

## 연구로 해체시 발생하는 중성자 조사 흑연폐기물 처리방안 설정을 위한 특성평가

이동규, 정경환, 오원진, 박진호, 이근우  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

연구로 1, 2호기 해체시 많은 양의 중성자 조사된 흑연폐기물이 발생된다. 흑연은 연구로 1호기의 경우 반사체로 2호기의 경우 감속재로 사용되었다. 흑연폐기물은 물리적, 화학적 특성 뿐만 아니라 방사성기체(H-3, C-14 등)의 존재로 인해 다른 해체폐기물과 상이한 특성을 가지고 있기 때문에 별도의 처리방안 필요하다. 중성자 조사된 흑연폐기물의 처리방안으로 저장관리와 감용처리 방법이 고려되고 있다. 중성자 조사에 의해 흑연 내부에는 Wigner 에너지로 불리는 에너지가 축적되어 있어 저장관리시 안전성을 확보하기 위해서는 이의 적절한 처리가 필수적이다. 부피를 획기적으로 감소시킬 수 있는 흑연처리 기술로서 소각이나 열분해와 같은 고온 열처리방법들이 고려되고 있다. 본 연구에서는 연구로 1, 2호기 해체시 발생하는 중성자 조사 흑연폐기물의 적절한 처리방안을 설정하기 위하여 연구로 2호기 흑연의 특성을 평가하였다.

연구로 2호기에서 발생한 중성자 조사 흑연의 방사선학적 특성을 평가한 결과 감마선 방출핵종으로는 Co-60, Ba-133, Cs-134, Eu-152, Eu-154 등이 검출되었으며, 베타선 방출핵종으로는 H-3, C-14, Cl-36 등이 검출되었다.

연구로 2호기 흑연시료의 열용량과 Wigner 에너지 총량을 측정하기 위해 노심과 떨어진 거리(위치)에 따라 중성자의 조사량에 차이가 나는 흑연 시료를 취하였고, 이 각각의 블록(block) 형태 흑연시료를 분말로 만들어 건조기에서 하루 이상을 건조시켜 사용하였다. 중성자가 조사된 흑연의 열용량 변화를 DSC (DSC Q10, TA Instruments)로 측정하였으며 DSC 운전에 선형 온도상승 방법을 적용하여 25°C/min, 10°C/min 속도 하에 일정한 무게의 시료에서 배출되는 열량변화를 측정하였다. Fig. 1에 나타난 바와 같이 Wigner 에너지 저장량은 중성자 조사정도(Thermal Column 내 위치)에 따라 10 ~ 260 J/g이며, 저장에너지는 가열온도 120 °C에서 방출이 개시되어 200 ~ 250 °C 구간에서 최대로 방출된다. 흑연 시료를 온도에 따라 Wigner 에너지가 배출되는 배출 총량을 추정한 결과 343.2°C까지 약 80%의 Wigner 에너지 배출이 이루어지고 400.6°C까지 약 90%의 Wigner 에너지가 배출되는 것으로 나타났다. 또한 저장관리시 가상 화재사고시 주변 온도의 상승으로 인한 Wigner 에너지 영향을 평가한 결과 Wigner 에너지의 방출에 의해 흑연의 과도한 온도 상승에 의한 열적 산화로 화재의 가능성이 있다. 그러므로 중성자 조사된 흑연폐기물의 안전한 관리를 위해서는 400 °C 이상의 가열냉각 공정을 통해 Wigner 에너지를 제거하여야 한다.

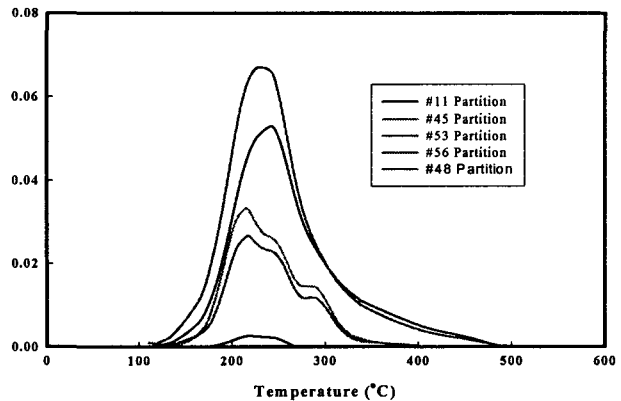


Fig. 1 연구로 2호기 흑연의 Wigner 에너지 방출률

중성자 조사 흑연폐기물의 감용처리 공정 개발을 위하여 연구로 2호기에서 발생한 방사화 흑연의 고온 열분해 특성을 분석하였다. 본 연구의 목적은 소각이나 열분해와 같은 열처리용 노를 설계하는데 필요한 kinetic 자료를 생성하는 것이다. 또한 노의 온도, 승온속도, 기체조건 등과 같은 기본적인 설계 및 운전 변수들은 GC-MS (gas chromatography-mass spectrometer)

system이 장착된 thermo-gravimetric furnace에서 조사되었다. 실험장치는 gas conditioning system, thermo-gravimetric furnace system (SDT-6120, TA instruments) 그리고 gas chromatography (HP-5890II) - mass spectrometer system (HP-5972)으로 구성되어 있다. 106  $\mu\text{m}$  이하로 분말화된 흑연 시료를 thermo-balancer에 장착시킨 후 conditioning gas를 주입하여 반응로를 1000°C로 가열하였다. 분위기 조성을 위해 주입되는 가스 내 산소 비율을 측정하였고, 분위기 조성 가스 내 산소의 비율이 4%, 12%, 21%, 100% 그리고 0.001% 이하가 되도록 설정하여 5가지의 운전분위기를 조성하였다. 각각의 분위기에 대하여 흑연 시료를 1000°C까지 가열하였으며, 3°C/min, 20°C/min 그리고 100°C/min 등과 같이 승온속도를 달리하여 실험을 실시하였다. 반응로의 배기체 조성은 GC-MS System을 이용하여 분석하였다. Fig. 2는 각각의 승온속도에서 주입되는

분위기 조성 가스 내 산소비율에 따른 흑연시료의 열분해 특성을 나타낸 것이다. 분해반응은 승온속도가 3°C/min일 때는 450°C에서, 20°C/min 일 때는 500°C에서, 그리고 100°C/min 일 때는 600°C에서 시작되었다. 흑연시료의 분해율에 대하여 승온속도는 거의 영향을 미치지 않는 반면 산소 농도는 많은 영향을 받는다.

연구로 2호기에서 발생한 흑연폐기물은 산소가 희박할 경우 분해가 거의 이루어지지 않는다. 그러나 산소가 존재하면 산화반응이 매우 효과적으로 일어남을 확인하였다. 산소 농도가 4% 정도의 적은 비율에서도 불완전 연소 생성물이 거의 생성되지 않았다. 그러므로 소각을 이용하여 흑연폐기물의 부피를 효과적으로 감소시킬 수 있다.

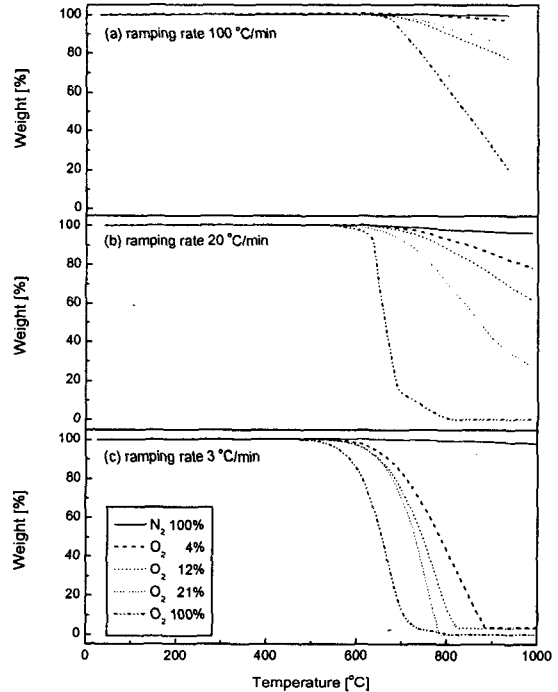


Fig. 2 연구로 2호기 흑연의 가열조건에 따른 부피 감량