한 Depletion 계산코드의 검증

윤형주, 홍서기, 박광헌*
경희대학교, 경기도 용인시 기흥구 덕영대로 1732
*kpark@khu.ac.kr

1. 서론

국내 원자력발전소의 사용후핵연료(Used Nuclear Fuel, UNF) 소내저장능력이 2024년이면 한계에 도달하여, 최악의 경우 UNF의 저장문제로 인해 원자력발전소의 운전이 불가능해지는 상황이 올 수 있다. 이를 대비하여 UNF의 장기 건식저장에 대한 준비가 필요하고, 그에 대한 정확한 안전성 평가들이 중요하다. 특히, 핵임계안전성평가는 그 어떠한 조건에서도 그 시스템이 미임계성을 유지하고 있는지를 평가해야 하고, 국외의 경우, 최근에는 핵임계안전성평가에서 연소도이득(burnup credit)을 적용하여 UNF를 건식저장용기 내에 보다 경제적이고 효율적으로 저장할 수 있다. 연소도이득을 통한 핵임계평가과정에서는 UNF 내 존재하는 주요 actinides의 조성비가 핵임계평가결과에 민감한 영향을 미치기 때문에, 이들의 조성비에 대한 정확한 예측이 중요하다. 그러므로, 본 연구는 사용후핵연료 샘플에 대한 측정치가 존재하는 Takahama-3 PWR 원자로 내 2가지 사용후핵연료봉에 대해 SCALE6.1/ORIGEN-ARP와 SCALE6.1/TRITON 코드를 이용하여 계산한 조성들을 실험결과와 비교·검증하고 분석하였다.

2. 본론

2.1 PWR 사용후핵연료봉들의 구성

Takahama-3 PWR 원자로 내 핵종조성실험을 위해 고려한 사용후핵연료봉들은 Westinghouse 17X17 핵연료다발 내에서 Table 1과 같은 주요 조건들에 의해 만들어졌다[1].

Table 1. Major specification of PWR UNFs [1]

^{235}U Enrichment for UO_2 Fuel Rods	4.11wt%
^{235}U Enrichment for UO_2-Gd_2O_3 Fuel Rods	2.61wt%

Sample ID	Axial Location(cm)	Burnup (MWD/MTU)
SF95-1	20.1	14,300
SF95-2	36.1	24,350
SF95-3	88.1	35,520
SF95-4	216.1	36,690
SF95-5	356.1	30,400
SF97-1	16.3	17,690
SF97-2	35.0	30,730
SF97-3	62.7	42,160
SF97-4	183.9	47,030
SF97-5	292.6	47,250
SF97-6	355.6	40,790

Fig. 1은 SCALE 6.1/TRITON을 통해 모델링한 핵연료다발 내 SF95와 SF97 핵연료봉의 위치를 나타내고 있다. SF95 핵연료봉은 노란색 위치에 있고, SF97 핵연료봉은 빨간색 위치에 있다. 각 Z 핵연료봉의 실험시편들은 최상단으로부터 Table 1의 축 방향 위치들에서 만들어졌다.

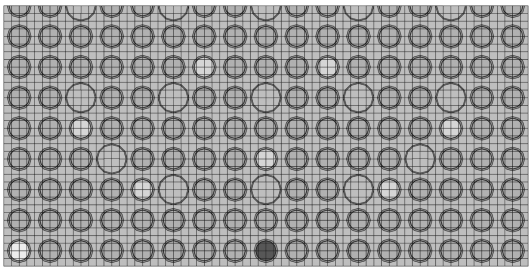


Fig. 1. Half Configuration of 17X17 UNF Assembly.

2.2 핵종조성실험방법

Takahama-3 PWR 원자로 내 SF95와 SF97의 사용 후 핵연료봉에 대한 핵종조성분석를 위한 실험은 JAERI에서 수행되었다. SF95와 SF97의 시편들에 대한 실험방법들은 시편 파괴를 통한 화학분석법과 비파괴를 통한 방사선검출법으로 수행하였다. Table 2는 2.3절에서 다루는 핵종들에 대한 실험측정법들과 상대표준편차(Relative Standard Deviation, RSD)들을 나타내고 있다[1].

Table 2. Experimental measurement and RSD [1]

Nuclide	Measurement	RSD
^{234}U	IDMS*	< 1%
^{235}U, ^{238}U	IDMS	< 0.1%
^{239}Pu, ^{240}Pu, ^{241}Pu	IDMS	< 0.3%

* IDMS : Isotopic Dilution Mass Spectrometry

2.3 코드계산결과 및 분석

연소도이득을 통한 핵임계평가과정에서는 연소도에 따라 연소된 UNF 내 포함하고 있는 각 핵종의 조성비를 예측하는 depletion 계산을 수행한 후, UNF의 구성핵종(특히, 중성자의 흡수 및 생성단면적이 큰 핵종)들을 고려하여 criticality 계산을 수행한다. 이 과정에서 중성자의 흡수 및 생성단면적이 큰 핵종들을 포함한 다양한 구성핵종들의 조성비를 정확하게 예측하는 것이 중요하고, 특히, 주요 actinides의 조성비들에 따라 criticality 계산결과에 미치는 영향이 매우 크다. 그러므로, 각 핵종의 조성비(g/초기 U ton)에 대한 SCALE6.1/ ORIGEN-ARP와 TRITON 계산결과들을 실험결과와 비교·검증하였다.

2.3.1 ORIGEN-ARP 코드계산

초기 핵연료의 농축도는 4.11wt%을, 핵반응단면적라이브러리는 Westinghouse 17X17을 적용하였다. 그리고 비출력(MW/MTU)은 참고문헌 1에서 제공하는 연소이력으로 설정하였고, 계산결과의 상대오차(%)들은 Table 3에 정리하였다.

Table 3. Relative errors(%) between the experimental and calculated results by ORIGEN-ARP code

Nuclide	^{234}U	^{235}U	^{238}U	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu
SF95-1	10.75	0.37	0.02	0.88	0.14	2.49
SF95-2	11.01	0.83	0.04	4.88	2.66	10.90
SF95-3	28.88	3.92	0.07	5.46	0.73	10.23
SF95-4	26.42	1.46	0.00	2.05	3.08	5.87
SF95-5	7.64	0.26	0.04	1.26	4.34	1.91
SF97-1	7.38	1.83	0.19	23.62	9.66	21.27
SF97-2	10.86	3.12	0.04	3.24	2.99	8.66
SF97-3	7.76	5.71	0.10	4.04	3.93	9.00
SF97-4	6.52	3.44	0.04	0.94	4.42	5.82
SF97-5	6.49	1.50	0.01	0.05	5.59	4.62
SF97-6	7.73	1.18	0.09	4.90	7.48	0.13
RMS	14.16	2.69	0.08	7.80	4.87	9.20

2.3.2 TRITON 코드계산

초기 핵연료의 농축도는 4.11wt%을, 핵반응단면적라이브러리는 44 에너지그룹의 ENDF/B-V을 설정하였다. 그리고 비출력(MW/MTU)은 참고문헌 1에서 제공하는 연소이력을 기준으로 설정하였고, 계산결과의 상대오차(%)들은 Table 4에 정리하였다.

Table 4. Relative errors(%) between the experimental and calculated results by TRITON code

Nuclide	^{234}U	^{235}U	^{238}U	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu
SF95-1	10.55	2.91	0.08	10.37	0.37	1.08
SF95-2	11.56	7.43	0.01	6.43	3.28	8.46
SF95-3	30.83	11.26	0.02	9.43	1.08	5.32
SF95-4	31.04	19.94	0.06	12.87	0.12	4.03
SF95-5	13.38	4.45	0.51	20.28	21.35	22.02
SF97-1	6.75	3.51	0.26	31.81	13.84	28.25
SF97-2	10.59	2.04	0.04	4.37	5.65	4.58
SF97-3	8.17	3.87	0.00	5.25	6.84	3.69
SF97-4	7.28	8.82	0.05	9.39	7.78	0.30
SF97-5	7.26	11.25	0.09	10.53	8.99	1.52
SF97-6	8.00	10.75	0.18	14.85	10.45	5.80
RMS	15.76	9.34	0.19	14.44	9.48	11.56

초기 TRITON 코드는 ORIGEN-ARP 코드와 달리 2차원 중성자 flux 분포에 의해 계산결과가 달라진다. 예를 들어, Fig. 2는 SF97-2 시편에 대한 열중성자 0.0253 eV를 포함한 41번째 에너지그룹의 중성자 flux 분포를 나타내었다. 여기서 빨간색은 높은 flux를, 파란색은 낮은 flux를 의미한다.

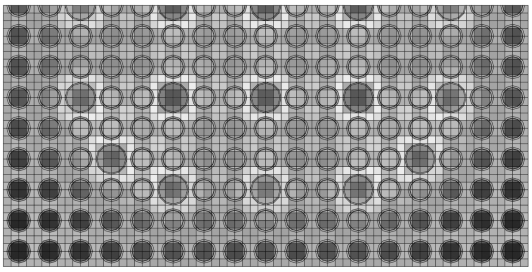


Fig. 2. Thermal Neutron Flux Distribution.

3. 결론

연소도이득을 통한 핵임계평가과정 중 depletion 계산으로써 주요 actinides의 조성비에 대한 정확한 예측이 중요하고, ORIGEN-ARP와 TRITON 계산결과들을 실험결과와 비교·검증하였다. 통계적인 제곱평균제곱근(RMS) 방법으로 보면, 전반적으로 TRITON(10.13%)보다 ORIGEN-ARP(6.47%)가 실험결과에 더 근접한 결과를 예측하였다. 그러므로 핵임계평가의 depletion 계산으로써 ORIGEN-ARP 코드가 더욱 적절함을 알 수 있다.

4. 참고문헌

[1] C.E. Sanders and I.C. Gauld, "Isotopic Analysis of High-Burnup PWR Spent Fuel Samples From the Takahama-3 Reactor", NUREG/CR-6798, ORNL/TM-2001/259 (2003).

Monte Carlo Codes (KENO-Va, MCNP-X, SERPENT) 임계실험 검증

김광봉[1], 차균호[2*]
[1]조선대학교, 광주광역시 동구 필문대로 309
[2]한수원㈜중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70
[*]khcha.cri@khnp.co.kr

1. 서론

최근 경수로 사용후연료의 습식 및 건식저장에 대한 규제요건이 강화됨에 따라(DSS-ISG-2010-01 Rev.0[1] 및 ISG-8 Rev.3[2]), 임계도 평가에서 임계실험 및 연소핵종 검증의 중요성이 대두되고 있다. 본 논문은 지금까지 임계도 평가에 자주 사용되어 왔던 Monte Carlo 코드(KENO-Va 및 MCNP-X)와 '04년에 Finland에서 개발되어 최근 유럽 등에서 많이 사용되고 있는 SERPENT 코드[1)]의 임계실험에 대한 유효성을 검증한 것으로서, 위 세 코드는 연소핵종 검증을 위한 Burn-up Credit 적용이 가능한 코드이다. 또한 강화된 규제요건에 대한 검증결과의 적합성을 판단하기 위하여 NUREG/CR-6698[3]에 따라 세 코드 각각에 대한 통계적 분석 및 유효성 검증을 수행하였다.

2. 본론

2.1 임계실험 선정

검증계산의 대상으로 선정되는 임계실험은 실제 임계안전을 평가하려고 하는 대상의 특성을 잘 반영하여야 한다. 이 검증계산에 고려되는 임계안전해석 대상은 경수로용 핵연료 저장시설이다. 이에 따라 해석 방법의 타당성을 입증하기 위하여 UO_2 핵연료봉이 집합체 형태를 구성하고 있으며 감속재로 물을 사용하는 임계실험을 검증대상으로 설정하고, ICSBEP[2)]가 OECD/NEA 문서로 발간한 핸드북[4]에서 이러한 조건을 만족하는 임계실험 볼륨-IV "저농축 우라늄 시스템 (LEU-COMP-THERM-0XX)"중 8개 임계실험 자료에서 총 115개 실험(01, 02, 09, 13, 16, 17, 42)을 선정하였다.

2.2 임계실험 모델링

임계실험 모델링을 위한 KENO-Va 및 MCNP 입력은 핸드북에 기술되어 있지만, 일부 수정하였으며, SERPENT 입력은 추가로 생성하였다. 핸드북에 기술된 입력의 반응수와 반응당 중성자의 개수는 일반적으로 너무 낮아 검증에 사용되는 115개 입력파일은 세 코드 모두 반응당 6,000개 중성자 및 2000개의 반응으로 입력하였다.

2.3 데이터 분석

임계실험 결과값에 가정된 통계분포에는 적절한 통계분석 방법이 수행되어야 한다. 계산된 k_{eff} 값에 대한 통계분석의 타당함을 보일 수 있는 분포로는 Gaussian 분포, 정규분포, Student's t 분포 및 Poisson 분포 등과 같이 다양한 특성의 분포가 있지만, NRC 지침에 따르면, 임계실험 결과에 대하여 반드시 정규분포 점검을 수행하도록 권고하고 있다.

데이터 분석은 NUREG/CR-6698에 따라 통계적 분석 및 유효성 검증을 수행하였으며, 입력 데이터(x_i)의 통계적인 중요성 여부를 판단하기 위하여 Student t-test를 이용하였다. 선형회기선의 기울기(b)가 특정 값(b_0)과 동일하면 통계적으로 중요한 경향성을 가지게 된다. 임계실험 계산 결과의 검증을 목적으로 귀무가설을 통계적으로 유의한 경향이 존재하지 않다고 설정하고(b=0), 유의수준(α) 0.05의 대립가설을 설정한다(b_0=0). 즉, 귀무가설의 기각 여부를 결정하기 위하여 t_{score}가 계산되며, 이 값을 Student t 분포와 비교한다. 회기선의 기울기에 대한 t_{score}는 다음과 같이 주어진다.

$$t_{score} = \frac{(b-b_0)\sqrt{n-2}}{\sqrt{\frac{SSE}{\sum(x_i-\bar{x})^2}}} \quad (1)$$

여기서,

$$SSE = \sum[k_{effi} - (a+bx_i)]^2 \quad (2)$$

만일 $|t_{score}| > t_{\alpha/2,n-2}$ 이면, 귀무가설은 기각된다. (α = 0.05, 유의수준)

1) Continuous-energy Monte Carlo Reactor Physics Burnup Calculation Code
2) International Criticality Safety Benchmark Evaluation Project

2.4 데이터 처리를 위한 통계분석

만일 데이터가 정규분포를 보이면 상부안전제한치(USL; Upper Safety Limit) 결정에 일방공차한계(one-sided tolerance limit) 및 공차구간(tolerance band)과 같은 통계기법이 사용될 수 있으며, 데이터가 정규분포를 보이지 않을 경우의 USL 결정은 비모수 통계분석(non-parametric analysis)을 적용해야 한다.

계산된 k_{eff}와 독립변수간의 관계가 결정될 수 있다면 일방하부 공차구간이 사용될 수 있으며, 임계실험에 대한 일방하부 공차구간의 bias 및 bias uncertainty는 다음과 같이 표현된다.

$$bias = \begin{matrix} K_{fit} - 1.0 & : K_{fit} < 1.0 \\ 0.0 & : K_{fit} \geq 1.0 \end{matrix} \quad (3)$$

$$bias\ uncertainty = S_{P_{fit}}\left\{\sqrt{2F_a^{(2,n-2)}\left[\frac{1}{n}+\frac{(x-\overline{x})^2}{\sum(x_i-\overline{x})^2}\right]}+z_{2P-1}\sqrt{\frac{(n-2)}{\chi^2_{1-\gamma,n-2}}}\right\} \quad (4)$$

(※ 각 항목에 대한 정의는 NUREG/CR-6698 참조)

2.5 분석결과

세 코드에 대한 임계실험 입력 데이터 분석결과 데이터의 경향성은 모두 유사한 결과를 보였다. SERPENT에 대한 결과(Fig. 1 및 Table 1)에서 보듯이 입력 데이터 중 Pin Pitch는 뚜렷한 경향성이 없어 통계적으로 유의하지 않는 것으로 나타났으며, 연료농축도와 연료직경 데이터는 약간의 경향성이 보여 통계적으로 유의함을 알 수 있다. 또한 세 코드의 유효성 검증 결과는 Table 2와 같다.

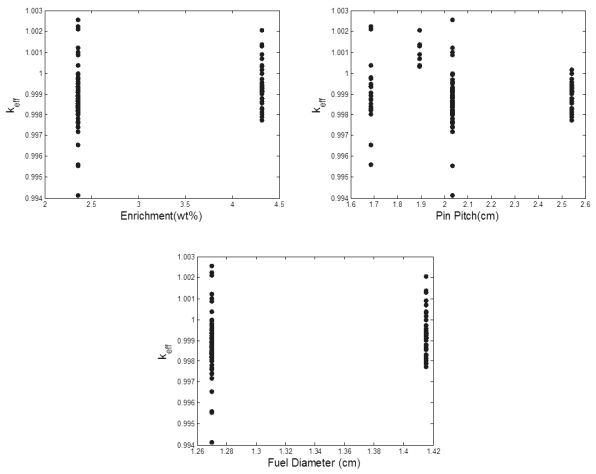


Fig. 1. Trend Analysis (SERPENT).

Table 1. Trend Results using t-score (SERPENT)

	^{235}U Enrichment	Pin pitch	Fuel diameter
t-score	2.428137	-0.987889	2.428137
Student-t Compare Value	± 1.981180	± 1.981180	± 1.981180
Result	Statistically Significant	Not Statistically Significant	Statistically Significant

Table 2. Best Estimate Bias and Bias Uncertainty

Code	bias and bias uncertainty
KENO-Va	-0.00210 ± 0.00278
MCNP-X	-0.00457 ± 0.00274
SERPENT	-0.00087 ± 0.00274

3. 결론

임계도 평가시 사용이 가능한 Monte Carlo 코드(KENO-Va, MCNP-X 및 SERPENT)의 임계실험에 대한 유효성을 NUREG/CR-6698 및 t-score를 이용하여 검증하였다. 각 코드들은 연료농축도 및 연료직경에 대하여 통계적으로 유의한 결과를 보였다. 따라서 임계도 평가시 연료직경 및 연료농축도에 대한 일방하부 공차구간을 적용하여 USL을 만족하는 최적의 k_{eff}를 계산할 수 있다. 또한 세 코드에 대한 bias 및 bias uncertainty 평가결과는 SERPENT 코드의 bias가 가장 적음을 확인하였다.

4. 참고문헌

[1] DSS-ISG-2010-01, "Staff Guidance Regarding the Nuclear Criticality Safety Analysis for Spent Fuel Pools.

[2] ISG-8, Rev.3, "Burnup Credit in the Criticality Safety Analyses of PWR Spent Fuel in Transportation and Storage Casks".

[3] J. C. Dean, R. W. Tayloe, Jr, "Guide for Validation of Nuclear Criticality Safety Calculational Methodology", NUREG/CR-6698, 2001.

[4] Nuclear Energy Agency, OECD, "International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments" NEA/NSC/DOC(95)03, Volume VI, 2008.

네오디뮴 및 방사성 핵분열생성물 지표원소를 이용한 SFR 금속핵연료 연소도측정

김정석*, 김영복, 전영신, 박양순, 강병만, 박재일, 하영경
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*njskim1@kaeri.re.kr

1. 서론

핵연료의 연소도 측정결과는 핵연료의 연소결과 일어나는 여러 현상, 즉, 입자성장, 팽윤 및 핵분열기체발생 등의 핵연료특성, 원자로출력 및 중성자속분포 등에 관한 중요한 핵공학적 정보를 제공하므로써 핵연료설계 및 노심설계 code의 검증과 개량, 연소도와 연료봉변수와의 상관관계, safegads, 재처리 및 저장시설의 차폐, 사용후핵연료의 최종처분 등에 필수적인 기초자료로 활용된다. 환경 친화적이며 자원의 재활용, 높은 경제성과 안정성, 핵확산 저항성의 특성을 지닌 차세대 원자로로서 소듐냉각고속로(sodium-cooled fast reactor, SFR)에 대한 연구가 많이 진행 중에 있다. SFR용 핵연료로는 U-Zr 금속핵연료가 검토되고 있으며, T92강(9Cr-0.5Mo-2W-V.Nb) 피복관 사용, 연료심과 피복관의 갭물질로서 Na 사용 및 최종 밀봉관(outer tube)으로 스텐레스 강(STS 316L)의 사용이 연구되고 있다. 금속핵연료의 화학분석을 위하여 시편을 용해시킬 때 연료심외에도 피복관 성분도 용해되므로 실제 용해용액은 복잡한 특성을 가진다. 또한 핵연료용해에 플루오르화 수소산 사용에 따른 부식 실리카의 석출 등이 화학적 분리에 간섭하므로 주의가 필요하다. 연소도측정은 측정방법(파괴 또는 비파괴)과 지표원소에 따라 여러 가지로 나누이고 있다. 화학적 방법에 의한 조사핵연료의 연소도측정은 안정한 핵분열생성물을 지표원소로 이용할 경우 ^{148}Nd, $^{145+145}$Nd, ^{139}La 등이 이용되었으며 동위원소희석 질량분석 및 고성능액체 크로마토그래피 기술 등이 응용되어 왔다. 방사성 핵분열생성물을 지표원소로 이용할 경우 ^{137}Cs, ^{144}Ce, ^{106}Ru, ^{140}Ba, ^{95}Zr 등이 이용되었으며 핵종분석을 위한 감마선분광분석 및 무거운 동위원소 정량을 위한 다른 분석기술이 병합하여 응용되어 왔다.

본 연구에서는 하나로에서 조사시킨 U-Zr 금속핵연료를 몇가지 화학적 방법으로 연소도를 측정해 보았다. 널리 이용하고 있는 공인된 Nd-148 방법과 비교 및 교차 분석 목적으로 Nd-(145+146) 및 Nd-total 방법으로 연소도를 측정하하였다. 또한 핵연료 중의 방사성핵종을 감마선분광분석으로 측정하고 그 결과 정량이 가능한 방사성 핵분열생성물인 ^{137}Cs, ^{144}Ce 및 ^{106}Ru을 지표원소로 이용하여 연소도를 측정해 보았다.

2. 실험 및 결과

2.1 핵연료용해 및 분석시료 준비

하나로에서 조사시킨 SFR용 금속핵연료(U-Zr) 시편을 절단한 후 연소도측정 및 화학분석을 위하여 당 연구실 화학핫셀로 이송하였다. 핫셀 내에 제작설치한 용해장치를 이용하여 3 M HNO_3 -1 M HF 용액으로 90℃에서 12 시간 동안 용해하고 희석 및 일정량을 취하여 glove box로 이송하였다. Nd 및 방사성 핵분열생성물을 지표원소로 이용하여 조사핵연료의 연소도측정을 위한 전반적인 절차는 Fig. 1과 같다.

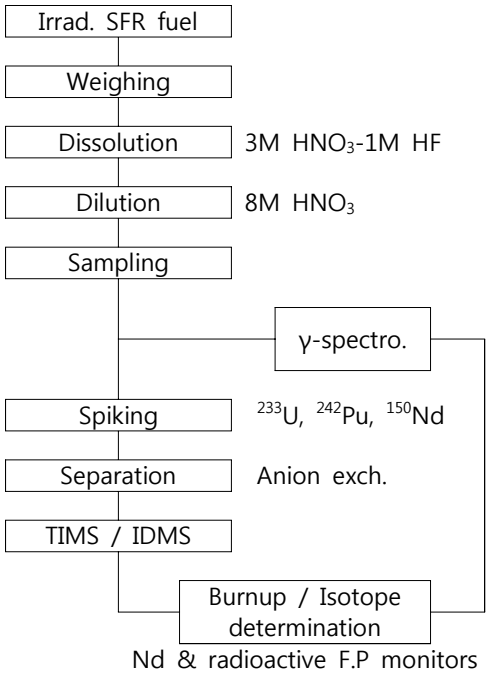


Fig. 1. Analytical processes for burnup determination of SFR fuel by chemical methods.

2.2 방사성 핵분열생성물 지표원소 정량

금속핵연료 용해용액 중의 방사성핵종을 감마선분광분석으로 측정하였다(Fig. 2 및 Table 1). 그 결과 ^{137}Cs, ^{144}Ce 및 ^{106}Ru이 연소도측정을 위한 지표원소로 이용할 수 있었으며, 지표원소 정량을 위해 붕괴기간을 보정하고 시료 중의 원자수를 산출하였다.

2.3 U, Pu, Nd 분리 및 동위원소 정량

핵연료시료의 연소도측정 및 U, Pu, Nd 성분 동위원소 정량을 위한 화학적 전처리, 2 단계 음이온교환분리, 열이온화 질량분석(TIMS) 및 동위원소희석 질량분석(IDMS)은 당 연구실에서 확립한 절차[1,2]에 준하여 수행하였다.

2.4 지표원소 유효핵분열수율 측정

연소도측정에 보다 정확한 결과를 산출하기 위해서는 유효핵분열수율의 계산이 필수적이다[1,3]. 본 연구에서는 Nd의 전 동위원소(^{143}Nd, ^{144}Nd, ^{145}Nd, ^{146}Nd, ^{148}Nd, ^{150}Nd) 및 3 종의 방사성 핵분열생성물 지표원소에 대하여 4 종의 핵분열성원소(Table 2)의 부분핵분열수율[4] 값을 이용하여 유효핵분열수율을 산출하였다.

2.5 화학적 연소도측정

Nd 지표원소를 이용한 연소도측정은 ^{148}Nd, ^{145}Nd+^{146}Nd 및 Nd 전 동위원소 합(Nd-total)을 이용하는 세가지 방법으로 측정하였으며 모두 IDMS법으로 정량한 원자수를 이용하였다[1,2,3]. Nd 및 방사성 핵분열생성물 지표원소를 이용한 연소도측정 모두 계산에 필요한 시료 중의 U과 Pu 농도는 모두 IDMS법으로 정량한 원자수를 이용하였다. Nd-148 지표원소 방법에 의하여 측정된 연소도값을 기준으로 하여 다른 지표원소 방법에 의하여 측정된 값의 편차를 산출해 보았다.

3. 결론

정확한 연소도측정 방법으로 평가되고 있는 Nd 지표원소법, 약간의 신속성을 가지는 방사성 핵분열생성물 지표원소법 및 방사능측정(^{134}Cs/^{137}Cs 등)에 의한 상대적 연소도측정법을 응용할 경우 효과적인 조사핵연료분석이 이루어질 수 있을 것으로 기대된다.

4. 참고문헌

[1] J. S. Kim et al., J. Nucl. Sci. & Technol., Vol. 44, No. 7, pp. 1015-1023, 2007.

[2] 김원호 외, KAERI/RR-2133/2000, 사용후핵연료 화학특성연구, 2000.

[3] ASTM E321-96, Annal Book of ASTM Standards, 2012.

[4] T. R. England and B. F. Rider, LA-UR-94-3106, Los Alamos National Laboratory, 1994.

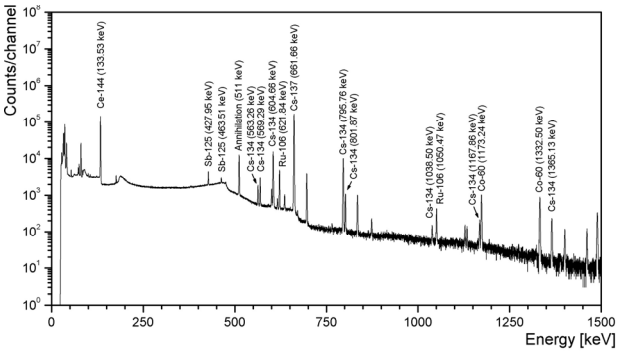


Fig. 2. γ-spectrum for an irradiated SFR fuel.

Table 1. Distribution of radionuclides in an irradiated SFR fuel

Sample	Nuclide	Activity (Bq/g-sample)
SFR(U-Zr)	^{134}Cs	$1.73\times10^{8}\pm9.32\times10^{5}$
	^{137}Cs	$2.44\times10^{9}\pm3.78\times10^{6}$
	^{60}Co	$2.28\times10^{7}\pm3.61\times10^{5}$
	^{144}Ce	$3.87\times10^{9}\pm1.32\times10^{7}$
	^{154}Eu	$4.22\times10^{6}\pm1.46\times10^{6}$
	^{155}Eu	$< 1.16\times10^{6}$
	^{106}Ru	$5.39\times10^{8}\pm1.16\times10^{7}$
	^{125}Sb	$6.24\times10^{7}\pm1.55\times10^{6}$
	^{95}Zr	$< 6.32\times10^{5}$
	^{94}Nb	$< 3.77\times10^{5}$
	^{103}Ru	$< 1.02\times10^{6}$
	^{140}Ba	$< 3.22\times10^{6}$

Table 2. Fission yields(%) of radioactive burnup monitors by thermal and fast neutron

F.I		^{137}Cs	^{144}Ce	^{106}Ru
^{235}U	th	6.1889	5.5000	0.4016
	f	6.2216	5.2687	0.5324
^{239}Pu	th	6.6138	3.7398	4.3502
	f	6.5902	3.6729	4.3655
^{241}Pu	th	6.6509	4.2274	6.1040
	f	6.3868	4.1711	6.2443
^{238}U	th	-	-	-
	f	6.0525	4.5479	2.4897

F.I : fissioning isotope,
th : thermal fission, f : fast fission

사용후 핵연료봉의 천공장치에 대한 성능평가

이형권*, 김도식, 전용범, 서항석, 권형문, 장정남, 김성근
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*nhklee1@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후 핵연료의 봉내압 및 핵분열기체량에 대한 시험자료는 새로운 핵연료를 설계하고 개발하는데 기본 자료로 활용된다. 그리고 원자력발전소의 안전성을 확보하고 핵연료의 수명을 연장하기 위한 자료로도 이용된다. 그 외에도 사용후 핵연료의 저장을 위한 기본 자료로 활용되며 연소도가 높은 고연소도 핵연료일 수록 중요도가 크다.

조사후시험시설에서 사용 중인 핵연료의 천공장치는 연료봉의 내압 및 핵분열기체량을 측정하는 장치로써 가압 경수로형 사용후 핵연료만을 시험할 수 있는 전용장치로 개발되어 사용되어 왔으나 최근에 실험 연료봉도 기존장치에서 시험을 수행할 수 있는 방법이 개발되어 현재는 모든 사용후 핵연료봉에 대한 실험을 수행할 수 있다.

사용후 핵연료에 대한 조사후시험에서 시험을 수행할 수 있는 시험 능력도 중요하지만 가장 중요한 것은 그 시험에 대한 결과를 얼마나 신뢰할 수 있는 가를 증명하는 것이다. 사용후 핵연료를 시험한다는 것은 매우 어렵고 까다로운 일이지만 그 자료가 원자력분야의 안정성과 직결되기 때문에 반드시 시험에 대한 신뢰성 확보가 필요하다. 그러므로 시험 장치에 대한 종합적인 성능 평가가 필요하다.

2. 본론

2.1 시험 방법

측정 장치에 대한 측정정밀도를 평가하기 위해서서는 기준이 될 수 있는 표준 모의연료봉의 필요하다. 측정 정밀도 평가시험에서 가압 경수로형 핵연료와 실험연료봉은 연료봉의 내압 또는 봉내의 기체량이 매우 큰 차이가 나므로 연료봉의 크기뿐만 아니라 실험방법도 다르다. 가압 경수로형 연료는 시험장치가 이에 적합하도록 설계 및 제작되어 있어 시험절차에 따라 시험을 수행하지만 실험연료봉의 경우는 연료봉 내에 충진된 기체량이 매우 적기 때문에 가압 경수로형 연료와 같은 시험조건을 조성하고 시험을 수행하여야 한다.

다음 식은 시험결과로부터 각각의 연료봉의 내압을 산출하는 식이다. 식 1은 가압 경수로형 핵연료의 봉내압, 식 2는 실험 연료봉을 내압을 산출한다.

$$P_f = \frac{V_t \times P_1 \times T_f}{V_f \times T_1} \quad (1)$$

$$P_f = \frac{(V_t + V_s)P_1 - P_c V_c}{V_f} \quad (2)$$

P_f : 연료봉 내압(kPa)
V_c : 연료봉 천공전 천공용기의 체적(㎤)
V_t : 연료봉 천공후 천공용기의 체적(㎤)
P_1 : 천공용기에 충진된 가스압력 (kPa)
P_c : 연료봉 천공후 천공용기에서 압력(kPa)
P_2 : 연료봉 천공후 표준용기에서 압력(kPa)
V_f : 연료봉 천공전 천공용기의 체적(㎤)
T_1 : 천공용기내의 온도(℃)
T_f : 연료봉내의 온도(℃)

2.2 시험

사용후 핵연료 천공장치의 측정정밀도를 확인하기 위해서는 각각의 표준 모의연료봉을 제작하여 시험을 수행하였으며 그 결과는 Table 1과 같다.

Table 1. Results of puncturing test for dummy rods

No.	Inserted gas pressure (kPa)	Measured gas pressure (kPa)	Error (%)	Inserted gas volume (㎖)	Measured gas volume (㎖)	Error (%)
1	301.8	295.6	2.1	18.4	17.8	-3.1
2	303.7	302.8	0.3	18.5	17.5	-5.2
3	298.3	299.5	-0.4	18.0	17.2	-4.5
4	2065.9	2063.9	0.1	481.2	478.4	-0.6
5	2045.5	2028.2	0.8	474.4	472.7	-0.4
6	2035.3	2037.4	-0.1	472.1	472.6	+0.1
7	2055.7	2084.3	-1.4	556.9	554.5	-0.4
8	2055.7	2100.6	-2.2	560.8	553.0	-1.4

Table 1에서 번호 1 ~ 3번은 실험연료봉에 대한 봉내압과 기체량을 측정한 결과를 나타내며, 번호 4 ~ 5번은 가압 경수로형 연료봉에 대한 시험결과를 나타낸다.

실험연료봉에 대한 시험결과는 충진 압력과 기체량이 가압 경수로형 연료에 비해 매우 작아 측정오차가 0.3~5.2%로 큰 반면에 가압 경수로형 연료는 0.1~2.2% 이내로 아주 양호 하게 나타났다[1, 2].

2.3 결과 및 고찰

사용후 핵연료 천공장치의 성능시험을 표준 모의연료봉으로 수행하였다. 그 결과 가압 경수로형 연료에 대한 측정 정밀도는 연료봉의 내압 측정오차가 2.2%, 기체량에 대한 측정오차는 1.4% 이내로 아주 양호하게 나타났다. 반면에 실험연료봉의 측정 정밀도는 가압 경수로형 연료시험에 비해 오차가 약간 크게 나타났다. 실험연료봉의 시험결과는 봉내압 측정오차가 2.1%, 봉내의 기체량측정에 대한 오차는 5.2% 이내로 나타났다. 두가지 연료봉 중 측정오차가 서로 다르게 나타난 것은 비록 한 장치에서 정밀도 측정시험을 수행하였지만 실험방법이 서로 다르기 때문이다. 그리고 실험연료봉의 측정오차가 가압 경수로형 연료에 비해 크게 나온 이유는 측정된 양이나 크기가 훨씬 작기 때문이다.

이번 평가시험에서 사용후 핵연료봉 천공장치의 측정오차는 최대 5.2% 이내로 나타났다. 국내·외에서 사용되고 있는 펀치방식의 사용후 핵연료봉 천공장치의 측정오차는 10% 이내이다. 이와 비교할 때 이번에 평가한 시험장치의 정밀도는 매우 우수하다고 볼수 있다.

3. 결론

사용후 핵연료봉 천공장치에 대한 성능시험 평가를 수행하였다. 표준모의연료봉을 이용한 봉내의 압력과 기체량 측정시험에서 측정오차 5.2%이내로 매우 양호하게 나타났다. 각각의 연료봉에 대한 측정오차는 가압 경수로형 연료봉시험이 2.2%이내이고, 실험연료봉은 5.2% 이내로 나타났다.

시험장치의 성능을 평가한 결과 매우 우수한 장치로 판단되며 그 결과를 토대로 사용후 핵연료봉의 천공시험에 대한 신뢰성을 확보할 수 있었다.

4. 참고문헌

[1] 이형권, 박광준, 서기석, 박성원, 민덕기, 황용화, 조일제, "가압경수로 사용후핵연료봉의 핵분열기체포집장치 개발 및 모의핵연료봉을 이용한 시험평가", 한국원자력학회 2000 추계학술발표회 논문집, 10.26~27, 2000, 대전.

[2] 이형권, 김도식, 전용범, 서항석, 권형문, 장정남, 김성근, 김대호, "소체적 연료봉의 내압측정에 성능평가", 한국방사성폐기물학회 2014 춘계학술발표회 논문집, 12(1), 61-62, 5.7~9, 2014, 평창.

XRF를 이용한 사용후핵연료 측정시 저에너지 영역에서의 Compton suppression system 성능 평가

이승규, 서희, 원병희, 이채훈, 김호동, 권형문, 박세환*
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*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. 기존의 XRF 분석기술은 시료에 엑스선을 조사시켜 발생하는 특성 엑스선을 분석하여 원소의 성분을 분석하는 방법이다. 본 연구에서 사용한 XRF 기술은 self-induced XRF 방식으로 사용후핵연료 내 핵분열 생성물의 붕괴에 의해서 자체적으로 발생된 감마선 등에 의하여 원자의 에너지 준위가 들뜨게 되며 이로 인하여 Pu와 U의 특성 엑스선이 발생하는 원리를 이용한다[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 상대적으로 낮은 에너지를 갖고 있다. 이러한 낮은 에너지 영역의 엑스선 피크는 높은 에너지의 감마선에 의해 발생되는 Compton continuum의 높은 백그라운드를 갖게 되어 백그라운드 대비 신호의 크기가 작아지는 원인이 되기 때문에 Pu에 의한 엑스선 피크를 측정하기 어렵게 한다. 사용후핵연료에서의 Compton continuum은 fission product 중 ^{137}Cs에서 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]. 고에너지에 의하여 발생하는 컴프턴 산란에 대한 효과는 역동시계수 기법을 사용한 Compton suppression 시스템을 사용하여 줄일 수 있다.

본 연구에서는 사용후핵연료 시편 측정시 Compton suppression 시스템을 XRF에 적용하였을 경우 저에너지에서의 검출 효율 향상에 대한 평가를 수행하였다.

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 저에너지 측정을 위한 Low-energy HPGe (LEGe) main 검출기와 산란되어 탈출하는 감마선의 검출을 위한 환형태의 guard 검출기인 BGO ($Bi_4Ge_3O_{12}$) 섬광체 검출기로 구성이 되어 있다[3]. Compton suppression 시스템에서 signal processing을 위하여 사용된 회로 구성은 Fig. 1과 같으며, 두 개의 검출기에서 발생한 timing 신호를 ORTEC 사의 CO4042 coincidence 모듈을 사용하여 역동시계수를 수행하였다. 실험 수행시 Coincidence time은 BGO에서 발생한 timing 신호를 사용하여 500 ns로 설정해주었으며, LEGe에서 발생한 timing 신호를 coincidence time의 중간에 위치할 수 있도록 delay를 설정하였다.

2.2 사용후핵연료시편 측정 수행

사용후핵연료 시편의 측정을 위한 성능 평가를 수행하기 위하여 역동시계수 방식을 사용하여 구성한 Compton suppression 시스템을 조사후연료 시험시설 (Post Irradiation Examination Facility, 이하 PIEF) 내의 납셀에 설치하였다. Fig. 2는 PIEF의 납셀에 설치한 Compton suppression 시스템의 실제 모습이다.

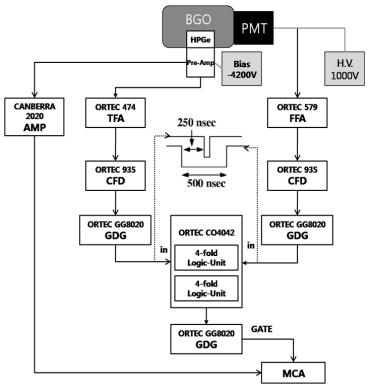


Fig. 1. Schematic diagram of the electronics for the processing signals used in a Compton suppression system.

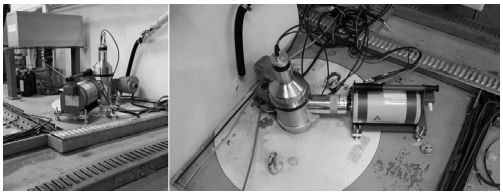


Fig. 2. Compton suppression system at PIEF.

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 BGO guard 검출기의 threshold 에너지의 변화에 따른 suppression ratio의 변화에 대한 분석을 수행하였다. 사용후핵연료 시편을 사용하여 BGO의 threshold 에너지에 따른 측정 결과는 Fig. 3과 같다. 실험 결과 BGO의 threshold 에너지가 높아지게 되면 컴프턴 엣지 부분에서의 suppression 효과가 줄어드는 것을 확인할 수 있다.

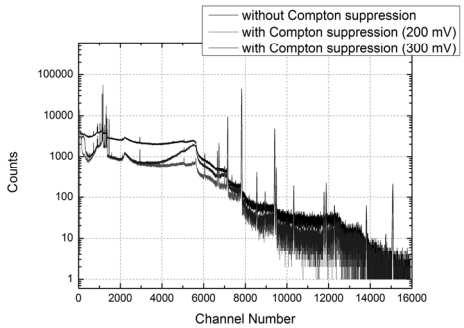


Fig. 3. Pulse height spectra of Compton suppression system for threshold energy of BGO guard detector.

Fig. 4는 100 keV 영역에서의 U과 Pu의 특성 엑스선에 대한 신호 대비 백그라운드 감소에 대한 평가를 수행한 그래프이다. 실험 결과 Compton suppression 시스템에 의해서 신호 대비 백그라운드가 2 배 가량 증가하는 것을 확인할 수 있었다.

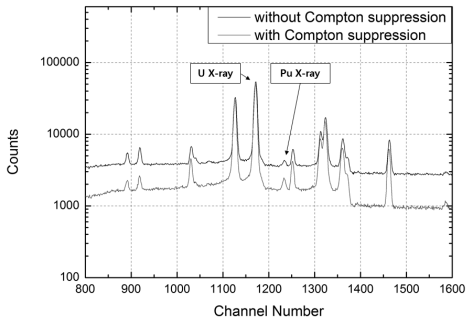


Fig. 4. Pulse height spectrum for spent nuclear fuel sample, with and without Compton suppression.

3. 결론

본 연구에서 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. 향후, 사용후핵연료에 대해 Compton suppression 기법을 적용할 수 있는 최적화된 조건을 찾을 수 있도록 추가적인 연구를 진행할 예정이다.

4. 감사의 글

이 논문은 2015년도 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, 40(5), 807-811, 2002.

카드뮴 염소화 반응을 이용한 UCl_3 제조방법

우문식, 안도희, 백승우*
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
mswoo@karei.re.kr

1. 서론

500℃, LiCl-KCl 공융염계에서 우라늄 전해정련 시 전해조의 Cell 전위의 안정성(stabilization)을 유지하기 위하여 salt내에 9wt% UCl_3가 필요하다 [1]. 한국원자력연구원에서는 20kg-U/batch의 전해정련장치 및 전착물 회수장치를 제작하여 실증실험을 완료하였다. 이 장치에 사용된 UCl_3의 제조는 600℃, UCl_3 제조 반응기에서 염소가스를 이용하여 용융된 카드뮴(Cd) 금속을 염소화 반응시켜 $CdCl_2$를 제조한다. 그리고 동일 반응기에서 제조된 $CdCl_2$를 이용하여 U 금속의 염소화 반응으로 UCl_3를 제조하였다. 즉 UCl_3 제조 반응식은 다음과 같다.

-Cd 층 반응식 : $Cd + Cl_2 \rightarrow CdCl_2$

-Salt 층 반응식 : $3CdCl_2 + 2U \rightarrow 3Cd + 2UCl_3$

제조된 LiCl-KCl-UCl_3 공융염에는 카드뮴 염소화 반응 후 잔존하는 카드뮴 및 카드뮴 화합물이 잔존하며 전해정련 공정에서 전극간 여러 가지 문제점을 발생시킨다. 따라서 본 연구는 제조된 공융염에 잔존하는 Cd와 Cd화합물을 제거하기 위하여 염소가스 공급을 중단 후 반응기내의 미 반응물의 반응응 완결 시키기 위하여 교반 및 상압에서 증류를 시켰다. 그리고 잔류 $CdCl_2$와 우라늄 금속과 반응 및 감압 증류 실험을 통하여 잔존 우라늄을 제거하였다.

2. 본론

2.1 실험 장치 및 실험

실험장치는 염소공급장치, 염화물 제조 장치, 염이송장치, 펠렛제조장치, 배기체 흡수장치로 구성되어있다. 염화물 제조장치의 반응기는 내경이 80 mm이고 높이는 250 mm이고 반응기 내부 하단은 원추형으로 제작되어 용융된 카드뮴이 반응기 중앙 하부로 모이도록 하였다.

2.2 실험 결과

600℃에서 카드뮴 및 우라늄의 염소화 반응의 반응성은 염소가스 유량계를 반응기 주입구와 배출구에 설치하여 측정결과 98%정도였다. 제조된 LiCl-KCl-UCl_3 salt에 잔류하는 Cd 금속은 초기에는 약 30,000 ppm 정도였다. Fig. 1와 같이 600℃, 상압에서 13 시간 증류 실험 결과 초기 Cd 농도 기준하여 31% 감소하였으나 Cd 금속은 2wt%가 존재하였다. 이것은 $CdCl_2$의 미 반응으로 볼 수 있다. 그리고 우라늄 금속 반응을 6시간 수행한 결과 초기 농도 대비 30% 감소하여 Cd 농도가 1.2wt% 존재하였으나 효과적인 제거 방법은 되지 못하였다. 그러나 Fig. 2와 같이 600℃, 60 torr에서 2 시간 감압 증류 시킨 결과 Cd 잔류 농도가 200 ppm 까지 감소함을 보였다.

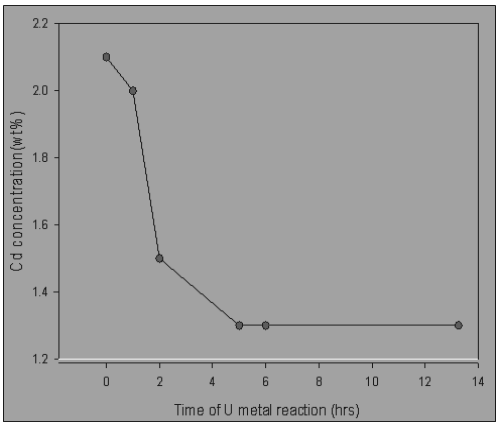


Fig. 1. Cd concentration in salt after reaction of residual $CdCl_2$ with U metal.

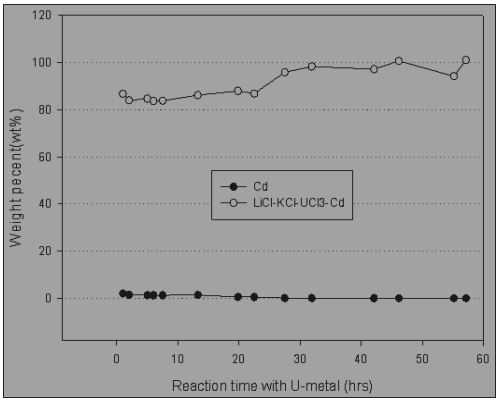


Fig. 2. Cd concentration in the final product by vacuum distillation at 600℃, 60torr.

UCl3를 포함한 salt의 XRD 분석 결과 Fig. 3과 같이 LiCl, KCl, CdO, KCdCl3, UO2, Cd(UO4), UCl3가 존재함을 알 수 있다.

3. 결론

UCl_3 제조를 위한 염소 반응시 염소화 반응은 약 98% 정도로 양호하였다. LiCl-KCl-UCl_3 공융염에 잔존하는 Cd금속을 제거하기 위하여 600℃에서 상압 증류방법으로 31% 감소하였고, salt 중에 잔존하는 Cd 농도는 2wt%이었다. 그리고 잔존하는 Cd 화합물과 우라늄 금속과 6시간 반응시킨 결과 30% 감소하여 Cd 농도는 1.2wt% 까지 감소시켰다. 그러나 600℃, 60 torr에서 2 시간 동안 갑압 증류한 결과 200 ppm 까지 감소함을 확인하였다.

4. 참고문헌

[1] Miller et al, "Method for Making a Uranium Chloride Salt Product", Patent No.: US 6,800,262B1, Date of Patent: Oct. 5, 2004.

ACPF 알곤 셀 정제기 개발

박병석*, 이종광, 유승남, 조일제, 김기호
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*nbspark@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료 우라늄산화물을 처리하는 전해환원(electroreduction) 공정은 조해성 및 부식성이 강한 염을 사용하기 때문에 불활성 기체가 채워진 셀이 요구된다. 따라서, 소규모(1kg/batch) 전해환원 공정을 불활성 기체인 알곤(argon) 가스로 채워진 셀(cell)에서 실증하기 위해 기존 ACPF (Advanced spent fuel Conditioning Process Facility) 공기 셀(air cell)의 일부를 격리시켜 가스 기밀형 알곤 셀(argon cell)을 구축하였다. 기밀 셀 내부에 존재하는 산소, 수분과 같은 불순물을 제거하여 고순도의 불활성 분위기를 유지하기 위해서는 정제기(purifier)가 요구된다. 본 논문에서는 기밀 셀 내부의 산소 및 수분을 제거하기 위해 개발한 정제기에 대해 소개한다.

2. 본론

2.1 ACPF 알곤 셀

Fig. 1은 기존 ACPF 공기 셀을 격리시켜 구축한 알곤 셀 내부 모습을 보여준다. ACPF 공기 셀 우측 첫 번째 윈도우와 두 번째 윈도우 사이를 경계로 공기 셀 크레인 레일 아래를 SUS 플레이트로 막아 내부 크기가 L1,720 x D1,990 x H2,740 (작업 바닥 높이 480 mm) 인 가스 기밀형 알곤 셀을 구축하였다. 셀 내 작업 바닥(working table)에는 기밀이 유지되는 전기적 피드스루(electrical feed-through)를 설치하고(28개), 내부 전면 벽 좌측에는 기존 셀 조명 시스템의 원격 유지보수성을 크게 향상시킨 모듈형 셀 조명 시스템을 설치하였다(250 W 메탈할라이드 램프 2개 장착. 1개는 비상용). 셀 내 상부에는 원격 유지보수가 가능한 150 kgf 취급용량의 천정크레인을 설치하였다. 셀 내 우편에는 셀 작업환경을 카메라 영상으로 볼 수 있도록 원격 유지보수가 가능한 내방사선 카메라를 설치하였다. 알곤 셀과 공기 셀 사이에는 공기-알곤 셀 간 기밀형 물질이송 시스템을 설치하였다(이송물 최대 크기 600 x 600 x 600 mm, 이송물 최대 중량 100 kgf). 또한, 특별한 목적(셀 구축 및 비상시 활용)의 기밀형 도어(600 x 1,000 mm)도 설치하였다. 공기 셀과 알곤 셀 사이의 공기 셀 쪽에 알곤 셀과의 압력 차를 측정하기 위해 원격 유지보수가 가능한 압력계 모듈을 설치하였다. 셀 내 좌편에는 셀의 온도 측정을 위해 원격 유지보수가 가능한 온도센서 모듈을 설치하였다. 알곤 셀 전면 벽 차폐 윈도우 상부에는 기존 한국차폐 MSM(1개 모듈) 2조를 독일 Walishmiller MSM(3개 모듈)으로 교체하였다. 알곤 셀의 원격 운전은 MSM 및 크레인을 이용하여 수행된다.



Fig. 1. Argon Cell.

2.2 알곤 셀 정제기

알곤 셀 정제기는 기밀 셀 내부에 고순도의 알곤 가스를 공급하고, 순환(circulation) 기능을 통하여 지속적으로 산소와 수분을 제거하여 전해환원 공정의 최적 환경을 유지시킨다. 셀 내부의 산소와 수분을 제거하는 방법에는 진공법, 치환법, 정제법이 있다. 진공법은 셀 내부를 진공시켜 불활성 가스를 대기압 까지 주입하는 공정을 반복하여 산소와 수분 농도를 낮춘다. 치환법은 셀 내부에 불활성 가스를 주입하면서 동시에 배기하여 산소와 수분의 농도를 낮춘다. 정제법은 금속의 산화(oxidation), 환원(reduction) 반응을 이용하여 순환 하면서 셀 내 기체에 포함된 산소를 제거하고, 다공성 물질로 수분을 포집한다. ACPF 알곤 셀의 산소 및 수분제거는 치환법과 정제법을 적

용하였다. 초기에는 치환법으로 셀 내부에 알곤 가스를 주입하여 산소 및 수분 농도를 최대한 낮추고, 알곤 가스 주입을 완료한 후에는 순환하면서 정제법으로 잔류 산소 및 수분을 제거하여 고순도의 알곤 가스 환경을 유지한다. 산소를 제거하기 위한 산화 반응 촉매제로는 구리가 주성분인 입자를, 수분 제거를 위해서는 분자체(molecular sieve) 인 제올라이트(zeolite) 입자를 사용하였다. 산소를 제거하는 산화 반응은 식 (1)~(3)과 같다.

$$2Cu + O_2 \rightarrow 2CuO \quad (1)$$

$$4Cu + O_2 \rightarrow 2Cu_2O \quad (2)$$

$$2Cu_2O + O_2 \rightarrow 4CuO \quad (3)$$

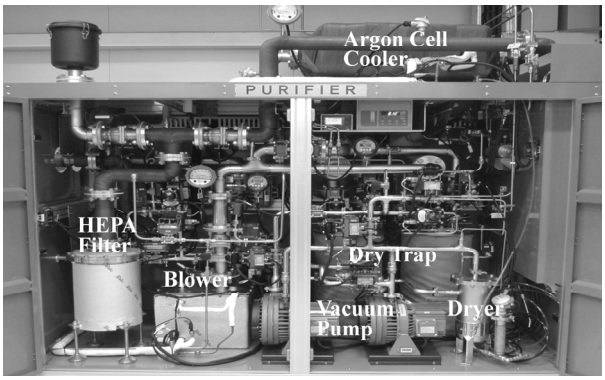
산소가 더 이상 제거되지 않으면 수소를 주입하여 환원 반응을 하게 한다. 환원 반응 과정에서 수분이 생성되는데, 환원 반응 중에 가하는 열로 인해 수분은 증발되기 때문에 이를 배출시키면 수분은 제거된다. 환원 반응은 식 (4)~(6)과 같다.

$$CuO + H_2 \rightarrow Cu + H_2O \quad (4)$$

$$2CuO + H_2 \rightarrow Cu_2O + H_2O \quad (5)$$

$$Cu_2O + H_2 \rightarrow 2Cu + H_2O \quad (6)$$

산화 반응은 상온에서, 환원 반응은 200~300℃에서 일어난다. 상온에서 분자체에 포집된 수분도 환원 반응을 일으키기 위해 가하는 열로 인해 증발되어 배출된다. 환원 반응을 통해 구리 입자 및 분자체는 다시 산소 및 수분을 제거할 수 있도록 재생(regeneration) 된다. Fig. 2(a)는 개발한 알곤 정제기를 보여주며, Fig. 2(b)는 설치된 모습을 보여준다. 정제기는 송풍기(blower)를 이용하여 강제적으로 알곤 가스를 순환시키며, Dry Trap에서 구리 입자가 산소를, 분자체가 수분을 제거한다(산소 430 L, 수분 5 kgf). Dry Trap 한 개는 초기 공기 분위기의 알곤 셀(10 m^3)의 산소를 43,000 ppm 제거할 수 있다. Dry Trap 2개를 설치하여 Dry Trap 재생 시에도 계속해서 정제가 이루어지도록 하였다. 재생 시 배출가스에는 수분이 함유되므로 건조기(dryer)를 통해서 수분을 제거한 후 공기 셀로 배출하도록 하였다. 정제기는 알곤 셀의 산소(O_2) 및 수분(H_2O) 농도를 1 ppm 이하로 낮출 수 있으며, 알곤 셀의 산소 및 수분 운전 조건은 각각 50 ppm 이하이다.



(a) Inside of the Argon Purifier



(b) Installed Argon Purifier

Fig. 2. Argon Purifier.

3. 결론

사용후핵연료 우라늄산화물을 처리하는 소규모(1kg/batch) 전해환원(electroreduction) 공정을 실증하기 위해 기존 ACPF (Advanced spent fuel Conditioning Process Facility) 공기 셀(air cell)의 일부를 격리시켜 가스 기밀형 알곤 셀(argon cell)을 구축하였다. 기밀 셀 내부에 고순도의 알곤 가스를 공급하고, 순환(circulation) 기능을 통하여 지속적으로 산소와 수분을 제거하여 전해환원 공정의 최적 환경을 유지하기 위해 정제기(purifier)를 개발하였다.

4. 감사의 글

이 논문은 미래창조과학부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

5. 참고문헌

[1] 박병석, 이종광, 유승남, 김기호, 조일제, "ACPF 핫셀 아르곤 컴파트먼트 시스템 구축", 한국방사성폐기물학회 2014 추계학술발표회 논문요약집, 127-128, 10.15~17, 2014.

ACPF 개조 핫셀의 원격조종기

김기호*, 김성현
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*khkim5@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에서는 발전소에서 타고난 사용후핵연료를 재활용하기 위한 파이로프로세싱(pyroprocessing)기술을 개발하고 있다. 파이로프로세싱은 전처리공정, 전해환원공정, 전해정련/제련공정, 염폐기물공정 등 총 네 개의 주요단위공정으로 구성되어있다. 현재, 공학규모파이로일관공정시험시설(PRIDE, PyRoprocessing inactive Integrated DEmonstration facility)에서는 감손우라늄을 사용하여 파이로프로세싱 공학규모 일관공정 시험을 수행하고 있으며, 또 경수로 산화물형태의 사용후핵연료를 금속으로 전환하는 실험실규모 전해환원기술을 개발을 위해 사용후핵연료 차세대관리공정 실증시설(ACPF, Advanced spent fuel Conditioning Process Facility)을 개조하고 있다. 한국원자력연구원 조사재시험시설 지하 1층에 위치한 공기분위기의 ACPF 핫셀(M8 핫셀)은 공기셀과 아르곤셀을 포함하는 복합셀로 개조되었으며, 전해환원기술은 아르곤가스로 기밀이 확보된 아르곤셀에서 수행된다. ACPF 핫셀 가동 중에는 셀 안쪽으로 작업자의 접근이 불가능하기 때문에 셀 내부에서 이루어지는 모든 작업은 원격취급장치를 사용하여 원격으로 수행된다.

본 논문에서는 ACPF 핫셀에서 전해환원기술개발에 사용되는 주요 원격취급수단인 원격조종기에 대해 기술한다.

2. 본론

2.1 ACPF 개조 핫셀

개조된 ACPF 핫셀(Fig. 1)은 공기분위기의 셀과 아르곤 분위기의 셀 등 두 개의 복합셀로 구성되어 있다. 아르곤셀에는 사용후핵연료를 이용한 전해환원기술을 개발하기 위한 전해환원장치와 제반 장치 및 도구가 설치되어있다. 아르곤셀은 전해환원공정 특성상 상시 아르곤 분위기를 유지해야하므로 셀의 기밀성이 확보되어야한다. 공기셀은 작업셀과 유지보수셀로 구성되어 있으며, 작업셀에는 아르곤셀을 유지하기 위한 부속장치들과 기타 장치들이 설치되어있다. 핫셀 안쪽에 설치된 장치 또는 도구의 고장시, 필요한 현장 수리작업은 유지보수셀에서 수행된다.

2.2 원격조종기

원격조종기는 마스터암-쓰류튜브-슬레이브암 등 세 개의 모듈로 구성되며, 쓰류튜브는 핫셀 벽을 관통하여 설치되고, 마스터암은 조작구역에 그리고 슬레이브암은 셀 안쪽에 설치된다. Fig. 1에 보여진바와 같이 세 개의 모듈이 기계적인 구조로 서로 연결되어 있는 것을 일체형 원격조종기(One-piece tele-manipulator)라 하며, 마스터암과 슬레이브암이 쓰류튜브 양 끝단의 분리점(disconnection point)에 대해서 서로 분리 또는 결합되는 것을 분리형 원격조종기(Three-pieces tele-manipulator)라 한다. 마스터암과 슬레이브암은 각각 6자유도(R-R-P-R-R-R)의 기구학적 유사성을 갖으며, 슬레이브암의 외부에는 오염물질로부터 암을 보호하기 위한 부팅이 장착되어있다. ACPF 핫셀에는 일체형과 분리형이 함께 설치되어 있으며, 각 차폐창 상부 좌측과 우측에 각각 1식이 설치되어 있다.

공기셀에는 총 8식(일체형 7식, 분리형 1식)의 원격조종기가 설치되어있다. 유지보수셀에는 2식의 일체형이 설치되어 있으며, 작업셀에는 일체형 5식과 분리형 1식이 설치되어있다. 일체형 원격조종기는 국산(한국차폐, 모델 KTH-200)이며, 분리형 원격조종기는 외산(독일 HWM사, 모델 A110)이며, 각각 7 kg과 15 kg의 최대 유효 취급하중을 갖는다.

아르곤셀은 가동시 상시 기밀을 유지해야 하므로 원격조종기는 운전 및 수리시 기밀성을 확보해야하며, 고장시 수리 및 유지보수가 용이해야하며, 셀 안쪽에 위치한 모든 취급대상물에 대해 접근성을 확보해야 한다. 아르곤셀에는 분리형 원격조종기 2식이 설치되어 있다.

셀 가동중 유지보수 측면에서 셀 안쪽에 설치된 슬레이브암 고장시 분리형과 일체형은 큰 차

이가 있다. 아르곤셀에 설치된 분리형의 경우, 슬레이브암 고장시 셀 안쪽에서 기밀을 유지하면서 슬레이브암 만을 별도로 용이하게 교체할 수 있으나, 공기셀에 설치된 일체형의 경우, 고장시 원격조종기 전체를 인출하여 슬레이브암을 수리한 후 다시 설치해야 하므로, 작업자의 안전에 크게 유의해야 한다.

3. 요약

공기셀과 아르곤셀로 구성된 ACPF 개조 핫셀에 설치된 일체형과 분리형 원격조종기는 원격 취급성 시험을 완료하였으며, 핫셀 가동전 셀 안쪽에 설치된 장비, 장치, 도구 들의 원격성 평가에 활용하고 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 정부가 지원하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] 김기호, 김성현, 박병석, 이종광, 류동석, 유승남, 한종희, 조일제, "ACPF 핫셀 아르곤 컴파트먼트 원격조종기", 한국방사성폐기물학회 2014 추계학술발표회 논문요약집, 123-124, 10.15~17, 2014, 여수.

[2] K. Kim, J. Lee, B. Park, S. Kim, S. Yu, D. Ryu, J. Han, I. Cho, "Remote Manipulator Systems for Pyro[processing Facility Application", Proc. of The 44th Int. Symposium on Robotics, P-10, 1-5, Seoul (2013).

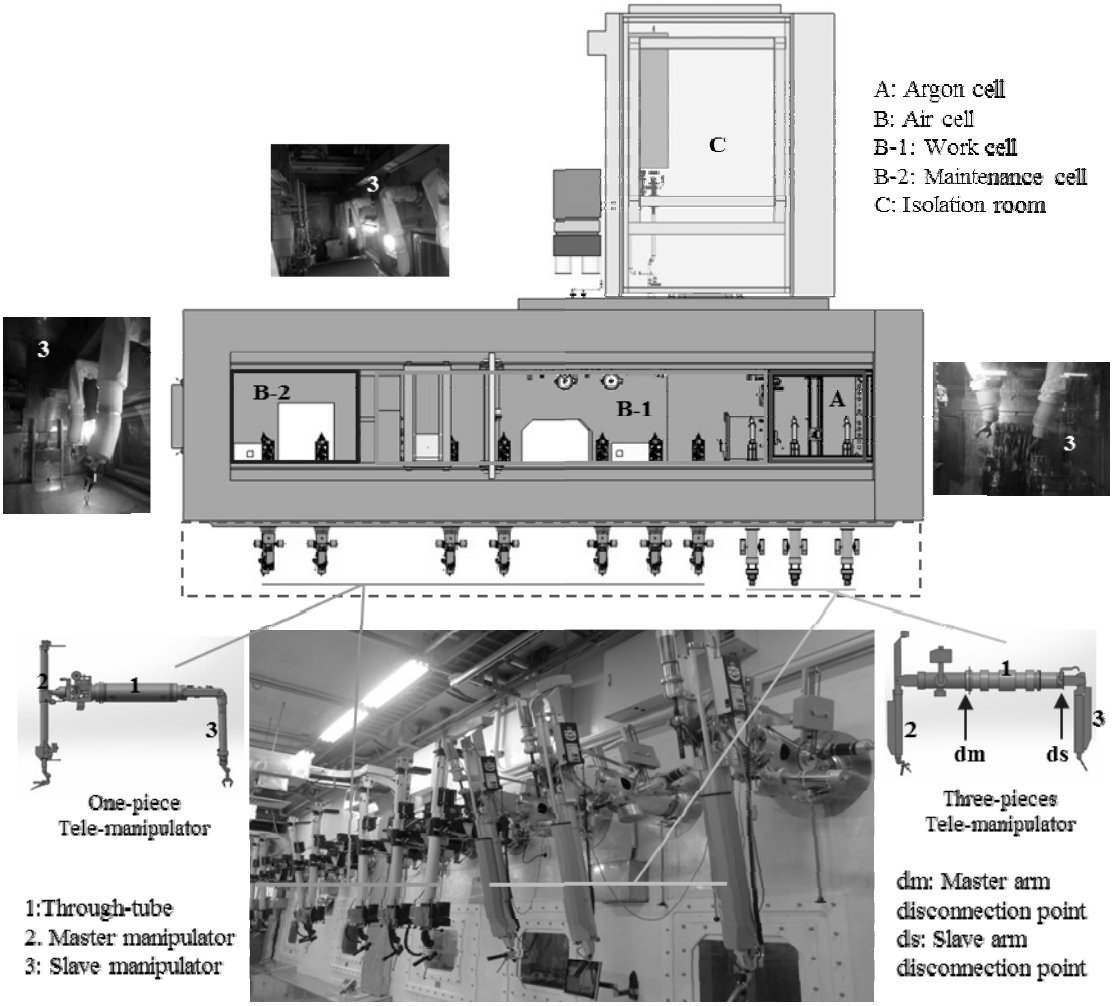


Fig. 1. Tele-manipulators installed at the refurbished ACPF.

Hotcell내 조사후핵연료봉 소결체 제거 자동제어장치 개발

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

1. 서론

핵연료봉 피복관은 중성자 조사를 받으면 피복관의 기계적 성질이 약화 된다. 이런 피복관 기계적 성질의 변화는 피복관의 안전성에 영향을 미치므로 피복관의 기계적 건전성 확인을 위한 시험이 필요하다. 피복관의 기계적 시험을 위해서는 우선 피복관(Clading)과 소결체(Pellet)을 분리하여야 하는데 소결체는 원자로에서 조사되면서 팽윤현상(swelling)과 소결체-피복관의 Chemical interaction layer 형성에 의해 서로 고착하게 된다. 따라서 고연소도 조사후 핵연료 Assembly에 대한 구조부품 조사 성능기술 개발의 일환으로 조사후 핵연료 피복관에 대한 기계적 특성시험〔피복관 인장(횡/종), 압축, 굽힘, 파괴인성, 지연수소균열, 내압크리프, 내압피로파괴〕을 수행하기 위한 시편을 제작하기 위하여 전에는 수동으로 힘을 가하여 소결체를 제거하는 방식으로 장치를 개발 하였으나 힘을 가하는 방식에 문제점이 발생되어 자동으로 힘을 제어하는 방식으로 본 장비를 개발하게 되었다. 본 장비는 핫셀 내부에 설치하여 원격조종기에 의해 운영되므로 모든 기능을 원격조종기 운전에 적합하게 제작 하였다.

2. 본론

피복관과 소결체가 견고하게 본딩(bonding)되어 있는 상태의 핵연료봉을 피복관 손상을 최소화하면서 소결체를 완벽하게 제거할 수 있는 연료봉 소결체 제거 자동제어장치를 개발하게 되었다. 소결체를 파쇄하는 드릴은 출력 420 W/ 회전속도 1,100 RPM의 드릴을 사용하였으며 드릴비트는 초경합금 ϕ6.0 mm, 길이 125 mm를 사용하였다. 드릴척에 드릴비트를 고정하고 피삭재(연료봉250 mm)는 연료봉 고정 장치에 8 bar의 압축공기 실린더로 고정한 다음 드릴이 회전하면서 천공되는 방식으로 소결체를 파쇄 하게 하였다. 시편 길이가 250 mm를 천공 할 때는 125 mm를 천공 한 후 시편을 반대로 돌려서 천공함으로써 250 mm가 천공되게 하였다. 자동 천공속도는 1 mm/30 sec에 한번 천공 후 1 mm 후진 후 다시 1 mm천공 후 다시 1 mm 후진을 3 회 반복한 후 후진한 다음 2 분간 드릴 및 드릴비트 냉각시간을 거친 후 다시 시작하는 방식으로 제작하였다. 시편 고정 장치는 안내관의 홈에 연료봉을 장착한 다음 실린더로 압축하여 고정하는 방식으로 연료봉이 휘어진 것도 수평으로 펴지도록 하였다. 드릴비트부분에는 천공할 때 휘어짐을 방지하고 정확하게 연료봉의 중심에 천공을 하기 위하여 드릴비트에 안내관 베어링을 부착하였다. 소결체를 천공 할 때 발생되는 드릴 칩은 비산되지 않고 회수 할 수 있도록 드릴비트 끝 부분 밑에 칩 수거 통을 설치하였다. Fig. 1의 사진은 핫셀 내부에 설치한 후 연료봉을 장비에 장착하고 천공을 시작하기 전 사진이며 Fig. 2의 사진은 자동제어장치 화면 사진이다.

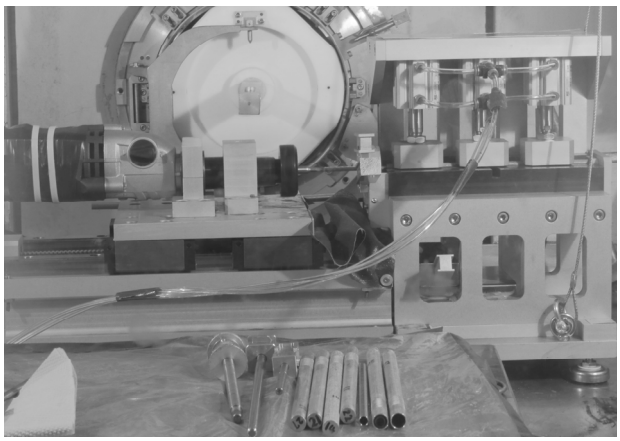


Fig. 1. Defueling Machine.

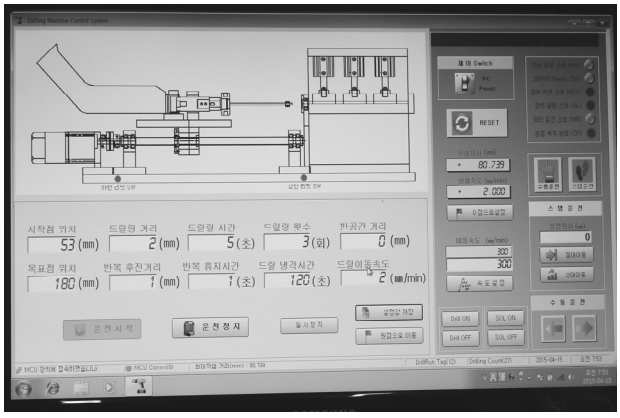


Fig. 2. Display of automatic control system.

3. 결론

고연소핵연료봉 피복관의 기계적 특성시험을 수행하기 위한 시편을 제작하기 위하여 수동 방식에서 자동제어방식으로 제작하여 운용해본 결과 장비에 과부하가 걸리지 않고 진동도 거의 없었으며 가장 중요한 시편가공이 원하는 만큼 정밀하게 제작되었다. 처음으로 제작한 장비라서 미미한 문제점이 발생하였으나 앞으로 개선해 나갈 것이다.

4. 참고문헌

[1] 서항석 외 5인, "고연소핵연료봉 밀도시편채취장치 및 핵연료봉 Tube core drilling machine 개발", 한국방사성폐기물학회 2007 춘계학술발표회 논문요약집, 2007.

[2] 서항석 외 4인, "고연소핵연료봉 Defueling machine 및 Declading machine 개발", 한국방사성폐기물학회 2009 추계학술발표회 논문요약집, 2009.

[3] 서항석 외 7인, "고연소핵연료소결체 제거장치 및 핵연료 용해장치개발", 한국방사성폐기물학회 2012 추계학술발표회 논문요악집, 2012.

광섬유케이블을 이용한 핫 셀 내 LIBS 적용 및 성능평가

한보영*, 최대웅, 박세환, 박근일
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*byhan@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로 공정시설의 안전조치 관점에서 실시간 공정 핵물질을 모니터링 할 수 있는 다양한 기술들이 개발되고 있으며 그 가운데 특히 다변량분석 방법을 이용한 LIBS(Laser Induced Breakdown Spectroscopy) 기반 기술에 대한 평가가 이루어져 왔다. 한미공동연구를 통해 소형 챔버 안에서 LiCl-KCl 용융염 내 Eu, Nd, Pr 원소 측정 시 평균 10% 수준의 정량 측정 오차를 평가했고 우라늄, 플루토늄 혼합물에서 Pu 방출선 검출을 확인하였다 [1]. 지금까지의 결과는 파이로 공정 물질 내 플루토늄 정량측정을 10% 수준에서 가능성을 예측할 수 있으나, 실제 핫셀 내 높은 측정 반복율을 가질 수 있는 LIBS 장비 셋업 및 운영 방법 등이 고려되어야만 한다. 또한 사용후핵연료와 파이로 공정물질과 같이 원자번호가 높은 다양한 원소가 존재하는 경우 복잡한 방출선 안에서 원소를 선별할 수 있는 분해능 역시 반드시 실증되어야 하는 부분이다. 본 논문에서는 Advanced spent fuel Conditioning Process Facility(ACPF) 개조작업에 맞추어 Fiber optics를 이용한 원격 LIBS를 핫셀 내 설치과정과 기밀성, 원격성, 그리고 고방사선 환경 하에서 발생 가능한 문제점에 대해서 성능평가 부분을 서술하였다.

2. 본론

2.1 ACP LIBS Monitoring system(ALIM)

고방사선 핫 셀 내부에 장기간 LIBS 측정실험이 이루어진 예는 세계적으로 찾아보기 어렵기 때문에 단기간 적용 사례가 있는 영국 Applied Photonics [2]와 협업을 통해 장치 설계와 설치를 진행하였다. 차폐된 내부로 에너지를 전달하는 방법으로는 전달 에너지는 작지만 수광 효율이 좋은 광섬유케이블을 이용하기로 결정하였다. 주요 구성요소는 1) Nd:YAG 레이저(Quantel Big Sky Ultra)와 EMCCD를 부착한 고분해능 Echelle 분광기(EMU-120/65, Andor iXon EMCCD), 2) 광섬유 케이블 Feedthrough(Roxtec), 그리고 3) LIBS probe 이다.(Fig. 1)

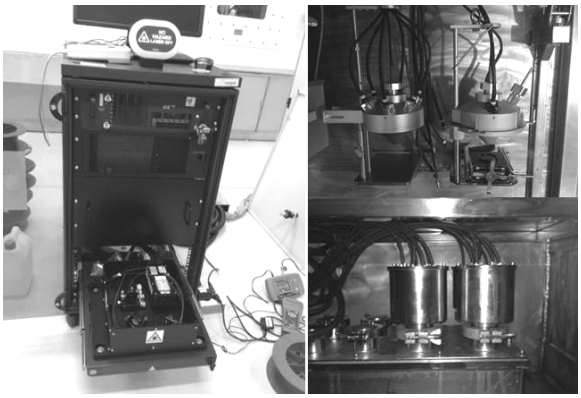


Fig. 1. ALIM component: main instrument rack(left), LIBS probe(top right), and sealing grand(bottom right).

2.2 ALIM intallation

ALIM 핫셀 설치 중 가장 많이 고려했던 부분은 외부로부터 핫셀 내부로 광섬유케이블을 연결하는 부분이다. 일반 operation area에서 약 1 m가량의 콘크리트 벽체를 penetration hole을 통해 ACPF 시설내부 바닥과 통한다. 따라서 ACPF Argon compartment 핫셀 내부로 삽입은 바닥 Feedthrough를 통해 연결되었고 광섬유케이블의 손상을 막기위해 가이드 튜브를 설치하였다. 설치상 주요 고려 대상은 벽체와 Argon compartment의 기밀을 유지 할 수 있도록 체결하는 것이다. 이 부분은 영국 Applied Photonics의 경험을 기반으로 Fig. 2와 같이 Roxtec의 sealing gland가 설계 설치되었다.

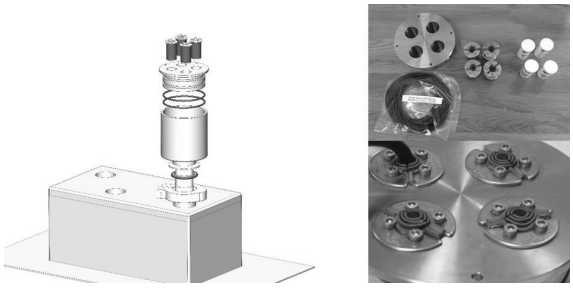


Fig. 2. Roxtec sealing gland and KF flange.

2.3 ALIM 성능평가

2.3.1 Roxtec sealing gland 기밀평가

ACPF argon compartment는 전해환원 장치가 설치되고 수분양과 argon 양에 대한 기밀도가 유지 되어야 한다. 따라서 LIBS feedthrough에 대한 기밀도 평가가 요구되었고 He 측정기를 이용해 광섬유케이블의 sealing gland에서 $2.9x10^{-6}$ mbar l/sec의 누설량이 관측하였다.

2.3.2 광섬유케이블 방사선 영향 평가

핫셀 내 고방사선 물질로 인한 광섬유케이블 손상 또는 빔 전송률 영향을 살펴보았다. 평가를 위해 광섬유케이블 감마선을 조사하였을 때 백색광의 전송률 변화를 관측하였다. ACPF 예상되는 선량(13.15 Gy/h)에서는 48 시간 누적을 하였을 경우도 영향이 없었으며 선량이 58 Gy/h에서 350 nm 이하 파장대에서 전송률이 소량 감소하였으며 장파장 영역은 변화가 관측되지 않았다.

2.3.3 원격성 및 유지보수성 평가

핫셀 내 LIBS 측정을 위해서는 원격조작기(MSM)을 이용하여 작업이 이루어져야만 한다. LIBS probe의 이동 및 시료의 이동 그리고 고장 시 수리/보완을 위한 Probe의 크레인 고리, 샘플대 탈부착 방법, MSM 조작 용이성을 위한 홀더 등이 설계에 반영되었다. 그러나 현재 광섬유케이블, 렌즈의 파손의 경우 여분의 Probe 자체와 케이블을 교체하는 방식으로 핫셀 내 수리는 불가능하다.

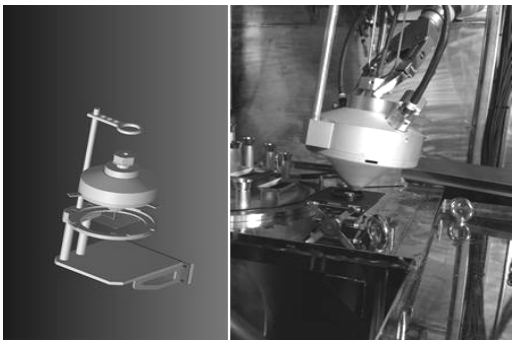


Fig. 3. Remote treatment of LIBS probe.

2.4 LIBS 측정 및 성능테스트

설치 완료된 ALIM 시스템을 원격으로 20 m 광섬유케이블을 통해 레이저 에너지를 전송하여 순수 알루미늄 표면에서 플라즈마를 일으키고 Probe 렌즈를 통해 해당 분광선을 관측하였다.

또한 정량적 분석 평가를 위해 CRM No. 462-467 금속 시료를 이용하여 Ni, Cr 금속의 정량 분석을 평가하였다. Fig. 4는 다변량 분석 방법(Partial Least Squares Regression)을 사용하여 Cr과 Ni의 정량분석 곡선을 얻어보았다. 초기 결과로써 R^2 = 0.99, RMSEC = 0.19wt%(Cr), 0.42 wt%(Ni) 값을 얻었다.

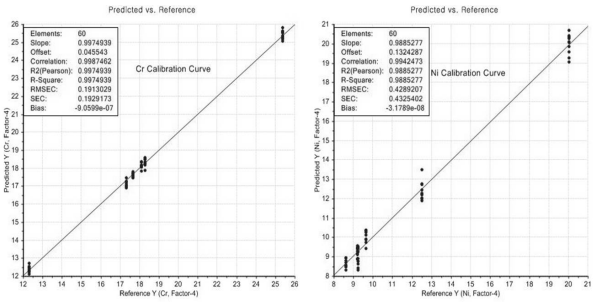


Fig. 4. Prediction vs. Reference plots for Cr(left) and Ni(right) in CRM No. 462-467.

3. 결론

현재 LIBS 기술을 핫셀 내 장기간 설치하여 측정하는 사례는 세계적으로 찾아보기 힘들다. 본 연구는 광섬유케이블을 이용하여 ACPF 핫셀 내부의 물질을 현장에서 분석할 수 있도록 LIBS 시스템을 설계, 설치 완료하였다. 현재 금속 표준물질 신호 분석을 통해 설계 성능을 확인하였으며, 원격성과 유지 보수성을 위해 부분 수정보완 작업을 진행 중이다. ACP 시설의 사용후핵연료 사용시기에 따라 원격 LIBS 시스템을 이용하여 사용후핵연료 내 플로토늄, 우라늄 등 민감핵물질의 분광현상을 분석할 계획이다.

4. 감사의 글

본 논문은 미래창조과학부의 재원으로 한국연구재단의 지원을 통한 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

5. 참고문헌

[1] Adrienne LaFleur, et., al., LA-UR-13-27673 (2013).

[2] Andrew I. Whitehouse, Spectroscopy Asia, 2, No. 2, 2006, 13-18.

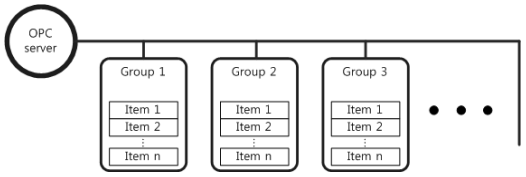
OPC 통신을 활용한 PRIDE 원격시스템 시뮬레이션 아키텍쳐

류동석*, 김성현, 조일제, 김기호
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*sayryu@kaeri.re.kr

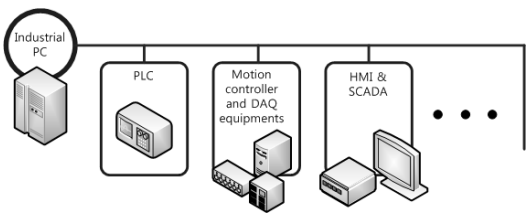
1. 서론

방사선 환경의 원격시스템 개발에 있어서, 설계 단계에서 3D 모델을 활용한 철저한 작업성 검증이 이루어져야 한다. 이와 같이 가상환경에서 원격시스템을 검증하기위한 시뮬레이터는, 설계단계 뿐 만 아니라, 실제 시설이 구축된 이후의 장치 운영 단계에서도 유용하게 활용될 수 있다. 위험상황이나 사고상황의 대처 방법 수립 및 연습 등과 같이, 실제로 재현하기 곤란한 작업들은 여전히 가상의 시뮬레이터를 병용하여 실험할 필요가 있다. 이와 같이, 방사선 환경의 복잡한 원격작업을 검증함에 있어서, 가상 시뮬레이션 만으로는 정확하게 구현할 수 없는 작업에 대해서는, 실제로 구축된 하드웨어 결과를 반영하여 시뮬레이션 할 수 있는 HILS(Hardware in the loop Simulation) 시스템 구축이 절실하다.

한국원자력연구원에서 파이로 공정을 실증하기 위해 구축된 PRIDE시설은, 설계단계에서 가상 시뮬레이터를 활용하여 원격시스템의 검증을 수행한 바 있다. 그러나, 기 개발된 PRIDE 시뮬레이터는 실제 제어기 또는 장비를 연계하는 HIL(Hardware in the loop) 시뮬레이션 기능이 누락되었기 때문에, 작업상의 한계성을 가진다. 본 논문에서는 PRIDE 원격작업의 가상 시뮬레이션 정확도를 높이기 위해, OPC 통신을 활용하여 실제 하드웨어와 연계 가능한 시뮬레이터 아키텍쳐에 대해 논의하고자 한다.



(a) Logical construction of OPC network



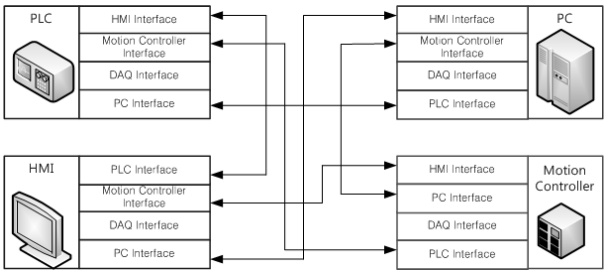
(b) example of physical implementation

Fig. 1. Example construction of OPC network.

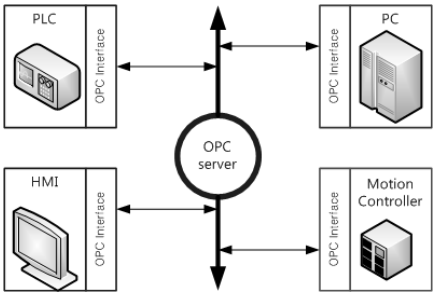
2. 본론

2.1 OPC 네트워크

OPC (OLE for Process Contrl) 통신은 PLC, DSP와 같은 프로세스 컨트롤 장비의 데이터 공유를 위한 산업용 프로토콜로서 산업자동화에 널리 활용되고 있다. OPC 사용을 위해서는 여러 프로세스 컨트롤러로 구성된 네트워크를 구성하고, 내부에 OPC 서버를 두도록 한다. 각 서버는 복수개의 OPC 그룹을 가지는데, OPC 그룹은 일반적으로 하나의 클라이언트에 속하지만, 여러개의 클라이언트에 의해 공유될 수 도 있다. 각 OPC그룹에 ITEM을 등록하게 되는데, 각 ITEM은 데이터 단위로서 공유하고자 하는 변수로 이해할 수 있으며, 데이터의 사이즈 (bit, byte word 등) 또는 종류 (BOOL, INT, FLOAT 등) 를 선택해서 사용할 수 있으나, 여러 개의 아이템을 사용하는 경, ITEM의 경계가 byte 단위로 나뉘어 질 수 있도록 구성하는 것이 바람직하다. OPC 네트워크 구성사례를 Fig. 1에 도시하였다.



(a) without OPC



(b) with OPC

Fig. 2. simplification of interface with OPC.

Fig. 2는 OPC 사용의 이점을 도식화 한 것이다. 장비 사용자의 입장에서는 각 프로세스 컨트롤러의 선택이 자유로울 뿐 아니라, 추후 컨트롤러가 변경되더라도 개발된 제어 알고리듬을 쉽게 이식할 수 있으므로, 프로세스 컨트롤러와 독립적으로 개발에 집중 할 수 있는 장점을 가진다. 장비 개발자 (또는 장비 제조사)의 입장에서도, 과거에는 개발하는 장비를 다양한 플랫폼 (HMI, MES, SCADA 등)과 연동할 수 있도록 인터페이스를 제공해야 하였으나, OPC를 하나의 통일된 인터페이스 드라이버로서 지원하도록 단순화 할 수 있게 되었다.

2.2 OPC 기반 PRIDE 시뮬레이션 아키텍쳐

본 연구에서 PRIDE 원격시스템을 검증하기 위한 가상환경과 실제 원격시스템이 운영되는 PRIDE 현실환경을 연계하는 수단으로서 OPC를 활용하는 HILS 아키텍쳐를 제안한다. 즉, 실제 원격시스템의 제어기의 각 제어변수를 OPC에 등록하고, 제어변수를 시뮬레이터의 가상환경과 연계하여, 실험하고자 하는 실험변수와 알고리듬에 따라 시뮬레이션을 수행할 때에, 시뮬레이션으로 구현하기 어려운 부분에 대해서는 공유된 OPC 변수에 의해 실제 환경의 실제시스템을 구동하도록 하고, 실제 환경에서 작업된 데이터를 OPC변수를 통해 다시 가상환경으로 피드백하고, 가상환경은 실제 데이터를 이어받아 시뮬레이션을 수행하도록 한다.

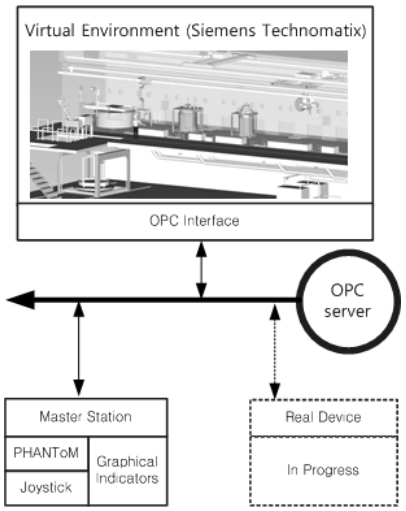


Fig. 3. Implementation of proposed Simulation architecture.

Fig. 3에 도시한 바와 같이, 가상환경의 신뢰성을 높이기 위해 지멘스 테크노매틱스를 활용하여 PRIDE 시설과 원격시스템을 가상공간에 배치하도록 하고, 각 제어변수는 OPC 서버에 등록되어 실시간으로 외부장치와 공유된다. 2기의 조이스틱과 2기의 팬텀 햅틱장치가 연결된 마스터 스테이션은 OPC 클라이언트로서 OPC서버에 접속하여 사용자의 명령을 전달하게 된다. 결과적으로 사용자가 마스터 스테이션을 통해 자유롭게 원격시스템을 조작할 수 있으며, 그에 따라 가상환경에 변화가 발생하고, 가상환경 변화에 따른 주요변수가 OPC 서버에 업데이트 되면, 마스터 스테이션에서 이를 실시간으로 모니터링 할 수 있다.

뿐만 아니라, OPC의 제어변수를 상용PLC 또는 이를 지원하는 제어기와 공유하게 되면, 그림3에서 점선으로 도시한 바와 같이, 실제 환경에서 작동하는 원격시스템을 가상환경과 동일하게 구동할 수 있게 된다. 이를 구현하기 위한 연구가 현재 진행중에 있다.

3. 결론

본 연구에서는 PRIDE 시뮬레이션에 있어서 HILS를 구현하기 위한 OPC기반의 시뮬레이터 아키텍쳐를 제안하였다. 지멘스 테크노매틱스를 활용하여 제안된 아키텍쳐에 기반한 시뮬레이터를 구현하였으며, OPC 변수공유에 기반하여 가상환경 제어가 가능한 것을 검증하였다. 개발된 시뮬레이터는 가상환경의 작동여부를 검증하기 위한 것으로서 실제 환경에서 작동하는 하드웨어가 배제된 상태에서 수행되었다. OPC와 연동하는 실제 제어기가 포함된 시뮬레이션 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, 475-476, 2012.

[2] 류동석, 이종광, 한종희, 배명수, 김기호, 조일제, "PRIDE 알곤셀 내부의 3D 영상 인프라 구축," 한국방사성폐기물학회, 2013년 추계학술발표회 논문요약집, 151-152, 2013.

PRIDE 시설 Argon Tank 내 상부 기체분석

노선호*, 장영국, 조일제
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*nohsh@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에는 파이로 기술개발을 위한 PRIDE (PyRoprocessing Integrated inactive DEmonstration facility) 시설이 있다. PRIDE는 감손우라늄 또는 사용후핵연료 대용물질(surrogate)을 사용하여 공학규모 파이로 일관공정을 시험할 수 있는 시설이다.

PRIDE는 Argon cell에서 수행하는 전해환원 공정, 전해정련공정 전해제련 공정 등은 공정의 특성으로 인하여 불활성(아르곤) 분위기를 유지하여야 한다. 불순물의 농도는 산소와 수분 각 50 ppm 이하를 유지하여야 한다. Argon cell의 농도 변화 요인은 셀 내부의 온도 변화에 의한 압력차이, 대기압의 변화 등에 있다.

본 논문에서는 PRIDE 시설 Argon cell 내에 공급하는 액체 Argon을 보관하는 Argon Tank의 기밀성과 Tank 내 상부의 기체분석을 한 것에 대해 기술한다.

2. 본론

2.1 Argon tank 내 불순물 유입 가능성

Argon cell 내의 환경을 50 ppm 이하의 산소와 수분으로 유지하기 위하여, 공급하는 Argon은 99.999%의 액체 Argon을 기화시켜 공급을 한다. 아래 Fig. 1은 현재 Argon Tank의 실물과 설계도이다.

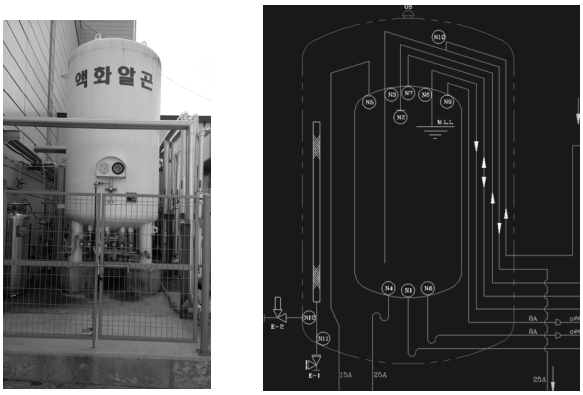


Fig. 1. Argon tank.

설계도를 확인하면, PRIDE 셀 내로 공급을 하는 Outlet 파이프는 상부쪽에 설치가 되어있어, 액체 Argon이 일정량 이하로 떨어지게 된다면, 불순물이 섞여서 PRIDE 셀 내로 유입 가능성을 확인하였다. 아래 Fig. 2 Argon tank의 설계도에서 Liquid outlet line을 표시한 그림이다.

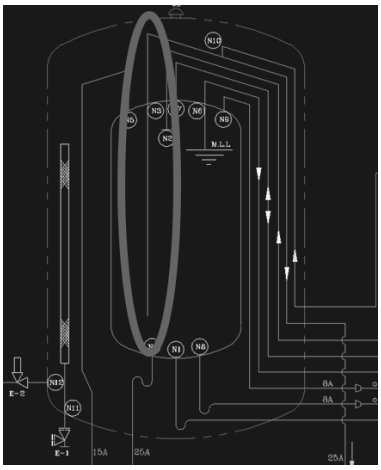


Fig. 2. Liquid outlet line.

2.2 Argon Tank 상부 Pipe 이용 기체분석

Argon tank 내의 Argon 양이 Tank의 30%이하일 때, Argon tank 상부에 연결되어있는 V-8 펌프회수밸브를 이용하여 기체분석을 하였다. 아래 Fig. 3는 실험을 위한 분석기 설치 현장이다.



Fig. 3. Oxygen sensor connected to V-8 valve.

2.3 Argon Tank에서 기화기로 공급되는 Pipe 이용 기체 분석

정확한 분석을 위해 Argon tank에서 기화기로 공급되는 Pipe에 연결되어있는 PSV102 밸브에 고무튜브를 장착하여 기체분석을 하였다. 아래 Fig. 4는 분석기 설치 사진이다.



Fig. 4. Oxygen sensor connected to PSV102 valve.

2.4 결과

Table 1. Oxygen level graph of Argon tank

	시 간	산소수치(ppm)
Ar Tank 상부 (V-8)	11:30	9
	12:30	0.333
	13:30	0.150
	14:30	0.105
	15:30	0.094

	시 간	산소수치(ppm)
기화기 (PSV 102)	11:00	20.79
	12:00	5.34
	13:00	4.49
	14:00	4.34
	15:00	4.12
	16:00	3.33

3. 결론

Argon tank의 상부에 연결된 센서와 기화기쪽으로 연결된 센서 모두 처음에 장착 한 시간(11:30, 11:00)에는 높은 산소 수치를 보인다. 이것은 처음에 장착당시에 센서가 공기중에 노출이 되어있는 상태에서 장착이 되어서 위와 같은 값을 나타내었다고 보여진다. 처음 값을 제외한 나머지 값을 보면, Argon tank 상부에는 불순물이 없다고 봐도 무방할정도로 깨끗한 상태를 보인다. 추가적으로 기화기 쪽과 Tank 상부 쪽의 밸브에 고무튜브가 아닌 스테인레스 튜브를 이용하여 실험을 실시하면 더욱더 정확한 값을 나타낼 수 있을 것이라고 예상한다.

4. 참고문헌

[1] ANL-7959 Hot Fuel Examination Facility /North Facility Safety Report, February 1975, Argonne National Laboratory, 42-53.

[2] The EBR-II Fuel Cycle Story, Charles E. Stevenson, American Nuclear Society, 16-25.

PRIDE 아르곤셀 작업창의 유지보수 체계 수립

한종희*, 장영국, 노선호, 이원경, 홍동희, 조일제, 김기호
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*jhan@kaeri.re.kr

1. 서론

PRIDE 아르곤셀의 고정식 셀장치인 작업창은 셀 외부에서 육안으로 내부를 확인할 수 있는 투명창으로 셀 전면에 18개, 셀 후면에 6개가 설치되어 있으며, 재질은 모두 폴리카보네이트이다. [1]

셀 전면의 작업창들은 내부창(폭 1090 ㎜ x 높이 880 ㎜ x 두께 15 ㎜)과 외부창(폭 1144 ㎜ x 높이 934 ㎜ x 두께 15 ㎜)의 이중창으로 구성되어 있다. 아르곤셀의 기밀을 유지하기 위해 창틀에는 오링이 이중으로 설치되어 있으며, 부압으로 유지되는 아르곤셀의 경계에서 구조적으로 견디기 위해 '+' 형태의 지지대가 설치되어 있다.



Fig. 1. PRIDE cell window.

반면, 셀 후면에는 셀 내부의 공정장치 후면을 관찰할 수 있도록 하부에 5개의 작업창(폭 584 ㎜ x 높이 584 ㎜ x 두께 15 ㎜)이 설치되어 있으며, 크레인 유지보수를 위한 시야를 제공하기 위해 3층 후면에 하나의 작업창(폭 761 ㎜ x 높이 264 ㎜ x 두께 15 ㎜)이 설치되어 있다. 후면의 작업창은 기밀을 유지하기 위한 이중 오링 설치용 홈이 가공되어 있으며, 오링의 기밀 여부를 확인하기 위한 Ar 공급 홈이 오링 홈 사이에 가공되어 있다.

2. 셀 작업창의 기밀 성능 점검

2.1 셀 작업창의 점검

셀 작업창은 PRIDE 아르곤셀의 경계에 위치하므로 셀 내부의 분위기 유지를 위해서는 기밀 성능이 가장 우선적으로 확보되어야 한다. 이를 위해서는 수시로 셀 작업창 및 고정부에 균열 여부를 육안으로 확인해야 하며, 설치된 오링의 기밀 성능을 점검해야 한다.

2.1.1 셀 작업창의 기밀 성능 점검 및 진단 방법

셀 작업창의 기밀은 오링의 기밀 성능을 통해 확인이 가능하며, 이를 위해 이중 오링 사이로 공급되는 아르곤의 유량을 점검하여 확인이 가능하다. 오링의 기밀 성능이 유지되는 경우에는 유량이 발생하지 않으나, 그렇지 않을 경우에는 아르곤의 누설에 의해 유량이 지속적으로 발생되게 되므로 이를 통해 기밀 성능을 점검할 수 있다.

유량계를 통해 누설이 확인되는 경우에는 기밀 확인용 밸브를 모두 닫은 후 하나씩 열면서 누설되는 작업창을 확인하고 균열에 의한 누설인지 오링 손상에 의한 누설인지를 진단한 다음 유지보수를 수행한다.

2.1.2 셀 작업창의 기밀 성능 점검 현황

아르곤셀 전면 작업창 중 셀 우측으로부터 6번 작업창의 외부창과 7번~9번 작업창의 내부창에서 균열이 확인되었으며, 모든 균열은 볼트 구멍으로부터 진행되었음이 관찰되었다.

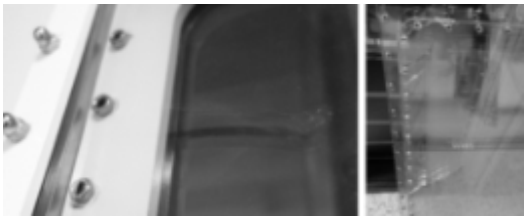


Fig. 2. Cracked cell windows.

이는 셀 벽면 재질인 STS304의 열팽창률과 폴리카보네이트의 열팽창률의 차이(약 4배)와 셀 내부와 외부와의 압력 차이, 그리고 작업창 고정을 위한 볼트 조임의 불균형에 의한 것으로 추정된다. 따라서 균열을 방지하기 위해서는 크기에 여유를 두고 가공해야 하며, 볼트 조임 순서에 따라 토크를 적절하게 가해야 한다.

3. 셀 작업창의 유지보수

누설이 확인된 작업창은 셀 내부 분위기에 미치는 영향을 최소화하도록 유지보수가 수행되어야 하며, 이를 위해 적절한 유지보수 절차를 수립하였다.

3.1 셀 작업창 유지보수 사전 준비 사항

작업창 유지보수를 위해서 교체용 작업창, 작업창 유지보수용 글러브박스 등 필요한 공구들을 준비하고 해당 작업창 기밀 확인용 아르곤 공급 밸브를 닫아야 한다. 또한 아르곤셀을 유지보수 모드로 전환하여 셀 압력을 대기 압력과 유사하게 유지하되 셀 내부의 오염이 대기 중으로 확산되지 않고, 유지보수용 글러브박스의 내압 성능을 고려하여 선정한다.

3.2 셀 작업창 유지보수 절차

셀 작업창을 유지보수하기 위한 대략적인 절차는 다음과 같다.

1) 외부창 고정나사 및 외부창고정틀 분리
2) 외부창 분리
3) 외부창지지대 분리
4) 작업창 유지보수용 글러브박스 설치
5) 글러브박스 내부 퍼징 실시
6) 내부창 고정나사 및 내부창고정틀 분리
7) 내부창 분리 및 교체
8) 내부고정틀 및 내부창 설치
9) 오링 기밀확인용 아르곤 공급 밸브를 개방하여 누설 여부 확인
10) 유지보수용 글러브박스 분리
11) 외부창지지대 설치 후 외부창, 외부창고정틀 설치 및 고정
12) 셀 정상모드로 전환

유지보수 과정에서 외부창만 유지보수하는 경우에는 외부창만 교체 후 외부창고정틀과 함께 고정하면 되며, 기밀용 오링이 손상된 경우에는 내부창을 분리한 뒤 오링을 교체하고 진공그리스를 도포하고 내부창을 설치한다.

3.2.1 유지보수용 글러브박스 퍼징

셀 작업창 유지보수 과정에서 아르곤셀 내부의 불순물 농도의 증가를 최소화하기 위해서 사용되는 작업창 유지보수용 글러브박스는 내부 부피가 약 0.63 ㎥로 퍼징을 하지 않을 경우 아르곤셀의 산소 농도는 약 110 ppm 상승하게 되므로, 내부창을 교체하기 전에 내부를 아르곤 가스로 치환하여 산소 농도를 감소시킬 필요가 있다.

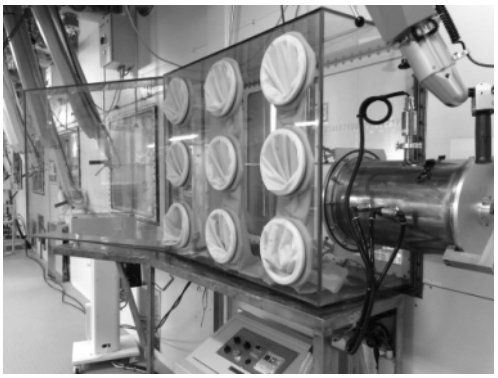


Fig. 3. Glovebox for window maintenance.

위 그림과 같이 글러브박스에는 내부를 퍼징하기 위한 배관 및 퍼징시스템이 설치되어 있으며 퍼징 전에 기밀이 유지되는 지 확인해야 한다.

셀 내부의 산소 농도가 20 ppm 증가하도록 하기 위해서는 퍼징 후 글러브박스 내부 산소 농도는 3.9% 이하가 되어야 하며, 글러브박스의 내압 성능을 고려하여 진공 및 충진 압력에 따라 Fig. 4와 같이 퍼징 성능에 대한 실험을 수행하였다.

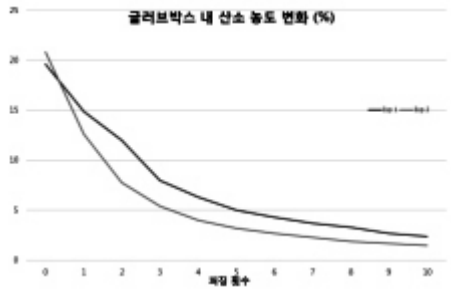


Fig. 4. O_2 concentration in the glovebox during purging.

진공압력 742 torr, 충진압력 746 torr로 설정한 경우 7회 수행한 뒤 3.9% 농도에 도달하였으며, 17 분 정도 소요되었다.

4. 결론

본 논문에서는 PRIDE 아르곤셀 작업창의 점검 방법 및 누설이 발생한 경우 유지보수용 글러브박스를 활용한 유지보수 절차에 대해 기술하였다.

5. 참고문헌

[1] 차세대핵주기 공정 실증시설 설계기술 개발, KAERI/RR-3414/2011.

공학규모 파이로일관공정 시험시설(PRIDE) Exhaust Vent Seal Pot 성능개선

장영국*, 노선호, 조일제
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*jangyk@kaeri.re.kr

1. 서론

본 한국원자력연구원에는 감손 우라늄 또는 사용후 핵연료 대용물질을 사용하는 공학규모 파이로 종합시험 시설(이하 PRIDE라 칭함)이 있다.

PRIDE의 아르곤셀에서 수행하는 공정 특성상 불활성(아르곤) 분위기를 유지하여야 하며, 공정에서 요구하는 셀의 오염도(산소, 수분 각 50 ppm 이하) 관리를 위하여 아르곤 공급 시스템, 정화시스템, 냉각시스템, 배출시스템으로 구성되어 있다.

본 논문에서는 PRIDE시설의 불활성(아르곤) 셀의 오염도(산소 및 수분 각 50 ppm)의 요구 수준을 유지하기 위해 셀의 외부 상황 변화(기압, 온도 등)에도 셀 내에 불순물(산소 및 수분 등)이 유입되지 않으며 셀의 과압 방호기능 장치인 Exhaust Vent Seal Pot 의 성능을 개선내용에 대하여 기술한다.

2. 본론

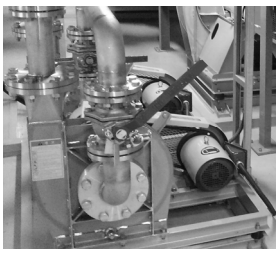
2.1 Exhaust Vent Seal Pot 구성

Exhaust Vent Seal Pot은 불활성분위기(Ar)의 셀과 직접 연결되어 있으며 전단에는 원형 HEPA FILTER, 후단에는 소용량 배기팬(Low Volume vent fan) 2기로 구성 되어 PRIDE시설 외부로 배출 되도록 구성되어있다.

Exhaust Vent Seal Pot의 현장 기존 구성은 Fig. 1 과 같다.



Circular HEPA filter



Low volume vent fan



Exhaust Vent Seal Pot

Fig. 1. Consist of Exhaust Vent Seal Pot System.

2.2 Exhaust Vent Seal Pot 성능개선 내용

PRIDE시설에 있는 불활성분위기의 Argon cell 이 가장 중요한 설비이며 시설을 구성하고 있는 공급시스템, 정화시스템, 냉각시스템, 배출시스템 등이 Argon cell의 분위기를 유지하기 위해 존재한다고 할 수 있다.

2.2.1 성능개선의 필요성

(1) Exhaust Vent Seal Pot의 용량부족으로 인한 잦은 작동
(2) 그에 따른 불순물의 유입가능성 증가와 압력조절용 유체의 유출
(3) 작은 작업창과 레벨게이지로 인한 유지보수의 어려움

2.2.2 Exhaust Vent Seal Pot의 성능개선 내용

(1) Vent Seal Pot 의 용량 증가
용량 : 기존 Vent Seal Pot 대비
$0.15m^3$ ⟶ $0.4m^3$ (약 2.5배 이상)
(2) 압력조절용 유체 유실방지 장치 추가 설치 및 유지보수 관리성 개선

Vent Seal Pot 성능개선에 대한 결과를 Fig. 2에 나타내었다.

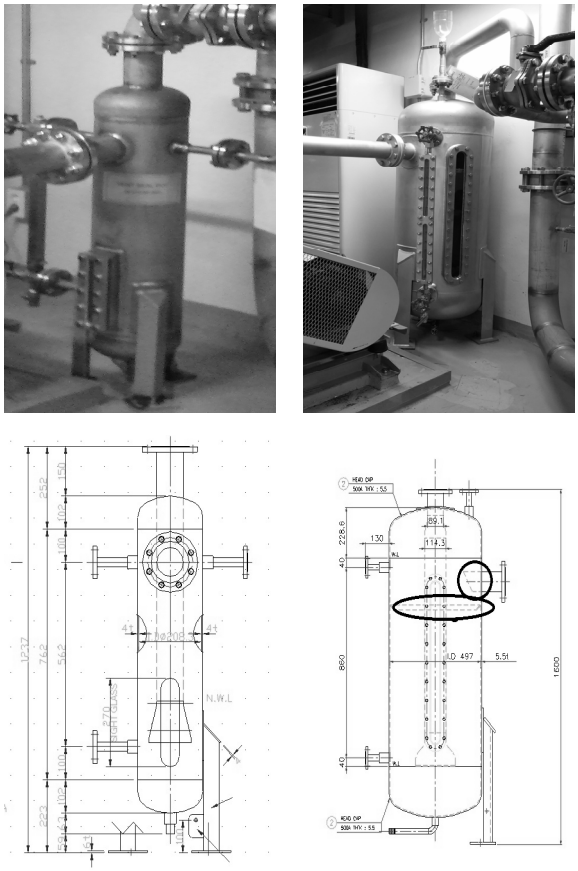


Fig. 2. Before & After complementary work.

3. 결론

PRIDE시설의 초기 구축 당시 설치되어 있던 기존 Exhaust Vent Seal Pot은 Ar Cell 대비 가용 용량이 작아 Cell의 외부적인 변화요인(기압, 온도 등)에 의한 변화에 대응하기 미흡해 Ar Cell의 압력 변화가 클 경우 Seal Pot내의 압력조절 유체의 유실, 그로 인한 Cell 내의 불순물의 유입 가능성이 많아 기존에 설치된 Seal Pot의 공간에 설치 가능한 최대의 용량과 문제점들을 개선해 설치를 하였다.

Exhaust Vent Seal Pot의 성능개선 후 Ar Cell의 분위기 관리에 매우 유용하게 활용되고 있다.

4. 참고문헌

[1] ANL-7959 Hot Fuel Examination Facility/ North Facility Safety Report, February 1975, Argonne National Laboratory, 42-53.

[2] The EBR-II Fuel Cycle Story, Charles E. Stevenson, American Nuclear Society, 16-25.

PRIDE 통합비파괴장치를 이용한 DU 농축도 측정

이채훈*, 조광호, 서희, 박세환, 나상호, 이승규, 원병희, 안성규, 김호동
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*chlee80@kaeri.re.kr

1. 서론

모의연료를 이용해 파이로 공정 기술을 확보하기 위한 PyRoprocess Integrated inactive DEmonstration facility (PRIDE) 시설은 inactive 시험검증을 위한 공학규모의 실증 시설이다. PRIDE의 모의연료(DU, Depleted Uranium) 의 핵물질계량을 위해 PRIDE Unified Non-Destructive Assay (UNDA) 가 개발되었으며, [1] ^{238}U 질량 측정을 위해 ^{238}U에서 나오는 중성자를 계수하는 56개의 He-3 tube 모듈, ^{235}U의 농축도를 측정하기 위해 ^{235}U에서 발생하는 186 keV 감마를 계수하는 NaI 섬광체 계수 모듈, 그리고 전체 질량을 측정하기 위한 무게 측정 모듈로 구성되어 있다[2].

본 연구에서는 섬광검출기인 NaI 검출기와 반도체형인 CdTe를 이용해 펠렛 형태, 분말 형태의 감손우라늄의 농축도를 측정 및 비교하였다.

2. 본론

2.1 PRIDE UNDA의 감마측정부

PRIDE UNDA는 Fig. 1과 같이 well-type으로 중성자 측정용 He-3 tube가 팔각 형태로 위치하며, 하단부에 무게 측정부와 감마측정부가 있다. 하부에 위치한 감마측정부는 실린더 형태의 2 inch (D) x 0.5 inch (H) NaI 섬광체와 PMT (Canberra, USA) [3], 고전압 인가, 신호증폭 및 디지털신호처리를 하는 Inspector-2000, 우라늄 농축도를 분석하는 IMCA S/W 로 구성된다. (Fig. 2)

감마측정부의 에너지에 대한 선형성을 확인하기 위해서 3가지 감마선 방출 동위원소 (^{133}Ba, ^{137}Cs, ^{60}Co)을 이용하여 스펙트럼을 획득하고, 선형성을 검증하였다[4]. Fig. 3(a)와 같이 356 keV와 662 keV 에너지에서 10.6%, 7.6% FWHM 의 에너지 분해능을 얻을 수 있으며, R^2=0.999 의 에너지에 대한 선형성을 확인할 수 있다.

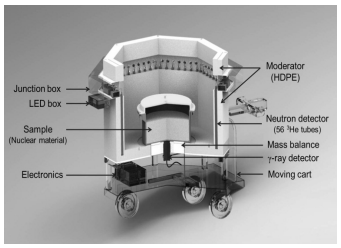


Fig. 1. PRIDE UNDA Structure.

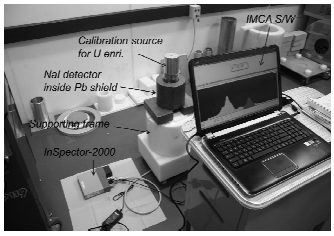


Fig. 2. The components of the gamma measurement module.

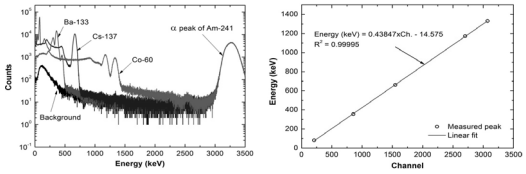


Fig. 3. Measured spectra of Ba-133, Cs-137, and Co-60 (a) and linearity (b).

에너지에 대한 선형성 검증 후 표준교정선원을 이용해 농축도에 대한 교정을 하였다. 표준교정선원은 0.316, 0.712, 1.942, 2.949, 4.462 wt%의 U_3O_8 분말이며, 구조는 Fig. 4와 같다.

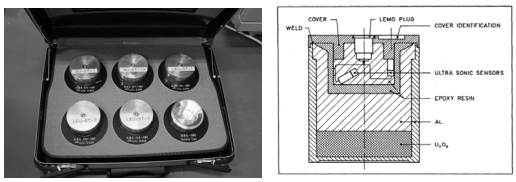


Fig. 4. U_3O_8 Standard Calibration sources.

2.2 Uranium Enrichment Measurement

600 sec 동안 각 표준교정선원을 이용해 Fig. 5(a)와 같이 감마스펙트럼을 측정하였으며, R^2=0.999로 우수한 농축도에 대해 선형성을 가진다.

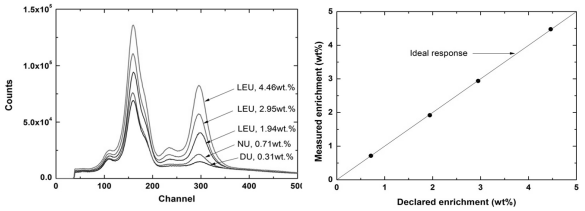


Fig. 5. U_3O_8 gamma spectra of standard calibration sources (a) and enrichment calibration curve (b).

UO_2 펠렛은 16.5 cm(D) x 7.5 cm(H)의 3 mm 두께의 알루미늄 용기에 적층하고, 분말화된 U_3O_8은 45 cm(D) x 7.4 cm(H)의 2 mm 두께의 알루미늄 용기에 밀봉 후, 각각 감마스펙트럼을 측정하였으며, Fig. 6과 같이 교정곡선을 통한 농축도를 획득하였다.

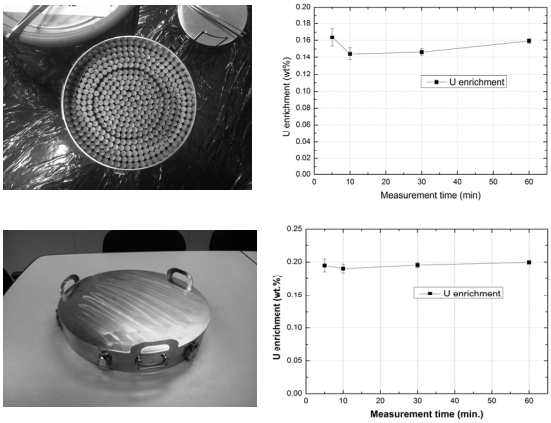


Fig. 6. measured UO_2 enrichment (top) and U_3O_8 enrichment (bottom).

UO_2 펠렛의 농축도가 U_3O_8보다 낮게 측정된 이유는 8.2 mm(D) x 9.83 mm(H) 크기의 펠렛 사이의 빈 공간이 교정 시 고려되지 않았기 때문이라고 예상된다. (Fig. 6)

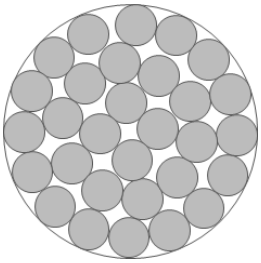


Fig. 7. Space between pellets.

3. Future work

펠렛 간의 빈 공간에 의해 발생되는 오차를 MCNP 시뮬레이션을 통해 보정하고자 한다. 또한 농축도 측정 오차 및 측정 시간에 검출기의 에너지 분해능이 미치는 영향을 확인하기 위해서 NaI 섬광형 검출기 이외에 에너지 분해능이 우수한 반도체형 검출기인 1 mm 두께의 CdTe (eurorad, France)[5]를 이용해 농축도 측정 및 평가를 할 계획이다. Table 1은 NaI 와 CdTe 검출기의 특성이며, CdTe 의 전치증폭기로는 Fig. 7의 charge gain 이 6.6V/pC인 PR16-H 모듈을 사용하였다.

Table 1. characteristics of NaI scintillation detector and CdTe semiconductor detector

NaI	Thickness	12.7 mm
	Energy resolution	~7.6% FWHM @ 662 keV
	Operating V	~570V
	Self gain calibration with Am-241	
CdTe	Thickness	1 mm
	Energy resolution	1% FWHM @ 662 keV
	Operating V	30~50V



Fig. 8. CdTe and PR16-H preamp.

본 연구에서는 MCNP 시뮬레이션을 통해 파우더와 펠렛의 오차를 보정하고, 에너지 분해능에 따른 농축도를 분석함으로써, 다양한 형태의 우라늄 시료의 농축도 측정에 정확도를 확인하고자 한다.

4. 감사의 글

이 논문은 2015년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임 (No.2012M2A8A5025947).

5. 참고문헌

[1] Journal of the Korean Physical Society, 63(11), 2080-2084, 2014.
[2] 서희, 원병희, 이승규, 박세환, 신희성, 송대용, 나상호, 김호동, 이현수, "시료 조건에 따른 PRIDE UNDA 교정 시뮬레이션", 한국방사성폐기물학회 2014년 춘계학술발표회 논문요약집, 12(1), 47-48, 5.8~9, 2014, 평창.
[3] http://www.canberra.com
[4] Asian Nuclear Prospects 2014.
[5] http://www.eurorad.com

PRIDE 핵물질 재고관리 시스템

송대용*, 노선호, 장영국, 강희석, 박세환, 조일제
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*dysong@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로일관공정시험시설인 PRIDE (PyRoprocess Integrated inactive DEmonstration facility)는 세계 최초로 운영되는 파이로 시험시설로서, 동 시설에 대한 국제적인 관심이 지대하다. PRIDE는 사용후핵연료에 비해 상대적으로 민감하지 않은 핵물질인 감손우라늄을 취급하는 시설이다. 그러나 동 시설에서의 안전조치 이행은 파이로 시설의 안전조치성을 검증하는 시금석이 될 수도 있기 때문에 IAEA의 사찰 수검 시 정확한 핵물질 계량관리 정보를 적시에 제공할 수 있는 핵물질 재고관리 시스템의 구축이 필요하다.

본 연구에서는 안전조치 이행 정보를 적시에 제공함은 물론, 시설운영의 효율성을 높이기 위하여 현재 개발 중인 PRIDE 핵물질 재고관리 시스템에 대하여 기술하고자 한다.

2. 본론

2.1 개요

PRIDE는 3층 건물로서 방사선 관리구역과 일반 관리구역으로 구획되어 있으며, 주요 공정장치의 대부분은 2층의 아르곤 셀 내에 설치되어 있다. 공기분위기에서 가동되는 일부 공정장치와 공정물질 및 폐기물 저장고, 아르곤 시스템, 전기 및 기타 부대설비 등은 1층에 설치되어 있다[1].

본 연구에서는 이러한 시설 특성을 고려하여 핵물질 계량관리를 위한 물질수지구역 (Material Balance Area, MBA)은 1개로 설정하였다[2-4]. 물질수지구역 내에서 핵물질 재고를 결정하기 위한 주요측정지점(Inventory Key Measurement Point, IKMP)은 5개로 설정하였다. 각 KMP에서의 핵물질 계량은 주로 저울을 이용하고, 아르곤 셀 내부에 있는 주요 공정장비에 잔류하는 용융염은 부피측정기(level gauge)를 이용하여 측정할 계획이다. 또한 공정물질 내 핵물질 함유량을 확인하기 위하여 주요 공정물질에 대한 화학분석 결과도 이용할 계획이다.

2.2 핵물질 재고관리 시스템의 설계

PRIDE 핵물질 재고관리 시스템은 사용자들이 효율적로 시스템을 사용할 수 있도록 기능의 편리화, 입력사항의 최소화를 전제로 설계하였으며, 설계된 시스템의 개발 범위 및 주요 기능은 다음과 같다.

2.2.1 개발 범위

PRIDE의 핵물질 계량관리 및 시설 운영 업무에 대한 분석 내용을 바탕으로 설계한 시스템의 개발 범위는 다음과 같다.

- 핵물질/비핵물질의 이동, 저장, 재고 현황 정보 관리
- 공정시험 관리 및 공정시험에 따른 핵물질의 변화 이력 정보 관리
- 공정장비 및 핵물질 취급 용기의 정보 관리
- 시설의 안전조치 이행관련 각종 계량관리 보고 자료의 관리

2.2.2 주요 기능 설계

PRIDE 핵물질 재고관리 시스템은 사용자들이 효율적로 시스템을 사용할 수 있도록 기능의 편리화, 입력사항의 최소화를 전제로 설계하였으며, 설계된 주요 기능은 다음과 같다.

- KMP별 재고관리 기능: KMP별 핵물질 재고량(맵(map)형태로 정보 제공)과 핵물질 이동기록 관리
- 핵물질 이력정보 관리 기능: 핵물질의 위치, 장비, 용기, 물질의 이력정보 관리
- 세부공정별 시험기록 관리: 사용 장비, 장비별 입출력 물질, 물질의 변화(이동, 생성/소멸, 속성 변화 등), 시험시간 등 공정별 시험기록 관리
- 용기 관리 기능: 시설에서 사용되는 용기 정보(종류, 용량, 제원, 사용공정, 적재 상태 등)의 관리
- 사용자 정보 및 문서관리 기능: 사용자별 시스템 접근권한 관리 및 각종 보고문서 관리 (출력, 조회, 자료 파일 다운로드 등)

• 핵물질통제 계량관리 시스템과의 연계 기능

2.3 프로그램 개발

2.3.1 개발 환경

PRIDE 핵물질 재고관리 시스템의 개발에 사용된 서버 시스템의 하드웨어 및 시스템 소프트웨어는 Fig. 1과 같다. 클라이언트 프로그램은 웹 어플리케이션(web application)을 사용하여 개발하였으며, 사용자가 한국원자력연구원 내 내부통신망을 통하여 개인용 컴퓨터에서 웹브라우저를 구동하여 시스템에 접근할 수 있도록 하였다.

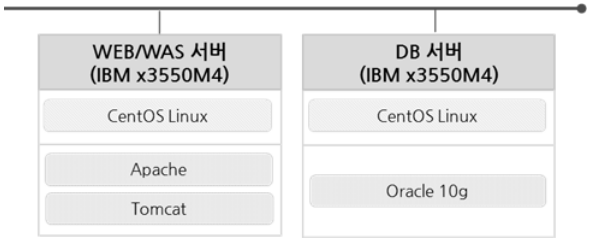


Fig. 1. Hardware and system software of nuclear material management system for PRIDE.

2.3.2 프로그램 구성

PRIDE 핵물질 재고관리 시스템의 프로그램 구성은 Table 1과 같이 크게 정보조회, option 설정, 작업관리, 공정시험관리, 시설운영관리, IAEA 사전보고 관리 등으로 구성하였다. Fig. 2의 좌측에서 볼 수 있는 바와 같이, 사용자는 프로그램의 초도화면에서 시설 내 핵물질 재고현황을 일목요연하게 파악할 수 있으며, Fig. 2의 우측과 같이 각 메뉴를 이용하여 원하는 세부적인 작업을 수행할 수 있도록 프로그램을 구성하였다.

Table 1. Software structure of nuclear material management system for PRIDE

대분류	화면명	기능 설명
정보조회	메인화면	전체 재고현황 조회
	작업리스트	일별 작업목록 조회
	PRIDE맵	전체 재고현황 조회
	물자재고목록	물자재고목록조회
	자체점검기록부	분기별 자체점검기록부 조회
	물질정보조회	세부공정별 물질정보 조회
Option설정	용기종류관리	용기정보 등록/삭제
	물질종류관리	물질의 등록/삭제
	공통코드관리	각종 코드 등록/삭제
	허가핵물질관리	핵물질 양, 종류 등록/삭제
작업관리	KMP간 이동	KMP간 핵물질 이동관리
	KMP내 이동	KMP내 핵물질 이동관리
	재고변동관리	보고서의 작성/조회
	사용자관리	사용자 등록관리
공정시험관리 (개발 중)	전처리, 환원, 정련, 제련, 염처리 공정	공정별 시험일지 등록
시설운영관리 (개발 중)	시설운영관리	시설운영 정보 등록/조회
	일정관리	일정관리용 달력 조회
IAEA 사전보고관리 (개발 중)	월간/분기/연간보고	IAEA 보고자료의 등록/조회/출력



Fig. 2. Example screen of nuclear material management system for PRIDE.

3. 결론

PRIDE 핵물질 재고관리 시스템은 IAEA의 각종 사찰 수검 시 제공할 안전조치 이행 정보를 생산하고, 핵물질 재고 및 시설 운영과 관련된 제반 자료를 보다 효율적으로 관리하기 위한 목적으로 개발에 착수하였다. 동 시스템은 현재 핵물질 재고관리에 필요한 주요 모듈이 개발되어 시험 운영 중에 있다. 2015년 하반기에는 기 개발된 프로그램 모듈의 시험운영 중에 발견된 문제점을 해결하고 미개발된 부분(Table 1 참조)을 추가적으로 개발 완료하여 2016년부터 정상 운영할 계획이다.

4. 참고문헌

[1] 조일제 외, "차세대 핵주기공정 실증시설 설계기술개발", 한국원자력연구원, KAERI/ RR-3414/2011, 2012.

[2] 송대용 외, "PRIDE 핵물질 재고관리 시스템 설계", 한국방사성폐기물학회 2014 추계학술대회 논문요약집, 12(2), 111-112, 10.16~17, 2014, 여수.

[3] 송대용 외 6인, "PRIDE 시설의 안전조치 시스템", 한국방사성폐기물학회, 2012년 추계학술발표회 논문요약집, 10(2), 99-100, 2012.

대용량 경사형 절개탈피복장치 공학설계

김영환*, 조용준, 이재원, 안도희
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*yhkim3@kaeri.re.kr

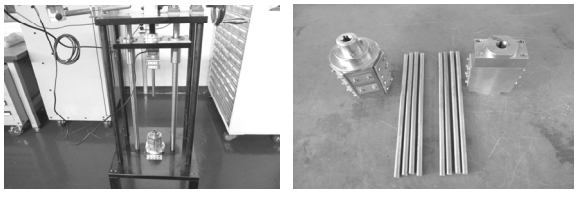
1. 서론

파이로 전해환원 공정의 전처리를 위해서는 사용후핵연료(Spent Fuel) 집합체 해체, 연료봉 인출, 연료봉 절단을 하는 기계적 전처리가 선행되어야 한다. 또한 핵연료를 산화처리하기 위하여 절단 연료봉을 탈피복하는 경사형 절개탈피복 장치가 필요하다. 장치의 개념설계를 위해서 펠릿(Pellet) 및 피복관(Hull)의 탈피복 조건 확인 및 절단 날(Blade)의 절단력 조건 등을 고려 한 후, 시험기구를 제작하고, 절단 블레이드 모듈별(3날 모듈, 2날 모듈) 모의 핵연료 봉의 절개 탈피복 전단력 시험을 수행하였다. 또한 원격 운전성과 원격 유지 보수성을 고려하여 3날 모듈, 2날 모듈을 장착하여 시험할 수 있는 경사형 절개 탈피복 장치를 설계 제작하였으며, 성능평가를 수행하였다. 경사형 절개 탈피복 장치 시험에 있어서 스테인리스와 지르칼로이 튜브를 이용하여 핵연료봉의 최적 절단을 위한 커팅모듈의 기울기 값을 구하고자 한다. 또한 상기 결과들을 반영 하여 대용량 경사형 절개 탈피복 장치 공학설계를 수행하였다.

2. 본론

2.1 모의연료봉 절단력 시험기구

Fig. 1과 같이 수동핸들 및 스크루(Screw) 압입부는 수동으로 회전시켜 절단력 을 측정하는 구조이다. 모의연료봉 및 펀치가 절단 날 모듈의 하부까지 통과되는 길이가 약 420 mm 가 소요되므로 상. 하 스트로크는 420 mm 이상이 되도록 하였다. 또한 각각 모듈들이 안착 되도록 구성하였다. 로드셀의 용량은 100 kg- 1 Ton 규격을 선정하였고, 컨트롤러 RS232C가 내장 되어 있다.



(a) test slitter (b) blades and rods

Fig. 1. Test slitter, blade types and rods.

2.2 실험방법

모의연료봉 절단력 시험 기구에서 각각의 커팅 Cutting) 모듈들을 사용하여 단계별 절단속도에 변화를 주어 로드셀(BS-7220)에서 측정한 데이터를 RS232 통신을 사용하여 데이터 값을 나타내었다.

또한 커팅(Cutting) 모듈의 롤러 기울기에 변화를 주어 SUS와 Zry-4 튜브의 절개 정도를 육안으로 관찰하고 로드셀에서 측정한 데이터를 RS232 통신을 사용하여 획득하였다. Zry-4, SUS튜브이용 절개 시 절단 블레이드 간극 정도 측정하고, Zry-4 연료봉은 D 9.5 mm, SUS 316 연료봉은 D 9.55 mm를 사용하였다. 롤러기울기는 Fig. 2와 같이 조절 Plat를 사용하였다. 또한 연료봉 길이 250mm-Blank에 알루미늄 펠렛을 삽입하여 시험하고 최적 기울기 값 도출하고자 하였다.

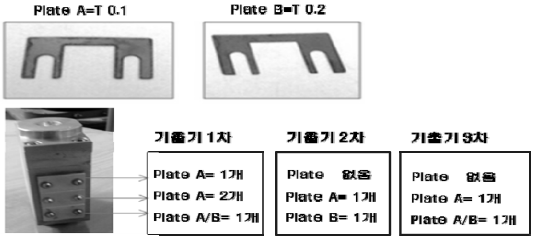


Fig. 2. Gradient variable of module using the plate.

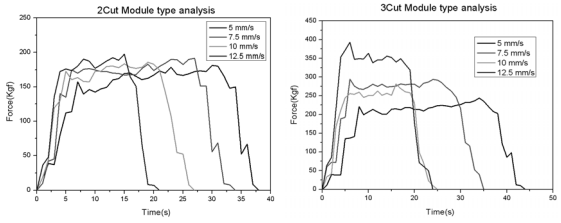
2.3 실험 결과 및 고찰

Fig. 3은 2 컷(Cut) 모듈과 3 컷 모듈을 사용하여 절개하였고, 실험 후 절개형상의 모습들이다.



Fig. 3. Slitting shapes of 2cut and 3cut modules.

Fig. 4에서 각각 모듈사용 시 5, 7.5, 10, 12.5 mm/s 로 속도변화를 주어 하중의 변화를 측정하였다. 측정한 결과, 속도가 증가함에 따라 하중도 증가하는 경향을 볼 수 있다. 따라서 적정한 속도에서의 하중을 찾는다면 2 cut 모듈은 5 mm/s에서 최고하중은 181.28 kgf, 3 cut 모듈은 10 mm/s에서 최고하중은 281.97 kgf 로 다른 속도에



(a) 2 cut (b) 3 cut

Fig. 4. Force(kg) variations on the each module.

비해서 낮음을 관찰할 수 있다. 또한 경사형 절개 탈피복 장치 성능평가에 있어서 Zry-4 튜브 + Al 펠렛을 사용하였고 2컷 모듈 날 기울기 #1은 200을 사용하였으며, 기울기 #2는 133을 사용하였다. 그 결과 기울기 #1은 연료봉 전후에서 절개 되지 않았으며, 기울기 #2 경우는 양호하게 절개되었다. Fig. 5는 제작된 경사형 탈피복장치이고, Fig. 6은 Al 로드컷의 절개결과 이며, Fig. 7은 종합 결과이다. 공히 커팅 종료시점에서 과도하게 절개저항이 발생되는 것으로 보아서 향후 절단 시 부하 방지 방안이 마련되어야 할 것이다.

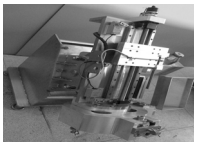


Fig. 5. Slant slitter for test.

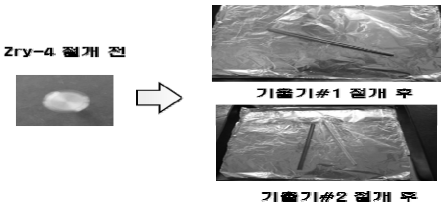


Fig. 6. Slitting results of Aluminum rod-cuts.

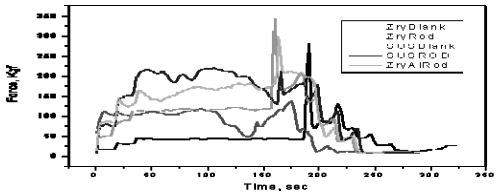
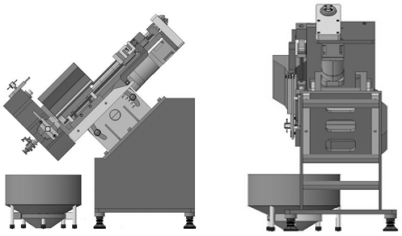


Fig. 7. Synthesis slitting results with various conditions.

2.4 경사형 절개탈피복 장치 공학 설계

상기 결과들을 반영하여 공학설계를 개선하였다. Fig. 8과 같이 및 스크루 압입부는 서보 모터에 의해 스크루에 힘이 전달되고, 로드셀및 펀치의 고정부가 하부로 작동되게 설계하였다. 하부에 설치된 절단 날 모듈은 연료봉이 통과 절단 될 때, 절단력을 측정하는 구조이며 스크류는 규격품인 TM 스크류 및 너트를 사용하였다. 모의연료봉 및 펀치가 절단 날 모듈의 하부까지 통과되는 길이가 약 420 mm 이상이 되도록 하였다. 양쪽에는 볼 부시(Ball Bush) 및 가이드 축)을 설치하여 중심을 잡아주며 외부의 간섭 없이 부드럽게 압입될 수 있도록 하였다.



(a) right (b) left

Fig. 8. Engineering design of slant slitter.

3. 요약

장치의 개념 설계를 위해서 모의연료봉과 절단력을 시험할 수 있는 기구를 제작하여 절단력을 측정하였다. 2 컷과 3 컷 모듈사용 시 12.5 mm/s의 속도변화에서 2 컷에서의 최고 하중은 197.5 kgf이고, 3 컷에서의 최고하중은 363.2 kgf이다. 본 절단력 시험을 종합해서 적정한 속도에서의 하중을 찾는다면 2 컷 모듈 경우 3 컷 모듈보다 절개 힘이 적게 소요되며, 12.5 mm/s에서 250 mm의 절단시간이 21 초로서 4 m연료봉을 5 분 안에 절단할 수 있다 그러나 2 컷 모듈의 경우 완전히 절개되지 않았다. 또한 사용전 스테인리스와 지르칼로이 튜브를 이용하여 사용후핵연료봉의 최적 절단을 위한 커팅모듈의 기울기 값을 도출하였다. 2컷 모듈 날 최적 기울기는 133으로 1날의 간극은 8.9 mm, 2날의 간극은 8.5 mm, 3날의 간극은 8.28 mm이었다. 상기의 모의 핵연료봉 탈피복 전단력과 최적 기울기 값을 고려하여 경사형 탈피복장치의 공학 설계를 수행하였다.

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.

폐 피복관 처리기술 선정

강권호*, 이창화, 전민구, 한승엽, 박환서, 안도희
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*nghkang@kaeri.re.kr

1. 서론

폐 피복관은 사용후핵연료의 재활용을 위해 핵연료 봉을 집합체로부터 인출하여 탈피복하는 과정에서 발생한다. 특히, 국내에서 추진하고 있는 파이로 공정에서 발생하는 폐 피복관은 핵연료물질 대비 약 24.5wt%[1]를 차지할 정도로 높은 비율을 가지고 있지만, 잔류 사용후핵연료, 핵분열생성물 침투, 피복관 소재의 방사화 등의 원인들로 인해 국내 분류기준으로는 중준위 폐기물, 미국 기준으로는 GTCC 폐기물로 분류되고 있다.[2] 이는 곧, 파이로 공정에서 발생하는 폐기물 중 상당부분을 폐 피복관이 차지한다는 것을 의미하는데, 이는 파이로 공정을 통한 폐기물 발생량 저감에도 부정적인 영향을 미치는 요소가 될 것이다.

한국원자력연구원에서는 폐 피복관 처리의 중요성을 인지하여 2010년부터 폐 피복관 처리기술을 연구하기 시작하였다. 폐 피복관의 특성과 기존에 개발된 처리기술을 분석하였으며, 국내 실정에 맞는 후보 처리기술을 선정하여 기초연구를 수행 중에 있다.

본 연구에서는 그동안 분석한 처리기술을 토대로 최적 처리방안의 도출에 대하여 기술하였다.

2. 본론

2.1 폐 피복관 처리기술 분석

폐 피복관 처리기술은 폐 피복관의 재료 특성과 방사화 특성에 따라 개발되었다. IAEA에서는 폐 피복관 처리기술을 압축과 같은 기계적 방법과 용융과 같은 열-기계적 방법 그리고 산화와 같은 화학적방법으로 분류하였다.

2.1.1 압축처리기술

폐 피복관의 적재밀도(1.0 MT/m^3)와 이론밀도(6.6 MT/m^3) 차이에 의한 공극율이 약 85%로서 감용을 위한 처리로서 압축 처리 기술이 개발되었다. 미-일 원자력에너지 공동 사업계획 보고서에 따르면 밀도 1 MT/m^3의 폐 피복관을 압축처리 할 경우 4.6 MT/m^3이상의 밀도를 얻을 수 있어 부피가 1/4.6 이상 감용될 수 있는 것으로 판단된다. 이로써 압축처리기술은 폐 피복관의 감용을 위한 기술로서 판단되나, 감량효과는 없다.

2.1.2 용융처리기술

용융처리기술 역시 압축처리기술과 같이 폐 피복관의 큰 공극을 채우기 위해 고안된 기술로서 용융 후 잉곳이 이론밀도의 100% 까지 얻을 수 있어 압축처리기술보다 감용효과가 크다. 용융처리시 폐 피복관의 부피는 1/6.6 까지 감용될 수 있는 것으로 판단된다. 이로써 용융기술 역시 압축처리기술과 마찬가지로 폐 피복관의 감용을 위한 기술로서 판단되나, 감량효과는 없다.

2.1.3 표면제염기술

PCI 현상에 의해 폐 피복관 내면의 산화층에는 TRU를 포함한 핵물질과 핵분열생성물이 침투되어 있다. 산화층의 취약함을 이용하여 산화층을 제거하면 폐 피복관을 저준위로 만들 수 있다는 가정하에 연구가 이루어졌다. 그러나 피복관 합금성분의 방사화로 인해 발생한 Co-60, Ni-59, Ni-63, Nb-94, Sb-125 등이 폐 피복관 전체에 분포되어 있어 표면제염에 의해 폐 피복관을 저준위로 만들기는 불가능하다.

2.1.4 용융 슬래그 제염기술

폐 피복관에 고착되어있는 산화핵물질들과 방사화 핵종들은 슬래그 형성재를 이용하여 슬래그 형태로 만든 후 핵물질을 제거하는 처리기술이 개발되었다. Co, Sr 및 Cs를 대상으로 한 기초 실험 과정에서 Cs의 경우 잉곳에 0~2%, 슬래그에 5~64%, 나머지 36~93%는 dust에 분배되었으며, Co의 경우 잉곳에 91~98%, 슬래그에 1~9% 존재하는 것으로 나타났다. 이로써 슬래그를 이용한 제염기술은 부정적으로 판단되었다.

2.1.5 화학적 처리 기술

화학적 처리방법은 Zr 금속의 높은 산화성 때문

에 장기저장 시 산화에 의한 화제발생 예방과 상변화에 의한 물성변화 등을 예방하기 위한 방법이다. 이 중, 산화처리 방법은 튜브 형태의 폐 피복관을 산화, ZrO_2의 분말형태로 변화시켜 고화처리하는 방법으로 loading 율을 고려할 때 압축이나, 용융에 비해 감용효과가 크지 않을 것으로 판단된다.

2.1.6 Zr 회수 기술

폐 피복관에는 Zr과 합금원소가 금속 상으로 약 90% 포함되어있고 Zr 산화물과 핵물질 및 방사화 물질 등이 약 10% 정도 포함되어있다. 이중 대부분을 차지하는 금속 상의 Zr을 제거할 경우 처리해야할 폐기물은 약 10% 정도만 남게 되어 90%의 감량효과를 볼 수 있다.

2.1.7 폐 피복관 처리기술 장단점 비교

Table 1은 폐 피복관 처리기술의 장단점을 비교한 것이다. 이처럼 여러 처리기술 중에서 압축, 용융기술이 당장 적용하기에는 가장 적합한 기술로 판단되나, 감량효과가 없다. 반면에 Zr 회수기술은 아직 검증은 안 되었으나, 감량 및 감용효과 및 자원 재활용에 의한 경제적 이득도 얻을 수 있을 것으로 판단된다.

2.2 Zr 회수기술 분석

Zr 회수기술은 염소화 공정을 이용한 기술과 전기화학적 방법을 이용한 기술이 개발 되고 있다.

염소화에 의한 Zr 회수기술은 다음의 간단한 반응을 통해 이루어진다. 이 때 반응 생성물로 발생하는 $ZrCl_4$는 331℃에서 승화되기 때문에 분리가 용이하다는 장점이 있다.

$$Zr + 2Cl_2 \rightarrow ZrCl_4 \quad (1)$$

전해정련을 이용한 Zr 회수 기술은 500~700℃의 용융염에서 다음과 같은 전기화학 반응을 통해 이루어진다.

$$\text{Anode: } Zr \rightarrow Zr^{n+} + ne^- \quad (2)$$

$$\text{Cathode: } Zr^{n+} + ne^- \rightarrow Zr \quad (3)$$

Zr 회수기술은 연구개발현황, 회수율/순도, 공정수, 원격성, Scale-up, Hot Cell 적용성, 처리속도, 안전성, 2차폐기물, 잔류물 특성, PR, 장치부피, 문제핵종처리 등을 평가항목으로 분석하였다.

Table 1. Characteristics of hull waste and treatment technologies

처리기술	관련특성	장단점
압축	•적재밀도가 낮고 공극율이 높음 ⇨적재밀도: 1 t/m^3 ⇨이론밀도: 6.6 t/m^3	•감용비가 큼 : 1/4.6 ⇨압축 후 밀도: 4.6 t/m^3 •감량 효과 없음
용융	•적재밀도가 낮고 공극율이 높음 ⇨적재밀도: 1 t/m^3 ⇨이론밀도: 6.6 t/m^3	•감용비가 큼 : 1/6.6 ⇨용융 후 밀도: 6.6 t/m^3 •감량 효과 없음
표면제염	•폐 피복관 내면에 PCI에 의해 산화막과 핵물질이 고착 또는 침투됨	•방사화 핵종이 피복관 전체 퍼져있어 제염효과 없음: Co-60, Ni-59, Ni-63, Nb-94, Sb-125
용융슬래그 제염	•폐 피복관 내면의 핵물질 및 방사화 핵종을 용융 슬래그로 층분리 후 처리	•일부핵종이 용융체에 남아 제염이 불가함 Cs: Dust, Co: Ingot, Sr: Slag
산화처리	•금속 Zr의 산화성이 높아 장기 저장시 산화우려가 높음	•안정화 효과 있음 •감량효과 없음 •감용비는 압축과 비슷
Zr 회수처리	•Zr : 90 %	•감용 및 감량비가 큼

연구개발 현황, Zr 회수율 및 순도, 처리속도 측면에서 염소화 처리기술이 더 유리한 것으로 판단된다. 따라서 KAERI에서는 전해정련보다 염소화에 집중하여 기술을 개발 할 계획이다.

3. 결론

Zr 회수기술은 높은 감량 및 감용효과를 얻을 수 있으며, 회수된 Zr의 재활용으로 경제적 이득을 얻을 수 있어 폐 피복관 처리를 위해서 적합한 기술로 판단된다.

4. 참고문헌

[1] K.H. Kang et al., "Dry Refabrication Tenchnology Development of Spent Nuclear Fuel", KAERI/RR-3436/2011, 2012.

[2] M. Nutt et al., "Information Basis for Developing Comprehensive Waste Management System - US-Japan Joint Nuclear Energy Action Plan Waste Management Working Group Phase I Report", FCR&D-USED–2010-000051, 2010.

[3] IAEA Tech. Report Seriess No. 258, 1985.

방사화 지르코늄 피복관 전해정련 3차원 전산모델링

박재영[1*], 최성열[2], 손성준[3], 김광락[4], 황일순[3]
[1]한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 과학로 62
[2]울산과학기술대학교, 울산광역시 울주군 언양읍 유니스트길 50
[3]서울대학교, 서울특별시 관악구 관악로 1
[4]한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
[*]jaeyeongp@gmail.com

1. 서론

방사화된 지르코늄 합금 피복관 내에는 방사화 생성물과 함께 피복관 내부로 침투한 악티나이드 원소와 핵분열 생성물이 함께 존재한다. 이들 방사성원소 중 우라늄을 포함한 악티나이드 원소에 의해 피복관은 IAEA 방사성폐기물 분류체계의 중준위 폐기물로 분류된다 [1]. 방사화 피복관으로부터 악티나이드 원소를 분리할 수 있다면 최종 처분 폐기물의 양을 감소시킬 수 있고 높은 순도의 지르코늄 금속을 회수할 수 있다면 원자력 산업에서 재활용하는 것도 가능하다. 본 논문에서는 전산모델링을 바탕으로 LiCl-KCl 용융염 기반 전해정련을 통한 방사화 피복관으로부터 악티나이드 원소 전착 없이 순수한 지르코늄 금속 회수 가능성을 확인하였다.

2. 본론

2.1 계산 방법

3차원 전산모델은 상용유체해석 코드를 바탕으로 전기장 및 전기화학 반응해석할 수 있도록 Fig. 1과 같이 해석 알고리즘을 작성하여 진행하였다. 유체해석 부분에서는 농도계산을 통해 전극 주변 확산층 두께 계산이 이루어지며 계산된 확산층 두께를 바탕으로 전기장 해석과 농도항이 추가된 Butler-Volmer 방정식을 통해 전극 위치별 국부적 전류밀도에 대한 계산이 이루어진다. 계산된 국부적 전류밀도는 다음단계의 유동해석 또는 전기장, 전기화학반응 해석을 위해 사용된다. 본 논문에서는 전기화학 반응해석에 초점을 맞추고자 확산층 두께는 Eisenberg 방정식을 사용하여 계산하였다.

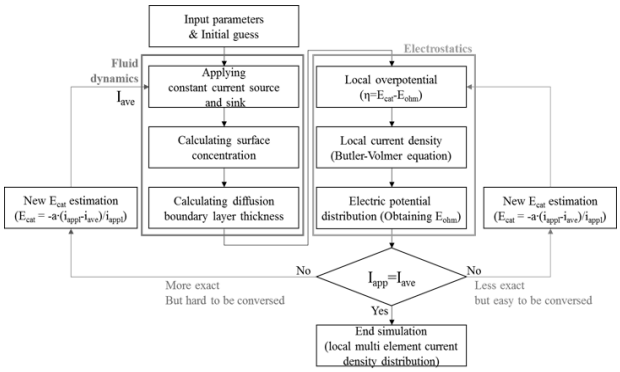


Fig. 1. Flow chart of Hydrodynamic-electrochemical simulation.

본 논문에서는 지르코늄과 우라늄을 고려하여 모델링이 수행되었으며 각 원소에 대한 산화환원 반응은 아래와 같이 정의하였다.

$$U^{3+} + 3e^- \leftrightarrow U \quad (1)$$

$$Zr \rightarrow Zr^{4+} + 4e^- \quad (2)$$

$$Zr^{4+} + 3e^- + Cl^- \rightarrow ZrCl \quad (3)$$

$$ZrCl + e^- \rightarrow Zr + Cl^- \quad (4)$$

2.2 모델링 대상

전해정련 모델링은 Fig. 2와 같이 높이 35 cm, 지름 80 cm의 전해정련로에 지름 25 cm, 높이 15 cm 음극과 전해정련로 벽면을 따라 세 개의 양극 바스켓이 위치한 구조를 대상으로 수행되었다. 전해정련로와 동심에 위치한 음극은 회전하고, 양극은 전해정련로 벽면에 고정되어 있는 상황이 가정되었다. 전해질은 LiCl-KCl-$ZrCl_4$(0.5wt%)로 설정하였으며 다양한 인가전류 변화와 음극회전속도에 따라 음극에 전착되는 지르코늄의 화학적 형태와 우라늄의 전착여부에 대해 모델링을 수행하였다.

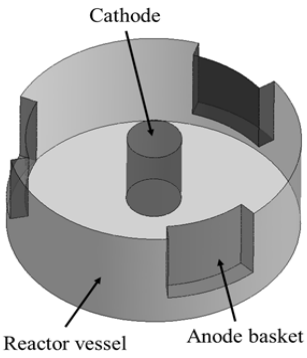


Fig. 2. Electrorefiner used in the computational modeling.

2.3 모델링 결과

전해정련로에 인가되는 전류의 크기에 따라서 ZrCl가 음극에 전착되는 구간, U이 전착되는 구간, U과 ZrCl 없이 금속형태의 지르코늄만 전착되는 구간이 Fig. 3에 나타난 바와 같이 나타났다. 인가전류가 충분히 높지 않은 경우에는 음극 전위가 충분히 내려가지 않아 Zr^{4+} 이온으로부터 생성된 ZrCl이 Zr 금속으로 완전히 환원되지 않아 음극에서 지르코늄 금속과 ZrCl이 함께 존재할 우려가 있는 것으로 나타났다. 반면 인가 전류가 과도하게 높은 경우에는 음극 전위가 낮아져 ZrCl은 모두 Zr 금속으로 환원되지만 동시에 우라늄이 함께 전착될 우려가 있다.

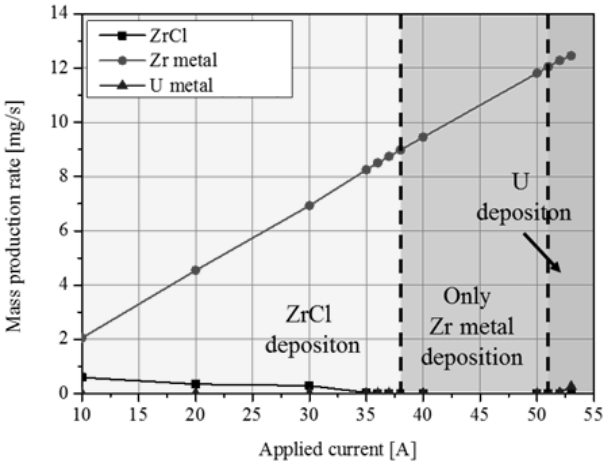


Fig. 3. Mass production rate of ZrCl, Zr and U according to applied current at cathode rotating speed of 100 rpm.

음극의 회전속도 변화에 따라 금속 지르코늄만 회수되는 전류영역이 변화하였다. 음극이 100 rpm으로 회전하는 경우에는 38 ~ 51 A의 전류영역에서 지르코늄 금속만 회수되었으며, 75 rpm에서는 17~43 A, 50 rpm에서는 11~32 A, 25 rpm에서는 7~20 A 전류영역에서 금속 지르코늄을 회수할 수 있는 것으로 나타났다. 음극 회전속도 증가에 따라 확산층의 두께가 얇아지면 높은 전류를 인가하여 전해정련로의 처리량을 늘릴 수 있지만 Zr^{4+}의 물질전달률 증가로 ZrCl의 생성률이 증가하여 생성되는 ZrCl을 Zr 금속으로 전부 변환하기 위해서 더 큰 전류가 필요하게 되어 금속 지르코늄만 전착시킬 수 있는 전류 영역이 좁아져 전해정련로 운영에 어려움이 있을 수 있다. 반면, 음극회전 속도가 낮은 경우 전해정련로의 처리량에 문제가 있을 수 있으므로 실제 전해정련로 설계 시에는 이에 대한 최적화가 필요하다.

3. 결론

3차원 전산모델링을 통해 LiCl-KCl-ZrCl4 용융염 기반 전해정련으로 방사화 피복관으로부터 지르코늄을 악티나이드 원소에의한 오염 없이 금속형태로 회수하는 것이 가능함을 확인하였다. 낮은 전류밀도에서는 지르코늄이 ZrCl의 형태로 전착되고, 높은 전류밀도에서는 지르코늄이 금속형태로 전착되지만 U이 함께 전착될 우려가 있다. 높은 순도의 지르코늄을 금속형태로 회수할 수 있는 전류 구간은 전해정련로의 형상 및 운전조건에 따라 바뀔 수 있으므로 실제 방사화 피복관에 대한 전해정련 설계 시에는 운전조건에 대한 검증이 필요하다.

4. 참고문헌

[1] IAEA, "Classification of Radioactive waste", IAEA, General Safety Guide No. GSG-1, 2009.

온도와 후프응력에 따른 수소화물재배열의 정량적 평가

김영준*, 김주성, 장정남
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*yjkim05@kaeri.re.kr

1. 서론

피복관 내 석출되는 수소화물의 방향은 피복관의 기계적 물성에 많은 영향을 미치게 되며 이에 따라 피복관 제조 시 압연과정을 통해 수소화물이 원주방향으로 석출되도록 유도한다. 하지만 건식저장 환경에서의 온도 상승과 문턱 응력(threshold stress) 이상의 후프응력이 가해질 경우 원주방향의 수소화물이 반경방향의 수소화물로 재석출 된다. 이러한 현상을 수소화물 재배열(hydride reorientation)이라고 한다. 반경방향의 수소화물은 피복관을 취화시켜 기계적 물성을 악화시키며 사용후핵연료 이송 중 캐스크 낙하 등의 사고에 악영향을 미치게 된다.

수소화물재배열은 온도, 후프응력, 열사이클 등에 영향을 받으며 이 때 발생한 반경방향 수소화물의 양과 길이는 기계적 물성에 미치는 영향의 크기를 결정한다. 반경방향의 수소화물을 평가하는 방법으로는 Fn(40), Fl(45), RHCF 등이 있다 [1,2,3].

본 연구에서는 지르칼로이-4 피복관을 대상으로 수소화물재배열 시험을 수행하였으며 온도와 후프응력에 따른 수소화물재배열 현상을 Fn(40)과 Fl(45) 지수로 평가하였다.

2. 시험 및 분석방법

2.1 수소화물재배열 시험

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 수소모사 시편을 제작하였다. 수소 모사된 250 mm 튜브 시편에 아르곤 가스를 가압하여 시편에 후프 응력을 가하였으며 표 1의 시험 조건에서 수소화물재배열 시험을 수행하였다. 시험이 종료된 후 광학현미경을 통하여 수소화물의 조직형태(morphology)를 관찰하였다. 또한 수소화물 재배열 시험을 수행하지 않은 시편(As-hydride)을 통해 수소화물재배열 시험 전후를 비교 평가하였다.

Table 1. Test condition

	Hydrogen content [ppm]	Temperature [℃]	Hoop stress [MPa]	Cooling rate [℃/min]
As-hydride	319±41		-	
90H400C	329±18	400	90-73	0.5
80H400C	299±27		80-66	
70H400C	339±17		70-54	
60H400C	280±9		60-49	
50H400C	326±27		50-39	
110H300C	358±20	300	110-89	0.5
100H300C	334±5		100-82	
90H300C	305±18		90-74	
80H300C	305±10		80-63	

2.2 수소화물 이미지 분석

본 연구에서는 Fn(40)과 Fl(45) 지수로 반경방향 수소화물을 정량적으로 평가하였다. 식(1)과 식(2)에 Fn(40)과 Fl(45) 지수를 각각 나타내었다. Fn(40)의 경우 15 μm 이상의 수소화물 중 50°~90° 사이의 수소화물을 반경방향 수소화물로 정의하였으며 Fl(45)의 경우 길이와 상관없이 45°~90° 사이의 수소화물을 반경방향 수소화물로 정의하였다.

$$Fn = \frac{\sum Number\ of\ hydrides\ in\ radial\ direction \pm 40^\circ}{\sum Number\ of\ total\ hydrides} \quad (1)$$

$$Fl = \frac{\sum Length\ of\ hydrides\ in\ radial\ direction \pm 45^\circ}{\sum Length\ of\ total\ hydrides} \quad (2)$$

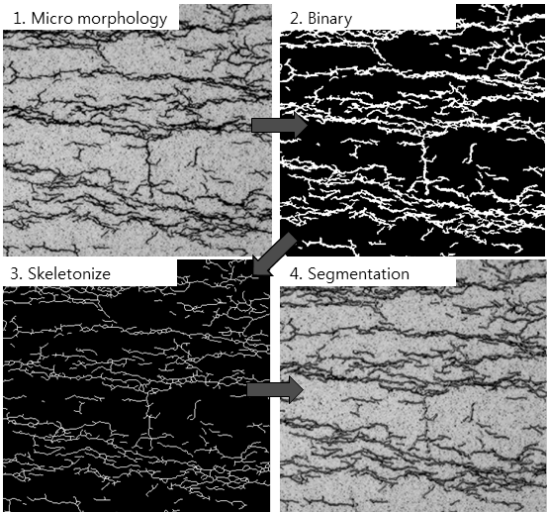


Fig. 1. Image analysis procedure.

정량적인 수소화물 평가 시 평가자에 따른 차이를 없애고 재연성 있는 데이터 확보를 위해 자체 제작한 수소화물을 분석 프로그램을 사용하였다. Fig. 1과 같이 광학현미경을 통해 관찰한 사진을 이진화(Binary), 골격화(Skeletonize) 과정을 거친 후 앞서 정의한 수소화물 기준에 따라 분류하였다.

3. 시험결과 및 분석

광학현미경을 통해 시편의 조직 형태를 관찰하고 수소화물 분석 프로그램을 통해 분석한 결과를 Fig. 2와 Fig. 3에 나타내었다. 수소화물의 양과 길이를 나타내는 지표인 Fn(40)과 Fl(45) 모두 후프응력이 증가할수록, 온도가 증가할수록 반경방향 수소화물의 개수과 길이가 증가하는 것을 볼 수 있었다. 400℃와 300℃에서의 수소고용도는 각각 209 ppm 과 76 ppm으로 온도가 증가할수록 기지 내 용해 가능한 수소의 양이 증가한다. 주로 반경방향으로 재석출되는 수소화물은 기지 내 용해 되어있는 수소들로 온도가 증가할수록 반경방향으로 석출가능한 수소화물의 양이 증가한다는 것을 의미한다. 후프응력에 의해 지르코늄 합금 구조(HCP) 내 석출되는 면의 위치가 바뀌게 되어 원주방향 수소화물들이 재석출 시 반경방향의 수소화물로 석출된다. 이와 같이 후프응력은 반경방향의 수소화물을 석출시키는 추진력(driving force) 역할을 하며 따라서 후프응력이 증가할수록 반경방향의 수소화물의 양과 길이가 늘어나게 된다.

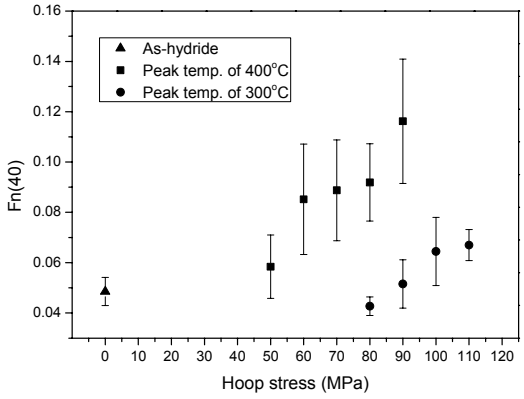


Fig. 2. Fn(40) versus hoop stress.

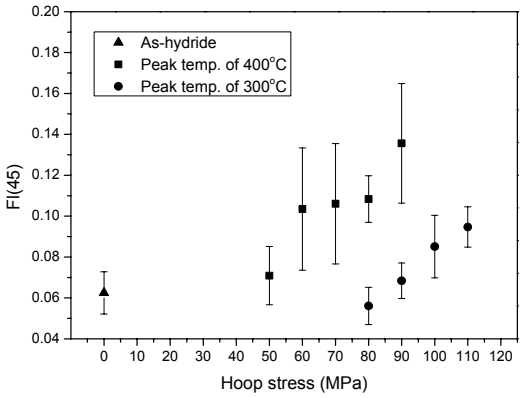


Fig. 3. Fl(45) versus hoop stress.

4. 결론

본 연구에서는 지르칼로이-4 피복관을 대상으로 수소화물재배열 시험을 수행하였으며 온도와 후프응력에 따른 수소화물재배열 현상을 Fn(40)과 Fl(45) 지수로 평가하였다. 시험수행 결과 온도와 후프응력이 증가할수록 반경방향의 수소화물의 길이와 양이 증가하였다.

5. 참고문헌

[1] ASTM B811-02, Standard Specification for Wrought Zirconium Alloy Seamless Tubes for Nuclear Reactor Fuel Cladding.

[2] 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.

[3] 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, 431-448, 2013.

파이로시설 예비개념설계를 위한 안전조치 격납/감시시스템 설계요건 개발

조광호*, 안성규, 박세환, 박근일
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*jokh@kaeri.re.kr

1. 서론

시스템 엔지니어링에서는 합리적이고 올바른 요건 도출에 대한 명확한 정의 정립이 중요하다. 그렇지 않을 경우 설계 과정에서 잦은 변경이 발생할 가능성이 있으며, 결과적으로 비용 증가 및 일정 지연을 초래할 수 있다. 설계 변경시의 오류 발생 원인으로 초기 요건이 잘못 정의되었거나 불완전한 경우가 30%나 차지한다[1].

사용후핵연료의 독성 및 부피감용을 통한 사용후핵연료 누적문제를 해결하고 방사성폐기물의 효율적 관리 방안 기술의 하나로서 파이로 공정 개발 연구가 활발히 진행되어 왔다. 파이로 공정은 추후 2025년 실증 규모의 시설 건설을 목표로 하고 있으며, 시설 구축을 위한 예비개념설계를 2016년까지 완료할 계획이다. 이러한 설계에는 공정장치 및 시설구조 설계는 물론 안전조치시스템을 포함한다. 본 연구에서는 안전조치시스템을 구성하는 한 요소인 격납/감시시스템 설계를 위한 요건을 개발하고자 하였다.

2. 본론

2.1 요건 도출 과정

예비개념설계는 시설 설계에 영향을 주는 인자를 생산하여 상호 설계에 반영 및 조정 절차를 통해 진행되어야 한다. 먼저 격납/감시시스템 요건으로서 성능요건 및 설계요건 초안을 도출하기 위해 시스템의 명확한 정의를 내리고, 기존 유사시설의 격납/감시시스템 적용사례 및 적용 가능한 신기술을 분석하였다.

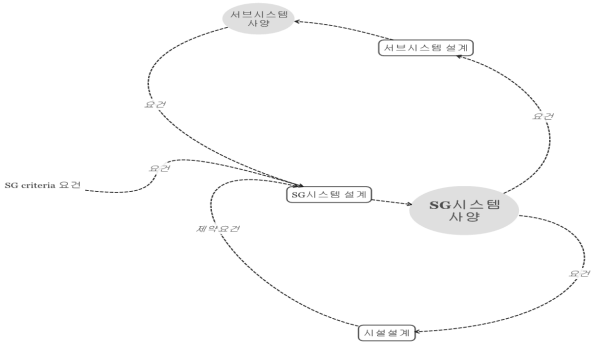


Fig. 1. Feedback procedure between safeguards system, sub-system and facility designer.

2.2 격납/감시 시스템 정의 및 평가

시설에 대한 전통적인 안전조치 수단은 핵물질 계량을 기본으로 하고 격납/감시시스템에 의해 보완된다. 격납과(또는) 감시 수단의 조합으로 모든 가능성 있는 전용경로를 보장(포함) 해야 한다

격납/감시시스템에 대한 검증평가는 '긍정적 확정', '부정적 확정', '불확정'으로 나누어진다. 평가 결과에 따라 대상 핵물질의 재측정 여부가 결정될 수 있다. 단일 또는 이중 격남/감시(다음절 참조) 장비의 경우 다음과 같이 정리 할 수 있다.[2]

1) (이중의 경우 두 개 모두) '긍정적 확정' → 더 이상의 조치가 필요 없음
2) (이중의 경우 한 개라도) '불확정' → 파손이 의심되며 추가검토 후 경우에 따라 재측정
3) (이중의 경우 한 개라도) '부정적 확정' → 재측정

2.3 단일 · 이중 격납/감시

격납/감시 시스템은 하나(단일 격납/감시)의 장치를 설치하는 방식과 중복을 목적으로 유사 장치로 보강 될(이중 격납/감시) 수도 있다[2]. 앞 절에서 언급한 검증평가 시 이중 격납/감시는 결과에 대한 신뢰를 증가시키고 추가적인 재검증의 필요를 감소시킬 수 있다. 따라서 일반적으로 핵물질의 검증을 위한 접근이 어려운 지점(difficult- to-access, DTA)에 적용된다. 접근난이지점(DTA)에 대한 정확한 정의는 명확히 규정되어 있지 않으나 관련 문헌을 참고하면 아래와 같은 예를 들 수 있다[3].

- 용접된 용기에 조사된 연료가 담겨 있는 경우
- 일반 장비로 핵물질을 이동시키는데 어느 정도 시간이 걸리는 경우(4시간 이상[4])
- 핵물질이 사용되거나 저장된 환경
- 방사선으로부터 위험 조건인 경우

2.4 로카쇼무라 재처리시설 격남감시 적용 사례

대표적인 사용후핵연료 핵물질 취급시설인 로카쇼무라 재처리시설에 적용된 격납/감시시스템 사례를 분석함으로써 설계요건 개발 및 설계 시 참고할 수 있을 것이다. Table 1에 일부 적용 장소 및 대상물질을 예제로서 정리하였다.

Table 1. Locations and subjects for C/S measure at Rokasho Reprocessing Plant (partial as example)

MBA	설치장소	감시대상
MBA1	사용후저장조 전체를 조망할 수 있는 위치에 여러 대의 카메라를 설치하여 집합체의 모든 이동을 감시한다.	반입반출과 관련한 크레인과 사용후 연료 집합체 움직임
MBA5	물질저장시설 전체를 조망할 수 있는 위치에 여러대의 카메라를 설치하여 물질저장컨테이너의 모든 이동을 감시한다.(컨테이너의 ID는 iPCAS로 확인할 수 있도록 한다.)	반입반출과 관련한 크레인과 저장컨테이너의 움직임

2.5 격납/감시 시스템 요건 도출 예

앞서 기술한 내용을 바탕으로 요건 분류에 따라 Table 2와 같이 상위레벨의 격납/감시시스템 요건을 도출하였다. 파이로 시설설계가 구체화되고, 이에 맞추어 격납/감시시스템 설계를 위한 세부요건을 계속 구체화 시킬 계획이다.

Table 2. Example of high-level requirement for C/S system

요건분류	요건
기능	• 단일·이중 격납/감시시스템을 적용하여 핵물질에 대한 정보의 연속성 유지 • 모든 전용경로를 포함
성능	• 감시: 전체 감시기간 동안 광학 감시장치의 프레임 간격이 전용물질 이동에 필요하다고 간주한 시간보다 짧음 • 봉인: 핵물질이 안전하게 봉인될 수 있록 보장(봉인을 제거할 수 없고 흔적 없이 다시 붙일 수 없도록)
검증	• 사찰관에 의해 건전성 검증이 가능함
설계	• 손상 또는 실수로 인한 손상으로부터 와이어와 봉인구성 부품의 보호 • 적용과 봉인의 제거가 용이하도록 부착점으로의 접근(구멍, 와이어통로 등)

2.6 IAEA 격납/감시 신기술 개발 현황

세부요건을 좀 더 명확하게 도출 하고자, 요건 개발과 함께 시스템 설계 시 적용 가능한 기술 조사를 병행하였다. 그 일례로서, IAEA는 초창기에 많이 이용하던 금속봉인 장치가 관리의 어려움과 현장에서 판독 검증할 수 없는 점을 고려해 다음과 같은 대체 봉인장치를 개발 중에 있다.

- 유리 봉인(Glass Seal) - 기존 봉인장치가 검증을 위해 봉인 제거, 판독, 재설치가 필요한 반면, 한 번 봉인 후 여러 차례 검증확인이 가능
- 원격모니터 봉인배열 – 물질이동에 사용하는 운반용기나 주요 장비의 핵심 파트에 봉인을 적용, 원격으로 검증 · 분석 가능

파이로의 격납/감시 적용 지점을 고려할 때 상기 기술들은 적용성이 높을 것으로 판단되며 세부요건 개발에 참고할 수 있을 것이다.

3. 결론

종합파이로시설의 안전조치접근방안 중 하나인 격납/감시 시스템 요건 도출을 중에 있다. 격납/감시 시스템을 적용함에 있어, 단일 격납/감시 시스템을 기본으로 설계하는 것으로 하되, DTA로 판단되는 곳은 이중 격납/감시 시스템을 적용하고자 한다. 추후 파이로 시설설계의 구체화에 따라 격납/감시 시스템의 위치, 공간에 따른 요건, 핫셀 내부에(내방사선) 격납/감시 시스템 설치를 위한 요건 등 세분화된 요건을 도출할 계획이다.

4. 감사의 글

이 연구는 2015년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행되었다 (원자력기술개발사업, NRF-2012M2A8A5025947).

5. 참고문헌

[1] 민성기, 권용수, "시스템엔지니어링 원론", 2004.
[2] Darryl D. Drayer, Cecil S. Sonnier, Dennis L. Mangan. Frank Walford, "Redundant and Independent Containment and Surveillance System", SAND90-0806.
[3] G.J. HEALEY, J.A. LARRIMORE, Dual Containment and Surveillance Difficult-to-access designation, IAEA-SM-333/185, 1994.
[4] A. Fattah, N. Khlednikov, International Safeguards aspects of Spent-fuel disposal in permanent geological repositories, IAEA Bulletin, 1/1990.

사건수목을 이용한 파이로시설의 안전성 분석 방안

서석준*, 문성인, 정원명, 유길성, 구정회, 이효직
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*sjseo@kaeri.re.kr

1. 서론

제 255차 국가 원자력위원회에서 "미래 원자력 시스템 개발 장기 추진계획"이 의결됨에 따라 2025년까지 종합 파이로 건식처리 공정(KAPF, Korea Advanced Pyroprocess Facility)의 건설을 목표로 한 준비가 이루어지고 있다[1]. 핵물질을 취급하는 파이로시설에 있어서 안전의 문제는 가장 중요하게 고려되어야 할 요소 중의 하나임에 틀림 없다. 기존의 파이로시설과 관련된 안전연구는 주로 결정론적 안전성 분석(DSA, Deterministic Safety Analysis)의 관점에서 진행이 되어졌으나, 2011년 후쿠시마 원전사고 이후로 안전에 대한 경각심이 커짐에 따라 2014년 개정된 DOE-STD-3009에서는 확률론적 리스크 분석(PRA, Probabilistic Risk analysis)에 대한 고려를 핵주기 시설에 대해서도 수행하도록 요건이 강화되었다[2]. 하지만 국내에서는 미국 INL(Idaho National Laboratory)의 FCF(Fuel Cycle Facility)와 같이 실제 핵물질을 이용하여 운전을 수행한 시설이 없기 때문에 현시점에서 국내의 핵주기시설에 대한 PRA를 수행하는 것은 쉽지 않은 일이며, 또한 PRA의 수행을 위한 비용, 연구능력 및 전문가 수급 등에 대한 부분도 충분하지 않은 상황이다.

미국 NRC(Nuclear Regulatory Commission)에서는 관련 시설의 공정, 장비, 구조, 작업자 활동 등의 안전성 확보를 위하여 통합 안전성 분석(ISA, Integrated Safety Analysis)을 수행하고, 시설의 인허가 시에 평가 내용을 제출하도록 하고 있다. 총 12가지 방식의 위해성 평가 방법은 다시 3가지 그룹으로 나누어 분류할 수 있다[3]. 첫째, Safety Review, Checklist Analysis, Relative Ranking, Preliminary Hazard Analysis, 그리고 What-If Analysis는 위해성에 대한 광범위한 확인 및 개괄적인 파악에 있어 유용하다. 둘째, What-If/Checklist Analysis, Hazard and Operability Analysis(HAZOP), Failure Mode and Effects Analysis(FMEA)의 세 가지 방법들은 광범위한 위해 요소의 구체적인 분석에 적합한 것으로 알려져 있다. 마지막으로, Fault Tree Analysis, Event Tree Analysis, Cause-Consequence Analysis, Human Reliability Analysis 등의 네 종류의 방법들은 특정한 사고들에 대해 심층적인 분석을 하는 데에 유용하며 정량적인 리스크 분석에 유용하게 적용이 될 수 있다. 이 중 Fault Tree와 Event Tree는 다발성 오류 사고시나리오에 있어서 사고의 순차적인 진행과 안전 관련 항목(IROFS, items relied on for safety)의 기능에 대한 내재적 역할을 가시화 할 수 있다고 알려져 있다.

이 연구에서는 파이로 핫셀시설의 여러 사고시나리오 중에서 화재발생과 관련된 사건수목(Event Tree)을 분석하여 제안하였고, 이러한 시나리오에 대응하는 IROFS를 고려하여 해당 사건의 순차적인 진행 사항에 대해서 분석을 하였다.

2. 본론

2.1 파이로 핫셀시설 예비초기사건

KAERI에서 수행한 기존의 연구에서 예비초기사건 8가지에 대해 선정을 하였고 아래와 같다[4].

1) 사용후연료 저장볼트에서 연료 인출 시 크레인의 기계적 결함 또는 작업자 실수로 인한 사용후연료집합체 10 m 낙하 사고

2) 분말화 장치 압력조절 기기의 고장으로 인한 장치내 압력상승으로 사용후연료 분말화 조성물 전체 누출사고

3) VPF Off-gas 배출관 파단으로 인한 VFP 누출사고

4) 액화질소 공급시스템 고장에 따른 Xe/Kr Retention 탱크 기능상실로 인한 Xe/Kr 누출 사고

5) Ar 배기계통 과압방지 장치의 오작동으로 인한 외부공기 유입에 따른 불활성 분위기 상실로 U 금속 화재사고

6) Cl_2 공급탱크와 Glove Box간의 배관 파단으로 인한 공급 Cl_2 누출사고

7) Cd 증류조의 상부프랜지 체결상태 불량 시 Cd 증류운전 수행으로 인한 Cd 미세분말 비산사고

8) Ar 공급계통에서 누설로 인한 작업 구역 산소 농도 저하사고

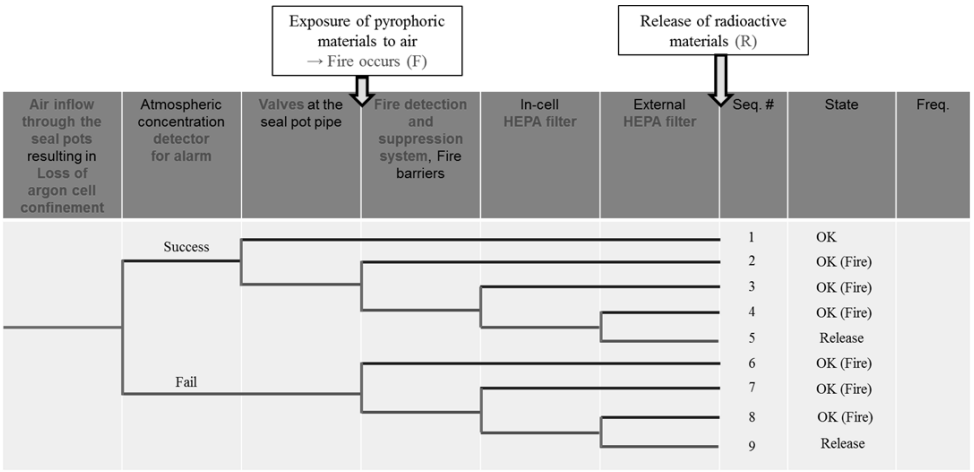


Fig. 1. An event tree based on one of the preliminary initial events selected by KAERI from the studies of accident scenarios.

2.2 사건수목을 이용한 분석

총 8 가지의 예비초기사건들 중에서 5) Ar 배기계통 과압방지 장치의 오작동으로 인한 외부공기 유입에 따른 불활성 분위기 상실로 U 금속 화재 사고를 사건수목에 따라서 분석을 하였다. 외부공기가 배기계통 압력조절장치인 seal pot을 통하여 유입이 된다고 가정을 하였을 때, Fig. 1과 같은 사건수목을 구성할 수 있다. 기본적인 기능상 seal pot을 통해서는 외부공기가 유입될 수 없는 구조이지만 오작동 등의 영향을 가정하여 고려한 것임을 알아야 한다.

먼저 외부의 공기가 유입되면 핫셀 내부의 공기 농도 측정기를 통해서 외부공기 유입이 감지가 된다. 즉, 최대 15 ppm 정도의 산소 농도를 유지하도록 되어 있는 핫셀 내부에서 산소 농도의 증가로 인한 경보가 울리게 된다. 이 때, 운전원 조작 혹은 안전시스템을 통하여 유입경로의 밸브가 차단되면 사건의 전파는 차단이 된다(seq.#1). 만일 경보가 울렸음에도 밸브의 차단이 이루어지지 못하여 산소농도가 4%에 이르게 되면 발화성 물질에 화재가 발생할 수 있다. 이 때, 화재 진화 장비나 방화벽 등에 의해 화재가 진화되면 더 큰 영향으로의 화재전파가 차단되어 대중에 대한 영향은 안전한 상태를 유지할 수 있다(Seq.#2). 비록 화재 진화 장비나 방화벽 등이 제 역할을 하지 못한다 하더라도 내,외부 HEPA 필터가 방사능 물질의 외부유출을 방지하면 외부로의 영향 역시 제한적이라 성공적이라 할 수 있다(Seq.#3 & #4). 따라서 내,외부 HEPA필터가 최종 방사능물질 유출을 차단시키지 못하게 되는 상황(Seq.#5)에 대해서는 별도의 추가적인 IROFS에 대한 고려가 필요할 것이다.

외부공기가 유입되었을 때 산소농도에 대한 경보장치나 밸브조작 등의 조치가 없더라도, 화재발생에 대한 적절한 조치가 준비되어 있고 내,외부 HEPA필터들이 제 역할을 해준다면 역시 외부에 별다른 영향은 없을 것으로 판단된다(Seq.#6, #7 & #8). 하지만 이 경우에도 HEPA필터는 최종적으로 건전성을 유지해야 할 것이며 그렇지 못한 경우의 발생 빈도와 주변환경으로의 영향에 대한 조사가 필요할 것이며, 이에 따른 IROFS의 적용 여부에 대한 검토가 필요할 것이다(Seq.#9).

3. 토의

예비초기사건에 대한 사건수목의 구성을 통해 초기사건의 전파에 대해 면밀한 분석이 가능함을 알아보았다. 이러한 분석을 통해 핵심적인 사건에 대해 심도 있는 분석을 진행하는 한편, IROFS의 기능과 필요성을 파악하며, 향후 핵주기시설의 PRA연구에도 용이하게 사용될 수 있을 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

[1] 파이로 일관공정 시험시설(PRIDE) 설계보고서, KAERI/TR-4132/2010.

[2] Preparation of Nonreactor Nuclear Facility Documented Safety Analysis, DOE-STD-3009 (2014), U.S. DOE.

[3] Integrated Safety Analysis Guidance Document, NUREG-1513, U.S. NRC.

[4] 서석준, 문성인, 정원명, 유길성, 구정회, 김호동, "모듈형 구획을 이용한 파이로 핫셀시설 안전성 향상", 한국방사성폐기물학회 2014 추계학술발표회 논문요약집, 12(2), 133-134, 10.15~17, 2014, 여수.

파이로 안전조치를 위한 준실시간 계량관리 시스템 적용 방안 연구

원병희*, 신희성, 안성규, 한보영, 박세환, 박근일
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*wonbh@kaeri.re.kr

1. 서론

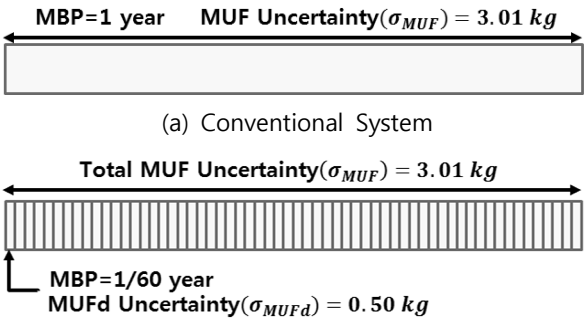
준실시간 계량관리(Near Real Time Accountancy, NRTA) 시스템은 재처리시설에서 핵물질 전용이 발생하였을때 전용 시점과 전용된 핵물질 양을 탐지하기 위해 개발된 안전조치 시스템이다. 핵물질 전용 여부를 판단하기 위하여 기존 계량 시스템이 물질수지기간(Material Balance Period, MBP) 동안 미계량물질(Material Unaccounted For, MUF) 및 MUF 불확도 평가를 수행하는 것과 달리, NRTA 시스템은 동일한 기간에 대하여 주기적으로 MUF 및 불확도 평가를 수행한다. 기존 안전조치 방안처럼 한번의 MUF 평가를 통하여 핵물질 전용을 판단하는 것보다 연속적인 MUF 평가를 통해 핵물질 전용을 판단하는 것이 탐지 성능에 이점을 갖는다.

본 연구에서는 가상 파이로 시설에 NRTA 시스템을 적용하였을 경우, 기존 핵물질 계량 시스템과 성능 차이를 파악하기 위하여 비교 분석을 수행하였다. 또한, 이를 통해 파이로 시설의 안전조치를 위한 NRTA 적용 필요성 및 방안에 대해서 논의를 수행하였다.

2. 본론

2.1 가상 파이로 안전조치 모델 구축

기존 핵물질 계량 시스템과 NRTA 시스템의 성능 평가를 위하여 가상 파이로 시설을 모델링하였다. 가상 파이로 시설은 1 년간 처리되는 핵물질(Pu) 양을 348 kg으로 설정하였으며, 정상 운전 중 해당 MBA 내의 재고 핵물질 양은 3.5 kg으로 설정하였다. 그에 적합한 핵물질 계량 시스템 및 NRTA 시스템을 가상으로 구축하였다. Fig. 1은 기존 핵물질 계량 시스템으로 구축한 가상 파이로 시설과 NRTA 기반 시설에서의 MBP 및 MUF 불확도 결과를 나타낸다. 두 개의 안전조치 시스템은 1 년간 총 MUF 불확도가 동일하나, 물질수지기간에서 차이를 보인다. 기존 안전조치 시스템이 1 년 동안 한번의 MUF를 평가하는 반면, NRTA 기반의 안전조치 시스템은 총 60번의 MUF 평가를 수행하며 각각의 MUF 불확도는 0.50 kg 이다. 즉, 기존 방안의 경우에는 1 년간 입력 및 출력되는 핵물질 계량과 2번의 재고 물질 계량이 요구되며, NRTA 시스템은 입력 및 출력 핵물질의 계량뿐만 아니라, 매 MBP 마다 MUF 평가를 위해 총 61번의 재고물질 계량을 수행한다.



(a) Conventional System

(b) NRTA System

Fig. 1. MBP and MUF Uncertainty in Imaginary Pyroprocessing Facility.

2.2 핵물질 전용 탐지 알고리즘 구축

핵물질 전용 여부를 판단하기 위해서는 탐지 알고리즘이 요구된다. 기존 핵물질 계량 시스템의 경우에는 Fixed-length Hypothesis Test[1]를 기반으로 핵물질 전용 여부를 판단한다. 본 알고리즘은 오경보 확률(False Alarm Probability, FAP)이 0.05가 되는 4.96 kg을 threshold로 설정하였다. 즉, 1 년의 물질수지기간 동안 평가된 MUF가 4.96 kg 이상이면 핵물질 전용이 발생하였다고 판단하고, threshold 이하이면 전용이 발생하지 않았다고 판단하다. NRTA 시스템을 적용한 경우에는 Fixed-length Hypothesis Test를 그대로 적용하게 되면 전용 탐지 성능 저하가 나타나기 때문에 Sequential Probability Ratio Test(SPRT) 기법을 적용하여 핵물질 전용 여부를 판단하였다. 본 알고리즘은 각각의 MBP에서의 CUMUF(Cumulative MUF)와 식 1을 토대로 설정된 threshold를 기준으로 전용 여부를 판단하고, 마지막 MBP까지 전용이 결정되지 않으면 4.96 kg의 threshold를 기준으로 전용 여부를 판단하는 알고리즘이다. 해당

기법은 JAMES P. SHIPLEY가 제안한 알고리즘[1]을 기반으로 구축하였다.

$$ZU = \frac{n\mu_1}{2} + \frac{\sigma_c^2(n)}{\mu_1} ln(\frac{1-\alpha}{\alpha}) \quad (1)$$

여기서, $n = Nmber of MBP$

$\alpha = FAP(0.05)$

$\sigma_c^2(n) = CUMUF$

$\mu_1 = 2k_\alpha \frac{\sigma_c(N)}{N}$ $(N=60,\ k_a=1.65)$

2.3 핵물질 전용 탐지 성능 평가 결과

핵물질 전용 탐지 성능 평가 및 비교를 위하여 다양한 핵물질 전용 시나리오를 구축하였다. 본 연구에서 적용된 전용 시나리오는 특정 MBP 기간 동안 동일한 양의 핵물질을 전용한다. 1 년간 전용된 총 핵물질 양(total diversion mass)이 동일한 경우 전용이 발생하는 MBP 기간이 짧을수록 MBP 당 핵물질 전용량이 증가하는 시나리오다.

Fig. 2는 3 가지의 전용 시나리오에 대하여 전용된 총 핵물질 양에 따른 전용 탐지 확률을 나타낸다. 전용 시나리오 1은 1부터 60 MBP 동안 동일한 전용을 발생한 경우이고, 시나리오 2는 16부터 45 MBP까지 동일한 핵물질 전용, 시나리오 3의 경우에는 26부터 35 MBP까지 전용을 나타낸다.

그림에서 보듯이, 핵물질 전용이 없는 경우(total diversion mass= 0 kg), 탐지 확률은 해당 시스템의 오경보 확률을 나타낸다. 기존 핵물질계량 시스템은 1 년 동안 한번의 MUF만 평가하기 때문에 전용 시나리오에 관계없이 오직 전용된 총 핵물질 양에 따라 전용 탐지 성능이 결정된다. 또한, 전용 탐지 시점은 핵물질 전용 발생 시점과 무관하게 1 년 이후 MUF가 평가되는 시점이다. 반면, NRTA 시스템을 적용한 안전조치 시스템의 경우에는 핵물질 전용 시나리오에 따라 탐지 확률이 다르게 나타났다. 그림에서 보듯이, 전용 시나리오 1의 경우에는 기존 시스템의 탐지 성능과 비슷한 경향을 보이지만 전용 기간이 짧은 시나리오 2와 3의 경우에는 핵물질 전용 탐지 성능이 향상되는 것을 확인 할 수 있었다. 그리고 전용 시나리오 1의 경우, 기존 시스템과 NRTA 시스템의 탐지 성능이 거의 동일하게 평가되었지만 전용 시점을 기준으로 본다면 NRTA 시스템이 기존 방안보다 전용 여부를 빠른 시간 안에 탐지 가능하다. 즉, 기존 시스템의 경우에는 전용 여부 판단 시점이 1년 이후인 반면, NRTA 경우에는 약 60 번의 MUF 평가가 짧은 주기로 연속적으로 수행되기 때문에 적절한 시점에서 전용 탐지가 가능하다.

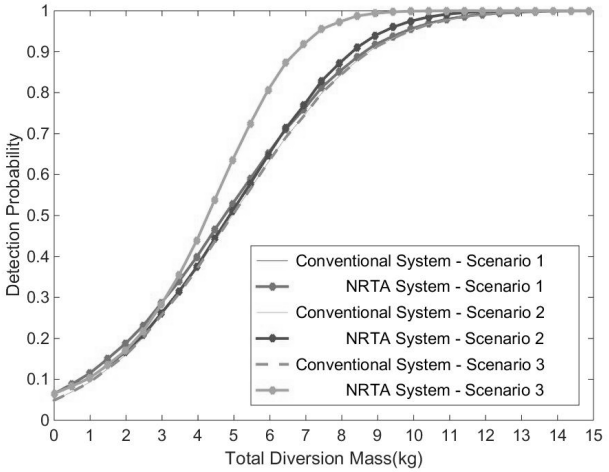


Fig. 2. Detection Probability according to Diversion Mass.

3. 결론

본 연구에서는 가상 파이로 시설을 대상으로 NRTA 시스템을 적용한 경우와 기존 핵물질 계량 시스템을 적용한 경우에 대하여 핵물질 전용 탐지 성능 분석 및 비교를 수행하였다. NRTA 시스템은 핵물질 전용이 발생하였을 때 기존 시스템보다 적절한 시점에서 전용 여부 판단이 가능하며, 다양한 전용 시나리오에 대하여 기존 시스템과 동일하거나 향상된 탐지 성능을 보이는 것을 확인하였다.

본 연구에서 적용한 SPRT 기법뿐만 아니라 NRTA 시스템에 적용 가능한 다양한 핵물질 전용 탐지 알고리즘이 있다. 따라서 추후 다양한 전용 탐지 알고리즘을 사용하여 NRTA 시스템 성능 개선 및 파이로 안전조치 분석용 시뮬레이션 프로그램에 적용 및 평가를 수행 할 예정이다.

4. 감사의 글

이 연구는 2015년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행되었다 (원자력기술개발사업, NRF-2012M2A8A5025947).

5. 참고문헌

[1] J.-P. SHIPLEY et al., MATHEMATICAL AND STATISTICAL METHODS IN NUCLEAR SAFEGUARDS, Ispra Courses on Nuclear Engineering and Technology, 1981.

공학규모 파이로 일관공정 시험시설 운영

조일제*, 장영국, 노선호, 강희석, 송대용, 안도희
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*hyilje@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에서는 공학규모 파이로 기술 검증을 위한 공학규모 파이로 일관공정 시험시설인 PRIDE시설(PyRoprocess Integrated inactive DEmonstration facility)의 구축 목적인 파이로 일관공정 실증을 지원하기 위해 아르곤셀 내부의 불순물 농도와 온도, 압력 등을 제어하여 공정 실험에 필요한 실험 조건 유지와 공정장치 운전 지원과 관련한 아르곤 셀장치 및 아르곤셀 운영설비의 성능시험을 수행하였다. 이 중 본 연구에서는 PRIDE 시스템 운전시험 및 개선사항에 대한 주요 결과 및 운영 경험에 대해 간략하게 기술하고자 한다.

2. PRIDE 시스템 운영

2.1 아르곤셀 운영 성능

PRIDE 셀장치들은 대부분 아르곤셀과 공기셀과의 경계면에 위치하므로 기밀 성능 평가가 공통적으로 수행되었으며, 아르곤셀 내부의 셀장치들에 대해서는 원격 운전 및 원격 유지보수에 대한 성능이 평가되었다. 그리고 대형장치 이송시스템 및 소형장치 이송시스템의 경우, 공정장치 및 공정물질의 반출입 과정에서 아르곤셀의 불순물 농도 증가를 최소화하기 위한 퍼징시스템의 성능에 대한 평가를 수행하였다. 성능 평가 결과를 바탕으로 각 셀장치들의 원격 운전성 및 유지보수성을 개선하였으며, 공정 운전 및 시설 운영과 연계하여 종합적인 성능시험을 수행하였다.

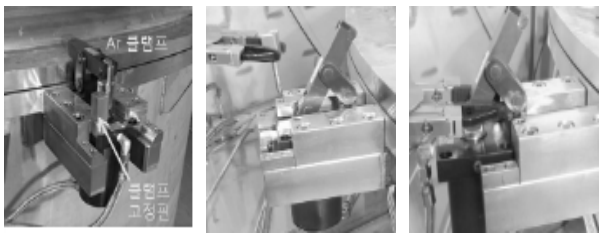


Fig. 1. Remote operation and maintenance test of large transfer lock system.

아르곤셀 운영설비의 성능은 주로 아르곤셀의 불순물 농도, 압력, 온도 제어를 통해 평가되었으며, 각 시스템 별로 설계 성능을 만족하였다. 특히 아르곤셀의 누설률은 0.003 ㎥/min로 측정되어 설계 성능을 만족하였으며, 공급시스템을 통해 아르곤을 차징한 후 정화시스템에 의해 아르곤셀 내부의 불순물 농도는 46 ppm 이하를 달성하여 공정 실험 조건을 성공적으로 조성하였다.

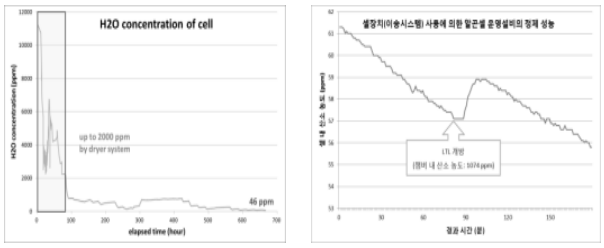


Fig. 2. Moisture removal performance of purification system of Ar cell and effect by opening of large lock system.

또한 예비시스템의 확보, 시설 장치의 용량 확충, 공정 및 방사선 모니터링 시스템의 구축, 전기, 계장 유틸리티 개선 등을 통해 운영설비의 장기 운전 안전성을 개선시켰으며, 공정 운전과 연계하여 운영설비가 제어되도록 로직을 개선하였다.

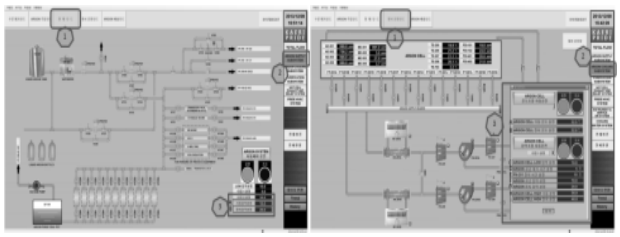


Fig. 3. Main windows of utility operation program of PRIDE.

2.2 핵물질관리

PRIDE는 감손우라늄을 사용하는 시설이기 때문에 안전조치 관점에서 보면 사용후핵연료를 사용하는 시설과 같은 강화된 안전조치가 필요치는 않다. 그러나 PRIDE 시설은 핵물질을 취급하는 시

설이기 때문에 기본적인 핵물질 안전조치는 반드시 이행하여야 한다. PRIDE의 계량관리 방안을 마련하기 위하여 파이로 공정의 물질 흐름을 분석한 후, 시설 특성을 고려하여 PRIDE의 물질수지구역(Material Balance Area; MBA)과 주요측정지점(Key Measurement Point; KMP)들을 설정하였으며, 이를 바탕으로 시설 내의 핵물질 계량관리 방안을 분석하였다. 2014년 8월 21일에 PRIDE 시설에 최초로 감손우라늄을 반입하기 시작하였다. 동 시설에 대한 안전조치 이행은 파이로 시설의 안전 조치성을 검증하는 시금석이 될 수도 있기 때문에 각종 IAEA의 사찰 수검 시 정확한 핵물질 계량관리 정보를 적시에 제공할 수 있는 안전조치 이행체계 구축이 필요함에 따라, 이를 효율적으로 수행하기 위한 핵물질 재고관리 시스템 설계를 완료하고 개발 중이다.

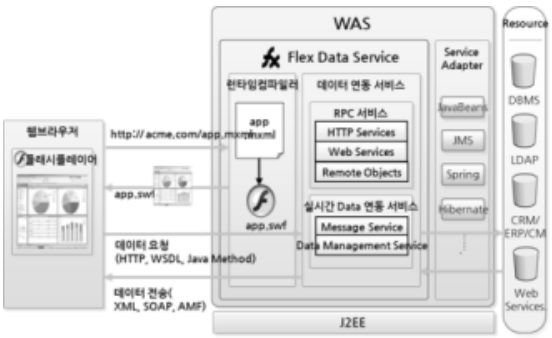


Fig. 4. Schematic concept for program operation.

2.3 PRIDE 운영설비 개선

PRIDE 시설의 안전운영 및 관련기술 확보를 위하여, 시운전 및 성능시험을 통해 도출된 문제점들을 해결하고 개선하기 위한 연구가 진행 중이다. 특히 공정 시험을 안정적이고 효율적으로 수행하기 위한 아르곤셀 분위기 시험환경 조성의 효율성 및 신뢰성을 높이고, 파이로 염사용 환경 분위기에서 장기간의 원격 운전 및 유지보수 신뢰성을 확보하기 위해 전념하고 있다. 또한 PRIDE 시설의 정기적인 유지 및 보수를 위한 절차 및 시험내용 등을 평가, 수립하고 있으며, 이를 통해 PRIDE 시설의 신뢰성을 확보할 수 있을 것이다. 또한 작업자의 안전을 향상하기 위한 방사선감시 시스템 개선, 계통 개선, 작업환경 평가를 수행하고, 핵물질 이송 및 폐기물 처리를 위한 세부절차를 수립 중이다.

3. 결론

본 연구에서는 PRIDE 시스템 운전시험 및 개선사항에 대한 주요 결과 및 운영 경험에 대해 기술하였다. 현재 PRIDE시설은 국내 최초로 대형 파이로 시설의 운영을 시작하는 단계로, 본 연구결과 및 향후 수행할 운영기술 및 운영 자료는 국내 파이로 핵주기 연구를 수행하기 위한 매우 중요한 기반자료로 활용될 것이다.

4. 감사의 글

이 논문은 미래창조과학부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

5. 참고문헌

[1] H. Lee et al. “Current Status of Pyroprocessing Development at KAERI,” Science and Technology of Nuclear Installations, vol. 2013, 1-11, 2013.

[2] 한종희 외 5인, “PRIDE 셀장치의 원격 운전 성능 평가,” KAERI/TR-4834/2012, 2012.

Analysis of Safety Evaluation Guidelines for Pyroprocessing Facilities

Seong-In Moon[1*], Seok-Jun Seo[1], Gil-Sung You[1], Won-Myung Chong[1], Jeong-Hoe Ku[1], Hyo-Jik Lee[1], Ho-Dong Kim[1], Geun-Il Park[1], and Chad Pope[2]

[1]Korea Atomic Energy Research Institute, 989-111 Daedeck-daero, Yuseong-gu, Daejeon, 305-353, Korea

[2]Idaho State University, 921 S. 8th Avenue Pocatello, ID 83209, USA

[*]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 but the safety regulatory framework applicable to the development of safety documents for a pyroprocess facility was not yet prepared. This paper analyzed two very significant dose consequence evaluation guidelines: an American National Standard, ANSI/ANS-58.16-2014, titled "Safety Categorization and Design Criteria for Nonreactor Nuclear Facilities" was issued in 2014 and a DOE-STD-3009, titled "Preparation of Nonreactor Nuclear Facility Documented Safety Analysis" was updated in 2014.

2. DOSE CONSEQUENCE EVALUATION GUIDELINES

The new American National Standard, ANSI/ANS-58.16-2014, specifies criteria for categorization of safety SSCs and selects industry codes and standards for the design, construction, and operation of safety SSCs. The new American National Standard also includes guidance in Appendix A for dose evaluation guideline thresholds associated with each safety SSC category (SC-3, SC-2, and SC-1) and each receptor type (public, collocated worker, and facility worker).

The newest revision of DOE-STD-3009 is a very significant revision to the standard. Earlier revisions of the standard provided only a single dose consequence evaluation guideline which was applied only to members of the public. No numerical guidelines for collocated or facility workers were provided. The new revision to DOE-STD-3009 now provides numerical dose consequence evaluation guidelines for members of the public as well as collocated workers. Nonnumeric consequence thresholds for facility workers are also provided.

2.1 ANSI/ANS-58.16-2014 and DOE-STD-3009 Safety Categories

ANSI/ANS-58.16-2014 specifies three safety categories called SC-3, SC-2, and SC-1. These safety categories are applied to nuclear facility SSCs. SC-3 represents the most stringent safety category and is similar in nature to a DOE-STD-3009 safety-class SSCs. SC-2 is similar to a DOE-STD-3009 safety-significant SSC and SC-1 is similar to a defense-in-depth SSC. While a direct correlation between the US DOE SSC categories in DOE-STD-3009 and the ANSI/ANS-58.16-2014 safety categories does not exist, Table 1 provides a general correlation between the two approaches.

2.2 ANSI/ANS-58.16-2014 and DOE-STD-3009

Dose consequence guidance associated with the selection of equipment safety categories is provided in Appendix A of ANSI/ANS-58.16-2014. The dose consequence guidance contained in ANSI/ANS-58.16-2014 is summarized in Table 2 below. It is important to recognize that the guidance is associated with unmitigated hazard analysis results. For example, if a particular hazard event results in a 15 rem dose to the public, following ANSI/ANS-58.16-2014 would result in selection of a SC-2 SSC to prevent or mitigate the dose consequence. Similarly, if an unmitigated hazard event results in a dose consequence of 50 rem to a facility worker, an SC-1 SSC would be selected to prevent or mitigate the dose consequence.

The most recent revision of DOE-STD-3009 provides evaluation guidelines related to the selection of Safety Class SSCs. Recall that under DOE-STD-3009, Safety Class SSCs are used for the prevention or mitigation of hazard events that threaten the public. The new guidance now uses a hard pass/fail criterion regarding the public evaluation guideline. Any unmitigated accident that results in a public dose exceeding 25 rem, regardless of the event frequency, must result in the selection of a Safety Class SSC and the resulting mitigated dose must fall below the evaluation guideline. Furthermore, the new DOE-STD-3009 provides guidance for hazard events that challenge the evaluation guideline. In cases where the public dose falls between 5 and 25 rem, selection of a Safety Class SSC must be considered and justification for not selecting a Safety Class SSC must be provided. The latest revision of DOE-STD-3009 also provides numerical guidelines for consequence thresholds, see Table 3. Qualitative likelihood classification guidance also continues to be provided in DOE-STD-3009, see Table 4.

Table 1. SSC safety category general correlation

Specifying Document	Correlated SSC Safety Category		
DOE-STD-3009	Safety Calss	Safety-Significant Class	Defense-in-depth
ANSI/ANS-58.16-2014	SC-3	SC-2	SC-1

Table 2. ANSI/ANS-58.16-2014 dose guidance

Safety Caegory	Unmitigated Consequence		
	Public	Collocated Worker	Facility Worker
SC-3	Dose>25 rem	*	*
SC-2	Dose>5 rem	Dose>100 rem	Dose>100 rem
SC-1	Dose<5 rem	Dose<100 rem	Dose<100 rem

While DOE-STD-3009 now endorses the concept of risk binning by combining the consequence categories and the frequency categories, the endorsement is limited to the identification of hazard events that constitute greater or minimal risk. DOE-STD-3009 does not recommend use of risk binning as a means for identifying hazard events that merit selection of Safety significant SSCs.

Table 3. DOE-STD-3009 dose guidance

Consequence Level	Public	Collocated Worker	Facility Worker
High	Dose>25 rem	Dose>100 rem	Prompt death, serious injury, significant radiological exposure
Moderate	Dose>5 rem	Dose>25 rem	Dose>100 rem
Low	Dose<5 rem	Dose<25 rem	Dose<100 rem

Table 4. DOE-STD-3009 likelihood Categories

Description	Likelihood Range (per year)	Description
Anticipated	$>10^{-2}$	Events that may occur several times during the lifetime of the facility (incidents that commonly occur)
Unlikely	10^{-2} to 10^{-4}	Events not anticipated to occur during the lifetime of the facility
Extremely Unlikely	10^{-4} to 10^{-6}	Events that will probably not occur during the lifetime of the facility
Beyoun Extremely Unlikely	$<10^{-6}$	All other accidents

3. SUMMARY

This paper addressed the dose consequence evaluation guidelines to provide context for the development of a new pyroprocessing facility safety basis. This study will be used to select safety SSCs, and to establish safety design policies.

4. REFERENCES

[1] ANSI/ANS-58.16-2014, "Safety Categorization and Design Criteria for Nonreactor Nuclear Facilities," May 2014.

[2] DOE-STD-3009-2014, "Preparation Guide for U.S. Department of Energy Nonreactor Nuclear Facility Documented Safety Analyses," U.S. Department of Energy, November 2014.

파이로시설의 안전성 평가체계 분석

유길성[1*], 전관식[2], 문성인[1,] 정원명[1], 서석준[1], 구정회[1], 이효직[1]
[1]한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
[2]㈜라드웍스, 대전광역시 유성구 대덕대로 530번길 첨단상가 다308호
[*]yougil@kaeri.re.kr

1. 서론

우리나라는 사용후핵연료 관리방안의 하나로 파이로프로세싱 기술개발을 추진해 오고 있다. 높은 에너지의 방사선을 방출하는 사용후핵연료의 파이로프로세싱 처리를 위해서는 여러 안전인자[1]들이 확보된 파이로시설의 개발이 필요하다. 이 논문에서는 파이로시설의 안전성 평가체계를 미국 및 IAEA의 해당 평가체계와 비교 분석하였으며, 우리나라의 평가체계에 대한 보완방안도 결론에서 제시하였다.

2. 본론

2.1 우리나라의 파이로시설 안전평가 체계

우리나라의 파이로 핫셀시설에 대한 인허가 안전성평가는 현재 원자력안전법상 핵연료주기사업 중 사용후핵연료 처리사업의 규제법[2]에 따라 평가하도록 되어있다. 사용후핵연료처리사업에 대한 안전규제는 다음과 같은 절차로 구성된다.

- ✓ 사업의 지정
- ✓ 계량관리규정 승인
- ✓ 물리적방호규정 승인
- ✓ 사용전 검사
- ✓ 계량관리 검사
- ✓ 물리적방호 검사
- ✓ 품질보증 검사
- ✓ 방사선비상계획 승인
- ✓ 정기 검사
- ✓ 해체 승인

시설에 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 농도 제한치를 각 핵종별로 규정하고 있으며, 방사선량 기준치도 이 고시에서 규정하고 있다. 그리고 세부적인 안전기준은 대부분 원자로에 대한 고시를 준용하고 있다.

2.2 미국의 파이로시설 안전평가 체계

미국은 핵물질을 처리하는 시설 내 위해도와 그 위해도와의 연관성을 평가하기 위해서 통합안전성분석을 이용하도록 10CFR70에서 규정하고 있으며, 통합안전성분석(Integrated Safety Analysis, ISA)에는 사용후핵연료 처리시설에 대한 안전상 중요인자들을 기술하고 있다. ISA를 사용하는 주된 이유는 핵연료주기시설에서 일어나는 사고 또는 방사선 누출의 영향이 원자로 사고와 달리 화학적 공정에 의하여 발생할 가능성이 더 높기 때문이다. 그러나 최근 NRC 주도로 수행되고 있는 재처리시설의 안전성 평가 보완방안에는 ISA 뿐만 아니라 리스크 평가를 위한 확률론적 안전성평가(PRA)의 병합방안을 추진 중이다[3].

다음은 핵주기시설의 인허가시 NRC에 제출하는 ISA 요약보고서의 구성 목록이다.

- ✓ Site description
- ✓ Facility description
- ✓ Criticality monitoring and alarms, Compliance with vaseline design criteria, criticality monitoring, and alarms
- ✓ ISA(Integrated Safety Analysis) method(s) description
- ✓ ISA(Integrated Safety Analysis) team description
- ✓ Quantitative standards for acute chemical exposures
- ✓ Definition of “unlikely”, “highly unlikely”, and “credible”

- ✓ Description of processes analyzed
- ✓ Identification of hazards
- ✓ Description of accident sequences
- ✓ Characterization of high-and intermediate-consequence accident sequences
- ✓ List and description of IROFS
- ✓ Description of IROFS' link to accident sequences to show 10CFR70.61 compliance
- ✓ IROFS management measures
- ✓ List of Sole IROFS

2.3 IAEA의 파이로시설 안전평가 체계

IAEA의 사용후핵연료 처리시설에 대한 안전성 평가방법은 IAEA Safety Standards Series No. NS-R-5 (Safety of Nuclear Fuel Cycle Facilities)에 기술되어 있으며[4], 설계안전성 평가는 위 문서의 Annex III에서 자세히 기술하고 있다. 그 중 가장 중요한 위해성 평가는 다음과 같은 절차에 따라 수행된다.

단계 A. 사건 시나리오 개발과 예상되는 초기사건

- ✓ 이 단계에서는 앞서 도출된 위해성들이 예상되는 초기사건과 사건 시나리오들과 연결됨. 이러한 사건 시나리오들은 사건과 위해형태에 의해 그룹화 될 수 있음 (즉, 밀폐성 상실, 임계, 화재).
- ✓ 예상되는 초기사건은 설계에서 예견된 운전사고 또는 사고 상태를 만들 수 있는 사건임. 예상되는 초기사건들은 위해성에 따라 상당량의 방사선, 방사성 물질과 결합된 화학물질의 누출을 가져올 수 있음.

단계 B. 사건 시나리오의 결과 평가

- ✓ 각 사건 시나리오 혹은 사건 시나리오 그룹에 대해 작업자, 일반인 그리고 환경에 대한 결말 예측.

단계 C. 안전성과 안전요건들에 중요한 구조물, 시스템 그리고 구성품(SSC)의 도출

- ✓ 용인될 수 없는 사건 시나리오들에 대해, 필요한 안전 기능을 만족시킬 수 있는 중요 SSCs 도출.
- ✓ 초기사건의 발생을 막고 사고 결말완화를 위한 하나의 장벽은 안전성에 중요한 SSC임.
- ✓ 설계기준사고(DBA)에 대한 안전설계, 즉 사고방지 설계는 사고를 막기 위해 혹은 사고 발생시 이를 완화할 수 있는 설계.
- ✓ DBA에 더하여 예상운전과도도 고려, 이들의 가능한 결말들도 평가.
- ✓ 시설의 상태.
- ✓ 비상준비 및 대응계획을 결정.
- ✓ 안전해석을 위해 DBA 가정.

단계 D. 완화된 결말과 사고 가능성 평가

- ✓ 만약 완화된 결말과 사고 가능성 평가가 만족되지 않으면 B 단계를 반복수행하고 안전에 중요한 SSCs를 수정.

3. 평가체계 비교분석 및 결론

미국의 경우 최근 기존의 핵주기시설에 대한 평가체계에 사용후핵연료 처리시설의 안전요건도 보완 및 정비하고 있다. IAEA의 경우 큰 틀에서의 원자력시설에 대한 안전성 평가체계 및 핵주기시설에 대한 평가체계도 잘 갖추어져 있으나, 하위 단계의 구체적인 평가방법까지는 개발되어 있지 않다. 우리나라의 경우 세부 관련법의 개발이 안된 상태이므로 사용후핵연료 처리시설에 대한 안전성 평가체계의 보완이 필요하다. 보완의 방법으로 IAEA의 상위수준 평가체계와 미국의 핵주기시설 안전성 평가체계, 특히 현재 NRC가 추진 중인 재처리시설에 대한 "ISA + PRA" 병합평가 체계에 대한 적용 가능성도 고려되어야 한다.

4. 참고문헌

[1] Gil-Sung You, et al., Concept and safety studies of an integrated pyroprocess facility, Nuclear Engineering Design, No. 241, 415~424, 2011.

[2] 원자력안전법, 시행령, 시행규칙, 안전위원회 고시 등 (2015).

[3] US NRC, SECY-11-0163 (2011).

[4] IAEA, "Safety of Nuclear Fuel Cycle Facilities", Safety Standards Series No. NS-R-5 (2008).

고온 용융염 내 Nd 이온의 농도에 대한 전기화학 측정법 연구

김대현 [1,2*], 배상은[1], 김종윤[1], 박태홍[1], 연제원[1]
[1]한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로989번길 111
[2]고려대학교, 서울 성북구 안암로 145
[*]ndhkim@kaeri.re.kr

1. Introduction

파이로 공정은 전해환원, 전해정련, 전해제련과 같은 전기화학적 공정으로 구성되어 있으며 고온 LiCl-KCl 용융염을 전해질로 사용하여 사용후핵연료에 포함된 우라늄이나 초우라늄과 같은 유용한 원소를 재활용하고 방사성폐기물의 부피를 줄이는 공정이다[1-3]. 파이로 공정은 우라늄, 플루토늄과 같은 다양한 핵물질을 다루기 때문에 핵물질의 핵비확산성 측면에서 공정의 계량관리는 매우 중요하다. 각 단위 공정 전후의 핵물질 농도를 정확히 파악하기 위하여 다양한 화학적, 물리적 측정법에 대한 연구가 수행되고 있다.

이번 연구에서는 고온 용융염 내 금속이온의 농도을 측정하기 위하여 순환전압전류 측정법, 직각파 전압전류 측정법 등 다양한 전기화학적 측정법을 이용하여 시험하였으며 각 측정법들의 파이로 공정에 적용 가능성을 연구하였다.

2. Methods and Results

2.1 Experimental

LiCl-KCl 고온 용융염을 사용하는 실험은 수분과 산소가 1 ppm 이하로 유지되고, 아르곤 기체를 채운 글러브 박스에서 수행하였다. 글러브 박스 하단에는, 고온 용융염 실험을 수행할 수 있도록 500℃의 온도를 유지할 수 있는 전기로를 제작하여 부착하였다. LiCl-KCl 공용융염과 $NdCl_3$ 시약은 Aldrich와 Alfa사에서 구입하였고, 모든 시료는 전처리 없이 사용하였다.

전기화학 반응 셀은 높은 온도에서 실험이 가능하도록 석영을 사용하여 제작하였다. 작업전극은 텅스텐 선을, 상대전극은 유리질 탄소를, 기준전극으로는 1wt% AgCl이 녹아있는 LiCl-KCl 공용융염에 은선을 넣어 사용하였다[4]. 전기화학 측정을 위한 포텐시오스타트는 Gamry 사의 reference 3000장비를 사용하였다.

2.2 Result

파이로 공정에는 사용후핵연료에 존재하는 다양한 악티나이드, 초우라늄, 란타나이드 원소들이 포함되어 있다. 악티나이드 원소에 전기화학적 측정법을 적용하기 전에 먼저 방사선을 배출하지 않는, 안전한 란타니아드인 Nd를 이용하여 고온 용융염 내에서 전기화학 측정법을 시험하였다.

Fig. 1 은 500℃ 의 고온 LiCl-KCl용융염과 $NdCl_3$가 포함되어 있는 고온 LiCl-KCl 용융염에서, 텅스텐 전극을 작업전극으로 사용하여 측정한 순환전압전류 곡선이다. $NdCl_3$가 없는 고온 용융염 내에서 측정한 순환전압전류 곡선 (Fig. 1a)을 살펴보면 음의 방향으로 주사한 경우, -2.45 V 근처에서 Li^+의 전기화학적 도금에 기인한 환원 전류를 보였고, 양의 방향으로 주사한 경우, 도금된 Li의 산화해리되는 산화전류가 나타났다. 2wt%의 $NdCl_3$가 포함되어 있는 고온 용융염 내에서 측정한 순환전압전류 곡선 Fig. 1b는 약 - 1.98 V근처에서 Nd^{3+}의 전기화학적 도금 반응에 기인한 환원전류가 증가하기 시작하여 약 - 2.05 V 근처에서 피크 전류가 나타났고, 양의 주사 방향에서는, 도금된 Nd 금속이 Nd^{3+}로 산화되는 전류가 -2.0 V에서 증가하기 시작하여 약 - 1.88 V 근처에서 피크 값을 나타냈다.

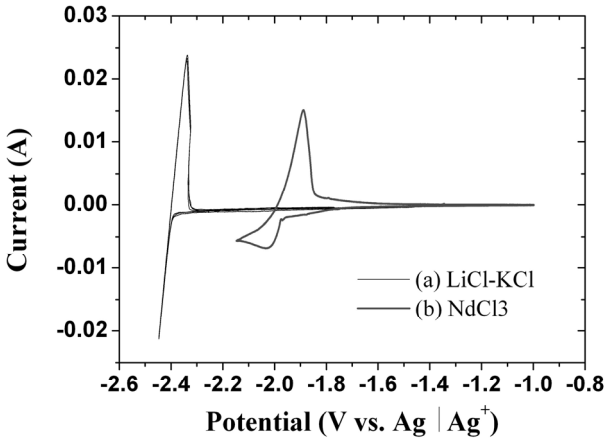


Fig. 1. Cyclic voltammograms obtained from a W electrode in LiCl-KCl melt (a) without and (b) with 2wt% $NdCl_3$ at 500℃.

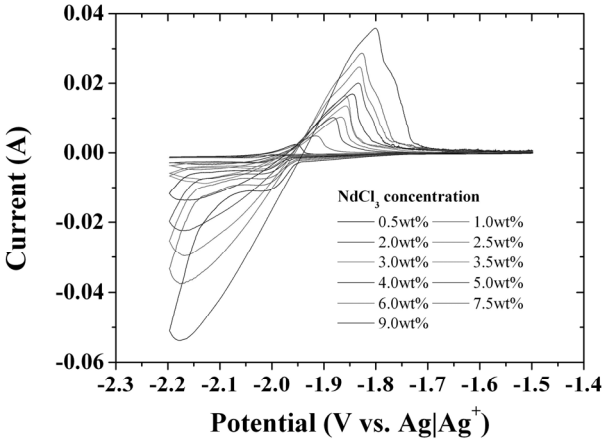


Fig. 2. Cyclic voltammograms obtained from a W electrode in the LiCl-KCl melt containing various $NdCl_3$(concentration from 0.5 to 9.0wt% $NdCl_3$) at 500℃ (scan rate 100mV/s).

Fig. 2는 다양한 농도의 $NdCl_3$가 포함되어 있는 고온 LiCl-KCl 용융염에서 측정한 순환전압전류 곡선을 나타내고 있다.

Fig. 1(b) 에서 나타낸 것과 같이 음의 주사방향에서는 약 - 1.95 V 근처에서 환원 전류가 증가하기 시작하여 약 - 2.05 V 근처에서 피크전류가 나타났으며, 양의 주사방향에서는 약 - 1.9V 근처에서 산화해리 전류가 나타났다. 이 그림에서는 농도가 증가함에 따라 전류가 증가하는 것으로 나타났고, 3wt% 이상의 $NdCl_3$ 농도부터 음의 전류가 교차하는 cross-over 현상이 관찰되었다.

Fig. 3은 순환전압전류 곡선의 환원, 산화 피크 전류를 농도에 따라 표시한 그래프이다. 측정된 전류는 고온 용융염 내 포함되어 있는 $NdCl_3$의 농도에 따라 선형 비례하는 것으로 나타났다.

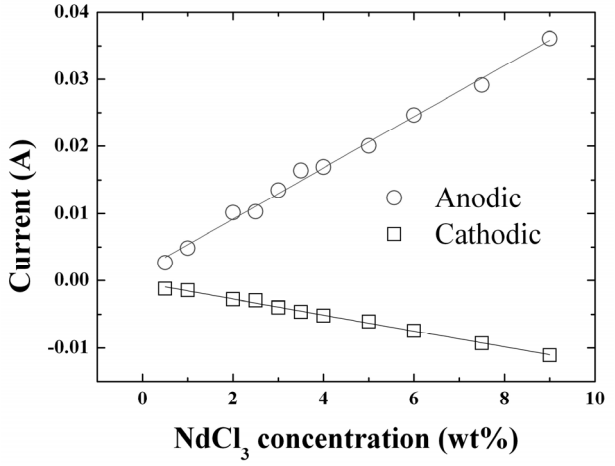


Fig. 3. Anodic and cathodic peak currents as a function of $NdCl_3$ concentration.

3. Conclusions

500℃ 고온 용융염 내 포함되어 있는 란타나이드 이온인 Nd 원소의 전기화학적 반응을, 순환전압전류 측정법, 직각파 전압전류 측정법 등 다양한 전기화학적 측정법을 이용하여 측정하였다. Nd 원소는 - 2.05 V 근처에서 환원, 전착 전류가 나타났고, - 1.9 V 근처에서 산화해리 전류가 나타났다. 순환전압전류측정법의 결과에서, $NdCl_3$의 농도가 증가함에 따라 산화환원 피크 전류가 증가하는 것으로 나타났으며, $NdCl_3$의 농도가 증가함에 따라 피크 전류가 선형비례하는 것을 확인하였다. 본 연구에서는 고온 용융염 내 금속 이온의 농도를 측정하기 위하여 순환전압전류 측정법 뿐만 아니라 다양한 전기화학적 측정법을 시험하였으며, 측정한 결과를 비교하여 보고자 하였다.

4. REFERENCES

[1] T. Inoue and L. Koch, Nucl. "Development of Pyroprocessing and its future direction", Eng. & Technol., Vol. 40, p 183, 2008.

[2] J. H. Yoo, C. S. Seo, E. H. Kim and H. S. Lee, "A conceptual study of pyroprocessing for recovering actinides from spent oxide fuels", Nucl. Eng. & Technol., Vol. 40, p 581, 2008.

[3] Y. I. Chang, Nucl. Technol., Vol. 88, p129, 1989.

[4] S. –E. Bae, Y. J. Park, S. K. Min, Y. H. Cho and K. Song, "Aluminum assisted electrodeposition of europium in LiCl-KCl molten salt", electrochim. Acta, Vol. 55, p 3022, 2010.

[5] A. J. Bard, L. R. Faulkner, "Electrochemical methods – Fundamentals and applications", John Wiley & Sons, New York, 1980.

공기분위기하에서 온도에 따라 소결한 펠렛의 환원시 O/U비 변화

나상호[1*], 송대용[1], 박세환[1], 유명준[2]
[1]한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
[2]한전원자력연료㈜, 대전광역시 유성구 덕진동 493
[*]shna@kaeri.re.kr

1. 서론

기존의 사용후핵연료의 재활용 방법은 주로 핵연료물질만 추출하는 습식 방법으로 수행되어 왔지만, 핵비확산 관점에서 바람직하지 않아 새로운 재활용방법이 강구되고 있다. 이러한 방법 중 하나가 파이로 프로세싱(pyroprocessing)과 같은 건식방법으로 사용후핵연료의 성분을 그대로 사용하기 때문에 핫셀과 같은 특수 시설에서 취급해야 하므로 핵확산 저항성이 큰 것이 장점이다.

파이로 프로세싱 공정은 크게 사용후핵연료 전처리, 전해환원, 전해정련 그리고 전해제련 등의 공정으로 구성된다. 전처리과정은 사용후핵연료를 산화탈피복시켜 UO_2 펠렛을 U_3O_8 분말로 만든 후, 다시 성형 및 소결하여 UO_2 펠렛으로 만든다. 전해환원은 세라믹인 이산화우라늄(UO_2)을 금속우라늄(U)으로 변환시키는 공정이므로 가능한 한 잉여 산소가 없어야 한다. 따라서 전처리 과정에서 잉여 산소를 제거해주기 위해서 분위기 조건에 따라 제조된 소결펠렛을 환원시켜 UO_2 상태로 만들어 주어야 한다.

여기에서는 모의물질을 사용하여 공기 분위기에서 온도에 따라 소결한 U_3O_8 펠렛을 열중량(TG, Thermogravimetry)법을 이용하여 수소분위기하에서 환원하였을 때 무게감량에 따른 오유비 및 UO_2로의 환원처리 온도를 구하고자 하였다.

2. 본론

2.1 시편 준비 및 실험 방법

약 96%T.D.의 소결밀도를 갖는 UO_2 소결펠렛을 450℃에서 4 시간 공기분위기에서 산화시키면 U_3O_8 분말이 된다[1,2]. U_3O_8 분말을 유압프레스에 장입하여 300 MPa의 성형압력으로 원통형의 성형체를 제조한 후 공기 분위기하에서 4조건의 소결온도(1000, 1200, 1400 & 1600℃)로 소결하였다.

제조된 소결펠렛을 TG기기(Cahn TG)를 이용하여 수소 분위기에서 1200℃까지 승온하여 UO_2로의 환원온도를 구하고자 하였다. 승온 및 냉각속도는 모두 분당 4℃로 하였다.

O/U비는 TG의 무게감소율로부터 구하였고, 공기분위기하에서 소결한 펠렛의 밀도는 수침법(immersion method)으로 측정하였으며, 펠렛의 파단면은 전자현미경(SEM)으로 관찰하였다.

2.2 실험 결과

2.2.1 무게감소율

공기 분위기하에서 U_3O_8 펠렛을 소결한 경우, O/U 비는 온도에 관계없이 모두 2.67 즉 U_3O_8으로 나타났다. 이러한 U_3O_8 소결펠렛을 환원분위기하에서 가열시켰을 때 무게 감소율을 Fig. 1과 Table 1에 나타내었다.

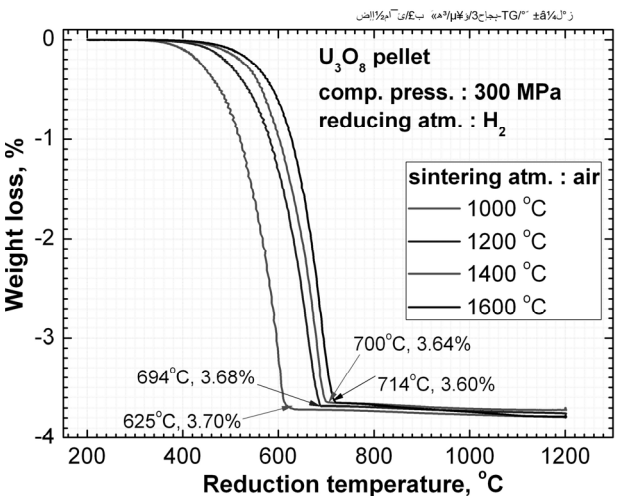


Fig. 1. Reduction temperature vs. weight loss.

그림과 표에서 보는 바와 같이, 공기 분위기하에서 온도에 따라 소결한 후 U_3O_8 소결펠렛을 수소 분위기하에서 환원시켰을 때 소결된 펠렛의 환원 즉, UO_2로 되기까지 소결온도 증가에 따라 환원온도는 증가하는 경향을 보여준다. 또한 소결온도가 증가할수록 소결밀도도 증가하는 경향을 보여준다. 결과적으로 소결온도 증가에 따라 소결밀도가 증가하고 이에 따라 환원온도가 증가하는 것은 소결온도에 따라 소결펠렛의 치밀화에 기인하는 것으로 보인다. 즉 소결밀도 증대로 인해 기공은

Table 1. Reducing characteristics after air atmosphere sintering

소 결 (O/U=2.67)		환 원 (O/U=2.00)
온도(℃)	밀도(%T.D.)	시작온도(℃)
1000	71.07	625
1200	79.05	694
1400	80.85	700
1600	83.26	714

조대하나 그 수는 적어져 수소 침입의 용이성과 상관되는 것으로 사료된다.

2.2.2 소결온도에 따른 소결펠렛 미세구조

Fig. 2에 성형압력 300 MPa로 성형한 성형체의 공기 분위기하에서 여러 온도조건에서 소결한 소결펠렛의 파단면을 SEM으로 관찰한 사진이다 (1000℃; 5000×, 1200℃; 3000×, 1400℃ ; 2000×, 1600℃; 1000×).

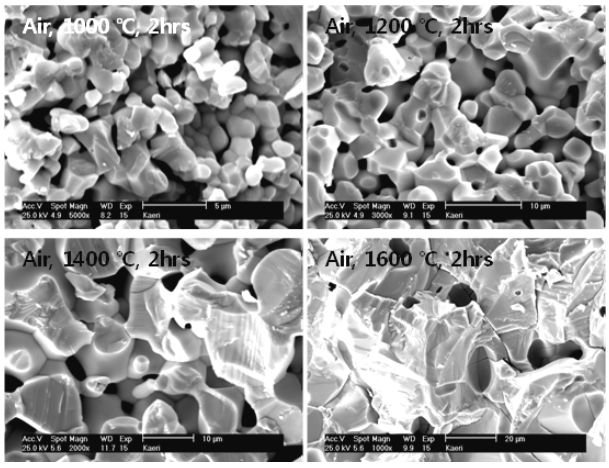


Fig. 2 Fracture surface of U_3O_8 sintered pellet under the air atmosphere at various sintering temperature.

그림에서 알 수 있는 바와 같이 소결온도가 증가할수록 파단면에 나타나는 기공의 수는 감소하지만 그 크기는 증대하는 경향을 보여준다. 이러한 기공의 수나 크기가 환원시 수소의 침입의 용이성을 나타내는 것으로 사료된다.

3. 결론

U_3O_8 분말로 성형한 성형체를 공기 분위기에서 온도에 따라 소결한 소결펠렛을 TG를 이용하여 수소 분위기하에서 환원처리하여 다음과 같은 결과를 구하였다.

- 소결온도가 증가할수록 소결밀도는 증가함.
- UO_2로의 환원온도는 소결온도가 증가할수록 증가함.
- 소결온도가 증가할수록 소결펠렛의 기공의 수는 감소하는 반면에 그 크기는 증가함.

4. 감사의 글

이 논문은 2015년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임.

5. 참고문헌

[1] 나상호 외, "소결(CO_2)-냉각-환원(H_2)의 처리에 의한 다공성 UO_2 소결펠렛 제조," 2013 한국방사성폐기물학회 추계학술대회 논문요약집, 101-102.

[2] 나상호 외, "TG를 이용한 분위기(CO_2) 소결펠렛의 환원시 O/U비 변화," 2013 한국방사성폐기물학회 추계학술대회 논문요약집, 105-106.

열처리분위기에 따른 우라늄산화물 압분체의 소결 거동

이재원*, 전상채, 강상준, 이도연, 이영순, 조용준
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*njwlee@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로공정의 전해환원용 원료물질로 다공성펠렛을 제조 연구를 수행하고 있다. 다공성펠렛을 제조하기 위해 열처리조건은 핵분열생성물의 제거조건에 따라 달라지며, 열처리조건에 따라서 소결로의 반응기 및 발열체 재질이 달라지게 된다[1]. 본 연구에서는 열처리조건에 따른 출발물질인 U_3O_8 및 UO_2 압분체의 소결거동, 소결밀도 및 미세조직 변화에 대한 영향을 조사하였다.

2. 실험

U_3O_8 분말은 UO_2 펠렛을 회전형 휘발성 산화장치를 사용하여 500℃에서 산화처리를 제조하였으며, UO_2 분말은 U_3O_8 분말을 700℃에서 환원처리를 하여 제조하였다. 압분체는 300MPa의 압력에서 제조하였다. UO_2 및 U_3O_8 압분체의 소결거동은 Table 1에 나타낸 열처리 조건에서 TMA(열기계분석기)를 이용하여 분석하였다. 최종 열처리 온도는 1400 및 1500℃로 하였으며, 가열 및 냉각 온도는 각각 5℃/min로 하였다.

Table 1. Thermal treatment conditions

Sample No.	Phase	Heating	Holding at isotherm		Cooling
HT1	U_3O_8	4%H_2Ar	12h,	4%H_2/Ar	4%H_2/Ar
HT2	UO_2	4%H_2Ar	12h,	4%H_2/Ar	4%H_2/Ar
HT3	U_3O_8	Ar	12h,	4%H_2/Ar	4%H_2/Ar
HT4	U_3O_8	Ar	10h, Ar	2h, 4%H_2/Ar	4%H_2/Ar [2]

3. 결과 및 토의

열처리 조건에 따른 소결거동을 Fig. 1에 나타내었다. 압분체의 수축은 HT1(690℃), HT3(800℃), HT2(970℃) 순서로 개시된다. HT1과 HT2는 1500℃ 이전에 길이변화가 둔화되나, 출발물질이 UO_2 압분체(HT3)의 경우에는 1500℃에서도 지속적으로 감소됨을 알 수 있다. 성형체의 수축율은 HT1은 1305℃, HT3는 1412℃, HT2는 1500℃에서 최대가 된다.

등온유지 단계에서 UO_2 압분체의 경우, 1400 및 1500℃에서 시간에 따라서 수축이 계속된다. 반면에, 나머지 열처리 조건의 경우, 1400℃에서는 1시간 이내 수축이 완료되며, 1500℃에서는 시간에 따른 변화가 거의 없이 일정하다. 즉, 열처리 시간에 따른 소결밀도의 변화가 없게 되기 때문에, 핵분열생성물의 휘발제거율에 따라서 고온열처리 조건은 결정됨을 알 수 있다.

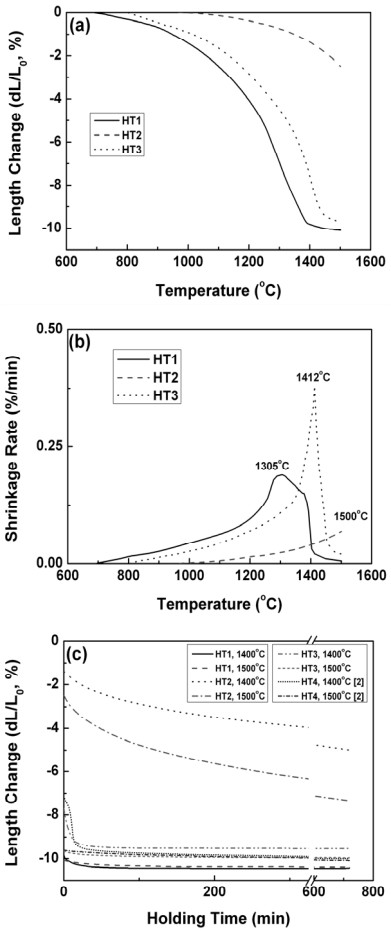


Fig. 1. Length change and shrinkage rate of green pellets with thermal treatment conditions.

소결밀도는 HT2(UO_2 압분체) > HT1 > HT3, HT4 순서대로 높았다(Table 2). 압분체의 밀도는 HT2(UO_2)의 경우에는 59% TD이나, U_3O_8 압분체

(HT1,3,4)의 밀도는 66% TD로 UO_2 압분체 보다 높다. U_3O_8의 압분체의 밀도가 높음에도 불구하고 소결밀도가 낮은 이유는 환원분위기 열처리 과정 중에 상변화에 의한 것으로 여겨진다.

Table 2. Physical properties of sintered pellets

Sample No.	Sintered density (% TD)	Specific surface area (m2/g)	Grain size (㎛)
HT1	71	0.13	5.0
HT2	74.6	0.18	3.0
HT3	67.1	0.07	7.8
HT4[2]	67.5	0.05	11.1

열처리조건에 따라 1500℃에서 열처리한 소결체의 미세구조를 관찰하여 Fig. 2에 나타내었다. 미세구조는 열처리조건에 크게 영향을 받음을 알 수 있다. HT1, HT3, HT4은 결정립들이 둥글고 기공들이 성장되었음을 보인다. 반면에 HT2는 비표면적인 높아 결정립 성장 및 치밀화가 될 수 있는 결정립 형상을 보인다. 결정립 크기를 비표면적 및 이론밀도를 사용하여 계산한 결과(Table 2), 결정립 크기는 HT2가 가장 낮고, HT4가 가장 높은데 이는 UO_{2+x}에 있어서 우라늄의 확산속도가 x가 증가함에 따라서 증가에 의한 것으로 여겨진다.

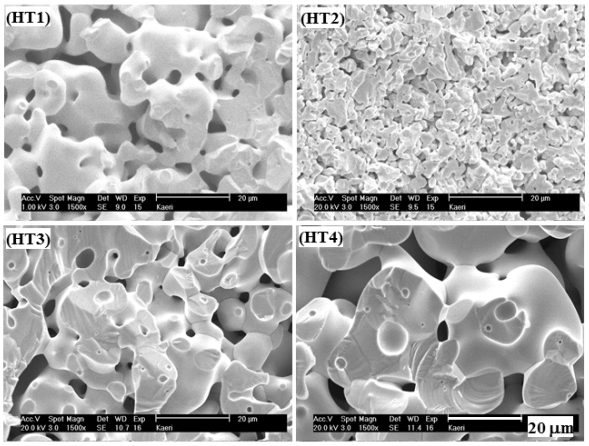


Fig. 2. SEM microstructure of sintered pellets with thermal treatment conditions.

4. 결론

출발물질인 U_3O_8 및 UO_2 압분체는 열처리분위기에 따라서 소결거동, 즉 소결밀도의 큰 차이를 보였다. 출발물질이 U_3O_8 압분체의 경우, 등온단계에서는 열처리조건에 따라서 소결거동에 차이를 보이지 않았다. 결정립크기는 열처리분위기에 의해 크게 영향을 받았다.

5. 감사의 글

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

6. 참고문헌

[1] J. R. Davis, Heat-Resistant Material, ASME International, (1997).
[2] S. C. Jeon et al., Ceramics International, 41, pp. 657-662 (2015).

고온 용융염 매질 내 일정 면적을 유지하는 전극 제작 연구

이나리[1,2*], 박태홍[1], 배상은[1], 김대현[1], 연제원[1], 김종원[2]
[1]한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
[2]충북대학교, 충청북도 청주시 서원구 충대로1
[*]nari92@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료의 건식 재활용 기술인 파이로공정(pyroprocessing)은 핵확산 금지 대상인 플루토늄의 단독회수를 원천적으로 배제 할 수 있기 때문에 사용후핵연료의 재활용 기술로 안전하고, 적합하다. 파이로공정은 고온용융염 매질(LiCl, LiCl-KCl 등)에서 전기화학적인 방법으로 우라늄과 다른 금속물질을 분리하는 기술이다. 따라서 파이로공정에서 각 원소들의 전기화학적 데이터베이스를 구축하는 것이 매우 중요하다. 3-전극을 이용한 용융염 전기화학실험에서 전기화학 자료를 얻을 때 가장 중요한 것은 작업전극이다. 작업전극의 면적이 일정하게 유지되어야 재현성 있고, 정확도 높은 실험값을 얻을 수 있다. 하지만 높은 온도(450℃ 이상의 온도)와 염화물 분위기 매질에서 실험을 하기 때문에 일반 작업전극을 사용하면 전극을 감싸고 있는 유기물(에폭시레진, 테플론 등)이 타거나 파손 되어 일정한 작업전극 면적으로 실험하기 어렵다. 그래서 작업전극 면적을 일정하게 하기 위하여 금속에 가장 잘 붙는 유리인 우라늄 유리를 텅스텐선의 끝부분에 감싸서 일정한 2차원의 전극 면적을 갖도록 하고 실험하였다. 하지만 얼마간의 실험 후에 전극에 변형이 있음을 관찰할 수 있었다. 또한 작업전극의 면적을 정의하는 다른 방법으로 높이조절기를 이용하여 작업전극이 용융염에 닿는 깊이를 일정하게 하여 실험하였다. 이번 연구에서는 두 가지 방법의 작업전극을 각각 이용하여 순환전압전류법(Cyclic Voltammetry)을 통해 고온 LiCl-KCl 공융염에서의 Sm^{3+}의 전기화학적 거동을 살펴보았다.

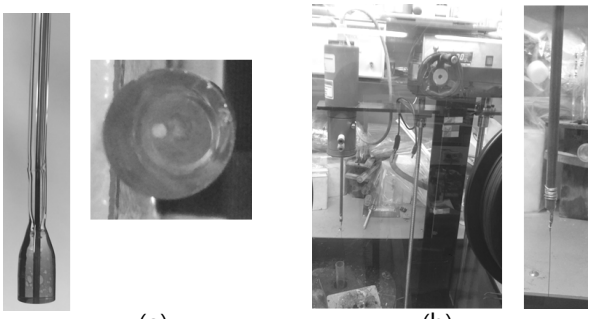
2. 본론

2.1 실험

LiCl-KCl 공융염은 Sigma-Aldrich사, $SmCl_3$는 Alfa-Aesar사에서 구입하였고 정제과정 없이 사용하였다. 지름이 20 mm인 quartz cell에 LiCl-KCl 공융염과 $SmCl_3$(2wt%)를 넣어 500℃에서 녹인 후 실험하였다.

모든 실험은 글로브박스에서 아르곤 분위기로 진행되었고, H_2O < 1 ppm, O_2 < 1 ppm 조건으로 하였다. 전기로의 온도는 500℃로 유지하며 수행하였다.

작업전극은 전극 면적이 일정하게 하기 위하여 1 mm 텅스텐선 끝부분에 우라늄 유리를 붙이고 연마하여 Fig. 1.(a)와 같이 만들었다. 또 다른 방법으로 0.3 mm 텅스텐선을 6 mm 텅스텐막대에 연결하여 높이조절기에 Fig. 1.(b)와 같이 고정시키고 용융염에 닿는 작업전극의 면적을 일정하게 증가시키며 실험하였다. 상대전극은 2 mm 탄소막대를 Pyrex 튜브에 LiCl-KCl 공융염과 함께 넣었고, 기준전극은 Pyrex 튜브에 1mol% (2.5wt%) AgCl이 녹아 있는 LiCl-KCl 공융염에 은선을 넣어 사용하였다.



(a) (b)

Fig. 1. Working electrode (a) W electrode enveloped by uranium glass and (b) level controller.

2.2 결과 및 고찰

순환전압전류법(CV) 측정에서 -0.9 V(vs. $Ag|Ag^+$) 부근에서 Sm^{3+}의 환원반응이, -0.7 V(vs. Ag|Ag+) 부근에서 Sm^{2+}의 산화반응이 일어남을 확인하였다.

$$Sm^{3+} + e^- \rightleftharpoons Sm^{2+} \quad (1)$$

Fig. 2는 우라늄 유리를 텅스텐선에 붙여 만든 작업전극으로 주사속도를 25 mV/s부터 400 mV/s

까지 변화시키며 얻은 CV 결과이다(method 1). 주사속도의 제곱근 대 바탕값을 보정한 voltammogram의 피크 전류를 도시하여 얻은 기울기 값으로부터 확산계수를 구할 수 있다.

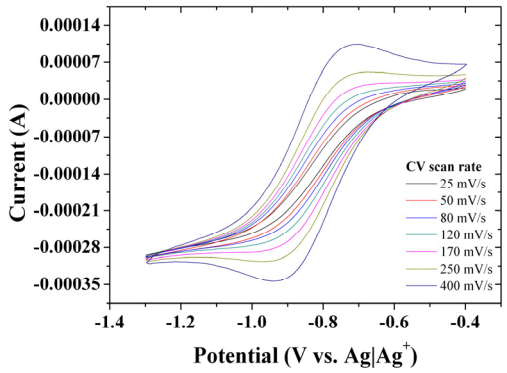


Fig. 2. Cyclic voltammograms of $SmCl_3$(2wt%) using a W electrode enveloped by uranium glass in LiCl-KCl at 500℃.

Fig. 3는 높이조절기를 이용하여 작업전극의 깊이를 3 mm, 6 mm, 9 mm, 12 mm로 변화시키며 얻은 CV 결과중 하나이다(method 2). 주사속도는 25 mV/s부터 400 mV/s까지 변화시켰고 주사속도의 제곱근 대 바탕값을 보정한 voltammogram의 피크 전류를 도시하여 얻은 기울기 값으로부터 확산계수를 구하였다.

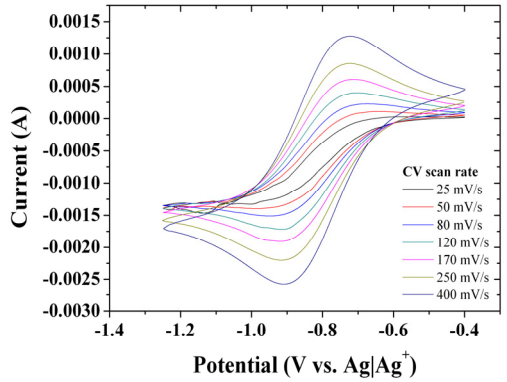


Fig. 3. Cyclic voltammograms of $SmCl_3$(2wt%) using a working electrode level controller in LiCl-KCl at 500℃ (electrode depth : 6 mm).

두 방법으로 얻은 Sm^{3+}의 확산계수와 선행된 연구에서 얻은 확산계수를 Table 1에 나타내었다 [1, 2].

Table 1. Comparison of diffusion coefficients.

	Diffusion coefficient (cm^2/s)
Method 1	8.838×10^{-7}
Method 2	3.382×10^{-6}
Ref. [1]	1.3×10^{-5}
Ref. [2]	1.18×10^{-6}

3. 결론

본 연구는 고온 용융염에서 전기화학 자료를 얻을 때 가장 중요한 작업전극의 면적을 일정하게 하는 방법을 찾아 실험하였다. 우라늄유리를 붙여 만든 작업전극의 확산계수와 높이조절기를 이용하여 작업전극의 높이를 일정하게 한 확산계수의 값은 선행연구의 결과와 차이가 있지만 각각의 경우 재현성 있는 값을 구할 수 있었다.

4. 감사의 글

본 연구는 2015년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행하였습니다. (사업명, No. 2012M2A8A5025923)

5. 참고문헌

[1] G. Cordoba, C. Caravaca, "An electrochemical study of samarium ions in the molten eutectic LiCl+KCl", J. Electroanal. Chem. 572, 145-151 (2004).

[2] T.J. Kim, B.O. Jeong, E.H. Lee, D.H. Ahn, Y.J. Jung and S.W. Paek, "Understanding of Electrochemical Reduction of Sm^{3+} in a LiCl-KCl Molten Salt Solution at 773K", Int. J. Electrochem. Sci. 7, 11257-11263 (2012).

고온 용융염 측정용 액체 수위 공정 분석 시스템 설계

김종윤*, 이진홍, 박태홍, 배상은, 김택진 김시형, 백승우
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*kjy@kaeri.re.kr

1. 서론

본 연구실에서는 실험실용 액체 수위 측정 시스템을 개발하고, 상온의 액체 뿐만 아니라 고온의 용융염의 액체 수위를 측정하였다. 일반적인 산업 공정에서의 액체 수위 측정 기술은 공정의 안전성, 공정 감시 및 제어, 재고관리 등의 측면에서 중요하기 때문에 활발한 기술개발이 이루어지고 있다. 원자력 분야의 경우, 핵물질 계량관리가 매우 중요하므로, 액체의 수위를 정확히 측정해야 한다[1-3]. 액체의 수위를 측정함으로써 용기 내의 액체의 부피를 결정할 수 있고, 액체의 밀도측정 값으로부터 액체의 총 중량을 정확히 결정함으로써 핵 안전조치에 활용할 수 있다. 일반적인 액체의 수위 측정에는 전기적, 기계적, 광학적 방법 등 다양한 방법이 있다[4]. 압력을 이용한 방법은 가장 저렴하고 간단한 측정법으로 알려져 있다. 압력법에는 정수압 측정법, 차압 측정법, 그리고 버블러 측정법 등 세 가지 방식으로 분류할 수 있다. 본 연구실에서는 동적 차압 방식의 압력법을 기반으로 한 새로운 측정 기술을 개발하였다. 기존의 정수압 측정법이나 버블러를 이용한 측정법은 액체 내부에 삽입하여 오랜 시간 접촉을 하기 때문에 부식성의 고온의 액체에 의하여 압력관이 손상될 수 있다. 하지만, 동적 차압 방식의 압력법은 액체와의 접촉을 최소화할 수 있기 때문에 기존의 압력법에서 발생할 수 있는 부식이나 고온의 액체와의 접촉에 의한 관의 손상을 방지할 수 있도록 설계되어 있다. 본 연구에서는 실험실 규모의 스테퍼 모터와 차등압력센서가 장착된 동적 관압력 측정 시스템을 개선함으로써 실제 고온의 용융염을 다루는 용융염 공정 현장에 직접적으로 적용할 수 있는 중대형 분석 시스템을 설계 및 제작하였다. 고온의 용융염 액체 수위 분석 시스템의 성능을 확인하기 위하여 선행연구로서 상온의 물을 사용하여 액체의 양의 변화에 따른 수위 측정 정밀도를 측정 및 평가하였다.

2. 본론

2.1 실험장치

고온 용융염 공정분석용 동적 관압력 측정 시스템은 Fig. 1과 같이 스테퍼모터, 압력측정관, 압력 센서, 용기 및 고온의 용융염에서 발생하는 열을 차단하기 위한 열차단막 등으로 이루어져 있다. 압력측정관은 최대 50 cm까지 이동할 수 있으며, 압력측정관을 적절한 속도로 상하 이동이 가능하도록 programmable logic controller(PLC)에 의해 제어되는 스테퍼모터 사용하고, LabVIEW를 접목한 자체 제작 제어 프로그램을 사용하였다. 압력측정관 내에 기체를 주입하기 위하여 공기압축기를 사용하였고, 압력측정관 내의 압력은 차압압력센서를 이용하여 측정하고 그 결과는 LabVIEW 화면에 나타날 수 있도록 프로그램을 제작하였다. 초기 주입되는 기체의 압력은 니들밸브를 이용하여 조절하였다.

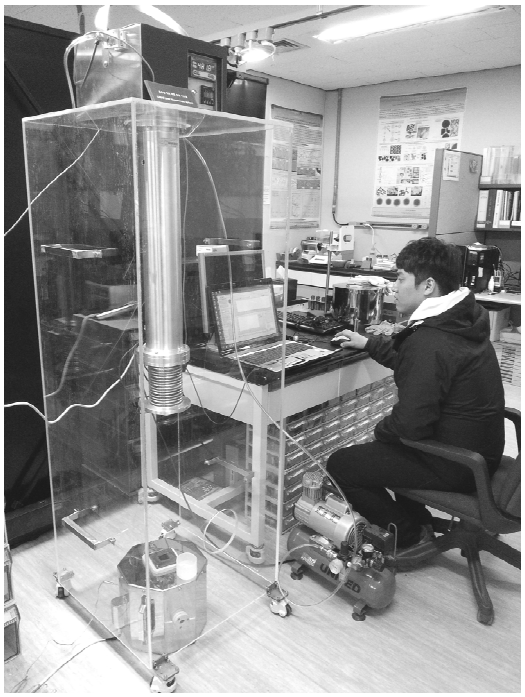


Fig. 1. High-temperature level measurement system.

2.2 실험방법

선행연구로서 고온의 용융염 대신 상온의 물을 스테인레스 용기에 담고 적절한 높이에 위치하도록 조정하여 시료를 장착하였다. 일반 저울을 사용하여 소수점 둘째자리 측정함으로써 각각 100, 200, 300, 400, 500, 600 g의 물을 용기에 담아 수위 측정에 사용하였다. 압력측정관은 스테퍼모터를 사용하여 정밀한 위치 제어가 가능하도록 하여, 액체의 표면 근처까지 하강하도록 하였고, 압력측정관이 액체의 표면에 닿았을 때에 측정 압력이 크게 증가하는 지점까지의 이동 거리를 측정함으로써 액체의 높이를 측정하였다.

액체 수위 측정은 두 개의 단계로 이루어져 측정을 가능하면 빠르고 정확하게 측정할 수 있도록 설계하였다. 즉, 액체 수위 측정의 첫 번째 단계에서는 상대적으로 빠른 속도로 하강하여 한계압력변화의 설정값 이상으로 압력 측정값이 증가하면 즉시 멈추고 정확히 1 cm 상승한 후 5 초 동안 대기한 후, 두 번째 단계에서는 다시 아래로 느리게 하강함으로써 한계압력변화 설정값을 초과하는 지점에서 측정을 종료하고, 이때까지의 이동 거리를 화면에 나타내고, 즉시 원위치로 복귀하도록 설정하였다.

2.3 실험결과

Fig. 2는 고온용 동적 관압력 측정 시스템을 사용하여 상온의 물에 대하여 15회씩 반복 측정한 결과이다. 물의 양이 각각 100, 200, 300, 400, 500, 600 g로 증가함에 따라 이동 거리는 383.63 ± 0.19, 32.67 ± 0.06, 274.20 ± 0.04, 219.39 ± 0.13, 164.82 ± 0.12, 110.15 ± 0.11 mm로 선형적인 감소의 경향을 나타내었다. 모든 측정값에 대하여 표준편차는 최대 0.19 mm이었다.

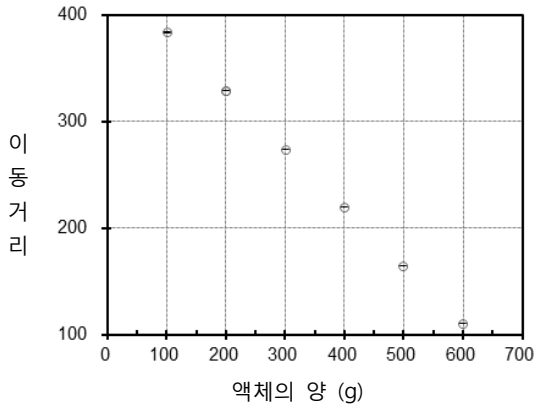


Fig. 2. Gravimetric calibration curve.

3. 결론

본 연구에서는 실제 용융염 공정 현장에서 사용 가능하도록 중대형의 고온 용융염 액체 수위 측정 시스템을 설계 및 제작하였고, 상온의 물을 사용하여 기본적인 측정 성능을 평가하였다. 동적 관압력 측정 시스템을 사용함으로써 다양한 양의 물를 포함하는 액체의 수위를 측정한 결과 mm 수준 이하의 측정 정밀도를 확인하였다.

4. 감사의 글

이 논문은 2015년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구이다 (No. 2012M2A8A5025923).

5. 참고문헌

[1] M.C. Miller and D.A. Vega, Nucl. Eng. Technol. 45(6), 803-810 (2013).

[2] R.D. Mariani and D. Vaden, J. Nucl. Mater. 404, 25-32 (2010).

[3] G.L. Yoder Jr., A. Aaron, B. Cunningham, D. Fugate, D. Holcomb, R. Kisner, F. Peretz, K. Robb, J. Wilgen, and D. Wilson, Ann. Nucl. Energy 64, 511-517 (2014).

[4] Emerson process Management, The Engineer's Guide to Level Measurement, USA(2013).

고온 휘발 산화공정에서의 안정상 검토를 위한 상도 분석

강조홍, 박병흥*
한국교통대학교, 충청북도 충주시 대학로 50
*b.h.park@ut.ac.kr

1. 서론

Voloxidation 공정으로 명명된 고온 휘발 산화 공정은 산화물 사용후핵연료를 기체와 고온에서 반응시켜 휘발성 물질을 제거하는 동시에 산화시킴으로 고상의 물리적 형태를 변화시킬 목적으로 도입된다. 전기화학적 반응을 중심으로 구성된 파이로 공정에서 voloxidation 공정은 전해환원 공정에 도입되는 산화물의 전처리 개념으로 연계되어 있다[1].

산화를 목적으로하는 voloxidation 공정의 특성상 산화 분위기의 기체가 반응기에 도입되어 반응이 진행된다. 그러나, 산화 후 환원 분위기의 기체가 고온 반응기에 도입되면 다시 고체는 환원되어 산화-환원을 순차적으로 발생시킬 수 있다. 이러한 산화-환원 공정은 DUPIC 연료 제조를 위해 사용된 OREOX 공정[2]이 대표적이며 PWR 사용후핵연료를 처리하는 파이로 공정에서도 전해환원 반응기에 도입되는 고체의 형상 변경을 위해 사용된다.

산화 분위기 기체로는 공기와 산소가 고려되고 있다. 한편, NO_2를 도입하여 산화시키는 연구 또한 진행되고 있다[3]. NO_2를 사용하여 산화시키는 경우 반응 온도를 낮출 수 있는 것으로 나타났다. 환원을 위해서는 수소 기체가 사용된다. 결과적으로 사용후핵연료의 대부분을 차지하는 UO_2에 대해 산화 또는 환원시키는 반응은 도입되는 기체에 따라 다음과 같이 요약할 수 있다.

Air/O_2 산화 (> 700°C):

$$3UO_2 + O_2 \rightarrow U_3O_8 \quad (1)$$

NO_2 산화 (≃ 500°C):

$$3UO_2 + 2NO_2 \rightarrow U_3O_8 + 2NO \quad (2)$$

H_2 환원 (> 700°C):

$$U_3O_8 + 2H_2 \rightarrow 3UO_2 + 2H_2O \quad (3)$$

위와 같은 반응들에서 반응 (1)은 공기가 도입되는 경우 기상에 O_2, N_2가 존재하고, 반응 (2)는 기상에 NO_2와 NO가 존재하며, 반응 (3)에서는 H_2와 H_2O가 기상에 존재하게 된다. 이러한 기체 혼합물과 평형을 이루고 있는 반응 온도와 함께 기체 성분의 분압에 의해 안정상이 결정된다. 안정상은 후속 공정에 도입되는 산화물의 형태를 결정하는 것이므로 이에 대한 분석은 공정 구성을 위해 필수적이다.

본 연구에서는, voloxidation 공정에서 사용될 수 있는 기체 조건에 따라 사용후핵연료 구성 원소의 안정상을 상평형도를 사용하여 분석하였다.

2. 온도-분압 상도

반응하는 기체와 고체에 관련된 상도는 관심 공정 조건에서 안정적인 상을 판단하기 위한 정보를 제공한다. TPP (temperature-pressure- pressure) 상도는 온도와 함께 기상의 분압에 따라 안정적인 상을 제시하는 상평형도의 일종이다. TPP 상도는 온도와 두 분압 중 두 변수가 주어졌을 때 세 원소를 대상으로 Gibbs 에너지를 최소화시켜 작성되며 상도에서 선으로 구분되는 면들은 안정적인 상들을 의미한다. 예를 들면, 우라늄 산화물을 공기 분위기에서 산화시킬 때 반응 (4)와 같은 질화우라늄이 안정적인지 판단하기 위해서는 평형상수를 계산해야한다.

$$UN_2 + 3O_2\,(g) \rightarrow UO_2 + 2NO_2\,(g) \quad (4)$$

평형상수는 다음과 같이 두 기체의 분압에 의해 결정된다.

$$K = \frac{a_{UO_2} P_{NO_2}^2}{a_{UN_2} P_{O_2}^3} \quad (5)$$

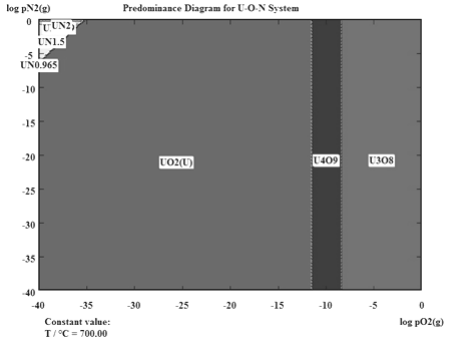
주어진 온도에서 평형상수는 일정하므로 위 식은 분압의 관계식으로 다음과 같이 정리된다.

$$\log P_{NO_2} = \frac{3}{2}\log P_{O_2} + \frac{1}{2}\log K \qquad (6)$$

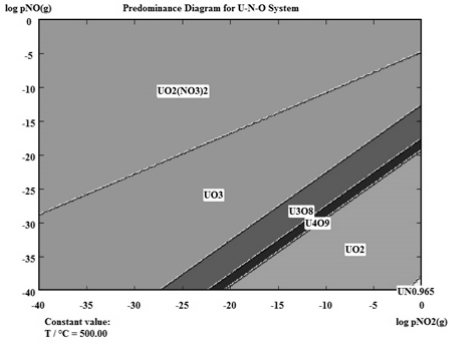
따라서, 안정적인 상의 경계를 두 분압의 함수로 그릴 수 있다.

이와 같은 방법으로 계에서 고려할 수 있는 모든 화합물을 대상으로 TPP 상도를 구성하면 공정 조건에 따른 안정적인 상을 구성할 수 있다.

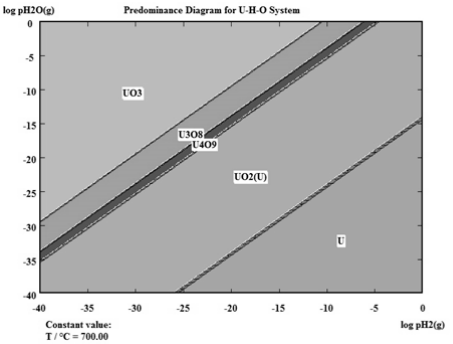
3. Voloxidation 공정에서 우라늄의 TPP 상도 및 분석 결과



(a) Air oxidation



(b) NO_2 oxidation



(c) H_2 reduction

Fig. 1. TPP diagram for uranium oxide oxidation/reduction.

앞서 정리한 산화-환원 반응을 기준으로 우라늄에 대한 TPP 상도를 구성하면 Fig. 1과 같다.

Fig. 1(a)는 공기 분위기 산화에서의 안정상들을 보여주고 있으며 Fig. 1(b)와 (c)는 각각 NO_2 산화와 H_2 환원에서의 안정상들을 보여 주고 있다.

Fig. 1(a)를 분석할 경우 UO_2는 산소 분압의 증가에 따라 U_4O_9을 거쳐 U_3O_8으로 산화되면 공기 내에 포함된 질소에 의한 질화물을 생성되지 않을 것으로 판단된다. 반면 NO_2 산화의 경우 생성된 NO를 적절히 제거하지 않을 경우 높은 NO의 분압에 의해 $UO_2(NO_3)_2$의 화합물 생성이 예상된다. H_2 환원의 경우 생성된 상압 H_2O조건까지는 UO_2로 환원시킬 수 있는 것으로 나타났다.

4. 결론

본 연구에서는 voloxidation 공정에서 발생할 수 있는 산화-환원 반응에 대해 사용후핵연료 구성 성분의 안정상을 분석하였다. 공정 조건의 변경에 따른 안정상의 변화 또는 공정 과정에서 고체상의 변화를 예측하기 위해 상도 분석이 유용하게 활용될 수 있으며 이를 통해 후속 공정에서 도입되는 고체 산화물의 화학적 특성을 판단할 수 있을 것이다.

5. 참고문헌

[1] H. 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, 317-328, 2011.

[2] T. J. Lee, Prog. Nucl. Energ., 45, 87-104, 2004.

[3] L. V. Kobets and G. N. Klavsut, Soviet Radiochemistry, 28, 657-660, 1986.

Impact of High Burnup on the Management of PWR Spent Fuel

Phina Thauge[1*], Yong Deog Kim[2], and Chang Lak Kim[1]
[1]KEPCO International Nuclear Graduate School, 658-91 Haemaji-ro, Seosaeng-myeon Ulju-gun, Ulsan
[2]KHNP Central Research Institute, 70 1312-gil Yuseong-daero Yuseong-gu, Daejeon
*phee.pt@gmail.com

1. Introduction

The management of spent fuel discharged from nuclear power reactors is one of the major challenges associated with nuclear energy. Currently, about 750 tons of spent fuel is generated annually from the 23 operational nuclear power plants in Korea. Most of the spent fuel is stored in wet storage pools on site as there are no centralized dry storage facilities or high-level waste disposal facilities in the country at present. In order to make nuclear power technology attractive, Korea needs to demonstrate that nuclear waste arising from its reactors can be managed and disposed of in a safe manner.

The current fuel management trend is now shifting towards increasing fuel burnup with the advantages of reducing the fissile content and number spent fuel assemblies generated. However, the influence of fuel burnup on spent fuel decay properties has not been extensively studied.

The aim of this study is to investigate the influence of high burnup on the management of spent fuel in Korea.

2. Decay Heat Analysis

The SCALE/ORIGEN code was used to calculate the decay heat power of OPR1000 spent fuel as a function of time. Three cycles of reactor operation and constant specific power during each irradiation were assumed. Decay effects during shutdown/ refuelling periods were considered to be negligible.

As shown in Figure 1, the decay power of OPR1000 spent fuel decreases over 1 million years after discharge from the reactor. The same trend is observed for fuel with different burnups from 25 MWd/kgU to 60 MWd/kgU, with higher burnup fuel releasing more decay heat than the lower burnup fuel.

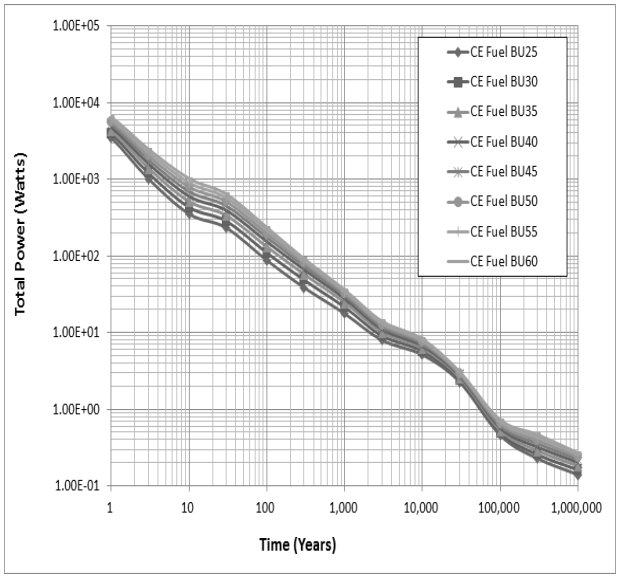


Fig. 1. Decay heat power of OPR1000 spent fuel as a function of burnup.

In all burnup scenarios, the decay heat of fission products is initially higher than the decay heat of actinides. As shown in Figure 2, crossover 45 MWd/kgU burnup fuel takes place after 60 years, where the actinides now dominate the decay heat profile for the fuel. For 60 MWd/kgU burnup fuel, crossover takes place after 50 years of fuel discharge from the reactor.

When comparing 45 MWd/kgU fuel with 60 MWd/kgU fuel, the 60 MWd/kgU fuel has a slightly higher decay heat release from fission products between 3 and 10 years of fuel discharge from the reactor. ^{144}Pr dominates the fission product decay heat power profile in the first 10 years after discharge for 45 MWd/kgU fuel compared to the first 3 years after discharge for the 60 MWd/kgU fuel. After that, ^{90}Y becomes the biggest fission product decay heat contributor until 1000 years after discharge for both burnups. ^{90}Sr and ^{137}Cs are also

the other major contributors to fission product decay heat until 400 years. ^{99}Tc and ^{126}Sn become the leading fission product nuclides for both burnups beyond 1000 years.

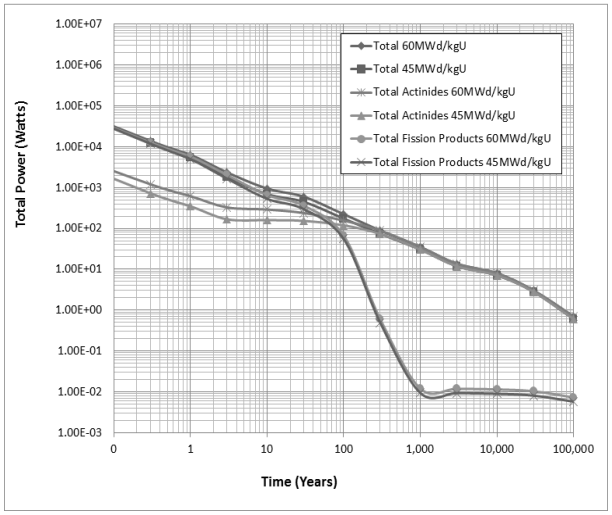


Fig. 2. Decay heat power profiles of 45 and 60 MWd/kgU burnup fuels.

As illustrated in Figure 2, actinides are the major contributor to the difference in decay heat between the 45 MWd/kgU and 60 MWd/kgU fuels. In the first 100 years, the actinide decay heat of 60 MWd/kgU fuel is much larger than the 45 MWd/kg actinide decay heat.

For both burnups, the actinide decay heat profiles show that ^{242}Cm dominates in the first year. ^{244}Cm and ^{238}Pu then dominate the actinide decay heat profile until 20 years after discharge for 45 MWd/kgU fuel, and until 30 years after discharge for the 60 MWd/kgU fuel. Following that, both fuel trends show that ^{241}Am dominates until 1500 years. From 2000 years onwards, ^{240}Pu and ^{239}Pu are the predominant actinide decay heat nuclides for both fuels.

3. Discussion

High burnup fuel offers the advantage of reducing the volume of spent fuel generated but results in additional decay heat being produced by actinides. The additional decay heat affects the design requirements and increases the costs for the transport, interim dry storage and disposal of spent fuel.

Extended storage of high burnup fuel beyond 100 years will significantly reduce the decay heat load (see Figure 2) but there are still many uncertainties regarding the integrity of high burnup fuel under long-term storage conditions.

KAERI has developed pyroprocessing technology as a potential option for recycling spent fuels from PWRs [1]. The planned Korea Advanced Pyroprocess Facility (KAPF) will process about 100 tonnes of spent fuel heavy metal annually [1]. This capacity is still not sufficient for treating the current and anticipated volumes of PWR spent fuel generated annually. It is recommended that target reprocessing be implemented on higher burnup fuels as this will provide more economic benefit considering the limited processing capacity.

One key challenge to pyroprocessing is the Nuclear Cooperation Agreement with the United States (US) as this technology might be perceived to have the potential of sparking interest in full-scale Pu utilization [2].

4. Conclusion

Higher burnup fuel will impact on interim dry storage and disposal requirements as a result of additional decay heat produced by actinides.

The pursuit of pyroprocessing technology is a major step towards addressing the challenges of spent fuel management in Korea. Once feasible, this technology will significantly optimize the use of high burnup fuel.

5. References

[1] Ko, W. I., Lee, H. H., Choi, S., et al., "Preliminary Conceptual Design and Cost Estimation for Korea Advanced Pyroprocessing Facility Plus", Nuclear Engineering and Design, Vol. 277, 212–224 (2014).

[2] Ahn, J., "Roles and Effects of Pyroprocessing for Spent Nuclear Fuel Management in South Korea", Progress in Nuclear Energy, Vol. 75, 49-62 (2014).

중간저장시설용 사용후핵연료 금속겸용용기의 안전설계 및 검사기준 수립에 대한 고찰

김태만*, 도호석, 조천형
한국원자력환경공단, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*tmkim@korad.or.kr

1. 서론

상용원전에 발생된 사용후핵연료는 노심에서 인출된 이후 고방사능과 열발생으로 인하여 습식 저장조에서 안전하게 저장관리 된다. 이와 같은 저장에 필요한 용량은 지속적으로 증가하고 있지만, 저장조의 용량은 특정 기간 동안 핵연료를 보관후 후 제거(인출)될 것이라는 가정으로 건설되었기 때문에 곧 포화가 예상되고 있다. 이를 해결하기 위하여 추가적인 중간저장에 대한 요구가 현실적인 대안으로 거론되고 있으며, 건식으로 저장하는 방식은 이미 안전성이 입증되어 효율성과 경제적 측면을 모색한 여러나라에서 상용화가 추진되었다.

한국원자력환경공단에서 주관하는 '사용후핵연료 수송/저장 시스템 상용화 기술개발'과제에서는 건식 중간저장시설에 활용될 금속겸용용기의 국내 고유모델를 개발하고 있다[1]. 이에, 본 연구에서는 금속겸용용기의 설계승인에 필요한 기술서류를 생산하기 위하여 일본 원자력학회에서 발간한 「사용후연료 중간저장시설용 금속겸용용기의 안전설계 및 검사기준, 2010)」을 참조하여 분석하고 적용방안을 모색하고자 한다[2].

2. 본론

2.1 목적

이 지침은 사용후핵연료 중간저장시설의 금속겸용용기의 설계자, 제조자 및 사용자가 금속겸용용기를 설계·제조·사용할 때 안전설계 및 검사방법을 규정함으로써 사용후핵연료의 중간저장 및 수송에 대한 안전을 확보하는 것을 목적으로 하고 있다.

2.2 안전설계기준

본 설계기준은 주요 분야별 설계요건을 중심으로 기술하였다.

2.2.1 격납설계

수송 또는 저장시에 개스킷(Gasket)을 사용한 경납경계, 용기본체와 뚜껑(일차뚜껑, 2차뚜껑, 필요시 3차뚜껑 및 이 뚜껑에 부속되는 포트) 용접부가 포함된다. 저장용 개스킷은 내열성 및 내식성을 보유하고 내구성이 높은 금속개스킷을 사용한다. 저장에 사용되는 금속개스켓은 수송시 외부 충격에 대해 저장에 필요한 격납기능이 손상되어서는 안된다. 설계수명 기간 동안의 일차뚜껑의 격납기능 상실 및 격납설계에 사용되는 연료피복관에서 핵분열 생성가스의 방출함을 가정한 금속겸용용기의 내부압력 상승을 평가해야 한다.

2.2.2 차폐설계

금속겸용용기는 저장대상 사용후핵연료의 방출 방사선에 대하여 수송규정 및 저장규정에서 정하는 선량기준값을 초과하지 않는 구조로 설계해야 한다. 또한, 사고시에 차폐기능의 저하가 발생될 경우에 필요한 조치(예 : 추가 차폐체 장착)를 취함으로서 시설 밖에 반출할 수 있는 설계가 되어야 한다.

2.2.3 미임계설계

금속겸용용기는 바스켓의 기하학적 형상 및 중성자흡수 재료(예: 붕소)에 의해 기술적으로 예상되는 어떠한 상황에 대하여서도 임계에 도달하는 것을 방지하는 구조로 설계하여야 한다.

2.2.4 제열설계

금속겸용용기는 기본 안전기능 및 구조강도를 지지하는 부품과 사용후핵연료 피복관이 건전성을 유지할 수 있도록 사용후핵연료의 붕괴열을 제거하는 구조로 설계해야 한다.

2.2.5 구조강도설계

기본적인 안전기능을 보장하는 부품은 그에 필요한 구조강도를 가져야 하며, 금속겸용용기의 기본적 안전기능을 유지하는데 필요한 내용물(사

용후핵연료)의 구조건전성을 유지 할 수 있도록 설계해야 한다.

2.3 검사항목

금속겸용용기의 검사는 [표1]에 해당하는 각 단계에 있어서 금속겸용용기가 기본적 안전기능 및 구조강도를 유지함을 확인해야 한다. 또한, 원자력 발전소 반출이후의 단계에 있어서는 장전된 사용후핵연료가 건전성을 유지하고 있음을 확인한다.

3. 결론

일본 원자력학회에서 발간한「사용후연료 중간저장시설용 금속겸용용기의 안전설계 및 검사기준, 2010)」은 국내 금속겸용용기 개발에 필요한 안전설계 기준 및 제작/운영에 필요한 검사기준을 수립하는데 효율적으로 활용될 수 있을 것이다. 다만, 본 지침을 활용함에 있어 용접된 캐니스터를 활용하는 용기에 대한 별도의 기준을 추가로 검토해야할 것으로 사료된다.

4. 감사의 글

본 연구는 산업통상자원부 방폐물관리기술개발 중장기 기획과제의 일환으로 수행되었음.

5. 참고문헌

[1] 사용후핵연료 수송/저장 시스템 상용화 기술개발 2단계 평가보고서, 한국원자력환경공단, (2014).

[2] 사용후핵연료 중간저장시설용 금속캐스크의 안전설계 및 검사기준, 일본원자력학회표준, (2010).

Table.1 Inspection Lists of Dual-Purpose Metal Cask

검사수행장소		제조공장	원자력발전소	중간저장시설			
확인항목	검사단계	제조시	발전소반출전	저장전	저장기간중		저장후 방출전
	검사확인기능 / 검사항목	저장·수송	수송	저장	저장	수송	수송
일반	재료검사	◎	-	-	-	-	-
	치수검사	◎	-	-	-	-	-
	외관검사	◎	◎	◎	◎	○	◎
	용접검사	◎	-	-	-	-	-
밀봉기능	기밀누설검사	◎	◎	○,◎	-	○	◎
	압력측정검사	-	◎	○,◎	-	-	○
	뚜껑간 압력검사	-	-	◎	○	-	-
차폐기능	차폐성능검사	◎	-	-	□	○	-
	선량율검사	-	◎	◎	-	-	◎
임계방지	미임계검사	◎	◎	○	○	○	○
제열기능	전열검사	□	-	-	□	○	-
	온도측정검사	-	◎	◎	-	-	◎
	표면온도검사	-	-	◎	◎	-	-
구조강도	내압·누설검사	◎	-	-	-	-	-
	적상하중검사	◎	-	-	-	-	-
	적상검사	-	◎	◎	-	○	◎
	중량검사	◎	○	○	-	-	○
	설치검사	-	-	◎	-	-	-
사용후연료	수납물검사	-	◎	○	○	-	○
기타	취급검사	◎	-	-	-	-	-
	작동확인검사	◎	-	-	-	-	-
	표면밀도검사	-	◎	◎	-	-	◎

[주기]

◎ : 직접 확인할 것

○ : 기록을 확인할 것

□ : 대표겸용용기에 대해 직접 확인할 것

- : 검사대상에서 제외.

사용후핵연료 저장조에서의 운반용기 낙하사고 검토

정성환*, 김기영
한수원㈜중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70
*sunghchung@khnp.co.kr

1. 서론

원전 사용후핵연료 저장조의 저장용량이 포화에 이르면서 안정적인 원전운영에 필수적인 저장용량을 확보하기 위하여, 경수로 원전의 경우 저장조의 저장공간이 부족한 호기에서 여유가 있는 동일 부지의 인근호기로 사용후핵연료를 운반하여 저장하고 있으며, 중수로 원전은 원전부지내의 건식 저장시설을 운영하여 사용후핵연료를 운반·저장하고 있다. 경수로 원전부지내 사용후핵연료 운반은 1990.7월 고리1호기에서 고리3호기로의 운반을 시작으로 현재는 모든 경수로 원전부지에서 호기간 운반이 이루어지고 있다. 지금까지 25년간 원전부지내에서 사용후핵연료를 운반하였으나 단 한 번의 운반사고도 없이 안전하게 운반·저장되었다. 원전부지내 운반이라 하더라도 관련법규에 따라 원전부지 밖에서와 동일한 규제요건을 적용받고 있으며, 국내외의 엄격한 기술기준을 준수하여 설계·제작되어 정부로부터 인허가를 받은 운반용기와 운반시스템을 구축하고 있다(현재 KN-12 및 KN-18 운반용기 활용). 그러나 안전성이 확보된 운반체계에서 운반이 되고 있지만 원전 연료건물에서의 연료장전·저장(Fig. 1) 및 원전부지내의 운반(Fig. 2) 단계에서 잠재적 사고가능은 존재하고 있다. 특히 운반용기는 관련법규에 따라 운반도중의 낙하, 충돌 등의 가상사고에 대하여 안전성이 입증되었지만 거의 100여톤에 이르는 중량물이므로(KN-12 운반용기는 취급중량이 약75톤, KN-18 운반용기는 약108톤) 이러한 중량물의 취급으로 인하여 사고가 발생하며 심각한 양상을 전개시킬 수 있다. 여기서는 원전의 연료건물내에서 중량물인 운반용기가 가장 크게 영향을 줄 수 있는 사용후핵연료 저장조(spent nuclear fuel pool)에서의 낙하사고에 대하여 살펴보고 대책을 검토하였다.

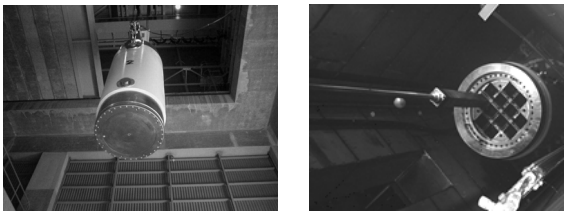


Fig. 1. Fuel loading in the fuel building.



Fig. 2. Transport in the NPP site area.

2. 본론

사용후핵연료 운반을 위하여 운반용기를 적재한 차량이 연료건물내로 진입하면, 운반용기는 정격용량 113톤(고리1호기의 경우 83톤)의 운반용기 취급크레인을 이용하여 차량에서 하차시켜, 제염조(DP)로 이동시키고, 장전조(CLP)로 이동하여 연료를 장전하며(Fig. 3), 이를 다시 제염조로 이동시키고 차량에 상차하여 연료건물 외부로 반출하여 대상호기로 운반을 하게 된다. 대상호기로 운반된 운반용기는 마찬가지로 연료건물내로 진입하여 연료저장을 위하여 취급크레인을 이용하여 차량하차, 제염조 및 장전조로 이동시키어 저장조에서의 연료저장이 완료되면, 다시 제염조 이동 및 차량상차 후에 연료건물 외부로 나오게 된다.

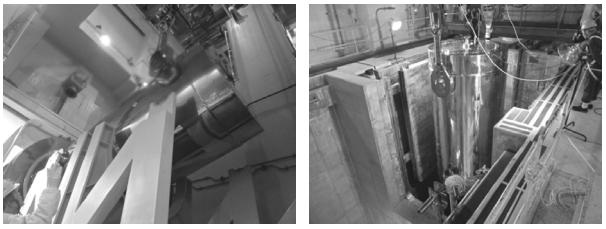
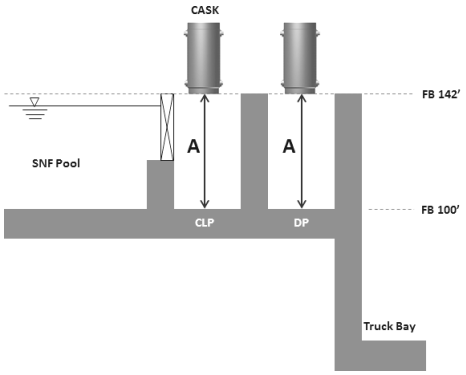
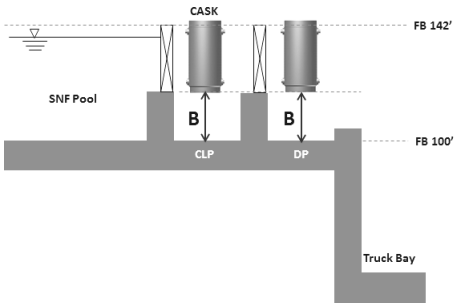


Fig. 3. Cask unloading and move to DP or CLP.

이러한 일련의 연료건물내부에서 제염조 및 장전조로의 운반용기 취급 및 이동은 각 원전에 따라 차이가 있는데, Fig. 4에 나타낸 것과 같이 저장조 상부까지 운반용기를 인양하여 제염조나 장전조에 안착시키는 방법(unit A)과 제염조와 장전조 사이에 gate가 있어 이를 통하여 운반용기를 이동하여 안착시킨다(unit B). 장전조는 연료 장전 및 하역을 위하여 저장조의 물을 비운 상태에서 운반용기를 안착시키고 있다. 만약 연료건물의 운반용기 취급크레인에 문제가 생겨 운반용기를 떨어뜨리는 사고가 발생한다고 하면, 저장조 상부를 운반용기를 이동시키는 경우 장전조나 제염조의 바닥면 위로 12 m 이상의 높이에서(height A) 운반용기가 낙하하게 되고, gate를 통하여 이동하는 경우는 약 6~7 m의 높이에서(height B) 운반용기가 낙하하게 된다. 운반용기가 제염조나 장전조의 바닥면 위로 낙하하는 사고가 발생하면 운반용기가 100여톤에 이르는 거대 금속제 중량물이므로 바닥면인 콘크리트 구조물의 건전성을 보장하기가 쉽지 않다. 제염조와 장전조의 바닥면은 다량의 사용후핵연료를 저장하고 있는 저장조의 바닥면과 연결된 일체의 구조물이므로 운반용기가 낙하하면 제염조와 장전조 바닥면에 손상이 가고 연결된 저장조 바닥면의 손상을 야기하여 저장조의 냉각수를 누출시키는 심각한 사고가 발생할 수 있다.



(a) Unit A



(b) Unit B

Fig. 4. Cask handling in fuel building.

운반용기의 중량이 취급크레인 정격용량에 근접하므로 연료건물내에서 운반용기는 아주 신중하게 취급하여 안전하도록 하여야 한다. 그러나 제염조 또는 장전조에서의 운반용기 낙하사고에 대비하여 저장조 구조물에 영향이 없이 건전성을 유지하는 대책을 검토하는 것이 필요하다. 먼저, 연료건물 운반용기 취급크레인(Fig. 5)을 원전 크레인의 안전운전을 위한 USNRC의 NUREG-0554에 따른 single-failure-proof crane으로의 교체를 생각할 수 있다. 이는 크레인의 어떠한 단일사고로 인한 손상 및 낙하를 방지하기 위하여 설계하도록 하고 있다. 외국의 경우는 장전조내에 냉각수를 가득 채운 상태에서 운반용기를 안착시키고 있기도 한데(Fig. 6), 장전조에 있는 냉각수의 유체저항에 의한 감쇄효과로 운반용기가 낙하되더라도 충격하중을 완화시키는 것이 가능하다. 냉각수로 채워진 장전조로 운반용기를 안착시키기 위해서는 운반용기 취급장비의 일부분이 냉각수에 잠기게 되어 장전조를 오염시킬 수 있으므로 이를 고려하여 취급장비를 설계하여야 한다.



Fig. 5. Cask handling crane of the fuel building.

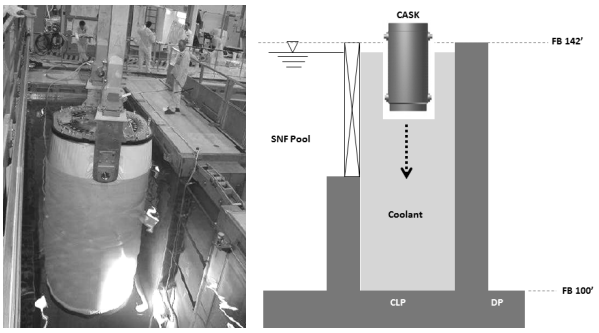


Fig. 6. Cask handling in the containing coolant.

운반용기 낙하사고에 대비한 또 다른 대책은 장전조 또는 제염조의 바닥에 낙하로 인한 충격하중을 흡수하는 충격완충체(impact limiter)를 활용하는 방안이다. 폴리우레탄 폼, 허니컴 또는 발사나무 등의 충격흡수능력이 뛰어난 재질을 채우고 운반용기 중량을 견디는 구조물을 장전조 또는 제염조의 바닥에 설치하여 운반용기의 낙하사고로 인한 충격하중을 완화시켜 저장조 구조물의 건전성을 확보할 수 있다.

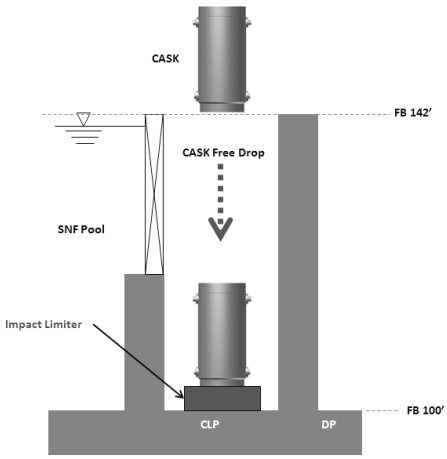


Fig. 7. Installation of impact limiter in the CLP.

3. 결론

원전부지내 사용후핵연료 운반이 빈번하게 이뤄지고 있는데, 운반과정에서 특히 100여톤에 이르는 거대중량물인 운반용기의 연료건물내 취급 및 이동 중 발생가능한 제염조 또는 장전조 바닥면 위로의 낙하사고는 사용후핵연료가 저장된 저장조 구조물에 손상을 가하고 나아가 저장조 냉각수의 유출을 야기할 수 있는 심각한 사고로 이어질 수 있다. 이러한 저장조에서의 운반용기 낙하사고에 대비하여 사용후핵연료 운반 안전성을 확보하는 것이 무엇보다 필요하다.

4. 참고문헌

[1] NUREG-0554, Single-Failure-Proof Cranes for Nuclear Power Plants, USNRC, 1979.

[2] P.W Noss and J. Witte, "Impact Mitigation of a Multipurpose Transfer Cask During Spent Fuel Canisterization", WM'99 Conference, 1999.

사용후핵연료 저장방식 고찰

정성환*, 김용덕, 김기영
한수원㈜중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70
*sunghchung@khnp.co.kr

1. 서론

세계 각국은 원전에서 발생하는 사용후핵연료를 안전하고 효율적으로 저장하기 위하여 습식저장조(pool) 및 건식분위기의 저장용기(cask), 모듈(module), 볼트(vault) 등 다양한 종류의 저장방식을 개발하고 원전부지내 또는 원전부지이외의 지역에서 운영하고 있다(Fig. 1~Fig. 4). 그러나 이러한 사용후핵연료 저장에 대하여 과거에는 저장요건이 안전성(safety)을 중시하였지만, 미국의 911 사건 이후 보안(security)에 대한 관심이 급증하였으며, 후쿠시마 사고이후 심각한 자연재해에 대한 우려도 크고, 중간저장 또는 처분에 대한 불확실성이 높아지면서 장기저장 건전성과 사회적 수용성이 요구되고 있다. 아울러 증가하는 사용후핵연료 저장량 추세에 따라 저장방식에 대한 경제성 역시 주요 현안이다. 현재 운영되고 있는 여러 저장방식은 관련 기술기준에 따라 안전성이 입증되고 규제요건에 따른 인허가도 획득하였기에 문제가 있는 것은 아니지만, 여기서는 기존의 저장방식 이외에 최근에 부각되고 있는 안전성 강화, 경제성 및 사회적 수용성 등의 인자들을 고려하여 또 다른 사용후핵연료 저장방식을 살펴보고자 한다.

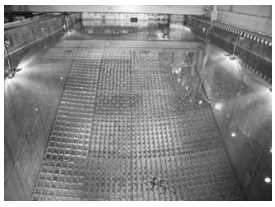


Fig. 1. Pool.



Fig. 2. Cask.



Fig. 3. Vault.



Fig. 4. Module.

2. 본론

사용후핵연료 저장방식은 수중에 저장되는 습식저장조를 제외하면 대부분의 건식저장계통은 지상에 설치되는 구조이며, 건식저장계통은 역시 외부에 노출된 상태 또는 지상의 시설내에 주로 설치된다. 지상시설에 대하여 항공기 충돌등의 외부사건에 대비한 물리적 방호를 강화하기 위하여 독일, 일본, 스위스 등은 건식저장계통을 구조물이 보강된 건물내에 보관하는 추세이다(Fig. 5). 특히 미국의 911 사건 이후 항공기 충돌에 대한 안전성 강화 요구가 점증하고 있으며(Fig. 6), 미국정부는 블루리본위원회(BRC)를 통하여 원전운영자에게 소내 건식저장시설의 안전성을 강화시키라고(HOSS, Hardened On-Site Storage) 권고하였다. 미국에서는 건식저장계통이 지하에 매몰되는 지하저장방식을 개발하여 시설을 건설하기도 하고(Fig. 7), 독일의 한 원전은 원전부지내에 터널을 뚫고 터널내부에 건식저장계통을 설치하는 터널저장시설을 건설하여 운영하고 있다(Fig. 8). 건물 내에 건식저장계통을 보관하는 방식 역시 건물이 외부에 노출되는 구조이나, 지하저장방식과 터널저장방식은 외부에 노출되지 않는다. 건식저장계통 또는 저장건물이 외부에 노출되지 않는 저장방식은 특히 미국 911 사건이후의 급증하는 보안성 강화 및 후쿠시마 사고이후 원전시설의 자연재해 사고를 우려하는 사회적 및 주민 수용성 제고 차원에서 여러가지로 고려하여야 할 점이 많다.



Fig. 5. In-door storage.

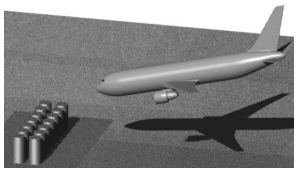


Fig. 6. Aircraft Crush.



Fig. 7. Underground storage.



Fig. 8. Tunnel storage.

지상건물 내에 건식저장계통을 보관하는 경우 방사선적 기준을 만족시키기 위해서는 충분한 차폐성이 요구되며, 아울러 항공기 충돌 등에 견디기 위해서는 벽체 또는 상부가 두껍고 복잡한 구조물이어야 한다. 그러나 지하에 시설을 만들어 건식저장계통을 저장한다면(Fig. 9, Fig. 10, Fig. 11) 시설 주위의 암반 또는 토양 자체가 방사선 투과에 대하여 차폐성능을 발휘하여 차폐설비의 경감이 가능하고, 또한 자연재해는 물론 외부사건에 대한 방벽 역할을 할 수 있을 것이다. 이외에도 방사성물질의 비산 등에 대한 안전성이나 시설이 외부에 노출되지 않는 경관의 관점에서도

주민 수용성을 제고하는데 지상시설에 비하여 장점이 있다. 저장계통의 중요한 요건인 내진성에 대하여는 일반적으로 지상보다 지하의 지진동 영향이 작으므로 지하저장시 내진성능을 향상시킬 수 있다. 특히 스테인리스강 재질의 건식저장계통에 대하여 관심이 고조된 외부로 부터의 직접적인 염화물 침투가 어렵기에 염해부식에 의한 응력부식균열(SCC)에 대한 가능성이 낮아 장기저장에 따른 안전성을 확보할 수 있다. 이러한 내진성, 장기저장 건전성 및 수용성 측면에서 지하저장방식은 인허가성이 높다고 볼 수 있다. 경제성은 지하저장방식이 지상방식에 비하여 크게 차이가 나지 않는다.

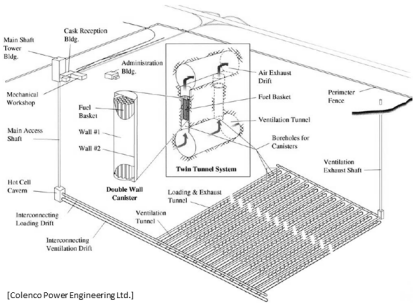


Fig. 9. Concept of Swiss underground storage facility.

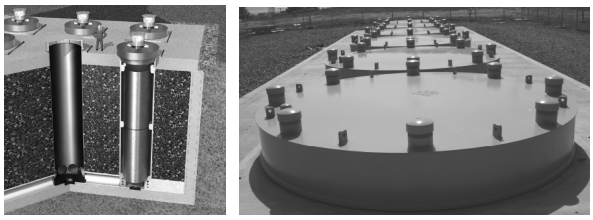


Fig. 10. Holtec underground storage facility.

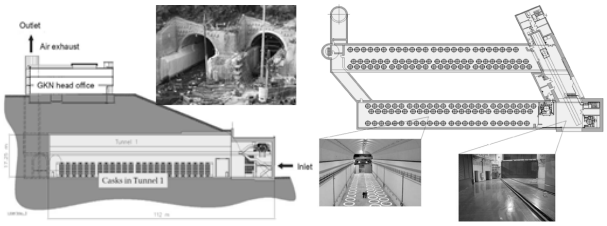


Fig. 11. Neckarwestheim tunnel storage facility.

새로운 저장방식은 현재 스페인에서 추진하는 ATC 볼트방식 건식저장시설이다(Fig. 12). 볼트방식은 미국, 영국, 프랑스 및 헝가리 등에서 이미 운영되고 있으나, 아직까지 상용 경수로 원전의 사용후핵연료 저장에 대하여 적용된 적이 없었는데, 스페인에서 경수로 사용후핵연료에 대한 집중식 중간저장시설에 최초로 적용하고 있다. 이 시설은 네델란드의 HABOG 고준위폐기물 저장시설의 설계개념을 도입한 것으로 저장볼트가 모듈식으로 구성되어 증설이 용이하도록 되어 있다. 경수로 사용후핵연료를 장전한 저장캡슐을 각 저장튜브에 2단으로 적재하여 저장하는데 2중의 격납경계를 형성하므로 격납성능이 좋다. 냉각은 무동력 자연대류방식이며, 효율적인 열유동을 위하여 각 저장볼트 모듈에 굴뚝(stack)을 설치하여 내부의 뜨거운 공기가 외부로 나가도록 한다. 현재 규제기관의 인허가 심사를 받고 있으며 2017년부터 운전을 개시할 예정으로 있다. 잘 알려진 바와 같이 볼트방식은 냉각효율이 뛰어나고, 무엇보다도 동일 저장용량에 대하여 다른 건식저장방식보다 저장시설의 부지면적을 줄일 수 있으며, 용기방식에 비하여 경제적인 장점이 있다. 집중식 중간저장의 경우도 마찬가지이나, 특히 원전부지의 면적이 제한적인 점을 고려하면 이러한 부지 효율적인 볼트방식은 원전부지내의 건식저장에 유리한 면이 많다.

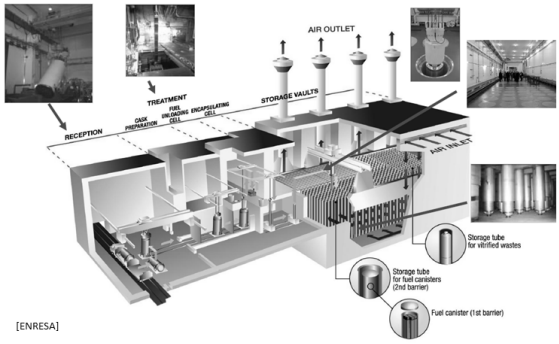


Fig. 12. Spanish vault storage facility.

3. 결론

세계 각국은 다양한 방식으로 사용후핵연료를 저장관리하고 있는데, 대부분 습식저장조의 물리적 용량 한계로 인하여 건식저장계통을 이용하여 저장하고 있다. 사용후핵연료 건식저장계통에 대하여 경제성과 저장요건에 따른 안전성은 물론이고, 미국 911 사건이후로 보안성 확보와 안전성 강화에 대한 관심이 급증하고 있으며, 후쿠시마 사고로 인하여 자연재해에 대한 우려가 크고, 사용후핵연료 관리정책에 대한 불확실성으로 장기저장 건전성 및 사회적 수용성에 대한 요구가 높다. 우리나라의 경우 2025년 중간저장 개시를 위하여 노력하고 있지만, 정책결정이 지연되면서 원전의 안정적 운전에 필수적인 사용후핵연료 저장용량의 확보가 시급한 상황이다. 중간저장시설이든 원전부지내 저장이든 고유의 사용후핵연료 저장요건 이외에도 다양한 요구에 대하여 부합되는 사용후핵연료 저장방식을 선정하는 것이 바람직하다.

4. 참고문헌

[1] EPRI Report 1021048, Industry Spent Fuel Storage Handbook, 2010.
[2] CRIEPI Report No.07015, Feasibility Study on Underground Vault Storage of Spent Nuclear Fuel, 2007.
[3] 일본 원자력발전기술기구, 고내진 구조 입지기술 확증시험 : 지하-해상입지방식 조사, 2002.
[4] Peter Leister, "An International Underground Twin Tunnel Long-Term Interim Storage Concept", Colenco Power Engineering Ltd., 2010.
[5] K. Singh, "Interim Storage of Used Nuclear Fuel in the 21st Century", HOLTEC, 2012.

사용후핵연료 중간저장시설 피폭선량평가를 위한 평가반경에 대한 고찰

이동진*, 윤형준, 이병식
한국전력기술㈜, 경기도 성남시 분당구 구미로 8 M-TOWER 빌딩
*djlee@kepco-enc.com

1. 서론

후쿠시마 사고 이후 사용후핵연료 저장시설에 대한 안전성에 사회적 요구가 크게 증가하고 있다. 특히 후쿠시마 원전 4호기의 경우 많은 양의 사용후핵연료 및 신연료가 저장되어 있는 저장조에서 방사성 핵종 누출이 감지되어 저장조의 구조물 보강 및 냉각수 보충을 위한 작업을 수행하였으며, 복구 기간이 약 140 일 소요되었다. 이 기간 동안 방사성 핵종은 다양한 경로를 통해 누출되었을 가능성이 있으며 이에 대한 피폭선량 평가가 요구되고 있다[1]. 후쿠시마 사고 이후 원전 주요국에서는 항공기 충돌을 비롯한 설계기준초과 사고 시나리오에 따른 안전성 평가를 요구하고 있다.

이에 따라 본 논문에서는 사용후핵연료 저장시설에 대한 설계기준초과사고시 피폭선량평가 수행시 요구되는 평가반경에 대해서 고찰을 해보고자 한다.

2. 본론

2.1 평가반경 고찰의 목적

본 연구에서의 평가반경은 핵종누출평가를 위한 주요 도구인 GoldSim + RT module로 평가하기 위해 사전검토가 필요한 주요사항이다. 이는 설계기준초과사고(Beyond DBA)시 사용후핵연료 중간저장시설로부터 누출된 방사성 핵종이 누출되어 일정한 Plume을 구성하여 핵종이 머무르는 반경을 설정하여 가장 가까이 위치한 거주자가 받는 내부 및 외부 피폭량을 도출하기 위함이다.

2.2 규제기준 기반 평가반경

10CFR72.104에서는 정상운전 및 예상사건 발생시 관리구역 경계 밖에 위치한 개인의 연간선량 당량은 전신 0.25 mSv, 갑상선 0.75 mSv, 기타 장기 0.25 mSv를 초과하지 않을 것을 명시하고 있다. 여기에서 말하는 관리구역(Controlled Area)은 10CFR72.3에서 사업자가 사용후핵연료 저장시설 운영 및 그 토지의 사용에 대한 권한을 수행하기 위한 구역으로 정의하고 있으며 그 최소거리를 100 m로 규정하고 있다.

원자력안전위원회 고시 제2014-39호 제16조에 따르면 제한구역경계에서의 연간선량을 유효선량 0.25 mSv, 갑상선 등가선량을 0.75 mSv로 규정하고 있다. 여기에서 말하는 제한구역(Restricted Area)은 부지의 중심에 위치하고 있는 원자로용기를 중심으로 일정반경 내의 지역으로 부지경계구역 내에 포함되어 있는 구역을 말한다.

미국 Surry ISFSI 안전성분석보고서[2]에 따르면 제한구역과 부지경계구역(Exclusive Boundary Area)을 동일하게 설정하였다. Surry ISFSI 로부터 제한구역경계까지의 최소거리는 약 460 m이며, 이 거리를 관리구역의 반경으로 동일하게 간주한다. 우리나라의 원자력발전소의 부지경계구역(EBA)은 560~914 m로 다르게 설정되어있으며, 관리 및 제한구역에 대한 개념을 별도로 정의하지 않고 있다.

2.3 방사선비상계획구역(EPZ) 기반 평가반경

후쿠시마 사고 이후 일본 정부는 8~10 km에 불과했던 방사선비상계획구역을 예방보호조치구역(PAZ :Precautionary Action Zone), 긴급보호조치구역(UPZ :Urgent Protective Zone)으로 세분화하여 확대하였다. 각각의 정의는 다음과 같다.

○ 예방적보호조치구역(PAZ) : 방사성 물질 누출량과 상관없이 예방적으로 미리 보호조치를 취하는 구역
○ 긴급보호조치구역(UPZ) : 방사능 누출이 확인될 때 긴급보호조치가 요구되는 구역

미국 에너지부는 후쿠시마 사고 이 후 원전 반경 80 km이내에 거주하고 있는 자국민에 대해 대피를 권고하였다. 또한 Surry ISFSI 안전성분석보고서 8.2.6에 따르면 저장시설에 저장된 사용후핵연료 손상으로 인한 방사성 핵종 누출량을 평가하고자 할 때 규제기준에 따른 최소반경 460 m와 방사선비상계획구역 반경인 80 km에 대해서 평가한다. IAEA 보고서[3]에 따르면 긴급보호조치계획구역을 각국 원전 특성, 기상조건 등의 특수성을 고려하여 5~30 km 범위에서 결정하도록 포괄적으로 권고하고 있다.

2.4 평가반경 분석 및 적용방안에 대한 고찰

평가시 관리구역을 평가반경으로 설정하는 것은 관리구역 내에는 주민이 거주할 수 없으므로 보수적으로 관리구역 경계가 주민이 위치할 수 있는 최소 거리가 된다는 점에서 타당하다고 할 수 있다. 그러나 10CFR72에 명시된 관리구역경계 100 m는 최소한의 물리적 방어기준이며, 추후 결정될 시설특성에 따라 실제 관리구역 거리는 다소 변경될 수 있다. 미국 Surry ISFSI는 관리/제한/부지경계구역을 동일하게 간주하여 부지경계구역에 해당하는 최소거리 460 m를 관리구역으로 본다. 최소거리에 해당하는 관리구역 반경과 방사선비상계획구역에 해당하는 구역 반경에 따른 피폭평가를 동시에 수행하여 사용후핵연료 저장시설의 안전성을 확인한다. 우리나라의 경우, 기존에 8~10 km로 되어 있는 범위를 Table 1과 같이 2단계로 세분화하여 원안위 고시 제2014-82호를 개정하였으며, 이를 바탕으로 한 방사선비상계획구역의 재설정을 완료할 계획이다[4].

Table 1. PAZ & UPZ of Nuclear Facility

구분		PAZ	UPZ
발전용 원자로 및 관계시설		반경 3~5 km	반경 20~30 km
사용후핵연료 저장, 처분, 처리 시설	시험 및 연구목적이 아닌 처리시설	개별시설로 평가하여 결정	5 km
	저장,처분 시설	없음	1.5 km
	시험 및 연구목적의 처리시설	없음	부지 경계

사용후핵연료 중간저장시설 개념설계용역 최종보고서[5]에 따르면 10CFR72 규정에 따라 각 구역의 최소치를 설정하여 제한/관리/부지경계구역을 다르게 설정하였다. 그러나 사용후핵연료 저장시설의 설계가 구체화되면서 각 구역의 반경은 충분히 변경될 가능성이 있다. 또한 우리나라는 사회적 수용성 및 사용후핵연료 수송 안전성을 고려하여 원자력발전소 부지 내에 건설된 가능성도 있다. Table 1에 따르면 독립된 사용후핵연료 저장시설이 건설될 경우 방사선비상계획구역의 반경인 1.5 km로 설정하여 평가해야 한다. 그러나 원자력발전소 내에 사용후핵연료 저장시설을 건설한다면 원자력발전소 방사선비상계획구역인 20~30 km로 설정하여 평가하는 것이 타당하다. 또한 사용후핵연료 임시저장시설와 연계하여 사용후핵연료 중간저장시설에 대한 복합 안전성 평가도 요구될 가능성도 있다. 그러므로 부지 내 사용후핵연료의 중간저장시설이 건설될 경우에는 방사선비상계획구역에 근거한 반경과 저장시설과 부지경계구역 간의 최소반경에 대한 평가를 동시에 수행하는 것이 타당하다고 판단된다.

3. 결론

사용후핵연료 중간저장시설에 대한 저장방식 및 부지에 대한 결정이 아직까지 이뤄진 바가 없다. 그러나 저장방식 및 부지특성과 관계없이 핵종누출평가를 위한 평가반경은 조기에 확정하여 사고시 발생할 수 있는 사용후핵연료 중간저장시설의안전성을 기술적인 평가를 통해 확인할 필요성이 있다. 규제기준 및 방사선비상계획구역 기반으로 한 반경을 동시에 고려하는 것이 타당할 것으로 판단되며, 이와 관련한 기술적인 근거를 확보하기 위한 후속 연구가 요구된다.

향후 평가반경 이외에 평가시 필요한 설정인자들에 대한 면밀한 검토를 통해 사용후핵연료 중간저장시설에 대한 피폭선량 연구를 발전시켜야 한다고 생각된다.

4. 참고문헌

[1] 한국원자력학회 후쿠시마위원회, "후쿠시마 원전 사고분석 최종보고서 – 사고내용, 결과, 원인 및 교훈", Mar. 2013.

[2] Safety Analysis Report of Independent Spent Fuel Storage Installation at Surry Station.

[3] IAEA, TECDOC-1343, "Spent Fuel Performance Assessment and Research"

[4] 원자력안전기술정보회의, 비상계획구역 개편 등을 반영한 방재분야 개선방향, 2015.

[5] 한국전력기술, "사용후핵연료 중간저장시설 개념설계용역 최종보고서", 2013.

방사성폐기물 포장용기 열 유속 검사장치 예비성능시험

방경식*, 유승환, 이상훈, 이주찬, 최우석
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*nksbang@kaeri.re.kr

1. 서론

현재 국내에서는 미래 원자력시스템과 연계된 선진핵연료주기 기술개발을 추진하기 위해 2025년까지 30 MT/year 규모의 KARF(Korea Advanced Pyro-process Facility) 실용시설을 완공할 계획이다. KARF 실용시설을 가동하게 되면 시설로부터 발생하는 방사성폐기물을 포장한 포장용기는 저장시설로 운반되어 저장하게 된다. 저장시설에서 포장용기를 인수 받을 때 포장용기 내부에 적재된 내용물로부터 발생하는 열용량을 검사하기 위해서는 열 유속 검사장치를 필요로 하게 된다. 열 유속 검사장치는 포장용기로부터 발생하는 방사선으로부터 사람을 보호하기 위해 원격으로 취급되어야 한다. 따라서, 포장용기 열 유속 검사장치를 설계하고 제작하였으며, 예비성능시험을 수행하여 포장용기를 원격으로 취급하기 위한 조건을 설정하였다.

2. 열 유속시험

2.1 열 유속센서(Heat Flux Sensor)

일반적으로 열전대를 사용하여 온도를 측정하고, 이를 이용하여 열 유속(Heat flux)을 추정하는 것이 전통적인 방법이다. 그러나, 열 유속센서(Heat flux gage)를 이용하면 온도를 측정하지 않고 센서에서 출력되는 열기전력만으로 열 유속을 평가하는 것이 가능하다.

열 유속 측정방법은 시간에 따른 일정지점의 온도변화 측정방법, 일정 두께를 가진 열 저항 층의 온도차에 해당하는 열기전력을 측정하는 층상형(Layered type) 방법 및 복사 열 유속 상에서 원형박막의 온도차에 해당하는 열기전력을 측정하는 Gardon 방법 등 다양한 형태가 있다 [1].

2.2 열 유속 검사장치 설계

열 유속센서의 대부분은 층상형에 속한다고 보면 무방하다. 얇은 박막 구조를 하고 있는 층상형 센서는 열 유속이 존재하는 표면에 직접 부착하여 센서 상의 두 접점의 미세한 온도차에 비례하는 전압신호가 서모파일을 통해 증폭되어 온도차에 비례하는 전압신호 형태로 표현된 열 유속 신호를 분석하는 센서이다.

KARF에서 방사성폐기물을 포장한 포장용기는 저장시설로 운반되어 저장하게 되며, 저장시설에서 포장용기를 인수 받을 때 포장용기 내부에 적재된 내용물로부터 발생하는 열용량을 검사하기 위한 열 유속 검사장치는 포장용기로부터 발생하는 방사선으로부터 사람을 보호하기 위해 원격으로 취급되어야 하므로 표면에 직접 부착하는 층상형 센서를 사용하여 열 유속을 검사하는 방식의 장치는 사용할 수 없다. 따라서, 방사성폐기물 포장용기의 열 유속 검사장치는 복사 열 유속 상에서 원형박막의 온도차에 해당하는 열기전력을 측정하는 Gardon 방법을 적용한 비접촉식 열 유속센서를 적용하여 Fig. 1과 같이 개념설계를 수행하였다.

KARF에서 방사성폐기물을 포장한 포장용기의 열 유속 검사장치는 sensor 고정대, heat flux scanner, heat flux sensor, signal conditioner, A/D converter 및 personnel computer로 구성되어 있다.

KARF에서 발생하는 방사성폐기물을 적재하는 포장용기의 최대 열용량은 2 kW로 제한하여 설계되었다. 따라서, heat flux sensor의 열 유속 측정범위는 포장용기 최대 열용량인 2 kW 이내의 Gardon gage로 선정하였다.

2.3 열 유속 예비성능시험

KARF에서 발생하는 방사성폐기물을 적재하는 포장용기의 표면에서 발생하는 열 유속을 정확하게 측정하기 위해 열 유속 검사장치의 예비성능시험을 수행하였다.

열 유속 예비성능시험은 원자력연구원 내에 위치한 수송용기 안전성시험시설의 열 환경시험설비에서 포장용기와 열 유속 검사장치와의 열용량 및 간극을 조절해 가며 Fig. 2와 같이 수행되었다.

포장용기 내부에서 발생된 열은 포장용기의 표면으로부터 주변 대기로 대류 및 복사 열전달에 의해 빠져 나가게 되며, 다음과 같이 정의된다.

$$q_S = hA(T_S - T_a) + \sigma\varepsilon A(T_S^4 - T_a^4) \quad \text{.... (1)}$$

Table 1 및 Fig. 3은 열 유속시험에서 포장용기 표면과 열 유속 검사장치와의 간극에 따라 측정된 열 유속 결과를 보여주고 있다.

포장용기 표면과 열 유속 검사장치와의 간극이 40 cm, 60 cm, 80 cm 및 100 cm일 때 열 유속은 열전대를 사용해 측정된 온도를 통해 열 유속을 평가하는 전통적인 방법에 의해 평가된 열 유속과 많은 차이를 보여주었다.

포장용기 표면과 열 유속 검사장치와의 간극이 20 cm일 때 열 유속은 전통적인 방법에 의해 평가된 열 유속과 약 5% 이내의 오차 범위로 잘 일치하였다.

포장용기 표면과 열 유속 검사장치와의 간극이 10 cm일 때 열 유속은 전통적인 방법에 의해 평가된 열 유속보다 훨씬 높게 나타났다. 이는 거리가 너무 가까운 경우 복사의 복사에 의한 재복사 영향이 나타나기 때문으로 판단된다.

3. 결론

열 유속 검사장치를 사용하여 시험을 수행한 결과 포장용기 표면과 열 유속 검사장치와의 간극을 20 cm로 조정할 때 포장용기의 표면에서 발생하는 열 유속을 측정오차 5% 범위 이내에서 비교적 정확하게 측정할 수 있었다. 따라서, KARF 저장시설에 설치하게 되는 열 유속 검사장치는 포장용기 표면과의 간극을 20 cm로 조정하여 설치하면 된다.

포장용기 표면과 열 유속 검사장치와의 간극이 20 cm가 아닌 50 cm 떨어뜨려 설치되었다면, 50 cm 떨어진 곳에서 측정된 열 유속 데이터를 시험결과분석을 통해 구해진 열용량에 따른 지수함수에 넣어 산출한 값과 비교해서 오차 범위 내에서 만족한다면 20 cm 떨어진 곳의 열 유속 데이터를 사용할 수 있을 것이며, 그 값을 오차 범위 5% 이내의 열 유속 값으로 판정할 수 있다.

4. 참고문헌

[1] 양훈철, 김무환, "열 유속센서와 열 유속센서의 검정장치에 대한 기술동향", 계장기술, 통권 111호, 120~125, April 2003.

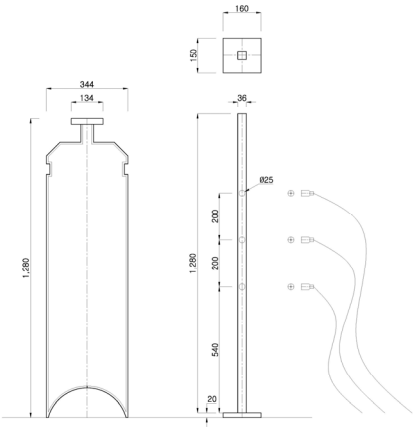


Fig. 1. Overview of Heat Flux Equip.



Fig. 2. Heat Flux Performance Test.

Table 1. Heat Flux Test Results

열용량 (watt)	Canister Heat Flux	Measured Heat Flux (w/cm^2)					오차 (%)
		20cm	40cm	60cm	80cm	100cm	
500	0.0372	0.0361	0.0245	0.0189	0.0163	0.0149	3.1
800	0.0568	0.0543	0.0362	0.0261	0.0228	0.0193	4.4
1,000	0.0714	0.0681	0.0422	0.0286	0.0219	0.0171	4.7
1,300	0.0934	0.0975	0.0642	0.0466	0.0387	0.0325	4.3
1,500	0.1075	0.1135	0.0755	0.0542	0.0446	0.0359	5.6
1,800	0.1284	0.1340	0.0839	0.0583	0.0443	0.0326	4.4
2,000	0.1419	0.1689	0.1111	0.0795	0.0640	0.0508	19.0

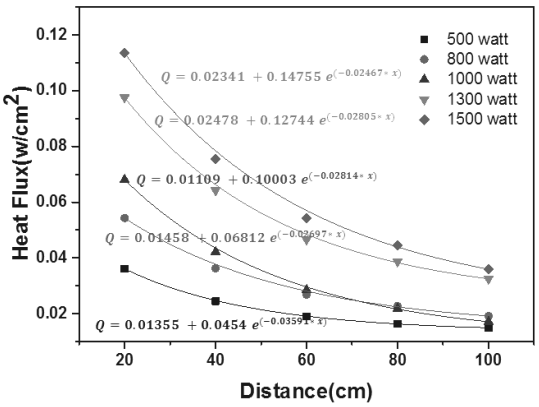


Fig. 3. Heat Flux according to Distance.

LiCl-KCl 공융염에서 음극재의 종류에 따른 U 전해정련 특성연구

이창화*, 강덕윤, 이성재, 박성빈, 백승우, 안도희
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*chwalee@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로공정은 사용후핵연료로부터 우라늄(U) 및 초우라늄(TRU)를 전기화학적으로 회수하여 차세대 핵연료에 재활용함으로써 고준위폐기물의 양을 줄여 처분효율을 높이고, 에너지효율을 극대화시킬 수 있는 비핵확산성 처리기술이다[1]. 파이로공정은 사용후핵연료 집합체를 해체, 인출, 절단하여 원료물질을 제조하는 전처리공정과 생산된 원료물질을 전해환원, 전해회수공정 등을 거쳐 U 및 U/TRU ingot 제조하는 후처리공정으로 이루어진다. 이 중, 전해회수공정은 사용후핵연료의 약 93%를 차지하고 있는 다량의 U를 고체음극으로 회수하는 전해정련공정과 염 속에 존재하는 잔류 U 및 TRU원소를 액체음극으로 회수하는 전해제련공정으로 구성되며, 사용후핵연료에서 핵분열생성물(Fission products, FPs)을 분리할 수 있는 파이로기술의 핵심공정이라고 할 수 있다. 특히, U의 경우 회수량이 매우 높기 때문에 전기화학적으로 음극에 환원시킨 전착물을 효과적으로 분리, 회수하는 것이 매우 중요하다.

대표적으로 사용되는 음극재인 Stainless Steel(STS)은 가격이 저렴하고, 고온에서 물리적 특성이 우수하여 용융염 전기화학에서 폭넓게 사용되고 있다. 하지만, U 전착물과의 접착성이 좋고 전극표면에서 U-Fe intermetallic compound가 형성될 수 있기 때문에 U의 완전한 박리가 어렵다. 반면, Graphite를 전극으로 사용했을 때 U의 자발탈리가 유도되어 효과적으로 U 전착물을 회수할 수 있지만, 강도가 상대적으로 약하고 회수공정의 일관성 측면에서 단점이 있다.

따라서, 본 연구에서는 비 STS계열의 단일성분 금속전극에 대해 U의 전기화학적 환원 거동 및 회수 U의 전착특성을 살펴보았다.

2. 본론

2.1 실험방법

U 전해정련 실험을 위해 99.99wt%의 anhyrdous LiCl-KCl 공융염에 1wt% UCl_3를 450~500°C로 용융시켜 전해액으로 사용하였으며, 산소와 습도를 수 ppm이하로 조절할 수 있는 Ar-purging 글로브 박스안에서 실험을 수행하였다. 작업전극(WE)은 1 ∅ 텅스텐(W) 및 몰리브데늄(Mo) wire를 사용하였고, 상대전극에는 STS mesh에 감싼 금속 U을 STS wire로 연결하여 사용하였다. 기준전극은 1wt% AgCl가 포함된 Ag/Ag^+를 이용하였다.

전기화학 측정을 위해 BioLogic SP-150 Potentiostat/galvanostat을 사용하였다.

2.2 실험결과

Fig. 1은 1wt% UCl_3에 대한 Cyclic Voltammetry (CV)를 보여준다. Potential은 Open Circuit Voltage (OCV, 약 -1.0 V)에서 음의 방향인 –1.9 V 까지 변화시켰으며, 양의 방향으로는 -0.8 V까지 이동하면서 전류응답을 측정하였다. U(Ⅲ)/U(0) 환원에 대한 onset potential은 약 –1.4 V (vs. Ag/Ag^+)로 나타났으며, 약 –1.3 V에서 산화 peak가 관찰되었다.

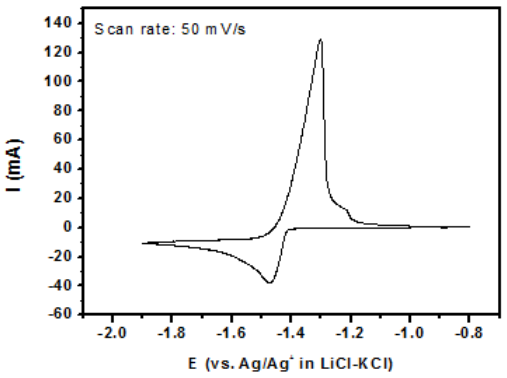


Fig. 1. Cyclic voltammogram for W wire in LiCl-KCl-UCl_3 molten salts.

Scan rate의 변화에 따른 CV curve를 측정한 결과 U^{3+}의 환원 peak potential이 200 mV/s 내에서 약간의 이동이 있는 Quasi-reversible 반응임을 확인할 수 있었다.

Cathode의 종류에 따른 U의 환원 거동을 살펴보기 위해 W wire를 Mo wire로 교체하여 CV를 측정하였다.

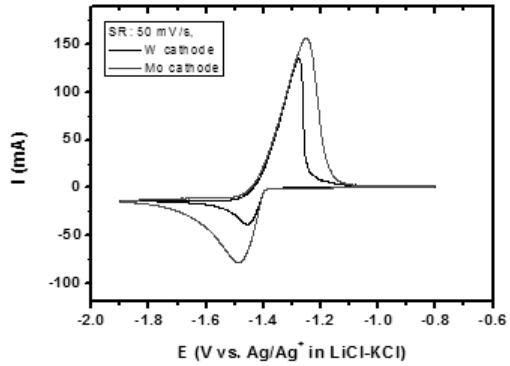


Fig. 2. Comparison of cyclic voltammograms between W and Mo wires in LiCl-KCl-UCl_3 molten salts.

그 결과, Mo 전극위에서의 U의 환원 및 산화전류가 W에 비해 증가하는 것으로 나타났으며, peak potential의 위치도 약 0.05 V정도 이동하는 것으로 나타났다. 이는 전극의 종류에 따라 U(Ⅲ)/U(0) 반응 시 계면에서 생성되는 U-M intermetallic compound의 특성차이 때문인 것으로 생각된다.

Cathode로 W과 Mo를 사용하여 –1.45 V 또는 –1.5 V의 일정전압을 가하여 전류 transient를 관찰한 결과, 약 15 초 이후에 140~150 mA의 전류가 유지되는 것으로 나타났다. 또한, W과 Mo에 형성된 U 전착물의 특성을 비교 분석하였다.

3. 결론

LiCl-KCl-1wt% UCl_3 용융염에서 W과 Mo cathode를 이용하여 U의 전기화학적 거동을 살펴본 결과, W과 비교해 Mo 전극에서 환원 peak는 음의 방향으로, 산화 peak는 양의 방향으로 이동하는 것을 확인하였으며, 이는 전극 계면에서 생성되는 U과의 intermetallic compound의 특성차이에 의한 것으로 생각된다.

4. 참고문헌

[1] J.P. Ackerman, Chemical basis for pyrochemical reprocessing of nuclear fuel, Ind. Eng. Chem. Res. 30, 141-145 (1991).

[2] J.J. Laidler, J.E. Battles, W.E. Miller, J.P. Ackerman, E.L. Carls, "Development of pyroprocessing technology", Prog. Nucl. Energy 31, 131-140 (1997).

[3] H. Lee, J.M. Hur, J.G. Kim, D.H. Ahn, Y.Z. Cho, S.W. Paek, "Korean Pyrochemical Process R&D activities", Energy Procedia 7, 391-395 (2011).

사용후핵연료 관리공정 실증시설의 HVAC 및 알곤 공급계통 성능평가

유승남*, 한종희, 류동석, 이종광, 김성현, 박병석, 조일제, 김기호
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 대덕대로 989번길 111
*snyu@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에서는 사용후핵연료의 효율적 관리와 연구를 위하여 사용후핵연료 관리공정 실증시설(ACPF, Advanced spent fuel Conditioning Process Facility)을 핫셀(Hot-cell, 본 논문에서는 M8a/b 셀과 병기함) 기반으로 구축하여 운영하고 있다[1]. 최근에는 사용후핵연료 관리공정 중, 환원공정에 대한 실증 실험을 강화하기 위하여 핫셀 내부에 알곤 분위기의 격실(Argon Compartment) 및 이를 위한 알곤 전용 공급계통을 신설하였다. 이러한 알곤 격실은 공기(Air) 분위기인 기존 핫셀과 달리, 불활성 분위기가 조성되어 있으므로 우라늄을 사용한 시험 과정에서 파이로공정(Pyroprocessing)의 물질 특성을 고려하여 효율적이고 안정적인 실험이 가능하다는 장점이 있다. 즉, 핫셀 내부에 위치한 글로브박스(Glove Box)와 유사한 개념의 기밀형 격실을 운영함으로서, 기존 공기 분위기의 ACPF에 비해 조해성 및 강부식성 염(Chloride)의 취급에 안정적인 실험 환경을 구현할 수 있다. 이러한 알곤 격실의 신설은 전술한 바와 같이, 사용후핵연료 일관공정의 실증을 위해 계획된 기존의 ACPF에 대한 실증시험 범위가 조정됨으로서 ACPF 핫셀에서는 전해환원 공정만 집중적으로 수행 및 연구하고, 전처리 공정은 별도의 전용 설비와 연계하여 수행하도록 시설 운용범위가 수정된 점에 기인한다[2]. 이러한 목적으로 2014년에 개조된 ACPF는 HVAC (Heating, Ventilation, Air Conditioning) 계통의 구조 및 풍량에 변화가 있었으며, 여러 가지 알곤 공급계통도 신설되었다. 본 논문에서는 이와 같이 수정 또는 신설된 HVAC 구조 및 알곤 공급계통 등을 개괄적으로 소개하고, 이와 관련하여 진행되고 일련의 계통 성능평가 중 일부에 대한 결과를 제시하고자 한다.

2. ACPF HVAC 공급계통 개조설계 개요

ACPF Process Cell(M8a)의 경우에는 알곤 격실의 신설에 따른 셀(Cell) 내 체적 감소로 인하여 공급 풍량 및 배기 풍량 변경이 이루어졌다. 세부적으로는 공급 풍량이 1,380 CMH에서 1,130 CMH로, 배기 풍량이 1,580 CMH에서 1,440 CMH로 변경되었다 (Fig. 1 참조). 이와 관련하여, 공급 풍량 감소 및 알곤 격실과의 간섭을 고려하여 토출구 수량 및 공급 덕트(Duct)의 경로를 변경하였다. 즉, 인셀 필터(In-cell Filter) 1EA의 위치를 알곤 격실과의 물리적 간섭을 고려하여 M8a 셀 중앙부로 이설함과 동시에, 이와 연결된 배기 덕트의 경로(Route)를 변경함으로서 토출구의 수량 및 각각의 풍량은 345 CMH(4EA)에서 377 CMH(3EA)로 변경되었다.

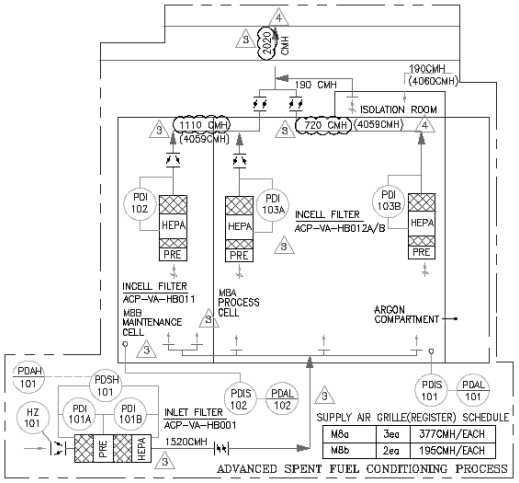


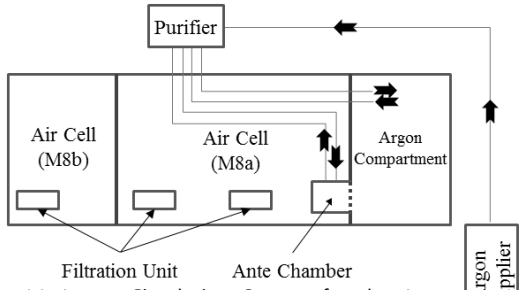
Fig. 1. Air Flow Design for the Remodeled ACPF Hot-cell and Isolation Room.

핫셀 격리실의 경우에는 Room의 형상 변경으로 인해 전체적으로 Room의 체적이 증가되었으며, 요구 환기 풍량도 140 CMH에서 190 CMH로 증가되었다. 이를 위해, 격리실의 구조적인 개선을 통하여 환기용 루버(Louver)의 위치 및 크기를 변경하였다.

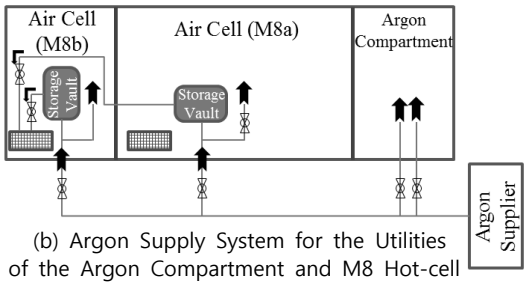
3. ACPF HVAC 및 알곤 공급계통 상세 구조

개량형 ACPF의 HVAC 및 알곤 공급계통은 크게 네 가지 종류로 분류할 수 있다. 1) 알곤 격실 및 부속 Ante Chamber의 알곤 분위기를 유지하는 알곤 순환계통, 2) 알곤 격실 부대설비 및 핫셀(M8a/b) 차폐용기에 알곤을 공급하는 알곤 공급

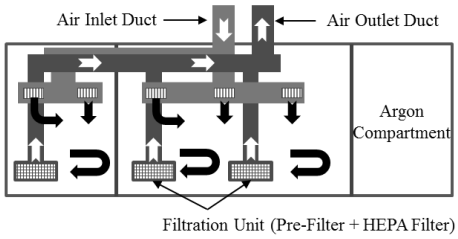
계통, 3) 핫셀의 부압을 유지하는 공기 순환계통, 4) 핫셀 공기 순환계통용 필터의 교체주기를 파악할 수 있는 필터 차압계계통 등이 그것이다.



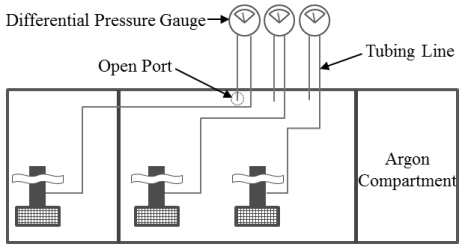
(a) Argon Circulation System for the Argon Compartment and its Ante-chamber



(b) Argon Supply System for the Utilities of the Argon Compartment and M8 Hot-cell



(c) Air Flow System for the M8 Hot-cell



(d) Tubing Line of the Differential Pressure Gauge for the Measures upon the Replacement Cycle of M8 Cell Filter Units

Fig. 2. HVAC and Argon Supply System of ACPF.

부연하면, Fig. 2(a)의 계통은 신설된 알곤 공급장치 및 정제기를 통해 알곤 격실내부와 Ante Chamber(알곤 격실과 Air Cell 간 물품 반출입을 위해 마련됨)에 정확한 공급조건의 알곤을 순환시키는데 사용된다. Fig. 2(b)의 계통은 핫셀 내에서 취급된 각종 공정물질을 보관하기 위해 M8(a/b) Cell에 마련된 Storage Vault의 내부 분위기를 알곤으로 유지시키며, 알곤 격실 내에 마련된 각종 공압장비 및 LIBS(Laser-Induced Breakdown Spectroscopy)를 운영하기 위한 계통이다. Fig. 2(c)는 ACPF 핫셀을 -40 mmAq 내외의 부압조건으로 유지함으로서 핫셀 내부의 물질 입자가 외부로 역류하는 것을 방지하는 공기 순환계통이다. 마지막으로 Fig. 2(d)는 이러한 환기계통의 필터 교체주기를, 핫셀 대기압과 필터를 통과한 토출압 사이의 압력차이의 변화를 체크함으로서 파악할 수 있는 필터 차압계를 위한 계통이다.

4. 계통성능 평가 및 결론

Fig. 3은 M8(a/b)셀의 운전부압 유지성능을 평가하기 위하여, Pressure Data Logger를 ACPF 핫셀 전면부에 위치한 Penetration을 이용하여 핫셀 내부 압력을 측정하는 압력계의 튜빙 라인에 연결한 후, 18시간동안 연속적으로 핫셀 내부의 압력을 측정한 결과를 나타내고 있다. Fig. 3의 결과에서 보인 바와 같이 평시운전 및 야간운전 시에 각각 –45~-40 및 –15~-10 mmAq를 안정적으로 유지함을 확인할 수 있었으며, 이는 Fig. 2(c)의 공기순환계통의 운전성능 및 핫셀 부압 유지성능이 안정적으로 확보되었음을 의미한다. 본 논문에서는 개량형 ACPF에 구축된 HVAC 시스템의 풍량 및 계통 구조를 개괄적으로 소개하였으며, 이들 중 핫셀 부압유지 성능 결과를 일부 제시하였다. 향후에는 Fig. 2(a),(b),(d)의 계통 설비에 대한 운전성능 및 계통 소모품의 유지보수를 위한 원격취급성 평가 결과도 추가로 제시할 예정이다.

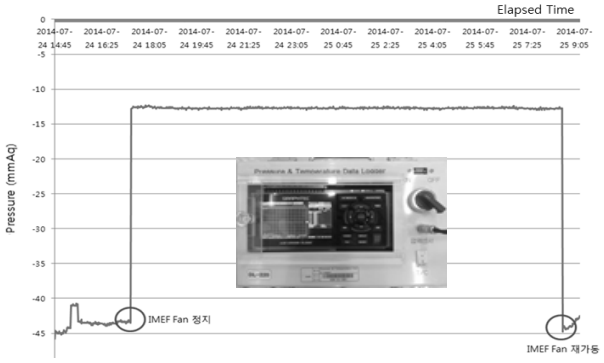


Fig. 3. Experimental Test of HVAC System for the Hot-cell Internal Pressure Sustaining Performance using a Pressure Data Logger (18 Straight Hours).

5. 참고문헌

[1] KAERI/TR-3293/2006, 차세대관리 종합공정 실증시설 시공보고서, 2006.

[2] 유승남, 이종광, 이원경, 박병석, 김기호, 조일제, "사용후핵연료 차세대관리공정 실증시설(ACPF) 개조를 위한 설계안 분석", KRS 춘계학술대회, 69-70, 2013.

사용후핵연료 중간저장시설 설계기준초과사고시 방사성물질 확산기간 및 평가면적에 따른 영향 분석

최광순*, 이동진, 정완일, 이병식
한국전력기술㈜, 경기도 성남시 분당구 구미로 8 M-TOWER 빌딩
*kschoi@kepco-enc.com

1. 서론

2014년 현재 월성을 제외한 각 발전소부지별 소내 습식저장시설은 2016년경이면 대부분이 저장용량을 초과할 것으로 예상되므로, 사용후핵연료 중간저장시설의 건설은 시급하다고 할수 있다. 또한 2011년 일본에서 발생한 후쿠시마 원전사고 이후 원자력관련시설에 설계기준 초과사고 발생 가능성에 대한 국민적 관심이 높아지고 있는 상황이다. 그러나 이와 같이 도입이 시급한 사용후핵연료 중간저장시설에 대한 설계기준 초과사고 발생시 방사선적 영향 평가 사례는 국내는 물론이고 해외에서도 전무한 실정이다.

이에 따라 본 논문에서는 설계기준초과사고 발생시 사용후핵연료 중간저장시설의 방사선적 영향을 평가하기 위한 중요인자로 방사성물질 확산기간과 평가면적을 선정한 후 인자별 민감도 분석을 통해 피폭선량에 미치는 영향을 평가하였다.

2. 본론

2.1 평가인자 선정사유

원자력시설의 피폭선량평가에는 다양한 시설변수 및 자연 변수들이 입력데이터로 사용되며, 사용후핵연료 중간저장시설의 경우에는 방사성물질 확산 기간, 피폭선량 평가 면적, Plume의 외부 소멸률, 저장용량, 냉각수의 부피 등이 민감도 분석 대상 변수에 해당된다. 본 논문에서는 그 중 1) 향후 변경가능성이 높고 2) 국내외 피폭선량 평가 사례에서 중요성이 높은 변수로 확인된 방사성물질 확산 기간과 피폭선량 평가 면적을 대상으로 평가를 수행하였다.

2.2 방사성물질 확산 기간 검토

방사성물질 확산 기간은 설계기준초과사고 발생후 사고수습까지의 소요시간에 해당되며, 이에 따라 후쿠시마 사고 사례가 중요한 참고자료로 활용될 수 있다.

후쿠시마 사고 이후 대지진 및 쓰나미에 의해 손상된 사용후핵연료 저장조의 냉각 기능 및 냉각수 보충기능을 복구하는 기간을 검토한 결과 호기별로 그 손상 정도가 다르기 때문에 안전궤도에 오른 시점 또한 호기별로 다름을 알 수 있었다.

○ 1호기 : 2011년 8월 10일 (복구기간 : 150 일)
○ 2호기 : 2011년 3월 31일 (복구기간 : 20 일)
○ 3호기 : 2011년 6월 30일 (복구기간 : 110 일)
○ 4호기 : 2011년 7월 31일 (복구기간 : 140 일)

후쿠시마 1원전 1,3,4호기의 사용후핵연료 저장조의 경우에는 원자로건물 내 수소폭발이 일어나 원자로건물의 상부가 손상 및 파괴되어 냉각시시템을 구성하는데 110~150 일이 소요되었으나, 2호기의 경우 원자로건물 내 수소폭발이 없어 20일의 기간이 소요되었다. 평가대상인 사용후핵연료 중간저장시설의 경우는 최소 5 년 이상 소내에서 임시 저장된 사용후핵연료만을 이송하여 저장하므로 수소폭발의 가능성이 현저하게 낮을 것으로 판단되므로 후쿠시마 1원전 중 수소폭발이 일어나지 않은 2호기의 사례를 적용하는 것이 보다 타당하다고 할 수 있다.

2.3 피폭선량 평가 면적 검토

미국 10CFR72.106에서는 사용후핵연료 저장시설의 관리구역(Controlled Area)을 피폭 평가면적으로 설정할 것을 명시하고 있다. 관리구역을 평가면적으로 설정하는 것은 관리구역 내에는 주민이 거주할 수 없으므로 보수적으로 관리구역 경계가 주민이 위치할 수 있는 최소 거리가 된다는 점에서 타당하다고 할 수 있다.

그러나 10CFR72에 명시된 관리구역경계 100 m는 최소한의 물리적 방어기준이며, 추후 결정될 시설특성에 등에 따라 실제 관리구역 거리는 변경될 수 있다.

2.4 민감도 분석

방사성물질 확산기간과 피폭선량 평가면적이 피폭선량에 미치는 영향 정도를 비교하기 위해 두 인자에 대한 민감도 분석을 수행하였다. 민감도 분석의 기준값으로 방사성물질 확산기간은 20일, 피폭선량 평가면적은 반경 100 m를 설정하였으며, 이 인자들이 0.1배, 0.5배, 1배, 5배, 10배로 변화할 때의 피폭선량의 변화폭을 확인하였다.

민감도 분석 평가 결과 피폭선량 평가면적이 방사성물질 확산기간에 비해 상대적으로 평가 결과에 미치는 영향이 높음을 확인할 수 있었으며, 이는 가능한 범위 내에서 관리구역을 크게 설정하는 것이 피폭선량을 저감시키는데 보다 주요하다는 것을 의미한다.

Table 1. Sensitivity Analysis Results

방사성물질 확산기간 (기준 : 20 일)		피폭선량 평가면적반경 (기준 : 100 m)	
입력값 (일)	결과	입력값 (m)	결과
2	0.102	10	10.747
11	0.595	55	2.349
20	1	100	1
110	1.833	550	0.050
200	1.833	1000	0.016

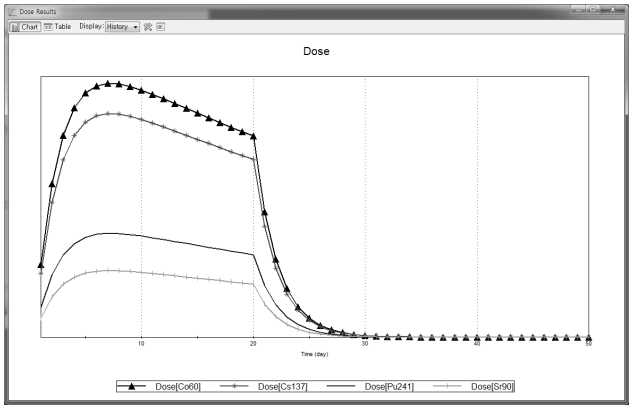


Fig. 1. Exposal Dose Assessment Example.

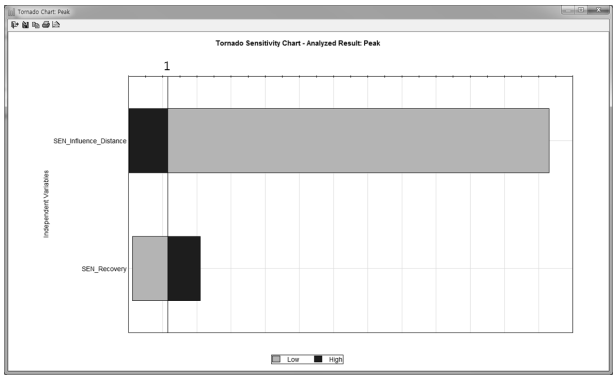


Fig. 2. Tornado Sensitivity Chart.

3. 결론

사용후핵연료 중간저장시설의 경우 건설의 시급성과 사전 준비의 중요성은 관련 기관 모두가 공감을 하고 있으나, 방식 및 부지 선정에 기초가 되는 피폭선량 연구는 아직 걸음마단계라고 할 수 있다. 향후 본 논문에서 검토한 입력변수 평가 및 민감도 분석 결과를 바탕으로 인자들의 역할에 대해 좀 더 면밀히 검토하여 사용후핵연료 중간저장시설에 대한 피폭선량 연구를 발전시켜나가야 한다고 생각된다.

4. 참고문헌

[1] 한국원자력학회 후쿠시마위원회, "후쿠시마 원전 사고분석 최종보고서 -사고내용, 결과, 원인 및 교훈", 2013.

[2] 정재학, KINS, "가압중수로 사용후핵연료 건식 저장시설에 대한 방사선안전성 예비 검증평가", 한국방사성폐기물학회 춘계학술발표회, 2005.

[3] DOE, "Yucca Mountain Repository SAR", DOE/RW-0573, 2008.

[4] IAEA, TECDOC-1343, "Spent Fuel Performance Assessment and Research", 2003.

파이로 안전조치시스템 예비개념설계를 위한 시료분석실 요건 개발

김봉영*, 안성규, 박광준, 박세환, 박근일
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*bykim@kaeri.re.kr

1. 서론

미래 원자력시스템 개발 장기추진계획에 따라 종합파이로건식처리시설 구축을 2025년까지 완료하는 것을 목표로 하고 있으며 이를 위해 파이로 공정 및 파이로 안전조치시스템의 개념설계를 위한 연구들이 본격적으로 진행되고 있다.

안전조치 접근방안은 안전조치 목표를 달성하기 위해 지정된 상황에서 안전조치의 이행을 위해 선택된 안전조치 수단의 조합이며 각각의 시설에 대해서 개발된다. 안전조치 수단은 IAEA가 안전조치 이행을 위해 사용 가능한 방법들로 핵물질의 재고목록과 흐름을 검증하기 위한 핵물질계량, 격납감시 및 모니터링, 신고 되지 않은 핵물질과 핵활동의 부재를 보장하기 위한 환경시료채취가 이에 해당 된다[1]. 파이로 시설의 경우 IAEA에서도 안전조치 접근방안 개발 및 이행에 대한 경험이 없어 종합파이로건식처리시설 구축을 위해 안전조치 접근방안 개발 연구가 필요하다.

본 연구에서는, 파이로 안전조치시스템에서 핵물질계량관리를 위한 시료분석실(AL: Analytical Laboratory)시스템 요건 초안을 개발하고자 한다.

2. 본론

2.1 시료분석실시스템

핵물질계량은 물질수지구역 내에 존재하는 핵물질의 양과 정의된 기간 내의 그 양의 변화를 수립하기 위해 수행되는 활동이며 계량구역 설정, 핵물질 측정, 계량기록의 작성 및 제출, 기록보존, 핵물질 계량 정보의 정확성에 대한 검증을 포함한다 [1]. 핵물질계량은 파괴분석(DA: Destructive Analysis)과 비파괴분석(NDA: Non-destructive Assay)방법을 이용하여 이행된다. 파괴분석의 경우 측정시간이 오래 걸리고 시료전처리가 필요한 단점이 있지만 측정 정확도가 높고 바이어스(bias) 결손을 탐지할 수 있는 장점이 있어 핵물질계량 관리에 유용하다. 파괴분석과 비파괴분석의 특성은 Table 1에 정리하였다.

Table 1. General properties of DA and NDA techniques

	DA	NDA
Measurement Time	Days to months	Minutes to hours
Accuracy	~0.1%	few %
Target	Bias defect	Partial defect
Techniques	Mass spectroscopy	Radiometric techniques
Pretreatment	Yes	No

습식재처리시설의 경우 공정의 입력계량조에서 채취되는 시료가 질산에 용해되어있으므로 시료분석실에서 HKED(Hybrid K-edge Densitometry)와 같은 NDA 장비를 활용하여 핵물질계량 후 공정으로 재순환 시킬 수 있으나 파이로 시료는 공정특성상 시료분석실로 보내지는 모든 시료를 용해시킨 후 분석해야 하므로 파이로 안전조치를 위한 시료분석실에서는 파괴분석에 의한 핵물질계량이 이루어진다. 또한 시료분석실은 안전조치 시스템의 서브시스템 중 시설자의 핵물질계량시스템으로[2] IAEA 검증을 위한 OSL(On-site Laboratory)과는 구분된다.

2.2 시료분석실시스템 구성 및 요건

시료분석실시스템은 시료분석실 분석시스템과 시료분석실 시설로 구성되며 각각의 요건 및 세부요건을 개발하고 이에 대한 세부설계사양을 도출함으로써 예비개념설계를 완성하게 된다. Table 2는 시료분석실 분석시스템과 시설의 주요설계요건을 보여준다.

Table 2. Key design requirement for AL analytical system and AL facility

AL 분석시스템 설계요건		AL 시설 설계요건
시료채취지점	분석 소요시간	시료채취
측정대상물질	측정 불확도	시료이송
시료수 & 시료양	분석 기술	시료 방사능
장비 수	분석 인원 등	시설규모 등

분석시스템 요건은 전처리, 분석 장비 등 분석에 관련된 사항만 포함하며 이를 제외한 시료채취, 핫셀, 글로브박스, 시료이송 등에 대한 사항들은 시설요건으로 분류된다. 시료분석실 시설 세부설계사양은 분석장비 수량 및 전처리 분석절차와 연계하여 핫셀, 글로브박스, 통박스 등의 수량 및 배치를 결정하게 되므로 분석시스템설계 후에 세부설계사양을 완성할 수 있다. 따라서 본 연구에서는 먼저 분석시스템에 대한 세부요건 및 설계사양의 초안에 대한 연구를 수행하였다.

물질수지구역 내 주요측정지점에서 핵물질계량을 통한 IAEA 적시 탐지목표를 만족하기 위해 시료분석실의 분석시스템은 분석의 적시성 및 높은 분석정확도를 갖추어야 한다[3]. 따라서 분석 소요시간 및 측정 불확도는 주요 설계요건으로 고려된다. 또한 현재 파이로 안전조치시스템 예비개념설계에서는 시료채취 지점을 입력, 출력, 폐기물만 고려하고 공정 중 염시료채취 여부는 MUF(Material Unaccounted For) 불확도 검토 후 결정하는 것으로 설계하고 있다. Table 3에 시료분석실 분석시스템 구축을 위한 설계요건 및 세부설계사양 초안을 정리하였다. 요건 및 설계사양은 안전조치시스템 요건과의 피드백을 통해 지속적으로 수정·보완될 것이다.

Table 3. Design requirement and specification for AL analytical system

설계요건		세부설계사양
시료채취 지점 및 대상	시료채취 지점	·입력: SF disassembly 직후 or 전처리 공정 중 ·출력: U/TRU 잉곳, U 잉곳 ·폐기물: Air 셀 폐기물(Hull), Ar 셀 폐기물(염폐기물, NM)
	측정대상	·Total Pu, U-235, Cm-244 ·Burn-up (option)
시료수 및 시료양 (30 MTHM/년 기준)	입력물질	·SF rod: 1 g/개, 5 개/SFA, 총 300개/년 ·SF oxide powder: 1g/개, 3 개/mixer batch
	출력물질	·U/TRU 잉곳: 1 g/개, 1 개/잉곳, 총 120 개/년 ·U 잉곳: 1 g/개, 3~5 개/분기, 총 12~20 개/년
	폐기물	·Hull: 5~10 g/개, 3~5 개/분기, 총 12~20 개/년 ·LiCl-KCl 염 폐기물: 1~2 g/개, 3~5 개/년
측정 불확도	입력물질	·Pu, U-235 : 0.3%, ·Cm-244 : 3.0%
	출력물질	
	폐기물	·Pu, U-235 : 1.0%, ·Cm-244 : 3.0%
분석 소요시간	10일	

분석장비에는 동위원소분석장비, 원소분석장비가 있어 측정대상 및 Table 3의 설계요건에 따라 적절한 장비를 선택해야한다. 이를 위해 분석장비별로 시료준비방법(전처리과정, 희석배율), 측정불확도, 소요시간을 분석한다. 선택된 분석방법 및 장비에 대해 장비 수 및 인력을 배치하여 시스템을 최적화 시키는 연구를 진행하고 있다.

3. 결론

파이로 안전조치시스템 예비개념설계를 위한 시료분석실 요건 도출에 대한 연구를 수행하였다. 시료분석실시스템은 시료분석실 분석시스템과 시료분석실 시설로 구성되며 본 연구에서는 시료분석실 분석시스템 설계요건 및 세부설계사양 초안을 도출했다. 이후 시료분석실 시설에 대한 세부설계사양을 도출하여 시료분석식의 예비개념설계를 2016년까지 완성할 계획이다.

4. 감사의 글

이 연구는 2015년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행되었다 (원자력기술개발사업, NRF-2012M2A8A5025947).

5. 참고문헌

[1] IAEA Safeguards Glossary, 2001 Edition.
[2] 안성규 외9인, "파이로시설 예비개념설계를 위한 안전조치시스템 요건 개발", 방사성폐기물학회 춘계학술대회 (2015).
[3] T. Itoh et al., "Enhanced Cooperation between SSAC and IAEA through Joint Operation of On Site Laboratory for Safeguarding Rokkasho Reprocessing Plant", Symposium on International Safeguards, Vienna, Austria, (2010).

2분과

방사성폐기물 처분 및 부지특성(Oral)

KOREAN RADIOACTIVE WASTE SOCIETY

Electrochemical Studies on Aqueous Uranium Redox Reactions and Nanoparticle Formation using Boron-doped Diamond Electrode

Wansik Cha*, Euo Chang Jung, and Hye-ryun Cho
Korea Atomic Energy Research Institute, 989-111 Daedeok-daero, Yuseong, Daejeon 305-353, Korea
*wscha@kaeri.re.kr

1. Introduction

Understanding the redox reaction of aqueous actinide species is important to predict the migration behaviors of radionuclides under deep geological conditions. Particularly, uranium (U) redox system has been studied extensively owing to the presence of various biotic and abiotic redox transformation processes and the large difference in solubility between tetravalent and hexavalent uranium (U(IV) and U(VI), respectively). Fundamental redox properties of these U species have been documented from potentiometric studies mostly using Hg, Pd and Pt electrodes [1]. However, in order to investigate direct redox reactions in complex systems containing organic and inorganic ligands, the use of these electrodes for direct voltammetric studies is challenging owing to the strong adsorption characteristics or surface fouling problems on electrodes, and the narrow potential window specifically for Pt.

In this study, the use of boron-doped diamond (BDD) electrodes is explored to examine the redox reactions of U species. BDD electrodes exhibit very low capacitance and less adsorption characteristics as well as the absence of surface oxide formation [2]. Thus, they provide a wide working potential range and a robust and dimensionally stable electrode system. The potential applications of BDD electrodes are discussed, e.g., to create a well-defined system of mixed oxidation states of U(IV) and U(VI), which results in U(IV) nanoparticle formation.

2. Experimental

The stock solution of uranium(VI) perchlorate was prepared from uranium dioxide. Trace analysis grades of sulfuric acid and perchloric acid were used as received. All stock solutions were prepared in an Ar-filled globe box. Voltammetric experiments were carried out under ambient conditions, however, all solutions in an electrochemical cell was purged with Ar(g) at least for 30 min before applying electrochemical measurement techniques. A three electrode system was used, which includes a Ag/AgCl(3M NaCl) reference electrode, a Pt-wire counter electrode, and a glass-sealed flat surface Pt working electrode (WE, 0.5-mm diameter) or a flat surface BDD WE (7.1 mm^2, ~0.1% boron-doping level, $0.75x10^{-3}$ Ω·m). Cyclic voltammetry (CV) were carried out using a commercial potentiostat (Bio-Logic Science Instruments, SP-300) and a EC-Lab® software as provided.

3. Results and Discussion

3.1 Characteristics of boron-doped diamond electrode

Platinum electrodes are widely used as WEs since they are inert under most electrochemical measurement conditions and show catalytic properties to facilitate the electron transfer process of desired redox reactions. In many cases its catalytic activity results from the formation of reactive adsorbed species including oxide and hydrogen, which eventually leads to the evolution of $O_2(g)$ and $H_2(g)$ at anodic and cathodic overpotential regions, respectively. In contrast, BDD electrodes exhibit much less surface adsorption behaviors providing a wider potential window for examining the redox dynamics of a target electroactive species. As shown in Fig. 1 the CV result with a BDD WE in the absence of U species displays a low capacitive current levels and a wide potential window (the trace (b)). When a Pt WE is used, the results is very similar to that of the trace (a) of Fig. 1 and $H_2(g)$ evolution is observed approximately from < -0.2 V (vs. Ag/AgCl). Thus, by using a BDD WE a nearly quantitative current responses can be obtained in a negative potential region as the U(VI) concentration increases (see the traces (b), (c) and (d) in Fig.1). For the redox couple of UO_2^{2+}/UO_2^{+}, the

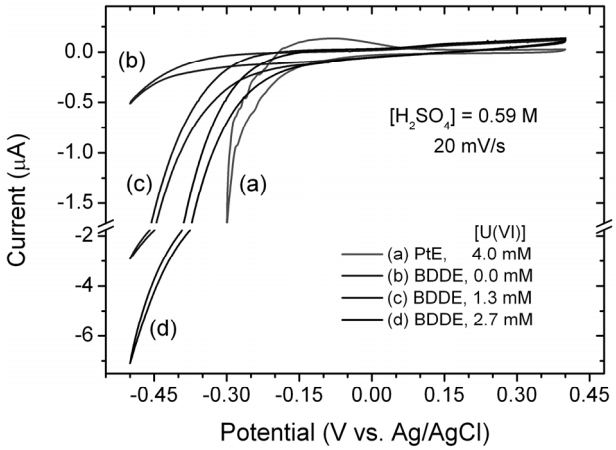


Fig. 1. Cyclic voltammograms of U(VI) obtained using a Pt electrode (PtE) and a BDD electrode (BDDE) in aqueous sulfuric acid solutions.

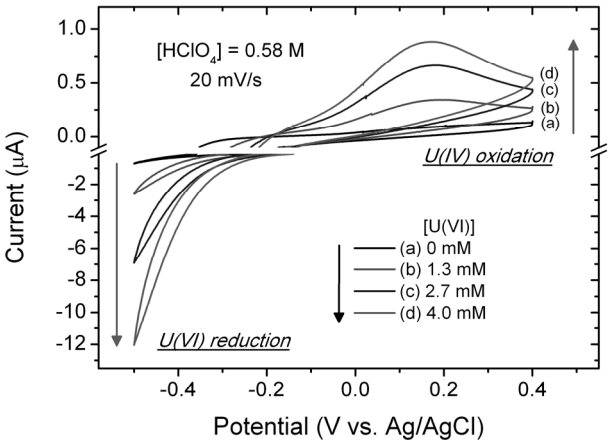


Fig. 2. Cyclic voltammograms of U(VI) obtained using a BDD electrode in aqueous perchloric acid solutions at various U(VI) concentrations.

standard reduction potential has been measured, E^0 = 0.088 V (vs. NHE, I = 0, 298 K) [1]. Therefore, it is very likely that the U(VI) species are reduced to U(IV) species (probably U(IV)-sulfate complexes) during the cathodic CV scan.

3.2 Redox behaviors of U(VI) in perchlorate media

To further investigate the U(VI) redox reactions in the non-complexing perchlorate media a similar CV study was carried out with the BDD electrode system. As shown in Fig. 2 during the cathodic scan the reduction current levels increases in proportion to [U(VI)]. In addition, an oxidative current peak appears and its current level increases in proportion to [U(VI)]. It is speculated that the re-oxidation of the produced U(IV) species (in this case free U^{4+}) occurs at this peak potential in an irreversible way. The peak potential (~0.2 V) is well matched to the value of reported for the UO_2^{2+}/U^{4+} redox couple, E^0 = 0.268 V (vs. NHE, I = 0, 298 K) [1]. Thus, it is concluded that the absence of such oxidation peaks in Fig. 1 is originated from the electron transfer barrier added by sulfate ligands of U(IV) complexes, which likely leads to the shift of the oxidation peak to a higher potential region.

3.3 Potential application using BDD electrodes

The BDD electrodes can be used to quantitatively produce U(IV) from U(VI) or vice versa, in a way that the accumulation of redox by-products (e.g., H_2(g) and O_2(g)) or a change in reaction conditions (e.g., pH) can be minimized. Thus, for example, U(IV) nanoparticles can be created in a controlled manner. Additionally, the various redox reactions of U(VI)-, or U(IV)-ligand complex species can be examined using the BDD electrode.

4. Conclusion

In this preliminary study, BDD electrodes are successfully applied for monitoring U(VI)/U(IV) redox reactions and examining the ligand effects on those redox processes. Further applicability for studying the U(IV) nanoparticle formation and the redox reactions of uranium complex species will be discussed in detail.

5. Acknowledgement

This work was financially supported by the Atomic Energy R&D Program of the National Research Foundation of Korea (Grant code: 2012M2A8 A5025924).

6. Reference

[1] I. Grenthe, J. Fuger, R.J.M. Konings, R.J. Lemire, A.B. Muller, C.N-T. Cregu, H. Wanner, "Chemical Thermodynamics of Uranium", Vol. 1 of Chemical Thermodynamics (1992, Reprint). Elsevier, North-Holland, Amsterdam (2004).

[2] A. Kraft, "Doped Diamond: A Compact Review on a New, Versatile Electrode Material" Int. J. Electrochem. Sci., 2, pp. 355-385 (2007).

환원조건에서 KURT 단열충전물의 우라늄 수착거동 영향

이승엽*, 이재광, 류지훈, 백민훈
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*seungylee@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원 내에 위치한 지하처분연구시설(KURT) 지하환경을 모델로 지하 방사성우라늄의 이동에 관한 연구를 수행하였다. 화강암반으로 구성된 KURT는 단열대(fracture zone) 및 소규모 균열들이 산재해 있으며, 지하수는 대부분 위의 통로들을 통해 이동하고 있다. 실제 지하폐기물처분장에서는 장기간 유출된 핵종들이 지하수에 용해되어 지하수와 함께 단열대를 따라 이동하게 될 것이다. 따라서 지하폐기물처분장의 핵종 거동을 이해하기 위해서 KURT에 분포하는 단열대를 대상으로 핵종들의 수착거동 특성을 파악할 필요가 있다.

지하 단열대의 특징은 암석이 단순히 갈라진 틈으로 존재하는 것이 아니라, 기원적으로 단층작용(faulting)과 같은 지각활동으로 생성되고 단층점토(fault gouge)와 같은 단열충전물들(fracture-filling materials)이 틈을 메우고 있다. 만약 지하수가 단열대를 따라 이동하게 되면 단열을 채우고 있는 물질들과 상호 반응할 것이고 지하수 핵종들이 단열물질들의 영향을 상당히 받게 될 것이다.

본 연구에서는 KURT 단열충전물들을 대상으로 우라늄의 수착거동 특성을 살펴보았다. 기존에는 지하 단열충전물에 관한 인식이 빈약했을뿐만 아니라, 이러한 물질들과 핵종간의 상호 반응에 관한 연구가 매우 드물었다. 더욱이 지하심부의 환원상태와 유사한 환원조건에서 실험하며 이들의 수착특성을 연구하는 사례는 거의 없었다. 이번 실험에서는 KURT 단열충전물 자체의 특성뿐만 아니라, 충전물에 생존하는 혐기성 토착미생물들(anaerobic indigenous bacteria)의 종류 및 용존 우라늄 수착거동에 미치는 영향 등도 함께 조사하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

실험에 사용된 시료는 KURT 단열충전물이다. 준비된 시료에 존재하는 토착미생물들을 따로 배양하여 동정하였다. 그리고 고체 시료를 수개월 동안 환원조건에서 숙성시키면서 시료들의 화학적, 광물학적 변화 및 변질 등을 살펴보았다. 또한, 생지화학적으로 새롭게 생성된 이차산물들을 X-선회절분석 및 전자현미경 등을 이용하여 관찰하였다.

그리고 지하처분환경 조건에서 생지화학적인 활동에 의한 우라늄의 수착 거동을 알아보기 위해 단열충전물 시료에 대해 H_2 가스 등을 주입하여 시간별로 우라늄의 수착 변화량을 살펴보았다.

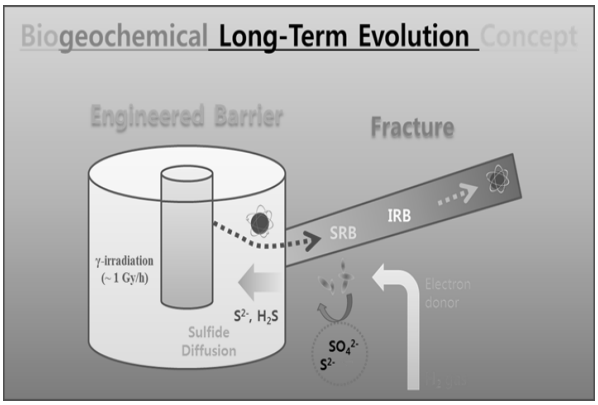


Fig. 1. Conceptual model for a biogeochemical impact on the underground HLW disposal site that is influenced by microbial activities for a long-term period.

2.2 지하처분환경의 생지화학적 영향

지하처분환경은 처음과는 다르게 시간이 흐르면서 계속적으로 변한다. 즉, 지하수 뿐만아니라 처분용기, 벤토나이트 완충재, 그리고 주변 단열충전물 등의 특성이 계속 바뀌게 되는데, 그 주요한 원인 중의 하나가 처분환경에 생존하는 금속환원 미생물들의 활동에 기인한다(Fig. 1). 즉, 지하수와 단열충전물, 그리고 벤토나이트 완충재 등에 생존하는 미생물들이 수소 가스 등을 전자공여체로 활용하여 황화물을 새롭게 생성시킬 뿐만아니라 핵종들의 산화수와 용해도 등을 조절한다.

2.3 우라늄 수착 특성 변화

KURT 단열충전물에 대한 우라늄의 수착량 변화 측정 실험에서 미생물과 H_2 가스의 역할을 살펴보았다. 미생물이 존재하는 경우 우라늄의 수착량이 약 2배 정도 증가하였으며, 이는 생물학적인 우라늄 수착력이 존재하며 그 영향이 상당함을 알 수 있었다. 그리고, 미생물이 존재하지 않은 경우에는 우라늄의 수착량에 큰 변화가 없었다. 또한 오랜기간(50일) 환원조건에서 숙성된 단열충전물의 경우 신선한 단열충전물에 비해 우라늄 수착량이 2배 이상 증가하는 것을 관찰할 수 있었다. 이는 단열충전물이 자체적으로 일부 토착미생물(indigenous bacteria)을 내부에 가지고 있기 때문에 수소 가스 등이 미생물의 전자공여체(electron donor)로 활용되어, 우라늄의 환원을 촉진하고 수착량을 증가시킨 것으로 판단된다.

3. 결론

지금까지는 지하처분환경의 생지화학적 활동 및 영향을 고려한 우라늄의 장기 거동 연구가 국내외적으로 많지 않았다. 본 실험에서는 장기적으로 생지화학적 활동에 의해 공학적방벽을 구성하는 벤토나이트 완충재 뿐만아니라 주변의 단열충전광물의 변화 그리고 지하수화학의 변화 등이 야기됨을 확인할 수 있었다. 또한, 심부환경에서 발생되는 황화수소나 수소와 같은 가스들은 자체적으로 핵종에 관해 큰 영향력은 없었지만, 토착미생물의 활동과 연계되어 전자공여체로 활용되었을 때, 핵종들(예: 우라늄)의 산화수 및 수착량 등의 변화에 크게 작용함을 알 수 있었다.

4. 감사의 글

본 연구는 2015년도 미래창조과학부의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행되었습니다 (원자력연구개발사업, No. 2012M2A8A5025589).

중성자 흡수능을 갖는 합금 제작을 위한 Fe-Gd 모합금에 관한 연구

이상욱, 임재한, 안지호, 정현도, 문병문*
한국생산기술연구원, 인천광역시 연수구 갯벌로 156 (송도동)
*moonbm@kitech.re.kr

1. 서론

원전에서 연소를 마친 사용후핵연료는 원자로에서 냉각되어 저장수조에 저장된다. 습식저장 방식은 풍부한 운영경험을 토대로 안전한 사용후핵연료 저장기술로 입증되었지만 추가적인 방사성 폐기물의 발생으로 경제적문제와 저장용량의 문제점을 가지고 있다. 반면 건식저장방식은 기체를 냉각재로 이용하는 방식으로 습식저장방식보다 경제적으로 우수하며 안전한 저장방식이다. 이러한 이유로 현제 여러나라에서는 사용후핵연료 중간저장기술을 건식저장방식으로 전환되는 추세이며 사용후 핵연료를 안전하게 이송 및 저장할 수 있는 소재의 개발이 시급하다[1]. 사용후핵연료의 이송 및 보관 용기에는 중성자 흡수재로써 붕소(B)를 첨가한 스테인리스계가 많이 사용되고 있지만 붕소는 중성자 흡수 후 헬륨 (He)으로 분해가 되며, 다량 첨가 되었을 경우 모재로 사용이 되는 스테인리스강에 열간가공성을 저하시키는 요인으로 작용한다[2]. 이러한 점을 보완할 수 있는 중성자 흡수 소재로 가돌리늄 (Gd)의 연구가 이루어지고 있다. 가돌리늄의 경우 희토류 금속으로 붕소의 66배 이상의 중성자 흡수단면적을 가지고 있기 때문에 보다 적은 양을 사용하여 동일한 특성을 유지 할 수 있으며, 열간가공성도 우수하다.
그러나 가돌리늄의 경우 산소와의 친화력이 높기 때문에 대기용해 시 회수율이 낮으며 모재 안에 산화물로 존재하여 기계적 특성을 저하시키는 요인으로 작용할 수 있다[3].
따라서, 본 실험에서는 중성자 흡수능을 가진 가돌리늄이 포함된 스테인리스강을 안정적으로 제조하기 위해 Fe-Gd 모합금을 제작하여 그 특성을 알아보았다.

2. 본론

2.1 실험방법

Fe-Gd 상태도를 참고하여, 순철/가돌리늄 모합금에서 가돌리늄의 함량을, 20wt%, 45wt%, 55wt%, 80wt%로 선정하였으며 (Tabel 1), 모합금의 제조는 산화를 최소화하기 위해 아크용해를 통해 제작 하였으며, 본 실험에서 사용한 진공 아크 용해로(Vacuum Arc Melting)는 1200A, 100V 플라즈마 전원장치에서 800A, 60V조건으로 용해하였다. 이때의 진공도는[$9x10^{-5}$torr]를 유지하였다. 합금원소인 재료의 형태는 순도 99.5% Gd와 순도 99.9% Fe를 사용하여 용해하였다. 제작된 모합금은 미세조직 관찰 및 성분분석을 위하여 전자현미경(Lectropol-5)을 사용하였으며, X-ray Diffraction을 통해 상분석을 하였다. XRD의 Scan rate는 0.02°/min이며, counting time은 5sec로 하여 5~100°까지 측정을 하였다.

Table 1. Fe-Gd master alloys

Name	Gd20	Gd45	Gd55	Gd80
Gd [wt%]	20	45	55	80
Fe [wt%]	80	55	45	20

2.2 결과

2.2.1 모합금의 미세조직관찰

Fe-Gd 모합금을 각각 Gd 함량 기준 20wt%, 45wt%, 55wt%, 80wt%의 조건으로 제작한 후 미세조직을 관찰하고 EDS 분석을 통해 성분 분석을 하였다 (Fig. 1). 20wt%의 가돌리늄이 첨가되었을 때, $Fe_{17}Gd_2$ base(진회색)에 Fe(검은색)가 관찰되었으며 (Fig. 1 (a)), 45wt%의 가돌리늄이 첨가되었을 때, $Fe_{23}Gd_6$, Fe_3Gd, Fe_2Gd가 혼재되어있는 상태로 관찰되었다 (Fig. 1 (b)). 55wt%의 가돌리늄이 첨가되었을 때, Fig.1 (b)와 비슷하게 $Fe_{17}Gd_2$, Fe_3Gd, Fe_2Gd가 관찰되었으며, 80wt%의 가돌리늄이 첨가되었을 때, Fe_2Gd와 Gd가 관찰되었다 (Fig. 1 (c) and (d)). 모든 조성에서 금속간 화합물은 고르게 분포하였으며 45wt%, 55wt%의 가돌리늄이 첨가된 모합금의 경우 상태도상의 조성보다 더 많은 상들이 관찰되었다.

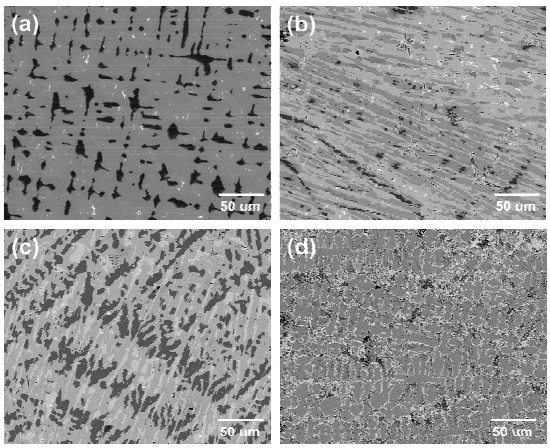


Fig. 1. Microstructure of Fe-Gd Master alloys : (a) Gd20, (b) Gd45, (c) Gd55, (d) Gd80.

2.2.2 모합금의 상분석

모합금의 상분석을 위하여 XRD를 측정하였다. Fig. 2는 모합금의 XRD 결과이다. 가돌리늄이 20wt%에서 80wt%까지 첨가된 모합금에서 주요 상들은 각각 다르게 나타났으며, Gd 20은 EDS결과와 마찬가지로 $Fe_{17}Gd_2$와 Fe peak이 나타나는 것을 알 수 있었다. 하지만 45wt%~80wt%의 가돌리늄이 포함된 모합금의 경우 EDS에서 확인된 것과는 다르게 다양한 상이 검출이 되었다. Gd 45는 $Fe_{23}Gd_6$, Gd 55와 Gd 80은 Fe_2Gd가 가장 강한 강도로 측정이 되었고 이는 Fe-Gd phase diagram과 일치함을 알 수 있다.

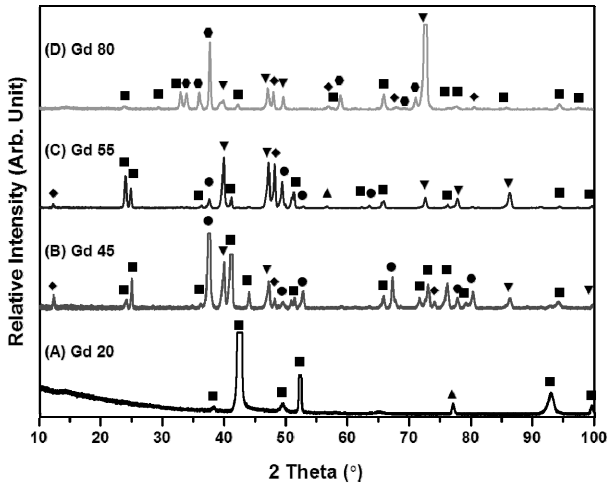


Fig. 2. XRD patterns of Fe-Gd Master alloys with various ratio : ■: $Fe_{17}Gd_2$, ●: $Fe_{23}Gd_6$, ▲: Fe_5Gd, ◆: Fe_3Gd, ▼: Fe_2Gd, ▲: Fe.

3. 결론

중성자 흡수용 저장장치의 제작을 위한 모합금을 연구하였으며, 각각의 가돌리늄 함유량에 따른 모합금 내의 금속간 화합물을 확인 할 수 있었다. 조성에 다른 모합금의 차이는 합금 제작 시 대기용해를 하였을 경우 각각 다르게 작용할 것으로 예상이 되며, 합금 내 가돌리늄의 첨가 시 분포 및 회수율에 따른 공정 조건을 연구하는데 중요한 변수로 작용할 것이다. 제작된 모합금을 이용한 대기용해는 실험을 하여 연구할 예정이다.

4. 참고문헌

[1] 방사선폐기물 안전관리 통합정보시스템, (web.site: wacid.kins.re.kr).

[2] Takemoto Toshihiko, yongjin flat, Yamazaki , "PRODUCTION OF AUSTENITIC STAINLESS STEEL PLATE FOR THERMAL NEUTRON SHIELDING", JP08253814.

[3] M. copeland, W. Barstow, C. Armantrout, and H. kato "STAINLESS STEEL-GADOLINIUM ALLOYS" bureau of mines report of investigations 6636 1965, 27-28, RI (1965).

A Study on Applicability of a New Neutron Absorber Based on Radioactive Vitrified Forms for PLUS7 and WH17x17 Spent Fuel Storages

Jae Hyun KIM[1], Song Hyun KIM[1*], Chang Ho SHIN[1], Jung Hun CHOE[2], In Hak CHO[2], and Hwan Seo PARK[2]
[1]Hanyang University, 222, Wangsimni-ro, Seongdong-gu, Seoul, 133-791, Korea
[2]Korea Atomic Energy Research Institute, 150, Deokjin-dong, Yuseong-gu, Daejeon, 305-353, Korea
*nucleon@hanyang.ac.kr

1. Introduction

The vitrified technique is a disposal technique that radioactive wastes are safely stored in materials of glass formation with minimizing environment leakages. However, as the growth of the technique, the disposal problem of the vitrified forms, which includes radioactive isotopes, can be issued as an aspect on the cost and site. In a previous study [1], a cylindrical neutron absorber based on radioactive vitrified forms was proposed for efficient and economic disposal of radioactive waste. In this study, to increase the applicability on fuel storages, criticality control ability is evaluated by using a plate type neutron absorber using domestic vitrified forms.

2. Methods and Results

To satisfy the criticality limit in spent nuclear fuels is one of the important analysis fields for storage design. In this study, evaluation of criticality control ability using the neutron absorbers based on vitrified form was performed.

2.1 Overview of Proposed Storage Rack Design

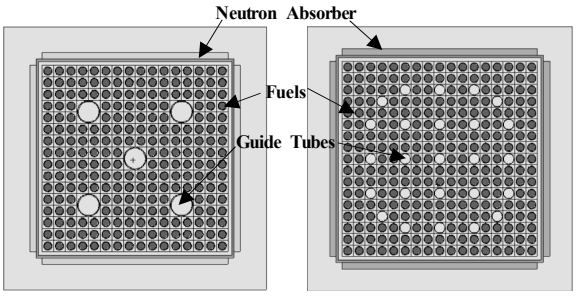
The vitrified form have been developed from early times to efficiently store radioactive waste. The composition of vitrified form is different as vitrification techniques. However, most of vitrified forms developed in these days include boron. Boron has high neutron absorbing cross section; therefore, the vitrified forms including boron can be used for criticality control material. Table 1 shows as composition of vitrified forms in Korea [2].

The PLUS7 and WH17x17 assemblies were selected as target assemblies to evaluate criticality control.

Table 1. Composition of Vitrified Forms in Korea

Composition	RG-1 [wt%]	DG-1 [wt%]	MG-1 [wt%]	SRL-EA [wt%]
SiO_2	50.78	39.89	43.69	46.30
K_2O	0.80	9.29	0.21	0.00
Li_2O	8.78	0.00	1.51	4.20
Na_2O	5.98	9.14	23.80	16.3
B_2O_3	9.88	20.77	10.19	10.9
Al_2O_3	7.47	15.45	14.36	3.20
CaO	5.98	3.58	2.92	1.00
MgO	0.00	0.45	0.37	1.60
CoO	0.01	0.00	0.00	0.00
Cr_2O_3	0.03	0.00	0.01	0.00
CuO	0.01	0.00	0.00	0.00
Fe_2O_3	3.30	0.04	0.60	8.70
MnO_2	0.14	0.01	0.03	1.60
NiO	6.85	0.00	1.18	0.60
TiO	0.00	1.10	0.89	0.70
P_2O_3	0.00	0.17	0.13	0.00
SO_3	0.00	0.13	0.10	0.00
Other	0.00	0.00	0.00	4.90
Density [g/cm3]	2.69	2.59	2.57	2.56

The overview of the assemblies including the absorbers are as shown in Fig. 1. The design was determined as a sensitivity study on changing the sizes and positions. The details of the proposed neutron absorber are given in Table 2. The criticality calculations were pursued by MCNP5 code with an ENDF/B-VI cross-section library and a sab2002 S(α,β) thermal cross-section library [3].



(a) Rack for PLUS7 (b) Rack for WH 17x17

Fig. 1. Unit Storage for the PLUS7 and WH 17x17.

Table 2. Properties of the Proposed Neutron Absorber

Classification	Value
Type	Plate
Height	Effective Height of Nuclear Fuel
Width	20.56384 cm
Thickness	0.7 cm

2.2 Evaluation of the Criticality Control Ability

According to the criticality safety guidelines, the multiplication factor must keep within 0.95 considering the lots of uncertainties [4]. To consider possible uncertainties, the design goal of the multiplication factor was determined 0.90. To judge the applicability of the vitrified forms as the criticality control materials, two cases were assumed. Case 1 is a condition that original density. Case 2 is a condition that the density of neutron absorber is reduced by 75% of the density used in case 1. The result of second condition is used by conservative criticality safety analyses to consider the margin of various uncertainties. Table 2 and Table 3 show the k_{eff} results for the PLUS7 and WH17x17 fuel storage cases, respectively.

Table 3. Multiplication Factors with Various Vitrified Forms for the PLUS7 Spent Fuel Storage

	Multiplication Factor	
	Case1	Case2
RG-1	0.85521(±0.00080)	0.86432(±0.00083)
DG-1	0.84032(±0.00079)	0.84730(±0.00081)
MG-1	0.86215(±0.00081)	0.86939(±0.00081)
SRL-EA	0.85566(±0.00080)	0.86377(±0.00082)

Table 4. Multiplication Factors with Various Vitrified Forms for the WH17x17 Spent Fuel Storage

	Multiplication Factor	
	Case1	Case2
RG-1	0.89849(±0.00080)	0.90691(±0.00083)
DG-1	0.88575(±0.00080)	0.89088(±0.00081)
MG-1	0.90534(±0.00086)	0.91602(±0.00084)
SRL-EA	0.89930(±0.00082)	0.90750(±0.00083)

Analysis shows that the multiplication factor in using each vitrification form was decreased as increasing quantity of boron included each vitrification form. For DG-1 vitrified form, it has the most quantity of boron; therefore, the criticality control ability of DG-1 was higher than the other vitrification forms. Also, the results show that multiplication factors of most of the proposed neutron absorbers with vitrification forms are well satisfied with design goal. For MG-1 vitrification form for the WH17x17 spent fuel storage, multiplication factor exceed the design goal. This is because the quantity of boron in MG-1 was lowly included comparing with the other absorbers.

3. Conclusions

In this study, an evaluation of criticality control ability of a neutron absorber based on the vitrified forms was performed. Analysis shows that vitrification form-based neutron absorbers can be utilized as an alternative material of conventional neutron absorbers. Also, the results can be used to offer some reference data to develop a new neutron absorbers based on vitrified form in the future.

4. Acknowledgments

This work was supported by the Energy Efficiency & Resources of the Korea Institute of Energy Technology Evaluation and Planning (KETEP) grant funded by Korea government Ministry of Knowledge Economy (20121620100070), and Innovative Technology Center for Radiation Safety (iTRS).

5. References

[1] S.H. Kim et al. “A Feasibility study on the criticality control method using radioactive vitrified forms for spent fuel storage”, Nuclear Engineering and Design, 280, 644-650 (2014).

[2] C.H. Kim et al. “Studies on the Physico-chemical Properties of Vitrified Forms of the Low- and Intermediate-level Radioactive Waste”, Journal of the Korean Ceramic Society. 38(9), 839-845 (2001).

[3] X-5 MONTE CARLO TEAM, “MCNP-A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5, Volume II: User’s Guide”, LA-CP-03-0245, Los Alamos National Laboratory (2003).

[4] American Nuclear Society. “Guide for Nuclear Criticality Safety in the Storage of Fissile Materials”, ANSI/ANS-8.7 (1998).

경주 중·저준위 방사성폐기물 복합처분시스템의 원계영역 내 상호의존적 안전성평가

한솔찬*, 조용흠, 이준엽, 윤종일
한국과학기술원, 대전광역시 유성구 대학로 291
*hsc09@kaist.ac.kr

1. 서론

우리나라는 중·저준위 방사성폐기물을 경주 방사성폐기물 복합처분시스템(표층처분 및 사일로처분 시스템)에 처분할 계획에 있다. 사일로처분시설은 이미 건설이 완료되어 운영을 시작하였으나, 아직까지 표층처분시설에 대한 건설·운영허가는 이루어지지 않은 실정이다. 이에 따라 각 안전성평가 시점에 대해 처분방식 별 건설/운영/폐쇄 등의 다양한 운영단계가 공존할 수 있다. 아울러 경주 중·저준위 방사성폐기물 처분시설의 경우 단일 부지 내에 표층 및 사일로처분의 상이한 두 처분방식이 공존할 예정이므로, 각 처분고로부터 유출된 방사성핵종의 상호 간섭을 고려한 안전성평가의 수행이 필수적으로 요구되어진다.

본 연구에서는 국내 복합처분시스템만의 특수성을 고려한 안전성평가를 위해 몬테카를로 기반의 상용전산코드인 Goldsim을 이용하여 방사성핵종 유출거동을 모사할 수 있는 안전성평가 모델을 개발하였다.

2. 본론

2.1 입력인자 도출

복합처분시스템에 대한 신뢰도 있는 안전성평가를 위해서는 처분시스템의 주변환경을 고려한 기본입력인자(용해도, 흡착계수, 그리고 공극률 등)의 선별이 중요하다. 이를 위해 경주 복합처분시스템 주변의 지하수 환경에 대한 조사를 선행하였으며, 그 결과를 Table 1에 나타내었다[1].

Table 1. Geochemical condition of Gyeongju disposal site

pH	Eh(mV)	I (M)	Na^+(ppm)	K^+(ppm)
7.3 ± 1.4	-45 ± 69	0.003	18.8 ± 5.4	3.1 ± 2.0
Ca^{2+}(ppm)	Mg^{2+}(ppm)	Cl^-(ppm)	SO_4^{2-}(ppm)	Fe(ppm)
16.3 ± 8.0	4.9 ± 3.1	14.1 ± 11.5	22.7 ± 21.3	0.64 ± 1.2

선행 조사한 지하수 조건을 기반으로 하여 주요 방사성핵종의 용해도를 Minteq 코드를 이용하여 도출하였으며, 아울러 주요 핵종별 흡착분배계수 역시 지구화학적 환경과 유사한 조건에서 실험된 값을 선별하여 모델 개발에 활용하였다(Table 2).

Table 2. Radionuclides input parameters

radionuclide	solubility (log(M))	K_d for host rock log(K_d (m^3/kg))	K_d for soil log(K_d (m^3/kg))
C(IV)	-3	-3	-1.70
Ce(III)	-4.70	-0.61	0.67
Co(II)	-2.14	-1	-0.23
Cs(I)	soluble	-0.74	-0.66
Fe(II/III)	-9.24	-0.92	-0.82
H	soluble	no sorption	no sorption
I(VII)	-0.15	no sorption	-3.70
Nb(V)	-4.15	0	0.30
Ni(II)	-4.49	-0.92	-1.10
Sr(II)	-2.58	-1.89	-0.52
Tc(VII)	-5.77	no sorption	-3.43

2.2 안전성평가 모델 구축

2.2.1 표층처분시설

표층처분시설에 대한 핵종이동 모델은 아래 Fig. 1과 같다. 모델링에 사용된 표층처분시설은 콘크리트용기 21기로 구성되어 있으며, 콘크리트용기 당 6480개의 200 L 철제 드럼이 처분된 것으로 설정하였다. 보수적인 안전성평가를 위해 처분시설의 포화시점과 철제 드럼의 손상시점은 모두 폐쇄 직후로 가정하였다. 철제드럼에서 유출된 방사성핵종은 콘크리트용기를 통해 처분시설 전후좌우 및 상부의 뒤채움재(토양)로 확산되고, 최종적으로는 처분시설 하부의 콘크리트 바닥재를 통하여 균열을 따라 원계영역으로 이동하는 것으로 모사하였다.

2.2.2 사일로처분시설

사일로처분시설 핵종이동 모델은 아래 Fig. 2에 나타낸 바와 같다. 사일로처분시설 모델은 콘크리트용기 27기로 구성되어 있으며, 콘크리트 용기 당 640개의 200 L 철제 드럼이 처분된 것으로 가

정하였다. 표층처분시설과 마찬가지로 사일로처분시설 역시 지하수 포화시점과 철제 드럼의 손상시점을 폐쇄 직후로 설정하였다. 철제드럼에서 유출된 방사성핵종은 콘크리트용기를 통해 확산되어 사일로와 콘크리트용기의 공간을 매우고 있는 뒤채움재(파쇄석)로 이동하며, 최종적으로는 사일로 콘크리트방벽을 통해 기반암의 균열을 따라 원계 영역으로 확산되는 것으로 모사하였다.

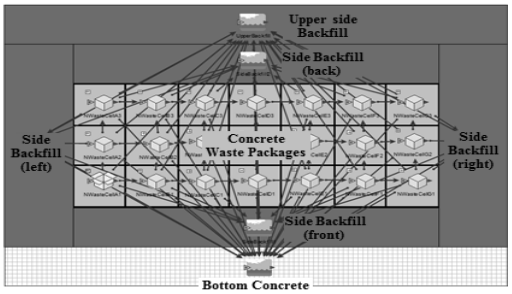


Fig. 1. Schematic diagram for nearsurface disposal system safety assessment module.

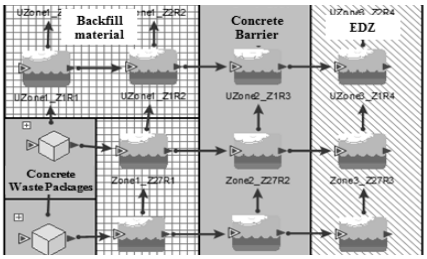


Fig. 2. Schematic diagram for silo disposal system safety assessment module.

2.3 핵종유출 모델링 결과

Fig. 3은 정상 시나리오 조건에서 표층처분시설 및 사일로처분시설에서 생태계 영역으로 이동하는 방사성핵종의 유출량을 나타낸다. 시설폐쇄 후 약 200 년 이내의 초기 단계에서는 ^{3}H가 방사성핵종 유출에 있어 주요 핵종으로 작용하는 반면, 이후 단계에서는 ^{14}C가 주요 유출 핵종임을 확인할 수 있다. 또한 10,000 년 이상의 장기안전성평가에 있어서는 흡착능이 떨어지고 반감기가 긴 금속원소(^{59}Ni, ^{94}Nb) 들이 주요 핵종으로 평가되었다.

Fig. 4에 정상 시나리오 조건에서 표층 및 사일로처분시설로부터 유출된 방사성핵종에 대하여, 단일 균열을 통한 하나의 이동경로만을 고려하여 계산한 결과와 처분시설 별로 상이한 균열을 통한 개별 이동경로를 고려한 계산결과값 간의 차이를 나타내었다. 그 결과, 단일 균열만을 고려하여 도출된 핵종의 유출량이 그렇지 않은 경우와 비교하였을 때 상대적으로 약 0.1%정도 높은 값을 보여주었다.

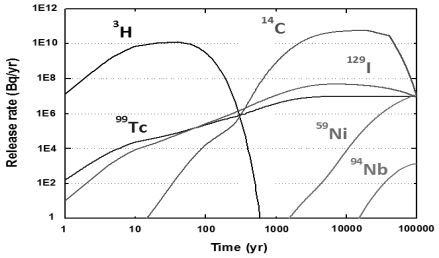


Fig. 3. Radionuclide release rate to biosphere in normal scenario.

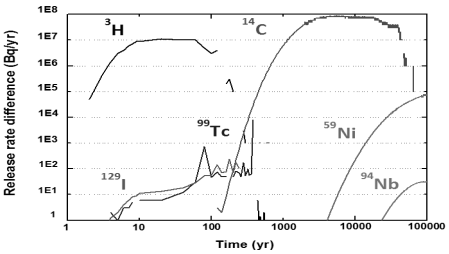


Fig. 4. Radionuclide release rate differences between same aquifer release and independent aquifer release.

3. 결론

복합처분시스템의 안전성평가에 있어 주요 유출 핵종은 ^{3}H 및 ^{14}C인 것으로 나타났다. 반감기가 긴 비흡착성 핵종의 경우(^{99}Tc, ^{129}I) 그 유출량이 꾸준히 증가하는 경향을 보여주었으며, 특히 장기안전성평가에 있어서는 흡착능이 떨어지는 장반감기 금속원소(^{59}Ni, ^{94}Nb)가 주요 핵종으로 나타남을 알 수 있었다. 아울러 표층 및 사일로처분시설로부터 유출된 방사성핵종이 단일 균열을 통해 유출될 경우 개별적인 균열을 통해 유출되는 경우보다 그 유출량이 근소하게 증가함을 알 수 있었다.

4. 감사의 글

본 연구는 원자력안전위원회의 재원으로 한국방사선안전재단의 지원을 받아 수행한 원자력안전연구개발사업의 연구결과입니다. (No.1305032-0214-SB110)

5. 참고문헌

[1] 최병영, 김건영, 고용권, 신선호, 유시원, 김두행 "중·저준위 방사성 폐기물 처분부지의 지구화학 특성 Ⅰ. 지하수", 방사성폐기물학회지, 6(4), 297-306 (2008).

우라늄 장기거동 이해를 위한 우라늄 함유 광물의 메타믹트화 작용 해석 연구

박태진[1*], 임준혁[2], 이용재[2], 신주도[1], 백민훈[1], 김경수[1]
[1]한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
[2]연세대학교, 서울특별시 서대문구 신촌동 134
[*]etjpark@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성폐기물 처분과 관련한 연구개발 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 핵종의 용해도와 핵종과 다양한 고체 매질과의 반응에 의해 영향을 받게 된다[1]. 이런 다양한 고체 매질 중, 우라늄을 함유하고 있거나 또는 우라늄을 함유할 수 있는 우라늄광물의 장기거동에 대한 연구가 처분장의 장기안전성 평가와 관련하여 상당한 관심을 받고 있다[2]. 그러나 우라늄광물 등의 고상상태(solid-state)에서의 장기거동 및 방사선 영향에 의한 거동에 대한 국내 연구는 매우 부족한 것이 현실이다. 본 연구에선 우라늄 장기거동에 대한 이해를 돕기 위해 지르콘 광물구조 내 존재하는 우라늄의 방사선 영향에 의해 발생하는 메타믹트화 작용(metamictization)에 대해 고찰하고, 분광학 등에 기반하여 해석하고자 하였다.

2. 본론

2.1 메타믹트화 작용

메타믹트화 작용(metamictization)은 방사선에 의하여 광물의 결정격자가 파괴되는 작용을 말한다. 이는 일반적으로 우라늄이나 토륨을 함유한 광물이 방사선 붕괴로 인해 방출되는 알파입자에 의해 결정구조가 파괴되어 나타나게 되고, 파괴된 결정구조는 결과적으로 유리화된 도메인을 형성하게 된다. 이 작용은 지르콘($ZrSiO_4$) 광물을 통해 연구가 진행되었으며, 메타믹트화 작용을 통하여 비정질화된 광물은 악티나이드에 대하여 상대적으로 높은 용해율로 인해 보다 높은 이동성을 나타내었다[3].

2.2 지르콘($ZrSiO_4$) 광물

지르콘($USiO_4$) 광물은 대표적 4가 우라늄 광물인 coffinite($USiO_4$)와 토륨 광물인 thorite($ThSiO_4$)와 같은 결정구조를 갖는다. 지르콘은 결정학적으로 tetragonal, $I4_1/amd$ 그룹에 속하고, 그 구조는 edge-sharing SiO_4 tetrahedra와 ZrO_8 triangular dodecahedra가 c축과 평행하게 주기성을 갖고 구성되어 있다. 구조적 특성으로 인해 천연 지르콘 광물은 대부분 우라늄 및 토륨을 함유하고 있으며, 이런 지르콘 광물은 핵무기 관련한 플루토늄(Pu)의 처분을 위한 모상(host phase)으로도 제안되었다[4].

2.3 XRD 및 Raman 분석

메타믹트화 작용에 대한 영향을 보기 위해 천연지르콘(S4, S5)과 합성지르콘(S1, S2, S3) 시료에 대하여 분광학(예: XRD, Raman)에 기반하여 비교분석하였다(Fig. 1 참조). XRD 결과는 천연지르콘과 합성지르콘 시료 모두 명확한 결정성을 나타내고 메타믹트화 작용에 의한 비결정성을 확인하기 어려웠다(Fig. 1(a)). 아울러, 천연지르콘의 경우 소량의 이차상이 포함되어 있음에도 불구하고, 지르콘의 높은 결정성으로 인해 이차상의 peak를 확인할 수 없었다.

라만분광학 분석결과는 천연지르콘과 합성지르콘에서 얻어진 peak들의 강도가 다소 차이가 있음을 확인할 수 있었다. 특히, 1000 cm^{-1} 부근에서 Si-O stretching에 의해 나타나는 두 peak의 상대 강도와 위치의 차이로 인해 메타믹트화 작용이 천연지르콘 구조 내에서 SiO_4 tetrahedra 그룹의 비결정성에 영향을 주는 것을 확인할 수 있었다. 보다 명확한 해석을 위해서는 EXAFS 등의 방사광가속기 기반 실험 등이 필요할 것으로 사료된다.

2.4 XRF 분석

Fig. 2는 천연지르콘과 합성지르콘에 대한 xrf 측정 결과를 보여준다. 이미지를 통해 관찰한 결

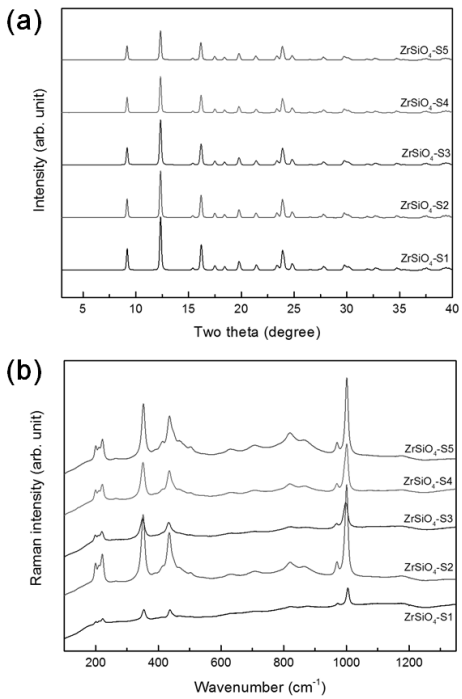


Fig. 1. (a) XRD and (b) Raman analysis on zircon ($ZrSiO_4$) samples.

과, 천연지르콘의 경우 그 grain이 명확히 보였고(Fig. 2(a)), 그들 중 소수에서 우라늄 XRF 분광을 확인(Fig. 2(c))할 수 있었다. 이는 지르콘 내 우라늄 분석에 있어 우라늄의 농도가 중요함을 나타낸다. 반면, 합성지르콘의 경우는 입자가 상대적으로 가늘고(Fig. 2(b)), 우라늄 분광을 확인하기 어려웠다(Fig. 2(d)). 따라서, XRF 분석을 통해 천연지르콘 내에 우라늄이 결합(incorporation)되어 있는 것을 확인할 수 있었다.

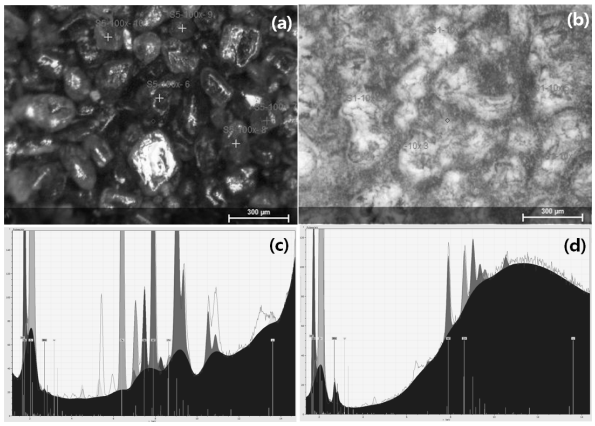


Fig. 2. Images from XRF measurements on (a) natural and (b) synthetic zircon ($ZrSiO_4$) samples. The uranium XRF spectrum is observed for (c) natural zircon, whereas not for (d) synthetic zircon.

3. 결론

처분환경에서 우라늄 등의 방사성물질에 대한 고상상태(solid-state)에서의 장기거동 이해를 돕기 위해 우라늄 방사선 영향에 의한 메타믹트화 작용에 대하여 살펴보았다. 아울러, 분광학 등에 기반하여 지르콘 광물 내 존재하는 우라늄의 알파붕괴에 의한 메타믹트화 작용을 해석하였다. 이런 작용에 의해 비정질화/유리화가 진행된 광물은 핵종의 용해율이 상대적으로 높으며, 보다 높은 핵종 이동성을 보일 것으로 판단되었다. 따라서, 고상상태(solid-state)의 작용이 우라늄 등의 장기거동에 미치는 영향이 크고, 이에 대한 해석연구가 처분 안전성에 큰 영향을 줄 것으로 예상된다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력연구개발사업(No. 2012M2A8A5025589)의 일환으로 연구비를 지원받아 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] Kim, J.-I., Nucl. Eng. Technol. 38(6), 459-82 (2006).
[2] Bruno, J.; Bosbach, D.; Kulik, D.; Navrotsky, A., OECD NEA Data Bank, Eds., OECD Publications, Paris, France (2007).
[3] Balan, E.; Neuville, D. R.; Trocellier, P.; Fritsch, E.; Muller, J.-P.; Calas, G., Am. Mineral. 89, 1025 (2001).
[4] Burakov, B. E., Proc. Safe Waste '93 2, 19 (1993).

Design of a Tracer Test Equipment Minimizing the Experimental Errors

Sung-Hoon Ji* and Yong-Kwon Koh
Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI), 111 Daedeok-daero 989, Yuseong-gu, Daejeon, Korea
*shji@kaeri.re.kr

1. Introduction

When nuclides are leaked from a subsurface repository in crystalline fractured rock, they finally reach to the biosphere with groundwater. Groundwater mainly flows though fractured zones, and it is import to characterize the solute transport properties of a fractured zone. A tracer test is a common hydraulic test to evaluate the solute transport properties of an aquifer using the observed breakthrough curve after injection of tracer. The breakthrough curve observed at a tracer test in fractured rock is characterized by fast peak arrival and long tail. Several previous works proposed that these characteristics were originated from solute diffusion into/from matrix [1], connectivity among fractures [2] and experimental errors [3], which means that the experimental errors should be minimized to characterize the solute transport in fractured rock. The objectives of this study are to design and develop the tracer injection and extraction equipments considering the effects of tracer injection conditions to minimize the experimental errors of a tracer test.

2. Requirements for a proper tracer test

To introduce the requirements for minimizing the experimental errors of a tracer test, the literature survey was performed and the results show that several tracer injection conditions can affect the shape of the breakthrough curve [e.g. 3, 4, 5, 6, 7]: the wellbore mixing effect becomes large, and the tracer is incompletely mixed with water in a borehole, which makes the peak of a breakthrough curve to be reduced and the breakthrough curve to be spread. As the injection duration becomes large, the peak concentration is reduced and the breakthrough curve has long tail. The wellbore volume and well-aquifer interaction also affect the shape of a breakthrough curve. If the wellbore volume is large, it is difficult for tracer to be completely mixed with water in the borehole, and the shape of a breakthrough curve changes. As the well-aquifer interaction becomes small, the peak concentration is reduced and the breakthrough curve has long tail. From the literature survey results, the requirements for a proper tracer test by minimizing the experimental errors was introduced as follows: 1. The concentration of tracer at the injection well should be measured during the test, and tracer should completely mixed in the injection well for identical concentration in the test zone; 2. The wellbore volume of the injection well should be as small as possible; and 3. Tracer in the injection well should move to aquifer as quickly as possible, and distortion of the groundwater flow condition near the injection well should be minimized.

3. Design of the tracer test equipment

Based on the introduced requirements, the tracer injection equipment was designed, and Fig. 1 shows a schematic diagram of the designed tracer injection equipment setup and the designed double packer system for tracer injection. To isolate the test zone and prevent seepage of water from the artesian condition of the study site, a triple packer system was used. For complete mixing of tracer with water in the test borehole and accurate information on the tracer concentration at the source, tracer was injected and extracted in the test zone. The diameter of the connection pipe between the middle and lower packers was similar to the diameter of the test borehole to minimize the volume of the test zone. After injection of tracer, water was injected with the identical injection rate to chase the tracer and to maintain the water flow condition during the test.

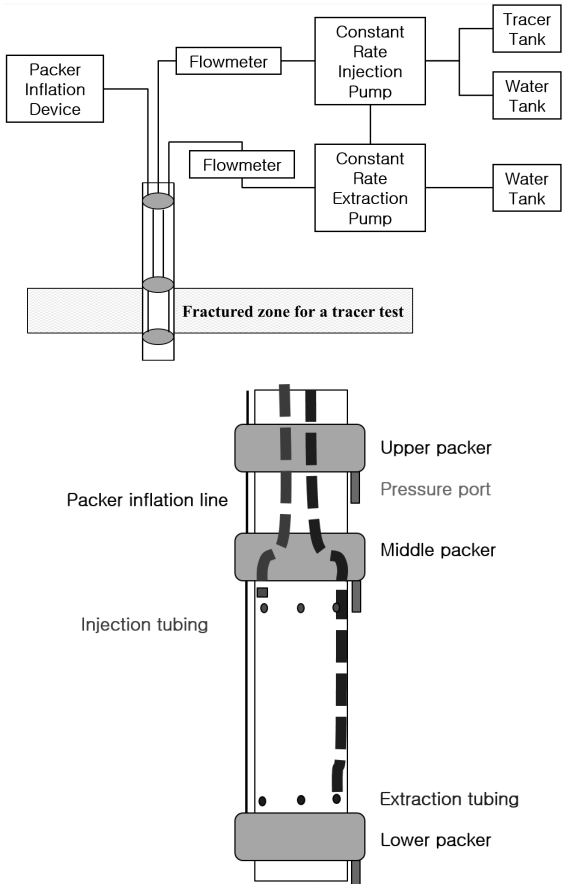


Fig. 1. Schematic diagram of the designed tracer injection equipment setup and the designed double packer system for tracer injection.

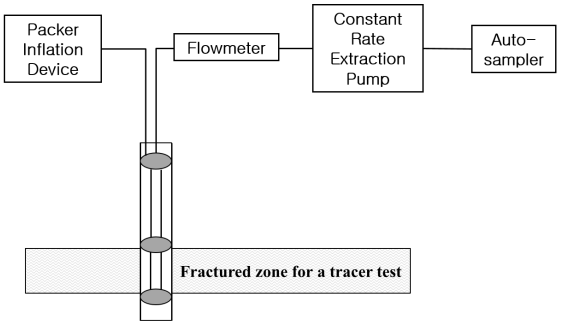


Fig. 2. Schematic diagram of the designed tracer extraction equipment setup.

Fig. 2 shows a schematic diagram of the designed tracer extraction equipment setup. Considering the requirement 3, the tracer extraction equipment was designed to isolate the test zone, to be opened without screen at the test zone, and to be pumped water out continuously with a same extraction rate for constant groundwater flow condition.

4. Acknowledgement

This work was supported by the Korean Nuclear Energy R&D program of the Ministry of Science, ICT and Future Planning, Korea (NRF-2012M2A8A5007440) and the Radioactive Waste Management of the Korea Institute of Energy Technology Evaluation and Planning (KETEP) grant funded by the Ministry of Trade Industry and Energy (MOTIE), Korea (No. 2012171020001D).

5. References

[1] R. Haggerty, S.W. Fleming, L.C. Meigs and S.A. McKenna, “Tracer tests in a fractured dolomite: 2. Analysis of mass transfer in single-well injection-withdrawal tests”, Water Resources Research, 37, 1129-1142 (2001).

[2] P.K. Kang, M. Dentz, T. Le Borgne, and R. Juanes, “Spatical Markov model of anomalous transport through random lattice networks”, Physical Review Letters, 107, 180602 (2011).

[3] K. Novakowski, “An evaluation of boundary conditions for one-dimensional solute transport: 2. Column experiments”, Water Resources Research, 28, 2411-2423 (1992).

[4] C. Welty, and L.W. Gelhar, “Evaulation of longitudinal dispersivity from onuniform flow tracer tests”, Journal of Hydrology, 153, 71-102 (1994).

[5] S. Brouyere, G. Carabin, and A. Dassargues, “Influence of injection conditions on field tracer experiments”, Groundwater, 43, 389-400 (2005).

[6] W. Nowak, F. de Barros, and Y. Rubin, “Bayesian geostatistical design: Task-driven optimal site investigation when the geostatistical model is uncertain”, Water Resources Research, 46, W03535 (2010).

[7] N. Gueting, and A. Englert, “Hydraulic conditions at the source zone and their impact on plume behavior”, Hydrogeology Journal, 21, 829-844 (2013).

해안지역 암반대수층의 침투수량 산정 평가

이정환*, 정해룡, 박주완
한국원자력환경공단 기술연구소, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*oathway@korad.or.kr

1. 서론

강수 사건이 발생하면, 지표에 도달된 강수는 토양의 함수조건에 따라 침투가 발생하고 불포화대를 거쳐 포화대에 도달한다. 따라서 최종적으로 지하수위를 상승시켜 대수층 내의 지하수 저류량 변화를 야기한다[1]. 이러한 과정은 수리수문 순환의 일환으로, 지하수 저류량 변화를 평가하기 위해서 물수지분석법, 직접유출곡선 방법, 지하수위 변동법, 지하수위 감수곡선법, 기저유출 분리법, 추적자 기법, 수치모형 방법 등 많은 연구들이 수행되고 있다[2]. 그러나 위의 연구들은 대부분 대하천 주변이나 대도시 주변에서 수행되어 해안지역을 고려한 수문순환 연구는 미진한 수준이다[3]. 따라서, 본 연구에서는 해안지역에 위치하는 소유역의 지하수 분수령 지역에서 강수에 의한 암반대수층 내로의 침투수량을 산정하였다.

2. 연구방법

2.1 기상자료

암반대수층으로의 침투수량을 산정하기 위해서는 입력인자에 해당하는 수문순환 요소들에 대한 정보들의 분석이 요구된다. 연구지역과 가장 가까운 곳에 위치하는 울산기상관측소의 기상자료를 이용하였다(Korea Meteorological Administration, 2015). 이 기상자료는 연구지역의 기상현상을 대표할 수 있도록 고려한 것으로서, 온도, 강수량, 일조량 등을 이용하였다.

2.2 증발산량 산정

증발산량은 지표면으로부터 증발과 식생으로부터의 증산을 합한 것으로서, 수분이 기체 상태로 대기로 환원되는 수분 함량을 의미한다. 본 연구에서는 비교적 간단한 방법이며 기후 인자와 토양 분포를 고려할 수 있는 Thronthwaite 방법을 적용하였다[4].

2.3 직접유출량 산정

강수가 지표면에 도달한 후, 초기에는 토양 표면을 따라 침투가 발생하고 시간이 지남에 따라 토양 함수량을 초과하게되면 지표면을 따라 직접유출이 발생한다. 본 연구에서는 미국농림부(Natural Resources Department of Agriculture, USDA)에서 개발한 Natural Resorces Conservation Service (NRCS)-CN 방법을 적용하였다[5]. 이 방법은 하천유출량이 측정되지 않는 유역의 직접 유출량 산정에 적용되며, 토양 종류, 토지이용도를 이용하여 간접적으로 직접유출량을 산정한다.

2.4 침투수량 산정

해안지역에 위치하는 연구지역의 소유역내에서 암반대수층 내로의 침투수량을 산정하였다. 침투수량을 산정하기 위해서 질량보존 방정식에 근거한 물수지분석법을 이용하였으며, 물수지 평형 방정식은 다음과 같이 표현된다.

침투수량 = 강수량 - 증발산량 - 직접유출량 (1)

한편, 포화대로 침투된 물은 지하수위를 증가시켜 암반대수층내로 지하수 함양이 발생한다. 그 후 함양된 지하수는 빠른 기저유출(Quick baseflow)과 느린 기저유출(baseflow) 두 가지 형태의 감쇠반응으로 유출된다.

연구지역은 해안에 인접하여 위치하기 때문에 느린 기저유출은 해안유출수과 해저유출량으로 발생된다[6, 7]. 그리고 빠른 기저유출량은 유효지하수 함양량을 반영하며, 대수층의 지하수 저류량 변화를 의미한다[8]. 따라서 다음과 같이 표현될 수 있다.

침투수량 = 지하수 저수량 변화 + 해안/해저유출량 (2)

3. 본론

3.1 기상자료 분석 결과

울산기상관측소의 지난 30년간(1985-2014) 기상자료를 분석한 결과, 강수량의 범위는 693~

2,058 mm이고 연간평균값은 1,287 mm이다. 이 연평균 강수량은 남부지방 연평균 범위에 포함된다. 그리고

3.2 증발산량 산정 결과

본 연구지역의 토양은 세사질 양토가 우세하며 식생상태는 산림이 우거진 지역으로 분류되어 토양 함수능은 300 mm으로 적용하였다. 울산기상관측소 기상자료를 이용하여 30년간 증발산량을 산정한 결과, 각 연도별 증발산량의 범위는 613~765 mm이고 평균값은 693 mm이다. 연평균 강수량의 약 53.9%를 차지한다.

3.3 직접유출량 산정 결과

본 연구지역의 유출곡선지수(Runoff curve number, CN)을 산정하기 위해서 국립농업과학원에서 발행한 정밀토양도를 사용하여, 식생 및 토지이용도(농업, 산림, 도시지역 등)의 영역으로 군집화한 후 각 군집화 영역에 따라 97개의 토양 수문군(A, B, C, D)으로 세분화하여 CN값을 산정하였다[8]. 각각의 토양 수문군 면적에 따라 면적 가중치를 적용하여 연구지역 전체의 직접유출량을 산정하였다. NRCS-CN방법을 통하여 산정된 연도별 직접유출량은 17.7~442 mm이고 연평균값은 131 mm (평균 강수량의 10.2%)이다.

3.4 침투수량 산정 결과

연구지역에서 산정된 해안/해저유출량에 대한 정확하게 조사된 자료가 없기 때문에 연구지역과 인접된 지역에서 평가된 해저유출량 자료(평균 강수량의 17.8%)를 적용하였다[6].

각 연도별 침투수량은 약 15.8~946 mm의 범위를 나타내고 연평균값은 약 462 mm(강수량의 36%)에 해당된다. 그리고 해안유출량은 약 123~366 mm로서 연평균값은 123 mm이다. 따라서 지하수 저수량 변화는 약 1.4~580 mm이고 연평균값은 239 mm로서 연평균 강수량에 대해서 18.6%에 해당된다.

4. 결론

본 연구를 통하여 산정된 침투수량은 향후 해안지역 대수층의 수문수환 시스템을 이해하는데 기초적인 자료를 제공할 수 있을 것이다.

5. 감사의 글

본 연구는 2012년도 산업통상자원부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다(No. 2012171020001A).

6. 참고문헌

[1] C.W. Fetter, "Applied Hydrogeology", Prentice Hall, 598 p(2001).

[2] 안정훈, 함세영, 이정환, 김남훈, 양대복, 황지광, "물수지 및 수리지질 분석을 통한 울산광역시 중괘천-보은천 지역의 지하수 함양량 산정", 자원환경지질, 41(4), 427-442 (2008).

[3] 홍성훈, 한수영, 박남식, "해안지역의 지하수 개발가능량 평가", 대한토목학회논문집, 23(3B), 201-207 (2003).

[4] C.W. Thornthwaite, "Report of the committee on transpiration and evaporation", Eos, Transaction American Geophysical Union, 25(5), 683-693 (1944).

[5] USDA, "Urban Hydrology for small watersheds", Natural Resources Conservation Service (NRCS), Conservation Engineering Division, TR-55, 164 p (1986).

[6] Y.-S. Gwak, S.-H. Kim, Y.-W. Lee, B.-K. Khim, S-.Y. Hamm, and S.-W. Kim, "Estimation of submarin groundwater discharge in the Il-Gwang watershed usi89ng water budget analysis and ^{222}Rn mass balance", Hydrological Processes, 28, 3761-3775 (2014).

[7] 옥순일, 함세영, 이용우, 차은지, 김상현, 김인수, 김부근, "부산 해안지역의 물의 라돈 농도와 지하수 유출 특성", 지하수토양환경, 16(5), 53-66 (2011).

[8] 정정화, 장승표, 김호일, 정연태, 허기술, 박호, "유출율 추정을 위한 토양 수문군의 분류", 한국농공학회지, 37(6), 12-33 (1996).

2분과

방사성폐기물 처분 및 부지특성(Poster)

KOREAN RADIOACTIVE WASTE SOCIETY

극저준위 해체 폐기물 최소화를 위한 자체처분 규정 분석

최윤지*, 김창락
한국전력국제원자력대학원대학교, 울산광역시 울주군 서생면 해맞이로 658-91
*yjchoi@korad.or.kr

1. 서론

현재 우리나라는 원자력발전소의 노후화로 인하여 원전의 안전한 해체가 중요한 현안이 되고 있다. 국내 가동 원전은 총 23기이며, 국내에서 운영 중인 노후 원전 고리 1호기 및 월성 1호기는 30 년의 설계수명을 마치고 가동이 중단되었으나, 원자력안전위원회의 허가로 설계수명 종료 시점부터 각 10 년씩 수명이 연장되었다. 원전 설계수명 종료에 따라 사용후핵연료를 비롯하여 다양한 준위의 방사성폐기물이 발생될 것으로 전망되나, 국내 원자력 시설의 해체, 제염 기술은 초기 연구 단계로써 원전 해체 시 발생하는 해체폐기물의 합리적인 처분기준 마련은 원전 해체의 핵심 요소이다. 특히 원자력발전소 해체 시 석면, 콘크리트 등의 방사성준위가 매우 낮은 폐기물들이 비교적 단기간에 대량으로 발생하게 되는데, 이러한 극저준위폐기물을 신분류기준에 따라 보다 효율적이고 경제적인 처분 방안을 모색하는 것이 필요하다. 따라서 본 논문에서는 향후 국내 원전 해체에 대비하기 위하여 극저준위 해체 폐기물 최소화를 위한 안전 규제를 분석하고자 하며 특히 극저준위폐기물 관리의 용이성 및 효율성을 위한 자체처분(규제해제) 방안을 검토하고자 한다.

2. 본론

2.1 현행 자체처분 관련 규정 분석

2014년 원자력안전위원회는 자체처분의 의미를 명확하게 하고, IAEA의 국제안전기준에 따른 규제해제 준위(Clearance level) 미만의 방사성폐기물을 소각, 매립 또는 재활용 등으로 자체처분할 수 있도록 규정하기 위하여 방사성폐기물 분류 및 자체처분 기준에 관한 규정을 개정하였다[1]. 본 규정에서는 자체처분 허용선량을 만족하는 것이 입증된 방사성폐기물을 자체처분이 가능하도록 허용하는 방사성핵종별 자체처분 허용농도를 Table 1과 같이 언급하였다. 이 농도는 국제원자력기구(IAEA)에서 발간된 Safety Guide RS-G-1.7 (Application of the Concepts of Exclusion, Exemption and Clearance)에 제시된 핵종별 농도를 참고기준으로 적용되었다[2].

Table 1. Allowable concentration of radionuclides for clearance

Activity Concentration (Bq/g)	Representative radionuclides
0.01 (1)	I-129
0.1 (33)	Na-22, Sc-46, Mn-54, Co-56, Co-60
1 (45)	C-14, Na-24, Cl-36, Sc-48, V-48
10 (75)	Be-7, F-18, Cl-38, K-43, Ca-47, Mn-51
100 (66)	H-3, S-35, K-42, Ca-45, Sc-47, Cr-51
1,000 (33)	Si-31, P-32, P-33, Fe-55, Co-60m
10,000 (4)	Co-58m, Ge-71, Rh-103m, Rm-254

* The total number of radionuclides in parentheses for each concentration

우리나라 방사성폐기물의 자체처분 기준에 적용되는 IAEA의 보고서에 언급된 값은 규제면제(Exemption) 개념을 사용하여 도출된 인공 방사성핵종을 함유하는 대량 물질의 방사능 농도이다. 이 값은 IAEA BSS(Basic Safety Standard)에서 제시하고 있는 대량 고체 물질에 대해 추가 고려없는 규제면제 및 고체 물질에 대한 추가 고려없는 규제해제 기준 농도와 같은 값으로써, Table 1에 제시된 핵종별 농도를 초과하지 않으면 자체처분 대상 폐기물에 해당된다[3]. 즉, 신뢰성 있는 분석 및 측정방법을 통해 폐기물에 포함된 방사성물질의 농도가 설정된 농도 이하임이 증명될 경우에는 해당 폐기물은 방사성폐기물이 아닌 일반폐기물로 분류될 수 있다[4].

IAEA RS-G-1.7의 설명에 따르면, 보통 양의 물질과 대량의 물질을 구분하는데 있어 1톤 정도의 기준 값을 사용하고 있다. 이는 규제를 할 것인가 규제면제를 부여할 것인가를 판단하는 기준으로 1톤 정도의 소량의 물질을 적용한다는 의미인데, 일반적으로 원자력시설에서 발생하는 대량의 극저준위 방사성폐기물을 최소화하려면 규제면제의 개념이 아닌 규제해제를 그 기준으로 삼아야 할

것이다. IAEA Safety Glossary에서도 방사성폐기물을 법적, 안전규제측면에서 규제기관에 의해 설정된 규제해제 준위 이상의 농도를 가진 방사성핵종을 포함하거나 그에 의해 오염된 물질로 정의하여 규제면제가 아닌 규제해제를 그 기준으로 삼고 있다[5]. 이와 같이 원전 해체 시 발생하는 대량의 극저준위 방사성폐기물에 대해서는 소량의 방사성동위원소의 규제여부를 결정하기 위한 규제면제 개념이 아닌, 대량의 폐기물을 규제할 것인지 제외할 것인지에 대한 규제해제 개념이 올바르게 반영되어야 할 것이다.

2.2 해체 폐기물 안전관리를 위한 자체처분 방안

원자력안전위원회 고시 '방사성폐기물 분류 및 자체처분 기준에 관한 규정'에서 자체처분은 방사성폐기물 중에서 핵종별 농도가 자체처분 허용농도 미만임이 확인된 것을 '원자력안전법'의 적용대상에서 제외하여 방사성폐기물이 아닌 폐기물로 소각, 매립 또는 재활용 등의 방법으로 관리하는 것으로 정의하고 있다. 대부분의 자체처분 대상 폐기물은 콘크리트 파쇄석, 제염된 금속 또는 토양 등으로 관리방안에 따라서는 일부 재활용 가치가 있는 것은 재사용하여 경제적인 이득을 얻거나 소각 또는 전용 매립지에 처분하는 등의 방법으로 자체처분 할 수 있도록 허용하고 있다.

해체 폐기물은 원자력시설에서 대량으로 발생되기 때문에 전용 매립지를 확보하여 처분하도록 하는 방안을 모색하는 것이 필요하다. 특히 대량의 콘크리트 파쇄석 폐기물 등을 일반 매립지 및 기존 처분장에 처분 시 운반 및 제한된 처분 용량 등으로 인한 문제가 야기될 수 있으므로 전용 매립지의 필요성은 더욱 대두된다.

프랑스의 방사성폐기물 관리 기관인 ANDRA는 자체처분 제한(Clearance limit)을 적용하지 않고 극저준위 처분장(Industrial Center for Collection, Storage and Disposal)을 운영하여 대량의 해체 폐기물을 처분하고 있다. 이 처분장은 일반 유해폐기물 처분개념을 적용하여 설계 및 건설하였으며 일반적인 방사성폐기물 처분장의 포장 및 인수요건을 적용하지 않고 있다. 우리나라는 프랑스의 사례를 바탕으로 자체처분 대상이 되는 폐기물을 일반 매립할 경우에 발생되는 국민의 오해를 불식시키면서 처분 비용이 비싼 방사성폐기물 처분장 대신 안전하고 경제성 있는 전용 매립지를 확보하여 해체 폐기물의 자체처분을 수행할 필요가 있다.

3. 결론

원자력시설의 해체 시에 대량의 극저준위 방사성폐기물이 발생할 것으로 전망된다. 폐기물이 방사성물질로 분류되면, 비방사성 폐기물에 비해 처분 및 관리를 위한 많은 비용을 지불하여야 한다. 따라서 극저준위 해체 폐기물을 최소화하기 위한 자체처분의 기준을 확실히 할 필요가 있으며, 이는 방사성폐기물의 안전 관리 측면에서 경제적이며 효율적인 기여를 하게 될 것으로 보인다. IAEA 지침을 바탕으로 개정된 원안위의 고시는 우리나라의 향후 원전 해체 시에 극저준위 폐기물을 최소화하는데 적절하게 활용되기를 기대한다.

아울러, 자체처분 대상 폐기물로 분류된 물질은 국내 실정에 맞추어 매립, 소각 또는 재활용의 방법으로 자체처분 할 수 있지만 실질적으로 재활용이 원활치 않은 대부분의 폐기물은 자체처분 대상 폐기물의 전용 매립지에 처분할 수 있도록 하는 방법을 강구하는 것이 필요하다.

4. 감사의 글

본 연구는 원자력안전위원회의 재원으로 한국방사선안전재단의 지원을 받아 수행한 원자력안전연구개발사업의 연구결과입니다. (No. 1305009)

5. 참고문헌

[1] 원자력안전위원회 고시 제2014-003호(발령.시행 2014.9.16.), "방사성폐기물 분류 및 자체처분 기준에 관한 규정".

[2] IAEA RS-G-1.7, Application of the Concepts of Exclusion, Exemption and Clearance (2004).

[3] IAEA GSR Part 3 (Interim), Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards (2011).

[4] KINS/GR-542, 방사성폐기물 안전규제 제도개선 방안 연구(2013).

[5] IAEA Safety Glossary, Terminology Used in Nuclear Safety and Radiation Protection 2007 Edition.

파이로 공정 폐기물 물질특성 분석

김현민*, 서중석, 이효직
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*khm@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로 공정은 현재 상용 규모의 시설개발을 목표로 우리나라를 포함한 미국, 러시아, 인도 등에서 개발되고 있다. 대부분의 국가에서 파이로를 개발하는 목적은 고속로의 입력물질로 사용하기 위함이다. 일본의 경우 사용후핵연료에서 우라늄과 플루토늄을 동시 추출하기 위해 PUREX를 이용한 재처리시설을 운영 중이지만, WG의 플루토늄 추출이 가능하기 때문에 이 기술에 대한 사용은 국제적 비난이 거세다.

1997년부터 우리나라는, 이러한 논란을 피하고 순환핵주기의 완성 및 사용후핵연료 재고량 관리를 목적으로 파이로 공정을 개발하고 있다. 2012년에 이르러 실증규모 파이로 시설(PRIDE)이 구축되었으며, 2025년까지 연간 처리량 30 MTHM 규모의 Korea Advanced Pyro Facility (KAPF) 구축을 목표로 하고 있다. 따라서 사용후핵연료 내에 FPs를 함유하는 다양한 형태의 고방사성 폐기물이 배출될 것으로 예상됨에 따라 파이로 폐기물에 대한 체계적인 연구개발이 시급하다.

본 연구는 파이로 공정 폐기물을 기체, 염, 금속 형태로 분류하여 분석하고 폐기물의 특성과 상태에 따른 적합한 처리기술을 적용하여 폐기물에 대한 저장시설 설계요건 도출을 위한 기초자료로 사용하고자한다.

2. 파이로 공정 폐기물 분류

다음 Table 1은 파이로 Flowsheet Ver.4.0에서 제시하는 연소도 55,000 MWd/tU, 초기 농축도 4.5wt%, 냉각기간 10 년인 PWR 사용후핵연료 10 톤을 처리했을 때 발생되는 주요 폐기물의 특성을 나타낸다.

2.1 금속 폐기물

금속폐기물은 사용후핵연료 집합체 해체/절단과 탈피복 과정에서 발생하는 금속폐기물로서 주로 폐 피복관과(Hull)과 구조재 폐기물이 포함된다.

구조재 폐기물은 압축처리로 처리하며 처리 후 밀도는 4.6 kg/L(이론밀도 : 6.5)이며, 발열량은 $4.84*10^3$ W/m^3, 방사능은 $3.43*10^9$ Bq/g이다. Hull의 경우 발생량은 2456 kg이나 염소화처리를 통해 2212.5 kg을 회수하여 염소화 후 잔류물은 243.5 kg이다. 염소화 후 잔류물에는 U, Pu, MA, ZrOx, FPs 등이 포함된다.

Table 1. Major character of PYRO waste

Type	Metal			Gas			Salt		
	Disassembly	Zr recovery	anode sludge	Fly ash filter	Ca-filter	AgX	Z-5A/NaOH	LiCl salt waste	LiCl-KCl salt waste
Included nuclide	Ni-59 Nb-94	Act	Act	Cs, Rb, Cd, Ag	Te, Sb, Tc, Ru, Rh, Mo	I, Br	H-3, C-14	Se, Rb, Sr, Cs, Ba, Eu, Te	RE, Pu, MA
Nuclide weight (kg)	1.05	1.89	2.89	48.6	16.54	3.63	1.06	42.68	135.8
Waste weight (kg)	1037	243.5	383.9	367.3	111	58.8	8.19	101.2	224

염소화 잔류물 고화체의 특성은 부피 0.095 m^3, 무게 487 kg으로 폐기물의 양과 고화매질이 50% 씩 존재한다. 발열량은 $4.90*10^1$ W/m^3, 방사능은 1.34^8 Bq/g이다. 여기서 방사능은 고준위 기준을 초과하나 발열량은 기준이하임을 볼 수 있다.

2.2 기체 폐기물

기체폐기물은 고온열처리과정에서 나오는 준휘발성 핵종(Cs, Te, I 등)과 휘발성 핵종(H-3, C-14, Kr, Xe 등)이 포함된다.

Fly ash filter에 포함된 핵종 중 주요 발열기여 핵종은 Cs-137(반감기 30 년)이므로 약 100 년의 중간저장을 통해 2 kw/m^3 이하의 발열량이 가능하여 중·저준위폐기물 처리가 가능하다.

2.3 염 폐기물

염폐기물은 전해환원 공정에서 발생되는 고방열성 I/II족 핵종(Cs, Sr, Ba)을 포함하는 LiCl, 전해제련공정에서 발생되는 희토류와 소량의 TRU를 포함하는 LiCl-KCl 공융염 폐기물이 포함된다. 염폐기물의 주요 구성물은 LiCl, KCl 등과 같은 비방사성 염이므로, 한국원자력연구원에서는 이들 염폐기물 중에서 방사성 핵분열생성물(FPs)을 제거하여 염폐기물을 정제하여 이를 파이로 건식공정에 재순환시켜 재활용하는 기술을 개발함으로써 염폐기물의 발생량을 최소화하는 연구를 수행중이다.

3. 국내 폐기물 처리기술

3.1 금속 폐기물 처리기술

폐 피복관 및 구조재 폐기물의 압축 또는 용융과 같은 단순 처리는 이미 상용규모로 개발되어 100%기술을 달성하였으나, 폐 피복관 내의 고방사성 물질을 분리하는 기술은 아직 연구단계이다. 폐 피복관 내 Zr의 함량이 약 90%로 이를 회수할 경우 폐기물의 무게를 1/10로 획기적으로 줄일 수 있기 때문에 금속 폐기물의 처리 및 감용을 위한 기술개발을 진행 중이다.

3.2 기체 폐기물 처리기술

한국원자력연구원에서는 전처리 공정의 기술완성을 위해 사용후핵연료를 이용하여 배기체 처리 핫셀 실증시험을 수행하여 Cs, Tc, I 핵종의 선택적 포집 실증자료를 확보하고, 아울러 휘발성 핵종 선택적 처리기술 개발 및 Granule형 필터 제조기술 개발 및 핵종 포집 시스템 모델링 기술개발을 하고자 한다. 또한 준휘발성 핵종을 포집한 폐필터에 대한 고화기술 연구를 통해 핵종 및 필터성분에 따른 적정 고화매질을 개발을 하고자 한다.

3.3 염 폐기물 처리기술

산화물 사용후핵연료의 파이로 공정에서 발생하는 염폐기물 내에 포함되어 있는 핵종들만 분리하고 정제된 염을 환원 및 제련 공정에서 재사용하는 기술을 개발한다면 최종 처분되는 고준위 고화체의 양을 최소화 할 수 있다. 따라서 염폐기물 내 핵종분리 기술개발이 중요한 과제이며 이러한 기술개발을 위해서는 PRIDE 공정 장치를 이용한 공정의 효율성, 안전성, 연속성 등에 따른 검증이 수행되어야 한다.

4. 결론

본 연구에서는 파이로 폐기물 저장시설 설계요건 도출을 위한 기초자료를 확보하기 위하여 파이로 폐기물의 특성과 처리기술을 분석하였다. 앞으로 정확한 물량산출과 국외 재처리시설의 사례를 분석하여 KAPF에 적용 가능한 폐기물 저장시설의 설계요건을 도출하고자 한다.

5. 참고문헌

[1] 한국원자력연구원, "파이로 폐기물 저장관리 방안분석", KAERI/TR-5362/2013 (2013).

[2] Michael F. Simpson, "Projected Salt Waste Production from a Commercial Pyroprocessing Facility", Research Article, Volume 2013, Science and Technology of Nuclear Installations (2013).

[3] Michael F. Simpson, Tae-Sic Yoo, Robert W. Benedict, Supathorn Phongikaroon, Steven Frank, Prateek Sachdev, Kellianne Hartman, "Strategic Minimization of High Level Waste From Pyroprocessing of Spent Nuclear Fuel", INL/CON-07-12123 (2007).

첨단흡수소재를 이용한 사용후핵연료 저장 수조에서의 핵적 성능 분석

김미진, 이희재, 손동성*
울산과학기술대학교, 울산광역시 울주군 언양읍 유니스트길 50
*dssohn@unist.ac.kr

1. 서론

사용후핵연료 저장의 안전 및 신뢰성 문제가 최근 가장 중요한 문제로 대두되고 있다. 대부분의 사용후핵연료는 습식 저장 수조에 보관 되어 있다. 저장 수조의 포화가 전망되고 있으므로 호기 간 이동 및 건식 저장소 설치 등의 방안이 대안으로 제시되고 있다. 이를 위해서는 우수한 성능의 중성자 흡수 소재가 필요하다.

이를 위해서는 임계 안전 해석을 수행해야 하는데 NRC Guideline에 따르면 붕화수를 사용하지 않을 시 사용후핵연료 랙의 증배계수가 0.95를 넘어서는 안 된다[1]. 참고문헌 2에서는 조밀화 집합체의 저장 수조에서 랙 간격과 랙의 두께에 따른 임계도 분석을 AMPX-KENO IV 코드를 사용하여 분석하였고 Stooksbury는 약 0.1에서 1 mm인 얇은 두께의 카드뮴이 랙에 미치는 영향을 분석하였다[3]. 위의 논문들에서는 한 가지 흡수체에 대하여 임계도 분석을 하였는데 본 논문에서는 중성자흡수단면적이 매우 높은 가돌리늄이 들은 일체형 랙에 가돌리늄보다는 중성자 흡수단면적이 낮지만 다른 원소들에 비해 상대적으로 높은 흡수단면적을 갖고 있는 Sm, Er 그리고 Eu이 추가적으로 첨가되었을 때 무한증배계수가 어떻게 변하는지 보고자 한다.

2. 본론

2.1 계산 모델

Fig. 1 (a)는 reference로 사용된 model인데 셀, 중성자 흡수재, 외피의 3중구조로 되어있다. 중성자 흡수재는 B_4C+Al composite material이다. Fig. 1(b)는 구조재와 중성자 흡수재의 기능을 겸하는 일체형 랙이다. 다음 계산에는 1.9 mm 두께의 셀이 사용되었는데 이는 기존의 reference에서 사용된 셀의 두께와 같다.

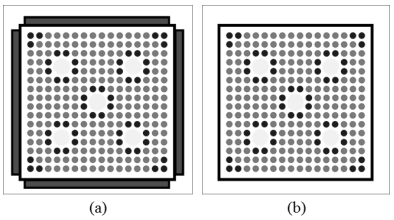


Fig. 1. Schematic of Spent Nuclear Fuel Storage (a) Reference model (b) Integral model.

2.2 전산 코드

미임계 계산을 위해 몬테칼로 방법을 사용하는 McCARD 코드를 사용하였다. 이는 중성자-광자 운송 시뮬레이션을 통해 원자로와 핵연료의 중성자적 해석을 위한 코드이다[4]. 수평방향으로는 Fig. 1의 구조가 무한 반복되는 것으로 가정하였고 수직방향으로는 핵연료집합체의 위아래에 물이 채워져 있는 것으로 가정하였다. 전체적인 표준편차는 0.00016 – 0.00020 이다. 그리고 무한증배계수는 reference model에서 normalized된 상댓값을 표시하였다.

2.3 결과

2.3.1 Gd+Samarium 첨가(사마륨 사용 일체형 랙)

Fig. 2는 가돌리늄이 0.2, 1 wt%가 들은 경우에 사마륨을 첨가에 따른 일체형 랙의 무한증배계수를 보여준다.

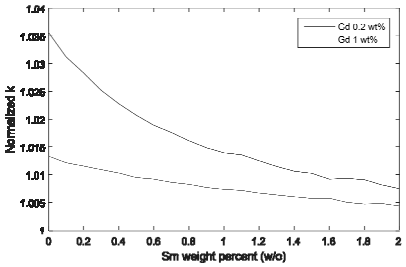


Fig. 2. The effect of Sm addition.

2.3.2 Erbium 첨가

Fig. 3은 가돌리늄이 0.2, 1 wt% 첨가 되었을 때 Erbium의 weight percent를 증가시킴에 따라 변화하는 k를 나타낸다.

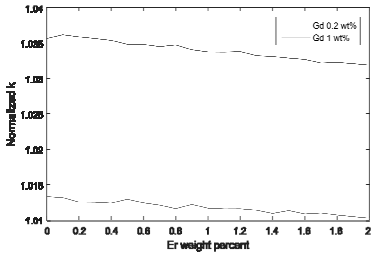


Fig. 3. The effect of Er addition.

2.3.3 Europium 첨가

Fig. 4는 가돌리늄 0.2, 1wt%가 들은 스테인레스에 Europium을 추가적으로 첨가하는 경우 Europium 함량에 따른 무한증배계수의 변화를 보여준다.

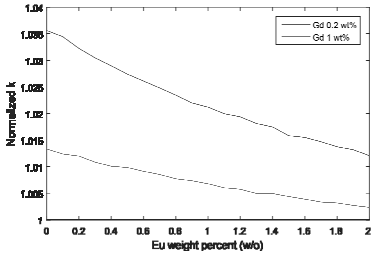


Fig. 4. The effect of Eu addition.

2.4 분석

가돌리늄이 더 많이 들어간 1wt%의 경우가 가돌리늄이 0.2wt%가 들어간 경우보다 Sm, Er, Eu 모든 경우에서 더 낮은 값을 가진다.

또한 모든 중성자 흡수재 함량을 높일수록 무한증배계수가 점진적으로 감소하는 경향을 보인다. 그러나 중성자 흡수단면적 차이로 인하여 같은 함량을 넣을지라도 효과는 다르다. 이 세 가지 원소와 가돌리늄의 중성자 흡수단면적을 비교해 보면 Fig. 5와 같다. Sm을 넣은 경우가 Er, Eu을 넣은 경우보다는 가장 효과가 좋은 것을 볼 수 있고 그 다음은 Eu 그리고 셋 중에 가장 효과가 좋지 않은 것은 Er 이다.

함량을 높일수록 계속해서 효과가 좋아지고 가돌리늄이 들어있긴 하지만 각 흡수재(Sm, Er, Eu)의 함량이 2wt% 이내의 함량에서는 reference 보다 좋은 성능을 가지지 못한다.

Reference만큼의 효과를 얻기 위해서는 더 많은 함량을 넣거나 추가적인 다른 중성자 흡수재가 혼합될 필요성이 있다.

3. 결론

스테인레스강 셀에 가돌리늄(0.2, 1 wt%)과 추가적인 중성자 흡수 물질인 Sm, Er, Eu을 첨가 하였을 경우 이들의 함량에 따른 핵적 성능을 기존의 랙의 핵적 성능에 상대적인 값으로 제시하였다.

Sm을 사용하는 경우가 Er 또는 Eu을 첨가하는 경우보다 더 좋은 핵적 성능을 보인다. Sm 다음으로는 Eu이 성능이 좋았으며 Eu을 2wt%까지 첨가하였을 때는 눈에 띄는 증배계수 값의 변화를 보이지 않았다. 하지만 이들 모두 2wt%까지 넣었을 경우에는 normalize된 무한증배계수가 1보다 크다.

결과를 통하여 봤을 때 0.2 및 1.0% Gd과 Sm, Er, Eu 혼합하여 normalize된 무한증배계수를 1이하로 하기 위해서는 중성자 흡수단면적을 보강해 줄 수 있는 물질을 추가적으로 첨가하거나 함량을 더 높이는 등의 방안을 강구해 볼 수 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 2014년도 산업통상자원부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다. (No. 20131520000060)

5. 참고문헌

[1] 10 CFR 50.68, NRC Regulations Title 10, Code of Federal Regulations, U.S.NRC (2014).

[2] M.S. Jae, G.C. Park, C.H. Chung and J.H. Jang, "The Criticality Analysis of Spent Fuel Pool with Consolidated Fuel in KNU 9&10", Journal of the Korean Nuclear Society, 20(1), 1998.

[3] J.C. Stooksbury, "Cd doping to reduce reactivity of fuel assemblies in spent fuel pools", University of Tennessee Honors Program (2014).

[4] H.J. Shim, B.S. Han, J.S. Jung, H.J. Park and C.H. Kim, "MCCARD: MONTE CARLO CODE FOR ADVANCED REACTOR DESIGN AND ANALYSIS", Nuclear Engineering and Technology, 44(2), 161-176 (2012).

처분대상 방사성폐기물의 방사선 및 구조적 건전성을 위한 장치 현황

장원혁*, 곽경길, 김태국, 신기백, 홍대석
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*whjang@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에서 발생하는 모든 방사성폐기물은 방사성폐기물처리시설(RWTF)에서 수집, 처리, 관리한다. 고체 방사성폐기물은 종류별로 분류, 감용 처리하여 200리터 드럼에 재포장 한 후, 원내 폐기물 저장시설에 보관중이다.

각 폐기물 드럼은 2015년을 시작으로 매년 800드럼을 처분시설에 이송할 예정이다. 처분시설에 인도하기 위해서는 인도규정에 맞는 요건을 갖추어야 하며, 처분시설의 인수기준도 고려하여 처분준비를 해야 한다.

방사성폐기물처리시설에서는 보유하고 있는 장치를 활용하여 감마 핵종분석, 고화체 특성평가 시험 등을 통해 처분대상 방사성폐기물 드럼의 방사선 특성 및 구조적 건전성을 규명하고자 한다.

2. 본론

2.1 방사성폐기물 방사선 특성 및 구조적 건전성

처분 적합성 여부를 종합평가 하기 위해 보유하고 있는 장치를 활용하여 Table 1과 같이 방사선 특성 및 구조적 건전성 항목에 해당하는 시험 및 평가를 하고 있다.

Table 1. Equipment utilization for radioactivity properties & structural quality of the final disposal

장 치	적용가능 폐기물	방사선특성/ 구조적건전성
WR-SGS/TGS	금속, 철재류, 콘크리트, 토양	감마(γ) 핵종분석
	종이, 고무, 플라스틱, 비닐	
	HEPA Filter	
Compressive Strength Test Machine	고화폐기물	고화체시험 -압축강도 -열순환 -침출/침수 -방사선조사
Temperature & Humidity Chamber		

2.2 장치활용 현황

2.2.1 Drum assay equipment

처분대상드럼의 감마 핵종분석을 위해 2013년부터 도입하여 운영하고 있으며, 2015년 4월 현재 약 1300드럼의 핵종분석이 완료되었다. 비교적 균일한 성상의 압축성 잡고체, 공기조화 폐필터 폐기물은 SGS 모드로 분석을 하며, 비균질한 비압축성 잡고체 폐기물은 TGS 모드로 분석을 한다. Table 2는 장치의 기본사양을 나타내며, Fig. 1은 운전중인 Wide range-SGS/TGS 장치 모습이다.

Table 2. Specification of the drum assay equipment

운전 모드	SGS (for Homogeneous waste drums)
	TGS (for Heterogeneous waste drums)
검출기 효율	40% + (typical) FWHM 1.85keV@1.33MeV
검출가능 방사능 범위	Up to 10E12 Bq
밀도 범위	Up to 2100 kg/m^3
표면오염측정	GM based counter

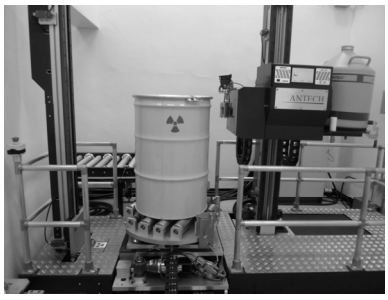


Fig. 1. Wide range-SGS/TGS.

2.2.2 Temperature & humidity chamber

고화폐기물 드럼은 인도규정에 따라 고형화 특성(압축강도, 침출, 열순환 등)과 물리적 특성시험을 만족한 드럼만 처분시설로 인도할 수 있다.

Table 3은 장치의 기본적인 사양이며, Fig. 2는 1주기(Cycle); –40~60℃(22hr)의 조건으로 온도변화를 30회 반복 시험하는 열순환 시험장치 모습이다[2].

Table 3. Specification of the temperature & humidity chamber

크 기	W500×D500×H600(mm)
온도 범위	-60 ~ 150 ℃ Max
습도 범위	30 ~ 98 RH% Max



Fig. 2. Temperature & humidity chamber.

2.2.3 Compressive strength test machine

고형화 특성 중 압축강도를 측정하는 장치로, 고강도 측정기와 저강도 측정기로 구분하여 운용하고 있다. 고강도 측정기인 50 ton 용량의 압축기는 핫셀(Hot cell)에 설치하여 방사성 재료를 시험할 수 있으며, 저강도 측정기는 5 ton 용량으로 일반 실험실에 설치하여 비방사성 재료 및 저강도 시편에 대한 압축강도를 수행하고 있다. Table 4와 Fig. 3은 기본적인 사양과 고강도 측정기의 사진을 나타낸다.

Table 4. Specification of the compressive strength test machine

최대 하중용량	500kN (50,000 kgf)
하중측정 정밀도	± 0.4 % (10 ~ 100 %)
하중분해 정밀도	1/130,000
최대 RAM stroke	200 mm (Min. resolving power : 0.001mm)
이동속도	0.05 ~ 500 mm/min (Degree of precision 0.005%)

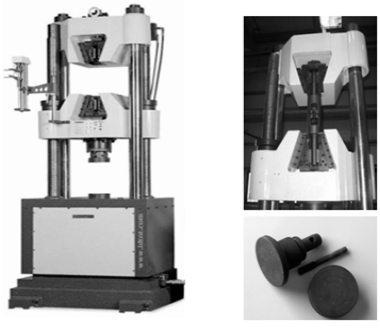


Fig. 3. High compressive strength test machine.

2.3 장치활용 실적

보유 장치를 활용하여 Table 5와 같이 각종 평가 및 분석을 수행하였으며, 향후 처분과 관련한 방사성폐기물의 파괴 및 비파괴 종합물성시험을 수행할 계획이다. 또한 핫셀(Hot cell)을 이용한 방사성물질의 실증실험을 통해 처분대상물질의 처분 건전성 규명을 수행 할 것이다.

Table 5. Performance of the equipment utilization

장 치	실 적	년 도
WR-SGS/TGS	약 1300드럼 핵종분석완료	2013년 6월 ~ 현재
Compressive Strength Test machine Temperature & Humidity Chamber	산업체 폐기물 건전성 평가지원	2008년 ~ 2013년

3. 결론

한국원자력연구원에 저장되어 있는 방사성폐기물은 종류별로 분류되어 200리터 드럼에 저장 후 관리하고 있다. 2015년부터 본격적인 처분이 시작됨에 따라 방사성폐기물 종류별로 구조적 건전성을 평가하여 처분 적합성을 확인해야한다. 방사성폐기물처리시설에서는 각종장비를 활용하여 방사선 특성 및 방사성폐기물의 구조적 건전성을 평가하고 있다. 분석 및 평가결과는 처분 적합성 판단을 위한 중요한 자료로 활용 될 것이다.

4. 참고문헌

[1] 방사성폐기물처리시설운영 운영보고서, KAERI/MR-571/2014.
[2] 중·저준위 방사성폐기물 인도규정, 원자력안전위원회 고시 제2015-4호.

한국원자력연구원 핵주기시설 폐기물의 분류 및 처분방안 연구

장원혁*, 강일식, 신기백, 안홍주, 홍대석
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*whjang@kaeri.re.kr

1. 서론

2014년 12월, 원자력안전위원회의 방사성폐기물처분시설 사용승인으로 본격적인 처분이 시작되었다. 한국원자력연구원은 2015년을 시작으로 매년 800드럼을 처분시설에 인도할 계획을 가지고 있다. 2014년 말 현재, 한국원자력연구원의 운영폐기물은 약 10,600드럼이 저장되어 있으며, 처분시설의 인수계획과 연구원의 인도계획 따라 처분에 적합한 폐기물을 순차적으로 보낼 계획이다.

저장되어 있는 드럼 중 핵주기시설(연구용원자로[HANARO], 조사재시험시설[IMEF], 조사후시험시설[PIEF], 방사성폐기물처리시설[RWTF])에서 2008년까지 발생한 압축성 잡고체 폐기물 중 345드럼을 대상으로 드럼핵종분석장치를 이용하여 감마핵종분석을 하였다. 분석된 자료를 통해 주요핵종의 농도분포를 알아보고, 최근 개정된 분류기준에 따라 폐기물을 분류 하였다.

본 연구는 향후 처분장에 인도할 폐기물의 총 방사능량을 위한 척도인자(Scaling Factor) 산출과, 저장되어 있는 폐기물의 효율적인 관리를 위한 기초자료로 활용할 수 있다.

2. 본론

2.1 방사성폐기물 저장현황

2014년 말 기준으로 한국원자력연구원의 운영폐기물은 약 10,600드럼이 저장되어 있다. 비압축성 잡고체(금속, 철재류, 토양, 콘크리트 등) 폐기물이 46.8%로 가장 많은 양을 차지하며, 압축성 잡고체 폐기물은 24.8% 이다.(Fig. 1) 그 밖에 공기조화 폐필터(4.3%), 서울 연구용 원자로 부지주변 환경정비폐기물(17.6%), 기타(6.5%) 폐기물로 이루어져 있다[1].

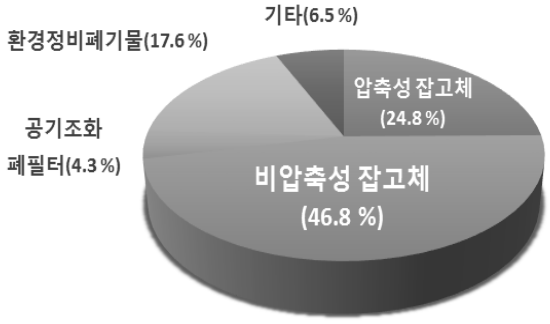


Fig. 1. Storage status of radioactive wastes.

2.2 방사성폐기물 분류, 감용, 재포장

처분대상 드럼은 방사성폐기물 인도규정에 따라 구조적 건전성을 확보하기 위해 물리·화학적으로 안정되어야 한다. 이를 위해 발생시설별로 폐기물을 분류하고, 각 시설별 폐기물의 이력확인을 통해 폭발성 및 유해성 물질 등의 유무를 확인한다. 또한 폐기물을 종류별로 분류하여 약 26%의 부피감용을 목표로 하고 있다. 구조적 안전성이 확인된 폐기물은 안전한 이송을 위해 비가연성 200ℓ드럼 이송용기에 재포장하여 저장한다[2].

2.3 주요핵종의 농도 분포

드럼의 총 방사능량을 평가하기 위해서는 알파, 베타, 감마 핵종의 방사능량을 각각 구해야 한다. 현재 감마 핵종의 방사능량은 드럼핵종분석장치를 이용하여 평가할 수 있다. 압축성 잡고체 폐기물의 경우 각 드럼의 대표시료를 이용하여 척도인자(Scaling Factor)를 산출하고, 감마핵종 분석값을 기준으로 알파, 베타핵종의 방사능량을 간접적으로 평가한다. Fig. 2, Fig. 3은 파괴분석을 통하여 파악한 각 시설에서 발생된 폐기물의 주요핵종(Cs-137, Co-60)에 대한 농도 분포이다[3].

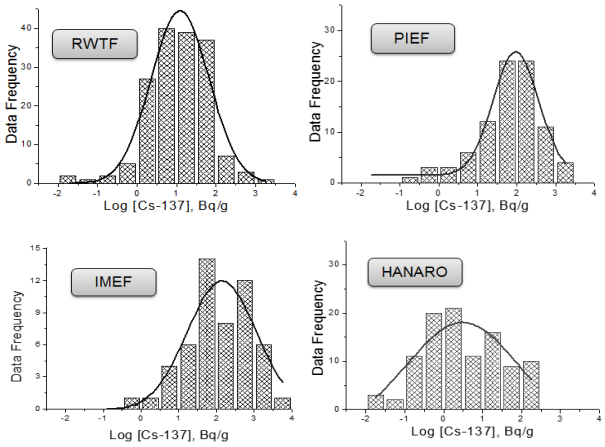


Fig. 2. Concentration distribution of Cs-137.

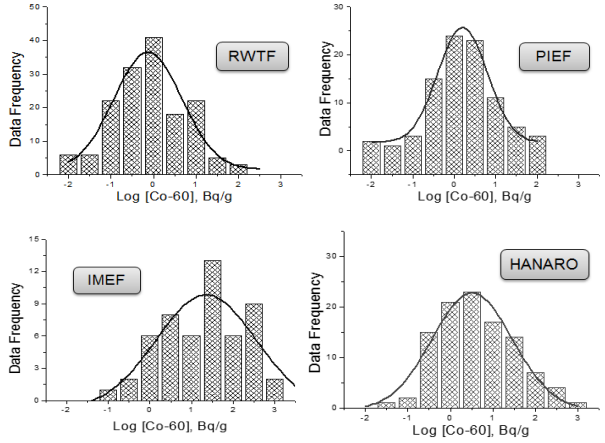


Fig. 3. Concentration distribution of Co-60.

2.4 핵종분석결과에 따른 폐기물 분류

관련규정에 따르면, 저준위방사성폐기물의 방사능 농도 제한치와 방사성핵종별 자체처분 허용농도를 명시하고 방사능 농도별로 기준을 제시하고 있다[4]. 아래 Table 1은 주요핵종(Co-60, Cs-137)을 대상으로 방사능 농도에 따라 폐기물을 분류한 결과이다.

Table 1. New waste classification criteria

[Unit: Bq/g]

핵종 / 분류	Co-60	Cs-137
중준위	[X]* ≥ 3.70E+07	[Y]* ≥ 1.11E+06
저준위	10≤[X] < 3.70E+07	10≤[Y] < 1.11E+06
극저준위	0.1 ≤ [X], [Y] < 10	
자체처분	[X], [Y] < 0.1	

* [X] : Co-60 방사능 농도, [Y] : Cs-137 방사능 농도

핵주기시설에서 2008년까지 발생한 압축성 잡고체 폐기물 중 345드럼을 주요핵종(Co-60, Cs-137)의 방사능 농도에 따라 분류 하였다. 감마 핵종분석이 완료된 드럼 중 중준위에 해당하는 드럼은 없었다. 주로 저준위, 극저준위 폐기물 드럼으로 구분되며, 일부는 자체처분 대상드럼으로 분류할 수 있다.(Table 2)

Table 2. Classification for compressive operation waste stored at KAERI

핵종 / 분류	Co-60 농도기준	Cs-137 농도기준
저준위	78 드럼	206 드럼
극저준위	227 드럼	133 드럼
자체처분	40 드럼	6 드럼
총 계	345 드럼	345 드럼

3. 결론

2015년부터 본격적인 처분이 시작됨에 따라, 향후 처분계획이 있는 방사성폐기물 드럼 중 핵주기시설에서 2008년까지 발생한 압축성 잡고체 폐기물 드럼을 대상으로 감마 핵종분석을 하였다. 각 시설의 핵종농도 분포를 파악하고, 최근 개정된 방사성폐기물 분류규정에 따라 분류를 해보았다. 현재 저장되어 있는 드럼의 대부분은 저준위, 극저준위 폐기물에 해당되며, 자체처분 대상드럼으로 분류할수 있는 드럼도 있다.

본 연구결과에 의하면 연구원 핵주기시설 발생 폐기물 중 압축성 잡고체 폐기물은 준위가 낮은 폐기물이 대부분이다. 준위가 낮은 폐기물은 지속적으로 안전하게 저장 관리하며, 현재 2019년 준공을 목표로 사업 추진중인 2단계 처분시설(표층처분)로 처분하는 것이 바람직하다.

4. 참고문헌

[1] 방사성폐기물처리시설운영 운영보고서, KAERI/MR-571/2014.

[2] 중·저준위 방사성폐기물 인도규정, 원자력안전위원회 고시 제2015-4호.

[3] Activities of KAERI for radioactive waste Charactrerization in 2014, D.S. Hong, H. J. Ahn, W.H. Jang, K. B. Shin, I. S. Kang, IAEA LABONET meeting, 2014.

[4] 방사성폐기물 분류 및 자체처분 기준에 관한 규정, 원자력안전위원회 고시 제2014-3호.

처분공 위치에 대한 지하수 유동 관련 변수 분포 평가

고낙열*, 김경수, 김건영
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*nyko@kaeri.re.kr

1. 서론

심지층 처분장에서의 방사성 핵종 누출에 대한 안전성 평가를 위해서는 처분장 부근의 지하수 유동에 관한 자료가 필요하다. 지하수의 유량 및 유동 경로, 이동 경과 시간은 핵종의 이동 양상 및 지표 환경에 도달하는 핵종의 양을 계산하는 데 이용될 수 있으며, 처분 심도의 지하수 유동량 분포는 처분공에 있게 될 처분용기 각각의 파손 가능성을 판단하는 기초 자료로 활용될 수 있다. 또한 이런 자료를 이용하여 핵종의 이동과 관련된 처분장의 성능 평가에 적용할 수 있는 특정한 지표값을 산출할 수도 있다[1-2].

본 연구에서는 처분장의 안전성 평가에 이용되는, 가상의 처분공 위치에 대한 지하수의 유동과 관련된 특성의 분포를 파악하고 그 활용 방안에 대해 고찰하였다.

2. 가상의 처분장 부지 및 지하수 유동 경로

처분 심도의 지하수 유동량에 관한 자료를 이용하기 위해, KURT 부지 및 부근 지역의 지표 및 관측공에서 조사된 자료를 이용하여 해당 지역의 지하수 유동계를 모의한 이전 연구 자료를 이용하였다. KURT 부지의 대략적인 위치와 부지 부근의 유동계는 Fig. 1과 같고, 가상의 처분공 위치에서의 지하수 유동 경로는 Fig. 2와 같다.

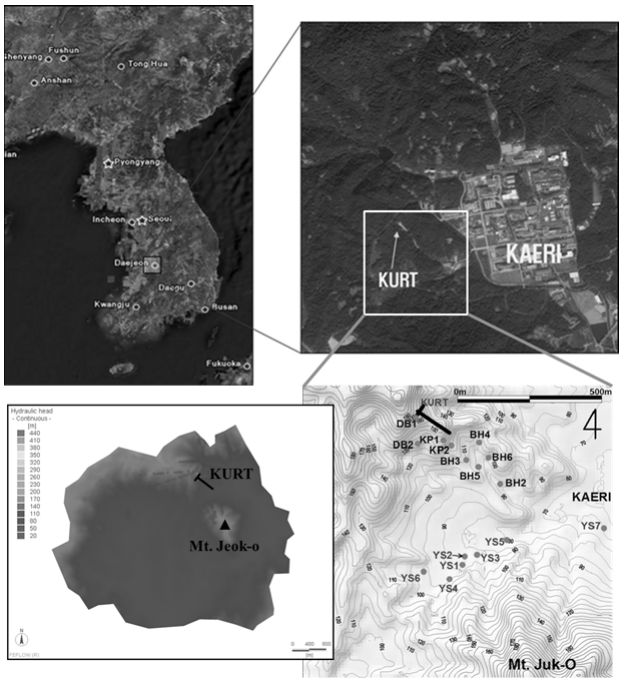


Fig. 1. Locations of the study site.

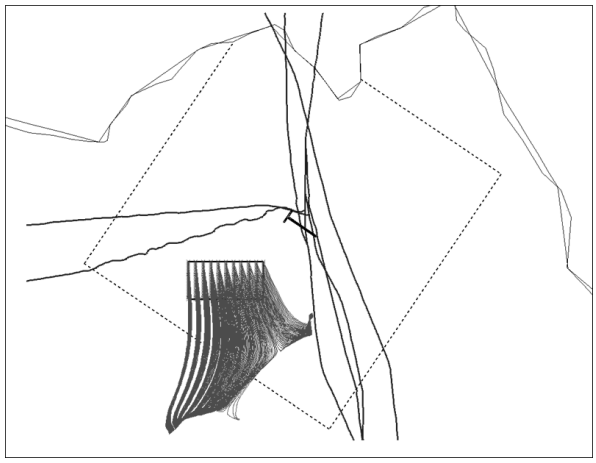


Fig. 2. Groundwater flow pathways.

3. 처분공 위치에서의 지하수 유동 관련 변수 분포

3.1 처분 심도에서의 지하수 유동량 분포

비교적 단순한 수리지질 특성을 가정하였기 때문에, 지하수 유동량의 공간적, 수량적 분포는 단순하게 나타난다(Fig. 3).

3.2 지하수 유동 거리 및 경과 시간

주변 단열대로의 유동 방향과 하천으로의 유동 방향이 함께 존재하여 유동 거리 및 경과 시간은 지하수 유동량과는 다른 분포를 보인다(Fig. 4).

3.3 U- 및 F-factor

처분장의 성능 및 안전성 평가에 이용되는 두 factor의 분포는 계산 방식에 의해 각각 지하수 유동량과 유동 시간의 영향을 받고 있음을 보여준다(Fig. 5).

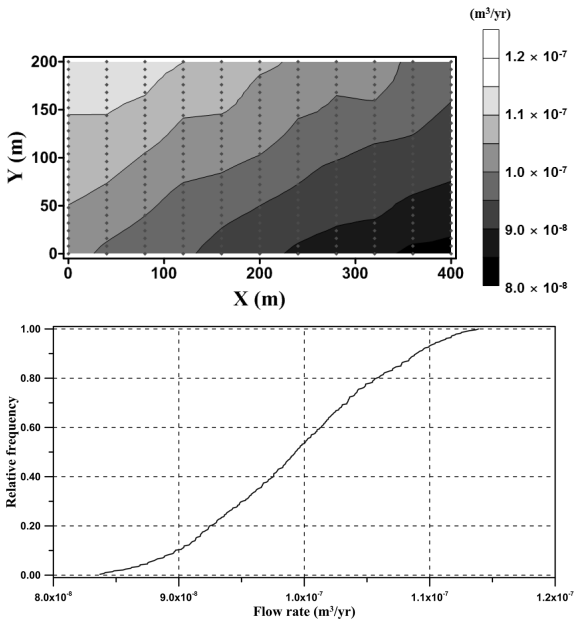


Fig. 3. Spatial and quantitative distributions of groundwater flow rate.

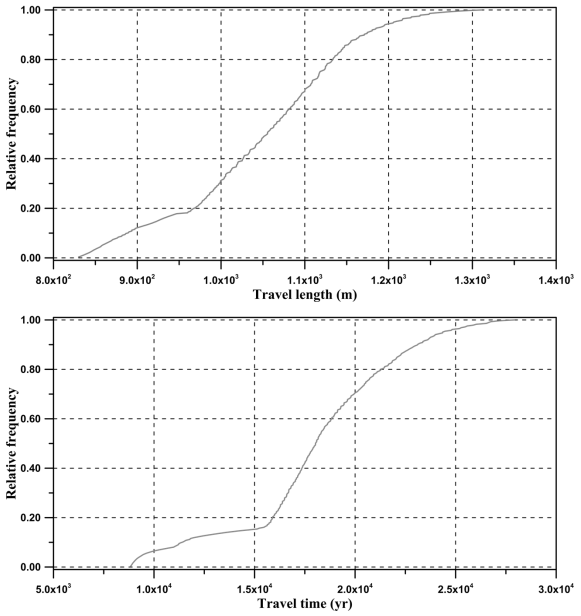


Fig. 4. Distributions of traval length and time of groundwater from the disposal holes to water table.

4. 결론

안전성 평가의 핵종 이동 계산에 이용될 수 있거나 처분장에 대한 성능 평가에 이용될 수 있는 처분 심도에서의 지하수 유동량, 지표까지의 유동 거리 및 경과 시간, 그리고 이를 이용한 U- 및 F-factor를 계산하고 그 분포를 분석하였다. 해당 분포들은 가상의 처분장 주변에 있는 단열대와 지표수체인 하천의 영향을 받는 것으로 보인다. 계산된 분포는 확률론적 안전성 평가에 이용될 수 있고, 적절한 처분 위치 및 심도를 찾아내는 과정에 기여할 수도 있을 것으로 판단된다.

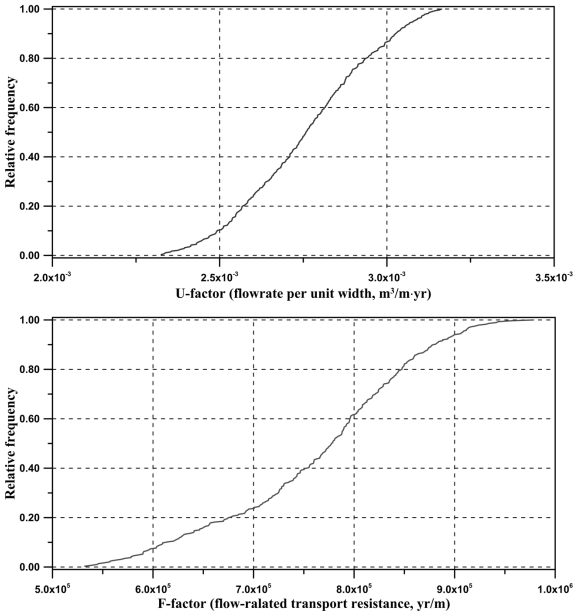


Fig. 5. Distributions of U- and F-factors.

5. 감사의 글

이 논문은 2015년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(원자력연구개발사업).

6. 참고문헌

[1] Posiva, Safety Case for the Disposal of Spent Nuclear Fuel at Olkiluoto - Formulation of Radionuclide Release Scenarios 2012, POSIVA 2012-08, Posiva Oy (2013).

[2] Posiva, Safety Case for the Disposal of Spent Nuclear Fuel at Olkiluoto - Performance Assessment 2012, POSIVA 2012-04, Posiva Oy (2012).

국내 심부 결정질암반 조사지역 지구화학환경 특성 평가

권장순[1*], 김지연[1], 정수림[1], 고용권[1], 박성민[2]
[1]한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
[2]㈜모움과나눔, 충북 청원군 오창읍 중심상업로 7
*jskwon@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성폐기물의 처분개념은 방사성폐기물을 안전한 환경조건을 갖는 지하 환경에 처분하여 인간환경으로부터 격리시키는 것으로서, 공학적 방벽과 지질학적 방벽을 모두 고려한 다중방벽 개념을 채택하고 있다. 일반적으로 심부환경의 구성은 암반과 암내 내에 발달한 선형구조 등으로 구분할 수 있으며, 선형구조 등을 따라 이동하는 지하수는 장기간에 걸쳐 공학적 방벽을 부식 또는 침투하여 방사성폐기물을 용해시켜, 핵종을 생물권으로 유출 및 유동시키는 역할을 하게 된다.

심부환경의 지하수 유동이 핵종의 운반 매개체인 반면, 핵종-지하수-암석 반응 현상이 핵종 누출을 지연 또는 저지하는 지질학적 방벽의 한 요인이 되며, 이 과정에서 유해 핵종은 선형구조 내 광물과의 흡착반응, 이온교환, 표면침전 등과 같은 지구화학적 반응을 통하여 인간환경으로 이동되는 시간과 농도가 감소될 수 있다. 따라서 처분장의 안전성 평가를 위해서는 모암에 따른 수리지화학적 특성 규명이 우선되어야 하며, 여기에는 지하수의 화학적 특성, 지하수의 체류시간, 지하수와 접촉하는 모암 및 단열충전광물의 특성규명이 필수적으로 요구된다.

2. 본론

2.1 연구/조사의 개요

국내 심부 결정질암반 조사지역의 지구화학환경 특성을 평가하기 위하여 화강암반(이하 AH) 및 편마암반(이하 BH) 대표지역 내 장심도 시추공을 지표로부터 400-500 m를 굴착하여, 심부영역에 대한 지하수 및 조사코어에 대한 지구화학 분석을 실시하였다. 각 결정질암반을 특징으로 하는 1개 지역만을 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 자료를 이용하고자 하였다.

2.1.1 평가항목

자연수(지표수, 지하수) 및 지질시료의 지구화학 특성평가 및 기초자료 제공을 위하여 아래와 같이 상세조사를 실시하였다.

○ 자연수
- 현장 수질측정, 주성분 및 미량원소 함량 분석
- 수리화학적 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 조사지역의 지질

AH 지역은 쥬라기 복운모, 흑운모 화강암 및 제3기 맥암류로 구성되어 있다. 주구성광물은 사장석, 각섬석, 흑운모, 알칼리 장석, 석영 등이며, 부지규모 단열충전광물로 녹니석, 일라이트가 관찰되었다.

BH 지역은 고원생대 변성암 지역으로 변질시기는 중생대로 측정되었다. 염기성 편마암의 경우 주구성광물은 각섬석, 흑운모, 정장석이었으며, 흑운모 편마암의 경우 석영, 운모, 장석이 주구성광물이었다. 단열충전광물로는 녹니석, 일라이트, 몬모릴로나이트, 운모류가 관찰되었다.

2.3 지구화학 특성평가

조사 지역의 범위 및 간이수질 측정결과, 자연수의 화학특성 및 동위원소 분포 특성, 지질시료의 지구화학적 분포 특성 등을 Table 1-2에 제시하였다.

Table 1. Geochemical characteristics of deep AH (granite) environments

항 목	AH(화강암)지역
조 사 범 위	■ 지하수 - 지질환경 조사지점(2개소) : AH-1(450.6m), AH-2(401.7m) ■ 지표수(1EA) ■ 조사코아 - 광물조성, CEC, 성분함량, 절대연령
수 소 이 온 농 도 (pH)	■ 6.8 ~ 9.5 (평균 8.2)
전 기 전도도 (μS/cm)	■ 91.4 ~ 228.4 (평균 152.9)
자연수 화 학 특 성	■ Ca - 5.2 ~ 20.8 (평균 13.7) ■ Na - 6.3 ~ 36.4 (평균 17.4) ■ HCO_3 - 48.8 ~ 134.2 (평균 70.2) ■ SO_4 - 1.2 ~ 7.2 (평균 4.5) ■ 수질유형 - Na-HCO_3, Ca-HCO_3 혼합형 - 심도별 경향 없음
자연수 동위원소 특 성	■ 산소 및 수소 - 천수기원, 지하수 혼합이 잘 일어남 - -8.9 ~ -6.9(산소), -60.6 ~ -41.5(수소) ■ 삼중수소, Bq/L - 2.30 ~ 13.2, 최근에 충진 ■ pMC - 23.11 ~ 69.92 - 환원성 구간에서 낮게 관찰 ■ 황 - 3.8 ~ 24.6 ■ 탄소 - -25.0 ~ -10.3
지질시료 특 성	■ 광역규모 암석분포 - 화강암류, 반암류 ■ 부지규모 암석분포 - 화강암류, 맥암류 ■ 화강암류 생성시기 - 쥬라기 복운모.흑운모 화강암 - 제 3기 맥암류 ■ 구성광물 - 사장석, 각섬석, 흑운모, 알칼리 장석, 석영 등 ■ 부지규모 단열충전광물 - 녹니석, illite

Table 2. Geochemical characteristics of deep BH (Gneiss) environments

항 목	BH(변성암)지역
조 사 범 위	■ 지하수 - 지질환경 조사지점(3개소) : BH-1(500m), BH-2(500m), BH-3(500m) ■ 지표수(1EA) ■ 조사코아 - 광물조성, CEC, 성분함량, 절대연령
수 소 이 온 농 도 (pH)	■ 7.5 ~ 10.6 (평균 8.6)
전 기 전도도 (μS/cm)	■ 183.1 ~ 308.0 (평균 229.6)
자연수 화 학 특 성	■ Ca - 3.3 ~ 45.3 (평균 15.6) ■ Na - 7.3 ~ 52.4 (평균 31.8) ■ HCO_3 - 10.7 ~ 142.4 (평균 110.4) ■ SO_4 - 5.1 ~ 11.4 (평균 9.3) ■ 수질유형 - Na-HCO_3, Ca-HCO_3 혼합형 - 심도에 따라 Ca 유형에서 Na 유형으로 진화양상 관찰
자연수 동위원소 특 성	■ 산소 및 수소 - 천수기원, 고도효과가 관찰 - -10.0 ~ -8.3(산소), -71.4 ~ -54.7(수소) ■ 삼중수소, Bq/L - <2.08 ~ 9.05 ■ pMC - 14.35 ~ 37.51 ■ 황 - -2.8 ~ 7.3, 황산염 환원 지시 ■ 탄소 - -14.0 ~ -8.6
지질시료 특 성	■ 광역규모 암석분포 - 편마암류 ■ 부지규모 암석분포 - 염기성 편마암, 흑운모 편마암 ■ 편마암류 생성시기 - 고원생대 - 변질시기: 중생대 ■ 구성광물 - 염기성 편마암: 각섬석, 흑운모, 정장석 - 흑운모 편마암: 석영, 운모, 장석 ■ 부지규모 단열충전광물 - 녹니석, illite, montmorillonite, micas

3. 결론

심부환경 AH 지역(화강암)과 BH 지역(변성암)에 분포하고 있는 주요 투수성 단열대를 중심으로 지질시료 및 지하수의 지구화학 특성을 평가하여 처분연구 중인 여러 나라의 심부환경과 비교하고자 하였다.

4. 감사의 글

본 연구는 2014년도 산업통상자원부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행되었습니다.

월성원자력환경관리센터 건설중 수문분야 부지감시

권장순[1*], 김지연[1], 고용권[1], 박성민[2], 옥순일[3]
[1]한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
[2]㈜모움과나눔, 충북 청원군 오창읍 중심상업로 7
[3]한국원자력환경공단, 경상북도 경주시 북성로 89
[*]jskwon@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성폐기물의 지층처분은 폐기물을 외부로부터 장기적이고 안전하게 고립시키기 위하여 지하수백 미터의 심도에 건설되며, 이에 심부 지질환경의 지구화학적 조건은 처분장의 안정성을 평가하는데 매우 중요한 인자로 활용된다. 국내 중·저준위 방사성폐기물 처분을 위한 1단계 처분형태는 지층 내 지중처분으로서 2014년 12월 처분장 운영을 위한 인·허가를 득함으로써 처분장 건설 중 수문분야의 계절별 부지감시의 내용을 요약하고자 하였다.

2. 본론

2.1 연구지역

처분시설 부지는 우리나라 동남쪽 해안에 위치하고, 행정구역상 경상북도 경주시 양북면 봉길리 일대에 위치한다. 처분시설 부지 남쪽으로 '83년부터 운영 중인 월성1호기를 비롯하여 211 ㎡의 부지에 총 4기의 가압중수로형(PHWR/CANDU) 원전이 운영 중이다.

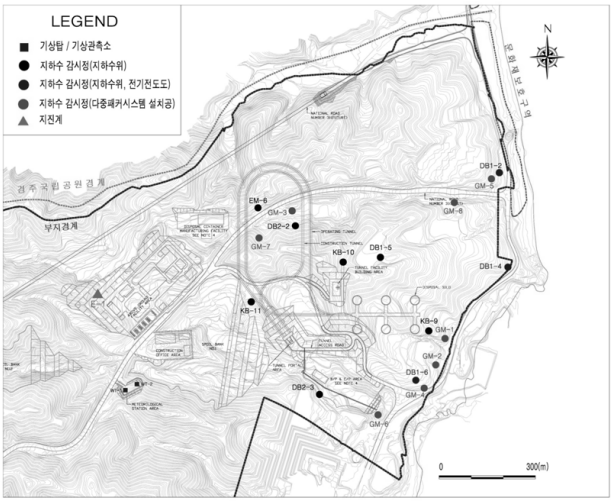


Fig. 1. Monitoring points for surveillance function around the Wolsung LILW disposal site.

Table 1. Hydrogeochemical surveillance function

감시 구분		감시 항목	감시 지점	감시 주기 (운영 전)
지표수		·지구화학분석	3개 지점	계절별 1회
지하수	부지내	·지하수위	7개 지점	연속관측
		·지하수위 ·전기전도도	3개 지점	연속관측
		·특정구간 지하수압	8개 지점 : 다중패커시스템 설치공	연속관측
		·지구화학분석		계절별 1회
		· 사 일 로 내 의 지하수 유입량	6개 지점 : 각 사일로 배수관로	연속관측
		·지구화학분석		계절별 1회
	부지반경 10km	·지하수위 ·간이수질분석	13개 지점	계절별 1회
	해수	·조석	부지내 검조소	연속관측
		·지구화학분석	2개 지점	계절별 1회

* 지구화학분석은 간이수질(온도, pH, Eh, EC, DO)과 무기성분이 포함됨

2.2 관련고시 및 목적

관련고시에 근거하여 처분장의 부지선정, 건설, 운영, 폐쇄 및 폐쇄 후 일정 기간 동안 처분장의 안정성을 위하여 관련 부지특성 항목에 대하여 운영 전, 운영 중, 폐쇄 후 단계로 나누어 부지감시 및 조사계획이 수립되었으며, 2014년까지 처분장 건설 중 부지감시 업무가 완료되었고, 2015년 현재 운영 중 감시 업무가 진행 중이다.

부지감시의 목적은 운영 전, 운영 중 및 폐쇄 후 변화가 예상되는 주요 부지특성을 지속적으로 감시할 수 있는 계획을 수립하여 시행함으로써 처분시설의 성능평가 및 설계에 필요한 기초자료를 제공하기 위함이다.

2.3 조사범위

수문분야 부지감시는 지표수, 지하수 및 해수 감시로 나누어지며, 부지감시 및 조사계획은 감시내용, 감시지점 및 감시주기를 포함한다. 현재 분기별 지표수 3개 지점, 다심도관측용 지하수 8개 지점, 부지반경 10 km 이내 암반지하수 13개 지

점, 해수 2개 지점, 사일로 내 유출지하수 6개 지점에서 지하수위 및 지구화학 분석을 실시하고 있다(Fig. 1 및 Table 1).

2.4 조사결과

2.4.1 지표수

TDS(Total Dissolved Solids)는 88-395 mg/L의 범위를 나타내었으며, 대부분 Ca-Na-HCO3형을 나타내고 주요 양·음이온 함량 및 화학적 유형은 계절에 따른 영향을 받고 있지 않다. 부지주변 대종교 지점과 월성원전 감시지점인 나아에서 삼중수소 함량은 분석장비의 최소검출가능농도 미만으로 측정되고 있다.

2.4.2 다심도 관측공 지하수

처분시설 건설 동안 관측공 내 심도별 지하수압의 변화를 확인하였고, 각 관측공의 사일로 심도 구간의 배경치를 제시함으로서 처분시설 건설활동에 따른 지구화학적 변화 뿐 아니라 향후 운영 중, 폐쇄 후 기간 동안 발생할 수 있는 이상치를 쉽게 파악할 수 있도록 하였다.

부지 내 지하수의 감시 결과, 지하 처분시설 건설활동에 따라 지하수위의 하강과 더불어 지하수압 감소로 부지가 해안지역에 위치하는 특성으로 해수의 유입이 진행되고, 특정구간의 이온교환반응 등과 같은 지구화학반응, 그라우팅 등과 같은 인위적인 활동으로 인하여 수질의 특성이 결정되었으며, 이는 향후 추가적인 자료 획득을 위한 모니터링을 통해 신중하게 해석되어야 할 필요가 있다.

다심도 관측공(8개소)에 대한 지하수압 측정결과, 심도별로 일정하게 증가하는 경향을 나타내었다. 처분시설의 건설에 따라 지하수압은 감소하였으나, 처분시설을 위한 사일로까지의 굴착이 완료되면서 압력의 증감 및 지하수위 안정 등에 대해서 집중적인 관측이 필요하다.

부지 내 6개소의 채취된 지하수의 삼중수소 함량은 3.01-23.1Bq/L의 범위로 분석되었다.

2.4.3 해수

부지감시업무가 시작된 2008년 1월부터 현재까지 월성원전 물양장 내 검조소에서 관측한 조석관측 자료를 분석한 결과, 예방 정비작업 기간을 제외하고는 조석변화에 의한 일정 범위 내의 주기적인 변화 양상을 나타내었으며, 이상치는 관측되지 않았다.

또한 처분시설 건설에 따른 해수의 화학특성에도 변화는 없었으며, 하계의 집중강우 등에 따른 함량에의 약간의 차이가 있으나, 전반적으로 해수의 화학특성은 일정한 값을 나타내었다.

2.4.4 사일로 유출지하수

건설동굴 내 사일로 유출지하수는 서로 각기 다른 유형(fresh; saline; high ferrous; high alkaline)의 특징을 갖는다. 그라우팅의 영향이 의심되는 구간의 pH는 11 이상이었으며, 염수의 영향이 의심되는 구간, 역이온교환반응 등의 지구화학반응이 발생한 구간 등 다양한 특성을 나타내었다.

3. 결론

수리수문학적인 감시의 결과, 지하 처분시설 건설활동에 따라 지하수위의 하강 및 지하수압 감소로 해수의 유입이 진행되고, 특정구간의 이온교환반응 및 그라우팅 등과 같은 영향으로 부지 내 수질의 특성이 결정되었다. 다심도 관측정 특정구간에서는 건설활동의 종료와 함께 지하수위 및 수질의 회복을 확인할 수 있었다. 하지만 이는 지속되는 방폐장 운영 중 부지감시를 통해 신중하게 해석될 필요가 있다. 또한 각 관측공의 사일로 심도 구간의 배경치를 제시함으로써 처분시설 건설활동에 따른 지구화학적 변화 뿐 아니라 향후, 운영 중, 폐쇄 후 기간 동안 발생할 수 있는 이상치를 쉽게 파악할 수 있도록 하였다.

4. 감사의 글

자료 내 환경동위원소 및 산화-환원지시자 분석 및 해석의 연구는 미래창조과학부의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구(핵연료주기사업)입니다.

수리간섭시험을 통한 지하처분연구시설(KURT) 확장영역의 투수성 지질구조 도출

박경우*, 김건영, 고용권, 권장순
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*woosbest@kaeri.re.kr

1. 서론

KURT(KAERI Underground Research Tunnel)는 한국원자력연구원내 건설된 방사성폐기물처분 연구를 위한 지하연구시설이다. 2007년 좌우측 두 개의 연구 모듈을 갖는 "T"형의 연구 터널이 완공되었으며, 국내 처분을 위한 후보 암종으로 화강암의 지질 환경과 관련된 지질, 수리지질, 수리지화학, 암석 등의 다양한 연구가 수행되었다. 그 연구 결과를 토대로 3차원 지질모델과 수리지질모델을 구축하였다.

2014년, 공학적 방벽, 추적자 시험 연구 등의 추가적 실험을 위해 KURT를 확장하였다. KURT의 확장은 "인위적 지하공동의 발생"이라는 지질환경 변화를 야기하는 행위로 기 구축된 지질모델, 수리지질모델을 검증할 수 있는 도구로 이용될 수 있다. 이에 본 논문에서는 KURT가 확장되는 동안 주변 영역에서 발생한 수리적 변화를 이용하여 확장 영역에 존재하는 투수성 구조 (Water Conducting Feature, 이하 WCF)를 분석하여 향후 수리지질모델을 보완하는데 이용하고자 한다.

2. 본론

2.1 연구 방법

KURT의 확장 영역에서 투수성구조를 도출하기 위해 두 가지 방법을 이용하였다. 첫째, KURT 확장 공사가 진행되는 동안에 수리수두변화를 관측하는 방법이다. 이를 위해 DB-1, MB-1, MB-2 관정에 다중패커시스템을 설치하여 실시간 수리수두 변화를 관측하였다 (Fig. 1). 특히, 확장 공사 기간에 조사된 단열대가 관통되는 지점에서의 수리수두 변화를 상세 분석하여 그 단열대가 투수성 구조인지 아닌지를 확인하였다. 두 번째 방법으로 투수성 구조로 예측된 단열대에서 장기 수리간섭시험을 수행하였다. 장기 수리간섭시험으로 연속 양수를 이용하였는데 양수 기간에 Fig. 1에 도시된 관측공에서 수리수두 변화를 연속 관측하였다.

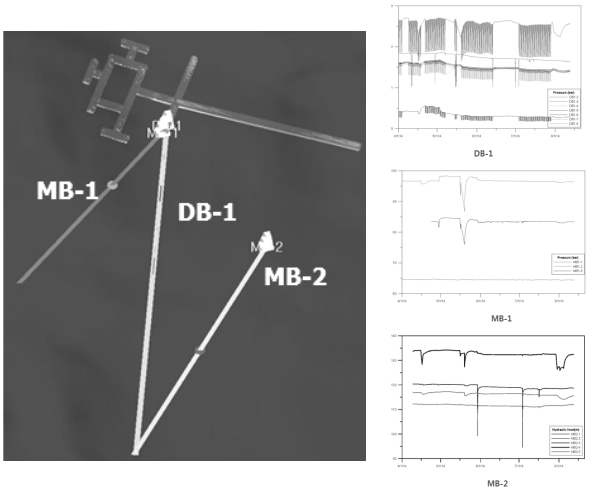


Fig. 1. Monitoring well in KURT.

2.2 터널조사 결과 단열대

KURT 확장 공사 중 단열조사 결과 총 두 개의 단열대(FZ1, FZ2)를 확인하였고, 확장 영역에서 추가적으로 굴착된 시추공을 통해 1개의 단열대(FZ3)를 확인하였다(Fig. 2). 각 단열대에 대한 특성은 Table 1과 같다.

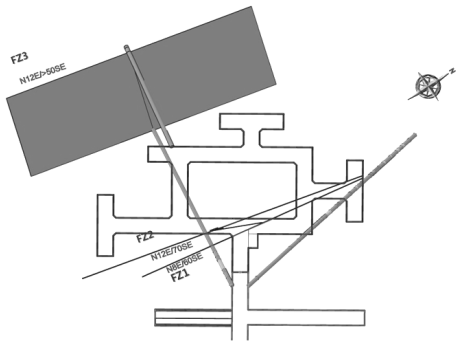


Fig. 2. Fracture zone around KURT extension area.

Table 1. Details of fracture zones in KURT

Fracture zone	Orientation	Survey data	Remark
FZ1	N8E, 60S	KP-3, KP-4, Tunnel mapping	MWCF1
FZ2	N12E, 70S	KP-3, KP-4, Tunnel mapping	MWCF1
FZ3	N12E, 50S	KP-3, K-3	MWCF2

2.3 확장 공사 중 수리수두 변화 관측결과

KURT 확장 공사 중 조사된 단열대와 KURT 주변 영역에서 수리수두 변화를 야기할 주요한 Event로 KURT 확장이 진행되어 MWCF1(FZ1, FZ2)이 관통하였을 때 (4월 30일 ~ 5월 3일)와 MWCF2 조사를 위한 K3 시추공이 굴착될 때 (6월 28일 ~ 30일)이다 (Fig. 3).

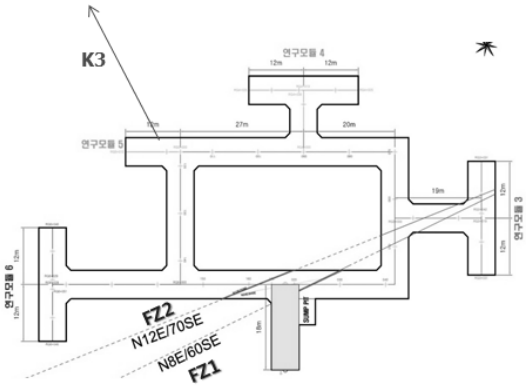


Fig. 3. Two events which would be expected to cause the hydraulic change at MWCFs during KURT extension work.

먼저 MWCF1 관통될 때의 수두 변화를 분석해 보면 DB-1 관측정에서는 전체 구간에서 서서히 감소하는 경향을 보여주었으며, 특히 터널 근처영역인 DB1-2에서 5월 3일 급격한 수두 감소가 확인되었다. 그러나 MB-1과 MB-2에서는 MWCF1 관통과 관련된 수리수두 변화는 없었다. MWCF2 확인을 위한 굴착이 진행된 기간에 수두 변화는 DB1-3에서 급격한 수두 감소가 확인되었으며 DB-1의 다른 구간에서는 서서히 수두가 감소되었다. MB-1에서도 수두 감소가 확인되었으나 그 정도는 미미하였다. MB-2의 경우 MB2-4에서 급격한 감소가 관측되었으며, MB2-5에서 다른 구간에 비해 큰 수두 변화가 관측되었다.

2.4 장기수리간섭시험

KURT 확장 공사 중 확인된 MWCF2의 수리적 연결성을 확인하기 위해 수리간섭시험으로서 양수시험을 수행하였다. 양수정으로 KURT내 굴착된 K3공을 이용하였으며 6liter/min의 유량으로 양수하였다. 관측정으로 다중패커시스템이 설치된 DB-1, MB-1, MB-2 관정을 이용하였다. 양수는 2014년 12월 13일 시작하였으며 총 15일 이상 실시하여 수리간섭현상을 관측하였다.

장기수리간섭시험 결과는 KURT확장 공사 중 수리수두 변화 관측결과와 같이 K3에서 확인된 MWCF 2는 DB1-3, MB2-4구간과 직접적으로 연결되어 있는 것으로 확인되었다. 특히, MB-1관정의 MB1-1, MB1-2구간에서도 수리수두의 감소가 확인되어 전체적으로 MWCF2 구간에서 수리적 연결성을 분석할 수 있는 좋은 결과를 도출하였다.

3. 결론

KURT 확장 공사 중 해당하는 작은 암반 영역에서 단열조사를 수행한 결과 FZ1, FZ2, FZ3의 단열대를 도출하였다. 이 단열대는 기존 수리지질모델에서 제시한 MWCF1, MWCF2에 해당되는 단열대로 MWCF1에 해당하는 FZ1, FZ2의 경우 남북방향의 주향을 갖고 심부로 갈수록 고경사를 갖는 단열대로 판단된다. KURT 주변의 영역에 국한되어 KURT내 굴착된 DB-1의 상부에 수리적으로 직접 연결되어 있으며, 수평적으로 지하수의 투수성을 제공하지는 않는다. MWCF2에 해당하는 FZ3의 경우 주향은 MWCF1과 유사하나 주변 수리수두에 비해 상대적으로 높은 값을 보이고 있어 이와 연결된 관측공을 자분하게 하는 원인이 된다.

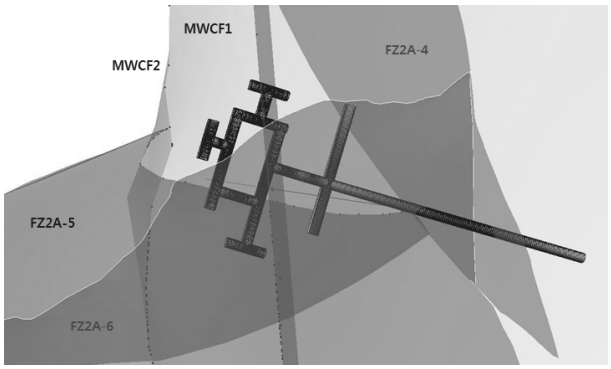


Fig. 4. Hydrogeological model around KURT.

연속화학추출법을 이용한 KURT 화강암에서 천연우라늄의 분포 특성분석

신주도[1], 백민훈[1*], 박태진[1], 민제호[2]
[1]한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
[2]한국방사선진흥협회, 서울특별시 성동구 성수일로 77
[*]mhbaik@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성폐기물 처분의 안정성 평가에 있어서 Far-field에서의 핵종 이동을 예측, 평가하는 것은 매우 중요하며[1], 이와 관련된 연구가 한국원자력연구원 내에 KURT 시료를 이용하여 수행하고 있다. 특히, 우라늄은 사용후핵연료에서 가장 높은 함량을 차지하는 원소로 화학적 특성이 복잡하여 지하매질에 따라 다양한 거동을 보여준다. 매질에 따른 우라늄 수착실험은 잘 제어되고, 정의된 조건에서 수행되어져 왔으며 대부분이 단일광물계에서 이루어져 왔다[2]. 특히, 암석과 같은 복합광물계에서 천연우라늄의 거동과 분포에 대한 연구는 미비한 실정이다.

따라서 본 연구에서는 KURT 화강암을 구성하는 광물계에서 천연우라늄의 분포 특성을 연속화학추출법(Sequential Chemical Extraction)을 이용하여 분석하고자 한다.

2. 본론

2.1 시추코어 암석의 특성

분석에 사용된 암석시료는 KURT DB-1에서 육안으로 관찰된 특성을 기초로 하여 채취하였으며 그 특징을 Table 1에 정리하였다.

Table 1. Description of Core rock samples with naked eye

Sample	Depth(m)	Features of core rock samples
RD-A	97	Core rock with crack filling minerals
RD-B	108	Core rock with fracture surface
RD-C	158	Core rock from fracture zone
RD-D	202	Broken rock particles
RD-E	217	Slightly weathered rock
RD-F	218	Slightly weathered rock
RD-G	245	Core rock with crack filling minerals

채취된 암석의 광물학적 및 화학적 분석을 위해 코어시료를 84.6 μm (300 mesh)의 입자로 분쇄한 뒤 XRF, ICP-MS, XRD 분석 등을 실시하였다.

2.2 광물학적 및 화학적 분석 결과

채취된 암석시료의 XRF와 ICP-MS 그리고 XRD 분석 결과를 Table 2와 3에 제시하였다.

Table 2. The results of chemical analysis for core rock samples by XRF and ICP-MS

Samples	RD						
	A	B	C	D	E	F	G
SiO_2(%)	74.42	71.95	65.37	70.54	69.90	71.29	70.89
TiO_2	0.18	0.37	0.47	0.58	0.60	0.57	0.50
Al_2O_3	14.15	14.15	18.68	14.82	14.60	14.86	13.53
Fe_2O_3	1.80	1.43	2.36	1.88	3.86	2.74	2.52
MgO	0.49	0.54	0.74	0.62	0.53	0.44	0.65
MnO	0.02	0.03	0.02	0.04	0.06	0.05	0.08
CaO	0.31	1.69	0.73	1.14	0.41	0.39	1.89
Na_2O	2.27	1.45	4.10	3.61	2.77	2.40	3.90
K_2O	4.53	4.92	4.28	3.81	4.57	3.48	3.58
P_2O_5	0.07	0.12	0.22	0.17	0.18	0.15	0.15
L.O.I *	2.05	3.08	2.83	2.35	2.83	3.61	2.04
Total(%)	100.29	99.73	99.8	99.56	100.31	99.98	99.73
U(μg/g)	13.7	13.2	9.22	4.76	3.24	3.19	3.67

Table 2의 결과와 같이 KURT DB-1 시추코어 암석 시료들은 이상적인 화강암의 분석결과와 유사한 화학조성을 보여주었다. 다만, 일부 방해석 혹은 녹니석맥의 존재 유무, 장석의 함량 차이로 인한 약간의 산화물 함량 차이가 존재했다.

특히, 우라늄의 경우 RD-A, B 그리고 C의 경우 9 ~ 14 μg/g 수준의 높은 함량을 보인 것이 특징적이다.

Table 3. Major minerals of core rock samples analyzed by XRD

Samples	RD						
	A	B	C	D	E	F	G
Qz	O	O	O	O	O	O	O
Af	O	O	O	O	O	O	
Pl	O	O	O	O	O	O	O
Mc/Ill	O	O	O	O	O	O	O
Ka					O	O	
Ch							O
Cal		O					O

Table 3은 XRD를 이용한 주요 구성광물을 나타낸 것으로 소량의 부수광물과 비정질 광물은 포함되지 않았다.

2.3 연속화학추출법을 이용한 우라늄 추출 결과

본 연구에서는 Tessier 등[3]에 의해 제안된 5단계의 연속화학추출법을 사용하였으며 각각 이온교환상, 탄산염광물, 철/망간산화물-Fe, Al 및 Si의 비정질광물상-이차우라늄 광물, 결정질 철산화물, 점토광물/잔여상 등으로 구분된다.

Table 4. Sequential chemical extraction method suggested by Tessier et al. [3]

Steps	Reagents	Minerals dissolved	Uranium species	Procedures
1	1M Sodium acetate (NaOAc)	Ion exchangeable species	Uranium sorbed by ion exchange (easily exchangeable)	The sample(1 g) was shaken with 8 mL of 1.0 M sodium acetate(NaOAc) at pH 8.2 at room temperature for 4 hours.
2	Morgan's solution	Adsorbed trace materials/ Carbonate minerals	Uranium associated with carbonate minerals	The residue from step 1 was shaken with 40 mL of Morgans's solution(1.0 M sodium acetate adjusted at pH 5.0 by acetic acid) per g of sample at room temperature for 4hours.
3	Tamm's acid Oxalate (TAO)	Ferrihydrite/ Amorphous minerals of Fe, Al, Si/ Secondary U minerals	Uranium associated with amorphous oxyhydroxides and secondary mineral phases	The residue from step 2 was shaken with 40 mL of Tamm's solution(10.9 g/L oxalic acid + 16.1 g/L ammonium oxalate) at pH 3.0 per g of sample in the dark for 4 hours.
4	Citrate-dithionite-bicarbonate (CDB)	Crystalline iron oxides	Uranium associated with iron oxides	The residue from step 3 was stirred with 40 mL of CDB solution(CDB = 1.0 g of sodium dithionite + 60 mL of 0.3 M tri-sodium citrate + 0.1 M sodium hydrogen carbonate) at pH 8.5 per g of sample at 85 ℃ for half an hour. The procedure was then repeated once again.
5	6M HCl	Clay minerals/ Some refractory minerals	Uranium associated with clay minerals and refractory minerals	The residue from step 4 was stirred with 60 mL of 6 M HCl per g of sample at 85 ℃ for 2 hours.

분쇄된 암석시료와 제안된 시약을 반응시킨 뒤 얻어진 상등액과 고체 잔류물을 각각 분석하여 단계별로 추출된 우라늄 농도와 고체 잔류물을 동정하였다. 추출된 우라늄의 정량분석 결과는 Table 5에 요약하였다.

Table 5. Quantitative analysis results for uranium extracted from each step

Steps	Uranium contents (percentages) in rock samples (μg/g)						
	A	B	C	D	E	F	G
1	0.051 ± 0.005	0.181 ± 0.012	0.240	0.045 ± 0.005	0.013 ± 0.005	0.067 ± 0.005	0.096 ± 0.008
2	0.827 ± 0.257	0.707 ± 0.023	0.680	0.080	0.120	0.480 ± 0.040	0.333 ± 0.023
3	1.467 ± 0.162	2.787 ± 0.167	1.600 ± 0.144	0.587 ± 0.023	0.413 ± 0.023	1.053 ± 0.023	1.333 ± 0.129
4-1	0.493 ± 0.061	0.440	1.320	0.133 ± 0.023	0.013 ± 0.023	0.133 ± 0.023	0.533 ± 0.083
4-2	NA*	0.040	0.013 ± 0.023	NA	NA	NA	NA
5	5.440 ± 0.851	4.860 ± 0.591	1.300 ± 0.125	0.680 ± 0.092	0.320 ± 0.069	0.540 ± 0.060	1.780 ± 0.386
Sum(μg/g)	8.277	9.015	5.153	1.525	0.880	2.273	4.076
Initial(μg/g)	13.7	13.2	9.22	4.76	3.24	3.19	3.67
Sum/Initial value (%)	60.4%	68.3%	55.9%	32.0%	27.2%	71.3%	>100.0%

연속화학추출법에 의한 잔류 고체물질의 각 단계별 광물의 종류는 XRD 분석의 피크강도와 2θ 변화를 통하여 확인 할 수 있었다.

3. 결론

연속화학추출법을 이용하여 KURT DB-1 화강암을 구성하는 광물에 존재하는 우라늄을 분석하고, 추출된 전체 우라늄 농도에 대한 각 단계별 추출 비율을 도표로 요약하였다(Fig. 1). 각 시료별 초기 우라늄 농도와 광물조성의 차이에 기인하여 추출된 우라늄의 농도는 단계별로 차이를 보이지만 전체적으로 3단계와 5단계에서 많은 우라늄이 추출된 것을 확인할 수 있다. 이는 화강암 내에서 우라늄 분포는 마그마에서 화강암이 생성되는 일차기원 보다는 변질과 풍화, 변성 따위의 이차적인 과정에 의해 형성된 광물들과 주로 결합하여 존재한다는 것을 의미한다. 특히, 우라늄이 녹니석과 같은 유색의 함철 점토광물, 비정질 혹은 결정도가 낮은 철(수)산화물과 강하게 결합되어 있음을 나타내는 결과라 판단된다.

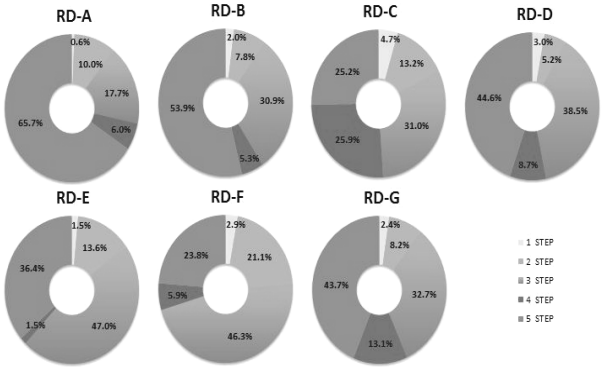


Fig. 1. The distribution of uranium extracted from each step of sequential chemical extraction procedure.

4. 감사의 글

본 연구는 2015년도 마래창조과학부의 재원으로 한국연구재단-원자력연구개발사업의 지원을 받아 수행된 연구임(No. 2012M2A8A5025589).

5. 참고문헌

[1] J. W. Choi and C. H. Kang, Status of the HLW Disposal Concept Development in Korea. The 2000 Joint Workshop on High-Level Radwaste Disposal between Korea and Japan, November 6-7, KAERI Daejeon, Korea (2000).

[2] V. Ticknor, Uranium sorption on geological materials. Radiochim. Acta, 64, 229 (1994).

[3] A. Tessier, P. G. C. Campbell, M. Bisson, Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals. Anal. Chem. 51, 844 (1979).

화재 시뮬레이션을 통한 지하처분연구시설(KURT) 내 피난안전성 연구

윤찬훈[1*], 김건영[1], 민대기[2]
[1]한국원자력연구원 , 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
[2]㈜범창종합기술, 서울특별시 영등포구 양평로21가길 19
*chyoon@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에서는 고준위 폐기물의 처분 시스템 연구를 위해 6×6 m의 단면을 가진 지하처분연구시설(KURT)을 건설하였으며, 건설이 완료된 2006년 이래로 다양한 열-수리-기계-화학적 현장 실증시험들이 수행되었다. 그리고 2014년에 들어서면서 보다 넓은 시험공간이 필요하게 되어 터널확장을 위한 부지조사와 건설계획을 마친 후, 2015년 초에 KURT 2단계 증축공사를 완료하였다.[1]

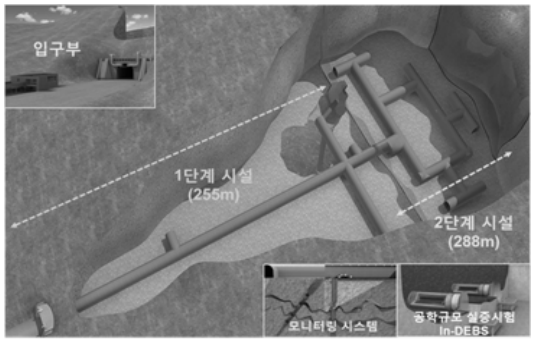


Fig. 1. Layout of the KURT after construction.

확장공사가 완료된 KURT는 진입터널과 연구모듈 2곳으로 구성된 1단계 시설과 연구모듈 4곳으로 구성된 2단계 시설이 연결된 구조이며, 증축된 2단계 시설은 Fig. 1과 같이 환형(고리형) 형태로 건설되었다. KURT는 지하구조물임과 동시에 밀폐된 공간이므로 화재가 발생된 경우, 열에 의해 공기온도가 상승하여 지하 암반에서 라돈가스의 방출을 가속화시킬 우려가 있으며[2], 연소가스를 통한 작업원의 질식 사고를 야기할 수 있다. 비록 KURT가 비방사성 시설이며, 화재와 관련된 실험이 이루어지지는 않지만 수많은 전기설비가 갖추어진 시설인 만큼 전기합선으로 인한 화재의 위험성은 충분히 고려될 수 있다. 또한 2단계 터널이 비교적 복잡한 환형구조로 건설되어 화재시 피난자들의 대피로를 확보함에 있어 불리한 조건을 가지고 있다고 판단된다. 이에 본 연구에서는 가능성은 희박하나 KURT 내 연구모듈에 화재가 일어난 상황을 가정하여 피난자들의 이동경로 및 피난시간 그리고 화재로 인한 각종 유해물질의 전파시간 및 경로를 화재시뮬레이션을 통해 예측·비교함으로써 본 시설에 대한 피난안전성을 파악하고자 하였다.

2. 본론

2.1 수치해석 방법 및 조건

피난안전성 분석을 위해 본 연구에서는 두 가지 프로그램을 사용하였다. 피난자들의 이동경로 및 피난시간의 분석은 영국의 IES사에서 개발된 SIMULEX 프로그램을 사용하였고, 화재로 인한 각종 유해물질의 전파시간 및 경로파악은 미국의 NIST에서 개발한 FDS 프로그램을 사용하였다. 화재시뮬레이션을 위해 피난경로가 가장 긴 RG4와 화재발생시 연기에 의한 피난동선 차단이 우려되는 RG1에서 화재가 발생하는 것으로 가정하였고 그 개요도를 Fig. 2에 나타냈다.

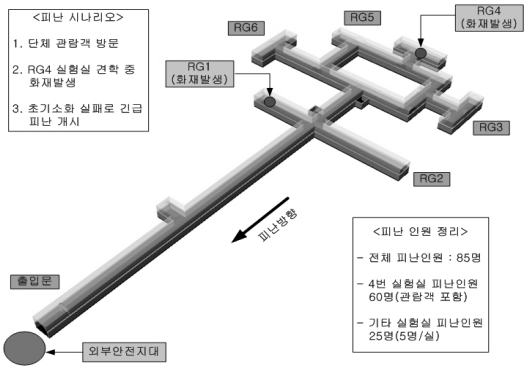


Fig. 2. Outline about fire and evacuation.

각각의 실험동에 연구원 5명씩 실험진행 중이며, RG4에는 60명의 방문객이 있는 것으로 가정하였다. 또한 피난자의 보행속도는 NFPA 130의 기준에 따라 1 m/s를 적용하였다. 그리고 화재해석에 적용한 화재강도는 KURT 시설에 주요한 발화요인이 없다는 점을 감안하여 일반 건축물의 실화재에 대한 실험결과를 바탕으로 최대 화재강도를 5 MW로 설정하였다. 피난안전성 평가를 위한

기준은 소방시설 등의 성능위주설계 방법 및 기준에서 제시된 인명안전기준을 적용하였다. 즉, 호흡한계선은 바닥으로부터 1.8 m, 열에 의한 온도는 60℃ 이하를 기준하였다. 그리고 가시거리는 5 m(검댕(soot)의 밀도 184 mg/m^{3}임) 이상, CO가스는 1400 ppm 이하를 기준으로 하였다. 적용한 안전기준을 대상으로 피난자의 실제피난시간과 연기에 의해 인명안전기준을 초과하는 시간을 비교하여 KURT 내 화재에 대한 피난안전성을 분석하였다.

2.2 수치해석 결과

KURT 내 인원이 85명 상주하고 있는 상황에서 RG1와 RG4에서 화재가 발생하는 것으로 가정하였고 SIMULEX로 시간에 따른 피난자들의 이동경로 및 시간을 Fig. 3에 나타냈다.

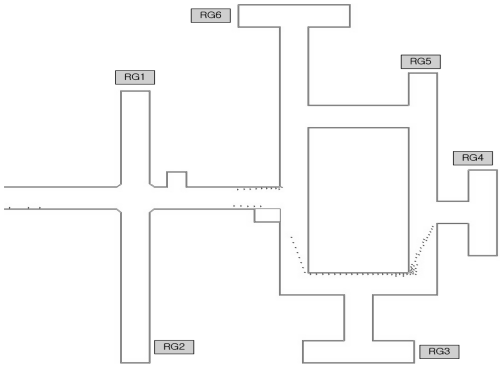


Fig. 3. Evacuation situation after 3minutes.

해석시, 피난 이전 시간을 화재감지시간 1 분, 피난 결정시간 1 분으로 고려하여 화재발생 후 2 분부터 대피가 시작되는 것으로 적용하였다. 즉, 화재발생 2 분 후부터 본격적인 대피가 이루어지게 되는 것이다. Fig. 3의 경우 화재 발생 후 3 분이 경과된 시점으로서, RG4의 많은 인원들이 RG3 진입통로를 거쳐 터널 출구부로 대피하는 모습을 보여주고 있다. 그리고 RG1, 2에 위치했던 인원들은 이미 터널 출구부 가까이 대피한 모습을 보이며, RG5, 6의 피난자들 역시 2단계 시설로부터 벗어나고 있는 상황을 나타내고 있다. 해석 결과, KURT 내 85명 전체의 피난시간은 피난전 시간 2 분과 이동시간 5분 32초를 고려한 7분 32초가 소요되는 것으로 나타났다. Fig.4는 FDS를 통한 검댕의 확산결과를 나타낸 것으로, RG1 화재의 경우, 화원이 피난동선에 위치하므로 RG4 화재에 비해 검댕이 빠른 속도로 확산되어 화재 4분후부터 터널 진입로까지 분포되었고, 4.5분 이후로는 피난자의 안전허용기준치를 넘는 상황임을 확인할 수 있었다. 그러나 RG4 화재의 경우, 터널 출구와의 거리가 제일 떨어져 있을 뿐만 아니라, 환형구조로 인해 열, CO가스 및 검댕의 정체현상이 나타나 오염물질의 전파속도가 피난자의 피난속도에 미치지 못하였다. 결국 8 분 이후부터 터널 내 피난환경이 악화되는 것으로 나타났고, Table 1에 RG1과 RG4 화재시뮬레이션의 결과를 통한 오염물질 별 피난 허용시간을 정리하였다.

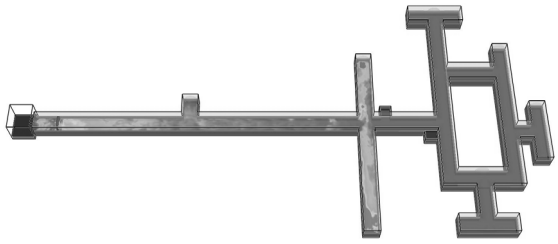

Fig. 4. Soot concentration After 4.5 minutes in case RG1 fire.

Table 1. Evacuation allowed time

	Temperature	CO	Soot
RG1	8 min	8 min	4.5 min
RG4	8 min	8 min	8 min

3. 결론

화재 발생 이후 KURT 내 연구원을 비롯한 방문객들이 85명 있는 상황을 가정하여 피난시간을 해석하였고, 5 MW급 화재를 가정하여 화재시뮬레이션을 수행하였다. 피난자들 모두 화재의 위치에 상관없이, 결정된 피난허용시간(8분) 이내인 7분32초에 대피가 완료되므로 KURT 내 화재로 인한 인명피해 확률은 비교적 낮은 것으로 판단된다. 하지만 가장 극한상황을 가정한 RG1 화재의 경우, 검댕의 피난허용시간이 4분30초로 빠른 만큼 그에 대한 대책이 필요할 것으로 사료된다.

4. 참고문헌

[1] KAERI technical report, 2014, Extension of Underground Research Tunnel(KURT) for the In-situ Experiment of HLW Disposal Technology, KAERI/TR-5799/2014.

[2] Jin Kim and Sangki Kwon, "Ventilation system strategy for a prospective Korean radioactive waste repository" Journal of the Korean Radioactive Waste Society, Vol.3(2), p. 135-148, (2005).

압축 벤토나이트 완충재의 열팽창특성

이재완*, 최영철, 이민수, 최희주
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*jolee@kaeri.re.kr

1. 서론

고준위폐기물처분장에서 압축 벤토나이트 완충재는 공학적방벽의 핵심 구성요소이다. 지하수가 처분장으로 유입되는 것을 최소화하고, 방사성핵종이 폐기물로부터 생태계로 유출되는 것을 저지하며, 외부의 기계적인 충격으로부터 폐기물과 처분용기를 보호하는 역할을 한다. 또한 압축 벤토나이트 완충재의 열적특성은 폐기물로부터 발생되는 붕괴열을 주위 암반으로 신속히 발산시켜, 완충재의 온도가 설정된 최고온도를 넘지 않도록 하고, 온도증가에 의한 열팽창으로 인해 폐기물과 처분용기가 과도한 열응력(thermal stress)을 받지 않도록 하는데 중요한 역할을 한다. 그러므로 고준위폐기물처분장 공학적방벽의 성능평가를 위해서는 압축 벤토나이트의 열적특성 규명이 필수적이다.

이와 관련하여, 본 연구에서는 국산 벤토나이트를 대상으로 열팽창계수(thermal expansion coefficient)를 측정하고, 온도와 건조밀도에 따른 열팽창계수의 변화와 측정방향에 따른 열팽창계수의 이방성(anisotropy)을 조사하였다. 아울러, 컴퓨터 코드 시뮬레이션을 통해 단위 처분모듈을 대상으로 열응력분포를 계산하고, 완충재의 역학적 거동에 대한 열팽창 영향을 평가하였다.

2. 실험

2.1 벤토나이트

실험에 사용된 벤토나이트는 경주산 벤토나이트로, 원광을 분쇄 한 후 200 메쉬(mesh) ASTM(American Society for Testing and Materials) 표준망체를 통과한 것을 사용하였다. 광물분석 결과, 이 벤토나이트는 몬모릴로나이트(montmorillo nite, 70 %)와 장석(feldspars, 29%)을 주성분으로 하고, 소량의 석영 (quartz, ~1%)을 포함하였다. 화학조성은 SiO_2 56.8%, Al_2O_3 20.0%, Fe_2O_3 6.0% 및 기타 미량성분으로 되어 있으며, 양이온 교환능 (CEC)은 57.6 meq/100 g 이었다. 그밖에 액상한계 244.5%, 소성한계 46.1%를 보였으며, 소성지수는 198.4%이었다.

2.2 압축벤토나이트 시편

벤토나이트 시료를 105℃에서 24 시간 동안 건조 한 후 스테인레스 몰더와 유압프레스를 이용해서 원하는 건조밀도의 압축 시편을 제작하였다. 시편의 크기는 직경 $0.58\text{x}10^{-2}$ m, 높이 $1.03\text{x}10^{-2}$ m로, 열팽창계수 측정 시에는 알루미늄 도가니에 넣어 사용되었다.

2.3 열팽창계수 측정

압축벤토나이트의 열팽창계수는 TMA (Thermo-Mechanical Analyzer; SETARAM co., France)를 이용해서, ASTM E 228-11(Standard test method for linear thermal expansion of solid materials with a push-rod dilatometer, 2011) 방법[1]에 따라 측정하였다. 측정 시, 푸시로드(push-rod)의 압축하중은 0.05 N, 승온속도는 5℃/min로 20~105℃까지 질소분위기에서 실시하였다. 열팽창계수(mean coefficient of linear thermal expansion)는 다음의 식을 이용하여 결정하였다.

$$\alpha = \frac{1}{L_o}\frac{\triangle L}{\triangle T} = \frac{1}{L_o}\frac{(L_i - L_o)}{(T_i - T_o)} \quad (1)$$

측정 변수로는 온도뿐만 아니라, 건조밀도(1600 kg/m^3, 1700 kg/m^3, 1800 kg/m^3)와 이방성 유무(압축방향 면과 수직인 면에서의 차이)를 고려하였다.

3. 결과 및 토의

압축 벤토나이트의 열팽창계수는 측정결과 주어진 실험조건에서 $6.10\text{x}10^{-6}$/℃ - $14.32\text{x}10^{-6}$/℃의 값을 가졌다. 온도에 따른 열팽창계수의 변화(Fig. 1 참조)는 88℃를 기점으로, 25~88℃ 영역과 88~105℃로 나뉘어졌으며, 낮은 온도영역보다 높은 온도영역에서의 열팽창계수가 더 큰 값을 가졌다. 압축 벤토나이트의 열팽창계수는 건조밀도가 증가 할수록 감소하는 경향을 보였다. 압축 벤

토나이트의 열팽창계수에 대한 이방성을 조사한 결과, 압축방향 면에서의 측정 열팽창계수는 수직 방향으로 측정한 열팽창계수보다 더 큰 값을 보였다.

컴퓨터 코드 시뮬레이션 결과, 고준위폐기물처분장 완충재의 역학적 거동은 붕괴열 발생에 따른 압축 벤토나이트의 열팽창에 의해 영향을 받았다. 사용후핵연료가 위치한 단위처분모듈(unit disposal module)의 처분공에서 붕괴열에 의한 온도분포는 처분공 중심부가 가장 높고, 그 다음 아래부분과 위쪽부분 순으로 나타났다. 그러나 이러한 온도분포에도 불구하고 열팽창에 의한 열응력분포는 위치에 따라 큰 변화가 없었다. 이것은 열팽창계수의 측정결과에서도 알 수 있듯이, 25~88℃ 영역에서 열팽창계수가 거의 일정한 값을 가지기 때문으로 보인다.

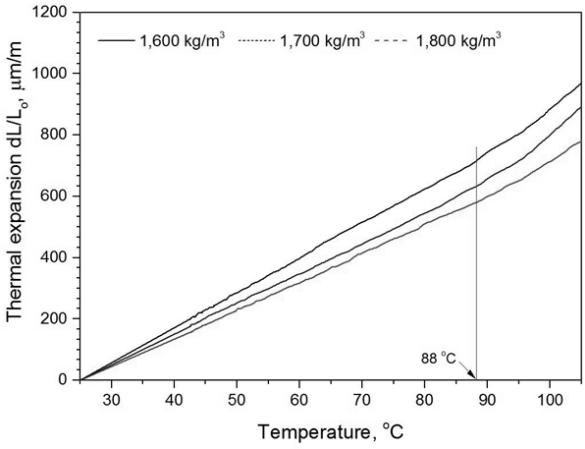


Fig. 1. Thermal expansion of compacted bentonite as a function of temperature.

4. 결론

본 연구에서는 국산 압축 벤토나이트를 대상으로 열팽창계수를 측정하였다. 측정결과, 압축 벤토나이트의 열팽창계수는 주어진 실험조건에서 88℃ 온도를 기점으로 서로 다른 값을 보였으며, 건조밀도가 증가 할수록 감소하였다. 압축시편의 평행면과 수직면에서의 열팽창계수는 서로 다른 값을 가지며, 이방성이 있음을 보여주었다. 단위처분모듈을 대상으로 한 컴퓨터 코드 시뮬레이션을 통해, 붕괴열에 의한 압축 벤토나이트의 열팽창이 완충재의 역학적 거동에 영향을 미치는 중요한 구성요소임을 확인하였다.

5. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부 (한국연구재단)의 원자력연구개발사업 일환으로 수행되었습니다.

6. 참고문헌

[1] ASTM, "Standard test method for linear thermal expansion of solid materials with a push-rod dilatometer," Designation: E228-11, ASTM Standards(2011).

압축벤토나이트의 장기 팽윤 거동

이민수*, 유맑고밝게빛나라, 최희주
한국원자력연구원, 대전 광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*hjchoi@kaeri.re.kr

1. 서론

고준위폐기물 처분시스템에서 물리적 완충과 기밀을 좌우하는 방어막은 완충재이며, 완충재의 기본 물성은, 열전도도, 팽윤압, 수리전도도가 있다. 그리고 완충재 선정에 가장 중요한 물성은 적당한 팽윤압과 낮은 수리전도도를 들 수 있다. KRS 및 A-KRS 고준위폐기물 시스템에서는 기준 완충재로서 경주 Ca 벤토나이트 압축 블락을 선정한 바 있다[1]. 그리고 그동안 경주 Ca 벤토나이트 압축 블락에 대한 열전도도 및 팽윤압 측정 연구를 수년간 수행하여 왔으나, 종합적으로 정리되지 않고 있었다. 따라서 본 연구에서는 기준 경주 Ca 벤토나이트 완충재의 팽윤압과 수리전도도와 같은 수리적 특성을 살펴보고자 하였다.

2. 시험

2.1 완충재와 팽윤 조건

기준 경주산 Ca 벤토나이트의 팽윤압은 KRS 연구 초기에 측정된 바는 있다[2]. 그러나 그 측정자료가 많지 않고, 실제 처분조건에 해당하는30~70도 온도 범위와 압축밀도에 따른 팽윤압을 전부 제시하지 못하였다. 이에 본 연구에서는 2008년부터 2014년까지 약 6 년간 벤토나이트 압축물의 팽윤거동을 압축밀도와 온도별로 조사해 왔다. 시험된 완충재는 주로 경주 Ca 벤토나이트이었으며, 추가적으로 해외 처분장의 완충재로 고려되는 와이오밍 Na 벤토나이트, 그리고 체코산 Mg벤토나이트와 이를 Na형으로 활성화한 벤토나이트도 있었다. 완충재 팽윤에 사용된 수질은 초기에는 증류수를 사용하였으나, 2차 팽윤압 시험 장비를 사용하면서부터 KURT 지하수로 전환하였다. 그리고 급수를 위해 초기에는 100 psi (0.69 MPa)의 높은 가압을 해 주었으나, 대기압 및 0.2 MPa의 낮은 가압으로 변화시켰다. 시험은 주로 온도를 변화시키거나, 압축밀도를 변화시켜서 평형상태에 도달한 팽윤압을 측정하였다. 시험에 사용된 압축블록은 초기에는 부식시험 모듈을 흉내내어, 압축 블록 내부에 금속 시편이 삽입된 상태에서 팽윤압을 측정하였다. 그러나 후기에는 완충재 자체 팽윤압을 정확하게 측정하기 위해서 금속 시편의 삽입은 배제하였다. 완충재의 열전도도 성능을 개선하기 위해 소량의 Graphite나 카본나노튜브(CNT)를 넣는 시험이 2010년 이후에 진행되었다. 따라서 첨가재가 포함된 완충재의 팽윤압 거동도 최근까지 시험해 왔다. 완충재 블록의 압축은 주로 일축압축으로 제작되었다. 따라서 압축 방향에 따른 팽윤압의 차이를 살펴보기 위해 정사면체의 압축블록을 제작하여 측방향 팽윤압도 측정하였다.

2.2 팽윤압 측정 장치

본 시험에서는 상용 Oedometer를 구입하지 않고, 직접 부식 시편 모듈에 사용된 완충재 크기에 맞게 팽윤압 측정 모듈을 제작하여 사용하였다. 측정 장치는 초기 1차 측정 시험장비는 단일 장비(단일 항온 챔버)로서 수동식으로 팽윤압을 기록하는 형태였다면, 2차 측정 시험장비는 DAQ 시스템을 갖춘 3 모듈이 들어갈 수 있는 항온 챔버 2개조를 제작하여 사용하였다(Fig. 1).

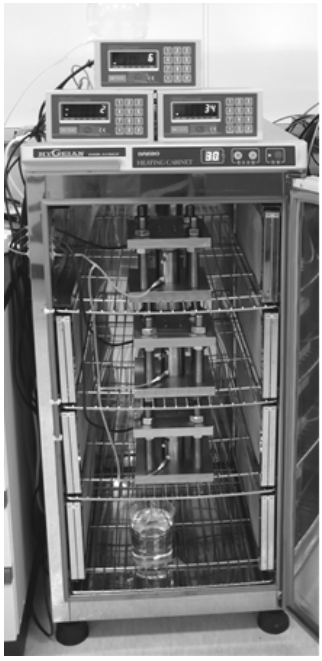


Fig. 1. A environmental chamber containing swelling pressure measuring three modules.

Table 1. Summary of the swelling pressure measurement of compact bentonites since 2012.

측정시작일 총시간 (hours)	측정 조건						측정값 (MPa)
	온도, ℃	건조밀도, g/cm^3	구성	방향	수압조건	측정 모듈	
2012/07/23 3,652	30	1.40 1.49 1.60	GJ Gra. 3wt%	axial	200 kPa (KURT)	2nd	1.32 2.71 4.43
2012/08/16 490	30	1.40 1.50 1.60	GJ CNT 3wt%	axial	200 kPa (KURT)	2nd	2.39 4.59 7.36
2013/06/13 1,295	22-70 승온	1.61	GJ	axial	200 kPa (KURT)	2nd	4.75-1.26 ##
2013/08/07 965	30-70 승온	1.62	GJ	axial Rect.	200 kPa (KURT)	2nd	5.33-1.94 &&
2013/09/26 1,025	30-70 승온	1.60	GJ	lateral Rect.	200 kPa (KURT)	2nd	4.33-1.47 &&&
2013/09/26 1,025	30-70 승온	1.60(Na) 1.60(Mg)	black-hill (1st)	axial	200 kPa (KURT)	2nd	10.9-7.2 0.15-0.1 $
2013/11/12 2,190	30-70 승온	1.60(Na) 1.60(Mg)	black-hill (2nd)	axial	200 kPa (KURT)	2nd	9.8-5.2 0.13-0.07 $$
2013/09/26 2,190	30-70 승온	1.60	GJ	axial Rect.	200 kPa (KURT)	2nd	4.45-1.62 $$$
2014/03/31 5,733	30-70 승감 승감온	1.6	Gra. CNT 3wt%	axial	200 kPa (KURT)	2nd	***

온도, ℃ (팽윤압) 22(4.75)-30(4.59)-40(3.92)-50(3.08)-60(2.20)-70(1.26), && 온도, ℃ (팽윤압) 30(5.33)-50(3.61)-70(1.94), &&& 온도, ℃ (팽윤압) 30(4.33)-50(3.26)-70(1.47), $ 온도, ℃ (팽윤압) Na-activated 30(10.93)-50(9.50)-70(7.18) Mg bentonite 30(0.146)-50(0.128)-70(0.098), $$ 온도, ℃ (팽윤압) Na-activated 30(9.77)-50(8.35)-70(5.23) Mg bentonite 30(0.131)-50(0.112)-70(0.070), $$$ 온도, ℃ (팽윤압) 30(4.45)-50(3.64)-70(1.62), *** 온도, ℃ (Na, Mg) 30(10.0, 5.7)-50(8.9, 4.8)-70(6.5, 2.8)-50(8.3, 4.6)-30(9.8, 6.1)-40(9.0, 5.6)-50(8.3, 4.9)-60(7.4, 3.9), 70(6.3, 2.7)-30(9.5, 5.7)

2.3 시험 결과

완충재의 팽윤압 측정을 2008년에서 2014년까지 수행하였으며, Table 1에는 2012년에서 2014년까지 수행한 팽윤압 측정 내역만 나타내었다.

3. 결 론

지금까지 측정된 벤토나이트 완충재의 팽윤압 거동을 정리하면 다음과 같다.

1) 경주벤토나이트의 압축건조밀도 1.6 g/cm^{3}인 경우, 팽윤압은 상온에서 6~7 MPa이었다.

2) 온도가 증가하면 압축 벤토나이트의 팽윤압은 감소하였다. 온도변화에 따른 팽윤압 변화곡선은 hysteresis를 나타내었으며, 온도 변화를 거듭할수록 팽윤압이 조금씩 감소하는 것으로 보아서, 완충재의 liquefaction의심되었다.

3) 동일한 압축밀도인 경우, 상온에서 Na형은 Ca형보다 팽윤압이 높게 나타났다. Na형 벤토나이트도 온도 증가에 따른 팽윤압 감소 효과가 비슷하게 나타났다.

4) 팽윤온도가 30도에서 70도로 변화할 때 팽윤압의 감소폭은 약 4MPa 정도로 나타냈다.

5) Graphite나 CNT(carbon nano tube)첨가제가 함유된 경우, 첨가제에 의한 완충재의 팽윤 특성은 영향은 없었으며, 오히려 저밀도의 첨가제가 차지하는 부피만큼 팽윤압이 높게 측정되었다. 특히 팽창 특성이 큰 CNT가 포함된 경우에는 팽윤압의 증가가 매우 높았다.

6) 압축 방향에 따른 팽윤압은 압축 방향인 축방향이 측면방향보다 약간 높게 나타났으나, 변화량이 1.0 MPa 이내로 크지 않았다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] J.W. Choi, et. al., KAERI/RR-2765/2006, "Development of Disposal System", 2006.

[2] J. W. Lee, and W. J. Cho, KAERI report, KAERI/TR-3729/2009, "Thermal- hydro-mechanical Properties of Reference Bentonite Buffer for a Korean HLW Repository" (2009).

터널 손상도 평가를 위한 암반 균열 신호 특성 분석

최영철*, 김진섭
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*cyc@kaeri.re.kr

1. 서론

고준위 방사성 폐기물 처분시스템은 Fig. 1과 같이 지하 500 m 심도에서 암반에 터널을 뚫어 고준위폐기물 처분용기를 넣고 주위를 완충재로 매우는 형태이다.

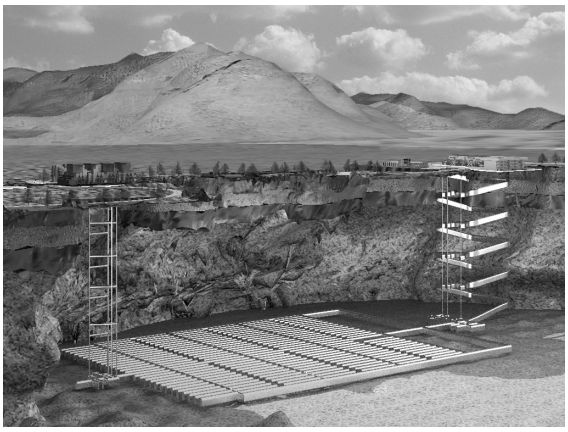


Fig. 1. The high-level radioactive waste disposal system.

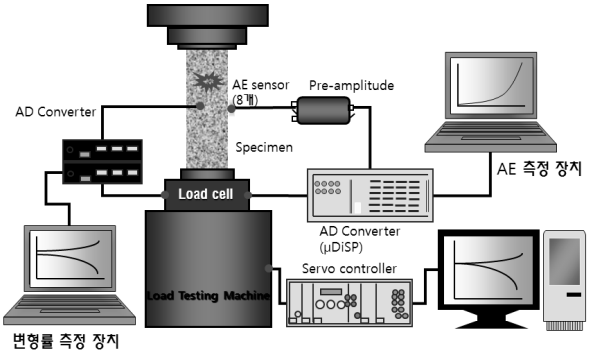
터널 공사 및 고준위폐기물을 처분시 터널 벽면의 균열에 의한 붕괴위험이 존재한다. 따라서 터널 암반의 균열을 실시간 모니터링함으로써 터널 손상도 평가를 수행해야 한다. 본 논문에서는 터널 암반 손상도 평가를 하기 위한 전 단계로써 암반 균열 신호 특성을 분석하고자 한다.

2. 본론

2.1 실험장치 구성

Fig. 2는 암반의 균열신호를 분석하기 위한 실험장치 구성을 보여주고 있다. 균열신호를 측정하기 위해 AE(Acoustic emission) 센서를 사용하였는데, 시편 크기를 고려하여 Physical Acoustic Corporation사의 model NANO 30을 8개 사용하여 설치하였다.

2.2 실험결과



(a)

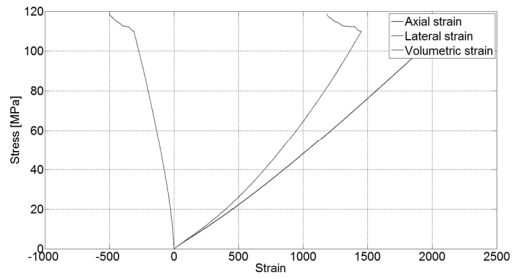


(b)

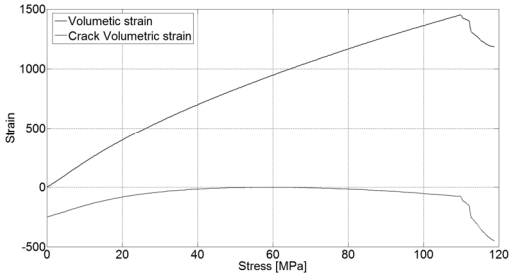
Fig. 2. Experimental setup for analyzing the characteristics of rack crack (a) The outline and (b) the picture of setup.

Fig. 3은 KURT 화강암에 대한 일축압축 변형률 실험결과를 보여주고 있다. Fig. 3(a)는 계측된 축방향 변형률(Axial strain)과 측면방향 변형률(Lateral strain)을 이용하여 계산되어진 체적변형률를 나타낸다. Fig. 3(b)는 비탄성 체적 변형률, 즉 균열 체적 변형률을 보여주고 있다. 균열 체적 변형률을 관찰하여 보면 응력이 증가함에 따라 초기에 '0'의 값으로 커지다가 어느 지점에서 부터는 다시 작아지는 형태를 볼 수 있다. 처음으로 '0'되는 지점이 '균열 닫힘 응력'이고, '0'에서 벗어나기 시작하는 지점이 '균열 개시 응력'을 나타낸다.

따라서, 실험에 사용된 화강암 시편은 그림 Fig. 3(b)에서 볼 수 있듯이 약 60 MPa이 균열 개시 응력임을 알 수 있다.



(a)



(b)

Fig. 3. Experimental results by using strain gauge. (a) Volumetric Strain (b) Crack volumetric strain

Fig. 4는 응력에 대한 균열 신호 발생빈도 및 누적 발생빈도 결과를 보여주고 있다. Fig. 3(b)의 균열개시응력 이후의 균열 체적 변형률과 Fig. 4의 균열신호 누적 발생빈도가 매우 유사함을 볼 수 있다.

Fig. 3(b)의 균열체적 변형률은 특정 응력에 대한 변형률이기 때문에 임의의 응력까지 발생한 총 균열 체적을 구하기 위해서는 적분을 해야 된다. 즉, 특정 응력까지 누적 균열 변형률을 계산하면 그 응력까지 발생한 균열에 의한 체적을 구할 수 있다.

Fig. 5는 Fig. 3(b)의 균열 변형률을 이용하여 균열 개시 이후부터 누적 균열 변형률을 계산한 값이다. 이때, AE 센서를 이용하여 측정한 균열 에너지와 비교하기 위해 파괴 될 때의 누적균열 변형률과 응력으로 x, y축을 정규화하였다.

AE센서를 통해 측정된 균열 신호 발생빈도는 균열에 대한 일부 정보만 가지고 있기 때문에 균열에 대해 대표적인 물리량인 누적균열에너지를 가지고, Fig. 4와 비교하였다. 변형률로 측정된 데이터와 AE센서로 측정된 물리량이 다르기 때문에 파괴될 때의 최대 누적 균열에너지와 응력으로 정규화하여 Fig. 5로 나타내었다.

Fig. 5에서 볼 수 있듯이 변형률센서로 측정된 누적 균열 변형률과 AE센서로 측정된 누적 균열 에너지의 곡선이 거의 일치함을 알 수 있다. 즉, AE 센서를 통해 균열에너지를 측정함으로써 구조물의 손상정도를 예측할 수 있음을 의미한다.

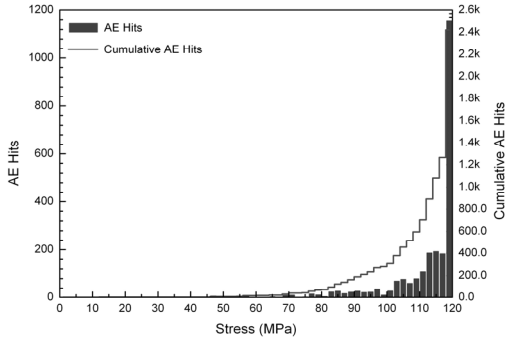


Fig. 4. Crack hits and accumulative crack hits from AE sensor.

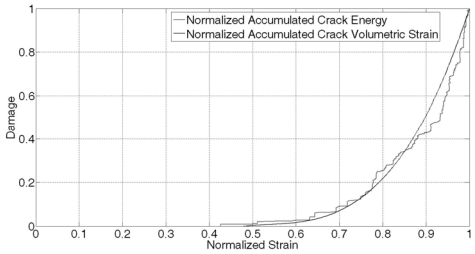


Fig. 5. Comparison a normalized accumulated crack energy and a normalized accumulated crack volumetric strain.

3. 결론

본 논문에서는 터널 균열 손상도 평가를 위하여 균열 신호특성을 분석하였다. 이를 위해 우리나라에 많이 분포하는 화강암 시편을 사용하여 일축압축 실험을 수행하였다. 시편의 변위 측정과 함께 균열 신호를 측정하기 위해 AE센서를 부착하여 동시에 신호를 취득하였다.

균열 신호 분석 결과 변위에 의해 계산된 누적 균열체적변형률과 균열에 의해 발생된 누적 균열 에너지가 매우 유사함을 확인할 수 있었다. 따라서 터널에 AE센서를 부착함으로써 터널의 균열에 의한 손상도 평가가 가능함을 알 수 있었다.

4. 감사의 글

본 연구는 한국원자력연구원의 창의연구사업의 일환으로 수행되었습니다.

트렌치 처분장 지진 발생에 따른 이동 경로 민감도

이연명*, 최희주
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*ymlee@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후 핵연료를 직접 처분하거나 파이로 처리 후 심부 지층에 처분하는 방안이 지속적으로 연구되고 있는 가운데, 2015년부터 운영이 시작된 중저준위 방사성 폐기물 처분을 위한 경주 방사성폐기물 처분장 (처분장)에 동굴처분 형태에 이어 2019년까지 동일 부지에 천층 형태의 2단계 처분장을 건설할 예정으로 있다. 어떤 형태의 처분장이든 방사성폐기물의 안전한 처분을 위한 처분 시스템 장기 성능 평가가 요구된다. 이전 연구를 통하여 가상 천층 처분장을 주 대상으로 하여 이러한 처분장 성능평가가 가능하도록 확률론적 안전성 평가 도구가 개발되었다[1]. 아직 부지 특성 자료나 상세한 설계 개념은 존재하지는 않지만 처분장과 근, 원계 영역 및 생태계를 포함하는 가상의 천층처분 시스템에 대하여 처분장으로 부터의 핵종의 유출과 이동에 관련된 가상의 FEP을 인지하고 이로부터 정상, 비정상 시나리오를 도출하고 이를 기반으로 상용 모사 프로그램인 GoldSim[2]을 활용하여 일반론적 (generic) 안전성 평가가 가능한 전산 프로그램을 작성하였다. 이 연구에서는 정상 및 비정상 시나리오를 평가하고 상호 비교한 이전의 연구에 이어 개발된 이 코드를 이용하여 지진 시나리오 하에서 근계 영역에서의 처분장 방벽 기능을 완전히 상실하며 원계 영역으로 직접 유출 이동되면서 핵종의 이동 경로가 서로 상이하게 변화될 수 있다는 가정 하에 그 결과를 비교해 보았다.

2. 모델링

중저준위 방사성 폐기물을 처분하기 위한 천층 트렌치가 Fig. 1과 같은 처분 시스템 내에 위치하는 전형적인 천층 처분 방식을 상정하였다. 트렌치 처분장은 그림에서 보이는 대로 지하수로 포화된 대수층 상부, 불포화 퇴적암층과 토양층 사이에 위치하게 되어, 트렌치 하부와 대수층 사이에는 두 개의 물리적으로 구분되는 불포화 매질층이 존재하는 것으로 가정하였다. 이 때 대수층은 지하수의 흐름이 뚜렷한 토양이나 암반층은 아닌, 투수계수가 상대적으로 높은, 풍화된 퇴적암층으로 간주하였다.

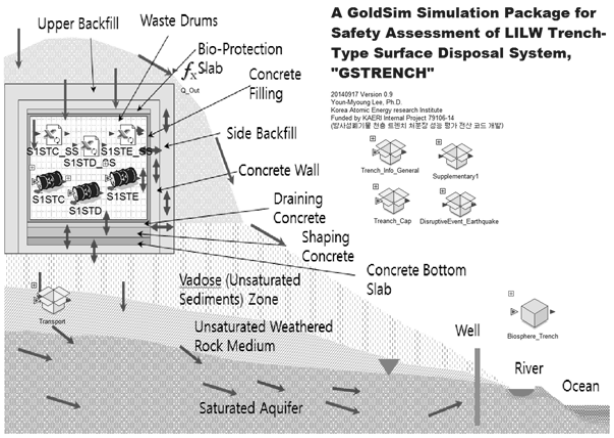


Fig. 1. Nuclide transport pathways modeled with GoldSim in and around the trench repository.

처분시스템 내 처분시설의 주요한 공학적 방벽으로는 시멘트 콘크리트로 제작된 처분용기 박스와 콘크리트로 건설된 사일로의 벽이된다. 이 들 방벽에 대해서는 처분 후 시간의 경과에 따른 콘크리트 열화에 의한 방벽 성능 저하를 고려하는 모델링을 따로 수행하였다. 열화에 동반되는 현상으로는 투수성을 포함한 제반 물성 변화가 함께 지화학적 변화가 있을 수 있는데 이에 대한 해석을 위한 모델링 및 평가가 이루어지도록 연구 개발이 이루어졌다. 핵종의 유출 및 이동에 관여하는 정상 시나리오 하에서는 트렌치 내 모든 콘크리트 방벽은 물론 상부 덮개와 콘크리트 슬라브도 처분장 폐쇄와 동시에 소실되는, 가장 보수적인 가정을 갖도록 설계하고, 폐쇄와 동시에 트렌치 상부의 덮개가 일시적으로 손실되는 대신 시간에 따라 손상이 서서히 일어나다가, 이후 2000년이 지나면 모든 방벽 기능을 잃는 것으로 가정하는 시나리오와 함께, 비록 트렌치 상부 슬라브와 덮개가 모두 처분장 폐쇄 시 일시에 손상된다고 해도 나머지 인공 방벽들은 방벽 기능을 최소 1,000 년간 유지하는 것으로 보는 시나리오도 함께 모델링하였다. Fig. 2에서 보는 대로 지진이 발생하는 경우도 따로 고려하였는데, 이 경우 모든 인공방벽은 그 건전성을 유지하더라도 두 가지 형태의 사건이 개별적으로 혹은 복합적으로 발생

하는 것으로 가정하여, 지진의 정도에 따라 지하수의 처분 시스템 내 지하수 유동률이 증가하거나 혹은 지진에 의해 인공방벽의 기능이 모두 소실되어 처분장 내부에서 유출된 핵종이 원계 영역 내 불포화층이나 대수층으로 전량 직접 이동하는 시나리오가 그 것이다.

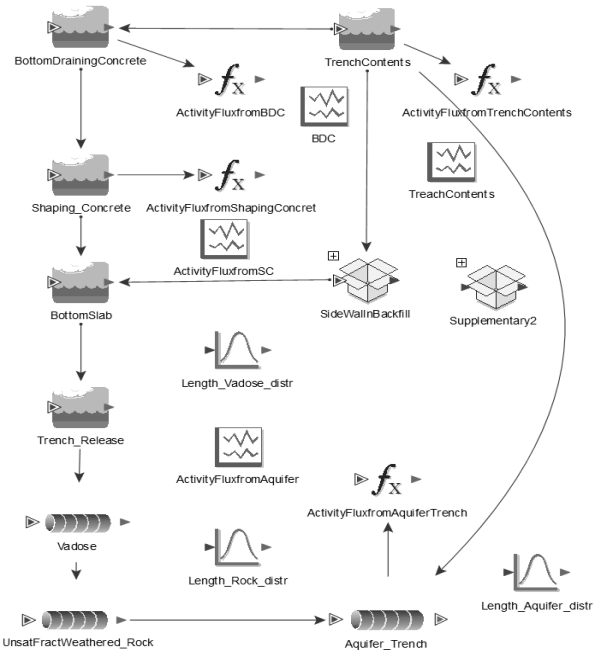


Fig. 2. Transport modeling.

3. 계산 결과 및 논의

이렇게 제안된 개념적 모델을 기초로 개발된 안전성 평가 도구로서의 전산 프로그램, 즉 GoldSim 템플릿을 이용하여 결정론적 평가와 함께 확률론적 안전성 및 성능 예비 평가를 이전 연구에서 수행하였다. 또 이전 연구를 통하여 폐쇄 후 안전성평가에 대한 신뢰성을 제시하고, 민감도 분석 평가를 통하여 주요한 입력인자를 도출할 수 있는 방안도 제시하여 향후 최종 safety case 구축을 위한 실측 입력자료 확보 등에 기여하도록 하였다. 이 때 예시 평가에 사용된 입력자료의 값들은 이전 경주 처분장의 안전성 평가에 사용되었던 값들을 가상적으로 준용하였다.[3] 이번 연구에서는 지진이 발생하는 시나리오에 대해 국한하여, 안전 기준을 상회하는 지진이 발생하는 경우 처분장에서 처분시스템 원계 영역 내 핵종 이동 경로가 다양하게 변화할 수 있다는 가정 하에 피폭 선량을 비교해 보았다. Fig. 3은 지진이 발생한 후 처분장에서 유출된 핵종이 손상된 인공방벽을 우회하여 직접적으로 불포화 토양대, 대수대 상층 열화 암반대, 그리고 대수층으로 이동하는 경우에 대해 각각의 경우에 대한 농축 피폭집단에 대한 최대 피폭 선량을 상호 비교하여 도시한 것이다. 결과에서 보는 대로 특히 대수층과 가까이 직접 이동이 일어나는 경우 정상 시나리오와 비교했을 때 보다 피크 값의 도래 시점이 빨라지며 그 때의 선량률도 정상 시나리오의 경우에 비해 높아지는 것을 알 수 있었다.

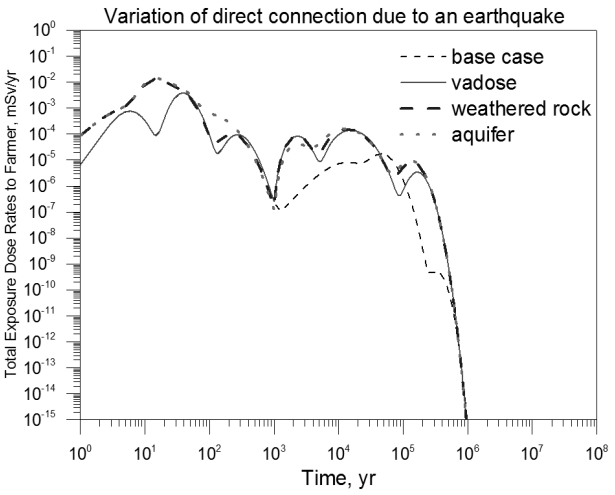


Fig. 3. Comparison among total exposure dose rates to the farming exposure group due to different pathways caused by an earthquake.

4. 참고문헌

[1] GoldSim Contaminant Transport Module, User's Guide, Version 4, GoldSim Technology Group, (2006).

[2] Youn-Myoung Lee and Jongtae Jeong, "A GoldSim Model for a Probabilistic Safety Assessment of a Trench Repository for Low-Level Waste," presented at 2014 MRS, Nov. 30-Dec. 5, 2014, Boston, MA, USA.

[3] 중저준위 방사성 폐기물 처분시설 안전성 분석 보고서, 제 6장 안전성 평가 및 사고 분석, 개정 1, 한수원 (2008.)

핵종선택에 따른 처분시스템 핵임계 민감도 분석

김인영*, 최희주
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*iykim@kaeri.re.kr

1. 서론

심지층 처분은 방사성물질을 인간과 환경으로부터 격리시키고 확산을 지연시킴으로써 방사선적 영향을 최소화시키는 것을 목적으로 한다. 이를 위해 가장 기본적으로 핵임계 안전성이 확보되어야 한다. 현재 처분용기는 사용후핵연료가 기준연소도만큼 연소된 뒤 처분되는 것을 가정하고 있기 때문에 별도의 중성자흡수체 없이 설계되고 있으며, 연소된 사용후핵연료를 기준으로 핵임계가 평가되고 있다. 일반적으로 원자로에서 연소된 사용후핵연료에는 천개이상의 핵종이 포함되어 있으며, 이를 모두 포함하여 핵임계 해석을 수행하는 것은 불가능하므로 특정 핵종을 선택하여 핵임계 분석이 수행되게 된다. 따라서 사용후핵연료를 대표할 핵종을 어떻게 선택하고 핵임계 해석을 수행하느냐에 따라 시스템의 유효증배계수가 달라질 수 있다. 따라서 본 연구에서는 사용후핵연료 핵종선택에 따른 처분시스템 핵임계 민감도를 분석하고, 사용후핵연료 처분시스템 핵임계 해석에 적합한 핵종그룹을 예비 도출하고자 하였다.

2. 해석모델수립 및 해석결과

2.1 기준 사용후핵연료 및 처분시스템

본 연구에서는 다음과 같은 기준 사용후핵연료를 가정하고, SCALE 6.1 (ORIGEN-ARP)을 이용해 사용후핵연료의 핵종수밀도를 평가하였다. 처분시스템은 처분공에 구리-주철 이중구조 처분용기가 정치되며 그 사이를 벤토나이트 완충재로 메우는 KBS-3 타입을 기준으로 하였으며, Table 1에 처분용기 및 완충재 제원을 요약하여 정리하였다.

- 핵연료 종류: Plus7
- 농축도 및 방출연소도: 4.5wt%, 55 GWd/MtU
- 냉각기간: 원자로 방출 후 40년
- 연소조건: 37.5 MW/MtU, 3주기 운전, 재장전기간 60일

Table 1. Specification of the canister and the buffer

	Disposal canister			bentonite
	Channel	Iron insert	Copper shell	
Width [cm]	23.5			
Diameter [cm]		93	103	103 (ID) 175 (OD)
Height [cm]	454.8	467.8	477.8	777.8
Edge dist. [cm]	0.5			
Tube dist. [cm]	12			
Edge radius [degree]	~15			
Top-t [cm]		5	5	250
Base-t [cm]		8	5	50

2.2 핵임계 해석모델 수립

본 연구에서는 핵임계 해석을 위해 MCNP6 코드를 이용하였다. 핵임계 해석을 위해 처분시스템의 설계제원 및 구성물질의 조성이 입력되어야 하며, 본 연구에서는 Table 1의 설계제원을 토대로 해석모델을 구축하였다. 단, 초기 처분용기-벤토나이트 사이 및 벤토나이트-처분공 사이는 각각 1 cm, 3 cm의 간극이 존재하지만 지하수 유입에 따라 팽윤되어 처분공과 완충재 사이의 간극이 없는 것으로 가정하였다. 또한 핵임계 해석 시 사용후핵연료 집합체는 제어봉이나 가연성 독봉을 포함하지 않으며, 처분시스템이 제 형태를 유지하되 지하수에 의해 침수되어 최적감속조건을 이뤘다고 가정하였다. Fig. 1은 본 연구에서 사용된 핵임계 해석 모델의 형상을 나타내고 있다.

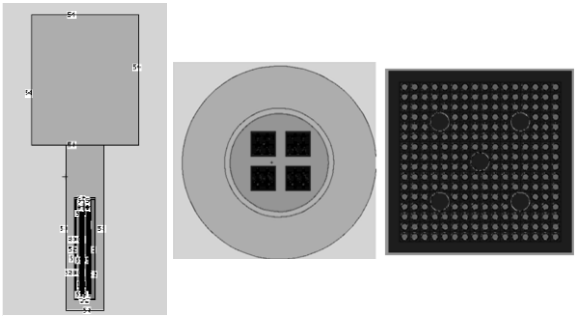


Fig. 1. Geometry of MCNP model

2.3 사용후핵연료 대표 핵종 선택

핵임계 해석을 위해 사용후핵연료의 핵종조성이 입력되어야 한다. 본 연구에서는 SCALE 6.1 (ORIGEN-ARP)을 이용해 2.1에 제시된 기준사용후핵연료의 핵종재고량을 평가하였다. 사용후핵연료 핵종선택에 따른 영향을 분석하고자 참고문헌 2, 3에 제시되어 있는 주요 핵종을 토대로 Table 2와 같은 핵종세트를 도출하고 평가된 핵종재고량 값을 이용해 MCNP 입력을 작성하고 핵임계 평가를 수행하였다.

Table 2. Nuclide sets

Set	Nuclide
Set 1	U234, U235, U238, Pu239, Pu240, Pu241, Pu242, Am241
Set 2	Set 1 + Np237, Nd143, Nd145, Sm147, Sm149, Sm150, Sm151, Sm152, Eu151, Eu153, Gd155
Set 3	Set 1 + Pu238, Am243
Set 4	Set 1 + U236
Set 5	Set 2 + Sr90, Cs135, Cs137
Set 6	Set 2 + Tc99, Rh103
Set 7	Set 2 + I129

2.4 핵종선택에 따른 핵임계 평가 결과

핵종선택에 따른 핵임계 평가결과는 Table 3과 같다. Set 1의 값은 악티나이드 핵종만 고려하는 경우의 값으로 유효증배계수 0.74762로 평가되었다. Set 2는 Set 1에 추가적으로 대표적인 핵분열생성물을 함께 고려하는 경우로 유효증배계수는 Set 1에 비해 0.07982가 감소하였다. Set 3과 Set 4는 추가적으로 악티나이드 계열의 핵종을 고려하는 경우로 각각의 경우 유효증배계수는 Set 1에 비해 0.00506, 0.00535가 감소되는 것으로 평가되었다. Set 5, Set 6, Set 7은 중요한 핵분열생성물을 추가적으로 고려하는 경우로 각각의 경우 유효증배계수가 Set 2에 비해 0.00189, 0.01336, 0.00008만큼 감소하는 것으로 나타났다.

Table 3. keff from criticality analysis of nuclide sets

Set	keff	difference
Set 1	0.74762	
Set 2	0.66780	0.07982 (Set 1)
Set 3	0.74256	0.00506 (Set 1)
Set 4	0.74227	0.00535 (Set 1)
Set 5	0.66591	0.00189 (Set 2)
Set 6	0.65444	0.01336 (set 2)
Set 7	0.66772	0.00008 (set 2)

이 결과를 통해 핵종선택에 따라 시스템의 유효증배계수가 매우 크게 달라짐을 확인할 수 있었다. 따라서 연소이득을 고려한 핵임계 평가의 신뢰도 확보를 위해서는 선택된 핵종의 신뢰도 확보가 선행되어야 할 것이다. 핵종선택에 있어 고려되어야 할 사항을 아래와 같이 도출하였다. 현재 아래의 기준을 모두 충족하는 핵종은 Set 1로 한정되며, 따라서 현재는 사용후핵연료 연소를 고려한 핵임계 해석의 핵종은 Set 1으로 제한하는 것이 바람직할 것으로 사료된다. 향후 연구를 통해 충분한 데이터가 확보되면 추가적으로 더 많은 핵종을 반영할 수 있을 것으로 판단된다.

1. 충분한 핵자료가 확보되어 있는가?
2. 물리, 화학적 특성, solubility, volatility 등에 관한 충분한 자료가 확보되어 있는가?
3. 사용후핵연료 내 핵종재고량 예측결과의 충분한 검증이 이뤄졌는가?

3. 결론

일반적으로 시스템 설계 시 신연료를 가정하고 설계하는 것이 가장 보수적이지만, 처분시스템의 경우 과도한 보수성으로 인해 처분시설의 경제성이 매우 취약해지고 자원소요량이 과도해질 수 있으므로 사용후핵연료 연소이득을 고려함이 바람직한 것으로 사료된다. 본 연구에서는 사용후핵연료의 연소를 고려함에 있어서 핵종선택에 따른 처분시스템 민감도를 분석하고, 핵종선택에 따라 처분시스템의 유효증배계수가 매우 큰 영향을 받음을 확인하였다. 따라서 연소이득을 고려함에 있어서 해석결과의 신뢰도를 확보하기 위해 핵종선택이 매우 중요하며, 본 연구에서 제시된 선택기준 및 핵종을 활용하여 연소이득을 고려한 핵임계 해석 신뢰도를 높일 수 있을 것으로 기대된다.

4. 참고문헌

[1] 이민수 외, "사용후핵연료 처분을 위한 공학적 방벽시스템 개발", 한국원자력연구원, 2014.

[2] Lennart Agrenius, "criticality safety Calculations of storage canisters", SKB-TR-02-17, 2002.

[3] C.V.Parks et. al, "Review and Prioritization of Technical Issues Related to Burnup Credit for LWR-fuel", NUREG/CR-6665, 1999.

KBS-3 처분개념의 국내 적용 경험과 전망

최희주*, 김인영, 이종열, 이민수
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*hjchoi@kaeri.re.kr

1. 서론

고준위폐기물(사용후핵연료 포함)의 영구 처분 방안으로서 지하 500 미터정도의 깊이의 처분터널에 처분공을 굴착하고 처분하는 심지층 처분 방식이 가장 현실적인 방법으로 건설이 추진되고 있다. 심지층 처분 방식도 미국 야카산(Yucca Mountain) 처분장 방식의 지하수 불포화 암반 내에 처분하는 방식과 스웨덴 SKB의 처분 방식인 지하수 포화 암반 내에 처분하는 개념으로 구분된다. 프랑스 ANDRA가 추진하고 있는 퇴적암반을 이용한 처분 개념도 있으나 스웨덴 개념과 크게 다르지 않다.

스웨덴의 방사성폐기물 관리 전담기관인 SKB는 1983년 KBS-3 심지층 처분 개념을 제안하였다[1]. 이 개념은 지하 500 미터 심도의 화강암반에 사용후핵연료를 직접 처분하는 것이다. 처분 안전성은 구리-주철 이중구조로 된 처분용기에 사용후핵연료를 넣어 10만년 이상 핵종 누출을 억제하겠다는 것이다. 처분용기의 수명[최소 10만년]을 보장하기 위하여 벤토나이트를 이용하여 제작한 완충재로, 처분용기와 지하수의 접촉을 최소화하는 것이다. 이와 같이 지하수에 용해되어 있는 구리 용기 부식인자들과 접촉을 억제하여 처분용기 수명을 보장하는 것이다.

저자들은 수년간 사용후핵연료를 포함한 고준위폐기물 처분시스템을 스웨덴 KBS-3 개념을 바탕으로 개발하였다[2]. 본 논문에서는 KBS-3 개념의 처분시스템 개발 경험을 통해 마주쳤던 어려움들과 이에 대한 극복 방안을 제안하고자 하였다.

2. 본론

2.1 고준위폐기물과 처분면적

사용후핵연료를 직접 처분하는 개념인 KBS-3 처분방식은 스웨덴과 핀란드에서 실행되고 있으며, CANDU 사용후핵연료를 직접 처분하고자 하는 캐나다에서도 유사한 개념의 처분시스템을 개발 중이다. 스웨덴과 핀란드는 각각 10기 내외의 원자로를 운영 혹은 계획 중이며, 이들로부터 예상되는 사용후핵연료 총 발생량도 10,000톤 내외이다.

PWR 사용후핵연료(연소도 45 GWD/MTU 기준) 20,000톤과 CANDU 사용후핵연료 16,000톤을 대상으로 한국원자력연구원이 수행한 직접처분시스템 개념설계[2]에 의하면, 지하 처분면적은 최소한 약 4.6 km^2이다. 2100년까지 예상되는 국내 사용후핵연료 발생량이 PWR의 경우 75,000톤, CANDU의 경우 16,000톤임을 고려하면, 예상되는 처분면적은 대략 16 km^2이다. 즉, KBS-3 처분개념은 제한된 물량의 사용후핵연료를 처분하기에는 적합할 수 있으나 우리나라와 같이 지속적으로 원자력을 활용하여야 하는 경우에는 다각적인 검토가 필요하다.

처분면적을 고려할 때, 더욱 심각한 상황은 고연소도 사용후핵연료(55 GWD/MTU)의 처분과 관련되어 있다. 기존 연구결과[3]에 따르면(Fig. 1), 고연소도 사용후핵연료를 처분하는 경우, 처분시스템에 대한 열 해석 결과, 처분공 간격이 12 m가 넘어도 완충재 설계요건을 만족시키지 못하고 있다. 즉, 이와 같은 해석 결과를 처분시스템에 적용하면, 2100년까지 예상되는 사용후핵연료의 직접 처분에 소요되는 처분면적은 30 km^2도 초과하는 것을 의미한다. 이와 같은 결과는 사용후핵연료 최종 관리를 위해 파이로 처리와 같이 고준위폐기물 부피를 줄일 수 있는 기술 도입의 필요성을 시사하고 있다.

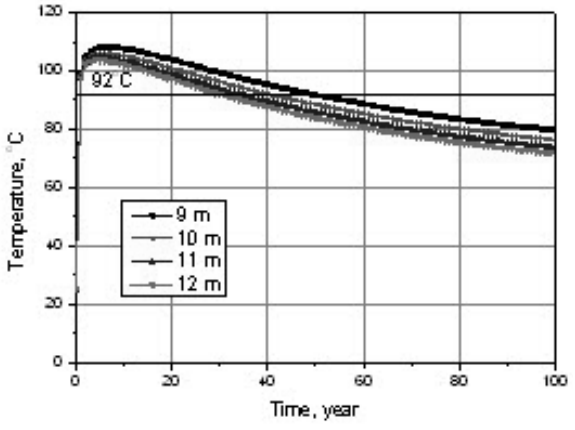


Fig. 1. Peak temperature in a buffer.

2.2 처분용기

공학적방벽시스템은 처분용기, 완충재, 뒤채움재 등으로 구성된다. KBS-3 처분개념의 가장 중요한 공학적방벽은 구리-주철 이중구조 처분용기이다. KBS-3 처분시스템은 사용후핵연료의 독성도가 천연 우라늄 수준으로 낮아지는 10만 년 정도의 기간 동안 처분용기를 이용하여 방사성 핵종의 누출을 억제하고자 한다. 이와 같은 긴 시간의 처분용기 수명을 위하여 50 mm 두께의 구리를 용기 재료로 도입하였다. 아주 보수적인 처분환경에서의 부식모델을 이용한 처분용기 수명 예측은 수백만년 이상으로 추정되었다[4].

국내에서 사용후핵연료 직접 처분을 위한 처분용기 개발에는 KBS-3 개념의 처분용기를 도입하였다[2]. 그러나 파이로 공정 고준위폐기물의 경우 처분용기 수명은 1,000년으로도 충분하며, 현재 KINS에서 준비 중인 고시(안)에 의하면, 고준위폐기물 처분용기 수명은 1만년 내외이다. 이와 같은 국내 환경을 고려하여, 저자들은 새로운 구리용기 제작법을 개발하였으며, 이 방법을 실용화하기 위하여 중규모 크기의 처분용기를 제작할 수 있는 장치를 개발하였으며, 이를 이용하여 1/3 규모의 처분용기를 여러 차례 제작하였다(Fig. 2). 저온분사 코팅법을 이용한 이 새로운 처분용기 제작법을 이용할 경우 구리 용기의 두께를 자유롭게 제작할 수 있는 장점이 있다. 현재 캐나다의 NWMO에서도 자국 내 처분용기 제작을 위하여 이 방법을 이용하여 개발하고 있으며, 실규모 처분용기를 제작한 경험이 있다. KURT에서의 장기 부식 실험 등을 통해 저온분사 코팅 처분용기 수명이 검증될 경우, 처분용기 제작에 소요되는 구리 양을 획기적으로 감소시킬 수 있을 것으로 판단하고 있다.

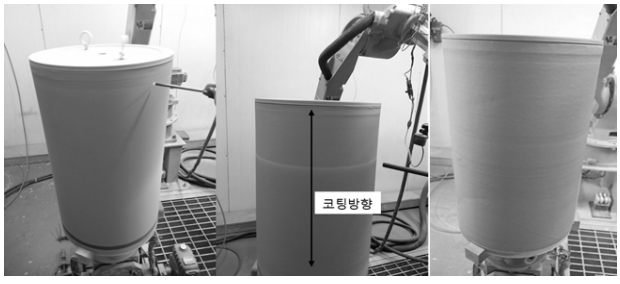


Fig. 2. Cold spray coating for a canister.

2.3 완충재

완충재의 주목적의 하나는 처분용기와 암반 사이를 흐르는 지하수와의 접촉을 최소화하여 처분용기의 부식을 가능한 억제하는 것이다. KBS-3 개념에서는 이를 위하여 팽윤성 MX-80 Na-벤토나이트를 완충재 재료로서 이용하였다. 국내에서는 MX-80과 같은 종류가 아닌 국내산 Ca-벤토나이트를 이용하였다. 이 Ca-벤토나이트는 경주 지역에서 생산된다. 한국원자력연구원에서는 국내산 벤토나이트를 고준위폐기물 처분장에 이용하기 위하여 다양한 열-수리-역학적 특성뿐만 아니라 물리, 화학적 특성을 분석하였다. 이를 바탕으로 완충재를 설계하고, 안전성평가를 수행하였으며, 중규모 제작에 성공하였다. 국내산 벤토나이트 생산량이 고준위폐기물 처분시설에 활용하기에는 부족할 수도 있으나 지속적 연구를 통하여 Na- 혹은 Ca-벤토나이트에 대한 데이터베이스를 확보하고, 최적의 활용 방안을 수립하여야 할 것으로 판단된다.

3. 결론

고준위폐기물 심부처분시스템 개발을 위하여 스웨덴 KBS-3 처분개념을 국내 지질 환경에 적용하여, 고준위폐기물을 처분하는 방안을 검토하였다. 특히 국내 고연소도의 사용후핵연료 발생량의 지속적 증가에 기인한 처분 소요 면적 증가를 분석한 결과, 재처리 기술과 같은 고준위폐기물 부피감용 기술개발의 필요성이 강조되었다. 한편, 심지층 처분시스템의 공학적 방벽시스템의 기술자립을 위해, 기존 구리처분용기 제작법의 한계를 극복할 수 있는 저온분사코팅 구리처분용기 제작 현황과 전망을 소개하였으며, 국내산 벤토나이트를 이용한 중규모 완충재 제작 기술 개발 현황을 소개하였다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] SKB, Final Storage of Spent Nuclear Fuel-KBS-3, 1983.
[2] Jong Youl Lee, Dongkeun Cho, Heuijoo Choi, and Jongwon Choi, Journal of Nuclear Science and Technology, 44(12), 1565, 2007.
[3] 이민수 외, KORAD/EBS-TR/2014-06, 2014.
[4] Ivas Neretnieks, TR-79, 1979.

국외 폐밀봉선원 관리현황 고찰

이승희*, 김주열, 김석훈, 김주엽, 윤태빈, 이은용
㈜미래와도전, 경기도 용인시 기흥구 흥덕1로 13
*seunghee0505@fnctech.com

1. 서론

국내에서 발생된 폐밀봉선원은 현재 한국원자력환경공단 RI폐기물 저장고에 임시 보관되고 있다. 산업체, 병원, 학교, 연구기관 등 여러 분야에서 발생되는 폐밀봉선원은 그 특성과 형태가 매우 다양하여 체계적인 관리방안에 대한 모색이 필요하다. 본 논문에서는 국외 폐밀봉선원 관리현황에 대해 분석하고 이를 국내 폐밀봉선원 관리방안을 도출하기 위한 기초자료로서 활용하고자 한다. 이에 따라 IAEA의 폐밀봉선원 안전관리 지침 및 다수 국가의 폐밀봉선원 규제 및 관리현황을 조사하였으며 이를 비교·분석하였다.

2. 국외 관리현황

2.1 IAEA 폐밀봉선원 안전관리 지침

IAEA는 폐밀봉선원의 안전한 관리를 위해 국가차원의 규제 및 적절한 관리체계 수립 등 통합적 기술지침을 다수 발간하였다. IAEA에서 권고한 폐밀봉선원 주요 관리단계별 지침사항을 정리하면 다음과 같다[1].

- 특성평가 : 최적의 관리옵션을 선정하기 위하여 핵종, 방사능, 물리·화학적 특성 등 방사선원에 대한 특성평가를 수행해야 함
- 저장 : 밀봉선원 사용이 광범위한 국가는 중앙집중식 장기저장 시설이 요구됨
- 처리 : 안전한 저장 및 처분을 위한 과정으로 선원의 특성, 규제기준, 저장 및 처분 위치 등을 고려하여 처리방법을 선정해야 함. 처리과정을 통해 폐기물 체적 감소, 누설선원 밀폐 등의 효과를 기대할 수 있음
- 처분 : Table 1과 같이 핵종 특성에 따라 적절한 처분방안을 권고함

Table 1. IAEA Disposal Options for Disused Sealed Radioactive Sources

구분	처분 방안
면제기준 미만	규제면제 관리옵션에 따라 일반매립장에 처분 가능
극단반감기 선원	극단반감기 폐기물에 대한 관리옵션에 따라 붕괴저장
극저준위 선원 (C-14, I-129 등 장반감기 핵종 포함)	극저준위폐기물 관리옵션에 따라 천층매립형처분
단반감기 선원 (30년 이하)	저준위폐기물에 대한 관리옵션에 따라 천층처분
장수명 핵종 (Pu-238, Ra-226 등) 및 단반감기 고방사능선원	중준위폐기물 관리옵션에 따라 심층처분

2.2 국가별 관리현황

2.2.1 미국

미국의 방사성폐기물은 상업폐기물, 사용후핵연료 및 DOE 소유 폐기물로 나뉘며 각각 NRC와 DOE의 규정을 따라 관리한다. 저준위 방사성폐기물은 10CFR61.55의 분류기준을 따르고 폐밀봉선원은 개별선원의 방사능과 포장물내 총방사능을 모두 고려하여 분류한다. 폐밀봉선원 처분시설은 민간 상업시설과 DOE 산하 처분시설인 WIPP으로 구분되며 2015년 현재 상업용 저준위폐기물 처분시설인 Barnwell (South Carolina), Clive (Utah), Andrews (Texas) 및 Hanford (Washington)에 각 시설 고유의 처분 규정에 따라 처분이 가능하다. Andrews 처분시설에는 3.7E+06 Bq 이하의 저방사능 폐밀봉선원 모두가 처분가능하나, 그 외 처분시설은 자체적인 폐기물 인수기준에 만족하거나 또는 특별한 처분용기를 요구한다. 현재 DOE에서는 폐기물 인수기준을 초과하는 고방사능 폐밀봉선원에 대한 관리방안 및 처분옵션을 연구중에 있다[2].

2.2.2 러시아

방사성폐기물은 연방법 No. 190-FZ와 정부법령 No. 1069을 준용하여 선원의 반감기, 비방사능, 물리적 상태, 방사선 종류에 따라 6개 등급으로 나뉘며 각 등급별로 처분방법이 구분된다. 폐밀봉선원은 지역 기반의 'Radon형' 처분시설의 시추공 처분장에 처분 및 임시저장되고 있으며 대표적으로 ^{137}Cs(40%), ^{60}Co(25%), ^{90}Sr(22%)를 포함하여 전체 시설 누적 방사능의 약 99% 이상을 차

지한다. 단반감기 폐밀봉선원은 처분시설 내 천층처분되고 장반감기 폐밀봉선원은 지하 저장고에 임시 저장되고 있다[3].

2.2.3 스페인

밀봉선원 관리와 관련한 현행 규제사항은 원자력에너지법 1964에 근거한다. 또한 밀봉선원의 생산, 사용 및 폐기 등 밀봉선원의 전주기에 관한 규제는 스페인 원자력안전위원회(CSN)에서 수행한다. CSN은 정기검사를 통해 불용선원이 확인되면 선원 처분을 권고하고 이에 사용기관은 공급자에게 선원을 반환하거나 방사성폐기물 관리기관인 ENRESA로 인도한다. 단반감기 방사성핵종을 포함한 중·저준위 방사성폐기물은 ENRESA에서 운영하고 있는 EL Cabril 천층처분시설에 처분이 가능하지만 그 외의 방사성폐기물은 El Cabril 부지 내에 임시 저장된다[4].

2.2.4 스웨덴

스웨덴의 폐밀봉선원 규제에 관한 법령은 모두 방사선방호법(1988:220)에 의거한다. 폐밀봉선원이 발생할 경우 스웨덴 방사선안전국(SSM)의 규정에 따라 6개월 내에 허가된 폐기물관리시설이나 공급자 또는 제작자에게 이송하여야 한다. 고방사능 폐밀봉선원 관리에 관한 규정(SSMFS 2008:9)에 따라 기준치 이상의 폐밀봉선원은 고방사능으로 분류하고 장반감기폐기물 영구처분시설(SFL)에 인수한다. 또한 기준치 이하의 선원은 단반감기폐기물 처분시설(SFR)에 처분되거나 원자력부지 내에 천층처분된다. 스웨덴의 Studsvik Nuclear AB사는 자국내에서 처분되는 대부분의 방사성폐기물을 인수 관리하고 1983년부터는 SKB와의 협정을 통해 SFR에 비원전폐기물을 처분하였다. SFR에 처분될 수 없는 장반감기 폐기물은 Studsvik의 중간저장시설에서 저장하고 있다[5].

2.3 비교 분석

미국, 러시아, 스페인, 스웨덴의 폐밀봉선원 규제 및 관리현황에 대해 Table 2에 정리하였다. 4개국 모두 폐밀봉선원의 처분가능시설이 확보되어 있는 상태이며 방사능, 반감기에 따라 처분방안을 구분한다.

3. 결론

본 논문은 IAEA 폐밀봉선원 관리방안 지침과 미국, 러시아, 스페인, 스웨덴의 폐밀봉선원 관리현황에 대해 분석하였다. IAEA는 반감기 및 방사능에 따라 폐밀봉선원을 5개 그룹으로 분류하고 그룹별 처분방안을 제시하며 상기 4개 국가들은 폐밀봉선원의 방사능, 반감기 등에 따라 처분방안과 처분시설을 마련하고 있다. 본 결과는 차후 국내 폐밀봉선원 처분방안 개발을 위한 기초자료로서 활용될 예정이다.

Table 2. Management of Disused Sealed Radioactive Sources in Four Countries

국가	규제기관	법규	관리현황
미국	NRC	10CFR61.55	• 상업 및 DOE 중저준위폐기물 처분시설에 처분 가능
러시아	Minatom	연방법 190-FZ, 정부법 1069	• 지역별 'Radon'형 시추공 처분시설에 장기저장(장반감기) 및 처분(단반감기)
스페인	CSN	원자력 에너지법 1964	• 공급자에 반환 가능 • 단반감기 중저준위 폐기물은 EL Cabril 처분시설에 처분 • 그 외 폐기물은 동일 처분시설에 임시저장
스웨덴	SSM	방사선 방호법 (1988:220)	• 공급자에 반환 가능 • 단반감기 핵종은 SFR에 처분 • SFR에 처분 불가능한 핵종은 중간저장시설에 저장되거나 SFL에 처분

4. 감사의 글

본 연구는 2014년도 산업통상자원부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다. (*No. 20141720100560)*

5. 참고문헌

[1] IAEA, "Management of Disused Sealed Radioactive Sources", IAEA Nuclear Energy Series No. NW-T-1.3 (2014).
[2] Anthony Andrews, "Radioactive Waste Streams: Waste Classification for Disposal", CRS Report for Congress (2006).
[3] Sobolev I.A, et al., "Management of Spent Radiation Sources at Regional Facilities RADON in Russian Federation", Proceedings of WM'01 Conference, Tucson, AZ, USA (2001).
[4] European Commission, "Management and Disposal of Disused Sealed Radioactive Sources in the European Union", EUR 18186 EN (2000).
[5] SSM, "Swedish national plan for the management of all radioactive waste", SSM Report 2009:29e (2009).

원전 주요국의 사용후핵연료 관리정책 최근 동향

조현진, 김수진, 박원홍, 하재철, 이정환, 권기정, 박주완, 정해룡*
한국원자력환경공단, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*nohul@korad.or.kr

1. 서론

사용후핵연료 관리정책의 최종적인 목표는 지하 심부에 처분하여 사용후핵연료를 인간환경으로부터 영구 격리하는데 있다. 이와 같은 심층 처분 기술은 국제적으로 가장 안전한 관리방법으로 평가 되고 있으며, 핀란드, 스위스, 프랑스, 독일, 영국, 미국, 일본 등과 같은 원자력 선진국에서도 심층 처분방법을 선호하고 있다. 본 논문에서는 이들 나라 중 대표적인 4개국의 최근 동향을 살펴보았다.

2. 본론

2.1 핀란드

사용후핵연료를 재처리 없이 심층에 직접 처분하는 관리정책 하에 1983년부터 처분 프로그램에 따라 2001년 세계 최초로 고준위폐기물 처분 부지를 유라조키(Eurajoki)지역의 올킬루오토(Okiluoto)로 선정하였다. 처분장은 지하 400~500 m 깊이의 화강암 지역에 건설 예정이며, 처분시스템은 스웨덴 SKB에서 개발한 KBS-3H 다중방벽시스템을 기본으로 하여 설계되었다. 2015년 2월 11일 건설 인허가를 세계 최초로 승인하여 2022년에 운영하는 것을 목표로 처분사업을 추진 중에 있다.

Table 1. Selection of sites in Finland[1]

Period	Main Content
1983~1985	Screening of investigation areas
1986~1992	Preliminary site investigation
1993~2000	Detailed site investigation
2001. 05.	Site selection (Olkiluoto)
2015. 02. 11.	Approval for Construction license

2.2 스위스

사용후핵연료 재처리 부산물을 포함한 모든 고준위폐기물은 중간저장을 거쳐 심층 처분할 계획이다. 스위스 방폐물 전담기관인 Nagra에서는 심층 처분을 위해 두 개의 지하연구시설(URL)에서 30 년 이상 지질학적 조사, 실증실험 등을 수행하고 있다.

고준위폐기물 심층 처분장 부지선정은 단계계획(Sectoral plan)에 따라 3단계로 진행된다. 2015년 1월 30일 2단계 부지선정 절차의 결과 최종 후보 부지로 Zürich Nordost와 Jura Ost가 선정되었다. 두 곳 모두 단일 부지 내 각기 다른 깊이에 고준위와 중준위방사성폐기물 처분장 건설을 할 수 있는 Opalinus Clay 기반암 지역이다.

Table 2. Selection of sites in Switzerland

Period	Main Content
2008. 04.	Approval for Sectoral Plan
2008~2011	Screening of investigation areas(Stage1)
2015. 01. 30.	Selection of two potential sites(Stage2)
~2027	Definitive site selection and the decision of the Federal Council on the general license

2022년 인허가를 신청하고, 2029년까지 국민투표를 통해 고준위폐기물 심층 처분장 최종 부지를 확정하는 것을 목표로 하고 있다[3].

2.3 프랑스

프랑스는 세계에서 원자력발전 비중이 가장 높은 국가이다. 사용후핵연료를 재처리 하므로 방사성폐기물로 분류하지 않으나 연구용원자로 또는 MOX(Mixed OXide fuel)원자로에서 발생하는 사용후핵연료는 고준위방사성폐기물로 분류하는 것을 고려하고 있다.

Table 3. Classification of radioactive waste in France[4]

<table>
<tr><th>Half-Life($T_{1/2}$)
Activity</th><th>Very short-lived
$T_{1/2}$ < 100 day</th><th>Short-lived
$T_{1/2}$ ≤ 31 years</th><th>Long-lived
$T_{1/2}$ > 31 years</th></tr>
<tr><td>Very low level (VLL)</td><td rowspan="3">Stored to allow radioactive decay on the production site then disposed of adopting conventional solutions</td><td colspan="2">Surface disposal facility
(VLL area in the Aube district)</td></tr>
<tr><td>Low level (LL)</td><td rowspan="2">Surface disposal facility
(LILW area in the Aube district)</td><td>Shallow disposal facility
(studied in accordance with the Act of 28 June 2006)</td></tr>
<tr><td>Intermediate level (IL)</td><td rowspan="2">Reversible deep geological disposal facility
(studied in accordance with the Act of 28 June 2006)</td></tr>
<tr><td>High level (HL)</td><td>N/A</td></tr>
</table>

1980년대 기술적 판단으로만 추진하던 고준위폐기물 심층 처분장 부지선정은 주민 반대로 인해 정치

적 쟁점화가 되었다. 2006년 고준위폐기물관리법이 제정되면서 고준위 및 장수명 중준위방사성폐기물에 대해 회수 가능한 심층 처분을 실시하도록 규정했다.

Table 4. Selection of sites in France

Period	Main Content
1991. 12. 30.	Legislation of Waste Management Act
1994~1996	Geological exploration
1998	Site selection for construction of URL
2005~2006	Public debate
2006	Adopting reversible deep geological disposal
2015	Cigéo construction license application

Cigéo Plan에 따라 1998년 Meuse/Haute Marne 지역이 URL 건설 부지로 확정되었다. 현재 프랑스 방사성폐기물 전담기관 ANDRA에서는 이 지역 지하 500m 점토암질에 건설과 실험을 병행하면서 URL을 운영하고 있다. 2015년 인허가를 신청하고, 2019년 건설에 착수하여 2025~2030년에 고준위와 장반감기 중준위방사성폐기물의 회수 가능한 심층 처분을 목표로 하고 있다[5].

2.4 독일

1970년대 에너지 공급 취약성에 대한 우려로 원자력 확대 정책을 고수하였으나 1986년 체르노빌 사고 이후 탈핵이 공론화되면서 신규 원자력발전소 건설의 중단과 기존 원자력 발전소의 폐쇄를 결정하였다. 이후 2002년 모든원자력 발전소를 2022년까지 폐쇄하는 '상업적 전력생산용 원자력에너지 이용의 단계적 폐지법'을 제정했으나, 2008년 집권한 연립정부는 노후 원자력발전소의 수명연장 결정을 내렸으며, 후쿠시마 사고 이후에도 탈핵정책에 대하여 소극적 태도를 취하였다. 하지만 반핵 여론에 밀린 정부는 2022년 말까지 모든 원자력 발전소를 폐쇄하는 계획을 발표하였다(2014년 현재 9기의 원전 운영 중). 2013년 독일에서는 고준위 방사성폐기물의 최종 처분장 부지를 처음부터 다시 선정하기 위해 부지선정법이 제정 공포되었다. 이 법에는 '최종저장'의 개념을 재수거 가능성을 배제하는 영구처분의 성격을 강조하며, 최종처분 부지선정을 2031년까지 완료하여야 한다고 명시하였다. 또한 고준위방사성폐기물 처분위원회를 조직하여 처분장 부지선정 추진방안을 2015년 12월까지 결정할 것을 촉구하고 있다. 독일은 방사성폐기물을 국가가 관리하게 되어 있으며, 정부로부터 위임받은 연방방사선방호위원회(Bfs, Federal Office for Radiation Protection)가 방사성폐기물 처분사업을 총괄하고 있으며, 향후 연방 원자력 폐기물 관리기관을 설립하여 처분장 부지선정 절차에 대한 규제기능을 담당하게 할 계획이다.

3. 결론

원전 주요국은 원전 건설과 동시에 사용후핵연료 처분사업을 계획하여 30년 이상을 추진 중에 있다. 특히, 핀란드는 세계 최초로 심층 처분장 부지 선정 및 건설 인허가를 승인한 나라가 되었고, 그 밖의 나라들도 최근에 심층 처분을 위한 구체적 법률체계 확립, 부지선정, URL 운영, 인허가 절차 진행 등 체계적 프로그램 하에 처분사업을 준비하고 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 2012년도 산업통상자원부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다(No. 2012171020001A).

5. 참고문헌

[1] Posiva Oy, "The final disposal facility for spent nuclear fuel", 4-8 (1999).
[2] STUK, "Joint Convection on the Safety of Spent Fuel Management and on the Safety of Radioactive Waste Management 5th Finnish National Report as referred to in Article 32 of the Convention", 89-107 (2014).
[3] nagra, "Siting regions for deep geological repositories", 1-6 (2015).
[4] République française, "Fifth National Report on Compliance with the Joint Convention Obligations", 25-61 (2014).
[5] ANDRA, "The CIGEO Project, Meuse/Haute Marne Reversible geological disposal facility for radioactive waste", 92-93 (2013).
[6] BMUB, "Joint Convention on the Safety of Radioactive Waste Management" (2015).

해외 고준위방사성폐기물 심층처분시설의 폐쇄 후 안전 규제검증현황

김지현[1*], 한경원[1], 박상훈[1], 서은진[2], 정찬우[2]
[1]㈜라드웍스, 대전광역시 유성구 대덕대로 530 첨단상가 다308호
[2]한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 과학로 62
[*]jhkim9775@gmail.com

1. 서론

고준위방사성폐기물의 심층처분시설은 인간과 환경으로부터 수십만 년 이상 격납·격리하기 위하여 최소 수백 미터 깊이에 처분하는 시설이다. 이러한 시설은 폐쇄 후 안전성평가 뿐 아니라 안전성평가를 지원하는 광범위한 증거와 논거의 종합을 Safety Case에서 다루어야 한다[1].

본 연구에서는 심층처분시설의 폐쇄 후 안전성을 입증하는 Safety Case의 구성요소에 대해 살펴보고 외국의 규제기관에서 심층처분시설 사업자가 제출한 폐쇄 후 Safety Case에 대하여 안전성을 어떻게 검증하고 있는지를 조사하였다.

2. 본론

2.1 Safety Case 구성요소

IAEA[3]와 NEA[2]는 Safety Case 개발의 필요성에 대해 강조하고 있다. 이 두 기구에서 제시한 Safety Case의 구성요소는 거의 유사하나, NEA에서 더 구체적으로 제시하고 있으며, 이 Safety Case의 주요 구성요소는 아래와 같다.

- 평가기반: 시스템 설명, 과학적·기술적 데이터와 이해, 평가방법·모델·전산코드·데이터베이스
- 안전성평가: FEPs(Features, Events and Processes)의 방법론적 접근, 시나리오 도출 및 가능성, 시스템의 잠재적 전개의 수치 모델링
- 증거와 논거들의 종합: 신뢰성 표명

2.2 해외 처분시설의 규제검증현황

2.2.1 미국 유카산 처분시설

NRC는 수용성과 기술성으로 구분하여 유카산 처분시설의 인허가 신청서를 검토하였다. 그리고 검토지침인 NUREG-1804[4]에 따라 유카산 부지에 대한 성능평가, 공정수준의 세부적인 모델링 내용, 실험실 및 야외 시험 그리고 자연유사현상의 연구 등으로부터 얻어진 위해도를 이용하여 폐기물의 격리에 중요한 천연 및 인공 방벽들을 검사하고, 시나리오 분석을 평가하고, 모델들을 검토하였다. 그 결과, 동 시설은 폐쇄 후 안전에 관한 10CFR63 Subpart E와 L의 요건들(폐쇄 후의 성능요건과 인간과 환경 방호기준)을 만족하였다.

그리고 동 시설의 TSPA-SR(Total System Performance Assessment-Site Recommendation)에 대하여 NEA의 검토를 받았다. 그 결과 성능평가 접근방법, 평가 모델들, 규제요건의 부합 여부, 성능의 이해에 대한 측면 등은 수용할 수 있지만, 불확실성과 위해도 희석에 대한 잠재적 가능성의 구체적인 설명, 그리고 Cl-36과 Cs-135 방사성핵종의 추가를 요하였다.

이를 통해 미국에서는 Safety Case라고 명시하고 있지는 않지만, Safety Case 평가 및 검증과 유사하게 수행되고 있음을 알 수 있었다.

2.2.2 미국 WIPP[5]

EPA는 WIPP 시설에 대해 초기인증 시 DOE의 모델을 이용하여 검증하였다. 이 검증에 불확실성, 복잡성 그리고 정량적.비정량적 관점들을 포함하는 모든 증거들을 고려하였다. 부 시스템에 대해서는 EPA 자체적으로 모델링과 외부 전문가 및 용역을 활용하였다. 그리고 EPA는 5 년 마다 재인증을 실시하는데 그 때 변경되는 사항들의 규명, 이로 인한 장기적 성능에 미치는 영향 분석, 및 모델링의 검증은 주로 DOE의 전산코드를 사용하여 확인하였고 대중의 의견도 반영하였다.

위와 같은 검증과정을 통해 규제자와 개발자는 각자 전문성을 갖추거나 이를 위한 지식관리 시스템이 필요하다는 교훈을 얻었다.

2.2.3 스웨덴[6]

방사성폐기물관리사업자인 SKB는 KBS-3 처분방식의 Safety Case가 포함된 Forsmark 처분시설 인허가 신청서를 규제기관인 SSM에 제출하였다. SSM은 이에 대해 예비 검토·본 검토·보고의 순으로 검증하고 있으며, 예비 검토 및 본 검토에서는 SKB와 별도로 독립적인 자체 모델링을 수행하였다. SSM은 SKB의 인허가 신청서를 예비 검토한

결과, 부지 및 처분방식 선정의 정당화, 캐니스터의 장기적 건전성, Forsmark 부지 특성 조건, 인공방벽들의 기술적 실현 및 잔존하는 현안들의 해결책에 대한 계획에 대해서 상세한 설명 또는 정보를 요구하였다. 또한, 이해관계자들과의 원활한 소통의 일환으로 국내 기관들의 검토의견을 수렴하였다.

스웨덴 정부의 요청으로 NEA는 위 시설의 지질계, 완충/되메움, 구리 캐니스터, 연료/피복관, 생태계, 실제적인 수행, 성능평가, 성능확인, 최고의 가용기술 등을 세부적으로 검토하였다. 그 결과로 안전 논거들의 제시, 안전성평가 방법, 완성도, 잔존 현안들의 처리, 부지 및 처분방식 선정, 실현가능성(타당성)에 대한 권고사항이 도출되었다.

스웨덴에서도 WIPP 시설 인증과정에서 얻은 교훈과 같이 규제자와 개발자의 전문성 또는 지식관리 시스템이 필요하다는 것을 확인하였다.

2.2.4 핀란드[7]

처분사업자인 Posiva는 Olkiluoto 처분시설의 Safety case 부분이 포함된 건설허가 신청서를 규제기관인 STUK에게 제출하였다. STUK는 이를 등록서류 검토와 세부 검토 단계를 거쳐 검토하며, 독립적 모델링을 위하여 국제 전문가들과 협약하였다. STUK는 세부 검토 시 다음과 같은 10개의 평가 기준에 따라 검토하였다[8]. 1) 시설 계획의 원자력법 만족 여부 및 운영 계획에 작업자 및 주민의 안전 포함 여부, 2) 시설 부지 선정의 적합성 및 운영계획에 적절한 환경보호 고려 여부, 3) 운영계획에 적절한 물리적 방호 여부, 4) 지역 상세계획에 원자력시설 건설 부지의 유지/보존 여부 및 부지 소유 여부, 5) 방사성폐기물관리 방법들의 충분성 및 적합성 여부, 6) 사용후핵연료 관리계획의 충분성 및 적합성 여부, 7) 신청자의 준비가 충분한지 여부, 8) 신청자의 전문기술 보유 여부, 9) 신청자의 자금조건 충족 여부, 10) 신청자가 핀란드의 국제협상 의무 준수를 위한 선행조건 충족 여부

3. 결론

고준위방사성폐기물 심층처분의 선도국들인 미국, 스웨덴, 핀란드의 동 처분시설에 대한 규제검증현황을 조사한 결과, 다음과 같은 결론을 도출하였다.

- 검토 시 대부분 처분사업자의 모델을 이용하고, 경우에 따라서는 독립적으로 모델링하고 있다.
- 미국에서는 Safety Case라고 명시하고 있지는 않지만 이에 준하여 평가 및 검증을 하고 있음을 알 수 있다.
- 처분시설에 대한 Safety Case는 NEA에서 제시하고 있는 안전성평가와 증거 및 논거들을 종합적으로 검토하고 있다. 그리고 검토 시 자국내 기관들의 검토의견을 수렴하고 국제 전문가 검토를 수행하여 신뢰성을 확보하고 있다.
- 규제자와 개발자의 전문성 또는 이를 위한 지식관리 시스템 구축의 필요성에 대한 교훈을 얻을 수 있었다.

4. 감사의 글

본 연구는 한국원자력안전기술원의 위탁사업으로 수행된 연구입니다.

5. 참고문헌

[1] IAEA SSR-5, Disposal of Radioactive Waste, 2011.

[2] NEA/OECD, The Nature and Purpose of the Post-closure Safety Cases for Geological Repositories, 2013.

[3] IAEA, SSG-23, The Safety Case and Safety Assessment for the Disposal of Radioactive Waste, 2012.

[4] NUREG-1804, Yucca Mountain Review Plan, 2013.

[5] R.T. Peake, Continued Oversight of the Waste Isolation Pilot Plant, Symposium Proceedings, NEA/RWM/R(2013)9, 2014.

[6] B. Dverstorpand, B. Stromberg, SSM's Licensing Review of a Spent Nuclear Fuel Repository in Sweden, Symposium Proceedings, NEA/RWM/R(2013)9, 2014.

[7] J. Heinonen, The Regulatory Review of Construction License Application and the Supporting Safety Case, Symposium Proceedings, NEA/RWM/R(2013)9, 2014.

[8] STUK, Statement of the Radiation and Nuclear Safety Authority on the Construction of the Olkiluoto Encapsulation Plant and Disposal Facility for Spent Nuclear Fuel, 2013.

3분과

제염해체 및 방사성폐기물 처리(Oral-1)

KOREAN RADIOACTIVE WASTE SOCIETY

원전 중대사고 발생 폐액 내 방사성 I의 제거를 위한 Ag함침 흡착제의 특성연구

이근영*, 이일희, 김광욱, 정동용, 문제권
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*lky@kaeri.re.kr

1. 서론

종래의 방사성 액체폐기물의 처리공정은 액체를 고체화 시키는 목적으로 증발농축(evaporative concentration) 기술이 주로 사용되었고, 방사성 핵종의 제거는 주로 이온교환 수지를 이용한 이온교환 탑(ion-exchange column)을 통해 이루어졌는데, 이러한 정상처리 공정은 원자력시설 운전 중 발생하는 폐기물을 대상으로 매우 효과적으로 적용되어 왔으나, 중대사고 시 발생하게 되는 대용량의 고방사성 폐액을 처리함에 있어서는 많은 한계점이 있을 것으로 예상되고 있다. 후쿠시마 원전사고에서 역시 발생 냉각수 처리를 위한 초기대응에 있어서 많은 기술적인 문제점들이 보고되고 있다.

각종 원자력 시설의 지속적이고 안정적인 운전을 위해서는 중대사고시 또는 운영중 비정상적으로 발생 가능한 각종 방사성폐액을 신속하게 처리하여 발생량을 최소화하고 환경으로의 방사성 누출을 최소화하는 기술의 개발이 매우 중요하다.

본 연구에서는 중대사고 시 발생할 수 있는 고방사성 및 고염 조건의 폐액을 사고 초기에 매우 신속하게 처리하기 위하여 방사성 I을 고효율의 흡착-침전법(adsorption-precipitation) 기반 처리기술로 처리하는 것을 목표로 하였고, 기존의 제올라이트의 I 제거능을 향상시키기 위하여 Ag를 도입한 기능성 제올라이트를 합성하고 I 제거 특성 평가 연구를 수행하였다.

2. 본론

2.1 실험

본 실험을 위하여 동해안의 해수시료를 직접 채취하였고 여기에 I을 10 μg/l 농도로 녹이고 ^{131}I을 추적자(tracer)로 첨가하여 I으로 오염된 모의 해수 폐액를 제조하였다. 초기 시료 분석 결과 해수 내 Na과 Cl 농도는 각각 10,675 mg/l, 19,700 mg/l 인 것으로 나타났다.

합성에 사용한 물질들은 13X zeolite (Sigma-Aldrich), 활성알루미나 (Sigma-Aldrich)이고, $AgNO_3$를 이용하여 0.01~1M Ag 용액을 제조하여 사용하였다. Ag 농도 및 온도조건을 달리한 합성실험을 통해 제조된 물질의 I 제거효율(removal efficiency, %)을 비교하여 I 제거에 우수한 Ag 함침 흡착제를 합성하였고, 이를 주사전자현미경(SEM)을 이용하여 입자형태 및 크기를 확인하였고, 에너지분광분석(EDS) 및 X선 형광분석(XRF)를 통한 구성성분 분석 및 X선 회절분석(XRD)을 통한 광물상 분석을 수행하였다.

Ag 함침 흡착제들을 I 모의 해수 폐액에 일정 비율(m/V=1~10)로 투입하여 2 시간 동안 교반시키는 회분식 실험을 수행하였고, 용액 시료 내 I 농도 분석을 통하여 제거효율(removal efficiency, %)를 비교 평가하였다. 이때 용액상의 ^{131}I 농도는 MCA(Multi-channel analyzer)를 이용하여 정량하였다.

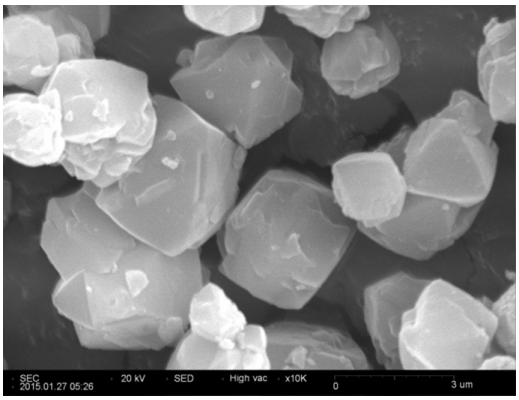


Fig. 1. SEM image of synthesized AgX zeolite.

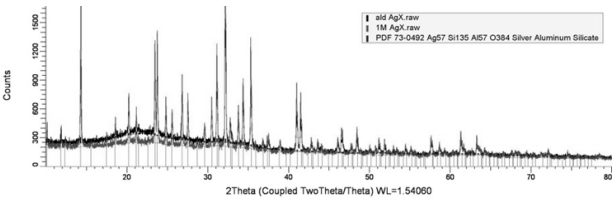


Fig. 2. XRD results of synthesized and commercial AgX zeolites.

2.2 결과 및 토의

합성한 AgX의 SEM image를 통해 13X zeolite에 Ag를 함침시킨 이후에도 입자의 모양이 그대로 유지되고 또한 입자크기 역시 2~3 ㎛ 수준으로 유지되는 것을 확인하였고 (Fig. 1), EDS 및 XRF 분석 결과 13X zeolite 내 Si, Al, Na 성분과 Ag가 함께 존재함을 확인하였다. 합성 시 사용한 Ag 용액의 농도에 따라서 최종적으로 함침된 AgX 내 Ag의 함량은 약 6~51%로 다양하게 나타났고, 이를 AgX1~AgX5로 명명하였다.

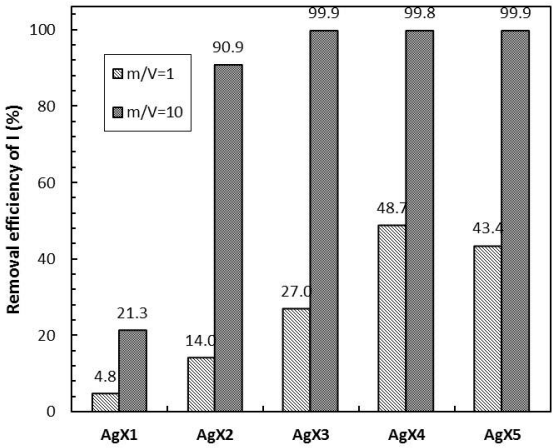


Fig. 3. I removal efficiency(%) of AgX with different synthesis conditions in 10 ppb I ($+^{131}$I tracer) initial concentration of solution (m/V=1 or 10, shaking for 2hrs, RT)

Fig. 3에서 보는바와 같이 AgX의 Ag함침량이 증가함에 따라 I의 제거효율은 증가하는 것을 알 수 있었고, 또한 AgX 흡착제와 모의폐액의 비(m/V)를 증가시킴에 따라 I의 제거효율은 현저히 증가하였다. Ag의 함침량이 약 19% 이상인 것으로 나타난 AgX3~AgX5에서 I의 제거효율이 99.9% 수준에 도달하는 것으로 보이고, 합성한 Ag함침 흡착제가 고염의 해수폐액 내에서도 우수한 I 제거능을 보이는 것을 확인하였다.

Ag의 함침량이 가장 많고 가장 높은 I 제거효율을 보인 AgX5와 기존의 연구들에서 많이 사용되었던 염기성 활성알루미나(BAA)에 같은 방식으로 Ag를 함침시킨 AgBAA를 대상으로 좀더 다양하게 흡착제와 모의폐액의 비(m/V)를 달리한 조건에서 비교하였을 때, AgX5의 I 제거효율이 현저히 높은 것을 확인하였다 (Fig. 4). 이러한 결과를 통해 해수폐액 내 존재하는 극미량의 I을 제염계수(decontamination factor, DF) 10^3 이상으로 제거하기 위해서는 Ag함침 흡착제 내 Ag의 함침량을 크게 증가시켜 주어야 함을 알 수 있었고, Ag 함침이 매우 용이한 13X zeolite를 이용하는 것이 사고초기 비상대응 공정에 적용가능한 고효율의 I 흡착제에 적합한 것으로 사료된다.

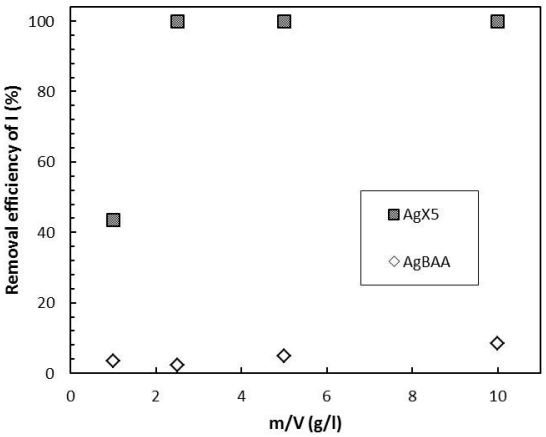


Fig. 4. I removal efficiency(%) of AgX and AgBAA with different m/V in 10 ppb I ($+^{131}$I tracer) initial concentration of solution (shaking for 2hrs, RT).

3. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력연구개발 중장기 계획사업 일환으로 수행된 연구결과입니다.

4. 참고문헌

[1] Journal of Physical Chemistry B, Vol.108, pp. 3168-3173, 2004.
[2] Analytica Chimica Acta, Vol.470, pp. 263-276, 2002.
[3] Journal of Colloid and Interface Science, Vol.332, 309-315, 2009.
[4] Journal of Physical Chemistry, Vol.82, pp. 2351-2352, 1978.

화학제염제를 함유한 나노복합유체의 이미지 분석을 통한 거품구조 및 안정성 평가

윤인호*, 정종헌, 김초롱, 양한범, 문제권, 최왕규
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*ihyoon@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력 시설의 해체시 작업자의 작업 수행을 위해 대형기기와 대면적 표면에서 발생되는 방사능을 줄이기 위한 제염 작업이 필요하다. 이러한 대형기기와 대면적 표면의 방사성 핵종을 제염하기 위해 화학제염제를 사용하고 있다. 하지만 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 있는데, 이러한 낮은 제염 계수를 높이기 위해서 오염된 표면에 복합유체 제염제의 접촉 시간을 증가시켜야 한다[2]. 이를 위해 계면활성제와 점도제인 고분자 물질 또는 무기 물질 등을 첨가하여 복합유체 제염제의 안정성 및 제염성능을 증가시킬 수 있다[3-5].

미국, 영국 프랑스 등 해외 주요 원자력 선진국에서는 대형기기 및 사용후 핵연료 저장 풀 등 대면적 오염 표면제염 시 제염의 용이성 및 이차폐기물 발생량 저감화 측면에서 거품 (Foam) 제염 중요성을 인식하고, 연구개발 및 상용화를 추진한 결과 실용화 단계에 올라와 있지만, 국내의 경우 관련 연구가 전무하고, 기반이 매우 취약한 상태에 있다.

이러한 현 상황을 고려하여 거품의 안정성 증진을 통한 제염효율 증대와 이차폐기물의 양을 더욱 저감하고 이차폐기물 처리의 용이성을 증진시키기 위해 나노 크기의 고체입자 및 유체 등을 용매에 균일하게 분산시켜 제염제와 혼합한 나노복합유체 제염제 개발을 추진하고 있다. 본 연구에서는 고농도 화학제염제 및 실리카 나노입자를 함유한 나노복합유체의 이미지 분석에 따른 거품 구조 및 안정성 실험을 수행하였고, 또한 부식산 화시편을 이용한 제염 실험을 수행하였다.

2. 본론

본 실험에서는 거품제염제의 제조를 위한 계면활성제로 비이온 계면활성제인 Elotant™ Milcoside 100 (EM 100, LG Household & Health Care)을 사용하였고, 무기물질인 나노입자는 건식 실리카 (Fumed silica, M-5, Cabosil)을 사용하였다. 거품 제염제의 구조 및 안정성을 평가하기 위해 Dynamic Foam Analyzer (DFA-100, KRUSS, Germany)을 사용하여 이미지 분석을 통하여 거품 제염제 구조와 안정성 측정을 수행하였다. 생성된 나노복합유체 제염제의 거품의 크기와 수를 측정하여 구조 평가를 하였고, 안정성은 거품 제염제의 변화량을 통해 평가하였다. 유리 컬럼에 고농도인 1M HNO_3를 함유한 제염제와 1% v/v 계면활성제, 다양한 농도 (0-5wt%)의 실리카 나노입자를 포함한 나노복합유체 제염제 용액을 채운 후 질소가스를 주입하여 거품을 발생시켜 실시간으로 측정하였다.

나노복합유체 제염제의 제염효과를 확인하기 위하여 40×40×2 mm 탄소강 시표 쿠폰의 표면을 연마기로 polishing 하였고, 500℃에서 5시간동안 열처리하여, 부식산화막을 형성시켰다. 다양한 실리카 나노입자의 농도 (0~5wt%)에 따라 제조된 1M HNO_3의 나노복합유체 제염제 (50 mL) 각각을 별개의 250 mL의 시험 용기에 넣고, 흔들어서 거품을 생성시키고 부식산화시편이 나노복합유체 제염제에 충분히 접촉할 수 있도록 용기의 가운데에 위치시키고, 1시간 후 무게 손실량을 측정하여, 제염성능 평가를 수행하였고, 제염 실험은 같은 용액으로 2번 수행하였다.

나노복합유체 제염제의 구조는 생성된 거품의 개수 및 크기 변화량을 통하여 평가하였다. 실리카 나노입자를 함유하지 않는 나노복합유체 제염제는 60분 후에 모든 거품이 사라지는 것으로 나타났지만, 3wt% 이상 실리카 나노입자를 함유한 나노복합유체는 거품이 60분 동안 유지 되는 것

으로 나타났다. 그리고 실리카 나노입자의 농도가 3wt%까지 증가할수록 거품의 개수는 증가하는 것으로 나타났다. 반면에 실리카 나노입자의 농도가 3wt%까지 증가할수록 거품의 크기는 작아지는 것으로 나타났다. 이는 거품의 안정성이 증가할수록 거품의 개수는 증가하고, 크기는 감소하는 것으로 나타났다.

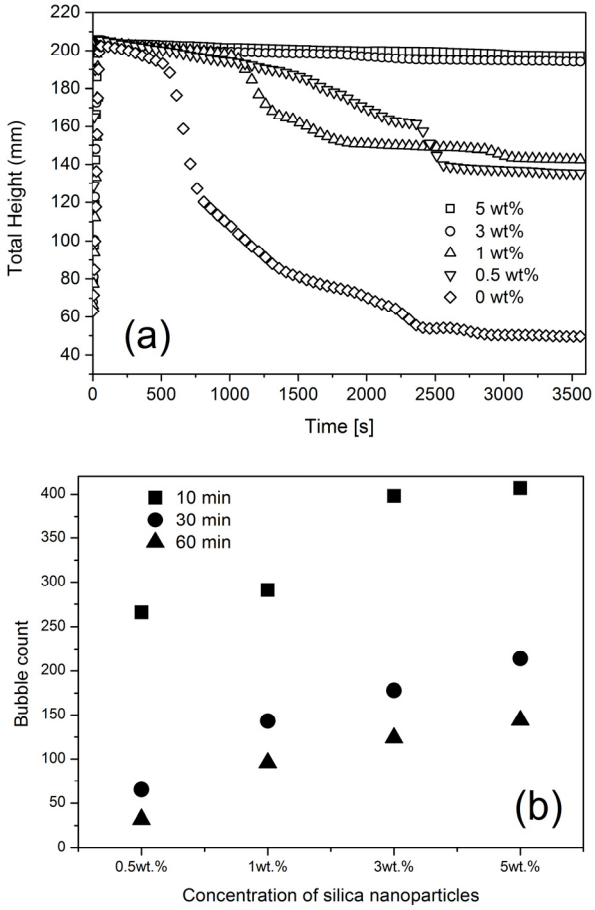


Fig. 1. (a) Time dependence of the total height, and (b) foam structure measurements for bubble count in 0-5wt% M5 at 1M HNO_3 for 1 h.

실리카 나노입자의 농도가 3wt%까지 증가할수록 거품의 안정성이 증가하는 것으로 나타났는데, 이는 실리카 나노입자가 거품의 액막에 존재하면서 거품의 파괴를 막아주는 것으로 사료된다. 안정성 기작을 해석하기 위해 거품이 생성된 1시간 후에 바닥으로 배수되어 있는 액체를 주사기로 제거하고 남아 있는 거품을 모두 회수하였다. 그리고 DI water로 2-3번 세척하고 원심분리하여 상등액을 버린후 건조하여 실리카의 무게를 측정한 결과, 실리카 농도가 3wt%까지 증가할수록 거품내 실리카 양도 증가하는 것으로 나타났다. 이는 거품의 안정성 증가는 거품의 액막에 실리카 나노입자가 존재하기 때문인 것으로 사료된다. 부식산화막 실험에서도 실리카 나노입자가 3wt%까지 증가할수록, 무게 감소량이 높게 나타났다. 이는 거품 안정성이 증가할수록 거품에 존재하는 1M HNO3 제염제가 부식산화된 표면과 오래 접촉하면서 제염성능 또한 증가하는 것으로 사료된다.

3. 결론

본 연구에서는 고농도 화학제염제 및 실리카 나노입자를 함유한 나노복합유체 제염제의 거품 구조 및 안정성 분석과 제염성능을 평가하였다. 실리카 나노입자의 농도가 증가할수록 나노복합유체 제염제의 거품의 개수는 증가하고, 크기는 감소하는 것으로 나타났다. 이는 거품내 액막에서 존재하는 실리카 나노입자가 증가하면서, 거품의 파괴를 막아주어 안정성이 증가하는 것으로 사료된다. 또한 나노복합유체의 안정성이 높아질수록, 화학제염제와 오염된 표면의 접촉시간이 증가되어 부식 산화막 시편의 용해가 증가함을 확인하였다. 본 연구를 통해 실리카 나노입자를 함유한 제염제의 이미지 분석을 통해 안정성 기작을 이해하면서 제염 성능을 향상 시킬 수 있을 것으로 기대된다.

4. 감사의 글

이 논문은 2015년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구입니다.

5. 참고문헌

[1] C. Dame, et al., Colloids Surf., A, 263 210-218 (2005).
[2] L. Nunez, and M. Kaminski, US Patent 7,166,758 B2 (2007).
[3] B.P. Binks, Curr. Opin. Colloid Interface Sci. 721-41 (2002).
[4] S.B. Yoon, et al., Asian J. Chem., 26, 1401-1404 (2014).
[5] I.-H. Yoon, et al., Asian J. Chem., 26, 1405-1407 (2014).
[6] I.-H. Yoon, et al., Ann. Nucl. Energy 73, 168-174 (2014).

금속방사성폐기물 제염 기술 개발 현황

최영구*, 안승건, 김대환, 유석준, 강정기
㈜선광티앤에스, 서울특별시 관악구 관악로 120
*choiyk09@gmail.com

1. 서론

국내외 원자력관계시설에서 발생되는 금속방사성폐기물은 원전 운영에 따른 설비 개선, 계통 및 장비 성능개선 등의 단위작업, 노후 시설물 교체의 유지·보수 과정에서 꾸준하게 발생하고 있으며 지속적으로 축적되고 있다. 금속방사성폐기물의 재활용 및 자체처분을 위해서는 금속방사성폐기물로부터 방사성오염원을 제거하기 위한 기술개발이 필요하다. 지금까지 금속방사성폐기물 제염을 위한 다양한 방법의 습식 및 건식 제염 기술들이 개발되어졌다. 습식제염 기술은 제염액에 금속폐기물을 침수시켜 제염하는 것으로 곡관이나 밸브 등의 복잡한 형상물의 방사성 금속폐기물에 대하여 효과적이나, 제염액 일부는 스테인리스강에 대하여 용해속도가 느리기 때문에 금속방사성폐기물의 방사능을 자연계수율(BKG) 수준까지 제염하는데 많은 시간이 소요되며, 고농도 폐액 등의 2차폐기물이 다량 발생하기 때문에 이에 대한 처리 대책이 필요하다. 건식제염 기술은 오염준위가 낮고 표면 부착성이 약한 경우에 간편하게 적용될 수 있다. 그러나 많은 노동력이 소요되고 특히 제염작업 중 작업자의 피폭 위험이 높으며 다량의 폐기물 처리에 부적합하고 고착성 오염의 제거가 어려운 단점이 있다.

본 논문은 ㈜선광티앤에스에서 개발한 분사연마 제염기술, 초고압 워터젯 제염기술, 마이크로파 플라즈마 제염기술을 활용하여 원전에서 발생한 금속방사성폐기물 제염 결과를 비교 분석하고자 한다.

2. 본론

2.1 분사연마 제염 기술

2008년부터 2011년까지 지식경제부 지식경제기술혁신사업의 "S/G 등 원전 발생 대형 금속성폐기물의 감용 및 자체처분 기술 개발" 과제를 수행하면서 인코넬튜브 다발의 내부표면의 방사성 핵종을 제거하기 위해서 개발하였다. 분사연마실험을 통해 노즐로부터 거리, 분사시간, 연마제 종류 등 각 파라미터가 인코넬 튜브 내부에 오염된 오염물질제거에 미치는 영향을 분석하였다. 10 m 배관에서 맨 끝부분에서 제염효과가 가장 좋았던 것에 비해 이번 20 m 배관에서는 연마제를 양쪽에서 분사하여 어느 정도 일정한 값을 얻었으나, 여전히 배관 가운데 곡선부분에서의 제염효율은 다소 떨어졌다. 20 m U형 곡선 반경 75 cm 시에 90 cm 시 보다 배관 중간 부근과 끝 부근에서의 제염효율 차이는 크지만 제염효율이 증가하였다. 분사압력은 9 bar, 연마제는 탄화규소(SiC)를 사용하여 제염효율을 크게 높일 수 있었다. 제염시간에 따른 거리별 세관시편 무게손실률은 방사능 세관과 비방사능 세관의 결과가 비슷하였으며, 중간 곡선부분으로 갈수록 제염효율이 감소하였다. 분사시간별 인코넬세관 내의 잔류 방사능농도는 6 분 동안 분사 후 50 Bq/g 미만이었고, 9 분 동안 분사 후 10 Bq/g 미만이었고, 12 분 경과 후 4 Bq/g 미만이었다.

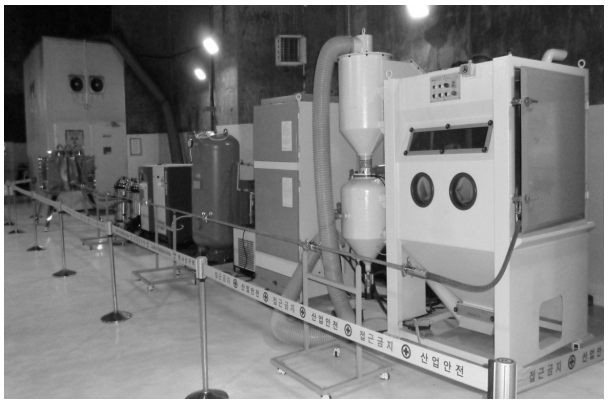


Fig. 1. The Shot Blasting Decontamination System.

2.2 초고압 워터젯 제염 기술

2012년부터 2014년까지 중소기업청 민관공동투자기술개발사업의 "초고압 Water Jet을 이용한 방사성 금속폐기물 제염시스템 개발" 과제를 수행하면서 원전에서 발생한 방사성 금속폐기물의 표면 오염물질(방사성핵종)을 처분 제한치 미만으로 제거하여 자체처분하기 위한 기술로 개발하였다. 최대

분사압력 40,000 psi로 대상물과의 거리를 10 cm 이내로 유지할 경우, 직경 5 cm 원에 대하여 최대 3,000 cm/분 이동속도로 제염이 가능하다. 또한 H-빔, 원형파이프, 사각파이프 및 평판에 대하여 패턴인식방법으로 자동운전이 가능하며 작업자가 직접 분사 건으로 제염대상물을 제염하는 수동운전방식도 병행할 수 있다.

개발된 장비의 경우 별도의 연마재, 첨가제 없이 물만을 사용하기 때문에 분당 20리터에 가까운 세척수를 소모한다는 점이 단점으로 작용할 수 있지만 월성1발전소, 고리1발전소, 한울1발전소와 같이 액체폐기물처리계통으로 폐액증발기를 사용하는 원자력발전소에 적용되었을 경우, 다량의 폐액을를 비교적 단기간에 처리할 수 있기 때문에 폐액처리에 대한 큰 부담 없이 본 제염장비를 사용할 수 있을 것이며 MF, RO가 도입된 원전에 대해서도 폐수내 방사능농도 및 이물질의 양이 적기 때문에 처리계통에 큰 부하가 없을 것이라 판단된다.

월성1발전소에서 금속방사성폐기물 19종에 대하여 실증시험을 수행하였다. 표면오염도 및 방사능농도, 제염계수에서 목표에 부합되는 결과 값을 얻을 수 있었으며 방사성금속폐기물을 자체처분 수준까지 제염할 수 있음을 확인하였다.

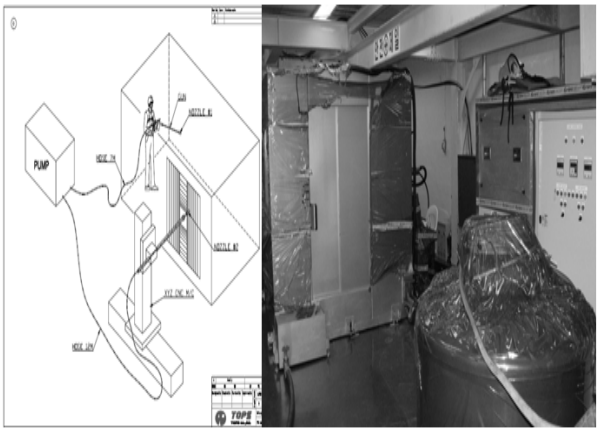


Fig. 2. The Ultra High Pressure Water Jet Decontamination System.

2.3 마이크로파 플라즈마 제염 기술

2013년부터 2015년까지 산업통상자원부 산업기술혁신사업의 "금속방사성폐기물 일괄제염 처리에 관한 기술개발" 과제를 수행하면서 원전에서 발생한 소형 금속방사성폐기물의 표면오염물질(방사성핵종)을 자체처분 제한치 미만으로 제거하여 자체처분하기 위한 기술로 개발하였다. Fig. 3은 마이크로파 플라즈마를 이용한 금속방사성폐기물 일괄제염 처리 장치이다. 그림에서 보여 주는 것처럼 장치는 마이크로웨이브 플라즈마 토치와 실제 제염이 수행되는 반응로 그리고 제염 후 발생하는 배기가스를 처리하기 위한 배기체 처리 시스템으로 구성되어있다. 마이크로파 발생장치로부터 생성된 915MHz 마이크로파는 반응로 입구에서 Air 및 NF3 기체를 고온 플라즈마로 만들고 플라즈마 내에 존재하는 F 라디칼들이 방사성핵종들과 반응하여 금속방사성폐기물들을 제염하였다. 원자력발전소에서 총 11개의 시료를 대상으로 실증실험을 수행하였다. 11개 실험 대상 시료 중 9개 시료가 자체처분 제한치 미만으로 제염되었음을 확인하였다.

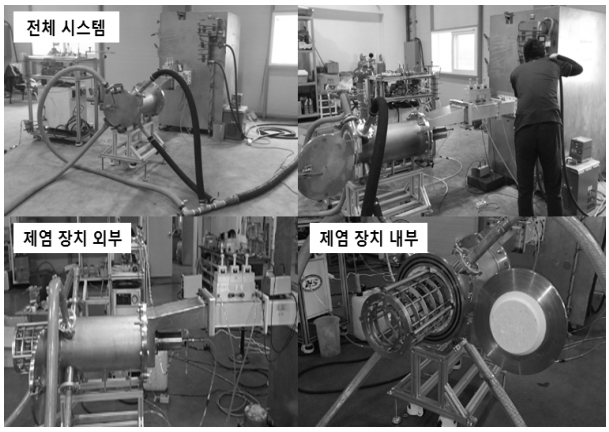


Fig. 3. The Decontamination Equipment by Microwave Plasma.

3. 결론

금속방사성폐기물 제염을 위해서 개발한 분사연마 제염기술, 초고압 워터젯 제염기술, 마이크로파 플라즈마 제염기술들의 특징을 비교 분석하였으며, 원전 운영 및 해체 시 적용 가능성을 검토하였다.

4. 참고문헌

[1] "S/G 등 원전 발생 대형 금속성 폐기물의 감용 및 자체처분 기술개발" 최종 보고서.
[2] "초고압 water jet을 이용한 방사성 금속폐기물 제염시스템 개발" 최종 보고서.
[3] "금속 방사성 폐기물 일괄 제염처리 기술개발" 최종 보고서.

Decommissioning Waste Classification of Bioshield Concrete for Wolsong Unit 1

Young-kyu Jung* and Chang Lak Kim
KEPCO International Nuclear Graduate School, 658-91, Haemaji-ro, Seosaeng-myeon, Ulju-gun, Ulsan, 689-882
*youngkyu8@naver.com

1. INTRODUCTION

At present, there are four CANDU reactors in Korea. Among them is the Wolsong Unit 1, 630 MWe PHWR. This Unit started commercial operation in 1983. The plant is owned and operated by KHNP (Korea Hydro and Nuclear Power). It has operated for 30 years and reached design life time. However, it was permitted for additional 10 years operation until 2022.

When it comes to decommissioning waste classification of bioshield concrete of Wolsong Unit 1, the most important radionuclide inventory has been calculated using MCNP and FISPACT-2007 [1]. In the following, bioshield concrete of Wolsong Unit 1 is depicted. Then the volume of bioshield concrete is calculated.

In this study, decommissioning wastes of bioshield concrete is assessed with a view to review waste acceptance criteria according to NSSC Notice 2014-54[2].

2. MAIN SUBJECT

2.1 ESTIMATED VOLUME

The volume of bioshield concrete is assessed to obtain estimated amount decommissioning waste originated from bioshield concrete. The calandria vault consists of bioshield concrete, calandria vessel and contains light water, which surrounds the calandria vessel. This water provides shielding and cooling for all attachments to calandria.

The calandria vault, shown in Fig. 1, is of rectangular shape with internal dimensions of 655 cm wide 1,183 cm long and 1,640 cm high. The entire structure is of heavy concrete (side walls 122 cm thick, top wall 71 cm thick, bottom wall 122 cm thick)[3] with high density of 3.35 g/cm^3[4]. The total volume is approximately 836 m^3.

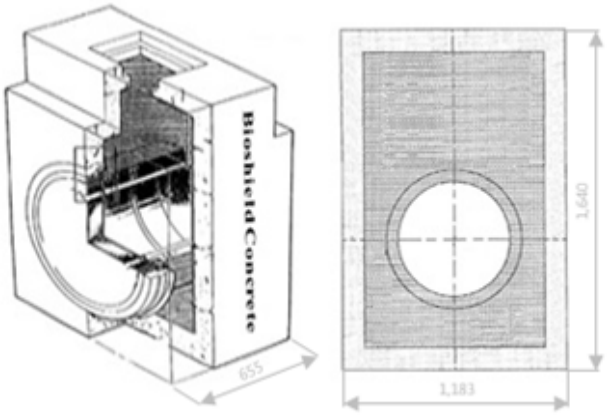


Fig. 1. Calandria vault.

2.2 RESULTS OF CALCULATION

Fig. 2 and Fig. 3 show the simplified single channel model and the total flux in concrete, respectively. According to these figures, the total neutron flux value could be credible within 20 cm in bioshield concrete. Fig. 4 shows the source terms and activities in concrete cell 5. The type of concrete used is barite concrete with high density of 3.35 g/cm^3. The most important radionuclides are Ba-133 and Fe-55. According to classification of radioactive waste(NSSC 2014-03[5]), the assumed radioactive waste could VLLW.

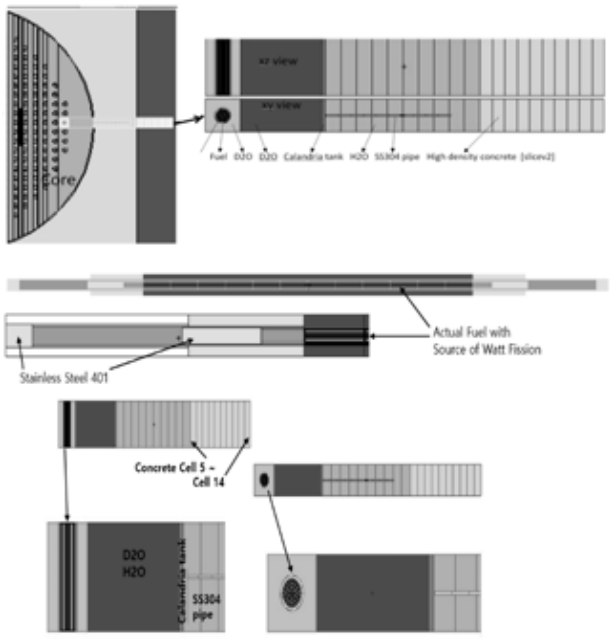


Fig. 2. Simplified single channel model.

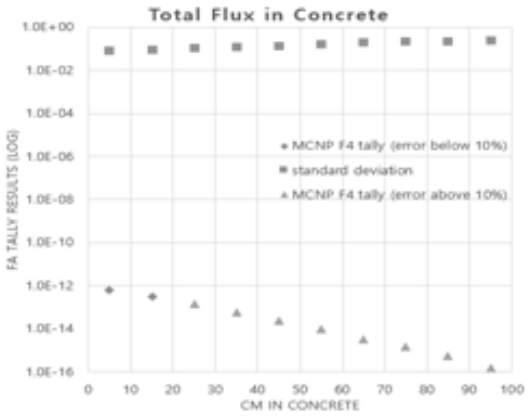


Fig. 3. Total neutron flux in concrete.

Nuclide	Activity (Bq)
Ba-133	6.43E+00
Fe-55	4.67E+00
Ca-41	1.99E-02
C-14	1.40E-03
K-40	1.16E-07
Ca-48	5.85E-09
Total	1.11E+01

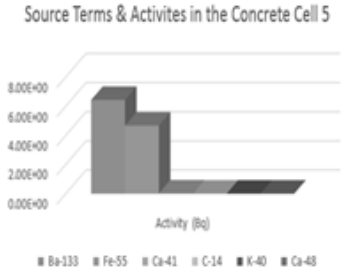


Fig. 4. The source terms and activities in the concrete.

3. CONCLUSIONS

The decommissioning wastes in bioshield concrete is classified preliminarily through simplified single channel model, as well as estimated waste volume of bioshield concrete based on data from the reference. The total decommissioning waste of bioshield concrete is approximately 836 m^3. Ba-133 and Fe-55 are the most important radionuclides. The decommissioning waste from bioshield concrete is VLLW.

The current estimates could provide a preliminary basis for decommissioning planning. The assessments presented here may be updated in the future base on full core modeling analysis through MCNP[6] and FISPACT-2007[7].

4. ACKNOWLEDGMENTS

This work is funded by KETEP as a part of the project "Assessment of the Radiological Inventory for Decommissioning of Nuclear Power Plants".

5. REFERENCES

[1] S. H. Shin, C. J. Hah and C. L. Kim, “Neutron and Gamma-ray Deep Penetration Calculation through Concrete Shield for Wolsong Unit 1 of CANDU Reactor,” Proceeding of ICAPP (2015).

[2] NSSC Notice 2014-54, Waste Acceptance of Low- and Intermediate-level waste, Nuclear Safety and Security Commission (2014).

[3] Final Safety Analysis Report of Wolsong Unit 1, Chapter 12.4.

[4] “Pacific Northwest National Laboratory, Compendium of Material Composition Data for Radiation Transport Modeling” (2006).

[5] NSSC Notice 2014-03, Regulation for Classification of Radioactive Waste and Criteria of Clearance (2014).

[6] MCNPX User’s Manual, Version 2.7.0, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico (2011).

[7] Culham Science Centre, “FISPACT-2007: User manual”, UKAEA FUS 534, EURATOM/ UKAEA Fusion Association (2007).

환원 제염에서의 crevice 부식에 미치는 pH의 영향

정준영[1,2,*], 박상윤[1], 원휘준[1], 최왕규[1], 문제권[1], 박소진[2]
[1]한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
[2]충남대학교, 305-764 대전광역시 유성구 대학로 99
[*]jjy87@kaeri.re.kr

1. 서론

PWR 일차계통에 대한 제염을 할 때 화학 제염제를 이용하여 내부에 형성된 산화막을 용해하는 방법이 수행된다. 이때 화학제염제에 의해 산화막뿐 아니라 내부의 모재가 손상이 될 가능성이 있다.[1] 가동 중 제염을 할 경우에는 이러한 모재의 손상이 원전 수명에 영향을 끼치기 때문에 이러한 재료부식을 최소화하고 제염효율을 높이기 위해서는 제염제의 적용 대상이 되는 재료의 부식 특성을 확인하고 그 결과를 통해 제염 조건을 개선하는 것이 필요하다.

본 연구에서는 현재 주로 사용되고 있는 Oxalic acid를 사용한 제염제와 기존 제염제의 부식 문제점을 개선하기 위해 개발된 제염제인 HYBRID[2]를 PWR의 재료로 사용되는 Inconel-600과 304 Stainless steel에 pH를 다르게 하여 적용하였을 때 나타나는 영향을 확인하고자 하였다. 가혹한 부식조건인 crevice에서의 부식실험을 수행하였고 그 결과를 화학 열역학적인 방법으로 분석하여 부식거동을 확인하였다.

2. 실험방법

실험에 사용된 시편은 600℃에서 열처리를 진행하여 시편의 부식이 가속화 될 수 있도록 하였다. 시편은 20×20×2 mm의 크기로 가공하고 모든 면을 #1200의 사포로 polishing한 것을 사용하였다. 지름 3 mm 구멍 두 개를 뚫은 두 개의 시편을 겹쳐지게 놓고 한쪽 끝에 얇은 1 mm 두께의 테프론 시트를 댄 후 나사로 조여서

Table 1. Chemical condition for corrosion test

Decontamination Agent	Typical Formulations	pH	T,°C	Time,h
HYBRID	0.07M N_2H_4+0.5mMCu^{2+} (pH=3.0)	1.76~3	95	20
Oxalic acid 용액	15.84mM Oxalic acid*(pH=1.76)	1.76~3	95	20

두 시편이 비스듬하게 틈을 두고 겹쳐진 형태가 되도록 제작한 Inconel-600과 304 stainless steel 재질의 crevice 시편을 실험에 사용하였다. 실험의 대상이 되는 환원제염제와 실험조건은 Table 1에 나타내었다. 시편을 넣기 전에 약 30 분간 N_2 purge를 해서 용액 내부의 산소 농도를 떨어뜨린 후에 실험을 진행하였다.

3. 실험결과 및 토의

Fig. 1은 가장 낮은 pH조건인 pH 1.76에서의 각 제염제에 부식된 후의 crevice 시편의 표면을 SEM으로 관찰한 것이다. Oxalic acid 용액에서 실험한 시편의 경우에 Inconel-600에서 pitting과 IGA가 발견되었고 표면 대부분이 산화물이 쌓여 있는 것이 확인되었다. 304 Stainless steel에서는 Inconel-600과 달리 표면에 쌓인 산화물은 보이지 않고 초기 표면의 모습이 보이지 않을 정도로 심한 부식이 발생된 것이 나타났으며 IGA와 pitting이 뚜렷하게 나타났다. HYBRID에서 실험한 시편은 Inconel-600과 304 Stainless steel 모두 낮은 pH임에도 불구하고 부식 없이 깨끗한 표면을 나타내었다.

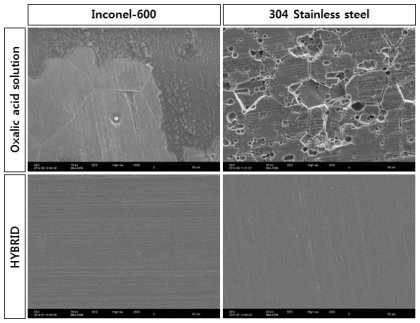


Fig. 1. Optical Photographs of Inconel-600 and 304 Stainless steel after corrosion test under HYBRID and Oxalic acid solution of pH 1.76 condition.

Fig. 2는 부식 전과 후의 시편의 무게를 측정하고 이를 통해서 pH의 변화에 대한 부식율(mil/h)로 정리한 결과이다. Oxalic acid 용액의 경우에 Inconel-600에 적용하였을 때에는 pH의 변화에 관계없이 비슷한 부식율을 나타내었다. 304

Stainless steel에 적용하였을 경우에는 pH = 1.76에서 매우 높은 부식율을 보였으며 pH = 2부터 부식율이 급격히 낮아지고 pH가 높아질수록 부식율이 감소하는 경향을 나타내었다. HYBRID에서 실험하였을 경우에는 OM의 결과와 마찬가지로 부식의 대상과 pH에 상관없이 매우 낮은 부식율을 나타내었다.

Oxalic acid 용액에 의한 Inconel-600과 304 Stainless steel의 부식이 차이가 표면에 형성된 산화물에 의한 것으로 추측을 하고 화학열역학적 분석을 통해서 알아보고자 하였다. Fe와 Ni의 해리상수와 HySS2009[3]를 이용하여 pH가 표면에 형성될 것으로 추측되는 Ni oxalate와 Fe oxalate의 형성에 끼치는 영향을 확인하였으며 Fig. 3에 나타내었다. Inconel-600의 주성분인 Ni의 경우 낮은 농도에서도 대부분의 pH영역에서 oxalate를 형성하였으나 304 Stainless steel의 주성분인 Fe의 경우에는 pH 2이상에서만 oxalate가 형성될 뿐 아니라 0.0002 M 이하의 농도에서는 전 pH 영역에서 oxalate가 형성되지 않는 것으로 나타났다. 이러한 차이가 Oxalic acid에 의한 Inconel-600과 304 Stainless Steel의 부식이 다르게 나타나는 요인으로 판단된다.

4. 결론

Oxalic acid 제염제와 HYBRID 제염제에 대한 원전 재료의 부식특성을 확인한 결과 HYBRID에서 pH에 대한 영향 없이 모든 실험영역에서 부식이 거의 발생되지 않아 HYBRID의 재료부식에 대한 우수성을 확인할 수 있었다. 반면에 Oxalic acid의 경우에는 원전 재료에 따라 각 pH에 대한 부식율의 영향이 다르게 나타났다. 이를 화학 열역학적인 분석을 통해 알아본 결과, Inconel-600은 잘 용해되지 않는 Ni oxalate가 표면에 형성되어 무게감소가 적게 나타나는 것으로 보인다. 제염제가 표면의 부식산화막을 제거하는 것이 목적임을 볼 때 Inconel-600표면에 형성되는 oxalate는 제염을 방해하여 제염효율을 떨어뜨리는 요인으로 작용하게 될 것으로 추측된다. 304 Stainless steel에서는 pH에 의한 영향이 뚜렷하게 나타났으며 pH 2미만에서 부식율이 급격하게 증가하는 것이 확인되었다. Inconel-600과 달리 표면에서 oxalate가 형성되지 않기 때문에 pH 2 미만에서의 부식에 영향을 끼치지 않아서 더욱 극심한 부식이 나타난 것으로 보인다. 따라서 304 Stainless steel에 대한 제염 시에 재료부식을 방지하기 위해서는 pH 2 미만의 Oxalic acid 제염제의 사용을 지양해야 할 것으로 판단된다.

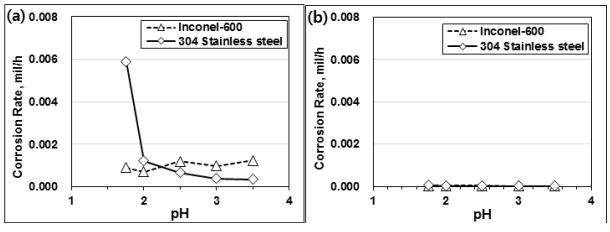


Fig. 2. Effect of pH on corrosion rate of Inconel-600 and 304 Stainless steel after corrosion test under Oxalic acid solution(a) and HYBRID(b) solution.

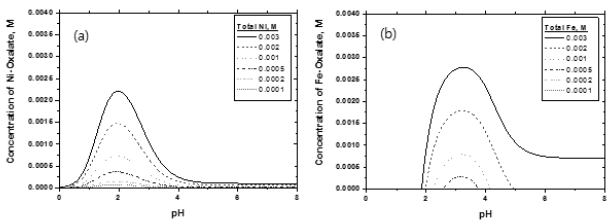


Fig. 3. Effect of total metal ion concentration on the Ni-oxalate(a) and Fe-Oxalate (b) distribution as a function of pH.

5. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

6. 참고문헌

[1] D Bradbury, "Review of Decontamination Technology Development 1977-2000", Water Chemistry of Nuclear Reactor Systems 8, BNES, 2000.

[2] H. J. Won, W. S. Lee, C. H Jung, S. Y. Park, W. K. Choi, J. K. Moon, "A Feasibility Study on the Decontamination of Type 304 Stainless Steel by N2H4 Base Solution", Asian Journal of Chemistry, Vol. 26, No. 5, 2014.

[3] Alderighi L, Gans P, Ienco A, Peters D, Sabatini A, Vacca A, "Hyperquad simulation and speciation (HySS): a utility program for the investigation of equilibria involving soluble and partially soluble species", Coordination Chemistry Reviews, 184, 311-318, 1999.

실감형 원격절단 시뮬레이터를 위한 준대형 가시화 시스템의 구축

이종환*, 현동준, 김익준, 김근호, 서재석, 정관성, 최병선, 문제권
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*jhl@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력시설의 해체는 매우 다양한 공정을 포함하고 있으며, 해체 계획의 수립에는 이러한 공정에 대한 종합적인 검토가 필수적이다[1]. 실감형 원격절단 시뮬레이터는 가상환경 하에서 원격절단 시뮬레이션을 할 수 있는 사용자 인터페이스를 제공함으로써, 사용자가 효과적으로 원자력시설의 절단해체 공정을 수립하고 점검할 수 있게끔 한다. 시뮬레이션의 가시화는 일반적인 모니터와 같은 통상적인 작업용 중소형 가시화 장비에서 이루어질 수 있으나, 이러한 소형 가시화 장비에서는 다수의 엔지니어가 협업하기에 매우 협소하다. 또한, 원전과 같이 대면적에 매우 많은 시설이 집중된 가상 모델을 일시에 효율적으로 관찰하기에는 해상도로 인한 제약이 존재한다. 본 논문은 이러한 제약을 극복하면서, 실감형 원격절단 시뮬레이터의 사용자 친화적 가시화 환경을 제공할 수 있는 준대형 가시화 시스템에 대한 설계와 구축에 대하여 소개한다.

2. 본론

2.1 가시화 시스템 구축을 위한 하드웨어 시스템 사양 설정

가시화 시스템은 이미지의 투사방법, 연결 형태, 그리고 그 기능 및 성능 등에 따라 매우 다양하다. 따라서 목적에 적합한 가시화 시스템을 구성하기 위해서는 사용자 혹은 적용 도구의 요구 사항을 면밀히 분석하여 결정한 후, 공간의 특징을 분석하고, 주요 장비를 특성을 선별하는 작업을 수행해야 한다.

2.1.1 가시화 시스템의 요구 사항 분석

실감형 원격절단 시뮬레이터에 적용할 가시화 시스템을 위하여 다음의 요구사항을 설정하였다.

- 작업 효율성 제고: 다수의 사용자가 시야에 불편함 없이 시뮬레이션 환경을 관찰 가능할 것.
- 사용자 몰입감 강화: 가시화되는 3차원 시뮬레이션 환경에 최대한 몰입할 수 있을 것.
- 대규모 가상환경의 가시성 제고: 가능한 한 많은 정보를 작업자에 제공 가능해야 할 것.

2.1.2 가시화 시스템의 적용 공간 분석

실감형 원격절단 시뮬레이터가 설치될 공간은 평면상 각 벽면의 너비의 비율이 약 2.1 : 1 인 직사각형 구조이다. 설치될 벽면의 길이에 따라 유지보수 공간, 작업자 협업 공간, 시뮬레이터 설치공간이 상대적으로 협소해지거나 확장된다.

2.1.3 가시화 시스템의 주요사양 검토

가시화 시스템은 시스템의 요구사항을 부합시키면서 정해진 설치 공간에 대한 제약을 고려해야 한다. 동일 크기의 화면을 기준으로 볼 때, 대규모 가상환경을 정밀하게 관찰하기 위해 우선적으로 고려해야 할 사양은 투영되는 영상의 해상도와 이를 뒷받침 할 수 있는 그래픽 처리 장치이다. 이를 위하여 현재 일반적으로 쓰이는 고해상도 규격인 1080p (화소수: 1,920 × 1,080)를 초과하는 이른바 UHD(Ultra High Definition) 혹은 4K 규격의 초고해상도(화소수: 최대 4,096 × 2,160) 영상을 출력하고 이를 원활히 뒷받침 할 수 있는 그래픽 처리 장치를 고려하였다[2]. 또한, 사용자 몰입성 강화를 위해서 3차원 입체가시화 기능을 고려하였다. 가시화 시스템의 영상출력 방식은 상기 사양을 만족하되 유지보수성과 작업공간을 동시에 효율적으로 확보할 수 있어야 한다. 이를 통하여 사용자는 해체 시뮬레이션에 사용되는 복잡한 디지털 모델을 선명하고 정밀하게 관찰할 수 있게 된다.

2.2 가시화 시스템 설계 및 구축 결과

2.2.1 가시화 시스템의 사양 설정 및 설계

가시화 시스템에서 최종적으로 선정한 사양은 설치 공간의 너비가 적은 벽면에서의 단일 투영 방식의 초고해상도 프로젝터를 사용하는 시스템이다. 아울러 미러 시스템을 사용한 후면 투사 방식을 채택하였다. 이는 스크린 전면에서 근접 작

업이 가능한 사용자 공간을 충분히 확보 할 수 있는 동시에 원활한 시스템 유지보수가 가능하며, 상대적으로 소수의 장비들로 이루어져 시스템 구축시의 경제성이 우수하기 때문이다. 이러한 사양을 고려하여 설계된 가시화 시스템은 Fig. 1에서 보는 바와 같다.

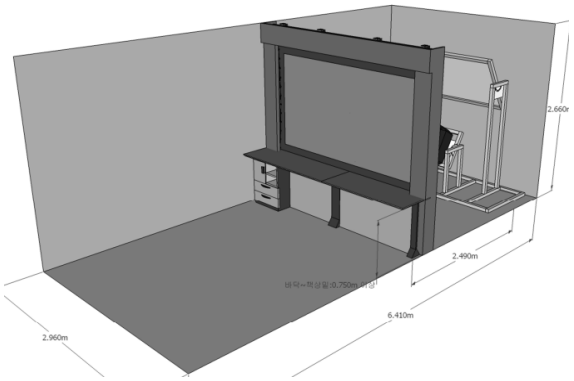


Fig. 1. Concept design of the semi-large visualization system.

설계된 가시화 시스템은 상대적으로 다소 작은 영상 투영 영역을 제공하지만, 적절한 사용자 공간을 제공할 수 있으며, 경제적으로 단일 디스플레이 방식의 초고해상도 영상을 출력할 수 있다. 또한, 미러 시스템을 적용한 후면 투사방식과 롤 방식의 전동식 스크린을 채용함으로써 스크린 후면에서의 유지보수성을 확보하는 동시에 전면 투사 방식에 비하여 작업자가 투사 영역에 근접하여 영상을 관찰하여도 스크린에 그림자가 생기지 않는 장점이 있다.



Fig. 2. Semi-large visualization system for the tangible remote-cutting system.

2.2.2 준대형 가시화 시스템 구축 결과

본 가시화 시스템을 이용하여 원격절단 시뮬레이션을 가시화한 결과, 초고해상도의 실시간 시뮬레이션 영상이 원활히 출력됨을 확인하였다. 초해상도 기반에서 모델링 및 시뮬레이션 도구가 활용 가능하므로, 기존의 데스크톱 환경에서의 작업과 비교하여, 매우 몰입감이 높은 환경에서 고정밀의 시뮬레이션 정보를 취득할 수 있는 동시에 다수의 작업자가 협업 가능하다. Fig. 2는 구축된 준대형 가시화 시스템의 전경이며, Fig. 3은 구축된 시스템을 활용하는 모습이다.

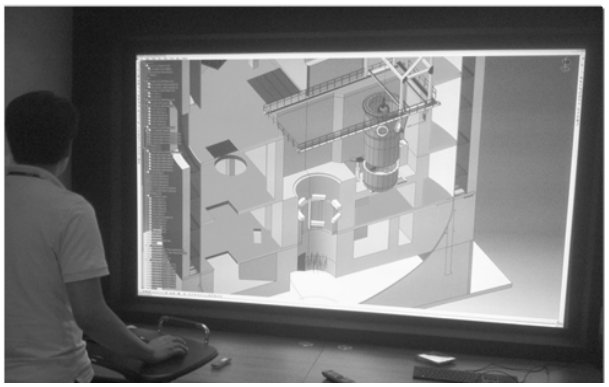


Fig. 3. Utilization of semi-large visualization system.

3. 결론

본 초고해상도 준대형 가시화 시스템은 가상환경의 단순 가시화 목적뿐만 아니라, 협업 환경에서 가상 모델과의 상호작용을 할 수 있는 환경이 될 수 있다. 본 시스템은 실감형 원격절단 시뮬레이터의 가시화뿐만 아니라, 해체 과정에서 필요한 각종 장비 및 시설의 설계와 사전 검증 등에 총괄인 활용이 기대된다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 재원으로 시행하는 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] 이종환, 김근호, 현동준, 서재석, 김익준, 정관성, 최병선, 문제권, "원전 핵심설비 해체 계획 수립을 위한 3 차원 CAD 모델 기반 공간선량률 가시화 기술 개발", 한국방사성폐기물학회 2014 춘계학술논문요약집, 12(1), 257-258 (2014).

[2] Mayer, T., "The 4k Format Implications for Visualization, VR, Command & Control and Special Venue Application", Proc. of the 2007 Workshop on Emerging Displays Technologies: Images and beyond: the Future of Displays and Interaction, 9, ACM, (Aug. 2007).

해체 안전성평가 방법론에 관한 IAEA의 접근법 분석

안상면*, 이정준, 육대식, 정찬우, 이병수
한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 과학로 62
*k270asm@kins.re.kr

1. 서론

원자력이용시설의 해체와 관련된 원자력안전법 일부개정법률이 공포('15.01.20)되고 개정법률의 시행을 위한 하위법령(시행령, 시행규칙 등) 개정 작업이 현재 진행되고 있다. 개정된 원자력안전법에 따르면, 시설을 해체하고자 할 때 운영자가 제출하던 해체계획서가 시설의 건설·운영허가 단계부터 인허가 서류의 하나로 제출이 요구되고 주기적 갱신이 되도록 요건화 되어 있다. 시행규칙(안)을 보면, 해체에 따른 방사선으로부터의 재해를 방지하기 조치를 해체계획서에 기술해야 한다. 본 연구에서는 해체계획서의 기술사항으로 고려중인 해체에 따른 방사선으로부터의 재해를 방지하기 위한 조치와 관련하여 해체 안전성평가 방법론에 대한 IAEA의 접근법을 분석하였다.

2. 본론

2.1 IAEA 안전요건

IAEA GSR Part 4(Safety Assessment for Facilities and Activities)의 요건 12(Assessment of safety over the lifetime of a facility or activity)에 따르면, 안전성평가는 발생 가능한 방사선 리스크가 내재된 시설 또는 행위의 모든 수명단계에서 수행되어야 한다. 평가는 오랜 기간동안 수행되는 행위도 포함해서 수행되어야 하는데, 예를 들면, 시설의 해체 및 철거, 방사성폐기물의 장기저장, 처분장의 폐쇄후 단계에서의 활동 등이 해당된다. 또한, IAEA GSR Part 6(Decommissioning of Facilities) 요건 3(Assessment of safety for decommissioning)에 따르면, 해체가 계획된 모든 시설 및 해체가 진행중인 모든 시설에 대해 안전을 평가해야 한다. 상기와 같은 국제기준에 따르면, 원자력이용시설 해체에 따른 안전성평가는 안전성확보를 위한 필수 요소로 이해되며 관련 행위의 인허가과정에서 그 적절성이 확인 및 평가되어야 한다.

2.2 IAEA 안전지침

IAEA는 해체 안전성평가 방법론 개발을 위한 국제공동과제 DeSa(Evaluation and Demonstration of Safety for Decommissioning of Facilities Using Radioactive Material, 2004~2007)를 수행하였고 그 결과로서 안전지침 'Safety Assessment for the Decommissioning of Facilities Using Radioactive Material (WS-G-5.2)을 2009년에 발간하였다. 동 보고서는 안전평가의 목적, 해체 안전성평가를 위한 고려사항, 안전성 평가 개발 등에 관한 지침을 제공하고 있다.

2.3 해체 안전성평가를 위한 고려사항

IAEA 안전지침에서는 해체 안전성평가를 위한 고려사항들을 제시하고 있다. 그 중 몇 가지를 살펴보면, 첫째 차등접근법(Graded Approach)이다. 안전성평가의 범위와 상세수준은 위해도의 형태와 잠재적 결말(consequences)과 상응해야 한다는 것이다. 차등접근법 적용시 고려사항은 안전성 평가의 목적, 범위, 시설의 규모와 유형(복잡성), 해체활동착수시 시설의 물리적 및 방사선학적 상태, 해체활동의 복잡성, 방사선학적 위험도, 시설의 방사능 재고량과 특성, 해체후 최종상태(end-state) 등이다. 차등접근법 외의 고려사항은 해체과정의 위해도(hazards), 심층방어(defence in depth), 안전기능(Safety Functions), 최적화(Optimization), 장기안전(Long Term Safety), 공학적 분석(Engineering Analysis), 물질관리(Material Management), 불확실성(Uncertainties), 관리시스템(Management System), 해체인력 및 훈련(Staffing and Training for Decommissioning) 이다.

2.4 안전성평가 프로세스

동 지침에서 안전성평가는 평가의 범위와 목적 등의 모든 전제조건들이 명확하게 정의된 체제(framework)를 기반으로 해야 함을 제시하고 있다. 안전성평가 프로세스를 구성하는 요소들은 1) 안전성평가 체제(Safety assessment framework), 시설 및 해체활동 개요(Description of facility and

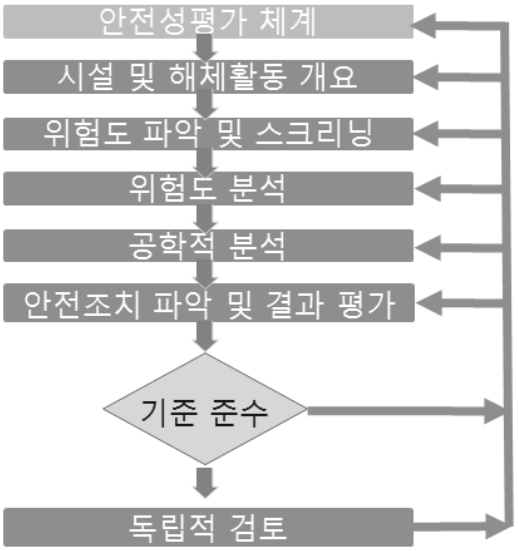


Fig. 1. Safety Assessment Process.

decommissioning activities), 위해도 확인 및 스크린(Hazard identification and screening), 위해도 분석(hazard analysis), 공학적 분석(Engineering analysis), 결과평가 및 안전조치 확인(Evaluation of results and identification of safety measures), 기준준수(Compliance with criteria), 독립적 검토(Independent review)이다. 프로세스의 각 요소들은 독립적으로 이행되며 다음 요소 이행을 위한 관련 정보로서 활용될 수 있다(Fig. 1).

3. 결론

IAEA가 제시하는 해체 안전성평가를 위한 방법론과 접근법을 분석 및 평가해서 개정된 원자력안전법 시행시 시설의 운영자가 제출하게 되는 원자력이용시설 해체계획서에서 안전성평가 관련 사항에 대한 검토 및 확인 등에 활용하기 위한 평가지침(안)을 개발하고자 한다.

4. 감사의 글

본 연구는 원자력안전위원회의 재원으로 한국방사선안전재단의 지원(과제번호: 1305004)을 받아 원자력안전연구개발사업의 연구결과입니다.

5. 참고문헌

[1] IAEA GSR Part 4 Safety Assessment for Facilities and Activities, 2009.
[2] IAEA GSR Part 6 Decommissioning of Facilities, 2014.
[3] IAEA WS-G-5.2 Safety Assessment for the Decommissioning of Facilities Using Radioactive Material, 2008.

부지의 잔류오염도 평가를 위한 현장 측정기술의 적용

홍상범*, 최용석, 남종수, 서범경, 문제권
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*sbhong@kaeri.re.kr

1. 서론

현장 측정 시스템은 현장에서 신속하게 부지에 잔류하는 오염도를 측정할 수 있기 때문에 조사 비용 및 조사기간을 상당히 절감할 수 있어 부지의 잔류오염도 조사에 매우 유용하게 활용되고 있다.

본 연구에서는 연구로 해체 부지를 대상으로 광역 부지측정시스템을 이용하여 동적조사를 위한 최적의 측정조건(높이 및 속도)을 도출하여 동적조사를 수행하였고, 부지의 깊이 오염분포를 현장측정기술을 이용하여 평가하기 위해 실험실 조건에서 측정된 스펙트럼의 신호특성과 깊이분포 및 방사능에 대한 상관관계를 도출하여 연구로 부지 잔류오염도 조사에 적용하였다.

2. 본론

2.1 광역 부지 이동식 현장 측정시스템 적용

현장 측정시스템은 광역 부지를 신속하게 조사할 수 있고, 측정결과를 현장에서 확인할 수 있어 부지 오염도 조사에 매우 유용하게 활용되고 있다[1]. 부지의 잔류오염도 조사를 위해서는 검출기 및 위치에 대한 정보를 바탕으로 오염 지도(mapping)를 작성하고, 개방기준을 초과하는 국부오염을 신속하게 확인할 수 있는 성능이 확보되어야 한다. 해체 부지 조사를 위해 협소한 공간 및 차량접근이 불가능한 지역의 조사를 위한 백팩(back-pack) 장비와 광역 부지 조사를 위해 차량에 장착할 수 있는 현장 측정시스템을 개발하였다. 개발된 측정시스템은 해체 부지의 잔류오염도 조사과정에서 국부오염을 신속하게 측정하기 위해 동적조사(Scan survey)를 위한 최적 측정조건을 도출하기 위하여 검출기의 높이 및 측정 속도에 따른 Scan MDC를 평가하였다. 광역 부지 측정시스템을 이용하여 밀봉선원 ^{137}Cs, ^{60}Co, ^{54}Mn 및 ^{22}Na를 이용하여 검출기 높이 및 측정 속도 변화에 대한 따른 국부오염이 검출성능을 평가하여 최적의 검출조건을 도출하여 연구로 부지에 실제 적용 평가하였다. 동적조사 속도를 3 ㎞/h에서 5 ㎞/h로 증가하는 경우 검출성능은 선량을 기준으로 23% 정도 감소하는 반면, 속도가 10 ㎞/h인 경우 45% 및 속도가 20 ㎞/h인 경우 56% 로 감소하는 경향을 보여주고 있다. Table 1은 점선원을 이용하여 검출기 높이 및 속도변화에 따른 Scan MDC의 결과를 Table 1에 제시하였다.

Table 1. The Scan MDC depending on the different detector hight and scan speed.

Detector hight [m]	Scan MDC [Bq/g]	Scan Speed [㎞/h]	Scan MDC [Bq/g]
0.1	0.09	3	0.17
0.3	0.17	5	0.25
0.5	0.25	10	0.51
1.0	0.92	20	0.96

개발된 광역부지 조사장비를 이용하여 연구로 해체 부지를 대상으로 성능평가를 수행하였다. 광역부지 조사장비를 차량에 장착하여 측정결과 연구로 2호기 원자로실 주변에 국부오염의 발견되었으나, 이는 연구로 해체과정에서 발생된 폐기물을 연구로 2호기 원자로실에 저장하고 있기 때문임을 확인하였고, 조사결과는 Fig. 1과 같다.

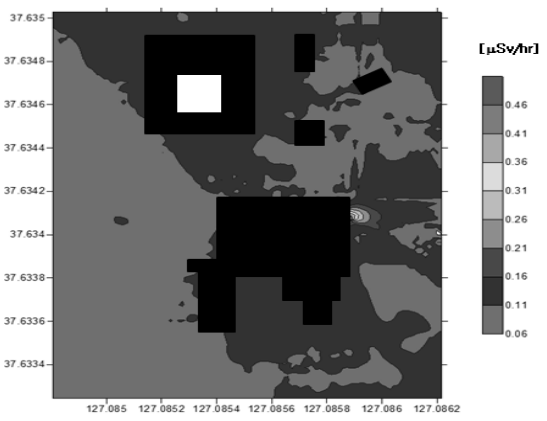


Fig. 1. Scan survey result of the KRR site.

2.2 부지 깊이 오염분포 현장 측정기술 적용

부지의 깊이 오염분포를 평가하기 위해서는 코어 시료를 이용하여 깊이별로 실험실 환경에서 측정해야 하는 어려움이 있어 이러한 문제점을 해결하기 위해 현장측정을 통한 깊이분포 평가 방법이 요구된다[2]. 깊이 분포 측정을 위해서 실험실 환경에서 다양한 오염분포를 모사할 수 있도록 실험 장치를 설계/제작하여 현장 측정에 필요한 보정인자 및 다양한 측정조건에 따른 결과를 평가하여 부지의 깊이오염 분포 측정결과의 정확성을 향상시킬 수 있다.

부지의 오염의 확산에 따른 깊이 분포 평가를 위해 Peak to Valley 방법을 활용하여 실험실 환경에서 지수(exponential) 함수 형태의 다양한 오염분포를 대면적 선원을 이용하여 모사하였다. 현장 측정을 위해 ISOCS(In-situ Object Counting System, Canberra)를 이용하여 스펙트럼을 측정하여 결과를 분석하였다. 대면적 선원은 토양 고정화제로 이용되는 PDADMAC, PAA과 KCl 및 NaOH를 이용하여 고정화제를 제조하고 토양과 고정화제의 비율을 3:1하여 제조하였다. ^{137}Cs 선원을 이용하여 다양한 오염도의 대면적 선원을 제작하였다. 후쿠시마 부지의 경우 β(=ρ/α) [g/㎠]에 대한 조사결과 0.8 ~ 1.2 g/㎠이 전체의 30% 이상을 차자하고 있는 것으로 보고되었다[3]. 이를 근거로 오염의 깊이 분포(β=0.25~2.0)를 모사하였다. (α [1/㎝] 는 초기 방사능이 1/e로 감소하는 깊이의 역수, ρ [g/㎤] 는 토양의 밀도) 그림2는 측정된 스펙트럼을 이용하여 전에너지 흡수영역(A)과 컴프턴 연속부(Bt)에 대한 비율을 보여주고 있다.

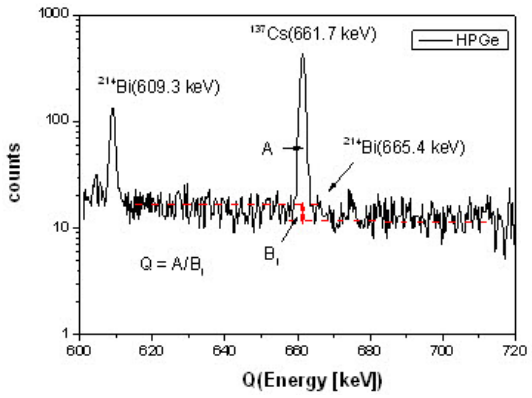


Fig. 2. The measured spectrum for Q values from the full energy peak (A) and Compton scattering (BT) regions.

실험실 조건에서 모사된 깊이분포를 이용하여 측정된 스펙트럼의 Q(Peak to compton ratios)를 이용하여 상관관계를 분석한 결과 아래와 같이 깊이분포 및 방사능에 대한 실험식을 도출하였다. 실험실 환경에서 도출된 상관관계식을 이용하여 연구로 해체 부지에 대하여 적용성을 평가하였다.

$$\log(\beta) = -0.392Q + 2.212 \quad (1)$$

$$\log(\frac{No}{A}) = 0.136Q - 0.954 \quad (2)$$

연구로 부지를 대상으로 광역부지 조사장비를 이용하여 조사기간을 단축할 수 있으며, 시료 채취 없이 깊이 분포를 현장 측정을 통해 확인할 수 있는 측정기술을 개발하였다. 현장 측정기술은 해체 및 광역부지 복원에 필수적이여, 시료를 채취하여 실험실에서 분석하는 방법보다 오차가 상대적으로 큰 문제가 있으나 이를 저감하고 정확도를 향상시키기 위한 지속적이 기술 개발이 요구된다. 이러한 기술은 향후 다양한 원자력시설의 해체 및 부지복원에 유용하게 활용될 수 있다.

3. 참고문헌

[1] ITRC, "Real-time Measurement of radionuclides in Soil: Technology and Case Studies", Interstate Technology & Regulatory Council (2006).

[2] R.R. Benke, K. Kearfott, "An improved in situ method for determining depth distribution of gamma-ray emitting radionuclides", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 463, 393-421 (2001).

[3] Norihiro Matsuda and satoshi Mikami et al., "Depth profiles of radioactive cesium in soil using a scraper plat over a wide area surrounding the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, Japan", Journal of Environmental Radioactivity, 1-8 (2014).

3분과

제염해체 및 방사성폐기물 처리 (Oral-2)

KOREAN RADIOACTIVE WASTE SOCIETY

LiCl 방사성 염폐기물 처리를 위한 U-SAP 고화체의 물리화학적 특성 분석

이기락*, 박환서, 조인학, 은희철, 최정훈
한국원자력연구원 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*kirakki@kaeri.re.kr

1. 서론

최근 핵폐기물을 재활용하기 위한 방법으로 건식법인 파이로 프로세싱이 주목받고 있다. 일반적으로 파이로 프로세싱에는 연속의 electrolytic process가 수행되는데 이때 전해질로 LiCl과 LiCl-KCl 공융염이 사용되며 방사성을 띄는 염폐기물이 발생하게 된다. 원자력연구원에서는 이러한 염폐기물을 해결하기 위하여 SAP을 활용한 유리고화체 제조법을 개발하였다[1,2]. 본 연구에서는 개발한 SAP을 개량하여 유리매질을 포함한 U-SAP을 제조하였으며 이를 LiCl 모의 염폐기물과 다양한 비율로 혼합하여 고화체를 합성하였다. 고화체 특성 분석을 위하여 XRD 와 침출 실험(PCT-A)을 수행하였다.

2. 본론

2.1 실험

SiO_2-Al_2O_3-P_2O_5 SAP에 유리매질을 40wt% 포함한 조성으로 sol-gel 방법을 사용하여 유리화 매질을 만들었으며 이를 U-SAP 40w% 라 명명한다. U-SAP 40wt%는 $AlCl_3$-$6H_2O$, H_3PO_4, H_3BO_3, $FeCl_3$-$6H_2O$, TEOS를 각각 Al, P, B, Fe, Si의 소스로 사용하였다. 각각의 몰 비는 0.456/0.483/0.412/0.039/1 (Al/P/B/Fe/Si) 다음과 같다. 먼저 모든 전구체는 EtOH/H_2O 솔루션에 모두 녹인 후 55 - 70℃ 오븐에서 3 일 동안 aging을 한 후 110℃에서 수분을 제거한다. 그 후 600℃에서 2 h 동안 열처리를 하여 U-SAP을 제조한다.

LiCl,, CsCl, $SrCl_2$, $BaCl_2$ 를 90, 2, 3, 5wt% 조성으로 모의 염폐기물을 만든 후 제조한 U-SAP 40wt%과 함께 각각 다른 조성으로 혼합하여 700℃에서 탈염화 공정을 수행한다. 그 후 1250℃에서 4 시간 동안 열처리를 수행하여 유리 고화체를 제조하였다.

2.2 실험결과 및 분석

Fig. 1은 U-SAP 40wt%와 모의 염폐기물을 다른 비율로 섞은 물질들의 탈염화 결과물을 XRD 분석을 수행한 결과이다. 낮은 비율에서는 Li_3PO_4가 주결정상을 형성하고 있으며 U-SAP의 비율이 증가함에 따라 Li-aluminosilicate 와 $AlPO_4$ 상이 증가함을 알 수 있다. 탈염화 과정에서는 LiCl 염이 U-SAP 상과 반응하여 새로운 결정을 형성하게 된다. 이때 LiCl의 비율이 충분할 경우에는 U-SAP에서 결합이 깨어진 반응 사이트와 결합하여 연속의 반응이 일어나게 되고 이때는 $AlPO_4$가 형성되지 않지만 반대로 LiCl이 U-SAP에 비하여 충분하지 못할 경우에는 U-SAP에서의 반응 사이트끼리 결합하여 상을 형성하게 된다.

Fig. 2는 탈염화 반응물의 TGA 분석을 수행한 결과이다. LiCl 염과 U-SAP이 낮은 비율에서는 탈염화 반응이 충분히 일어나지 못한 것을 알 수 있다. 비율 1와 1.5에서 100℃에서 생성된 커브는 충분히 탈염화 되지 못한 반응물이 흡수한 수분이 제거되는 반응이다. 또한 450℃부터 미 반응한 Cl이 제거 되는 반응이 나타나고 있다. 1.5 비율에서는 4wt% 정도 무게변화를 나타내고 있으며 1 비율에서는 15wt% 이상의 무게변화를 보이고 있다.

Fig. 3는 탈염화 반응 후 1250℃에서 열처리하여 생성된 유리 고화체의 XRD 분석 결과이다. 높은 온도에서 유리 매질이 녹은 후 재결정 되면서 결정상이 변화 하여 ratio 1.5, 2, 3 에서는 $AlPO_4$와 Li-aluminosilicate 결정이 사라지고 주로 Li_3PO_4 결정상이 형성된 것을 알 수 있다.

Fig. 4은 제조한 유리 고화체의 침출 특성을 PCT-A 방법으로 분석한 결과이다. 정규화된 침출 특성은 식1을 활용하여 분석하였다.

$$LR_i = \frac{m_i}{f_i \cdot S \cdot t} \qquad (1)$$

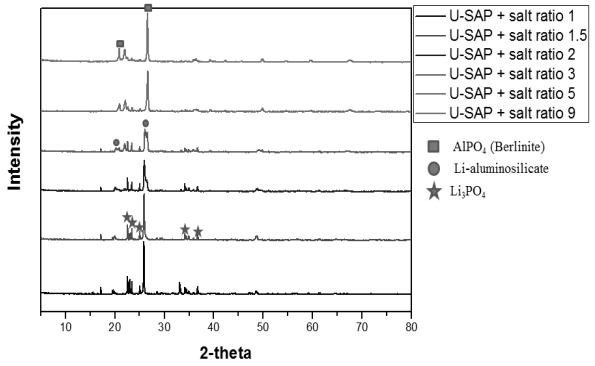


Fig. 1. XRD patterns of reaction products of U-SAP 40wt% with different ratio of waste salt in weight basis. (■, $AlPO_4$(Berlinite); ●, Li-aluminosilicate; ★, Li_3PO_4).

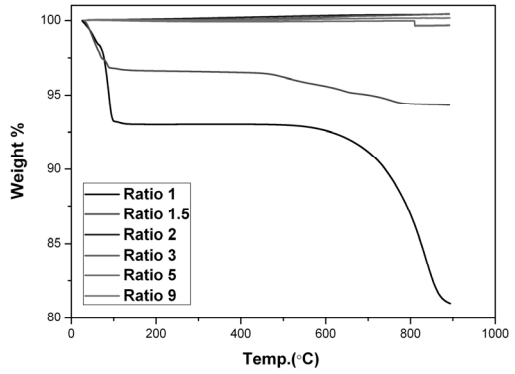


Fig. 2. TGA results of reaction product of U-SAP 40wt% with different ratio of waste salt in weight basis.

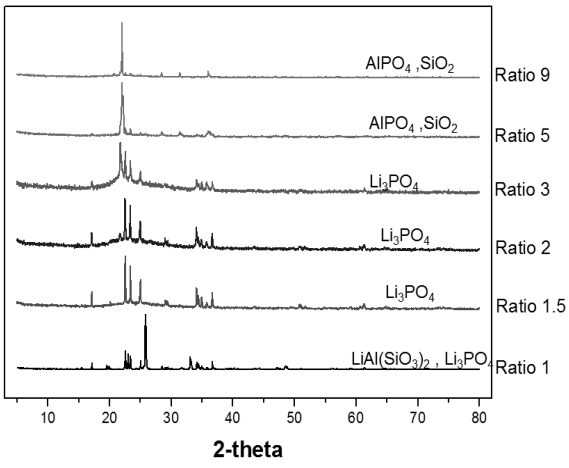


Fig. 3. XRD patterns of heat treated reaction products at 1250°C.

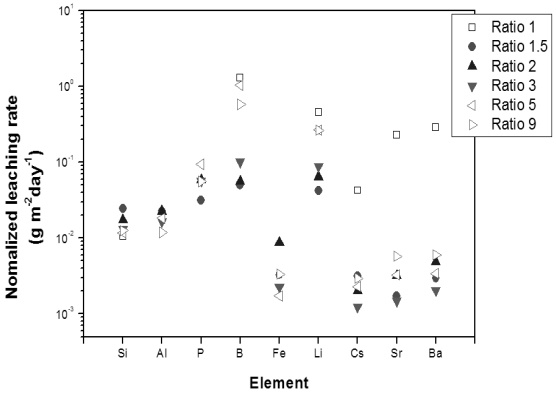


Fig. 4. Normalized leach rate of each elements for the wasteforms tested by PCT-A (test condition: 75-150 μm powdered samples, 90℃ for 7 days).

식 1에서 m_i, f_i 는 침출액내 i원소의 양 (g), 그리고 분율을 의미한다. 그리고 S는 포면적이고 t는 시간을 의미한다. Ratio 1.5, 2에서 다른 조성에 비하여 높은 침출 특성을 나타내었다.

3. 결론

본 실험에서는 제조한 U-SAP을 LiCl, CsCl, $SrCl_2$, $BaCl_2$ 사용한 모의 염폐기물과 다양한 조성으로 고화체를 제조하였다. XRD 분석에서 조성에 따라 다른 결정상을 형성함을 알 수 있었으며 침출 특성 또한 달라짐을 알 수 있었다.

4. 참고문헌

[1] H. Park, I. Kim, Y. Cho, H. Eun, and H. Lee, Environ. Sci. Technol., 2008, 42, 9357-9362.

[2] H. Park, I. Cho, H. C. Eun, I. Kim, Y. Z. Cho, and H. Lee, Environ. Sci. Technol., 2011, 45, 1932-1939.

[3] ISO-6961: Long-Term Leach Testing of Solidified Radioactive Wasteforms; International Standard Organization: Geneva, Switzerland, 1982.

인산암모늄과 초음파 복합공정을 이용한 오염 수지중의 ^{14}C 제거실험

김현기, 박종석, 김승일, 허준, 이세반, 조영수, 강덕원*
㈜휴비스워터, 경기도 시흥시 공단1대로 322번길 16
hkim@haji.co.kr

1. 서론

원자력발전소에서는 SG 취출수 계통을 포함하여 계통수의 수질정화를 위해 이온교환수지를 사용하고 있으며 호기당 연간 약 5,000~7,000ℓ 정도의 오염수지가 발생되고 있다. 그러나, 증기발생기의 세관누설이 있을 경우는 2차측 취출수 계통에 사용된 수지에는 반감기가 긴 ^{14}C, ^{137}Cs 및 ^{60}Co와 같은 방사성핵종이 함유되어 있다. 미량이지만 방사능으로 오염된 폐수지는 이들 폐기물에 대한 처분방안이 결정되어 있지 않아 자체처분하지 못하고 방사능 준위에 따라 마대나 탄소강 드럼에 담아 발전소 내에 임시저장 관리해 오고 있다. 이러한 극미량 오염 폐기물을 처분장으로 보낼 경우 처분비의 상승으로 발전원가에 영향을 미치게 된다. 유럽의 경우는 이러한 폐기물을 별도 분리하여 영구처분장으로 보내지 않고 발전소 주변의 극·저준위 폐기물 처분장으로 보내어 처리·처분해 오고 있다. 이러한 극미량 오염 폐기물의 분리·제거 기술을 통해 처분비의 절감 및 발생폐기물의 효율적 관리를 위해서는 오염 방사능 물질을 추출·제거 할 수 있는 기술개발이 요구되고 있다.
본 연구에서는 폐수지에 잔존하는 극미량의 ^{14}C를 제거하기 위해 방사성탄소로 오염시킨 원자력급 IRN-150 모의수지를 인산암모늄을 이용해 ^{14}C의 제거효율을 평가하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

2.1.1 모의수지 제조

모의수지의 제조를 위해 원자력급 이온교환수지인 IRN-150을 칼럼에 일정량 채운다음 ^{14}C 표준용액을 연속으로 흘려보냈다. ^{14}C으로 흡착된 IRN-150은 증류수를 이용해 반복 세척한 다음 48시간동안 건조 처리하였다. ^{14}C로 오염된 모의수지를 연소법으로 전처리 한 후 액체섬광계수기(LSC)를 이용해 분석한 결과, ^{14}C 농도는 3.25Bq/g로 나타났다.

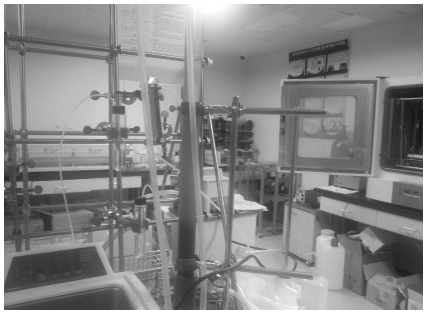


Fig. 1. Preparation of Simulated Waste Using STD Solution.

2.1.2 $NH_4H_2PO_4$를 이용한 ^{14}C 제염실험

0.01, 0.1, 0.5, 1 mol의 $NH_4H_2PO_4$ 수용액을 각각 제조한 다음 ^{14}C으로 오염된 모의수지를 각각의 다른농도로 제조된 $NH_4H_2PO_4$ 수용액에 담근 후 교반하였다. 한 시간 후 $NH_4H_2PO_4$ 수용액과 모의수지를 분리한 후 모의수지를 반복 세척한 다음, 48 시간 동안 건조하였다. 건조 완료 후에는 액체섬광계측기(LSC)를 이용해 ^{14}C 제염효율을 평가하였다.

2.1.3 초음파와 $NH_4H_2PO_4$를 이용한 ^{14}C 제염실험

2.1.2 실험방법과 동일한 조건에서 각각의 다른 농도로 $NH_4H_2PO_4$ 수용액에 모의수지를 담근 후 혼형 초음파 장치를 이용해 초음파를 15~20 분 조사한 후 ^{14}C 제염효율을 평가하였다.



Fig. 2. ^{14}C Removal Test Using Ultrasonic Wave.

2.2 실험결과

2.2.1 $NH_4H_2PO_4$를 이용한 ^{14}C 제염실험 결과

Table 1은 초음파를 인가하지 않고 $NH_4H_2PO_4$ 농도를 달리하여 ^{14}C으로 오염된 모의수지를 제염

실험한 결과이다. 처리전 모의수지의 비방사능은 3.25 Bq/g이며 0.01 mol에서는 2.1 Bq/g, 0.1 mol 에서는 1.11 Bq/g, 0.5 mol에서는 1.17 Bq/g 1 mol 에서는 1.15 Bq/g이었으며 제거효율은 각각 35.4%, 65.8%, 64%, 64.6%로 나타났다. 실험결과에서 보여주듯이 $NH_4H_2PO_4$ 농도가 0.1 mol 이상에서는 ^{14}C 제거효율이 비슷한 경향이 나타났다.(Table 1. 참조)

2.2.2 초음파와 $NH_4H_2PO_4$를 이용한 ^{14}C 제염실험 결과

Table 2는 ^{14}C으로 오염된 모의수지를 $NH_4H_2PO_4$ 수용액에 담근 후 초음파를 15~20 분 동안 조사하여 제염한 모의수지의 ^{14}C 농도 결과이다. 0.01 mol 에서는 1.72 Bq/g, 0.1 mol에서는 1.03 Bq/g, 0.5 mol 에서는 0.55 Bq로 나타났다. 1 mol의 $NH_4H_2PO_4$ 수용액과 함께 초음파를 조사할 경우, 폐수지에 잔존하는 ^{14}C는 0.037 Bq/g로 제거율이 99.9%로 Background 수준까지 제거 가능함을 확인하였다.

Table 1. Removal Efficiency of ^{14}C Using $NH_4H_2PO_4$

$NH_4H_2PO_4$ Conc.(mol)	Result C-14 (Bq/g)	Removal Eff (%)	Remark
0.01	2.1	35.4	Original resin : 3.25 Bq/g
0.1	1.11	65.8	
0.5	1.17	64	
1	1.15	47	

Table 2. Removal Efficiency of ^{14}C Using $NH_4H_2PO_4$ with Ultrasonic Wave

$NH_4H_2PO_4$ Conc.(mol)	Result C-14 (Bq/g)	Removal Eff (%)	Remark
0.01	1.72	47	Original resin : 3.25 Bq/g
0.1	1.03	68.3	
0.5	0.55	83.1	BKG : 0.04 Bq/g
1M	0.037	99.9	

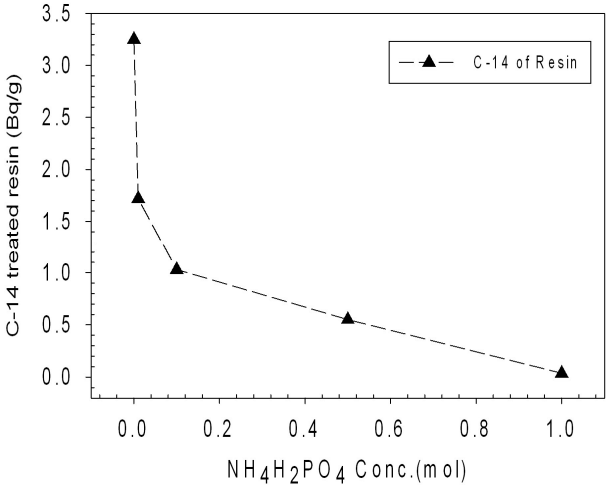


Fig. 3. Correlation between activity and $NH_4H_2PO_4$ of ^{14}C.

3. 결론

$NH_4H_2PO_4$와 초음파의 복합기술을 이용하여 오염 폐수지에 부착된 ^{14}C 제거 실험을 해 본 결과, IAEA 규제해제농도인 1Bq/g의 1/27 수준으로 낮아져 제염효율이 매우 뛰어남을 확인하였다. 또한, 첨가한 약품인 $NH_4H_2PO_4$가 HCl, H_2SO_4, HNO_3에 비해 약산성으로 제염장치 재질의 건전성 유지측면에서 좋은 것으로 판단된다. 폐수지로부터 탈리되어 수용액에 용존 된 미량의 ^{14}C의 제거를 위해서 aeration법을 사용할 경우 제염처리시 오랜시간동안 재활용 할 수 있어 사용용매의 폐액 발생량을 최소화 할 수 있을 것으로 기대된다.

4. 참고문헌

[1] 김현기, 김승일, 성진현, 허준, 강덕원, "초음파 기술을 이용한 폐수지 중 ^{60}Co 제염 실험", 한국방사성폐기물학회 2014년 춘계학술발표회 논문요약집, 12(1), 313-314, 5.8~9, 2014, 평창.

[2] 양호연, 원장식, 최영구, 박근일, 김인태, 김광욱, 송기찬, 박환서, "IRN-150 혼상수지의 이온 흡착특성 및 폐수지로부터 탈착용액을 이용한 ^{14}C 핵종의 제거 특성", J. of the Korean Radioactive waste Society, 4(4), 373-384, (2006).

국내의 원자로 방사선 특성평가 준비사항

임석남*, 채경선, 정도영, 이종철
세안기술주식회사, 서울특별시 금천구 가산디지털2로 184(벽산디지탈밸리2차)910호
*limsn@sae-an.co.kr

1. 서론

원전 해체전략의 수립 및 수행은 중성자에 의한 방사화 정도와 오염도에 대한 정보를 필요로 한다. 방사능 재고량의 주 구성 부분은 원전 계통 구조물의 방사화이다. 원전 설비 방사화의 범위와 준위는 외면적 형태, 물질의 구성요소와 운전이력에 기초한 이론적 계산으로 산정할 수 있다. 폐쇄 원자로의 오염은 부식 및 침식 방사화 생성물과 연료에서 발생한 방사성물질의 누설의 결과이다. 방사성 핵종의 재고량에 대한 정보는 방사능 붕괴율의 예측과 해체 방법 및 기간을 선택하는 데 매우 중요하다.

2. 본론

2.1 원자로 방사선 특성평가 목적

원자로 및 주변기기의 방사선적 특성평가 목적은 방사성 핵종의 종류, 양, 분포 및 물리화학적 상태에 대한 정보의 신뢰할 만한 자료(DB)를 제공하는 것이다.

해체 원전의 방사선적 특성평가 공정은 이전 단계의 특성평가결과를 가지고 다음의 해체전략 단계를 결정할 수 있는 점에서 연속성을 가진다.

2.2 원자로 정지 후 시간경과와 주요한 핵종

원자로의 영구정지 시점에서 주요한 방사화 생성물은 아래와 같다.

Table 1. Principal Radioactive Nuclide at Reactor Shot Down

Material	Nuclide
Steel	55Fe, 60Co, 59Co, 59Ni, 39Ar, 94Nb
Concrete	3H, 14C, 41Ca, 55Fe, 60Co, 152Eu, 154Eu

철재류의 경우, 처음 10년 동안 55Fe 와 60Co 이 핵종 재고량의 주된 부분이다. 그러나 이들의 방사능은 50 년 후에는 대부분 붕괴로 없어지고 Ni, Nb, Ag 동위원소 등 장반감기 핵종이 지배적이다.

2.3 핵종재고량에 영향을 미치는 변수

원자로의 방사화 및 오염 물질의 핵종 분포는 매우 다양하다. 이러한 차이는 다수의 인자가 영향을 미치는데 그 중에 주요한 것은 중성자속, 운전기간, 원자로 정지 후 경과시간이다.

영구정지 후에 원전에 남아있는 핵종재고량은 다음의 변수에 의해 영향을 받는다.

- 원자로 종류, 설계, 출력 준위 및 정지 기간
- 건설자재의 구성 원소와 미량 원소
- 원자로 냉각재의 화학처리, 정비 등 운전변수
- 비정상 사건

2.4 방사선적 특성평가 방법 및 기술

적절한 자료의 확보를 위하여 자료 수집의 절차와 필요한 모든 자료를 잘 이해하는 훈련된 요원이 참여하여야 한다.

중성자 방사화 방사능 산정의 첫 단계는 계통의 중성자속의 공간 및 에너지 분포에 대한 정보를확보하는 것이다.

중성자속은 전리방사선을 만들어 내는 딸 핵종의 모 핵종에 대한 개별 반응률을 결정하는데 사용한다. 반응률은 원자로 방사화 역사와 후속 붕괴시간에 따라 부모 원소의 단위 중량당 방사능 준위를 얻는데 사용된다. 최종단계는 알고 있는 계통 물질의 모 원소 농도로부터 계통물질의 방사능을 산정하는 것이다. 재고량 산정은 방사화 단면적과 물질 구성원소와 함께 구성품의 평균 중성자속을 입력하여야 한다. 원자로 물질의 방사화 방사능 산정에는 중성자 에너지 스펙트럼과 중성자속 밀도가 중요한 입력 자료이다.

방사화 방사능의 산정은 아래와 같은 입력 자료의 수집 및 생성에서부터 시작된다.

- 원전 운전이력(시간대별 출력 분포)
- 주어진 중성자 스펙트럼 및 온도에서의 단면적
- 연료의 특성(기하학적 구조, 농축도, 연소정도)
- 중성자속의 영향을 받는 구성품의 기하학적 구

조와 질량 (원자로 압력용기, 원자로 내부 구조물 생차폐벽 등)
- 방사화 대상물질의 구성요소 및 미량 함유원소
- 영구 정지 후 붕괴시간

2.5 현장 측정

방사선량률 측정, 오염도 측정 및 핵종별 방사능 측정이 방사선적 특성평가와 관련하여 사용될 수 있다. 현장 측정은 기하학적 구조, 표면조건과 특성 및 방사성 오염의 정도를 고려하여야 한다.



Fig. 1. In situ gamma spectrometry in decommissioning (Magnox Electric, UK).

2.6 시료채취 및 분석

시료채취 및 실험실 분석 프로그램의 목적은 물질의 방사화 방사능의 이론적 산정결과의 입증, 표면오염 범위의 산정, 측정이 어려운 핵종의 척도인자 개발 등에 있다.

시료채취 프로그램은 편중 또는 비편중 시료채취계획으로 구분할 수 있다. 비편중 시료채취는 오염이 없거나 극히 적을 것으로 기대되는 지역에서 수행하여야 한다. 편중 시료채취는 오염 및 방사화가 있을 것으로 기대되는 지역의 시료위치를 능동적으로 조사한다.

콘크리트 시료채취의 경우 단지 오염만 발견된 지역은 콘크리트 시료의 방사능이 미 검출될 때까지 반복적으로 2 mm 깊이로 제거하며 시료를 채취한다. 오염의 침투가 발견된 지역은 콘크리트로부터 10 cm 깊이의 시료를 채취한 후 표면으로부터 처음 10 mm 까지는 매 1 mm 마다 시료를 취하고 그 다음 표면으로부터 10 mm 두께 이상 지역은 10 mm 마다 시료를 채취한다.

2.7 전략적 조사계획 수립

편중 조사 또는 비편중 조사 여부를 결정하기 위하여 측정값의 예상 범위를 원전 운전 및 이력 자료에 근거하여 결정하여야 한다. 모든 조사측정 결과가 균질 분포를 보인다면 비편중조사가 선택되어야 한다. 비 균질 분포를 보인다면 편중조사가 사용되어야 한다.

3. 결론

3.1 방사선 특성평가의 중요성

방사선적 특성평가는 원자로의 해체전략을 개발하기 위한 초기단계의 가장 핵심적인 요소이며 비용, 피폭선량과 공기와 관련된다.

방사선적 특성평가는 방폐물의 운반 및 처분 요건에 따라 방폐물을 분류하기 위한 핵심적인 단계이며 특성평가 후 방폐물관리 비용을 산정할 수 있다. 따라서 방사선적 특성평가는 가장 핵심적인 단계로 평가된다.

3.2 국내의 원전 방사선 특성평가 준비

방사선 특성평가를 종합적으로 계획하고 수립할 수 있는 기획전문가를 양성하여야 한다.

초기에 건설된 원전일수록 계통 재질에 대한 구성 원소 자료가 부족할 수 있으며 계통 재질의 구성 원소 자료의 사전확보가 필요하다. 또한 미량원소의 기여도가 클 경우 이에 대한 자료와 계통재질의 비균질에서 오는 불확도를 줄이기 위한 대책이 필요하다.

초기의 방사선 특성평가에 필요한 원전 운영기간 중의 방사성 물질과 관련한 사건들에 대한 철저한 이력 조사가 필요하다.

원자로 및 원자로 주변기기의 방사화 정도를 산정하는 컴퓨터 코드에 대한 장•단점 조사 및 국내 실정에 맞는 코드 선정과 이에 대한 운영 숙련도를 위한 사전준비가 필요하다.

고리 및 월성 1호기 원전은 여러 가지 다양한 운전이력을 가지고 있고 국내에서 처음으로 해체원전이 될 가능성이 높기 때문에 상기와 같은 철저한 준비가 요구된다.

4. 참고문헌

[1] RADIOLOGICAL CHARACTERIZATION OF SHUT DOWN NUCLEAR REACTORS FOR DECOMMISSIONING PURPOSES(IAEA TRS No389).

오염표면 내 방사성 세슘을 제거하기 위한 흡착제/하이드로젤 복원소재 제조

양희만*, 홍상범, 이근우, 서범경, 문제권
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*hmyang@kaeri.re.kr

1. 서론

후쿠시마 원전사고 후, 많은 양의 방사성 핵종들이 환경으로 유출되었다. 외부로 방출된 방사성 핵종들은 바람과 비에 의해 토양, 도로, 건물 등의 다양한 물질 표면으로 확산되고 흡착되어 많은 농경지역과 도시지역이 방사성 핵종들로 오염되었다. 이들 방사성 핵종들 중, 높은 반감기 (약 30년) 및 감마선의 높은 에너지로 인해 방사성 세슘은 가장 위험한 방사성 핵종들로 알려져 있다. 이와 같이 방사성 세슘으로 오염된 다양한 고체표면 내 방사성 세슘을 제거하기 위해 다양한 방법들이 적용되었다. 이중, 고압수를 이용한 표면오염 제거 방법이 많이 적용되었으나 환경조건에 따라 낮은 제거효율을 보여주었으며, washing에 사용된 물이 사용 후 방사성 핵종으로 오염되어 대량의 오염수가 발생되는 문제점이 있다. 또한 화학물질인 strippable coating제를 이용한 경우, 70-80%의 우수한 방사성 핵종 제거 효율을 보여주었으나, 물질 구성성분인 solvent와 chelator는 인체에 유해한 물질을 사용하고 있으며, 방사성 핵종 제거에 사용된 coating 물질은 그대로 방사성 폐기물이 되기 때문에 많은 양의 방사성 폐기물이 발생한다는 단점이 있다

본 연구에서는 대량 오염수 발생 (고압수 이용시), 방사성 폐기물 발생 및 유해물질 사용으로 인한 2차 환경오염 (strippable 코팅제) 발생 위험의 단점을 해결하고자 새로운 오염 표면 복원제를 개발하였다. 이를 위해 물 흡수력이 뛰어난 하이드로젤 소재를 이용하여 방사성 세슘 용해제의 외부유출을 방지할 수 있으며, 자성흡착제를 방사성 세슘 포집용 물질로 이용하였다. 위 복원 소재는 오염 표면의 방사성 세슘 제거 후 외부자기장을 이용하여 자성흡착제만을 선택적으로 자성회수 할 수 있으며, 결과적으로 하이드로젤은 일반폐기물로 방사성 세슘을 포집하고 있는 자성흡착제은 방사성 폐기물로 처리하여 최종 방사성 폐기물의 양을 획기적으로 줄일 수 있다.

2. 본론

2.1 제조 방법

2.1.1 자성흡착제 제조 방법

본 연구에서 사용된 자성흡착제는 본 연구그룹이 최근에 보고한 구리-페로시아나이드가 도입된 자성흡착제 제조 방법을 일부 수정하여 세슘 제거율이 향상된 자성나노클러스터 기반의 철-페로시아나이드가 도입된 자성흡착제를 합성하여 사용하였다.

2.1.2 자성흡착제/하이드로젤 복원소재 제조

하이드로젤은 alginate와 polyacrylamide로 이루어진 semi-interpenetrating network polymer hydrogel solution을 제조하였다. polyacrylamide를 제조하기 위한 방법으로 acrylamide를 monomer로 가교제로는 N,N-methylene bisacrylamide를 사용하였고, 고분자 반응의 개시제로 ammonium persulfate와를 사용하여 polyacrylamide hydrogel를 합성하였다. 자성흡착제/hydrogel 용액의 물 흡수 능력을 평가하기 위해 polyacrylamide/algin-ate/자성흡착제의 첨가 무게 비율을 달리하여 이들의 swelling ratio을 측정하였다. 마지막으로, 제조된 자성흡착제/하이드로젤 복원소재를 이용하여 방사성 세슘으로 오염된 페인트가 코팅된 시멘트에 대한 방사성 세슘 제거 성능을 평가하였다.

2.2 실험 결과 및 고찰

TEM, XRD, VSM 등의 화학분석을 통해 제조된 자성흡착제가 외부자기장에 의해 자화되는 초상자성을 가지는 것을 확인하였다. Fig. 1에서 보는 바와 같이 2050 cm^{-1} 위치에서 매우 강한 흡수 peak를 보여주는데 이는 cyanide group (CN)을 나타내는 특정 band로 ferrocyanide가 성공적으로 접목되었음을 보여준다. 제조된 자성흡착제의 세슘 흡착특성 실험 결과 99.9% 이상의 세슘 제거 효율을 확인하였다.

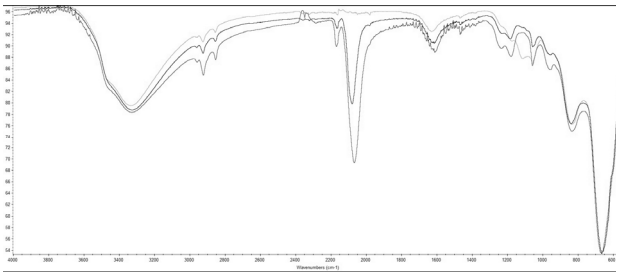


Fig. 1. FTIR spectra of magnetic nanocluster (sky blue) and Fe-ferrocyanide coated magnetic adsorbent (red&blue).

Fig. 2에서와 같이 제조된 고분자의 FT-IR spectrum 분석을 통해 의 경우, polyacrylamide가 성공적으로 합성되었음을 확인할 수 있었으며, 4wt%의 alginate와 7wt%의 acrylamide의 반응조건에서 제조된 hydrogel의 FT-IR spectrum의 경우, polyacrylamide와 alginate의 특성피크를 모두 나타나는 것으로 보아 성공적으로 semi-IPN 구조의 하이드로젤이 합성되었음을 확인하였다.

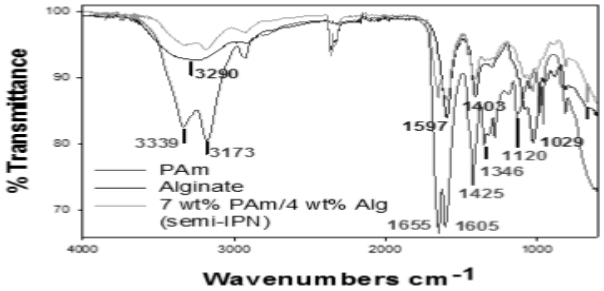


Fig. 2. FTIR spectra of Polyacrylamide, alginate, semi-IPN hydrogel (polyacrylamide/algiante).

Fig. 3은 위에서 제조된 하이드로젤 용액에 자성흡착제를 다양한 무게비율로 첨가한 후 Ca 용액과의 반응에 의해 제조된 hydrogel film의 디지털 이미지이다. 그림에서 보는바와 같이 Ca 이온용액에 의해 자성흡착제/하이드로젤 복원소재 내 alginae와 Ca 이온 간의 이온결합이 형성되어 semi-IPN 구조의ㅍ하이드로젤이 IPN 구조를 가지는 hydrogel film으로 형태가 변하는 것을 확인할 수 있다. Fig. 4는 위 film등의 물 흡수 능력을 다음과 같이 swelling ratio 값을 측정하여 평가하였다.

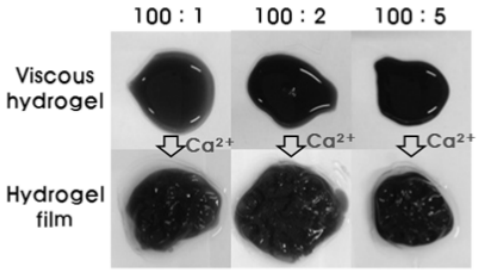


Fig. 3. Images of magnetic adsorbent/hydrogel. solution and their film formation after addition of Ca^{2+} ion

결과에서 알 수 있듯이, 자성흡착제/하이드로젤 복원 소재는 오염 표면에 방사성 세슘 용해제의 외부유출을 막을 수 있는 충분한 물 흡수 능력을 가지고 있다는 것을 확인 할 수 있다. 마지막으로, 제조된 자성흡착제/하이드로젤 복원소재를 이용하여 방사성 세슘으로 오염된 페인트가 코팅된 시멘트 표면에 대한 방사성 세슘 제거 실험 결과, 95% 이상의 세슘 제거 효율을 보여주었다.

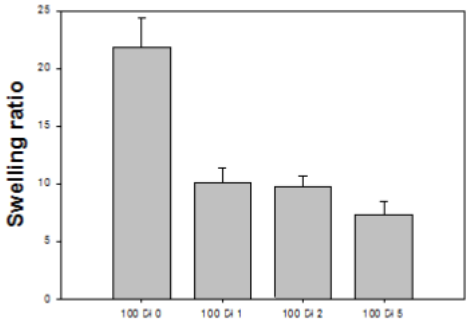


Fig. 4. swelling ratio of magnetic adsorbent/hydrogel film formed by reaction with Ca^{2+} ion.

3. 결론

본 연구에서는 고체 오염 표면 내 존재하는 방사성 세슘을 제거하기 위해 물 흡수성이 뛰어난 하이드로젤 용액에 자성흡착제를 혼합하여 방사성 세슘만을 선택적으로 제거할 수 있는 흡착제/하이드로젤 복원소재를 제조하고자 하였다. 위 복원 소재의 제조 조건을 도출하기 위해 하이드로젤의 반응 조건에 따른 복원 소재의 특성 변화를 살펴보았다. 또한, 자성흡착제가 첨가된 하이드로젤 기반 복원 소재는 95% 이상의 높은 방사성 세슘 제거 효율을 보여주었다. 마지막으로, 사용 후 흡착제/하이들젤 복원 소재는 외부자기장을 이용하여 흡착제만을 회수할 수 있어 방사성 폐기물 발생량을 현저히 줄일 수 있다.

4. 감사의 글

This research was supported by the Korea Ministry of Education, Science, technology Grant (No.2012M2A8a5025996).

5. 참고문헌

[1] H.-M Yang, K-W. Lee, B.-K Seo and J-K. Moon, *J.* Nanosci. Nanotechnol., 2015, 15, 1695-1701.

FISPACT 중성자 에너지 그룹 형태에 따른 방사화 영향 분석

차길용[1], 김순영[1*], 이재민[2], 김용수[3]
[1]㈜래드코어, 대전광역시 유성구 테크노중앙로 65 남정빌딩 2차 503호
[2]TUV 라인란드코리아, 서울특별시 구로구 구로동 197-28 E&C 벤쳐드림타워 6
[3]한양대학교, 서울특별시 성동구 왕십리로 222
*sykim@radcore.co.kr

1. 서론

원전 해체 계획수립 단계에서는 해체 시점의 원전 내 방사성 핵종 재고량을 평가하고 그에 따른 폐기물량을 예측하는 작업이 요구되며, 노심 주변 방사화에 의한 핵종 재고량 평가가 수반되어야한다. 방사화는 원전 내에서 방사성 핵종이 생성되는 주요 요인 중 하나로, 압력용기 및 주변 구조물 내 원자핵이 노심에서 생성된 중성자와 반응하여 방사성 핵종으로 변하는 과정을 말한다.

방사화 핵종 재고량의 평가를 위해서는 먼저 대상 위치에서의 중성자속 및 에너지 스펙트럼을 계산해야 하며, 계산된 결과를 입력으로 방사화 핵종 재고량을 계산해야 한다.

본 연구에서는 MCNP/FISPACT 코드 체계를 적용하여, FISPACT 전산코드에 내장되어 있는 에너지 그룹 형태별 스펙트럼을 MCNP 전산코드로 각각 생산한 후 이를 적용하여 방사화 핵종 재고량을 평가하고, 각 에너지 그룹 형태별로 비교분석하였다.

2. 본론

본 연구에서 중성자속 계산에는 해당 분야에 가장 널리 쓰이는 MCNP5[1]를 사용하였으며, 방사화 계산은 FISPACT 전산코드를 사용하였다.

EASY(European Activation System)-2007[2] 패키지에 포함된 FISPACT 전산코드는 방사화 선원항 평가 전용 코드이다. 1980년대 영국 UKAEA에서 개발되었으며, 현재까지 활발하게 개발 및 업데이트가 이루어지고 있다.

중성자속 및 에너지 스펙트럼 계산에는 Fig. 1과 같이 국내 경수로 노심 주변의 단면을 단순화한 모델링을 사용하였다. 핵연료에서 발생하는 중성자 선원의 스펙트럼은 watt-fission spectrum을 사용하였으며, 물질의 핵단면적 라이브러리는 ENDF/B-VII을 사용하였다.

본 연구에서 방사화 평가를 수행하는 영역은 Fig. 1의 탄소강(압력용기)과 콘크리트(생체 콘크리트) 영역이다. 해당 영역의 중성자속 및 에너지 스펙트럼 계산에는 F4 탤리를 사용하였다. 방사화 핵종 재고량 평가 시 해당 물질의 불순물 정보는 NUREG-3474[3]의 자료를 참고하였다.

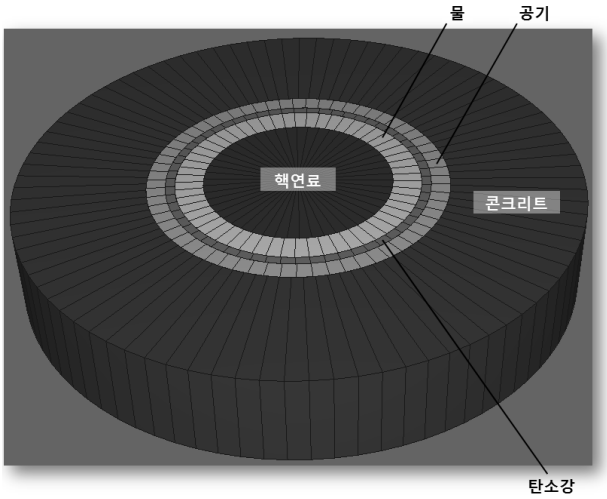


Fig. 1. The modeling for MCNP calculation.

FISPACT에 내장되어있는 에너지 그룹 형태와 그 특성은 Table 1과 같다. 5개 에너지 그룹 형태 중 상대적으로 GAM-II와 VITAMIN-J는 고에너지 영역을 세분하고 있으며, WIMS와 XMAS는 저에너지 영역을 세분하고 있다. TRIPOLI는 전 에너지 구간을 비교적 일정하게 분류하고 있다.

Table 1. Neutron Energy Group Structure in FISPACT

Energy group	No. of energy group	Maximum energy (MeV)
WIMS	69	10
GAM-II	100	19.64
XMAS	172	14.92
VITAMIN-J	175	19.64
TRIPOLI	315	19.64

각 에너지 그룹 형태에 따라 MCNP5에서의 중성자 에너지 스펙트럼을 계산하였으며, 계산된 5개의 에너지 그룹 형태별 스펙트럼을 FISPACT 전산코드의 입력으로 사용하여 탄소강 및 콘크리트에서의 방사화 선원항을 Table 2 및 Table 3과 같이 각각 평가하였다.

Table 2. Specific Activities of Major Nuclide in the Carbon-steel

(Unit: Bq/kg)

Nuclide	WIMS (69)	GAM-II (100)	XMAS (172)	VITAMIN-J (175)	TRIPOLI (315)
Total	1.96E+11	**2.22E+11**	1.78E+11	1.44E+11	1.52E+11
Fe-55	1.05E+11	**1.20E+11**	9.46E+10	7.52E+10	7.96E+10
H-3	8.45E+10	**9.50E+10**	7.79E+10	6.42E+10	6.76E+10
Ni-63	3.52E+09	**4.08E+09**	3.20E+09	2.55E+09	2.70E+09
C-14	2.46E+09	**2.77E+09**	2.15E+09	1.72E+09	1.83E+09
Co-60	3.32E+08	**3.68E+08**	2.44E+08	1.22E+08	1.37E+08
Ni-59	3.24E+07	**3.75E+07**	2.95E+07	2.39E+07	2.52E+07
Mn-54	**1.10E+07**	1.03E+04	1.21E+03	2.89E+02	2.89E+02
Mo-93	**3.71E+06**	1.34E+06	2.68E+06	2.77E+05	2.97E+05
Nb-93m	**2.08E+06**	7.51E+05	1.50E+06	1.55E+05	1.66E+05
Tc-99	**2.22E+05**	1.12E+05	1.26E+05	1.52E+04	1.71E+04
Zn-65	**1.26E+06**	1.19E+06	1.10E+06	6.95E+05	7.36E+05

Table 3. Specific Activities of Major Nuclide in the Concrete

(Unit: Bq/kg)

Nuclide	WIMS (69)	GAM-II (100)	XMAS (172)	VITAMIN-J (175)	TRIPOLI (315)
Total	**4.09E+11**	1.96E+11	1.70E+11	6.72E+10	7.11E+10
H-3	**3.90E+11**	1.85E+11	1.59E+11	6.27E+10	6.63E+10
Eu-152	**9.88E+09**	7.52E+09	6.95E+09	3.22E+09	3.43E+09
Co-60	**7.21E+09**	3.29E+09	2.94E+09	1.06E+09	1.12E+09
Eu-154	**1.15E+09**	5.96E+08	6.99E+08	1.51E+08	1.60E+08
Ni-63	**2.28E+08**	1.10E+08	9.54E+07	3.79E+07	4.00E+07
Fe-55	**8.83E+07**	4.24E+07	3.68E+07	1.46E+07	1.54E+07
Ar-39	**9.36E+07**	8.40E+04	1.59E+04	2.28E+00	2.28E+00
Cs-134	**8.63E+07**	2.78E+07	2.74E+07	6.97E+06	7.36E+06
Ca-41	**6.52E+06**	3.13E+06	2.72E+06	1.08E+06	1.14E+06
Eu-155	**3.08E+07**	8.30E+06	8.40E+06	6.60E+05	7.32E+05

탄소강의 경우, GAM-II 에너지 그룹 형태를 사용했을 때, 총 비방사능이 2.22×10^{11} Bq/kg으로 가장 보수적으로 계산되었으며, VITAMIN-J 에너지 그룹 형태에서 1.44×10^{11} Bq/kg으로 가장 낮게 계산되었다. 상대적으로 비방사능이 크게 계산된 Fe-55, H-3, Ni-63 등 6개 핵종들에 대해서는 GAM-II, 그 외 소량의 방사화 핵종에 대해서는 WIMS 에너지 그룹 형태에서 보수적으로 계산되었다.

한편, 콘크리트에서는 방사화로 생성된 모든 핵종에 대해 WIMS 에너지 그룹 형태가 보수적으로 계산되었다. WIMS 에너지 그룹 형태를 적용했을 때 총 비방사능은 4.09×10^{11} Bq/kg으로 가장 보수적으로 계산되었으며, VITAMIN-J 에너지 그룹 형태에서 6.72×10^{10} Bq/kg으로 가장 낮게 계산되었다.

3. 결론

본 연구에서는 FISPACT에서 사용하는 에너지 그룹 형태별 방사화 영향을 평가하였다.

평가 결과, VITAMIN-J 에너지 그룹 형태를 사용했을 때 가장 낮게 나타났으며, WIMS 및 GAM-II 에너지 그룹 형태에서 높게 나타나는 경향을 보였다.

총 비방사능을 기준으로, 탄소강의 방사화 핵종 재고량 평가 시 최대 54%의 차이가 발생했으며 콘크리트의 경우 최대 5배 이상의 차이를 보여 콘크리트에서 생성되는 방사화 핵종에서 더 민감한 경향을 보였음을 확인하였다.

본 연구의 결과는 원전 해체 시 방사화선원항 평가 기준에 대한 연구에 활용될 수 있을 것으로 사료된다.

4. 감사의 글

본 연구는 원자력안전위원회에서 주관하는 원자력안전연구사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] LANL, "MCNP5-A General Monte Carlo N-Particle Transport Code", LA-UR-03 – 1987(2003).

[2] R. A. Forrest, "European Activation System: EASY-2007", UKAEA FUS 533 (2007).

[3] J. C. Evans, et, al., "Long-lived Activation Products in Reactor Materials", NUREG-3474, US(1984).

나트로라이트의 고압 물성을 이용한 다중 핵종 이온의 격리 반응 연구

임준혁[1], 성동훈[1], 이승엽[2], Douglas A. Blom[3], Thomas Vogt[3], Chi-Chang Kao[4], 이용재[1*]
[1]연세대학교, 서울특별시 서대문구 연세로 50
[2]한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
[3]University of South Carolina, Columbia, South Carolina 29208
[4]SLAC National Accelerator Laboratory, Menlo Park, California 94025-7015
*yongjaelee@yonsei.ac.kr

1. 서론

고준위 방사성폐기물 처리에 대한 현재까지의 가장 현실적인 대안으로 지질학적 처분방법이 많이 연구되고 있는 실정이다. 하지만 이러한 지질학적 처분방법도 화산활동, 지진 등 여러 지질학적 이벤트 혹은 인간활동에 의해 방사성폐기물 내 핵종이 생물권으로 흘러나올 수 있음을 염두해 두어야 한다. 방사성폐기물의 지질학적 처분시 지하수에 대한 용해도의 관점에서 보면 고준위폐기물 내 핵종은 비용해성 화합물로 침전되는 것들과 지하수에 비교적 쉽게 용해되는 두 종류가 있다. 특히 세슘(Cs), 스트론튬(Sr), 요오드(I)처럼 지하수와 만나 비용해성 화합물을 형성하지 못한 핵종들은 지하수에 빠르게 용해되어 방사성폐기물을 지질학적 처분하였을 때 매우 큰 문제를 야기할 수 있다. 본 연구에서는 물을 매개로한 압력환경에 적용시켰을 때 고압(~1GPa)에서 부피가 팽창하는 이상현상을 보이는 것으로 보고된 제올라이트 나트로라이트(Natrolite, $Na_{16}Al_{16}Si_{24}O_{80}\cdot 16H_2O$)를 이용하여 유체 방사성폐기물 내에 존재하는 대표적 비용해성 핵종인 Cs, I를 동시에 격리하여 처리할 수 있는 가능성을 제시하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

Cs, I와 나트로라이트를 고압 환경에서 반응 시키기 위하여 다이아몬드앤빌셀(Diamond Anvil Cell, DAC)을 이용하여 약 3GPa, 200℃까지 압력과 열처리를 가하여 실험을 진행하였다. 은으로 양이온 치환된 은-나트로라이트(Ag-NAT) 시료와 CsI 쏠루션을 압력매개체로 하여 DAC 시료 챔버에 로딩한 후 압력을 증가시키며 X-선 회절패턴을 획득하였으며, X-선원은 포항가속기 연구소 10C 빔라인의 고에너지, 고휘도 선원을 사용하였다.

압력과 열처리로 인해 Cs가 격리된 시료에 대해 Cs 용출 실험을 실시하기 위하여 대부피 고압기 (Large Volume Press, LVP)를 이용해 10 mg 정도의 시료를 회수하였으며 micro-XRF 장비를 이용하여 시간흐름에 따른 Cs 용출 정도를 약 160시간 동안 측정하였다.

또한, 압력 증가에 따른 일련의 결정학적 거동을 관찰하기 위해 리트벨트 분석법(Rietveld Method)을 실시하여 구조모델을 도출하고 고각 환형 암시야 주사 투과 전자현미경 이미지를 통해 검증하여 실험을 진행하였다.

2.2 결과

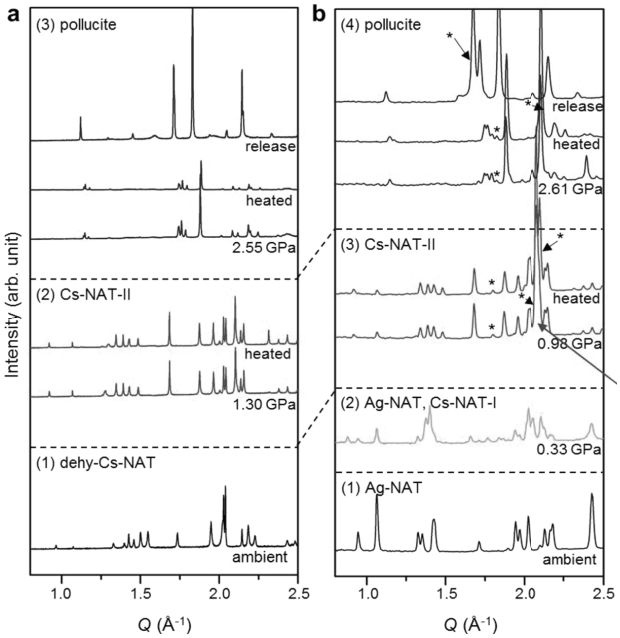


Fig. 1. Synchrotron X-ray poder diffratcion patterns.

Fig. 1에서와 같이 약 0.5 GPa 이하에서 나트로라이트 채널내 Ag 양이온과 Cs 양이온의 맞교환 현상이 일어나 Cs로 치환된 나트로라이트(Cs-NAT-I)의 형성을 관찰하였고 채널내로 빠져나온 Ag 양이온은 I 음이온과 결합하여 AgI 크리스탈로 침전되는 것을 확인하였다. Cs-NAT-I은 약

1GPa 이상에서 Cs-NAT-Ⅱ로 구조적 변화를 보이며 이후 Cs로 치환된 나트로라이트에 온도와 압력을 증기시키면서 관찰한 결과 폴루사이트와 유사한 구조를 갖는 고밀도 세슘포획 물질로 비가역적인 전환을 보이는 것으로 판단되며 이는 Fig. 2와 같다.

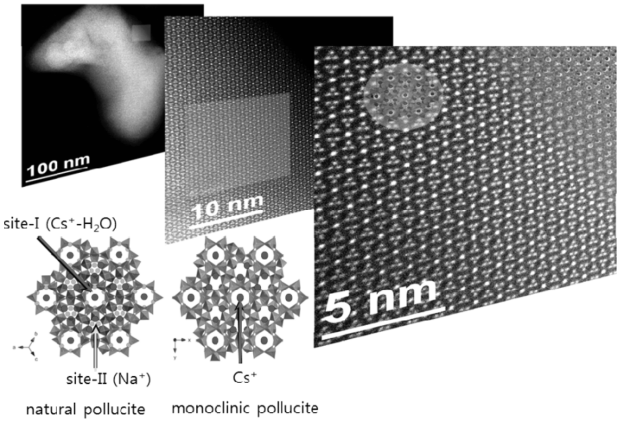


Fig. 2. HAADF-STEM image of the recorvered monoclinic pollucite.

회수된 폴루사이트 페이즈의 Cs 안정성을 파악하기 위하여 폴루사이트와 Cs으로 양이온 교환된 나트로라이트를 이용하여 Cs 용출실험을 한 결과 폴루사이트의 용출정도가 나트로라이트에 비해 현저히 떨어짐을 확인할 수 있다(Fig. 3).

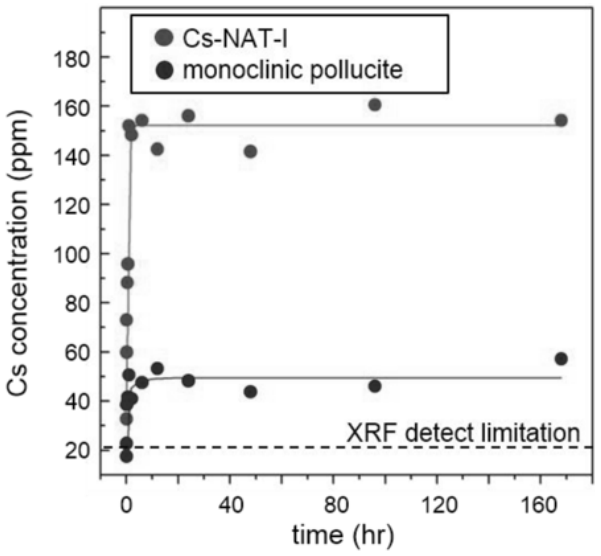


Fig. 3. Cs leaching amount as a function of time.

3. 결론

본 연구에서는 압력을 통해 Cs, I의 복분해 반응을 야기시켜 나트로라이트 채널내 격리시키는 메커니즘을 구조적으로 검증하였다. Cs로 치환된 나트로라이트는 고압, 고온 환경에서 폴루사이트로 상전이함을 확인하였고 폴루사이트의 양이온 교환 능력이 현저히 떨어져 나트로라이트보다 Cs가 보다 안정적으로 격리될 수 있음을 확인하였다.

4. 참고문헌

[1] Y Lee, T Vogt, J. A. Hriljac, J. Parise, G. Artioli, "Pressure-induced volume expansion of zeolites in the natrolite family", J. Am. Chem. Soc. 2002, 124 (19), 5466－5475.

[2] G. D. Gatta, N. Rotiroti, M. Fisch, M. Kadiyski, T. Armbruster, "Stability at high-pressure, elastic behaviour and pressure-induced structural evolution of $CsAlSi_5O_{12}$, a potential host for nuclear waste", Phys. Chem. Miner. 2008, 35 (9), 521－533.

[3] G. D. Gatta, N. Rotiroti, T. B. Ballaran, C. Sanchez-Valle, A. Pavese, "Elastic behavior and phase stability of pollucite, a potential host for nuclear waste", Am. Mineral. 2009, 94 (8－9), 1137－1143.

생체 콘크리트 불순물 함량에 따른 방사화 영향 분석

차길용[1], 김순영[1*], 이재민[2], 김용수[3]
[1]㈜래드코어, 대전광역시 유성구 테크노중앙로 65 남정빌딩 2차 503호
[2]TUV 라인란드코리아, 서울특별시 구로구 구로동 197-28 E&C 벤쳐드림타워 6
[3]한양대학교, 서울특별시 성동구 왕십리로 222
[*]sykim@radcore.co.kr

1. 서론

2014년 기준 전 세계적으로 149기의 상용 원전이 운전정지 상태이며, 이 가운데 18기의 원전만이 해체를 완료한 상태로 해체 경험은 소수의 원자력 선진국만이 보유하고 있다. 한편, 국내에서는 가장 오래된 상용 원전인 고리 1호기가 2017년까지 가동될 계획이므로, 다가오는 본격적인 원전 해체 시장을 대비하기 위해 원전 해체 기술 개발을 위한 연구가 활발히 진행되고 있다.

원전 해체는 운전종료, 계획수립, 방사능 오염물질 제거, 절단철거, 폐기물 처리, 환경복원의 단계로 이루어진다. 원전 운전종료 후 이루어지는 해체 계획을 수립하기 위해서는 원전 내 방사성 핵종 재고량을 평가하여야 한다.

방사화는 원전 내에서 방사성 핵종이 생성되는 요인 중 하나로, 압력용기 및 주변 구조물 내 원자핵이 노심에서 생성된 중성자와 반응하여 방사성 핵종으로 변하는 과정을 말한다. 원전 내에서 가장 광범위하게 방사화되는 영역은 원자로 압력용기 주변 생체 콘크리트이다. 콘크리트는 주로 Si, O, Ca 등으로 이루어져 있으며, 미량의 불순물을 포함하고 있다.

본 연구에서는 고리 1호기를 대상으로 압력용기 주변 생체 콘크리트 불순물 종류 및 함량에 의한 방사화 영향을 평가하였다. 평가 시 고리 1호기 생체 콘크리트 불순물 정보가 없으므로 참고자료의 불순물 정보를 적용하였다.

2. 본론

방사화 선원항을 계산하기 위해서는 노심에서 발생한 중성자의 수송해석을 통해 평가 영역의 중성자속 및 에너지 스펙트럼을 계산해야 하며, 계산된 중성자 정보와 물질정보를 적용하여 방사화 계산을 수행해야 한다.

본 연구에서 중성자속 및 에너지 스펙트럼 계산에는 몬테칼로 해석을 수행하는 MCNP5 전산코드(build1.60)[1]를 사용하였다. 또한, EASY-2007[2]에 포함된 FISPACT 전산코드를 사용하여 핵종별 방사화 선원항 계산을 수행하였다.

원자력안전위원회 고시 제2014-003호[3]에서는 핵종의 방사선적 특성에 따라 자체처분 허용농도를 별표로 제공하고 있으며, 방사성 폐기물 내 복수의 방사성 핵종이 포함된 경우 식 (1)과 같이 평가 할 것을 규정하고 있다.

$$\Sigma_{i=1}^{n} \frac{A_i}{EW_i} \quad (1)$$

EW_i = 핵종별 자체처분 허용농도
A_i = 폐기물 내 방사성 핵종의 비방사능

위 식에서 도출된 값이 1 이하일 때 면제, 1 초과 100 이하일 때 극저준위 폐기물, 100 초과일 때 저준위 폐기물로 각각 분류하고 있다.

Fig. 1은 고리 1호기 압력용기 및 주변을 모사한 그림으로, 본 연구에서의 평가 영역은 생체 콘크리트 표면에서 100~130 cm 내부에 위치한 영역이다.

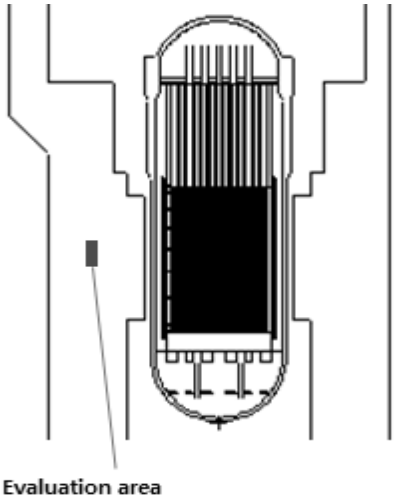


Fig. 1. Evaluation Area.

콘크리트의 물질정보는 ORNL/TM-2005/39[4]에서 제공하는 'ordinary concrete'의 화학적 조성을 적용하였으며, 콘크리트 불순물 정보는 Table 1과 같이 국내·외 5개 참고자료에서 제공하는 주요 방사화 핵종 7종에 대해 적용하였다.

Table 1. Concrete Impurity Concentration

Impurity Nuclide	Reaction	Impurity Concentration[ppm]				
		Ref. 1	Ref. 2	Ref. 3	Ref. 4	Ref. 5
Li-6	(n, α) H-3	-	-	-	20.00	20.00
Co-59	(n, γ) Co-60	3.92	10.00	2.20	10.00	9.80
Ni-58	(n, p) Co-58	-	-	-	30.00	25.84
Ni-62	(n, γ) Ni-63	-	-	2.20	-	1.38
Cs-133	(n, γ) Cs-134	1.20	1.20	0.03	1.20	1.30
Eu-151	(n, γ) Eu-152	0.17	0.80	0.0019	1.00	0.55
Eu-153	(n, γ) Eu-154			0.0019		

Ref.1: T. Zager et. Al., "Long-lived activation products in TRIGA Mark II research reactor concrete shield: Calculation and experiment," Journal of Nuclear Materials, 335 (2004) 379-386

Ref.2: K. Masumoto et. Al., "Evaluation of reactivity induced in the accelerator building and its application to decontamination work," Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 255, No. 3 (2003) 465-469

Ref.3: G. Hampel et. Al., "Calculation of the activity inventory for the TRIGA reactor at the medical university of Hannover(MHH) in preparation for dismantling the facility," WM'02 Conference, Feb. 24-28, 2002, Tuson, AZ, U.S.

Ref.4: Activation Analysis of PEFP

Ref.5: NRC, "Long lived activation products in reactor materials", NUREG-3474, US

Table 2. Results of the Activation Analysis

Item	No Impurity	Ref. 1	Ref. 2	Ref. 3	Ref. 4	Ref. 5
Specific activity (Bq/g)	3.99E+2	2.44E+3	8.62E+3	5.12E+2	1.27E+4	8.14E+3
Main Nuclide of Waste Level	C-14	Eu-152	Eu-152	Co-60	Eu-152	Eu-152
$\Sigma_{i=1}^{n}\frac{A_i}{EW_i}$	2	20,275	82,143	1,032	101,548	57,969
Waste Level	VLLW*	LLW**	LLW	LLW	LLW	LLW

*VLLW: very low level waste
**LLW: low level waste

Table 2는 불순물이 포함되지 않은 경우 및 Table 1에서 제시한 5개 참고자료의 불순물 정보를 적용한 경우에 대한 방사화 평가 결과이다. 불순물을 적용하지 않았을 경우에는 C-14이 폐기물 분류 시 기여도가 가장 큰 핵종으로 평가되었으나, 불순물 정보를 적용한 경우에는 Eu-152 또는 Co-60이 가장 높은 기여도를 갖는 것으로 평가되었다.

또한 불순물 정보를 적용하지 않는 계산은 극저준위로 폐기물 준위가 평가되었으며, 그 외 불순물을 적용한 모든 계산에서 저준위 폐기물로 평가되었다. 특히, 가장 방사능이 높게 평가된 4번 참고자료를 적용한 계산은 불순물이 미포함된 계산에 비해 비방사능은 30배, $\Sigma_{i=1}^{n}\frac{A_i}{EW_i}$ 값은 50,000배 큰 결과를 보임을 확인하였다.

3. 결론

본 연구에서는 원자로 압력용기 주변 생체 콘크리트 불순물의 종류 및 함량으로 인한 방사화 영향을 정량적으로 평가하였다.

평가 결과, 콘크리트 불순물에 의한 방사화 영향이 콘크리트 구성물에 의한 방사화 영향을 무시할 수 있을 정도로 크게 평가되었으며, 이로 인해 방사성 폐기물의 분류에도 영향을 미칠 수 있는 것으로 평가되었다.

본 연구의 결과는 원전 해체 시 방사화선원항 평가 및 규제에 활용될 수 있을 것으로 사료된다.

4. 감사의 글

본 연구는 원자력안전위원회에서 주관하는 원자력안전연구사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] 원자력 안전위원회, "방사성폐기물 분류 및 자체처분 기준에 관한 규정", 원자력 안전위원회 고시 제 2014-003호(2014).

[2] LANL, "MCNP5-A General Monte Carlo N-Particle Transport Code", LA-UR-03 – 1987(2003).

[3] R. A. Forrest, "European Activation System: EASY-2007", UKAEA FUS 533 (2007).

[4] L. M Petrie, P. B. Fox, and K. Lucius, "Standard Composition Library", ORNL/TM-2005/39(2009).

염소화 열중량분석기를 이용한 CsI의 염소화 반응속도 분석

전민구[1,2*], 최용택[1], 허진목[1], 박환서[1,2], 안도희[1,2]
[1]한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
[2]과학기술연합대학원대학교, 대전광역시 유성구 가정로 217
[*]minku@kaeri.re.kr

1. 서론

Cs은 후쿠시마 사고 이후 가장 주목받는 핵종 중 하나로, 높은 붕괴열과 방사능을 가지고 있다. 한국원자력연구원에서 수행중인 pyroprocessing에서도 Cs은 관심 핵종으로, 공정 진행에 따른 거취가 명확해야 향후 발생 폐기물의 특성 분석 및 처리를 용이하게 수행할 수 있다.

Pyroprocessing에서 발생하는 주요 폐기물들로는 기체 폐기물, 염 폐기물, 금속 폐기물이 있으며, 이 중 금속 폐기물은 폐 피복관 폐기물과 구조재 폐기물이 대부분을 차지한다. 구조재 폐기물은 pyroprocessing 공정 중에 핵연료와 직접 접촉할 기회가 적지만, 폐 피복관은 기계적 탈피복 혹은 산화 탈피복 후에도 여전히 사용후핵연료가 일부 존재하는 것으로 알려져 있다. 따라서, 폐 피복관 폐기물에는 소량의 Cs이 존재할 것으로 예상되며, Cs은 반응성이 높아 사용후핵연료 내에서 CsI, Cs_2TeO_4, Cs_2UO_4, Cs_2MoO_4 등 다양한 형태로 존재할 것으로 예상된다[1].

본 연구에서는 Cs의 화합물 중 CsI의 염소화 반응 거동에 대한 실험을 수행하였다. 염소화 반응은 폐 피복관 폐기물을 처리하기 위한 방법의 하나로 금속 Zr과 염소 기체를 반응시켜 휘발성이 높은 $ZrCl_4$를 형성함으로써 분리/회수를 통해 순수한 Zr을 선택적으로 회수하는 방법이다. 앞에서 언급한 바와 같이 Cs이 폐 피복관 내에 잔류하기 때문에 피복관 염소화 반응 시에 Cs의 거동에 대한 연구가 필요하다. 이는 Cs 화합물이 염소 기체와 반응하여 새로운 화합물을 형성하거나 휘발될 경우 회수되는 $ZrCl_4$의 순도에 영향을 미치기 때문이다.

2. 실험방법

2.1 HSC chemsitry를 이용한 계산

염소 기체와 CsI의 반응에 대한 분석을 위해 HSC chemistry code를 사용하여 반응 특성을 살펴보았다. Equilibrium compositions 모듈과 reaction equations 모듈을 사용하여 반응 거동 및 반응 생성물에 대한 분석을 수행하였다.

2.2 염소화 열중량분석기를 이용한 실험

본 연구에서는 염소 기체를 사용할 수 있도록 특별히 제작된 열중량분석기를 사용하였다[2]. 실험에 사용된 열중량분석기는 상부에 저울을 두고 stainless steel wire를 사용하여 저울 하부의 hook에 샘플을 거는 방법으로 설치하였다. 저울은 외부의 컴퓨터와 연결하여 무게 변화를 실시간으로 측정할 수 있도록 하였고, 염소 가스에 의한 피해를 막기 위해 플라스틱 케이스안에 넣고 아르곤 기체를 흘려주었다. 저울 하단 부분은 4 cm 직경의 석영 반응기를 제작하여 가열로 안에 설치하였으며, 가열로와 저울의 중간에서 염소 기체가 주입되도록 하였다. 본 연구에서는 각 실험에 2.00 g의 CsI를 사용하여 실험을 수행하였다.

3. 결과 및 논의

아래 식 (1), (2)는 HSC chemistry code의 Reaction equations를 이용한 400°C에서의 CsI와 염소 기체의 반응에 대한 계산 결과이다.

$$CsI + 1/2Cl_2(g) \leftrightarrow CsCl + I(g) \quad (1)$$
$$\Delta G = -4.93 \text{ kcal}, K = 3.99 \times 10^1$$

$$CsI + Cl_2(g) \leftrightarrow CsCl + ICl(g) \quad (2)$$
$$\Delta G = -19.00 \text{ kcal}, K = 1.48 \times 10^6$$

두 식의 비교에서 볼 수 있듯이, I(g) 보다는 ICl(g) 생성 반응이 깁스 자유에너지와 평형상수 결과상 더 유리한 것으로 확인되었다. 이러한 결과는 Equilibrium compositions 모듈을 이용한 결과에서도 동일하게 나타났다. ICl(g)의 생성은 실험을 통해서도 확인할 수 있었는데, 아래 Fig. 1에는 실험 중 찍은 열중량분석기의 outlet의 모습을

나타내었다. 그림에서 볼 수 있는 갈색의 기체는 ICl로 요오드 기체는 보라색을 나타낸다.

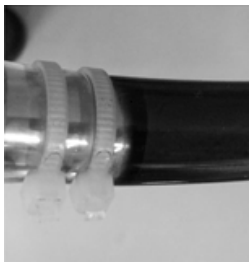


Fig. 1. Sample Image.

CsI와 염소 기체의 반응 속도식을 구하기 위해 염소 기체 유량, 분압, 반응 온도에 대한 실험을 수행하였다. 염소 기체 유량에 대한 실험을 통해 유량 증가가 반응 속도에 큰 영향을 미치는 것을 확인하였는데, 이는 곧 본 연구에서 적용한 반응 조건이 기체 확산 및 반응물 공급에 영향을 받는 영역에 있음을 의미한다. 따라서, 염소 분압에 대한 영향은 기체 확산 계수를 활용하여 표현할 수 있었으며, 실험 결과와의 비교를 통해 염소 기체 분압이 반응속도와 선형적인 관계임을 확인할 수 있었다. 고상-기상 반응에서 고상의 형태변화를 표현하는 geometry function은 분석을 통해 2차원의 nucleation-growth model을 선정하였다. 하지만 300-500°C 범위의 운전 조건에서 실험을 수행한 결과, 반응 온도에 의한 실험 결과의 차이는 구별이 불가능할 정도로 작았는데, 이는 온도에 의한 Arrhenius equation 값의 변화가 미미함을 의미한다. 따라서, 실험 결과들을 토대로 400°C, 120 mL/min total flow rate 조건에서 다음과 같이 CsI와 염소 기체의 반응식을 수립할 수 있었다.

$$\alpha = 1 - \mathrm{EXP}[-[69.08 \times (\frac{D_{Ar-Cl2} N_{Sh}}{L} \times \frac{pCl_2}{R_g T} \times A) \times t]^2] \quad (3)$$

4. 결론

열역학적 계산을 통해 폐 피복관 염소화 공정 조건에서 CsI가 염소 기체와 반응하여 CsCl과 ICl을 반응 생성물로 발생시키는 것을 확인하였다. 또한, 열중량분석기를 이용한 실험을 통해 2차원 nucleation-growth 모델이 geometry function으로 선정되었다. 염소 기체의 분압에 대한 효과는 기체상의 경계확산 수식을 통해 잘 표현할 수 있음을 확인하였으며, 본 연구의 반응조건에서 적용 가능한 CsI와 염소 기체의 반응속도식을 도출하였다[2].

5. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력연구개발사업을 통해 수행되었습니다. (NRF No. 2012M2A8A5025697)

6. 참고문헌

[1] M.K. Jeon, J.M. Shin, J.J. Park and G.I. Park, "Simulation of Cs behavior during the high temperature voloxidation process using the the HSC chemistry code", J. Nucl. Mater., 430, 37-43 (2012).

[2] M.K. Jeon, Y.T. Choi, C.H. Lee, D.Y. Kang, K.H. Kang, H.S. Park and D.H. Ahn, "Chlorination reaction kinetics of CsI under cladding hull waste treatment condition: A TGA study", J. Radioanal. Nucl. CHem., In Press.

3분과

제염해체 및 방사성폐기물 처리(Poster)

KOREAN RADIOACTIVE WASTE SOCIETY

방사성 농축폐액 시료 전처리 및 감마선 방출핵종 측정

박용준*, 손세철, 김영복, 최계천, 송병철, 안홍주, 하영경
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*jparky@kaeri.re.kr

1. 서론

방사선을 방출하는 방사성 핵종들에 대한 방사능 양을 정량적으로 정확하게 측정하기 위해서는 개별 시료에 대한 전처리 및 핵종 분리 등이 선행되어야 한다. 본 연구에서는 원전에서 발생되는 방사성 농축폐액 시료에 함유된 방사성 핵종을 정량하기 위한 전처리 및 핵종분석 절차에 대해 검토하였다. 전처리 과정에서는 농축폐액 시료를 증발 건조시키는 방법에 대한 적용결과와 시료 중에 과량으로 존재함으로서 핵종분석에 영향을 줄 수 있는 시료 내 보론 원소의 제거 방법에 대해 검토하였다. 최적의 시료 전처리 조건은 실제 시료에 적용하고, 시료 내 감마선 방출핵종들의 방사능을 측정하는데 활용하였다.

2. 본론

2.1 시료 전처리

2.1.1 농축폐액 분말시료 조제

농축폐액 용액의 경우는 일정량을 취해서 IR 램프를 이용하여 120℃에서 증발 건고하였다. 최종 분말의 양은 6~7% 정도이었으며, 이를 핵종분석을 위한 시료 전처리 용도로 사용하였다.

2.1.2 농축폐액 분말시료 특성분석

Table 1에 예로 제시한 핵종분석에 사용할 농축폐액 분말시료의 성분분석 결과에서 알 수 있듯이 시료 내에는 보론이 대략 20 mg/g 정도로 존재하는 것으로 나타났다. 이 정도의 보론 양은 시료를 용액화한 후 핵종을 분리 및 분석하는 경우에 보론이 다른 핵종의 분석결과에 크게 영향을 줄 것으로 판단된다. 따라서 과량의 보론 성분을 제거하는 과정이 필요하며, 이에 대한 방법을 검토하였다.

2.2 방사능 계측

2.2.1 감마선 분광분석 장치

감마선 분광분석 시스템은 순수 게르마늄 검출기, 전치 증폭기, 주 증폭기 및 다중채널 분석기로 구성하여 계측에 이용하였다. 순수 게르마늄 반도체 검출기는 60% 계측효율을 갖는 n형 반도체 검출기(GMX-60-P-A-S, ORTEC)를 사용하였으며, 극저준위 시료에 대한 감마선을 계측하기 위하여 추가로 바탕값이 낮은 극저준위 감마선 분광분석기(GMX-60-83-XLB-S, ORTEC)를 사용하였다.

2.2.2 감마선 방출핵종 계측

시료 용해용액 20 mL를 계측용 바이알에 넣은 다음 검출기로부터 5 cm 상단에 올려놓고 5,000초 동안 측정하였으며, 시료의 감마선 스펙트럼으로부터 스펙트럼 상에 나타난 감마선 방출핵종을 확인한 후 Gamma vision 소프트웨어를 이용하여 각 핵종의 peak 면적으로부터 해당 핵종의 방사능 농도를 계산하였다.

Table 1. Chemical composition of concentrated bottom samples

unit: μg/g

Element	SS-1	SS-2
B	19,064	17,497
Ca	238	1004
Fe	115	101
K	501	157
Na	4,576	13,791
Si	208	290

2.3 결과 및 논의

2.3.1 농축폐액 분말시료 내 보론 제거

산성 매질의 메탄올 용액에서 65℃ 정도로 가열하여 보론을 붕산 메틸에스테르 화합물로 만든 후 휘발시키는 방법과 염산과 보론이 혼합되어 있는 용액을 100℃ 이상으로 가열하여 보론을

BCl_3 형태로 휘발시키는 방법에 대해 검토하였으나 보론을 제거하기에는 적합하지 않은 방법인 것을 알 수 있었다. 그러나 불산을 사용하는 방법에서는 보론 제거에 좋은 결과를 얻을 수 있었다. 즉, 플라스틱 비커에 붕산 1 g을 취한 후 회수율 검증용액(Cr, Co, Ni, Fe, Nd, Sr, 각각 10 μg) 1 mL와, 일정량의 질산(1+1)을 첨가하고 HF를 1 mL 씩 수회 첨가하면서 증발시켜 보론을 휘발시킨 후 질산(1+1)으로 희석한 다음 붕소와 회수율 검증용액의 원소들을 ICP-AES로 분석한 결과, Table 2에서 알 수 있듯이 시료 내 대부분의 붕산이 제거되는 것으로 나타났다.

Table 2. Results of recovery test on sample pre-treatment

unit: μg/g

Element	RA-1A	RS-1B	RS-1C
B	0.0	0.0	0.0
Cr	0.45	0.45	0.48
Co	0.50	0.52	0.54
Ni	0.50	0.52	0.53
Fe	0.44	0.41	0.46
Sr	0.41	0.38	0.42

2.3.2 계측용 시료조제

농축폐액 분말 시료는 염산과 불산을 사용하여 보론을 제거한 후 HNO_3 6 mL + HCl 3 mL + HF 1 mL의 혼합산을 시료와 함께 산분해 용기에 넣은 다음 극초단파 산분해 장치로 용액화하였다. 용액화 전처리 후에 침전물이나 불용물은 생성되지 않았으며, 증류수를 이용하여 최종 용액의 부피를 20 mL로 희석하였다.

2.3.3 감마선 방출핵종 계측

상기 시료 전처리 단계에서 준비된 용액 시료 각각에 대하여 3회씩 5,000 초 동안 감마선 방출핵종을 계측하였다. 측정한 핵종은 ^{58}Co, ^{60}Co, ^{94}Nb, ^{134}Cs, ^{137}Cs, ^{144}Ce 등이고, 그 외에도 방사화 또는 핵분열성 핵종인 ^{110m}Ag, ^{57}Co, ^{51}Cr, ^{59}Fe, ^{54}Mn, ^{95}Nb, ^{125}Sb, ^{65}Zn 및 ^{95}Zr에 대한 방사능 농도를 측정하였다. Table 3에는 방사성 농축폐액 분말 시료 중에 포함된 대표적 감마선 방출핵종에 대한 방사능 농도 측정결과를 나타냈다.

3. 결론

상기 전처리 과정에서 검토한 보론 제거 방법을 실제 원전 발생 농축폐액 분말 시료에 적용하였다. 전처리 방법의 적용결과, 신뢰성 있는 계측결과를 얻을 수 있었으며, 이 방법은 베타선 방출핵종을 분리하는 경우에도 적용성이 좋을 것을 것으로 생각된다.

Table 3. Gamma activity of CBP samples

unit: μg/g

Sample	Nuclide			
	^{58}Co	^{60}Co	^{137}Cs	^{144}Ce
SA-1	7.11E+01	5.26E+03	1.87E+02	<1.84E+01
SA-2	6.11E+02	1.30E+03	2.11E+03	<1.91E+01
SA-3	3.60E+02	1.67E+03	4.30E+02	<1.51E+01

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 출연금 주요사업의 일환으로 수행하였음.

5. 참고문헌

[1] P. N. Palei, "Analytical Chemistry of Boron", Academy of Sciences of the USSR.
[2] ASTM C 1402-04, "Standard Guide for High-Resolution Gamma-Ray Spectroscopy of Soil Samples".
[3] ASTM D 3648-04, "Standard Practices for the Measurement of Radioactivity"
[4] ASTM D 3649-06, "Standard Practices for High-Resolution Gamma-Ray Spectroscopy of Water".
[5] EG&G ORTEC Co., "Gamma-vision Software Manual(Ver. 6.4)".

테크네튬 측정을 위한 고방사성 칼슘필터 용해

최광순*, 김영복, 이창헌, 김정석, 하영경
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*nkschoi@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료를 고온에서 산화할 때 휘발되는 테크네튬을 포집할 목적으로 칼슘이 주성분인 물질을 활용하여 필터로 사용하기 위한 연구를 우리 연구원 핵주기공정개발부 기체폐기물처리기술개발 과제에서 수행하고 있다[1]. 필터의 포집성능을 평가하기 위하여 계측장비로 필터에 포집된 핵종의 방사능을 측정하기 전에 먼저 용액으로 만들어야 한다. 방사성 시료는 취급하기가 쉽지 않으므로 비방사성 시료를 사용하여 방사성 시료 용해를 위한 예비실험을 수행하는 것이 좋다. 따라서 Fig. 1과 같은 모양의 칼슘필터를 분쇄한 다음 혼합산(염산-질산-불산)과 고성능 마이크로파 용해장치를 사용하여 시료의 용해 방법을 확립하였다[2]. 본 실험은 비방사성 칼슘필터를 사용하여 확립한 용해방법을 방사성 칼슘필터에 적용하고자 하였다.

2. 본론

2.1 실험

칼슘필터를 용해하기 전에 먼저 시료의 방사선 세기를 확인할 목적으로 표면선량률을 측정하여 Table 1에 나타내었다. 필터는 5 장을 겹쳐서 실험하였으며, Table 1에서 시료 번호가 증가할수록 필터는 사용후핵연료로부터 멀어지는 것을 의미한다. 시료 0.1 그램을 마이크로파 용해장치 용기에 넣고 염산 10 mL, 질산 4 mL 그리고 불산 0.25 mL 가하고 흔들어서 혼합한 다음 가열판에서 가열하였다. 용액이 투명하지 않아 마이크로파 용해장치 (MDS)를 작동하고 확인한 결과 용액이 투명하게 되었다. 그러나 일부 시료는 마이크로파 용해장치로 용해할 때 안전장치가 터져서 시료의 손실이 있었으므로 사용할 수 없었다. 또한 MDS로 용해할 때 시료의 방사능이 높아서 주위를 오염시킬 수 있으므로 MDS를 사용하지 않고 시료양을 줄이고 가열판에서 200℃로 가열하여 투명한 용액을 얻을 수 있었다.

2.2 결과 및 논의

시료를 용해한 다음 희석하고 감마분광기로 측정한 결과를 Table 2에 나타내었다. 제일 앞쪽 필터에서 시료 그램당 검출된 ^{134}Cs과 ^{137}Cs의 방사능은 각각 3.82E+07 Bq와 3.30E+08 Bq이었으며, ^{134}Cs과 ^{137}Cs의 방사능은 시료 번호가 증가할수록 감소하였다. 즉 필터 뒤쪽으로 갈수록 세슘이 낮게 포집되었다. 또한 ^{134}Cs과 ^{137}Cs은 모든 시료에서 검출되었으며, ^{144}Ce, ^{154}Eu, ^{155}Eu, ^{106}Ru, ^{125}Sb와 ^{95}Zr 핵종은 제일 뒤쪽 필터에서만 검출되었다. 반면에 ^{154}Eu 핵종은 첫 번째와 두 번째 필터에서 그리고 ^{155}Eu 핵종은 첫 번째 필터에서 세 번째 필터까지 검출되지 않았다. 그리고 포집된 총 방사능은 마지막 필터를 기준으로 제일 앞쪽 필터부터 4.8, 3.0, 1.8 및 1.2 배 높게 포집되었다.



Fig. 1. Calcium filter for the trapping of volatile technetium on pyroprocessing.

Table 1. Sample weight and surface radiation dose rate of calcium filters

Sample No	Weight (g)	Surface radiation dose rate (mSv/h)
1	0.67	4.7
2	0.73	3.0
3	0.74	1.8
4	0.63	1.1
5	0.59	1.0

Table 2. Gamma analytical results of calcium filters

Nuclide	1	2	3	4	5
^{134}Cs (Bq/g)	3.8E07	2.4E07	1.3E07	9.5E06	6.7E06
^{137}Cs (Bq/g)	3.3E08	2.0E08	1.2E08	8.0E07	6.0E07
^{144}Ce (Bq/g)					6.3E05
^{154}Eu (Bq/g)			1.2E05	4.9E05	5.4E06
^{155}Eu (Bq/g)				2.3E05	2.0E06
^{106}Ru (Bq/g)					3.8E05
^{125}Sb (Bq/g)					9.2E05
^{95}Zr (Bq/g)					3.8E05
Total	3.7E08	2.3E08	1.4E08	9.1E07	7.6E07

시료를 용해할 때 수십 밀리그램을 사용하였으므로 균질성을 확인하기 위하여 동일한 시료 4개를 각각 용해하고 감마분광기로 측정하였다. 전체 방사능은 1.83E+07 ± 9E+05 Bq/g이었으며, 상대표준편차는 4.9%로 나쁘지 않았다. 전체 방사능에서 ^{134}Cs과 ^{137}Cs가 차지하는 각각의 백분율은 1 번에서 4 번 시료는 약 10%와 90%이었으며, 5 번 시료는 8.8%와 78.4%이었다. 또한 4 번 시료 4 개를 각각 용해하고 측정한 ^{134}Cs과 ^{137}Cs의 평균 방사능과 표준편차는 각각 1.86E+06 ± 7E+04 Bq/g와 1.64E+07 ± 9E+05 Bq/g이었으며, 상대표준편차는 3.8%와 5.5%로 양호하였다.

반면에 세슘을 포집하기 위하여 칼슘 필터 앞쪽에 석탄회 필터를 사용하였으므로 석탄회 필터 시료를 용해하고 감마분광기로 측정한 시료 그램당 ^{134}Cs과 ^{137}Cs의 방사능은 각각 1.48E+09 Bq과 1.32E+10 Bq이었다. 즉 석탄회 필터에 포집된 ^{134}Cs과 ^{137}Cs의 방사능 농도는 칼슘 필터와 견주어 각각 797 배와 807 배 높았다.

Table 1에 나타내었듯이 시료의 표면선량률이 수 mSv/h로 높았으므로, 즉 칼슘필터에서 핵분열 생성물인 방사성 세슘이 너무 많이 검출되었다. 따라서 시료가 방사능이 높을 뿐만 아니라 미세한 분말 형태이므로 시료를 취급할 때 주위가 오염되지 않도록 각별히 주의하여야 한다.

3. 결론

고성능 마이크로파 용해장치를 사용하여 확립한 비방사성 칼슘필터의 용해방법은 방사능이 너무 높아서 본 시료에 적용할 수 없었으나 혼합산의 양을 동일하게 사용하고 시료 무게를 1/3로 감소하여 가열판으로 용해할 수 있었다. 칼슘 필터에 과량의 세슘이 검출되었다. 따라서 추후에 실험할 경우, 사용후핵연료의 양을 줄이거나 필터와 알루미나 접촉면을 촘촘하게 제작하여 그 틈새로 세슘이 통과하지 못하도록 실험을 디자인하는 것이 좋을 것으로 사료된다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래부 출연금 주요사업의 일환으로 수행하였습니다.

5. 참고문헌

[1] 신진명, 박장진, 이재원, 이정원, KAERI Pyro-processing 배기체 공정의 최적화, KAERI/TR-3884/2009.

[2] 최광순, 박양순, 손세철, 박용준, 송규석, "테크네튬 측정을 위한 마이크로파 용해장치를 이용한 칼슘필터 용해", 한국방사성폐기물학회 2012 추계학술대회 논문요약집, 10(2), 199-200, 10.11~12, 2012, 부산.

삼중수소 시료분석용 PE 바이알 처리방법의 최적화

주광태*, 이대수, 박세준, 이진한, 서지웅
주식회사 코라솔, 서울특별시 용산구 청파로 89길 4-12
*gtjoo@chol.com

1. 서론

현재 월성 1발전소에서 삼중수소 시료분석 시 사용된 PE 바이알은 한 달 평균 25 kg씩 발생하고 있다. 용액은 수작업으로 따라서 버리고 일정량 이상이 되면 바이알 전용 세척기로 세척한 후 폐기하고 있으나 500 L에 달하는 세척수가 2차 폐기물로 생성된다. 폐용액은 환경 유해성 때문에 전량 회수하여 보관하고 있는데 기존 처리법은 바이알에 잔류하는 용액의 양이 많아 악취와 작업 환경의 오염을 유발한다.

본 논문에서는 PE 바이알 처리방법을 개선하기 위한 방안으로 흡입기를 적용하여 잔류 용액량을 줄이고 2차 폐기물(세척수)을 저감하려는 최적화 실험을 시행하였다.

2. 본론

2.1 실험 환경

삼중수소 시료 분석은 PerkinElmer사의 액체섬광계수기(LSC, Tri-Carb 2910 TR)를 사용하였으며, 흡입기는 시중에 유통되는 실험실용 흡입장비를 사용하였다. 그 외 바이알과 형광액, 삼중수소 시료 등은 모두 월성 1발전소 내 환경에서 수행하였다.

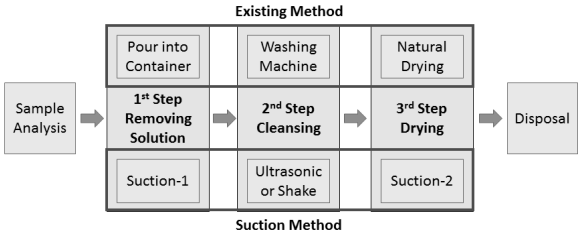


Fig. 1. Flow Diagram for Disposal of Vial.

2.2 분석 장비 일반오차 측정

본 실험에 앞서 분석 장비의 일반오차를 확인하였다. 미사용 바이알에 동일한 조건으로 측정하였음에도 표준편차가 평균의 25%이상일 정도로 크다. 증류수 1 ml는 모의 삼중수소 시료로 가정하였다. 발전소에서는 일반적으로 40 DPM 이하를 Background 값으로 판단하고 있다.

Table 1. Measurement Error of the LSC

시료	형광액 10ml	형광액 10ml +증류수 1ml
분석차수	DPM	DPM
1	16.3	37.7
2	38.7	23.9
3	27.1	19.7
4	28.9	26.5
5	16.0	21.1
6	17.8	15.9
7	26.7	20.7
8	16.2	30.5
9	30.3	19.7
10	32.2	25.6
평균	25.02	24.13
표준편차	7.59	6.00

2.3 세척 단계 최적화 실험

먼저 세척 세제의 농도가 바이알 세척에 미치는 영향을 확인하였다. 기존 사용 중인 분말형태의 세제로서 이 과정에 초음파 세척기를 사용하였다.

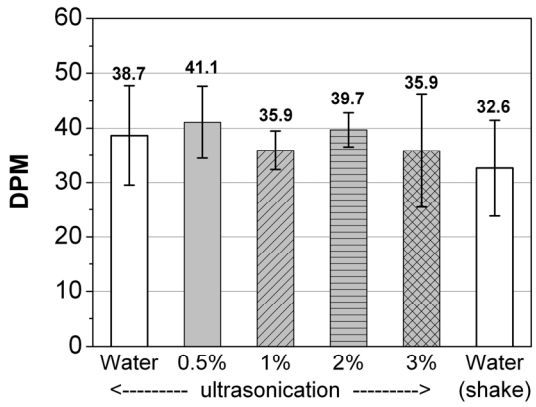


Fig. 2. H-3 DPM for Concentration of Detergents.

세제의 농도와 관계없이 오차범위 내에서 큰 차이를 보이지 않았으며 세제를 사용하지 않거나 가볍게 흔들기만 하여도 세척에는 문제가 없음을 확인하였다.

2.4 본 실험

2.4.1 흡입방법의 효과

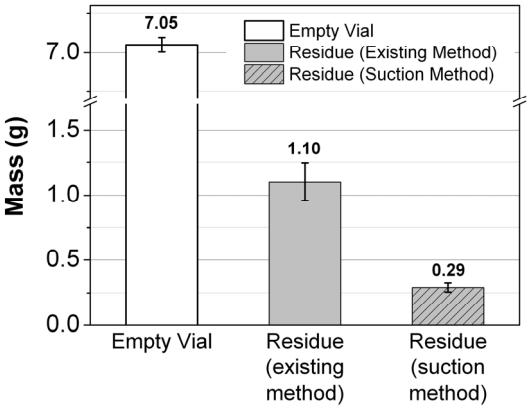


Fig. 3. Mass of Residue after 1st Step in each Method.

기존방법으로 용액을 수작업으로 따라버린 후에 바이알에 남은 시료의 질량보다 흡입기로 1회 흡입 후의 시료 질량이 73.5% 감소하였다.

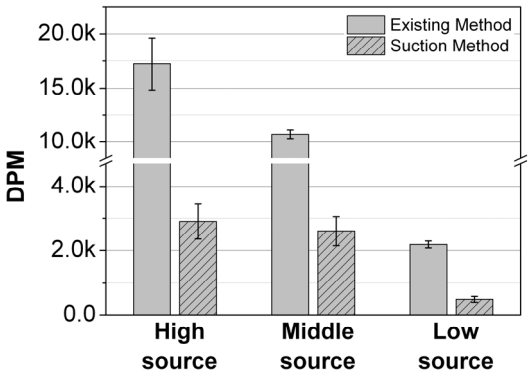


Fig. 4. H-3 DPM after 1st Step in each Method.

이에 따른 삼중수소의 농도 또한 감소하였다. 원 시료(original source)가 고농도(145,000DPM), 중농도(105,000DPM), 저농도(25,000DPM)일 때 감소율은 각각 83.2% 75.7%, 77.7%로 고농도의 원 시료일 때 흡입방법의 효과가 크게 나타났다.

2.4.2 최적화한 처리방법 분석

기존 세척과정에서는 원시료 농도와 무관하게 혼합세척하고 있다. 약간의 세제가 투입되고 약 1시간이 소요되며 이때 약 500L의 세척수가 필요하다. 뚜껑을 분리하고 잔류 용액이 남은 상태로 1회 세척에 25kg의 바이알이 투입되므로 수량은 약 3900개 정도로 추산된다.

$$[Mass\ Calculation] \quad (1)$$
$$Empty\ Vial - Lid + Residue$$
$$= 7.05 - 1.71 + 1.10 = 6.44\,(g)$$

흡입방법에서는 용액을 1차 흡입한 바이알에 10 ml의 물을 넣어 손으로 가볍게 몇 번 흔든 후, 세척수를 2차 흡입했다. 이 방법을 사용 시 세척하는 바이알의 수량으로 계산하면 약 39 L의 세척수가 필요하며 이는 기존 대비 약 92.3%가 감소한 량이다.

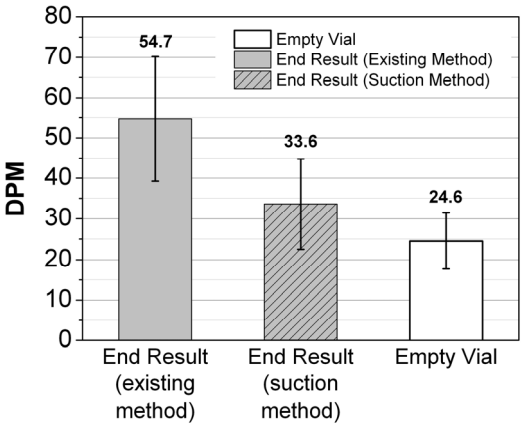


Fig. 5. H-3 DPM for after 3rd Step in each Method.

기존방법의 결과는 오차범위 밖에서 빈 바이알보다 높은 값을 보이나 흡입방법의 경우 오차범위 내에서 빈 바이알과 유사한 결과를 보인다.

3. 결론

본 논문에서 최적화한 흡입방법을 사용할 경우 기존의 처리방법보다 바이알 내의 폐용액 잔류량이 적고, 세척기를 사용하지 않아도 되므로 다량의 2차 폐기물인 세척수를 줄일 수 있다. 최종적으로 처리되는 바이알의 오염도 또한 미사용 빈 바이알 수준으로 낮출 수 있다.

4. 참고문헌

[1] "처분 제한치 미만의 방사성폐기물 자체처분 절차", 월성1발전소 절차서 표준방사-8630.
[2] "수질 및 수생태계 보전에 관한 법률 시행규칙", 환경부령 제586호.

한국표준원전 증기발생기 전열관 가동중검사의 X-Probe 검사 수행 시 예상되는 방사성폐기물 감소량 분석

심은섭*
㈜오르비텍, 서울특별시 금천구 범안로 1130 디지털엠파이어 8층 807호
*usshim@orbitech.co.kr

1. 서론

국내 증기발생기 전열관 가동중검사는 와전류검사법으로 수행되며 검사방법은 크게 Bobbin 검사와 MRPC 검사로 구분되고 검사 시 발생되는 방사성폐기물은 Bobbin 검사에서 사용되는 Bobbin Probe와 MRPC 검사에서 사용되는 Motor Unit이 대부분을 차지한다.

한국표준원전(Korea Standard Nuclear Power plant ; KSNP)은 2015년 4월 현재 국내 가동중인 원자력발전소 23개호기 중 가장 많은 11개호기를 차지하며, 증기발생기 1대당 전열관의 수가 8,214개 또는 8,340개로 타 모델의 원자력발전소 보다 상대적으로 많은 전열관의 수를 갖고 있으므로 증기발생기 전열관 가동중검사 시 발생하는 방사성폐기물의 발생량도 타 모델의 발전소 보다 많다.

따라서, 본 발표에서는 해외 원전의 증기발생기 검사에서 새로이 적용되고 있는 X-Probe를 이용한 검사 사례를 검토하여 한국표준원전 검사에 적용 시 예상되는 방사성폐기물 감소량을 분석하고자 한다.

2. 본론

2.1 국내 원전의 와전류검사 방법

와전류검사 방법에는 여러 가지의 검사방법이 있으며 국내 원전 증기발생기 검사에서는 크게 두 가지의 검사방법이 적용되고 있다. 그 방법은 전열관의 전체 길이를 대상으로 마모지시 및 균열지시 등의 전열관 이상지시가 있는 부위를 빠른 시간에 찾아낼 수 있는 Bobbin 검사와 결함이 발행할 가능성이 높은 부위와 Bobbin 검사에서 이상지시가 확인된 부위를 정밀하게 검사하여 이상지시의 종류를 확인하는 MRPC 검사가 그것이다.

2.2 해외 원전의 최신 와전류검사 방법

해외 원전의 증기발생기 검사에는 국내 원전의 와전류검사 방법 외에 X-Probe라는 Array 탐촉자를 사용한 와전류검사 방법이 새로이 적용되고 있으며 2012년부터 2014년까지 55개 원전에서 검사가 수행되었다[1].

2012년도 미국의 Prairie Island Unit 1에서는 X-Probe를 사용한 Single Pass 검사가 수행되었으며, Single Pass 검사란 Bobbin 검사에서 이상지시가 검출된 부위를 MRPC 검사로 정밀검사를 수행하여 이상지시의 종류를 확인하는 두 번의 검사가 단 한 번의 검사로 모두 이루어지는 검사를 말한다.

이전까지는 전열관 전체(16.99~26.40 m)에 대하여 MRPC 검사를 수행하기에는 MRPC 검사속도(12.7 mm/sec)가 느리기 때문에 국내 및 해외에서 Single Pass 검사를 적용할 수 없었으나 X-Probe 검사는 빠른 속도(890 mm/sec)[2]로 전열관의 전체 길이를 MRPC 검사한 것과 동일하게 검사를 수행할 수 있기 때문에 Single Pass 검사를 적용할 수 있다.

2.3 해외 원전의 X-Probe 사용량

Prairie Island Unit 1의 탐촉자 사용량은 Table 1과 같으며, 2012년 검사는 곡률반경이 작은 낮은 Row(1~7)의 U-Bend는 Bobbin Probe로 직관부는 X-Probe로 검사하고 Row 8 이상은 전체 구간을 X-Probe로 검사한 사용량이다.

Table 1. Usage probe of Prairie Island Unit 1

Year	2006	2008	2012
Bobbin Probe(ea)	28	22	6
Motor Unit(ea)	4	5	-
X-Probe(ea)	-	-	12
Total	32	27	18

2006년과 2008년의 평균 Bobbin Probe 및 Motor Unit의 사용량는 약 30개이며 2012년 Bobbin Probe 및 X-Probe의 사용량은 18개로 폐기물발생량은 40% 감소되었으며 검사기간은 16%

단축되었고 피폭방사선량도 18%의 줄어든 것으로 확인되었다[1].

2.4 한국표전원전의 탐촉자 사용량 계산

㈜오르비텍 ISI사업본부가 수행한 8회의 한국표전원전 증기발생기 전열관 가동중검사의 탐촉자 사용량은 Table 2와 같으며, 검사 수행 시 사용하였던 Bobbin Probe와 MRPC 검사용 Motor Unit의 평균 사용량은 약 76개였다.

이 결과를 Prairie Island Unit 1의 사례를 적용하여 예상되는 Bobbin Probe 및 X-Probe의 사용량을 계산하면 약 46개로 예상된다.

Table 2. Probe usage of KSNP

Unit	Bobbin Probe(ea)	Motor Unit(ea)	Total(ea)
울진3호기 10차	39	25	64
울진4호기 10차	39	28	67
영광6호기 5차	60	14	74
영광5호기 6차	68	23	91
영광3호기 12차	54	17	71
영광3호기 13차	41	24	65
영광4호기 12차	60	43	103
영광4호기 13차	43	29	72
Average	51	25	76

2.5 발생되는 방사성폐기물 드럼 산출

폐기되는 Bobbin Probe 60개의 양은 Fig. 1과 같으며 Bobbin Probe 및 Motor Unit 20개당 200ℓ용 방사성폐기물 일반드럼 1드럼의 부피에 해당한다.



Fig. 1. Photo of Bobbin Probe 60ea.

현재의 Bobbin 검사와 MRPC 검사방법으로 수행되고 있는 한국표준원전의 Bobbin Probe 및 Motor Unit의 평균 사용량은 약 76개이며 이 수량은 200ℓ용 방사성폐기물 일반드럼의 약 4드럼에 해당하는 양으로 환산된다.

해외 원전에서 새로이 적용하고 있는 X-Probe를 이용한 검사방법으로 수행하였을 경우 예상되는 Bobbin Probe 및 X-Probe의 예상 사용량은 약 46개이며 이 수량은 200ℓ용 방사성폐기물 일반드럼의 약 2.5드럼에 해당하는 양으로 환산된다.

3. 결론

해외 원전에서 새로이 적용하고 있는 X-Probe라는 Array 탐촉자를 사용한 와전류검사 방법을 한국표준원전 검사에 적용할 경우 약 40%의 방사성폐기물 발생량 감소가 예상되며, 그 양은 200ℓ용 방사성폐기물 일반드럼 약 1.5개에 해당하는 양이다.

Single Pass 검사 적용으로 Prairie Island Unit 1의 검사기간이 16% 단축되었으므로 Prairie Island Unit 1보다 검사수량이 훨씬 많은 한국표준원전의 경우는 20% 이상의 검사기간 단축이 예상된다.

또한, Single Pass 검사 적용과 검사시간의 단축으로 Prairie Island Unit 1의 피폭방사선량이 18% 줄어들었으므로 Prairie Island Unit 1 보다 검사수량이 더 많고 검사기간이 더 긴 한국표준원전의 경우는 20% 이상 피폭방사선량이 줄어들 것으로 예상된다.

4. 참고문헌

[1] Tom O'Dell, "X-Probe", 2014 Zetec Korea SG Technical Training.

[2] Nicholas Cardillo, "X-Probe Benefits & Applications", 2013 Zetec Korea Customer Symposium.

[3] ㈜오르비텍, "증기발생기 전열관 가동중검사 최종보고서", (2008 ~ 2012).

Hybrid 흡착제를 이용한 누설 오염수중의 ^{137}Cs, ^{60}Co 핵종 제거기술 개발

허 준[1], 김승일[1], 박종석[1], 김현기[1], 이세반[1], 조영수[1], 이만길[2], 강덕원[1*]
[1]㈜휴비스워터, 경기도 시흥시 공단 1대로 322번길
[2]한국수력원자력㈜, 전남 영광군 홍농읍 홍농로 846
hj5468@huviswater.com

1. 서 론

동일본 대지진 쓰나미로 인한 후쿠시마 원전사고 이후 국민들이 원자력발전소나 방사성폐기물 처리시설 등에서 발생하는 방사성물질과 관련한 작은 사고에도 매우 민감해졌다. 지난 수년간 국내에서도 경미한 지진의 발생빈도가 증가하는 경향을 보이고 있으며, 이는 더 이상 지진에 대한 안전지대가 아니라는 의미라고 볼 수 있을 것이다. 국내에도 방사성폐기물 처분시설의 1단계 처분장의 조기 포화가 예상되어 2단계 처분장 건설을 계획하고 있으며, 23기의 원자력발전소 또한 가동되고 있기 때문에 발생할 수 있는 원전사고 및 자연재해에 대한 철저한 대비가 필요하다고 본다. 후쿠시마 사고 이후 일본은 다양한 제염기술을 개발 중에 있으며, 특히 Cs, Co 등에 의해 오염된 물 또는 토양 등을 제염/복구하는 데 기술력을 집중하고 있다. 이들 방사성물질은 확산의 특성 상 환경으로 방출될 경우 인근 하천이나 지하수 및 농업용수 등에 광범위하게 오염되게 된다. 일본의 경우는 이러한 오염물질의 확산을 차단하기 위해 방사성 물질이 누출되거나 누출가능성이 있는 지점에 부직포 형태의 흡착·제거제를 이용한 적용연구를 수행한 바 있다.

본 실험에서는 자체개발한 흡착제를 이용해 수중의 ^{137}Cs, ^{60}Co 방사성핵종에 대한 제염 효율평가 실험을 수행하였다.

2. 본 론

2.1 Cs, Co 표준용액 제작

실험을 위해 증류수에 $^{137}CsCl$과 $^{60}CoCl_2$ in 0.1M HCl 용액을 희석하여 임의로 오염된 오염수 200 mL를 제작하였다. 이를 20 mL 실린더형 비커를 이용하여 HP(Ge) 검출기로 계측하였으며, 계측시간은 1,000 초로 설정하였다. 계측결과 표준용액의 방사능은 Table 1과 같았다.

Table 1. Specific Activity of Standard Solution

Nuclide	Specific Activity(Bq/mL)	Note
^{137}Cs	5.61 ± 0.18	
^{60}Co	4.64 ± 0.12	

2.2 흡착제 제작

총 3종의 선택성 흡착제를 개발하였다. 첫째로 흡착능력이 우수한 제올라이트를 흡착/도포한 흡착제를 제작하였다. 이에 더해 Co 핵종에 대해 선택적 흡착능력이 뛰어난 무기형 이온교환수지를 부착한 2중 부직포 형태의 흡착제를 제작하였으며, 마지막으로 이 흡착제가 처분장에서 사용될 경우 300년 이상의 오랜 수명을 보장하기 위해 무기섬유인 유리섬유를 덧댄 흡착제를 개발하였다.

2.3 실험방법

표준용액이 담긴 용기 상부에 교반기를 설치하고, 주입깔때기 안쪽에는 면적 8 cm^2의 흡착제를 설치하였다. 교반기를 가동시켜 0.3 mL/min의 유량으로 깔때기에 흘려보내고 흡착제를 통과한 용액 20 mL를 실린더형 비커에 받아 HP(Ge) 검출기를 이용하여 방사능을 계측하였다. 각 흡착제에 대한 방사능 포화여부 등을 판단하기 위해 1차 실험 실시 후 이를 건조시켜 2차 실험을 실시하였다. 제거공정 실험의 개략도를 Fig. 1에 나타내었다.[환경 중(처분시설 내)에 발생하는 Cs 오염수의 최대 상정 농도는 3.2 MBq/kg로 함]

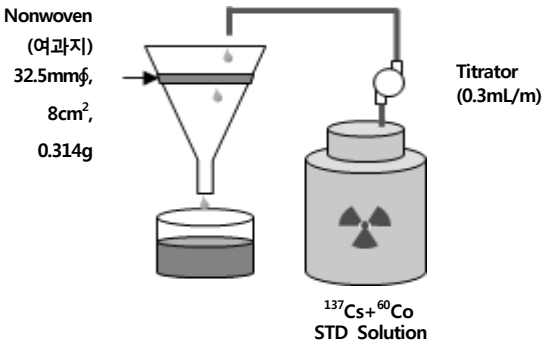


Fig. 1. Experimental Apparatus for Removal of Activity.

2.4 실험결과

교반기를 이용하여 표준 오염수를 각 흡착제에 여과시킨 후 여과된 용액 20 mL를 실린더형 비커에 담아 HP(Ge) 검출기로 계측하였다. 여과 전·후 각각의 계측결과를 비교하여 흡착제에 대한 제염효율을 평가하였다. 3가지 종류의 흡착제(Cs 부직포, Cs부직포+Co무기흡착물질, Cs부직포+Co 무기흡착물질+Glass-fiber)에 대한 제염결과는 Table 2에 나타내었고, 각 흡착제에 대한 제염효율은 Fig. 2와 같다.

Table 2. Decontamination Performance on Each Sample

(Unit : Bq/mL)

Sample \ Nuclide	1st		2nd	
	^{137}Cs	^{60}Co	^{137}Cs	^{60}Co
1. STD	5.61±0.18	4.64±0.12	5.61±0.18	4.64±0.12
2. Cs-Nonwoven	0.19±0.02	1.02±0.04	0.11±0.01	1.27±0.05
3. Cs-Nonwoven+InorganicMedia	0.07±0.01	0.59±0.03	MDA	0.66±0.03
4. Cs-Nonwoven+InorganicMedia+Glass-fiber	0.08±0.01	0.52±0.03	MDA	0.59±0.03

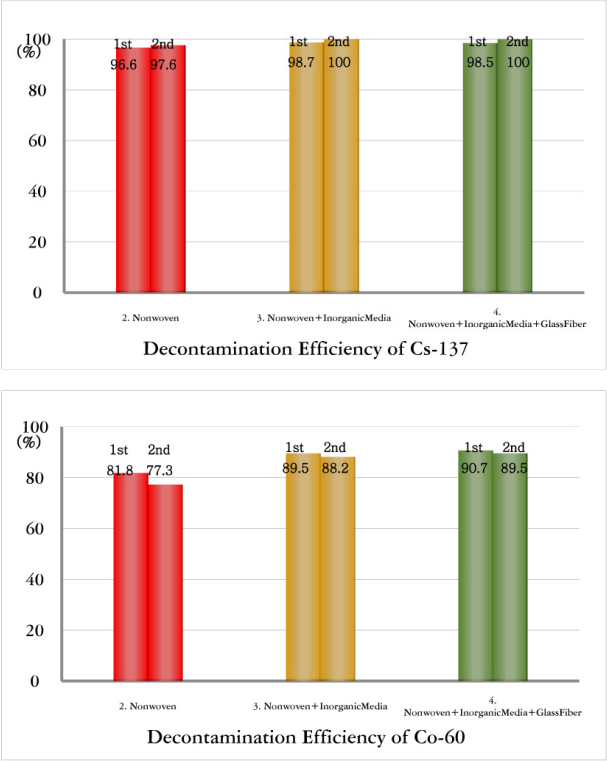


Fig. 2. Decontamination Efficiency Using γ Capture Felts.

3. 결 론

개발흡착제를 이용한 제염성능 평가 결과, ^{137}Cs은 96.6% 이상, ^{60}Co은 77.3% 이상의 제염효율을 얻었다. 핵종제거 효율을 높이기 위해서는 Cs 제거용 흡착제를 단독으로 사용하는 것 보다 Co 핵종에 대한 선택성을 지닌 흡착제와 결합시킨 선택성 복합 흡착제를 이용하는 것이 우수한 것으로 나타났다. 영구처분장에 인도되는 방사성폐기물의 보다 안전한 관리를 위해서는 어떠한 환경에 노출되어도 장기간 동안 흡착제 재질의 흡착성능과 재질의 건전성을 유지할 수 있는 무기흡착제(유리섬유/탄소섬유) 재질을 사용하여야만 오랜 기간 동안 수명이 유지될 수 있다. 금번에 개발한 흡착제의 성능평가 결과 ^{137}Cs 핵종의 경우, 처리시간이 경과하고 오염수의 투과량이 증가함에도 제염효율이 유지된 반면, ^{60}Co 핵종은 ^{137}Cs에 비해 효율이 상대적으로 낮아 향후 ^{60}Co 핵종에 대한 제거효율을 향상시킬 수 있는 흡착기술의 개발 및 성능시험을 추가로 수행할 계획이다. 또한, 장기간 운영에 따른 사용흡착제의 포화도를 예측·평가하기 위해 흡착제의 면적에 대비한 최대 제염효과 및 포화방사능 평가실험을 단기공정이 아닌 연속 순환공정으로 진행할 예정이다. 여러 실험들을 통해 흡착제의 수명을 장기간동안 확실하게 보장할 수 있고 제염성능의 정확한 지표가 확립된다면, 이를 이용하여 원자력발전소의 예기치 않은 사고로 인한 환경 누출 방사능 물질의 오염 확산을 최소화하고 오염 물질 제거에 탄력적인 대응을 할 수 있을 뿐 아니라, 방사성폐기물 처분장에 저장된 방사성 물질의 누설 억제를 통해 환경으로의 이동 가능성을 다중 방호벽 개념으로 차단시키는데 활용할 수 있을 것으로 기대된다. 또한, 다량의 고 방사성 오염수 저장시설 또는 액체 방사성물질의 누설 가능성이 있는 각종 원자력시설 등에서도 유용하게 사용될 수 있을 것으로 기대된다.

4. 참고문헌

[1] 이근영, 박민성, 이일희, 김광욱, 정동용, 문제권, "Cs 오염수 처리를 위한 hybrid 흡착제의 합성과 특성 연구", 방사성폐기물학회지, 243-244, 2014.

[2] 양희만, 홍상범, 최용석, 이근우, 서범경, 문제권, "방사성세슘 제거를 위한 자성흡착제/하이드로젤 복합소재의 제조", 방사성폐기물학회 학술논문요약집, 2014.

Copper Ferrocyanide가 고정된 메조포러스 실리카 자성 흡착제를 이용한 세슘의 제거

양다솜[1*], 이현규[2], 오원진[2], 최상준[2], 이기원[1]
[1]한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
[2]경북대학교, 대구광역시 북구 대학로 80
[*]dsyang@kaeri.re.kr

1. 서론

원전 제염해체 시 다양한 성상의 방사성 폐기물이 발생하며 전해제염, 화학제염을 통해 발생한 기상 및 액상의 2차 폐기물 내에는 중 저준위의 높은 농도의 방사성 핵종이 존재한다. 이러한 제염 폐기물 내 방사능 준위의 효율적 감소는 곧 방사성 폐기물 처분량의 감소로 이어지며, 이러한 원천처리 기술의 개발은 폐기물 감량 측면뿐만 아니라 자체 처분 비용 감소로도 이어진다. 따라서, 본 연구에서는 선행연구 결과들을 바탕으로 흡착제 회수를 용이하게 하는 강자성을 띤 magnetite를 합성하여 지지체인 메조포러스 실리카를 magnetite에 core-shell 형태로 coating하고 여기에 페로시안화 구리를 도입시켜 세슘을 선택적으로 흡착 제거 후 자력을 이용하여 쉽게 회수할 수 있는 자성 흡착제를 개발하고 이에 대한 특성을 연구하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

본 연구에 사용된 magnetite(Fe_3O_4)는 Ursachi et al.(2011)의 연구 결과를 바탕으로 제조하였다. 200 mL의 dagassed 초순수에 $FeCl_3{\cdot}6H_2O$와 $FeSO_4{\cdot}7H_2O$을 넣고 NH_4OH를 이용하여 pH 10으로 맞춘 후 N_2 gas 하에서 교반하였다. 80℃에서 30 분 가열 후 물과 에탄올로 여러 번 세척하여 건조하였다. 90 mL의 ethanol에 magnetite 0.3 g을 넣고 30 분간 ultrasonic으로 sonication하였다. 30 분 후, CTAB, 초순수, 암모니아수, ethanol을 넣고 15 분간 sonication하였다. 15 분 뒤 TEOS를 넣고 2 시간 동안 sonication한 후, 0.003 N/ethanol을 이용하여 80℃에서 2 시간 동안 sonication하여 초순수로 여러 번 세척하여 건조하였다. 0.25 M $CuCl_2{\cdot}H_2O$를 건조한 mag@silica가 들어있는 반응기에 넣고 2 시간 동안 sonication한 후 2-propanol로 세 번 세척하여 원심분리 후 건조하였다. 0.25 M $Na_4Fe(CN)_6$를 건조한 mag@silica-Cu가 들어있는 반응기에 넣고 2 시간 동안 sonication한 후 초순수로 여러 번 세척하여 원심분리 후 건조하였다. 합성한 메조포러스 실리카 자성 흡착제의 물성평가(VSM, HT-TEM, FE-SEM, BET, XRF, PSA)를 통해 자성 특성평가 및 흡착제의 입자 분포, 크기 및 형태 등을 관찰하였으며 염 존재 여부에 따른 등온흡착 실험을 통해 흡착능을 평가하였다.

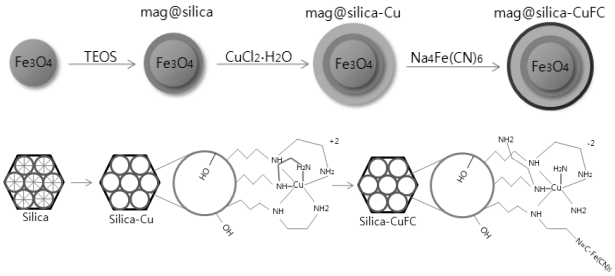


Fig. 1. Synthesis of mag@silica-CuFC.

2.2 실험결과

합성한 메조포러스 실리카 자성흡착제의 형태를 관찰하고자 HR-TEM 분석결과 Fig. 2와 같이 magnetite 주변에 silica가 core-shell 형태로 coating된 것을 확인하였다. 세슘의 흡착 거동 및 흡착능을 알아보기 위해 세슘의 초기농도를 0.01 mM에서 15 mM로 하여 mag@silica 흡착제와 mag@silica-CuFC 흡착제에 대한 등온흡착 실험을 수행하였고, 흡착 실험 결과를 Langmuir 모델을 이용하여 세슘의 흡착 거동을 살펴보았다. 등온흡착 실험 결과는 Fig. 3과 같으며 mag@silica 흡착제의 세슘에 대한 흡착량은 0.38 mmol/g, R^2 값은 0.987이고, mag@silica-CuFC 흡착제의 흡착능은 0.74 mmol/g, R^2 값은 0.983으로 나타났다. 이를 통해 magnetite에 core-shell 형태로 coating된 메조포러스 실리카에 결합된 copper ferrocyanide로 인해 세슘에 대한 최대 흡착량이 증가하는 것으로 나타났다.

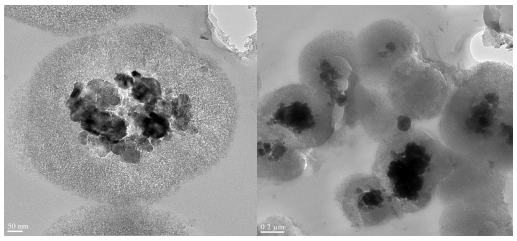


Fig. 2. HR-TEM image of mag@silica-CuFC.

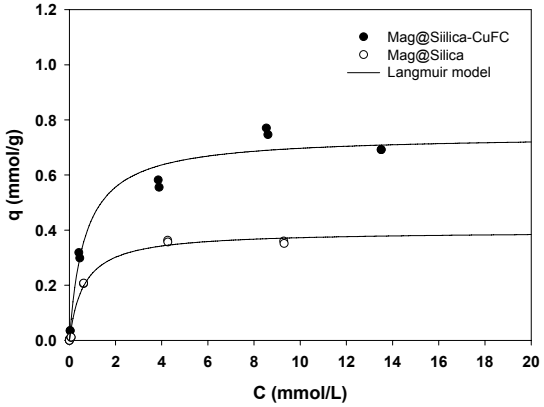


Fig. 3. Sorption isotherm of Cs onto mag@silica-CuFC..

Table 1. The model parameters of sorption of Cs onto mag@silica-CuFC

	Langmuir			
	b_L(L/mmol)	Q^0(mmol/g)	R^2	SSE
mag@silica-CuFC	1.48±0.28	0.74±0.02	0.983	0.02
mag@silica	1.60±0.27	0.39±0.01	0.987	0.01

3. 결론

본 연구 결과 개발한 copper ferrocyanide가 고정된 메조포러스 실리카 자성 흡착제는 세슘에 대한 선택적 흡착이 이루어짐을 확인하였으며 합성한 흡착제의 세슘에 대한 흡착 능력은 NaCl의 농도에 의한 영향을 받지 않는 것으로 나타나 선택적으로 세슘을 흡착 제거할 수 있음을 확인하였다. 세슘에 대한 흡착능이 기존에 사용되고 있는 CST 흡착제(Cs 2 mM 모의폐액에서의 q_e 값은 0.73 mmol/g)와 비교하였을 때 큰 차이가 없으며 실제 흡착제의 세슘 제거는 실리카 표면의 copper ferrocyanide에 의한 것이다. 따라서 합성한 흡착제의 g당 magnetite의 함량을 고려할 때 흡착제의 세슘에 대한 흡착 효율이 높음을 알 수 있다. 또한 자성 흡착제를 이용하여 방사성 모의폐액 내 방사성 핵종인 세슘 흡착제거 후 자성을 이용하여 흡착제 회수 및 분리가 용이함을 확인하였다.

4. 참고문헌

[1] T. D. Clarke, C. M. Wai, "Selective removal of cesium from acid solutions with immobilized copper ferrocyanide", Anal. Chem. 70, 3708-3711 (1998).

[2] I. Ursachi, A. Vasile, A. Ianculescu, E. Vasile, A. Stancu, "Ultrasonic-assisted synthesis and magnetic studies of iron oxide/MCM-41 nanocomposite", Mater. Chem. Phys. 130, 1251-1259 (2011).

[3] Y. Lin, G. Fryxell, H. Wu, M. Engelhard, "Selective sorption of cesium using self-assembled monolayers on mesoporous supports", Environ. Sci. Technol. 35, 3962-3966 (2001).

세슘이온의 선택적 제거를 위한 Metal Ferrocyanide/MWCNTs 복합체의 제조 및 특성연구

이현규*, 김동연, 최정원, 오원진, 최상준
경북대학교, 대구광역시 북구 대학로 80
*lhk7933@knu.ac.kr

1. 서론

원전의 운영 또는 중대사고 시 발생하는 방사성 액체폐기물의 처리, 처분 및 관리 관점에서 가장 중요한 핵종은 Cs, Sr, Co이다. 이 중에 반감기가 긴 Cs, Sr은 후쿠시마 원전 사고 시 용융된 핵연료의 냉각과정에서 발생되는 고염냉각수에 상대적으로 많은 양이 용해되어 있다. 이러한 이유로 Cs, Sr을 선택적으로 분리하기 위한 연구들이 활발히 진행되어 왔다.

metal ferrocyanide는 Cs을 선택적으로 흡착제거할 수 있으며, metal ferrocyanide를 구성하는 2가 금속이온의 종류에 따라 Fe<Cu<Zn<Ni<Co 순으로흡착능이 높아지는 것으로 잘 알려져 있다. 하지만 입자크기가 매우 작아 흡착 후 고액분리가 어렵고, 투수성이 낮아 칼럼실험에 적용이 어려워 metal ferrocyanide를 적절한 지지체에 고정시키는 연구가 진전되어왔다[1].

지난 연구에서 페로시안화구리가 고정된 다중벽 탄소나노튜브(CuFC-MWCNTs)를 제조하였으며[1], Cs에 대한 최대 흡착량은 1.086 mmol/g으로 나타났다[2]. 본 연구에서는 지난 연구의 흡착제 합성방법을 따르되, metal ferrocyanide를 구성하는 2가 금속이온으로 Cu가 아닌 Zn을 도입하여 Cs에 대한 흡착성능을 평가하였다.

2. 본론

2.1 흡착제 합성 및 물성분석

Potassium zinc hexacyanoferrate (Ⅱ)가 고정된 다중벽 탄소 나노튜브(ZnFC-MWCNTs)는 다음과 같은 방법으로 합성하였다. 표면산화 시킨 다중벽 탄소나노튜브(ox-MWCNTs)를 ethylenamine과 반응시켜 ox-MWCNTs표면에 펩타이드 결합을 형성시키고, zinc와 potassium ferrocyanide로 potassium zinc hexacyanoferrate (Ⅱ)를 도입하여 ZnFC-MWCNTs를 합성하였다. MWCNTs의 표면산화 특성은 XPS 분석으로, ZnFC-MWCNTs의 분자결합 형태는 FT-IR분석으로 확인하였다.

2.2 흡착실험

ZnFC-MWCNTs의 Cs에 대한 최대 흡착량은 회분식 흡착실험으로 평가하였다. 실험방법으로 흡착제의 양은 0.1 g으로, 세슘 모의폐액은 $CsNO_3$ (99%, Aldrich Chemical)로 1~20 mM의 농도범위로 제조하여 각 농도별 50 mL의 부피로 흡착실험을 수행하였다. 흡착은 25℃에서 250 rpm으로 24 시간 동안 교반하여 진행하고, 교반 후 원심분리하여 상등액을 0.2 ㎛ 실린지 필터(Whatman, cellulose nitrate membrane filter, ∅=25 mm)로 여과하였다. 여과액의 Cs농도는 ICP-OES 또는 ICP-MS로 측정하였다.

2.3 실험결과

XPS로 MWCNTs의 표면산화 상태를 측정한 결과를 아래 Table 1에 요약하였다. MWCNTs 표면산화 시 형성될 수 있는 여러 기능기는 C_{1s} spectrum으로 확인 하였으며, 각 기능기별 함량은 peak area를 통해 함량으로 환산하였다. C_{1s} spectrum을 4개의 peaks: C-C (~284.5 eV), C-O (286.2 eV), hydroxyls C-OH (~287.6 eV), carboxyls HO-C=O (~288.9 eV)로 확인하여 각 peak의 면적을 함량으로 환산한 결과 표면산화 전MWCNTs의 O-C=O함량은 2.3%로, 표면 산화 후 O-C=O함량은 4.4%로 나타나 표면산화 시 MWCNTs의 carboxyl의 함량은 표면산화 전보다 2배 높게 나타났다.

Table 1. The results of C_{1s} peak area to surface functional groups of oxidized MWCNTs

Sample	Functional group content (%)			
	C-C	C-O	C-OH	O-C=O
MWCNTs	74.5	16.4	6.8	2.3
ox-MWCNTs	71.1	17.2	7.3	4.4

합성한 ZnFC-MWCNTs와 CuFC-MWCNTs의 FT-IR 분석을 4000-650 cm^{-1}의 범위에서 수행하였다. FT-IR 분석결과 ZnFC-MWCNTs와 CuFC-MWCNTs

는 ≈2080-2200 cm^{-1}에서 C≡N에 의한 피크가 나타났으며, 이에 따라 ox-MWCNTs의 표면에 $K_2[Zn^{II}Fe(CN)_6]$ 또는 $Na_2[Cu^{II}Fe(CN)_6]$가 잘 도입되었음을 확인하였다.

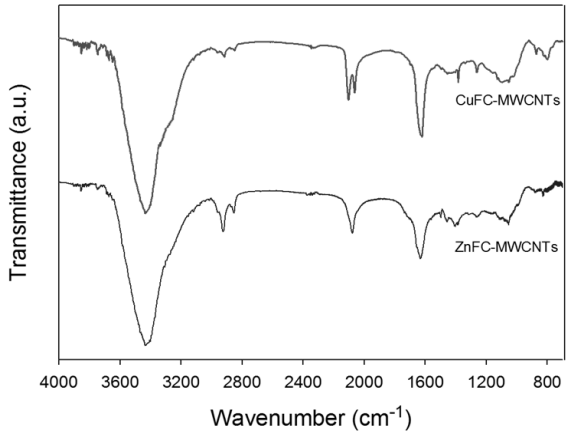


Fig. 1. FT-IR spectra of CuFC-MWCNTs and ZnFC-MWCNTs.

Cs에 대한 ZnFC-MWCNTs와 CuFC-MWCNTs의 등온흡착 실험결과를 Table 1과 Fig. 2에 나타내었다. Langmuir 모델적용 시 ZnFC-MWCNTs와 CuFC-MWCNTs의 Cs에 대한 최대흡착량(q_m)은 각각 1.432 mmol/g, 1.086 mmol/g으로 나타났다.

Table 2. Langmuir parameters for adsorption of Cs onto CuFC-MWCNTs and ZnFC-MWCNTs

adsorbents	Langmuir			
	q_m (mmol/g)	b (L/mmol)	R^2	SSE
ZnFC	1.432±0.067	22.40±9.35	0.929	0.185
CuFC	1.086±0.032	4.18±0.83	0.969	0.082

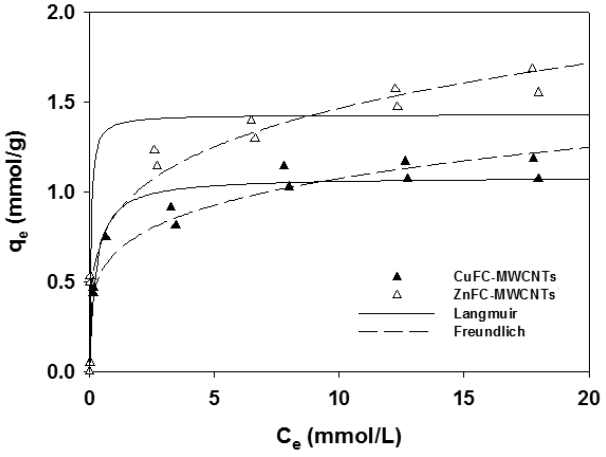


Fig. 2. Adsorption isotherm of Cs on ZnFC-MWCNTs and CuFC-MWCNTs.

3. 결론

본 연구에서는 세슘을 제거하기 위한 흡착제로서 다중벽 탄소나노튜브에 potassium zinc hexacyanoferrate (II)가 고정된 ZnFC-MWCNTs를 제조하였으며, XPS 및 FT-IR 분석결과 다중벽 탄소 나노튜브에 potassium zinc hexacyanoferrate (II)가 잘 도입되었음을 확인하였다. 또한 세슘에 대한 최대 흡착량은 CuFC-MWCNTs보다 0.346 mmol/g 높게 나타났으며, 이는 metal ferrocyanide를 구성하는 2가 금속이온의 종류의 차이에 의한 것으로 판단되었으며, 본 합성방법으로 Ni이나 Co를 도입하면 Cs최대 흡착량이 더 높게 나타날 것으로 예상된다.

4. 감사의 글

본 연구는 2014년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단-원자력연구개발사업의 지원을 받아 수행된 연구임(No. 2012M2B2B1055496).

5. 참고문헌

[1] T.D. Clarke and C.M. Wai, Selective removal of cesium from acid solutions with immobilized copper ferrocyanide, Analytical Chemistry, 70(17), 3708-3711, (1998).

[2] 양다솜, 이현규, 오원진, 최상준, "세슘의 선택적 분리를 위한 다중벽 탄소나노튜브 흡착제 개발", 한국방사성폐기물학회 2014 추계학술발표회 논문요약집, 12(2), 381-382, 10.15~17, 2014, 여수.

Imidazolium 및 Pyridinium 계열의 이온성 액체를 이용한 세슘, 스트론튬 추출 연구

최정원*, 김동연, 이현규, 오원진, 최상준
경북대학교, 대구광역시 북구 대학로 80
*jungweon@knu.ac.kr

1. 서론

이온성 액체는 매우 낮은 휘발성을 가지며, 무기 및 유기물을 잘 용해시키기 때문에 기존 유기용매를 대체하기 위한 친환경 청정용매로 많은 분야에서 연구가 진행되고 있다[1]. 이온성 액체를 이용한 금속이온의 액-액 추출에서 이온성 액체는 수용액보다 금속이온에 대한 친밀도가 낮기 때문에 금속이온이 이온성 액체층으로 이동하기 어렵다. 이러한 한계점은 이온성 액체층에 추출제나 리간드를 첨가하여 극복할 수 있으며[2], 특히 액체 방사성폐기물의 세슘, 스트론튬을 선택적으로 추출하기 위해 이온성 액체와 함께 세슘, 스트론튬에 선택성을 지닌 크라운에테르를 추출제로 사용한다. 한편 이온성액체는 양이온과 음이온의 조합에 의해 10^{18}개 이상의 이온성 액체의 제조가 가능하다고 알려져 있고, 양이온/음이온의 종류에 따라 물리적, 화학적, 전기적 특성이 달라진다. 따라서 본 연구에서는 액체 방사성폐기물의 세슘, 스트론튬을 선택적으로 추출하기 위해 추출제로 크라운에테르계를 사용하였으며, 이온성 액체의 양이온이 추출에 미치는 영향을 살펴보기 위해 imidazolium계의 이온성액체와 pyridinium계의 이온성 액체를 사용하여 세슘, 스트론튬의 추출거동을 평가하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

본 연구에 사용된 이온성 액체는 음이온은 동일하게 하며 양이온을 바꿔주어 imidazolium계의 1-ethyl-3-metylimidazolium bis(trifluoro methyl-sulfonyl)imide[C_2mim][Tf_2N](C-TRI Co. Ltd, Korea)과 pyridinium계의 3-methyl-1-butylpyridinium bis(trifluoro methyl-sulfonyl)imide[BMPy][Tf_2N](C-TRI Co. Ltd, Korea)를 사용하였다. 추출제는 dicyclohexano-18-crown-6(DCH18C6) (Sigma-Aldrich Co. USA)를 사용하였고, 방사성 핵종 모의폐액은 $CsNO_3$(99%, Aldrich Chemical)와 $Sr(NO_3)_2$(99.9 9%, Aldrich Chemical)로 제조하였다.

세슘과 스트론튬은 회분식 추출로 실험을 수행하였다. 50 mL 코니칼튜브(SPL, Korea)에 0.15 M DCH18C6과 이온성 액체를 2 mL 주입한 후, 60-80℃에서 물중탕하여 추출제를 용해시켰다. 추출제가 이온성 액체에 완전히 용해되면, 세슘과 스트론튬의 단일용액 및 세슘/스트론튬의 공존용액의 농도를 1.5 mM로 하여 20 mL 주입하였다. 추출은 25℃에서 250 rpm으로 2 시간동안 교반하여 수행하였고, 교반 후 20 분 동안 3000 rpm에서 원심분리하여 상등액을 0.2 ㎛ 실린지 필터(Whatman, cellulose nitrate membrane filter, ∅=25 mm)로 여과하였다. 추출 후 상등액 내에 존재하는 세슘, 스트론튬의 농도는 유도결합 플라즈마 발광분광계(ICP-OES, Optima 2100 DV, PerkinElmer)로 분석하였다.

제거율(R, %)은 초기 금속(세슘 또는 스트론튬) 농도에서 제거된 금속이온 농도의 백분율이며, 분배율(diatribution ratio, D_M)은 다음과 같으며 여기서 C_i(mg/L)와 C_f(mg/L)는 수용액상의 초기농도와 나중 농도이다.

$$D_M = \frac{C_i - C_f}{C_f} * \frac{volume\ of\ aqueous\ phase}{volume\ of\ IL\ phase} \quad (1)$$

2.2 결과

[C_2mim][Tf_2N]과 [BMPy][Tf_2N] 이온성 액체와 추출제인 DCH18C6을 이용한 세슘과 스트론튬의 제거율과 추출효율을 Table 1에 나타내었다. [C_2mim][Tf_2N]과 [BMPy][Tf_2N] 이온성 액체 모두 세슘과 스트론튬 모두 제거율이 90% 이상으로 매우 높게 나타났고, 분배수(D) 값도 높게 나타났으며, [BMPy][Tf_2N]보다 [C_2mim][Tf_2N]에서 세슘과 스트론튬의 추출효율이 더 높은 것으로 나타났다.
스트론튬의 이온크기와 추출제 DCH18C6의 환의 크기가 더 근접하여 imidazolium계인 [C_2mim][Tf_2N]과 pyridinium계인 [BMPy][Tf_2N]에서 모두 세슘보다 스트론튬의 추출효율이 더 높게 나타났다.

Table 1. Removal efficiency and distribution ratios of Cs/Sr(D_M) between [C_2mim][Tf_2N]/[BMPy][Tf_2N] and 1.5 mM $CsNO_3$/$Sr(NO_3)_2$ containing 0.15 M of DCH18C6

Extractant	Solvent	R_{Cs} (%)	D_{Cs}	R_{Sr} (%)	D_S
DCH18C6	[C_2mim][Tf_2N]	99.3	1354	99.8	4216
	[BMPy][Tf_2N]	98.9	879	99.6	2495

모의 폐액에 세슘과 스트론튬이 공존하는 경우, 세슘과 스트론튬 중 어떤 금속이온이 더 선택적으로 추출이 되는 지에 대해 알아보고 Table 2에 나타내었다. 실험 결과 단일 세슘, 단일 스트론튬 모의 폐액일 때와 같이 스트론튬에 대한 분배수(D_{Sr}) 값이 더 크게 나와 추출제(DCH18C6)를 사용하였을 때 이온성 액체 [C_2mim][Tf_2N]과 [BMPy][Tf_2N]는 스트론튬에 선택성을 가지는 것으로 나타났다. 또한 단일 세슘, 단일 스트론튬 모의 폐액일 때와 같이 이온성 액체 [C_2mim][Tf_2N]이 [BMPy][Tf_2N] 보다 추출효율이 더 높게 나타났다.

Table 2. Selectivity Results of [C_2mim][Tf_2N], [BMPy][Tf_2N] containing 0.15 M of DCH18C6

Extractant	Solvent	D_{Cs}	D_{Sr}	D_{Cs}/D_{Sr}
DCH18C6	[C_2mim][Tf_2N]	1105	4594	<1
	[BMPy][Tf_2N]	627	1437	<1

3. 결론

본 연구에서는 수용액으로부터 크라운에테르계의 추출제(DCH18C6)를 포함하는 두 종류의 이온성 액체로의 세슘과 스트론튬의 추출을 연구하였다. 본 연구의 결과를 바탕으로 사용하는 이온성 액체의 양이온의 종류에 따라 세슘과 스트론튬의 추출효율이 다름을 알 수 있었으며, 앞으로 이온성 액체의 다양한 양이온의 종류에 따른 세슘과 스트론튬의 추출 실험을 통하여 높은 추출 효율을 달성하기 위한 후속 연구를 진행할 예정이다.

4. 감사의 글

본 연구는 2014년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단-원자력연구개발사업의 지원을 받아 수행된 연구임(No. 2012M2B2B1055496).

5. 참고문헌

[1] 이현주, 이제승, 김훈식, "이온성액체의 응용기술 동향", 공업화학, 제 21권 제 2호, 2010.

[2] M. Rogel-Rosocka, M. Wisniescki: Ionic Liquids in Seperation of Metal Ions from Aqueous Solutions, Application of Ionic Liquids in Science and Technology, pp. 375-397, 2011.

Microstructure of Synroc Nano-crystalline Powders as a Wastes Ceramic Forms by a Solution Combustion Synthesis

Choong-Hwan Jung*, Young-Min Han, and Yeon-Ku Kim
Korea Atomic Energy Research Institute, 111 Daedeok-daero 989, Yusung-gu, Daejeon, Korea
*chjung1@kaeri.re.kr

1. INTRODUCTION

The high-level radioactive waste (HLW) must be isolated from the biosphere for thousands of years. The waste contained matrix must be durable enough to withstand the severe natural and artificial conditions that the waste form will be subjected over such a long time period. The studies have shown that crystalline ceramics are better hosts compared to glass matrix due to their superior chemical durability and higher density. Synroc, a titanate based ceramic containing hollandite, perovskite, zirconolite and rutile phases, is considered as the most effective and durable means of immobilizing various forms of high-level radioactive wastes for disposal. The oxide-route (solid state reaction) is the most known process to form a solid solution. However, the synthesis of nano crystalline powders using an exothermic redox reaction between nitrate and organics in an aqueous solution has been reported. Most of the HLW forms were dissolved in nitric acid, and therefore the solution combustion synthesis (SCS) which uses all of the metal nitrates as reactant materials is a very promising process to immobilize the radioactive metal element wastes in the form of solid solutions.

In this study, the SCS and oxide route was compared to form the solid solution of Synroc-B nano crystalline powders.

2. EXPERIMENTAL DETAILS

The composition of Synroc-B powder made by oxide-route is shown in Table 1. The 3D-wet milling was used to mix of each components of Synroc-B, and after then it was dried and calcined at 1100°C for 2h. Ca, Zr, Al and Ba nitrate and $TiO(NO_3)_2$ xH_2O were used as the source materials. To investigate the effect of fuel on the combustion reaction, the stoichiometric composition of glycine was calculated according to the method which denotes a fuel to metal nitrate ratio at which the fuel can react completely with all of the metal nitrates, such that no residual fuel or nitrate remains in the final product. After this metal salt and fuel were dissolved in 100 ml of deionized water, the precursor solution was stirred and heated on a hot plate. As soon as the water became fully vaporized, spontaneous combustion occurred through the burning of metal salt and fuel. The synthesized powders were characterized by DTA/TGA, XRD, SEM and TEM/Mapping.

3. RESULTS AND DISCUSSION

The crystallization behavior of the synthesized Synroc-B powders with various heating temperatures is shown in Fig. 1. The crystallization of as -synthesized SCS Synroc-B powder (Fig. 1(a)) has three component (P, H and Z), but the crystallity is not perfectly conformed up to 900°C. The results of as -synthesized powders calcined at 1100°C for 3h, it does not contain 2nd phase and have highly crystallity. Fig. 1 (b) shows the results of XRD patterns with difference preparation route; oxide route and combustion synthesis. In oxide-route, as -synthesized powder were observed of three composition main peaks (P, Z and T), and was almost not detected of the hollandite peak. But as -synthesized in the case of combustion process, main component of Synroc-B (P, H and Z) was observed as almost identical of the Synroc-B composition.

For the detailed analysis on Synroc-B powders, from the result of TEM mapping were observed in Fig. 2. In the case of oxide route (Fig. 2(a)), Synroc-B composition was not detected in all areas. Besides Ca, Ti, O, other elements were confirmed that no detection is present for all areas, but in Fig.

2(b), TEM mapping results on combustion synthesized powder has been confirmed that it contains the fully solid solution occurred on constituent elements for the composition Synroc-B in all powders.

4. CONCLUSION

Oxide route synthesized synthesis through a wet ball milling and with a calcination temperature at 1100°C, the synthesized particles do not have match the Synroc-B composition. It was determined to be a heterogeneous particle size showed about 10 μm. Synroc-B particles prepared by combustion synthesis showed all Holladite, Zirconolite, Perovskite and Rutile structures having the configuration of the complete Synroc-B at the calcination temperature of 1100°C. TEM analyses also show that particle size is very homogeneous and evenly distributed in 20~30 nm. By a combustion synthesis method Synroc-B nano powder of a multi-phase is could be produced in a relatively easy way. Solidified in the Synroc-B complex, radioactive elements contained in waste can easily be immobilized.

5. ACKNOWLEDGMENT

This work was supported by the National Research Foundation of Korea (NRF) grant funded by the Korea government (MSIP) (No. 2013M2A8A1041124).

6. REFERENCES

[1] R. Raja Madhavan, and K.V. Govindan Kutty. J. nucl. mater. 420. 554 (2011).
[2] W.E. Lee, M.I. Ojovan, and N.C. Hyatt, Adv. Appl. Ceram. 3. 105 (2006).
[3] A.E. Ringwood. Radioactive Waste Forms for the Future, Elsevier: Amsterdam ,1988. p. 233.
[4] S. Bhaduri and S.B. Bhaduri, Nanostructured Materials 11, 469 (1999).
[5] C.H. Jung, and S.B. Bhaduri, J. Nanoparticle Research 5, 383 (2003).

Table 1. Components and composition of Synroc-B.

Component Synroc-B		Minerlogy	
Oxide	wt%	Composition	wt%
TiO_2	71.4	Hollandite($BaAl_2Ti_6O_{16}$)	30
ZrO_2	6.76	Zirconolite($CazrTi_2O_{-7}$)	30
Al_2O_3	5.38	Perovskite($CaTiO_3$)	20
BaO	5.31	Magnell phase(TiO_2)	15
CaO	11.15	Intermeralilics	5

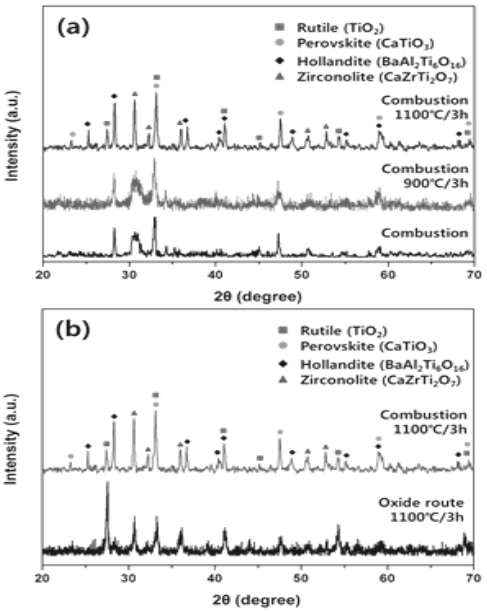


Fig. 1. XRD patterns of Synthesized Synroc-B powders (a) different heating temperature and (b) different synthesized condition.

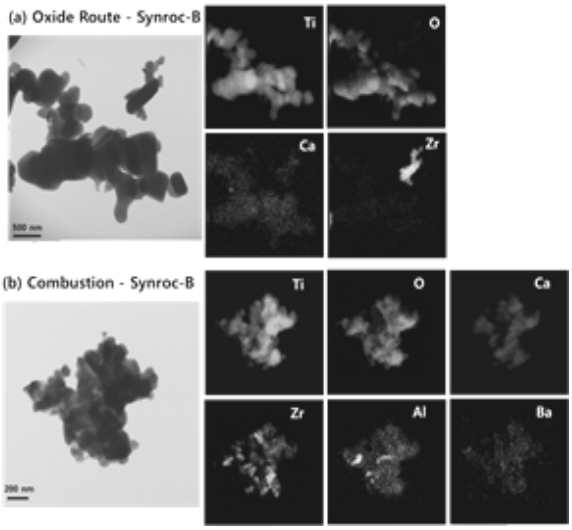


Fig. 2. TEM morphologies and mapping of (a) as-synthesized Oxide route of Synroc-B powder, (b) as-synthesized Solution Combustion synthesis of Synroc powder.

전기화학 기반 세슘 분리용 복합체 합성을 위한 Antimony-doped Tin Oxide 나노섬유 제조 연구

박태홍,* 조영진
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*parktae@kaeri.re.kr

1. 서론

후쿠시마 원전 사고 이후 환경시료 및 고방사선시설의 방사성 폐기물 처분 관련 방사성원소에 대한 화학분석 수요가 급증하고 있다. 이에 신뢰성이 확보된 신속 정밀 화학분석의 필요성이 대두되고 있고 이를 위해 방사화학분리 효율성 증대가 요구된다. 기존의 화학분리소재는 조건에 따라 종종 복잡한 분리절차를 요구하고 이에 따른 화학폐기물 과다 발생 등의 한계를 지니기도 한다. 본 연구에서는 전도성 복합체를 개발하여 방사성 Cs 등 방사성 원소의 흡착과 탈착을 전기화학적으로 제어하여 보다 효율적으로 화학분리를 할 수 있는 소재를 개발하고자 한다.

2. 본론

2.1 Antimoy-doped tin oxide (ATO) 나노섬유 합성

ATO 나노입자 합성: 0.2 mL HCl, 980 mg $SnCl_4$, 65 mg $SbCl_3$ (7.5at%)을 12 g EtOH에 넣은 후 2.5 g의 NH_3 (20wt%) 용액에 매우 빠르게 교반하면서 방울방울 떨어뜨려 ATO 나노입자 슬러리를 얻는다. 원심분리를 통해 나노입자를 반응용액에서 분리하고, 증류수로 여러번 휑군다. 나노입자를 600 mg H_2O와 150 mg Et_2N에 분산하여 20wt%의 ATO 나노입자 용액을 얻었다 (Fig. 1).

ATO-PVP 전기방사: 1 g ATO 나노입자 용액에 1.25 g 12wt% polyvinylpyrrolidone (PVP) 메탄올 용액과 250 mg 에탄올을 첨가한 후 1 mL 주사기에 넣고 Fig. 2의 전기방사 시스템을 사용하여 나노섬유를 얻는다 이때 주사기 펌프 속도는 0.4 mL/h, 주사바늘과 알루미늄 호일간 거리는 25 cm, 전원공급장치 전압은 5 kV로 하였다.

ATO-PVP 나노섬유 회화: ATO-PVP 하이브리드 나노섬유를 550℃에서 10 분 동안 회화시켜 ATO 나노섬유를 얻었다.

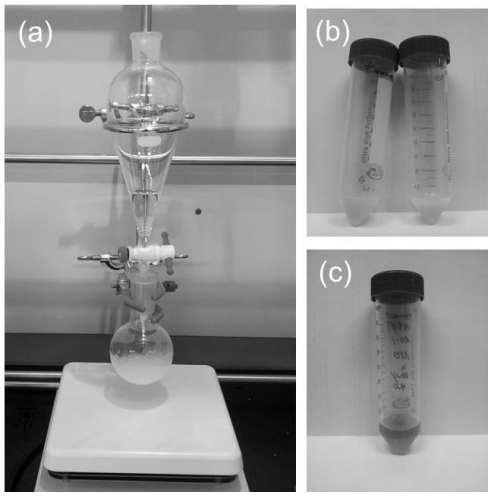


Fig. 1. (a) Synthesis of ATO nanoparticles. (b) Suspension of ATO nanoparticles in H_2O. (c) 20wt% ATO nanoparticles solution dispersed in a H_2O and Et_2N mixture.

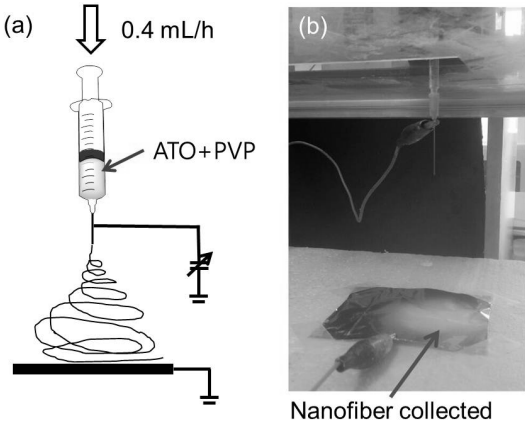


Fig. 2. (a) Scheme of electrospinning. (b) Set up of electrospinning.

2.2 결과 및 고찰

ATO는 전도성을 지니고 있는 산화물 재료로써 기능성 전극으로 사용할 수 있다. 또한 이 전도성을 이용하여 Cs 흡착에 선택성이 뛰어난 prussian blue를 전착시킬 수 있다[1]. 이는 본 연구에서 목표로 하고 있는 전도성을 띤 분리소재로 이용할 수 있으리라 예상된다. 특히 다공성을 띤 전극을 제조하면 전기화학적 기반의 분리 소재로 그 활

용가치가 더 높아질 수 있다. 이에 본 연구에서는 다공성의 나노섬유 매트를 만들 수 있는 전기방사(electrospinning) 방법을 적용하였다. Fig. 2b는 ATO 나노입자를 포함한 PVP 용액을 전기방사하는 것을 찍은 사진이다. 전기방사가 진행되면서 바닥의 알루미늄 호일에는 흰색의 ATO-PVP 하이브리드 나노섬유가 모이게 된다.

PVP-ATO 나노 섬유를 550℃에서 회화하면 유기물인 PVP는 고온에서 분해되고 무기물인 ATO는 전기방사되었던 섬유의 형태를 유지하게 된다. Fig. 3a는 전기방사를 통해 얻은 ATO-PVP 하이브리드 나노섬유이고, Fig 3b는 550℃에서 회화하고 얻은 ATO 나노섬유 매트이다. 회화 과정에서 고분자가 분해되어 사라졌기 때문에 나노섬유의 두께가 더 얇아지고 매트의 성김이 증가하였다. ATO 나노섬유 매트의 밀도를 증가시키는 방법으로 회화 전 ATO-PVP 나노섬유 매트를 hexane에 담근 후 회화하였다. Fig. 3c는 hexane에 나노섬유 매트를 담근 후, Fig. 3d는 회화 후 얻은 이미지이다. 회화 후 나노섬유의 패킹밀도가 상대적으로 높음을 알 수 있다.

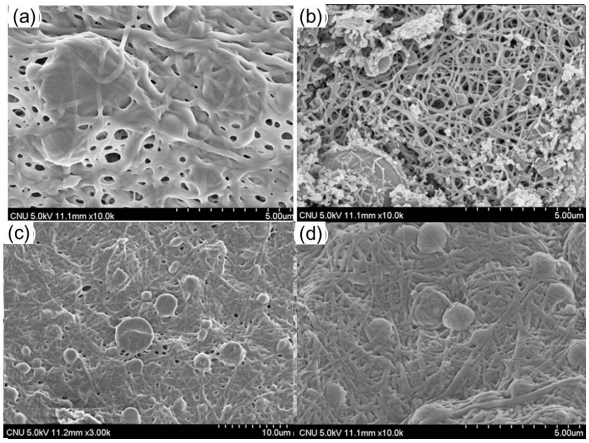


Fig. 3. SEM images of (a) ATO-PVP nanofiber mat electrospun, (b) ATO nanofiber mat calcined, (c) ATO-PVP nanofiber mat after dipping in hexane and (d) ATO nanofiber mat after calcination of the ATO-PVP mat in (c).

3. 결론

ATO 나노 입자를 합성하여 PVP 용액에 분산하고 전기방사를 하여 ATO-PVP 나노 섬유를 얻었다. 고온에서 유기물을 회화시켜 다공성의 ATO 나노 섬유 매트를 확보하였고 이를 기반으로 향후 Fig. 4와 같이 Cs을 흡착할 수 있는 PB를 섬유 표면에 전착하게 되면 전도성 복합체를 얻을 수 있을 것으로 예상된다.

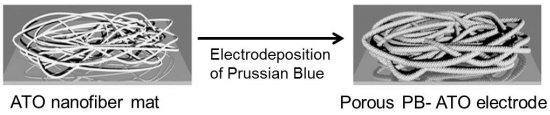


Fig. 4. Scheme of preparation of porous PB-ATO composite electrode.

4. 감사의 글

본 연구는 정부(미래창조과학부) 재원을 지원받아 한국원자력연구원 창의연구사업의 일환으로 수행하였습니다.

5. 참고문헌

[1] R. Ostemann et al. Chem. Commun. Vol. 47, p.12119, 2011.

나노흡착제와 실리카 나노입자의 혼합에 따른 나노복합유체의 방사성 핵종 제거

김초롱*, 윤인호, 정종헌, 양한범, 최왕규, 문제권
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*chorong@kaeri.re.kr

1. 서론

나노복합유체 제염 공정은 원자력 시설의 대규모 보수 시, 구조적 적용이 어려운 대형기기 및 대면적 제염에 용이하며 90%이상의 기체로 구성되어 있어 제염 후 발생되는 폐액의 양을 획기적으로 저감시킬 수 있다. 제염 효율을 높이기 위해 거품 기포성이 우수하고, 생성된 거품이 오염대상 표면에 제염을 위해 장시간 유지될 수 있도록 접촉시간을 증가시켜줌으로써 제염효율을 높일 수 있다. 나노복합유체 제염제는 거품을 발생시키는 계면활성제와 거품안정성을 증가시키는 나노입자, 부식산화막 표면에 존재하는 방사성 핵종을 제거하는 화학제염제로 구성되어있다. 이때 거품제염제에 의해 녹아나온 방사성 핵종을 흡착시킬 수 있는 다양한 나노입자를 첨가하여 거품안정성 및 흡착성까지 고려할 수 있다. 나노 흡착제 중 ammonium molybdophos phate(AMP)는 방사성 핵종에 대해 흡착능과 선택성이 뛰어난 것으로 알려져 있다[1]. 본 연구에서는 방사성 핵종을 흡착시킬 수 있는 나노흡착제(AMP)에 거품안정성을 증가시키는 실리카 나노입자를 혼합한 나노복합유체의 방사성 핵종에 대한 흡착능을 평가하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

본 연구에서 Tetraethylorthosilicate(TEOS)와 cetyl trimethylammonium bromide(CTABr), 암모니아수를 혼합하여 합성되어진 구모양의 메조포러스 실리카 나노입자(K-S)[2]와 방사성 핵종에 대해 선택성을 가지는 ammonium molybodophosphate (AMP)을 혼합하여 나노복합유체를 제조하였으며, 이를 사용하여 방사성 핵종에 대해 흡착능을 평가하였다. 이때, 나노흡착제(AMP)와 실리카나노입자(K-S)의 혼합비율은 Table 1에 나타내었다.

혼합비율에 따른 나노복합유체의 코발트와 세슘에 대한 흡착량을 평가하기 위해 나노입자[나노흡착제(AMP)+실리카 나노입자(K-S)]와 모의 폐액량의 비를 1:10으로 하여 회분식 흡착실험을 수행하였다. 방사성 모의 폐액은 $Co(NO_3)_2.6H_2O$(98%, Aldrich Chemical)와 $CsNO_3$(99%, Aldrich Chemical)을 이용하여 2, 5, 10 ppm의 농도로 제조하였다. 흡착실험은 15 mL의 코니칼튜브(SPL, Korea)를 이용하여 25℃에서 120 rpm으로 24시간동안 교반하였다. 교반 후, 용액은 10 분동안 3500 rpm에서 원심분리하고 상등액은 0.2 ㎛ 실린지 필터(Whatman, cellulose nitrate membrane filter, ¢=25 mm)로 여과하였다. 흡착처리 후 상등액 내의 코발트와 세슘의 농도는 원자흡수분광광도기(AAS, PerkinElmer, AA nalyst 400)를 이용하여 분석하였다.

Table 1. Mixing ratio of silica nanoparticle and adsorbent.

	AMP	K-S
AMP : K-S (0.1wt%:0.9wt%)	0.1wt%	0.9wt%
AMP : K-S (1wt%:1wt%)	1wt%	1wt%

2.2 결과

나노흡착제(AMP)와 실리카 나노입자(K-S)의 혼합비율에 따른 코발트의 등온 흡착 실험 결과를 Fig. 1과 Table 2에 나타내었다.

코발트 흡착실험 결과 AMP와 K-S의 비가 0.1wt% : 0.9wt%일 경우 코발트의 제거율은 코발트가 2 ppm 존재할 때 85%, 5 ppm 존재할 때 66%, 10 ppm 존재할 때 49%로 나타났다. AMP와 K-S의 비가 1wt% : 1wt%일 때 코발트의 제거율은 코발트가 2 ppm 존재할 때 92%, 5 ppm 존재할 때 92%, 10 ppm 존재할 때 91%로 나타났다. 이 결과를 통해 나노복합유체 내 AMP의 양이 늘어남에 따라 코발트의 제거율은 증가하는 것을 확인 할 수 있다.

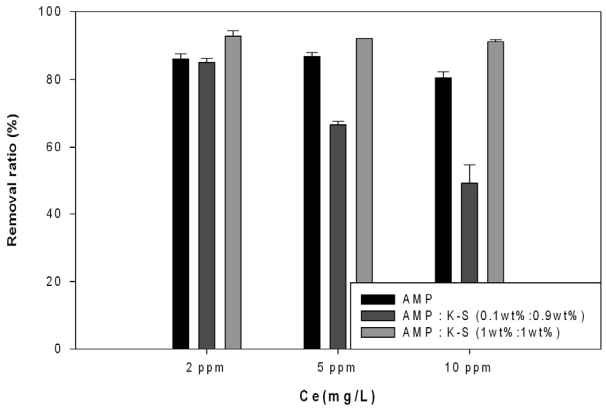


Fig. 1. Sorption of Co adsorbed onto adsorbent(AMP) and silica nanoparticle(K-S).

Table 2. Removal ratio of Co adsorbed onto adsorbent(AMP) and silica nanoparticle(K-S)

Sample	Removal ratio (%)		
	2 ppm	5 ppm	10 ppm
AMP	86.04	86.85	80.45
AMP:K-S (0.1wt%:0.9wt%)	85.04	66.68	49.43
AMP:K-S (1wt%:1wt%)	92.69	92.08	91.12

나노흡착제(AMP)와 실리카 나노입자(K-S)의 혼합비율에 따른 세슘의 등온 흡착 실험 결과를 Fig. 2와 Table 3에 나타내었다. 그 결과 AMP와 K-S의 비가 0.1wt% : 0.9wt%일 경우 세슘의 제거율은 세슘이 2 ppm 존재할 때 96%, 5 ppm 존재할 때 95%, 10 ppm 존재할 때 94%로 나타났다. AMP와 K-S의 비가 1wt% : 1wt%일 때 세슘의 제거율은 세슘이 2 ppm 존재할 때 98%, 5 ppm과 10 ppm 존재할 때 99%로 나타났다. 실험결과 나노흡착제(AMP)와 실리카 나노입자(K-S)의 비가 동일할 때 코발트와 세슘의 제거율이 90% 이상 나타나는 것으로 확인되었다.

Table 3. Removal ratio of Cs adsorbed onto adsorbent(AMP) and silica nanoparticle(K-S)

Sample	Removal ratio (%)		
	2 ppm	5 ppm	10 ppm
AMP	92.29	94.35	96.60
AMP:K-S (0.1wt%:0.9wt%)	96.01	94.90	93.93
AMP:K-S (1wt%:1wt%)	98.96	99.64	99.75

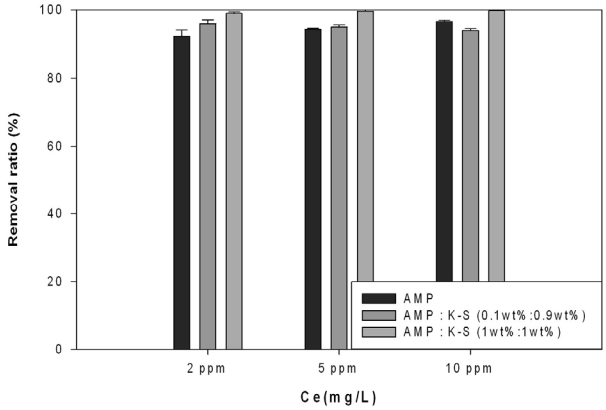


Fig. 2. Sorption of Cs adsorbed onto adsorbent(AMP) and silica nanoparticle(K-S).

3. 결론

본 연구에서는 방사성 핵종을 흡착시킬 수 있는 나노흡착제(AMP)에 거품안정성을 증가시키는 실리카 나노입자를 혼합한 나노복합유체 제염제의 방사성 핵종에 대한 흡착능을 평가하였다. 그 결과 코발트와 세슘의 제거율을 비교해 볼 때 혼합비와 상관없이 전체적으로 세슘의 제거율이 더 높게 나타났다. 하지만 나노흡착제인 AMP와 실리카 나노입자의 비가 1wt%로 동일한 경우 코발트와 세슘의 제거율이 모두 90%이상 나타났으므로 나노복합유체 제염공정시 부식산화막에서 용해된 방사성 핵종을 효율적으로 제거할 수 있다고 사료된다.

4. 감사의 글

이 논문은 2015년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구(NRF-2012M2A8A5025655)입니다.

5. 참고문헌

[1] F. Sevesta and V. Stefura, Composite ion exchanger with ammonium molybdophos phate and its properties, J. Radioanal. Nucl. Chem., 140, 15-21, 1990.

[2] Q. Cai, Z.-S. Luo, W.-Q. Pang, Y-W. Fan, X.-H. Chen, and F.-Z. Cui, Dilute solution routes of various controllable morphologies of MCM-41 silica with a basic medium, Chem. Mater., 13, 258, 2001.

스테인레스강 표면제염공정 발생 나노입자 복합유체 폐액의 Ce 침전물 특성

양한범*, 정종헌, 윤인호, 김초롱, 최만수, 최왕규
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*nhbyang@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력 시설의 해체 또는 대규모 보수시 발생되는 대용량 탱크, 기기 및 대면적 설비를 기존의 화학제염 기술로 제염할 경우, 다량의 제염폐기물이 발생되는 문제점을 해결하기 위하여 2차 폐기물 발생량을 80 ~ 90% 감소시킬 수 있는 나노 복합유체를 이용한 거품제염 기술개발 연구를 수행하고 있다. 나노복합유체 제염기술은 제염 거품중 기체 함유량이 90%, 제염제 용액은 10%를 차지하므로 제염폐액 발생량이 대폭감소 되어 제염성능, 작업 안정성, 제염폐액 발생량 최소화의 3가지 관점에서 장점을 가진 제염기술로 향후 원전 해체/보수 등 원자력산업에 적용에 따른 기술수요가 증가할 것으로 판단된다. 원자력시설에 사용되는 금속재질중 스테인리스강이 많이 사용되고 있으며, 스테인리스강 표면오염을 제염하기 위하여 Ce(IV)-HNO_3 제염용액을 사용한 연구가 미 국 PNL에서 시작하여 우라늄, 핵분열생성물 제염 적용하여 높은 제염 효과를 얻었으며, 플루토늄으로 오염된 탱크제염의 경우 제염계수는 약 400의 좋은 결과를 얻었다 [1 ~ 3].

본 연구에서는 스테인리스강 표면오염을 제염하기 위하여 Ce(IV)-HNO_3 제염제를 사용한 나노 복합유체 제염 기술개발 실험을 수행하고 있으며, 스테인레스강 표면제염공정에서 발생한 나노입자 복합유체 폐액에 함유되어 있는 스테인리스강 표면부식을 위해 산화제로 첨가한 Ce과 제염대상 방사성 오염원소로 선정한 Co의 침전물 특성을 고찰하였다.

2. 실험 재료 및 방법

2.1 시약

$Ce(NO_3)_3.6H_2O$ (Alfa Aesar), $Co(NO_3)_2.6H_2O$ (Junsei), HNO_3(Ducksan Chemical), NaOH (Jin Chemical)을 사용하였다.

2.2 분석기기

입도 분석기(Brookhaven.), 전기로(Electric Furnace, XRD (Bruker, AXS), SEM (Jeol), 전자저울 (Mettler, Model Toledq), 초순수 제조기 (Milipore, Model Direct-Q)를 사용하였다.

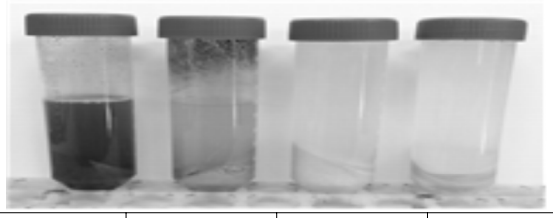
2.3 침전실험

스테인리스강 표면오염 방사성핵종 제염공정에서 발생된 제염폐액 내 제염대상 방사성핵종으로 선정한 코발트(Co)와 스테인리스강 표면부식을 위해 산화제로 첨가한 세륨(Ce)을 제거하기 위해 침전실험을 수행하였다. 모의용액은 침전현상이 잘 관찰될 수 있는 1M Co(II) - 2M HNO_3 용액과 1M Ce(III) - 2M HNO_3 용액을 만들어 사용하였으며, 침전제는 12M NaOH을 사용하였다. 침전실험은 Co(II)와 Ce(III) 모의용액에 12M NaOH 용액을 적가하면서 pH를 측정하였다. 침전물은 여과지를사용하여 분리한 다음 에틸알콜 용액으로 세척한 다음 전기로에서 90℃로 12시간 건조하여 분쇄하여 SEM과 XRD를 측정하였다.

3. 결과 및 논의

3.1 Ce(III), Co(II) 침전특성

1M Co(II) - 2M HNO_3 용액을 교반하면서 NaOH 용액을 적가하면서 pH를 측정한 결과, pH 6.6에서 진한 초록색의 침전물이 생성되기 시작하여, pH 10 ~ 11에서 연보라색의 침전물이 생성되었다. 이때 상등액이 붉은색에서 투명한 무색으로 변화되어 Co 침전이 완성된 것으로 사료된다. 1M Ce(III) - 2M HNO_3 용액도 Co 침전과 동일한 방법으로 실험한 결과 pH 6.5에서 침전 생성되었다. 따라서 pH를 11이상으로 높여줄 경우 Co(II)와 Ce(III) 모두 침전되어 제거 될 것으로 판단된다.

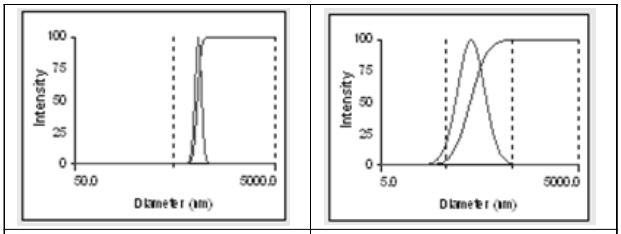


Co(II)	Co(II)	Ce(III)	Ce(III)/Co(II)
pH=6.6	pH=10.5	pH=6.6	pH=6.6

Fig. 1. Precipitation test in Co - 2M HNO_3 and Ce/Co - 2M HNO_3 System.

3.2 Ce, Co 침전물의 입도측정

Ce(III) 및 Co(II) 침전물의 입도측정 결과, Co(II) 침전물 입자크기는 1,074 nm, Ce(III) 침전물 입자크기는 265 nm 측정되었다.

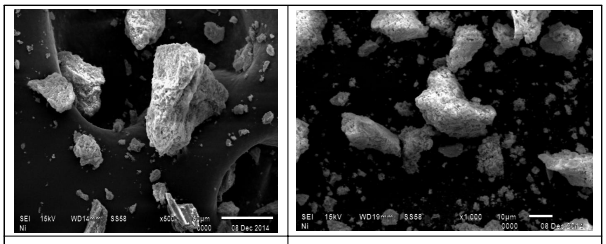


CeO_2의 입도분석	$Co(OH)_2$의 입도분석

Fig. 2. Particle size analysis of CeO_2 and $Co(OH)_2$.

3.3 Ce, Co 침전물의 SEM

Co(II)와 Ce(III) 침전물을 여과하여 에탄올로 세척 및 건조하여 전기로에서 90℃에서 10시간 건조한 다음 분말화 하여 SEM을 측정하였다.

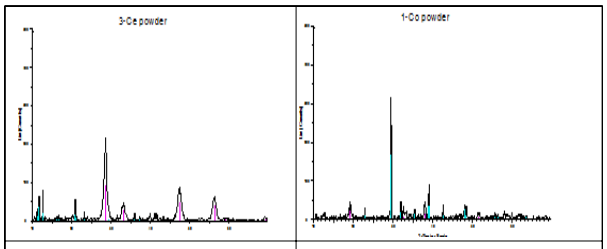


CeO_2의침전물 SEM	$Co(OH)_2$의 침전물 SEM

Fig. 3. SEM image of CeO_2 and $Co(OH)_2$.

3.4 Ce, Co 침전물의 XRD

Co(II)와 Ce(III) 침전물을 여과하여 에탄올로 세척 및 건조하여 전기로에서 90℃에서 10시간 건조한 다음 분말화 하여 XRD를 측정하였다. Ce(III) 침전물은 cubic 구조의CeO_2 화합물과 monoclinic 구조의 $Na_2Ce(NO_3)_5H_2O$의 혼합물로 확인되었으며, Co(II) 침전물은 hexagonal 구조의 $Co(OH)_2$ 화합물과 $NaNO_3$의 혼합물로 확인되었다.



CeO_2의 침전물 XRD	$Co(OH)_2$의 침전물 XRD

Fig. 4. XRD of CeO_2 and $Co(OH)_2$.

4. 결론

원자력시설에서 발생되는 스테인리스강 표면오염을 제염하는데 효과적인 산화제 Ce(IV), HNO_3 용액, 나노입자, 계면활성제를 혼합하여 거품제염제를 만들어 제염대상 방사성 핵종으로 선정한 Co로 오염된 스테인리스강 표면오염을 제염한 후 발생되는 제염폐액을 비순환방식과 재순환방식으로 처리하기 위한 침전공정에서 생성되는 Co 및 Ce의 침전 특성에 대한 기초자료를 확보하였다. 향후 금속이온의 흡착제거 공정, Ce(III) ⇒Ce(IV) 재산화 연구 등을 수행하여 방사성물질로 오염된 스테인리스강 표면처리를 위한 나노복합유체를 이용한 제염공정을 확립하고자 한다.

5. 참고문헌

[1] Xian Wen Ren, Yuan Zhang, "Loop Cleanup with Redox Decontamination Technique", Internet document.

[2] J. G. Shah, P. S. Dhami, P. M. Gandhi, P. K. Wattal, "Decontamination of Alpha Contaminated Metallic Waste by Cerium IV Redox Process, BARC Newsletter, Issue No. 328, 56-61, Sep.-Oct., 2012.

[3] Murry et al, United States Patent, Number, 4,657,596, "Ceric acid decontamination of nuclear reactors", 1987.

광역의 세슘 오염토양 잔류 방사능 측정을 위한 대용량 연속식 측정 시스템의 개념설계

서민우*, 김봉주, 송정호, 신진성, 박현균
㈜오르비텍, 서울 금천구 범안로 1130
*seominwoo7@orbitech.co.kr

1. 서론

후쿠시마 원전사고로 인해 원전 주변의 광역 부지 토양에 세슘(Cs) 핵종 등이 오염되어 일반 주민의 거주가 곤란한 실정이다. 이로 인하여 개인, 사회 공동체, 산업체 등의 전 국가적으로 막대한 손실을 야기하고 있으며, 이를 최소화하기 위해서 빠른 시일 내로 일반 주민의 거주를 허용하기 위한 환경 복원이 필요하다. 이를 위해서는 대용량 오염토양을 신속하게 측정, 분리, 제염, 처분 또는 환경 복원하는 상용화 기술이 요구되고 있다.

본 연구에서는 대용량 오염토양의 잔류방사능을 신속하게 측정가능한 대용량 연속식 측정시스템 개발을 위한 개념설계(Design Concept)를 수행하였다. 대용량 연속식 측정시스템은 컨베이어 설비의 상부에 대면적 NaI(Tl) 섬광검출기 2개와 MCA, 동시회로로 구성하여 설계하였다.

본 논문에서는 MCNP 전산코드를 이용하여 계산된 검출응답 결과를 토대로 이론적인 배경으로부터 유도된 계산식에서 5 Bq/g의 세슘 오염토양에 대한 측정처리속도를 도출하였고, 이를 기준으로 대용량 연속식 측정시스템의 개발가능성여부를 평가하였다.

2. 본론

2.1 구성

세슘 오염토양의 잔류 방사능을 측정하기 위한 대용량 연속식 측정시스템은 컨베이어 설비의 상부에 3″×5″×16″ 대면적 NaI(Tl) 섬광검출기 2개와 MCA, 동시회로 등의 구성으로 설계하였으며, Fig. 1와 같이 나타내었다.

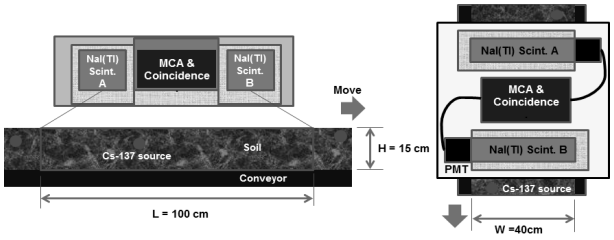


Fig. 1. The arrangement of Radiation Measurement System.

측정시스템의 컨베이어는 오염토양을 일정한 높이, 무게, 속도로 이동해주며, 대면적 NaI(Tl) 섬광검출기는 온도변화-이득보상이 가능한 상용화 제품을 선정하여 온도 변화가 잦은 현장에 적용 가능하도록 하였고, 3″×5″×16″ 대면적 검출부피로 감마선에 대해 높은 검출 감도를 갖도록 설계하였다. MCA는 에너지스펙트럼을 분석하여 관심영역만을 선별적으로 계수할 수 있도록 하고, 동시회로는 백그라운드 영향을 최소화하여 저준위 잔류방사능을 측정 가능하도록 설계하고, Fig. 2와 같이 나타내었다.

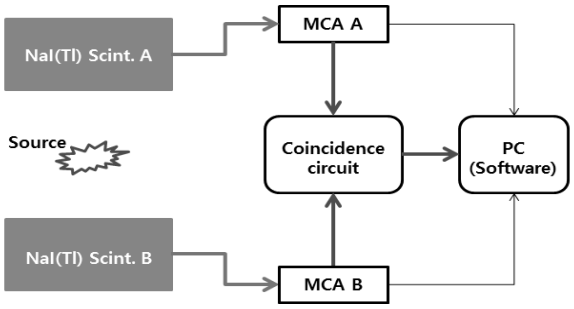


Fig. 2. The Diagram of Coincidence circuit Applied to Radiation Measurement System.

2.2 설계

본 연구에서는 광역의 세슘 오염토양을 환경복원하기 위해서 잔류방사능을 신속하고 대용량으로 측정가능한 대용량 연속식 측정시스템 개발을 위한 개념설계를 수행하였다.

측정시스템의 개념설계는 시스템을 실제로 제작하여 시험하기 이전에 MCNP 전산코드에 의해 계산된 결과를 토대로 이론적인 배경으로부터 유도된 계산식에서 예상되는 측정처리속도를 도출하는 방식으로 수행하였다. 대용량 연속식 측정시스템의 개발 가능성 여부는 주요 설계인자인 측정처리속도의 성능 기준으로 확인하였다.

오염토양의 잔류방사능 측정을 위한 대용량 연속식 측정시스템의 개념설계를 위한 가정은 1) 5 Bq/g의 Cs-137 선원으로 균질하게 오염된 토양(밀도 1.5 g/cc, 부피 100×40×15 cm^3 (L×W×H), 2) 각 검출기 안에 흡수되는 662 keV 에너지 채널에서의 계수효율(Count efficiency)을 고려한

Fig. 3과 같은 동시회로 계수율 방법, 3) 검출기의 불감시간, 백그라운드 영향, 검출 시간동안의 방사성붕괴, 컨베이어의 이동속도에 따른 기하학적 효율변화 등을 고려한 설계여유도(Design margin) 20%, 4) 측정값의 신뢰도를 높이기 위해서 계수율의 상대오차 10%로 가정하였다. 이 가정들로부터 측정시스템의 측정처리속도를 계산하는 방정식은 수식 (1)과 같이 나타내었다.

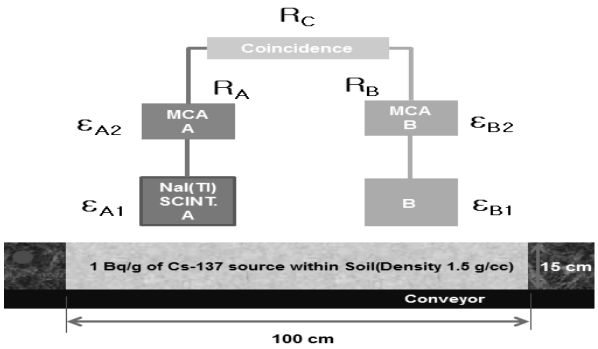


Fig. 3. Summing of Count rate for Coincidence circuit Applied to Radiation Measurement System.

$$Speed(kg/s) = \frac{N_0 \times \epsilon_{A1} \times \epsilon_{A2} \times \epsilon_{B1} \times \epsilon_{B2} \times W_{soil}}{C_{Req.}} \times D_M \quad \cdots\cdots (1)$$

$$N_0 \times \epsilon_{A1} \times \epsilon_{B1} = A_{Total} \times R_{Cal.A} \times R_{Cal.B}$$

- N_0 : Counts of each Detector A (B)
- $\varepsilon_{A1}(\varepsilon_{B1})$: Geometrical efficiency of each Detector A (B)
- $\varepsilon_{A2}(\varepsilon_{B2})$: Intrinsic efficiency of each Detector A (B)
- W_{soil} : Weight of soil material (kg)
- D_M : Design Margin 20%
- $C_{Req.}$: Required count rate (cps)
- A_{Total} : Total activity of Cs-137 within soil material (Bq)
- $R_{Cal.A}(R_{cal.B})$: Detection response of 662 kev energy channel absorbed in detector using MCNP code

2.3 MCNP 모사

수식 (1)에서의 검출기 안에 흡수되는 662 keV 에너지 채널의 검출응답($R_{cal.}$)을 계산하기 위해서 input에 F8 Tally card를 적용한 MCNP 모사를 수행하였다. 세슘 오염토양과 측정시스템 간의 배치구조는 기하학적 효율을 최대로 하기 위하여 최적화 설계를 하였으며, Fig. 4와 같이 나타내었다.

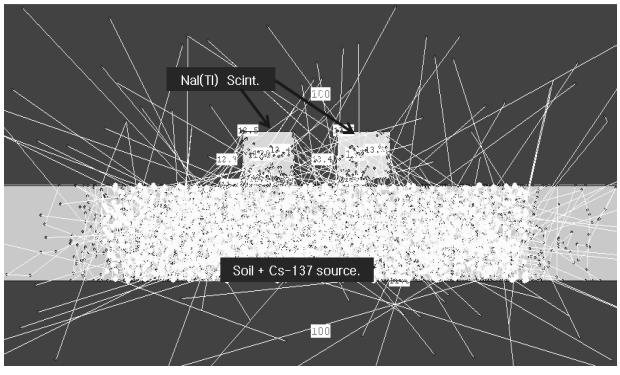


Fig. 4. MCNP modeling for Radiation Measurement System.

2.4 측정처리속도 계산

수식(1)에서 나타낸 대용량 연속식 측정시스템의 주요인자와 측정처리속도에 대한 계산결과는 Table 1과 같이 나타내었다. 총 방사능(A_{Total})은 Cs-137 선원의 비방사능 5 Bq/g과 감마 방출율 0.85, 오염토양의 부피와 밀도를 고려하여 383,000 Bq로 계산하였다. 각 검출기의 검출응답($R_{cal.}$)은 MCNP 전산코드를 이용하여 0.012로 계산되었다. 각 검출기의 고유효율($\varepsilon_{A2}=\varepsilon_{B2}$)은 0.85으로, 참고문헌[1]에서 참고하였다. 오염토양의 무게(M_{soil})는 90 kg이고, 설계여유도(D_M)는 0.8로 고려하였다. 측정값의 상대오차 10%을 고려한 요구되는 계수율($C_{Req.}$)는 100 cps이다. 대용량 연속식 측정시스템의 측정처리속도는 주요인자의 계산결과로 토대로 수식 (1)에 적용하여 28.6 kg/s (약 103 ton/h))로 도출되었다.

Table 1. Calculated value for measured speed and parameter of Radiation Measurement System

Parameter	Calculated Value
$N_0 \times \varepsilon_{A1} \times \varepsilon_{B1}$	55
A_{Total}	383,000 Bq
$R_{Cal.A}(R_{Cal.B})$	0.012
$\varepsilon_{A2}(\varepsilon_{B2})$	0.85
W_{soil}	90 kg
D_M	0.8
C_{Req}	100 cps
Speed	28.6 kg/s (103 ton/h)

3. 결론

본 연구에서는 광역의 세슘 오염 부지 내 토양의 잔류방사능을 신속하게 측정 가능한 측정시스템 개발을 위한 개념설계를 수행하였다.

본 연구에서 개념 설계한 방사능 측정시스템은 측정처리속도 28.6 kg/h (약 103 ton/h)로 계산되어 대규모 오염토양의 잔류방사능 측정이 가능할 것으로 판단된다. 향후, 본 연구에서 설계된 대용량 연속식 측정시스템으로 오염토양의 잔류 방사능 측정값에 따라 오염토양을 분리하는 시스템과 오염토양의 대표시료 채취, 측정, 통계학적 평가 방법을 개발하여 대규모 오염토양 내 잔류방사능 측정의 신뢰도를 향상시키고자 한다.

4. 감사의 글

본 연구는 산업통상자원부가 시행한 에너지기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] Glenn F. Knoll, Radiation Detection and Measurement, Third Edition.

토양제염 방법의 현장 적용을 위한 기술평가 및 성능평가 Code 분석

김선일, 이상헌, 송종순*
조선대학교, 광주광역시 동구 필문대로 309
kingdom17c@naver.com

1. 서론

후쿠시마 원전 사고 후 세슘(Cs)으로 인한 오염 사고 이 후 일본 정부는 토양을 Ton-Bag에 담아 제염 지역 주변 공터에 임시 보관 중에 있으며, 이폐기물 저장시설의 확보가 어려움에 따라 오염 토양의 부피를 최소화하기 위한 제염기술 개발이 절실한 실정이다. 토양제염법의 개발에 앞서 적절한 토양제염 방법의 현장 적용을 위한 기술평가 연구를 위해 선행적으로 다양한 제염방법을 분석하였고, 또한 기술평가 방법 중 하나인 화학평형 코드의 특징을 나타냈다.

2. 본론

2.1 토양제염 방법

일반적인 토양제염 방법에는 생물학적 처리방법과 물리·화학적 처리방법, 열적처리방법이 있다.

2.1.1 생물학적(Biological Treatment)처리
- 생물학적 분해법 (Biodegradation)
- 생물학적 통풍법 (Bioventing)
- 토양경작법 (Landfarming)
- 식물재배 정화법 (Phytoremediation
- 퇴비회공법 (Composting)
- 자연저감법 (Natural Attenuation)

2.1.2 물리·화학적(Physic-Chemical Treatment)처리
- 토양세정법 (Soil Flushing)
- 토양증기추출법 (Soil Vapor Extraction)
- 토양세척 (Soil Washing)
- 용제추출법 (Solvent Extraction)
- 고형화/안정화법 (Solidfication/Stabiliztion)
- 동전기법 (Electrokinetic Separation)
- 동전기세정법(Electrokinetic Flushing)
- 복합동전기법 (Washing-Electrokinetic)

2.1.3 열적(Thermal Treatments)처리
- 열탈착법 (Thermal Desorption)
- 소각법 (Incineration)
- 유리화법 (Vitrification)
- 열분해법 (Pyrolysis)

Table 1. Characteristic of Decontamination Method

제염방법	특징
생물학적 처리	• 전반적으로 제염효율이 낮음 • 장시간이 소요됨
물리·화학적 처리	• 다른 제염방법과 복합하여 사용하기 적합
열적 처리	• 특정유기물 존재에 따라 가스상 2차 폐기물 발생

2.2 국내 실증 토양제염 기술

일반적인 토양제염 방법 중 국내에서 실증 된 제염법의 특징을 나열하였다.

2.2.1 토양세척(Soil Washing)

고리2발전소의 보관중인 오염토양을 대상으로 수행하였다. 제염효율은 방사능 준위, 토양입도, 제염제와 토양의 혼합비, 제염시간 등을 변화시켜가며 측정하였다. 종합적으로 모든 제염조건에 대해 80%이상의 제염효율을 보였으며, 반복 제염은 0.5~2.0 mm의 작은 입자에 더욱 효과적이었다. 초기 제염은 약 54~85%, 반복제염실험은 83~91% 효율을 나타냈다.

2.2.2 퇴적침출(Heap Leaching)

토양세척(Soil Washing) 공정의 하나인 퇴적침출(Heap Leaching)은 응결이 필요하지 않은 조립토양(sand)은 직접 퇴적침출로, 미세토양의 경우 응결시킨 후 퇴적침출로 제염하는 공정을 말한다. 응결토양의 침출 제염 결과 28.8일 동안, Co 97.9%, Cs 81.1%가 제거되는 것으로 나타났다. 조립토양(0.075 mm이상) 중 0.075~2.0 mm 토양은 14.3일 동안 Co 99.9%, Cs 96.5%가 제거 되었다.

2.2.3 동전기세정(Electrokinetic Flushing)

TRIGA 해체부지토양을 입도를 분석한 결과 평균 입도는 1.2 mm이었다. 제염효율을 방사능 세

기별로 나타내면, 1825 Bq/kg 오염된 토양은 50 일간 Co 99.9%, Cs 94.3% 제거되었다. 또한, 2850 Bq/kg 오염된 토양은 60 일간 동전기세정 시 Co 99.9%, Cs 96.4% 제거가능하다. 질산 세정액 재사용은 NaOH를 투입 오염물을 제거 후 5회 사용 시 재생용액의 제거효율은 원액 효율의 95%이상을 유지한다.

2.2.4 복합동전기(Washing-Electrokinetic)

방사성물질에 오염된 토양 및 콘크리트에 다량의 질산을 넣어 오염을 제거하는 세척법(Soil Washing)에 동전기(Electrokinetic)제염 법을 복합하여 질산 1.0M 농도로 전처리 한 뒤, 백금을 티타늄으로 코팅한 전극에 단위 면적당 20 mA, 14 V의 직류전압을 가하여 실험하였다. 제염효율은 약 30일간 공정을 하면 Cs 96%, U과Co 98% 제거하였다.

2.3 제염 평가 방법

토양제염의 평가방법에는 HPGe와 NaI(TI)검출기를 이용한 방법과 화학평형모델을 이용한 방법이 있다. 그중 화학평형 모델을 간략하게 나타내었다.

-WATEQ

주요 혹은 추적원소 종 분화와 자연수의 화학평형을 계산하는 지구화학적 모델이다.

-Visual MINTEQ

다양한 화학적인 환경에서 금속원소의 평형상태를 예측하기 위해 개발되었다. 이를 위해 방대한 열역학 Database가 포함되어있으며, 미국 EPA에서 만든 MINTEQA2 모델에 Window를 인터페이스로 적용 시켜 Visual basic ver(6.0)으로 만들어졌다.

- PHREEQC

수질 지구화학 계산을 수행하기 위해 설계된 모델이다. 기능으로는 종형성과 포화지수 계산, 용액의 혼합, 표면 화합물반응 등의 기능이 있다.

Table 2. Feature of Chemical Equilibrium Model

capabilities	WATEQ	Visual MINTEQ	PHREEQC
ion speciation	●	●	●
K at system temp	●	●	●
Redox equilibrium	●	●	●
Gas phase equilibrium	●	●	●
Saturation indices	●	●	●
Database	●	●	●
Mass transfer		●	●
Ion exchange		●	●
Adsorption isotherm		●	
Surface complexation		●	●
Titration		●	●
Reaction path			●

3. 결론

원전사고 또는 원전 해체시 토양제염은 필수적이다. 원자력관련부지의 토양특성 및 제염효율을 미리 예측하기 위해 다양한 환경의 토양을 실험분석하여 Databsa를 구축함으로써 향후 화학평형모델을 이용한 Code평가를 수행할 예정이다.

4. 참고문헌

[1] 송중권, 강기두, 김학수, 박경록, 김경덕, "원자력발선소 토양에 대한 파이롯 규모 토양세척 기술 실증", 방사성폐기물학회지, 2(4), 245-251 (2004).

[2] 김계남, 원휘준, 김민길, 정종현, 박진호, 오원진 "동전기적방법을 이용한 방사능 오염토양 내의 방사성핵종 제거" 한국원자력학회 2004 춘계학술발표회 논문집.

[3] 장세은, 이민희 "우라늄 함량이 높은 국내 토양에 대한 토양학적 특성 규명 및 토양세척법의 적용성 평가" 한국지하수토양환경학회지 13(5) 8-19 (2008).

[4] "원자력시설 제염해체기술 개발"기술보고서 KAERI/PR_3121/2009.

고분자 전해질에 따른 토양 고정화 특성

최용석*, 서범경, 문제권
한국원자력원구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*yschoi@kaeri.re.kr

1. 서론

일본 후쿠시마 원자력발전소 사고로 유출된 방사성세슘(Cs-137)은 주변 수십킬로미터 범위의 임야, 농경지, 도로 그리고 주거지역을 오염시켰다. 현재도 오염지역 내의 방사성 오염원을 제거하고 오염부지를 복원하기 위한 노력이 계속되고 있다. 광역 범위로 확산된 Cs-137은 약 30 년 정도의 반감기를 가지고 있으며, 토양에 고착된 후에는 토양으로부터 제거하기가 쉽지 않다. 사고 발생 초기에 방사성 세슘이 토양에 고착되는 것을 억제하고 방사성 세슘에 오염된 토양의 확산을 신속하게 차단하여 청정지역으로의 2차적 오염을 막기 위해 토양 고정화제 및 흡착제 개발이 요구된다.

방사성 오염토양 고정화는 바람에 의한 오염토양 입자의 부유 또는 오염토양의 침수에 의한 방사성 오염원의 확산을 억제하기 위해 필요하다. 또한 오염 토양 고정화 후에는 토양표층으로부터 오염토양층만을 분리 제거에 활용하여 오염부지 복원에 적용할 수 있다. 방사성 오염토양 고정화제는 토양 입자와 고정화 소재 상호간의 물리화학적 결합을 이용한 점착 또는 접착 특성을 이용하여 방사성 오염 토양을 고정화 할 수 있는 소재이다. 방사성 오염 토양 고정화제는 고분자 전해질을 이용한 고정화 방법이 있다[1]. 이들 고분자 전해질은 물에 대한 용해도가 뛰어난 친수성으로, 많은 양이온 또는 음이온 전하를 가지고 있다. 또한 토양과 상호 결합하여 토양 표면에 있는 방사성 핵종을 고정화시켜 비산을 억제할 수 있다. 고분자 전해질은 천연고분자와 합성고분자로 구분할 수 있다.

본 연구에서는 양이온성 고분자와 음이온성 합성고분자에 의한 고분자전해질 복합체 형성을 이용하여 토양을 고정화 방법과 천연고분자의 음이온들과 금속이온의 화학결합을 이용한 오염토양을 고정화하는 방법을 이용하여 토양 고정화 후 고정화 특성을 비교 연구하였다.

2. 본론

2.1 토양 고정화제의 제조 및 토양 고정화

양이온 및 음이온 합성고분자를 이용한 방사성 오염토양 고정화제를 제조하기 위해서 양이온 고분자로는 Polydiallyldimethyl ammonium chloride (PDADMAC 10wt%)와 음이온 고분자로는 Polyacrylic acid(PAA 10wt%)를 사용하였다. 또한 염 농도 조절을 위해 KCl, NaOH를 사용하였다. 물 100 mL에 0.6 M KCl 농도조건에, NaOH을 첨가하여 용해시켰다. 여기에 PDADMAC 4.2 g을 넣어 약 1 시간 동안 교반시켜 주었다. 그리고 PDADMAC를 교반시키면서 PAA를 천천히 첨가하였다. 완전히 용해 후 균일한 PEC 고정화제 용액을 얻었다.

천연고분자의 음이온들과 금속이온의 화학결합을 이용한 오염토양을 고정화를 위해서는 천연고분자 2wt% carboxymethyl cellulose sodium (CMC, DS=0.7, 분자량=25만) 용액과 금속이온으로는 0.5 M 농도의 Fe^{3+}이온 용액을 사용하여 하였다.

토양 고정화에 사용한 토양은 국내 원자력 발전소 주변의 토양의 입도분석 결과, 모래가 72-90%로 대부분을 차지하고 나머지는 자갈과 실트 그리고 점토 성분으로 구성되어 있음을 감안하여 시약급의 균일한 모래와 사토질의 일반토양으로 구분하여 사용하였다.

토양의 고정화는 각각의 두 종류의 토양을 준비하고 합성고분자를 이용한 고정화 방법과 천연고분자를 이용한 고정화방법으로 나누어 토양을 고정화하였다. 합성고분자를 이용한 고정화는 제조된 PEC 용액을 토양에 도포하여 24 시간 상온에 보관 후 50 도 오븐에서 24 시간 건조하였다. 천연고분자를 이용한 고정화는 CMC 용액을 각각의 토양에 도포한 후 3-4 시간 후에 Fe^{3+}이온 용액을 살포하여 토양을 고정화하였다.

2.2 고정화 토양의 특성

고정화 토양의 고정화 정도는 만능시험기의 굽힘강도를 측정하여 결정하였다. Fig. 1에 보는 것

과 같은 만능시험기를 이용하여 3점 굽힘강도 측정 방법을 이용하여 강도를 측정하였다. 시험 방법은 원형의 고정화 토양시편을 제작하여 물리적 힘이 증가함에 따라서 시편이 쪼개지는 시점의 강도로 결정하였다. 천연고분자와 합성고분자로 고정화한 토양의 강도는 모두 우수한 편을 보였다.

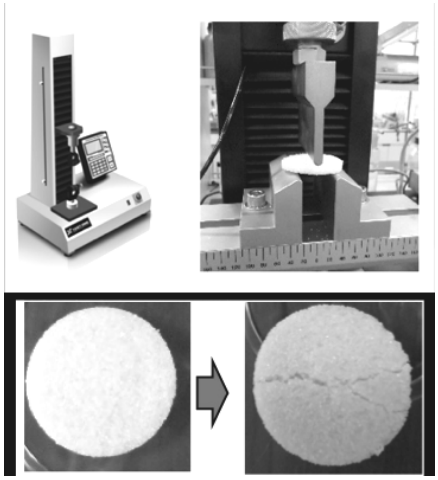


Fig. 1. Analysis of mechnical strenght of solidfied soil.

고정화 토양에 대하여 바람과 침수등의 외부 영향에 의한 토양의 침식 정도를 평가하였다.

Fig. 2는 직경 10 cm와 길이 10 cm를 가지는 정사각형 틀에 토양을 고정화한 후 바람에 의한 침식을 평가한 결과이다. 합성고분자와 천연고분자을 이용한 고정화 토양 모두 15 m/s의 풍속에도 안정함을 확안하였다.

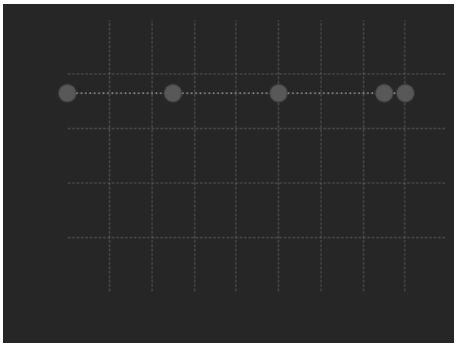


Fig. 2. The results of wind erosion of solidfied soil.

Fig. 3에서 볼 수 있듯이 3 L/min의 유량을 고정화 토양 표면에 흘려서 침수에 의한 고정화 토양의 상태를 관찰하기 하였다. 그 결과 합성고분자를 이용한 고정화는 시간이 지남에 풀어져침수에 대한 약점을 나타냈다. 반면에 천연고분자을 이용한 고정화 토양은 2 시간 이상의 침수에도 영향을 받지 않고 고정화 상태를 유지함을 확인하였다. 또 더불어 고정화 토양의 장기적 안정성을 확인하기위해서 상온에 방치하며 고정화 토양의 건전성을 확인하였다.

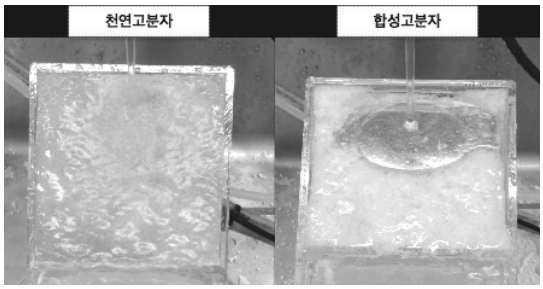


Fig. 3. The test of water erosion of solidfied soil.

3. 결론

합성고분자를 이용한 고정화 방법은 장기적 고정화제의 안정성과 고정화 토양의 강도를 유지하는 강점을 가지고 있으나, 침수에 의해 토양간의 결합력이 약해진다는 특성과 향후 토양으로부터 고정화제를 별도로 처리해야 하는 약점을 가지고 있다. 이에 반해서 천연고분자를 이용한 토양 고정화 방법은 합성고분자에 비해서 고정화 초기에 토양표면에 고분자막을 형성하여 침수에 대한 강점을 보였다. 또한 천연고분자는 생분해성이므로 장기적으로 서서히 분해가 이루어져 고정화제를 처리 과정이 용이한 특성이 있으나 이점은 상대적으로 고정화제의 장기적 안정성이 떨어지는 약점으로 작용할 수 있음을 확인하였다.

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).

초임계 이산화탄소와 Catechol Amine 유도체를 이용한 오염토양 내 금속 추출 연구

박지혜, 박광헌*
경희대학교, 경기도 용인시 기흥구 덕영대로 1732
*kpark@khu.ac.kr

1. 서론

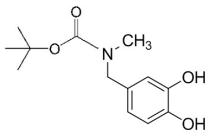
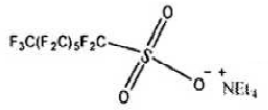
중대사고 발생 시 방사성물질이 외부로 누출될 수 있고, 또한 이러한 누출된 방사성물질이 발전소 부지의 토양을 오염시킬 수 있다. 하지만 토양 오염은 오염물질과 지역의 특성에 따라 오염의 형태가 달라지기 때문에 제염이 쉽기 않다[1]. 또한 기존의 제염법은 화학적 독성을 가지는 용제를 사용하기 때문에 추가적인 폐기물을 발생시키는 단점이 있다. 따라서 화학 용제 사용을 줄이면서도 효과적인 제염을 위한 새로운 제염법의 필요성이 대두되었고, 새로운 제염법으로써 초임계 이산화탄소를 이용하는 방법이 연구되고 있다[2]. 본 연구에서는 초임계 이산화탄소와 Catechol Amine 유도체를 이용하여 토양 내 금속 이온을 제염하는 방법에 대하여 연구하였다.

2. 본론

2.1 추출제

기존에 알려진 Catechol은 초임계 이산화탄소 내에서 용해성이 전혀 없다. 하지만 경희대학교 응용화학과에서 이를 보완하여 초임계 이산화탄소 내에서 용해성을 가지면서 킬레이트 리간드로써 능력을 가지는 다양한 유도체를 합성하여 용해도 테스트를 하였고, 본 연구에서는 그 중 Cs의 추출에 높은 추출율을 보인 Catechol Amine 유도체를 ligand로 사용하였다. 본 연구에서 사용한 이산화탄소는 비극성이기 때문에 극성 물질인 금속 이온을 제염하기 위해서는 금속 이온과 결합하는 co-ligand가 필요하다[3]. 이를 위하여 Net4pFOSA를 co-ligand로 함께 사용하였고, 금속 이온이 물에 잘 녹는점을 이용하여 추출효율을 높이기 위하여 H_2O를 함께 사용하였다. 다음 Table 1은 본 연구에서 사용한 ligand와 co-ligand의 분자구조를 나타낸다.

Table 1. Molecular structure of ligand and co-ligand used in this experiments

Reagent	Molecular structure
lagand	
co-ligand	

2.2 실험 방법 및 실험 조건

seasand에 질산 10 ml와 금속 이온 세 종류(Li, Sr, Cs)의 표준물질 5 ml를 넣고 초음파세척 1시간, 상온에서 약 1 시간 건조 후 90℃의 건조오븐에서 약 20 시간 건조시켰다. 최종적으로 오염토양의 오염도는 250μg/1g-soil가 되며, 이 오염토양을 길이 7 cm, 지름 1/4 파이프로 제조한 용기에 넣고, 파이프의 양 끝을 유리솜으로 막아 모의시편을 제조하였다. 교반용기 내부에 실험 조건에 해당하는 추출제를 넣고, 모의시편을 장착하였다. 온도 조절장치와 heater를 이용하여 실험 중 온도를 40℃로 유지하였고, 실린지 펌프를 이용하여 교반용기와 모의 시편 용기로 들어가는 이산화탄소의 압력이 210 bar가 되도록 유지하였다. 다음 Fig. 1는 본 연구에서 사용한 추출장치의 개략도를 나타낸다.

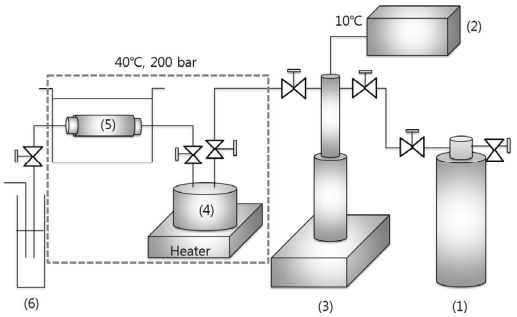


Fig. 1. Equipment for Extraction Test; (1) CO_2 cylinder (2) Temperature controller (3) Syringe pump (4) Mixing cell (5) Tubing cell (6) Stirrer and (7) Water bath.

추출실험은 먼저 정적추출을 통해 초임계 이산화탄소를 만들어 추출제와 초임계 이산화탄소를 섞어준 뒤, 동적추출을 통하여 초임계 이산화탄소와 섞인 추출제가 오염토양과 직접 반응하여 토양 내 금속이온을 추출하도록 하였다. 각각의 과정은 30 분씩 진행하며, 총 추출실험 시간은 1 시간 동안 진행하였다.

추출효과를 확인하기 위하여 ligand, co-ligand, additives의 양을 변화시켜가면서 추출실험을 진행하였다. Table 2은 본 연구에서 진행한 추출실험의 조건을 보여준다.

Table 2. Condition of extraction experiments

Number of experiment	Amount of regeant		
	Catechol Amine (mg)	Net4pFOSA (mg)	H_2O (ml)
E-1	10.3	10.4	10
E-2	10.3	10.4	5
E-3	12.6	31.4	0
E-4	12.6	31.4	0.10
E-5	12.6	31.4	0.36
E-6	25.3	31.4	0
E-7	25.3	31.4	0.10
E-8	25.3	31.4	0.36

실험진행 후 Microwave Acid Digestion System (MARS 5, CEM Corporation. Matthews, NC, USA)를 이용하여 시료를 전처리한 후, Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer(ICP-MS, LEEMAN ABS. INC, U.S.A)를 이용하여 정량분석을 시행하여 추출효율을 비교하였다.

2.3 실험 결과

초기 실험으로 E-1 실험과 E-2 실험을 수행하였는데, 두 실험에서 세 가지 금속 이온 모두 99% 가까이 전부 추출되었다. 금속 이온이 물에 쉽게 녹는 성질을 가지기 때문에 H_2O의 영향이 큰 것으로 판단하여 이후 실험에서 ligand와 co-ligand의 사용량을 늘리고 H_2O의 사용량을 줄여 실험을 수행하였다. ligand와 co-ligand의 양을 고정한 뒤, H_2O의 양을 변화시켜가며 실험을 진행하였는데, H_2O의 양과 추출율은 비례함을 보였다. 또한 같은 양의 co-ligand와 H_2O를 사용했을 때, 많은 양의 ligand를 사용했을 때 추출율이 증가함을 보였다. E-8 실험에서 최대 99% 가까지 추출됨을 보였다. 또한 세 가지 금속 이온의 종류에 따라서 큰 차이는 없었지만 적은 양의 추출제를 사용한 실험일수록 Sr의 추출율이 뛰어남을 확인할 수 있었다. 다음 Fig. 2는 각각의 실험으로 나타난 추출율의 변화를 보여준다.

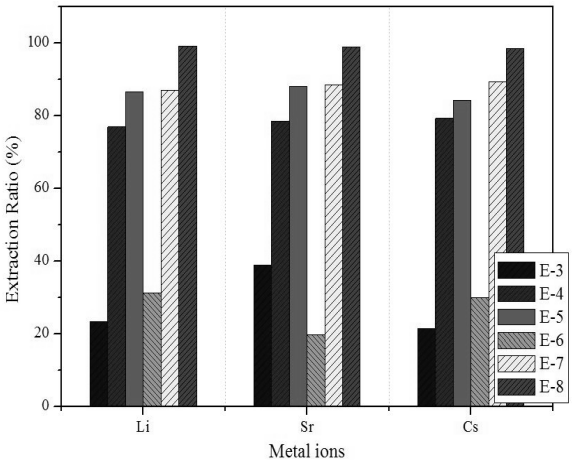


Fig. 2. Extraction ratio change according to amount reagent.

3. 결론

본 연구를 통해 초임계 이산화탄소와 Catechol Amine 유도체를 ligand를 사용하여 토양 내 금속이온 추출이 가능함을 확인하였고, ligand의 양과 H_2O의 양에 따라 추출율이 비례함을 확인하였다. H_2O은 토양 내 금속을 이온화 시키는 역할을 하기 때문에 효과적인 추출을 위해서는 적정한 양의 H_2O가 필요한 것으로 보인다. 또한 금속 이온의 종류에 따른 특이성은 발견되지 않았으나, Sr의 경우에 적은 양의 추출제를 사용하여도 다소 높은 추출율을 보임을 확인하였다.

4. 참고문헌

[1] K.H. Park, J.K. Lee, and J.H. Sung, "Metal extraction from the artificially contaminated soil using supercritical CO_2 with mixed ligands", Chemosphere, 91(5), 616-622 (2013).

[2] K.H. Park, H.W. Kim, H.D. Kim, M.S. Koh, J.D. Ryu, Y.E. Kim, B.S. Lee, and H.T. Park, "Application of CO_2 Technolgy in Nuclear Decontamination", Journal of the Korean Institute of Surface Engineering, 34(1) (2001).

[3] J. McHardy, P.S. Samuel, "Supercritical fluid cleaning: fundamentals, technology, and applications, Materials science and process technology series", William Andrew (2008).

MARSSIM 방법론에 따른 핵연료물질 사용시설의 잔류방사능 측정 및 평가

한희정[1], 조남찬[1], 한승훈[1], 이진행[1], 서민우[2*] , 김봉주[2], 김현권[2], 송정호[2]
[1]한전원자력연료, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 242
[2]㈜오르비텍, 서울특별시 금천구 범안로 1130 가산디지털엠파이어 8층
hjhan@knfc.co.kr / *seominwoo@orbitech.co.kr

1. 서론

한전원자력연료㈜의 핵연료물질 사용시설인 중수로연료 개발 사용실은 천연우라늄을 원료로 하여 중수로연료를 제조 하였던 시설이었으나, 시설 미사용 및 노후화 등으로 2009년부터 제염·해체 계획을 수립하고, 수립된 계획에 따라 일반화 구역으로 전환하기 위해 제염·해체를 수행하였다. 본 논문에서는 방사성오염을 제거하는 복원활동 후 시설 내 잔류방사능이 개방기준(Release Criteria)을 만족하는지 확인하기 위해 MARSSIM 방법론에 따라 최종현황조사(Final Status Survey)단계의 설계 및 평가를 수행하였다[1]. 최종현황조사 설계 및 평가를 수행하기 위해 시설의 부지이력평가, 범위조사, 특성조사, 복원활동 과정을 수행하였고, 최종현황조사를 위한 주요설계인자를 도출하였다.

대상 시설의 개방기준 유도농도지침한계(DCGL, Derived Concentration Guidance Level)는 오염핵종과 시설특성인자를 고려하고, RESRAD-Build 전산코드를 이용하여 확률론적 선량평가 방법론에 따라 도출하였다. 최종현황조사 설계 및 평가를 수행함에 있어서 VSP와 COMPASS 전산코드를 이용하여 시설 내 잔류 방사능오염을 평가하였다

2. 본론

본 논문에서는 MARSSIM 방법론을 적용하여 규제해제 대상 시설의 최종현황조사 설계 및 평가를 수행하였다. 설계단계에서는 오염 핵종, 조사단위, 측정 지점 및 개수, 검출기 선정 및 스캔조사 등의 주요설계인자를 도출하였다. 평가단계에서는 도출된 주요설계인자를 따라 시설 내 잔류 방사능오염 분포의 평균과 표준편차 등을 파악하고 통계학적 평가를 수행하였다. 대상 시설의 구조, 크기 및 조사단위는 Fig. 1에 나타내었으며, 최종현황조사 설계를 위해 VSP 전산코드를 사용하였다.

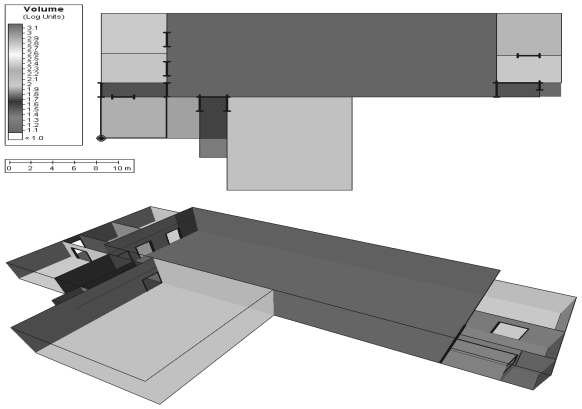


Fig. 1. Design Drawing of CANDU Fuel Fabrication Facility for Final Status Surveys using VSP.

2.1 최종현황조사 설계

2.1.1 오염확인 (Identify Contaminant)

부지이력평가, 범위조사, 특성조사의 결과를 토대로 대상 시설의 오염 방사성핵종은 천연우라늄과 딸핵종 (Th-234, Pa-234m, Th-231) 등으로 평가되었다.

2.1.2 유도농도지침한계 (DCGL) 산M출

건물개방에 따른 거주 일반인의 방사선피폭선량 한도를 U.S. NRC에서는 250 μSv/y, U.S. EPA에서는 150 μSv/y, IAEA(WS-G5.1)에서는 10 ~ 300 μSv/y 으로 권고하고 있으며, 본 논문에서는 개방기준을 국제적 권고기준 중 보수적인 평가를 위하여 가장 낮은 10 μSv/y 으로 고려하였다. 이 기준에 따라 DCGL은 오염 핵종과 시설특성인자를 고려하고, RESRAD-Build 전산코드를 이용하여 확률론적 선량평가 방법론에 따라 계산한 결과 0.621 Bq/㎡이 도출되었다.

2.1.3 조사단위 (Survey Unit) 결정

시설의 범위조사, 특성조사 결과와 제염 후 잠재적 오염 가능성을 검토하여 시설의 조사등급(Survey class)을 Class 1로 분류하였다. 이를 토대로 조사단위(Survey unit)는 MARSSIM에서 권고하는 최대 100 ㎡ 이하로 시설의 물리적인 구조를 감안하여 Table 1과 같이 총 23개로 분할하였다.

2.1.4 측정 지점 및 개수 결정

시설의 조사단위별 측정 개수는 1종/2종 오류 5%, 백그라운드, LBGR, 표준편차, Δ/σ(Relative shift) 등의 주요 인자를 고려하여 Table 1와 같이 조사단위별로 산출하였다. 측정 지점은 VSP 전산코드를 이용하여 무작위 시작점으로부터 삼각형모형 격자 간격으로 Fig. 3(좌상)과 같이 선정 하였다.

Table 1. Area and Measurement Number by Survey Unit ID

Survey Unit	Area (m^2)	N/2 (WRS)	Survey Unit	Area (m^2)	N/2 (WRS)
1	100	10	13	90	10
2	75	10	14	88	12
3	37	10	15	63	11
4	76	10	16	63	11
5	76	10	17	83	12
6	92	12	18	45	10
7	103	15	19	81	10
8	58	10	20	48	10
9	89	10	21	71	10
10	90	10	22	76	9
11	90	10	23	50	10
12	90	10			
Total				1734	242

2.1.5 검출기 선정 및 스캔조사

시설 내 잔류방사능은 α, β 표면오염 측정기(직접법), 저준위 α, β 분석기(간접법), ICP-MS 및 HPGe 감마분광분석기(시료채취법)를 측정 목적에 맞게 선정하여 측정하였다.

국부오염(Hot spot)을 확인 또는 제거하기 위한 스캔조사는 Area factor를 고려한 $DCGL_{EMC}$ 기준으로 전 면적을 전수검사 하였으며, Fig. 2와 같이 방사능 측정 값 및 스캔속도 등을 기록 저장하기 위해 무선데이터 전송 시스템을 개발·적용하였다.

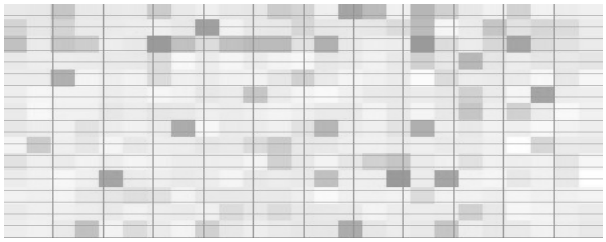


Fig. 2. Example of Radioactivity Survey Map by Scanning.

2.2 최종현황조사 평가

2.2.1 자료 평가 (Data Validation/Verification)

최종현황조사에서 측정된 방사능 측정값을 근거로 시설의 잔류 방사능오염 분포의 평균, 표준편차, 중간 값, 최대·최소값 등의 자료를 확인하고, Posting Plot, Histogram, Quantile Plot, Power chart 등을 이용하여 Fig. 3과 같이 잔류 방사능오염도 분포의 경향성, 국부오염 가능성 여부 등을 평가하였다.

2.2.2 통계학적 시험 (Statistical Test)

시설 내 잔류 방사능오염 분포의 평균과 표준편차를 정량적으로 평가하기 위한 통계학적 시험(WRS test)은 Table 2와 같이 수행하였으며, Wr 값과 Critical value를 비교하여 개방기준 만족여부를 평가하였다. α, β 선의 DCGLw는 검출기 면적 및 효율 등을 고려하여 유도하였으며, α선 계측시 380 cpm / 100 ㎠, β선 계측시 1736 cpm / 100 ㎠ 이었다.

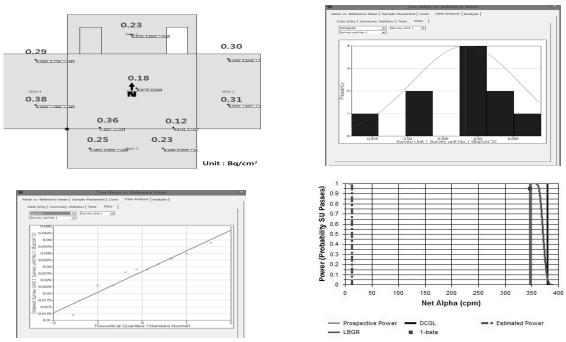


Fig. 3. Checking Methods for Data Validation/Verification.

Table 2. The result of WRS test (β-ray)

No.	A	B	C	D	E
1	5.6	R	1741.6	18.5	18.5
2	1.2	R	1737.2	11	11
3	1.9	R	1737.9	12.5	12.5
4	3.7	R	1739.7	16	16
5	2.5	R	1738.5	14	14
6	1.9	R	1737.9	12.5	12.5
7	5.6	R	1741.6	18.5	18.5
8	2.5	R	1738.5	15	15
9	8.7	R	1744.7	20	20
10	2.5	R	1738.5	16	16
11	113	S	113	2	0
12	129	S	129	3	0
13	137	S	137	5	0
14	157	S	157	8	0
15	197	S	197	10	0
16	185	S	185	9	0
17	149	S	149	7	0
18	145	S	145	6	0
19	105	S	105	1	0
20	133	S	133	4	0
sum				209	154

A : Data (cpm/100 ㎠), B : Area, C : Adjusted data
D : Ranks, E : Wr, $DCGL_W$ (1736 cpm/100 ㎠ for β -ray))
Critical value 127 (MARSSIM App.1) m=n=10 α=0.05

3. 결론

본 논문에서는 중수로연료 개발 사용실의 최종 잔류방사능 조사를 수행하였으며, 해당시설이 개방기준에 만족하는지 여부를 평가하였다. MARSSIM 방법론에 따라 해당시설의 최종현황조사 및 평가 결과, 개방기준을 만족함을 확인하였다.

4. 참고문헌

[1] U.S NRC, Multi-Agency Radiation Survey and Site Investigation Manual (MARSSIM), NUREG-1575, Rev.1 (2000).

U-SAP 조성 변화에 따른 LiCl 염폐기물의 고화특성 평가

김나영*, 조인학, 이기락, 은희철, 박환서, 안도희
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*kny@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에서 사용후핵연료 내 U 및 TRU 금속을 회수하기 위한 공정으로 연구되고 있는 파이로프로세싱에서는 I/II 족 핵종을 함유한 LiCl 염폐기물과 희토류 핵종들을 함유한 LiCl-KCl 공융염폐기물이 발생된다. 이러한 염폐기물들은 황산염 및 질산염과 달리 강한 이온결합화합물로서 고온에서 산화물로 분해되지 않고, 분자상태로 휘발되며, silicate 유리와 상용성이 낮은 단점으로 인하여 기존의 유리고화나 시멘트 고화방법으로는 안정한 형태의 고화체를 제조하는 것이 쉽지 않다. 특히 염소성분의 함유에 의해 열적 안정성이 낮으며, 물에 대한 용해도가 높아 이러한 염폐기물을 안정한 형태로 고화하기 위한 기술연구가 반드시 필요하다.

이상의 문제점을 해결하기 위해 본 연구팀에서는 무기합성복합체(SAP: SiO_2-Al_2O_3-P_2O_5)를 이용하여 금속염화물 형태의 염폐기물의 탈염화 반응을 유도하고, 열적으로 안정한 생성물로 전환한 후 유리매질과 함께 소결하여 안정한 고화체를 제조하는 기술을 개발하였으며 [1,2], 현재에서는 부가적인 유리매질의 주입 없이 염폐기물의 탈염화와 고화를 통시에 수행할 수 있는 Universal SAP(U-SAP)을 개발하여 안정한 고화체를 제조할 수 있음을 확인하였고, 염폐기물 고화공정을 단순화하는데 기여할 수 있었다.

본 연구에서는 U-SAP의 조성을 변화시키면서 LiCl 염폐기물의 고화특성을 평가함으로써, 고화민감도를 확인하고, 폐기물과 고화매질과의 적합성과 균질성이 높은 고화체를 제조하기 위한 U-SAP의 적정한 조성을 도출하고자 한다.

2. 본론

2.1 실험방법

무기복합체 U-SAP의 원료물질로서 tetraethyl orthosilicate (TEOS), aluminium(III) chloride ($AlCl_3$), phosphoric acid (H_3PO_4), $FeCl_3$ 그리고 boric acid를 사용하여, 에탄올/증류수에 녹인 혼합물을 솔젤법으로 70℃의 전기오븐에서 겔화시켰다. 70℃에서 약 3 일간 숙성하고, 90℃ 및 110℃에서 약 4 일간 서서히 건조시킨 후, 650℃에서 약 12 시간 열처리하여 제조하였다. 시험에 사용된 모의 염화폐기물은 LiCl 90wt%, CsCl 6.8wt%, $SrCl_2$ 3.2wt% 조성을 가진다. 제조된 U-SAP과 모의 염화폐기물 혼합물을 650℃ 산소분위기하에서 반응시켜 탈염소화 시킨 후, 반응물을 환원분위기에서 1250℃ 4 시간 동안 열처리하여 고화체로 제조하였다.

2.2 실험결과

U-SAP의 조성은 각 원소 산화물의 비로 조정하였으며, Table 1에 나타내었다. U-SAP의 조성은 기존의 시험 결과로부터 고화체의 열감량특성, 고형화특성 bulk separation 및 내침출특성 거동의 결과를 바탕으로 연구 진행을 하였다. SiO_2, Al_2O_3, P_2O_5, B_2O_3 및 Fe_2O_3의 조성을 각각 45wt%, 17wt%, 25wt%, 11wt%, 2wt%를 기준으로 두고, Al_2O_3과 B_2O_3의 조성범위를 42~48wt%와 5~17wt%로 설정하였다.

U-SAP과 모의 염화폐기물의 혼합비를 2:1로 설정하여 650℃ 산소분위기에서 24 시간 탈염소화하였고, 최종적으로 얻어진 생성물의 XRD 분석 결과를 Fig. 1에 나타내었다. 보는바와 같이 모든 생성물에서 27° 부근에서 $Li_XAl_XSi_{1-X}O_2$의 피크가 뚜렷이 나타났으며, 그 외에 Li_3PO_4 결정상 화합물과 $AlPO_4$도 생성됨이 확인되었다.

650℃에서 24 시간 반응시킨 생성물에 대한 TGA 분석을 실시하였으며, 그 결과 각 생성물의 무게감량은 이론적인 감량과 거의 일치하였음을 확인하였다. 이를 통해 조성을 변화시킨 모든 U-SAP 매질을 이용한 LiCl의 탈염화에 대한 반응률이 100%에 도달되었음을 알 수 있었다.

Fig. 2는 기존과 동일한 조건에서 탈염화 후 제조된 고화체 사진을 나타낸 것이다. U-SAP내

Al_2O_3의 함량이 17~23wt%의 경우에는 비교적 균질한 단면을 얻을 수 있었으며, 그에 비하여 Al_2O_3 함량이 낮은 경우(D,E)에는 Fig. 2에서 보는 바와 같이 단면에서 상분리와 기공이 존재함을 확인하였다. 또한, B_2O_3 함량 변화의 경우에는 낮은 함량인 5~11wt%에서 상분리가 나타났으나, 함량이 증가할수록 고화체가 균질한 형상을 보이는 것으로 확인되었다. 그러나 B_2O_3의 함량이 높을수록 고화체의 화학적 안정성이 감소할 수 있어 이에 대한 추가적인 연구가 수행되어야 할 것으로 판단된다.

Table 1. Compositions of U-SAP used in this study

Test No.		SiO_2	Al_2O_3	P_2O_5	B_2O_3	Fe_2O_3
Standard	A	45	17	25	11	2
Al-rich	B	43	20	24	11	2
	C	42	23	23	10	2
	D	47	14	26	11	2
	E	48	11	27	12	2
B-rich	F	47	18	26	8	2
	G	48	18	27	5	2
	H	43	16	24	14	2
	I	42	16	23	17	2

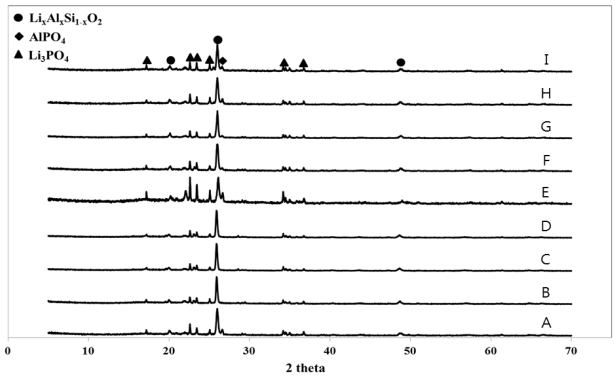


Fig. 1. XRD patterns of products after the dechlorination of LiCl using U-SAP.

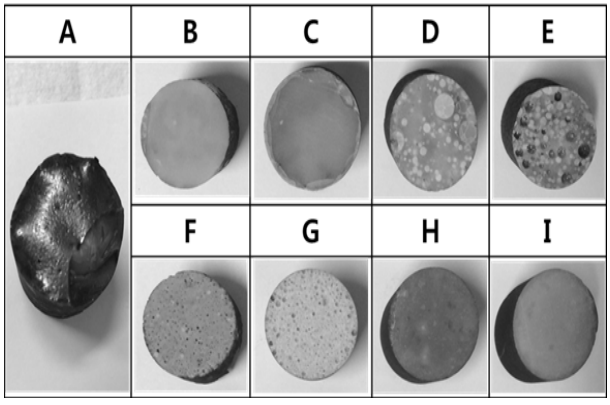


Fig. 2. Photos of consolidated forms.

3. 결론

본 연구에서는 U-SAP 내 Al_2O_3와 B_2O_3의 조성변화에 따른 LiCl 염폐기물의 탈염화반응 및 고화특성을 살펴보았다. U-SAP을 이용한 탈염화반응은 조성변화와 관계없이 이론적인 감량과 일치하는 높은 반응율을 보였다. 조성변화에 따른 고화체 제조특성에 있어서는 Al_2O_3와 B_2O_3의 조성이 비교적 높을수록 균질한 고화체를 제조할 수 있음을 확인하였다. 그러나 B_2O_3의 조성이 높을수록 고화체의 화학적 안정성이 감소될 수 있는 단점이 있어 제조된 고화체에 대한 침출특성 평가 및 이에 대한 부가적인 연구가 수행되어야 할 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

[1] H. -S. Park, I. -T. Kim, Y. -J. Cho, H. -C. Eun and H. -S. Lee, "Stabilization/Solidification of Radioactive Salt Waste by Using $_xSiO$-$_yAl_2O_3$-$_zP_2O_5$ (SAP) Material at Molten Salt State", *Environ. Sci. Technol.*, 42, 9357~9362 (2008).

[2] H. -S. Park, I. -H. Cho, H. -C. Eun I. -T. Kim, Y. -J. Cho and H. -S. Lee, "Characteristics of Wasteform Composing of Phosphate and Silicate to Immobilize Radioactive Waste Salts", *Environ. Sci. Technol.*, 45, 1932~1939 (2011).

무기매질을 이용한 공용융염(LiCl-KCl) 내 희토류 염화물의 고화특성

조인학[1*], 박환서[2], 은희철[2], 김나영[2], 안도희[2], 이영석[1]
[1]충남대학교, 대전광역시 유성구 대학로 79
[2]한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
[*]choinhak@kaeri.re.kr

1. 서론

사용 후 핵연료의 부피감용과 처분 전처리 대안공정으로 개발되고 있는 pyroprocessing 공정은 고온의 용융염내에서 수행되어 지며 전기적인 방법을 이용하여 사용 후 핵연료 내에 포함되어 있는 U 및 TRU 핵종을 회수하는 기술이다. Pyroprocessing 공정에서는 희토류 핵종 등을 포함하고 있는 공융염 폐기물이 발생하는데 이러한 폐기물들은 모두 안정한 형태로 고화 처리된 후 최종 처분되어야 한다. 희토류 핵종은 고방열성 또는 고방사성을 띠어 공융염폐기물을 고준위폐기물로 분류되며, 이 공융염폐기물의 감량 및 안정적 처리를 위해서는 희토류 염화물을 공융염내 불용성 화합물로 전환 및 침전시킴으로서 희토류 핵종을 공융염으로 부터 분리하는 것이 가장 효과적이다. 이를 위해 화학적 첨가제를 이용하여 희토류 염화물을 공융염내 불용성 화합물로 전환 및 침전시킴으로서 희토류 핵종을 공융염으로부터 분리하려는 연구가 많이 수행되었으나 공융염의 조성변화 및 불순물 증가 등의 문제점이 발생되어 폐기물 부피가 증가되는 문제점을 보였다. 현재 한국원자력연구원에서는 공융염 폐기물 내에 염화물 형태로 용해되어 있는 희토류핵종을 인산화물을 사용하여 공융염내 희토류를 인산화물 형태로 침전시키고, 잔여의 희토류를 산소분산법을 이용하여 산화물 또는 산염화물(oxychloride) 형태로 침전시켜 침전층과 순수염층으로 분리하고, 침전층만 세라믹 고화매질을 이용하여 고화하는 연구를 수행하고 있다. 이 공정은 부산물 발생없이 재활용이 가능한 공융염을 대부분 회수할 수 있으며, 또한 최종적으로 배출되는 폐기물의 부피를 크게 감량시킬 수 있다는 장점이 있다. 하지만, 분말상의 희토류 산화물로만 구성된 방사성 폐기물에 대한 고화체 제조에 대한 연구는 많이 이루어지지 않고 있으며, 상업적으로 적용되는 유리화 방법은 붕산계 유리를 유도로에서 고화 대상 폐기물과 약 1400~1500℃로 용융/분해 후 용융물을 고화 드럼에 부운 후 균열을 방지하기 위한 열처리 단계를 거쳐 고화체를 제조하게 된다.

본 연구에서는 Li이 포함된 무기매질을 제조하여 LiCl-KCl 공용융염 내에 존재하는 희토류 염화물을 인산화물로 전환시켜서 monolithic form으로 고화시키는 방법을 수행하였다. 이 방법은 희토류 염화물 분리공정과 같이 LiCl-KCl 공용융염 내에서 희토류 염화물을 희토류 산화물로 전환시킨 층과 순수염 층으로 분리할 수 있으며, 전환된 희토류 인산화물을 고화매질의 첨가 없이 바로 고화시킬 수 있는 장점이 있다.

2. 본론

2.1 실험방법

무기합성매질은 TEOS (Tetraethyl orthosilicate, Aldrich, 98%), 질산알루미늄 ($Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$, Junsei, 98%) 및 인산 (H_3PO_4 Junsei, 85%), 질산리튬($LiNO_3$)을 Si, Al, P 및 Li의 원료로 사용하였다. 각각의 원료에 대해 Si/Al/P의 몰비1/1/1.25에 따라 일정량을 알코올(EtOH)과 물에 녹인 후 Li 1~3 mol을 첨가하여 상온에서 강하게 5 분간 혼합 후, 70℃의 전기오븐에서 겔화시켰다. 70℃에서 약 3 일간 숙성, 다시 90℃ 및 110℃에서 약 3 일간 서서히 건조시킨 후, 650℃의 전기로에서 약 6 시간동안 열처리하여 잔류유기물과 용매를 제거하였다. Sol-gel법으로 제조한 무기매질의 XRD 분석을 Fig. 1에 나타내었다. LiCl-KCl 공융염 내 각각의 희토류 염화물(La, Nd, Ce)의 양을 3, 5, 7%로 변화시켜서 500℃에서 완전히 녹인 후, 무기매질 1.5 g을 투입시켜서 10시간 동안 반응시킨 후, 무기합성매질에 대한 용융염내 안정성 및 희토류 인산화물로 전환되는지를 XRD 분석을 통해 살펴보았다. 또한, 이렇게 전환된 희토류 인산화물을 고화매질의 첨가 없이 바로 고화시키기 위해서 1200~1400℃에서 열처리를 하였고, 고화체의 XRD 분석을 통해 살펴보았다.

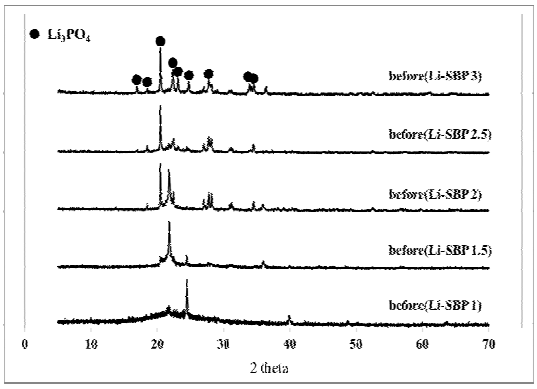


Fig. 1. XRD pattern of inorganic matrix.
(● : Li_3PO_4)

2.2 실험결과

Li의 mol을 1~3으로 변화시켜 제조한 무기매질의 XRD 결과를 Fig. 1에 나타내었는데, Li이 2 mol 이상으로 제조했을 때, Li_3PO_4 결정성이 무기매질 내에 존재함을 알 수 있었다. 무기매질 내에 인산화물은 LiCl-KCl 공용융염 내에 존재하는 희토류 염화물을 희토류 인산화물($REPO_4$)로 전환시킬 수 있을거라 판단된다. 또한, Li이 포함되어 있어서 희토류 염화물이 희토류 인산화물로 전환되고, 남게되는 Cl와 반응하여 LiCl로 재생성된다. Fig. 2는 LiCl-KCl 공용융염 내 각각의 희토류 염화물(La, Nd, Ce)의 농도를 3, 5, 7%로 변화시켜서 500℃에서 완전히 녹인 후, 무기매질 1.5 g을 투입시켜서 10 시간 동안 반응시킨 후의 XRD 결과이다.

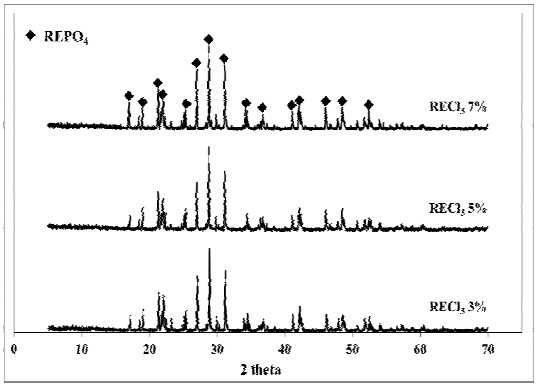


Fig. 2. XRD pattern of inorganic matrix after reaction.
(◆ : $REPO_4$)

Fig. 2에서, 무기매질의 골격내 인산화물이 공용융염 내의 희토류 염화물과 반응하여 희토류 인산화물($REPO_4$)로 전환되었음을 알 수 있다.

고화매질의 첨가 없이 바로 고화되는지를 확인하기 위해 생성물을 1200~1400℃까지 열처리를 하였고, 생성물의 이미지를 Fig. 3에 나타내었다.

Fig. 3을 보면 온도가 증가할수록 생성물의 상부에 나타난 균열들이 사라지며, 보다 단단히 응집되어 치밀화가 높은 고화체가 제조된다는 것을 알 수 있다.

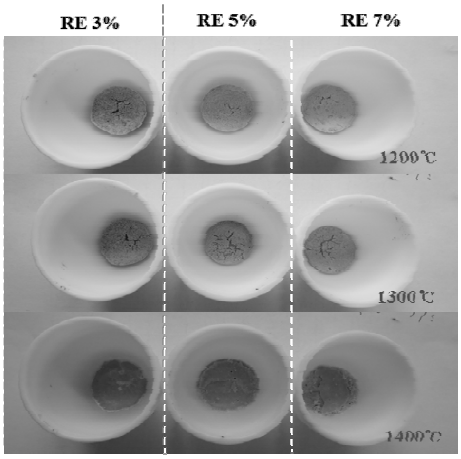


Fig. 3. XRD pattern of waste form.
(● : Monazite)

3. 결론

본 연구에서는 LiCl-KCl 공용융염 내 존재하는 희토류 염화물을 희토류 인산화물로 전환시키고자 무기매질을 제조하였다. 무기매질의 골격내 인산화물이 공용융염 내에 희토류 염화물과 반응하여 희토류 인산화물($REPO_4$)로 전환되었음을 알 수 있다. 전환된 희토류 인산화물을 1400℃정도에서 열처리를 통해서 고화매질의 첨가 없이 바로 고화되는 것도 확인하였다. 추가적인 실험이 필요하지만, 희토류 염화물이 존재하는 공용융염 내에 무기매질이 적용 가능성이 충분히 있다고 판단된다.

4. 참고문헌

[1] T. R. Griffiths, V. A. Volkovich, S. M. Yakimov, I. May, C. A. Sharrad, J. M. Charnock, "Reprocessing Spent Nuclear Fuel Using Molten Salt Carbonates and Subsequent Precipitation of Rare Earth Fission Products Using Phosphate", J. Alloy and compound, 418, 116-121 (2006).

[2] H. C. Eun, Y. Z. Cho, H. S. Park, T. K. Lee, I. T. Kim, H. S. Lee, "Study on a Recovery of Rare Earth Oxides form a LiCl-KCl-RECl3 System, J. Nuclear Materials, 408, 110-115 (2011).

희토류 인산화물 고화를 위한 Calcium Phosphate Glass Waste Form 제조 및 특성분석

최정훈*, 은희철, 이기락, 조인학, 이태교, 김나영, 박환서, 안도희
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*mrchoijh@kaeri.re.kr

1. 서론

후행 핵연료주기에서 발생하는 방사성 폐기물은 고방사성, 고방열성 특징으로 인해 폐기물의 처분 방법에 관하여 활발히 연구가 수행되고 있다. 사용후핵연료로부터 U/TRU 등을 회수하여 SFR 등의 차세대 원자로의 연료로 재사용하고, 방사성 폐기물의 발생량 및 처분면적을 줄이기 위하여, 한국원자력연구원에서는 파이로 건식처리공정 (Pyrochemical process)을 개발 중에 있다.[1-3] LiCl 및 LiCl-KCl 용융염을 전해매질로 사용하는 파이로 건식처리공정은 전해환원, 전해정련 및 전해제련 공정으로 구성되며, 일련의 전기화학 공정처리 후 전해매질 내에는 방사성 핵종이 누적된다. 특히, 전해정련 및 제련공정에서는 LiCl-KCl 공융염이 염폐기물로 발생하게 되며, 공정이 진행됨에 따라 LiCl-KCl 공융염 내에는 방사성 희토류 핵종이 다량 농축되어 존재하게 된다. 이러한 희토류 염화물을 함유한 공융염 폐기물 감축을 위해서 희토류 핵종을 분리/제거한 후 정제된 공융염을 전해정련 공정에서 재사용하고, 분리된 희토류 핵종은 장기건전성이 확보된 형태의 고화체로 제조하여 최종 처분해야 한다.

공융염 폐기물 내 존재하는 희토류 핵종은 용융염 내 이온상태로 존재하고 있어 물리적인 방법으로 분리가 어렵기 때문에, 희토류 염화물을 공융염 내에서 불용성 화합물인 희토류 인산화물로 전환 후 제거하는 것에 관한 연구가 수행되고 있다. K_3PO_4-Li_3PO_4 인산화제를 이용하여 용융상태의 LiCl-KCl 공융염 내에 존재하는 희토류 이온을 희토류 인산화물 전환하여 99%이상의 고효율로 분리 가능함이 보고된 바 있다[4].

본 연구에서는 파이로 건식처리공정에서 발생하는 희토류 인산화물을 안정한 형태로 고화하기 위하여, Calcium phosphate glass계열의 유리매질을 이용하여 고화체를 제조하고, 물리적/열적 특성 분석을 수행하였다.

2. 본론

2.1 실험 방법

희토류 인산화물 고화체 제조 특성을 파악하기 위하여, 사용후핵연료 내 희토류 핵종 중 대부분을 차지하는 Nd 핵종을 대표 물질로 선정하였으며, 다음의 방법을 이용하여 $NdPO_4$를 합성하였다. Nd_2O_3 및 $NH_4H_2PO_4$ (Ammonium Dihydrogen phosphate)를 반응 당량으로 섞은 후 500°C에서 두 시간 및 1,000°C에서 한 시간 열처리를 수행하여 $NdPO_4$를 제조하였으며, XRD 분석 결과 해당 인산화물임을 확인하였다. 희토류 인산화물을 고화하기 위하여 CaO-P_2O_5 계열의 유리매질을 이용하였다. CaO, $NH_4H_2PO_4$, 및 고화대상 물질인 $NdPO_4$를 waste loading별로 혼합/미분쇄 후 500°C에서 두 시간 반응하여 $NH_4H_2PO_4$ 의 분해반응을 통해 P_2O_5를 공급하였다. 유리화를 위하여 1,100°C로 승온하여 용융 후, graphite plate에 decanting 후 급랭하여 waste form glass frit을 제조하였다. 미세구조 및 열적특성 분석을 위하여 XRD, SEM, 및 DSC 분석 등을 수행하였다.

2.2 결과 및 고찰

파이로 건식처리공정의 공융염폐기물 핵종분리 공정에서 발생하는 희토류 인산화물을 안정한 형태로 고화하기 위하여, CaO-P_2O_5 system의 유리매질을 이용하여 $NdPO_4$의 고화체 제조 특성분석을 수행하였다. CaO-P_2O_5-$NdPO_4$ system으로 제조한 유리고화체를 RCP (Rare earths Calcium Phosphate) glass waste form으로 명명하였다. $NdPO_4$의 waste loading을 0-50wt%범위로 하여 RCP glass waste form을 제조하였으며, 이를 Fig. 1에 나타내었다. Fig. 1에 나타낸 바와 같이, 40wt%까지는 clear한 glass 상을 나타내는 것을 확인할 수 있었으나, 50wt%에서는 상분리가 일어나 glass phase를 형성하지 못하는 것을 확인할 수 있었다. Fig. 2에 나타낸 XRD 결과에서도 알 수 있듯이, 0-40wt%까지는 특정 회절 피크가 관찰되지 않아 glass phase를 형성하고 있는 것을

확인할 수 있으나, 50wt%의 경우, 고화대상 물질인 $NdPO_4$가 고화매질과 용융되지 않고 원래의 상을 유지하고 있는 것을 확인할 수 있었다. RCP glass waste form의 밀도를 Archimedes 원리를 이용하여 측정하였다. 측정결과 0wt%-2.631, 10wt%-2.632, 20wt%-2.689, 30wt%-2.794, 40wt%-3.075, 및 50wt%-3.286 g/cm^{3}을 나타내었으며, 희토류 핵종의 waste loading의 증가에 따라 밀도가 증가하는 경향을 나타내었다. 미세구조 분석을 위하여 SEM분석을 수행하였으며, 40wt%까지는 상분리 없는 clear한 상을 나타내었으나, 50wt%의 경우 크랙이 형성되어 있음을 확인할 수 있었다. 열적 특성을 확인하기 위하여 DSC를 이용하여 유리전이온도 분석을 수행하였으며, 각 0wt%-487.5, 10wt%-536.0, 20wt%-555.3, 30wt%-566.9, 40wt%-577.9, 및 50wt%-572.5°C로서 희토류 인산화물의 waste loading이 증가함에 따라 유리전이온도가 증가하는 경향을 확인하였다.

3. 결론

본 연구에서는 파이로 건식처리공정의 공융염 폐기물 핵종분리공정에서 발생하는 희토류 인산화물을 고화하기 위하여 Rare earths calcium phosphate glass waste form을 제조하였으며, 각 waste loading 별 고화체 제조 특성을 파악하였다. 희토류 인산화물 40wt%까지 유리고화체를 형성하는 것을 파악하였고, 밀도 및 유리전이온도 분석을 수행을 통하여 희토류 인산화물이 증가함에 따라 밀도 및 유리전이온도가 증가함을 확인할 수 있었다.

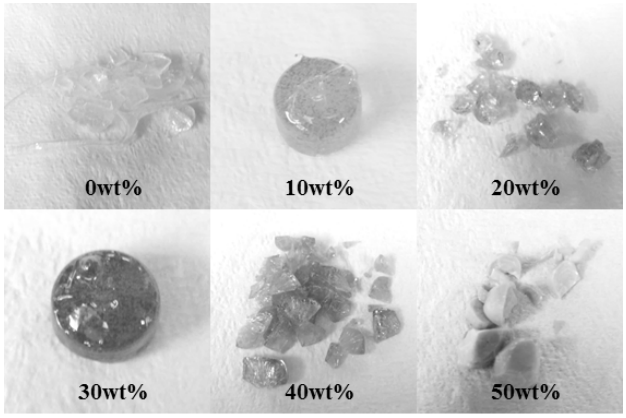


Fig. 1. Glass frits of RCP glass waste forms with various rare earths waste loadings.

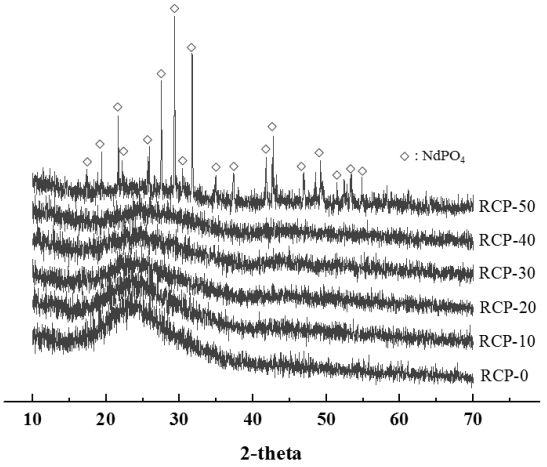


Fig. 2. XRD patterns of RCP glass waste forms.

4. 참고문헌

[1] H.S. Lee, J.M. Hur, J.G. Kim, D.H. Ahn, Y.Z. Cho and S.W. Paek, "Korean Pyrochemical Process R&D activities", Energy Procedia, 7, 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, "Pyroprocessing technology development at KAERI", Nucl. Eng. Technol., 43, 317-328 (2011).

[3] H.S. Lee, G.I. Park, J.W. Lee, K.H. Kang, J.M. Hur, J.G. Kim, S.W. Paek, I.T. Kim and I.J. Cho, "Current Status of Pyroprocessing Development at KAERI", Sci. Tech. Nucl. Install., 2013, 1-11 (2013).

[4] H.C. Eun, J.H. Kim, J.H. Choi, Y.Z. Cho, T.K. Lee, H.S. Park and G.I. Park, "Study on a phosphorylation of rare earth nuclide (Nd) in LiCl-KCl-$NdCl_3$ system using Li_3PO_4 -K_3PO_4", J. Adv. Eng. Technol., 6(2), 125-129 (2013).

무기-고분자 혼성레진을 이용한 핵연료재료 용액 내 방사성 세슘의 흡착 및 회수 연구

박재일*, 김정석, 김영복, 박용준
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*jaipark@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성 세슘(Cs-137/134)의 제거에 관한 연구는 최근 후쿠시마 원전사고로 인해 활발히 진행되는 추세이다. 이러한 연구는 세슘 이온에 선택적인 crown-ether 계열의 유기물을 이용한 용매 추출법, 혹은 세슘 이온과 선택적으로 반응하는 무기 전구체(예,ammonium molybdate과 diammonium phosphate의 혼합)를 이용한 침전법 등이 초기에 수행되어 왔다. 그러나 이러한 방법들은 유기용매를 사용하는 문제 및 복잡한 설비가 요구되는 단점이 있다. 이에 따라 흡착 공정이 단순화될 수 있는 무기 이온교환체의 합성 및 특성에 대한 연구가 최근에는 각광받는 추세이다. 이와 더불어 무기 이온교환체는 다공성 및 세슘이온에 대한 높은 흡착 효율성, 선택성, 및 산 혹은 염기, 방사선에 대한 높은 물리 화학적 안정성과 같은 장점이 보고되었다. 대표적인 예로써, 결정성 실리코타이타네이트(crystalline silicotitanate), 바나도실리케이트(vanadosilicate), 제올라이트(zeolite)와 같은 미네랄 물질, 금속산화물(metal oxide), 금속 페리시안 착물 (metal hexacyanoferrate) 및 암모늄몰리브도포스페이트(ammonium molybdophosphate, AMP) 등이 있다[1].

언급된 무기 이온교환체 중 AMP는 세슘이온에 대한 높은 선택적 흡착효율 외에도 특정 용매 조건에서 흡착된 세슘이온을 선택적으로 탈착시키는 특성이 보고되었고 이러한 성질은 방사성 세슘의 선택적인 분리 과정에도 응용될 수 있었다. 방사성 세슘은 핵연료의 건전성 및 성능을 평가하는 연소도의 측정에 중요한 지표원소[2] 중 하나이며, 이온교환체에 농축된 방사성 세슘의 탈착은 흡착체의 고방사능 저감 및 재활용에 중요한 역할을 할 수 있다.

기존 연구를 통해 합성된 AMP-PES(polyethersulfone) 레진은 세슘이온에 대한 선택적 흡/탈착 거동을 나타내었다[3]. 이에, 본 연구에서는 기존에 보고된 AMP-고분자 혼성레진이 핵연료재료물질 산 용액 중의 방사성 세슘의 선택적 흡착 및 분리 과정에의 적용성에 대해 살펴보았다.

2. 실험재료 및 실험 방법

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), concentrated nitric acid (Merck), Cesium standard solution (9,996 μg/mL, AccuStandard)은 특별한 정제 과정 없이 사용되었다. 약 40,000 MWd/tU의 연소도를 갖는 핵연료의 피복관을 8M-HNO_3로 세척한 용액을 방사성 세슘 분리 용액으로 사용하였으며 고순도 게르마늄 검출기(HPGe detector)가 부착된 감마스펙트로미터를 이용하여 분리 전후의 감마핵종을 분석하였다.

2.2 실험방법

AMP-PES 레진은 기존에 보고된 논문에 따라 합성하였다(크기: 약 800 μm). 합성된 레진은 1 cm x 5 cm 규격의 컬럼 약 2.5 mL 부피로 충진되었으며 10 mL의 0.1M-HNO_3의 용액으로 pre-conditioning 하였다.

핵연료재료 용액의 일부를 취한 후 0.1M-HNO_3로 묽힌 뒤 감마핵종 분석을 한 결과 용액 내에는 Cs-134, Cs-137, Eu-154, Eu-155, Sb-125, 및 Zr-95의 핵종이 존재함을 확인하였다.

방사성 세슘의 분리 실험은 다음과 같이 실시하였다. 약 200 ppm의 세슘이온이 carrier로 포함된 10 mL의 핵연료재료 용액을 컬럼에 흘려주어 방사성 세슘을 흡착시킨 후 같은 부피의 0.1M-HNO_3 용액으로 세척해 주었다. 그 후 45 mL(15-bed volume)의 10M-NH_4NO_3 용액을 흘려서 용출액 내의 감마 핵종을 분석하였다. 흡착 및 세척 과정 중의 유속은 0.2-0.4 mL/min으로 탈착 과정 중의 유속은 0.1-0.2 mL/min으로 측정되었다.

3. 본론

3.1 핵연료재료 용액내의 방사성 세슘 분리

Fig. 1에서 보이는 바와 같이 흡착과정 중에는 Cs-134, Cs-137, Eu-155 및 Zr-95가 대부분 흡착되었다. 한편, 0.1M-HNO_3 세척을 통해 약 40%의 흡착된 Zr-95가 용출되었다. Sb-125는 흡착 및 세척과정 중에 거의 모두 용출되었다. 45 mL의 10M-NH_4NO_3를 컬럼에 흘려줌으로써 약 90%의 흡착된 방사성 세슘(Cs-134/137)이 선택적으로 용출됨을 확인하였다.

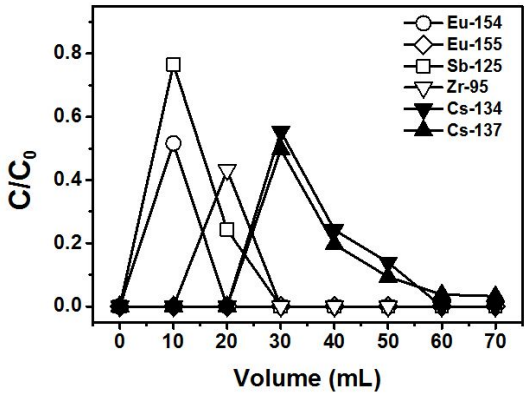


Fig. 1. Selective separation of radioactive cesium in a nuclear material solution.

4. 결론

본 논문에서는 기존에 합성된 무기-고분자 혼성 레진을 이용하여 조사된 핵연료재료 용액 내에 방사성 세슘의 분리 거동을 살펴보았다. 연구결과 합성된 레진은 복잡한 조성을 갖는 핵연료재료 용액내의 방사성 세슘을 선택적으로 흡착 및 분리에 사용될 수 있음을 확인하였다. 향후 연구에서는 조사된 핵연료용액 내의 방사성 세슘 분리 거동을 조사할 계획이다.

5. 참고문헌

[1] 전민구, 최용택, 이창화, 강권호, 박근일, "100g 규모 폐 피복관 염소화 처리장치 개발", 한국방사성폐기물학회 2014 추계학술발표회 논문요약집, 12(2), 37-38, 10.15~17, 2014, 여수.

[2] A. Nilchi, H. Atashi, A.H. Javidc, R. Saberi, "Preparation of PAN-based adsorbers for separation of cesium and cobalt from radioactive wastes", Appl. Radiat. Isotopes, 65, 482-487 (2007).

[3] S. Caruso, M. Murphy, F. Jatuff, R. Chawla. "Validation of ^{134}Cs, ^{137}Cs and ^{154}Eu single ratios as burnup monitors for ultra-high burnup UO_2 fuel", Ann. Nucl. Energy, 34, 28-35 (2007).

[4] 박재일, 권혜정, 김정석, 박용준, "고분자레진을 이용한 세슘의 흡착 및 분리: 질산용액 농도 효과", 한국방사성폐기물학회 2014 추계학술발표회 논문요약집, 12(2), 419-420, 10.15~17, 2014, 여수.

Study on Separation and Vitrification of Group II Nuclides (Ba, Sr) from LiCl Waste Salt

Hee-Chul Eun[1,*], Jung-Hoon Choi[1], In-Hak Cho[2], Tae-Kyo Lee[1], Ki-Rak Lee[1],Seung-Yeop Han[1], Jae-Wook You[1], Hwan-Seo Park[1], and Do-Hee Ahn[1]

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

[2]Chungnam National University, Daehakro 99, Yuseong-gu, Daejeon, Korea

[*]ehc2004@kaeri.re.kr

1. Introduction

The pyrochemical process at KAERI consists of several sequential steps such as voloxidation, electrolytic reduction, electrorefining, electrowinning, and waste salt treatment processes [1-3]. This pyrochemical process generates LiCl waste salt which has highly heat generative group II fission product such as Sr and Ba nuclides [3]. Therefore, the fission products within the waste salt should be separated to reduce the volume of final waste. Then, the group II fission products should be fabricated into durable waste forms sustainable for several thousand years to store in a final geological repository.

In this study, separation and vitrification of group II nuclides in LiCl waste surrogate were performed to reduce radioactive waste and to fabricate a durable waste form.

2. Experimental and results

The separation of $BaCl_2$ and $SrCl_2$ in LiCl was performed using carbonation and distillation. The carbonation of $BaCl_2$ and $SrCl_2$ in LiCl was performed in an electric furnace using Li_2CO_3. The distillation was carried out in a vacuum distiller (Fig. 1). The sample for the carbonation and distillation was prepared as a mixture of LiCl, $BaCl_2$, $SrCl_2$, and Li_2O_3. First, the carbonation was performed at 650°C for 2h, and then the distillation was done at 50-900°C and 0.5-1 Torr. After the distillation, residues as products of the carbonation was characterized using XRD pattern analysis. Group II nuclides (Ba, Sr) concentrations in LiCl recovered from the distillation was measured. The residues from the carbonation and distillation were characterized as $SrCO_3$, $BaCO_3$, SrO, and BaO. Through the carbonation and distillation, group II nuclides were separated from LiCl at more than 98%.

To immobilize the separated group II nuclides in a durable waste form, preliminary vitrification test was conducted using SiO_2-CaO matrix. The vitrification of the separated group II nuclides was performed changing CaO composition. Operation temperatures for the glassification were changed from 1300 to 1450 °C. The mixture of the separated group II nuclides and the matrix was effectively vitrified when the molar ratio of CaO is equal to or greater than that of BaO. It was confirmed that the vitrified waste form had a homeogenous morphology by SEM analysis.

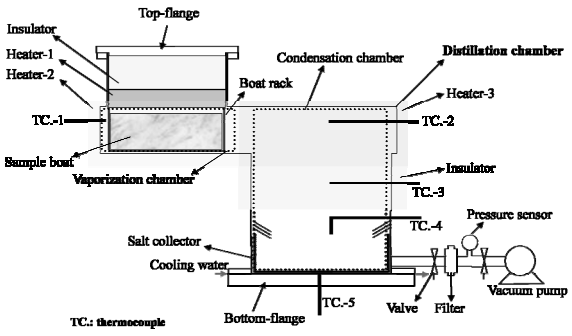


Fig. 1. Schematic diagram of the vacuum distiller for LiCl salt distillation.

3. Conclusion

Group II nuclides in LiCl was effectively separated and converted into carbonate or oxide forms. The separated nuclides were vitrified to a homogeneous glass form using SiO_2-CaO matrix. It is considered that LiCl waste salt containing radioactive group II nuclides can be greatly reduced and the nuclides can be fabricated into a homogeneous glass form through the separation and vitrification.

4. Acknowledgement

This work was supported by the National Research Foundation of Korea (NRF) grant funded by the Korea government (MSIP) (No. 2012M2A8A5025700).

5. References

[1] H.S. Lee, J.M. Hur, J.G. Kim, D.H. Ahn, Y.Z. Cho and S.W. Paek, “Korean Pyrochemical Process R&D activities”, Energy Procedia, 7, 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, “Pyroprocessing technology development at KAERI”, Nucl. Eng. Technol., 43, 317-328 (2011).

[3] H.S. Lee, G.I. Park, J.W. Lee, K.H. Kang, J.M. Hur, J.G. Kim, S.W. Paek, I.T. Kim and I.J. Cho, “Current Status of Pyroprocessing Development at KAERI”, Sci. Tech. Nucl. Install., 2013, 1-11 (2013).

LiCl 염폐기물 처리를 위한 경막결정화 장치 scale-up에 따른 공정 운전 특성

이태교*, 최정훈, 은희철, 박환서, 안도희
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*tklee@kaeri.re.kr

1. 서론

산화물 핵연료를 에너지 자원으로 재사용하기 위한 방법으로 고온의 용융염을 전해매질로 사용하는 파이로 공정은 전해환원, 전해정련 및 전해제련 공정으로 구성되어있다. 공정운전을 통해 핵종의 누적으로 인해 발생되며 전해환원에서는 LiCl이 전해정련 및 제련공정에서는 LiCl-KCl 공융염 폐기물이 발생한다. 전해환원 공정에서 발생하는 LiCl 염폐기물 내에는 고방열서 I, Ⅱ 족 핵종을 포함하고 있기 때문에 모두 안정한 형태로 고화처리 되어야 하므로 이로 인한 최종 처분 대상 폐기물의 양이 크게 증가하게 된다. 따라서 LiCl 염폐기물 내 포함되어 있는 고방열성 핵종을 분리 한 후 분리된 핵종만을 고화처리 한다면 최종 처분대상 폐기물의 양을 획기적으로 줄일 수 있으며 정제된 염의 재사용을 통해 파이로 공정의 경제성 또한 증대시킬 수 있다. 이러한 목적으로 현재 한국원자력연구원에서는 경막결정화 (Layer Melt Crystallization) 방법을 이용하여 고방열성인 I/Ⅱ족 핵종을 포함하는 LiCl 염폐기물의 재생에 대한 연구를 수행하고 있다[1].

본 연구에서는 공학규모 파이로 일관공정 시험시설(PRIDE) 내 Lab-scale(3kg-batch) 장치의 운전특성을 고려하여 제작된 20-25kg/batch 경막결정화 장치를 이용하여 모의염을 이용한 기초성능평가를 수행하였으며 공학규모 결정화 장치의 운전특성을 파악하였다.

2. 본론

2.1 실험 및 결과

공학규모 경막결정화 장치의 기초성능평가에 사용된 LiCl은 약 20 kg 정도이며 이때 LiCl 내 투입된 핵종은 전해환원공정에서 사용후 핵연료 2 ton 처리 후 발생되는 농도인 CsCl: 0.03wt%, $SrCl_2$: 1.11wt%, $BaCl_2$: 2.31wt%에 해당하는 핵종이 포함되어 있다. 평형온도 설정은 앞선 lab-scale 장치에서의 낮은 평형온도로 인해 발생된 용융염 층상부의 결정형성막이 생성되는 문제를 방지하고자 결정화로 히터를 660°C로 설정하였으며 이때 평형온도는 635-645°C를 이루었다. 결정화 공정 중 온도모니터링을 위해 세 곳에 설치된 thermocouple(TC)의 평형온도는 각각 조금씩 차이를 보였으며 히터 쪽에 가까운 TC일수록 평형되는 온도가 조금씩 높음을 확인 할 수 있었다. 이는 Lab-sacle에 비해 batch 용량이 커짐으로 어느 정도 온도구배가 발생되는 것으로 판단되며 TC 위치의 변화를 통해 각 결정판 영역에서의 온도구배 모니터링이 필요하다고 판단된다. 공학규모 결정화 장치를 이용한 결정화 시험은 두 번 수행되었으며 동일한 초기조건에서 유량조건에 따른 결정생성량을 확인하고자 초기유량을 12 L/min으로 냉각초기 결정판의 온도가 615°C정도가 되게 설정하였으며 이 후 첫 번째 결정화 시험에서는 유량증가율 0.038 L/min으로 유량을 증가시켜 22 L/min의 유량에서 주입되는 Ar 가스의 양을 고정시켰으며, 두 번째 결정화 시험에서는 동일 한 유량증가율에서 최종유량을 30 L/min으로 고정시켜 결정화 시험을 수행하였다. 두 시험 모두 결정판 사이에 설치된 center TC의 온도모니터링으로 결정화 공정을 종결하였다. 각각의 결정화 시험 후 결정판 외벽에 형성된 LiCl 결정을 Fig. 2에 나타내었다. 첫 번째 결정화 시험조건에서 생성된 결정은 매우 투명한 형태를 보이는 결정이 생성되었으며 각 결정판에 형성된 LiCl 결정은 서로 붙지 않았다. 하지만 염회수율 13.08%정도로 각 결정판사이에 공간을 충분히 채우지 못한 채 결정화 공정이 종료되어 낮은 LiCl 회수량을 보였다.

두 번째 시험조건에서 생성된 결정은 염회수량 56.19%로 매우 많은 양의 결정이 생성됨을 보였으며 가장자리의 결정판 보다 중앙부의 결정판에서 결정이 많이 형성되어 서로 붙어 있음을 보였다. 일반적으로 결정화 과정에서 결정내부보다 결정표면 쪽에 핵종불순물이 높게 분포되어 있으며 이러한 결정표면이 서로 붙게 된다면 매우 많은 양의 핵종불순물이 결정 내 내포되어 핵종분리효율을 떨어뜨리는 원인이 되게 된다.

3. 결론

공학규모 경막결정화 장치를 이용한 LiCl 결정 생성에서 결정화 공정 중 결정판이 냉각됨으로서 가장자리 결정판이 방열판역할이 되어 각 결정판 사이에 온도구배가 발생됨에 따라 동일한 냉각조건에서 결정판 마다 각기 다른 양의 결정이 형성되는 것을 확인하였으며, 추후 결정판의 배열이나 TC위치의 수정을 통해 온도구배 방지 또는 공정 중 각 결정판의 온도를 모니터링을 하는 것이 보다 안정적인 염회수율과 핵종분리효율을 확보할 것이라 판단된다.

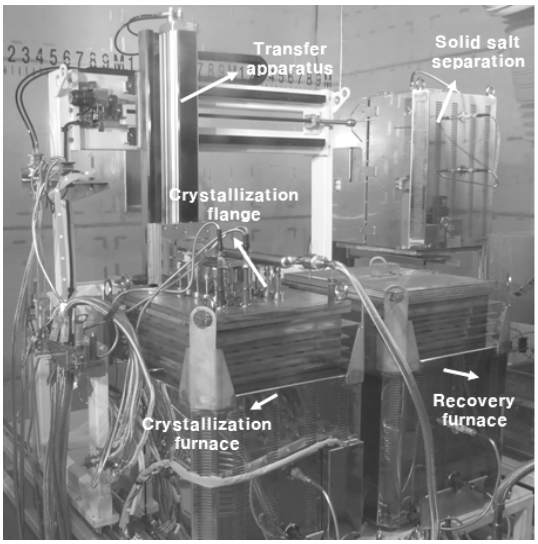
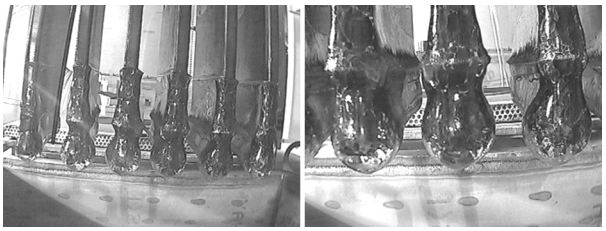
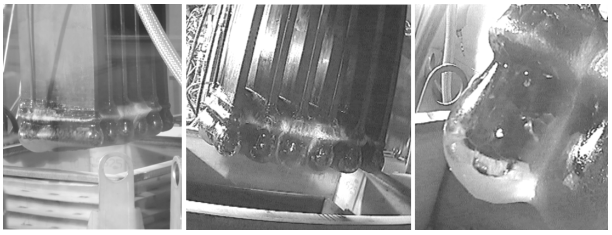


Fig. 1. Eng-scale crystallization equipment for the treatment of LiCl waste salt.



(a) 1st crystallization



(b) 2nd crystallization

Fig. 2. Photo of recovered crystal with cooling condition.

4. 참고문헌

[1] Y. Z. cho, J. S. Jung, H. S. Lee, I. T. Kim, "Reuse technology of LiCl salt waste generated from electrolytic reduction process of spent oxide fuel", J. Kor. Rad. Waste Soc., 8(1), 71-77, 2010.

유리화설비 배기조성 해석을 위한 프로그램 개발

황석주*, 황영환, 김천우
한수원㈜중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70
*hsjhhhhh@khnp.co.kr

1. 서론

유리화설비 저온용융로에서 발생되는 배기체에는 먼지, 방사성 핵종, 산성가스(SO_x, NO_x, HCl 등), 불완전 연소 유기물(CO, C_xH_y 등) 등을 포함하고 있다. 배기체는 몇가지 필터들과 Scrubber, De-NO_x 장치 등을 통해 제거된다. 폐기물 유리화로 발생된 배기체 조성은 폐기물의 조성에 따라 다양하기 때문에 효과적인 배기체 처리를 위해서는 배기체처리계통을 구성하는 다양한 unit에서 물질수지, 에너지수지, 방사능수지를 평가하는 프로그램을 개발하였다. 개발된 프로그램은 폐기물 조성이 변하고 운전변수 변화가 있을 경우 배기체처리계통의 정보를 제공하는 유용한 프로그램이 될 것이다[1].

2. 본론

2.1 배기조성 해석 프로그램 입력변수 및 관계식 결정

유리화설비의 배기체처리계통의 각 unit별 물질수지, 에너지수지 및 방사능수지를 계산하기 위한 입력변수, 관계식을 결정하였다.

2.1.1 물질수지

물질수지 계산을 위해서 폐기물 종류, 투입량, 조성, Air/O_2/N_2 의 유입량, 압력, Leakage 등의 주요입력변수를 결정하고 배기체로 유입된 물질들에 대한 관계식도 결정하였다.

한가지예로 배기체처리계통의 한 unit인 Scrubber에서 SO_2, HCl, CO_2, NO_2의 물질수지를 계산하기 위한 관계식은 아래 식(1)~(4)와 같다.

$$SO_2 + 2NaOH \rightarrow Na_2SO_3 + H_2O \quad (1)$$

$$HCl + NaOH \rightarrow NaCl + H_2O \quad (2)$$

$$CO_2 + NaOH \rightarrow NaHCO_3 \quad (3)$$

$$2NO_2 + 2NaOH \rightarrow NaNO_3 + NaNO_2 + H_2O \quad (4)$$

2.1.2 에너지수지

에너지수지는 유리화설비 각 unit의 입구온도, 열손실, 외부공급열량이 주요입력변수이다. 각 unit별 관계식을 산정하여 각 unit에서의 에너지수지를 계산할 수 있다.

한가지예로 배기체처리계통의 한 unit인 NO_x 제거설비의 관계식을 정립하였고 아래 Fig. 1과 같이 입력창을 통해 외부공급열량을 입력받아 에너지수지 계산을 수행이 가능하도록 하였다.

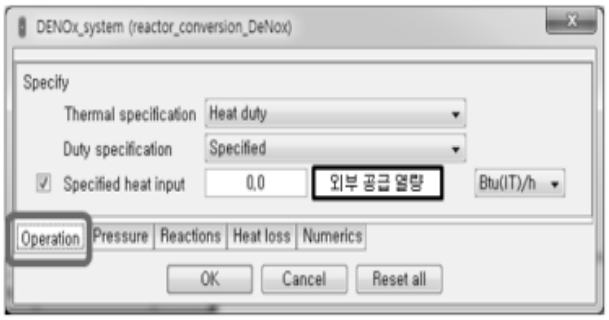


Fig. 1. Input Window for NO_x Removal Model.

2.1.3 방사능수지

방사능수지는 유리화설비 폐기물의 핵종별 activity와 각 unit별 제염계수가 주요입력변수이다. 각 unit별 제염계수를 반영하여 방사능수지를 계산한다.

한가지예로 배기체처리계통의 한 unit인 고온필터(HTF)의 경우 아래 Fig. 2 입력창을 통해 방사성물질 제거 효율을 입력받아 방사능수지 계산을 수행이 가능하도록 하였다.

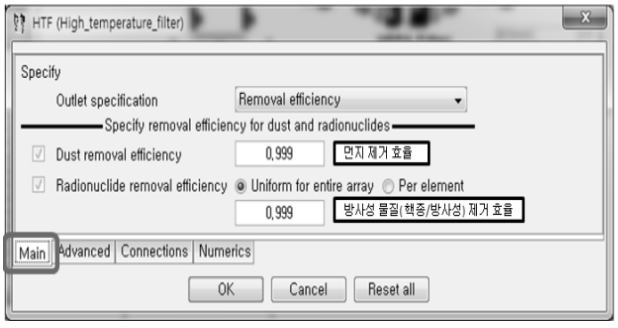


Fig. 2. Input Window for HTF Model.

2.2 배기조성 해석 프로그램 결과

배기체처리공정을 구성하는 9개 unit별 물질수지, 에너지수지, 방사능수지를 계산할 수 있는 프로그램을 개발하였고 종합적인 결과를 볼 수 있는 화면은 Fig. 3과 같다.

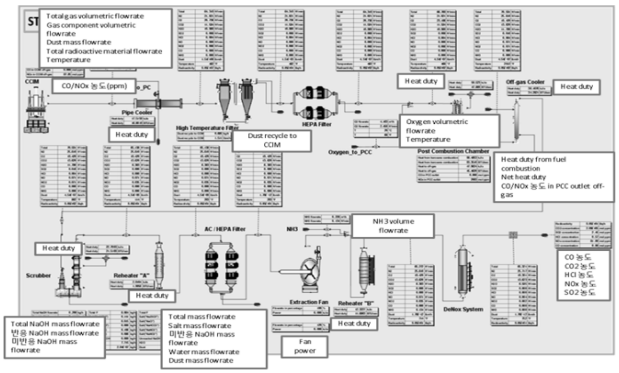


Fig. 3. Example of Off-gas Calculation Result.

2.2.1 물질수지 계산결과

배기체처리계통을 구성하는 각 unit별 계산된 물질수지 결과는 Fig. 4와 같이 gas들의 농도, 먼지, 온도 등을 나타낼 수 있다.

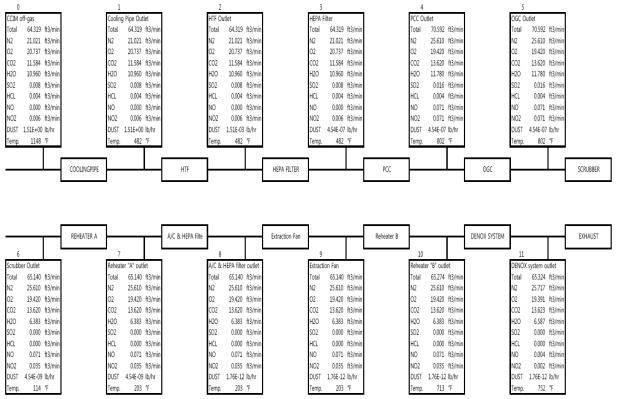


Fig. 4. Mass Balance in Off-gas.

2.2.2 에너지수지 계산결과

배기체처리계통을 구성하는 각 unit별 계산된 에너지수지 결과는 Fig. 5와 같이 입/출구 온도, 열량 변화를 나타낼 수 있다.

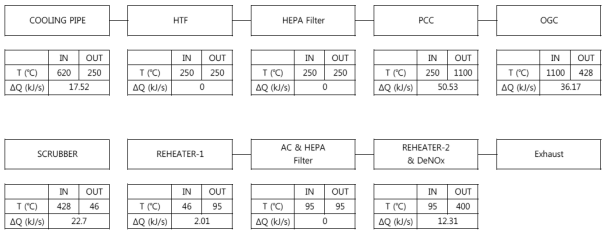


Fig. 5. Energy balance in Off-gas.

2.2.3 방사능수지 계산결과

배기체처리계통을 구성하는 각 unit별 계산된 방사능수지 결과는 Fig. 6와 같이 핵종별 비방사능을 나타낼 수 있다.

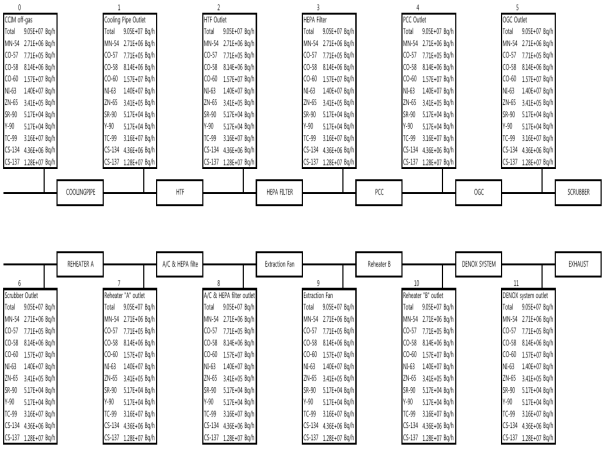


Fig. 6. Radioactivity balance in Off-gas.

3. 결론

유리화설비의 배기체처리계통의 각 unit에서의 물질수지, 에너지수지, 방사능수지를 계산할 수 있는 프로그램을 개발하였다. 이 프로그램은 한울 유리화설비에서 폐기물 종류가 변경되거나 혹은 운전변수가 변경될 때 배기체처리계통내 배기체 관련 정보를 제공하여 향후 유리화설비 운영, 유지보수, 인허가 등에 유용한 자료를 제공할 예정이다.

4. 참고문헌

[1] 한국수력원자력㈜ 중앙연구원 "한울 유리화설비 운영기술 및 설비최적화 연구개발" 최종보고서(2015).

방사성폐기물 처리용 대용량 유리용융로 개발

조현준*, 김천우
한수원㈜중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70
*johyunjun@khnp.co.kr

1. 서론

한수원은 1994년부터 중·저준위 방사성폐기물 유리화 기술개발을 시작하여 2002년 실증연구를 성공하였다. 그 후 상용설비 개발에 착수하여 2009년 한울 유리화설비를 준공하고 현재까지 유리화설비를 안정적으로 운영하고 있다. 한울 유리화설비에 설치된 유도가열식 저온용융로(CCIM)의 직경은 55 cm이고, 방사성폐기물 최대처리율은 25 kg/h 이다. 성공적인 상업운전으로 후속 유리화설비 건설과 유리화설비 수출을 준비 중인 한수원은 처리용량을 증대하고 효율을 향상시킬 수 있는 대용량 고유모델 유도가열식 저온용융로 개발을 추진하였다.

2. 본론

2.1 유도가열식 저온용융로 기술

유도가열식 저온용융로를 이용한 방사성폐기물 유리화기술은 유도코일로 둘러싸인 수냉식 저온용융로 내에 유리와 금속링을 넣고 고주파발생기(HFG)를 통해 유도코일에 고주파 전류를 흘려주게 되면 금속링에 유도전류로 인해 고온의 열이 발생되고 이때 발생되는 열로 유리를 녹인다. 유리용탕이 형성되면 용탕의 균일성을 유지하기 위해 용탕하부에서 산소 버블링을 하며 폐기물을 용융용탕에 투입하여 유리화 시키는 기술이다(Fig. 1). 이 기술은 러시아, 프랑스, 미국, 인도 등에서 고준위 액체폐기물을 유리화하기 위해 연구 및 상용화되고 있다. 유도가열식 저온용융로는 금속전극방식 세라믹용융로보다 열효율은 낮으나 용융로의 내구성이 우수하며 폐기물 처리율이 상대적으로 높은 특성이 있다.

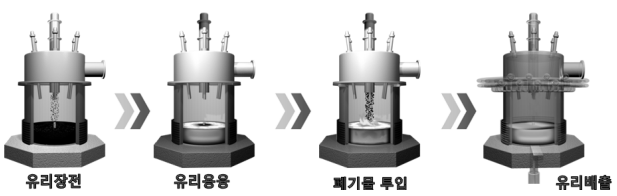


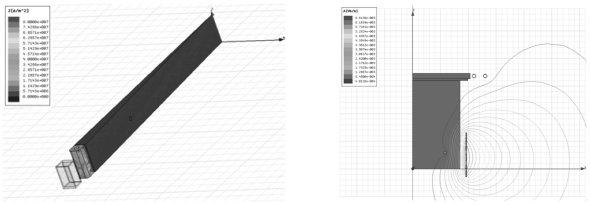
Fig. 1. Vitrification Process with CCIM.

2.2 대용량 유도가열식 저온용융로 개발

2.2.1 저온용융로 설계 및 해석

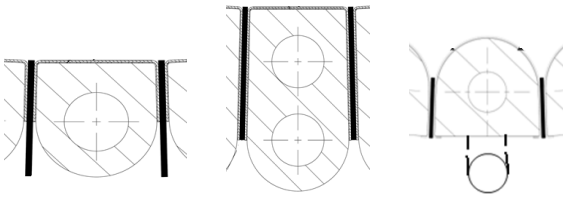
한울 유리화설비에서 사용 중인 저온용융로 보다 폐기물 처리율을 높이기 위해서 폐기물을 처리하는 유리용탕의 표면적을 넓히고, 유기물질이 열분해 될 수 있는 연소공간을 크게 설계하였다. 유도가열식 저온용융로는 상부챔버, 하부챔버, 바닥판 및 배출장치로 구성된다. 하부챔버에서 발생되는 고주파 유도손실을 줄이기 위해 하부챔버를 여러 조각의 수냉각 금속섹터로 분리하여 설계하였다. 즉, 금속섹터의 수가 증가할수록 용융로에서 발생되는 손실을 줄이고 많은 에너지를 유리용탕에 전달할 수 있으므로 금속섹터의 설계 및 해석에 많은 노력을 기울였다. 기존의 직경 55 cm 용융로는 48개의 금속섹터로 구성되었으며, 새로 개발된 직경 85 cm 용융로는 100개 정도의 금속섹터로 구성되도록 설계되었다.

전산해석코드를 이용해 전자장 분포와 유도전류 분포를 모사해서 최적의 섹터 모양과 하부챔버 구조를 설계하였다(Fig. 2). 이러한 전산모사를 통해 섹터연결형, 섹터세로형, 섹터튜브형 3개의 모델(Fig. 3)을 선정하여 용융로 시작품을 제작하였다(Fig. 4).


Fig. 2. Magnetic field and Induction Analysis using Computer Simulation Code.

2.2.2 저온용융로 제작

전산모사를 통해 섹터연결형, 섹터세로형, 섹터튜브형 3개의 모델을 선정하여 저온용융로 시작품을 제작하였으며 관련 지적재산권을 확보하였다[1]. 고유모델 유도가열식 저온용융로 확보를 위해 전세계 지적재산권 현황을 분석하여 독창성을 보유한 저온용융로를 성공적으로 제작하였다.



(섹터연결형) (섹터세로형) (섹터튜브형)

Fig. 3. Cross-sectional View of CCIM Sectors.

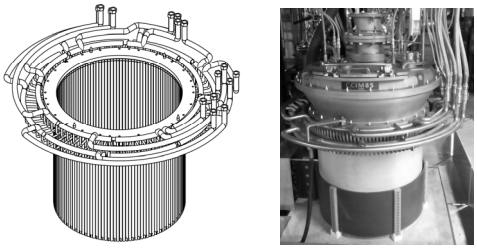


Fig. 4. Lower Chamber and Assembled CCIM.

2.2.3 바닥판, 배출장치 및 고주파발생기 개선

기존 평면으로 구성된 저온용융로 바닥판은 경사형 바닥판으로 개선되었다. 경사형 바닥판은 여러 개의 수냉각 판으로 구성되며, 바닥 경사로 유리용탕 배출이 보다 용이하게 되었다. 유리용탕 배출장치는 유도가열식으로 개선되었다. 이 장치는 배출구를 구성하는 피가열체를 유도가열하여 주변 유리를 용융시켜 배출을 용이하게 하며, 전원의 출력을 조절하여 연속식과 배치식 배출이 가능한 특징이 있다. 고주파발생기는 유도가열식 저온용융로에 에너지를 공급하는 장치로 60 Hz의 상용전원을 250~270 kHz 고주파전원으로 변환시켜 인덕터에 공급한다. 기존 고주파발생기의 최대 용량은 400 kW 였으나, 대용량 저온용융로 내 유리량이 증가함에 따라 고주파발생기의 출력을 600 kW로 개선하였다.

2.3 시스템 성능시험

성능시험은 부하시험, 유리용융시험, 폐기물처리 시험 단계로 수행되었다. 무부하시험 최대공급전력은 140 kW 이며, 금속재 부하시험에서 고주파발생기 기동 후 30 분 내에 최대 300 kW 전력공급이 가능하였다.

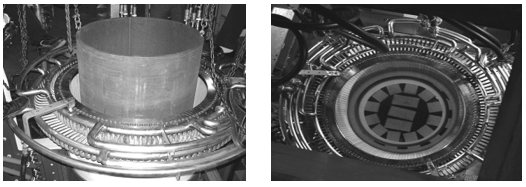


Fig. 5. Heating Test with Metal Load.

부하시험 후 유리용융시험을 수행하였다. 저온용융로의 초기점화, 유리용탕 형성을 통하여 고주파발생기의 운전변수도 최적화 하였다. 또한, 냉각시스템 및 배출시스템의 정상동작을 확인하였다. 최적 유리용탕 무게는 180 kg 정도로 기존 55 cm 용융로(70 kg) 보다 2.5배 이상이었다. 유리 1 kg을 용융하기 위해 소모된 전력량을 비교할 때, 기존 용융로에서는 0.71 kWh/kg가 소모되었으나, 개발된 저온용융로에서는 0.47 kWh/kg로 감소되어 33%이상 에너지효율이 향상되었다.

유리용융시험 성공 후 폐수지, 잡고체, 소각재, 슬러지 등을 이용한 수십 차례의 모의폐기물 투입 실증시험을 성공적으로 수행하였다(Fig. 6). 최대 폐기물 처리율은 약 60 kg/hr로 내경 55 cm 저온용융로 보다 약 2.5배 증가되었다.

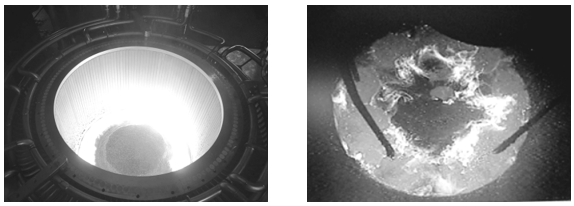


Fig. 6. Glass Melting(Left) and Waste Vitrifying Test(Right).

3. 결 론

한수원은 한울 유리화설비에 설치한 유도가열식 저온용융로보다 에너지 효율이 약 33% 향상되고 처리용량이 약 2.5배 증가된 직경 85 cm 고유모델 유도가열식 저온용융로를 개발하고 관련 상표(CCIM85)를 미국과 일본에 등록하였다. 개발된 대용량 고유모델 저온용융로는 국내 후속 유리화설비 뿐만 아니라 유리화설비 해외 수출에도 적용될 예정이다.

4. 참고문헌

[1] 특허등록번호 10-1340876, 10-1340877, 10-1307741, 10-1238800.

파이로그린 희토류폐기물 유리고화체의 처분적합성 평가

황영환*, 황석주, 이병관, 김천우
한수원㈜중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70
*yhhwang7@khnp.co.kr

1. 서론

사용후핵연료 건식처리 방식인 파이로프로세싱(PyroProcessing)에서 발생되는 고준위 폐기물을 중준위화하는 파이로그린(PyroGreen) 공정이 개발 중에 있다[1]. PyroGreen 공정내 염폐기물 처리공정인 PyroRedSox에서 발생되는 희토류폐기물의 안정화를 위하여 유리화 기술개발이 수행 중이다. 유리화 공정은 waste loading, 운전용이성, 유리고화체 처분적합성 등을 만족하도록 기술개발 되어야 한다. 유리화 기술의 주요 공정변수는 점도, 전기전도도 등이 있으며, 유리고화체는 균질성, 화학적 내구성, 비방사능, 열발생률 등의 처분 기준을 만족하여야 한다. 본 연구에서는 파이로그린 공정 발생 희토류폐기물을 유리화하기 위한 유리조성 개발과 유리고화체의 처분적합성 일부를 시험하고 평가하였다.

2. 본론

2.1 파이로그린 희토류폐기물 특성

사용후핵연료의 U-235 농축도 4.5wt%, 연소도 45 GWd/tU, 50년 냉각, TRU 제염계수 20,000을 가정하여 사용후핵연료를 10 MTHM 처리 시 발생하는 희토류폐기물(0.4wt%의 Actinide 함유)의 핵종별 질량, 열량 및 방사능을 ORIGEN-2로 평가하면 아래의 Table 1과 같다.

파이로그린 PyroRedSox 공정 발생 희토류폐기물은 대부분 cubic 또는 hexagonal 구조의 입자 직경이 약 5 ㎛인 미세분말로 얻어지며 용융점(>2,000℃)과 휘발점(>3,000℃)이 매우 높은 산화물(Oxide) 형태로 발생된다.

2.2 후보유리 개발

희토류폐기물의 유리화를 위해서 개발한 후보유리(PG14)의 조성은 Table 2와 같으며 base 유리 성분에 20wt%를 loading하여 개발하였다. 이 후보유리의 열발생량은 3.52 kW/m^3, 비방사능은 2.72E+5 Bq/g으로 고준위폐기물에 해당하지 않으며[2] 미국의 Waste Isolation Pilot Plant 지하처분장과 유사한 수준에 처분 가능한 폐기물인 것으로 평가되었다[2]. 공정온도인 1,200℃에서 후보유리의 점도와 전기전도도는 각각 7.2 poise 와 1.13 S/cm로 유도가열식 저온용융로에서 요구하는 운전변수를 만족하는 것으로 평가되었다. 유도가열식 저온용융로내에서 유리화 최적 운전변수는 점도 100 poise 이하, 전기전도도 0.4 S/cm 이상을 추천하고 있다.

개발된 유리고화체는 2차상이 없는 균질한 상태로 평가되었으며 US DOE 침출 시험법인 7-day Product Consistency Test (PCT) 화학적 내구성 기준치 등을 만족하였다.

Table 1. Nuclides Inventory Produced From PyroRedSox

Type	Elements	Mass (g)	Watt	Curie
Actinide Oxide (0.4wt%)	Ac	5.77E-07	7.19.E-08	4.96.E-05
	Th	7.57E-02	9.79.E-04	3.59.E-01
	Pa	1.18E-03	2.93.E-03	9.23.E-01
	U	4.15E+01	7.33.E-02	2.63.E+00
	Np	3.83E-02	8.17.E-02	2.66.E+01
	Pu	3.97E-01	9.12.E+01	4.13.E+03
	Am	6.85E-02	1.62.E+02	4.88.E+03
	Cm	1.45E-04	3.02.E+00	8.59.E+01
RareEarth (99.6wt%)	Sc	9.19E-05	0.00.E+00	0.00.E+00
	Eu	1.21E+02	4.50.E-02	5.05.E+00
	Gd	1.57E+02	7.40.E-15	5.68.E-13
	T	2.54E+00	0.00.E+00	0.00.E+00
	Dy	1.40E+00	0.00.E+00	0.00.E+00
	Ho	1.53E-01	4.32.E-05	3.90.E-03
	Er	6.26E-02	0.00.E+00	0.00.E+00
	La	1.22E+03	1.57.E-11	2.14.E-09
	Ce	2.37E+03	2.10.E-36	3.70.E-05
	Pr	1.11E+03	2.33.E-35	3.21.E-33
	Nd	4.03E+03	0.00.E+00	2.19.E-09
	Pm	2.70E-08	8.16.E-08	1.67.E-05
	Sm	8.36E+02	2.63.E-02	2.24.E+02
	Tm	6.66E-05	5.68.E-23	3.66.E-19
	Y	5.62E+02	1.74.E-01	3.13.E+01
	Total	1.04E+04	2.56.E+02	9.35.E+03

Table 2. Characteristics of Candidate Glass(PG14)

Items	Oxides	wt%
Base glass (80wt%)	Al_2O_3	3.00
	B_2O_3	11.43
	Li_2O	3.43
	Na_2O	25.14
	SiO_2	37.00
Rare earth oxide (20wt%)	CeO_2	2.67
	Eu_2O_3	0.26
	Gd_2O_3	0.33
	La_2O_3	2.62
	Nd_2O_3	8.64
	Pr_2O_3	2.39
	Sm_2O_3	1.78
	Y_2O_3	1.31
Operability @1,200℃	Viscosity	Satisfactory
	Elec. conductivity	Satisfactory
Form Durability	Phase homogeneity	Satisfactory
	Chemical durability	Satisfactory
Waste Type	Not HLW	Satisfactory

2.3 후보유리 처분적합성 평가

후보유리조성으로 제조한 유리고화체의 처분적합성을 평가하기 위하여 국내 중저준위 처분장에서 요구하는 고화체 대상 시험법을 적용하였다.

2.3.1 압축강도 시험

KS F2405 시험법을 사용하여 유리고화체에 대한 압축강도 시험 수행을 위하여, 1,200℃에서 제조한 유리 용융물을 500℃로 예열된 몰드에 주입하고 약 12 시간 동안 서냉시켜 시편을 제작하였다. 제작된 원통형 시편(지름 약 3 cm, 높이 약 6 cm)을 분당 0.12 mm의 속도로 가력하여 파괴하중 및 변위를 측정하였다(Fig. 1 참조).

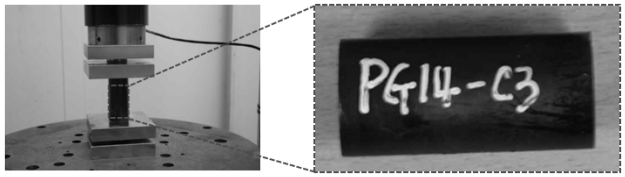


Fig. 1. Photograph of Compressive Strength Test Using Candidate Glass.

유리고화체의 압축강도를 측정한 결과 6,419 psi로 기준치인 500 psi를 초과하는 것으로 측정되었다.

2.3.2 침출시험

화학적 내구성을 평가하기 위하여 ANS 16.1을 90일 동안 수행 중에 있으며 기존 유리조성에 Co, Sr, Cs 을 각각 0.49wt% 첨가하여 Fig. 2와 같이 시험을 수행중이다. 시험 수행 후 주요 핵종들에 대한 침출지수를 평가하고자 한다.

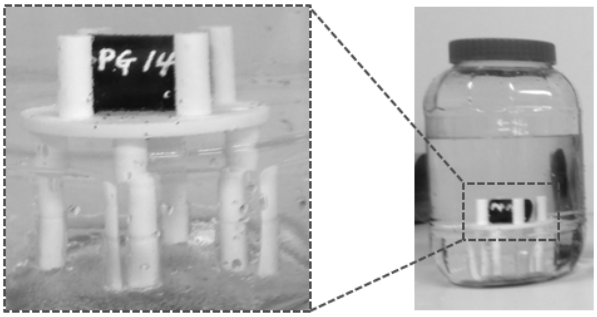


Fig. 2. Leachability Test Using Candidate Glass.

2.4 화학적 내구성 평가

유리고화체의 장기적인 화학적 내구성을 평가하기 위하여 PCT를 수행하고 있다. 주요 원소(Si, B, Li, Al 등)들에 대한 7-day PCT 침출률은 0.35 g/m^2 이하, 38-day PCT 침출률은 0.59 g/m^2 이하로 평가되었으며 기준유리(SRL-EA)의 침출률(2.0 g/m^2)보다 훨씬 낮아 화학적 내구성이 우수한 것으로 평가되었다.

3. 결론

사용후핵연료 재활용 기술인 PyroGreen 공정의 PyroRedSox 처리공정에서 발생하는 희토류폐기물의 유리화를 위해 후보유리를 개발하고 운전변수, 유리고화체 품질을 평가하였다. 후보유리의 운전변수는 매우 양호하였으며 유리고화화체의 처분적합성을 평가하기 위해 압축강도 시험을 수행한 결과 기준치를 만족하는 것으로 평가되었다. 향후 침수시험, 열순환시험, 방사선조사시험 후 압축강도 시험 등을 수행하여 유리고화체의 종합적인 처분적합성 평가를 수행할 예정이다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 지원을 받아 2014년도 원자력연구개발사업 및 원자력선진기술연구센터과제를 통해 수행되었음(NRF-2011-0031839).

5. 참고문헌

[1] 원자력선진기술연구센터, "파이로그린 공정 폐기물 유리화 타당성 연구" 보고서 (2012M2B2B1056446).
[2] 원자력안전위원회 고시 제2014-003호 "방사성 폐기물 분류 및 자체처분 기준에 관한 규정".

중대사고 대처용 이동식 액체 방사성폐기물 처리공정 개발

김승은, 박지은, 조항래, 이지훈*
한수원㈜ 중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70
*jihoon@khnp.co.kr

1. 서론

후쿠시마 원전사고 이후 발전소의 운영 중 발생될 수 있는 비정상적인 폐액 및 중대사고시 발생 폐액의 신속한 처리를 위하여 이동식 처리설비 개발의 필요성이 부각되었다. 현재 원전 액체 방사성폐기물 처리계통(Liquid Radwaste System : LRS)에는 다양한 처리기술이 적용되어 왔으나 고정설비로 되어 있으므로 폐액의 특성변화 및 운전상황 변화에 따라 대응에 어려움이 있었다. 또한 원전 액체 방사성폐기물 처리 주요공정은 증발(Evaporation)기술 부터 선택적 이온교환시스템(Selective Ion-Exchange System : SIES) 및 역삼투(Reverse Osmosis : RO) 분리기술로 변천해 왔으며, 향후에는 원전 운영환경 변화 및 기술발전에 따라 LRS핵심 기술들의 표준화 개발이 뒤따를 것으로 예상되며 이에 적극 대처할 필요가 있다. 본 논문에서는 원전 비상시 on-line설비는 작동하지 못할 수 있기 때문에 이를 대체할 수 있는 비상용 off-line 이동식 액체 방사성폐기물 처리 설비의 개념, 공정 구성 및 Lab규모실험 결과에 대하여 기술하였다.

2. 본론

2.1 이동식 액체 방사성폐기물 처리공정 개념

이동식 액체 방사성폐기물 처리시스템은 내부에 각기 기능을 가지는 여러 개의 단위공정(Unit Process)을 가지며 단위공정은 1개 이상의 모듈로 구성하였다. 그리고 복합공정의 구성은 처리대상 폐액 특성에 따라 변경이 가능하며 모든 단위공정을 연결/운영할 수도 있고 선택적으로 운영할 수 있다. 중대사고 폐액처럼 고염 혹은 고방사능 등의 특성으로 부하가 집중되는 단위공정에 대해서는 여러 개의 모듈을 직렬 혹은 병렬로 확장할 수 있다. 반대로 부하가 적은 단위공정은 복합공정에서 제외되거나 모듈수를 축소할 수 있다.

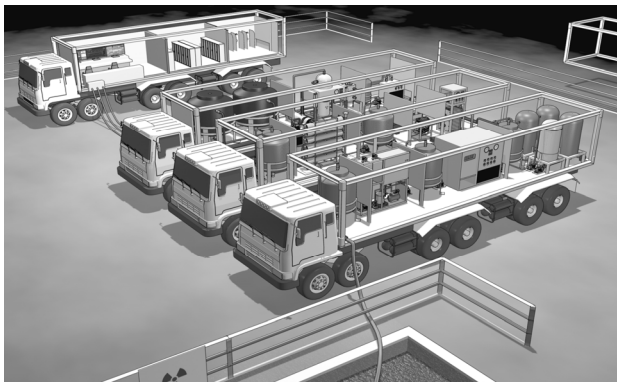


Fig. 1. Mobile treatment system for liquid radioactive waste.

설비의 이동성을 가지기 위하여 컨테이너에 탑재 후 트레일러를 사용하여 필요한 곳으로 이동 후 처리가 가능하게 하였다. 설비는 트레일러에 탑재되어 있는 상태에서 운영하거나 필요한 곳에 설치한 후 처리가 가능하게 하였다. 각 공정의 연계성을 위하여 공정의 순서를 정하여 연결하며 필요에 따라 각 공정을 by-pass하도록 하였다. 운전 중 작업자의 피폭을 최소화하기 위하여 차폐 및 원격운전이 가능하도록 하였다(Fig. 1 참조).

2.2 이동식 액체 방사성폐기물 처리공정 구성

이동식 처리공정은 전처리, 주처리 및 후처리를 포함하여 모두 7개 단위공정으로 구성하였다. 중대사고폐기물 중 핵종제거 및 최종 염폐기물 처리 관점에서 [선택적 핵종제거 - 역삼투막 처리 - 증발건조] 처리를 주요처리 흐름으로 설정하였다(Fig. 2 참조).

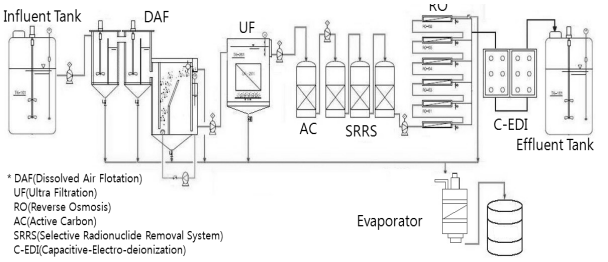


Fig. 2. Process flow diagram of mobile treatment system.

주처리 설비인 RO막의 오염을 유발하는 유분(수용성 유기물, 분산성 오일)과 일부 부유물질을

사전 제거하기 위한 전처리 장치로 용존 공기 부상(Dissolved Air Flotation : DAF)를 선정하였으며 DAF는 세부적으로 기포 부상 기능과 화학침전기능을 병행하여 다음 공정인 침지식 UF의 유입 가능 수질까지 처리하게 하였다. DAF에 이어 침지식 UF를 배치하였는데, 여기서는 DAF에서 처리되지 않은 0.04 ㎛이상의 입자성 물질과 일부 유분 및 유기물을 추가적으로 제거하여 주처리 설비인 고압 RO의 원활한 작동하도록 처리 수질을 탁도 0.5NTU이하로 처리하였다. 이어서 활성탄 조에서는 이전 공정에서 처리 후 잔류할 수도 있는 미량의 오일 성분 및 수용성 유기물을 제거하여 선택적 핵종 제거 수지컬럼과 RO공정의 효율을 유지하도록 하였다. 고염도 폐액 중 방사성 양이온(Cs^+, Sr^+) 및 음이온(I^-)의 선택적 제거를 위한 공정으로 다단 흡착탑을 구성하였으며, 각 흡착탑에는 Cs, Sr, I 핵종에 대해 선택성이 우수한 인공제올라이트를 각각 고려하였다. 흡착탑은 고농도의 방사성물질이 농축되므로 높은 수준의 차폐를 고려하고 있다. 고압 RO공정에서는 폐액 내의 인산삼나트륨 등 용존염을 1차 농축한 이후 증발/건조 공정의 부하를 감소시키며, 비방사성 이온성분 및 방사성 이온물질을 제거하도록 하였다. RO처리수의 환경배출, 재사용 수질의 조건을 만족하도록 폐액 내 미량 존재하는 핵종을 제거하기 위하여 CDI와 EDI를 결합한 C-EDI공정을 선정하였다. 끝으로 전처리 공정에서 발생한 슬러지와 RO농축수 등 고염폐액의 처리를 위해 증발건조 공정을 선정하였다. 이 공정은 현재까지 개발된 기술 중에서 가장 안정적으로 고농도 폐액을 농축 처리할 수 있으며, 이동식 공정으로 적용하기 위하여 공정 규모가 작은 전기 가열 방식 증발건조기로 선정하였다.

2.3 Lab 규모 성능시험 및 결과

이동식 장비의 성능을 평가하기 위하여 우선적으로 국내외 중대사고 및 비상시 발생하는 액체 방사성 폐기물에 대한 조사를 통하여 모의폐액을 제조하여 테스트하였다. 해수의 유입가능성에 대비하여 고염성분이 함유된 방사성폐액 처리 방안도 모색하여 성능평가를 하였다. 예비 선정된 전처리 기술로 DAF와 UF공정은 Lab처리 성능평가에서 중대사고시 발생되는 예상폐액의 조건하에서 고압 RO공정의 전처리 공정으로 적절한 결과를 보였으며, 오일성분의 유입이 없을 시에는 침지식 UF공정만을 사용해도 충분한 처리효율을 제시하는 것으로 판단되었다. 또한 활성탄 흡착공정을 거쳐 미량의 오일성분이 제거되며 RO공정에 부하를 적게 주는 결과를 보여, UF공정 이후 활성탄 흡착공정을 배치하는 것이 타당하다고 판단되었다. 선택적 핵종제거 공정 또한 우수한 효율을 보이는 것으로 나타났다. RO시험결과 폐액 내 이온성 물질을 97%이상 제거할 수 있었으며, 폐액의 농도에 따라 40~80%의 회수율을 보였다. RO처리수(Permeate)는 배출하거나 냉각수 등으로 재사용하고 농축수(Retentate)는 증발 건조기에서 처리하도록 하였다. RO공정을 통한 처리만으로도 상당량의 고염성분 및 이온성 방사성물질이 제거되었으며, 해수를 원수로 사용할 때 RO처리수의 이온이나 방사성 핵종을 C-EDI시스템을 활용하여 처리할 경우 중대사고 시 복합공정 처리 성능을 만족 할 수 있었다.

3. 결론

비상상황 발생 시 신속한 지원을 위해서는 이동식 장비의 개발이 중요하다. 공정을 모듈화 하여 폐액 특성에 맞는 공정을 선택하여 운영한다. 부하에 따라 공정별 모듈의 확장이 용이한 구조를 가지도록 개발하면 비상시 보다 유연성 있는 대응처리가 가능할 것이다. 향후, Pilot 규모로 이동식 방사능 폐액 처리 설비 설계 및 제작 과정에서 추가적인 검토를 통하여 최적의 상세 설계안을 마련할 계획이다.

4. 참고문헌

[1] 박철홍, 이동형 DAF(Dissolved Air Flotation)시스템의 운용과 활용에 관한 연구, 석사학위논문, 2009.

[2] 한국원자력안전기술원, "후쿠시마 원전사고 1주년 방사선영향 평가보고서", 한국원자력안전기술원, 2012.

[3] C. Robert Reiss, Christophe Robert, Jonathan Dietrich, Anand Mody, "Pretreatment and Design Considerations for Large-Scale Seawater Facilities", 2008.

원전 공기정화계통 활성탄내 ^{14}C 흡착 매커니즘 고찰

김덕기*, 소지양, 박승철
한수원㈜중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70
*darklord@khnp.co.kr

1. 서론

원전 정상상태 및 중대사고시 기체상으로 발생할 수 있는 방사성 요오드를 제거하기 위해 국내 원전에서는 공기정화설비에 원자력등급의 KI 또는 TEDA가 첨착된 활성탄을 사용한다. 국내 원전의 연료손상 빈도는 연료봉 3백만 개당 1개 정도로 매우 낮고, ^{131}I의 물리적 반감기가 8일로 비교적 짧기 때문에, 원전 정상상태 시 교체 폐기되는 첨착활성탄 속에 ^{131}I가 존재할 가능성은 매우 낮다. 그러나 교체되는 폐활성탄의 ^{14}C 함량이 자체처분 허용농도를 초과하기 때문에 처분비용 절감을 위해서는 ^{14}C 제거기술 개발이 시급하다.

본 논문에서는 원전 공기정화계통 발생 폐활성탄내 ^{14}C흡착 매커니즘에 대해 고찰함으로서, 자체처분허용농도 미만으로 ^{14}C을 제거할 수 있는 기술개발에 유용한 정보를 제공하고자 한다.

2. 본론

2.1 국내 원전 ^{14}C 화학적 형태

가압경수로 원자로냉각재의 화학적 환경은 방사선 분해로 생성된 산소종을 제거할 수 있도록 수소농도를 충분히 높게 유지하기 때문에 환원상태에 있다. 냉각재에서 $^{17}O(n, \alpha)^{14}C$ 반응 및 $^{14}N(n, p)^{14}C$ 반응으로 생성된 대부분의 ^{14}C는 냉각재 속의 수소나 극미량인 유기물질들과 급속히 결합하여 탄소, 메탄 또는 포름알데히드나 메탄올과 같은 유기화합물로 환원된다.

Vance 등은 실험조사를 통해 가압경수로 냉각재 속의 ^{14}C는 주로 유기형태(58~95%)로 존재한다고 하였다[1]. 또한 국내 경수로형 원전에서 생성되는 ^{14}C의 화학적 형태에 대한 연구결과에 따르면[2], 원자로 전출력운전 기간 동안 냉각재에 존재하는 ^{14}C은 90%이상이 유기형태이나, 발전소 계획예방정비를 위해 수행하는 정지화학처리(shut down chemistry) 시에는 과산화수소(H_2O_2) 주입으로 유기형태의 ^{14}C가 산화되어 무기형태의 ^{14}C로 변환되고, 냉각재 일부가 핵연료재장전 공정 중 사용후연료저장조로 혼입되어 무기형태의 ^{14}C를 다량 함유하게 된다.

CANDU형 중수로의 경우, 많은 양의 중수를 감속재로 사용하기 때문에 계통 내 상당량 존재하는 ^{17}O의 $^{17}O(n, \alpha)^{14}C$ 반응으로 전체 ^{14}C의 94.5%가 감속재의 중수에서 생성된다. 생성된 ^{14}C는 감속재 속에 있는 물분자의 방사선 분해로 생성된 OH 라디칼 등과 화학적인 반응을 통해 $^{14}CO_2$로 전환되어 용해된다. 감속재계통의 운전 pH는 4.5~6.5이므로 감속재 속의 ^{14}C는 대부분 $D_2{}^{14}CO_3$이나 $D^{14}CO_3^-$형태로 존재한다[3]. $D^{14}CO_3^-$는 이온교환수지에서 제거되며, $D_2{}^{14}CO_3$는 $D^{14}CO_3^-$가 제거되어 감소함에 따라 평형이동에 의해 $D^{14}CO_3^-$형태로 바뀌어 결국 이온교환수지로 제거된다.

2.2 ^{14}C물질의 활성탄 유입

가압경수로 사용후연료저장조 냉각수는 정화이온교환수지로 지속적으로 정화되는 과정에서 저장조 수면에 존재하는 무기형태의 ^{14}C가 기-액 평형을 통해 핵연료건물 내 대기로 이동한다. 특히 계획예방정비가 종료된 후에도 사용후연료저장조에는 무기형태의 ^{14}C가 충분히 남아 있기 때문에 기-액 평형은 지속적으로 일어날 수 있고, 결과적으로 원자로 전출력운전 기간에도 핵연료건물 내 대기 중 ^{14}C는 대부분 무기형태의 ^{14}C로 존재한다.

CANDU형 중수로의 경우, 감속재계통에서 생성된 $^{14}CO_2$는 감속재 내에서 용해도의 변화에 의해 감속재계통 상층공간의 헬륨과 중수 사이의 물질분배로 섞이게 된다. 감속재계통 상층기체공간은 대기압보다 높은 상태를 유지하고 있으며, 중수증기, 소량의 중수소, 산소, 질소 및 기타 기체가 생성 혼합되어 있는 상태이다. 이들 상층기체 중 중수소 농도는 2%이하로 엄격하게 제한된다. 그러나 중수소 농도가 증가하면 중수소 농도를 감소하기 위해 격납건물 대기로 퍼지(purge)를 수행하며, 이때 $^{14}CO_2$가 상층기체에 포함된 다른 기체들과 함께 대기 중으로 확산된다. 이렇게 격납건물 대기 중에 존재하는 $^{14}CO_2$는 공기정화계통의 활성탄으로 유입된다.

2.3 첨착활성탄의 ^{14}C물질 흡착

활성탄은 탄소가 전자배위 sp^2 혼성구조인 흑연층으로 이루어져 있으며, 슬릿 형태의 기공구조를 갖는다. 기공은 전자밀도가 제로('0')인 공간이지만 인접한 탄소원자들로부터의 집중적인 반 데르 발스 힘을 갖고 있기 때문에 흡착 매커니즘을 주로 담당하게 된다.

활성탄의 표면은 비극성이며 소수성을 띄는 기본 탄소표면과 기능기 영역으로 구분할 수 있다. 기능기 영역은 쌍을 이루지 못한 전자와 포화되지 않은 전자에 의하여 표면화합물 그룹을 형성하는데 주로 산소, 수소가 모서리 끝에 붙어 있다. 이러한 표면화합물은 산소를 포함하는 산소화합물로서, 주로 크게 카르복실기(-COOH), 카르보닐기(C=O), 페놀기(ArOH) 형태로 나타난다. 이들 산소화합물 때문에 기능기 영역은 산성을 나타내게 되며, 산성도로 인해 활성탄 표면은 친수성과 극성 및 음전하를 띄게 된다. 원전 공기정화계통에 사용되는 활성탄은 $CH_3{}^{131}I$, $C_2H_5{}^{131}I$과 같은 화합물내 ^{131}I을 제거하기 위해 1~5wt% KI 또는 5wt% TEDA를 첨착시킨다.

경수로형 원전의 원자로건물 내 대기에서 방사선 분해로 생성된 유기형 라디칼인 $^{14}CH_3\cdot$, $^{14}C_2H_5\cdot$들은 연료결함과 같은 상황에서 원자로냉각재계통을 빠져나온 ^{131}I과 반응하여 $^{14}CH_3{}^{131}I$, $^{14}C_2H_5{}^{131}I$ 형태로 전환된후 KI 첨착활성탄으로 유입될 경우, 첨착물질인 $K^{127}I$와 동위원소 교환반응으로 $^{14}CH_3{}^{127}I$, $^{14}C_2H_5{}^{127}I$는 기체상으로 활성탄을 빠져나간다. TEDA 첨착활성탄의 경우 TEDA와 $^{14}CH_3{}^{131}I$, $^{14}C_2H_5{}^{131}I$의 화학반응으로 4가 암모니윰염을 형성하기 때문에[4] ^{14}C는 $^{14}CH_3$과 $^{14}C_2H_5$ 형태로 TEDA 첨착활성탄에 포집된다. 국내 경수로형 원전의 경우 연료결함 발생빈도가 낮은 점을 고려할 때 발전소 정상상태시 원자로 전출력운전기간 중 원자로냉각재 속에 방사성요오드가 존재할 가능성은 아주 낮을 것이다. 따라서 유기형태의 ^{14}C가 방사성요오드와 결합하여 $^{14}CH_3{}^{131}I$, $^{14}C_2H_5{}^{131}I$과 같은 화합물로 전환될 가능성은 희박하므로 첨착활성탄으로 유입될 가능성도 매우 낮다.

한편 CANDU형 중수로의 경우, 공기정화계통의 첨착활성탄으로 유입되는 대부분의 ^{14}C물질인 $^{14}CO_2$와 소수를 차지하는 $^{14}CH_4$, $^{14}CH_2H_6$들은 무극성이면서 안정화합물이므로 첨착물질과 화학반응할 확률은 아주 낮으며, 기공 내 반 데르 발스 힘에 의한 물리적인 흡착으로 포집되어 있을 가능성이 매우 높다.

3. 결론

국내 가압경수로 및 CANDU형 중수로 원전 공기정화계통의 KI 또는 TEDA 첨착활성탄의 ^{14}C물질 흡착 매커니즘에 대해 조사하였다.

가압경수로에서 첨착활성탄으로 유입되는 ^{14}C의 화학적 형태는 주로 $^{14}CH_4$, $^{14}C_2H_6$, $^{14}CO_2$로서 무기 및 유기형태이지만, 원전 ^{14}C 환경배출량의 대부분을 차지하는 핵연료건물의 경우 원전 운영 전 주기를 통해 $^{14}CO_2$이 생성되어 활성탄으로 유입됨을 파악할 수 있었다.

중수로의 경우, 감속재계통에서 생성되어 공기정화계통의 첨착활성탄으로 유입되는 ^{14}C물질은 대부분 $^{14}CO_2$임을 알 수 있었다.

이들 ^{14}C를 함유한 에탄이나 메탄 및 이산화탄소들은 무극성이면서 안정화합물이므로 첨착물질인 TEDA나 KI와 반응할 확률은 높지 않을 것으로 판단되며, 결국 첨착활성탄에 포집된 ^{14}C는 첨착물질과 화학반응을 통해 포집되었다기 보다는 대부분 기공 내 반 데르 발스 힘에 의한 물리적 흡착으로 포집되어 있을 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

[1] Vance J. N. et al., "Chacterization of Carbon-14 generated by the nuclear power industry, TR-105715.EPRI, Palo Alto, California, EPRI (1995).

[2] 강덕원 등, "Evaluation of C-14 behavior characteristic in reactor coolant from Korean PWR NPP's", J. of the Korean Radioactive Waste Society Vol.7(1), p.1-7, Mar. (2009).

[3] 김언희 등, "중수로 운전중 발생되는 C-14 방출 감시기술 개발", TR.95ZJ14.J1998.11, 전력연구원 (1998).

[4] Wren, J. C.; Moore, C. J. Whiteshell Nuclear Research Establishment, Manitoba Roe 1LO, Pinawa, 1988, 113-122.

첨착활성탄 성능검사시 방사능 측정요인 불확도 평가

성기방*, 최종락, 권혁철
한수원㈜중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312 번길 70
*kind.sung@khnp.co.kr

1. 서론

원전의 공기정화계통에 사용되는 첨착활성탄(TEDA Charcoal) 성능은 ASTM D 3803-91에서 제시한 방사성 메틸아이오딘($CH_3{}^{131}I$) 추적자 투과실험으로 평가한다. 중앙연구원은 평가의 신뢰성을 확보하기 위해 성능시험시설을 국제공인시험기관으로 인정받아 운영하고 있다. 공인시험인정을 위해서는 시험결과에 대해 불확도를 평가하여야 한다. 본 논문에서는 여러 불확도 요인중 방사능 측정 불확도 계산만 제시하였고, 나머지 요인은 결과값과 여러 성분 불확도를 합성한 합성표준불확도를 산출하였다.

2. 본론

2.1 첨착활성탄 시험방법

2.1.1 시료의 전처리, 흡착 및 탈착

활성탄시험은 항온장치에서 온도의 변화를 최소화하여 수행하며, 장치는 95%의 습윤 공기공급장치, 직렬로 연결된 Test Bed와 Back Bed 시험장치, 추적자 공급장치 및 유량, 온도, 습도 측정기로 구성된다. 시험순서는 Table 1과 같이 전처리, 평형, 흡착, 탈리운전으로 진행된다. 시험방법은 시험시료와 후단시료 2개를 Bed(100ml) 각각에 충전한 후, 흡착단계에서 방사성추적자를 공기와 함께 1시간 주입한다. 이후 탈리단계를 거쳐 시험시료를 꺼내 흡착된 방사능을 계측하여 효율을 계산한다.

Table 1. Test Condition of TEDA Charcoal

운전조건	평형운전 (16h)	평형,흡착,탈리 (2h, 1h, 1h)
온도, ℃	30.0 ± 0.4	30.0 ± 0.2
상대습도, %	91.0 ~ 96.0	93.0 ~ 96.0
유량, lpm	11.6 ~ 12.8	11.9 ~ 12.5
압력. kPa	101.0 ± 5	101.0 ± 5

2.1.2 핵종분석 및 흡착효율 계산

탈리 운전 종료후 Test Bed(TB)와 Back-up Bed(BB) 내 ^{131}I을 감마핵종분석기로 계측한다. ASTM D 3803의 첨착활성탄 흡착 효율식(1)에 따라 계측값으로부터 흡착률을 구한다.

$$\text{효율}(E) = \frac{a}{(a+b+c)} \times 100(\%) \qquad \text{(식 1)}$$

a : Test Bed의 ^{131}I 방사능계수율(counts/min)

b, c : Backup Bed 1,2의 ^{131}I 방사능계수율(counts/min)

2.2 불확도 산출절차



불확도는 위 식(1)을 이용하며, 불확도 요인은 유량계 유량, 온도계 온도, 방사능 측정값, 시료부피, 방사능붕괴 및 반복성 등이 있다. 성분 분석후 표준 및 합성불확도를 구하고, 측정 돗수로부터 포함인자를 산출하여 마지막으로 원하는 확장불확도를 산출한다.

2.3 활성탄 성능분석의 수학모델

수학적 모델식(1)에 대해 첨착활성탄의 불확도 성분은 다음 Fig. 1과 같다.

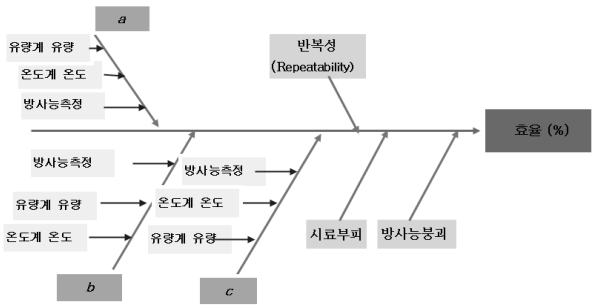


Fig. 2 Uncertainty Component of the activated TEDA Charcoal.

2.4 방사능 측정시 상대표준불확도

2.4.1 방사능측정시 상대표준불확도 : u_a(A형)

방사능측정에 의한 방사능계수율 a(cpm) 및 표준편차 S_a 식은 다음과 같다.

$$a = \{[\frac{X}{t_x}] - [\frac{G_1}{t_{g1}}]\} exp(0.003\ 592\, T_x)\text{cpm} \quad \text{(식 2)}$$

$$S_a = \sqrt{[X/(t_x)^2 + G_1/(t_{g1})^2] exp(0.007\ 184\, T_x)} \quad \text{(식 3)}$$

여기서 X= Test Bed의 순 계수치(Counts)

t_x = Test Bed의 측정시간

T_x = 샘플채취후 측정경과시간

G_1 =Test Bed의 백그라운드 계수치

t_{g1} = Test Bed의 백그라운드 측정시간

0.003592 = ^{131}I 의 붕괴보정상수(hr^{-1})

위 식에 각각의 값을 대입하면 방사능계수율 a (cpm) 및 표준편차 S_a는 Table 2와 같다.

Table 2. Activity count rate(cpm) and Standard deviation of TEDA Charcoal

구분	X	t_x	G_1	t_{g1}	T_x	a	S_a
값	14600	5	0	60	0.03	2929.8	24.25

유량계($u_{L.}$)와 온도계((u_T)에 따른 불확도는 교정성적서에 따라 0.260%, 0.056% 이고 이 때 자유도는 포아송 분포이고, 붕괴확률이 낮은 방사능 붕괴이므로 자유도는 ∞이다.

2.4.2 방사능측정시 합성표준불확도 : u_{ab}

위 에서 구하여진 상대표준불확도를 이용하여 상대표준불확도 제곱의 합의 방식으로 합성된 합성표준불확도(상대)를 구한다

$$u_{aa} = \sqrt{u_a^2 + u_L^2 + u_T^2} = \sqrt{0.008^2 + 0.260^2 + 0.0561^2} = 0.266\%$$

2.4.3 방사능측정 상대합성표준불확도 : u_{Ef}

아래의 식(4)는 효율의 수학식 모델에서 a,b,c 각각의 함수를 편미분하여 GUM 방법에 의해 합성한 것이다.

효율(E) = $\frac{a}{(a+b+c)} \times 100(\%)$ = 98.984% (식4)

각 항에 대해 편미분하여 감응계수를 구하면

$$C_a = \frac{\partial E}{\partial a} = \frac{(b+c)}{(a+b+c)^2} \quad \text{(식5)}$$

$$C_b = \frac{\partial E}{\partial b} = \frac{-a}{(a+b+c)^2} \quad \text{(식6)}$$

$$C_c = \frac{\partial E}{\partial c} = \frac{-a}{(a+b+c)^2} \quad \text{(식7)}$$

식 (5),(6),(7)의 감응계수를 합성표준불확도 일반해 근사식에 대입한다.

$$u_E^2(E) = [\frac{(b+c)}{(a+b+c)^2}]^2 \cdot S_a^2 + [\frac{-a}{(a+b+c)^2}]^2 \cdot S_b^2 + [\frac{-a}{(a+b+c)^2}]^2 \cdot S_c^2 \quad \text{(식8)}$$

이것을 정리하여 백분율로 나타내면 다음과 같다.

$$u_E = 100\frac{\{[(b+c)^2(S_a)^2] + a^2(S_b)^2 + (S_c)^2]\}^{0.5}}{(a+b+c)^2} \quad \text{(식9)}$$

나머지 온도변화 및 유량변화, 배경방사능 불확도가 합성된 방사능 측정, 방사능붕괴, 시료량변화 및 반복측정 불확도는 다음과 같다.

Table 3. Other Relative standard uncertainty Component of the activated TEDA Charcoal

구분	방사능측정	방사능붕괴	시료량변화	반복측정
값($\bar{x}$)	2929.8	0.0006	99.86	3446
표준편차(Sd)	24.25	-	0.05	25.2
자유도(v_d)	∞	∞	5	4
표준불확도 (u_d)	0.386	0.0075	0.029	11.3
상대표준불확도 ($u_{3.}$)	0.493	0.0075	0.029	0.327

2.4.4 합성표준불확도, 포함인자 및 확장불확도 산출

합성표준불확도는 상대표준불확도를 이용 상대표준불확도 제곱의 합의 방식으로 합성된 식 10의 합성표준불확도(상대)를 구한다.

$$u_f = \sqrt{u_{Ef}^2 + u_1^2 + u_2^2 + u_3^2..} = 0.592\ \% \quad \text{(식10)}$$

포함인자 k 를 위한 유효자유도 계산결과는 다음과 같다.

$$v_{eff} = \frac{0.592^4}{\frac{(0.493)^4}{\infty} + \frac{(0.075)^4}{\infty} + \frac{(0.029)^4}{5} + \frac{(0.327)^4}{4}} = 43$$

따라서, 자유도가 크므로 신뢰수준 약 95%에서 k = 2 을 적용한다.

확장불확도 계산식은 다음과 같다.

$$U = k \times u_c \quad \text{(식11)}$$

따라서 확장불확도는 다음과 같이

U =2×0.59% = 1.18% 이다.

3. 결론

첨착활성탄의 성능분석절차와 효율계산법에 의한 불확도를 추정하였다. 첨착활성탄의 성능분석시 확장 불확도는 신뢰수준 약 95%에서 약 1.18% 이다.

4. 참고문헌

[1] 첨착활성탄 메틸아이오딘 성능검사 불확도추정 보고서(2015., 한수원).

전자가속기 시스템의 Pre-buncher, buncher 장치 성능 평가

김정동*, 김영국, 이용덕
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*kjd@kaeri.re.kr

1. 서론

Lead Slowing Down Spectrometer (LSDS) 시스템은 고효율 중성자를 이용하여 사용후핵연료 및 파이로 핵물질의 동위원소별 함량 측정 분석을 할 수 있는 비파괴 기법이다[1]. LSDS 시스템은 핵분열을 유도하기 위해 약 1×10^{12} n/sec 외부 선원 중성자가 필요하며, 기존에 있는 D-D, T-D 중성자 발생장치의 중성자 수율은 LSDS 시스템에서 요구하는 선원 중성자를 충족시키지 못한다.

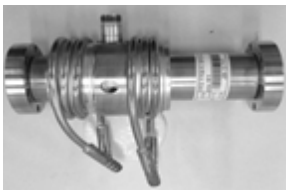
외부 선원 중성자수를 만족시키기 위하여 전자가속기를 이용하여 금속 표적에 전자를 입사시켜 (e,γ)(γ,n) 반응을 통한 중성자 발생 방법을 선정하였다. LSDS 시스템에 적합하고 경제적인 선형 전자가속기 구축 단계에 있으며, 현재 전자발생장치, Pre-buncher, buncher, 전자빔 집속장치를 제작하였다.

본 논문에서는 내부 구조에 따라 RF 에너지 및 가속 전기장의 크기가 민감하게 변화는 Pre-buncher, Buncher 장치의 성능 평가를 수행하였다. 각 장치의 공진 주파수, Cavity Q, VHSR 값을 측정하여 전자 가속기에서 요구되는 사양과 비교 평가를 통하여 장치의 성능을 검증하였다.

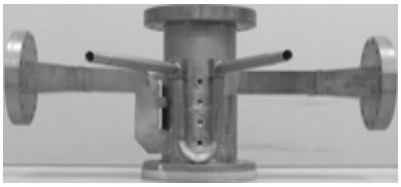
2. 본론

2.1 Pre-buncher, buncher 특성

전자 가속기 시스템에서 Pre-buncher는 2856 MHz 에 공진되는 RF cavity로 80 keV 에너지의 전자빔을 RF 전기장으로 에너지를 조절하여 350 ps 주기로 마이크로 번치를 만드는 역할을 수행한다. Buncher는 pre-buncher에서 만들어진 전자빔 350 ps 번치를 강화시켜 번치의 길이를 30 ps 미만으로 감소시키고, 전자빔의 에너지를 500 kV 이상으로 증가시키는 장치이다. 전자 발생장치에서 생성된 전자는 Pre-buncher, Buncher를 통과하면서 길이 방향으로 압축되어 군집된 전자빔을 만든다. Fig. 1은 제작된 Pre-buncher, Buncher 외관을 보여준다.



(A) Pre-buncher.



(B) Buncher.

Fig. 1. Appearance of Pre-buncher and Buncher.

2.2 Pre-buncher, Buncher 평가방법

Network analyzer를 도파관 Calibration을 한 후 각 장치와 연결한다. Fig. 2는 Network analyzer 측정 장치와 Buncher가 연결된 모습을 나타낸다.

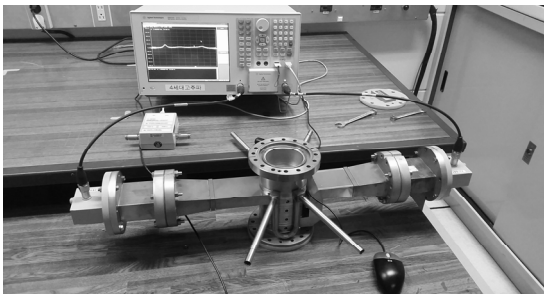


Fig. 2. Connection of experimental equipments.

Pre-buncher와 buncher 내부로 2.8~2.9 GHz 고주파 영역의 신호를 입력하여 반사되어 나오는 출력 신호를 측정하는 S_{11} 그래프를 통하여 공진 주파수를 확인하고, Cavity Q값 경우 Pre-buncher은 식 (1)을 통하여 계산되며, Buncher 는 식 (2)를 통하여 계산하였다.

$$Q_{ave} = (1+\beta)Q_L \quad (1)$$

$$Q_{ave} = \frac{\pi f t_F}{\tau_0} \quad (2)$$

식 (1)의 β 는 정재파의 비를 나타내며, Q_L 은 내부에 입력 신호를 보냈을 때 Cavity Q 값을 나타낸다. 식 (2)의 f는 Resonance frequency 이며, t_F는 Filling time, τ_0는 Total power attenuator 이다.

2.3 측정 결과

Fig. 3(a)는 S_{11}그래프로 Pre-buncher의 공진 주파수를 나타낸다. 제로영역은 모두 반사가 되었음을 나타내며, 2.856 GHz 에서 피크 발생함을 보여준다. 식(1)의 Q_L 은 공진 주파수를 Band width로 나눈 값이며, Fig. 3(b)는 측정된 Band width 약 7.5150 MHz를 나타내며, 계산결과 약 380의 Q_L 값을 계산하였다. 입사파와 반사파의 위상이 일정한 곳의 전압과 전류비 β는 약 1이며, 식(1) 대입하여 약 760의 Cavity Q 값을 도출하였다.

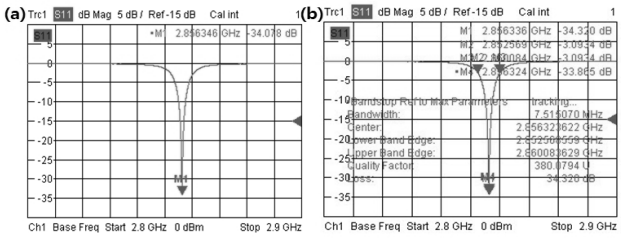


Fig. 3. The measured value of (a)Resonance frequency and (b)Band width.

Fig. 4(a)는 Buncher 공진주파수를 측정한 S_{11} 그래프를 나타낸다. 4개의 cell로 구성된 Buncher에서 4개의 주파수가 뚜렷하게 나타나는 것을 확인하였다. 생성된 피크에서 공진 주파수를 측정하는 신호는 왼쪽에서 3번째 신호이며, 측정된 공진 주파수는 2855.78 MHz이다. Buncher 제작 사양의 공진 주파수는 2856 MHz와 약 0.22 MHz 오차가 발생한다. 제작 사양의 공진주파수는 실제 Buncher의 운영 온도 약 45℃ 때의 공진 주파수이므로 온도에 대한 환산이 필요하다.

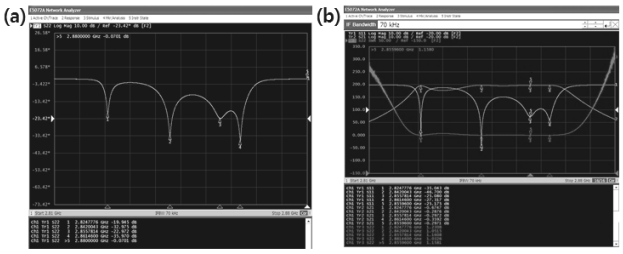


Fig. 4. The measured value of (a) Resonance frequency and (b) Attenuator, Filling time.

실험실 온도는 약 27.7℃ 이므로 온도에 대한 보정을 통하여 Buncher type 2π/3 모드에 대해 운영온도 45℃를 기준으로 환산하여 27.7℃에서 공진 주파수는 약 2855.96 MHz이며, 측정 주파수와 일치함을 확인하였다.

Fig. 4(b) 는 Filling time, Total power attenuator 값을 측정한 그래프이다. Cavity Q 값을 계산하기 위한 3가지 파라메타 $\tau_0 = 0.03433$, $t_F = 0.3478\,\mu s$, $f = 2855.78\,MHz$ 측정하였고, 식(2)에 대입하여 식(3)과 같이 9100의 Cavity Q 값을 도출하였다.

$$Q = \frac{3.1415 \times 2855.78 \times 0.3478}{0.0343} \simeq 9100 \qquad (3)$$

3. 결론

전자가속기 구성 장치 중 전자빔 길이를 압축하고, 에너지를 증가시켜 고에너지의 군집된 전자빔 생성을 돕는 Pre-buncher, Buncher 의 성능평가를 수행하여 각각의 공진주파수와 Cavity Q값을 측정하였다. Pre-buncher, Buncher 모두 2856 GHz 의 공진 주파수를 가지며, 각각의 720, 9100 의 Cavity Q 값을 도출하였다. Pre-buncher, Buncher의 성능 평가를 통하여 제작사양과 동일함을 검증하고, 장치제작의 신뢰성을 높이고, 균질한 전자빔 발생을 도와 중성자 발생 효율이 증대될 것으로 판단된다. 추후 전자빔 집속장치에 대한 성능 평가를 수행할 것이다.

4. 감사의 글

이 논문은 미래창조과학부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다(No.2014030151).

5. 참고문헌

[1] Y.D. Lee, C.J. Park, H.D. kim, K.C, Song, "Design of LSDS for Isotopic Fissile Assay is Spent Fuel," Nuclear Engineering and Technology, 45, pp. 921-928, 2013.

그라파이트 미세분말의 질소 및 공기분위기에서 가스화 특성

최윤정*, 양희철, 양인환, 김형주, 이시영, 정동용, 문제권
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*yjchoi@kaeri.re.kr

1. 서론

우리나라 연구용 원자로 2기를 포함하여 전 세계 흑연감속로 해체과정에서 약 27 만 톤의 방사화 흑연 폐기물이 발생되고 있으나, 적정 처리기술 부재로 해체 현장에 임시 저장중이며, 이는 전 세계 원전해체산업에서 조속히 해결되어야 할 가장 큰 현안 문제이다. 방사성폐기물의 가장 효과적인 처리를 위해서는 방사성 핵종을 최대한 농축 분리하여 최종 처분을 위한 부피를 최소화하고 추가로 안정화한다. 그런데, 방사화 흑연과 같은 탄소폐기물은 가연성이므로 가스화를 시키고 잔류하는 핵종을 안정화하여 처리하는 방법이 가장 유리하다. 본 연구에서는 원자력산업에서 사용되는 흑연과 같은 등급의 고순도 흑연 분말에 대한 질소 및 공기 분위기에서 가스화 특성을 열중량 분석법을 이용하여 고찰하였다.

2. 본론

2.1 실험

본 실험에서는 Alfa Aesar사의 Graphite powder (99.9995%, 325 mesh)를 사용하였으며, TGA (Thermogravimetric analysis, TA Instruments SDT Q600)를 이용하여 질소 또는 공기 분위기에서 1400℃ 까지 0.5, 0.75, 1 및 1.5℃/min의 일정한 승온 속도로 열분해하고 각각의 실험에서 나타나는 시료의 중량 변화를 연속적으로 측정하였다. 또한 반응 도중에 나오는 가스를 FT-IR (Fourier transform infrared spectroscopy)을 이용해 분석하였다.

2.2 결과

Fig. 1에 공기 및 고순도 질소 (99.999% N_2) 조건에서의 비등온 열중량 분석시험의 결과를 나타내었다. 질소 분위기에서는 800℃ 에서 공기 분위기에서는 650℃ 에서 가스화가 시작되었다. 고순도 흑연과 같은 순수한 탄소는 산소가 없는 조건에서는 고온에서도 안정된 물질로 알려져 있는데 본 실험의 결과는 질소분위기에서도 800℃ 이상의 온도에서 가스화가 진행

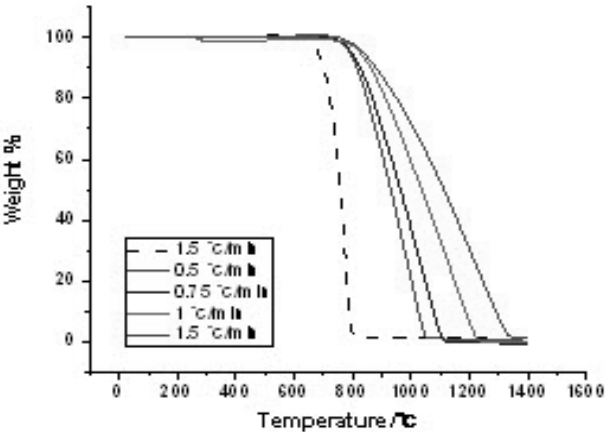


Fig. 1. TGA curves for graphite powder under air (dotted line) and N_2 (99.999 %, solid line) conditions.

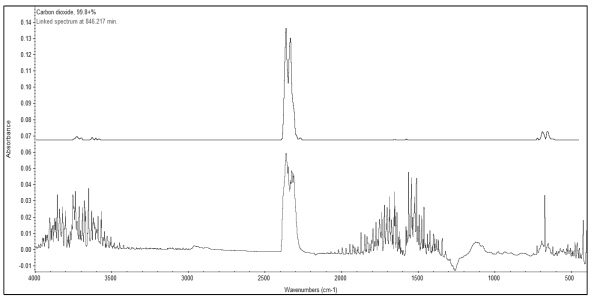


Fig. 2. FTIR analysis of gaseous species evolved from thermogravimetric furnace system.

되어 전혀 다른 결과를 보였다. Fig. 2에 나타낸 질소 분위기 가스화 반응조건에서 발생되는 가스의 FT-IR 분석결과로부터 가스화는 식 (1)과 같은 산소와의 반응에 의해 일어남을 알 수 있다. 이로부터 미량이지만 산소가 고순도 질소가스내 혹은 분말흑연의 표면에 존재하고, 산화반응이 일어난다는 것을 알 수 있다.

$$C(s) + O_2(g) \Leftrightarrow CO_2(g) \qquad (1)$$

반응속도 (dα/dt)는 빈도인자 (Frequency factor) A(α), 반응의 활성화에너지 (Activation Energy) E(α) 및 반응모델함수 f(α)에 의해 다음 식 (2)로 나타내어진다. 이 식으로부터 얻어진 식 (3)에 의하여 질소분위기 비등온 실험의 결과로부터 Differential isoconversional method에 의해 결정된 E(α) 및 수정된 반응 빈도인자(Frequency

factor) A'(α)(= A(α)f(α))를 Fig. 3에 나타내었다. 또 ASTM 방법의 의한 평균 활성화 에너지의 값을 Fig. 4에 나타내었다. 반응의 활성화에너지는 365 kJ/mol ~ 1 kJ/mol 범위로 반응초기, 즉 α가 0.1 이 될 때까지 365 kJ/mol에서 50 kJ/mol로 급히 감소하고 이후 0.2 - 0.95 에서는 전화율 α 에 따라 크게 변화하지 않으며 ASTM E698 방법에 의한 활성화에너지 평균값인 50.474 kJ/mol 보다 약간 낮은 값을 보였다. 활성화에너지의 변화가 거의 없는 조건 (α=0.2 ~ 0.95)에서 평균 활성화에너지 값을 26 kJ/mol 로 결정하고 이를 이용하여 반응모델함수 f(α)를 Master Plot 방법으로 결정한 후 빈도인자 A의 값을 최종적으로 결정하여 반응속도식 (2), (3)를 완성하였다.

$$\ln\left(\frac{d\alpha}{dt}\right) = \ln\left[A(\alpha)f(\alpha)\right] - \frac{E(\alpha)}{R}\frac{1}{T} \qquad (2)$$

$$\frac{d\alpha}{dt} = A(\alpha)\exp\left(-\frac{E(\alpha)}{RT}\right)f(\alpha) \qquad (3)$$

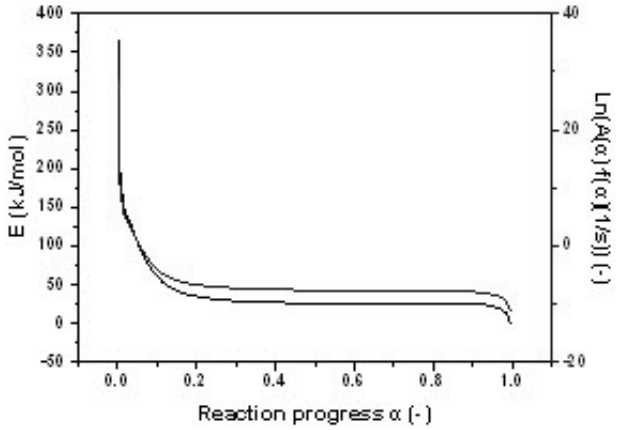


Fig. 3. Activation energy (E(α)) and modified frequency factor (A'(α)=A(α)f(α)) of graphite gasification under N_2 condition.

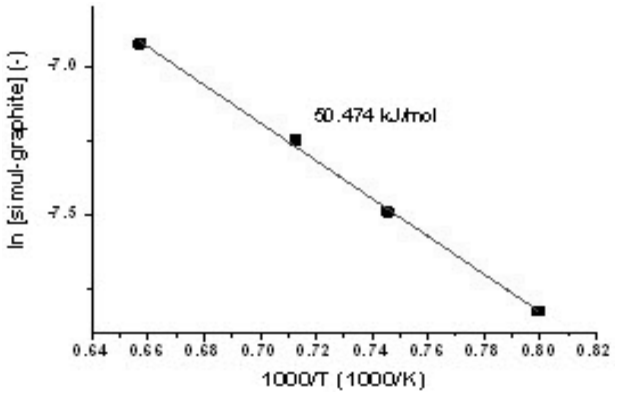


Fig. 4. Activation energy of graphite gasification under N_2 condition determined by ASTM E698 method.

3. 감사의 글

이 논문은 정부 (미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임 (원자력연구개발사업, No. NRF-2012M2A8A5025658).

4. 참고문헌

[1] Yang, H.-C., Eun, H.-C., Lee, D.-G., Jung, C.-H. & Lee, K.-W. Analysis of Combustion Kinetics of Powdered Nuclear Graphite by using a Non-isothermal Thermogravimetric Method. J. Nucl. Sci. Technol. 43, 1436–1439 (2006).

[2] Von Lensa, W., Jones, A. N., Vulpius, D. & Banford, A. Treatment and Disposal of irradiated Graphite and other Carbonaceous Waste. ATW - Int. J. Nucl. Power. 56, 263 (2011).

M/W 플라즈마 제염장치를 이용한 제염에 대한 연구

유석준*, 최영구, 김대환, 안승건
주식회사 선광티앤에스, 서울특별시 관악구 관악로 120 우주빌딩 5층
*yusjgood@nate.com

1. 서론

국내·외 원자력관계시설에서 발생되는 금속 방사성폐기물은 원전 운영에 따른 설비개선, 계통 및 장비 성능개선 등의 단위작업, 노후 시설물 교체의 유지·보수과정에서 꾸준하게 발생하고 있으며 지속적으로 축적되는 상황에서 기존 건식제염 기술은 오염준위가 낮고 표면 부착성이 약한 경우에 간편하게 적용될 수 있다. 그러나 많은 노동력이 소요되고 특히 제염작업 중 작업자의 피폭위험이 높으며 다량의 폐기물 처리에 부적합하고 고착성 오염의 제거가 어려운 단점을 보완하기 위해 2차 폐기물 발생을 최소화하는 건식제염이 필요하여 다양한 건식제염방식에 대한 연구가 진행되었으나, 효율성 문제로 상용화도지 않고 있으므로, 따라서 이를 보완하여 효과적으로 제염할 수 있는 제염기술인 M/W 플라즈마 제염기술 개발이 필요함.

2. 본론

2.1 실증실험 개요

① 과제명 : M/W 플라즈마를 이용한 금속 방사성폐기물 일괄제염
② 실증실험 기간 : 2015. 03. 02 ~ 2014. 03. 20
③ 실증실험 목적 : 연구개발을 통해 개발된 시제품의 실증을 위한 발전소 현장 실험수행
④ 실험인원 : 5명(선광티앤에스(2명), 그린사이언스(2명), ERG(1명)
⑤ 실험장소 : 한울원자력본부 제3발전소 RWB 100' 트럭베이

2.2 실증실험 목표

제염설비를 이용하여 제염 후 원자력안전법에 의거하여 반출기준은 첫째로 "방사선안전관리 등의 기술기준에 관한 규칙"에 명시된 허용표면오염도의 1/10을 초과하지 않도록 방사능오염도가 법적기준을 만족시켜야 하며, 둘째로 "방사성폐기물 분류 및 자체처분 기준에 관한 규정"에 따라 자체처분 허용농도, 자체처분 허용선량에 따라 반출조건을 만족시켜야 하며, 제염여부 및 자체처분가능성을 확인하기 위해 제염 후 대상물의 시료를 채취하여 감마핵종분석장치로 핵종분석을 실시하여 핵종별 농도가 각 핵종의 MDA 미만을 만족할 경우 자체처분하여 소외반출이 가능해 지므로, 한울원자력본부 한울 제3발전소에서 실시한 실증실험은 두 조건의 만족여부를 판단하는 것에 주안점을 두었음.

2.3 실증시험 수행

① 제염대상물의 선정

본 연구과제는 소형 금속폐기물에 대한 제염설비를 개발하는 것이 목표이기 때문에 제염대상물의 형상 및 크기는 플라즈마반응기 내부에 쉽게 적재가 가능하고, 제염성능확인이 용이한 소형금속폐기물을 대상으로 총 11개의 시료를 선정하였음.

② 방사능농도 측정

직접법 및 간접법을 통하여 제염전 제염대상물의 표면오염도 측정 및 핵종분석을 수행하였으며, 작업구역인 트럭베이의 경우, 1차측에서 발생된 이온교환수지가 보관되어 있기 때문에 방사선량률이 낮은 지역으로 이동하여 측정함.

③ 제염 전 제염대상물의 방사능농도 측정결과

측정 및 분석은 한수원㈜의 표준기행에 부합하도록 수행하였으며, 측정 및 분석결과는 Table 1과 같다.

Table 1. Before radioactivity concentration

No	Radioactivity concentration (Bq/100㎠)		Radionuclide analysis(Bq/g)	
	direct	indirect		
2	650.8	173.7	Co-60	2.344E+01
			Total	**6.980E+01**
4	154~230	128.5	Co-60	3.459E-01
			Total	**4.009E-01**
5	2640 ~3788	2430	Co-60	1.260E-01
			Total	**4.793E-01**
6	133 ~154	19.56	Co-60	8.307E-02
			Total	**1.739E-01**
7	1815.6~ 16284.9	893.8	Co-60	1.859E+02
			Total	**2.037E+02**

8	92.2~ 139.6	31.6	Co-60	1.957E-01
			Total	**3.616E-01**
16	115~ **172**	**117.3**	Co-60	1.798E-01
			Total	**1.868E-01**
17	117.3	44.1	Co-60	4.510E+00
			Total	**1.011E+01**
3-S	46	13.97	Co-60	3.111E-02
			Total	**3.111E-02**
4-S	51	25.1	Co-60	1.351E-01
			Total	**1.351E-01**
5-S	46	13.97	Co-60	1.400E-02
			Total	**1.906E-02**

④실증시험 결과

11개의 제염대상물에 대하여 MW 플라즈마를 이용하여 제염을 수행하고 표면오염도 측정 및 핵종분석을 수행하였으며 그 결과는 Table 2와 같다.

Table 2. After radioactivity concentration

No	Radioactivity concentration (Bq/100㎠)		Radionuclide analysis(Bq/g)	
	direct	indirect		
2	4.7	2.3	Co-60	5.631E-02
			Total	**5.631E-02**
4	BKG	BKG	Co-60	1.846E-02
			Total	**1.846E-02**
5	4.7	4	Co-60	9.961E-03
			Total	**9.961E-03**
6	BKG	BKG	Co-60	9.973E-03
			Total	**9.973E-03**
7	266	22.34	Co-60	9.391E-01
			Total	**9.391E-01**
8	2.3	BKG	Co-60	1.805E-02
			Total	**1.805E-02**
16	2.3	1.9	Co-60	2.952E-02
			Total	**2.952E-02**
17	2.3	BKG	Co-60	2.428E-01
			Total	**2.428E-01**
3-S	BKG	BKG	Co-60	5.305E-03
			Total	**5.305E-03**
4-S	BKG	BKG	Co-60	1.975E-02
			Total	**1.975E-02**
5-S	BKG	BKG	Co-60	3.811E-03
			Total	**3.811E-03**

⑤ 제염대상물에 대한 사진은 Fig. 1과 같다.

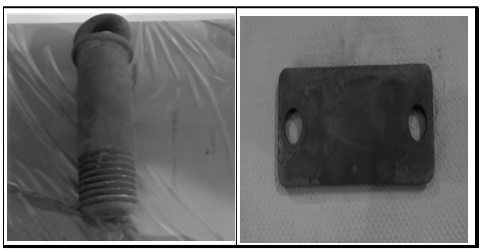


Fig. 1. Object of decontamination(After)

3. 실험결과

표면오염도의 경우 11개의 시료 모두 0.4 Bq/cm^2 이하로 제염됨이 확인되었고, 방사능농도의 경우 11개의 시료 중 10개의 시료에서 Co-60이 검출되었다. 또한, 검출된 핵종의 농도는 IAEA Safety Standard Series RS-G-1.7에 명시되어 있는 핵종별 규제농도 이하로 자체처분치 미만으로 제염되었음을 확인하였으며, 제염계수의 경우 11개의 시료에서 50이상의 제염계수를 확보할 수 있었으며, 이때 최대 제염계수는 806, 최소 제염계수는 28을 나타내었다. 실험결과는 Table 3와 같다.

Table 3. Evaluation results

Accessment	Unit	Target	Remark
Decontamition Factor	DF	50	Satisfaction
Radioactivity concentration	Bq/g	0.1(Co-60)	Satisfaction
Surface contamintion	Bq/㎠	under 0.4	Satisfaction
Based on itself disposal	Bq/g	under MDA	Satisfaction
Exposure	mSv	20	Satisfaction

4. 결론

본 기술이 국내 원자력 분야 제염 산업에 성공적으로 정착된다면 원자력산업 규모 증가에 따라 발생하는 방사성 폐기물들을 국내 기술로 처리 가능할 것이며, 금속 방사성폐기물의 최종 처분량을 획기적으로 줄일 수 있고 나아가 앞으로 열릴 원전해체 시장에 적용하여 국내외 금속 폐기물 제염 적용과 자체처분기술 및 서비스 기술의 수출 등도 가능하리라 예상된다.

5. 참고문헌

[1] 표준기행-8630(한수원) '처분제한치미만의 방사성폐기물 자체처분'.

[2] 금속 방사성폐기물 일괄 제염처리 기술개발 최종보고서(2015.3).

[3] IAEA Safety Standards Series No. RS-G-1.7 "Application of the Concepts Exclusion, Exemption and Clearance"(2004년).

방사성 세슘으로 오염된 오염수 처리를 위한 철-페로시아나이드가 코팅된 자성흡착제

양희만*, 장성찬, 홍상범, 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.[1] 특히, 방사성 오염 물질로 오염된 토양 및 주거지 시설의 복원시 많은 양의 워싱용 물이 사용되며 이대 대량의 방사성 세슘으로 오염된 오염수가 발생한다. 위 오염수를 처리하기 위해서는 방사성 세슘만을 선택적으로 제거 할 수 있는 흡착제 제조 기술의 확보가 매우 중요하다. 또한, 방사성 세슘을 포집하고 있는 흡착제를 처리수로부터 손쉽게 회수할 수 있는 새로운 흡착제 개발이 요구된다. 초상자성을 가지는 자성나노입자는 자기장에 의해 쉽게 분리가 가능한 장점을 가지고 있어 자성나노입자로 구성된 흡착제를 이용할 경우, 방사성 오염원을 흡착한 후 자기장을 이용하여 손쉽고 안전하게 흡착제를 회수하여 제거할 수 있다.[2]

본 연구에서는 방사성 세슘을 포집할 수 있는 철-페로시아나이드를 자성입자 표면에 부착하여 방사성 세슘 제거가 가능한 자성흡착제를 제조하였다. 또한, 자성흡착제의 자성분리 효율을 높이기 위해 자성 나노입자가 클러스터로 형태로 형성시켜 입자당 포화자성값을 향상시켰다.

2. 본론

2.1 제조 방법

먼저 자성나노입자들이 자기회합에 의해 클러스터를 형성하고 있는 자성나노클러스터를 제조한다. 제조 방법은 다음과 같다. 먼저, $FeCl_3$ 와 환원제를 용매에 분산시킨 후 균질한 용액이 될 때까지 교반시켜 준다. 그 뒤 위 혼합물을 Teflon-lined stainless-stell autoclave에 옮겨 넣은 후, autoclave를 잠긴 후, 반응을 유지시킨다. 반응 종료 후, 물과 에탄올을 첨가하며 자석을 이용해 미반응물과 과량으로 넣었던 용매를 제거하고 침전물을 얻는다. 마지막으로 침전물을 60℃에서 가압건조하여 자성나노클러스터 분말을 수득한다 그 뒤 자성나노클러스터 표면에 철-페로시아나이드를 합성하기 위해 자성입자를 수용액 용매에 분산시킨 후, potassium ferrocyanide를 적정량 첨가시켜 자성나노클러스터 표면에 철-페로시아나이드를 합성한다. 반응 종료 후, 자석 이용하여 고체상태의 침전물을 얻는다. 제조된 자성흡착제는 Dynamic light Scattering (DLS), Zeta-potential analyzer, X-ray diffraction (XRD), Transmission Electron Microscope (TEM), Fourier transform -infrared spectroscopy (FT-IR), 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 자성나노클러스터가 초상자성을 가지는 자성나노입자들의 회합체임을 확인하였다. Fig. 1(a)은 제조된 자성나노클러서터의 TEM 이미지를 보여주고 있다. 그림에서 알 수 있듯이 6-10 nm 크기를 가지는 단일 자성나노입자가 자기회합현상에 의해 300 nm 크기를 가지는 나노클러스터를 형성하는 것을 확인 할수 있따. 또한, XRD 분석을 통해 Fe3O4의 결정구조를 가짐을 확인하였다. 앞에서 제조된 자성나노클러스터 표면에 철-페로시아나이드를 도입 한 자성흡착제의 TEM 이미지를 Fig. 1(b)에 나타내었다. 그림에서와 같이 자성나노클러스터 표면에 육각형 구조를 가지는 철-페로시아나이드가 성공적으로 도입되었음을 확인 할 수 있다. FT-IR, zeta-potential, TGA 분석을 통해 제조된 자성나노클러스터에 철-페로시아나이드가 성공적으로 도입되었음을 확인하였다. Fig. 2는 철-페로시아나이드가 코팅된 자성흡착제를 물에 분

산한 용액의 디지털 이미지이다. 그림에서 보는바와 같이 철-페로시아나이드의 도입량이 증가할수록 철-페로시아나이드의 본연의 색이 파란색이 짙어지는 것을 나타내는데 이는 철-페로시아나이드의 도입량이 증가하였기 때문이다. 표 1에 각각의 경우, 자성나노클러스터와 철-페로시아나이드가 도입된 자성흡착제의 zeta-potential 입자 사이지의측정값을 나타내었다. 마지막으로, 제조된 자성흡착제의 세슘 흡착특성 실험 결과, 99.9% 이상의 세슘 제거 효율을 확인하였다

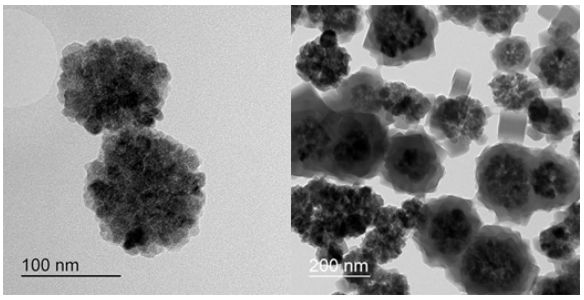


Fig. 1. TEM images of (a) magnetic nanocluster and (b) iron ferrocyanide functionalized magnetic adsorbents.

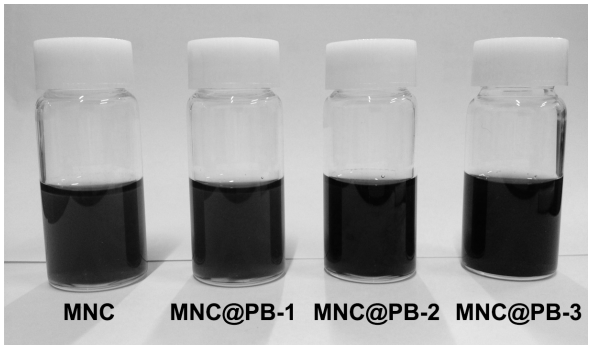


Fig. 2. Photographs of magnetic nanocluster dispersed in water and iron-ferrocyanide coated magnetic nanocluster dispersed in water after reaction with various concentration of $Fe(CN_6)^-$.

Table 1. The hydrodynamic diameter and zeta potential values for the MNC@PB in water

	average diameater	Zeta-potentials
MNC	276.3±6.3 nm	(-)6.8±0.4 mV
MNC@FC-1	293.8±7.7 nm	(-)41.4±3.2 mV
MNC@FC-2	331.7±3.9 nm	(-)49.9±3.9 mV
MNC@FC-3	429.5±17.1 nm	(-)50.6±3.9 mV

3. 결론

본 연구에서는 방사성 세슘의 제거 및 흡착제의 빠른 회수를 위해 철-페로시아나이드가 코팅된 자성흡차제를 성공적으로 제조하였다. 제조된 자성흡착제는 원자력 시설의 중대사고시 발생되는 오염 수 처리를 위한 환경복원용 흡착소재 및 원자력 시설 해체시 방사성 세슘으로 오염된 오염수의 복원을 위한 소재로 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 (No.2012M2A8a5025996).

5. 참고문헌

[1] Manolopoulou, M, Vagena, E., Stoulos, S., Loannidou, A.,Papastefanou, C., J. Environ. Radioact. 2011, 102, 796-797

[2] H.-M Yang, K-W. Lee, B.-K Seo and J-K. Moon, "Copper ferrocyanide-functionalized magnetic nanoparticles for the selective removal of radioactive cesium", *J.* Nanosci. Nanotechnol., 2015, 15, 1695-1701

원심력추출장치를 이용한 용융염-액체금속 추출공정 연구

김범규, 한화정, 박병기*
순천향대학교, 충남 아산시 순천향로 22
qu@sch.ac.kr

1. 서론

Pyro 공정중 폐용융염의 잔류 악티니드를 회수하여 재순환시키기 위해 용융염-액체금속의 접촉시간과 면적을 넓히는 과정은 공정의 효율을 높여준다. 때문에 서로 섞이지 않는 용융염과 액체금속의 접촉면을 높이기 위해 다양한 공정장치가 제안되었다.

CRIEPI에서 연구한 counter-current extraction의 공정장치는 낮은 회전 속도에서 추출공정을 고안하였으며, 특히 ANL의 PYROCONTACTOR는 빠른 회전속도의 원심력을 이용하여 작은 규모에서 효율적으로 운영이 가능하고 단순한 설계 및 쉽게 제어 할 수 있도록 모델을 제안하였다[1,2]. 본 연구는 PYROCONTACTOR의 원심추출기를 선정하고 구조를 활용하여 설계 및 제작하였으며, 용융염매질 내 란타니드를 회수하는 공정을 실시해 보았다.

2. 본론

2.1 실험장치

원심추출기는 기본적으로 외부의 고정틀과 내부의 회전틀이 원통형으로 구성되어 있으며, 회전틀이 회전에 의해 내부에 있던 두 액상들이 벽면을 타고 올라 회전틀내 외부 유출공간으로 이동한다. 형성된 접촉계면을 통해 산화환원 원리에 따른 교환 반응과 액체상에 용해된 화학종이 이동함으로 화학종간의 분리가 수행된다.

모터는 Poong lim 사의 Lab-stirrer이며, 최대 분당회전수는 3000 rpm로 Step size 1~10까지 설정 가능하다. 중앙 상부에 설치된 모터로 회전틀이 회전할 수 있도록 구성하였다.

원심추출기 상부와 하부에 액체금속 상과 용융염 상의 공급 용기를 설치하고 하부에 반응이 종료 후에 두 상을 수거하는 용기가 위치하도록 설계하였다. 상부용기에서 원심추출기로 용융염 상과 액체금속 상이 유입되도록 내경 3.78 mm의 스테인리스튜브로 연결하였다. 원심추출기와 하부용기도 같은 튜브를 사용하여 연결되도록 하였다. 전체장치는 글러브박스의 전기로 중앙에 맞게 설치하였다. 장치는 스테인리스강 sus304를 이용하여 제작하였으며 AutoCAD 3D 이용해 설계해 보았다.



Fig. 1. Schematic of Centrifugal extractor.

2.2 실험 시약 및 방법

LiCl-KCl 용융염은 Alfa aesar 제품으로 전처리 과정으로 200, 300, 400℃에 용융시켜 수분을 제거한 후 회수하여 사용하였다. YCl_3, $LaCl_3$, $CeCl_3$, $EuCl_3$, $GdCl_3$은 Sigma Aldrich사 제품으로 별도의 처리과정 없이 사용하였다. Bi와 Li 금속도 Sigma Aldrich사로 별도의 처리과정 없이 구입 상태 제품을 사용하였다. Bi-Li(9 mol : 1 mol) 합금은 글로브박스에 설치된 전기로를 이용하여 제작하여 사용하였다. 사용된 시료는 Table 1에 제시하였다. 용융염과 액체금속은 고온에서 모두 액체 상태이므로 원심추출실험은 500℃에서 실시하였다.

Table 1. weight of the reagent for a centrifugal extractor at high temperature

Reagent		Weight (g)	
LiCl-KCl		50	
Bi		100	
Li		0.368	
YCl_3	Y	0.538	0.244
$LaCl_3$	La	0.432	0.245
$CeCl_3$	Ce	0.428	0.243
$EuCl_3$	Eu	0.416	0.245
$GdCl_3$	Gd	0.408	0.243

원심추출기 회전틀의 회전속도를 탐색하기 위해 예비실험을 실시하였으며 약 1800 pm에서 좋은 분리를 보였다. 또한, 여러번의 반복실험을 통해 운전시간을 20 분으로 하였다.

전반적인 원심추출기실험은 500℃약 1800 rpm에서 20 분간 교반을 실시하였다.

유출용기로 각각 회수된 LiCl-KCl 용융염과 Bi 액체금속에서 Y, La, Ce, Eu, Gd를 정량 분석하기 위하여 Shimadzu사의 ICP-9000장치를 이용하였다. ICP 분석을 위한 중금속의 전처리는 질산과 염산을 혼합하여 사용하였다.

2.3 실험 결과

Table 2. The results of operating centrifugal extractor at 500℃, 1800 rpm

원소	초기 무게 (g)	용융염 (g)	Bi (g)	용융염+Bi (g)	회수율
Y	0.2436	0.0049	0.1869	0.1918	76.7%
La	0.2446	0.0009	0.2219	0.2228	90.7%
Ce	0.2432	0.0011	0.2006	0.2017	82.5%
Eu	0.2447	0.0845	0.1489	0.2334	60.8%
Gd	0.2434	0.001	0.2119	0.2129	87%

ICP 정량분석결과, LiCl-KCl에서 Y는 0.245 g에서 0.004 g으로 La는 0.244 g에서 0.0009 g, Ce는 0.243 g에서 0.0011 g, Eu는 0.244 g에서 0.084 g, Gd는 0.243 g에서 0.001 g으로 모두 감소하였고, Bi에서 Y는 0.187 g, La는 0.222 g, Ce는 0.2 g, Eu는 0.149 g, Gd는 0.212 g으로 Bi내 농도가 증가하였음을 알 수 있다. 표준편차는 0.0007이다. 이는 용융염에 있는 란타니드 원소가 액체금속으로 성공적으로 회수되었다는 것을 나타내며 회수율은 La> Gd> Ce> Y> Eu 순이다.

3. 결론

본 연구는 용융염-액체금속 회수공정의 기초연구를 위한 원심추출기를 제작하였고 3000 rpm까지 회전이 가능한 장치를 이용해 용융염-액체금속 추출 원리가 구현됨을 확인하였다. 용융염과 액체금속을 통한 란타니드 회수 및 분리공정을 실시해보았다. 원심추출기의 설계가 최적화되지 않았지만 기본 실험을 통한 용융염과 액체금속에서 분배계수의 차이에 따라 란타니드 금속이 분배됨을 확인할 수 있었다.

원심추출기의 운전결과를 토대로 ICP 정량분석 결과 La, Gd, Ce는 높은 회수율을 보였으나 Eu와 Y는 상대적으로 낮은 회수율을 보였다.

4. 참고문헌

[1] Kensuke KINOSHITA, Takeshi TSUKADA, Countercurrent Extraction Test with Continuous Flow of Molten LiCl-KCl Salt and Liquid Cd for PyroReprocessing of Metal FBR Fuel, Central Research Institute of Electric Power Industry, Komae-shi, Tokyo, 211-218, (2012).

[2] L. S. Chow, J. K. Basco, E. L. Carls, T. R. Johnson, Testing of Pyrochemical Centrifugal Contactors, CONF-9606116–64, ANL/CMP/CP –88009 (1996).

초고압 워터젯을 이용한 방사성금속폐기물 제염장치 개발

안승건*, 최영구, 김대환, 유석준
주식회사 선광티앤에스, 서울특별시 관악구 관악로 120, 6층
*rnd@sktns.co.kr

1. 서론

원자력발전소에서 발생되는 방사성금속폐기물의 원활한 제염을 위하여 초고압 워터젯을 이용한 제염장치를 개발하였다. 초고압 워터젯은 금속, 목재 등 원재료의 정밀가공 및 절단을 위한 분야와 선박도장 제거와 같은 세정분야에 적용되고 있다. 절단과 세정에 적용되는 워터젯의 압력은 동일하지만 절단의 경우 세정에 비해 좁은 구경의 오리피스와 적은 유량으로 운영된다는 차이가 있다.

현재 원자력발전소에서 운영 중에 있는 고압수 제염장치의 경우, 운전압력은 약 2,300 psi, 토출량은 9 LPM으로 운전되며, 개발된 초고압 워터젯 제염장치의 경우, 최대 40,000 psi, 20LPM으로 운전 가능하여 고압수제염장치에 비해 제염효과가 탁월하다 할 수 있다. 초고압 워터젯 제염장치는 원자력시설에서 발생되는 방사성금속폐기물의 자체처분, 규제해제를 목표로 개발되었으며, 제염장치의 성능확인을 위하여 월성원자력본부 1발전소에서 성능시험을 수행하였다.

성능시험 결과, 월성원자력본부 1발전소에서 발생된 방사성금속폐기물에 대하여 방사능농도 및 표면오염도가 처분제한치 이하로 제염됨을 확인하였으며 원자력시설에서 발생되는 방사성금속폐기물의 자체처분, 규제해제를 위한 제염장치로서의 적용가능성을 확인하였다.

2. 본론

2.1 초고압 워터젯 제염장치

초고압 워터젯 제염장치는 고압펌프부, 제염챔버 및 노즐이동부로 구성되어 있으며 최대 분사압력은 40,000 psi로 고압펌프에 부착되어 있는 스로틀을 조작하여 분사압력의 조정이 가능하다.

분사노즐의 경우 3차원이동을 통하여 제염대상물로의 접근이 용이하며 Self Rotating 방식을 적용하여 넓은 면적에 대하여 제염할 수 있도록 구성되어 있다. 분사방식은 작업자가 분사건을 파지한 상태에서 직접분사 할 수 있는 수동분사방식과 프로그래밍된 절차에 의해 제염되는 자동분사방식으로 병행되어 사용가능하다.

분사챔버는 워터젯 분사시에 발생되는 수증기와 수분 제거를 위하여 Mist Filter가 부착되어 있고, 제염대상물을 고정할 수 있는 Index Table로 구성되어 있다. Index Table의 경우에는 360°로 회전하여 전방향에 대한 제염이 가능하도록 하였다.



Fig. 1. Ultra High Pressure Water Jet System.

2.2 원전 실증실험

2.2.1 제염 대상물 선정

실증실험에 사용된 제염대상물은 월성원자력본부 1발전소에서 발생된 방사성금속폐기물을 대상으로 하였으며 재질별로는 Stainless Steel, Carbon Steel과 같이 일반적으로 발생되는 폐기물들을 선정하였다.



Fig. 2. Radioactive Metal Waste in Wolsong NPP.

2.2.2 제염 전 방사능분석

선정된 방사성금속폐기물에 대하여 표면오염도 및 핵종분석을 수행하였다. 최대 표면오염도는 직접법의 경우 1,780 cpm, 간접법의 경우 1,171 cpm으로 측정되었다.

핵종분석 결과 Co-60, Cs-137과 같은 대표핵종이 검출되었으며, 최대 292.6 Bq/g의 방사능농도를 보였다.

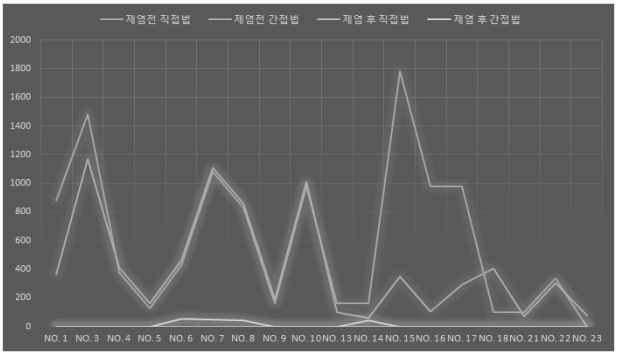


Fig. 3. Surface Contamination before Decontamination.

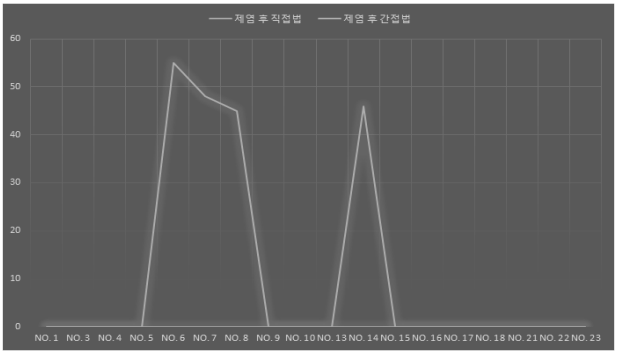


Fig. 4. Surface Contamination after Decontamination.

2.2.3 실증실험 결과

총 19개의 시료를 대상으로 초고압 워터젯 제염장치 제염성능을 확인하기 위한 실증실험을 수행하였다. 표면오염도의 경우 18개의 시료에서 0.4 Bq/cm^2 이하로 제염됨이 확인되었으며, 이 중 14개의 시료에서는 직접법, 간접법에서 모두 BKG이하로 제염됨이 확인되었다. 방사능의 경우 10개의 시료에서 MDA미만으로 제거됨이 확인되었다.

Table 1. Activity Analysis Results.

Specimen	Nuclide	Activity[Bq/g] Before decontamination	After decontamination	
3	Co-60	2.926E+02	Result	MDA
			MDA 미만	2.37E-00
4	Co-60	1.500E-02	Result	MDA
			MDA 미만	3.51E-03
	Cs-137	1.096E-01	Result	MDA
			MDA 미만	2.89E-03
5	Co-60	1.500E-02	Result	MDA
			MDA 미만	3.51E-03
	Cs-137	1.096E-01	Result	MDA
			MDA 미만	2.89E-03
9	Co-60	4.962E-02	Result	MDA
			MDA 미만	7.62E-03
	Cs-137	3.320E+00	Result	MDA
			MDA 미만	7.67E-03
10	Co-60	4.962E-02	Result	MDA
			MDA 미만	7.62E-03
	Cs-137	3.320E+00	Result	MDA
			MDA 미만	7.67E-03
13	Co-60	2.388E-01	Result	MDA
			MDA 미만	4.03E-03
	Cs-137	2.916E-02	Result	MDA
			MDA 미만	1.96E-03
15	Co-60	1.107E+01	Result	MDA
			MDA 미만	1.64E-01
	Sb-125	2.070E+01	Result	MDA
			MDA 미만	3.14E-01
	Cs-137	1.680E+01	Result	MDA
			MDA 미만	1.10E-01
16	Co-60	3.382E+00	Result	MDA
			MDA 미만	2.53E-01
	Cs-137	3.191E+00	Result	MDA
			MDA 미만	1.98E-01
18	Co-60	5.293E+01	Result	MDA
			MDA 미만	6.06E-02
	Sb-125	4.631E+00	Result	MDA
			MDA 미만	1.33E-01
	Cs-137	4.913E+00	Result	MDA
			MDA 미만	5.44E-02
23	Cs-137	1.772E+00	Result	MDA
			MDA 미만	7.08E-02

오염형태 측면에서 살펴보았을 경우, 표면오염된 시료는 워터젯 제염장치를 적용하였을 때 재질, 형상에 관계없이 자체처분이 가능한 수준까지 제염됨이 확인되었으며, 외부에 나사산이 형성되어 일반적인 제염방법으로 제염이 용이하지 않은 대상물까지도 특유의 세정력 및 침투력으로 제염이 가능함을 확인되었다.

3. 결론

워터젯 제염장치를 이용한 원자력발전소 실증실험을 통하여 표면오염도 및 방사능농도에서 처분제한치 이하로 제염됨을 확인할 수 있었으며, 방사성 금속폐기물을 자체처분 수준까지 제염할 수 있음을 확인하였다.

4. 감사의 글

본 연구는 민관공동투자기술개발사업으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] 안승건, 최영구, 김대환, 김동훈, 김석기, "초고압(UHP: Ultra High Pressure) water jet 금속 제염장치 개발", 한국방사성폐기물학회 2013 추계학술발표회 논문요약집, 11(2), 441-442, 10.17~18, 2013, 제주.

이미다졸리움 계열의 이온성 액체를 이용한 우라늄 금속의 추출 메카니즘

김익수*, 정동용, 이일희, 문제권
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*niskim@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후 핵연료의 재처리 공정인 PUREX (Plutonium URanium EXtraction) 공정에서는 추출제로서 tri-n-butyl phosphate (TBP)를 사용하며 희석제(diluent)로는 n-dodecane (n-DD) 또는 kerosene과 같은 지방족 탄화수소류의 유기 용매를 사용하고 있다. 이 공정에서는 1.1 M TBP/n-DD를 이용하여 질산농도 3 M의 사용후 핵연료 용해액으로부터 우라늄과 플루토늄을 유기상으로 추출하고 0.1 M의 질산용액에 의해 우라늄과 플루토늄을 역추출한 후, 몇 단계의 과정을 거쳐 우라늄과 플루토늄을 각각의 산화물로 변환한다. PUREX 공정에서 사용하고 있는 n-DD와 같은 휘발성 유기화합물은 대부분 인체에 유해하며, 휘발성과 폭발성이 강하고, 대기 오염물질을 배출하는 등의 위험성을 내포하고 있다. 더욱이 최근 대기로 배출되는 오염물질의 사용에 대한 규제가 점점 강화되면서 휘발성 유기화합물을 대체할 수 있는 환경 친화적인 물질에 대한 관심이 증가하고 있다. 이온성 액체는 비휘발성, 비가연성의 특성을 가지고 있고, 유기 화합물을 잘 용해하는 성질이 있기 때문에 PUREX 공정에서 사용하는 n-DD를 대체할 수 있는 물질로서 주목을 받고 있으며, 이를 이용한 우라늄 추출에 대한 연구 결과도 발표된 바 있다[1-3].

본 연구에서는 PUREX 공정과 같은 용매 추출 공정에서 전통적으로 사용해 온 유기용매를 이온성 액체로 대체하여 질산용액으로부터 우라늄 금속의 추출거동을 조사하고 이온성 액체의 활용가능성을 살펴보았다. 우라늄 금속의 추출제로는 PUREX 공정에서와 같이 TBP를 사용하였고, 유기용매 희석제의 대체물질로 알킬그룹의 탄소사슬 길이가 다른 이미다졸리움 계열의 1-alkyl-3-methylimidazolium bis(trifluoromethylsulfonyl) imide ($[C_nmim][NTf_2]$, n=2, 4, 6, 8)를 이용하여 우라늄의 추출 실험을 수행하였다. 추출 반응의 분석 결과 이온성 액체를 이용한 우라늄 추출 메카니즘이 질산용액의 농도와 이온성 액체의 양이온의 종류에 따라 다르다는 것을 규명하였으며 이같은 추출 메카니즘의 변화를 실험적으로 입증하였다.

2. 본론

2.1 실험

이온성 액체는 알킬그룹의 탄소사슬 길이가 다른 이미다졸리움 계열의 이온성액체 $[C_nmim][NTf_2]$, (n=2, 4, 6, 8)로서, ㈜씨트리의 제품을 구입하여 별도의 정제과정 없이 그대로 사용하였다. 모든 추출 실험은 특별한 경우를 제외하고는 유기상과 수용상의 비율(O/A ratio)이 1 이 되도록 하여 상온(25 ℃)에서 수행하였고, 이온성 액체의 유기상과 질산우라닐이 함유된 질산 수용액을 혼합하여 추출 평형에 이르게 한 후 수용상에 잔존하는 우라늄의 농도를 측정하는 방식으로 수행되었다. 미리 준비해 놓은 1.1 M TBP / $[C_nmim][NTf_2]$과 5 g/L의 우라늄을 포함한 0.01~8 M의 질산 용액을 각각 1 mL씩 취하여 바이얼에 주입한 후 60 분간 진탕하여 우라늄이 질산용액으로부터 이온성 액체로 추출되도록 한다. 추출 평형에 도달한 시료는 30 분간 방치하여 유기상과 수용상으로 분리되도록 하고, 상부에 부유하는 수용상에 존재하는 우라늄 이온의 농도를 UV-Vis 분광법에 의해 분석하였다. 유기상에 존재하는 우라늄 이온의 농도는 측정된 수용상의 우라늄 이온의 농도로부터 물질수지식에 의해 구하였고, 유기상으로 추출된 우라늄의 추출 분배계수(D(U))와 추출률(%Extrn)을 다음 식에 의해 계산하였다.

$$D(U) = [U(VI)]_{org} / [U(VI)]_{aq} \quad (1)$$

$$\%Extrn = 100\ D(U) / (1 + D(U)) \quad (2)$$

여기서 $[U(VI)]_{org}$ 및 $[U(VI)]_{aq}$는 각각 유기상 및 수용상에서의 우라늄 금속의 농도이다.

2.2 결과 및 고찰

유기상의 추출 용매를 $[C_nmim][NTf_2]$로 하여

질산용액으로부터 우라늄 금속을 추출할 때 질산용액의 농도변화에 따른 추출 분배계수는 Fig. 1과

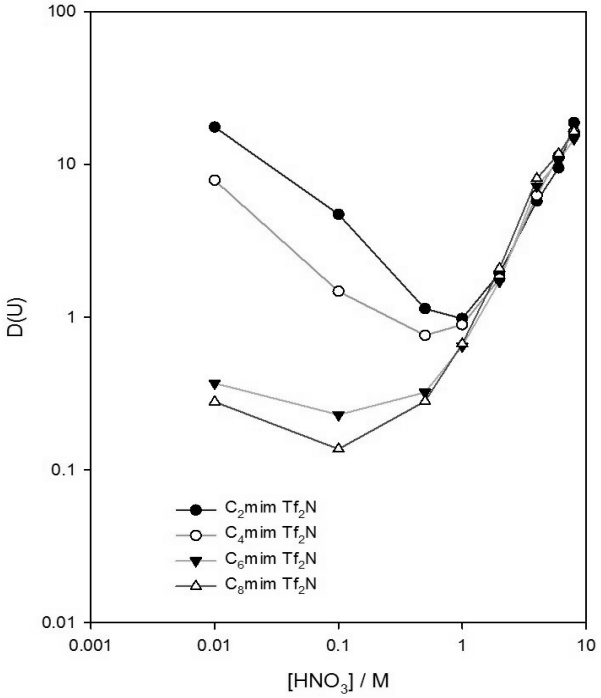


Fig. 1. Dependency of the Uranium Distribution Ratio on HNO_3 Concentration.

같다. $[C_nmim][NTf_2]$를 희석제로 사용하게 되면 분자성 유기용매를 사용했을 때와는 아주 다른 추출거동을 보이는데, HNO_3 농도 약 1 M을 경계로 질산용액의 농도가 낮은 범위에서는 질산용액의 농도증가에 따라 우라늄의 추출률이 감소하고, 질산농도가 높은 범위에서는 질산용액의 농도증가에 따라 우라늄의 추출률이 증가한다. 또한 질산농도가 낮은 범위에서는 $[C_nmim]^+$ 양이온의 알킬그룹 탄소사슬(alkyl chains) 수가 클수록 추출률이 감소하고, 질산농도가 높은 범위에서는 알킬그룹 탄소사슬 수에 관계없이 모든 이온성 액체에 대하여 동일하게 우라늄의 추출률이 증가한다. 질산농도가 낮은 범위에서 질산농도의 증가에 따라 추출률이 감소하는 것은 분자성 유기용매인 n-DD의 경우와는 반대되는 현상으로, $[C_nmim]$ $[NTf_2]$을 사용했을 때의 이같은 우라늄 추출거동은 질산농도의 조건과 $[C_nmim][NTf_2]$의 알킬그룹 탄소사슬 수에 따라 우라늄의 추출 메카니즘이 다르기 때문이다. 즉, 질산농도가 낮은 범위에서는 양이온 또는 음이온 교환(ion-exchange) 메카니즘에 의해 추출반응이 일어나고, 질산농도가 높은 범위에서는 분자성 유기용매와 같이 이온쌍 추출 메카니즘에 의해 추출반응이 일어나기 때문이다. 또한 질산농도가 낮은 범위에서도 알킬그룹의 탄소사슬 수가 클수록 점차로 분자성 유기용매와 같은 이온쌍 추출 메카니즘으로 변해가는 경향을 보이게 된다.

추출제인 TBP의 농도를 변화시키며 추출실험을 수행하여 구한 우라늄의 추출분배계수는 TBP의 농도에 따라 증가하며 그 증가율은 로그 좌표 상에서 거의 직선관계를 보인다. 로그좌표 상에서 추출분배계수 직선의 기울기분석(slope analysis) 결과는 질산농도가 1 M 이상일 때는 기울기의 값이 약 1.8이었고, 질산농도가 1 M 이하일 때는 약 1 로 나타났다. 이와 같이 TBP의 의존도가 다르게 나타나는 것도 수용상의 질산농도에 따라 우라늄의 추출 메카니즘이 다르기 때문이다. 질산농도가 1 M 이상일 경우에는 우라늄 추출분배계수가 질산농도의 증가에 따라 직선적으로 증가하는데, 이는 분자성 유기용매와 같이 이온쌍 추출(ion pair extraction) 메카니즘에 의해 우라늄 금속이 추출되는 것을 나타낸다. 질산용액의 농도가 1 M 이하이면 $[H^+]$의 증가에 따라 추출률이 감소하며, 이는 우라늄의 추출 반응에 질산 음이온은 영향을 미치지 않는다는 것을 나타낸다. 또한 로그 그래프에서 TBP의 증가에 따른 우라늄의 추출률 직선의 기울기가 1 이므로 추출되는 우라늄 화합물은 $UO_2(TBP)_2^+$가 된다. 그리고 우라늄 추출 시 질산용액 내에 이온성 액체의 양이온 $[C_nmim]^+$을 첨가하면 그 농도 증가에 따라 추출률이 감소한다. 이러한 현상들로부터 질산농도 1 M 이하에서는 추출반응이 양이온 교환(cation exchange) 메카니즘에 의해 일어나는 것을 알 수 있는데, 질산농도 1 M 이상과 이하의 각각의 영역에 대한 추출 메카니즘 반응식을 제시하였다.

3. 감사의 글

이 논문은 정부 (미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임 (원자력연구개발사업, No. NRF-2012M2A8A5025658).

4. 참고문헌

[1] A. Rout, et al., J. Radioanal Nucl Chem (2011) 290 : 215–219.

[2] I. Billard, A. Ouadi, Solvent Extraction and Ion Exchange, (2013) 29 : 577–601.

[3] M. L. Dietz, D. C. Stepinski, Talanta (2008) 78 : 598–603.

방독면의 성능평가 시 고려할 요오드 및 세슘 핵종의 거동 및 특성 고찰

신진명*, 이기원, 나상호, 최병선, 문제권
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*jmshin@kaeri.re.kr

1. 서론

2011년 3월 일본에서 발생한 대지진과 쓰나미로 인해 후쿠시마 원자력발전소는 노심의 심각한 손상을 초래하였다. 이에 따라 방사성 물질의 방출에 대비한 격납건물 등에 건전성이 심하게 손상되어 세슘, 요오드, 제논, 크립톤, 스트론튬 등 다양한 방사성 물질이 대기로 방출되었다. 원전 중대사고 및 원전 시설 사고 등으로 인하여 대기로 방출된 방사성 핵종들이 인체의 호흡기로 유입되는 경로를 차단하기 위하여 방사성 작업자는 호흡 방호장비인 방독면을 반드시 착용하여야 한다.

최근, 국방과학 분야 등에서는 방독면 정화통의 신소재 기술개발 및 이의 방사성핵종 제거 성능을 입증할 수 있는 표준 성능평가 방법의 개발이 시급히 요구되고 있다. 하지만 이들 연구를 수행하기 위해서는 방독면의 성능검사 시 필요한 목표 방사성 핵종과 이들의 화학적 및 방사선적 특성을 선행하여 분석하는 것이 필요하다.

따라서 본 연구에서는 방독면의 성능검사에 적용할 제거 대상 방사성 핵종을 선정하기 위하여 원전 중대사고시 발생하는 세슘 및 요오드의 거동 및 특성을 고찰하였다.

2. 본론

2.1 원전 중대사고시 요오드의 거동 및 특성

원자력발전소 핵연료의 연소 중 발생되는 요오드(I)의 초기량은 세슘(Cs)의 약 1/10로 매우 적은 양이다. 하지만 원자로 정지 후 초기 수십 시간 동안의 요오드의 방사능은 짧은 반감기 동위원소(I-132 (2.3 h), I-133 (20.8 h), I-134 (0.88 h), I-135 (6.7 h))로 인하여 세슘핵종의 방사능 보다 약 10배 이상 높다[1]. 또한 중대사고시 대기로 방출된 방사성 핵종 들 중 호흡에 의한 내부피폭의 경우 요오드에 의한 영향이 가장 높다고 보고되고 있다. 대부분 호흡을 통해 인체에 유입되어 갑상선에 모인 요오드는 감마선이나 베타선을 방출하며, 이로 인하여 인체 내의 장기가 피폭되는 것으로 알려져 있다. 따라서 원전 중대사고 시 요오드는 초기 확산 방지에 특별한 관심을 가져야 할 주요한 핵종이다.

NUREG-1465 보고서에 의하면 원자로 중대사고는 진행단계에 따라 총 4단계로서 1단계인 방출단계(Gap release), 2단계인 초기 노내 용융 단계(Early In-Vessel), 3단계인 노외 단계(Ex-Vessel) 및 4단계인 후기 노내 단계(Late In-Vessel)로 구분하였다[2].

이 중 2단계인 초기 노내 용융 단계에서 요오드의 화학적 형태는 에어로졸(CsI) 95%, 증기(I_2 + HI) 5% 이하, 유기물(CH_3I)로 가정하였다[2]. 송용만 등은 초기 용융단계에서 요오드는 CsI 형태로 방출되어 증기 또는 에어로졸 형태로 격납 건물로 이송되고 증기상태의 요오드는 증발과 응축을 통하여 생성 및 제거된다고 보고하였다[3].

3단계인 노외 단계, 중대사고시 핵분열생성물의 거동에서 가장 중요한 격납 건물 내의 기체상 요오드 핵종은 장기적으로 수조에서 생성 및 방출되는 I_2 및 유기요오드인 CH_3I를 대표 핵종으로 고려하였다[1, 4]. TMI-2(Three Mile Island accident) 원전사고 분석 보고서에서는 대기로 방출되어 주요 오염요인이 된 것은 CH_3I 이며 I_2와 HOI의 방출양은 적다고 보고하였다[5]. 또한 Beahm 등은 페인트의 종류가 유기오염의 생성에 영향을 미치며 vinyl 계통의 페인트에서는 CH_3I가 다량 생성된다고 보고하였다[6].

앞서 기술한 원전 중대사고시 요오드의 거동을 분석한 결과 대기 중에서 방독면이 제거해야 할 주요 요오드 핵종으로는 I_2, CH_3I, HOI, HI로 추정된다. 또한 다양한 요오드 동위원소들 중 방독면 성능검사 시 고려해야 할 동위원소로는 I-131 이다. 왜냐하면 I-131 이 높은 비방사능과 8.05 day의 반감기 특성을 지녔기 때문이다. 반면, I-132, I-133, I-134, I-135은 짧은 반감기 특성을 갖고 있고 I-129는 요오드 생성량의 약 75%를 함유하나 낮은 비방사능과 장반감기(1.57 x 107 yr) 특성이 있어 이들 요오드 동위원소들은 방독면

성능평가 시 고려하지 않고 있다.

한편 CH_3I는 I_2 및 HOI에 비하여 분자 결합력이 크기 때문에 I_2 및 HOI 보다 상대적으로 제거하기 어려운 요오드 화학종이다. 실제로 TEDA (Troethylenenediamine) 첨착 활성탄을 사용하여 요오드 핵종별 제거효율을 비교한 결과 CH_3I의 제거효율이 I_2 보다 낮았다. 따라서 CH_3I 를 이용하여 요오드의 제거성능을 보수적으로 평가할 수 있다. 따라서 방독면의 성능 평가 시 유기요오드인 CH_3I^{131}를 대상으로 제거성능을 평가하는 것이 타당할 것으로 판단된다.

2.2 원전 중대사고시 세슘의 거동 및 특성

세슘 세슘은 반응성이 매우 높은 금속이기 때문에 핵연료 내 세슘의 화학적 형태는 핵연료내의 U 뿐 아니라 다양한 금속과 반응하여 CsI, Cs_2TeO_4, CsTe, Cs_2UO_4, $Cs_2U_4O_{12}$, Cs_2MoO_4 등의 다양한 화합물을 형성하는 것으로 알려져 있다.

미국 ORNL(Oak Ridge National Laboratory) 에서는 고온(1700~ 2425℃)조건하 수증기 분위기에서 핵분열생성물의 이동 거동 및 화학적 형태 등에 관한 연구를 수행한 결과, 세슘은 CsI, CsOH 형태로 방출되었고 유도로 외부에서 세슘의 70%는 에어로졸 형태, 33%는 증기형태로 방출되었다. 한편 수소분위기에서는 세슘의 60%는 증기형태, 나머지 30%는 에어로졸 형태로 방출되었다[7].

따라서 앞서 기술한 원전 중대사고시 발생되는 세슘의 형태는 에어로졸 형태의 CsOH, CsI, Cs_2TeO_4, CsTe, Cs_2UO_4, $Cs_2U_4O_{12}$, Cs_2MoO_4 등의 화학종 형태로 존재할 것으로 예상된다. 따라서 방독면의 성능평가 시 에어로졸 형태인 세슘핵종을 제거 대상으로 핵종으로 선정하여 이의 제거성능을 평가해야 할 것으로 판단된다. 현재까지는 정성적 분석으로 방독면 필터로 에어로졸 형태(약 5 μm 크기)인 형태의 세슘을 제거할 수 있을 것으로 예상되나, 방사성 에어로졸 형태의 세슘 시험 결과가 전무한 상태이기 때문에 실제 방사성 세슘 동위원소 또는 모든 종류의 입자상 핵종을 대표할 수 있는 DOP (dioctyl phthalate) 에어로졸을 사용하여 방독면의 성능평가를 수행할 필요가 있다고 판단된다.

3. 결론

원전 중대사고시 발생하는 핵분열 생성물 중 주요핵종인 요오드와 세슘의 거동 및 특성을 분석한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) 방독면이 제거해야 할 요오드의 핵종으로는 I_2, CH_3I, HOI, HI로 추정된다. 방독면의 성능 평가 시 유기요오드인 CH_3I^{131}를 대상으로 제거성능을 평가하는 것이 적합할 것이다.

2) 에어로졸 형태의 CsOH, CsI, Cs_2TeO_4, CsTe, Cs_2UO_4, $Cs_2U_4O_{12}$, Cs_2MoO_4 등의 화학종 형태로 존재할 것으로 예상된다. 방독면의 방사성 에어로졸 입자의 제거성능을 평가하기 위해서는 실제 방사성 세슘 동위원소 또는 모든 종류의 입자상 핵종을 대표할 수 있는 DOP(dioctyl phthalate)에어로졸을 사용하여 실험을 수행할 필요가 있을 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

[1] B. Clément et al., State of the Art Report on Iodine Chemistry, NEA/CSNI/R(2007)1, February (2007).

[2] L. Sofferet al., Accident Source Terms for Light-Water Nuclear Power Plants, NUREG-1465, U. S. Nuclear Regulatory Commission, Washington, D. C. February (1995).

[3] Y. M. Song et al., Time Evolving Simulation of a Realistic In-containment Source Term During Hypothetic Accidents, ISORD-4, July (2007).

[4] Insights into the Control of the Release of Iodine, Caesium, Strontium and other Fission Products in the Containment by Severe Accident Management, NEA/CSNI/R(2000)9, March (2000).

[5] H. Layrock, Technical Safety Analysis Report of Radioactivity from the TMI-2 core to Environment to President Commission on the Accident at TMI (1979).

[6] E. C. Beahm, et al., Organic Iodide Formation During Severe Accidents in Light Water Nuclear Reactors, Nucl Techol., Vol. 78(No. 1) 34-42 (1987).

[7] J. L. Collins, et al., Observed Behavior of Cesium, Iodine, Tellurium in the ORNL Fission Product Release Program, NUREG/CR-3930(ORNL/TM-9316), ORNL (1985).

초임계 CO_2를 이용한 방호복 제염의 타당성 연구

조영수, 김승일, 박종석, 김현기, 허준, 이세반, 강덕원*
㈜휴비스워터, 경기도 시흥시 공단1대로 322번길 16
*world2is@huviswater.com

1. 서론

원자력 발전소에서 발생되는 폐기물의 약 83%가 잡고체 폐기물이며, 그 중 작업복, 장갑 등의 면류가 50% 이상을 차지하고 있다. 작업복이나 장갑 등은 원전 작업 시 미량 방사능으로 오염되어 있기 때문에 자체처분을 하지 못하고 저장해 오고 있는데 저장량이 점점 증가하고 있어 많은 비용을 들여 폐기물을 처분해야 되는 상황이다.

지금까지 방호복 제염을 위한 여러 선행 연구들이 발표되었으나 만족할 만한 제염기술 개발에 접근하지 못하였고, 제염 효율이 우수하여도 2차 폐기물이 다량 발생하는 등 문제점이 발생하였다. 이러한 단점을 보완하는 제염기술로 킬레이트제를 이용하여 오염된 방호복으로부터 금속착물을 제거하는 초임계이산화탄소 추출기술이 있으며 이 초임계 기술은 기체의 침투력과 액체의 용해도를 동시에 갖고 있어, 빠르게, 그리고 대량으로 용질을 추출할 수 있는 우수한 용매로 알려져 있다. 또한, 초임계 공정은 이산화탄소 분위기에서 리간드를 이용해 방사성 핵종을 추출하고 압력을 낮춰 기화시키면 순수한 이산화탄소와 오염물질이 분리되기 때문에 이산화탄소를 재사용할 수 있는 장점을 가지고 있으며 결합된 핵종만 추출되므로 2차 폐기물의 발생을 극소화 할 수 있는 매우 큰 장점도 지니고 있다.

본 논문에서는 원자력발전소에서 사용하는 방호복의 제염효과를 조사하기 위하여 방사능 물질로 미량 오염시킨 모의 방호복 시료를 제조하여 초임계 이산화탄소를 이용한 제염작업을 수행한 후 제염 효율을 측정하였다.

2. 기대효과 및 연구동향

2.1 기대효과

방호복에 부착되어 있는 미량의 방사성 핵종을 추출, 제거할 수 있는 자체처분 기술을 확립하고, 이러한 기술을 이용하여 원자력발전소에 저장중인 방호복 등의 오염면류의 처분을 유도한다면 처분장으로 보내지는 폐기물량을 획기적으로 줄일 수 있어 처분비용 저감화에 크게 기여할 수 있을 것으로 기대된다.

2.2 연구동향

학계 및 국내외 연구소에서는 초임계 이산화탄소를 이용해 오염물질로부터 방사성 핵종을 제거할 수 있는 킬레이트 리간드에 대한 연구가 활발히 진행 중에 있으며 제염 효율을 향상시킬 수 있는 킬레이트제의 개발에 초점을 맞추고 있다.

3. 실험 방법 및 결과

3.1 초임계 조건 및 원리

- 초임계 조건(60℃, 200Bar)
- 초임계 추출 원리: 초임계 용매제로는 CO_2를 사용하며 초임계 추출에 사용된 금속용 킬레이트 리간드는 수용액 내에서 금속이온과 착물(comple-x)을 형성하여 금속이온을 유기용매로 추출할 수 있는 능력을 갖고 있는 물질이다. 비극성 물질인 이산화탄소는 극성 및 이온성 물질에 대해 낮은 용해도를 나타내어 극성 및 이온성의 방사성 핵종 추출 시 한계를 보이는 단점이 있는데 이 한계를 극복하기 위해 금속착물을 형성하는 금속결합 리간드 영역과 이산화탄소에 녹을 수 있는 이산화탄소 친화성 영역을 모두 가진 킬레이트 리간드를 사용하게 된다. 반응용기 안에서 형성된 착물은 이산화탄소에 용해되고 이산화탄소에 용해된 착물은 분리용기로 이동하면서 낮아진 용해도로 인해 착물과 이산화탄소는 분리된다.

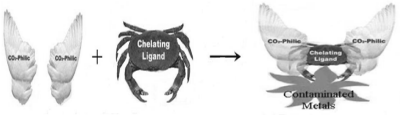


Fig. 1. ^{60}Co Bonding Mecharnism with Chelating Ligand.

- 방호복에는 대부분 부식생성물인 ^{60}Co가 주종을 이루고 있어 ^{60}Co 방사능의 측정을 통해 제염 효율을 평가하였다.

3.2 실험 장치

초임계 CO_2 추출장치를 Fig. 2 에 나타내었다. 방호복의 제염 실험을 위하여 두 종류의 초임계 장치를 사용하였는데, 방사선 관리구역에서 실제 방사성 핵종을 사용하여 초임계 추출을 진행한

Lab규모의 실험장치가 있으며, Pilot규모로 제작되어 실제 방호복 등의 부피가 큰 면류를 직접 처리할 수 있는 장비가 있다. Semi-Pilot 장치는 규모가 커 관리구역 밖에 놓여있기 때문에 비방사성 물질을 이용하여 실험을 수행하였다. 두 실험장치는 규모의 차이가 있을 뿐, 두 장치 모두 CO_2 저장용기, CO_2 펌프, 킬레이트제를 넣는 추출제 용해용기, 시료를 넣는 추출용기, 리간드가 빠져나오는 분리용기와 온도유지 장치로 구성되어 있다.



Fig. 2. Supercritical Apparatus(Lab/Semi-Pilot scale).

3.3 시료

초임계 용매는 99.9%의 고순도 CO_2를 사용하였으며 Co 추출용 킬레이트제로는 Cyanex-272와 DEA를 사용하였다. 시료는 방사성 시료와 비방사성 시료의 두 종류로 제작하였으며 방사성 시료의 경우, 실제발전소에서 사용되는 방호복의 소재에 방사성 코발트 수용액에 24 시간 담지하여 12 시간 자연 건조시켜 제조하였다. 비방사성 시료의 경우, 비방사성 코발트를 물에 녹인 뒤 마찬가지로 24시간 담지 시킨 후 꺼내어 12 시간 자연 건조하여 실험을 진행하였다. 리간드 외 첨가물로는 2%의 질산용액을 사용하였다.

3.4 실험 방법

① Lab 장비 : 건조된 시료는 5×5 cm의 크기로 절단하여 첨가제와 함께 추출용기에 투입하였고 킬레이트제는 추출제 용해용기에 주입하였다. 추출용기와 추출제 혼합용기의 온도가 60℃로 열평형이 되었을 때 액체이산화탄소를 흘려보내어 200 Bar를 유지하면서 분당 5~6 ml 유량으로 추출을 진행하였고 시료의 추출 전·후의 방사선량 측정을 위해 자체 보유중인 HPGe-Detector를 사용하였다.

② Semi-Pilot 장비 : 비방사성 Co로 담지된 방호복한 벌을 추출용기에 투입 후 킬레이트제를 추출제 혼합용기에 투입하였다. Lab. 장비와 마찬가지로 60℃로 열평형이 되었을 때 액체이산화탄소를 흘려보내어 200Bar를 유지하였고 분당 1~1.2 L의 유량으로 추출을 진행하였다. 시료의 추출 전·후의 비방사성 Co농도를 측정하기 위해 ICP(iCAP-6000)를 사용하였다. 시료 제작 및 계측과 관련된 그림을 Fig. 3 에 나타내었다.

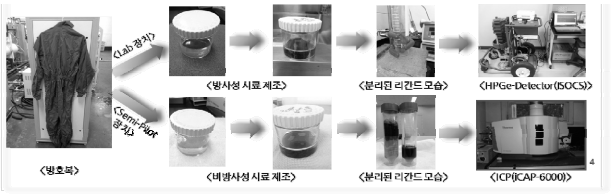


Fig. 3. Sample Preparation and Analysis of Cloths.

3.5 결과

방사성과 비방사성 실험에 대한 결과를 아래 Table 1,2에 나타내었다.

Table 1. Results of Lab. test

실험조건	^{60}Co(Bq/g)		제염 효율
	실험 전	실험 후	
초임계 + 리간드	4.30	2.32	46%
초임계 + 리간드 + 질산	5.82	1.15	80%

Table 2. Results of Semi-Pilot test

실험조건	Co(mg/L)		제거 효율
	실험 전	실험 후	
초임계 + 리간드	22.53	17.14	23%

Table 1에서 보듯이 리간드를 사용하여 초임계 추출을 진행한 경우, 46%의 제염효율을 나타내었지만 추출용기에 질산을 첨가하여 실험한 경우 제염 효율이 80%까지 증가하였음을 볼 수 있다. Table 2에서는 질산을 넣지 않고 리간드만 사용하여 제염 공정을 진행하였고 23%의 제염효율을 나타내었다.

4. 결론

방호복의 초임계 실험결과, 기초 실험이지만 제염가능성이 있는 것으로 확인되었고, 개발 성공 시 원전 방호복 및 면류의 자체처분에 크게 기여할 것으로 기대되며 처분비용의 절감과 한수원㈜이 추진하고 있는 감용화 정책에 적극 부합 할 수 있을 것으로 기대된다.

5. 참고문헌

[1] 강덕원, 조영수, 김승일, 김현기, 이세반, 허준, 안희진, 성기홍, "초임계 CO_2를 이용한 폐수지의 제염 기술", 대한방사선방어학회 2014 추계학술발표회 논문요약집, 264-265, 11.19~21, 2014, 제주.

무 착화성 화학제염제에 의한 Type 304 SS 모사 산화막 용해

원휘준*, 박상윤, 김선병, 최왕규, 문제권
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*nhjwon@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력 발전소 해체에 있어서 일차 냉각 계통을 제염하는 절차가 필수적이다. 일차냉각 계통을 제염함에 의해 발전소 해체 작업자의 피폭을 크게 줄일 수 있으며 이를 통해 작업 효율을 크게 높일 수 있다. 또한 원자력발전소의 정기 유지보수기간 중에도 계통에 대한 화학 제염 작업이 수행된다. 계통 제염에 적용되는 주요 상용 제염제는 캐나다의 CAN-DEREM 및 독일의 CORD 제염 공정이 있다. 그리고 영국의 LOMI 제염 공정도 일부 부품 및 sub- system에 대해 적용되고 있다. 이들 제염기술은 모두 제염제 조합 중에 유기산 착화제를 포함하고 있다. 이 유기산 착화제는 처분 안전성을 크게 저하시키며 CORD 공정의 oxalic acid는 계통 재질에 IGA를 유발시킨다고 알려져 있다. 냉각계통 오염의 주요 원인은 가동 중 생성되는 스피넬구조의 오염 산화막에 존재하는 Co-60에 기인한다. 그러므로 오염 산화막을 용해시킴에 의해 방사선원인 Co-60 도 함께 제거된다.

원자력발전소 냉각 계통의 주 재질인 Type 304 SS 모사 오염 산화막을 대상으로 무 착화성 화학제염제의 환원 용해실험을 수행하였다. 모사 산화막에 존재하는 크롬 성분의 용해를 위해 NP 산화공정을 미리 적용시켰으며 산화 및 환원 공정을 반복 적용시켰을 때 산화막 용해 효과를 평가하였다.

2. 본론

2.1 실험

산화막에 존재하는 금속성분의 상대 비 (atomic molar ratio)를 EDS(Energy Dispersive Spectroscopy)로 측정한 결과 Fe : Ni : Cr = 10.7 : 1 : 8.1 이었다. 환원단계에서 95℃조건에서 $N_2H_4/HNO_3/Cu^+$계 제염제의 hydrazine 농도 0.04 및 0.07 M에서 Type 304 stainless steel 모사 산화막에 대한 용해 실험을 진행하였다. 또한 산화단계는 95℃에서 [KMnO4] = 1g/L, [HNO_3] = 0.34g/L의 조건에서 수행하였다.

2.2 실험 조건

모든 실험은 Water bath 내에서 수행하였으며 1시간 간격으로 시료를 채취하였다. 산화막에 존재하는 철, 니켈 및 크롬 성분의 농도를 Atomic Absorption Spectrometer (AA)를 사용하여 분석하였다. 시험 전후 시편 표면을 전자주사현미경으로 관찰하였다.

2.3 실험 결과

2.3.1 용해성능 평가

산화막으로부터 용해되어 나오는 Fe, Cr, 및 Ni 금속 성분의 양을 각 단계별로 시간 경과에 따라 측정하여 Fig. 1에 도시하였다. Cr 성분은 산화단계에서 주로 용해되었고, Fe 성분은 환원단계에서 용해되었다. 그러나 Ni 성분은 거의 용해가 되지 않은 것을 확인하였다. 전체 금속산화막 용해를 비교해 보면 Cr > Fe >> Ni 의 경향을 보였으며, 2차 산화-환원 이후의 3차 산화-환원에서도 여전히 상당량의 금속 성분이 용해되고 있음을 확인하였다.

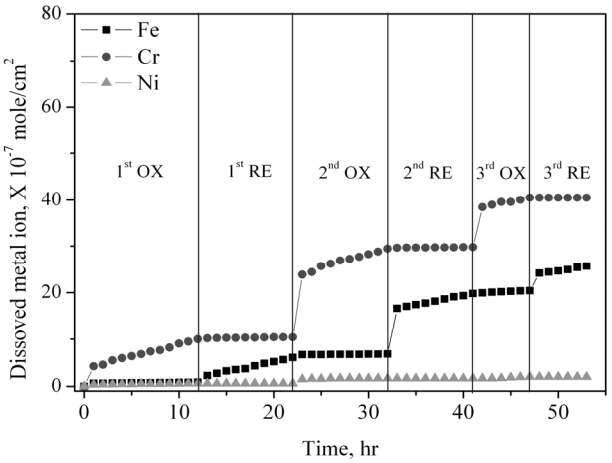


Fig. 1. Dissolved metal ion from Type 304 SS oxide layer, oxidation step([$KMnO_4$] = 1g/L, [HNO_3] = 0.34g/L, T = 95℃), reduction step ([N_2H_4] = 0.04 M, [Cu^+]= 5 × 10^{-4} M, pH = 3, T= 95℃).

환원단계에서 Fe 성분의 용해율을 증가시키기 위하여 specimen 2에서는 hydrazine 농도를 0.04 M에서 0.07 M 로 증가시켜 동일한 조건에서 다단계 제염실험을 실시하였고, 그 결과를 Fig. 2에

도시하였다. Hydrazine 농도 증가를 통해 2차 산화-환원의 적용만으로도 Fig. 1 실험결과 이상의 금속성분이 용해된 것을 확인하였고, 환원단계에서의 Fe 성분의 용해속도가 크게 증가한 것을 확인할 수 있다. 전체적으로 Fe 성분의 용해율은 약 2.6배 증가하였고, 전체 부식산화물의 용해율 또한 약 1.6배 증가하였다.

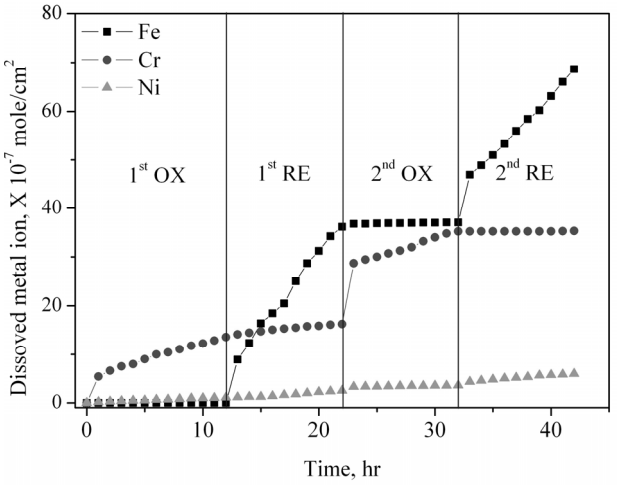
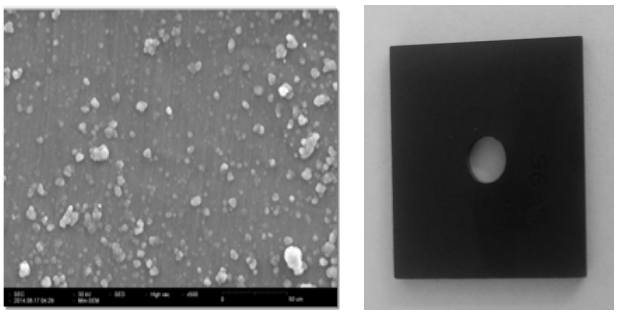


Fig. 2. Dissolved metal ion from Type 304 SS oxide layer, oxidation step ([$KMnO_4$]= 1g/L,[HNO_3] = 0.34g/L, T=95℃), reduction step (N_2H_4] = 0.07 M, [Cu^+] = 5 × 10^{-4} M, pH = 3, T = 95℃).

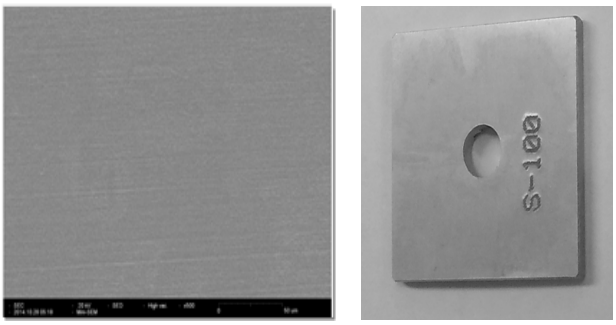
2.3.3 시편 표면 관찰

Fig. 2 용해실험에 사용된 시편 표면의 제염전후 SEM 사진을 Fig. 3 및 Fig. 4에 나타내었다. 제염 전 시편의 표면에 형성되어 있던 금속산화물들은 제염 후 모두 용해 된 것을 확인 할 수 있었다.



(a) (b)

Fig. 3. (a) SEM image of Type 304 SS surface (X 500) before dissolution test and (b) photograph of Type 304 SS specimen.



(a) (b)

Fig. 4. (a) SEM image of Type 304 SS surface (X 500) after dissolution test and (b) photograph of Type 304 SS specimen.

3. 결론

Type 304 SS 표면에 형성된 모사 산화막은 HYBRID (Hydrazine Base Reductive metal Ion Decontamination. $N_2H_4/HNO_3/Cu^+$) 환원 공정과 NP (Nitric acid Permanganate) 산화공정을 반복 적용시킴에 의해 효과적으로 용해시킬 수 있었다. 이를 통해, 원전 일차계통의 Type 304 SS 표면에 형성된 실제 방사성 산화막도 효과적으로 용해시킬 수 있음을 파악할 수 있었다. 또한 전자주사현미경에 의한 표면 관찰로부터 본 제염제는 재료 건전성에 어떠한 영향도 미치지 않음을 알 수 있다. 현재, 제염 후 발생되는 이차 폐기물을 획기적으로 줄이기 위한 히드라진과 질산이온의 동시 파괴 공정을 개발 중에 있다. 차후 원자력 발전소 일차계통의 규모를 축소한 벤치규모 제염공정 연구를 통해 본 제염공정의 타당성을 증명할 계획이다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력연구개발 중장기 연구사업의 일환 (계약번호: NRF-2012 M2A8A5025655) 으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] J. H. Carter, "Corrosion and Passivation Studies on PWR Materials to reduce Corrosion Product Activity", Nuclear Energy, 24(1), 45(1985).

우라늄 오염 자갈 제염기술 개발

김계남*, 김승수, 한규성, 문제권
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*kimsum@kaeri.re.kr

1. 서론

유류 오염 토양 중에 포함된 오염된 자갈은 오래 전부터 이들의 정화에 막대한 노력을 기울여 다양한 기술들이 개발되어 일부는 실용화되고 있는 반면, 방사능 오염 자갈은 원자력시설에 한하여 발생되므로 그 특성상 많은 연구가 진행되지 않아 제염에 대한 기초자료가 부족하다. 따라서 이들을 제염하는 기술을 개발하기 위해서는 앞으로 많은 시간과 비용이 소요될 것이다. 그러나 이러한 방사능 오염 자갈 폐기물 제염방법의 개발은 향후 원자력 시설 해체 시 발생할 막대한 양의 자갈이 발생할 수 있으므로 환경적인 측면에서나 경제적인 측면에서 매우 중요하다.

2. 본론

2.1 세척제염 실험

방사능 오염 자갈의 오염 정도를 확인하기 위하여 임의로 선택한 방사능 오염 자갈의 방사능 농도를 측정하였다. 방사능 오염 자갈의 세척제염 실험은 자체 제작한 세척장치로 세척하였으며, 부피가 큰 자갈이 많기 때문에 세척장치에 머무는 시간을 15 분 이상 지체시켜 충분한 세척이 이뤄질 수 있도록 세척하였다.

자갈 제염 시 효과적인 제염제를 선택하기 위하여 물, 계면활성제, 질산으로 각각 자갈을 세척하였다. 특히, 산 농도에 따른 제염효율을 알아보기 위해 질산을 이용한 pH 0 ~ 2.0범위로 변화시켜 세척하였다.

제염효율이 낮은 자갈에 대해서는 제염효율을 높이기 위해 방사능 오염 자갈을 파쇄장치로 파쇄하여 2 mm 이상과 이하로 나누어 세척하였다. 파쇄한 자갈의 세척제염은 파쇄자갈의 용량이 작아 자체 제작한 세척장치를 이용하였다. 장치의 구조는 크게 용기 역할을 하는 본체와 파쇄자갈을 교반시키는 임펠러로 나뉘며, 세척원리는 장치 본체에 시료 및 제염제를 넣은 후 RPM 조절이 가능한 임펠러를 회전시켜 일정시간 동안 세척제염을 수행하였다. 이 장치를 이용하여 먼저 세척용기에 시료와 제염제를 1 g : 2 mL비율로 주입하고, 120 rpm으로 4 시간 동안 교반시켜 세척제염을 수행하였다. 세척한 시료는 105℃에서 1 시간 건조시킨 후 방사능 농도를 측정하였다. 한편, 분쇄한 방사능 오염 자갈의 세척제염은 파쇄 후 분쇄장치를 이용하여 분쇄한 다음, 세척장치를 이용하여 위와 동일한 방법으로 세척하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 방사능 오염 자갈의 오염도 측정 및 세척제염

임의로 채취한 방사능 오염 자갈은 종류와 관계없이 무게로 나누어 자갈을 구분하고 방사능을 측정하였다. 그 결과 자갈에 오염된 방사능은 우라늄으로 확인되었으며, 토양세척법을 적용하여 자체 제작한 자갈 세척장치로 제염을 실시하였다.

세척제염하기 전 우라늄 오염 자갈의 농도는 1.2 ~ 5.8 Bq/g이고, 평균 농도는 2.7 Bq/g이었다. 우라늄 농도는 자갈의 무게가 가벼울수록 높은 경향을 보였다. 2회 세척제염 후 우라늄 농도는 0.6 ~ 3.5 Bq/g이고, 평균농도는 1.7 Bq/g으로, 1회 세척 결과와 큰 차이가 없었다. 따라서 1회 세척만으로 자갈표면에서 제염 가능한 우라늄이 제거되는 것을 알 수 있었다.

세척 후 일부 시료는 자체처분허용농도를 충족한 반면, 대부분의 시료는 그렇지 못하였다. 그 이유는 오랫동안 방사능에 노출된 자갈이 산화되는 과정에서 우라늄도 함께 자갈 내부로 침투함으로써 자갈 내부까지 오염이 진행된 것으로 판단된다. 결국 자갈 표면에 오염된 우라늄은 세척만으로 제염이 가능하나, 자갈 내부까지는 세척이 이뤄지지 못하기 때문에 자갈표면을 세척하는 것만으로 원하는 제염효율을 얻을 수 없었다.

3.2 최적 제염제 선정

증류수, 계면활성제, 질산 중 우라늄으로 오염된 자갈의 제염으로부터 최적 제염제를 선정하기 위한 실험을 통하여 얻었다. 이 표에서 우라늄 오염

자갈의 초기농도는 2.1~22.4 Bq/g이었으며, 좀 더 정확한 비교를 위해 각 제염제를 적용한 실험 시 최대한 유사한 농도의 우라늄 오염 자갈을 선택하여 세척제염하였다. 그 결과, 증류수는 제염효율이 가장 낮게 나타났으며, 계면활성제는 증류수보다 제염이 잘 되었는데, 특히, 우라늄 농도가 19.4 Bq/g인 고농도 우라늄 오염 자갈에서 제염효율이 높게 나타났다. 한편, pH 1.0으로 조절한 질산은 대부분의 우라늄 오염 자갈에서 다른 제염제보다 우수한 제염효율을 보였으며, 고농도 우라늄 오염 자갈의 경우 약 50% 정도 제염효율을 보였다. 이처럼 우라늄으로부터 오염된 자갈을 제염하기 위해서는 제염제로 질산을 사용하는 것이 증류수와 계면활성제를 사용하는 것 보다 좀 더 유리한 것으로 확인되었다.

최적제염제로 질산을 선정한 후 제염제의 산 농도에 따른 제염효율을 확인하기 위하여 제염액의 pH를 0, 0.3, 0.7, 1.0, 2.0로 달리하여 우라늄 오염 자갈의 세척제염을 수행한 결과, 예상과 달리 pH 1.0에서 가장 높은 제염효율을 나타내었다 (Table 1).

Table 1. Removal efficiency of uranium as a function of the concentration of nitric acid

pH	Initial conc. (Bq/g)	After washing (Bq/g)	Removal efficiency (%)
0	3.8	3.3	11.7
0.3	3.7	3.5	6.5
0.7	3.9	3.2	19.4
1.0	3.9	2.7	29.4
2.0	3.8	3.3	13.1

3.3 자갈파쇄 후 제염

우라늄으로 오염 된 자갈의 제염효율을 높이기 위해서는 자갈 내부까지 오염된 우라늄을 제염할 필요가 있다. 따라서 물리적으로 파쇄한 후 세척제염을 실시하였다. 우라늄 오염 자갈을 파쇄장치로 파쇄하고, 공극 2 mm체로 쳐서, 분리하여 세척제염을 수행하였다(Fig 1).

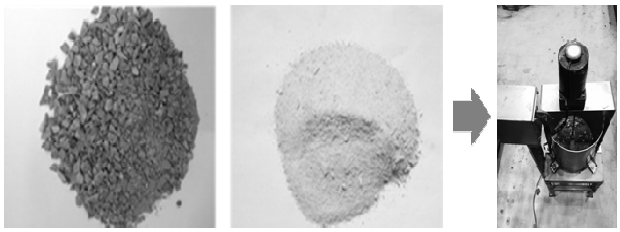


Fig. 1. Assortment of crushed gravel (larger than 2 mm: left, smaller than 2 mm: middle).

파쇄자갈의 초기 우라늄 농도는 2 mm이하의 자갈이 12.9 Bq/g으로 2 mm이상의 자갈 (7.6 Bq/g)보다 약 2배 높았다. 세척제염 횟수를 자체처분허용농도 이하로 낮추기 위해 우라늄 농도가 1.0 Bq/g보다 낮게 될 때까지 세척제염을 반복하였다. 그 결과, 2 mm이상의 파쇄자갈은 비교적 높은 제염효율을 보였으나, 1 회 세척제염 이후 우라늄이 더 이상 제거되지 않았으며, 자체처분허용농도까지 제염되지 않았다. 반면, 2 mm이하의 파쇄자갈은 세척제염 횟수를 3 회 수행하였을 때 우라늄 농도가 0.7 Bq/g으로 나타났다. 제염효율은 약 94%였으며, 자체처분허용농도 이하를 만족하였다. 이와 같이 우라늄 오염 자갈을 파쇄하여 세척제염한 결과, 파쇄자갈의 크기가 크면 세척제염하는데 한계가 있는 반면, 파쇄자갈의 크기가 작을수록 표면적이 넓어짐에 따라 세척이 훨씬 더 용이한 것으로 나타났다. 또한, 세척횟수는 파쇄자갈의 크기가 클 때는 효과가 없지만, 파쇄자갈의 크기를 작게 했을 때 세척횟수의 증가는 제염효율을 점점 증가시키는 것으로 확인되었다.

4. 참고문헌

[1] Y. D. Choi, D. S. Hwang, K. I. Lee, U. S. Chung, S. T. Hwang, K. J. Jung, "Decommissioning of Uranium Conversion Plant", Fall Meeting Korea Nuclear Society (2001).

[2] S. I. Choi, "Pollution of Groundwater Through Remediation of Contaminated Soil". Korea Society of Soil and Groundwater Environment, 8, pp. 47-60 (1997).

Waste Volume Evaluation Considering Disposal Containers for Reactor Vessel Dismantling

Yujeong Choi*, Seong-Cheol Lee, and Chang-Lak Kim

KEPCO International Nuclear Graduate School, 658-91 Heamaji-ro, Seosaeng-myeon, Ulju-gun, Ulsan 689-882, Korea

*supern3@naver.com

1. Introduction

Among a number of things to be considered for successful decommissioning of nuclear power plants, radioactive waste management from dismantling is one of the main issues factor. When decommissioning nuclear power plant, most of radioactive waste is generated from primary side including a reactor vessel. Radioactive waste amounts generated from decommissioning is significantly affected by several factors, such as dismantling method, waste classification, reactor lifetime, disposal method and etc.

In this paper, radioactive waste amount through dismantling Kori unit 1 reactor vessel is evaluated with the consideration of disposal containers.

2. Disposal containers for a dismantled reactor vessel

2.1 Disposal containers in South Korea

Radioactive waste disposal containers in South Korea are summarized in **Table 1**. In general, most of disposal containers are designated for radioactive waste generated through operation of nuclear power plants. However, radioactive waste generated from decommissioning of nuclear facilities is generally much heavier and bigger than radioactive waste through operation. Therefore, it might be not suitable to use the disposal containers listed in the table, for disposal of radioactive waste generated from decommissioning of large components including reactor vessels.

2.2 Disposal Containers for decommissioning of reactor vessels

In order to decommission the reactor vessel in Kori unit 1 nuclear power plant, the disposal containers used for decommissioning of large components in Spain has been investigated in this paper. In Spain, three options were considered for disposal of large components through discussion as presented in Fig. 1~3; then, CE-2b was chosen for LILW generated from the disposal of large components in José-Cabrera NPP (CNJC). Details of containers are described as below.

Table 1. Disposal containers in South Korea

Drum	Size (mm)	Drum	Size (mm)
200L drum	Ø615 *h884	Circular drum (2000L)	Ø1400 *h1300
Repacking drum (320L)	Ø713 *h955	Square drum (2500L, 4-pack)	L1460*W1460*H1180
Circular drum (1200L)	Ø1100 *h1300	HIC (1200L)	EL-50 : Ø1190 *h1290
			EA-50 : Ø1181 *h1289

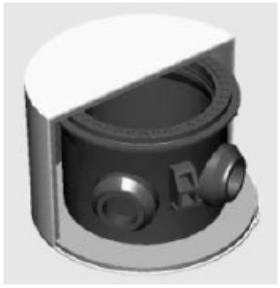


Fig. 1. Option A: 4.52 m in diameter by 2.28 m in height.

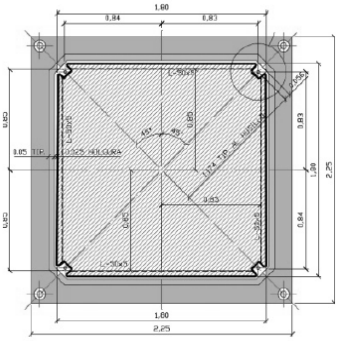


Fig. 2. Option B: CE-2a size (external dimensions: 2.25 m square by 2.2 m high).

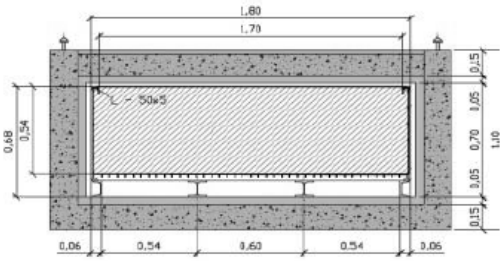


Fig. 3. Option C: CE-2b size (external dimensions: 2.25 m square by 1.1 m high).

3. Evaluation of decommissioning waste for the reactor vessel in Kori unit 1

In order to evaluate the amount of radioactive waste generated from decommissioning of Kori unit 1 reactor vessel, three options illustrated through Fig. 1~2 were considered in this paper. Details on the evaluation are presented in the following section.

3.1 Fundamental assumptions

- Dismantled reactor pressure vessel is classified as low level radioactive waste.
- Body part of reactor vessel is considered as cylinder.
- Upper and bottom heads are assumed as hemi sphere.
- Disposal container is filled with cement mortar after placing dismantled reactor vessel pieces.

3.2 Radioactive waste amount considering disposal container

On the evaluation of radioactive waste amount, 3 cases were considered with dimensions of dismantled reactor vessel pieces and disposal containers, and the results are summarized in Table 2. As presented in the table, the weight per drum of circular container is more than 100 tonf; hard to lift by a crane in the radioactive waste repository. In case of square container with the reactor vessel upper and bottom heads, if the head part is cut smaller, then total disposal volume decreases with increasing the weight per drum. When a piece of head part is quarter of the case B), the weight per drum increases about 10% while the total disposal volume decreases about 38%. Since the reduction on the total disposal volume of the packaged waste is larger compared to the weight increase per drum, it can be concluded that cutting the head and bottom heads of Kori unit 1 reactor vessel into smaller pieces under criteria of weight limit is more desirable.

Table 2. Amount of radioactive waste from the reactor vessel in Kori unit 1

		No. of cut	Pieces (packaged/drum)	No. of Drum	Weight per drum	Total volume
Circular container (Option A)	Upper and bottom	2	1	2	126	271
	Body	3	1	4	133	
Square container (Option B)	Upper and bottom	12	1	12	29	178
	Body	32	8	4	45	
Square container (Option C)	Upper and bottom	48	8	6	32	111
	Body	128	36	4	45	

4. Conclusions

In this paper, radioactive waste amount generated from decommissioning Kori unit 1 reactor vessel has been evaluated with the consideration of disposal containers and cutting methods. It has been found that cutting the reactor vessel into small pieces, especially for upper and bottom heads of the reactor vessel, is more effective to reduce total disposal volume generated from decommissioning.

5. Acknowledgement

This research was supported by the Nuclear Safety Research Program funded by the Nuclear Safety and Security Commission (1305009).

6. REFERENCES

[1] Large Components of the NEA Working Party on Decommissioning and Dismantling, The Management of Large Components from Decommissioning to Storage and Disposal, Nuclear Energy Agency, 2012.

[2] Choi Gyu-sup, Hwang Tea-won, Kim Hun, Lee Chan-gu, A Conceptual Design on Near-Surface Disposal Facility of Low-&Intermediate- Level radioactive waste, Korea Nuclear Society, 2000.

방사성 폐파이프의 절단·평판화 장치 개발 및 적용

신기백*, 이은표, 장원혁, 홍대석
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*kbshin@kaeri.re.kr

1. 서론

2000년부터 본격적으로 방사성폐기물의 자체처분이 시행되어 오고 있으며, 최근에는 자체처분 대상 폐기물 종류 및 수량이 증가하고 있는 추세이다.[1] 주요 자체처분대상 폐기물 중 철재류가 차지하는 비중이 많으며 철재류 중 파이프도 포함된다. 방사능에 오염된 파이프는 내부 제염이 어렵고 설령 제염을 수행한다 할지라도 방사능 제염 여부를 검사한다는 것은 매우 어려우며 특히 직경이 가는 파이프는 실제적인 제염 및 오염 검사가 불가능하다. 이러한 이유로 오염된 폐파이프의 자체처분에 어려움이 있었으나 방사성 폐파이프 절단·평판화 장치 개발을 통하여 오염된 폐파이프의 제염효율성이 향상되고 규제해제기관에서 요구하는 대표시료 채취가 가능해짐으로 보다 수월한 폐파이프의 자체처분이 기대된다. 그리고 이는 원자력시설에서 발생된 방사성 폐파이프를 본 장치에 실제 적용함으로서 확인할 수 있었다. 본 장치의 개발로 폐파이프 방사성폐기물을 자체처분 함으로써 방사성폐기물의 보관에 필요한 저장 공간 확보 및 자원을 재활용할 수 있게 함으로써 경제적 이득을 얻을 수 있다.

2. 본론

2.1 장치 설계 및 제작

방사성 폐파이프 절단·평판화 장치는 길이방향으로 커터에 의한 절삭가공이 완료되면, 파이프(★)를 180° 회전시켜 고정한 후 파이프의 반대부분을 다시 절삭가공하여 이등분한다. 이등분된 파이프는 평판화 장치에 의해 평평하게 펴지게 된다. Fig. 1은 파이프 절단장치의 정면도(a), 평면도(b) 및 측면도(c)이다. Fig. 2는 방사능에 오염된 이등분한 파이프(★)를 평평하게 펴기 위한 유압프레스로써 유압프레스 본체 하단에는 유압 램이 놓이며 유압 램의 상부에는 경사진 판과 평평한 판을 가진 구조로써 유압 펌프의 레버 작동에 의하여 유압 램이 작동한다.

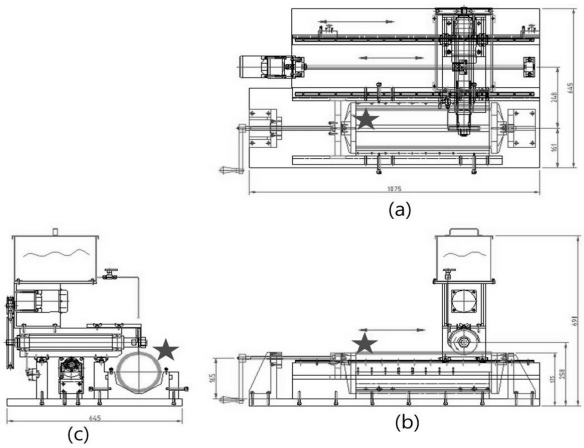


Fig. 1. Equipment plan.

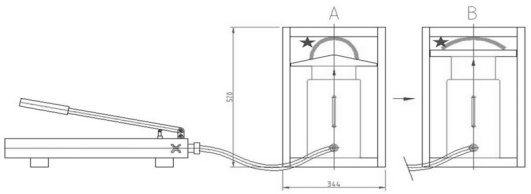


Fig. 2. Plan of flattening equipment.

2.2 장치 구성

방사성 폐파이프 절단장치의 구성은 Fig. 3과 같이 크게 5개의 장치로 구성되어있다. 1) 절삭장치 2) 고정바이스 장치의 고정 프레임 3) 고정 바이스의 이동용 프레임 4) 폐파이프 처짐 방지장치 5) 폐파이프 절단장치 제어판넬 및 고정 바이스 장치의 고정 풋 스위치

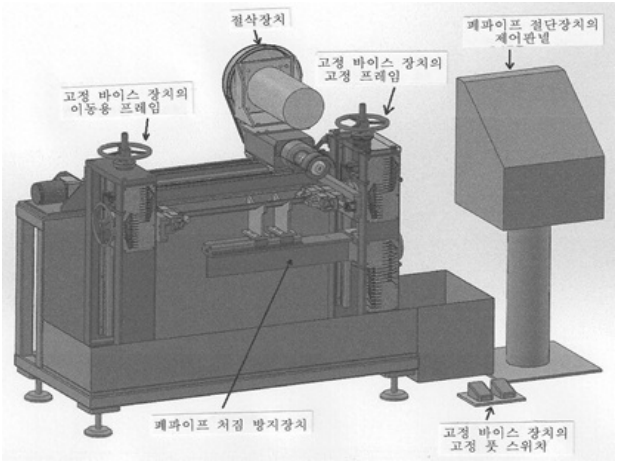


Fig. 3. A cutting and flattening machine.

2.3 장치 적용

방사능에 오염된 파이프를 1차로 내·외부 제염을 수행하여 방사능 준위를 낮춘 후 파이프를 적당한 길이로 절단한 다음 파이프를 길이 방향으로 절단 2등분하여 반원 단면 형태의 파이프를 유압 프레스를 이용하여 평평한 판 형태로 편 후 물리적, 기계적 및 화학적인 방법으로 방사능 제염 및 오염 검사를 수행한다. Fig. 4~8은 방사성폐기물처리시설의 방사선관리구역 내 장비 유지보수 과정에서 발생한 폐파이프를 본 장치에 실제 적용한 과정이다.

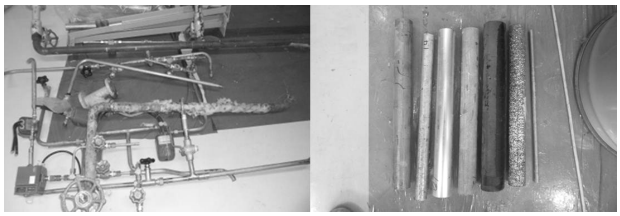


Fig. 4. Generated spent pipe.

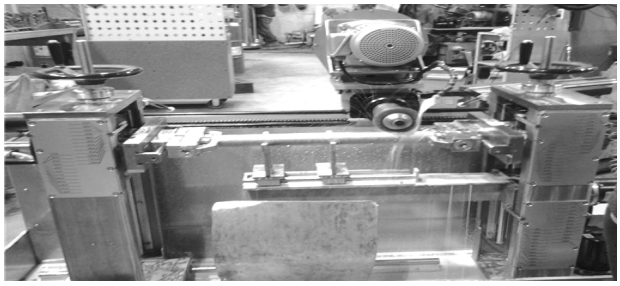


Fig. 5. Cutting process.

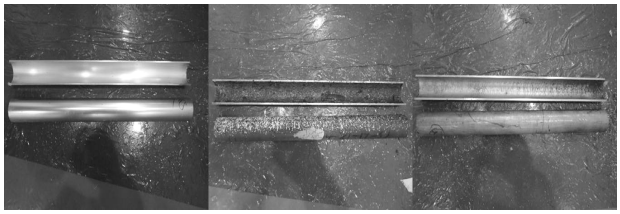


Fig. 6. Cut aluminum(left), steel(medium), sts(right) spent pipe.



Fig. 7. Flattening spent pipe.

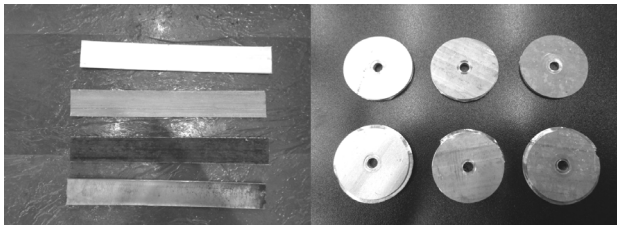


Fig. 8. Flat spent pipes and samples.

방사성폐기물처리시설의 방사선관리구역 내 장비 유지보수 과정에서 발생한 폐파이프의 재질은 Steel, STS(STainless Steel), Aluminum이다. 각 폐파이프의 재질이 달라 절삭가공 중 커터의 회전속도를 제어판넬에서 조절하며 이등분하였다. 이등분된 폐파이프는 평판화 장치를 통해 평평하게 하였다. 평판화된 폐파이프는 제염이 수월하였으며 규제해제기관에서 제시하는 기준의 대표시료를 채취할 수 있었다.

2.4 기대효과

직경이 다양한 방사능에 오염된 파이프를 하나의 장치에서 길이방향으로 이등분 할 수 있으며 이등분한 반원 단면의 형태를 평평한 판의 형태로 펼쳐줌으로써 방사능 제염의 효율성을 높이고 자체처분에서 요구되는 대표시료 채취 및 오염검사가 용이해지게 된다. 본 장치의 개발로 폐파이프의 방사능오염을 극저준위로 낮추어 자체처분이 가능하게 되고 자원을 재활용할 수 있다. 또한 방사성폐기물의 보관에 필요한 저장 공간이 확보된다.

3. 결론

방사능에 오염된 파이프는 구조적 문제로 내부 제염 및 오염도 확인이 어렵다. 이에 방사성 폐파이프 절단·평판화 장치를 설계 및 개발함으로써 하나의 장치로 파이프 제염을 용이하게 하고 규제해제기관에서 제시하는 기준의 대표시료를 채취할 수 있게 되어 자체처분을 할 수 있게 되었다. 본 장치를 통해 원자력연구원, 원자력발전소등의 시설운영과정 및 해체과정에서 발생하는 폐기물 파이프를 제염하여 자체처분 할 수 있으므로 저장공간 확보 및 자원 재활용 등의 상당한 경제적 효과를 얻을 수 있게 되었다.

4. 참고문헌

[1] 처분제한치 미만의 방사성폐기물 자체처분 현황, 스마일 방사선 동위원소 회보, 2013여름호, 제 28권, 제 2호, p10-16.

[2] 특허 출원번호 10-2013-0045625.

실감형 원격절단 시뮬레이터를 위한 사용자 공간조작 부하 저감 기술 연구

현동준*, 김익준, 이종환, 김근호, 정관성, 최병선, 문제권
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*dongjunn@kaeri.re.kr

1. 서론

원전 폐로 과정에서 가장 까다로운 부분은 원자로압력용기와 증기발생기 등으로 이루어진 핵심설비를 해체하는 작업이다. 원전 핵심설비는 고도로 방사화되어 있는 대형 금속 구조물 이므로 해체 작업을 위해 치밀하게 준비된 해체 시나리오와 신뢰성이 높은 원격절단 시스템을 필요로 한다. 이러한 해체 시나리오와 원격절단 시스템을 확보하기 위해서는 사전검증을 통한 최적화 과정이 필수적이며 최근 그래픽 공정 시뮬레이션 기술의 발전으로 인해 많은 비용과 시간이 소요되는 물리적 목업에 의한 사전 검증 보다는 가상환경에서 디지털 목업에 의한 사전 검증이 증가하는 추세이다. 그러나, 기존 그래픽 시뮬레이션 기술에서는 아직 해체 작업 시뮬레이션에 필수적인 절단공정 시뮬레이션 기술이 구현되지 않아 해체 공정을 시뮬레이션 하기에 비효율적인 요소가 많기 때문에 폭넓게 활용되지 못하고 있는 실정이다. 따라서, 그래픽 공정 시뮬레이션기술에 유연하게 접목될 수 있는 절단공정 시뮬레이션 기술에 대한 연구가 필요하다.

본 연구에서는 기존에 수행된 절단공정 시뮬레이션 연구 결과를 바탕으로 실감형 원격절단 시뮬레이터 기술을 연구함에 있어 시뮬레이터 사용자가 해체 매니퓰레이터를 조작할 때 공간조작 부하를 저감시킬 수 있는 기술을 제안하고자 한다. 본론에서는 공간조작 부하를 저감시키는 방법론과 구현 결과에 대해 기술하고 결론에서는 연구결과에 대해 논의하고 향후 연구방향에 대해 기술한다.

2. 본론

2.1 공간조작 부하 저감 방법론

실감형 원격절단 시뮬레이터는 조작자가 절단장비를 제어하여 원전 핵심설비를 원격으로 절단하는 시나리오를 높은 자유도와 몰입도를 가지고 시뮬레이션할 수 있는 시뮬레이터를 의미한다. 원전 핵심설비에 대한 원격절단 시나리오를 높은 자유도로 시뮬레이션 할 수 있는 기술은 기존에 성공적으로 수행되었으며 본 논문에서는 이 절단공정 시뮬레이션 기술을 바탕으로 실감형 원격절단 시뮬레이터를 개발할 때 시뮬레이터 사용자의 공간조작 부하를 저감함으로써 시뮬레이터의 원격절단 시나리오 수행 효율을 높이고 차세대 원격절단 시스템을 개발할 때 3D Human Machine Interface (HMI) 기술의 기초자료로 활용하고자 한다.

실감형 원격절단 시뮬레이터를 이용한 원전 핵심설비 원격절단 시나리오 중 사용자 공간조작 부하가 가장 큰 부분은 다자유도 매니퓰레이터를 이용한 절단공정이다. 다자유도 매니퓰레이터를 이용한 원격절단 시스템은 연마 워터젯이나 유압절단기를 엔드이펙터로 활용함으로써 다양한 원격절단 공정에 투입될 수 있는 반면 공간조작 부하가 크기 때문에 사용자에게 높은 숙련도를 요구한다. 구조가 복잡한 대상물을 절단하기 위해서는 6 자유도 이상의 매니퓰레이터가 필요하며 시뮬레이터로 6 자유도의 매니퓰레이터를 조작할 경우 사용자는 공간상에 $x, y, z, \phi, \theta, \psi$의 6 자유도를 모두 제어해야 하므로 높은 조작부하를 갖게 된다.

본 연구에서는 절단공법에 적합한 구속조건을 매니퓰레이터 제어 알고리즘에 적용하여 조작자 유도를 줄임으로써 사용자의 공간조작 부하를 점감하는 방법론을 제시한다. 예를 들어 연마 워터젯을 절단공법으로 사용하는 경우 워터젯의 노즐은 절단 대상물의 표면에서 일정 거리를 유지한 상태에서 수직으로 위치시켜야 절단효율이 높아지므로 공간조작 부하가 매우 높다. 본 논문에서는 절단 대상물의 표면에서 일정 거리만큼 이격된 가상평면을 생성한 후 워터젯 노즐이 가상평면에 접촉하였을 때 사용자의 힘-반향 조작장치를 통해 반력을 발생시켜 사용자가 워터젯 노즐을 가상평면 위에서 움직일 수 있도록 하고 워터젯 노즐이 강제로 가상평면에 수직하도록 방향을 고정시키는 알고리즘을 구현하였다.

2.2 공간조작 부하 저감 기술 구현 결과

공간조작 부하 저감 기술은 크게 두 부분으로 구성되어 있다. 첫 번째는 매니퓰레이터 엔드이펙터의 작동점이 가상평면에 침투한 깊이를 찾고 반력을 계산하여 힘-반향 조작장치를 통해 구속력을 사용자에게 전달하는 기술이고 두 번째는 엔드이펙터의 방향을 가상평면에 수직하도록 구속시키는 기술이다.

Fig. 1와 같이 엔드이펙터의 작동점 P_1을 가상평면인 육면체 솔리드에 투영하면 6 개의 투영점이 발생하고 이 중 P_1에 유효한 투영점을 추출하면 P_2를 얻을 수 있다.

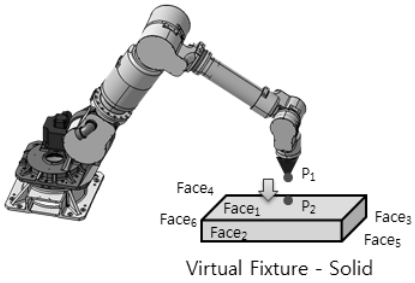


Fig. 1. Point Projection.

Fig. 2과 같이 P_2가 속한 $Face_1$의 수직 벡터 방향으로 P_1과 P_2 의 거리가 양인 경우 침투가 일어나지 않았으므로 반력은 0이고 거리가 음인 경우 침투가 일어났으므로 침투 깊이에 강성을 곱하여 반력을 계산하고 $Face_1$의 수직 벡터 방향으로 반력을 사용자 조작장치를 통해 사용자에게 전달한다. 사용자는 반력을 통해 엔드이펙터의 작용점이 가상평면에 접촉했음을 인지하며 사용자는 가상평면을 따라 엔드이펙터를 편하게 조작할 수 있다. 이때 조작 자유도는 가상평면의 구속을 통해 깊이 방향의 자유도가 없어져 1 개 감소한다.

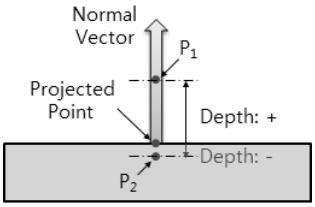


Fig. 2. Projected Depth.

Fig. 3는 엔드이펙터의 방향을 구속시키는 것을 보여준다. T_M, T_L, T_E, T_V는 각각 좌표계에 대한 변환 메트릭스이며 최종적으로 엔드이펙터를 가상평면의 수직 벡터의 반대 방향으로 일치시키도록 역기구학을 풀어 매니퓰레이터 제어 알고리즘에 추가하였다. 이 결과 방향 성분의 자유도가 2 개 감소하며 앞서 조작장치를 통한 1 자유도 감소와 함께 총 3 자유도가 감소하고 사용자의 조작부하는 6 자유도에서 3 자유도로 감소하였다.

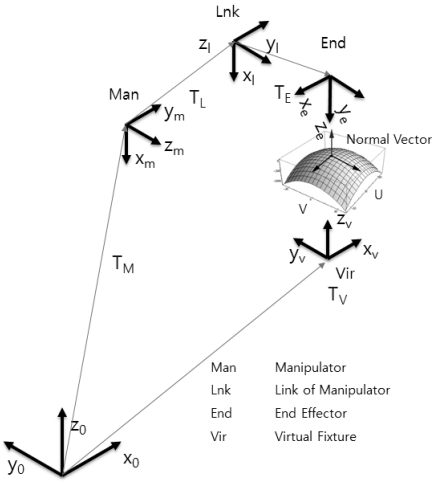


Fig. 3. Direction Projection.

3. 결론

본 논문에서 제시된 사용자 공간조작 부하 저감 기술은 매니퓰레이터를 통한 워터젯 절단공법의 공간조작 자유도를 6 자유도에서 3 자유도로 감소시킴으로써 성공적으로 공간조작 부하를 저감시킬 수 있음이 구현 결과를 통해 증명되었다. 본 기술은 사용자의 조작부하를 저감함으로써 시뮬레이터의 원격절단 시나리오 수행 효율을 증대시킴으로써 시뮬레이터의 효율을 증대시키고 추후 개발 예정인 차세대 원격절단 시스템의 3D HMI 기술을 개발할 때 기초자료를 제공할 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] Brian et al., Lessons learned from a novel teleoperation testbed. Industrial Robot: An International Journal, 33/3, 187-193, 2006.

[2] Dongjun et al., Seamless remote dismantling system for heavy and highly radioactive components of Korean nuclear power plants. Annals of Nuclear Energy, 73, 39-45, 2014.

매립 복토층 깊이에 따른 자체처분 허용농도 측정

구대서*, 김근호, 김계남, 김승수, 박욱량, 한규성, 문제권
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*ndskoo@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성 오염 토양 및 콘크리트 폐기물들의 처리를 위한 방법으로는 규제해제, 제염처리, 장기간 보관 후 처리 등을 고려 할 수 있다. 방사선적 분석이 끝난 한국원자력연구원의 방사성폐기물 저장시설에 보관중인 폐기물중 IAEA에서 제시한 규제해제 핵종 농도기준을 만족하는 폐기물을 매립처분하는 경우에 예상 되는 피폭방사선량을 도출하고, 그 결과를 바탕으로 국내 원자력법상의 "방사성 폐기물 자체처분에 관한 규정"에서 제시하는 처분 제한치를 만족여부를 입증하는지 확인할 필요가 있다. 한국원자력연구원 우라늄변환시설 해체시 발생된 토양폐기물의 자체처분시 예상되는 피폭선량을 평가하기 위하여, 미국의 규제기관인 US NRC와 US DOE가 방사능 오염물질에 의한 거주자의 방사선량과 위해도를 평가하기 위한 도구로서 인정하고 있는 RESRAD Ver 6.5 전산코드를 이용하여 방사성 토양의 매립시의 피폭방사선량을 평가하였다[1-3].

본 연구에서, 매립 처분 1,000드럼 기준으로 매립 복토층 깊이에 따른 허용농도를 계산하고 자체처분 매립 적용성을 분석하였다.

2. 본론

2.1 자료 입력

RESRAD 전산코드의 입력 자료를 다음과 같이 선정하였다. 입력 자료는 국내자료가 확보 가능할 경우에는 이를 채택하는 것을 원칙으로 하였고, 국내 자료의 확보가 어려울 경우, RESRAD의 기본값이나 외국의 문헌을 참조하여 보수적인 값을 선정하였다. 본 연구에서 자체처분 농도의 가장 보수적인 값을 도출하기 위하여, 매립장에 근무하는 작업자와 매립장 폐쇄 후 매립장 상부에 거주하는 일반인을 대상으로 평가하였으며, 일반인은 0세, 5세, 15세, 성인으로 세분한 것에서 15세 기준으로 평가하였다. 매립작업자의 경우 폐기물에 의한 외부피폭, 분진의 흡입 및 2차 피폭을 고려하였고, 규제해제 직후부터 1,000 년까지를 평가대상 기간으로 선정하였다. 폐쇄 후 매립장 거주자의 경우 매립된 오염토양으로 인한 외부피폭, 분진의 흡입 및 2차 섭취, 지하수, 지표수, 매립장 상부에서 재배된 농축산물과 수산물에 의한 피폭을 추가적으로 고려하였고, 평가 대상 기간은 보수적인 평가를 위하여 매립작업자와 동일하게 선정하였다. 매립 처분량은 1,000드럼 기준으로 매립 복토층 깊이(0.6, 1, 2, 5, 10 및 15 m)에 따른 허용농도를 계산하였다.

2.2 계산

RESRAD Ver 6.5 전산코드를 이용하여 방사성 토양의 매립시의 피폭방사선량을 평가하기 위하여 매립 처분 1,000드럼 기준으로 매립 복토층 깊이에 따른 허용농도를 계산하였다. Table 1-3 은 계산결과이다.

Table 1. Calculation of Cover Depth 0.6 m

입력조건: 복토층 0.6 m, 15세, 모든 음식 섭취			
	거주자선량 (μSv/y)	방사능분율	10 μSv/y 의농도(Bq/g)
234	7.547	0.492	1.426843804
235	0.3211	0.022	0.063801959
238	7.171	0.486	1.40944327
	15.0391	1	2.900089033
1	Bq/g당	15.0391	μSv/y
0.66493341	Bq/g당	10	μSv/y
	인구수	개인선량	집단선량
	3407	1.504.E+01	5.124.E-02

Table 2. Calculation of Cover Depth 1.0 m

입력조건: 복토층 1 m, 15세, 모든 음식 섭취			
	거주자 선량 (μSv/y)	방사능 분율	10 μSv/y 의농도(Bq/g)
234	2.633	0.492	1.426843804
235	0.1396	0.022	0.063801959
238	2.458	0.486	1.40944327
	5.2306	1	2.900089033
1	Bq/g당	5.2306	μSv/y
1.91182656	Bq/g당	10	μSv/y
	인구수	개인선량	집단선량
	3407	5.231.E+00	1.782.E-02

Table 3. Calculation of Cover Depth 2.0 m

입력조건: 복토층 2 m, 15세, 모든 음식 섭취			
	거주자 선량 (μSv/y)	방사능 분율	10μSv/y 의농도 (Bq/g)
234	1.72	0.492	1.426843804
235	0.09217	0.022	0.063801959
238	1.636	0.486	1.40944327
	3.44817	1	2.900089033
1	Bq/g당	3.44817	μSv/y
2.90008903	Bq/g당	10	μSv/y
	인구수	개인선량	집단선량
	3407	3.448.E+00	1.175.E-02

3. 결과 및 토의

Table 4는 매립 자체처분량 1,000드럼 기준으로 복토층 깊이에 따른 허용농도 계산 결과를 나타낸 것이다.

Table 4. Calculation of Limited Nuclear Concentration

복토층 깊이 (m)	0.6	1	2	5	10	15
허용 농도 (Bq/g)	0.664	1.912	2.90	2.90	2.90	2.90
개인 선량 (10μSv/y)	15.04	5.231	3.448	3.448	3.448	3.448
집단 선량 (man·Sv/y)	0.0512	0.0178	0.0118	0.0118	0.0118	0.0118

Fig. 1-2는 허용농도, 개인 및 집단선량 결과이다.

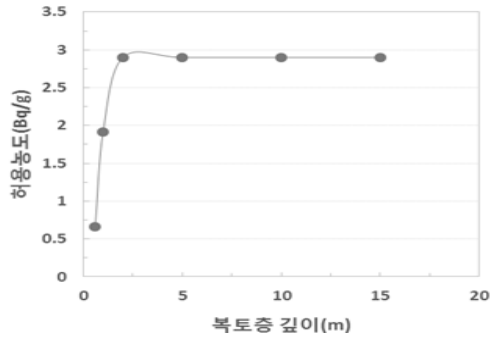


Fig. 1. Cover Depth vs Limited Nuclear Concentration.

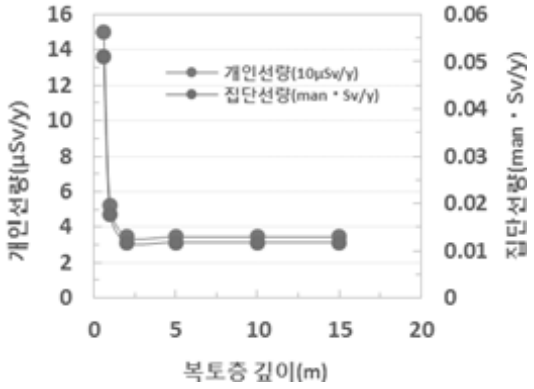


Fig. 2. Cover Depth vs Radiation Dose Limit of Person and Residents.

4. 결론

방사성 오염 토양 및 콘크리트 폐기물을 제염하여 자체처분 매립을 위하여, 국내 원자력법상의 "방사성 폐기물 자체처분에 관한 규정"의 처분 제한치 만족여부를 확인하기 위하여 RESRAD Ver 6.5 전산코드를 이용하여 허용농도를 계산하였다.

복토층 깊이 0.6 m 의 허용농도는 0.664 Bq/g이고 1 m에는 1.912 Bq/g 였으며, 2 m 이상에서는 2.9 Bq/g 였다. 우리의 자체처분 폐기물 농도 0.83 Bq/g 는 자체처분 매립 가능함을 알 수 있다.

개인선량은 0.6 m 및 1 m에서 각각 15.04 μSv/y 과 5.231 μSv/y 였고 2 m 이상에서 3.448 μSv/y 였다. 집단선량은 0.6 m 및 1 m에서 각각 0.0512 man· Sv/y 과 0.0178 man·Sv/y였고, 2 m 이상에서 0.0118 man·Sv/y 였다. 따라서 원자력안전위원회 고시 제2011-59호에서 연간 개인 피폭선량 방사선량 10 μSv/y 이고, 연간 집단 피폭선량 방사선량 1 man·Sv/y 에 따라, 매립지 복토층 1 m 이상에서 자체처분 매립이 가능함을 알 수 있었다.

5. 참고문헌

[1] G. N. Kim et al. Development of complex electrokinetic decontamination method for soil contaminated with uranium, Electrochimica Acta, 86, 49-56, 2012.

[2] 남윤석 외, 규제해제된 방사선 오염토양 및 콘크리트 폐기물의 자체처분을 위한 환경 영향평가 연구, KAERI/CM-1029/2007.

[3] S. Shin et al., Studies on test and assessment of immobilization and clearance methodology for soil and uranium wastes, KAERI/CM-758/2003.

폐공기정화제 자체처분을 위한 처리기술 분석

소지양*, 김덕기, 박승철
한수원㈜중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70
*jiyangso@khnp.co.kr

1. 서론

원자력 발전소 공기정화설비(Air Cleaning Unit)에서 발생된 폐활성탄은 원전 운영 중 지속적으로 발생되는 폐기물로 최근 국내 규제강화로 교체 주기가 짧아져 발생량이 지속적으로 늘어날 전망이다[1]. 현재 발생된 폐활성탄은 원전 내 고체방사성폐기물 임시 저장 공간에 보관중이나 저장공간의 이용률이 점차 줄어들고 있다. 폐공기정화제를 자체처분하지 못하고 영구처분 할 경우 막대한 처분비용이 발생 할 것으로 보인다. 따라서 본 논문에서는 폐공기정화제 자체처분을 위한 기술개발 요건, 폐활성탄 내 $^{14}C/^{3}H$제거관련 국내 특허 기술의 현황 및 현장 적용성을 분석하였다.

2. 본론

2.1 기술개발 요건

방사성폐기물 분류 및 자체처분 기준에 관한 규정(원자력안전위원회 고시 제2014-3호)에 따라 자체처분허용농도(^{14}C;1Bq/g, ^{3}H;100 Bq/g) 미만을 만족해야하며, 처리공정에서 발생된 배기체 및 공정부산물 또한 원자력관계법령 및 시설 운영 자체규정에 맞게 처리하여야한다[6].

2.2 폐활성탄내 $^{14}C/^{3}H$제거 관련 기술 현황 분석

2.2.1 고온처리기술

A사는 정량공급 스크류를 통해 방사형 다단 탄화로 내부로 폐활성탄을 투입시켜 등유 버너로 고온열처리(700~900℃) 하여 고체상의 활성탄소와 기체상의 $^{14}CO_2$로 분리시킨다. 분리된 활성탄소와 $^{14}CO_2$는 방사형 다단 냉각로에서 활성탄소에 $^{14}CO_2$가 재 흡착하지 못하도록 각각 고체 및 기체상 유동공간으로 이동하여 급냉(40~100℃) 된다. 냉각된 활성탄소는 별도 회수되고, $^{14}CO_2$, 활성탄 분진, 습증기형태의 ^{3}H를 함유한 배기가스는 백필터를 장착한 집진기로 유입되어 분진이 제거된다. 집진기를 빠져나온 배기가스는($^{14}CO_2$, 습증기형태의 ^{3}H) 흡착필터를 통과하면서 $^{14}CO_2$가 제거되고 응축기를 지나면서 ^{3}H가 제거된다[2].

2.2.2 분쇄 후 촉매에 의한 산화 기술

B사는 활성탄 기공 내 흡착된 $^{14}C/^{3}H$의 탈착효율을 높이기 위해 활성탄 분쇄(1~1.5 ㎜)과정과 진공가열로(10^{-2}~10^{-5}Torr, 200~500℃)에 진동장치 및 질소기체 주입장치를 도입하였다. 파쇄 시 발생하는 분진은 별도의 필터로 포집한다(^{14}C 및 ^{3}H가 각각 5 Bq/g, 200 Bq/g 미만일 경우 생략). 진공가열로에서 빠져나온 고온의 배기체($^{14}CH_4$, $^{14}C_nH_{2n+n}$, 습증기형태의 ^{3}H, 활성탄 미세분진)는 0.5 ㎛ 필터를 통과시켜 활성탄 미세분진을 제거한 후 열교환기를 지나 산화촉매로(300℃, O_2공급)에서 $^{14}CO_2$와 H_2O로 산화된다. $^{14}CO_2$는 충진된 흡착제에 따라 $CaCO_3$, $LiCO_3$, Na_2CO_3, K_2CO_3 등으로 전환되어 제거된다[3].

2.2.3 화학처리 후 고온산화 촉매 이용 처리기술

C사는 폐활성탄내 ^{14}C를 제거하기 위해 강산, 강산화제(4~5% 과망간산칼륨($K_2S_2O_8$)) 및 촉매제(3~5% 질산은($AgNO_3$))를 사용하여 무기형 $^{14}CO_2$ 기체로 변환시킨다. 화학처리 후 활성탄에 잔류하는 ^{14}C를 제거하기 위해 트윈스크류 분쇄열처리(고방사능물질, 1 mm 내외로 분쇄, –600 Torr, 300℃이하) 또는 마이크로파열처리 기술(저방사능물질, –600 Torr, 300℃이하, 2.45 GHz, 1~3 kW)을 적용하였다. 화학반응조로부터 이송된 기체($^{14}CO_2$, ^{14}CO, $^{14}C_nH_{2n+n}$)는 고온산화촉매로(500~800℃)에서 완전연소 및 산화 된다. 전환된 $^{14}CO_2$ 기체는 컬럼내 펠릿형 LiOH이나 입자형 $Ca(OH)_2$, 또는 NaOH와 $Ca(OH)_2$ 혼합물인 Soda Lime에 의해 흡착, 제거된다. 사용 후 폐 흡착칼럼은 분리하여 입·출구를 밀봉 후 방사능준위에 따라 고건전성용기나 탄소강 드럼에 포장하여 영구 처분하는 것을 고려한다[4].

2.2.4 가압가온 기술 적용

D연구소는 최근 폐활성탄내 ^{14}C를 제거하기 위한 기술에 기존의 가온-감압(최대 500℃까지 승온) 처리방법과는 달리 산소기체를 이용한 대기압-상압 방식을 적용하였다. 이 기술은 단순하게 흡착된 유기물질들을 100℃로 가열하여 기화시키는 방식이다. 폐활성탄내 방사성핵종이 저농도에서 고농도까지 다양한 범위로 분포하기 때문에 전 농도 범위를 포괄하는 기술로서 흡착된 유기물질이 탄화가 쉽게 일어나도록 대기압 수준을 유지한 채 마이크로파를 이용하여 간접가온 또는 순간적인 직접가온 기술을 적용하였다. 특히, 앞서 언급한 기술들과는 달리 분쇄나 화학처리와 같은 전처리 공정 대신 흡착된 유기물질만 국부적으로 탄화될 수 있도록 공정을 최대한 단순화하였고, 기화처리 후 방사성물질만 탈착할 수 있도록 감압처리 하는 밀폐형 공정이다.

2.3. 현존기술의 현장 적용성 분석

2.3.1 2차 폐기물 발생 관점에서의 분석

분쇄처리공정의 경우 미세분진이 공기조화계통으로 유입되면 계통 차압 유발의 원인이 되며, 여과효율을 높이기 위해 자체 HEPA filter를 사용할 경우 잦은 고차압 발생으로 잦은 필터 교체에 따른 2차 폐기물발생량의 증가가 우려된다. 습식화학처리공정에서 산용액이 발전소 방사성배수계통으로 유입될 경우 액체방사성폐기물계통의 탈염기가 조기에 포화되어 이온교환수지 교체에 따른 별도의 고체방사성폐기물이 생성될 가능성이 있다. 또한, 화학폐액 전량을 자체 전용 화학폐액탱크로 수집할 경우에도 폐활성탄 처리작업 종료후 발전소 외부로 반출은 불가능하여 유해폐기물로 분류 후 방사선관리구역내에 임시 장기보관 관리할 수밖에 없다[5].

2.3.2 현장 설비운전 공간 확보관점에서의 분석

폐공기정화제는 방사성폐기물로 분류되기 때문에 폐활성탄 처리설비 운전은 원자력발전소 방사선관리구역에서 이루어져야 한다. 설비 운전 가능 공간은 각 원전의 방사성폐기물건물 내 트럭베이가 우선 대상이 될 수 있으나, 인접한 공간에 방사성폐기물드럼이 임시저장 되어 있어 설비운전에 따른 고열발생원에 대응할 수 있는 화재방호 요건을 갖춰야한다. 또한 방사성폐기물드럼에 의한 설비운전 작업자의 방사선피폭과 설비운영 시 발생 가능한 사고로 임시 저장중인 방사성폐기물 드럼에 손상을 주는 상호간의 영향분석이 필요하다. 또한 발전소 안전성과 직접 관련된 폐활성탄 제거설비 임시 운영은 원자력안전법상의 인허가가 필요한 사항으로서 최종안전성분석보고서, 운영기술지침서 등 인허가 문서변경도 필요하다.

2.3.3 최종잔류물의 처분관점에서의 분석

앞서 기술한 모든 폐활성탄 처리기술의 최종 단계인 $^{14}CO_2$ 기체 회수단계에서 사용하는 LiOH를 비롯한 대부분의 흡착제는 밀봉 후 고건전성 용기(HIC)나 잡고체용 철재드럼에 단순 포장 전에 비수용성 염으로 전환하여 처분 안전성을 높이는 노력이 필요할 것으로 판단된다.

3. 결론

폐공기정화제의 자체처분 기술개발요건, 국내특허기술현황 및 각 기술의 현장 적용성을 분석하였다. 특허 기술분석 결과 각 처분기술 보유기관들의 기술은 주로 폐활성탄 처리공정 방안만을 제시할 뿐 해당 공정을 이용한 실제 폐활성탄을 이용한 실증시험 결과가 입증되지 않았고, 각각의 기술들이 서로 달라 객관적인 비교가 어려웠다. 아울러 자체처분을 위한 처리관점에서 현재 기술들의 현장적용성을 검토한 결과 발전소 계통과의 간섭성, 발생된 2차폐기물의 처리 및 처분의 어려움이 존재하는 것으로 분석되었다.

4. 참고문헌

[1] U.S. NRC, "Design, inspection, and testing criteria for air filtration and adsorption units of post-accident engineered-safety feature atmosphere cleanup system in light-water-cooled NPPs", Regulatory Guide 1.52 Rev. 4,(2012).

[2] 특허출원번호 10-2013-0072808, 2015.1

[3] 특허출원번호 10-2011-0034364, 2012.2

[4] 특허출원번호 10-2012-0151155, 2013.2

[5] 원자력안전위원회 고시 제2015-4 "중·저준위 방사성폐기물 인도규정", 2015.3

[6] 원자력안전위원회 고시 제2014-3호, "방사성폐기물분류 및 자체처분 기준에 관한 규정", 2014.9

원자력발전소 중대사고 초기 대응 격납건물내 방사성기체 폐기물 감압 Venting Scrubber System 개발

정철영*, 윤덕호, 김민수, 박정원
㈜액트알엠티, 대전광역시 유성구 테크노1로 11-3
*jcy6535@naver.com

1. 서론

2011년 일본 후쿠시마에서 쓰나미의 영향으로 원자력발전소가 침수되는 사고가 발생하였다. 침수로 인해 소내전원이 상실되었고, 발전소 제어불능 상태에서 격납건물의 건전성이 확보되지 않아 다량의 방사성물질이 환경으로 유출되어 막대한 환경 및 인명피해가 발생하였으며, 아직도 그 피해는 지속되고 있다. 이 사고의 교훈으로 원자력발전소는 설계개념을 초월한 격납건물 압력 상승에 따른 격납건물 손상을 미리 예방하기 위한 효과적인 Venting을 통한 감압 기능 수행으로 환경 피해 최소화와 주민보호 및 방재대책 비용을 저감하기 위해서 고 방사능농도의 기체를 여과, 용해, 포집, 배출 시킬 수 있는 효율적인 격납건물 감압 Venting Scrubber System의 개발 설치가 요구되었다.

해외사례의 경우 유럽과 미국 등 극히 제한적으로 몇 개의 원자력발전소에서 중대사고시 대비 격납건물의 배기설비를 일부 설치하여 운전 중이지만 아직 개발단계에 있다.

2. 본론

2.1 개요

원자력발전소에서 중대사고 발생시 격납건물의 압력이 설계압력 약 6 bar 이상을 넘지 않도록 방사성기체를 감압 여과 포집 배출하기 위하여 <격납건물 감압 Venting Scrubber System>을 개발 이용한다.
원자로 냉각재 상실사고(LOCA)가 발생하면 격납건물 내부는 냉각재와 원자로 노심으로 부터 발생된 약 200℃의 고열을 동반한 고압 습증기 상태인 고 방사능 농도의 방사성 기체, 입자 및 요오드 등 핵분열 생성물과 내부 구조물의 방사화 생성물, 구조 화합물의 방사 핵화학 반응으로 발생된 휘발성 가스 등이 함유된 가연성 기체 등의 발생으로 압력이 상승한다. 따라서 압력증가를 방지하기 위하여 격납건물 대기 가스를 <Venting Scrubber System>에 Pipe Line을 통하여 Flow를 형성시켜 격납건물 내부의 압력이 설계압력 아래로 감소 되도록 감압 기능을 수행하면서 요오드 및 요오드 등 화합물의 수용성 방사성물질은 세정수에 용해시켜 가두고 입자방사성 물질은 여과하여 청정 기체 상태만 배출하도록 하는 기능을 가진 시스템이 요구된다..

개발한 Venting Scrubber System은 중대사고의 온도, 압력, 습도, 지진 등 가혹한 조건에서도 동작하여 격납건물 감압능력 확보와 방사성물질 여과 세정을 안전하게 수행할 수 있는 규모와 기능을 갖추고 특히, Start Up 운전 시 계통의 충격 완화를 충분히 흡수할 수 있는 가동조건을 유지한다.

2.2 배경기술

격납건물 감압 Venting Scrubber(세정) System은 원자력발전소 중대 사고발생 시에도 격납건물의 손상 방지를 위하여 격납건물의 압력이 설계압력 아래로 유지 제어 되어야 함으로 격납건물의 압력이 설계압력에 도달 전에 동작하여야 한다. 이에 따라 보조계통으로 Pipe Line 및 밸브 등 그부속 계통으로 Gas Flow 인입계통이 설계되어 있다. 이 인입계통을 통과하여 배기된 고온, 고압, 고열, 고 습분, 고 방사능 농도의 기체가 안정적으로 Scrubber (세정)로 유입된다. 이때, Scrubber는 72시간 지속기능을 발휘하여 Venting Gas를 처리할 수 있도록 설계 한다. 유입된 Gas는 Dosing Tank내의 필터 장착 Scrubber Nozzle을 통해 Smooth하게 지속적으로 수중 여과 분출되고 세정수에 용해 될 수 있도록 열 유체역학, 물리, 화학, 기계공학, 방사선학 등의 학술적 배경과 원자력 발전소 최종안전성 분석보고서(FSAR) 등을 참고하여 개발하였다, 격납건물의 고온 다습한 습분유입에 의한 Scrubber System 세정수의 수위변동과 Sludge를 고려한 Skimmer 관로설치와 Over Flow Tank, Make Up Tank, 용해도를 증가시켜 효율을 높이기 위한 Chemical Addition 장치 등의 보조 장치도 부가하였다. 향후 이의 성능평가를 위한 필터효율, 각 부분별 성능시험 장치개발 등이 요구된다.

2.3 Venting Scrubber System 특징

원자력발전소 소내 정전사태(SBO)에서의 제어

불능 중대사고시 격납건물 내부의 압력이 설계압력 이상 상승하지 않도록 감압하여 격납건물의 건전성을 유지하고 방사성 가스를 여과 배출하기 위한 목적으로 Venting Scrubber System 기능을 제공한다. 이때 격납건물 벤팅 대기 가스 중에 있는 고 방사능 농도의 요오드 방사성 동위원소와 그 외 화합물 등 수용성 방사성물질을 Scrubber System 세정수에 용해시켜 가두고 입자 방사성 물질은 Venturi Scrubber Nozzle 끝단에 고안하여 설계된 수침형 필터와 MSR 전단 HEPA 필터에 여과되어 방사성물질 Filtering 효율성을 증대한다. MSR에는 Heat Pipe가 장착된 Fin이 설계되어 열 흡수 기능을 수행한다.

2.4 Venting Scrubber System 구성

중대사고시 격납건물로부터 배기가스를 유입하는 인입계통과 격납건물로부터 인입된 배기기체의 압력을 낮추고 배기 유량을 조절하는 Venturi관 및 Scrubber 세관 Header, Scrubber 세정수를 저장하는 Dosing Tank, Venturi관 후단의 Scrubber 세관 Header를 통하여 분기되어 나온 Scrubber 세관, Scrubber세관 말단에 위치하고 고 방사능입자를 포집하기 위한 방사능 여과 포집용 Cylinderical Type 수침형 필터, 필터 Outer Venturi Scrubber Nozzle, 그 외 Dosing Tank 세정수 수위조절 보조 부속장치, Scrubber Dosing Tank 상단 기체 부위 출구에 위치한 MSR전단 Cylindrical Type의 HEPA Filter, 격납용기 감압 벤팅 기체 습분분리용 MSR 및 고온의 기체냉각을 위한 Heat Pipe를 이용한 Natural Convection System 등을 포함하고 있다.

상기 시스템은 원자력발전소 소내 정전사태(SBO)와 안전정지 지진(SSE) 및 운전기준 지진(OBE)이 발생하더라도 그 기능을 완전하게 수행할 수 있는 요건을 만족해야한다. 이때 인입계통의 경우 원자력발전소 Station Black Out조건에서도 유로가 형성되어 격납건물의 배기압력을 낮출 수 있는 배관 및 밸브, Rupture Disk, 오리피스 등이 포함 설계하였으나 여기서는 Venting Scrubber (세정) System만 논하고자 한다. 아래의 Fig. 1 은 Venting Scrubber (세정) System의 개념 설계도 이다.

3. 결론

격납건물의 압력증가 원인은 원자로 냉각재계통 외부누출 사고(LOCA) 등 원자로 제어불능 사고가 발생하면 원자로의 출력 폭주로 고온.고압의 원자로 냉각재가 격납건물 대기 중으로 빠져나와 증발되고 더불어 핵연료 피복재 손상과 핵연료

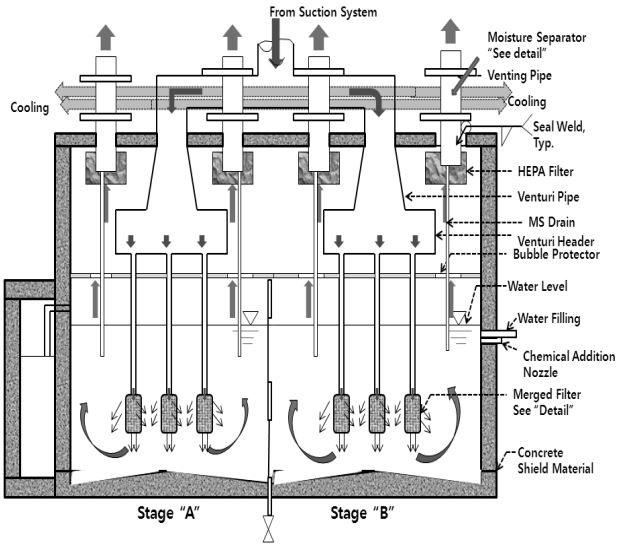


Fig. 1. Scrubber Schematic Block Diagram.

용융 등 원자로 노심손상이 발생하게 되면, 고열 고온 하에서 격납건물 내부 구조물의 물리적 변형이 발생하고 냉각재와 노심과 콘크리트 구조물 등과 핵 화학적 반응이 가속화됨에 따라 수소 등 가연 폭발성 물질과 ^{137}Cs, ^{133}Xe, ^{135}Xe, ^{90}Sm, ^{89}Sr, ^{90}Sr, ^{131}I, ^{133}I, ^{135}I 등의 수많은 양의 가스와 입자상의 방사성원소(Element), 유기옥소, CsI 등 복합 화합물과 ^{60}Co, ^{54}Mn 등 방사화생성물이 발생하여 격납건물 대기 중에 습분을 동반한 에어로졸 가스 내에 존재하면서 다양한 사고양상으로 격납건물 압력상승이 유발된다. 따라서 격납건물의 건전성을 유지하기 위하여 첫째, 압력을 격납건물 설계압력 미만이 되게 적절히 낮춰 주어야 하며 둘째, 격납건물 대기 중에 존재한 방사성 물질을 Control이 가능한 상태의 설비에 격납하거나 여과 또는 용해시켜 가두어 놓는 격납건물 감압 Venting Scrubber System 개발이 요구되는데 Fig 1. Scrubber Schematic Block diagram은 이 기능을 만족스럽게 수행할 수 있는 안정적이고 신뢰성 있는 개발 개념도(Scrubber & Moisture Separ -ator System Diagram)이다. 특히, 격납건물 감압 Venting Scrubber System은 원자력발전소 정상 운전 중에는 유사시 기능을 수행 가능토록 항상 대기 상태에 있어야 하며 정기적인 점검 확인 시스템의 요건을 만족하여야 한다.

4. 참고문헌

[1] Framatome ANP, Offenbech, Germany "Comtainment Hydrogen Control and Filtered Venting Design and Implementation".

[2] 원자로 안전의 기술적 토대 최종보고서, "중대사고 문제 해결하기 위한 지식기반", 2010.

원전사고대비 공기부상공정(DAF) 적용 방안 평가

이지훈*, 김승은, 박지은, 조항래, 박승철
한수원㈜중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70
*jihoon@khnp.co.kr

1. 서론

일본 후쿠시마 원전 사고 이후 원전의 중대 사고시 발생하는 액체 유출물의 효율적인 처리 기술의 필요성이 부각되었다. 원전 모델별로 다양한 방식의 액체 방사성 폐기물 처리 설비가 운영되고 있으나, 비상 상황 발생 시 다량의 고염도 폐기물 처리능력 부족에 따른 발전 재개 지연 또는 중대한 환경 오염으로 인해 경제적 손실과 함께 원전의 환경 친화적 이미지가 크게 저하될 수 있다. 사고시 원전에서 발생하는 폐액에는 다양한 오염 물질이 포함되어 있어 폐액 처리의 주설비인 RO의 막오염을 방지하여 원활한 가동을 위한 최적 전처리 기술의 확보가 필요하다. 본 논문에서는 원전의 중대사고발생시 원수에 함유된 유분 등을 포함한 다양한 오염물질을 제거하여 RO 시스템의 막 오염을 최소화하고 원활한 가동을 할 수 있는 전처리 공정으로서 공기부상공정(DAF)의 적용방안을 평가하였다.

2. 본론

2.1 공기부상공정(DAF) 장치 설계

유분, algae 및 입자성 물질의 제거를 위하여 응집 침전을 병행하여 처리효율을 극대화 할 수 있는 DAF 공정의 설계 및 제작을 수행하였다. DAF 공정의 처리용량은 150 L/hr이며 응집을 위한 혼화조, 응집조 및 가압부상조 등으로 구성되어 있다.

Table 1. Design Parameter of DAF(Dissolved Air Floatation) System

Component	Design Specification
Influent tank	Capacity : 1 ㎥ (1 ton)
Influent pump	Flow rate : 3 L/min
Pressurized pump	Flow rate : 4 L/min
Chemical injection pump	Flow rate : 150 ml/min
Compressor	Flow rate : 10 L/min (2 HP, 8 kg/㎠)
Mixing reactor	Capacity : 25 L, Agitator : 0~120 rpm
Coagulation reactor	Capacity : 50 L, Agitator(0~60 rpm)
Pressurized flotation reactor	Capacity : 120L

DAF의 기본 원리는 미세한 공기방울을 폐액의 하부에서 상부로 부상시키는 과정에서 입자성 물질, 유분 등이 함께 떠오르게 되고 이렇게 떠오른 오염물질을 스키머를 이용하여 제거하는 것이다.

처리 효율을 증가시키기 위하여 공기방울의 크기, 주입량 등을 조절할 수 있으며 응집제를 이용하여 오염물질을 응집할 수 있다. Table 1에 공기부상공정의 설계사항에 대해 기술하였으며 Fig. 1에 제작된 DAF 공정의 모습과 처리과정을 소개하였다.



Fig. 1. DAF(Dissolved Air Flotation) System.

2.2 실험 방법

2.2.1 모의폐액 제조

모의폐액은 비상·중대사고 시 발생 폐액으로 예상되는 농도로 결정하였다. 응집제 종류 및 주입량 선정 실험에 대한 모의폐액은 카올린 1,000 ppm(약 1,700 NTU), 붕산 4,000 ppm, Na_3PO_4 6,700 ppm의 농도로 제조하였다. DAF 운전을 위한 모의폐액은 상기 모의폐액에 원자력 발전소에서 사용하는 대표적인 free oil인 터빈유와 dissolved oil인 수용성 절삭유를 9:1로 혼합하여 100 ppm의 oil를 만들어 실험을 실시하였다.

2.2.2 실험 방법

상기 모의폐액에 대하여 응집제 종류 및 주입량을 변화하여 응집 효율을 평가하였다. 이때, Jar test를 이용하며 폐액 250 ml에, 3종의 응집제 $FeCl_3$, PAC 11%, $Al_2(SO_4)_3$를 각각 0.5~2.0 ml를 주입하여 침전율을 평가하였다. DAF 운전인자 도출 시험은 도출된 $FeCl_3$ 응집제를 폐액 250 ml당 2 ml씩 주입하고, 폐액의 pH를 11이상으로 조절하여 처리효율 평가 운전을 수행하였다. oil 제거 성능은 TOC를 이용하여 측정하였다.

3. 실험 결과

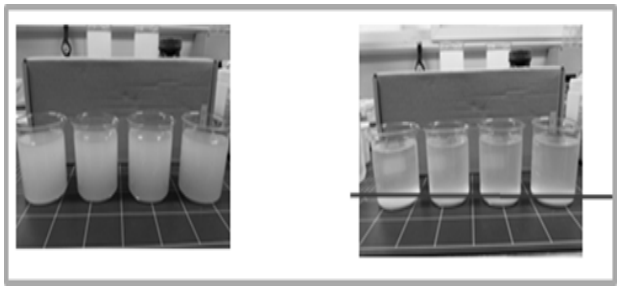
3.1 응집제 종류 및 주입량 선정

오염 물질을 제거하기 위하여 사용하는 응집제의 종류와 량은 Jar Test를 이용하여 선정하였다. 대상 응집제로는 무기 응집제와 $FeCl_3$와 Alum 그리고 고분자 응집제 PAC11%를 시험하였다. Table 2에 3종의 응집제의 Jar Test 결과를 보여주고 Fig 2에 $FeCl_3$와 PAC11% 응집제 적용 전후의 침전상태를 보여 주고 있다. $FeCl_3$ 2.0 ml에서 52.1NTU와 PAC11% 1 ml 적용시 7.7NTU로 양호한 처리수 탁도 결과를 나타내고 있지만 응집후 침전물의 양은 $FeCl_3$가 현저히 적어 $FeCl_3$를 DAF공정의 응집제로 선정하였다.

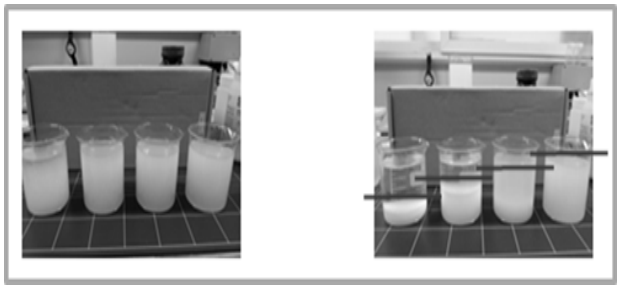
Table 2. Coagulation test results on 3 coagulants

unit : NTU

Coagulants	Effluent turbidity on coagulant dose			
	0.5 ml	1 ml	1.5 ml	2.0 ml
$FeCl_3$	369	217	188	52.1
PAC11%	16.7	7.7	259	976
Alum($Al_2(SO_4)_3$)	145	56.5	94.7	96.8



a) Before coagulation b) After coagulation($FeCl_3$)



c) Before coagulation d) After coagulation(PAC11%)

Fig. 2. Comparion results of precipitation status on $FeCl_3$ and PAC11%.

3.2 DAF 운전에 따른 오일 및 탁도 제거율 평가

DAF 성능 시험 결과는 Fig. 3에 나타냈다. DAF의 오일제거 성능은 유입수의 오일 100 ppm에서 유출수는 1.7 ppm으로 약 98%이상 제거되어 우수한 효율을 보였다. 탁도는 운전 시간이 지남에 따라 증가되는 경향을 나타내지만 운전 시간이 2시간부터는 50 NTU로 일정한 값을 나타낸다, 그리고 탁도 제거율은 탁도와 반대로 운전 시간이 지남에 따라 저하되지만 97%을 유지하고 있다. Air Bubble에 의한 오염 물질을 제거하는 가압부상조에 응집조에서 넘어오는 물이 찰 때까지 약 2 시간 정도 시간이 필요하였다.

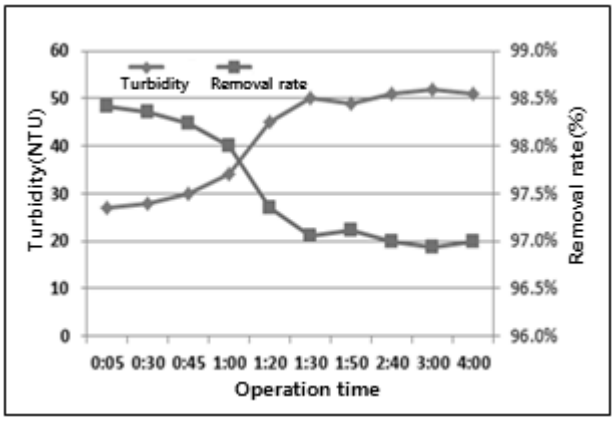


Fig. 3. Turbidity change on operation time.

4. 결론

원자력발전소의 중대사고 시 1, 2차계통의 기기에 공급하는 윤활유탱크나 폐오일 저장탱크의 파손 및 각종 펌프류의 파손에 의한 다량의 오일이 누출이 되는 경우 후단에 처리공정인 침지막이나 RO공정의 막 막힘이나 처리효율에 영향을 미친다. 이러한 오일이나 탁도물질이 다량 함유된 폐액 처리에 적합한 전처리공정으로서 공기부상공정(DAF)을 선정하고, 응집제 도출 실험과 탁도 및 오일 제거의 적정성을 평가하였다. 응집제는 $FeCl_3$가 8 ml/L이상으로 주입할 경우 탁도 97%이상 제거하며 침전특성도 타 응집제에 비해 우수한 것으로 도출되었다. 최적조건에서 공기부상법을 이용하여 처리한 결과 탁도 97%, 오일 98%이상 제거되어 공기부상공정이 비상시 오일과 탁도 성분이 다량 함유한 폐액에 대하여 전처리공정으로서 적절한 공정으로 판단되었다.

5. 참고문헌

[1] 박철홍, 이동형 DAF(Dissolved Air Floatation) 시스템의 운용과 활용에 관한 연구, 석사학위논문, 2009.

[2] C. Robert Reiss, Christophe Robert, Jonathan Dietrich, Anand Mody, Pretreatment and Design Considerations for Large-Scale Seawater Facilities, 2008.

이동식 농축폐액 증발건조기술의 증발잔류물 배출에 대한 고찰

조항래*, 박지은, 이지훈, 박승철
한수원㈜ 중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70
*hang6795@khnp.co.kr

1. 서론

원전의 액체방사성폐기물처리계통 설계범위를 초과하는 비정상 폐액을 처리할 수 있는 이동식 액체방사성폐기물 처리 복합공정을 개발하고 있다. 막분리 처리공정에서 발생된 농축폐액을 처리하기 위한 이동식 농축폐액 증발건조기술도 개발 중에 있다[1]. 농축폐액을 증발처리한 후 잔존하는 증발잔류물은 유리수가 1% 이내로 건조되어야 고건전성용기(HIC)에 저장·처분될 수 있고[2], 증발건조 용기 밖으로 배출이 원활하게 될 수 있어야 한다. 이러한 요건을 만족시키기 위해서는 증발 및 건조운전의 적절한 종료시점을 알 수 있어야 한다. 고농도의 염 성분이 함유된 농축폐액의 물리·화학적 특성상 건조가 진행되면서 점성이 높아지고 덩어리가 형성되거나 용기 내면이나 내장품에 쉽게 점착된다는 점도 고려되어야 한다. 따라서 본 논문에서는 이동식 농축폐액 증발건조기술을 개발하는 과정에서의 실험결과를 바탕으로 증발운전을 종료하고 최종 건조물의 원활한 배출과 저장·처분을 위하여 건조운전을 종료해야 하는 적정시점을 인지할 수 있는 방법과 교반 및 배출장치의 적절한 설계요건에 대하여 논하고자 한다.

2. 본론

2.1 증발운전 및 건조운전 종료시점

농축폐액을 증발 및 건조한 후 잔류하는 최종 건조물의 처분요건을 충분히 만족시키기 위하여 최종잔류물의 함수율을 10% 이내까지 건조하고자 하였다. Fig. 1에서 보여주는 바와 같이 고농도의 염 성분이 함유된 모의 농축폐액의증발처리가 진행되면서 농축액의 온도가 약 110℃까지 상승하고, 동시에 교반기 모터의 전류값(A)도 간헐적으로 소폭 증가함을 볼 수 있다. 이는 증발건조용기 내 농축액의 염 농축도가 증가하면서 액체의 비점이 상승함과 동시에 점성이 증가하여 교반 부하가 증가하기 때문이다. 이러한 상황은 증발건조용기 내부에 고형물이 상당량 축적된 상태이므로 농축폐액 공급을 중단하여 증발운전을 종료하고, 건조운전을 시작해야 하는 시점이라고 할 수 있다. 건조운전이 지속적으로 진행되면서 내부 고형물의 온도는 더 이상 증가하지 않고 오히려 점차 감소함을 알 수 있는데, 이는 내부 잔류물중 수분 함량이 크게 감소하면서 점성이 증가한 증발잔류물이 온도감지기에 달라붙기 때문인 것으로 판단된다. 반면에 교반기 모터의 전류값은 건조운전이 진행되면서 어느 순간부터 단계적으로 증가함을 알 수 있는데, 이러한 상황이 건조운전 종료시점으로 볼 수 있다. 그러나 이 시점에서 중요한 사항은 가열히터의 잔열을 고려해야 한다는 점이다. 건조운전 종료시점을 지나 잔류물이 과다하게 건조될 경우 건조물이 용기 내면이나 내장품에 돌발적으로 달라붙고 일부는 덩어리로 형성되기 때문에 원활한 배출이 불가능해진다. 따라서 정확한 건조운전 종료 시점을 인지하는 것이 매우 중요하며, 건조운전에 따른 농축폐액의 물성 변화는 폐액의 주요 성분에 따라 크게 달라 질 수도 있으므로 폐액 특성이 충분히 고려되어야 할 것이다. 예를 들면, 건조에 따른 점성이 없는 물질의 경우에는 교반기 모터의 전류값이 상승하다가 증발잔류물이 충분히 건조되면 오히려 감소할 것이다.

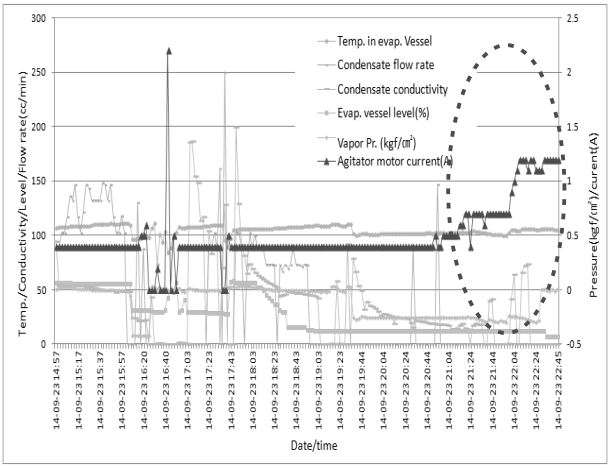


Fig. 1. Change of operating parameters at drying end-point with simulated concentrate mixture.

2.2 교반 및 배출장치의 설계요건

농축폐액의 증발건조 시 증발운전과 건조운전의 종료시점을 정확하게 인지하고 최종 건조 잔류물을 원활하게 배출하기 위해서는 증발건조용기 내부에 내장된 교반 및 배출장치의 구조와 이 장치를 회전시키는 모터의 회전력 및 속도, 회전축의 증기 누설을 방지하는 밀봉장치의 회전력 부하에 대한 설계가 매우 중요함을 실험실규모 장치를 이용한 시험을 통해서 확인할 수 있었다. 교반 및 배출장치의 구조는 증발운전 중에는 용기 내면의 스케일 형성을 방지하면서 농축액을 충분히 교반시켜 돌비현상을 억제하는 역할을 하고, 건조 및 배출운전 시에는 점성이 강한 건조물이 벽면과 바닥에 달라붙지 않고 원활하게 건조 및 배출되도록 하는 역할을 한다. 따라서 교반장치의 측면과 바닥의 블레이드는 Fig. 2와 같이 회전 중 항상 내면과 바닥에 밀착될 수 있도록 비고정식으로 설계되어야 한다. 교반기 모터의 회전력(마력)은 증발건조용기의 크기와 밀봉장치의 형식에 따른 교반 및 배출장치의 자체 회전 부하를 고려하여 적절해야 한다. 회전력이 너무 클 경우 농축물의 점성증가에 따른 회전부하 변화의 감도가 낮아 증발 및 건조운전 종료시점을 인지할 수 없다. 반면에 회전력이 너무 작을 경우에는 회전 부하 변화의 감도는 우수하지만 건조물의 점성이 급격하게 증가할 때 고착되어 교반 및 배출이 불가능하게 된다. 또한 모터의 감속비에 따른 회전 속도는 최대 180 rpm까지 가변적으로 제어될 수 있도록 해야 한다. 이는 증발운전 중 농축도가 증가할수록 회전속도를 점차 증가시켜 돌비현상 억제에 기여하고, 건조운전 중에는 건조 종료시점에 최대 속도로 교반하여 점성이 강한 건조 잔류물이 내벽과 바닥 및 내장품에 달라붙는 것을 방지할 수 있게 해준다. 또한 교반기 회전축의 밀봉장치는 회전축의 자체 회전부하가 너무 크지 않도록 적절한 형식으로 설계해야 한다. 밀봉장치에서의 자체 회전부하가 너무 커서 농축물의 물성변화에 의한 회전부하 변화량을 초과할 경우 증발 및 건조운전 종료시점을 인지할 수가 없다. 위에서 언급한 세 가지 설계변수는 서로 영향력이 크기 때문에 상관관계를 충분히 고려해야 설계요건을 만족시킬 수 있을 것이다. 또한 건조 후 점성이 높은 건조물을 배출할 때 Fig. 3과 같이 배출구의 내벽에 달라붙기 때문에 배출구의 내벽을 스크래핑하는 장치도 추가적으로 고안되어야 한다.

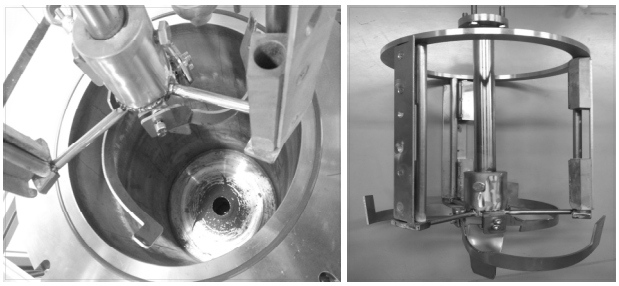


Fig. 2. Non-fixed agitating device with wall/bottom scraping function.

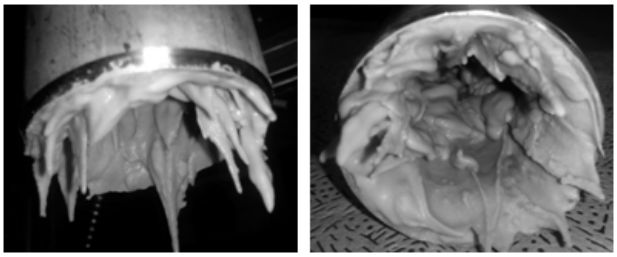


Fig. 3. Dried concentrate of paste stuck at out-let nozzle.

3. 결론

원전의 비정상 폐액을 처리할 수 있는 이동식 복합공정이 개발되고 있다. 막분리 공정에서 발생되는 농축폐액을 처리하기 위해 개발 중인 이동식 농축폐액 증발건조기술의 증발잔류물의 원활한 배출과 관련하여 증발운전 및 건조운전 종료시점을 인지하는 방법과 교반 및 배출장치의 설계요건에 대하여 고찰해 보았다. 먼저 증발운전 종료시점은 내부 농축폐액의 농축도가 증가하면서 비점의 상승으로 온도가 약 110℃까지 도달하고 동시에 교반기 모터의 전류값이 간헐적으로 소폭 증가하는 시점으로 볼 수 있고, 건조운전 종료시점은 모터의 전류값이 단계적으로 눈에 띄게 증가하는 시점으로 볼 수 있다. 또한 교반 및 배출장치의 설계와 관련해서는 교반 및 배출장치의 구조와 모터의 회전력 및 속도, 밀봉장치 회전부하의 상관관계를 고려한 설계가 매우 중요하다. 적절한 시점에 증발 및 건조운전 종료 후 점성이 높은 반죽 형태의 증발잔류물을 배출할 때 배출구 내벽을 스크래핑하는 장치도 추가적으로 필요함을 알 수 있었다.

4. 참고문헌

[1] 한수원㈜중앙연구원, "모듈형 이동식 액체방사성 폐기물처리기술 개발 중간보고서", 2014.

[2] 원자력안전위원회고시 제2014-54호, 중·저준위 방사성폐기물 인도규정, 제13조, 2014.

원전 중대사고 시 발생 폐액에 함유된 극미량 방사성 금속 핵종의 증류수와 해수에서 응집 제거 특성 비교

김광욱*, 백예지, 이근영, 김형주, 이일희, 정동용, 문제권
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*nkwkim@kaeri.re.kr

1. 서론

일본 후쿠시마 원전사고 후 유사한 원전 중대사고 시, 냉각을 위해 사고 원자로 해수 주입에 의한 대용량 고염 방사성 폐액이 발생하는 경우, 폐액 처리를 대응하기 위한 연구가 한국원자력연구원에서 수행되고 있다. 이를 위해 연구원에서는 대상 핵종으로 Cs-134, Cs-137, I-131, Mn-54, Co-60, Sb-125, Ru-106을 선정하고[1], 높은 제염효과를 가지며 신속한 대응, 단순한 운전조작이 가능한 Fig. 1과 같은 순차침전 공정을 제시한 바 있다. 여기서 Cs, Sr, I 핵종은 금속 페로시안에이트 첨착-Chabazite, Ba 첨착-4A, Ag 첨착-13X 제올라이트를 각각 사용하여 DF 10^2~10^3 값을 가지며 제거할 수 있음을 확인하였다.[2] 이후 나머지 잔류 핵종은 $Fe(OH)_3$ 공침-PAA(Poly acrylamide) 응집 침전에 의해 효과적으로 제거할 수 있음을 또한 확인한 바 있다. 그러나 냉각수로 담수를 사용하거나, 사고현장에 설치되는 RO와 같은 탈염장치에 의해 순환되는 냉각수가 담수화되는 경우, Fe 공침-유기응집 특성이 변화될 수 있다. 따라서 본 연구에서는 원전 중대사고 시 발생하는 Mn, Co, Sb, Ru의 응집 침전 제거 시 담수와 해수에서 대상 핵종 응집 특성 비교 연구를 수행하였다.

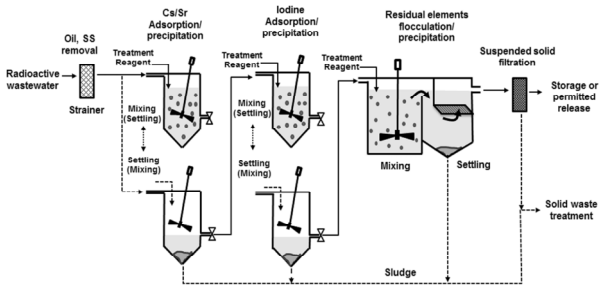


Fig. 1. Schematic process diagram for emergency treatment of radioactive wastewater using sequential precipitation.

2. 실험 방법

본 연구 응집 실험에서는 대상핵종의 농도를 분석의 편의성을 위하여 각 10 ppm으로 하였으며, 무기 응집제인 100 ppm Fe 응집계를 생성시키기 위하여 $FeCl_3$를 대상 용액에 첨가 후 pH를 조절하였고, 이후 유기 응집제인 양이온성 또는 음이온성 유기응집제인 PAA (Poly acrylamide)를 첨가하였다. 각 응집제 첨가 후 5 분간 300 rpm의 급속교반과 이후 15 분간 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. 또한 실폐액 수준의 대상 핵종의 농도를 가지는 동위원소를 사용하여 핵종 공침-응집 제거 효율을 평가하였다.

3. 결과 및 토의

용해도 보다 낮은 극미량 금속이온의 제거는 Fe(+3)의 첨가와 pH 조절에 따른 $Fe(OH)_3$에 의해 이루어진다. Fig. 2에는 증류수와 해수에서 대상 핵종을 Fe(+3) 100 ppm한 첨가 시, 공침에 의한 핵종제거율이 나타나 있다. Fe 없이 핵종의 가수분해에 의한 단순 침전은 pH 증가에 따라 증가하고, 약 pH 9에서 거의 최고에 도달하며 증류수에서 더 높이 일어난다. Fe를 첨가 시 핵종 제거율은 Fe 첨가 가 없는 경우에 비하여 크게 증가하고 pH 8 이후 거의 비슷하게 95% 이상 제거한다. 핵종 제거율은 해수나 증류수에서 비슷하나 증류수에서 다소 더 높음을 관찰할 수 있다.

$Fe(OH)_3$ 공침전물은 입자가 매우 작아 침강속도가 느려, 침강속도를 증가시키기 위한 Fe 침전물 입자크기를 증가시키기 위한 양이온성, 음이온성 PAA 유기 응집제를 첨가시키는 것이 필요하였다. Fig. 3과 Fig. 4에는 증류수와 해수에서 PAA 첨가 유무에 따른 핵종 총제거율이 나타나 있다. PAA 첨가 유무에 관계없이 핵종 제거율은 거의

일정함을 볼 수 있다. 이것은 PAA는 Fe 공침전물의 침강속도는 증가시키지만 핵종 제거 역할을 하지 못함을 의미한다.

Fig. 5에는 400 ml 증류수와 해수에서 PAA가 없는 경우와 양이온성 음이온성 PAA를 사용 시, 최종 floc의 부피가 나타나 있다. 증류수와 해수의 경우 모두 음이온성 PAA를 사용하는 것이 전체적으로 최종 플럭 부피가 최소화 되는 것을 볼 수 있었다. 따라서 핵종 제거 후 최종 플럭 부피를 최소화 하기 위해서는 음이온 응집제를 선택하였다.

Fig. 6에는 실폐액 수준의 대상 동위원소 핵종을 사용하여 Fe(+3)의 농도를 변화시킬 때 0.006 g/L 음이온성 PAA를 사용 시, 총 핵종제거율이 나타나 있다. 증류수, 해수 모두에서 공침제 Fe 농도가 증가할수록 핵종 제거율이 증가하며 증류수에서 보다 높은 제거율이 나타났다.

본 연구에서는 일련의 실험을 통해 중대사고 시 발생 폐액 중 Cs, Sr, I을 제거 후 잔류하는 Mn, Co, Sb, Ru 핵종을 99% 이상 제거할 수 있음을 확인하였다.

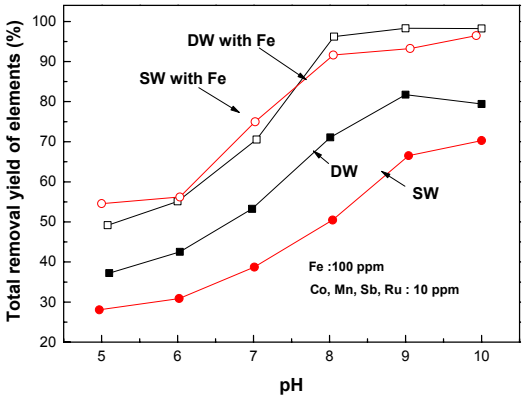


Fig. 2. Removal yields of total elements in distilled water and seawater with and without Fe(+3) ion with a increase of pH.

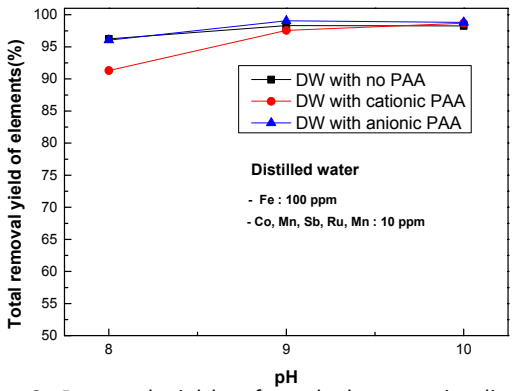


Fig. 3. Removal yields of total elements in distilled water by Fe coprecipitation accompanying PAAs.

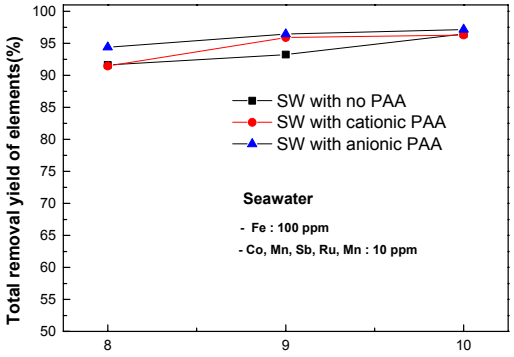


Fig. 4. Removal yields of total elements in seawater by Fe coprecipitation accompanying PAAs.

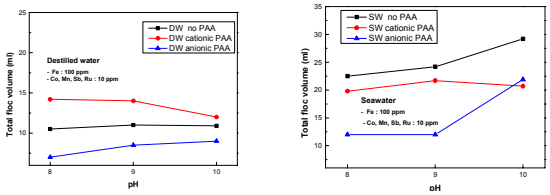


Fig. 5. Floc volumes using anionic and cationic PAAs at different pHs.

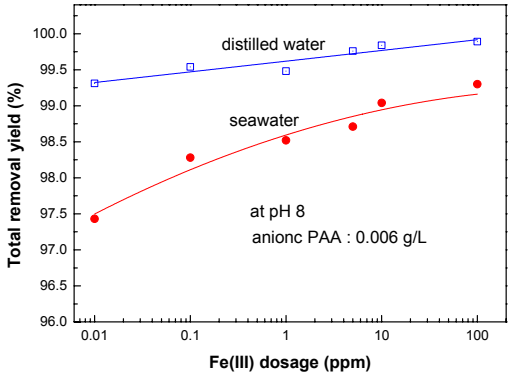


Fig. 6. Removal yields of total elements in distilled water and seawater containing nuclides with the similar concentration level to those in real wastewater with increasing Fe concentration.

4. 참고문헌

[1] TEPCO, http://www.tepco.co.jp/en/nu/fukushima-np/images/handouts_120326_08-e.pdf

[2] 김광욱, 이근영, 백예지, 박민성, 이일희, 정동용, 문제권, "후쿠시마 원전사고와 같은 원전 중대사고 시 발생하는 방사성폐액 처리 대응개념", 한국방사성폐기물학회 2014 추계학술발표회 논문요약집, 12(1), 349-350, 5.7~9, 2014, 평창.

해체공정 통합평가 시뮬레이터를 위한 격납용기 내 공간선량률 평가 방법 연구

김근호*, 최병선, 정관성, 현동준, 이종환, 김익준, 서재석, 문제권
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*ghkim7@kaeri.re.kr

1. 서론

원전과 같은 원자력시설이 설계수명에 다다르게 되면 시설의 노후화에 따른 기능의 상실이나 이로 인한 안전성을 보장하지 못하는 단계에 이르게 된다. 그리고 최종적으로 해체의 단계에 들어서게 된다[1]. 한편 원자력 시설의 해체공정은 비용과 시간이 많이 소요되는 위험한 공정이므로 시뮬레이션을 통한 공정 최적화 과정을 통해서 비용과 시간을 절감하고 공정의 위험성을 미리 평가하여 안전성을 향상시키는 과정이 필수적이고[2] 작업장 내 공간선량률 평가 역시 시뮬레이션의 필수 요소 중 하나로 판단된다. 작업 전 공간 내 방사선량률을 평가하는 것은 합리적인 시나리오를 생성하도록 하고 작업자의 방사선학적 안전성을 확보하는 것이 가능하게 하기 때문에 상당히 중요하다[1]. 또한 해체공정 평가시 방사화된 핵심설비의 존재 유무에 따른 공간선량률의 변화 기술은 해체공정을 시뮬레이션에 필요한 기술 중 하나이므로 이에 대한 연구가 필요하다.

본 연구에서는 두 가지 공간선량률 평가방법의 비교를 통해 해체공정 통합평가 시뮬레이터에서 공간선량률을 평가하기 위한 기술을 제안하고자 한다.

2. 본론

2.1 Methodology

2.1.1 Methods

격납용기 내 여러 핵심설비가 동시에 공존 또는 제거될 경우 공간선량률 평가방법론 구축, 평가하기 위하여 과거 수행된 두 가지 다른 산출방법을 적용하였다[3]. 핵심설비들이 격납용기 내에 각각 단독으로 존재할 경우의 얻어진 각각의 공간선량률 결과 값을 합산하는 방법과 모든 핵심설비들이 격납용기 내에 함께 존재 하도록 MCNP 입력문을 작성하여 결과 값을 얻는 방법을 비교하였다. 본 연구에서는 해체상황에서 작업자의 외부피폭에 주된 영향을 미치는 핵종인 ^{60}Co에 대하여 고려하였고 사용한 ^{60}Co의 방사화 재고량 값은 RPV와 SG의 경우 운전정지 직후의 ^{60}Co의 재고량으로 환산하여 사용하였고, RCP와 PZR은 SG와의 계통특성상 유사할 것으로 가정하여 SG와 동일한 방사화 재고량 값을 사용하였다. 선원의 위치는 다음과 같이 설정하였다. RPV의 경우 노심이 위치하는 부분으로 설정하였고 SG는 tube bundle이 위치하는 하부 실린더부분을 선원으로 설정하였으며 RCP는 펌프 부분을, PZR은 계통의 고온관과 연결되어 있는 밀림관이 위치한 하부를 선원으로 설정하였다.

Fmesh tally에서의 값을 선량으로 환산하기 위하여 ICRP60에서의 Flux-to dose conversion factor를 사용하였다. 공간선량률 평가범위는 원전 격납용기 전체로 설정하였고 약 50×50×50 cm^3 크기의 Fmesh tally를 이용하였다. 또한 nps는 1.0×10^{10}을 적용하였다.

2.1.2 Material

본 연구의 주요 평가 대상은 고리 원전 1차계통의 핵심설비인 RPV, SG, RCP, PZR와 이를 둘러싸고 있는 콘크리트 차폐벽 이다. 각 핵심설비의 재원은 다음과 같다. RPV는 길이 1,147 cm, 내부반경 168 cm, 두께 16.8 cm의 실리더형으로 양 끝단이 반구형으로 구성되어 있으며, RPV 상단부에는 2쌍의 inlet 및 outlet 노즐이 있다. SG는 길이 2,005 cm, 두께 9 cm, 내부직경은 상부 223 cm, 하부 171 cm의 실린더형으로 양 끝단이 반구형으로 구성되어 있다. 또한 RCP는 길이 799 cm, 두께 10 cm의 복잡한 형상을 가진 구조물이고 PZR은 길이 908 cm, 두께 15 cm의 원기둥 형태에 상부는 반구형으로 구성되어 있다. 핵심설비를 둘러싸고 있는 콘크리트 차폐벽은 MCNP 모델링의 편의를 위하여 내부 부피가 서로 다른 직육면체가 상하로 결합되어있는 모양으로 modeling 하였다(Fig. 1 참조). 연구에 모델링한 시설의 치수는 고리 1호기 설계 도면을 기준으로 하였고 각각의 재질 및 밀도는 Carbon steel (7.86 g/cm^3), 콘크리트(2.242 g/cm^3)이다.

2.2 Results

MCNP를 이용하여 모델링한 핵심설비 및 콘크리트 차폐벽에 대한 3D 형상은 Fig. 1과 같다. 또한 모델링의 3D 형상은 중국과학원에서 계발한 MCAM software를 이용하여 도시하였다.

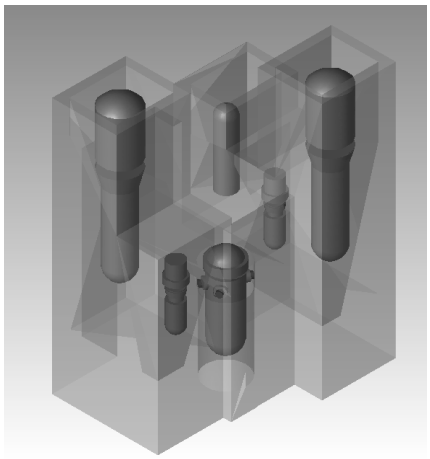


Fig. 1. 3D modeling of main component at KORI-1 using MCNP.

두 평가방법의 비교를 위하여 모든 핵심설비 주변의 공간선량률을 확인 할 수 있는 높이인 약 20 m 지점에서 두 방법을 적용하여 공간선량률을 비교해 보았고 핵심설비 주변의 공간선량률은 95% 이상 동일한 것을 확인할 수 있었다.

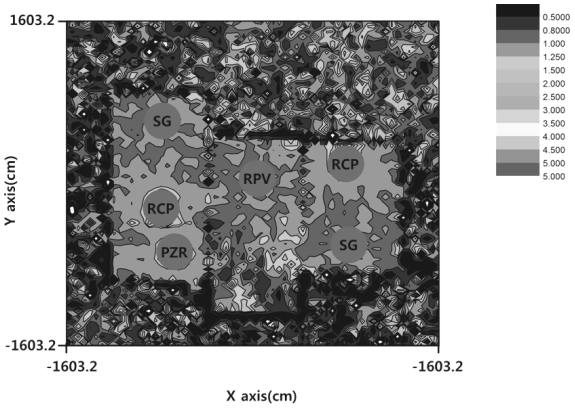


Fig. 2. The ratio of the total calculating case with summing case.

해체공정 평가시 공간선량률은 핵심시설이 제거 될 때 마다 즉각적인 공간선량률의 변화가 필요하다. 즉, 단일 핵심설비를 선원으로 하는 격납용기 전체 공간선량률을 DB화 하면 차후 해체작업시 제거된 핵심설비에 대한 격납용기 내 공간선량률의 영향을 즉시 적용, 평가 할 수 있을 것으로 판단된다.

3. 결론

본 연구에서는 두가지 공간선량률 평가 방법 비교를 통하여 해체공정 통합평가 시뮬레이터의 적용에 적합한 공간선량률 평가 방법을 구축하였다. 다중선원에 대한 공간선량률 평가방법론의 경우 결과값은 거의 동일하지만 해체환경이 변할 때마다 새로운 입력문을 작성해야 하는 경우 보다는 단일 핵심설비 각각의 공간선량률 결과값에 대해 database를 구축하여 변화된 해체환경에 쉽게 적용할 수 있는 방법이 해체공정 평가를 위한 시뮬레이션의 적용에 유용할 것으로 판단된다. 향후 RCP, PZR에 대한 방사화재고량 자료 확보를 통하여 더욱 정확한 격납용기 내 공간선량률 평가가 이루어 질 수 있을 것으로 판단된다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 재원으로 시행하는 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] G.H. Kim, T.H. Kim, K.S. Jeong, D. Hyun, J. Moon, and B.S. Choi. "Radiological Assessment of the Dose Distribution around RPV". Asian Journal of Chemistry, Vol. 25, No.12: 7047-7050, 2013.

[2] 김익준, 김근호, 문제권, 서재석, 이종환, 정관성, 최병선, 현동준, "원자력 발전소 주요 부품의 해체 시뮬레이션을 위한 CAD모델의 절단 방법", 방사성폐기물학회 2014 춘계학술논문요약집, 12(1), 225-226 (2014).

[3] 김근호, 최병선, 정관성, 현동준, 이종환, 서재석, 문제권, "MCNP를 이용한 증기발생기 주변 공간선량 전산모사", 한국원자력학회 2014 춘계학술논문요약집, 12(1), 225-226 (2014).

원자로 압력용기 해체 작업용 고하중 매니퓰레이터 설계

김창회*, 서용칠, 이성욱, 최병선, 문제권
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*chkim3@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력발전소의 핵심설비 (원자로압력용기, 증기발생기, 원자로냉각재펌프, 가압기)는 중량과 부피가 크고 복잡한 구조로 되어 있으며 고방사화로 인하여 작업자의 접근이 용이하지 않기 때문에 원격으로 해체 대상물을 절단하고 이송하기 위한 매니퓰레이터의 사용이 불가피하다.

본 논문에서는 고리1호기 원전에 대한 원자로 압력용기 해체 시나리오 기반으로[1], 원자로압력용기 해체를 위한 고하중 매니퓰레이터를 설계하였다.

2. 본론

2.1 원자로압력용기 해체 작업 공간 분석

원자로 수조 옆에 설치되는 원자로 압력용기 해체 설비는 절단하고자 하는 원자로 압력 용기의 부분을 올려놓고 고정한 후에 회전을 시켜주는 턴테이블(turntable)과 band saw, circular saw 등으로 구성된다[2].

원자로 압력용기 해체설비가 작업할 수 있는 공간은 원자로 옆 수조의 약 7.2x5.4x10.4 m 정도 크기이다. 제일 넓은 작업 공간을 필요로 하는 Core barrel에서 thermal shield 분리나 former 분리 작업 시에 작업공간을 확보하기 위해서는 매니퓰레이터를 수직으로 상/하 이송시키는 이송 장치를 필요로 한다.

매니퓰레이터의 길이가 약 2.6 m 이상이 되면 Cotrol rod guide tube 나 Instrument guide tube 제거를 위한 작업공간의 확보가 가능하다. 매니퓰레이터 끝단에 부착된 유압절단기, 워터젯 등의 절단기를 사용하여 턴테이블 위의 임의의 위치와 방위에 위치한 튜브를 절단하기 위해서는 6 자유도를 필요로 한다. Fig. 1은 고하중 매니퓰레이터의 배치 개념을 보여준다. 매니퓰레이터의 베이스 위치에서 주변의 부품인 circular saw와 container 사이의 거리가 협소하여 매니퓰레이터는 슬림한 형태로 설계되어야 한다.

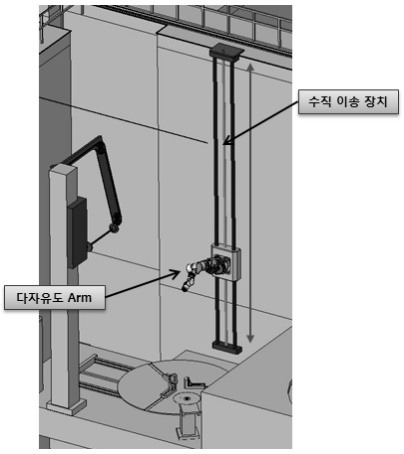


Fig. 1. Manipulator layout.

2.2 고하중 매니퓰레이터 설계

고하중 매니퓰레이터는 절단 작업뿐만 아니라 절단 시스템의 유지 보수에도 활용이 가능하며, 절단 시스템의 부품을 핸들링하기 위해서는 약 250 kg의 가반하중을 필요로 한다.

산업용 로봇은 일반적으로 기구학 해석 및 끝단 방향 계산이 용이한 Spherical 손목 구조를 가지나 본 논문은 작업공간이 넓은 non-spherical 손목 구조로 매니퓰레이터를 설계하였다. 또한 어깨를 병진운동 관절로 구성하여 작업공간을 확장하였다. Fig. 2는 설계된 매니퓰레이터의 형상을 보여준다

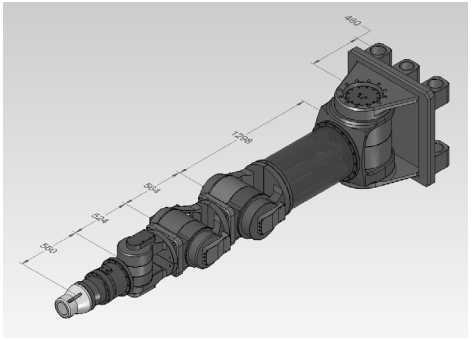


Fig. 2. Design shape of the manipulator.

2.3 매니퓰레이터 작업공간 경계면 생성

원자로 옆 수조에 설치된 이송장치에 부착된

매니퓰레이터는 제한된 작업 공간 내에서 절단 작업을 수행하여야 한다. 절단대상물의 위치가 매니퓰레이터의 작업 공간 내에 위치하는지, 다른 구조물이 존재하는 지 등을 3차원 그래픽 환경에서 시각적으로 확인을 할 수 있지 위하여 매니퓰레이터 작업 공간 경계면을 생성하였다.

작업공간 생성 원리는 3차원 폐곡면으로 이루어진 작업 공간의 경계를 단층 곡선의 형태로 추출하여 작 절단 곡선을 조합하여 작업 영역을 형상화 한다. Fig. 3는 경계면 생성 알고리즘을 적용하여 구한 작업공간 경계면 형상을 보여준다.

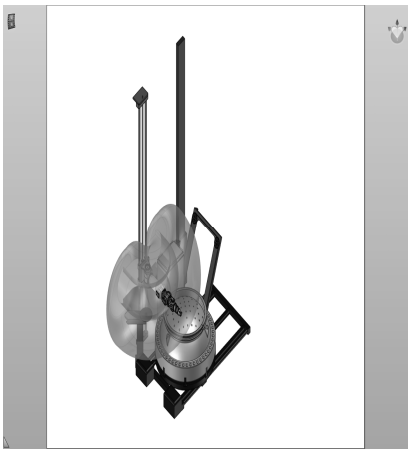


Fig. 3. 3D shape of the workspace boundary.

2.4 매니퓰레이터 역학 해석

매니퓰레이터의 끝단에 250 kg의 부하가 부착한 상태로 관절 구동이 가능하도록 모터와 감속기가 적절하게 선정되었는지를 검증하기 위하여 상용 동역학 해석 프로그램을 사용하여 각 관절의 구동 토크를 시뮬레이션하였다. 매니퓰레이터의 각 관절의 최대 구동 토크는 Table 1과 같으며 선정된 각 관절의 모터 및 감속기는 최대 구동 토크를 만족함을 확인하였다.

Table 1. Maximum torque of joints(Nm/N)

1 축	2 축	3 축	4 축	5 축	6 축
4,285	1,877	7,407	4,580	2,325	84

매니퓰레이터의 설계 데이터를 상용 응력해석 프로그램에서 링크 단위로 재구성하여 응력 해석을 수행하여 구조적 안전성을 검증하였다. Fig. 4는 매니퓰레이터 링크의 응력 분포를 보여주며 Table 2는 각 링크가 받는 최대 응력을 나타낸다. 알류미늄 70 계열의 항복강도가 145 MPa이므로 설계된 매니퓰레이터는 약 2 배의 안전율을 확보했음을 알 수 있다.

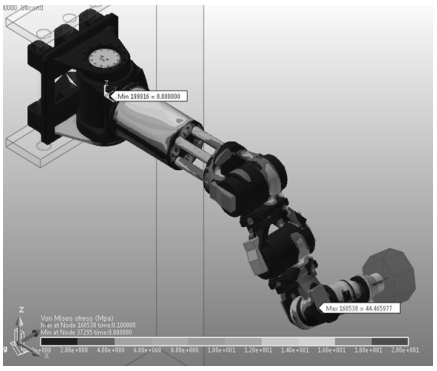


Fig. 4. Stress analysis of the links.

Table 2. Maximum stress of links(MPa)

1 축	2 축	3 축	4 축	5 축	6 축
26	53	79	73	39	86

3. 결론

본 논문에서는 원자로 압력용기 해체용 매니퓰레이터를 설계하였다. 이를 위하여 해체 작업 환경을 분석하고 매니퓰레이터의 작업공간을 분석하고 기구학적 변수의 타당성을 입증하였다. 동역학 시뮬레이션을 수행하여 부하 250 kg을 부착한 상태로 각 관절이 허용 토크 범위 내에서 구동 가능하도록 설계되었음을 확인하였다. 또한 응력해석을 통하여 2 배의 안전율을 확보하였음을 확인하였다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 재원으로 시행하는 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] 최병선, "원전 핵심설비 해체공법 평가기술 개발", 산업통상자원부, 2013.

[2] Dongjun Hyun et al, "Seamless remote dismantling system for heavy and highly radioactive components of Korean nuclear power plants", *Annals of Nuclear Energy*, 73, 39-45, 2014.

원전시설 해체활동 분류체계 확립을 위한 기술현황 분석

박희성*, 송찬호, 진형곤, 박승국, 문제권
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*parkhs@kaeri.re.kr

1. 서론

TRIGA 연구로 시설 해체 경험을 바탕으로 원전 시설 해체사업 정보관리가 수행되고 있다. 안전성과 경제성을 우선시 하는 연구로 시설 및 원자력 시설 해체는 시스템이 복잡한 만큼 관리하기가 까다롭다. 해체 계획 수립 시 해체 규제 및 해체 기준을 어떤 시나리오를 선택하느냐에 따라 해체 일정과 비용이 천차만별로 차이가 발생하게 된다. 이미 원자력발전소를 해체한 나라들이 경험을 통해 얻은 교훈을 보게 되면 여러 사례에서 이러한 사실들을 확인할 수 있다. 원자력 시설을 해체하는 과정에서 매 단계마다 초기에 수립된 요구사항들이 올바로 지켜지고 있는지를 확인하기 위해서는 해체활동들에 대한 체계적인 관리가 필요하다. Fig. 1에서 보는 봐와 같이 원자력 시설 해체 전 수명주기 동안 수행해야 되는 해체 활동들은 단계마다 해체 규제와 해체 기술 기준 등을 확인해야 한다. 이때 기초가 되는 것이 해체 활동 작업분류체계(WBS: Work Brealdown Structure)이다. 본 논문에서는 원자력시설 해체정보 사업관리를 효과적이고 체계적으로 관리하기 위한 전략으로 국내외 해체와 관련한 작업분류체계사례를 설명하고자 한다.

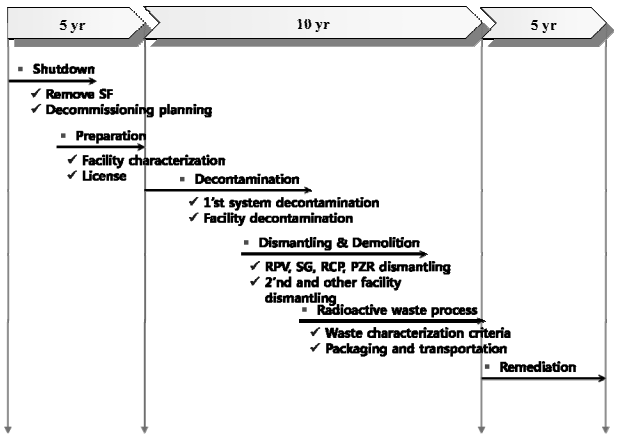


Fig. 1. Decommissioning lifecycle of nuclear power plant.

2. 본론

2.1 국내 현황

한국 원자력연구원은 연구로 2호기를 해체하면서 발생한 자료들을 이용하여 해체 폐기물량과 해체 비용을 평가하기 위해 연구로 시설과 관련한 작업분류체계를 활용한 사례가 있다[1]. 한국전력기술은 원자력발전소 건설과 관련하여 설비분류체계 (PBS: Physical Breakdown Structure)와 기능분류체계 (FBS: Functional Breakdown Structure)의 조합을 통해 계약관리와 성과관리를 목적으로 원전 건설사업 전체 역무에 대한 계층적이고 체계적인 시스템을 개발하였다. 한국전력 국제원자력대학교대학원 (KINGS)은 원전 시공분야 공정관리의 기준이 되는 시공관리기준공정표 (IPS: Integrated Project Schedule)를 이용하여 원자로 건물을 대상으로 해체 작업분류체계를 세분화 하였다[2].

2.2 국외 현황

스웨덴은 작업분류체계를 사용하여 예비적으로 Forsmark 원자력 발전소의 해체 비용을 평가한 사례가 있다[3]. 작업분류체계 개념을 폭 넓게 사용하고 있는 ISDC (International Structure for Decommissioning Costing of Nuclear Installations)는 해체 사업관리를 위해 정의된 해체 활동들에 따라 비용을 계산하고 있다. 작업분류체계는 해체 사업을 관리하고 기획하기 위해 정의된 일련의 해체 작업 패키지에 따라 해체 활동들을 관리한다. 해체 비용은 기본적인 해체 활동들을 위해 결정된다[4]. 미국의 양키 로우 발전소는 1991년 10월 1일 영구정지가 결정되었고, 1993년 12월 20일 NRC에 해체계획서가 제출하였으며, 1995년 2월 14일 해체 수행 인정을 받았다. 양키로우 발전소 해체 사업자는 해체 사업초기에 작업분류체가 필요하다는 사실을 인지하였으며, 해체 사업 전 주기 동안 작업분류체계를 통한 해체 사업의 유지관리를 요구하게 되었다. 이로 인해 작업분류체계에 기초한 해체계획서가 작성되었다. 양키로우 발전소 해체에서 가장 귀중한 교훈 중 하나는 해

체비용이 해체 베이스라인 일정과 통합해서 평가되었다는 점이다[5]. OECD/NEA는 해체 비용을 검토할 수 있는 근거로 작업분류체계를 활용하고 있다. 해체 시설의 특성 자료와 물리적인 설명 자료들을 작업분류체계로 작성해 놓음으로써 해체 비용 평가 때 유용하게 사용하고 있다. 대표적인 사례로 정의된 작업분류체계 항목과 비교함으로써 단계별 해체 전략 내용과 일치하고 있는지를 확인할 수 있다.

2.3 해체정보 사업관리 작업분류체계 (WBS: Work Breakdown Structure)

일반적인 사업관리 프로세스에 의하면, 초기 단계에서 이해당사자들의 요구사항을 정의하고 문서를 만든 후 사업관리의 범위와 목표 및 인수기준들을 정의한 기술서 들을 작성한 후 작업분류체계를 작성하게 된다. 작업분류체계의 입력물(input)은 사업관리 범위 기술서와 요구사항 문서 그리고 조직, 프로세스, 자산 등이 있으며, 작업분류체계 도구을 사용하여 작업분류체계 사전과 범위 기준선 및 프로젝트 문서를 갱신하게 된다. Fig. 2는 해체정보 사업관리에 사용될 작업분류체계의 데이터 흐름을 나타내고 있다.

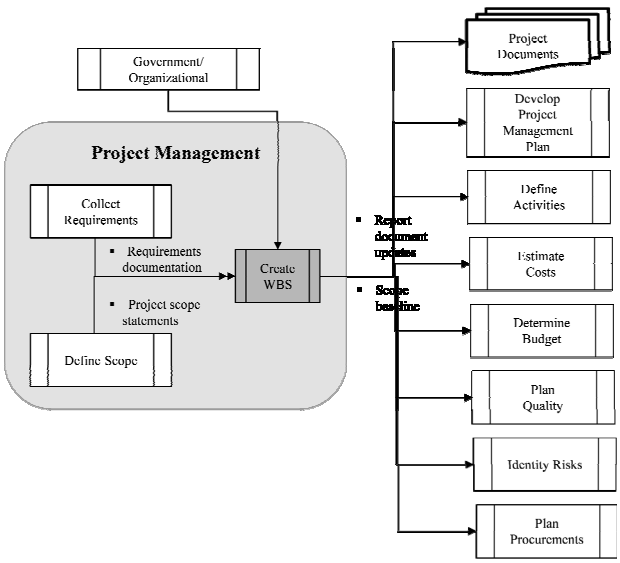


Fig. 2. Conceptual diagram of the WBS in the decommissioning information project management.

3. 결론

원자력 시설 해체 경험이 전무한 현실에서 해체정보 사업관리를 효율적으로 관리하기 위해서는 선행단계에서 해체 작업분류체계가 수립되어야 한다. 특히 해체 계획서의 일반요건과 제염 및 해체활동 그리고 방사선 폐기물관리와 관련한 요건들을 만족시키기 위해서는 해체 작업분류체계가 준비되어 있어야 한다. 향 후 개발할 해체 작업 분류체계는 방사선/능 분포와 해체 폐기물량, 해체 작업 피폭선량 평가 그리고 해체 일정 및 해체 비용을 평가하는데 기초자료로 활용할 수 있다.

4. 감사의 글

이 논문은 2015년도 미래창조과학부의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임.

5. 참고문헌

[1] Hee Seong Park, Seung Kook Park, Chan Ho Song, Jei Kwon Moon, "A Matric System Combining NPP facilities information and decommissioning activity information," Transaction of the Korean Nuclear Society Autumn Meeting Pyeongchang, Korea, October 30-31, 2014.

[2] 김장욱, 김창락, "원전 시공 관리기준공정표를 활용한 원전해체 WBS개발 방법에 대한 고찰," 2013 한국방사성폐기물학회 춘계학술대회 논문요약집.

[3] Ake Anunti, Helena Larsson, Mathias Edelborg, "Decommissioning Study of Forsmark NPP", SKB R-13-03, ISSN 1402-3091.

[4] NEA/OECD, "International Structure for Decommissioning Costing (ISDC) of Nuclear Installations, Radioactive Waste Management", ISBN 978-92-64-99173-6, 2012.

[5] M. S. Terrell, et al, "DECOMMISSIONING LESSONS LEARNED AT YANKEE ROWE", WM'01 Conference, February 25-March 1, 2001, Tucson, AZ.

KRR-2 해체사업과 해외 해체경험자료에 기반한 해체단위비용 산출방법

송찬호, 박희성, 진형곤, 박승국*
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*chanho@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원(KAERI)은 수명이 다한 연구용 원자로 2호기(KRR-2), 우라늄 변환시설(UCP)에 대한 해체를 수행했다[1]. 또한 미국이나 일본과 같은 나라에서는 이미 원전을 해체한 경험을 가지고 있으며 해체비용과 관련된 보고서를 발간한다. 이러한 보고서는 국내 해체단위비용을 비교하는 데 이용할 수 있는 가치 있는 자료로 사용될 수 있다. 특히, 국내의 경우 원전을 해체한 경험이 없으므로 실제 원전의 해체비용을 평가하기 위해서는 다른 국가의 해체경험 데이터를 비교하는 방법이 필요하다.

본 논문에서는 KRR-2 해체 사업에 기반하여 실제 해체경험이 없는 상황에서 원자력발전소를 대상으로 해체비용을 예측하기 위한 방법을 소개한다.

2. 해체 경험국가에서 해체 단위비용 산출의 방법

2.1 KRR-2의 해체단위비용 산출 방법

KRR-2의 해체 경험 데이터는 시설코드와 WBS 코드로 나누어 데이터베이스를 구축하였다[1]. WBS코드는 해체 작업(GD), 유지보수(GE), 방사선/능관리(RP), 폐기물관리(WM), 품질관리(QC), 전문가활용(SE), 공통업무(CO)로 나누어 정의되어있다.

Table 1. Unit cost factor of the K2-9.3

Total weight of K2-9.3 : 15,340kg

Work Field	(m-h/kg)
GD	0.0137
GE	0.0001
RP	0.0057
WM	0.0015
QC	0.0021
SE	0
CO	0
SUM	0.0231

예를 들어, Table 1에서 보는 것처럼 K2-9.3은 열교환기를 해체할 때 총 15,340 kg의 해체 대상물을 GD, GE, RP, WM, QC의 작업분야로 구분되고 총 단위생산성 값은 0.0231 m-h/kg이다.

KRR-2의 해체공정에 대해 산출하기 위해서는 시간당 작업비용이 필요하다. 이에 대한 비용은 대한건설협회에서 제공하는 정부노임단가를 이용한다.

Table 2. Decommissioning work field associated with the government labor cost

Work Filed	Job Family	Labor Cost
GD	Major in Nuclear Plant	₩194,339
GE	Nuclear Welder	₩189,944
RP	Major in Nuclear Plant	₩194,339
WM	Major in Nuclear Plant	₩194,339
QC	Nuclear Quality Manager	₩228,353
SE	Major in Nuclear Plant	₩194,339
CO	Major in Nuclear Plant	₩194,339

Table 2는 2015년 상반기에 공표된 정부노임단가와 KRR-2의 해체작업 분야를 연관시킨 표이다[2].

Table 3. Decommissioning work field associated with the government labor cost

Total weight of K2-9.3 : 15,340kg(ⓑ)

Work Field	Unit Productivity Factor		Cost/Unit(₩)
	m-h/kg(ⓐ)	m-h(ⓐXⓑ)	
GD	0.0137	210.158	₩ 5,105,237
GE	0.0001	1.534	₩ 36,422
RP	0.0057	87.438	₩ 2,124,077
WM	0.0015	23.01	₩ 558,968
QC	0.0021	32.214	₩ 919,520
SE	0	0	₩ -
CO	0	0	₩ -
SUM	0.0231	354.354	₩ 8,744,223

Table 3은 식(1)의 계산식을 이용하여 표로 계산과정을 간략히 정리했다. Table 3에서 정리한 내용에 따르면 K2-9.3은 총 354.354m-h가 소요되며 여기에 정부노임단가를 곱하면 Cost/Unit가 산출된다. 특히, K2-9.3은 GD작업을 할 때 가장 많은 비용을 지출하고 RP가 두 번째로 많은 비용을 지출함을 알 수 있다. 모든 작업분야를 합한 총 해체단위비용은 ₩8,744,223이 발생하는 것을 알 수 있다.

2.2 일본 및 미국의 해체단위비용 산출의 예

일본원자력연구원 (JAEA)는 JPDR을 해체한 데이터를 이용하여 Code System for Management of Reactor Decommissioning (COSMARD)을 개발하였다[3].

Table 4. The unit cost factor for the heat exchanger in the JPDR

Level	Code	Unit Cost Factor	Mh/Kg
1	JB	General Dismantling	•
2	2040	Heat Exchanger	•
3	L1	1M3 Vehicle, Bio Shield for HE, Shutdown of HE, Feedwater Heater, Fuel fool of HE	0.026

Table 4는 Japan Power Demonstration Reactor (JPDR)의 열교환기를 해체하면서 발생한 단위비용 인자의 예이다.

미국은 다른 국가에 비해 많은 원전 해체 경험을 가지고 있으며 미국의 단위비용인자는 해체비용을 비교적 자세히 서술한 Vermont Yankee Nuclear Power Station(VYNPS)을 대상으로 하였다[4]. VYNPS는 단위비용인자를 만들 때 발전시설들을 대상으로 작업시간당 노임단가, 작업 난이도 인자를 고려하여 해체 비용을 산정했다.

Table 5. The unit cost factor for the heat exchanger in the VYNPS

Unit Cost Factor	Cost/Unit
Removal of clean heat exchanger <3000 pound	$1,528.53
Removal of clean heat exchanger >3000 pound	$3,835.76
Removal of contaminated heat exchanger <3000 pound	$3,414.57
Removal of contaminated heat exchanger >3000 pound	$9,912.93

Table 5는 VYNPS의 해체대상 시설 중 열교환기의 단위비용인자를 정리한 표이며 대상물의 크기나 오염여부에 따라 구조물의 비용이 크게 차이 나는 것을 알 수 있다.

2.3 NPP와 국내외 해체시설의 매칭 테이블의 예

국외 해체시설과 NPP의 유사한 해체시설의 매칭을 위하여 정리한 자료를 Table 6과 같이 데이터베이스를 구축하였다.

Table 6에서 보는 것처럼 국내 해체시설과 각 국가별로 해체시설을 비교할 수 있다. 그러나 각 국가별로 비용을 산출하는 방법에 따라 KRR-2와 국외자료를 비교하기 어려워진다. 이처럼, 해체비용을 산출하는데 각국에서 서로 다른 방법으로 산출하고 있으며 통일된 해체비용 산출방법이 필요하다는 것을 의미한다.

Table 6. The unit cost and factor for the heat exchanger in the each country

Classification	Unit Cost Factor of The Heat Exchanger		
Target	KRR-2	JPDR	VYNPS
Weight	15,340kg	•	>3000 pound
UPF	0.0231m-h/kg	0.026m-h/kg	•
Cost/Unit	₩8,744,223	•	₩11,157,002.72

3. 결론

국내에서는 원전해체를 해본 경험이 없기 때문에 원전에 대한 해체비용을 산출하는데 어려움을 겪고 있다. 본 논문에서는 이를 해결하기 위해 이미 해체를 경험한 KRR-2 구조물의 제원과 단위생산성 인자 등 여러 해체정보인자들을 이용하고 각국에서 사용하는 해체비용 산출방법을 일치시켜 실제 원전의 해체비용을 예측하고자 한다. 이에 따라 단위비용 산출이 정확하게 이루어질 경우 NPP에 대한 비용 산출도 어느 정도 해체단위비용을 예측하는 지표로써 가늠해볼 수 있게 된다. 하지만 여전히 국내외 해체단위비용 산출에는 많은 차이점이 있다. 그러므로 정확한 해체비용을 비교하기 위해서는 통일된 해체비용 산출 체계를 이용해야만 계산의 정확성이 마련될 것이다. 향후 연구에서는 해외의 해체경험자료의 수집 및 검토를 통해 해체경험자료를 지속적으로 추가하여 해체단위비용 산출의 정확성을 확보한다.

4. 참고문헌

[1] 박승국, 조운형, 문제권, "원자력시설 해체작업에 필요한 유닛생산성 산출 시스템", 한국정보과학회, pp. 9-12, 2011.

[2] Construction Association of Korea, "2015 상반기 정부노임단가", www.cmpi.co.kr/manage/noim.asp, 2015.

[3] JAERI, "Development of Project Management Data Calculation Models Relating to Dismantling of Nuclear facilities", February, 1999.

[4] TLG Services, Inc., "DECOMMISSIONING COST ANALYSIS for the VERMONT YANKEE NUCLEAR POWER STATION", February 2012.

원전 주기기 해체순서 사례 분석

정완일*, 권용범, 정재훈, 이병식
한국전력기술㈜, 경기도 용인시 기흥구 용구대로 2354
*wanil@kepco-enc.com

1. 서론

원전 해체사업에서 핵심부품인 주기기의 절단 및 철거작업은 초대형이라는 외형적 규모와 함께 방사능 오염 정도가 가장 높다는 특성이 있어 치밀한 계획이 필요하다. 그 중에서도 Reactor Vessel(RV)과 그 내부부품(Reactor Vessel Internal, RVI)의 절단 철거작업은 가장 위험하고 어려운 것으로 평가되는 바, 이러한 고난도의 절단 및 철거 공정을 개발하기 위해 해외의 실제 해체 사례를 중점적으로 분석하며, Reactor Vessel(RV), Steam Generator(SG), Reactor Coolant Pump(RCP), Pressurizer, Reactor Coolant System(RCS) Pipe, Turbine Generator(TG) 등이 주요 대상이다.

2. 본론

2.1 주기기 해체 순서

주기기의 해체 순서를 해외 사례를 통해 파악한 결과 크게 두 가지 방식이 있는 것으로 나타났다.

첫째는 SG, RCP, Pressurizer 등의 기기를 먼저 철거하고 이어서 RVI 세절작업을 한 후 RV를 철거하는 방식이고, 둘째는 RVI 세절 및 철거를 먼저 하고 이어서 SG, RCP, Pressurizer 등을 철거하는 방식이다.

2.2 주기기 해체 사례

첫째 방식의 사례는 Maine Yankee 원전과 Connecticut Yankee 원전의 해체이며, 둘째 방식의 사례로는 Zion 원전과 San Onofre 원전 1호기의 해체 사례이다.

Maine Yankee 원전에서는 방사능 오염이 적은 SG, RCP, Pressurizer 등의 기기를 먼저 철거하고 그 후, 즉, 기기 철거 착수 후 약 1 년이 경과한 시점에서 RVI 세절에 착수하였으며, 비슷한 시기에 TG의 철거도 진행되었다. RVI 세절 후 Cavity 청소 및 배수에 약 1 년이 소요되었는데, 전체적으로 대형 주기기 철거에 약 2 년, Cavity 청소까지 총 3 년이 소요되었다. Maine Yankee의 주기기 철거 공정을 요약하면 Fig. 1 과 같다[1].

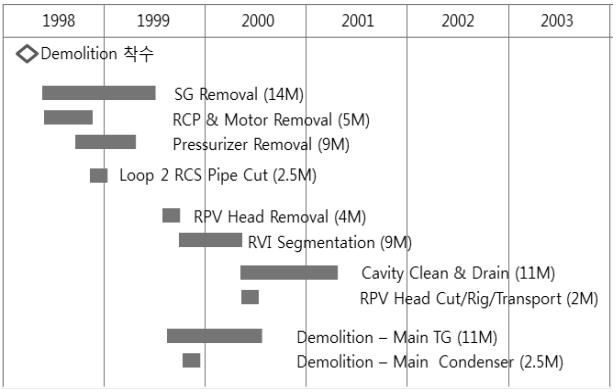


Fig. 1. Maine Yankee Large Components Dismantling Schedule (Summary).

Connecticut Yankee원전에서는 Maine Yankee와 동일하게 방사능 오염이 적은 SG와 Pressurizer 등의 기기를 먼저 철거하고 RVI 세절에 착수하였으며 RVI 세절에 장기간이 소요되었다[2].

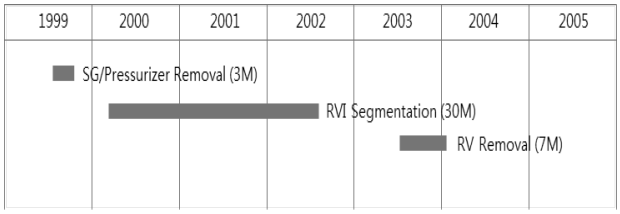


Fig. 2. Connecticut Yankee Large Components Dismantling Schedule (Summary).

San Onofre 원전 1호기에서는 RVI 세절을 먼저 착수하고 약 18개월 경과한 시점에서 SG, RCP, Pressurizer 등의 기기 철거를 착수하였으며, RVI 세절 완료 후 격납건물 지붕 콘크리트돔에 구멍을 뚫고 기기들을 동시에 인양, 철거하였고 TG는 이와 별도로 선 철거하였다.

Zion 2호기의 경우도 San Onofre 1호기와 유사한 순서로 공정을 계획하여 RVI의 세절을 먼저 수행하였으며[4] RV의 절단철거와 다른 기기들의 철거작업은 후속 수행하기로 계획되었다.

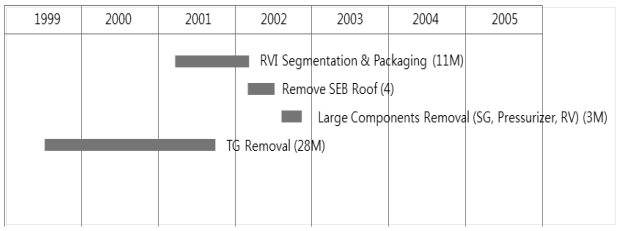


Fig. 3. San Onofre unit 1 Large Components Dismantling Schedule (Summary).

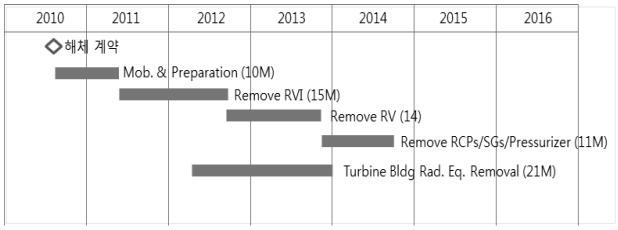


Fig. 4. Zion unit 2 Large Components Dismantling Schedule (Summary).

2.3 주기기 해체 순서 비교

이상의 해외 사례와 EPRI의 해체 경험 보고서를 참고하여 두 가지 방식을 비교하면 다음과 같다. 첫째 방식은 "Cold to Hot" 방식으로서 상대적으로 용이하고 덜 위험한 작업부터 수행함으로서 안전 및 학습효과 측면에서 유리하나 후반작업인 RVI 세절의 장기화 시 전체 공정이 장기화 될 가능성이 있는 것으로 예상된다. 둘째 방식은 "Hot to Cold" 방식으로 불리는데, 잠재적 Long Lead Item인 RVI 세절을 우선 착수하고 TG등의 다른 대형기기 철거작업을 병행함으로써 전체 공기 측면에서 유리하지만, 철거작업 초기부터 고난도, 고방사성 작업을 수행해야 하므로 작업 착수 전에 필요 장비의 제작, 성능시험 등 완벽한 사전 준비가 필요하고 이러한 준비 미흡 시 장비 성능 불량, 고농도 오염물질 확산 등 안전 및 공정에 불리한 영향을 미칠 것으로 판단된다.

따라서 원전 해체 경험이 일천한 경우에는 방식 1처럼 초기에 비교적 저난이도의 작업을 수행하면서 그 기간에 RVI 세절을 위한 고사양의 설비에 대한 제작, 시험을 진행하는 것이 기술적으로 유리한 것으로 판단되며, 방식 2는 원전 해체 경험이 많은 나라나 회사에서 선호하는 방식인 것으로 알려지고 있다. 이러한 장단점을 요약하면 아래 Table 1과 같다.

Table 1. Comparison of Large Component Dismantling Sequence

구분	방식 1 (Cold to Hot)	방식 2 (Hot to Cold)
작업 순서	SG, RCP, Pressurizer 철거 --> RVI 세절 및 RV 철거	RVI 세절, RV 철거 --> SG, RCP, Pressurizer 철거
사례	Maine Yankee, Connecticut Yankee	San Onofre 1, Zion 1 및 2
장점	상대적으로 용이하고 저 위험 작업부터 수행함으로서, 안전 및 학습효과 측면에서 유리. 격납건물내 작업공간 확보 유리	잠재적 Long Lead Item인 RVI 세절을 선 착수하고, TG 등의 다른 대형기기 철거를 병행하여 전체 공기 측면에서 유리
단점	후반 작업인 RVI 세절 장기화 시 전체 공정의 장기간 소요 (Connecticut Yankee 사례)	초기부터 고난도, 고방사성 작업을 수행함으로서, 장비 구매, 시험 등 착수 전 완벽한 사전준비 필요. 준비 미흡 시 안전 및 공정에 부정적 영향
선호	원전 해체 경험이 적은 경우 선호	원전 해체 다경험 국가에서 선호

3. 결론

본 논문은 해체사업 전 과정 중 가장 고난도의 작업인 주기기 해체작업 순서에 대해 해외 사례 중심으로 비교 분석한 것으로서, 원전 해체 경험이 전무한 국내 현실, 해체사업 여건, 장비의 제작, 성능시험, 안전성, 학습효과 등을 포괄적으로 고려하여 최적의 방안을 선정하여야 할 것이다.

4. 참고문헌

[1] EPRI, Maine Yankee Decommissioning Experience Report, 2005

[2] EPRI, Connecticut Yankee Decommissioning Experience Report, 2006

[3] EPRI, San Onofre Nuclear Generating Station Unit 1 Decommissioning Experience Report, 2008

[4] S. Chris Baker, Zion Project Overview, 2013

미국 NRC 해체 추정 비용 평가 현황

이재민*, 김진환, 김연화, 박진호
티유브이라인란드코리아, 서울특별시 구로구 디지털로길 31길 41 이엔씨벤처드림타워6차
*jaemin.lee@tuv.com

1. 서론

원전 해체 비용평가는 원전의 안전한 해체를 위한 구성요소 중 하나이다. 국내 원전 해체 비용 평가의 기초자료 확보를 위하여 미국 10CFR 50.75에서의 해체재정보증을 위한 해체추정비용 산정 방법과 원전에서의 산정현황 및 NRC의 해체기금 현황 분석자료를 검토하였다.

2. 본론

2.1 10CFR 50.75 에서의 해체추정비용

미국 10CFR 50.75에서는 원전 운영자로 하여금 원전 해체를 수행함에 있어 그 소요비용을 확보하도록 하고 있다. 10CFR 50.75(b) (1)에서는 해체재정보증(financial assurance for decommissioning)을 수행하여야 하며 이를 위한 최소 해체추정비용은 10CFR 50.75(c)에서 제시하는 비용이상이여야 함을 밝히고 있다. 해체추정비용은 임금, 에너지, 폐기물 비용 등의 요인을 보정하여 산정할 수 있다. NRC는 1986년 기준으로 가압경수로에 대하여 3400MWt 이상에 대하여 $105 million, 1200MWt ~3400MWt에 대하여 $75 million + 0.0088P, 비등경수로의 경우 3400MWt 이상에 대하여 $135 million, 1200MWt ~3400MWt에 대하여 $104 million + 0.009P로 산정하도록 하고 있다. 단 여기에는 사용후핵연료 건식저장을 위한 비용 및 부지 재이용을 위한 비용은 포함되어 있지 않다.

여기서 P는 원자로 출력 레벨(MWt)이며 1200MWt 이하인 경우는 P=1200이다. 또 1986년 이후의 최소재정보증액은 1986년의 값에 물가변동을 고려한 보정계수를 곱해서 구할 수가 있다. 보정계수는 다음과 같은 식으로 구해지며

$$0.65L + 0.13E + 0.22B \quad (1)$$

L은 노동, 재료 및 서비스 비용의 보정계수, E는 에너지와 폐기물 운반비용의 보정계수 B는 방사성 폐기물의 처분 비용의 보정계수이다.

2.2 해체추정 비용의 보정 계수

각 물가변동 계수 L, E는 U.S. Department of Labor Bureau of Labor Statistics(미국 노동성 통계자료)의 통계자료를 이용해야 하며 B는 NRC 보고서 NUREG-1307, "Report on Waste Burial Charges"을 참조하여 사용하여야 한다. NUREG-1307의 경우 약 2년 주기로 개정판이 배포되고 있으며 현재 개정판 15를 사용하고 있다. NUREG-1307의 해체 비용 산정에서도 현재 가치의 최소 해체추정비용은 다음과 같은 식으로 구할 수 있으며

$$\text{Estimated cost (Year X)} = [1986\ \$\ \text{Cost}] * (A*Lx + B*Ex + C*Bx) \quad (2)$$

여기서 (A*Lx + B*Ex + C*Bx)은 위 식(1)에 해당하며 여기서 A는 1986년 해체 비용 산정에서 노동, 재료 및 서비스 비용의 구성비, B는 에너지와 폐기물 운반비용의 구성비 C는 방사성 폐기물의 처분비용의 구성비이다. NUREG-1307 보고서에 의하면 각 비용의 구성은 다음 표와 같다.

2.3 Vermont Yankee 원전의 기금 현황 보고서

NRC에서는 미국내 원전을 4개 지역으로 분할하여 관리하고 있다. 위의 각 물가변동 계수의 경우도 각각의 지역별 현황자료를 바탕으로 산정해야 한다. Region 1부터 Region 4까지 구분되어 있다. 주기적 해체 기금 현황 보고서의 경우 최소 해체추정비용을 산정하고 현상황의 기금적립현황 및 경우에 따라서 부지별 해체비용평가를 포함하고 있다.

2014년 12월, 미국 Entergy Nuclear Operations Inc.사의 비등경수로형인 Vermont Yankee Nuclear Power Station에 대한 해체기금 현황 보고에 의하면 2014년 Region 1 지역에 대한 미국 노동성 통계자료와 NUREG-1307 rev. 15를 활용하여 해체추정비용을 산정하였다.

Table 1. Evaluation of the Coefficients A, B, and C

Cost Category	Reference PWR Values	Reference BWR Values
	millions 1986$	millions 1986$
Labor	17.98	35.12
Equipment	1.64	4.03
Supplies	3.12	3.71
Contractor	12.9	21.1
Insurance	1.9	1.9
Containers	10.9	8.14
Added Staff	7.5	4.4
Added Supplies	1.2	0.2
Spec. Contractor	0.78	0.71
Pre-engineering	7.4	7.4
Post-TMI-backfits	0.9	0.1
Surveillance	0.31	--
Fees	0.14	0.14
Subtotal	66.67	86.95
	A=0.64	A=0.66
Energy	8.31	8.84
Transportation	6.08	7.54
Subtotal	14.39	16.38
	B=0.14	B=0.12
Burial	22.48	29.98
	C=0.22	C=0.22
Total	103.54	133.31

1986년 기준으로 비등경수로형(BWR) 최소 해체 추정비용은 $121,208,000이며 이를 물가변동을 보정하였다. 통계자료에 따르면 L은 2.65, E는 2.56, B는 14.160이다. 총 보정계수는 5.17026이며 이를 1986년 비용에 곱하여 $626,676,406을 산정하였다. 최소 해체추정비용은 사용후핵연료 관리와 부지 재이용 등의 비용을 합하여 $817.22 million이고 2014년 10월 31일 현재 해체 기금 총액은 $654.96 million 이라고 밝히고 있다. 다음 표는 미국 NRC의 2013년도 해체기금 현황자료이다. 3000MWt 급의 가압경수로중 부지별 해체비용평가 자료를 제출한 원전의 추정치와의 비교이다. 일부원전의 경우 기금이 부족으로 평가되고 있으며 대부분의 원전은 NRC 추정비용 및 부지별 해체비용 이상의 기금 적립이 가능한 것으로 평가되었다.

Table 2. USA 2013 Decommissioning Funding Status

Plant Name	NRC Minimum Formula	Site Specific Cost Estimate
Braidwood Station, Unit 1	$521,778,396	$640,480,000
Braidwood Station, Unit 2	$521,778,396	$699,929,000
Byron Station, Unit 1	$521,778,396	$628,047,000
Byron Station, Unit 2	$521,778,396	$682,306,000
Callaway Plant	$521,778,396	$617,214,000
Clinton Power Station	$680,388,006	$960,325,000
Diablo Canyon, Unit 1	$521,602,311	$1,062,300,000
Diablo Canyon, Unit 2	$521,602,311	$1,100,400,000
Indian Point, Unit 2	$522,460,949	$799,740,000
San Onofre, Unit 2	$521,602,311	$1,214,400,000
San Onofre, Unit 3	$521,602,311	$1,201,000,000
St. Lucie Plant, Unit 1	$499,595,060	$534,825,000
St. Lucie Plant, Unit 2	$499,595,060	$517,410,000

3. 결론

미국 10CFR 50.75에서의 해체추정비용 산정 방법과 이에 따른 Vermont Yankee Nuclear Power Station의 비용평가현황 결과, 지역별, 구성요소별 물가변동을 반영하여 해체비용을 산정하고 있음을 알 수 있다. 해체기금현황 보고에 있어서 사용후핵연료관리 비용을 추가하여 산정하는 사례가 증가하고 있으며 부지별 특성 및 운전이력을 반영한 비용평가가 이루어지고 있음을 알 수 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 원자력안전연구센터 사업의 지원으로 수행하였습니다.

5. 참고문헌

[1] Energy Nuclear Operations, Inc., Update to Decommissioning Funding Status Report Vermont Yankee Nuclear Power Station, BVY14-082, 2014. 12.

[2] US Nuclear Regulatory Commission (USNRC), Summary of Findings Resulting from the Staff Review of the 2013 Decommissioning Funding Status Reports for Operating Power Reactor Licensees, SECY-13-0105, 2013. 10.

미국의 원전 해체 비용 평가 기초 자료 분석

이재민*, 신상화
티유브이라인란드코리아, 서울특별시 구로구 디지털로길 31길 41 이엔씨벤처드림타워6차
*jaemin.lee@tuv.com

1. 서론

미국 NRC는 1970년대 말부터 원자력시설 유형별로 해체기술, 안전성 및 비용에 대한 연구를 수행하였다. 가압경수로, 비등경수로. 핵연료재처리시설, 저준위방사성폐기물 처분시설, 핵연료 가공시설 및 연구로 등에 대한 다양한 연구를 수행하였다. 각각의 경우 참조원전을 설정하여 연구를 수행하였다. 이러한 기초자료를 통하여 국내 원전 해체 비용 평가의 방법론을 수립하고자 한다.

2. 본론

2.1 NUREG/CR-0130 에서의 원전 해체 비용평가

가압경수로의 경우 미국의 Trojan 원전(3500MWt, 1175MWe)을 참조로 해체 연구를 수행하였다. 가압경수로의 경우 각 시설에 대한 분석을 통하여 해체 물량 산정을 하였다. 방사화 및 표면 오염에 의한 방사선원항 분석을 수행하였으며 각 해체 전략 및 제염 방법에 따라 방사성폐기물량을 산정하였다. 가압경수로의 경우 40 년 운영을 전제로 30 Effective Full Power Year를 기준으로 산정하였다. 방사화분석의 경우 ANISN -ORIGEN 코드의 조합으로 원자로심 및 주변 구조물의 방사화를 분석하였다.

주요 원자로구조물의 총방사능량을 1.789E+17 Bq로 평가하였고 이를 영구정지후 냉각기간에 따라 방사능 감쇄경향을 분석하였다. 콘크리트 성분 중 정의되지 않은 미세한 희토류 물질에 의하여 실제 측정치와 계산 결과의 차이를 제시하였으며 콘크리트의 미량 성분 분석 또는 영구정지후 시료 채취 후 감마선 측정에 의하여 최종적인 정량분석을 하는 것이 적합하다고 제시하였다.

방사화 부식생성물의 경우 원자력 시설의 유지보수 자료를 근거로 평가하였으며 원자로 압력용기의 경우 총방사능량을 약 130Ci, 증기발생기의 경우 약 4400Ci, 가압기의 경우 약 4 Ci, RCS를 제외한 배관의 경우 약 60Ci, RCS 배관의 경우 약 160 Ci로 평가하였다.

가압경수로의 경우 1978년 기준으로 즉시해체의 경우 영구정지전 2년간의 준비 및 계획 단계를 포함하고 6년동안 해체를 완료하는 기준으로 $42 million의 해체 비용이 발생하며 작업자의 피폭선량은 약 1200man-rem으로 평가하였다. 지연해체의 경우 영구정지전 2 년간의 준비 및 계획 단계를 포함하고 3 년 동안 지연해체를 준비하는 기준으로 $13 million의 지연 해체 준비 비용이 발생하며 이 기간동안 작업자의 피폭선량은 약 420man-rem으로 평가하였다. 이후 처음 10 년간 연간 10man-rem 이후 30 년 또는 그 이후는 연간 연간 14man-rem으로 평가하였다. 지연해체의 경우 지연 기간동안 연간 약 $ 80,000 의 관리비용이 발생하는 것으로 평가하였다.

Table 1. Estimated Dismantlement Costs for Reference PWR – NUREG/CR-0130

Category	Cost in Millions of 1978$
Spent Fuel Disposal	2.467
Activated Materials Disposal	2.734
Containment Internal Disposal	0.961
Other Building Internals Disposal	4.222
Waste Disposal	0.693
Staff Labor	8.986
Electrical Power	3.500
Special Equipment	0.822
Miscellaneous Supplies	1.559
Facility Demolition(Non-radioacrive)	6.410
Special Contractors	0.390
Nuclear insurance	0.800
Environmental Surveillance	0.154
Sub total	33.698
25% Contingency	8.425
Total Dismantling Cost	42.1

지연 해체 비용은 지연 기간에 따라 10 년, 30 년, 50 년, 100 년의 경우 지연 해체 준비 비용을 합하여 각각 $50.2 million, $51.8 million, $46.8 million, $50.8 million로 평가하였다.

2.2 NUREG/CR-5884 에서의 원전 해체 비용평가

해체 전략에 따라 즉시해체(DECON), 지연해체(SAFSTOR), 차폐격리(ENTOMB)별로 해체 공정을 분석하고 이에 따라 비용을 평가하였다. 비용평가를 위한 주요 가정사항으로 30 Effective Full Power Year, 고연소도핵연료(48,000 ~ 60,000 MWD/MTU)에 대해서는 건식저장을 위해 최소 7년간 사용후핵연료저장조에서 냉각 등이 있으며 방사성폐기물 처분시설에 따른 비용편차에 대한 연구를 수행하였다. 설정에 따라 DECON, SAFSTOR1, SAFSTOR2, ENTOMB1, ENTOMB2, ENTOMB3에 대한 비용을 평가하였다. 비용 평가를 위해 참조원전의 기기, 배관, 구조물에 대한 물량 평가 및 해체, 철거 방법에 따른 단위 작업 시간 및 작업자 투입량 등의 자료 및 산정방법을 제시하였다. 지연해체(SAFSTOR)의 경우 60 년 이내의 안전저장 기간 동안 사용후핵연료를 저장조에 보관하며 SASTOR1의 경우 압력용기와 생체차폐 콘크리트를 제외한 모든 방사성물질을 시설내에 보관, 냉각 후 비제한적 방출(Unrestricted release)를 하는 개념으로 평가하였으며 SASTOR2는 모든 방사성물질이 비제한적 방출이 불가능하다고 설정하였고 저준위방사성폐기물의 부피감용이 없다고 가정하였다.

차폐격리(ENTOMB)의 경우 모든 방사성물질을 격납건물 내 저장 보관 하는 것으로 설정하였으며 ENTOMB1의 경우 60 년 차폐격리후 모든 물질을 비제한적 방출이 가능한 개념으로 평가하였으며 ENTOMB2는 60 년 차폐격리후 방사성물질 전량의 비제한적 방출은 불가능하다고 설정하였고 원자로 압력용기와 생체차폐체는 우선 철거하여 처분하는 것으로 가정하였다. ENTOMB2는 차폐격리기간을 60 년에서 300 년으로 연장하여 최종적으로 방사선 조사 없이 허가종료가 가능한 것으로 설정하여 평가를 수행하였다.

해체 비용은 1993년도 기준으로 평가하였으며 25%의 예비비를 추가하였으며 토양 제염의 비용은 제외하였다. 고방사화된 압력용기는 초기 철거하는 것으로 가정하였으며 방사성폐기물은 Hanford의 U.S. Ecology facility 시설로 운반, 처분하는 것으로 가정하였다.

Table 2. Results of DECON, SAFSTOR, and ENTOMB analyses

Shutdown alternative	Estimated cost (millions 1993$)	Waste volume disposal(m^3)
DECON	133.3	8,246
SAFSTOR1	173.9	833
SAFSTOR2	237.9	8,246
ENTOMB1	162.1	913
ENTOMB2	164.6	1,362
ENTOMB3	470.4	913

3. 결론

국내 원전 해체 비용 평가를 위한 미국의 선행 평가자료 분석을 수행하였다. 이들 자료는 현재까지 미국 해체 비용 평가를 위한 기초자료로 활용중이며 이러한 선행 평가자료의 분석은 국내 원전의 해체비용 평가 방법론 수립에 매우 중요하다. 특히 해체 물량 산정, 철거, 제염 방법에 따른 방사성폐기물 산정 방법 등의 자료의 분석을 통하여 국내 원전의 비용 평가 방법론을 확립할 필요가 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 원자력안전연구센터 사업의 지원으로 수행하였습니다.

5. 참고문헌

[1] US Nuclear Regulatory Commission (USNRC), Technology, Safety and Costs of Decommissioning a Reference. Pressurized Water Reactor Power Station, NUREG/CR-0130, 1978. 6.

[2] US Nuclear Regulatory Commission (USNRC), Revised Analysis of Decommissioning for the Reference Pressurized Water Reactor Power. Station, NUREG/CR-5884, 1995. 11.

해외 원전 해체 사례 및 국내 원전 부지특성 분석을 통한 부지 재이용 방안

이후석*, 이승준, 홍상현, 이종세
한양대학교, 경기도 안산시 상록구 한양대학로 55
*bznglay@hanyang.ac.kr

1. 서론

1978년 우리나라 최초로 상업운전을 시작한 고리 1호 원전의 해체시기에 관심이 모아지면서 해체기술 및 안전규제에 대한 연구가 요구되고 있다. 또한 원전 해체 후 부지 재이용에 관한 연구와 그에 따른 방사선 안전 측면에서 기준 설정, 규제의 필요성이 강조되고 있다. 부지 재이용은 원전 해체의 최종단계로 부지 내에 잔류되어 있는 모든 방사성 물질에 의한 오염을 조사하고 제거하여 최종적으로 부지를 그 목적에 맞게 제한적 또는 무제한적으로 재이용할 수 있도록 하는 것이다[1]. 이를 위해 건물 및 부지개방 (Site release)을 위한 부지 재이용 기준이 수립되어야 한다. 해외 기관 및 국가의 경우 원전 해체 후 부지 재이용에 따른 기준이나 정책이 수립되어 있으나 국내에는 관련 기준이나 정책 수립이 미비하여 이에 관한 연구가 활발히 진행 중에 있다. 본 연구에서는 해외 원전 해체 사례와 국내 부지특성 분석을 통해 재이용 방안을 제시하였다.

2. 본론

2.1 해외 원전 부지 재이용 사례

IAEA의 경우 원전부지의 무제한적 재이용을 위한 연간 유효선량은 최적화를 통하여 0.01~0.3 mSv 이하로 유지되도록 규정하고 있으며, 미국 원자력 위원회(US Nuclear Regulatory Commission)의 경우 원전 부지의 무제한적 재이용을 위한 방사선학적 기준치로 식수로 사용되는 지하수를 포함하여 연간 0.25 mSv를 초과하지 않아야 한다고 규정하고 있다. 또한 잔류방사능은 사회적 경제적인 요소들을 감안하여 방사선 피폭의 수준을 합리적으로 달성 가능한 한 감소시킨다는 방사선 방호의 기본 개념인 ALARA (As Low As Reasonably Achievable)가 최소화 했을 때 무제한적 재이용에 적합하다고 규정하고 있다[2].

원전 부지 재이용은 각 지역의 특성 및 환경에 맞게 기준을 적용하고 그에 따른 제염 및 복원작업을 실시하여야 한다. 일반적으로 원전 해체 부지는 일반부지, 산업부지 또는 원전관련 부지로 재이용될 수 있다. Table 1은 해외 각국의 원전 부지 재이용 사례들을 정리한 것이다[3]. 미국의 Fort St. Vrain은 1968년에 가동을 시작하여 1989년 가동을 중지한 원전으로 무제한적 재이용 기준을 적용하여 부지를 재이용하였으며, 현재는 화력발전소로 사용되고 있다. 일본의 경우 JPR-3은 시설 일부를 열·냉중성자를 이용한 빔 실험, 방사화 분석 등의 실험에 사용 중이며 JPDR의 경우 사무실 건물, 복수기 건물을 제외한 모든 건물을 철거하고, 철거된 부지에는 잔디를 식재한 상태이다. 오랜 원전 운영경험을 갖고 있는 독일의 경우

Table 1. Reuse case studies on foreign countries

시설명	용도	해체 기간	부지 재이용 내용
Shippingport (미국)	상업용	1985-1989	-부지는 규제 없이 사용할 수 있는 수준까지 제염하고 잔디를 식재
JPDR (일본)	연구용	1986-1995	-사무실 건물, 복수기 건물을 제외한 모든 건물을 철거 -철거된 부지에는 잔디를 식재
JASON (영국)	상업용	1996-1999	-해체 후 원자로의 홀은 지금 강연장으로 사용
Greifswald (독일)	상업용	1996-2012	-해체 후 부지는 산업 단지(항만, 증기 발전소)로 사용
Tokai-1 (일본)	상업용	2001-2011	-부지는 계속해서 제한적 목적(원전 시설)등을 원칙으로 하고 있음
Gentilly-1 (캐나다)	연구용	1984-1986	-노건물, SG건물 밀폐 서비스건물 재이용
BR-3 (벨기에)	연구용	1989-2010	-사용 후 연료철거, 계통 제염 후 시설 기념관화

부지 재이용 기준을 전원상태(Green field)로 하며, 이는 다른 나라의 무제한적 재이용 기준과 유사한 수준이다. 독일의 Niederaichbach 원전은 연구용으로 1973년부터 운전되었으나 이형의 원자로 개발이 중지되어 1974년 정지됐으며, 해체기술 개발과 해체작업경험 축적의 일환으로 해체작업이 수행되었다. 해체 작업은 1995년에 완료되었으며, 부지는 1997년에 녹지화 되었다.

2.2 국내 원전 해체 후 부지 재이용 방안

원전 해체 후 부지 재이용에 관한 중요한 사항은 부지의 용도로, 이에 따라 무제한적 또는 제한적 기준을 적용하여 부지 복원 작업을 실시한다. 다수의 인접한 원자로를 운영하는 해외 원전의 경우 해체 후 부지를 일반시설로 활용하기보다 산업시설이나 신재생에너지, 폐기물 처리장과 같은 원전 관련시설로 재이용하고 있다. 독일의 Greifswald 원전이 대표적인 사례로 일반시설이나 녹지화가 아닌 증기발전소와 같은 산업시설로 재이용하였다. 일본의 경우 상업용 원전 부지는 해체 후 제한적 기준을 적용하여 원전 관련시설로 재이용 하는 것을 원칙으로 하고 있다.

Fig. 1은 월성원전의 전경으로 다수의 원자로가 비교적 인접해 있는 것을 확인할 수 있으며, 대부분의 국내 원전들도 이와 같은 형태를 하고 있다. 이러한 원전들은 한 기의 원자로가 해체되어도 인접한 다른 원자로는 계속해서 운전 중인 상태이기 때문에 무제한적인 부지 재이용은 부적절할 것으로 판단된다. 따라서 무제한적 부지 재이용을 위한 무분별한 기준 적용이 아닌 국내 부지특성에 맞게 제한적 수준의 기준 및 규제 적용하여 산업시설 또는 원전관련시설로 재이용하는 것이 적절하다고 사료된다.



Fig. 1. Wolsong nuclear power plant.

3. 결론

본 연구에서는 향후 국내 원전 해체 후 부지 재이용 방안을 제시하기 위해 해외사례 및 국내 부지특성을 분석하였다. 분석 결과 각 국가들 사이에도 부지 재이용 용도의 차이가 존재하는 것을 확인할 수 있었다. 이러한 차이가 있는 것은 국가별 부지 재이용에 대한 기준과 지역적 특성이 다르기 때문이다. 따라서 국내의 원전 해체 후 재이용을 위해서는 각 원전부지의 특성들을 고려하여 부지 재이용을 수행해야 할 것이다. 특히, 국내 원전의 경우 다수의 원자로가 인접해 있고 각 원자로의 설계수명의 차이가 있기 때문에 해체 후 일반인에게 개방이 가능한 무제한적 재이용은 비효율적일 것으로 판단된다. 그러므로 무제한적 재이용을 위한 기준보다 제한적 기준을 적용하여 산업시설, 신재생에너지를 이용한 발전시설이나 원전관련시설로 재이용하는 것이 적절하다고 사료된다.

4. 감사의 글

본 연구는 원자력안전위원회와 한국방사선안전재단의 지원을 받아 수행한 원자력안전연구사업의 연구결과입니다.(No. 1305009)

5. 참고문헌

[1] 이정준, 안상면, 육대식, 정찬우, 이병숙 "원자력시설 해체 후 부지 재이용을 위한 방사선학적 기준 개발 계획", 한국방사성폐기물학회 2014 춘계학술발표회 논문요약집 221-222, 12(1), 05.07~09, 2014, 평창.

[2] "INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY "Redevelopment of Nuclear Facilities after Decommissioning," Technical Reports Series No.444 IAEA Vienna (2006).

[3] "INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY "Redevelopment and Reuse of Nuclear Facilities and Sites: Case Histories and Lessons Learned." Series No. NW-T-2.2 IAEA Vienna (2011).

신 분류기준을 적용하기 위한 원전 해체폐기물량 및 처분 비용 산정에 대한 사전 연구

이상헌*, 정민영, 송종순
조선대학교, 광주광역시 동구 필문대로 309번지
*leesanghoen@naver.com

1. 서론

현재, 우리나라에서는 총23기의 원전이 운영중에 있다. 운영 중인 원전으로부터 방사성폐기물이 계속 발생되고 누적되고 있으며, 원전의 수명 연장과 신규 원전의 추가 건설 이외에도 제염해체 연구시설 등 각종 원자력 시설에서 발생하는 방사성폐기물은 꾸준히 증가하고 있다. 우리나라는 최근 IAEA에서 권고하는 신 분류기준을 일부 적용하여 고시를 개정하였다. 중·저준위폐기물을 IAEA 신 분류기준을 적용하여 세분화한다면, 약 98%를 차지하는 저준위 및 극저준위 방사성폐기물과 규제면제폐기물을 효과적으로 처분 할 수 있게 된다. 본 논문에서는 해외 방사성폐기물 분류 사례와 처분 방안 현황을 분석하여 국내에 적용 가능한 최적의 합리적인 적용 방안 및 해체 방사성폐기물량을 예비 산정해 보고자 한다.

2. 본론

2.1 신분류기준 적용 국내 방사성폐기물 분류체계

우리나라는 원자력안전위원회 고시 제2014-3호 "방사성폐기물 분류 및 자체처분기준에 관한 규정"에서 고준위폐기물, 중준위폐기물, 저준위폐기물, 극저준위폐기물로 분류하고 있으며, 방사성폐기물 처분에 따른 처분방식을 구분하고 있다.

분류	기준	방사성폐기물 종류 및 발생량
고준위 폐기물	반감기 및 열발생률 (SNF)	○ 반 감 기 : 20년 이상 ○ 핵 종 : 알파핵종 ○ 농 도 : 4,000 Bq/g ○ 열발생률 : 2 kW/m^3
중준위 폐기물	저준위 기준 초과	○ 저준위폐기물 분류기준 이상 ○ 폐밀봉선원, 고방사능 폐수지 ※ 농도 범위는 넓지만, 폐기물의 양은 상대적으로 적음
저준위 폐기물	처분장 침입자 선량 연간 1 mSv 이하	○ 10핵종 및 전알파 기준* 이하 ○ 공단인수기준 충족 ※ 처분장의 처분시설별 인도기준은 사업자가 정하도록 규정
극저준위 폐기물	처분시 방호기능 상실한 경우에도 1 mSv 이하	○ 규제해제의 100배 미만 ○ 반감기 20년 이상인 알파핵종은 농도와 관계없이 극저준위로 분류 ※ KNF의 불산폐기물 등은 무조건 규제 해제하지 않음
규제해제 폐기물	연간 10 μSv 이하	IAEA RS-G 1.7에서 정한 기준 농도 또는 선량 이하의 모든 핵종

* 농도(Bq/g) : H-3(1.11×10^6), C-14(2.22×10^5), Co-60(3.70×10^4), Ni-59(7.40×10^4), Ni-63(1.11×10^7), Sr-90(7.40×10^4), Nb-94(1.11×10^2), Tc-99(1.11×10^3), I-129(3.70×10^1), Cs-137(1.11×10^6), 전알파(3.70×10^3)

Fig. 1. Radioactive waste classification of Domestic.

2.2 주요국 및 기관별 해체폐기물 발생량 비교

2.2.1 IAEA

Table 1은 금속의 밀도를 약 7.0 g/cm3, 콘크리트의 밀도를 약 2.0 g/cm3 그리고 해체 잡고체의 밀도를 약 0.8 g/cm3으로 고려하고, 드럼 당 충진율은 폐기물 인수기준에 맞도록 85%로 산출한 예상 발생량을 나타낸다.

Table 1. Decommissioning waste of NPP(IAEA)

금속	발생량		
	중량(ton)	부피(m^3)	드럼
금속(방사화)	650	92.86	546
콘크리트(방사화)	300	150.00	882
금속(오염)	3,500	500.00	2,941
콘크리트(오염)	600	300.00	1,765
마감재	150	21.43	126
잡고체	1,000	1.250.00	7,353
합계	6,200	2,314.29	13.613

2.2.2 OECD/NEA

OECD/NEA에서는 해체폐기물 발생량에 대해 회원국들을 대상으로 설문 조사한 결과를 기준으로 2003년에 발행한 보고서를 보면 PWR 원전 1기 해체시 발생되는 폐기물양은 2,000~18,000 ton 이며, 평균 5,000 ton 이하로 예상하고 있다.

2.2.3 미국

실제 원전을 완전히 해체한 국가 중 가장 경험이 많은 미국의 사례 중 메인양키(MaineYankee) 원전에 대해 검토하였다. 해체폐기물 발생량 관점에서 가장 특징적인 것은 해체작업 중 다량의 오염된 토양이 발견되어 해체폐기물량을 상당량 증가한 것이다. 메인양키 원전 해체사업에서는 방사성폐기물은 크게 5가지로 분류하고 있는데 방사성폐기물은 217백만lb(98,657 ton)으로 비 방사성폐기물 발생량 128백만lb(58,316 ton)보다 훨씬 더 많이 발생하였다.

2.2.4 독일

독일의 Greifswald 원전 해체 중 발생된 총 해체폐기물 발생량은 1,800,000 ton이었으며, 이 중

에서 약 1%에 해당하는 16,500 ton만이 방사성폐기물로 분류되어 있다. 이는 제염 활동의 강화로 방사성폐기물 발생량을 최소화한 결과이다. 총 5기 해체 결과 발생된 폐기물이므로 한 호기 당 평균 3,300 ton의 폐기물이 발생된 것으로 추정된다. 이를 드럼으로 환산하기 위해 200 리터 드럼당 폐기물의 무게를 약 200~500 kg으로 가정하면 6,600~16,500 드럼이 발생된 것으로 판단된다. Mulheim-Karlich 원전(PWR 1,302MWe 원전)에서도 해체폐기물 발생량을 3,500 ton(7,000~17,500 드럼)으로 예상하고 있다.

2.2.5 프랑스

프랑스 전력공사인 EDF에서 평가한 해체폐기물 발생량은, 프랑스에서 국민홍보용으로 발간한 자료에 따르면 PWR 1기 해체폐기물 발생량을 다음과 같이 제시하고 있다.

- 장수명폐기물(중준위폐기물) : 100 m^3(500 드럼)
- 저준위폐기물 : 7,000 m^3 (35,000 드럼)
- 극저준위폐기물 : 10,000 m^3 (50,000 드럼)

프랑스에는 규제면제제도가 없으므로 방사선구역에서 발생된 규제면제폐기물들도 극저준위폐기물로 분류하고 있다. 따라서 상기 자료를 그대로 인용하기는 어렵지만, 보수적으로 중준위폐기물과 저준위폐기물만 고려하여도 원전 1기 해체 시 발생되는 해체 방사성폐기물 발생량은 35,500 드럼이다.

2.2.6 일본

일본의 경우 PWR 해체방사성폐기물 예측 발생량에 대해 IAEA 신 분류기준을 준용하여 분류한 원자로 해체폐기물 발생량을 제시하고 있으나, 해체폐기물 처리를 위해 어떤 처리 설비를 이용했는지에 대해서는 기술하지 않고 있다. PWR 원전 1기 해체 시 발생되는 해체 방사성폐기물 예상 발생량은 약 6,200 ton으로 제시하고 있다. 이를 드럼으로 환산하면 200 드럼 당 폐기물의 무게를 약 200~500 kg이라 가정하였을 때 12,400~31,000 드럼이 발생될 것으로 평가하고 있다.

2.2.7 우리나라

기존의 국내 원전 해체폐기물 발생량은 원전 해체충당금 평가를 위해 2002년 한국원자력 연구원, 2009년에는 한수원, 경희대학교 등의 여러 기관에서 약 14,500 드럼으로 평가한 사례가 있으며, 원자력환경공단도 "중·저준위 방사성폐기물 처분 시나리오"에서도 산술식을 이용하여 원전 1기 해체폐기물량을 용량별로 14,000~19,000 드럼으로 평가하고 있다.

2.3 처분비용 예비산정

위에서 검토한 국제기관 및 국가별 해체폐기물 발생량 및 국내 적용 시 1 드럼당 처분 예상비용 범위을 Table. 2와 같이 정리하였다.

Table 2. Comparison of the cost of radioactive waste disposal

	PWR (600MW~1,000MW)	Note
해체폐기물 발생량	14,000 ~ 31,000 drum	drum disposal cost : 11,930,000 KRW/drum
예상 처분비용	167,020 ~ 369,830 million KRW	

3. 결론

국내에 운영 중인 원전의 해체폐기물을 현재까지 개발되었거나 개발 중인 제염기술을 충분히 활용하여 발생량을 저감하고, 저장을 통한 방사능 저감(Decay&Delay)를 통해 준위를 감소시킴과 동시에, 신분류기준에 따라 적절한 처분 방식을 선택하게 되면 보다 안전하고 경제적으로 해체 방사성폐기물을 처리할 수 있을 것이다.

향후, 본문에서 다룬 사전연구를 바탕으로 신분류기준을 적용한 국내 원전 해체 폐기물량 및 비용산정에 대한 연구와 처분방안의 최적화 연구를 수행할 예정이다.

4. 참고문헌

[1] IAEA, Classification of Radioactive Waste, General safety Guide No. GSG-1, Vienna (2009).

[2] Notice of the Nuclear Safety and Scurity Commission No. 2014-03, Guidelines for radioactive waste classification and clearance standards (2014).

[3] IAEA, Managing Low Radioactivity Material from the Decommissioning of Nuclear Facilities, Technical Report Series No. 462 (2008).

[4] OECD/NEA, Decommissioning Nuclear Power Plants-Policies, Strategies and Costs, NEA (2003)

[5] EPRI, Maine Yankee Decommissioning Experience Report, Detailed Experiences 1997-2004 (2005).

국외 원자력시설 대형 금속폐기물의 관리시스템 및 시사점

민병연*, 양다솜, 윤경수, 이기원, 문제권
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*bymin@kaeri.re.kr

1. 개요

세계적으로 원자력발전소(이하 '원전')는 현재, 436 기가 운전 중에 있으며 72기가 건설중에 있고 2기의 원전이 장기 운전 정지상태에 있다. 139기의 원전이 해체 중이며, 이 중 완전히 해체를 완료한 원전을 18기에 지나지 않는다. 원전 가동년수 증대에 따라 원전 해체 대상 시설이 증가될 것이며, IAEA에서는 2020년대를 전후로 운전 정지될 원전 수가 가장 많을 것으로 예상하고 있다. 현재 가동 중인 국내 원전의 운전 현황은 고리 1호기 원전을 필두로 10년 수명 연장할 경우에는 2017년 '영구 운전정지' 및 '해체'가 시작되고, 20년 수명 연장할 경우에는 2027년에 '영구 운전정지' 및 '해체'가 시작될 것으로 예상된다. 해체 시 발생되는 금속폐기물은 대부분 아주 미미하게 방사성 물질로 오염이 되어 있어 적절한 제염공정을 거치면 대부분은 무구속 방출이 가능하다. 해체 및 운영 중 발생되는 금속폐기물의 효과적인 감용 및 재활용 기술의 적용을 통한 효과적인 금속폐기물 관리가 요구된다.

2. 국외 해형 금속폐기물의 관리시스템

2.1 미국

- 규제체계: 방사성폐기물 관리 규제 및 수송체계 확립, 방사성폐기물 규제 면제 기준 적용치 않음, 제한적으로 금속폐기물을 원자력시설에 사용할 수 있도록 재활용을 허용하고 있다.
- 물리적 인프라: 대형 금속폐기물 운반시스템이 구축되어 있으며 대형 금속폐기물을 처분할 수 있는 처분시설 가동 중 (Type A 폐기물 처분장, 저준위폐기물 처분장 등)이고 금속폐기물 처리시설을 운영 중에 있다. 향후 건설될 처분시설에서는 대형 금속폐기물의 절단 후 처분을 고려하고 있어 대부분의 대형 금속폐기물은 절단 처리 후 처분할 가능성이 매우 높다.

2.2 독일

- 규제체계: 방사성폐기물 규제 체계 및 수송 체계 확립 (해외 수송에 대해서는 case 별로 처리하고 있음)되어 있고 방사성폐기물 규제 면제 기준을 적용하고 있으며 금속폐기물 무제한 방출 및 재활용 기준 정립되어 있다.
- 물리적 인프라로: 대형 금속폐기물 운반시스템 구축이 구축되어 있고 모든 종류의 방사성폐기물을 지층처분장에 처분할 수 있으며 Konarad 처분시설은 동굴 처분시설로서 모든 대형 폐기물은 절단 한 뒤 규격용기 포장하여야 처분할 수 있으며 작은 크기의 금속폐기물은 Siempelkamp 시설에서 금속폐기물 재활용 권장하고 있다.

2.3 프랑스

- 규제체계: 방사성폐기물 관리 규제체계 확립, 방사성폐기물 수송 규제체계 확립, 방사성폐기물 규제면제 기준 적용치 않음, 방사성폐기물 재활용 기준 정립 (원자력시설 내부 재활용 가능)
- 물리적 인프라: 대형 금속폐기물 운반시스템 구축, 대형 금속폐기물을 처분할 수 있는 처분시설 가동 중 (저준위, 극저준위폐기물 처분장 운영), 작은 크기의 금속폐기물을 처리하는 시설(Centraco 처리시설)은 가동 중이나 대형 금속폐기물 처리시설은 없음, 많은 원자력시설 운영으로 금속폐기물 재활용 가능

2.4 스웨덴

- 규제 체계: 방사성폐기물 관리 및 수송 규제체계 확립, 방사성폐기물 규제 면제 기준 적용, 금속폐기물 재활용 및 무제한 방출 기준 정립
- 물리적 인프라: 대형 금속폐기물 운반시스템 구축, 대형 금속폐기물 처리시설 가동 중 (Studsvik), 금속폐기물의 일반산업체 재활용 허용으로 다양한 금속폐기물 재활용 가능, 금속폐기물 처리시설 운영.

2.5 스페인

- 규제 체계: 방사성폐기물 관리 및 수송 규제 체계 확립, 방사성폐기물 규제 면제 기준 적용치 않음, 방사성폐기물 재활용 기준 확인할 수 없음
- 물리적 인프라: 대형 금속폐기물 운반시스템 구축, 대형 금속폐기물을 처분할 수 있는 처분시설 가동 중(저준위, 극저준위폐기물 처분장 운영), 대형 금속폐기물 처리시설 없음.

2.6 영국

- 규제 체계: 방사성폐기물 관리 규제체계 확립, 방사성폐기물 수송 규제체계 확립, 방사성폐기물 규제면제 기준 적용, 방사성폐기물 재활용 기준 정립(원자력시설 내부 재활용 가능)
- 물리적 인프라: 대형 금속폐기물 운반시스템 구축, 대형 금속폐기물을 처분할 수 있는 처분시설을 가동 중이나 처분 용량은 제한(대형폐기물은 직접 처분으로 처분용량 모두 소진), 대형 금속폐기물 처리시설 없음, 원자력산업의 위축으로 금속폐기물 재활용 극히 제한.

3. 관리 방법 검토 시 고려사항

각 나라별로 대형 금속폐기물 관리방안 선정 시 고려한 주요 인자들을 요약하면 다음과 같다. 첫째, 규제 법규에 따른 규제면제 및 재활용 전략 수립이 필요하다. 우선 금속폐기물을 제염 처리하여 "규제면제 폐기물"로 분류가 선행되어야 한다.

미국, 프랑스, 스페인, 독일 등은 원형 그대로 처분하든지 외국에 위탁 처리하는 방안 (방사성폐기물은 발생국으로 반송함)을 적용하여 방사성폐기물 발생량을 저감하고 있다. 둘째, 폐기물 저장 및 처리시설의 가용성이다. 폐기물 절단 설비와 임시 저장 설비가 구비되어 있는 국가는 절단 처리 후 일정기간 저장하여 대부분의 폐기물을 규제면제 폐기물로 처리하고 일부만 방사성폐기물로 처분한다. 주로 스페인, 독일, 벨기에 등에서 절단 후 임시 저장한 뒤 대부분 규제 면제 폐기물로 처리하고 그렇지 않은 일부분만 방사성폐기물 처분장에 처분하고 있다. 셋째, 대형 금속폐기물을 수용할 수 있는 처분시설 규모이다. 대형폐기물을 원형 그대로 처분할 수 있는 여건이면 경제성 검토 후 원형 그대로 처분하는 것이 좋다. 그러나 처분시설이 대형폐기물을 수용할 수 없는 입장이면 반드시 대형폐기물을 절단하고 처리하여야 한다. 대형 해체금속폐기물을 원형 그대로 처분할 수 있는 처분시설을 보유하고 있는 미국, 프랑스 등에서는 임시저장 후 원형 그대로 처분하고 있다. 대형폐기물 수송 타당성 또한 고려사항이다. 대형폐기물 수송 체계가 미 구축 시 절단 처리하여 그 규모를 줄여야 한다. 마지막으로 경제성 이다. 안전성, 방사선 방호 등을 고려한 경제성 검토를 수행하여 유리한 방안을 선정하여야 한다.

4. 국가별 관리방안

각 국가별로 자국의 환경을 상기 고려 인자들 관점에서 검토하여 대형 해체폐기물 관리하고 있다. 각 국가별 대형 해체폐기물 관리 방안을 Table 1에 요약하였다. 대형 금속폐기물 수용할 있는 처분시설의 존재 여부가 관리 방안 선정에 가장 큰 영향을 미치는 것으로 알 수 있다.

Table 1. Plan of dismantled large component wastes

검토인자	미국	독일	프랑스	스웨덴	스페인	영국
규제면제 및 재활용 기준	×	○	×	○	-	○
금속폐기물 처리시설	○(1)	△(2)	○(1)	○(1)	△(2)	×
대형 금속폐기물 수용할 수 있는 처분시설	○	×	○	×	×	×(3)
대형 금속폐기물 수송체계	○	○	○	○	○	○(4)
금속폐기물 처리의 경제성	-	-	×	○	○	○
관리방안	a,b,c	b,c	a	c	c	c

주: ○(1): 금속폐기물 제염, 절단 및 용융 처리시설
△(2): 금속폐기물 제염, 절단 시설
× (3): 대형 금속폐기물 처분용량 제한
○(4): 시설 노후화 추가 수송체계 확립에 어려움이 많음
관리 방안 : a : 원형대로 처분, b : 장기저장, c : 처리 후 처분

원전 해체 시 발생되는 대형 금속폐기물 관리방안을 선정할 때에는 대민홍보 관점과 방사성폐기물의 안전관리 관점을 종합하여 검토하여야 한다. 이는 작업자와 지역주민에 대한 방사선 안전이 확보되어야 함은 물론 사고가 발생치 않아야 하며, 방사성폐기물 관리와 방사선 피폭이 최소화되어야 함을 의미한다. 따라서 방사성폐기물의 최소화, 처리, 처분과 관련하여 최적의 처리 방안을 선정할 때에는 처분시설 인수기준 만족, 처분을 위해 방사성폐기물을 처리, 안정화 및 포장, 소외로 방출되는 방사능 농도가 더 엄격하게 규제되는 추세, 방사성폐기물 처분단가 급격한 상승으로 발생량 저감이 주요 관점, 방사성폐기물 수송, 저장 및 처분에 대한 규제기준 더 엄격해 지는 추세, 사회적 관심의 증대로 부지선정에 어려움 증대, 더 많은 비용, 복잡한 과정 및 많은 기간 소요, 기술개발로 주민의 안전성 확보, 환경보호 및 경제성 제고 등의 목표 달성 가능 같은 사항들을 고려하여야 한다.

사용후연료 저장대 제작 공차가 임계안전에 미치는 영향 분석

손희동[1*], 한슬기[1], 이강욱[1], 이상동[1], 조충래[1], 박화규[1], 박창제[2]
[1]두산중공업㈜, 경남 창원시 성산구 두산볼보로 22
[2]세종대학교, 서울특별시 광진구 능동로 209
[*]heedong.sohn@doosan.com

1. 서론

사용후연료 저장대 임계해석시 적용되는 제작 공차는 핵연료다발 제작 공차, 저장대 제작 공차 그리고 중성자 흡수물질 제작 공차로 구분된다. 제작 공차는 원소재 자체의 제작 공차 뿐만아니라 완제품을 만드는 과정에서 발생하는 공차를 의미한다. 특히 저장대 제작 공차는 저장대 제작시 고려되어야 하는 사항을 반영하여 결정이되며 저장대 제조사의 설계 및 제작 경험이 반영되는 고유 기술이라고 할 수 있다. 임계해석시 제작 공차로 인한 민감도 분석이 수행되어야 하며 그 결과는 임계해석 결과의 불확실도로 최종 중성자 유효증배계수 값에 포함되어야 한다.

2. 본론

2.1 핵연료다발, 저장대 및 중성자 흡수물질 모델

핵연료다발은 PLUS7(16 x 16)을 적용하였으며 저장대는 사용후연료 저장대 Region Ⅱ Type을 적용하였다. Region Ⅱ Type은 핵연료 4다발을 2 x 2 형태로 배열시키고 이를 단위 셀로 모델링 한 다음 수평방향 및 축방향으로 무한배열시켜 임계해석을 수행하였다. 중성자 흡수물질은 Clad Metal로 알루미늄을 사용하고 두 Clad Material 사이에 알루미늄 분말과 B_4C 분말을 고르게 분포시킨 완전금속복합재료(MMC Type)를 적용하였다. 핵연료는 2.5 mm 두께의 스테인레스 스틸 플레이트로 제작된 사각기둥 형상의 Box에 저장되며 중성자 흡수물질은 Box 외면에 용접으로 부착되는 0.6 mm 두께의 Cover Plate 내에 삽입되어 설치된다. Box와 Box는 모서리끼리 용접으로 연결되어 있다. Fig. 1은 핵연료 4다발이 저장된 Region Ⅱ 형상의 단위 셀 모델을 나타낸 것이다.

2.2 임계해석 방법론 및 전산 프로그램

Random Number를 사용하여 확률론적 분포를 갖는 입자의 움직임을 시뮬레이션하고, 연속에너지 반응 단면적을 사용하여 복잡한 3차원 구조물에 대한 정밀한 모델링이 가능한 Monte Carlo 방법론을 적용하였으며, 전산 프로그램은 3차원 Monte Carlo 코드인 Keno-V.a 프로그램과 ENDF/B-VII에 기반한 연속에너지 반응 단면적(ce_v7_endf)을 사용하였다.

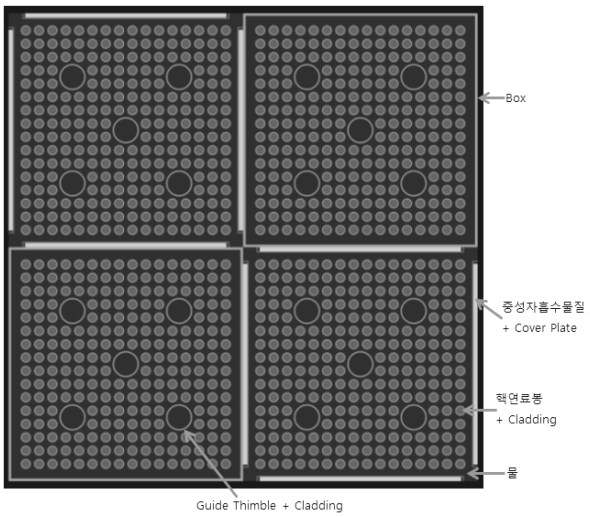


Fig. 1. Spent Fuel Storage Rack Region Ⅱ Model.

2.3 가정사항

U^{235} 농축도 5.0wt%, 연소도 42,700MWD/MTU를 적용하였으며, 핵연료는 축방향으로 균일한 연소도 분포를 적용하였다. 사용후연료 저장조내 냉각수는 붕산수가 아닌 순수를 적용하였으며 냉각수 온도 및 밀도는 최대 반응도가 나타나는 4°C, 1 g/cc로 가정하였다.

2.4 핵연료 제작 공차

임계해석시 고려되어야 하는 핵연료 제작 공차 항목 및 공차 반영한 불확실도 계산 결과는 Table 1과 같다. 핵연료 제작 공차는 핵연료 제조사에서 제공하는 Data이며 제조 과정에서 발생할 수 있는 변형량을 나타낸 것이다. 핵연료에 대한 제작 공차는 공칭 치수에 최대/최소 공차로 표기가 되며 각각의 경우에 대하여 독립적으로 계산후 중성자 증배계수 값이 크게 나타나는 경우만 조합하여 불확실도로 임계해석 결과에 반영한다.

Table 1. Fuel Manufacturing Tolerance

핵연료	농축도 (wt%)	연소도 (MWD/MTU)	구 분	공칭 치수	공차	keff 1 / keff 2	σ1 / σ2	불확실도
PLUS7 (16 x 16)	5.0	42,700	정상조건	-	-	0.88796	0.00025	-
			Clad ID (cm)	0.8357	최대	0.88804	0.00025	**0.00079**
					최소	0.88737	0.00027	0.00015
			Clad OD (cm)	0.9500	최대	0.88677	0.00026	-0.00047
					최소	0.88916	0.00027	**0.00194**
			농축도 (wt%)	5.0	최대	0.89048	0.00028	**0.00327**
			Pellet Density (g/cc)	10.313	최대	0.89060	0.00026	**0.00336**
			Pellet OD (cm)	0.8190	최대	0.88794	0.00025	**0.00069**
			Rod Pitch (cm)	1.2850	최대	0.88895	0.00025	**0.00170**
					최소	0.88760	0.00025	0.00035
불확실도 계								**0.00545**

2.5 저장대 및 중성자 흡수물질 제작 공차

저장대 제작 공차 항목 및 공차 반영한 불확실도 계산 결과는 Table 2와 같다. 저장대 제작 공차는 Box 내경, Box 두께, Cover Plate 두께, 저장되는 핵연료간 Pitch 및 Box 직진도를 임계해석에 반영한다. 이는 원소재에 대한 제작 공차와 저장대 제조 과정에서 발생할 수 있는 변형량을 나타낸 것이다. 저장대 제작 공차는 모두 공칭 치수에 최대/최소 공차로 표기가 되며 각각의 경우에 대하여 독립적으로 계산후 중성자 증배계수 값이 크게 나타나는 경우만 조합하여 불확실도로 임계해석 결과에 반영한다.

Table 2. Rack and Neutron Absorbing Material Manufacturing Tolerance

핵연료	농축도 (wt%)	연소도 (MWD/MTU)	구 분	공칭 치수	공차	kcalc1 / kcalc2	σ1 / σ2	불확실도
PLUS7 (16 x 16)	5.0	42,700	정상조건	-	-	0.88796	0.00025	-
			Cell ID (cm)	22.1	최대	0.88704	0.00026	-0.00020
					최소	0.88893	0.00027	**0.00171**
			Cell 두께 (cm)	0.25	최대	0.88837	0.00026	**0.00113**
					최소	0.88788	0.00025	0.00063
			Cell Pitch(cm) (Cell ID와 동일)	22.6	최대	0.88704	0.00026	-0.00020
					최소	0.88893	0.00027	**0.00171**
			Cover Plate 두께 (cm)	0.06	최대	0.88844	0.00031	**0.00128**
					최소	0.88772	0.00026	0.00048
			NAM B^{10} Loading	0.045	최대	0.88525	0.00027	-0.00197
					최소	0.88796	0.00025	-
			NAM 폭 (cm)	19.4	최대	0.88751	0.00023	0.00023
					최소	0.88846	0.00025	**0.00121**
			NAM 두께 (cm)	0.42	최대	0.88796	0.00025	-
					최소	0.89150	0.00031	**0.00434**
불확실도 계								**0.00538**

핵연료	농축도 (wt%)	연소도 (MWD/MTU)	구 분	공칭 치수	공차	kcalc1 / kcalc2	σ1 / σ2	불확실도
PLUS7 (16 x 16)	5.0	42,700	정상조건	-	-	0.92039	0.00023	-
			Cell 직진도	-	최대	0.92024	0.00022	0.00049
불확실도 계								**0.00049**

중성자 흡수물질 제작 공차에 대한 불확실도 계산 결과도 Table 2에 기술되어 있다. 중성자 흡수물질은 제조 과정에서 발생하는 모든 제작 공차를 반영하는 대신 저장대 임계해석시 중성자 유효증배계수 값에 영향을 미치는 요인만 반영한다. 즉, 중성자 흡수 능력에 가장 큰 영향을 미치는 B-10 Loading 값(g/cm^2)과 중성자 흡수물질 Dimension 중에서는 폭과 두께를 반영하였다. 중성자 흡수물질 제작 공차도 공칭 치수에 최대/최소 공차로 표기가 되며 각각의 경우에 대하여 독립적으로 계산후 중성자 증배계수 값이 크게 나타나는 경우만 조합하여 불확실도로 임계해석 결과에 반영한다.

2.6 제작 공차 불확실도 계산

제작 공차에 대한 계산 결과는 Case 별로 식 (1)과 같이 불확실도로 계산후 최종 중성자 유효증배계수 값에 포함된다.

$$k_{\max} = k_{eff} + \sum_{i=0}^{m} Bias_i + \sqrt{\sum_{j=0}^{n} Uncertainty_j^2} \quad (1)$$

3. 결론

사용후연료 저장대 제작 공차는 핵연료다발, 저장대 그리고 중성자 흡수물질에 대하여 제조 과정에서 발생할 수 있는 변형량을 불확실도로 계산하여 임계해석 결과에 반영해주어야 하며 이는 제조사의 제조 경험과 설계 값을 고려하여 제조사가 결정해야 한다. 그러므로 사용후연료 저장대 임계해석 결과는 제조사별로 차이가 나타나게 되며 제작 공차에 대한 불확실도 계산 결과가 임계해석에 영향을 미치게 된다.

4. 참고문헌

[1] "Guidance for Performing Criticality Analysis of Fuel Storage at Light Water Reactor Power Plants", NEI 12-16, March 2013.

[2] T.Y. Han, C.J. Park, B.C. Lee and J.M. Noh, "Uncertainty analysis of criticality safety for the plate type fuel assembly storage rack", Annals of Nuclear Energy 53 (2013) 82-89.

[3] D.E. Bodette and R.E. Naegeli, "ACRR Fuel Storage Racks Criticality Safety Analysis", SANDIA REPORT, SAND97-2447, Oct. 1997.

사용연한이 만료된 경수로용 원전연료 운반용기의 자체처분을 위한 잔류방사능 측정·평가의 통계학적 접근

추연철[1*], 조남찬[1], 주영종[1], 설증군[1], 김정명[1], 송정호[2*], 서민우[2], 김봉주[2], 신진성[2], 김현권[2]
[1]한전원자력연료㈜, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 242
[2]㈜오르비텍 기술연구소, 서울특별시 금천구 범안로 1130 가산디지털엠파이어 8층
[*]ycchoo@knfc.co.kr / sesper@naver.com

1. 서론

IAEA BSS (Basic Safety Standard) No.115에서 정의한 규제해제 개념을 반영한 국내의 자체처분은 1994년 한전원자력연료㈜가 NaF 폐기물에 처음 적용하여 시행한 이후, 관련 법령의 정비를 통해 2000년부터 점차 확대되는 추세이다[1]. 최근에는 원자력시설의 유지보수 과정 중에 발생한 대형 금속폐기물이 늘고 있어 이의 안전한 처리, 처분 및 규제해제를 위해 규제기관 및 발생자 모두 관련연구를 서두르고 있다[2].

경수로용 핵연료를 원자력발전소로 안전하게 이송하기 위해 사용되었던 원전연료 운반용기는 사용연한 만료로 폐기된 금속물로서, 극미량의 우라늄 및 원전기원 인공 방사성핵종에 오염될 우려가 있어 자체처분 허용기준에 만족함을 확인 후에 재활용의 방법 등으로 자체처분을 해야 한다.

일반적인 금속폐기물의 자체처분은 잔류방사능 측정이 용이하도록 일정크기로 절단한 후 대표시료 채취 및 잔류방사능을 측정하나 형상 및 재질이 복잡한 운반용기(약 2톤/기)와 같은 대형 금속물의 경우 절단 등의 방법을 적용하기 어렵고 절단방법의 적용 시 고비용이 소요되며 이로 인한 방사선작업자의 위해성 또한 증가되므로 절단 등의 방법 없는 잔류방사능 측정·평가가 필요하다. 본 연구에서는 절단을 이용한 금속물 소형화 없이 잔류방사능 측정·평가의 신뢰성을 확보하기 위해서 MARSAME (Multi-Agency Radiation Survey And Assessment of Materials and Equipment Manual) 방법론을 준용하여 시범적으로 적용 및 평가하였다.

2. 본론

2.1 운반용기의 사용이력 평가

국내 원자력안전 관계법령에서는 자체처분 대상 폐기물을 표면오염물 또는 체적오염물로 구분한 후 잔류방사능 측정결과의 대표성을 확보하도록 하고 있다. 본 연구에서는 사용연한 만료로 폐기된 운반용기(MCC-3, Type Ⅲ, Type Ⅳ)를 종류별로 각각 1기씩 선택하여 육안검사, 사용이력 조사 및 감시측정의 방법으로 운반용기의 오염특성을 확인하였다. 확인결과 운반용기는 방사화 등으로 인한 체적오염은 없고, 국부적이지만 표면오염이 존재할 수 있을 것으로 평가되었다.

2.2 운반용기의 잔류방사능 측정 방법

2.2.1 대표시료 채취수 및 위치 선정

표면오염물인 방사성폐기물에 대하여 국내 규제지침 및 ANSI/HPS N13.12에서는 직접측정법으로 100% 전수검사 및 최소 1 개/㎡의 문지름 시료를 채취·분석하도록 하고 있다. 그러나 표면오염도 측정시 최소측정농도 값을 자체처분 허용기준의 1/10을 유지하면서 100% 전수검사를 권고하는 국내 규제지침에 부합하기 위해서는 많은 시간과 노력이 소요되므로, 운반용기와 같은 국부적 오염이 예상되는 극저준위 대형금속물에 적용하기는 비효율적이다. 따라서 본 연구에서는 통계학적 평가기법에 근거한 MARSAME 방법론 및 ANSI/HPS N13.59를 준용하여 대표시료 채취수를 결정하는 절차를 Fig. 1과 같이 수립하였으며, 무작위 시작점을 중심으로 삼각형모형 참조격자를 설정한 후 대표시료 채취위치 등을 선정하였다.

2.2.2 잔류방사능 측정

운반용기 표면의 오염원으로 예상되는 방사성핵종은 우라늄 및 Co-60과 같은 원전기원 인공 방사성핵종이다. 본 연구에서는 운반용기 표면오염도를 대표시료 채취 위치에서 1분간 직접법 (α MDA : 0.029 Bq/㎠, β·γ MDA : 0.098 Bq/㎠) 및 간접법 (α MDA : 0.0034 Bq/㎠, β MDA : 0.0042 Bq/㎠)으로 측정하였으며, 표면오염도 산출은 ISO 7503-1 권고식을 사용하였다. 또한, 국부적 오염여부를 확인하기 위해서 스캐닝 측정방법으로 운반용기 표면을 전수검사하였다. 선정된 대표시료 채취 위치에서 측정된 잔류방사능 측정결과는 Table 1에 나타내었다.

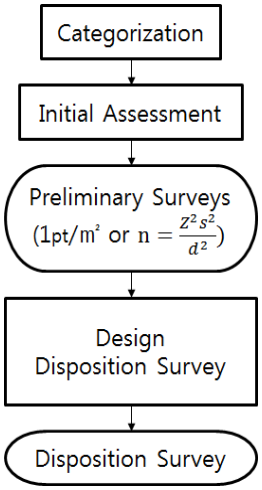


Fig. 1. Flow Diagram for Survey Design and Statistical Tests.

Table 1. Results of Residual Radioactivity and Statistical Assessments for Transport Cask

	구 분	대 표 시료수	α 오염도 $\overline{X}$ + SD (Bq/㎠)	Bγ 오염도 $\overline{X}$ + SD (Bq/㎠)	Sign TEST	UCL (95%)	
					S+ Value	α 오염도	Bγ 오염도
MCC-3	상부 프레임 외부	12	ND	0.009±0.0163	12	N/A	0.0295
	상부프레임 내부	12	0.0001±0.0003	0.0034±0.0097	12	0.0005	0.0156
	하부프레임 외부	12	ND	ND	12	N/A	N/A
	하부프레임 내부	12	0.0003±0.0008	ND	12	0.0013	N/A
	연료 안착대	11	0.0028±0.0092	0.0037±0.0074	11	0.0149	0.0134
	연료체결 프레임	11	0.0003±0.0009	0.0088±0.012	11	0.0015	0.0246
TYPE Ⅲ	상부프레임 외부	11	0.0008±0.0016	ND	11	0.0029	N/A
	상부프레임 내부	11	0.0006±0.0015	ND	11	0.0026	N/A
	하부프레임 외부	11	0.0024±0.0039	0.0078±0.0257	11	0.0075	0.0416
	하부프레임 내부	11	0.0023±0.0028	ND	11	0.0060	N/A
	연료안착대	11	0.0004±0.001	ND	11	0.0017	N/A
TYPE Ⅳ	상부프레임 외부	11	0.0009±0.0017	ND	11	0.0031	N/A
	상부프레임 내부	11	0.0003±0.0009	ND	11	0.0015	N/A
	하부프레임 외부	11	0.0011±0.0017	ND	11	0.0033	N/A
	하부프레임 내부	11	0.0004±0.0009	ND	11	0.0016	N/A
	연료안착대	11	0.0004±0.001	ND	11	0.0017	N/A

2.3 잔류방사능 측정결과의 통계학적 평가

운반용기와 같은 대형금속물의 경우 방사능 오염의 전수검사는 현실적으로 불가능하기 때문에 표본측정을 수행해야 하며, 표본측정의 대표성을 확보하기 위해 대상 폐기물의 균질성을 사전에 확보하여야 하나 완벽한 균질성 확보는 거의 불가능하다. 또한, 표본측정 결과를 근거로 자체처분 허용기준 초과여부를 단순 판단하는 경우, 국부적으로 자체처분 허용기준을 초과할 가능성이 있고, 측정된 평균 방사능농도 또한 불확실성을 내포하고 있기 때문에 통계학적인 접근을 고려하기를 권고하고 있다[3].

본 연구에서는 운반용기 잔류방사능 측정결과 값들이 자체처분 허용기준 미만인지 여부를 평가하기 위해 MARSAME 방법론에서 권고하는 통계학적 평가기법인 Sign TEST 및 Chebyshev 부등식을 이용한 신뢰상한치 (UCL, Upper Confidence Limit) 산출식을 이용하였다.

$$UCL_{1-\alpha} = \overline{X} + \sqrt{\frac{1}{\alpha} - 1} \cdot \left(\frac{s}{\sqrt{n}}\right) \qquad (1)$$

여기서, $\overline{X}$는 표본평균, s는 표본 표준편차, n은 대표시료수 및 α(α=0.05)는 Type I error 이다.

본 연구에서 보수적으로 설정된 자체처분 기준(허용 표면 오염도의 1/10 수준) 에 대해 운반용기 잔류방사능 측정결과들이 초과하는지 여부를 통계학적으로 평가한 결과 경수로용 원전연료 운반용기는 자체처분이 가능한 것으로 평가되었으며, 평가결과를 Table 1에 나타내었다.

3. 결론

본 연구에서의 운반용기와 같은 표면오염성 극저준위 대형금속폐기물의 잔류방사능에 대한 통계학적 측정·평가는 종래의 평균방사능 농도등과 단순 비교하는 방법에 비해 자체처분 허용기준 초과여부를 효율적으로 신뢰성 있게 판단하는 방법임을 확인하였다. 그러나 배경준위가 비교적 높은 환경에서 방사능측정기의 계측한계 등으로 농도검출이 어려운 경우 비검출 (Nondetects 또는 MDA미만)되는 값들은 잠재적으로 평균방사능 농도에 영향을 미칠 수 있기 때문에 이들의 영향을 고려한 추가적인 통계학적 평가방법 개발이 필요할 것으로 사료된다.

4. 참고문헌

[1] 이윤근 외 , "IAEA BSS 개정(안)의 국내 자체처분 도입 방안 연구", KINS/RR-1026 (2011).

[2] 김기인, 전인영, 김영균, 김완태, "극저준위 금속폐기물 자체처분에 관한 국내 규제현황 및 현안 고찰", 대한방사선방어학회 2009년도 추계학술발표회 논문집, 92-93 (2009).

[3] 정재학, "극저준위 방사성폐기물의 방사성핵종 분포유형에 기초하여 자체처분기준 만족여부를 판단하기 위한 통계학적 접근방법", 방사성폐기물학회지, Vol.8(2), 123-133 (2010).

원전폐로와 관련된 추정비용과 기간, 방사성 폐기물 발생량에 대한 고찰

박동원*, 김병래, 박근택, 김승재
고려검사주식회사, 경남 김해시 가야로 30번길 5(삼계동)
*han50071@naver.com

1. 서론

근자에 고리 1호기의 연장수명 10년의 종료시점이 다가옴에 있어 추가연장 할 것인지 폐로 할 것 인지에 대한 논쟁이 뜨겁다. 본고에서는 경제적 손익계산을 떠나서 언젠가는 우리의 원전도 폐로작업에 착수해야 한다는 전제하에서 폐로에 대한 연구도 본격적으로 수행되어야 할 것이다.
우리원전은 폐로에 대한 경험이 전무 하므로 폐로의 비용이나 발생폐기물, 폐로작업에 소요되는 기간 등에 있어서 다양한 추정이 있을 뿐이다.
따라서 전문가별로 추정의견의 차이도 상당할 수 밖에 없으며 결국 폐로 경험이 있는 국가 혹은 폐로가 진행 중인 해외사례를 면밀히 검토하여 참고 모델로 삼을 필요가 있을 것이다. 본고에서는 폐로의 소요기간, 비용, 폐기물 발생량을 중심으로 기술하고자 한다.

2. 본론

2.1 폐로의 소요기간

현재 해외원전의 폐로 현황을 살펴보면 미국 17기, 독일 16기, 일본이 후쿠시마 원전6기를 비롯하여 동해원전을 현재 폐로 중에 있으며 영국 등 세계적으로 해체중인 원전은 130기에 달한다.

고리1호기의 경우 대체로 폐로에 소용되는 추정기간을 15년으로 예측하고 있다. 이것은 해체방식에 있어서 즉시해체와 자연해체로 나눌 때 즉시해체는 15년의 기간을 필요로 하고 자연해체는 60년을 소요기간으로 보고 있다. 해외원전의 폐로 방식을 보면 프랑스와 독일, 일본 등은 즉시해체 방식을 취하고 영국은 자연해체방식을 택하고 있다. 비용의 차이에 따라 즉시해체 방식을 선호하기는 하지만 그만큼의 위험성도 따른다고 봐야 할 것이다.

즉시해체 방식에 따라 해체중인 일본 동해원전(출력 16.6만 Kw, 탄산가스 냉각로)의 해체계획을 보면 Table 1에 나타난바와 같이 대체로 2020년에 해체공정이 마무리 되는 것으로 계획되어있다.

Table 1. Japan's Tokai nuclear power plant decommissioning process planner

공 정 내 역	소 요 기 간
원자로영역해체 전 공정	1998-2013(16년)
원자로영역 해체 철거	2014-2019(5.5년)
원자로 건물해체 철거	2019-2020(1.5년)
원자로 영역 이외의 철거	2001-2020(18.3년)
방사성폐기물의 단기처리	1998-2020(23년)
고준위폐기물 항구처리	2020---

위 표에 나타난 대로 1998년에 운전을 정지 하고 2013년에 전 공정이 마무리 되는 것으로 되어있다. 그러나 2013년 12월에 5 년을 연장하여 2025년에 폐로가 종료될 것이라 한다. 자연해체 방식을 채택하여 1993년부터 해체중인 영국의 트로스피니트 원전(출력 23.5만 Kw, 탄산가스 냉각로)의 경우도 20 년을 넘게 해체작업을 하고도 폐기물의 처리까지는 2073년경에 종료될 것이라 한다.

이러한 해외 원전의 기간의 의미를 강조하는 이유는 우리의 원전이 폐로경험이 전무한 상황에서 15 년 해체공정을 무난히 달성할 수 있는가 하는 것이다. 공정기간은 곧 비용과 직결되고 해체기간 중에 또 다른 사회적 수용성을 요구 받을 수 있기 때문이다.

2.2 폐로의 비용 문제

가장 혼선이 많고 의견이 많은 분야가 폐로비용에 관한 것이다. 우리정부는 폐로비용을 대략 3000억 원 가량 예상하고 있으나 전문가의 예상은 1조원에서 3조원에 이르기까지 다양한 상황을 상정하여 비용을 추정하고 있다. 이것은 그 만큼 폐로과정에 있어서 변수가 많다는 의미이기도 하지만 경험이 전무한 상태이기 때문이기도 하다.
일본 동해원전의 경우, 경제산업성에서 제시한 소요 비용을 보면 885억엔으로 추정하고 있으나 이것은 23 년간의 해체공정을 잘 마무리 했을 경우이고 위에 언급한 것 처럼 폐로기간을 이미 28 년으로 연장하였으며 또한 폐로 후의 고준위 폐기물의 처리와 보관에 관한 비용은 예상이 어렵다고 했다.

福島(Fukushima) 원전의 경우, 물론 불의의 자연재해에 의해 발생한 사고에 의한 폐로라고는 하지만 동경전력에서 지금까지 투입된 비용만 한화로 약 10조원에 이른다고 했다. 문제는 지금부터 얼마간의 비용이 소요될지 동경전력측도 예상을 못하고 있다는 것이다.

영국의 트로스피니트 원전도 1995년에 작업을 개시하여 99%의 방사성물질을 제거했지만 시설의 완전해체 까지는 70 년의 시간이 필요하며 2026년에 방사능 감쇄를 위해 작업을 정지하고 2073년에 폐로의 최종 단계 작업을 착수할 것이라 했다,추정비용을 한화 약 9000억원 정도의 비용계획으로 폐로중이기는 하나 향후 70 년간의 비용변동에 대해서는 누구도 추정할 수 없는 상황이다.

이처럼 즉시해체이던, 자연해체방식이던 기간과 비용을 섣불리 단정하기는 어렵다는 것이다.

2.3 폐로에 따른 방사성폐기물의 발생량

우리원전의 설비용량은 최소 60만Kw이상이다. 3장에서 해외사례로 거론된 원전은 우리원전보다 용량이 훨씬 작다. 3장에 거론된 동해원전의 폐기물 추정 발생량을 보면 Table 2와 같다.

Table 2. Estimated waste generation of Tokai nuclear power plant

비교적고준위	약 1,600톤	원자로내부품,제어봉등
비교적저준위	약 13,100톤	수처리용 필터등
극 저준위	약 13,100톤	노심주변의 콘크리트등
일반 폐기물	약 168,900톤	건물의 콘크리트등

폐로중인 일본의 동해원전은 16.6만Kw로서 우리원전보다 설비용량이 훨씬 작고 탄산가스 냉각방식이다. 그러나 위의 폐기물 발생량을 보면 우리원전 폐로시의 폐기물 발생량을 추정할 수 있을 것이다. 또한 2015년 3월에 일본정부는 Kenkai 원전도 폐로하기로 결정하였다. 따라서 우리의 원전이 다시 수명연장을 하든, 아니면 폐로를 하든 폐로가 활발히 진행 중인 해외의 사례를 보고 본격적인 연구를 진행해야 할 것이다.

3. 결론

지금까지 즉시해체와 자연해체방식을 채택한 해외의 대표사례를 모델로 하여 폐로에 대한 소요비용과 소요기간, 발생폐기물의 추정 등에 대해 고찰하였다. 기술된 바와 같이 폐로비용과 소요기간은 모두가 변수이다. 폐로공정을 진행 중에 어떤 변수에 의해서 기간이 연장되고 비용이 추가될지는 누구도 알 수 없다. 그러나 사례에서 보듯이 비용과 공정기간이 연장되는 사유들을 분석하면 보다 더 면밀한 계획의 수립이 가능할 것이다. 우리의 원전이 수명을 재연장하여 향후 십 수년을 연장운전 한다 할지라도 폐로의 준비기간과 비용의 적립 등을 감안 한다면 지금부터 준비를 서둘러야 할 것이다. 또한 폐로의 기술력도 우리 원전의 기술력이 되어 해외의 폐로 사업에 상업화가 얼마든지 가능해 보인다.

또한 일본 동해원전의 경우, 폐로와 관련하여 현재 작업인원이 800명으로 지역 고용의 창출에는 크게 기여했다고 한다. 우리나라의 경우도 전력수급계획 등의 수립이 선행되어야 하지만 폐로에 대한 연구와 기술축적이 시급한 것으로 보인다.

4. 참고문헌

[1] 강창일, 고리원자력 발전소 1호기 폐로 비용 추산 및 준비정도 평가, 4-9, 18(2011년 9월).

[2] World Nuclear Association, Decommissioning Nuclear Facilities. Feb 2015.

[3] 日本原子力発電株式会社, 東海発電所の廃止措置, 廃止措置工事のスケジュール(2015년 3월).

[4] 経済産業省, 日本原子力発電株式会社東海発電所廃止措置計画認可申請書における計算データの入力誤りに係る報告書. 1-2(平成24年8月).

건식저온플라즈마를 이용한 금속방사성폐기물 재활용기술

김경민[1], 이재용[1], 김효섭[1], 손대선[1], 김용수[1*], 전제근[2], 전상환[2], 심진호[2]
[1]한양대학교, 서울특별시 성동구 왕십리로 222
[2]㈜에이치앤에너테크, 서울특별시 성동구 왕십리로 222
[*]yongskim@hanyang.ac.kr

1. 서론

현재 우리나라에서는 원전 해체가 주요 이슈로 부각되면서 원전 해체의 필수적인 기술인 제염기술의 연구가 활발하게 진행되고 있다. 하지만 기존의 제염기술은 주로 습식제염중심으로 연구되어 2차폐기물의 처리문제가 뒤따라왔으며 작업자의 안전도 보장되지 못했다.

본 연구에서는 이러한 문제점을 해결할 수 있고 뛰어난 제염성능을 갖는 일괄건식제염장비를 개발하였다. 개발된 장비는 고가의 금속인 인코넬 전열관을 제염하기 위하여 개발되었으나 그밖에 다양한 형태의 금속에 대해서도 충분히 제염이 가능하다.

개발된 장비는 인코넬 전열관을 압입방식으로 절단할 수 있는 절단장비, 드라이아이스 펠렛 분사 제염을 수행하는 전처리 장비, 표면제염을 위한 플라즈마 본처리 장비, 체적오염금속을 제염하고 부피감용 효과를 볼 수 있는 용융장비 등으로 구성되었다.

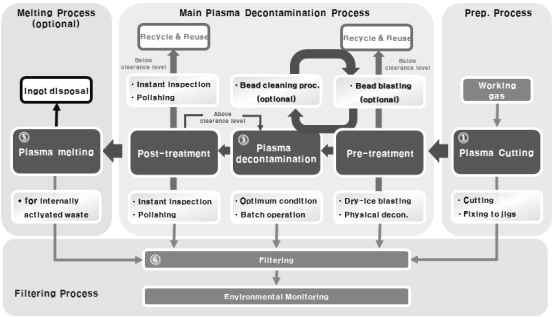


Fig. 1. Process flow diagram of the plasma processing technology.

2. 본론

2.1 제염설비 주요기술

개발된 장비는 전처리, 본처리, 후처리 과정을 모듈화하여 연계적용 할 수 있도록 하였고, 제염대상에 따라 독립적으로 운영할 수 있도록 제작하였다. 특히 각각의 장비는 원격 조종이 가능하여 작업자의 안전성을 확보할 수 있도록 하였다.



Fig. 2. Modular plasma processing equipment.

2.1.1 절단장비

개발된 장비의 절단은 압입방식을 채택하였으며 커팅기의 날을 이용하여 여러 단계의 깊이를 두어 층간 절단하여 금속이 안정적으로 절단될 수 있도록 하였다. 또한 비상시를 대비한 비상정지기능이 있으며 비산되는 이물질이 한곳으로 모여 취급 될 수 있도록 하였다.



Fig. 3. Cutting processing equipment.

2.1.2 전처리 제염장비

본처리 공정을 위한 전처리방식은 드라이아이스 펠렛 분사 방식을 채택하였다. 고압의 드라이아이스 펠렛 분사 제염은 금속표면에 붙은 페인트나 그리스 같은 이물질이 효과적으로 제거되며, 반응 후 곧바로 승화되므로 2차 폐기물이 거의 발생하지 않는다는 장점을 가지고 있다.

2.1.3 플라즈마 제염장비

본처리 제염장비인 플라즈마 제염 장비는 DC, RF 2가지 방식을 이용한 플라즈마를 생성하며 생

성된 플라즈마는 전압에 의한 가속으로 물리적 충격과, 반응성이 높은 라디칼의 화학적 반응이 복합적으로 발생하여 금속 표면에 고착화된 오염물질에 제염에 효과적이도록 설계 및 제작 되었다.

2.1.4 용융 제염장비

체적 오염으로 인해 완벽하게 제염되지 않은 오염물질은 최종단계인 용융 제염공정을 거치게 된다. 개발된 장비에서는 전 세계적으로 널리 사용되고 있는 유도로를 이용한 용융방식을 채택하였다. 용융 제염공정을 수행할 경우 각각의 방사성오염물질이 서로 다른 상으로 분배되므로 2차 폐기물의양을 줄일 수 있으므로 재활용/재사용이 용이하게 된다.



Fig. 4. Melting processing equipment.

2.2 일괄건식 제염장비 성능평가

2.2.1 절단장비 성능평가

절단 장비의 성능평가를 위하여 인코넬 전열관을 직접 압입 절단하는 평가를 수행하였다. 성능평가 결과 절단속도는 500 mm/min을 나타냈으며, 절단 후 무게 손실률은 1% 미만으로 나타났다.

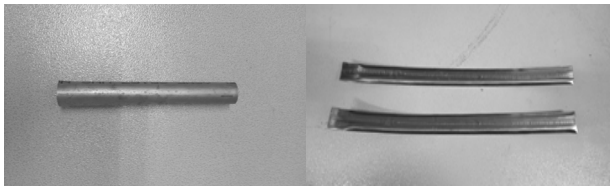


Fig. 5. Before and after cutting processing of Inconel.

2.2.2 플라즈마 제염장비 성능평가

제염장비의 성능평가를 위하여 일반적으로 배관에 널리 사용되는 T자형 구리튜브를 티타늄 도금하여 식각하는 평가를 수행하였다. 성능평가 결과 티타늄도금이 완벽하게 제거되는 것을 볼 수 있었다.

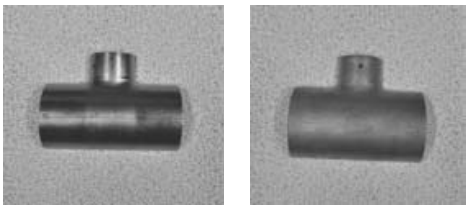


Fig. 6. Before and after plasma decontamination reaction.

2.2.3 용융 제염 장비 성능평가

용융 제염장비의 성능평가를 위하여 다양한 형태의 금속을 용융하는 평가를 수행하였다. 평가결과 금속은 모두 완전히 용융되어 잉곳 형태로 배출되는 것을 확인하였다.

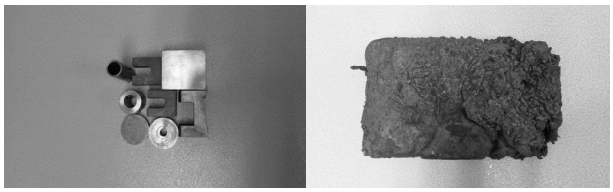


Fig. 7. Before and after melting processing.

3. 결론

본 연구에서 개발한 일괄건식제염장비는 압입절단 장비, 드라이아이스 펠렛 분사 장비, 플라즈마 제염장비, 용융제염 장비 등으로 구성되었으며, 고가의 인코넬 전열관 뿐만 아니라 다양한 형태의 방사성 금속폐기물을 제염하여 재사용/재활용이 가능하도록 제작하였다.

실제 방사성오염금속의 제염을 위한 성능평가 및 자체 시뮬레이션 결과 일괄건식제염 장비는 매우 뛰어난 절단/제염성능을 보이는 것으로 나타났다. 절단 장비를 4대 운영할 경우 증기발생기 1기를 처리하는데 0.215 년이 소요되는 것으로 나타났으며 재활용률은 95% 이상인 것으로 평가 되었는데 이는 고가의 금속의 재사용/재활용 측면에 있어서 매우 우수한 경제적 효과를 가진다고 볼 수 있다.

4. 참고문헌

[1] 전상환, 채산, 김용수, 류지환, 김경민, "방사성 금속폐기물 플라즈마 건식 제염설비 개발", 한국방사성폐기물학회 2013 추계학술발표회 논문요약집, 2013, 제주도.

[2] Y. S. Kim, "Using Plasma Processing Technology to Decontaminate Metallic Waste", Waste Management 2012, 30-33, Phoenix (2012).

4분과

방사선환경 및 안전 (Oral)

KOREAN RADIOACTIVE WASTE SOCIETY

제주지역 TSP 에어로졸 중의 ^{40}K, ^{232}Th과 ^{238}U 조성 특성

한충훈, 이영규, 박연현, 박재우*
제주대학교, 제주도 제주시 제주대학로 102
tang007@jejunu.ac.kr

1. 서론

본 연구는 ICP-DRC-MS를 이용하여 국내 배경지역인 제주도 고산 지역 TSP 에어로졸 중의 ^{40}K, ^{232}Th과 ^{238}U을 방사능 농도와 radium equivalent (Ra_{eq}) 값을 측정한 후 제주지역 에어로졸 조성 특성을 분석한 결과이다.

2. 본론

2.1 연구방법

2.1.1 TSP 시료 채취

TSP 에어로졸 시료는 제주도 '고산' 측정소(33º28'N, 127º17'E)에서 high volume tape sampler (KIMOTO Electric Co., 195A, Japan)를 사용하여 2013년 1월부터 4월까지 24시간 단위로 총 29개를 채취하였다. 이때 흡입 공기의 유속은 초기속도가 대략 170 L/min이 되도록 조절하였다.



Fig. 1. Location of air sampling site in Jeju island, Korea.

2.1.2 원소 성분 분석

에어로졸의 원소 성분은 마이크로파 분해 장치를 사용하여 혼합산 용액으로 용출하였고, US EPA IO-3 방법으로 전처리하였다. 시료가 채취된 필터를 테프론 용기에 넣고 5.55% HNO_3/16.75% HCl 혼합산 10 mL를 가한 후 마이크로파를 조사(1,000 W)하였다. 마이크로파 분해를 거친 용액에 3% HNO_3/8% HCl 혼합산 5 mL를 넣고 주사기 필터로 불용성 입자를 거른 후 초순수를 사용하여 용량플라스크에서 25 mL가 되도록 희석하였다. 전처리를 거친 에어로졸의 금속 성분들은 ICP-MS (Perkin Elmer, model ELAN DRC-II, USA)로 성분들을 분석하였다. 수회에 걸쳐 분석한 각 성분들의 평균 기기검출한계(IDL)는 Table 1와 같다.

Table 1. Instrumental detection limit (IDL) and variation of coefficient (CV) for ICP-DRC-MS (n=7)

Species	K (μg/L)	U (ng/L)	Th (ng/L)
IDL	15.02	11.38	11.60
CV (%)	0.92	1.38	1.48

2.1.3 동위원소의 방사능 농도

ICP-DRC-MS를 이용하여 측정한 K, Th, U 농도를 측정한 후 다음 (1)식을 이용하여 ^{40}K, ^{232}Th, ^{238}U 핵종의 방사능은 계산 하였다.[1]

$$A_i = \frac{\ln 2}{T_{1/2}} \times \frac{\rho_i \times m_e}{M_i} \times N \quad (1)$$

여기서, A_i, $T_{1/2}$, ρ_i, m_e, M_i, N은 각각 동위원소의 방사능(Bq/m^3), 반감기(s), 동위원소의 자연존재비, 핵종의 질량(g), 몰지량(g/mol), 아보가드로수($6.02\times10^{23}mol^{-1}$)이다.

2.1.4 Radium equivalent activity

radium equivalent (Ra_{eq}) 지수은 널리 사용되는 방사선 위험 지수이다. 다음 (2)식을 이용하여 radium equivalent (Ra_{eq}) 지수를 구하였다.[2,3]

$$Ra_{eq} = A_U + 1.429A_{Th} + 0.077A_K \quad (2)$$

여기서, A_U, A_{Th}, A_K은 각각 ^{40}K, ^{232}Th, ^{238}U 핵종의 방사능 농도이다.

2.2 결과

2.2.1 기상현상별 TSP 중의 성분 농도변화

기상인자는 대기 에어로졸 조성에 중요한 역할을 하는 변수로 작용한다. 특히 황사, 연무, 박무, 안개 같은 기상현상은 대기에어로졸의 조성에 지대한 영향을 미치고 있어서 기상인자에 의한 영향을 집중적으로 검토해 볼 필요가 있다. 본 연구

에서는 이러한 기상인자들이 대기 에어로졸 화학조성에 미치는 영향과 변화를 조사하였다. 이를 위해 채취 시기 시 고산지역 기상현상을 기상청 자료를 이용하여 조사하였고, 이를 황사(Asian Dust), 연무(haze), 박무(fog-mist), 비현상일(non-event)로 구분하였다. 그리고 제주도 고산지역에서 측정한 TSP 성분의 농도를 기상현상별로 평균하여 그 결과를 Table 2에 나타내었다.

Table 2. Airborne TSP concentrations, the associated ^{40}K, ^{238}U and ^{232}Th activity concentrations (μBq/m^3), and the Radium equivalent index Ra_{eq} (from Eq. (2)) at the Gosan location in Jeju Island

Species	^{40}K	^{238}U	^{232}Th	Ra_{eq}
All (29)	6.97	0.26	0.71	1.81
AD (3)	17.16	0.79	2.69	5.96
HA (3)	20.22	0.73	1.89	4.99
FM (3)	10.34	0.37	1.03	2.63
NE (21)	3.99	0.14	0.34	0.94

AD(Asian Dust), HA(Haze), FM(Fog-Mist), NE(Non-Event)

^{40}K, ^{238}U, ^{232}Th의 측정기간 평균 방사능 농도는 각각 6.97, 0.26, 0.71 μBq/m^3 였으며, radium equivalent (Ra_{eq}) 지수 값은 1.81 μBq/m^{3}을 나타내었다. 일반적으로 황사 및 연무 기상일 때가 박무 및 비현상일에 비해 방사능 농도가 2배 이상 높게 나타났다.

2.2.2 유입경로별 TSP 중의 성분 농도변화

기류의 이동경로에 따른 에어로졸의 조성 변화를 알아보기 위하여 기류의 유입경로를 3개의 구간으로 나누어 각 구간별로 그 조성을 비교하였다. 공기의 이동경로는 중국대륙(I구간), 한반도(II구간), 북태평양 및 일본(III구간) 구간으로 분류하였고(Fig. 2), 역궤적 분석을 통해 기류의 이동경로를 추적하였다. 이때 역궤적 분석은 NOAA의 HYSPLIT4 모델을 이용하여 시료채취 시기를 기준으로 모사시간을 5일로 설정하였다. 3개의 구간으로 분류하여 구간별로 기류의 이동경로를 비교해 본 결과, 그 빈도는 I구간 48.3%, II구간 10.3%, III구간 3.4%, 그 외에 중복 구간 37.9%로 연구기간 동안에 중국대륙으로부터 기류의 유입 빈도가 가장 많았던 것으로 조사되었다.

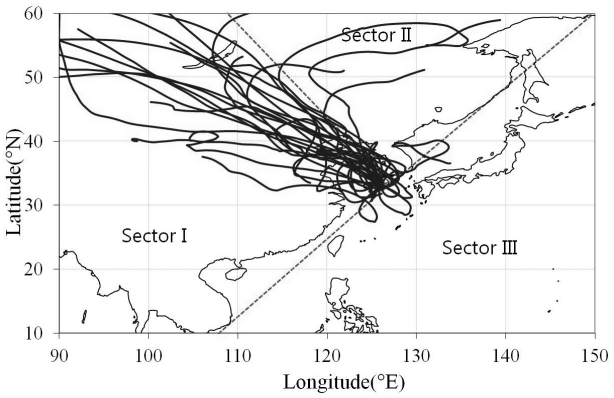


Fig. 2. 5-Day backward trajectories at the Gosan Site of Jeju Island during the study period.

3. 결론

국내 배경지역인 제주도 고산 지역 TSP 에어로졸 중 ^{40}K, ^{238}U, ^{232}Th의 측정기간 평균 방사능 농도는 각각 6.97, 0.26, 0.71 μBq/m^{3}였으며, radium equivalent (Ra_{eq}) 지수 값은 1.81 μBq/m^{3}을 나타났다. 일반적으로 황사 및 연무 기상일 때가 박무 및 비현상일에 비해 방사능 농도가 2배 이상 높게 나타났다. 연구기간 동안에 중국대륙으로부터 기류의 유입 빈도가 가장 많았던 것으로 조사되었다.

4. 감사의 글

이 연구는 교육과학기술부 한국연구재단 중점연구사업(NRF-2010-0020077) 지원을 받아 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] Magill, J., Galy, J., Radioactivity, Radionuclides, Radiation. Springer, Berlin (2005).

[2] Al-Sulaiti, H., Nasir, T., AlMugren, K.S., *et al.*, Determination of the natural radioactivity levels in north west of Dukhan, Qatar using high-resolution gamma-ray spectrometry. Appl. Radiat. Isot. 70, 1344-1 (2012).

[3] UNSCEAR, Ionising Radiation: Sources, and Biological Effect. United Nations Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiation, United Nations, New York, (1982).

미나리를 이용한 세슘 흡수 연구

김병호*, 임광묵, 전인, 최용호, 금동권
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*bhkim1@kaeri.re.kr

1. 연구 배경

지금까지 국내에서 환경 오염원에 대한 식물의 정화기술 개발은 담수 수계에 분포하는 일부 아열대성 수생식물을 대상으로 이루어졌으므로, 향후 예기치 않은 국내 원전 사고시 방사능에 의한 오염 토양의 정화를 위하여 우리나라에서 성장하는 적정 정화식물을 선정하여, 이를 이용한 방사성 핵종 정화 연구, 그리고 이의 활용기술을 개발할 필요가 있다.

본 연구에서는 이러한 기술문제를 해결하기 위하여 이미 선발된 후보 수생식물인 미나리를 대상으로 근권여과법에 의한 후보식물의 세슘 제거 실험을 수행하였다

2. 실험 방법 및 조건

세 가지의 초기 세슘농도(50, 100, 150 Bq/ml)를 가지는 수용액에서 미나리에 대하여 세슘 흡수실험을 수행하였으며, 두 가지의 pH 조건(pH 5, 9)에서 pH 변화에 대한 식물의 세슘 흡수 영향을 관찰하였다.

미나리를 수생 재배하는 동안, 일정 경과 시간에 수용액을 채취, 분석하여 세슘 농도를 측정함으로서 식물로의 세슘 흡수량을 확인하였다. HPGe detector를 이용한 감마선 분광분석을 통하여 세슘농도를 측정하였다.

종자를 발아시켜 규사배지에서 활착한 실생묘를 생장시키기 위하여 식물 생장상에서 온도 25℃, 습도 75%, 광주기를 16 시간, 광 밝기를 5,000 lux으로 하였다. 7 일의 생장시간이 지난 실생묘들은 통기성, 배수성이 좋고 비료성분이 거의 없는 상토로 옮겨졌으며 생장조건은 상기 조건과 동일하다.

상토에서 자란 묘목들 중 육안으로 크기가 균등한 것들을 선발하여 유사한 무게(10~20 g)의 무게를 가진 식물들을 유리 화병에 옮겨 심었다. 유리 화병에 각 농도별 세슘 수용액 80 ml를 첨가한 후 식물들의 뿌리 부분이 수용액에 완전히 담가지도록 하여 7~12 일 동안 생장시킨다. 이때 식물 생장조건은 실생묘의 생장조건과 동일하게 하였으며, 생장기간 동안 일정시간을 간격으로 0.5 ml를 채취하여 감마분석기를 이용하여 식물에 의한 세슘 흡수율을 조사하였다.

3. 실험결과

미나리를 50, 100, 150 Bq/ml의 ^{137}Cs 초기농도를 가진 수용액에서 생장시키면서 이들의 핵종 흡수변화를 조사하기 위하여 수행한 실험 결과가 Fig. 1에 나타나 있다. 이때 각 Cs 수용액의 pH 농도 5와 9에서의 실험결과도 함께 보여주고 있다.

Fig. 1에 나타난 바와 같이 미나리에 의한 Cs 흡수는 3종류의 세슘 초기농도, 2종류의 pH 농도를 갖는 수용액에서 모두 실험 시작 후 7 시간이 지난 시점에서 약 40~50%의 Cs를 빠르게 흡수하였으며, 70 시간 이내에 약 90% 내외의 Cs을 흡수한 것으로 나타났다. 특히 초기농도 50 Bq/ml, pH 5를 갖는 수용액에서 120 시간이 지난 후 약 98%의 흡수율 보이고, 240 시간이 지난 시점에서 가장 높은 Cs 흡수율인 약 99%를 나타내었다. 반면에 초기농도 50 Bq/ml, pH 9를 갖는 수용액에서 최종 흡수율은 약 92%로서 가장 낮았다.

그림에서 보인 바와 같이 수용액의 각 초기 Cs 농도가 흡수율에 미치는 영향이 거의 없는 반면에, pH 9보다는 pH 5의 수용액에서 미나리에 의한 흡수율이 높게 나타났으며, pH 5에서의 흡수율은 pH 9에서의 흡수율과 비교할 때 세 종류의 Cs 초기농도 조건에서 모두 약 5% 안팎으로 높게 나타났다.

이와 같이 결과에 나타난 것처럼 방사능 농도 함수로서 미나리는 3종류의 방사능 농도에서 실험되었으며, 모든 실험 농도로부터 미나리는 Cs을 흡수하는데 효과적인 것으로 나타났다. 또한 미나리의 Cs 흡수율이 수용액에 있는 Cs 초기농도에 영향을 받지 않는 사실은 H.M. Saleh[1]의 부레옥잠에 의한 방사성핵종 흡수실험결과와 일치하고 있다.

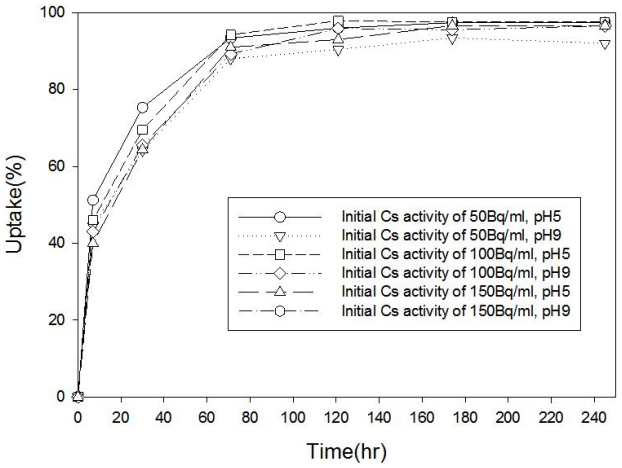


Fig. 1. Effect of initial Cs activity and pH on the upake of ^{137}Cs.

H.M. Saleh의 부레옥잠을 이용한 방사성 핵종 제거실험에서 pH가 부레옥잠의 핵종흡수율에 미치는 영향에 대하여 본 연구와 유사한 실험결과를 보고하였다. 그의 연구에 따르면 방사성 핵종에 대한 부레옥잠의 가장 높은 흡수율은 pH 4.9에서 목격되었다. 또한 부레옥잠에 의한 ^{60}Co 및 ^{137}Cs의 흡수는 pH에 의존하고 pH가 증가함에 따라 증가하다가 pH 4.9-10.9에서 증감 없이 일정하게 됨을 보고하였다. 비슷한 경향이 Center[2]에 의하여 보고된 바 있다. 이 연구에서 그는 pH 7에 가까운 중성배지의 조건에서 부레옥잠이 최적으로 성장할 수 있지만, 부레옥잠은 pH 4-10까지 다양한 범위에서 견딜 수 있다고 하였다. 이러한 현상은 부레옥잠을 이용하여 서로 다른 유형의 오염수를 처리하는 경우에 매우 중요하다. Minjune Yang의 해바라기, 갓, 강낭콩을 이용한 수생법(Rhizofiltration)의 우라늄으로 오염된 지하수 정화 효율 규명이라는 연구에서 pH가 증가할수록 수생법에 의한 우라늄제거 효율은 낮아지는 경향을 나타낸다고 보고하였다. pH 조건에 따라 제거 효율이 낮게 나타나는 이유는 pH 변화에 따라 수용액 내의 우라늄 존재 성상이 매우 민감하게 변하기 때문이며, 특히 수용액의 pH가 증가함에 따라 우라늄은 이온상으로 존재하기보다는 쉽게 고상의 침전물로 형성함으로써 수용액에 의한 식물 축적능력은 상대적으로 감소하기 때문으로 판단된다고 하였다.

식물정화실험에서 pH는 용액중 금속화학과 금속이온간의 경합에 영향을 미치는 중요한 변수로서 낮은 pH(2.9)에서 많은 양의 양자들이 식물뿌리표면의 흡착점에서 두 개의 방사성 동위원소 (Cs+ and Co2+)와 경합한다는 연구 결과도 보고되어 있다.

4. 결론 및 향후계획

미나리는 Cs 수용액 중 70% 이상의 Cs을 60시간 이내에 흡수한 것으로 나타났으며 이들의 현장 적용가능성이 충분함을 입증하였다. 그리고 미나리에 의한 흡수율은 수용액의 초기Cs 농도보다는 pH의 영향을 받는 것으로 나타났으며, pH 5에서의 흡수율은 pH 9에서의 흡수율과 비교할 때 세 종류의 Cs 초기농도 조건에서 모두 약 5% 안팎으로 높게 나타났다. 한층 광범위한 실험조건으로 하여 각 후보식물의 성장 한계실험을 수행함으로서 Cs 수용액의 한계농도를 예측할 수 있을 것으로 기대된다.

5. 감사의 글

이 논문은 미래창조과학부가 시행한 원자력중장기연구개발사업의 결과물입니다.

6. 참고문헌

[1] H.M. Saleh, Water hyacinth for phytoremediation of radioactive waste simulate contaminated with Cs and Co radionuclides Nuclear Engineering and Design, 242, 425–432 (2012).

[2] Center, T.D., Hill, M.P., Cordo, H., Julien, M.H., 2002. Water hyacinth. In: Van Driesche, R., et al. (Eds.), Bio- logical Control of Invasive Plants in the Eastern United States. USDA Forest Service Publication FHTET- 2002-04, 41–64.

원료물질 또는 공정부산물의 전처리법에 따른 Th과 U 회수율 비교

이훈[1,2], 임종명[1], 정근호[1], 최근식[1], 이진홍[2*]
[1]한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
[2]충남대학교, 대전광역시 유성구 대학로 99
[*]leehoon@kaeri.re.kr

1. 서론

생활주변방사선 안전관리법이 시행됨에 따라 천연방사성핵종에 대한 체계적인 관리가 필요하며 원료물질 또는 공정부산물 중에 함유된 천연방사성핵종을 취급하는 작업종사자 및 가공제품을 사용하는 일반 대중의 안전성 확보가 요구되고 있다. 대표적인 천연방사성핵종은 U-235, U-238, Ra-226, Th-232, K-40으로서 각 핵종을 알파분광분석기, 감마분광분석기, ICP-MS를 이용한 분석 시 분석법의 개발과 유효화 과정이 매우 중요하다. 특히, 파괴분석법을 이용한 원료 물질 또는 공정부산물 분석 시료의 전처리 과정은 크게 시료의 매질을 용액상으로 균질화하는 전처리 단계와 화학종 분석을 위한 분리, 농축 단계로 나뉘어 질 수 있다. 이 중 전처리 단계에서는 분리, 농축에 방해 영향을 미치는 유기물의 제거와 용액화의 과정을 거쳐야 함으로서 시간이 소요되며 분석 불확도에 가장 큰 요인으로 작용하기 때문에 전처리 방법에 대한 표준화 및 유효화가 필수적으로 요구되고 있다.

따라서 본 연구는 원료물질 및 공정부산물의 천연방사성핵종 분석에 적용할 수 있는 전처리법에 대한 유효성 평가를 위해 인증표준물질(CRM : Certified Reference Material) 5종을 사용하여 불산을 이용한 습식산화법과 용융법의 전처리 방법에 따른 Th과 U의 회수율을 비교, 평가하였다.

2. 본론

2.1 시료 및 시약

본 연구의 표준인증물질은 BCS(British Chemical Standard Certified Reference Material) No. 388 (Zircon), NIST(National Institute of Standards and Technology) SRM(Standard Reference Material) 1633c(Trace element in coal fly ash), 2709a(San Joaquin soil), 278(Obsidian Rock), 600(Bauxite) 총 5가지를 사용하였다. 시약은 모두 분석시약 등급으로 32% HCl, 48% HF, 28~30% Ammnoia solution (Merck EMSURE® KGaA)을 사용하였고 용융법의 융제는 Lithium metaborate, Lithium bromide(XRF scientific Limited)을 사용하였다.

2.2 실험방법

다음의 Fig. 1의 실험과정과 같이 105℃에서 건조된 인증표준물질 5종을 불산을 사용한 습식전처리법과 Lithium metaborate를 사용한 용융법으로 분해한 후 ICP-MS를 통해 Th과 U을 측정하여 전처리법에 따른 회수율을 비교하였다.

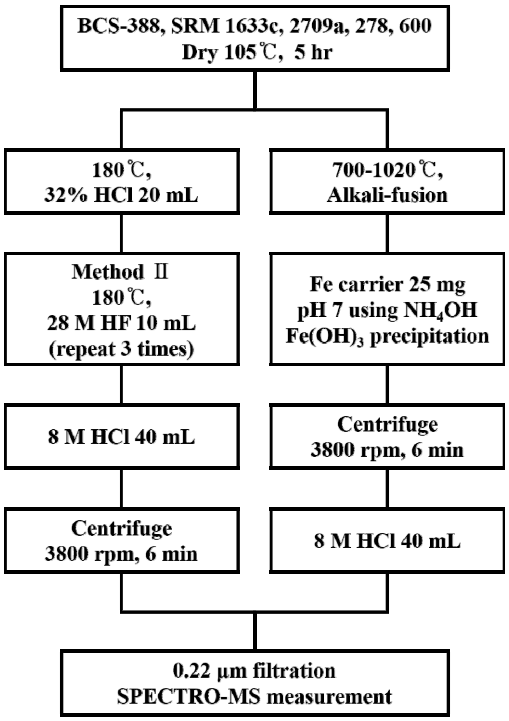


Fig. 1. Schematic representation of experiment.

2.2.1 습식 전처리법

105℃에서 5 시간 동안 건조한 SRM을 1 g 취하여 HCl 20 mL으로 180℃에서 초기분해한 후 증발건고된 상태에서 불산을 사용하여 10 mL씩 3회 반복하여 총 30 mL으로 시료를 분해하였다. 분해된 시료는 3500 rpm, 15 분 동안 원심분리하여 침전물은 버리고 상등액을 취하여 시료로 사용하였다.

2.2.2 용융법

105℃ 건조된 SRM 0.5 g과 Lithium borate 1.5 g, Lithium bromide 0.2 g을 백금도가니에 넣어 700 ~1100℃의 구간에서 25 분 동안 bead 형태를 만든 후 5% HNO_3 100 mL에 용해하였다. 용해된 시료는 Fe carrier 25 mg을 넣고 NH_4OH를 사용하여 pH 7 상태에서 침전시켜 3500 rpm, 6 분 동안 원심분리한 후 상등액은 버리고 침전물을 9 M HCl로 용해하여 시료로 사용하였다.

2.3 측정 및 분석

Accustandard®에서 제조된 Thorium standard 1000 μg/g, Uranium standard 1000 μg/g의 표준용액을 2% HNO_3로 희석하여 0.5, 1, 2.5, 5, 10 mg/L의 검량선을 단계별로 만들었으며 모든 시료는 검량범위에 적정범위로 희석하여 ICP-MS (SPECTRO-MS)를 이용하여 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

원료물질 및 공정부산물의 인증표준물질 5종에 대한 불산을 사용한 습식산화법과 용융법에 따른 Th과 U의 회수율을 Table 1과 2에 각각 나타내었다.

Th의 경우, 불산을 사용하였을 때 회수율은 4.5 ~ 31.2%으로 평균 23.1%이였으며 용융법은 91 ~ 100.4%으로 평균 97.0%으로 상대적으로 높은 회수율을 보였다. 단일 인증표준물질에 대하여 불산과 용융법 모두 5% 이하의 상대표준편차를 보임으로서 매우 안정적인 결과를 나타냈다. 반면에 서로 다른 매질의 전처리 시에는 불산의 경우 46.2%의 상대표준편차값을 나타냄으로서 매질의 구성에 따라 회수율이 민감하게 반응하였지만 용융법은 3.7%의 상대표준편차값으로서 매질에 영향을 받지 않고 안정적인 분해가 가능한 것으로 판단되었다.

Table 1. Recovery of Th according to digestion method

CRM	Recovery mean (%)		RSD (%)	
	HF	Fusion	HF	Fusion
388	28.4	97.7	1.1	1.4
1633c	4.5	99.1	2.1	0.5
2709a	27.0	96.8	2.6	0.9
278	31.2	100.4	3.7	1.0
600	24.4	91.0	4.3	0.2

U의 경우, 불산을 사용하였을 때 회수율은 12.6 ~ 93.4%으로 평균 61.1%, 용융법은 95.0 ~ 100.5%의 회수율로 평균 97.5%의 회수율을 보였다. 불산에 의한 전처리 시 Th보다 U이 40% 수준으로 높은 회수율을 나타냈다. Th의 결과와 유사하게 불산의 습식산화법은 서로 다른 매질의 전처리 결과 50.7%의 상대표준편차를 나타냄으로서 매우 불안정하였으나 용융법은 2.1% 상대표준편차로서 안정적인 결과를 보였다.

Table 2. Recovery of U according to digestion method

CRM	Recovery mean (%)		RSD (%)	
	HF	Fusion	HF	Fusion
388	12.6	98.2	3.3	1.0
1633c	75.4	96.2	1.1	0.3
2709a	72.9	97.5	0.2	1.9
278	51.1	100.5	2.0	0.8
600	93.4	95.0	2.0	2.4

4. 결론

본 연구는 원료물질 및 공정부산물 중의 천연방사성핵종(U-238, U-235, Th-232) 분석을 위해 인증표준물질 5종을 사용하여 전처리법에 따른 Th과 U의 회수율을 비교, 평가하였다. 실험 결과, 불산을 사용한 습식산화법은 Th과 U의 회수율은 각각 23.1%, 61.1%, 상대표준편차는 46.2%, 50.7%으로서 낮은 회수율과 불안정한 결과를 보였으나 용융법을 사용한 전처리 시 Th과 U의 회수율은 각각 97.0%, 97.5%였고 상대표준편차는 3.7%, 2.1%로서 매우 안정적인 결과를 나타냈다.

따라서 용융법은 습식산화법에 비하여 원료물질 및 공정부산물의 천연방사능핵종 분석 시 매질을 효과적으로 완전히 분해할 수 있으며 안정적인 분해가 가능한 전처리법으로 판단된다.

5. 참고문헌

[1] S. L. Maxwell, B. K. Culligan, A. kelsey-Wall and P. J. Shaw, Rapid radiochemical method for determination of actinides in emergency concrete and brick samples, Analytica Chimica Acta, vol 701, pp. 112-118, 2010.

우라늄 스와이프 시료 측정용 MMXRF의 최적화를 위한 연구

한기택, 최정윤, 윤종호, 안길훈*
한국원자력통제기술원, 대전광역시 유성구 유성대로 1534
*ahn@kinac.re.kr

1. 서론

원자력 관련 시설 내에서 스와이프 시료를 채취 및 분석하는 것은 해당 시설의 미신고 핵활동을 탐지하기 위한 중요 수단 이다. 채취된 모든 스와이프 시료는 정밀분석의 필요성 판단과 일차적인 정보 습득을 위한 스크리닝 과정을 거친다 [1].

스와이프 시료의 스크리닝을 위한 방법으로는 감마선 분광분석법, 알파 및 베타 계수법, X선 형광분석법 등이 있으며, 한국원자력통제기술원은 X선 형광분석법을 이용한 스크리닝을 방법을 사용한다.

일반적인 X선 형광분석기(X-ray Fluorescence spectrometer, XRF)는 우라늄에 대한 측정하한치가 높은 단점이 있다. 이를 보완하기 위하여, 한국원자력통제기술원은 DCC (Doubly Curved Crystal)를 이용한 단색광 마이크로 X선 형광분석기(Monochromatic Micro X-ray Fluorescence spectrometer, MMXRF)를 개발하였다. 단색광 X선을 사용할 경우, 일반적인 X선 분광분석기에 비해 민감도(Sensitivity)가 높고 산란된 X선에 의한 백그라운드를 줄일 수 있는 장점을 가지고 있다.

본 연구에서는, MMXRF 시스템의 최적화된 X선 조사면적을 선정하기 위하여, 조사면적과 우라늄 함량에 따른 선형성 및 재현성의 평가를 수행하였다.

2. 본론

2.1 MMXRF 시스템 구성 및 측정원리

MMXRF 시스템은 크게 X선 발생장치, 다색광 X선을 단색광으로 변환해 주기위한 DCC, 시료 및 X선 발생장치의 위치를 조절할 수 있는 XYZ 스테이지, 시료에서 방출된 형광 X선 측정을 위한 SDD(Silicon Drift Detector) 및 MCA, 그리고 MMXRF 전용 소프트웨어로 구성되어 있으며, 본 시스템에 대한 특성은 Table 1에 나타내었다.

Table 1. Characteristics of MMXRF system

Nominal Output Power	50 W
Nominal Source Current	1 mA
Target Material	Ag (Kα, 22.16 keV)
Detector Type	SDD (Silicon Dirft Detector)
Energy Range	2 ~ 35 keV
Active Detector Area	20 mm^2
Window Material	Beryllium
P/B Ratio	up to 6000/1

Fig. 1은 MMXRF 시스템을 이용한 우라늄 스와이프 시료의 측정과정을 보여준다. 먼저 X선(X-ray tube)관에서 발생된 다색광 X선은 DCC를 통해 단색광으로 변환됨과 동시에 마이크로 사이즈로 포커싱 된다. 마이크로 사이즈로 포커싱된 단색광으로 변환된 X선이 우라늄 스와이프 시료에 조사되면, 우라늄 원소의 L각의 L_α에 해당하는 13.61 keV의 에너지를 가진 형광 X선이 방출되며, 이는 하부의 SDD 계측기에 의해 검출된다. 최종적으로 검출된 에너지 스펙트럼은 MMXRF 전용 프로그램에 디스플레이 및 저장된다.

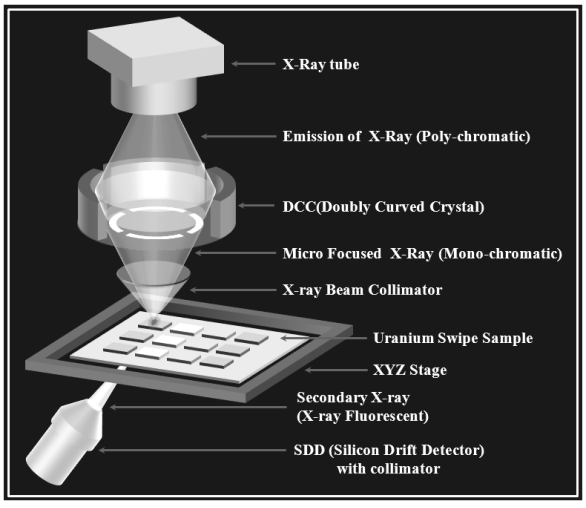


Fig. 1. Detection process of uranium swipe sample using MMXRF system.

2.2 우라늄 스와이프 시료의 제작

우라늄 표준시료로는 NIST SRM 3164(Uranium Standard Solution)을 사용하였으며, 10% 질산을 이용하여 우라늄 함량별로 10 ~ 70 ng으로 희석하

였다. 희석이 완료된 우라늄 표준용액은 5x5 mm로 절삭한 cotton 재질의 Texwipe에 점적하여 Fig. 2와 같이 우라늄 스와이프 시료를 제작하였다.

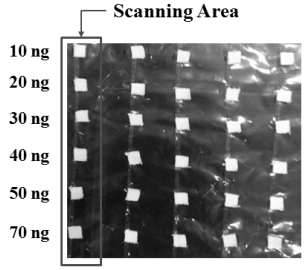


Fig. 2. Fabricated uranium swipe samples.

2.3 우라늄 함량에 따른 선형성 평가

위에서 제작한 우라늄 스와이프 시료를 이용하여, 측정시간은 5 secs/point로 설정하고, 조사면적을 1x1 mm, 2x2 mm, 3x3 mm 으로 변화시켜가며 우라늄 함량에 따른 선형성 평가를 수행하였으며, 실험결과는 Fig. 2와 같다. 조사면적이 1x1 mm 및 2x2 mm인 경우, 상관계수(R-square)가 99% 이상으로 우라늄 함량에 따라 선형성이 우수한 것을 확인할 수 있으며, 3x3 mm의 경우에는 1x1 mm 및 2x2 mm의 결과에 비해 상대적으로 선형성은 떨어지지만, 상관계수가 약 80% 정도로 우수한 선형성을 보여준다.

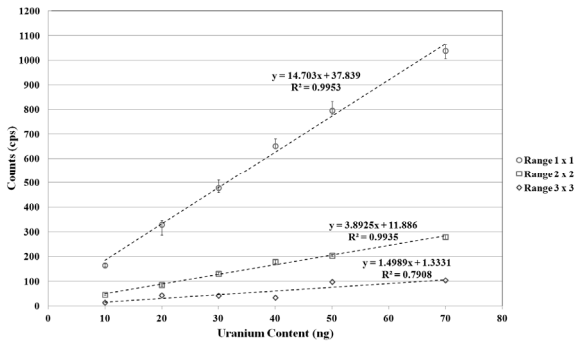
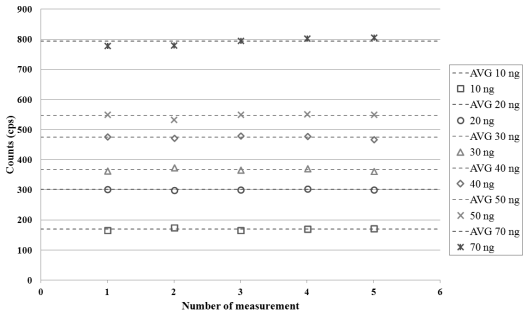


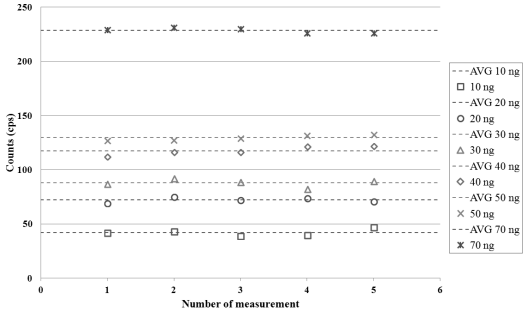
Fig. 3. Linearity of the MMXRF according to the uranium contents of samples.

2.4 우라늄 함량에 따른 재현성 평가

앞선 결과에 따라 선형성이 좋은 조사면적 1x1 mm 및 2x2 mm에 대해 재현성 평가를 수행하였으며, Fig. 3과 Table 2에 결과를 나타내었다. 조사면적이 1x1 mm인 경우, 상대표준편차(RSD%)가 대부분 2% 이하로 재현성이 우수한 것을 확인할 수 있다. 조사면적이 2x2 mm인 경우, 조사면적 1x1 mm에 비해 상대적으로 재현성은 떨어지지만, 상대표준편차가 대부분 5% 이하로 우수한 재현성을 보여준다.



(a)



(b)

Fig. 4. Reproducibility of the MMXRF responses, according to uranium content and measurement range. (a: Range 1 x 1, b: Range 2 x 2).

Table 2. Relative standard deviation for reproducibility of the MMXRF responses

Range	Uranium content (ng)					
	10	**20**	**30**	**40**	**50**	**70**
1 x 1	2.21	0.52	1.37	1.06	1.43	1.62
2 x 2	7.33	3.11	4.08	3.38	1.89	0.99

3. 결론

본 연구에서는, 우라늄 스와이프 시료의 스크리닝을 목적으로 개발한 MMXRF 시스템의 성능평가를 수행하기 위해 우라늄 표준용액를 이용하여 우라늄 함량에 따른 선형성 및 재현성을 평가하였다. 평가결과, 선형성 및 재현성 모두 우수한 결과를 나타내었으며, 모든 조사면적에서 우라늄 스와이프 시료의 스크리닝이 가능함을 확인하였다.

4. 참고문헌

[1] IAEA, "Safeguards Techniques and Equipment: 2011 Edition", International Nuclear Verification Series, 1, 97-108, (2011).

액·기체 방사성물질 배출규제 관련 국내·외 현황 분석

이관희*, 이호진, 이정준, 육대식, 이종국, 이병수
한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 과학로 62
*khlee@kins.re.kr

1. 서론

원자력시설의 정상 운영시 발생하는 액체 및 기체 상태의 방사성물질은 허가배출(Authorized Discharge) 개념에 따라 적절한 처리과정을 거친 후 감시 및 통제된 상태에서 환경으로 배출되고 있다. 일반적으로 원자력시설의 정상 운영시 환경으로 배출되는 방사성물질에 의한 방사선학적 위해도는 미미한 수준이다. 그러나 방사성물질의 배출에 따른 방사선학적 위해도의 대소와 관계없이 방사성물질의 관리는 지속적으로 일반인의 관심 대상이 되고 있다(http://wacid.kins.re.kr).

본 연구에서는 원자력시설의 정상 운영시 액체 또는 기체 상태로 환경으로 배출되는 방사성물질의 배출 규제 관련하여 국내·외 현황 분석을 수행하였다.

2. 본론

2.1 국내 배출규제 체계

원자력안전법 시행령 제2조의 정의에 의하면, '배출'이라 함은 원자력이용시설의 정상 운영시 발생한 액체 또는 기체 상태의 방사성물질을 배수시설 또는 배기시설을 통하여 계획적이고 통제된 상태로 외부로 내보내는 것을 의미한다.

액체 또는 기체 상태의 방사성물질에 의한 환경상의 위해방지를 위한 규제요건으로 선량제약치와 배출관리기준을 규정하고 있다. 원자력안전법 시행령 제174조에 따른 배출제한 기준은 다음과 같다.

- 배출관리기준(농도) : 일반인이 제한구역 경계에서 해당 농도로 배출된 방사성물질에 의한 피폭선량이 일반인 선량한도(연간 1 mSv)에 해당되는 값

- 선량제약치 : 제한구역 경계에서의 연간 선량 (액체 유효선량: 0.03 mSv, 기체 유효선량: 0.05 mSv)

원자력시설에 대한 인허가 심사 및 운영단계에서 수행하는 배출관련 규제 행위는 다음과 같다.

- 심사단계 : 건설허가 및 운영허가 심사시 안전성분석보고서 제11장(방사성폐기물의 관리)에 대한 심사를 통해 방사성폐기물계통의 상기 허용기준 만족여부, 발전소 운전 시 예상방출량으로 인한 환경상의 위해방지 기준 만족여부 등에 대한 검토

- 운영단계
  · 정기검사 : 정기검사시 배출허가서 및 관련 서류 검토를 통해, 원안위고시 제2014-34호에 따른 배출관리기준 및 선량제약치 만족여부 확인
  · 분기보고 : 원자력관계사업자가 원자력안전법 시행규칙 제127조에 따라 매분기 경과 후 1개월 이내에 제출하는 정기보고 자료 검토를 통해 액체 및 기체 폐기물로 인한 주민피폭선량이 기준치를 만족하는지 여부 확인

2.2 국내 배출한도 규제 현황

배출한도 규제는 선량 또는 배출총량으로 설정할 수 있다. 선량(Sv, 시버트)은 배출한도 규제 시스템의 근간이 되는 기본 개념으로, 주민피폭선량 평가코드(ODCM) 등을 이용하여 계산할 수 있다. 이에 비해 배출량(Bq, 베크렐)은 통제 또는 측정되는 단위로 사업자의 배출통제 행위에 직접적으로 이용할 수 있는 단위이다.

우리나라는 선량 규제를 통해 배출한도를 규제하고 있으나, 중수로 원전(월성 1~4호기) 및 핵주기시설에 대하여는 유도배출한계(DRL, Derived Release Limits)를 설정하여 기간별 배출총량에 대한 제한치를 설정하여 운영하고 있다. 여기서, 유도배출한계는 일반인의 연간 선량한도(1 mSv)에 이르게 할 수 있는 단일 핵종에 대한 연간 최대 배출량을 의미한다. 사업자는 인허가 문서를 통해 유도배출한계를 설정하고, 규제기관은 정기검사 등을

통해 사업자의 유도배출한계 준수 여부를 확인하고 있다. 월성 3,4호기의 경우 기체 방사성물질을 삼중수소, 옥소, 불활성기체 및 입자로 구분하여 유도배출한계를 설정하였다.

2.3 국외 배출한도 규제 현황

2.3.1 캐나다

캐나다는 일반인 선량한도(1 mSv/y)에 근거하여 유도된 정량적인 값인 유도배출한계(DRL)를 적용하여 배출총량에 대한 규제를 시행하고 있다. 유도배출한계 도출 방법은 캐나다 산업표준 기술기준인 CAN/CSA-N288.1에 규정되어 있다. 원전에서 배출되는 방사성핵종은 단일 핵종만이 아니므로 일반인 선량한도를 초과하지 않도록 대상 핵종 및 핵종군을 선택하여 별도의 운전목표치(통상 DRL의 1%)를 설정하여 운영하고 있다. 또한 Regulatory Guide G-228(Developing and Using Action Levels)에 근거하여 별도의 보고기준을 운영하고 있다.

2.3.2 미국

미국은 10 CFR 20 Appendix B에 배출제한치를 규정하고 있으며, 10 CFR 50 Appendix I에 액체 및 기체 방사성물질 배출에 의한 선량제약치를 제시하여 적용하고 있다.

2.3.3 IAEA

IAEA는 일반안전요건(General Safety Requirement) Part 3의 요건 31(방사성폐기물 및 배출)에서 방사성 물질 배출 전에 주민피폭선량을 평가하도록 요건화 하고 있으며, 안전지침(WS-G-2.3)에서 방사성물질의 환경 배출에 대한 기본 관리 지침(선량제약치 설정, 배출제한치 설정 등)을 권고하고 있다.

2.4 배출한도 설정시 고려사항

배출량 규제를 위한 배출한도 설정시 주요 고려사항 및 절차는 다음과 같이 정리할 수 있다.

- 유출물 특성 및 피폭 경로 확인 : 방사성핵종 구성, 환경에서의 거동 관련 방사성핵종의 화학적/물리적 형태, 배출 특성을 포함하는 배출 경로 및 지점(배출구 높이, 배출 속도 등), 매년 환경으로 배출될 것으로 예상되는 방사성핵종의 총량, 배출형태에 따른 피폭경로 및 평가 방법 검토 등

- 선량평가 : 평가모델 적합성, 선량제약치 만족 여부 확인

- 최적화 : 시설의 운영 상태와 잠재적 선량 및 위험도에 따라 적용, 사고를 통한 배출의 위험도 증가와 같은 안전사항도 고려, 신규 시설의 설계단계에서 잠재적 직무/공중 피폭 저감 기술 반영, 운영단계에서 유출물 저감을 위한 이용 가능한 기술 옵션의 발전에 기반

- 배출한도 승인 : 최적화된 배출 수준 또는 운영 경험에 근거하여 규제기관이 설정, 운영 유연성 고려하여 설정 필요

3. 결론

본 연구에서는 원자력시설의 정상 운영시 액체 또는 기체 상태로 환경으로 배출되는 방사성물질의 배출 규제 관련하여 국내·외 현황을 조사하였으며, 배출한도 설정시 주요 고려사항 및 절차를 분석하였다.

4. 참고문헌

[1] IAEA, Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards, No. GSR Part 3(2014).
[2] IAEA, Regulatory Control of Radioactive Discharge to the Environment, No. WS-G-2.3(2000).
[3] IAEA, Setting Authorized Limits for Radioactive Discharges: Practical Issues to Consider, TECDOC-1638(2010).

광역의 방사능 오염 부지내 일반인 피폭 방사선량 평가를 위한 피폭 시나리오 구성

고아라[1], 김시영[1], 김민준[1], 설증군[2], 김광표[1*]
[1]경희대학교, 경기도 용인시 기흥구 덕영대로 1732
[2]한전원자력연료㈜, 대전광역시 유성구 대덕대로 989
*kpkim@khu.ac.kr

1. 서론

후쿠시마 원전 사고로 인해 다량의 방사성 물질이 토양 및 해양 등의 경로로 방출 및 확산되었다. 특히 원전사고 이후 방출된 방사성 세슘은 광역으로 확산되어 토양 내 침착되었으며, 이로 인해 광역의 방사능 오염 부지가 발생되었다.

토양은 인간의 다양한 활동이 이루어지는 곳이며, 방사능 오염 토양에서 생활할 경우 활동형태에 따라 다양한 피폭경로를 통해 방사선 피폭이 발생된다.

국제방사선방호위원회(ICRP)에서는 방사능 오염 부지 내 일반인의 피폭 방사선량 평가 시 선원항 정보, 피폭 대상의 습관 정보 등을 고려하도록 권고하고 있다. 위와 같은 정보는 피폭 대상 및 오염 부지 이용 방식에 따라 상이하며, 현실적인 피폭 방사선량을 평가하기 위해서는 피폭 대상의 피폭 환경에 적합한 피폭시나리오 및 피폭경로 선정이 필요하다.

따라서 본 연구에서는 방사능 오염 부지 내 일반인의 피폭 환경조사를 토대로 현실적인 피폭시나리오 및 피폭경로를 구성하였다.

2. 본론

2.1 재료 및 방법

본 연구에서는 방사능 오염 부지내 피폭 시나리오 및 피폭 경로를 선정하기위해 세부적인 피폭대상과 피폭대상별 피폭환경을 조사하였다.

피폭대상의 경우 오염 부지 내에서 생활하는 일반인을, 활동형태와 연령에 따라 구분하였다.

피폭환경 조사는 실내 및 실외 방사선 피폭으로 구분하여 수행하였다. 실내 피폭의 경우 체류하는 건물의 형태와 체류시간을 조사하였으며, 실외 피폭의 경우 활동 형태와 실외 체류시간을 조사하였다. 또한, 농가와 비농가의 주거형태와 실내·외 체류시간 비율이 상이하므로 일반인 중 농경인에 대한 피폭환경 조사는 별도로 수행되었다. 최종적으로 피폭시나리오는 피폭대상별 오염부지 내·외 활동을 종합하여 구성하였다.

피폭경로의 경우 외부피폭과 내부피폭으로 구분할 수 있다. 본 연구에서 고려한 외부피폭 경로는 토양에서 방출되는 방사선에 의한 직접피폭(DS: Direct exposure from contaminated soil), 방사선운에 의한 직접피폭(DC: Direct exposure from radio-cloud)이다. 내부피폭의 경우 오염된 음식물 섭취(Ig_F: Ingestion of contaminated food), 오염된 토양 섭취(Ig_S: Ingestion of contaminated Soil), 건물 내 유입된 방사성 핵종의 흡입(Ih_Rb: Inhalation of radioactive nuclide in building), 토양에서 재부유된 방사성 핵종의 흡입(Ih_S: Inhalation of resuspended soil)으로 구분하였다.

2.2 결과 및 고찰

2.2.1 피폭대상

피폭대상은 활동형태에 따라 거주자(R: Only Resident), 활동인(A: Only Activity), 거주 및 활동인(B: Both resident and activity), 농경인(F: Farmer)으로 구분하였으며, 이들을 연령에 따라 유아(c: Child), 학생(s: Student), 성인(a: Adult)으로 구분하였다.

2.2.2 피폭환경 조사

Fig. 1에 국내 및 일본의 주거형태별 점유비율을 나타내었다. 국내의 경우 점유율이 가장 높은 주거형태는 아파트(59%)로 나타났으며, 일본은 단독주택(54.9%)으로 나타났다. 농경인의 경우 대표적인 주거형태는 단독주택(90%)으로 나타났다.

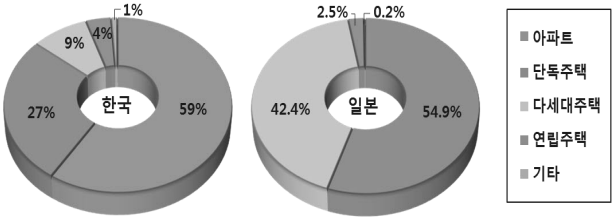


Fig. 1. Percentage of dwelling pattern for Korea and Japan.

Table 1에 국내 및 일본의 실내·외 체류시간 비율을 나타내었다. 농경인의 경우 농경활동이 농번기(5-10월)와 농한기(5-10월 외)로 구분된다. 농번기의 경우 체류 시간 비율은 실내 66%, 실외 34%로 나타났으며, 농한기의 경우 실내 78%, 실외 22%로 나타났다.

Table 1. Occupancy factors for Korea and Japan

구분	체류시간 비율(%)			
	한국		일본	
	성인	어린이	성인	어린이
실내	89	83	70-90	85
실외	11	17	10-30	15

2.2.3 피폭 시나리오 구성

Table 2에 피폭대상별 피폭 시나리오를 나타내었다. 피폭대상은 각각의 활동형태(R, A, B, F)별 연령(c, s, a)으로 구성하였다. 이때 농경인은 성인만 해당한다고 가정하였다.

Table 2. Exposure scenarios for population group

대상	피폭 시나리오	
	오염부지 내 활동	오염부지 외 활동
Rc	주거	유치원
Rs	주거	학교
Ra	주거	직장
Ac	유치원	주거
As	학교	주거
Aa	직장	주거
Bc	유치원 및 주거	-
Bs	학교 및 주거	-
Ba	직장 및 주거	-
Fa	농경 및 주거	-

2.2.4 피폭 시나리오별 피폭경로 선정

Table 3에 피폭 시나리오별 피폭경로를 나타내었다. 오염 부지 내에서 주거활동만 하는 경우 대부분의 생활이 실내에서 이루어진다고 가정하였기 때문에 오염된 토양의 섭취나 재부유된 방사성 핵종의 흡입은 발생하지 않는다고 가정하였다. 오염된 부지 내에서 직장생활을 하는 경우 사무직과 현장직으로 분류하여 피폭경로를 구성하였다. 이는 사무직은 주로 실내에서 현장직은 주로 실외에서 생활하기 때문에 사무직과 현장직 근로자에게 야기되는 주된 피폭경로가 다르기 때문이다. 사무직은 오염된 토양의 섭취 및 재부유된 방사성핵종의 흡입은 발생하지 않는다고 가정하였으며, 현장직은 건물 내로 유입되는 방사성핵종의 흡입에 의한 피폭은 발생하지 않는다고 가정하였다. 상기의 경우를 제외한 피폭시나리오에 대해서는 본 연구에서 고려한 모든 피폭경로(DS, DC, Ig_F, Ig_S, Ih_Rb, Ih_S)에 해당된다고 가정하였다.

Table 3. Exposure pathways for exposure scenarios

피폭시나리오	외부피폭경로		내부피폭경로			
	DS	DC	Ig_F	Ig_S	Ih_Rb	Ih_S
Rc	O	O	O	X	O	X
Rs	O	O	O	X	O	X
Ra (사무직)	O	O	O	X	O	X
Ra (현장직)	O	O	O	X	X	X
Ac	O	O	O	O	O	O
As	O	O	O	O	O	O
Aa (사무직)	O	O	O	X	O	X
Aa (현장직)	O	O	O	O	X	O
Bc	O	O	O	O	O	O
Bs	O	O	O	O	O	O
Ba (사무직)	O	O	O	X	O	X
Ba (현장직)	O	O	O	O	X	O
Fa	O	O	O	O	O	O

3. 결론

본 연구에서는 오염 부지 내 일반인의 활동형태를 고려한 현실적인 피폭 시나리오 및 피폭경로를 구성하였다. 본 연구의 결과는 방사능 오염 토양 내 일반인의 방사선학적 안전성을 판단하기 위한 피폭방사선량 평가에 활용될 것이다.

4. 감사의 글

본 연구는 한국에너지기술평가원의 에너지기술개발사업의 일환으로 수행되었으며 이에 감사드립니다. (No.20141510101630)

5. 참고문헌

[1] 농촌진흥청. 농업인 삶의 질 수준 측정 및 복지정책 개발 연구. 농촌진흥청; 2007.
[2] 환경부. 위해성 평가 관리 요소 기술 - 한국형 노출지수 개발 및 운영체계 구축. 환경부; 2007.
[3] ICRP 101, Assessing dose of the representative person for the purpose of radiation protection of the public, 2005.
[4] MIC. The basic information about the population census for 2010 in Japan. Ministry of Internal Affairs and Communications; 2011.

사고대응 소형 현장감마분광시스템 및 분석알고리즘 개발

지영용*, 정근호, 김창종, 이완로, 최상도, 강문자
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*yyji@kaeri.re.kr

1. 서론

방사능 재난대응으로 사고현장에 투입되는 방재요원이 쉽게 휴대할 수 있으며 측정결과로부터 핵종판별, 선량률 및 방사능 정보 등을 예측할 수 있는 최적의 방사선검출기 개발이 요원한 실정이다. 이를 위해 목적 및 결과에 부합하는 검출기 센서를 선정해야 하며, 이를 바탕으로 신호처리를 위한 회로구성 및 현장측정의 효율을 극대화하기 위한 검출시스템 구조설계 등이 이루어져야 한다.

뿐만 아니라, 방사선검출시스템으로부터 얻어진 측정결과로부터 목적하는 정보를 도출하기 위해서는 이에 상응하는 알고리즘의 개발이 동반되어야 한다. 즉, 개발된 분광분석시스템의 방사선 에너지스펙트럼으로부터 총선량률을 유도하기 위한 선량변환 알고리즘[1]의 개발이 선행되어야 하며, 총선량률 정보에서 핵종별 방사능 정보를 얻기 위해서는 일차적으로 측정된 총선량률 정보를 개별 핵종에 대한 선량률 정보들로 분해할 수 있어야 한다[2, 3]. 최종적으로 개별 핵종의 선량률은 그 핵종의 방사능과 직결하기 때문에 주어진 측정환경에 대한 이론적 반응함수인 핵종별 단위방사능당 선량률 값으로부터 해당 핵종의 방사능을 유추할 수 있게 된다[4].

본 연구에서는 계수효율과 분해능 등의 특성을 고려하여 분광분석이 가능한 센서로 CZT를 선정하였으며, 해당 센서로부터의 신호를 처리하기 위한 on-board형의 신호처리 회로를 구성함으로써 최종 검출기 본체를 구성하였다. 그리고 현장분석의 효율성을 극대화하기 위하여 탈부착 및 내경조절이 가능한 IRIS 콜리메이터[5, 6]와 검출기 앞단에 장착이 가능한 공기중 미립자 포집기를 개발하였다. 그리고 현재 측정된 에너지스펙트럼으로부터 선량률 및 방사능 정보를 유도하기 위한 알고리즘 개발이 완료되었으며, 이를 장착한 소프트웨어의 개발이 진행 중이다.

2. 본론

2.1 소형 CZT 검출기

CZT 검출기 센서에 대한 신호처리 회로 구성을 위해 Fig. 1과 같이 on-board형으로 신호처리부를 구성하였다. 여기에는 센서 및 전치증폭기에 필요한 고전압과 저전압부를 각각 설계하였으며, 주증폭기 회로, pile-up rejection 회로, pole-zero cancellation 회로 및 baseline restoration 회로 등을 장착하였다.

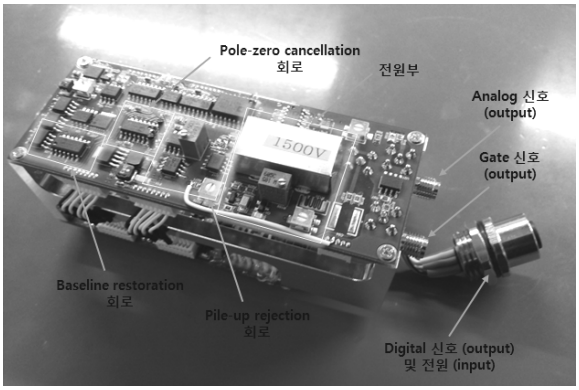


Fig. 1. Signal processing circuit.

신호처리부에서 만들어진 아날로그 신호를 판별하기 위한 MCA 회로를 제작하여 Fig. 1 신호처리부의 아래 단에 장착하였으며, 여기에는 디지털 신호데이터 송수신과 전원공급을 위한 입출력 단자를 연결하였다. 그리고 측정결과의 디스플레이, 측정 위치정보를 위한 GPS 시스템, 원격 데이터 전송 및 제어를 위한 블루투스 및 시리얼 통신 회로 및 내장 배터리 등의 전력부를 설계하여 시스템 제어부를 제작하였으며, 최종 완성된 CZT 검출시스템의 구조부를 Fig. 2에 나타내었다. 이 시스템에 대한 성능평가를 점선원들을 이용하여 수행하였으며 ^{137}Cs에 대하여 약 14 keV의 반치폭을 가져 우수한 분해능으로 구현됨을 알 수 있었다.

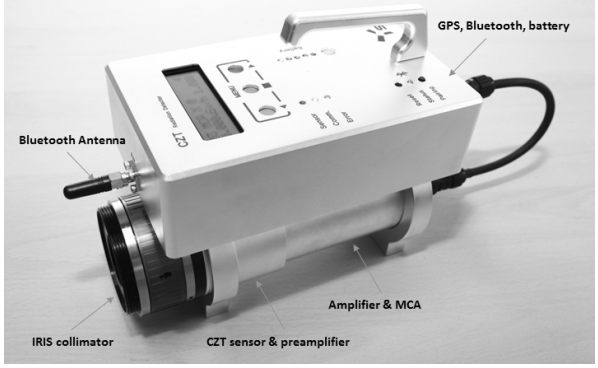


Fig. 2. Developed CZT detector.

2.2 콜리메이터 및 공기 포집기

개발된 소형 CZT 검출시스템의 현장대응에 효율성을 높이고자 Fig. 3과 같이 입사방사선의 양을 쉽게 조절하기 위한 IRIS형 콜리메이터를 개발하였다. 여기에 이론적 성능평가를 수행함으로써 내경의 크기에 따른 방사선세기 감소의 양을 쉽게 예측할 수 있게 하였다.

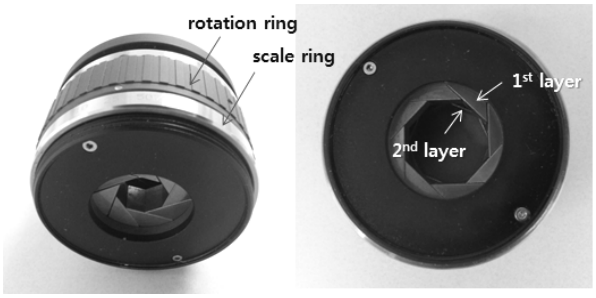


Fig. 3. IRIS collimator for a radiation detector.

그리고 소형 검출기 앞단에 공기포집기를 장착할 수 있도록 고안하여 방사선사고 지역의 공기를 포집함과 동시에 방사능 분석을 할 수 있게 하였다. 이를 위해 공기펌프용 노즐이 부착된 필터 하우징을 개발하였으며, 여기에는 미립자용 공기필터와 방사성옥소 포집을 위한 차콜필터 등이 내장되도록 구성하였다.

2.3 현장분석 알고리즘

방사선검출기를 이용하여 측정된 에너지스펙트럼으로부터 총선량률을 계산하기 위한 선량변환 알고리즘으로 G-인자 방법을 선정하였으며, 이를 개발된 소형 CZT 검출기에 대하여 유도하였다. G-인자를 이용할 경우, 개별핵종의 선량률을 도출하기 위한 선량률분광분석이 가능하며, 여기에 DTC 변환방법을 변형 적용하여 해당 핵종의 방사능을 결정할 수 있도록 설계하였다. 이 사항들은 모두 실험적 검증으로 그 유효성을 확인할 수 있었다 [3, 4].

3. 결론

원자력 사고시 현장 대응으로 오염지역을 구분하고 오염원 및 그 정도를 판별하기 위해서는 사고현장의 선량률과 오염핵종의 방사능에 대한 정보가 필수적이다. 이를 위해, 현장에서 직접 분광분석이 가능한 CZT 센서를 이용하여 소형 검출시스템을 개발하였으며, 현장대응의 효율성을 위하여 콜리메이터 및 공기 포집기를 개발함으로써 검출기에 탈부착이 용이하도록 하였다. 그리고 측정된 에너지스펙트럼으로부터 사고대응에 필요한 선량률과 방사능 정보를 유도하기 위한 현장분석 알고리즘을 개발하여 이를 CZT 검출시스템에 적용하였다.

4. 참고문헌

[1] Y.Y. Ji et al., "Determinations of the exposure rate using a NaI(Tl) detector of the environmental radiation monitor", JNFCWT, 11(3), 245-251 (2013).

[2] Y.Y. Ji et al., "Determination of Individual Exposure Rate for Each Gamma Nuclide", Korean patent, 10-1447030 (2014).

[3] Y.Y. Ji et al., "Feasibility on the Spectrometric Determination of the Individual Dose Rate for Detected Gamma Nuclides Using the Dose Rate Spectroscopy", Radiat. Phys. Chem., 97, 172-177 (2014).

[4] Y.Y. Ji et al., "Application of the dose rate spectroscopy to the dose-to-curie conversion method using a NaI(Tl) detector", Radiat. Phys. Chem. 106, 320-326 (2015).

[5] Y.Y. Ji et al., "Collimator for radiation detector", Korean patent, 10-1482016 (2015).

[6] Y.Y. Ji et al., "Development of the IRIS collimator for the portable radiation detector and its performance evaluation using the MCNP code", JNFCWT, 13(1), 417-423 (2015).

사용후핵연료 운송 중 사보타주 영향 평가

황미정[1*], 유양선[2], 홍정욱[2]
[1]한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
[2]한국과학기술원, 대전광역시 유성구 대학로 291
[*]mjhwang@kaeri.re.kr

1. 서론

전 세계적으로 급증하는 테러의 위협에 대응하기 위해 핵안보에 대한 강화가 중요해지고 있다. 국내에서는 사용후 연료를 발전소 밖으로 이송한 경험은 없지만, 향후 영구 처분장으로의 운송이 이루어질 경우에 대한 사보타주 영향을 평가하였다. 현재까지 국내에서는 개발된 사용후 핵연료 운송용기에 대한 규제 요건 충족을 위해 낙하사고와 같은 일반적인 사고에 대한 분석 및 실험이 진행되어 왔고, 폭파와 같은 사보타주에 의한 영향 평가는 수행된 적이 없다. 본 연구는 사고 결말 분석을 위한 1단계로 폭파가 사용후 핵연료 운송 용기에 미치는 영향을 보여준다.

2. 본론

2.1 폭파 영향 분석을 위한 모델 구성

사용후 핵연료 운송용기 낙하 규제 조건 시뮬레이션을 위해 구성된 한국수력원자력㈜에서 제공한 모델을 기반으로 폭파 영향 평가를 위한 모델을 구성하였다. 사용된 코드는 LS-DYNA이며, 제공된 모델이 Fig. 1과 같이 Half 모델이므로 Fig. 2와 같이 Full 모델을 구성하였다. 이는 낙하와는 다른 하중이 주어졌을 때, 거동이 대칭하는 방식으로 구현되지 않는 경우를 고려해야 하므로 Full 모델의 구축이 필요하다.

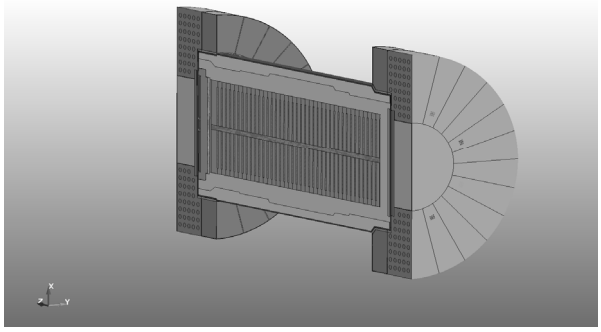


Fig. 1. Original Half Model.

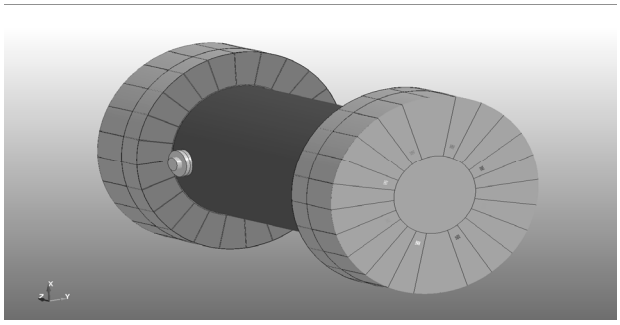


Fig. 2. Modified Full Model.

2.2 Full Model의 신뢰성 확인

구성된 Full 모델의 신뢰성 확인을 위해 낙하 거동 결과를 비교하여 모델의 신뢰성을 확인하였다(Fig. 3, 4).

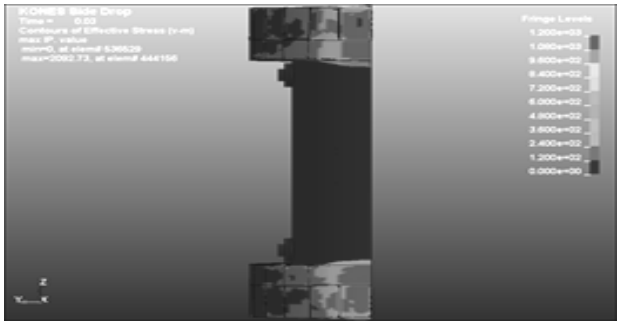


Fig. 3. Isometric view of Original Half Model.

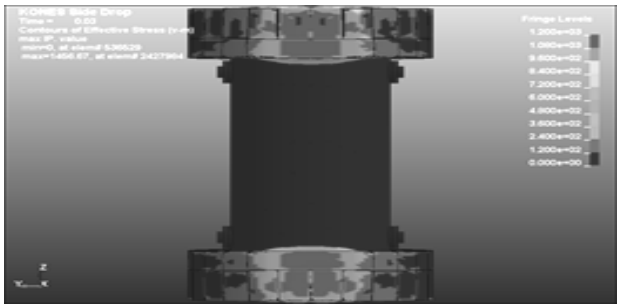


Fig. 4. Isometric View of Modified Full Model.

2.3 가상 사보타주 시나리오 구축

국내에서는 사보타주로 인한 영향 평가 분석 경험이 없고 DBT (Design Bassis Threat)는 대외비로 되어 일반 접근이 불가능하므로, 가상의 사보타주 시나리오를 구축하였다.

2.4 고려 사항

사용후 핵연료의 운송 중 폭발물을 사용한 사보타주가 가해질 경우 폭발물로 인한 폭압에 대한 대비가 필요하다. 폭압에 영향이 큰 요소는 이격 거리와 폭발물의 양이라고 판단된다. 그러므로 차량으로 운송 중의 사보타주 시나리오는 참고문헌을 기반으로 구성하였다. 가정된 시나리오는 운송 차량에 폭발물을 탑재한 차량을 최대한 가까이 하여 폭발을 일으키는 것이다. 이때 폭발물의 질량으로는 TNT 등가 질량을 사용하였다. 이는 폭발의 실험 결과가 가장 방대한 폭발물이 TNT이므로 기준 질량을 TNT 기준으로 한다.

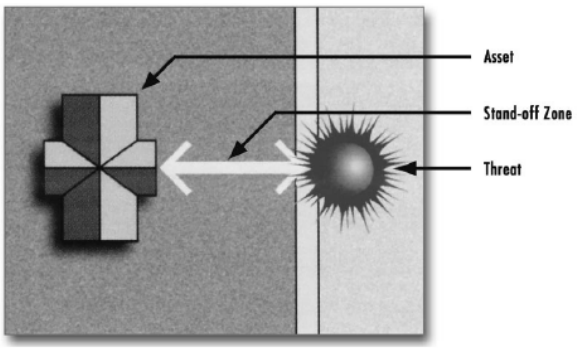


Fig. 5. Stand-off Distance.

2.4.1 관련 문헌 조사 내용

현재 폭발로 인한 건물의 피해에 대한 현상을 가장 통상적으로 제시하는 기준으로는 미국의 FMEA 426과 UFC 3-340-02가 있다. FMEA에 따르면 운반 수단에 따른 폭발물의 질량은 Table 1과 같다.

Table 1. The Mass of Explosives in accordance with a Threat

Threat description	TNT, kg
Briefcase/Suitcase bomb	23
Compact sedan	227
Sedan	454
Cargo van	1814

2.4.2 폭파 시나리오 설정

1차 분석에서는 폭발물을 이용한 사용후 핵연료 운송 중 사보타주가 행해진다는 가정 하에 소형이나 대형 승용차를 이용한 공격을 가정하고 분석하였다. 기타 자세한 시나리오 내용은 민감한 사항이 될 가능성이 있으므로 본 논문에서는 생략한다.

3. 분석 결과

물체와 그의 물성치에 대한 입력값을 토대로 공기 중 폭압인 Incident Pressure와 물체에 반사되어 생기는 반사파인 Reflected Pressure 도출 결과는 Fig. 6, 7과 같다.

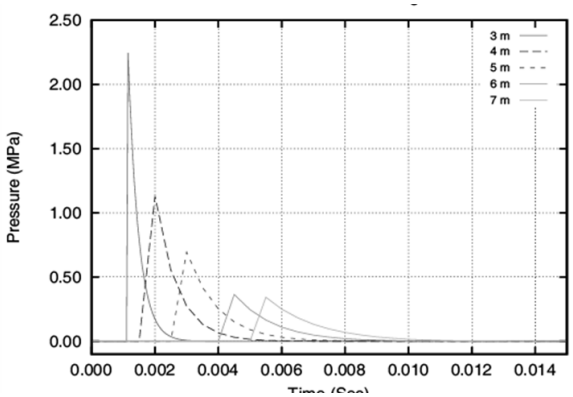


Fig. 6. Incident Pressure according to the distance.

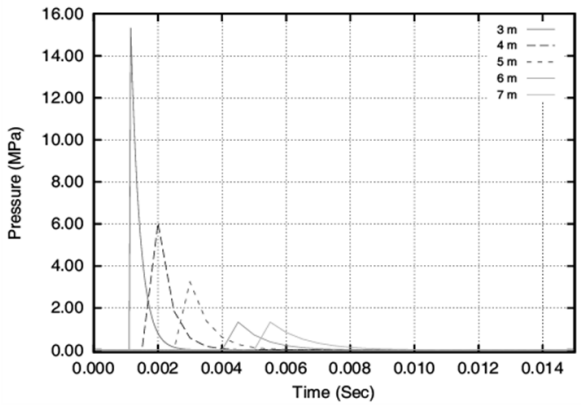


Fig. 7. Reflected Pressure according to the distance.

4. 결론

선정된 시나리오 분석 결과에서는 가정된 질량의 TNT 용량에 의한 폭파가 사용후 핵연료 운송 용기에 미치는 영향이 거의 없는 것으로 판명되었으며, 현재 폭발물의 양을 증가시킨 2차 분석을 수행 중에 있다.

5. 참고문헌

[1] Kim, Kap-Sun, Kim, Jong-Soo, Choi, Kyu-Sup, Shin, Tae-Myung, and Yun, Hyun-Do, "Dynamic impact characteristics of KN-18 SNF transport cask – Part 1: An advanced numerical simulation and validation technique," Ann. Nucl. Energy, 37, pp. 546-559, April, 2010.

4분과

방사선환경 및 안전(Poster)

KOREAN RADIOACTIVE WASTE SOCIETY

x-gamma 동시합산을 고려한 n-type HPGe 검출기의 효율결정

김창종*, 지영용, 이완로, 정근호, 강문자
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*cjkim@kaeri.re.kr

1. 서론

현재 감마선분광분석을 위해서 Ge 반도체를 이용한 HPGe 검출기가 통용되고 있다. Ge 반도체는 포함된 불순물에 의해 p-type과 n-type이 있으며, 모두 반도체검출기로 이용하고 있다. n-type 검출기의 경우 붕소이온을 주입하여 p 전극을 0.3 μm 수준의 두께로 만들 수 있기 때문에 리튬을 열 확산하여 700 μm 수준의 n전극을 만드는 p-type 검출기에 비해 입사창을 얇게 하는 것이 가능하다. 따라서 저 에너지 감마선과 x선을 방출하는 핵종의 분석을 위해서는 n-type 검출기의 사용이 효율적이다.

특정 기하구조의 시료에 대한 검출기 효율을 결정하기 위해서는 몇 가지 감마선방출핵종이 혼합된 표준선원을 사용하는데, 그 중 통상적으로 쓰이는 ^{139}Ce, ^{113}Sn, ^{85}Sr, ^{99}Y 등의 핵종은 전자포획, 내부전환 과정에서 방출되는 특성 x선과 축차로 방출되는 감마선이 동시에 계측되는 경우가 있다. 특히, 저 에너지대의 효율이 좋은 n-type 검출기에서 이 영향은 뚜렷하다. 예를 들어 ^{139}Ce 핵종의 경우 약 165 keV의 목적 감마선에 대해 약 33, 38, 39 keV의 x선이 동시합산 되어 약 199, 203, 204 keV의 피크가 발생하며, 그 피크면적만큼의 카운트가 목적 감마선 피크에서 제외된다. 이 현상을 x-gamma 동시합산이라고 하며, 이를 보정해 주기 위한 방법으로는 x선을 물리적으로 차폐하는 방법과 이론적으로 계산하는 방법이 있다. x-gamma 동시합산을 일으키는 핵종을 목적으로 하는 분석을 위해서는 효율뿐만 아니라 분석값에 대한 보정도 필요하기 때문에 이론적인 계산 방법이 필요하나, 환경에서 주된 관심대상인 핵종들의 경우 보통 x-gamma 동시합산이 일어나지 않으며, 효율에 대한 보정만으로 이를 고려한 분석값을 얻을 수 있다.

본 연구에서는 x선을 물리적으로 차폐하는 방법을 통해 효율 교정시 발생하는 x-gamma 동시합산을 보정하였으며, 이를 위해 구리을 차폐체로 하여 몇 가지 조건에 대해서 실험하였다.

2. 본론

2.1 재료

2.1.1 n-type 검출기

사용한 검출기는 상대효율 30%의 High Purity Germanium (HPGe, advanced Measurement Technology Inc, USA) 검출기이며, 직경 58.7 mm, 길이 52.7 mm 의 동축형 결정 구조를 가지고 있다. 검출기 입사창은 0.5 mm 베릴륨이며, 결정의 p 전극은 0.3 μm의 붕소층으로 이루어져 있다.

2.1.2 표준선원

실험한 표준선원의 기하구조는 Marinelli Beaker (MB), Cylinder (C1: Ø 6 cm × H 0.3 cm, C2: Ø 6 cm × H 5 cm, C3: Ø 5.3 cm × H 2.3 cm, C4: Ø 4.8 cm × H 0.4 cm)로 총 5개 형태이며, 포함 핵종은 ^{241}AM, ^{109}Cd, ^{57}Co, ^{139}Ce, ^{113}Sn, ^{51}Cr, ^{113}Sn, ^{85}Sr, ^{137}Cs, ^{88}Y, ^{60}Co 이다. 각 핵종의 방사능농도는 계측일 기준으로 100~200 gamma/s 이다.

2.1.3 차폐체

차폐체는 구리 재질로 하여 0.5 T, 1 T 두께로 검출기 입사창의 직경에 맞게 제작하였다. 구리는 10 keV 미만의 특성 x선이 발생하므로 표준선원의 피크에 영향을 미치지 않는다.

2.2 방법

차폐체가 없을 때와 0.5 T, 1 T 두께의 차폐체가 있을 때, 5개 기하구조의 표준선원을 8만초씩 계측하였고, 각각의 효율곡선을 얻었다. x-gamma 동시합산을 일으키는 ^{139}Ce, ^{113}Sn, ^{85}Sr, ^{99}Y 핵종에 대해, 피팅한 효율값과 계산한 효율값의 차이를 통하여 x-gamma 동시합산의 정도를 판단하였으며, 각 기하구조에 대한 효율곡선을 나열하여 저 에너지 x선을 차폐하고 50 keV 이상의 감마선을 적절히 투과시키는 차폐체의 두께를 결정하였다.

2.3 결과 및 고찰

Table 1에서 음수값은 피팅값에 비해 계산값이 작다는 것을 의미하며, 절대값이 클수록 x-gamma 동시합산이 많이 발생했다는 것을 의미한다. ^{139}Ce의 경우 차폐체를 사용하지 않았을 때 동시합산의 영향을 뚜렷하게 볼 수 있으며, 차폐체의 두께 증가에 따라 절대값이 감소하는 경향을 보인다. ^{113}Sn의 255 keV 감마선은 방출률이 낮아 일관성 있는 결과를 보이지 않았고, 392 keV 감마선은 x-gamma 동시합산이 확률이 작은 것으로 판단된다. 392 keV의 감마선은 ^{113}Sn - ^{113m} In - ^{113}In 순의 붕괴과정에서 ^{113m}In의 감마 천이에 의해 발생되며, 전자포획에 의해 단시간에 방출되는 특성 x선들이 1.6 시간의 반감기를 갖는 ^{113m}In의 감마선 방출과 검출기 분해시간 안에서 합산될 확률이 작기 때문이다. ^{85}Sr의 514 keV 감마선은 양수값을 갖는데, 이는 511 keV의 소멸방사선의 영향이 동시합산의 영향보다 크기 때문으로 판단된다. ^{99}Y의 898, 1836 keV 감마선은 절대값이 감소하는 경향을 보이나, x-gamma 동시합산 이외에도 gamma-gamma 동시합산의 영향이 있다는 것을 보여준다.

Table 1. Difference between fitting efficiency and calculated efficiency

Nuclide	energy (keV)	Difference(%)					
		C1			C2		
		none	0.5T	1T	none	0.5T	1T
^{139}Ce	166	-8.1	-0.6	-0.3	-2.5	0.0	-1.2
^{113}Sn	255	-7.5	-1.4	-3.7	-0.7	-1.9	-1.9
	392	2.6	-2.4	-1.5	0.5	-1.7	-2.4
^{85}Sr	514	3.4	4.9	5.4	3.0	2.1	3.4
^{99}Y	898	-7.4	-3.1	-3.7	-5.3	-1.3	-1.8
	1836	2.22	2.1	2.3	3.6	1.0	1.4
Nuclide	Energy (keV)	Difference(%)					
		C3			C4		
		none	0.5T	1T	none	0.5T	1T
^{139}Ce	166	-5.2	-0.4	-2.8	-9.9	-2.0	0.2
^{113}Sn	255	-4.1	-1.7	7.1	-8.3	-0.7	-11.9
	392	0.7	-2.6	-3.6	3.4	-2.2	-0.6
^{85}Sr	514	3.4	3.5	2.9	1.3	4.8	7.2
^{99}Y	898	-5.0	-2.7	-2.0	-8.5	-3.1	-5.3
	1836	2.7	1.0	0.3	2.4	2.3	3.7

일반적인 n-type 검출기의 효율곡선은 100 keV 전후로 영역을 나누고 각각을 이차식으로 피팅할 수 있다. 하지만, 본 연구에서처럼 차폐체가 있을 때의 효율곡선은 일반적인 p-type 검출기처럼 전 영역을 다항식으로 피팅해서 효율곡선을 결정할 수 있다. 이는 차폐체에 의해 저에너지 영역의 효율이 감소하기 때문으로, 각각의 기하구조에 대해서 차폐체의 두께가 증가할수록 전체적인 효율 역시 감소하는 것을 볼 수 있다(Fig. 1). 그 중 ^{241}AM(60 keV) 피크효율의 경우, 1T 두께의 차폐체가 있을 때가 없을 때에 비해 5배 이상 낮은 효율을 나타낸다. 또한, MB 기하구조의 경우 검출기 입사창 이외에도 측면으로 입사하는 감마선까지 차폐해주어야 될 것으로 판단된다.

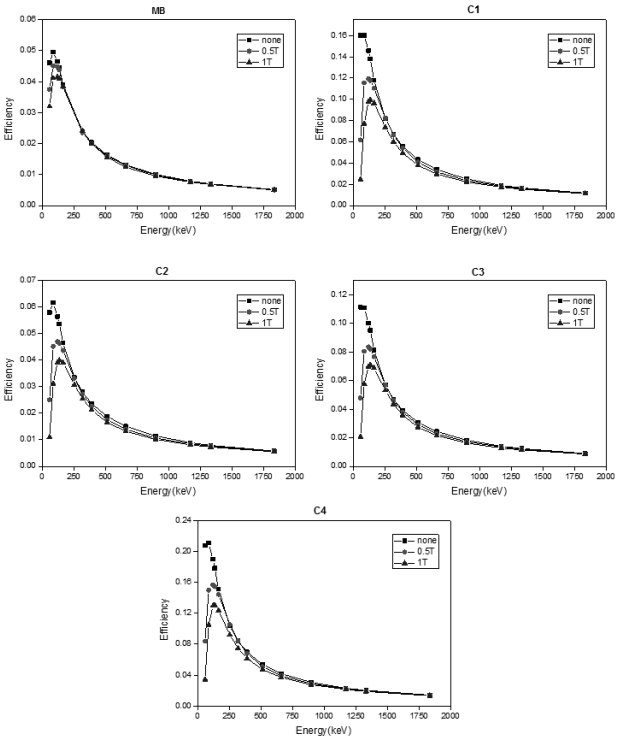


Fig. 1. Efficiency curve on thickness of Cu in each geometry.

3. 결론

저에너지영역의 효율이 좋은 n-type 검출기의 이점을 살리면서, x-gamma 동시합산을 물리적으로 보정하기 위해서는 0.5T 정도 두께의 구리을 이용해서 차폐하는 것이 효과적이었으며, 감마선간의 동시합산도 같이 고려한다면 더 효과적으로 검출기 효율을 결정 할 수 있을 것으로 기대된다.

4. 참고문헌

[1] M. Korun and R. Martincic, "Coincidence summing in gamma and X-ray spectrometry", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A325, 478-484 (1993).

광역 중성자에너지 측정 가능한 SiC 반도체 센서의 ^{6}LiF와 HDPE 결합 Converter 설계

서민우*, 권민우, 이상미, 민병혁, 박승현
㈜오르비텍 기술연구소, 서울 금천구 범안로 1130
*seominwoo7@orbitech.co.kr

1. 서론

현재 중성자 개인선량계는 반도체 센서와 중성자 converter를 결합한 전자식개인선량계로 원자력, 의료분야 등에서 널리 사용 중에 있다. 특히, 원자력발전소에는 고온과 고방사선 환경에 내성있는 광역 중성자에너지의 개인선량계가 필요하다. 하지만 국내에서 사용 중인 중성자 개인선량계는 100 % 수입에 의존하며, 국내 상용화제품과 기술 개발이 전무한 상태이다. 일본 후쿠시마 원전 사고 이후 원전뿐만 아니라, 생활 주변에 일반대중의 피폭선량을 측정하는 개인선량계의 수요가 급증했던 사례를 통해서 독자적인 국내 기술자립이 필요한 실정이다.

본 논문에서는 0.025 eV~15 MeV의 광역 중성자에너지의 개인선량계 개발을 위한 중성자 Converter의 기초설계를 수행하였다. 광역 중성자에너지 측정이 가능한 개인선량계는 SiC 반도체 센서와 열중성자의 LiF converter 및 고속중성자의 HDPE Converter를 결합한 모듈로 구성하였다.

본 연구에서는 광역 중성자에너지의 개인선량계 개발을 위해서 중성자 converter와 Albedo shield 설계를 MCNP 전산코드를 이용하여 계산하였다. MCNP로 계산된 검출응답과 ICRP 74의 Fluence to dose equivalent conversion factor와 비교하여 중성자 converter의 두께와 구조를 파악하였다.

2. 본론

2.1 이론적인 배경

본 연구에서는 0.025 eV~15 MeV 광역의 중성자에너지에 대한 중성자 Converter 설계를 수행하기 위해, 열중성자의 Converter는 수식(1)과 같이 열중성자에 의해서 핵변환 반응하는 흡수단면적의 높은 ^{6}LiF를 이용하였다. 열중성자와 ^{6}LiF converter와 핵변환 반응으로 생성되는 하전입자 α와 ^{3}H를 검출하는 원리를 사용하였다[1].

$$^{6}Li + n \rightarrow {}^{3}H(2.73\,MeV) + \alpha(2.05\,MeV),\ Q = 4.78\,MeV \quad (1)$$

Microscopic thermal neutron (0.0259 eV) absorption cross-section 940 barn

고속중성자의 Converter는 수식(2)와 같이 고속중성자와 탄성산란 반응의 수소 함유량의 많은 고밀도폴리에틸렌 (HDPE, High Density Polyethylene) 필름을 이용하였다. 고속중성자와 HDPE와의 탄성산란 반응에 의해 생성되는 반도양성자(Recoil proton)를 검출하는 원리를 적용하였다.

$$^{1}H + n \rightarrow {}^{1}H + n' \quad (2)$$

SiC 반도체센서는 고온과 고방사선 환경에 사용가능하고, Table 1와 같이 고속중성자와의 핵반응에 생성되는 하전입자를 검출하여 고속중성자에 대한 검출응답을 높일 수 있으며, 핵반응 중에서 ^{28}Si(n,α)^{25}, Mg^{12}C(n,α)^{9}Be 반응이 지배적이다.

Table 1. Fast neutron reaction in SiC diode and the respective energy thresholds

Reaction	Neutron Energy Threshold (MeV)
^{28}Si(n,n')^{28}Si	0
^{28}Si(n,n')^{28}Si (1st excited state)	1.843
^{28}Si(n,α)^{25}Mg	**2.749**
^{28}Si(n,p)^{28}Al	3.999
^{12}C(n,n')^{12}C	0
^{12}C(n,n')^{12}C (1st excited state)	4.809
^{12}C(n,n')^{12}C (2nd excited state)	8.292
^{12}C(n,n')^{12}C (3rd excited state)	11.158
^{12}C(n,n')^{12}C (4th excited state)	13.769
^{12}C(n,α)^{9}Be	**6.180**
^{12}C(n,n')^{9}3α	7.886
^{12}C(n,p')^{12}B	13.643

2.2 설계

수식(3)과 같이 SiC 반도체 센서를 이용한 광역 중성자에너지의 개인선량계를 개발하기 위해서는 중성자 선량환산알고리즘이 필요하다. 중성자 선량환산알고리즘은 중성자에너지에 따른 검출응답과 ICRP-74 fluence to dose conversion coefficient (이하, ICRP-74 coefficient)를 일정한 비례상수로 유사성을 갖도록 중성자 Converter를 설계하였다[2].

$$H = \int \Phi(E) K(E)\, dE,\ \Rightarrow H = \Phi K \quad (3)$$

$$M = \Phi R,\ R = \alpha K$$

H: Dose equivalent, Φ : Neutron fluence,
K : Fluence to dose conversion coefficients(ICRP-74),
M : Readout of the detector,
R : Response function of the detector
α : Constant coefficient determined by simulation

Fig. 1에서의 ^{6}LiF와 HDPE의 converter의 합산한 총 반응단면적과 ICRP-74 coefficient를 비교한 결과, 열중성자에너지 영역에서 중성자 Converter 합산 반응단면적이 높고 고속중성자에너지 영역에서는 ICRP-74 coefficients이 높게 나타났다.

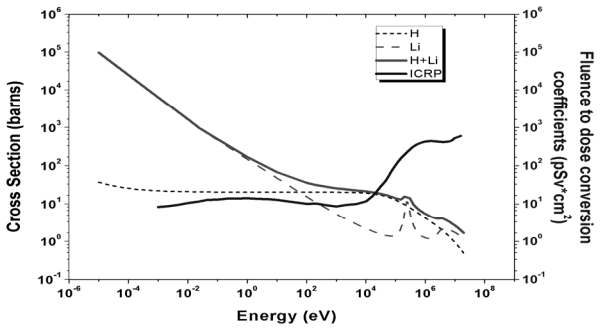


Fig. 1. Comparison of the total cross section of ^{6}LiF and HDPE converters and ICRP-74 fluence to dose conversion coefficient(pSv·cm^{2}).

이를 보완하기 위해서 Fig. 2와 같이 열중성자의 반응도를 낮추기 위해서 ^{6}LiF Converter는 HDPE 속 일정한 깊이에 삽입하여 반응생성물 α선 (최대비정 4 μm)은 배제하고 ^{3}H(최대비정 30 μm)만 검출하도록 설계하였다. 고속중성자의 반응도를 높이기 위하여 HDPE 두께를 크게 하였다. SiC 반도체검출기의 크기는 상용화제품 중 유효검출면적이 가장 큰 10×10×0.38 mm^{3}(L×W×H) 부피로 설계하였다.

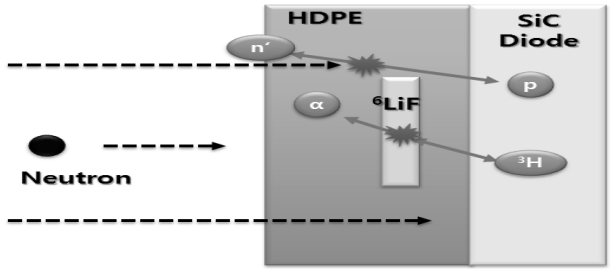


Fig. 2. Design of ^{6}LiF and HDPE converters with SiC semiconductor for neutron personal dosimeter.

2.3 MCNP 모사

검출응답과 ICRP-74 coefficients와의 유사성을 확인하기 위하여, MCNP 전산코드를 이용하여 중성자 Converter 모듈의 기하학적인 구조와 두께를 Fig. 3과 같이 모사하였다.

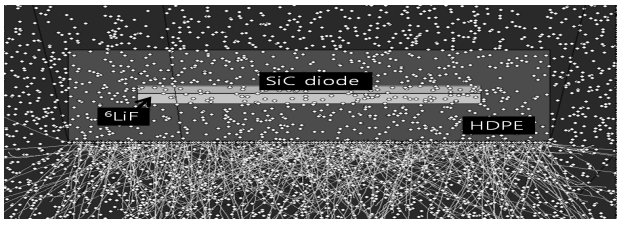


Fig. 3. MCNP Modeling of ^{6}LiF and HDPE converters with SiC semiconductor for neutron personal dosimeter.

SiC 반도체 안에 흡수되는 에너지는 검출기의 검출응답과 비례한다는 가정으로, MCNP 모사는 F6 Tally card를 적용하여 SiC 반도체 센서 부피 안에 중성자에 의해 생성되는 반응생성물을 Tally한 흡수에너지를 계산하였다.

2.4 결과

광역 중성자에너지에 따른 계산된 검출응답과 과 ICRP-74 coefficients와 비교결과는 Fig. 4와 같이 나타냈으며, 고속중성자의 HDPE 두께 600 μ 속에 열중성자의 ^{6}LiF Converter 두께 10 μm가 삽입된 구조와 두께 일 경우에 유사하게 계산되었다.

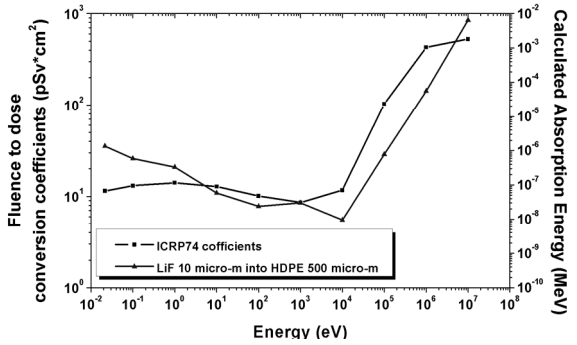


Fig. 4. Comparison of ICRP-74 fluence to dose conversion coefficients and energy absorbed in SiC diode using MCNP code.

3. 결론

본 연구에서는 광역 중성자에너지의 개인선량계개발을 위해서 중성자 converter 설계를 MCNP 전산코드를 이용하여 계산하였다. MCNP로 계산된 검출응답과 ICRP 74의 Fluence to dose equivalent conversion factor와 비교하여 중성자 converter의 두께와 구조를 파악하였다, 이를 바탕으로 중성자 Converter 모듈을 제작 후 실증 중성자 조사시험 결과와 비교하여 중성자 개인선량계를 개발하고자 한다.

4. 감사의 글

본 연구는 산업통상자원부가 시행한 에너지기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] D.S. McGregor et.al," Design considerations for thin film coated semiconductor thermal neutron detectors", Nuclear Instruments and Methods in Physics Reserch, 500, 272-308(2003).
[2] H.Zaki Dizaji et.al, "Dosimetry methods of fast neutron using the semiconductor diodes", CHIN. PHYS. LEFT, Vol. 31,No.1, (2014).

사이클로트론실 콘크리트벽의 방사화 영향 민감도 분석

노경용[1], 김재홍[2], 남신우[2], 신창호[3], 김순영[1*]
[1]㈜래드코어, 대전광역시 유성구 테크노중앙로 65
[2]한국기초과학연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1689번길 70
[3]한양대학교, 서울특별시 성동구 왕십리로 222
[*]sykim@radcore.co.kr

1. 서론

기초과학연구원(IBS, Institute of Basic Science)에서는 대형 중이온가속기 시설을 구축 중에 있으며, 이 시설에는 70 MeV의 양성자를 생성하는 사이클로트론이 설치될 예정이다.

사이클로트론 구역에서는 사이클로트론 가동기간 동안, 손실된 양성자에 의해 2차 방사선이 발생되고, 이로 인해 2차 방사선이 콘크리트 내 물질들과 반응하는 방사화 프로세스가 진행되므로 사이클로트론이 정지된 후 정비 및 교체등을 위해 출입하는 작업자는 방사화된 콘크리트 차폐벽으로부터 방사선 피폭을 받게 된다. 따라서 가동기간 동안 방사화된 콘크리트 차폐벽의 방사능을 계산하여 출입하는 작업자의 피폭선량을 평가해야한다.

본 연구에서는 사이클로트론 구역의 콘크리트 차폐벽 방사화 계산에 앞서, 콘크리트 깊이에 따른 방사화 수준을 확인하고 시설의 방사화 계산 시 선원으로 적용할 영역을 결정하기 위하여 콘크리트 차폐벽의 깊이별 방사화에 의한 사이클로트론실 작업자의 피폭선량 민감도를 분석하였다.

2. 본론

2.1 연구 방법

본 연구에서는 플럭스 및 선량 계산을 위한 MCNPX(version 2.7.0) 전산코드[1]와 고 에너지에 의한 방사화 계산을 위한 SP-FISPACT 전산코드[2]를 이용하였다. 그리고 본 계산에 사용된 콘크리트의 물질정보는 ORNL 값을 적용하였으며[3], 방사화 계산에 영향을 미치는 Eu, Cs, Ni, Co, Li의 불순물을 추가하였다. 알루미늄 챔버는 밀도 2.68 g/cc의 알루미늄 합금 5052를 적용하였다.

2.2 연구 내용

본 연구를 수행하기 위해서 다음과 같은 단계로 평가를 수행하였다.

첫째로, 선원항 계산을 위하여 70 MeV의 단일 양성자 빔을 반경 3 cm, 길이 3 cm의 실린더형 알루미늄 타깃에 입사시켜 각도별, 에너지 구간별 스펙트럼을 MCNPX 전산코드로 계산하였고 가장 높은 중성자속을 가지는 각도의 에너지 스펙트럼을 선원항으로 선정하였다.

둘째로, Fig. 1과 같이 200x200 cm의 콘크리트 벽면을 10 cm 깊이별로 구분하여 모델링하고 MCNPX 전산코드를 이용하여 모든 event가 기록된 histp 파일을 콘크리트 깊이별로 생성하고, 방사화 계산 코드인 SP-FISPACT 전산 코드를 이용하여 30 년 동안 방사화된 콘크리트 차폐벽의 방사화 핵종 및 방사능을 콘크리트 깊이별로 계산하고, 모든 방사화 핵종에서 발생하는 감마 스펙트럼을 계산하였다.

셋째로, 앞서 계산된 감마 스펙트럼을 선원항으로 이용하여 Fig. 2와 같이 방사화된 콘크리트에서 발생하는 방사선에 의해 작업자가 받는 피폭선량을 MCNPX 전산 코드로 계산하였고, 콘크리트 깊이별 작업자 피폭선량에 미치는 기여도를 계산하였다.

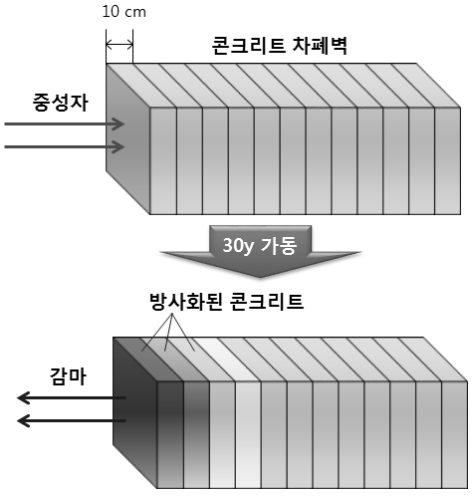


Fig. 1. Concept of Activation Analysis according to Concrete Thickness.

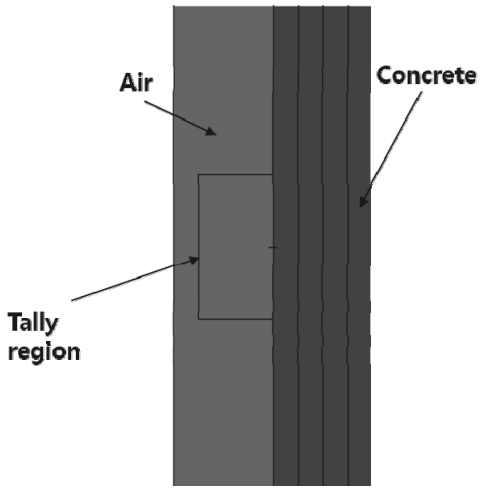


Fig. 2. Dose Calculation Modeling.

2.3 연구 결과

사이클로트론실의 콘크리트 차폐벽 방사화에 의한 감마 에너지 스펙트럼은 Fig. 3에서 볼 수 있듯이 최대 에너지가 10 MeV 이하로 나타났으며, 대부분의 감마 에너지가 1~4 MeV 사이에서 나타났다.

콘크리트의 방사화 핵종에서 발생하는 감마 선원에 의한 콘크리트 깊이별 피폭선량 민감도 계산 결과는 Fig. 4에 나타내었다. 표면으로부터 10 cm 이내에서 발생하는 감마선원의 방사능이 사이클로트론실 내부 피폭선량 전체의 80 % 이상을 차지하였으며, 깊이가 깊어질수록 그 영향력이 급격히 감소하여 30~40 cm까지의 깊이에서는 전체 피폭선량의 0.6 %를 차지하였다.

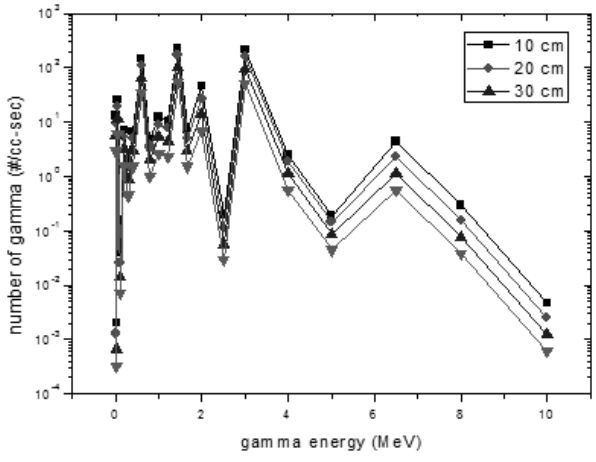


Fig. 3. Gamma Energy Spectrum by Concrete Depth due to Activation.

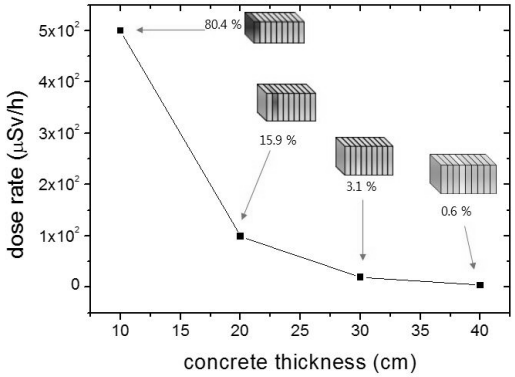


Fig. 4. Dose Rates due to Activated Concrete by thickness.

3. 결론

본 연구에서는 사이클로트론에서 손실된 양성자가 알루미늄과 반응하여 발생하는 중성자에 의해 주변 콘크리트 차폐벽에서의 방사화 영향을 분석하였다. 사이클로트론실 내부 작업자가 받는 방사선량의 99 % 이상은 표면으로부터 30 cm 이내의 방사화 핵종에 의해 발생하고 있다. 이는 콘크리트 깊이가 깊을수록 방사화 선원항이 적게 생성되고, 방사화로 인해 발생된 감마 선원이 다시 그 깊이만큼 투과해야 하기 때문으로 판단된다.

본 연구의 결과는 가속기 시설의 콘크리트 방사화에 의한 작업자 피폭선량 평가 시 참고자료로 활용될 것으로 사료된다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부에서 주관하는 중이온 가속기 건설구축사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] Denise B. Pelowitz, ed., "MCNPX User's Manual Version 2.7.0," LA-CP-11-00438, Los Alamos National Laboratory, 2011.

[2] R. A. Forrest, "FISPACT-2007:User manual," EASY Documentation Series UKAEA FUS 534, EURATOM/UKAEA Fusion Association, Culham Science Centre, 2007.

[3] L. M Petrie, P. B. Fox, and K. Lucius, "Standard Composition Library", ORNL/TM-2005/39, Oak Ridge National Laboratory, 2009.

잔류방사능 유도농도기준에 대한 기술적 검토

손욱*, 이갑복, 손순환
한수원㈜중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312 번길 70
*wooksohn@khnp.co.kr

1. 서론

최근 국내 원전의 해체가 가시권에 들어옴에 따라 해체와 관련된 기술 분야에 대한 관심이 고조되는 상황에서 해체의 최종 목적인 부지개방을 위한 방사선 조사와 관련된 사항들의 중요성이 커지고 있다. 방사선조사의 가장 중요한 목적은 제염이 완료된 부지에 잔류하는 방사성 핵종의 토양내 농도가 부지개방기준(Site Release Criteria)에 해당하는 잔류방사능 유도농도기준(DCGL, Derived Concentration Guideline Level)을 만족하는지를 판단하여 최종적으로 부지를 개방하는 것이며, 따라서 해체 대상 원전 고유의 DCGL을 결정하는 일은 매우 중요하다. 따라서 본 논문에서는 잔류방사능 유도농도의 개념과 또 그 계산방법 등에 대한 기술적 고찰을 목적으로 하였다.

2. 본론

2.1 DCGL의 개념

IAEA(WS-G-5.1)는 부지개방이 가능한 잔류방사능의 위해수준, 즉 부지개방기준을 10-300 μSv/year범위에서 최적화하도록 권고하고 있다. 그러나 일반적으로 선량은 측정이 불가능하기 때문에 선량으로 주어진 부지개방기준을 측정이 가능한 농도로 표시한 것이 DCGL이다. 즉, 특정 핵종의 농도가 DCGL과 같은 값을 갖는 부지에 1년 동안 거주하는 개인이 받게 되는 선량은 부지개방기준과 같게 된다. 따라서 1개의 핵종만이 존재하는 경우에는 해당 핵종의 농도가 DCGL 이하임을 통계학적으로 증명하면 해당 부지는 개방이 가능하게 된다.

2.2 DCGL과 부지 특성

일반적으로 규제기관이 선량의 부지개방기준만을 제시하고 DCGL은 제시하지 않는 이유는 부지의 특성에 따라 DCGL의 값이 달라지기 때문이다. Fig. 1은 동일한 부지개방기준에 해당하는 DCGL이 부지의 면적에 따라 어떻게 변화하는가를 개념적으로 보여준다. 즉, 일반적으로 개인이 받게 되는 선량은 해당 부지 내 방사능의 총량(Fig. 1에서는 1Ci)에 대략적으로 비례하므로 동일한 부지개방기준을 만족하기 위해서는 부지의 면적이 넓을수록 해당 부지의 DCGL의 값은 작아져야 한다.

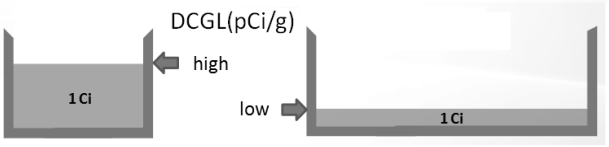


Fig. 1. Schematic showing how DCGL varies according to area site to keep the same site release criteria.

또한 앞에서 설명된 바와 같이, 특정 핵종의 농도가 DCGL과 같게 되면 해당 핵종에 의한 선량은 부지개방기준과 같게 되므로, 예로 부지에 잔류하는 3개의 핵종의 농도 모두가 각각의 DCGL 값을 갖게 되면 최종적으로 주민이 받게 되는 선량은 부지개방기준의 3배에 해당하게 된다. 따라서 이러한 상황을 피하기 위해서는 Characterization Survey 등을 통해 파악된 부지에 잔류하는 방사능의 종류 및 그 농도분포를 고려하여 DCGL을 계산할 필요가 있다.

2.3 DCGL 계산방법

일반적으로 특정 핵종의 DCGL은 잔류방사능에 의한 선량을 평가하는 RESRAD 코드에 1 pCi/g의 농도를 입력할 때 계산되는 선량을 부지개방기준에 비례시킬 때 얻게 되는 농도로 구한다. 예를 들어, Cs-137의 농도로 1 pCi/g의 값을 RESRAD에 입력하면 1.76 mrem/y라는 선량을 얻게 되며 이 선량을 미국의 부지개방기준(25 mrem/y)에 비례시킬 경우 Cs-137의 DCGL은 (25 mrem/y x 1 pCi/g)/1.76 mrem/y= 14.2 pCi/g가 된다.

부지의 특성이 DCGL의 계산에 주는 영향의 한 예로 불포화대층(unsaturated zone) 두께를 들 수 있다. Table 1에서 불포화대층의 두께가 1.23 m(기본값)에서 20 m로 증가함에 따라 Cs-137의 DCGL이 0.88 pCi/g에서 11.3 pCi/g로 변화함을 알 수 있다(딸핵종 Ba-137m도 함께 고려됨). 이는 불포화대층의 두께가 증가함에 따라 지하수를 통한 피폭경로의 소요시간이 증가하여 Cs-137의 내부피폭의 영향이 적어지면서 나타난 효과로 해석할 수 있다.

Table 1. DCGL dependence on unsaturated zone thickness

		Unsaturated Zone Thickness (m)	
		1.23	20
Dose (mrem)		28.3	2.21
DCGL (pCi/g)		0.88	11.3
Contribution by Pathway (%)	Aquatic	84	6.93
	External	**0.5**	**66**
Contribution by Nuclide (%)	Cs-137(β)	**99.51**	**33.9**
	Ba-137m (γ)*	0.49	66.1

※ Ba-137 m is a progeny of Cs-137 with half-life of 2.6 min giving gamma emission of 662 keV

2.2절에서 언급한 바와 같이 부지내에 복수의 핵종이 존재할 경우에는 상황에 따라 아래의 식 (1)-(3) 중의 하나를 이용하여 DCGL을 계산한다.

$$DCGL = \frac{1}{((f_1/DSGL_1)+(f_2/DSGL_2)+(f_3/DSGL_3))} \quad (1)$$

where f_i = radionuclide fraction for nuclide i

$$DCGL = \frac{1}{((1/DSGL_1)+(R_2/DSGL_2)+(R_3/DSGL_3))} \quad (2)$$

where R_i = ratio of conc of nuclide i to that of nuclide 1

$$DCGL = 1 \quad (3)$$

식(1)은 사전조사를 통해 각 핵종의 비율이 확인될 경우 Gross Activity DSGL을 계산할 때 사용한다. 예로, Cs-137(DCGL: 0.88 pCi/g), Co-60(DCGL: 3.64 pCi/g) 및 Am-241(DCGL: 1.8 pCi/g)이 각각 20%, 28% 및 52%의 비율로 존재할 경우, 이들 핵종들에 대한 Gross Activity DCGL은 다음과 같다.

$$DCGL = \frac{1}{(0.2/0.88)+(0.28/3.64)+(0.52/1.8)} = 1.69\,pCi/g$$

식(2)는 잔류 핵종 중에서 1개의 핵종만이 측정 가능하거나 또는 다른 핵종에 비해 용이할 경우에, 해당 핵종의 측정만으로 다른 핵종의 측정을 대신할 수 있는 Surrogate DCGL을 계산할 때 사용한다. 예로, 측정이 어려운 알파핵종인 Pu-239 (DCGL: 2 pCi/g)이 감마측정이 가능한 Am-241 (DCGL: 5 pCi/g)과 일정비율(11.9)로 존재할 경우의 Surrogate DCGL은 다음과 같다.

$$DCGL = \frac{1}{(1/5)+(11.9/2)} = 0.16\,pCi/g$$

실제 해체원전의 경우 잔류 핵종의 농도는 일정비율로 존재하는 경우는 흔하지 않다. 이 경우, 모든 핵종의 DCGL의 합을 1로 설정하는 식(1)을 사용하게 된다 (Unity Rule). 모든 핵종의 DCGL의 합이 1로 설정됨에 따라 이 값과 비교가 되어야 하는 값은 실제 핵종의 농도의 합이 아니라 다음과 같이 각 핵종의 DCGL로 규격화된 농도의 합(weighted sum)이다.

$$\text{Weighted sum} = \frac{C_1}{DSGL_1}+\frac{C_2}{DSGL_2}+\frac{C_3}{DSGL_3} \quad (4)$$

예로, Th-232(DCGL: 2.8 pCi/g) 및 U-238(DCGL: 178 pCi/g)이 Table 2와 같은 분포를 보일 경우, weighted sum은 (1.9-1.1)/2.8 + (37.4-1.4)/179 = 0.488이 된다.

Table 2. Concentrations of Th-232 and U-238 both in survey unit and background

	Survey Unit pCi/g(1σ)	Background pCi/g(1σ)
Th-232	1.9±0.5	1.1±0.3
U-238	37.4±8.8	1.4±0.7

3. 결론

해체원전 부지의 개방을 위해서 필요한 부지개방 기준의 만족여부는 DCGL를 통해 실제 확인가능하다. 본 논문에서는 이러한 DCGL의 개념을 설명하였으며 또한 부지 특성 및 조건에 따라 DCGL를 계산하는 방법을 실제 예와 함께 설명하였다. 이러한 내용은 향후 국내 원전의 해체시 부지를 개방하기 위한 최종방사선조사 수행에 유용하게 활용될 것으로 예상된다. 또한 계산된 DCGL을 이용하여 실제 부지를 개방하기 위해서는 필요한 여러 가지 통계학적 방법은 다음 연구에서 수행될 예정이다.

4. 참고문헌

[1] IAEA, The Release of Sites from Regulatory Control upon Termination of Practices, WS-G-5.1(2006).

[2] Eric W. Abelquist, Decommissioning Health Physics, A Handbook for MARSSIM Users, 2nd Edition, CRC Press(2014).

[3] NRC, EPA, DOE and DOD, Multi-Agency Radiation Survey and Site Investigation Manual(MARSSIM), Revision 1(2014).

GEANT4를 이용한 선량 측정 시뮬레이션

한화정, 박병기*, 김범규
순천향대학교, 충청남도 아산시 순천향로 22
withan@sch.ac.kr

1. 서론

사용후핵연료 저장조 속 체렌코프 방사선의 발생은 집합체에서 핵종의 방사성 붕괴로 감마선이 투명한 매질로 입사하면 매질 안에서 콤프턴 산란이 발생한다. 콤프턴 산란에 의해 콤프턴 전자라 불리는 이차전자가 발생하고 충분한 에너지를 가지고 빛의 속도보다 빠르게 진행할 때 체렌코프 방사선이 발생한다. 감마선에 의해 발생하는 체렌코프 광자의 개수는 이차전자의 에너지에 의존하고 감마선 에너지와 감마선 광자의 개수에 의존한다[1-3]. 체렌코프 방사선이나 감마선등 방사선원은 쉽게 다룰 수 없고 접근의 한계가 있기 때문에 시뮬레이션을 통한 측정값의 예측이 필요하다. 본 연구는 Co-60 선원에서 발생한 감마선이 광섬유와 같은 투영한 매질에 입사되어 발생하는 체렌코프 광자를 측정하는 시뮬레이션을 GEANT4를 이용하여 제작해 보았다.

2. 본론

2.1 GEANT4 시뮬레이션

GEANT4는 몬테카를로 방법을 시뮬레이션 하는 대표적인 시뮬레이터(simulator) 중 하나로 고에너지 입자 실험을 위해 유럽입자물리연구소(CERN : (Organisation Européenne pour la Recherche Nucléaire)에서 개발한 시뮬레이터이다. GEANT4는 C++언어로 이루어진 프로그램으로 이론적으로 모든 입자에 적용이 가능하며 다양한 연구 분야에서 활용되고 있다[4].

2.2 구조

Fig. 1은 본 시뮬레이션 Source Code의 전체 구성도이다. Main-Classes 박스 안에 위치한 9 개의 요소들은 GEANT4 시뮬레이션 실행에 필수적인 클래스들이고 하단의 Sub-Classes 박스는 사용자가 실험 진행 과정에 맞추어 제작하는 부분으로 사용자 지정 클래스이다.

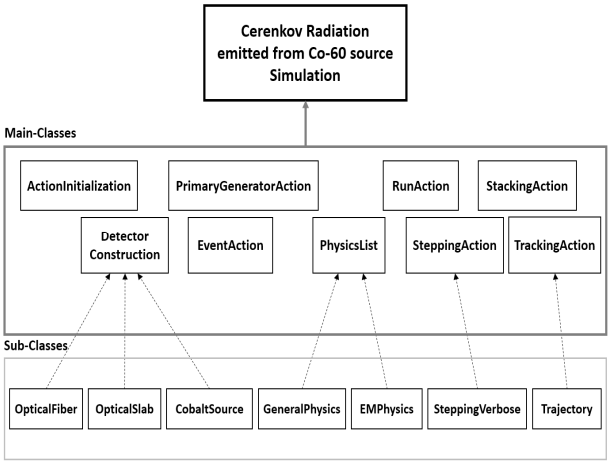


Fig. 1. Block diagram of Cerenkov Radiation emitted from Co-60 source Simulation.

Detector Construction클래스의 Sub-Classes로 Co-60 감마선원과 광섬유에 대한 Geometry클래스를 작성하였고, PhysicsList클래스의 Sub-Classes로 감마선이 입사하면서 발생되는 콤프턴 산란과 체렌코프 방사선에 관련된 physics process를 포함시켰다. 광섬유 안에서 물리적 작용이 수행될 때 발생한 체렌코프 방사선과 광자의 발생 흔적을 나타내도록 작성하였다.

2.3 구성요소

체렌코프 방사선을 발생시키기 위해 필요한 Co-60선원의 외형은 직경 1 cm의 스테인리스 스틸(Stainless steel) 구형 캡슐에 감싸져있는 직경 0.5 cm의 구 형태로 제작하였다. 광섬유의 구성은 Table 1에 제시하였으며 20 cm의 길이를 갖는 실리카(silica, SiO_2) 소재의 코어를 동일한 길이의 폴리에틸렌(polyethylene)으로, 이중 피복하여 폴리메틸 메타크릴레이트(polymethyl methacrylate, PMMA)에 들어있는 형태로 작성하였다. 두께가 1 cm인 차폐벽(shieling wall) 내 50 cm^3의 공기로 채워진 공간에 Co-60 감마선원과 광섬유가 2.5 cm의 거리를 두고 위치시켰다.

Table 1. Fiber optic components

	Fiber Core	Double Cladding	Slab Box
Material	Silica	Polyethylene	PMMA
Type	Tube	Tube	Box
Length	20 cm	20 cm	20 cm
Radius	0.1 cm	0.03 cm	0.2 cm

2.4 시뮬레이션 결과

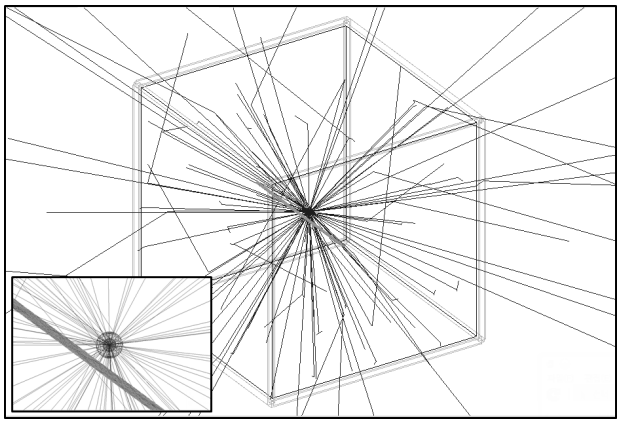


Fig. 2. The Cerenkov radiation in optical fiber generated by gamma ray.

Co-60 선원은 point source로 Co-60이 붕괴할 때 생성되는 1.33 MeV와 1.17 MeV만큼의 에너지를 가지고 전 방향으로 발생하였다. 매 초당 50, 100, 200번의 이벤트를 발생시켰을 때 감마선이 광섬유에 입사되면 확률적으로 체렌코프 방사선이 나타났으며 이와 같은 결과는 Fig. 2에서 보여준다.

구 형태의 Co-60 선원으로부터 방출된 감마선이 광섬유에 입사되면서 발생하는 체렌코프 방사선의 형태를 나타낸 것이다. 파란선은 감마선이고 초록선은 체렌코프 방사선이다.

Table 2는 매 초당 발생시키는 이벤트 수에 따라 측정된 광자의 수이다. 각 이벤트에 대해서 50번의 수행 후 획득한 결과이다. 이벤트 수가 증가할수록 측정되는 광자의 발생 빈도 또한 증가하였다.

3. 결론

본 연구에서는 GEANT4 시뮬레이터를 이용하여 방사성 동위원소 선원에 의해 광섬유에서 발생되는 체렌코프 방사선을 측정하기 위한 시뮬레이션을 제작하였다.

Table 2. Photon emission for the number of Events (50 times per each Event)

BeamOn 50	BeamOn 100	BeamOn 200
604	86	261
33	660	987
	267	454
	529	605
	1524	227
	502	261
	1027	86
		660
		267
		529
		1524

시뮬레이션은 외벽은 납으로 되어있고 공기로 채워진 50 cm^3의 공간에 직경 1 cm 스테인리스 스틸에 감싸진 0.5 cm의 구 형태 Co-60 선원과 이중 피복된 20 cm의 실리카 소재 광섬유를 2.5 cm의 거리를 두고 배치하였다. Co-60 선원이 1.33 MeV와 1.17 MeV의 에너지를 갖고 초당 각각 50, 100, 200번의 이벤트가 실행되었을 때, 체렌코프 방사선이 나타나는 것과 발생하는 광자의 수를 확인하였다. 추후 연구로 GEANT4를 이용하여 방사성 동위원소의 감마선을 감지하는 검출기를 이용하여 발생되는 방사선량의 수치를 구하는 시뮬레이션을 제작해보고자 한다.

4. 참고문헌

[1] H. H. Ross, "Measurement of â-emitting nuclides using Cerenkov radiation", Anal. Chem., 41, 1260-1265 (1969).

[2] S. F. de Boer, A. S. Beddar, and J. A. Rawlison, "Optical filtering and spectral measurements of radiation induced light in plastic scintillation dosimetry", Phys. Med. Biol., 38(7), 945-958 (1993).

[3] J. M. Fontbonne, G. Iltis, G. Ban, A. Batalla, J.C. Vernhes, J. Tillier, N. Bellaize, C. Lebrun, B. Tamain, K. Mercier, and J.C. Motin, "Scintillating fiber dosimeter for radiation therapy accelerator", IEEE Trans. Nucl. Sci. 49(5), 2223-2227 (2002).

[4] Pia MG, "The Geant4 Toolkit: simulation capabilities and application results,", Nuclear Physics B(proc. Suppl), 125, 60-68 (2003).

CALPUFF 모델을 이용한 핵종누출의 대기확산평가 연구

이상헌*, 김선일, 송종순
조선대학교, 광주광역시 동구 필문대로 309번지
*leesanghoen@naver.com

1. 서론

CALPUFF 모델은 3차원 바람장을 이용하여 기존의 Gaussian Plume 모델의 단점을 극복한 Gaussian Puff 모델이다. 이 모델의 특징은 구조가 단순하여 계산시간이 짧고 간편하며 굴곡이 없는 단순지형에 있어서 평균농도를 산출하는 데 있어서 우수한 예측능력을 가지고 있어 대기오염 예측시 Plume모델과 함께 일반적으로 가장 많이 쓰이고 있다. 또한, 복잡지형에서 산곡풍이나, 해안가에서 해륙풍 순환과 같은 급격한 바람장 변화를 나타내는 지역에 유용한 모델이다. 우리나라와 같이 삼면이 바다로 되어있고 도시나 원전등이 해안지역에 위치한 경우 해륙풍 순환의 영향을 받는 풍하측 농도 예측에 적합하며, 비정상상태 모델로 시간별 변화양상을 파악하기에 용이하며, 기상 예측모델과의 호환이 가능하다. 그러므로 Gaussian모델을 적용한 프로그램을 활용하여 평가한 결과를 바탕으로 핵종누출시 방사능운에 따른 대피경로설정에 중요한 자료로 향후 원전 사고예측프로그램(방재)의 보조수단으로 활용할 수 있을 것으로 판단된다. 본 논문은 3차원 바람장을 이용한 확산모델을 수행하기 위하여 Gaussian식을 이용한 CALPUFF 프로그램을 사용하여 예비평가를 수행하였다. 향후, 이를 바탕으로 대기오염물질의 대기확산의 특징을 파악하고 발전소 방재에 적용가능한 방안을 모색할 수 있으리라 판단한다.

2. 본론

2.1 실험개요

국내지형자료, 지표기상자료, 상층기상자료(혼합고도층), 해안선자료, 바람장등의 실험 자료는 국립화학연구원 및 기상청 등에서 자료를 얻어 CALPUFF에 필요한 자료로 전처리(가공)작업을 수행하여야 한다.

2.2 Gaussian Puff Model

CALPUFF모델은 Plume모델과 달리 식 1과 같이 3차원 바람장을 고려한 계산식을 이용한다.

$$(x,y,z) = \frac{M}{(2\pi)^{3/2}\sigma_x\sigma_y\sigma_z}\exp[-\frac{1}{2}(\frac{x-ut}{\sigma_x})^2+(\frac{y}{\sigma_y})^2 + (\frac{z-H}{\sigma_z})^2+(\frac{z+H}{\sigma_z})^2] \quad (1)$$

여기서, x,y,z = 임의의 지점좌표
u = 평균풍속
M = 방출된 오염물질의양
t = 임의의시간
H = 폭발고도
$\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z$ = 각 방향에서의 확산폭을 나타내는 질량 표준편차

2.3 CALPUFF 프로그램 구조 및 주요내용

Fig. 1은 CALPUFF 프로그램의 구조 및 순서이며, Table 1은 각과정의 주요내용을 나타낸다.

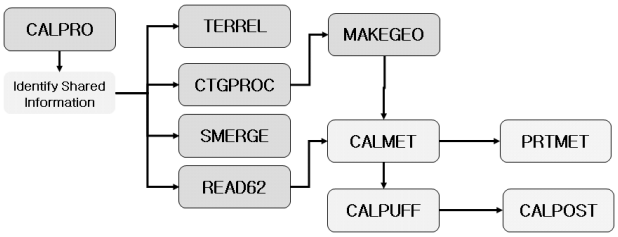


Fig. 1. Procedure of CALPUFF.

Table 1. Main contents of Structure

과정	내용
Identify shared Information	해당지역 좌표 및 기간등 기본데이터 입력
TERREL	지표고도에 대한 데이터 추출과정
CTGPROC	지형 및 토지이용도를 이용해 지형파일을 생성
MAKEGEO	토지이용도와 지형 통합
SMERGE	지표기상자료 전처리과정
READ62	고층기상자료 전처리과정
CALMET	전처리과정을 거친파일을 이용하여 바람장 생성
PRTMET	CALMET의 원하는결과를 추출
CALPUFF	오염원 입력 및 생성
CALPOST	CALPUFF OUTPUT 분석

2.4 실험방법 및 결과

Fig. 2는 고리원자력발전소 1호기에서 핵종 누출이 일어날 경우를 가상으로 설정하여 고리발전소 인근의 반경 40 km내 대기의 흐름에 따른 오염물질 이동현황을 나타낸 모습이다. 3차원 바람장은 2008년 3월 11일부터 15일까지 지표기상자료(3곳), 고층기상자료(1곳)를 가공한 자료를 활용하여 예비평가를 수행하였다. 핵종누출은 SO2로 가정하였으며 누출량은 4.3E-01g/s으로 설정하였다. 또한, 격자간격은 1 km로 지정하였으며 BPIP에 대해서는 적용하지 않았다.

실험결과, 북서풍으로 인한 계절풍으로 인한 바람장과 해풍으로 인한 바람장이 시간에 비해 변화폭이 크게 나타났다.

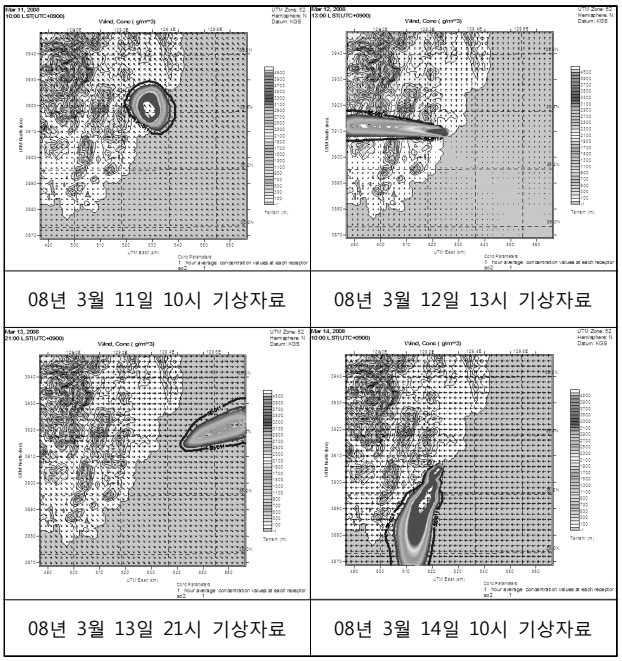


Fig. 2. Atmospheric Dispersion Assessment for Potential Accidental Releases at Kori NPP using a CALPUFF.

3. 결론

본 논문에서는 CALPUFF 프로그램을 수행하여 고리 1호기에서 핵종누출이 발생할 경우를 가정하여 바람장에 따른 오염물질의 이동방향을 도출하였다. Plume모델은 바람장이 강한 한 방향으로만 평가되지만 본 연구에서 다룬 Puff모델의 경우는 시간에 따른 바람장의 변화까지 고려되었다.

본 연구에서 수행한 사전연구를 바탕으로 실제 원전에서 사고 시 예상 배출되는 핵종과 인근지역의 과거 수년간 기상자료를 통합하여 프로그램에 수행 결과 값을 DB화 한다면 원전 사고예측프로그램(방재)의 보조수단으로 활용할 수 있을 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

[1] Lee DM, Lee JB, KiM JY, "Preliminary study on the Asian long range tracer experiment" KAIF, No.EM007178, 2009.

[2] Atmospheric status and Modeling Workshop" KOSAE, 1999.

[3] Seo KS, Kim EH, Han MH, "Development of Long-Range Atmospheric Dispersion Model against a Nuclear Accident" Journal of radiation protection v.27 no.3, 2002.

[4] Lee IH, Koo YS, Jeon UC, "A Characteristics of CALPUFF and Its Application in Korea", KOSAE, Nov. 01 2001.

[5] Na MG, Sim YR, Jung CK, Lee KJ, Kim SP, Jung ST, "Atmospheric Dispersion Assessment for Potential Accidental Releases at Yonggwang Nuclear Power Plants" Journal of radiation protection v.25, 2000.

원(연) 조사후시험시설 사고시 굴뚝 방출농도에 대한 EAL 한계 분석

이관엽*, 이해초, 김봉석, 김종수, 최평규
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*gylee@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원은 연구 및 시험목적의 사용후핵연료처리시설인 조사후연료시험시설을 운영하고 있다. 이 시설은 '원자력시설 등의 방호 및 방사능방재대책법'에 따른 방사선비상계획 수립 대상 시설이다. 따라서 연구원은 이 시설에 대한 방사선비상계획을 비상발령기준을 포함하여 수립, 운영하고 있다. 이 시설에 대한 비상발령기준에는 백색, 청색 및 적색비상이 모두 분류되어 있다. 그러나 이 시설은 취급 핵물질의 재고량이 많지 않기 때문에, 방사능방재훈련 시나리오 적용 등 방재대책을 적용함에 있어 적색비상 발령 가능성이 논쟁되어 왔다. 따라서 본 연구에서는 국제원자력기구(IAEA)가 제시한 기준을 근거로 사고시 굴뚝 방출 관점에서 이 시설에서 고려할 수 있는 비상발령 등급의 범위를 분석하였다.

2. 본론

2.1 방사선비상발령 국제기준

국제원자력기구(IAEA)의 방사선비상대책의 범주를 기술한 안전지침 No. GSG-2에는 방사성물질 굴뚝방출에 따른 비상발령 등급 설정기준이 다음 표와 같이 기술되어 있다[1].

Table 1. Criteria of Emergency Action Levels(EALs)

비상 등급	기 준 (평균기상조건, 15분이상 지속)
백색	유도방출한도의 100배
청색	부지 밖에서 4시간에 긴급방호활동을 위한 개입준위 선량의 0.1배 초과예상
적색	부지 밖에서 1시간에 긴급방호활동을 위한 개입준위 선량 초과예상

IAEA가 기존에 제시한 개입준위는 옥내대피 10mSv/2days, 소개 50mSv/7days, 이나 2014년 자료에서는 모든 보호조치를 동시적으로 고려하는 조건 하에서 포괄적 기준으로 100mSv/7days를 제시하고 있다. 본 연구에서는 국내법에 반영되어 있고, 현재 시점의 IAEA 요건인 10 mSv를 긴급보호활동을 위한 개입준위로 적용하였다.

2.2 부지특성 정보 조사 및 분석

연구원이 운영하는 조사후연료시험시설은 발전용원자로의 사용후핵연료를 취급하나 최소 1년 이상의 냉각기간을 경과한 핵연료를 취급한다. 냉각기간이 경과할수록 반감기가 짧은 핵종이 소멸되므로 1년 이상 냉각된 발전소 사용후핵연료에서, 사고시 방출가능 핵종을 분석하면 Kr-85, Cs-134, Cs-137 정도로 제한된다. 연구원 조사후연료시험시설의 경우 방사능방재대책 관점에서, 사고시 방사성물질이 존재하는 위치는 사용후핵연료 저장수조와 사용후핵연료를 이용하여 실험을 수행하는 핫셀이다. 사용후핵연료 저장수조의 경우 저장량이 많지 않고 충분한 냉각기간을 거친 사용후핵연료가 보관되어 있어서 사고 개연성이 없다. 그러나 핫셀에서는 실험 중 사고가능성이 있으므로 핫셀을 사고시 방사성물질 방출 출발지점으로 고려하였다. 핫셀에서 굴뚝방출이 이루어지기 위해서는 포집효율 99.95% 이상의 해파필터를 경유한다. 핫셀 배기계통의 배기풍량은 2.583 $\mathrm{m}^3/\mathrm{sec}$이다. 지리정보시스템(GIS)으로 조사후연료시험시설 굴뚝 기준 주민거주지까지의 최단거리를 측정하면 약 750 m에서 1000 m이다. 연구원은 통상 부지경계까지의 거리로 800 m를 고려하고 있어, 주민 거주지역까지의 거리 즉, 부지 밖 경계점을 800 m로 정의한다. 2013년 환경영향평가시 적용한 조사후연료시험시설 기준 반경 800 m에서의 최대피폭지점 χ/Q는 평균값으로 1.853×10^{-5} sec/m^3이었다[2]. IAEA는 비상대책을 위한 기상조건으로 평균기상조건을 고려하도록 하고 있기 때문에 χ/Q로 평균값 또는 50분위 값을 적용하면 이 조건을 충족한다고 볼 수 있다.

2.3 비상발령기준 상당 굴뚝농도 산출

IAEA의 지침을 근거로 방사선비상발령기준에 상당하는 부지경계지점에서의 1 시간 방사선량을 구하면 다음 표와 같다.

Table 2. Off-site Dose for EALs

비상등급	백색	청색	적색
방사선량(mSv)	0.0114	2.5	10

이 표에 제시된 부지경계 선량은 간략히 다음 식으로 구할 수 있다.

$$D = S_c \times S_{fr} \times \chi/Q \times CF \qquad (1)$$

여기서, D=선량(mSv), S_c=굴뚝감시기 농도(Bq/m^3), S_{fr}=굴뚝방출율(m^3/sec), χ/Q=부지경계 대기확산인자(sec/m^3), CF=선량환산인자($(mSv/hr)/(Bq/m^3)$)이다. 호흡 선량환산인자의 경우 IAEA 비상대책 문서는 ICRP 권고 호흡률 $1.5m^3/hr$을 반영하여 단위를 보정, 사용한다. 선량을 계산함에 있어, 사용후핵연료가 이미 1 년 이상 냉각되었고 1 시간 선량이므로 방사능붕괴 및 지표면침적 효과가 중요하지 않아 이를 고려하지 않는다. 따라서 선량은 공기 침잠에 의한 외부선량과 흡입에 이한 내부선량의 합산한 값으로 적용한다.

비상발령기준에 해당하는 굴뚝감시기 농도를 구하기 위해 상기 식 (1)을 변환하면 다음과 같다.

$$S_c = D/(S_{fr} \times \chi/Q \times CF) \qquad (2)$$

고려하는 핵종이 Kr-85, Cs-134, 137이므로 이들 핵종에 대한 선량환산인자는 IAEA-TECDOC-1162에 기술된 값[3]을 적용하고, 비상발령조건에 해당하는 굴뚝감시기 농도를 산출하면 다음 표와 같다.

Table 3. EALs at PIEF Stack Monitor

유형	굴뚝감시기 농도(Bq/m^3)		
	백색비상	청색비상	적색비상
기체	4.97E+11	1.09E+14	4.35E+14
입자	1.10E+09	2.40E+11	9.62E+11

2.4 방사선비상발령조건 상당 핫셀 재고량 산출

현재 비상발령기준은 Table 3에서 산출된 값이 15분간 지속되면 비상발령하도록 되어 있다. 따라서, 최소 재고량을 Table 3의 농도를 15 분간 지속할 수 있는 핫셀 내 량으로 한다. 계산결과 배출반감기는 47.9 초이며, 굴뚝감시기 농도와 핫셀 농도가 동일하다고 보고 이 양을 산출하는 간략화한 식을 구하면 다음과 같다.

$$Inv. \approx (S_c \times V \times 9.4)/((1-E_{HEPA}) \times ARF) \qquad (3)$$

여기서, E_{HEPA}=HEPA 필터효율, V=핫셀체적, ARF=휘발분율(사용후핵연료의 경우 기체 1, 알카리금속 0.3)이다. 이 식으로 핫셀 내 재고량을 산출하면 Table 4와 같다. 한편, 연구원 보유 PWR 사용후핵연료 자료에 따르면 281 일 냉각기간을 거친 1개 핵연료 봉의 재고량은 Kr 1.00E+12Bq, Cs 2.86E+13Bq이다. 따라서 Table 4의 값을 핵연료 봉 개수로 환산하면 Table 5와 같다.

Table 4. Inventory for EALs

유형	재고량(Bq)		
	백색비상	청색비상	적색비상
Kr	1.67E+18	3.65E+20	1.46E+21
Cs	1.23E+16	2.69E+18	1.08E+19

Table 5. PWR rod number for EALs

유형	봉 개수		
	백색비상	청색비상	적색비상
Kr	1.67E+06	3.65E+08	1.46E+09
Cs	4.30E+02	9.41E+04	3.76E+05

3. 결론 및 고찰

연구 및 시험을 위해 1 년 가량의 냉각기간을 거친 사용후핵연료를 처리하는 경우, 방사선비상발령 조건을 충족하기 위한 재고량 산출결과를 보면 Kr의 경우 검토할 필요가 없으며, 세슘은 430개 봉 파손시 백색비상 조건이 된다. 현 연구원의 굴뚝감시기 비상발령기준은 IAEA 기준보다 낮게 설정되어 있어서, 이를 근거로 평가하면 세슘의 경우 백색비상은 0.744개 봉, 청색비상은 7.44개 봉 파손시 발령조건에 해당된다. 이 시설 핫셀에서 취급할 수 있는 발전소 핵연료봉이 최대 1개 정도인 것을 볼 때, 현 기준으로도 굴뚝 방출시 백색비상만 발령가능하며, IAEA 기준으로는 이마저도 적용되지 않다. 그러나 환기계통 이외 경로로 누설시는 필터효율이 적용되지 않기 때문에 향후 다른 관점에서의 분석이 요구된다.

4. 참고문헌

[1] Aeberli, W. etc., "Criteria for Use in Preparedness and Response for a Nuclear or Radiological Emergency", General Safety Guide No. GSG-2, IAEA, 67 (2011).

[2] 황원태외 7명, "대덕 원자력 관련시설의 운영중 방사선 환경영향평가(2013년보)", KAERI/CR-535/2014, 한국원자력연구원, 49-50 (2014).

[3] Kerns, K. etc., "Generic procedures for assessment and response during a radiological emergency", IAEA-TECDOC- 1162, IAEA, 107, 119 (2000).

원자력발전소 방사성 유출물관련 안전규제지침 조사 및 분석

서현석[1*], 한경원[1], 박상훈[1], 육대식[2], 김성일[2]
[1]㈜라드웍스, 대전광역시 유성구 대덕대로 530 첨단상가 다308호
[2]한국원자력안전기술원, 대전광역시 유성구 구성동 19
[*]xx0029@hanmail.net

1. 서론

원자력발전소의 방사성 유출물에 대한 안전규제를 위하여 원자력안전기술원에서는 원자력발전소 방사성 유출물의 방사능 측정, 평가 및 보고에 관하여 지침을 정하고 이를 적용하여 안전규제를 수행하고 있다.

원자력안전기술원에서는 원자력발전소의 건설 및 운영허가를 위한 심사 시 원자력발전소 방사성 유출물의 방사능 측정, 평가 및 보고에 관한 안전심사지침을 적용하고, 검사 등 안전규제에 적용하기 위한 규제기준과 규제지침을 마련하고 있다.

본 연구에서는 미국의 개정된 관련지침을 검토하였으며, 이를 원자력안전기술원의 원자력발전소 방사성 유출물의 방사능 측정, 평가 및 보고에 관한 안전규제지침 개선에 기본 자료로 활용하고자 한다.

2. 본론

2.1 국내 원자력발전소의 방사성 유출물관련 KINS의 규제지침 분석[1-3]

원자력발전소 방사성 유출물의 방사능 측정, 평가 및 보고에 관한 규제지침은 KINS/RG-N12.01 (제12장 방사성폐기물 관리 계통)으로 작성되어 있으며, 지침은 규제기준 12.6(공정 및 유출물 방사능 감시계통)에 명시된 기본요건, 설계기준 및 성능기준에 적합하도록 세부이행방안이 기술되어 있는데, 이는 동 주제에 관한 미국 원자력규제위원회(NRC)의 안전심사지침 11.5[4]에 제시된 수용기준을 대부분 활용하고 있으며, 기술적으로 상세하게 기술되어 있지는 않다. 여기에 포함된 주요 내용은 다음과 같다.

- 기체 및 액체의 공정 또는 유출물의 배출 지점
- 기체 및 액체의 공정 또는 유출물의 시료채취 방법 및 분석절차
- 유출물관리기준 수립(가상사고 시 포함)
- 사고 후 시료채취계통, 등

2.2 미국 NRC의 Reg. Guide 1.21 검토

미국 원자력발전소 유출물의 방사성물질에 대한 측정, 평가 및 보고에 관한 규제지침인 RG 1.21은 최초에 1971년에 발간되었으며, 1974년에 Rev. 1[5]이 발간되었고, 그 이후 30 년 이상의 규제경험을 반영하여 2009년에 Rev. 2[6]가 발간되었다.

2.2.1 Rev. 1과 Rev. 2 비교분석

Rev. 2는 Rev. 1의 구성 체계를 거의 다르게 개정하였으며, 위험도-정보를 기반으로 하는 규제를 연방법인 10CFR20 및 50에 도입하게 되어 본 지침도 개정하게 되었다. 변경된 주요내용은 다음과 같다.

- Rev. 1에서는 원자력발전소에만 적용가능 하였지만, Rev. 2에서는 사용후핵연료 독립저장시설(ISFSI)에 대해서도 확대적용 가능
- Rev. 1 지침을 원자력발전소의 경우에는 계속해서 사용하는 것도 가능
- Rev. 2에서는 누출(Leaks) 및 누설(Spills) 감시에 대하여 기술하고 있음
  - 토양시료채취가 실용적이지 않은 경우, 지하수 감시를 토양 시료채취의 대용으로 사용가능
- Rev. 2에서는 주요 방사성핵종을 규명하기 위해 위험도-정보 접근 방식을 채택
- 주요 방사성핵종의 선정은 액체, 노블가스 및 기체 유출물 각각의 목표선량 또는 전체 방사능량의 1% 이상 기여 핵종임
- Rev. 2 에서는 원자력발전소에서 배출되는 방사성유출물 중 주요 방사성핵종으로 C-14(기체)에 대하여 강조하고 있음
- Rev. 1에서는 용어 "release(배출)" 및 "discharge (방출)"을 구별 없이 사용하였지만, Rev. 2에서는 "배출"은 시설로부터 발생되는 유출물을 설명하기 위해 사용하고, "방출"은 오로지 비제한 구역으로 방출되는 유출물에 대한 용어로 사용
- 기체 시료채취 코드가 Rev. 1에서는 ANSI N13.1-1969였으나, Rev. 2에서는 ANSI N13.1-1999,

RG 4.15, 및 ANSI N42.18-2004로 개정됨(시료 채취 노즐을 다중 채취에서 단일 채취로 변경)
- 유출물의 확산과 관련하여 Rev. 1에서는 기상학적으로만 접근하였지만, Rev. 2 에서는 기상학 뿐 만 아니라 수문학적인 측면에서 접근하여 수중확산(지표수), 지면에 누설 및 누출, 그리고 지하수로의 누설 및 누출까지로 확대
- Rev. 2에서는 유출물 측정과 관련하여 전체 또는 확장된 측정불확실도를 시료채취 및 측정의 전 과정에서 요구하고 있음
- Rev. 2 에서는 일반인에 대한 선량 평가와 관련하여 10CFR20.1301의 일반인에 대한 선량한도 규정 및 10CFR50, 부록 I의 경수로 방사성 유출물의 방출이 ALARA를 보장하기 위한 설계목표에 대한 수치 지침에 대하여 기술하고 있음
- Rev. 2 에서는 방사성 유출물 배출 보고서의 작성 중에 발생될 수 있는 오류에 대하여 작은 오류(Small errors)와 큰 오류(Large errors)로 나누어 설명하고 있음
- 연간 방사성 유출물 배출 보고서의 양식 및 내용과 관련하여 Rev. 2에 명시된 양식은 Rev. 1에 명시된 양식과 약간 다르지만 두 가지 모두 사용할 수 있다고 기술하고 있음

3. 결론

3.1 국내 원자력발전소 방사성 유출물의 방사능 측정, 평가 및 보고에 관한 규제지침은 KINS의 경수로형 원전 규제지침 내에 공정, 유출물 방사능 감시 및 시료채취 계통에 제시되어 있으며, NRC의 RG 1.21을 기반으로 한 NUREG-0800[4]에 제시된 수용기준을 대부분 활용하고 있는데 개정된 RG 1.21을 반영하여 보다 상세한 기술이 필요하다고 판단된다.

3.2 RG 1.21, Rev. 2의 개정된 주요 내용은 다음과 같다.

- 위험도-정보 접근 방식 채택(주요핵종개념)
- 주요 핵종으로 C-14 추가
- 용어의 정의 변경(배출 및 방출)
- 기체시료 채취코드 개정
- 액체 유출물 확산에 대한 수문학적 접근 추가
- 확장된 측정불확실도 요구

3.3 위에서 제시된 개정된 내용들 중 C-14에 대해서는 현재 국내에서 적용 중이나 규제지침에는 언급이 없고, 변경된 기체시료 채취 코드는 신규 원자력발전소에 적용 가능 하고, 기존 원자력발전소에는 설계변경 등의 절차가 필요하며, 확장된 측정불확실도 요구 및 용어의 정의 변경에 대한 사항은 단기 적용 가능하나, 위험도-정보 접근 방식 및 수문학 자료 추가에 대한 사항은 기존 체계 및 국내 현황을 고려하여 중장기적인 연구를 통하여 준비가 필요할 것으로 판단된다.

4. 감사의 글

본 연구는 원자력안전기술원의 위탁사업으로 수행된 것입니다.

5. 참고문헌

[1] KINS/RS-N12.00, 경수로형 원전 규제기준.
[2] KINS/RG-N12.01, 경수로형 원전 규제지침.
[3] KINS/GE-N001, 경수로형 원전 안전심사지침.
[4] USNRC, NUREG-0800, Standard Review Plan 11.5, Process and Effluent Radiological Monitoring Instrumentation and Sampling Systems, Rev. 4, 2007.
[5] USNRC, RG 1.21, Measuring, Evaluating, and Reporting Radioactivity in solid Waste and Releases of Radioactive Materials in Liquid and Gaseous Effluents form Light-Water-Cooled Nuclear Power Plants, Rev1, 1974.
[6] USNRC, RG 1.21, Measuring, Evaluating, and Reporting Radioactive Materials in Liquid and Gaseous Effluents and Solid Waste, Rev2, 2009.

방사성물질 해양확산 및 선량평가용 전산프로그램 조사

김연화*, 신상원
티유브이 라인란드 코리아㈜, 서울특별시 구로구 디지털로31길 41
*Yeonhwa.kim@tuv.com

1. 서론

일본 후쿠시마 원전사고와 같이 인접국가 원전사고나 향후 방사성폐기물의 해양운반 중에 발생할 수 있는 침몰 사고 등에 따른 방사성 물질의 해양 방출이 발생할 경우, 방사성 물질의 확산 경로 파악 및 인간과 환경에 미치는 영향 평가가 요구된다. 이에 방사성물질의 해양 방출시 해양으로의 이동 경로와 확산 정도를 예측할 수 있는 선량평가용 전산프로그램으로 POSEIDON, LAMER, DSOCEAN 및 MARINRAD에 대해서 조사하였다.

2. 본론

2.1 POSEIDON 코드

POSEIDON 코드는 프랑스의 CEPN(French Nuclear Protection Evaluation Centre)에 의해 정상운영 및 사고시 방사성물질 해양방출에 대한 방사선 결말 분석을 위해 개발되었다. 기존의 코드를 개선한 POSEIDON-R 코드는 발트해, 흑해, 북해에서의 해수 및 해양 생물체의 방사능 농도를 평가하는데 활용되었다.

POSEIDON-R 코드의 해양환경은 Fig. 1과 같이 해수(Water column), 토양(Bottom sediment), 생물체(Biota)로 구분한다. 부유 물질을 포함하는 해수 구역은 다시 몇 개의 수평층으로 나누고, 각 구역에서의 핵종 농도는 인접 구역간의 이동, 방사능 선원항, 붕괴 등을 포함하는 미분방정식으로 계산한다. 수층 내에서의 핵종 이동은 이류와 확산에 의해 발생한다. 상층 토양에서의 핵종은 확산과 생물교란작용(Bioturbation)에 의해 해수층으로 이동하고 반대로 해수층에서 상층 토양으로의 이동은 확산과 매몰(Burial)에 의해서 발생한다. 중간층 토양과 상층 토양간의 핵종 이동은 확산과 매몰에 의해서 발생한다. POSEIDON-R 코드에 사용되는 생물체 모델은 Heling 등에 의해 개발된 먹이사슬 모델 BURN (Biological Uptake of RadioNuclides)을 간략화한 것이다. 해양 생물체는 영양단계와 종을 고려하고, 핵종은 먹이사슬에 따라 하위 피식자에서 상위 포식자로 축적되며, 생물체 내에서의 핵종 농도는 해수 농도, 먹이 농도, 먹이 섭취량 등을 고려한 미분방정식으로 계산한다. 해양생물체의 섭취에 의한 개인선량은 ICRP 선량 계수를 사용하여 각 해수구역별로 계산한다.

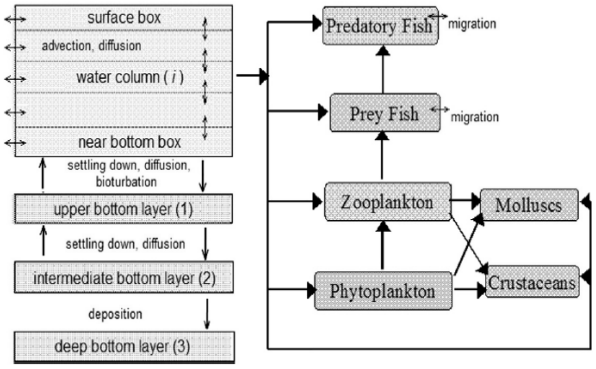


Fig. 1. Structure of POSEIDON-R code.

2.2 LAMER 코드

LAMER는 JAEA (Japan Atomic Energy Agency)에서 개발한 코드로 지구 규모의 방사성 분포를 예측할 수 있는 장기 평가 모델이다. 해양에서의 방사능 농도는 이류, 확산, 스케벤징을 고려한 3차원 모델로 계산되며, 주민선량평가에서는 해양생물체의 섭취에 의한 영향을 고려한다. LAMER 코드의 개념도는 Fig. 2와 같다.

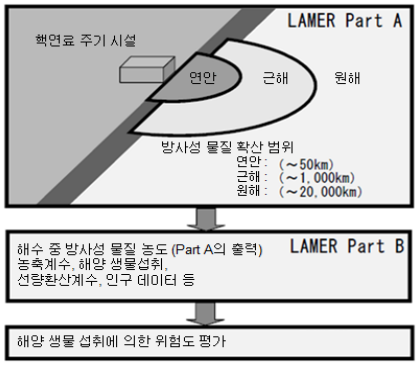


Fig. 2. Structure of LAMER code.

2.3 DSOCEAN 코드

DSOCEAN 코드는 JAERI(Japan Atomic Energy Research Institute)가 사용후핵연료 재처리 시설로부터 해양으로 방출되는 핵종으로 인한 선량 평가 목적으로 개발되었다. 액체 방출로 인한 선량 평가를 위한 DSOCEAN 코드 시스템 구조는 Fig. 3과 같이 EXCHNG, CONCEN, COLDO, MANAGE, PLOT, DOSDAC으로 구성된다. EXCHNG는 박스간 방사성핵종의 이동률을 평가하고, CONCEN는 시간에 따른 각 박스 내의 방사성핵종의 농도를 계산하고, COLDO는 피폭 경로에 따른 집단선량을 평가한다.

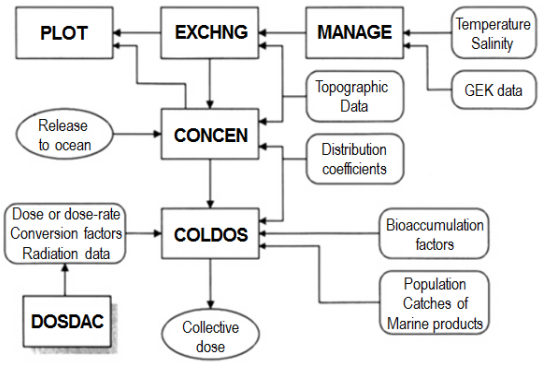


Fig. 3. Structure of DSOCEAN code system.

2.4 MARINRAD 코드

MARINRAD(Marine Radionuclide Transport and Dose)는 1980년대 초에 개발된 포트란 형식의 프로그램으로 해양에서의 방사성핵종의 거동과 방사선적 영향을 평가하기 위해 미국 SNL(Sandia National Laboratories)에서 개발하였다. MARINRAD 코드는 MARRAD, MAROUT과 ORIGEN 프로그램의 연계에 의하여 구동될 수 있으며 일반적인 MARINRAD 코드에는 ORIGEN을 제외한 MARRAD와 MAROUT으로 구성되어 있다. MARRAD는 해양의 퇴적물과 물을 구역으로 분할하여 각 구역에서 시간의 함수로 방사성 핵종 농도를 계산하는 해양 운반 모델(Ocean transport model)과 농도 인자(Concentration factors)를 사용하여 각 구역 해양 생물체의 핵종 농도를 계산하는 정상상태 먹이사슬모델(Steady-State Food-Chain Model)로 구동된다. MAROUT는 노출을 발생시키는 모든 경로, 즉 수산물 섭취, 오염된 물이나 퇴적물에 의한 외부 피폭, 공기나 해안 활동에 의한 흡입 등을 고려하는 피폭경로 모델(Pathways-to-man model)로 선량을 계산한다.

MARINRAD는 개발된 이후 개선 모델이 없으며, 프로그램의 폐쇄성으로 인하여 선량환산인자 업데이트 및 핵종 라이브러리 변환 등의 개선 작업이 쉽지 않다.

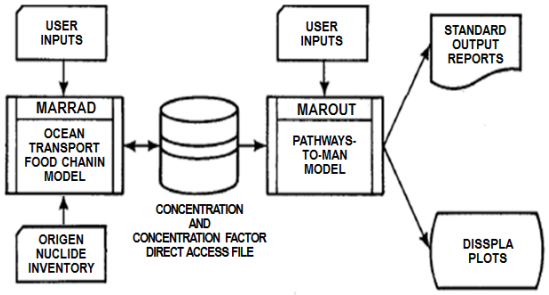


Fig. 4. Structure of MARINRAD code system.

3. 결론

유럽, 일본, 미국에서는 POSEIDON, LAMER, DSOCEAN, MARINRAD 등과 같은 전산프로그램을 활용하여 원전사고 또는 방사성폐기물 운반사고에 대한 선량평가를 수행한 사례가 보고되고 있다. 이러한 코드를 활용하여 국내 선량평가를 수행하기 위해서는 추가적으로 국내 지형적 특성 및 수산물 섭취 등의 사회적 특성을 반영해야 한다.

4. 감사의 글

본 연구는 원자력안전위원회의 원자력안전연구개발(방사성폐기물 및 사용후핵연료 규제기술개발)사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] V. Maderich, etc., Dispersion and fate of 90Sr in the Northwestern Pacific and adjacent seas, Science of the Total Environment, 494–495, 261–271 (2014).

[2] Masanao NAKANO, LAMER : Long-term Assessment Model of Radionuclides in the Oceans, JAEA-Data/Code 2007-024, (2008).

[3] Orihiko TOGAWA, Computer Code System DSOCEAN for Assessing the Collective Dose of Japanese due to Radionuclides Released to the Ocean from a Reprocessing Plant, JNST, 33(10), 792-803 (1996).

[4] C. M. Koplik, etc., User's Guide to MARINRAD, SAND83-7104, (1984).

KAERI에서의 IAEA사찰 및 국가계량관리검사 수검

김현숙*, 김인철, 이성호
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*hskim77@kaeri.re.kr

1. 서론

IAEA 사찰은 안전조치 이행에 있어서 가장 기본적이고 중요한 요소로 국가 또는 시설에서의 핵물질 전용 여부 탐지가 주목적이며 크게 장부검사와 현장검증으로 나뉘어진다. 장부검사는 IAEA로 제출된 계량관리보고서를 근거로 하여 시설의 핵물질 재고량, 재고변동자료 및 운영자료 등과 같은 계량관리 자료들을 검증하는 것이며, 현장검증은 품목확인, 시료채취 및 핵물질 측정 등을 통하여 장부상의 핵물질 재고량을 실제 현장에서 검증하는 것이다.

국가계량관리검사는 한-IAEA 안전조치 협정에 근거한 해당시설의 계량관리 실태를 파악하고 원자력안전법을 근거로 작성된 특정핵물질의 계량관리규정의 준수여부를 확인하기 위한 검사를 의미한다. 국가 계량관리검사는 원자력안전위원회의 위탁을 받아 한국원자력통제기술원이 수행하고 있다. KAERI는 특정핵물질의 계량관리규정에 근거하여 11개 안전조치 대상시설로 구성된 안전조치 체제를 구성하였으며, 이에 대한 국가계량관리검사 수검을 받아 오고 있다.

본 논문에서는 KAERI내 11개 안전조치 대상시설에 대한 IAEA 사찰 및 국가계량관리검사 수검 현황에 대해서 고찰하였다.

2. 본론

2.1 KAERI 안전조치 대상 시설

KAERI 안전조치 대상시설은 Table 1과 같이 10개 원자력시설과 1개의 시설외지점으로 구성되어 있다. 통합안전조치체제하에서 KAERI 안전조치대상시설은 3개의 Category로 분류된다. 하나로시설과 조사후시험시설은 Category I시설로, 파이로관련시설은 Category III시설로, 그 외 나머지시설 및 시설외지점은 Category II시설로 분류되며, 분류된 Category에 따라 사찰빈도, 사찰수검시 제공자료, 사전통보사항 등이 달라진다.

Table 1. KAERI nuclear facilities and Location Outside Facilities(LOF)

No	Category	Facility
1	Category Ⅰ	High Flux Advanced Neutron Application ReactOr(HANARO)
2		Post-Irradiation Examination Facility(PIEF)
3	Category Ⅱ	Irradiated Material Examination Facility(IMEF)
4		HANARO Fuel Fabrication Plant(HFFP)
5		Nuclear Material Storage Facility (NMSF)
6		Uranium Residue Storage Facility(URSF)
7		R&D facility
8		Location Outside Facilities(LOF)
9	Category Ⅲ	PyRoprocess Integrated inactive DEmonstration facility(PRIDE)
10		Advanced Spent Fuel Conditioning Process Demonstration Facility(ACPF)
11		DUPIC Fuel Development Facility(DFDF)

2.2 IAEA 사찰 수검

2008년 7월 통합안전조치[1]가 적용되면서 Category Ⅰ 시설인 하나로 및 조사후시험시설의 경우 년 1회의 물자재고조사 및 연 50%확률로 선택하여 무작위 중간사찰을 시행하고 있으며, 특히 하나로시설은 년 1회 무작위 중간사찰을 추가로 실시하고 있다. Category Ⅱ 시설 및 Category Ⅲ 시설은 각각 연 20%확률 및 50%확률로 선택하여 물자재고조사 및 무작위중간사찰을 실시하고 있다. 사찰통보는 물자재고조사의 경우 사찰일 기준 7 일전에, 무작위중간사찰의 경우 2 시간전에 통보해주고 있다. Fig. 1은 IAEA 사찰 수검 현황(물자재고조사 및 무작위중간사찰만 포함)을 보여준다. Fig. 1에서 보는 바와 같이 IAEA 사찰은 통합안전조치 적용이후 사찰빈도가 줄어든 것을 확인할 수 있다. 하지만 KAERI는 2 시간 통보사찰을 대비하여 시설마다 준실시간으로 계량관리 실

태를 파악하고 있어야 하며, 2 시간 내 검증자료를 준비해야 하므로 실제 업무부담은 훨씬 늘어났다. 이에 KAERI는 준실시간 계량관리시스템을 개발하여 운영함으로써 통합안전조치하의 무작위 중간사찰 수검을 성공적으로 이행할 수 있었다. 이와 같이 KAERI는 변화하는 국제 안전조치 환경에 대처할 수 있도록 면밀히 준비하고 있으며, 향후에도 더 효율적인 안전조치 이행을 위해서 노력하고 있다.

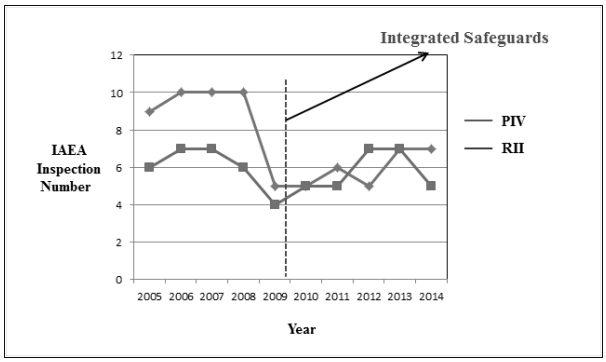


Fig. 1. IAEA inspection.

2.3 국가계량관리검사 수검

통합안전조치체제하에서 국가계량관리검사는 IAEA 사찰시 동시에 실시되기도 하고, 국가계량관리검사만 단독으로 실시되기도 한다. 국가계량관리 검사는 모든 시설에 대하여 IAEA 동시 사찰을 포함하여 물자재고조사 및 무작위 중간검사를 매년 각각 1회 실시하여 왔다. 하지만 2014년 11월 국가계량관리검사관련 고시개정[2]에 따라 국가계량관리검사 이행방법이 변경될 예정이다. 매년 1회 실시되었던 물자재고조사 및 무작위중간검사는 정기검사와 수시검사로 변경되어 정기검사의 경우 핵물질에 대한 계량관리검사보다는 해당시설에 대해 승인된 계량관리규정의 이행상태 확인에 중점을 두고 검사가 이루어질 예정이며 수시검사의 경우 필요시 수시로 검사하는 형태로 변경되었다. 또한 2015년부터 국가계량관리검사가 강화되어 계량관리를 위한 각종 절차의 적정성 확인, 측정기기 및 장비의 기능과 보정 검증 및 계량관리와 관련된 기록의 유지 및 관리상태 확인 등 국가 검사 범위가 확대될 예정이다. 이에 따라 KAERI는 특정핵물질의 계량관리규정을 개정하여 강화된 국가계량관리검사 수검이 원활히 진행될 수 있도록 대비하여야 한다.

3. 결론

KAERI는 11개 안전조치 대상시설에 대하여 IAEA 사찰 및 국가계량관리검사를 성공적으로 수검하여 왔다. 2008년 7월 통합안전조치가 적용되면서 무작위중간검사에 대비하여 준실시간 계량관리시스템을 개발하여 2시간이내에 계량관리자료를 준비할 수 있는 체제를 구축함으로써, IAEA 사찰수검을 성공적으로 이행할 수 있었다. 또한, 국가계량관리검사는 2014년 11월 국가계량관리검사관련 고시개정[2]에 따라 국가계량관리검사 이행방법이 변경될 예정이며, 2015년부터 강화되는 국가계량관리검사를 원활하게 수검받기 위해서는 확대된 검사 범위 및 방향을 면밀히 분석하여 특정핵물질 계량관리규정에 반영하여야 함으로써 변화되는 국가계량관리검사 수검에 대비하여야 한다.

이와 같이 KAERI는 변화하는 국내외 안전조치 환경에 대처할 수 있도록 면밀히 준비하고 있으며, 향후에도 더 효율적인 안전조치 이행을 위해서 노력할 것이다.

4. 참고문헌

[1] Integrated Safeguards Approach for RRCAs in Republic of korea, 5 (2007).

[2] 원자력안전위원회 고시 제2013-53호 (2014).

일차냉각재 pH 조절법 개선에 따른 영향 평가

이두호*, 권혁철, 성기방
한수원㈜중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70
*dooho.lee@khnp.co.kr

1. 서론

국내 원자력발전소에서는 크러드의 노내 침적을 억제할 목적으로 일차냉각재의 pH를 한 주기 동안 가능한 범위에서 높고 일정하게 유지하는 방향으로 개선해나가고 있다. 하지만 pH의 최적화를 위해서는 리튬 주입량을 증가시켜야만 하나, 리튬 주입량이 증가되면 연료 피복관의 부식 증가와 Alloy 600 재료의 PWSCC(Primary Water Stress Corrosion Cracking) 발생이 증가될 우려가 있다. 따라서 본 논문에서는 일차냉각재 pH 운전법 변경에 따른 이의 영향을 고찰하였다.

2. 본론

2.1 일차냉각재 pH 조절법

국내 원자력발전소에서는 주기 초 일차냉각재의 pH를 6.9로 유지하다가 리튬 농도가 2.2 ppm에 도달한 이후부터는 pH를 7.4까지 증가시켜 운전하는 Modified pH 조절법을 적용한 바 있다. 하지만 이를 한주기 동안의 pH를 7.1 또는 7.2로 유지하는 Constant pH 7.1 또는 7.2(Max. Li 3.5 ppm) 조절법으로의 변경을 추진하여, 2015년 현재 고리1호기를 제외하고 모든 발전소에서 규제기관의 승인을 취득하여 적용 중에 있다. Fig. 1에는 두 가지 조절법을 간략히 보여주고 있다.

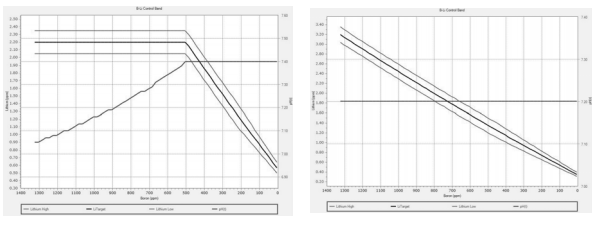


Fig. 1. Modified pH(Left)와 Constant pH 7.2(Right).

본 논문에서는 pH 조절법 변경에 따른 연료 피복관과 Alloy 600 재료의 건전성 측면의 검토 결과를 기술하였다.

2.2 평가방법

일차냉각재 pH 조절법 변경에 따른 전반적인 리튬 주입량 변화를 살펴보기 위하여 한빛5호기 8주기 운전자료를 토대로 리튬 평균농도와 리튬 누적주입량을 계산하였다. 또한 10주기(현재 운전중)부터 Constant pH 7.2로 운전되며, 8주기와 10주기의 노심 설계가 동일한 것으로 가정하여 10주기의 리튬 평균농도와 누적주입량을 산정하였다(Table 1 참조).

Table 1. Comparison of Lithium between pH Regime

	Cycle 8	Cycle 10
pH Regime	Modifed pH	Constant pH 7.2
Max. Boron(ppm)	1325@100% Power	1325@100% Power
Avg. BOC Li(ppm)	2.23	2.81
Avg. MOC Li(ppm)	2.15	2.01
Avg. EOC Li(ppm)	1.47	0.96
Overall Li(ppm)	1.94	1.90
Li Exposure(ppm-days)	908	891

2.3 연료 피복관 건전성

연료의 부식과 성능은 Boiling Duty와 밀접한 연관성이 있다. Boiling Duty가 증가되면 크러드 증가에 따라 피복관과 냉각재와의 열전달이 방해되어 피복관 표면 온도가 상승되고, 이로 인해 부식율이 증가될 우려가 있다. 특히 일차계통내 크러드의 이동은 일반적으로 주기 초가 높게 나타나므로 주기 초의 pH를 가급적 높게 유지하는 것이 노내 크러드 침적량 감소라는 측면에서 유리하다. 또한 국내 연료 공급사인 한전원자력연료㈜에서는 연료 보증측면에서 냉각재 중의 리튬 제한값을 리튬 누적주입량이 아닌 단일농도(3.5 ppm) 기준을 적용하고 있으므로 현재의 pH 조절법 변경이 연료의 건전성 측면에 미치는 영향을 미미할 것으로 판단된다.

2.4 Alloy 600 재료 건전성

본 논문에서는 EPRI MRP-147 [1]을 활용하여 리튬농도 변화에 따른 건전성 영향을 평가하였다.

$$\eta = C(i)(T\ Ratio)\exp(pH\ Term + H_2\ Term) \quad (1)$$

여기서, η : Weibull 분포의 Characteristic time

(i) :시편 재료별 상수

T Ratio : $\exp(\frac{-Q}{RT}) / \exp(\frac{-Q}{RT_{ref}})$

pH Term : $10.48(pH_{310℃} - 7.245)^2$

for $pH_{310℃} \leq 7.362$

: $2.452(pH_{310℃} - 7.362) + 0.1435$

for $pH_{310℃} > 7.362$

H_2 Term : $0.0013(H_2 - 29.2)^2$

상기 식에서 lnC(i) = 7.692, H_2 Term = 0.07912(용존수소 21.4 또는 37.01 cc/kg에 해당)로 가정한 후, pH의 PWSCC 개시율에 대한 영향을 살펴보면 Fig. 2와 같다. 본 그림은 MRP-147 모델식에서 pH 6.9의 값을 기준으로 PWSCC 개시율에 대한 상대적인 척도로 도식화한 그래프이다.

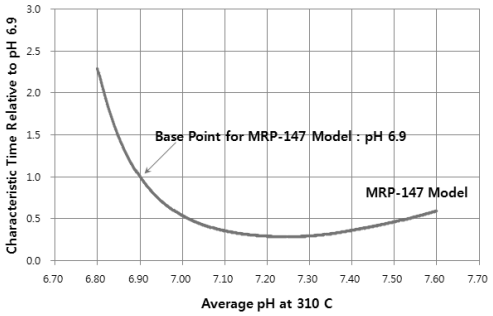
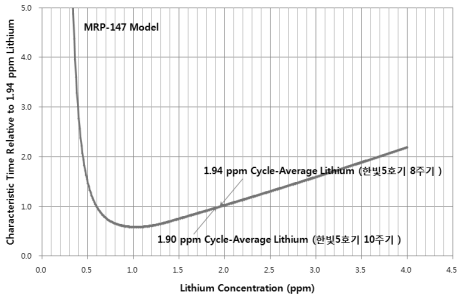
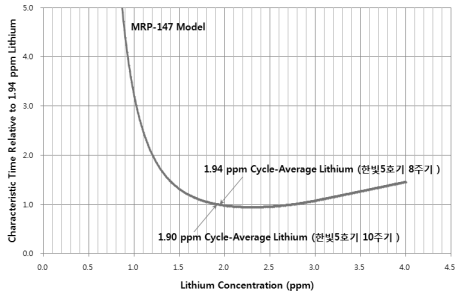


Fig. 2. pH impact on PWSCC Initiation Time.

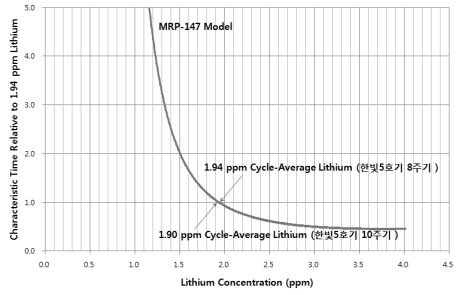
상기 식의 모델값은 엄밀히 말해 310℃에서의 pH 값을 기준으로 작성된 것이다. 일차냉각재의 pH는 물의 해리상수의 온도에 대한 의존성으로 인해 기준 온도에 따라 변하는 특성을 보이므로 상기 식의 pH 값을 온도에 대해 불변값인 농도 기준으로 변환하는 것이 필요하다. 따라서 본 논문에서는 한빛5호기 8주기와 10주기의 리튬 농도 차이에 의한 PWSCC 개시 시간의 영향을 살펴보기 위하여 310℃에서의 pH 값을 리튬농도로 환산하였다. 특히 한빛5호기 8주기의 리튬 평균농도가 1.94 ppm이었으므로 이 값을 기준으로 리튬 농도가 변화될 때 PWSCC 균열 개시율을 상대적인 척도로 비교하여 Fig. 3에 나타냈다. 본 그림을 통해 한빛5호기 pH 조절법 변경에 따른 PWSCC 개시 시간은 ±5% 범위에서 변화됨을 확인할 수 있다.



(A) BOC Boron 300 ppm



(B) MOC Boron 800 ppm



(C) EOC Boron 1300 ppm

Fig. 3. Li Impact on the PWSCC Initiation Time.

3. 결론

현행 일차냉각재의 pH 조절법 변경안은 이전 조절법에 비해 연료 피복관과 Alloy 600 재료의 건전성에 별다른 영향을 미치지 않는 것으로 평가되었다. 하지만 일차냉각재의 BOC pH를 6.9보다 높게 유지하기 위해서는 리튬 농도 3.5 ppm 제한값을 완화할 필요가 있으며, 이를 위해서는 연료 피복관 측면의 상세한 재평가와 검증시험이 요구될 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

[1] Material Reliability Program: Effects of Hydrogen, pH, Lithium and Boron on Primary Water Stress Corrosion Cracking Initiation in Alloy 600 for Temperatures in the Range 320~330℃ (MRP-147). EPRI, Palo Alto, CA: 2005. 1012145.

OTDR 기반의 고온 광섬유 온도 센서 개발

장재석, 신상훈, 이동은, 김재석, 권구원, 전혜수, 유욱재, 장경원, 이봉수*
건국대학교, 충청북도 충주시 충원대로 268
*bslee@kku.ac.kr

1. 서론

최근 원자력발전소 가동호기 및 운전년수가 증가함에 따라 원전 배관에서의 결함 및 손상 사례가 점차 증가하는 추세이다. 국내 대부분의 원자력발소는 가압경수형 원자로(pressurized water reactor)로서 원자로 냉각재로 경수를 사용하고 있으며, 방사능 노출을 예방하기 위하여 폐회로 순환으로 냉각을 하고 있다. 운전 중 배관의 손상 및 결함으로 인한 냉각재의 감소는 원자로 핵연료의 냉각율을 낮게 하여 노심 안정성에 치명적인 결과를 초래할 수 있고 격납용기(container)에서 대기 중으로 고방사화 중수가 누설될 경우에는 작업자의 피폭을 초래할 수 있다. 따라서 1차 및 2차 계통에서 냉각재 누설의 실시간 감시는 원자로의 냉각 안정성뿐만 아니라 작업자 보호 측면에서 매우 중요하다.

현재 냉각재 누설 위치를 탐지하기 위한 방법으로 적외선 열화상 검사법(infrared thermography method), 자기 검사법(magnetic method), 및 초음파 검사법(ultrasonic method) 등 다양한 방법이 사용되고 있다. 그러나 수작업에 의한 오프라인 검사가 이루어지고 있으며 실시간 측정 불가, 정확도 및 작업자 안전성 등에 대한 문제점들을 가지고 있다.

본 연구에서는 광섬유 온도 센서를 이용한 냉각재 누설 검출기 개발의 일환으로 OTDR(optical time-domain reflectometer) 기반의 광섬유 온도 센서를 제작하였다. 제작된 광섬유 온도 센서는 고온, 고압환경에 적용이 가능하고, 물체의 내·외부에 광범위하게 설치하여 온도를 측정할 수 있다. 또한 원거리에서 전자기장의 영향을 받지 않고 온도변화에 따른 출력 신호의 실시간 측정이 가능하다[1].

2. 본론

2.1 실험 재료 및 방법



Fig. 1. OTDR.

Fig. 1은 실험에 사용된 광 계측기 OTDR (AQ7275-735041, Yokogawa)이다. OTDR은 광섬유의 내부 또는 끝단에서 발생하는 산란/반사광의 실시간 측정이 가능하고, 감지부에서 발생한 이벤트의 응답 신호를 데시벨(dB)로 획득할 수 있으며, 최대 400 km까지 측정이 가능하다.

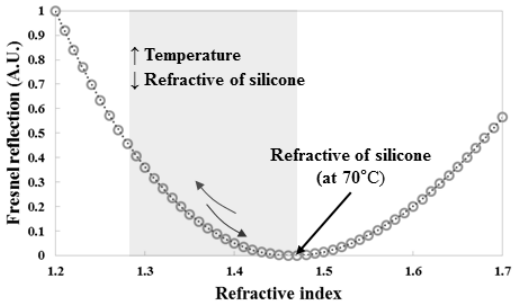


Fig. 2. Relationship between the refractive index of the silicone and Fresnel reflection when the core refractive index of optical fiber is 1.457.

Fig. 2는 광섬유 끝단에서 외부 물질의 굴절률 변화에 따른 프레넬 반사율을 보여준다. 외부 물질이 코어의 굴절률 1.457에 근접할수록 프레넬 반사율이 감소하고, 반대로 멀어지면 반사율은 증가하는 것을 확인할 수 있다.

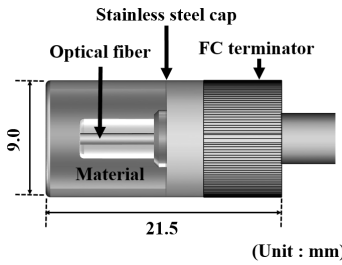


Fig. 3. Internal structure of a temperature sensing probe.

Fig. 3은 실리콘을 이용하여 제작된 광섬유 온도 센서의 감지부 구조이다. 감지부는 스테인리스강 캡(stainless steel cap), 실리콘, 및 FC 터미네이터(FC terminator)로 구성되어 있다. 고온에서 광 신호를 전송하기 위해 감지부에 연결된 광섬유는 600°C까지 견딜 수 있는 금속코팅 광섬유(metal coated fiber, Art photonics)를 사용하였다. 감지부 내에 채워진 실리콘(silicone; KF-54, Shin-Etsu)은 고온에서 견딜 수 있는 투명한 액체이며, 온도가 증가함에 따라 굴절률이 감소하고 프레넬 반사율이 증가하는 것을 Fig. 1에서 확인할 수 있다.

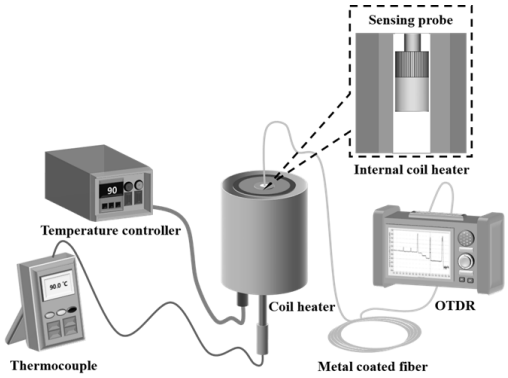


Fig. 4. Experimental setup using a fiber-optic temperature sensor.

Fig. 4는 광섬유 온도 센서를 이용한 전체 실험 구성을 보여준다. 히터 내부 온도를 실시간으로 정확하게 측정하기 위해 기준 온도 센서로 열전대(thermocouple)를 사용하여 광섬유 온도 센서의 광 신호와 비교 분석하였다. 이 때 사용한 OTDR의 광원의 파장은 1,310 nm이며, 광원에서 발생된 광 신호는 전송용 광섬유를 통하여 감지부까지 전송되고, 온도 증가에 따른 실리콘의 굴절률 변화는 프레넬 반사율을 증가시켜 OTDR에서 광량변화를 측정하게 된다.

2.2 실험 결과

Fig. 5는 실리콘 온도 감지부를 이용하여 코일 히터의 내부 온도를 70°C에서 340°C까지 10°C 간격으로 변화시키면서 측정한 결과를 보여준다. 온도가 올라감에 따라 실리콘의 굴절률이 감소하기 때문에 광섬유 끝단과 실리콘 접촉면에서 발생되는 프레넬 반사에 의해 반사되는 광량이 증가하게 된다. 따라서 OTDR에서 온도변화에 따른 광 신호를 측정하여 실시간으로 온도 측정이 가능하다.

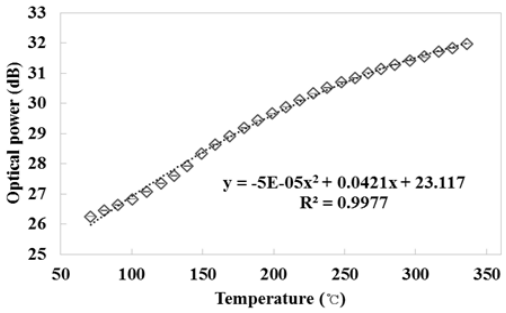


Fig. 5. Relationship between the light output signals of fiber-optic temperature sensor and the temperature of coil heater.

3. 결론

본 연구에서는 광섬유 온도 센서를 이용한 냉각재 누설 검출기 개발을 위한 목적으로 실리콘 기반 광섬유 온도 센서를 제작하였고, 온도 변화에 따른 반사광을 측정 및 분석하였다.

광섬유 온도 센서의 감지부 온도가 변화함에 따라 실리콘의 굴절률은 증가 또는 감소하고 이에 따라 광섬유 끝단에서 프레넬 반사율의 변화로 광량의 차이가 발생한다.

광섬유 온도 센서를 이용하여 70°C에서 340°C까지의 온도범위 내에서 온도변화에 따른 광 신호를 측정 및 분석하였고, 광섬유 온도 센서의 출력신호와 코일 히터 온도 사이의 관계식을 획득하였다.

앞으로의 연구방향은 다채널 광섬유 온도 센서의 개발 및 성능평가를 통하여 실시간 냉각재 누설의 검출이 가능한 검출기를 개발하는 것이다.

4. 감사의 글

이 논문은 2015년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 원자력연구사업임(No. 201404951, No. 2014031841).

5. 참고문헌

[1] 유욱재, 이봉수, 박병기, 조영호, "냉각된 원 2차 계통수의 온도측정을 위한 비접촉식 광섬유 온도 센서의 개발", 한국산학기술학회, 11(5), 1730-1734, (2010).

사용후핵연료 저장조의 실시간 수위 측정용 휴대용 초음파 센서 시스템의 개발

이동은, 신상훈, 전혜수, 장재석, 권구원, 김재석, 유욱재, 장경원, 이봉수*
건국대학교, 충청북도 충주시 충원대로 268
*bslee@kku.ac.kr

1. 서론

고준위 방사성폐기물(high-level waste)로 분류되는 사용후핵연료(spent fuel)는 원자로에서 사용된 후에도 핵분열생성물(fission product)을 포함하고 있기 때문에 지속적으로 높은 붕괴열(decay heat)과 방사선을 방출한다. 따라서 높은 붕괴열을 제거하고 방사선을 차폐하기 위하여 사용후핵연료는 일정기간 동안 사용후핵연료 저장조(spent fuel storage pool)에 저장된다. 따라서 사용후핵연료 저장조의 안정성을 확보하고, 후쿠시마 원전 사고와 같은 전원상실 시 위험수위를 판단하기 위해서는 저장조의 방사선, 온도 및 수위에 대한 실시간 감시가 필요하다[1].

일반적으로 사용후핵연료 저장조의 수위를 측정하기 위하여 유도파 레이더(guided wave radar) 센서 시스템과 버블러 시스템(Bubbler system)이 주로 이용된다. 기존 시스템은 물과 직접적인 접촉을 통하여 수위가 측정 되고 전원상실 시 전력공급이 차단될 경우 측정이 불가능해지는 단점을 가진다. 수위측정을 위해 주로 사용되는 레이저, 초음파, 압력 센서 중 초음파 센서는 비접촉식 센서로서 소형으로 제작이 가능하며, 휴대용으로 실시간 수위측정에 적용할 수 있는 장점을 가진다.

본 연구에서는 사용후핵연료 저장조의 실시간 모니터링 및 전원상실을 비롯한 원전사고 시 저장조의 수위를 측정하기 위해 초음파 센서를 이용하여 휴대용 초음파 센서 시스템을 제작하였다. 제작된 초음파 센서 시스템의 성능을 평가하기 위하여 수위의 증감에 따른 출력 신호를 측정하였고, 온도 변화에 따른 초음파 센서의 출력 신호의 변화를 측정 및 분석하였다.

2. 본론

2.1 실험 재료 및 방법

본 연구에서 수위를 측정하기 위해 제작한 초음파 센서 시스템은 초음파 센서, 아두이노 우노 보드(Arduino Uno board), LCD, LED 및 버저(Buzzer)로 구성되어있다.

초음파 센서를 제어하기 위해 사용된 아두이노 우노는 ATmega328 기반의 단일보드 마이크로 컨트롤러(microcontroller)이며, 통합 개발 환경에서 프로그래밍 하여 USB 단자를 통해 컴파일된 펌웨어를 쉽게 업로드를 할 수 있다는 장점을 가지고 있다[2]. 실험에 사용된 초음파 센서의 특성은 다음 Table 1과 같다.

Table 1. Characteristics of ultrasound sensor

Operating voltage [v]	5
Sensing range [cm]	2 ~ 400
Resolution [mm]	3
Output type	Pulse

Fig. 1은 초음파 센서 시스템을 이용하여 실시간으로 수위를 측정하는 실험구성을 보여준다. 30 cm 높이의 수조에 초음파 센서 시스템을 고정한 후, 수면에서 반사되어 되돌아오는 신호를 측정하였다. 초음파 센서로부터 출력된 펄스 신호는 아두이노 우노에서 처리되어 LCD를 통하여 수치적으로 정확한 수위 정보를 표시하고, LED 및 버저는 수위변화에 대한 상태정보를 나타낸다.

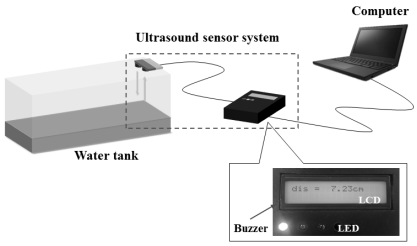


Fig. 1. Experimental setup using an ultrasound sensor system.

Fig. 2는 온도 변화에 따른 출력 신호의 변화를 측정하는 실험구성을 보여준다. 제작한 초음파 센서 시스템을 오일 배스(Oil bath; SH-OILWB10, Samheung Energy)에 고정한 후, 물의 온도 변화에 따른 초음파 센서의 출력 신호를 측정하였다. 물의 온도는 오일 배스의 온도 컨트롤러를 사용하여 조절하였고, 물의 온도를 실시간으로 측정하기

위해 K-타입 열전대(thermocouple; 54II thermometer, Fluke)를 사용하였다.

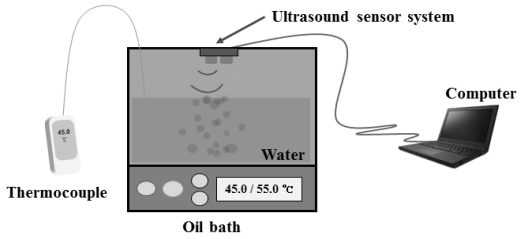


Fig. 2. Experimental setup for measuring the output signals according to the water temperature.

2.2 실험 결과

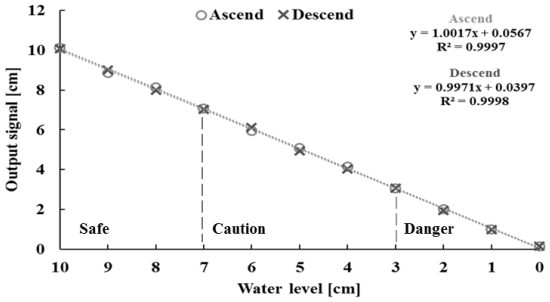


Fig. 3. Variations of the output signals according to the water level.

Fig. 3은 수위를 0~10 cm까지 1 cm 간격으로 변화시켰을 때 초음파 센서의 출력신호를 측정한 결과 그래프이다. 측정된 출력신호는 수위의 증감에 따라 선형적인 결과를 나타내었고, 임의로 지정한 구간에 따라 LCD에 수위 정보 및 문구가 정확하게 표시되었다. 오차범위 ±0.2 cm 이내에서 비교적 정확하게 측정되었으며, 수조 내에서 실시간으로 변하는 수위의 측정이 가능한 것을 확인하였다.

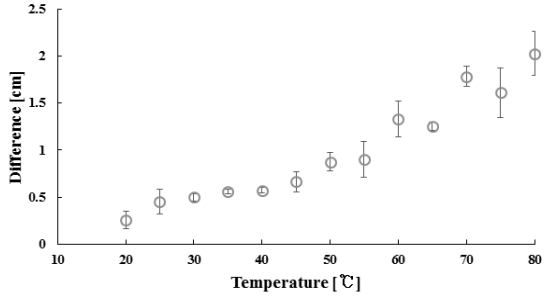


Fig. 4. Difference of output signals according to the water temperature.

Fig. 4는 오일 배스를 이용하여 20~80℃의 온도범위에서 5℃ 간격으로 온도를 증가시키면서 측정한 초음파 센서의 출력신호를 분석한 결과 그래프이다. 물의 온도가 증가함에 따라 증기와 기포발생량이 증가하기 때문에 출력신호의 변화가 커지는 것을 확인하였다.

3. 결론

본 연구에서는 사용후핵연료 저장조 내 수위의 실시간 모니터링 및 전원상실 사고 시에도 사용이 가능한 휴대용 초음파 센서 시스템을 제작하였다. 초음파 센서 기반의 수위측정 시스템을 이용하여 수위변화 및 물의 온도 변화에 따른 출력신호를 측정하였다.

실험결과, 수위변화에 따른 실시간으로 수위 측정이 가능하였고, LCD에 정확한 수위 정보가 표시되었다. 또한 물 온도의 변화에 따라 출력신호의 변화가 커지는 것을 확인하였다. 이 결과를 바탕으로 사용후핵연료 저장조의 증기 및 기포 발생과 같은 다양한 물리적 요인의 변화에도 민감하게 반응하여 수위의 모니터링이 가능할 것으로 판단된다.

앞으로의 연구방향은 본 연구에서 제작한 초음파 센서 시스템과 기존의 사용후핵연료의 수위를 측정하는 시스템의 성능비교를 통하여 제작된 시스템의 효율을 평가하는 것이다.

4. 감사의 글

이 논문은 2015년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 원자력연구사업임(No. 2014040951, No. 2014031841).

5. 참고문헌

[1] 심혁인, 유욱재 ,신상훈, 장재석, 김재석, 장경원, 조승현, 문주현, 이봉수, "광섬유와 OTDR을 이용한 실시간 수위 및 온도 측정", 전기학회 논문지, 63(9), 245-250 (2014).

[2] J. K. SY, "Design and Implementation of Fuzzy Controller on Embedded Computer for Water Level Control", IJSER, 4(5), 51-55 (2013).

CESEUM 코드를 이용한 한빛3호기 손상연료집합체 연소도 평가

김기영*, 정성환, 이은기
한수원㈜중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70
*kiyoungkim@khnp.co.kr

1. 서론

현재 국내에서 가동되고 있는 원자력발전소는 가압경수로형 19기, 가압중수로형 4기로서 한국수력원자력은 전 세계적으로 5위권의 원전운영사이다. 또한 2009년 UAE 원전수출을 달성함으로서 이제는 명실상부한 원전선진국으로 진입했다고 자부할 수 있다. 원전수출까지의 일련의 진화과정은 원자력발전소내 다양한 분야에서 전문성이 확보되었기에 가능했지만, 특히 원자력발전소 핵심인 원전연료 관리 분야도 큰 몫을 담당했다고 판단된다. 따라서 본 논문에서는 원전 안전성과 밀접한 관계가 있는 발전소 가동 중 발생한 원전연료 손상평가와 관련하여 한빛3호기 사례를 적용, 연소도 예측에 사용되고 있는 CESEUM 코드 분석 결과를 기술하였다.

2. 본론

가동중인 원전에서는 연료손상을 감시하기 위해 주기적으로 원자로냉각재 샘플을 채취하여 시료분석 즉, 냉각재내 포함된 방사능 핵종(I-131, I-133, Xe-133, Xe-135, Cs-134, Cs-137 등)준위를 측정한다. 만일 이때 측정된 방사능준위가 일정기준을 초과하면 원자력발전소에서는 연료손상 징후로 간주하고 방사능 핵종 준위에 따라 1단계. 2단계, 3단계에 해당되는 절차를 수행 하게 되고, 이와 더불어 손상연료 개수 및 손상후보 연료를 예측하기 위하여 방사능핵종 준위를 기반으로 프로그램 분석을 수행한다. 이때 사용되는 평가 프로그램이 EPRI-CHIRON, WH-CADE, CE-CESEUM 코드 등이다. 본 프로그램들은 연료손상 개수 및 연소도 평가 기능을 모두 가지고 있지만, 본 논문에서는 연소도 평가만을 고려하였다. 여기서 연소도 평가란 노심내 장전되어 있는 연료집합체들 중 어느 것이 손상되었는지를 예측하기 위한 방법을 의미한다.

CE-CESEUM 코드는 미국 WH(사)에서 개발된 코드로 가동 중 인 원자력발전소 노심내에서 연료손상 징후가 발생했을 경우, 어떤 연료집합체가 손상되었는지를 판별해 주는 해석코드이다. 즉, 현재 원자로내 장전되어 있는 각각의 연료집합체에 대하여 출력이력을 반영하고, 특히 원자력발전소 계획예방정비를 위한 정지기간 등을 고려하여 최종적으로 장전된 모든 연료집합체가 가지는 각각의 세슘량을 계산할 수 있는 기능을 가진다. 이렇게 계산된 결과는 측정값과의 비교를 통해 최종적으로 손상연료집합체 후보를 선별하게 된다.

CE-CESEUM 코드는 Cs-134와 Cs-137 각각의 반감기가 길기 때문에 정상상태하에서 유출시간의 영향이 작다는 가정과 함께 동위원소의 유출특성 즉, 동위원소끼리는 연료봉내에서 냉각재로의 방출특성이 같다고 가정하고 평가하게 된다. Fig. 1은 CE-CESEUM 코드의 초기화면을 보여준다.



Fig. 1. CESEUM Code Screen.

EPRI-CHIRON 및 WH-CADE 코드의 경우에는 기본적으로 원자력발전소의 출력이력 및 발전소 정지기간을 고려하지 못하기 때문에 Cs-134/Cs-137 비율이 연소도 증가에 따라 무조건 비례함을 원칙으로 하고 있다.

아래에 나와 있는 그림은 연소도 증가에 따른 Cs-134/Cs-137 비율을 나타낸 것으로, Fig. 2는 EPRI CHIRON 코드, Fig. 3은 WH CADE 코드의 기본모델링 방법론을 적용한 것이다.

기본적으로 세슘과 같은 장주기 원소의 경우 방사능붕괴를 통해서 소멸되는 양이 작기 때문에

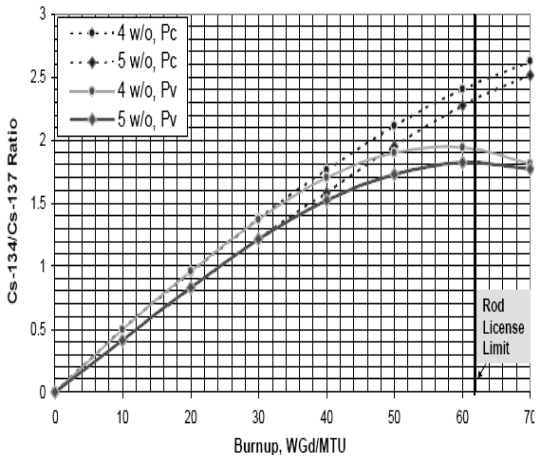


Fig. 2. Burnup Estimate of EPRI-CHIRON Code.

축적되는 양은 점차 늘어난다. 따라서 Cs-134와 Cs-137의 반감기 차이에 기인한 장주기 핵종의 비를 통해 손상핵연료의 연소도를 알 수 있게 된다. 따라서 연소도 평가 코드들이 Cs-134/ Cs-137 비율을 이용하여 손상연료집합체를 선별하는 방법은 동일하다고 할 수 있다.

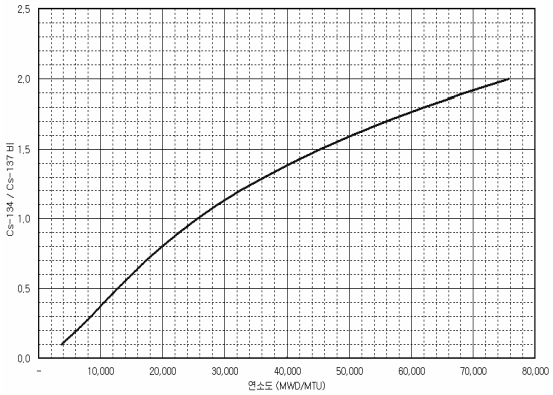


Fig. 3. Burnup Estimate of CADE Code.

하지만 여기서 주목해야 할 점은, 원자력발전소가 계획예방정비를 위해 정지하는 기간에 따라, 그리고 다양한 출력이력에 따라 Cs-134/Cs-137비율이 반드시 연소도에 비례하지는 않는 사실이다. 즉, Fig. 2(EPRI-CHIRON 모델)와 Fig. 3(WH-CADE 모델)을 직접 적용하는 것은 손상연료평가에 큰 오류를 범 할 수 있다는 것이다. 다음에 나와 있는 Table 1은 최근 연료손상이 발생했던 한빛3호기 사례를 CE-CESEUM 코드를 이용하여 분석한 결과를 보여주고 있다.

Table 1. Burnup Estimate of CESEUM Code(HB Unit-3)

HB Unit-3 Cy 15

Measure(Cs134/Cs137) 1.580

FA	Fuel	Avg. FA Power			NDR BU	CESIUM Code(Predicted)	
	Enrich.	CY 13	CY 14	CY 15	(MWD/MTU)	Cs-Ratio	(MWD/MTU)
R201	4.5		1.246	1.120	42,757	1.575	42,462
R422	4.5		1.326	1.064	43,181	1.568	42,866
R217	4.5		1.098	1.078	39,181	1.438	39,072
R001	4.5		0.724	1.261	35,593	1.371	35,754
Q113	4.5	1.124	1.196	0.432	46,004	1.328	46,762
Q110	4.5	1.123	1.196	0.423	45,920	1.327	46,746
Q611	4.5	1.344	1.070	0.323	46,171	1.211	46,006
Q607	4.5	1.344	1.069	0.323	46,164	1.21	45,988
S10	4.65			1.067	19,459	0.720	19,292
S13	4.65			1.068	19,463	0.720	19,310
S02	4.65			0.933	16,923	0.624	16,869
S05	4.65			0.933	16,922	0.624	16,869

여기서, 1주기 연소연료는 Q그룹, 2주기 연소연료는 R그룹, 3주기 연소연료는 S그룹을 의미하는 것으로, Q그룹 연료집합체가 R 및 S그룹 연료집합체에 비해 연소도가 높음에도 불구하고, Cs-134/Cs-137(Cs-Ratio) 비율은 Q그룹보다 R그룹이 더 높다는 결과를 보여주고 있다. 이것은 결국 Fig. 2(EPRI-CHIRON 모델)와 Fig. 3(WH-CADE 모델)에서 제시하는 Cs-134/Cs-137(Cs-Ratio) 비율이 연소도에 비례한다는 방법론의 오류를 보여주는 것이다. 한빛3호기의 경우 실제 측정된 Cs-134/ Cs-137의 값은 1.58로서 Fig. 2를 적용 할 경우 38,000 MWD/ MTU, Fig. 3을 적용 할 경우 50,000 MWD/MTU 으로 평가된다. 이것은 실제 손상된 연료집합체(R422)의 연소도 43,181 MWD/ MTU 과는 차이가 있는 결과를 보여주고 있다. 하지만 CE-CESEUM 코드의 경우 예측 연소도 42,866 MWD/MTU, Cs-134/Cs-137 비율값 1.568로서 실제 손상 연료집합체와 유사한 결과를 보여주었다. 결론적으로 Cs-134/Cs-137 비율값은 발전소 출력이력 및 정지기간에 따라 달라질 수 있기 때문에 연소도에 반드시 비례하지 않음을 유념해야 할 것이다. 참고로 한빛3호기 사례의 경우, 중간정비기간이 약 6개월 연장됨으로 인하여 Cs-134/Cs-137 비율이 보통의 경우와는 다른 결과를 보여준 것으로 판단되며, CE-CESEUM 코드가 평가한 총 45개 연료집합체 중 실제 손상연료집합체는 2순위로 예측했기 때문에 상당히 신뢰성 있는 결과를 보여줬음을 확인하였다.

3. 결론

가동 중 인 원자력발전소에서 연료손상 징후 발생 시 어떤 연료집합체가 손상되었는지를 확인하기 위해 연소도 평가를 수행하게 된다. 이때 활용되는 방사능 핵종은 세슘이며 Cs-134/Cs-137 비율을 통해 손상 연료집합체 후보를 추출한다. 일반적으로 장전 횟수가 많은 연료집합체 즉, 연소도가 높은 연료집합체는 Cs-134/Cs-137 비율이 높은 특징이 있지만, 한빛 3호기 사례와 같이 예상치 못한 중간정비로 장기간 운전정지가 수반되는 경우 Cs-134/Cs-137 비율이 반드시 연소도에 비례하지 않는다는 사실을 CE-CESEUM 코드로서 확인하였다. 이러한 결과는 원자력발전소에서 실제 손상 연료집합체 평가시 반드시 유념해야 할 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

[1] EPRI Report 1019107, Fuel Reliability Monitoring and Failure Evaluation Handbook, 2010.
[2] 한수원 표준기행, 경수로원전 연료결함 발생시 후속조치, 2010.
[3] EPRI CM-110056, A code for analyzing coolant and offgas activity in a LWR, 1998.
[4] Westinghouse, Coolant activity data evaluation personal computer program, 1993.
[5] ABB Combustion Engineering, PWR fuel follow from coolant activity analysis, 1991.

ITER 삼중수소 저장공급시스템을 위한 검증시험설비 개발

송규민[1*], 이정민[1], 고병욱[1], 김정미[1], 손순환[1], 윤세훈[2], 장민호[2], 강현구[2]
[1]한수원㈜중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70
[2]국가핵융합연구소, 대전광역시 유성구 과학로 169번길 148
[*]kmsong001@khnp.co.kr

1. 서론

국제핵융합실험로(ITER, International Thermonuclear Experimental Reactor)는 핵융합연료로 중수소와 삼중수소를 사용하며, 이를 위해 삼중수소 저장공급시스템(SDS, Storage and Delivery System)이 설치된다. SDS는 한국 조달품목중 하나로, 저장용기 및 열량계 등으로 구성되어 있어 구성품의 품질 제고와 신뢰성 확보 측면에서 삼중수소 검증시험을 수행할 필요가 있다[1]. 본 연구에서는 ITER SDS 삼중수소 저장용기 및 열량계의 성능시험에 적합한 설비를 개발하고 한수원중앙연구원 삼중수소 실험실에 설치할 수 있도록 설계하고자 한다.

2. 본론

2.1 삼중수소 검증시험설비 필요성

ITER SDS는 핵융합반응을 위해 필요한 연료(중수소 및 삼중수소)를 저장해 두었다가 필요시 최대 유속 200 Pa·㎥/sec로 연료공급시스템으로 이송하여야 한다. 이를 위해 30~100 개의 삼중수소 저장용기가 SDS에 설치되며, 저장용기마다 삼중수소 재고량을 주기적으로 측정할 수 있는 열량계(in-bed 방식)가 설치된다. 삼중수소 저장용기 개발 단계에서는 방사성물질인 삼중수소를 직접 취급하기에 어려움이 있어 수소를 이용하고, 최종적으로 삼중수소를 이용하여 테스트한다. 특히 삼중수소 재고량 측정을 위한 열량계는 붕괴열을 측정하는 방식이므로 삼중수소를 이용하여 테스트하여야 한다. 삼중수소 검증시험설비는 저장용기와 열량계가 요구하는 성능을 검증할 수 있도록 개발되어 구축되어야 한다.

2.2 삼중수소 정밀주입장치

열량계 테스트를 위해 삼중수소를 정밀하게 계량하여 공급하여야 한다. ITER 기구에서 요구하는 삼중수소 열량계의 정밀도는 8~12 시간에 삼중수소 재고량의 ±3% 오차 이내이다. 기존에 삼중수소를 계량하는 방식은 부피가 고정된 계량용기(MT, Metering Tank)를 이용하여 PVT-c 방법으로, 압력(P), 부피(V), 온도(T) 및 조성(c)을 측정하여 이상기체방정식(n=PV/RT)으로 삼중수소 몰수를 계산하는 방식이다. 이 방식은 간단하지만 우라늄용기(UB, Uranium Bed)로부터 온도제어 만으로 공급되는 삼중수소를 그대로 사용하기 때문에 양을 조절하기가 어렵다. 본 연구에서는 Fig. 1과 같이 계량용기에 레이저위치센서와 스테핑모터로 구동되는 금속주름용기(MBR, Metal Bellows Reservoir)를 추가로 연결하여 삼중수소 공급량을 정밀하게 조정할 수 있는 새로운 방법을 개발하였다. MBR 부피는 스테핑모터의 회전수를 조정하여 레일방향으로 총 30 ㎝에 대해 20 ㎛ 정밀도로 제어하며 레이저위치센서로 확인할 수 있다.

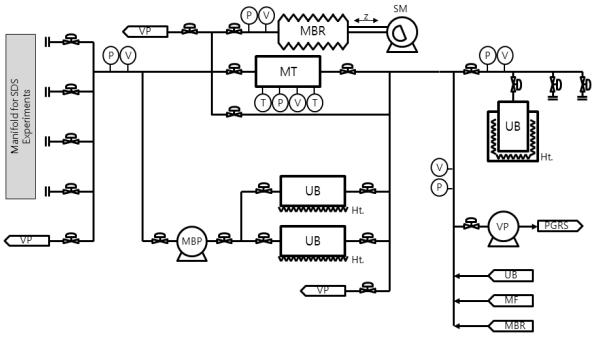


Fig. 1. Tritium supply system with a metal bellows reservoir.

2.3 삼중수소 검증시험설비 설계

ITER SDS 삼중수소 검증시험설비는 한수원중앙연구원 삼중수소 실험실에서 운영 중인 삼중수소 계량분배설비[2]를 활용하여 전용설비와 공용설비로 구분하여 설계하였다. 삼중수소 공급계통(TSS, Tritium Supply System)과 삼중수소 회수계통(TRS, Tritium Recovery System) 및 이들이 설치될 글로브박스(GB, Glovebox)와 공기배기격실(APE, Air Purged Enclosure)은 전용설비로 설계하였다. PGRS (Purge Gas Recombining System), CWS (Cooling Water System), 가스공급시스템은 공용설

비로 설계하였다. TSS의 삼중수소 저장용량은 최대 7.4 PBq로 회분당 1.85 PBq을 취급할 수 있다. 삼중수소 회수계통의 처리용량은 회분당 삼중수소 취급량을 기준으로 설계하였다. 삼중수소 제거율은 1회 통과시 95%이며, TRS는 8시간내 초기 삼중수소의 99% 이상을 제거하여 1 mCi/㎥ 미만으로 낮출 수 있다. Fig. 2는 삼중수소 실험실의 기존 삼중수소계량분배설비와 새로 구축될 삼중수소 검증시험설비의 배치도이다. 공용설비인 PGRS가 중간위쪽에 위치하며 CWS와 가스공급시스템의 연결유로는 건물 외부에서 GB 설치방향으로 배치하였다.

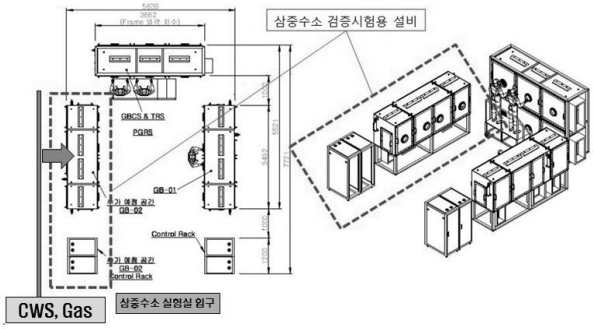


Fig. 2. Installation layout of new glovebox for ITER SDS experiments in the tritium laboratory.

2.4 글로브박스 설계

GB 설계 누설율은 시간당 GB부피의 0.001%이며, I&C 관통부 누설율은 1×10^{-5} ㎤/sec 이하이다. 삼중수소 검증시험설비의 GB는 불활성기체로 질소를 사용한다. 질소는 아르곤과 달리 순환시키며 재사용하는 방식이 아닌 once-through 방식으로 운전한다. 따라서 아르곤을 사용하는 경우처럼 산소와 수분을 제거하기 위한 GBCS (Glovebox Cleanup System)가 필요하지 않다. GB 압력은 질소를 퍼지하여 제어하며 실내 대기압과의 차압은 안전을 고려하여 ±2.5 kPa로 하였다. 질소를 계속 공급하기 때문에 산소 및 수분은 질소순도 수준으로 유지할 수 있다. 질소를 사용할 경우 설계가 단순하고 운전이 용이한 반면, 단점으로 질소가 계통내로 유입되었을 경우 저장재로 사용하고 있는 우라늄이 열화될 수 있다. 삼중수소 농도가 높고 취급량이 많은 TSS와 저장용기 실험장치는 GB에 설치하였다. 반면 삼중수소 농도가 낮고 취급량이 적은 TRS와 GC 등 분석장비는 APE에 설치하였다. GB와 APE의 공간배분은 Fig. 3과 같다.

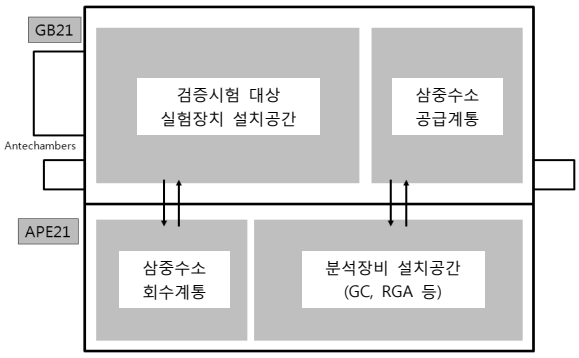


Fig. 3. Arrangement of systems in the glovebox and air purged enclosure.

3. 결론 및 향후계획

본 논문에서는 ITER SDS 핵심구성품의 검증시험을 위해 스테핑모터와 레이저위치센서로 구동되는 삼중수소 정밀주입장치를 개발하고 이를 적용한 삼중수소 검증시험설비를 설계하였다. 삼중수소 검증시험설비는 삼중수소 공급계통 및 회수계통을 전용설비로 하고 한수원중앙연구원에 기 구축된 삼중수소 계량분배설비의 보조계통과 유틸리티를 공용으로 사용하였다. 향후 본 시설이 구축되면 ITER SDS 일부 구성품을 대상으로 삼중수소 검증시험을 수행할 예정이다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부와 산업통상자원부의 국제핵융합실험로 공동개발사업(NRF 2012-000333) 및 국가핵융합연구소의 지원으로 수행되었다.

5. 참고문헌

[1] 송규민, "삼중수소 취급설비 설계 및 운전경험", ITER 삼중수소 연료주기 워크숍, 국가핵융합연구소 (2014).

[2] S. Sohn, "Tritium Assay and Dispensing in TriMARS", *Fus. Sci. Techn.*, 60(3), 1105-1108 (2011).

2015 **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 2015**

www.krs.or.kr

사단 법인 한국방사성폐기물학회
Korean Radioactive Waste Society