대용량 고방사성 폐액처리를 위한 침전계에서 발생하는 침전슬러지 저장용기의 열적 안정성 평가

김광욱*, 양인환, 이근영, 김지민, 오맹교, 김민정, 이일희, 정동용, 문제권
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*nkwkim@kaeri.re.kr

1. 서론

본 연구팀에서는 후쿠시마 원전사고와 같은 원전 중대사고 시 발생하는 대용량 폐액 처리를 위한 방법으로 조작이 간단하며 신속히 대응이 가능한 순차침전 계를 개발하고 있고, 다양한 분말형 흡착침전제 사용하여 고방성 핵종인 Cs, Sr, I를 효율적으로 제거할 수 있음을 확인하였다. 이러한 공정에서 발생하는 고방사성 침전슬러지는 최종적으로 고건정성용기 (HIC: High Integrity Container)에 저장되어야하는데, 저장용기 내의 온도에 따라 Cs은 휘발될 수 있고, 흡착제 구조 및 저장용기의 안정성이 심각히 손상될 수 있다. 따라서 본 연구에서는 다양한 변수, 즉 슬러지 내 핵종농도, 저장용기 부피, 차폐재 두께 등의 변수에 따른 저장용기 내의 온도변화 및 용기의 열적안정성을 평가하였다.

2. 본론

본 연구의 대상이 되는 핵종은 반감기가 짧거나 비방사능이 큰 경우의 핵종들로 Cs-134, Cs-137, Sr-90, I-131이 대상이 되고, 이들 핵종 슬러지 내 온도변화를 계산하기 위해서는 이들 핵종의 비방사능 (specific activity: Bq/g), 비발열량 (specific heat generation rate: W/g) 이외에 처리 대상 용액에 존재하는 각 핵종 농도 (Bq/mL), 흡착제의 핵종 제거능 (DF: decontamination factor), 흡착제 밀도 (g/mL), 흡착제 매질의 열전도도 (W/m°K), 및 저장조의 물리적 구조 (dimension) 등에 대한 정보가 필요하다.

2.1 폐액 핵종 농도, 비발열량

후쿠시마 사고 후 TEPCO에서 발표된 각 사고원자로 호기에 따른 I-131, Cs-134, Cs-137의 농도는 Cs-137은 ~10^6 Bq/mL, I-131은 10^3~10^7 Bq/mL로 알려져 있고[1], Sr은 바닷물 내의 Ca, Ba과 같이 공침전되어 냉각수로 바닷물을 주입한 후쿠시마의 경우에는 Sr은 수중에 거의 없는 것처럼 나타나나, 본 연구에서처럼 비상 시 담수가 냉각수로 주입될 경우가 있는 경우에는 Sr도 폐수에 ~10^6 Bq/mL로 방출될 것으로 예측되어[1], 본 연구의 슬러지 안정성을 보기 위하여 흡착 침전제가 투입되는 대상 폐액의 Cs, Sr, I의 핵종 농도는 모두 10^6 ~ 10^7 Bq/mL로 설정하였으며, 각 핵종 제거 단계의 제거 효율은 99% 이상 (DF : 100~1000)으로 하였다.

Cs-134, Cs-137, Sr-90의 비발열량은 각각 12.9, 0.096, 0.158 W/g으로 알려져 있다. 그러나 I-131은 경우는 반감기가 약 8일로 매우 짧아 보통 일정 시간이 경과한 사용후핵연료 내 발열량에 영향을 거의 주지 않아 이에 대한 문헌자료가 거의 나타나 있지 않고 있어, 본 연구에서는 I-131은 핵분열 방출에너지로부터 I-131 발열량을 계산하여 냉각수 용액이 원자로 건물 내 약 10 일 정도 머물다 방출된다는 가정 하에 발열량 값을 0.17 W/g로 설정하였다.

2.2 흡착제 열전도도, 밀도

Chabasite의 열전도도는 chabasite 자체, chabasite 내에 물, 공기가 채워져 있는 경우의 열전도도는 0.582, 0.657, 0.04 W/m°K로 알려져 있다. 본 연구에서는 기공도가 0.5인 경우의 0.62 W/m°K을 사용하였다. 흡착제의 밀도는 본 연구에서 Cs, Sr, I을 흡착하기 위하여 사용한 metal ferrocyanide가 담지된 chabasite, Ba가 담지된 13X, Ag가 담지된 4A의 밀도를 측정하여 각각 2.13, 1.52, 1.52 g/mL의 값을 사용하였다.
사용한 흡착제 양을 2 g/L으로 하였을 때 계산된 흡착침전물의 발열량 값이 Table 1에 나타나 있다. Cs, Sr, I 핵종 중 Cs의 발열량이 가장 높게 나타나므로 본 연구에서는 Cs을 저장한 용기에 대해서만 용기 안정성 평가를 수행하였다.

2.3 흡착제 저장 용기내 온도 분포

본 연구에서 고려한 고방성핵종 저장용기는 Fig. 1에 보이는 것처럼 후쿠시마 원전에서 사용되는 것

과 같은 직경 1 m 높이 약 1.8 m의 실린더형 저장조와 외부에 15.2 cm의 두께의 납 차폐를 갖게 하고 저장조와 납 차폐제 사이에 공기 냉각 통로(5 cm)를 갖는 구조의 용기를 설정하였다. 저장용기 온도분포 계산을 위해 사용된 소프트웨어는 COMSOL Multiphysics 4.4이었다. 스테인리스 스틸과 납의 열전도도는 각각 17, 35 W/m°K 값을 사용하였고, 대기온도가 30°C일 때 저장조 외벽의 자연대류에 의한 열전달계수는 5 W/m^{2}K 값을 사용하였다.

Fig. 2에는 폐액의 Cs 방사능 농도가 1.0x10^{6}인 용액을 처리한 경우, 장기 저장 운영의 간편성을 위해 먼저 용기와 차폐제 사이에 공기 냉각통로가 없이 차폐제 외부의 자연냉각을 갖는 경우에 저장용기 내부의 계산된 온도분포가 각각 나타나있다. 내부 온도가 103°C로 Cs의 안정성 및 차폐제의 안정성에 영향이 없음을 볼 수 있다. Fig. 3에는 Fig. 2에서 공기 냉각 통로를 갖고 공기 유량을 300 L/s로 하는 경우의 온도 분포가 나타나 있다. 동일한 크기의 용기에서 내부에 공기 냉각을 한 경우와 하지 않은 경우의 공기 냉각이 없이 저장용기가 납 차폐제로 쌓여 자연대류를 이용한 냉각을 하는 경우가 온도가 더 낮음을 볼 수 있다.

본 연구에서 폐 흡착제 저장용기 내 온도변화 특성을 평가한 결과, Cs, Sr, I를 위한 흡착한 제올라이트 침전물 저장을 위한 용기의 안정성은 알려진 폐액의 핵종농도가 10^6 Bq/mL인 경우를 처리한 흡착슬러지 저장용기 내부의 온도는 수십 도를 넘지 않아 저장용기 외부의 차폐제나 흡착물질 구조 안정성에 거의 영향이 없음을 알 수 있었다.

3. 참고문헌

[1] T. Sasaki et al., "Research and development activities for cleanup of the Fukushima Daiichi Nuclear Powder Station", Mater. Res. Symp. Proc., 1518, 257-268 (2013).

Table 1. Heat generation rates per Cs, Sr, I adsorbent volumes

	Isotope	Half-life (yr)	Specific activity (Ci/g)	Abundance fraction	Average specific activity (Ci/g)	Specific heat gen rate (W/g)	Average specific heat gen. rate (W/g)	Heat gen.rate per adsorbent vol. (W/mL)
Cs	Cs-137	30.02	87	0.4	814	0.096	7.78	6.35 x10-5
	Cs-134	2.064	1300	0.6		12.9		
I	I-129	1.57x107	1.76x10-4	0.98	2.73 x103	8.17x10-8	3.58 x10-3	1.16 x10-8
	1-131	0.22	1.3x105	0.02		0.17(10 day)		
Sr	Sr-90	29.14	140	0.923	2.69 x103	0.158	7.88	2.58 x10-5
	Sr-89	0.138	2.91x104	0.077		100.57		

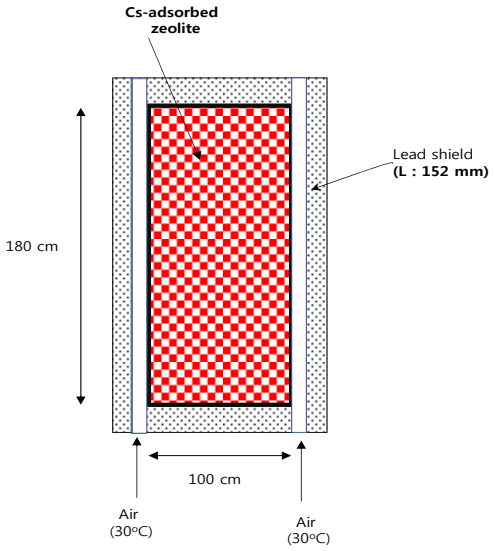

Fig. 1. Cylinder type storage container dimension of high radioactive solid waste for simulation of temperature distribution with air cooling path.

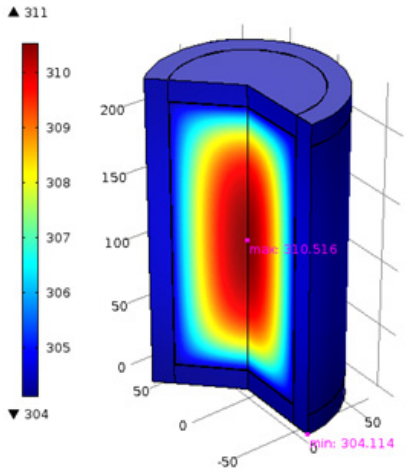

Fig. 2. Temperature distribution within the cylinder type Cs-adsorbent storage container of without air cooling path.

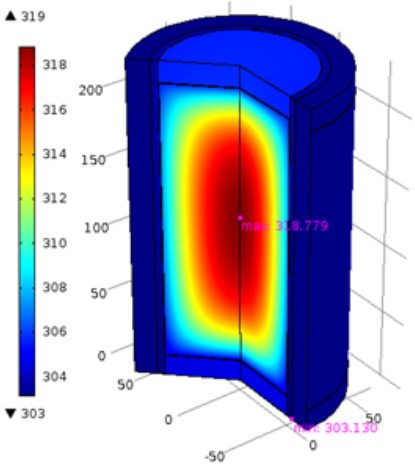

Fig. 3. Temperature distribution within the cylinder type Cs-adsorbent storage container of with air cooling of 300 L/s.