

세라믹계 염폐기물 고화체의 중심부 온도 예측

김정국, 김광락, 김환영, 안도희, 김인태, 이한수
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지
jungkim@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후 핵연료 파이로프로세싱은 산화물 핵연료를 금속으로 전환하는 전해환원공정과 환원된 금속체에서 우라늄과 초우라늄 원소(TRU) 및 희토류 원소(RE)를 회수하는 전해정련 및 제련 공정 등으로 구성되어 있다. 전해환원공정에서는 LiCl을 전해질로 사용하여 금속계 산화물은 환원하는 반면, 주로 I, II족에 해당하는 핵분열성 원소는 염화물 형태로 변하여 전해질 내에 잔류하게 되고, LiCl 용융염은 수차례의 회분식 공정에서 재사용되면서 점차 농축되어 공정의 안정성을 위협하게 된다.

농축되는 원소중 Cs와 Sr은 대표적인 열발생 원소 (heat-generation element)로 알려져 있는데, 특히 Cs-137과 Sr-90은 둘 다 반감기가 약 30년에 이르는 방사성 핵종으로 열발생 측면에서도 그 관리가 중요한 핵종이다. 이들 핵종을 함유하는 LiCl 염폐기물은 함유된 주성분인 Cl을 매질에 고정화하거나 구성성분의 하나로 만드는 중간단계를 거쳐야 건전한 고화체가 제조된다. 한국 원자력연구원에서는 용융 LiCl염내의 Cs과 Sr을 농축,분리하여 LiCl은 다시 공정으로 재순환시켜 활용함으로써 염폐기물 발생량을 줄이는 기술과 함께 보다 큰 감용효과를 가진 SAP (Silicate-Alumina-Phosphate) 복합물을 이용하는 세라믹 고화체로 제조기술이 연구되고 있다.

본 연구에서는 기준 사용후 핵연료 (U-235 농축도 4.5wt%, 연소도 55,000 MWd/MtU, 10년 냉각)에 대해 ORIGEN 코드를 이용하여 얻은 물질수지를 바탕으로 세부 단위공정에서의 물질 흐름도를 가정하여 염폐기물 발생량 및 핵종 농도를 산정한 결과를 이용하였다. 전해환원공정에서 발생하는 LiCl염폐기물을 SAP 고화체 제조기술로 세라믹계 고화체를 제조하여 처분할 경우 고화체 중심부의 최대온도를 예측하고자 하였다. 이러한 예측에 있어 LiCl 염폐기물내의 Cs와 Sr만 고려한 경우와 이들 방사성 핵종의 붕괴까지 고려한 경우 고화체의 최대 중심온도를 비교하였다.

2. 본론

2.1 고화체 중심부 온도 예측

사용후 핵연료에 존재하는 방사성 핵종은 3개의 범주로 나눌 수 있는데, 경원소 (light elements), 악티늄족 원소, 그리고 핵분열성 원소이다. 경원소는 격자판이나 말단 이음쇠 같은 핵연료 피복이나 구조물에서 기인한 동위원소이며, 악티늄족 원소는 핵연료 물질인 우라늄이나 플루토늄에서 기인하고, 핵분열성 원소는 핵분열 반응의 결과물이다. 수 많은 방사성 핵종중 PWR형 사용후 핵연료의 붕괴와 관련하여 경원소 1종, 악티늄 원소 9종, 그리고 핵분열성 원소 12종이 주요 붕괴열 생성물질로 고려되고 있으며, 이들 22개 핵종이 초기 10,000년 동안 전체 붕괴열의 99% 이상을 차지한다[1].

사용후 핵연료의 주요 핵분열성 열발생 원소인 Cs 및 Sr과 관련된 방사성 핵종을 그 특성과 함께 표 1에 나타내었다. 우라늄의 핵분열로 직접 생성되는 Sr-90과 Cs-137은 베타붕괴를 하며 각각 Y-90과 Ba-137m로 변하여 모 핵종에 비해 훨씬 더 많은 열을 발생하게 된다.

제조되는 세라믹 고화체의 중심부 온도 예측은 기준 사용후 핵연료를 탈피복한 후 고온 분말화 공정을 거치면서 대부분의 Cs가 휘발하는 경우와 그냥 단순 분말화 공정을 거쳐 Cs가 그대로 남는 경우 2가지에 대해 수행하였다. 분말화에 이어 전해환원 공정에서 전해질로 사용하는 LiCl 용융염내에 존재하는 Cs, Sr, 그리고 Cs의 딸 핵종인 Ba가 현재 연구 중인 핵종회수기술로 약 90%정도 농축되어 회수되고 이를 LiCl염폐기물:SAP:Glass = 1:2:1이 되도록 혼합, 고온세라믹화하여 고화체로 제조되는 것을 가정하였다. 제조된 고화체는 총 길이가 3m에 이르는 스테인레스 처분용기에 적재되어 주위 온도가 최고 100°C로 유지되는 것을 가정하여 계산하였으며, 고화체에 포함된 Cs 및 Sr 핵종은 시간에 따른 붕괴가 계속 진행되는 것으로 보았다.

2.2 결과 및 고찰

그림 1은 LiCl 염폐기물에 포함된 Cs와 Sr만 고려한 경우(점선)와 여기에 Cs의 딸 핵종인 Ba가 포함된 이들 초기 핵종에 대해 붕괴 및 딸핵종의 생성을 고려한 경우(실선)의 열방출율(Heat emission rate, W/kg)을 보였다.

표 1. 주요 핵분열성 열발생 핵종의 붕괴 특성[2]

| Nuclide | Half life | Decay mode | Decay energy, MeV |
|---------|-----------|------------|-------------------|
| Sr-90 | 28.78 y | β^- | 0.546 (100%) |
| Y-90 | 64.10 h | β^- | 2.282 (100%) |
| Cs-134 | 2.065 y | β^- | 0.0888 (27.3%) |
| | | | 0.415 (2.5%) |
| | | | 0.658 (70.2%) |
| Cs-137 | 30.07 y | β^- | 0.514 (94.4%) |
| | | | 1.176 (5.6%) |
| Ba-137m | 2.552 m | γ | 0.662 (90.1%) |
| | | | 0.0332 (5.9%) |
| | | | 0.0364 (1.4%) |

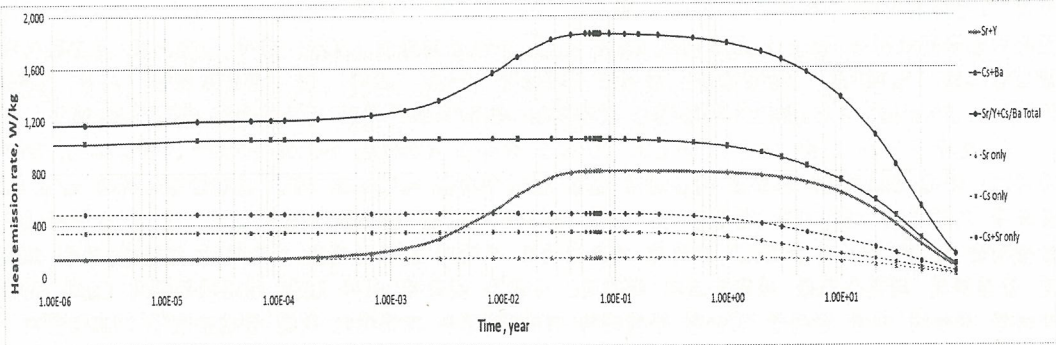
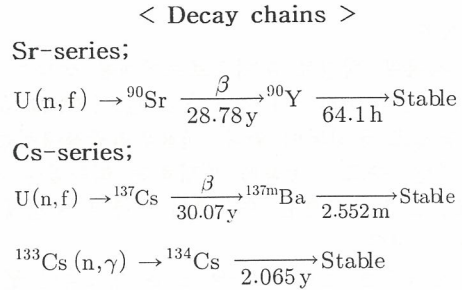


그림 1. LiCl 염폐기물 함유 I,II족 방사성 핵종의 시간에 따른 열방출을 비교 (점선:붕괴 미고려, 실선:붕괴고려)

그림에서 보듯이 염폐기물내에 포함된 Cs, Sr만 고려할 경우 열방출율은 고화체를 제조한 시점(시간, t=0)에 최대값인 485 W/kg을 보이고 그 이후로 계속 감소하는 반면, 이들 핵종의 붕괴를 고려한 경우에는 고화체가 제조된 시점(t=0)에 1,163 W/kg이다가 25일이 경과할 때까지 계속 증가하여 최대값에 이르는데 이 때의 열발생율은 1,854 W/kg이며, 이는 Cs, Sr만 고려한 경우에 비해 약 3.84배이다. 이러한 결과는 향후 이들 핵종을 함유한 고화체를 제조한 후 임시저장, 이송 및 처분의 관리에 있어 고화체 자체의 온도 요건 측면 뿐 아니라 처분장 요건을 준수하기 위해 필요한 제반 설비 등의 설계에 있어 붕괴로 인한 딸 핵종, 특히 Y-90와 Ba-137m 핵종의 높은 붕괴열을 절대적으로 고려하여야 함을 의미한다.

3. 결론

사용후 핵연료 파이로프로세싱 단계에서 발생하는 LiCl염폐기물에 함유된 Cs, Sr과 같은 열발생 핵종을 포함하는 고화체를 제조할 경우, 이들 핵종의 방사성 붕괴로 생성되는 Y-90 및 Ba-137m까지 고려하여야 하며, 이 경우 최대 약 3.8배까지 이르는 높은 붕괴열을 발생하게 된다.

참고문헌

[1] Office of Civilian Radioactive Waste Management, "Decay Heat of Major Radionuclides for PWR Spent Fuels to 10,000 Years", CAL-MGR-NU-000008 REV 00 (2001)
 [2] 일본 Isotope 협회, "Isotopr Handbook", 개정 9판, 사단법인 일본Isotope협회 (1996).