

핵융합로 발생 금속폐기물 내 삼중수소 분석기술

안홍주, 박종호, 송병철, 연제원, 손세철, 지광용, 송규석
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
ahioo@kaeri.re.kr

1. 서론

ITER는 핵융합의 과학적 및 기술적 개발 가능성을 모색하고자 유럽연합, 중국, 인도, 일본, 러시아, 미국 및 한국이 주축을 이룬 국제 공동연구개발 기구로써, 2018년 첫 시험가동을 목적으로 관련연구가 활발하게 수행되고 있다. 또한 ITER는 핵융합로 가동을 위한 기술개발뿐만 아니라 향후 발생될 폐기물 처리/처분 연구도 병행하여 추진 중에 있으며, 이에 따라 ITER는 핵융합 가동시 설비에 잔유물로 존재할 것으로 예측되는 H-3 핵종 정량기술에 대한 화학적 분석방법 또는 비파괴적 방법을 현재 모색 중에 있다. ITER에서 발생 예정인 Type B 금속 방사성폐기물은 Divertor Cassette Body, Blank Modules, TBM Port plug, Torus Cryopump 등이며, 삼중수소는 10^7 Bq/g의 농도가 표면으로부터 1 mm 이내에 분포하는 것으로 알려져 있다. 이들 Type B 금속 폐기물은 핵융합로 유지보수를 위하여 일정기간 간격으로 주기적으로 발생되며, 발생된 폐기물은 hot cell facility (HCF) 시설로 이동하여 일정크기로 절단후 향후 처분장으로 이송될 예정이다.

금속폐기물 내 삼중수소 분석은 파괴적 또는 비파괴적 방법들이 소개되고 있다. 비파괴적 방법은 주로 photo luminescence 기술을 이용한 것으로 radiography(RG), β -ray induced X-ray spectroscopy (BIXS) 및 radioluminography (RLG) 등이 소개되고 있으며, 파괴적 방법으로는 산용액에서 침출 및 용해 등을 통해 분석하는 electrochemical layer-by-layer etching (ELLE), Heating method (HF), Chemical acid dissolution (CAD) 등의 방법이 소개되고 있다. 비파괴적 방법은 화학적 전처리 없이 직접 측정하는 방식으로, 측정방법은 간단하지만, 금속표면 내 존재하는 총 방사능량이 측정되므로 삼중수소를 정량하기는 어렵다. 파괴적 방법은 삼중수소의 화학적 분리 및 포집 기술을 통하여 정량을 수행하므로 방법론적으로 분석이 까다로울 수 있다.

본 연구는 핵융합로에서 주원료로 이용될 삼중수소가 금속과 상호작용에 의하여 발생될 type B 금속폐기물에 대해 방사화학적 파괴분석방법을 적용하여 삼중수소 정량 가능성을 확인하였다. 특히, CAD 방법 및 HF 방법의 장단점을 실험적으로 비교 검토하여 최적의 분석방법을 도출하였다.

2. 실험 및 결과

핵융합로 발생 금속 폐기물 내 삼중수소의 최적 분석방법을 확립하기 위하여 CAD 및 HF 방법을 비교 검토하였다. CAD 방법은 증류장치에서 HTO 표준물을 이용하여 회수율 특성을 평가하였다. 방사성 표준물 삼중수소의 회수방법은 반응기인 3구 플라스크에 표준물 및 산화제(5 g $K_2S_2O_8$ + 0.5 g $AgNO_3$)를 첨가하고 3 N H_2SO_4 20 mL를 천천히 적가하였으며, (96 ~ 98) °C에서 3시간 반응시켰다. 플라스크 내 용액은 증류를 통하여 funnel pressure equalizing에 포집하였고, 이중 5 mL 분취하여 14 mL의 ultima Gold XR cocktail(Packard)과 혼합후 LSC로 계측하였다. LSC 계측을 위한 삼중수소에 대한 quench correction 곡선은 quench level에 따른 계측 효율을 구하고자 73,059 Bq의 삼중수소 표준물(spec-check, Packard)을 vial에 취하였으며, ultima Gold XR 14 mL을 각각 10 mL씩 vial에 첨가하였다. Quenching agent로는 nitromethane을 사용하였다. 삼중수소는 (0 ~ 100) μ L의 범위에 순차적으로 각 vial에 취하였다. Quench parameter로는 ^{133}Ba 의 감마 방사능을 external quench standard monitoring 선원으로 사용하는 quench indicator를 tSIE/AEC (transformed spectral index of external standard)의 mode로 고정하여 quenching correction 곡선을 작성하였다. 일반적으로 nitromethane의 첨가량이 증가하면 quench level이 증가하기 때문에 계측 효율은 낮아진다. 또한 tSIE에 따라 계측효율은 증가함을 보여주었고, nitromethane이 전혀 첨가되지 않은 quench set의 삼중수소는 43.0 %로 비교적 낮은 계측효율을 보여주었다.

HF방법은 환원 전기로에서 일정량의 질소를 충전하여 800 °C에서 3시간 반응시켰다. 삼중수소는 증류장치를 통해 포집되었고, CAD와 같은 방법으로 LSC로 삼중수소 농도를 계측하였다.

삼중수소 표준물을 대상으로 비교한 결과는 Table 1에 나타내었다. Table 1에서 10 Bq 미만의 표준

물을 이용하여 회수율을 측정할 경우, CAD 및 HF 방법에서 그 회수율은 90 % 미만의 비교적 낮은 결과를 나타내었는데, 이는 장치 내부에 일부 흡착되어 전량 회수되지 못한 이유로 해석될 수 있다. 10 Bq의 표준물을 이용하였을 경우, CAD 및 HF 방법 모두 90 %의 높은 회수율을 보였지만, CAD 방법이 HF 방법보다 약 (7 ~ 8)% 높은 회수율을 보였다. 실제 원자력발전소에서 발생된 중저준위 방사성폐기물 중 고방사능 시료에 대해 상기 방법을 적용하였을 때, CAD 방법은 표준물과 동일한 회수율 결과를 얻었다. 그러나, HF 방법은 수천 %의 회수율을 얻었고, 상기 원인을 확인하고자 삼중수소 회수용액을 HPGe 감마분광기로 측정할 결과 다수의 휘발성 감마방출 핵종이 검출되었다. 따라서 Type B와 같이 높은 방사능을 보이는 폐기물은 시료전처리 등의 방법이 선행되는 CAD 방법이 적합한 것으로 사료된다.

Table 1. Recovery test of tritium STD using CAD and HF method

Before treatment (Bq)	After treatment			
	CAD method		HF method	
	Activity (Bq)	Recovery (%)	Activity (Bq)	Recovery (%)
1.22	0.96	78.7	0.77	63.1
2.44	2.03	83.2	1.96	80.3
12.19	11.96	98.1	-	-
36.52	37.67	103.1	-	-
435	429	98.6	395	90.8

3. 결론

본 연구에서는 Type B 금속 방사성폐기물에 대해 삼중수소 정량법을 개발하고자 파괴분석방법인 CAD 방법과 HF 방법을 표준물 및 원전 중저준위 방사성폐기물을 바탕으로 비교 평가하였다. 표준물을 이용한 비교평가 결과 회수율은 동등한 수준을 보였지만, 실제 폐기물을 적용하였을 경우, CAD 방법은 순수 삼중수소만 분리하는 반면, HF 방법은 휘발성 감마방출핵종이 혼합된 삼중수소가 분리되었다.