

사용후핵연료 내 주요 핵종 선정 및 이동특성

정효숙, 최성열, 황일순

서울대학교, 서울특별시 관악구 관악로 599

puredawn@snu.ac.kr

1. 서론

사용후핵연료 처분관련 연구에서 주요 핵종들의 물질흐름을 추적하고 이들의 이동을 지연시키는 것은 큰 관심사이다. 본 연구에서는 이러한 연구에서 그 위험성으로 인하여 집중 고려되어야 하는 핵종들을 선정하고, 이 핵종들의 특성을 살펴보고자 한다.

2. 주요 핵종 도출 기준

우선 사용후핵연료를 구성하는 핵종들을 알아보기 위해, ORIGEN2 코드를 이용하여 경수로에서 1MTU, 4.5% 농축도의 UO_2 연료가 45,000MWD/MTU로 3년 동안 연소한 후의 사용후핵연료 조성을 계산하였다. 그리고 100년, 1,000년, 10,000년 냉각 후의 방사능과 열발생량을 계산하였다.

2.1 방사능, 반감기 및 방사성붕괴 유형

Fig. 1은 핵분열 및 방사화생성물의 냉각기간에 따른 방사능을 보여주는 것으로, 100년 냉각 후에 $1.0E-02Ci$ 이상의 방사능을 가지는 핵종들을 선별하여 1,000년과 10,000년 냉각기간에서의 방사능을 비교하였다. 100년 냉각의 경우 Sr-90, Y-90, Cs-137, Ba-137M은 상당한 방사능을 보이지만, 1,000년 냉각 후 그 수치가 현저하게 감소하는 것을 알 수 있다.

악티나이드 계열의 경우 초기부터 높은 방사능을 보이는 핵종들도 있지만, 초기 방사능이 작은 핵종이라도 방사성붕괴로 인한 딸핵종 생성으로 인하여 후에 방사능이 이전보다 커지는 핵종들도 상당하다. 따라서 방사능만을 기준으로 하는 것보다, 이에 더하여 반감기나 방사성붕괴 유형과 같은 기준으로 핵종들을 선정하는 것이 더 적합하다.

이에 따라 악티나이드 계열에서 백만 년의 총 냉각기간동안 낮은 수준의 방사능을 보이는 핵종들을 제외하고, 알파 붕괴를 하며 반감기가 20년 이상인 핵종들을 선별하였다 [1].

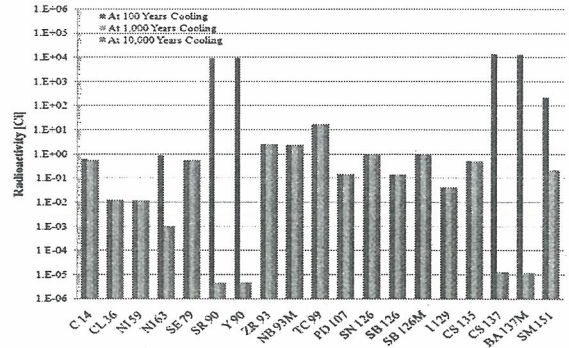


Fig. 1. Radioactivity of Fission and Activation Products in SNF after Cooling

2.2 열발생량

앞서 도출된 핵종들은 열발생량 측면에서도 대체적으로 비슷한 경향을 나타냈다.

100년 냉각을 기준으로 열발생량이 1W를 넘는 핵종들은 Sr-90, Y-90, Cs-137, Ba-137M, Pu-238, Pu-239, Pu-240, Am-241이다. Y-90과 Ba-137M은 각각 Sr-90, Cs-137의 붕괴 생성물로, 분리 및 핵변환 기술을 이용하여 Sr-90, Cs-137과 Pu, Am 등의 악티나이드 계열 핵종들을 사용후핵연료에서 분리하여 처리한다면, 처분장의 열적 안전성과 부피 저감에 도움을 줄 것이다.

2.3 주요 핵종 선정

2.1과 2.2를 바탕으로 하여 핵분열 및 방사화생성물과 악티나이드 및 그 딸 핵종에서 주요 핵종들을 도출하였다.

- 핵분열 및 방사화생성물: C-14, Cl-36, Ni-59, Ni-63, Se-79, Sr-90, Y-90, Zr-93, Nb-93M, Tc-99, Pd-107, Sn-126, Sb-126, Sb-126M, I-129, Cs-135, Cs-137, Ba-137M, Sm-151
- 악티나이드 계열: Pb-210, Ra-226, Ac-227, Th-230, Pa-231, U-233, U-234, U-235, U-236, Np-237, Pu-238, Pu-239, Pu-240, Pu-242, Am-241, Am-243, Cm-245, Cm-246

3. 지하수 내 주요 핵종 이동특성 [2, 3, 4]

처분된 폐기물 내 핵종들은 인공방벽의 열화에 따라 지하수를 통해 생태계로 누출된다. 지하수 내 핵종 이동성에 영향을 미치는 인자들은 pH, Eh, 용해도제한, 흡착, 콜로이드 등이 있다. 본 장에서는 흡착과 용해도를 중심으로 앞서 선정된 주요 핵종들의 이동특성을 알아보고자 한다.

C, Cl, Se, I의 경우 이동성이 큰 원소로, $0m^3/kg$ 의 흡착계수가 추천되며 용해도가 상대적으로 크다. C의 경우 흡착보다는 방해석과 백운암으로서의 침전에 의해 이동이 저지되며, 방해석이 없는 경우 흡착계수가 상당히 감소하게 된다. Cl의 경우 반응성이 거의 없어 이동성이 크며, 탈수 후의 농축된 소금물의 경우를 제외하고 용해도제한이 거의 없다. Se의 경우 Se(-II), Se(IV), Se(VI)로 존재하며, 보통 흡착되는 것은 4가 이온이다. 환원환경에서는 대부분 2가 이온으로, Fe^{2+} 가 존재하는 경우 결합하여 다소 불용성이다. I은 이동성이 크지만 Hg, Pb, Cu 등의 금속과 결합하거나 안정된 이온과 교환되어 이동이 다소 저지될 수도 있다. 이러한 이온교환효과는 C, Cl에서도 볼 수 있다.

Cs은 Cs(I)로 양이온교환에 의해 흡착되며, 염도가 감소함에 따라 Na^+ , K^+ 이온이 감소하여 흡착이 증가한다. 상대적으로 점토에서 흡착이 좋다. Sr은 Sr(II)의 형태로 Cs과 같이 양이온교환에 의해 흡착되는데, Ca^{2+} 이온이 증가할수록 흡착이 감소한다. Cs과 Sr의 흡착은 시멘트와 벤토나이트 등의 기반 조건에 민감하다.

Ni은 Ni(II)로 존재하며, Ni-59는 수산화물과 탄산염에 의해 용해도가 제한된다. H_2S 가 존재하는 경우 NiS에 의해 제한된다. Pd은 환원환경에서 대부분 금속 형태로, 더 높은 산화환원전위에서는 Pd(II), Pd(IV)도 존재하며 2가 이온이 더 흔하다.

Nb은 Nb(-I), Nb(V)로 존재하며 자연 상태에서 보통 5가 이온이 더 흔하다. 알칼리 환경에서 다소 용해하기 쉽다.

Zr은 Zr(IV)로 존재하며 이는 가수분해 경향이 강한 불용성 양이온이다. $Zr(OH)_5^-$ 의 형태로서 pH가 증가함에 따라 흡착이 감소한다. Tc은 Zr과 비슷한 특성을 가지는데, 환원환경에서 Tc(IV)의 형태가 가장 안정하다. 가수분해 경향이 강하며 평균 $10^{-8}M$ 로 용해도가 낮다. 산화환경에서는 Tc(VII)의 TcO_4^- 로 안정하며, 용해되기 쉽고 이동성이 크다. Sn은 환원 환경에서 Sn(II), Sn(IV)로 존재하며 2가

이온이 용해성이 더 크다.

Ac, Th, Pa, U, Np, Pu, Am, Cm의 악티나이드 계열 이온들은 $An^{3+}(III)$, $An^{4+}(IV)$, $AnO_2^+(V)$, $AnO_2^{2+}(VI)$ 의 형태로 존재하며, $An^{4+}(IV) > AnO_2^{2+}(VI) > An^{3+}(III) > AnO_2^+(V)$ 의 순서대로 가수분해 경향이 강하며 용해도가 낮다. 심층의 지하수와 같은 낮은 산화환원전위의 환원환경에서 U, Np, Pu은 4가 이온으로 Am, Cm은 3가 이온으로 존재하므로, U, Np, Pu은 Am, Cm보다 용해도가 더 작다. U, Np, Pu은 이러한 환경에서 $10^{-10}M$ 에서 $10^{-8}M$ 부근의 용해도를 가지는데, pH와 산화환원 환경에 따라 다르다. 산화환경에서는 이보다 높은 용해도를 가지며 일반적으로 $10^{-5}M$ 이상이다.

4. 결론

본 연구결과는 방사성폐기물처분장의 장기간 안전성평가를 위해 반드시 추적되어야 하는 핵종들을 제시함으로써, 유관 연구의 경제성 및 안전성 향상에 도움을 줄 수 있을 것이다.

5. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부에서 지원하는 BAERI (Basic Atomic Energy Research Institute) 프로그램의 일환으로 수행되었습니다

6. 참고문헌

- [1] KAERI Nuclear Data Evaluation Laboratory, <http://atom.kaeri.re.kr>, 2000. (검색일자: 2010년 8월 27일).
- [2] Peter Cronstrand, Assessment of Uncertainty Intervals for Sorption Coefficients, SKB R-05-75, 2005.
- [3] Pierre Toulhoat, Confinement and Migration of Radionuclides in a Nuclear Waste Deep Repository, C. R. Physique, pp. 975-986, 2002.
- [4] Jae-II KIM, Significance of Actinide Chemistry for the Long-term Safety of Waste Disposal, Nuclear Engineering and Technology, Vol. 38, No. 6, pp. 459-482, 2006.