

아크 용융에 의한 방사성 금속 폐기물의 용융시 방사성 핵종(Co, Cs, Sr, Ce, U)의 거동 및 용융 특성

민병언, 최왕규, 정종현, 오원진
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지
bymin@kaeri.re.kr

Abstract

Cold test, Hot test를 통해 방사성 금속 폐기물 용융 제염시 오염되는 있는 핵종의 거동 특성을 살펴보았다. SUS 304L과 탄소강 시편에 Co, Cs, Sr을 통한 Cold test와 방사성 동위원소 ^{60}Co , ^{137}Cs tracer의 오염도를 변화시켜 가면서 핵종과 슬래그 사이의 상호작용을 통한 분배특성에 대해 살펴보았다 Cold test 실험 후 채취한 주괴와 슬래그는 전처리를 거친 후 Co는 ICP-AES (IRIS DUO, Thermo elemental Co), Cs과 Sr, Ce은 ICP-MS(X-7, Thermo elemental)를 사용하여 분석하였고 XRD와 SEM 분석을 통해서 각각의 시료에 결정상 구조, 형성된 화합물의 구조와 표면조직을 살펴보았다. ^{60}Co , ^{137}Cs 의 Hot test에서 생산된 슬래그를 채취하여 Canberra사의 HP-Ge 검출기를 사용하여 방사능을 측정하였다. 또한 주괴의 위치에 따라 샘플을 채취하여 주괴내에서 핵종들의 분포 및 균질화 특성을 고찰하고자 하였다. 우라늄 분배특성을 고찰하기 위해 우라늄과 물리 화학적으로 매우 유사한 특성을 가진 Ce과 천연우라늄(Natural Uranium, UO_2 powder)을 사용하여 먼저 cold test를 수행한 후 실제 우라늄 변환시설에서 인출한 우라늄 오염 금속폐기물을 대상으로 다양한 슬래그 조성에 따라 이들 각각에 대해 모의 핵종의 분배 특성 및 거동을 평가하였다.

개 요

금속 폐기물의 감용 및 재활용 기술 중 현재까지 가장 적절한 기술로서 용융 기술이 있다. 유럽을 주축으로 미국과 일본에서 활발히 연구되어져 온 용융 기술은 다른 처분 방법에 비해 부피 감용비가 가장 높다. 또한, 이 기술은 휘발성 핵종이나 금속과 반응성이 적은 핵종을 slag 속에 포집하여 제염하거나, 방사성 핵종들이 주괴에 균일하게 분포하고 금속의 결정 격자속에 고정화시킬 수 있기 때문에 보다 안정화시킬 수 있다는 장점들을 가지고 있다. 원자력 관련 시설에서 운전 및 유지보수, 해체시 발생되는 방사성 금속폐기물의 효율적인 감용 및 재활용기술 개발의 일환으로 실험실 규모의 플라즈마 아크 용융로를 사용하여 스테인레스강 및 탄소강 등의 금속폐기물의 용융 특성 및 금속폐기물에 함유된 오염 핵종들의 용융 시 주괴와 슬래그로의 분배 거동 등 기초 특성에 대한 기초 자료를 확보하기위해 방사성 핵종의 열역학적 특성과 이에 근거한 Surrogate와 슬래그가 선정하여 금속-슬래그 사이의 반응에 의한 분배특성을 파악하였다. 흑연 도가니에 코발트와 세슘의 방사성 핵종으로 오염된 시편을 사용하여 스테인레스강은 500g의 시편을 사용하였고 탄소강은 연구로 원자로에서 인출한 시편중 500g을 사용하여 용융 실험을 수행하였다. 용융된 용융체는 주형에 부어 일정한 규격의 실린더 형태의 주괴를 생성하였으며 MCA를 통해 비방사능을 측정하여 방사성 핵종들의 분배 특성을 고찰하였다.

결과 및 고찰

◇ Stainless steel 분배특성

구분	염기도	주입량 (wt%)	비방사능 (Bq/g)		총방사능 (Bq)		분배율(%)		
			Co	Cs	Co	Cs	Co	Cs	
I	1.493	5	55.9	0.3	27848	144	90	0.6	
S			3.1	172	68	3788	0.2	16	
I		7.5	55.5	0.5	27631	226	90	1.0	
S			2.9	123	99	4310	0.3	19	
I		10	57.8	0.2	28794	111	93	0.5	
S			6.3	195	279	8625	0.9	37	
I		12.5	53.6	0.4	27689	209	90	0.9	
S			2.5	256	146	14743	0.5	63	
Standard			60.7	1.1	30205	546	98	2.3	
초기 비방사능(Bq/g)			62	47					
초기 총 방사능(Bq)			30860	23340					

◇ Carbon steel 분배특성

구분	염기도	비방사능 (Bq/g)		방사능(Bq)		분배율(%)	
		Co	Cs	Co	Cs	Co	Cs
I	0.52	51.5	0.0	24463	0	90	
S		22.1	72.3	1074	3513	4	18
I	0.82	49.0	0.0	24059	0	89	
S		23.9	22.5	1264	1190	5	6
I	1.28	49.2	0.0	24354	0	90	
S		25.6	31.1	1227	1491	5	8
I	표준	53.1	0.0	26391	0	97	
S		-	-	-	-	-	-
Particulate		90.7	2730	3521	105979	11.4	454.1
초기 방사능		27160	19560			1.43	56.8

◇ U 분배특성

슬래그양 (wt%)	UO2 (ppm)	조성(%)				NU분석값 (wt%)	NU 첨가량(g)	NU 회수량(g)
		SiO2	CaO	Al2O3	Other			
10	500	50	30	20		0.26	0.25	0.17
10		40	40	20		0.27	0.25	0.17
10		30	50	20		0.37	0.25	0.19
10		30	54	16		0.37	0.25	0.23
10		10	60	30		0.39	0.25	0.21
10		15	70	15		0.39	0.25	0.20
5	500					0.54	0.25	0.19
7						0.61	0.25	0.26
12		30	54	16		0.43	0.25	0.28
15						0.33	0.25	0.26
10	500	70		30		0.64	0.25	0.37
10		50		30	CaF2 (20)	0.53	0.25	0.27
10		30	40	10	Fe2O3(20)	0.51	0.25	0.19
10		38.1	41.1	14.1	Fe2O3(2.6) MgO(3.8)	0.37	0.25	0.21
10		80	4	2	B2O3(14)	0.26	0.25	0.10
10		60		20	Fe2O3(20)	0.13	0.25	0.07
10			25	25	CaF2 (50)	0.42	0.25	0.22

결론

각 실험마다 2-3개의 주괴 샘플을 채취하여 Co의 균질화 정도를 분석한 결과 주괴 내에 균질하게 분포됨을 확인할 수 있었다. 스테인레스강과 탄소강의 Co 분배특성은 유사한 결과를 보였으며, Cs의 경우 슬래그에 산화물질인 Fe₂O₃의, CaF₂ 강한 산화 특성을 지닌 플럭스 추가시 슬래그상으로 분배되는 경향을 더 큼을 알 수 있었다. 방사성 물질로 오염된 금속성 폐기물의 용융처리 시 휘발성 핵종(Cs)이나 금속과 반응하지 않는 핵종들(U)은 슬래그 층에서 슬래그의 구성성분과 화학적 결합을 통하여 슬래그 층에 안정화되며, 슬래그 층으로의 이동이 어려운 방사성 핵종(Co)은 금속 모재 상에 균일하게 회석되어 결과적으로 금속 모재(주괴)의 비방사능이 감소됨으로써 제염된다. 용융 처리에 의해 방사성 핵종이 농축된 슬래그는 폐기물로 처분하고, 방사성 핵종이 상당부분 제거되었거나 금속 내에 균일하게 분포되어 비방사능이 낮아진 금속 주괴는 방출시키거나 재활용할 수 있음을 확인할 수 있었다.