

사용 후 연료 저장랙 내 방사성 핵종 정량을 위한 전처리 방법

이승식, 윤여민*, 표형열, 안홍주, 손세철
 한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지
 *(주)액트, 대전광역시 대덕구 신일동 1588-5

dl95082041@empal.com

1. 서론

중저준위 방사성폐기물인 사용후연료 저장랙은 가압경수로 원전의 사용후연료를 장기 보관하기 위해 저장조 내 설치된 구조물로서, 사용후연료 조사 또는 저장조 내 방사성핵종 흡착으로 저장랙 표면 내 일부 방사성핵종이 존재할 것으로 추정되고 있다. 보통 시료전처리는 방사성폐기물 유형 특성에 따라 다양한 용액화 과정이 필요하지만, 금속시료에 대한 시료 용액화는 용액 내 다양한 금속원소 등의 복잡한 매트릭스 영향에 따라 핵종분리의 어려움이 예상되므로 혼합산을 이용한 표면침출 방법이 가장 이상적일 것으로 확인되고 있다. 표면 침출법은 일반적으로 화학적 방법 또는 이와 병행한 물리적 방법으로 금속 표면에 존재하는 알파 및 베타 방출 방사성핵종을 정량적으로 용액화하는 방법으로 분석하기 위해 이용되는 방법이다.

본 연구에서는 발전소별 조밀랙 교체 작업을 통해 발생된 사용후연료 저장랙을 일부 채취하였고, 방사화학실험실에서 저장랙의 시료전처리 조건을 검토하였다. 이를 위해 시료전처리 전후 저장랙 표면 변화 및 감마핵종 분포를 확인하였다. 또한 사전에 저장랙의 비중을 조사하고 금속재질을 대략적인 유추할 수 있었다. 이와 같은 결과를 바탕으로 체계적인 핵종분리를 수행할 수 있는 시료전처리 방법을 확립하였다.

2. 실험 및 결과

가. 사용후연료 저장랙 성분 분석

실험의 성분 분석을 하기 위해서 발전소에서 인수한 방사성 폐기물 시료 중 사용후연료 저장랙을 취하여 혼합산을 사용한 시료 표면 성분을 EPMA(Electron Probe Micro Analysis)로 분석하였다. EPMA를 통한 성분측정결과 사용후연료 저장랙의 성분은 Fe 75.89 %, Cr 10.02 %, Al 8.22 %, Ni 2.73 % 등으로 주성분은 Stainless Steel 304 계통으로 파악되었으며, Table 1 및 Fig 1과 같다.

Table. 1 사용후연료 저장랙의 EPMA를 이용한 성분분석결과

	Base-surface	Rust-surface
Fe	71.69	75.89
Cr	18.10	10.02
Ni	5.94	2.73
Al	1.90	8.22
Mn	1.40	0.71
Si	0.97	0.82
Cl	-	0.82
Co	-	0.78

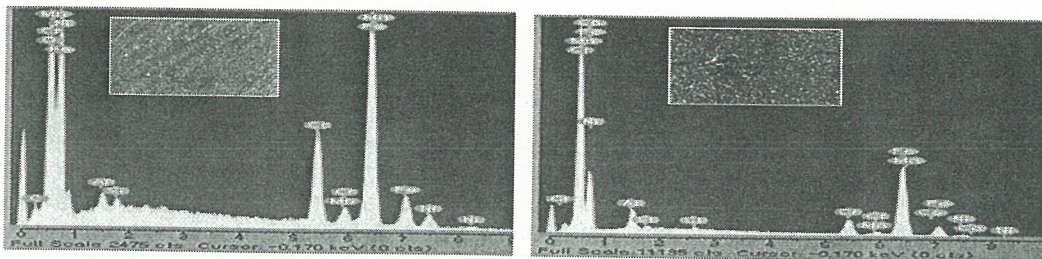


Fig. 1 사용후연료 저장랙의 EPMA 스펙트럼

나. 사용후연료 저장랙 시료전처리방법 검토

사용후연료 저장랙의 경우, 그 특성상 물질 내부 보다는 표면에 방사성핵종이 분포할 것으로 판단되었고, 미량 핵종분석을 위해서는 시료의 표면만을 용해하는 전처리 방법이 필요하였다. 일반적으로 방사성물질에 대한 시료전처리 방법은 밀폐 형 극초단파 산 분해 장치(Closed Vessel Microwave Digestion System)를 이용하는 방법이 적용되지만, 시료의 표면 용출 방법으로는 혼합산을 사용한 표면침출법이 적합할 것으로 판단되었다. 시료전처리 방법으로 표면 침출법의 적합성을 확인하기 위하여 시료전처리 전후 감마핵종 거동평가를 수행하였다.

시료 전처리 양은 MDA을 만족시키기 위해 10 g 정도의 양을 사용하였다. 우선 원전에서 발생된 사용후연료 저장랙 시료를 10 g 정도를 취하였다. 그리고 감마방사능을 측정된 다음, 1차 혼합산 용액 (25 mL 4 M HCl + 25 mL 10 M HNO₃)에 넣고 열판 위에서 10분간 가열하여 표면의 오염물질들을 제거한 후 감마방사능 감소정도를 확인하였다. 다시 1차 감마방사능 측정시료를 2차 혼합산 용액(25 mL 4 M HCl + 25 mL 10 M HNO₃)에 넣고 열판 위에서 10분간 가열한 후 감마방사능을 측정하였다. 그 결과 Table 2 에서와 같이 ⁶⁰Co, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs, ⁵⁹Fe, ⁹⁴Nb, ¹²⁵Sb 등의 감마방사능 측정값을 알 수 있었으며, Table 2와 같다.

Fig 2에서 혼합산 처리 전 시료의 표면은 누런 빛깔의 부식된 형태를 보였으나 1차 혼합산 처리 후에는 부식된 형태는 없어지고 은빛의 Stainless Steel의 형태를 보였다. 2차 혼산 처리 후에는 1차 혼합산 처리 때와 같은 은빛의 Stainless steel의 형태를 보였다.

Table. 2 사용후연료 저장랙 산 처리 전/후 감마 측정 결과 (단위 : Bq/g)

	혼산 처리 전	1차 혼산 처리 후	2차 혼산 처리 후
⁶⁰ Co	5.9512 E+02	1.6374 E+01	1.3772 E+01
¹³⁴ Cs	3.3482 E+01	-	-
¹³⁷ Cs	6.7820 E+01	-	-
⁵⁹ Fe	1.5710 E+01	-	-
⁹⁴ Nb	2.4545 E+01	-	-
¹²⁵ Sb	1.5044 E+03	-	-

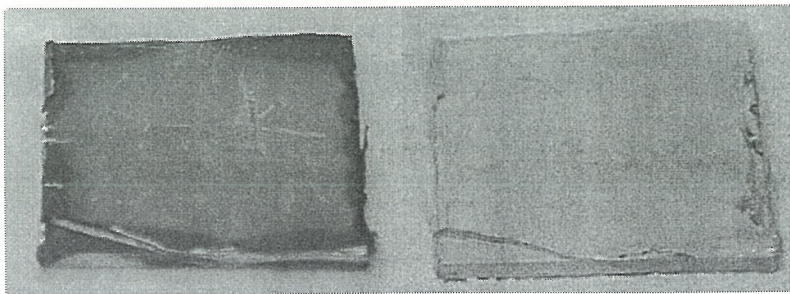


Fig. 2 사용후연료 저장랙 산 처리 전 / 후

3. 결론

시료전처리 후 사용후연료 저장랙의 감마방사능 측정 결과, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs, ⁵⁹Fe, ⁹⁴Nb, ¹²⁵Sb 등의 방사성핵종은 최소검출하한 이하의 값을 갖는 것으로 확인되었다. 단지 ⁶⁰Co 핵종만이 1차 혼합산 처리 후 저장랙 표면에 약 3% 정도 잔존하는 것으로 확인 되었지만, 2차 혼합산 처리 후에는 ⁶⁰Co이 최소검출하한 이하로 검출되었다. 이와 같은 결과로 사용후연료 저장랙과 같은 금속류 시료들은 혼합산 용액(25 mL 4 M HCl + 25 mL 10 M HNO₃) 조건에서 시료 전처리 방법을 수행이 검출하기 어려운 알파 및 베타 방출 방사성 핵종 정량 방법에 적합할 것으로 판단되었다.