

SUS 재질의 중수드럼 내 침투된 ^3H 의 이론적 평가

강 덕 원 · 홍 성 준 · 김 호 철 · 이 건 화 · 이 봉 도

하나검사기술(주)

E-mail: world2is@naver.com

중심어 : 중수드럼, 삼중수소, 열분해, 촉매산화, 금속폐기물

서 론

중수로 원자력발전소는 경수로 원전과는 달리 계통의 운전 특성상 중수를 사용하고 있으며 사용한 대부분의 중수는 중수회수과정을 거쳐 계통으로 재 사용되나 일부 오염된 중수는 SUS 재질의 드럼이나 저장 탱크에 장기간 보관했다가 처리한다. 수소는 침투력이 좋아 금속재질의 용기나 탱크에 장기 보관시 미량이지만 용기의 재질내로 침투하게 된다. 문헌상에 의하면 136psia 이상 압력의 H_2, D_2 및 T_2 에 금속이 노출되면 수소원자의 침투에 의한 수소취성(hydrogen embrittlement)이 발생되어 금속의 건전성에 악영향을 주지만, 상온 및 중·저 압력에 노출된 금속의 경우는 수소 취성에 의한 영향이 없고 더욱이 SS-304, 316 재질은 이러한 취성에 가장 강한 재질로 보고되고 있다. 특히, 스테인레스 재질 표면에 형성된 산화막은 산소 존재시 쉽게 형성되며 이에 의해 수소의 금속 내부로의 침투(permeation)는 매우 낮게 진행되는 것으로 보고된바 있다. 용액상(중수)에서 ^3H 는 용존상태인 HTO나 HT형태로 존재할 수 있으나 분자형태인 HT의 형태로는 매우 적은 비율로 존재하는 것으로 알려져 있다. 본 연구에서는 이러한 오염된 폐액을 용기 내 장기 보관과정에서 재질내로 침투된 ^3H Inventory를 하나검사기술(주)에서 수행한 2009년도 월성1호기 자체처분 용역 수행을 통한 경험을 바탕으로 평가하였으며 향후 자체처분 할 경우를 대비할 목적으로 어느 정도 오염되었는지 이론적인 평가를 시도하였다. 중수드럼 및 탱크 내에 함유되어 있는 ^3H 에 대한 이론적 계산 결과, ^3H 농도 총량은 30 ~ 40 Bq/g로 규제해제 농도 이하로 평가되었다.

오염현황 및 ^3H 의 제염법

여러 문헌들을 살펴보면, 삼중수소수(Tritiated water)나 낮은 분압의 T_2 가스에 폭로된 스테인레스 재질의 부품과 탱크에 있어서, 대부분의 ^3H 는 재질표면의 산화막(oxide film)에 존재하며, 산화막에 결합되어 있는 ^3H 량 또한, 폭로조건에 따라 다양하게 존재하는 것으로 보고되고 있다. 특히, 스테인레스 재질 표면에 생성되는 산화막은 산소에 의해 쉽게 형성되는 것으로 알려져 있다. 평가에 사용되었던 폐중수드럼 및 중수탱크는 SUS-316재질이었다.

^3H 에 오염된 스테인레스 제품의 효과적인 제염방법으로, 일반 상온의 포화수증기를 10일간 통과할 경우 90%의 ^3H 제거효율, 20일 통과시 99%의 ^3H 가 제거되는 습식 탈기(Wet outgassing)법과 아르곤가스나 5%-수소/아르곤 혼합가스를 순환하면서 800℃로 가열해 약 10^4 의 DF 값을 얻을 수 있는 고온가열법이 있다. 먼저 금속의 표면 오염 제거를 위해 다음과 같은 기술을 적용하여 중수드럼/탱크의 ^3H 농도를 BKG 수준으로 제거하였다.

※ 고압수를 이용한 세척 : 200 bar 이상의 고압수로 1차 세척해 약하게 형성되어 있는 산화막 제거.

※ 산성 용액 침수 : 강력한 산화력을 가진 산성용액 이용 금속 표면에 존재하는 산화막 제거.

※ Plasma 가열 : 산화막이 제거된 모체에 고온 가열을 통한 ^3H 최종 제거.

^3H 의 중수드럼 및 탱크 내의 인벤토리 평가

1. 중수드럼 및 중수탱크 폐기물 생성 특징

○ 중수드럼 : 주로 관리구역 대기 중 중수증기를

응축하여 회수할 때 응축수를 임시 저장하는 역할 후, 곧바로 중수세정계통으로 이송시켜 주는 중간 저장의 용도로 활용되었던 드럼임.

○ 중수탱크 : '중수증기회수계통'의 탱크 3개를 제염한 것으로 공기와의 접촉에 의해 생성된 것으로 여겨지는 탱크 상단부는 수소 오염된 공기의 접촉에 의한 것으로 양 또한 극미량일 것으로 판단됨.

2. 중수드럼탱크에 접촉한 HT_{gas} 농도 평가

○ 중수 내 삼중수소 농도는 최종안전성분석보고서(FSAR) 제11장에 의거한 추정 값인 1.8Ci/kg 임.

○ 대상 중수드럼 및 중수탱크는 냉각재계통 저등급 중수를 취급했던 것으로 보관인 중수응축액의 중수농도는 0.4%~5%이며 중수응축수 중 금속재질로 확산되어 침투될 수 있는 삼중수소의 형태는 HT_{gas} 임.

○ 중수응축액의 삼중수소 농도가 모두 중수에 의해 기인된 것이라고 가정하고, 발전소 외부로 배출되는 HT_{gas}의 비율과 중수 응축수내에 존재하는 HT*의 비율이 같다고 가정할 때, 중수드럼 및 중수탱크에 저장된 중수응축수 중 HT_{gas} 농도는 3.6×10^{-5} Ci_{HT}/kg 로 평가됨.

HT_{gas} 농도(Ci/kg) = 1.8Ci/kg × 2%(중수농도 : 보수적 농도 적용) × 0.1%(삼중수소 중 HT_{gas} 비율 : 보수적 비율 적용) = 3.6×10^{-5} Ci_{HT}/kg

3. 탱크에 보관된 중수응축수 저장기간 평가

○ 중수드럼은 1997년 중수 구입시 중수 사용후 공드럼으로 원전 현장에서 활용되었으며 계획예방정비시 주로 사용하였음. 이에, 중수탱크의 운영기간을 운전방법, 자체처분 부위(탱크상부) 등을 고려해, 25년 운전기간의 10%인 2.5년으로 하였고, 중수드럼은 97년 이후 계획예방정비 총 기간인 17개월(1.4년)로 하였음.

4. 탱크에 함유된 이론적 ³H의 방사능량 평가

○ 중수탱크의 운영기간을 운전방법, 자체처분 부위(탱크상부) 등을 고려, 25년 운전기간의 10%인 2.5년으로 하였고, 중수드럼은 97년 이후 계획예방정비 총 기간인 17개월(1.4년)로 산정하였음.

5. 탱크내 이론적 ³H의 방사능량 평가 및 계산

○ 중수탱크는 중수응축수와 직접 접촉이 없어 삼중수소가 모재에 침투할 확률이 낮고 중수드럼의 경우 O/H 기간을 제외한 대부분 공드럼으로 보관되어 있

음을 고려해 200L용량의 10%인 20L가 1.4년 동안 중수응축수와 직접 접촉했다고 가정할 때, 전체 NET 안에 존재하는 삼중수소의 방사능(Ci) 총량은, HT_{gas}_NET(Ci) = $(3.6 \times 10^{-5} \text{Ci}_{\text{HT}}/\text{kg}) \times 20\text{L} \times 1\text{kg/L}$ (중수응축수의 비중) = $7.2 \times 10^{-4} \text{Ci}$ 으로 계산됨.

가. 중수드럼 : 1.4년 경과 시 중수드럼 내 이론적 3H 방사능 평가

$7.40 \times 10^{-13} \text{molT2/cm}^2 = 4.29 \times 10^{-8} \text{CiT2/cm}^2 \times 1/0.5\text{cm}$ (두께) $\times 1/7.9$ (SUS316비중) $\times 3.7 \times 10^{10} \text{Bq/g/Ci} = 3.07 \times 10^2 \text{Bq/g}$,

산화막에 존재하는 ³H의 비율을 90%로 가정시, 이론적인 침투 ³H 값은, $3.07 \times 10^2 \text{Bq/g} \times 10\% = 3.07 \times 10 \text{Bq/g}$ 임

나. 중수탱크 : 2.5년 경과 시 중수드럼 내 이론적 ³H 방사능 평가

$5.65 \times 10^{-13} \text{molT2/cm}^2 = 3.28 \times 10^{-8} \text{CiT2/cm}^2 \times 1/0.5\text{cm}$ (두께) $\times 1/7.9$ (SUS316비중) $\times 3.7 \times 10^{10} \text{Bq/g/Ci} = 4.02 \times 10^2 \text{Bq/g}$

산화막에 존재하는 ³H의 비율을 90%로 가정시의 이론적인 침투 ³H 값은 $4.02 \times 10^2 \text{Bq/g} \times 10\% = 4.02 \times 10 \text{Bq/g}$ 임.

결과 및 고찰

중수드럼 및 중수탱크에 존재하는 ³H의 총량을 이론적으로 계산한 결과, 300 ~ 400 Bq/g로 평가되었음. 이는 대부분의 재질 표면의 산화막에 존재하는 90% 이상의 ³H가 포함된 값임. 원전에서 발생된 폐중수 저장탱크 및 드럼에 대한 자체처분 기준을 만족시키기 위해 1차적으로 고압수 세척과 산성용액 침수를 수행하였고, 2차적으로 고압수 세척 및 Plasma 가열법을 적용하였으며 제염 후 드럼표면상에 남아있던 산화막 시료를 Sample OxidizerTM를 이용해 분석하여 검증한 결과, BKG 수준으로 평가되었음.

참고 문헌

1. ASET, "Decontaminating and melt recycling tritium contaminated stainless steel(U)", WSRD-TR-0160, (1995)
2. MASAYASU SAGISAKI, HIROTAKA FURUSA, et al., "Tritium solubility in SUS-316 stainless steel", J. of Nucl. Materials, 120, 36, (1984)