

## 폐피복관 처리를 위한 특성 분석

강권호, 양제한, 나상호, 이정원

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

[nghkang@kaeri.re.kr](mailto:nghkang@kaeri.re.kr)

### 1. 서론

사용후핵연료를 원료로서 재활용하기 위해서는 사용후핵연료 집합체의 해체, 연료봉의 절단, 탈피복 등의 일련의 공정을 거쳐 사용후핵연료를 회수하여야 한다. 사용후핵연료 집합체의 해체 과정에서 집합체를 구성하고 있는 구조물, 탈피복 과정에서 폐피복관, 사용후핵연료의 분말화 공정에서 핵분열 기체와 휘발성물질을 포집한 배기체 폐필터가 공정폐기물로 발생한다. 폐피복관은 연소 중 중성자에 의한 방사화 및 핵분열 생성물의 침투에 의한 오염으로 방사성폐기물로 분류된다. 폐피복관은 전체 전처리 공정 폐기물 중 57.2 wt%, 30.8 vol% 로서 폐피복관의 감용처리는 전체 공정폐기물의 감용 및 후핵연료주기 정책 방향 결정에 영향을 준다. 표 1은 사용후핵연료 10 t 처리시 발생하는 폐기물 종류별 발생량을 나타낸 것이다. 폐피복관의 감용 및 안전한 처리를 위해서는 폐피복관의 물리/화학적 특성 및 핵종 특성 분석 등이 필요하다. 본 연구에서는 폐피복관의 물성 특성 및 방사화 특성을 분석하였다.

### 2. 본론

#### 2.1 물리화학적 특성

폐피복관은 주로 Zircaloy-4, HANA, Zirlo의 Zr 합금으로 구성되어 있으며, Zircaloy-4의 경우 Zr 모재에 Sn (1.2-1.7 %), Fe (0.18-0.24 %), Cr (0.07-0.13 %), Ni (최대 0.007%) 등이 주요 구성 성분이다. 이외에 주요 불순물로 Co, Cd, U 등이 포함되어 있다. 밀도는  $6.55 \text{ g/cm}^3$ , Bulk density는  $920\text{-}1100 \text{ kg/m}^3$ , 용융점은  $1800\text{-}1850 \text{ }^\circ\text{C}$  이다. 크기는 직경 9-15 mm, 두께 0.5-0.9 mm 이다. 표 2는 Zircaloy의 조사에 의한 물성 변화를 나타낸 것이다. [1]

#### 2.2 폐피복관의 방사화 특성

폐피복관내의 불순물이 중성자 조사에 의해 방

사화 되어 방사성 동위원소를 발생한다. 표 3은 폐피복관의 방사화에 의한 주요핵종 및 방사능 양을 나타낸 것이다.

표 3에 의하면 약 10년 후에는 방사화에 의한 핵종은 중저준위 처분농도 제한치를 만족하는 것으로 나타났다. 또한 피복관의 불순물로 존재하는 U의 방사화에 따른  $\alpha$ -activity는 32,000 MWd/tU 연소도의 경우 방출시 57.2 nCi/g으로 TRU 폐기물 기준인 100 nCi/g 이하로 중저준위 폐기물에 해당되며, 65,000 MWd/tU 연소도의 경우 방출시 439.7 nCi/g으로 TRU 폐기물에 해당되지만 5년 냉각 후에는 94.16 nCi/g으로 중저준위 폐기물로 감쇠된다. 그러나 실제 폐피복관에는 방사화에 의한 핵종 뿐만 아니라 사용후핵연료와의 접촉에 의한 핵분열생성물의 침투에 의한 핵종이 폐피복관 내면에 존재한다. 주로 대부분의 핵분열생성물은 폐피복관 외면의 산화층에 존재하는 것으로 알려져 있으며, 산화층을 제거하여 핵분열생성물을 제거하려는 연구도 수행 중에 있다. T.S Rudisill[2]에 의하면 폐피복관내의 핵분열생성물은 약 200  $\mu\text{m}$  깊이까지 침투되어 있으나, 주요핵종인  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  등은 저준위 폐기물 기준인 Class A와 Class C 기준을 만족하는 것으로 나타났다. 그러나 TRU 핵종인  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239/240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  은 평균 989 kBq/g, 356 kBq/g, 161 kBq/g으로 저준위 폐기물 처분기준인 3.7 kBq/g을 초과하는 것으로 나타났다.

#### 2.3 폐피복관 처리기술

폐피복관 처리기술은 다음과 같이 분류된다.[3]

- encapsulation and storage or disposal
- compaction and encapsulation
- matrix formation (with or without compaction) and encapsulation
- melting (with or without cleaning)
- chemical reaction to chloride, fluoride, oxide or sulfate and encapsulation

이상의 처리 방법 중 압축이나 용융처리기술은

전처리를 시행하는 국가에서는 이미 대용량 설비를 구축하여 처리할 정도로 입증된 기술이다. 대부분의 핵분열생성물이 침투되어있는 표면의 산화막을 제거하여 폐피복관을 증저준위화 하는 기술도 일부 연구가 수행 중에 있다. 그러나 이 방법은 대용량화 또는 원격화에 어려움이 따를 것으로 판단된다. 폐피복관의 대부분을 차지하고 있는 Zr의 재활용을 위한 방법으로 전해정련을 이용한 금속 Zr 회수와 Zr의 염소화와 Mg을 이용한 환원방법의 Kroll process를 이용하는 Zr 회수 방법에 대한 연구 역시 수행되고 있다.

### 3. 결론

폐피복관의 방사화에 의한 준위는 증저준위 인수조건에 만족하며, 핵분열생성물의 침투에 의한 핵종 역시 저준위 처분장 인수기준에 만족한다. 그러나 표면층에 침투한 TRU 핵종은 저준위 처분장 인수기준을 100배 이상 초과하는 것으로 나타났다. 표면제거에 따른 저준위화는 대용량화, 원격화 등이 어려워 현실성이 없는 것으로 판단된다. Kroll process 방법이나 전해정련방법에 의한 Zr회수 및 저감화에 대한 연구는 지속적으로 필요하다.

### 4. 참고문헌

- [1] Management of Cladding Hulls and Fuel Hardware, IAEA TECDOC No. 258 (1985).
- [2] T.S. Rudsill, J. Nucl. Mater, 385(2009) 193.
- [3] Griggs and G.H. Bryan, "Cladding Hull Decintaminatio Process-Preliminary Development Studies", Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington, PNL-2985 (1979).

Table 1. 사용후핵연료 10톤 처리시 발생하는 전처리 공정폐기물

종류	무게,kg	무게,%	부피,m <sup>3</sup>	부피,%
폐피복관	2,454	57.2	2.5	30.8
구조재	1,037	24.1	4.5	55.3
폐필터	793	18.5	1.1	13.9

Table 2. Zircaloy의 조사에 의한 물성 변화

Property	Effect of irradiation in reactor
Tensile and yield strength	Experimental increase with exposure: 30% increase for $10^{21}$ n · cm <sup>-2</sup> at 250-300 °C
Impact and fracture toughness	Stress fracture strength increase with exposure: 10% increase for $3 \times 10^{20}$ n · cm <sup>-2</sup> at 250-300 °C
Ductile	Decrease with exposure: 12% increase for $5 \times 10^{19}$ n · cm <sup>-2</sup> at 280 °C
Surface hardness	Increase with exposure: 20% increase for $5 \times 10^{19}$ n · cm <sup>-2</sup> at 50 °C
Corrosion	Increase with exposure: weight increase of 300 mg/dm <sup>-2</sup> for $5 \times 10^{19}$ n · cm <sup>-2</sup> at 280 °C

Table 3. 폐피복관의 방사화에 따른 발생 핵종

핵종	반감기 (년)	처분농도 제한치 (Bq/g)	Discharge	10 yr	100 yr
H-3	12.33	1.11E+6	6.85E+04	3.90E+04	2.48E+02
C-14	5730	2.22E+5	8.78E+04	8.77E+04	8.67E+04
Co-60	5.27	3.70E+7	7.52E+07	2.02E+07	1.46E+02
Ni-59	7.6E+4	7.40E+4	4.37E+02	4.37E+02	4.37E+02
Ni-63	100	1.11E+7	6.76E+04	6.31E+04	3.38E+04
Sr-90	28.8	7.40E+4	7.62E+02	5.96E+02	6.50E+01
Nb-94	2.03E+4	1.11E+2			
Tc-99	2.11E+5	1.11E+2	7.37E-01	7.45E-01	7.45E-01
I-129	1.72E+7	3.70E+1			
Cs-137	30.17	1.11E+6			