

장수명핵종 취급기술 개발

Development of Long-Lived Radionuclide
Handling Technology

연구기관

한국원자력연구소

과학기술처

제 출 문
과 학 기 술 처 장 관 귀 하

본 보고서를 “ 장수명핵종 소멸처리 기술개발 ” 과제의 (세부과제 “ 장수명핵
종 취급기술 개발 ”) 연구보고서로 제출합니다.

1994. 7.

주관연구기관명 : 한국원자력연구소

연구책임자 : 박진호

연구원 : 정원명

이규일

우문식

황두성

김연구

감수위원 : 황성태

여 백

요 약 문

I. 제목 : 장수명 핵종 취급기술 개발

II. 연구개발의 목적 및 중요성

본 연구의 목적은 현재 개발중인 군분리공정의 실증실험을 위한 시설의 확보를 위하여 실증실험에 이용될 주요장치의 개발과 차폐시설의 설계를 수행하는 것이다.

군분리공정은 고준위 방사성 핵종을 취급하는 화학·분리공정으로서 공정개발과 함께 안전하고 효율적인 공정운전 및 유지, 보수를 위하여 차폐셀, 원격조작장치 및 핵종분석 등의 관련기술의 개발이 동시에 수행되어야 한다. 또한 이러한 군분리공정과 관련된 장치기술은 선진국들이 기술이전을 금지하고 있는 분야로서 국내 기술자립이 필수적이다.

현재까지 국내에서 확보하고 있는 고준위 방사성 물질을 취급하기 위한 차폐시설은 기계조작이나 물리적 특성 분석을 위한 단순조작을 위한 시설로서 습식 화학공정인 군분리 공정의 실증실험을 위해서 활용되기에는 많은 문제점이 있다.

따라서 기존시설 내에 별도의 차폐시설 및 부대시설이 설치되어야 하며, 이를 위해 군분리공정의 특성에 맞는 장치개발 및 설계가 필수적이다. 또한 앞으로 후행 핵주기 관련시설등 화학공정상에 고준위 방사성 물질을 취급하는 공정 및 장치의 필요성이 점차 증대될 것으로 예상되어 기술의 활용이 클것으로 기대된다.

III. 연구개발 내용 및 범위

- 시설의 방사선 안전
 - 방사선 안전기준 설정 (조업자 피폭기준, 기체·액체 방출기준, 차폐 기준 등)
 - 방사선 방호시설 기준설정 (containment, air flow, 감시 및 경보시설 등)
- 시설의 개념설계
 - 공정 및 설비계통 (개략 공정도, 설비 계통도 설정)
 - 시설규모 및 용도결정 (개략 배치도 및 취급물질의 특성조사)
 - 설계기준 작성
- 방사능 측정계통 개발
 - 측정장치 선정 (측정장치 조사, 측정장치별 기술평가 및 선정)
 - 측정계통 구성 (실험장치 구성, 실험장치 제작 및 설치)
 - 측정실험 (실험방법의 결정, 실험 및 결과분석)
- Mo-99제조 기술현황 분석 및 기초실험

IV. 연구결과 및 활용에 대한 건의

- 시설의 방사선 안전기준 설정
 - 조업자 피폭기준 : 조업자 피폭설계 목표치는 정상가동시 background를 기준하며, 설계기준은 국내, 외 규제기준을 고려하여 MPC의 1/10로 설정
 - 폐액 및 배기 관리기준 : 국내, 외 적용기준과 연구소내 기존시설의 기준 등을 고려하여 폐액은 고준위(10^{-3} $\mu\text{Ci}/\text{ml}$ 이상) 폐액, 중·저준위 폐액, 배출가능 폐액(10^{-8} $\mu\text{Ci}/\text{ml}$ 이하)으로 분류하고 고준위 폐액은 공정용액의 종류별로 관리하며, 중·저준위 폐액은 총량을 기준으로 관리한다. 또한 모든 공정폐가스는 차폐시설

내에 흡수장치를 설치하여 처리후 배기하고, 배기가스의 설계기준은 10 CFR 50의 1/10을 기준으로 설정

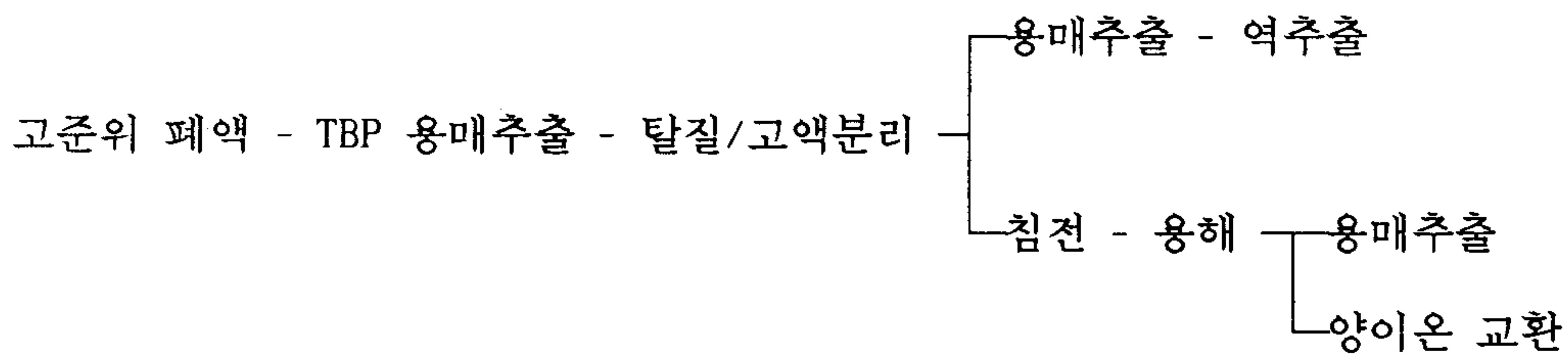
- 차폐기준 : 차폐실 내의 최대 취급 방사능 준위는 균분리 공정은 약 1000 Ci(HWR 폐액 1t 기준), Mo-99 생산시설은 약 4,500 Ci로 예측되어, 차폐시설의 설계기준은 최대취급방사능 준위의 10배로 설정하였으며, 차폐평가를 수행하여 조업자 피폭 규제기준 및 표면오염 관리기준 이하로 유지되도록 설계에반영

- Cointainment 및 air flow : 차폐실을 기준으로 3중 방호개념을 적용하였으며, 차폐실은 환기흐름을 one-through flow로 기준설정

- 감시 및 경보시설 : 개인 피폭관리와 시설오염 관리장비로 구분하여 개인피폭 관리장비로는 hand-foot monitors와 film badge, 시설오염 관리장비로는 air sampling monitors, area radiation monitors/constant air monitors, stack gas monitors, central readout and alarm system 등을 설계에 반영

• 개념설계

- 균분리 공정개발 팀과 협의하여 개략공정도 설정



- 공정모액중 핵종별 기준농도 설정

- 공정내 취급물질중 비방사능 위험물질의 물리, 화학적 특성정리

- 환기계통 구성 및 설계기준 설정 : ISO기준에 따라 4구역으로 구분, 구역별 환기횟수와 부압기준 및 환기방법을 설정하였으며, 환기속도는 비정상상태에서의 back-diffusion을 고려하여 1m/sec, 차폐셀의 환기회수는 20회 이상, 부압은 25mmAq 이상으로 설정하고 환기계통도를 작성함

- 공정 폐가스 처리계통 : 공정상에서 발생이 예상되는 폐가스를 단위 공정별로 발생장치 및 폐가스의 종류를 설정하여 처리장치를 결정

- 시약 및 Utilities : 공정 및 시설에 필요한 utilities 및 시약의 종류 및 소요량을 설정하여 공급방법을 결정

- 단위공정 및 부대시설의 개략 배치도를 작성

- 원격 조작장치 선정 : 군분리 공정의 실증실험을 위한 원격 조작장치로 standard duty type의 MSM을 선정하였으며, 기준중량(9kg), 자유도(7), end effector의 속도기준(운전자의 작업속도), 취급가능 영역(2.5x2.5x2.5m) 등의 기술 사양 결정

- 주요 분야별 기본 기준설계 및 설계지침 작성(기계 탐조, 배관, 계측제어, 전기, 토목, 건축 분야등)

- 용액중 방사능 측정계통 개발

- 측정장치 선정 : 1차년도(1992년)에 수행한 방사능 측정장치에 대한 특성검토 결과를 근거로 검출기를 NaI(Tl) 형광검출기(연속적인 공정감시)와 HPGe(정확한 방사능도 및 핵종분석)로 구성하여 제작, 설치함

- 측정계통 구성 : 검출기, 납 차폐장치, 측정시료 및 표준시료 저장조, 순환펌프 및 순환 loop 배관으로 구성도를 작성하여 설치함

- 측정방법 정립 : 설치된 측정장치와 순환 loop를 이용하여 on-line 상태에서 near real time으로 측정하기 위한 최저 측정한계(LLD)와 측정시간(t) 및 부피(V)와의 관계를 실험측정 data로부터 구하여 장치설계에 반영되도록 하며, 측정시 sampler 표면에 핵종의 흡착으로 인해 증가하는 background로 인한 측정오차를 최소화하기 위하여 핵종 흡착실험을 통하여 흡착특성을 규명하였다.

- Mo-99 분리공정의 기술현황 조사, 분석 및 기초실험

현재 수행중인 설계 및 장치의 연구개발 효율성을 높이기 위하여 군분리 공정

과 유사한 공정으로 산업에의 활용이 가능한 Mo-99(의료 진단용으로 이용되는 Tc-99m의 원료) 분리공정의 개발을 병행할 예정으로 관련 선진국의 기술현황을 조사, 분석하였으며, 적용할 공정종류 및 조업조건을 설정을 위하여 기초실험을 수행하여 개발 대상공정으로 알루미나 흡착공정을 선정함.

SUMMARY

I. Project Title : Development of long-lived radionuclide handling
tecnology

II. Objective and Importance of the Project

The final goals of this research are completion of design for construction of hot cell and auxiliary facilities, and development of main equipments for remote operation and on-line monitoring system of radioactivity in solution. This facilities will be used for active test of the group separation process, the partitioning technology to separate the long-lived radionuclides and useful nuclides from radioactive liquid wastes.

And high level radioactive material are treated as the form of solution in the group separation process.

The fundamental design objectives for this facilities where work with highly radioactive and highly toxic materials are (1) to accomplish the purpose of active test for the group separation process, (2) to protect the

environment, (3) to provide safe working condition, and (4) to keep radiation exposure to staff as low as practicable.

III. Scope and Contents of the Project

- Establishment of design basis for radiation safety
 - Radiation safety criteria (design basis for occupational exposure, effluence of liquid wastes and off-gas, shield of hot cell)
 - Facilities for protection from radiation exposure (containment, air flow, radioactivity monitoring and alarm system)

- Conceptual design of facilities
 - Process and auxiliary facilities (process, off-gas treatment, ventilation, utilities)
 - Manipulators
 - Lay-out
 - Design basis in the various field

- Development of radioactivity measuring system in solution
 - Constitution of experimental device for measurement of radioactivity
 - Experiments and results

- Experiments for separation and purification of Mo-99
 - Review on process technology for fission Mo-99 production
 - Development of alumina adsorption process (elementary experiments for establishment of operation condition)

IV. Results and Proposal for Application

- Design basis for radiation safety

The design basis for radiation safety were suggested as follows, and will be used as guide for safety analysis and design.

- Design basis for occupational exposure : tenth of MPC
- Design basis for effluence of liquid wastes : ten times dilution of 10^{-8} $\mu\text{Ci/ml}$
- Design basis for effluence of off-gas : 2×10^{-5} $\mu\text{Ci/cm}^3$
- Design basis for maximum radioactivity level in hot cell
 - . 10,000 Ci (the group separation process)
 - . 45,000 Ci (Mo-99 separation process)
- Concept of containment : triple barrier
- Air flow : One-through flow (air velocity : 1 m/sec)

- Conceptual design of facilities

The following contents were described and suggested as conceptual design reports of facilities for active test of group separation process, and will be used as design basis for basic and detail design.

- Establishment of basic process for group separation
- The characteristics of unit process and main equipments
- Estimation of chemical composition in feed material
- The properties of dangerous materials used in process
- Establishment of off-gas treatment process released from process equipments

- The schematic diagram, zoning, air changes and pressure differentials for ventilation system

- Selection of manipulators for test operation, G-HDE MSM
- Lay-out of hot cells and liquid wastes storages
- Design basis in the various fields

- Development of radiation measuring system in solution

- Selection of measuring instrument

The measuring instrument selected NaI(Tl) scintillation detector for continuous detection of radiation on line and HpGe detector for radioactivity assay and nuclide.

- Constitution of measuring system

This system is consisted of detector, lead shielder, sampler, storage vessels for liquid standard samples with circulation pump and piping.

- Establishment of measuring method

Measuring instrument and circulation loop were installed to obtain the relations of lower limit detection(LLD) vs. detection time(T) and LLD vs. sample volume(V) by the on-line experiments.

The characteristics of nuclide adsorption to the surface of sampler was investigated to find out the phenomena of background level increase.

This measuring system will be used as device of measurement of radioactivity concentration in solution for the group separation process.

- Review on process technology for Mo-99 production and experiments for separation and purification of Mo-99

The process for separation and purification of Mo-99 is similar to the group separation process, and Mo-99 is the parent radionuclei of Tc-99m and the only source of Tc-99m, most frequently used in nuclear medical diagnostic.

And then development of the process for Mo-99 production was included to increase reliance of this project.

Through the review on process technology for Mo-99 production, alumina adsorption process was selected as the process for Mo-99 production.

And preliminary operation condition could be established by elementary experiments.

CONTENTS

Chapter 1	Introduction	25
Chapter 2	Design basis for radiation safety	29
Sect. 1	Introduction	31
Sect. 2	Radiation safety criteria	32
1.	Design basis for occupational exposure	33
2.	Design basis for effluence of liquid wastes and off-gas	34
3.	Design basis for shield of hot cell	37
Sect. 3	Facilities for protection from radiation	38
1.	Containment	38
2.	Air flow	39
3.	Radioactivity monitoring and alarm system	43
Sect. 4	Conclusions	45
Chapter 3	Conceptual design of facilities for group separation process	47
Sect. 1	Introduction	49
Sect. 2	Process and auxiliary facilities	50
1.	Process	50
2.	Off-gas treatment	56
3.	Ventilation	60
4.	Utilities	67

Sect. 3	Manipulators -----	70
1.	Outline -----	70
2.	Requirements for manipulator selection -----	71
3.	Comparison of characteristics of manipulators -----	71
4.	The manipulator selected for test operation -----	78
Sect. 4	Lay-out -----	81
Sect. 5	Design basis in the various fields -----	83
1.	Structures -----	83
2.	Vessels -----	85
3.	Machinery -----	86
4.	Pipings -----	87
5.	Electric and instruments -----	88
Sect. 6	Conclusions -----	90
Chapter 4	Development of radioactivity measuring system in liquid-----	93
Sect. 1	Introduction -----	95
Sect. 2	Constitution of experimental device for measurement of radioactivity -----	96
1.	Outline -----	96
2.	Selection of detector for γ -ray measurement -----	97
3.	Sampler shielder -----	106
4.	Circulation device of liquid sample -----	110
Sect. 3	Experiments and results -----	113
1.	Adsorption of radio-nuclide on surface of sampler -----	113
2.	The measurement of radioactivity in liquid sample -----	123

Sect. 4	Conclusions	-----	132
Chapter 5	Experiments for separation and purification of Mo-99	-----	135
Sect. 1	Introduction	-----	137
Sect. 2	Manufacturing process for fission Mo-99	-----	138
1.	Process outline	-----	138
2.	Selection of manufacturing process	-----	141
Sect. 3.	Development of alumina adsorption process	-----	146
1.	The properties of alumina	-----	146
2.	Adsorption and elusion properties of Mo	-----	149
3.	Adsorption isotherm	-----	159
4.	Adsorption mechanism	-----	160
Sect. 4	Other process	-----	166
1.	Precipitation process	-----	168
2.	Sublimation Process	-----	169
Sect. 5.	Conclusions	-----	173

References

목 차

제 1장	서 론 -----	25
제 2장	시설의 방사선 안전기술 -----	29
제 1절	서 설 -----	31
제 2절	방사선 안전기준 -----	32
1.	조업자 피폭 설계기준 -----	33
2.	폐액 및 배기가스 배출기준 -----	34
3.	차폐기준 -----	37
제 3절	방사선 방호시설 -----	38
1.	Containment -----	38
2.	Air flow -----	39
3.	오염감시 및 경보시설 -----	43
제 4절	결 언 -----	45
제 3장	시설의 개념설계 -----	47
제 1절	서 설 -----	49
제 2절	공정 및 설비계통 -----	50
1.	공정계통 -----	50
2.	폐가스 처리계통 -----	56
3.	환기계통 -----	60
4.	유틸리티 공급계통 -----	67

제 3절	원격 조작장치 -----	70
1.	개 요 -----	70
2.	원격 조작장치의 요건 -----	71
3.	원격 조작장치의 특성 비교 -----	71
4.	시험 조작용 MSM 선정 -----	78
제 4절	시설 배치 -----	81
제 5절	설계기준 -----	83
1.	구 조 -----	83
2.	Vessels -----	85
3.	기계류 -----	86
4.	배 관 -----	87
5.	전기 및 계측제어 -----	88
제 6절	결 언 -----	90
제 4장	방사능 측정장치 개발 -----	93
제 1절	서 설 -----	95
제 2절	측정장치 선정, 제작 및 구성 -----	96
1.	개 요 -----	96
2.	감마선 측정장치 선정 -----	97
3.	시료용기 차폐장치 -----	106
3.	시료용액 순환장치 -----	110
제 3절	측정실험 -----	113
1.	측정 시료용기 핵종 흡착실험 -----	113
2.	용액중 방사능 측정실험 -----	123
제 4절	결 언 -----	132

제 5장	Mo-99 분리, 정제 실험	135
제 1절	서 설	137
제 2절	Fission Mo-99 제조방법	138
1.	제조공정 개요	138
2.	제조공정의 선정	141
제 3절	알루미나 흡착공정의 개발	146
1.	알루미나의 특성	146
2.	Mo 의 흡착, 탈착 특성	149
3.	흡착 등온곡선	159
4.	흡착기구	160
제 4절	기타 공정	166
1.	침전법	168
2.	승화법	169
제 5절	결 언	173

참 고 문 헌

그 립 목 차

Fig.2-1. Construction joints in shield walls. -----	40
Fig.2-2. Connection drawing of pipes and cables for airtight sealing. -----	41
Fig.3-1. Block diagram of group separation process. -----	51
Fig.3-2. The flow chart of fission ⁹⁹ Mo production process. -----	55
Fig.3-3. Removal efficiency of NO ₂ in water and alkali scrubbers. -----	58
Fig.3-4. Block diagram for off-gas treatment process. -----	59
Fig.3-5. Basic ventilation model. -----	64
Fig.3-6. Schematic diagram for ventilation system. -----	65
Fig.3-7. Typical red zone instrumentation for ventilation. -----	66
Fig.3-8. The seven degrees of freedom of MSM. -----	75
Fig.3-9. Squeeze tongs. -----	76
Fig.3-10. Model G-HDE master slave manipulator on lead cell. -----	77
Fig.3-11. Overall lay-out on 1 st floor. -----	82
Fig.3-12. Overall lay-out on underground floor. -----	84
Fig.4-1. Comparative pulse height spectra recorded using a sodium iodide scintillator and a Ge(Li) detector. -----	100
Fig.4-2. Block diagram of r-ray spectroscopy system. -----	103
Fig.4-3. Photograph of r-ray spectroscopy system. -----	104
Fig.4-4. Fabrication drawing of Pb shielder. -----	108
Fig.4-5. Photograph of Pb shielder. -----	109

Fig.4-6.	Schematic diagram of detection system for on-line monitoring of radioactive materials in fluid. -----	111
Fig.4-7.	Photograph of on-line monitoring system installed for experimental measurement. -----	112
Fig.4-8.	Electrical double layers. -----	116
Fig.4-9.	Confirmation of zero point of charge by pH measurement. -----	121
Fig.4-10.	Adsorption of Cs-137 according to change of pH on sus304 and PE. -----	122
Fig.4-11.	Drawing of marinelli beaker. -----	127
Fig.4-12.	Lower limit of detection according to counting time. -----	131
Fig.4-13.	Counting rate according to concentration of radioactivity ---	133
Fig.5-1.	The flow chart of alumina adsorption process for ⁹⁹ Mo recovery. -----	144
Fig.5-2.	Electrical charge on surface of alumina according to pH. -----	147
Fig.5-3.	Adsorption of hydrogen on alumina according to pH. -----	148
Fig.5-4.	Mo adsorption capacity of alumina. -----	150
Fig.5-5.	Predominance diagram for Mo(VI)-OH species. -----	151
Fig.5-6.	Effects of hydrogen ion concentration on adsorption efficiency -----	153
Fig.5-7.	Effects of alumina /Mo ratio on adsorption efficiency. -----	155
Fig.5-8.	Elution efficiency of Mo from alumina. -----	156
Fig.5-9.	Total recovery efficiency of Mo as a function of alumina/Mo ratio. -----	157
Fig.5-10.	Effects of nitrate concentration on adsorption efficiency. ---	158

Fig.5-11. Adsorption isotherm. -----	161
Fig.5-12. Experimental apparatus for batchwise Mo adsorption. -----	163
Fig.5-13. Comparison of adsorption efficiency measured and calculated by fluid film resistance model. -----	165
Fig.5-14. Time required for equilibrium of adsorption. -----	167
Fig.5-15. Experimental apparatus for Mo recovery by sublimation. -----	171
Fig.5-16. Arrhenius plot of chlorination of molybdenum oxides. -----	172

표 목 차

Table 2-1.	Regulation guide for dose limits in occupational exposure. -----	32
Table 2-2.	Design basis for dose limits in occupational exposure. ----	33
Table 2-3.	Regulation guide for classification of liquid wastes. -----	35
Table 2-4.	Design basis for classification of liquid wastes. -----	36
Table 3-1.	The characteristics of each unit process. -----	52
Table 3-2.	Estimation of chemical composition in high level liquid wastes. -----	53
Table 3-3.	The properties of dangerous materials used in process. -	54
Table 3-4.	The kinds of off-gas released from process equipments. ----	57
Table 3-5.	The classification and definition of zones for design. -----	61
Table 3-6.	Design basis of air changes and pressure differentials. ---	62
Table 3-7.	Typical manipulator capabilities. -----	73
Table 3-8.	Specification and performance of model G-HDE. -----	74
Table 4-1.	The specification of equipments for on-line monitoring system. -----	110
Table 4-2.	The data measured for confirmation of zero point of charge on surface of sus 304 chips. -----	118
Table 4-3.	Lower limit of detection according to counting time. -----	130
Table 4-4.	Counting rate according to concentration of radioactivity ---	130
Table 5-1.	Process characteristics according to enrichment of uranium. -----	139

Table 5-2.	Worldwide examples for target form, irradiation conditions and production rates for fission ⁹⁹ Mo production.	-----	140
Table 5-3.	Comparison of the purification process for ⁹⁹ Mo production	-----	142
Table 5-4.	Material balance calculation for 100 Ci ⁹⁹ Mo production.	---	145
Table 5-5.	Proposed schedule for development and construction for ⁹⁹ Mo production process.	-----	174

여 백

제 1 장 서 론

여 백

고준위 방사성 폐액 중 장수명 핵종과 유용 핵종의 분리를 위한 요소기술을 개발하기 위해서는 군 분리 공정의 개발과 함께 고준위 방사성 물질을 안전하고도 효율적으로 취급할 수 있는 기술의 개발 및 차폐 시설의 확보가 필요하다. 이는 소멸처리를 위한 장수명 핵종 및 유용 핵종의 분리를 위하여 현재 개발중인 군 분리 공정이 고준위 방사성 물질을 취급하는 습식 화학 공정으로서 단순히 실험실에서 비 방사성 물질을 사용하여 공정을 개발하였다 하더라도 고준위 방사성 물질을 공정상에서 안전하게 취급할 수 있는 차폐 시설, 원격 조작 기술 및 핵종 분석 등의 관련 기술이 동시에 개발되어, 방사성 물질의 특성이 공정에 미치는 영향을 실증실험을 통하여 확인하여야 공정의 개발 여부를 검증할 수 있으며 이를 위해 차폐 시설 및 장치의 확보가 필수적이다.

본 연구 과제에서는 1차년도(1992년 9월 ~ 1993년 7월)에 수행한 국내·외 유관 시설의 공정 및 설계, 안전성 확보 기술현황의 분석, 평가 결과를 토대로 장수명 핵종 군분리 공정의 실증 실험을 위한 차폐 시설을 확보하기 위하여 개념 설계를 수행하였다. 먼저 시설의 안전성을 확보하기 위하여 조업자의 방사선 피폭기준, 폐액 및 배기 가스의 방사선 방출기준과 차폐기준, 방사선 방호를 위한 containment 및 air flow 개념 등의 방사선 안전 관련 기준을 설정하여 기본 설계 수행시에 반영될 수 있도록 하였다.

그리고 시설의 개념설계를 수행하기 위하여 군분리 공정개발 과제와의 긴밀한 협의를 통하여 시설의 설계를 위한 개략 군분리 공정도, 설비 계통도와 개략 배치도, 취급 물질의 종류 및 양들을 설정하였으며, 분야별 설계 기준 및 지침을 작성하여 기본설계에 반영되도록 하였다.

또한 차폐시설 내에 설치되는 공정장치에 사용되는 순환냉각수의 오염 여부에 대한 on-line 감시와 공정용액의 핵종 분석시 측정효율을 높이기 위한 측정계통의 개발을 위하여 용액중 방사능 측정장치를 선정, 설치하고 실험을 통하여 군분

리 공정에 적합한 측정계통을 선정하였다.

당초 균분리 공정의 실증실험을 위한 시설로 독립시설을 확보하는 것을 계획하였으나 독립시설의 확보에 많은 재원과 인력이 소요됨을 고려하여 기존 시설의 활용 방안을 검토하였으며, 그 결과 기존 시설의 일부 공간에 차폐장치와 부대 시설을 추가로 설치하여 활용하는 방안을 검토하여 가능성을 확인하였다.

또한 현재 수행중인 설계 및 장치개발의 효율성과 신뢰성을 높이기 위하여 균 분리 공정과 유사하면서도 의료산업에의 활용이 가능한 Mo-99(의료 진단용 동위 원소인 Tc-99m 제조 원료) 분리공정의 개발을 병행하기 위하여 Mo-99 제조기술 현황을 조사, 분석하였으며, 개발할 대상 공정의 종류 및 조업조건을 설정을 위한 기초 실험을 추가로 수행하여 그 결과를 기술하였다.

제 2 장 시설의 방사선 안전기술

여 백

제 1 절 서 설

고준위 방사성 폐액 중 장수명 핵종과 유용 핵종의 분리를 위한 군분리 공정의 실증실험은 차폐실 내에서 고준위 방사성 물질을 취급하게 됨으로 시설내 방사선 작업 종사자들의 방사성 물질로부터 피폭을 극소화하고, 주변 환경을 방사선으로부터 효과적으로 방어하기 위하여 시설의 안전성 확보가 시설의 설계에 최우선적으로 반영되어야 한다. 따라서 본 절에서는 국내·외 방사선 안전관련 규제기준과 안전기준에 대한 검토 결과를 토대로 조업자의 피폭 설계기준을 설정하였다.

공정 중에서 발생 가능한 폐액의 분류기준, 시설내 관리 및 처리방법 등을 제시하고 시설내 발생 가능한 폐액들을 구분하고 그 관리방법을 설정하였으며, 시설로부터 배출되는 배기가스의 방사능 배출기준을 제시하였다.

또한 차폐실 내의 최대 취급 방사능준위 및 차폐기준을 설정하였으며, 방사성 물질의 누출 및 확산의 방지를 위하여 적용되는 containment의 다중 barrier 기준개념과 환기방법, 배기 기준속도 등을 설정하고, 시설내 방사선 준위를 항상 확인하고 감시하기 위하여 필요한 감시 및 경보시설 등을 기술함으로서, 시설의 안전성을 확보하기 위한 설계기준들을 제시하였다.

또한 여기서 설정된 기준을 근거로 하여 기본설계 수행과 함께 군분리 공정시설로 인한 안전성분석을 통하여 설계를 보완함으로서 시설내 종사자들과 주변환경의 안전성이 확보될 수 있다.

제 2 절 방사선 안전기준

1. 조업자 피폭설계 기준

방사성 물질 취급시설에서의 조업자 피폭설계 기준은 규제기준을 근거로하여 설정하는 것이 타당하며, 국내, 미국, ICRP의 조업자 피폭규제기준은 표 2-1과 같다.

Table 2-1. Regulation guide for dose limits in occupational exposure.

구 분	평균 주간선량 (국내기준, mrem)	최대 허용선량 (rem)	년간 제한선량 (국내기준, rem)
전신, 조혈장기 눈의 수정체 생식기	100	국내 : 3(13주 기준) 미국 : 1.25(13주 기준) 단, 전신은 3rem ICRP : 15(1년 기준)	5
전신 피부, 감상선 뼈	600	국내 : 15(13주 기준) 미국 : 18.75(13주 기준) ICRP : 50(1년 기준)	30
손, 발, 팔, 다리, 관절	1500	국내 : 40(13주 기준) 미국 : 7.5(13주 기준) ICRP : 50(1년 기준)	75
기타 단일장기	300	국내 : 8(13주 기준)	15

그러나 최근 조업자 피폭 규제기준을 현재 기준보다 더 낮출려는 것이 세계 각국의 추세이며, 일부 선진국을 중심으로 방사성물질 취급시설에서의 조업자 피폭설계 목표치를 고준위 방사성 물질 취급시설 일지라도 정상 가동시 background에 근접하도록 기준을 설정하기도 한다. 그러나 아직은 표 2-2에서와 같이 각국의 규제기준으로 제시한 최대 허용선량(MPC)의 1/10수준으로 피폭 설계기준을 설정하는 것이 일반적이다.

Table 2-2. Design basis for dose limits in occupational exposure.

국가명	설계 기준
미국	설계 목표 : 10 - 20 mrem/yr (전신 피폭) (normal background 유사치) zone 4 $\left[\begin{array}{l} \alpha : 2 \text{ pCi/cm}^2 \\ \beta\text{-}\gamma : 10 \text{ pCi/cm}^2 \end{array} \right]$ 이하 zone 3 & 2 : 1/10 MCP
영국	zone 3 & 2 $\beta : 10^{-3} \text{ Ci/cm}^2$ 1/10 MPC
독일	1/10 MPC MPC : 2.5 mrem/hr
일본	1/10 MPC MPC $\left[\begin{array}{l} \text{zone 3 : } 20 \text{ mrem/hr} \\ \text{zone 2 : } 2 \text{ mrem/hr} \end{array} \right]$
국내 (IMEF)	zone 2 : 1 mrem/hr zone 3 : 15 mrem/hr

따라서 고준위 폐액중 장수명 핵종 및 유용 핵종의 분리를 위한 군분리 공정의 실증실험을 위한 시설에서의 조업자 피폭 설계기준도 표 1에서 제시된 국내 규제기준인 최대 허용선량의 1/10을 기준으로 설정하였다.

2. 폐액 및 배기가스 관리 및 배출기준

군분리 공정은 습식공정으로서 공정상에서 용액 형태의 방사성 물질을 취급하게 되므로 방사성 폐액이 발생하게되며, 방사성 폐액의 종류로는 고준위 폐액로부터 장수명 핵종과 유용 핵종을 분리한 후 공정폐액, 공정상에서 발생하는 폐가스(fission aerosols, NOx 등) 흡수용액, 공정장치의 이상으로 누출되는 공정용액, 장치의 내부 누출로 인해 오염된 냉각수 또는 제염을 위한 세척수 등이 시설내에서 발생 가능한 방사성폐액으로 예상된다.

또한 시설내에 추가로 설치 예정인 Mo-99 생산공정에서 발생가능한 폐액으로는 알루미늄 흡착 후 배출되는 fuel element용액, 알루미늄 세척 후 용액, target의 용해시 발생하는 폐가스 흡수용액, 공정장치의 이상으로 인하여 누출되는 공정용액과 오염된 냉각수 등의 발생이 예상된다.

국내·외 방사성 물질 취급시설에서의 방사성 폐액의 분류기준은 표 2-3과 같으며 국내 규제기준은 $10^{-3}\mu\text{Ci}/\text{ml}$ 이상은 고준위 방사성 폐액으로, 그 이하는 중·저준위 폐기물로만 규정하고 있다. 또한 액체 폐기물의 방출기준은 방사선 동위원소의 종류를 알 수 있는 경우는 동위원소 별로 허용농도를 제시하고 있으며, 방사선 동위원소의 종류를 알 수 없는 경우는 $3 \times 10^{-8}\mu\text{Ci}/\text{ml}$ 로 허용농도를 규정하고 있다. 따라서 군 분리공정 및 Mo-99 생산공정에서 여러가지 핵종이 취급되는 것을 고려할 때 총량기준으로 관리하는 것이 바람직할 것으로 판단된다.

시설내에서 발생하는 방사성 폐액의 분류기준을 표 2-4와 같이 설정하였으며, 시설내에서 발생가능한 폐액의 종류는 다음과 같다.

Table 2-3. Regulation guide for classification of liquid wastes.

구 분	기 준
국 내	<p>고준위 : 10^{-3} $\mu\text{Ci/ml}$ 이상</p> <p>중·조준위 : 10^{-3} $\mu\text{Ci/ml}$ 이하</p> <p>방류기준 : 10^{-8} $\mu\text{Ci/ml}$ (총량기준) 이하</p>
미 국	<p>고준위 : 100 $\mu\text{Ci/ml}$ 이상 (지하에 차폐저장)</p> <p>중준위 : 5×10^{-5} - 100 $\mu\text{Ci/ml}$ (지하 구조물 또는 저장용기에 배출 가능)</p> <p>저준위 : 5×10^{-5} $\mu\text{Ci/ml}$ 이하 (지정폰드 또는 표층수에 배출 가능)</p>
IAEA	<p>category I : 10^{-6} $\mu\text{Ci/ml}$ 이하 (일반 폐액, 환경에 배출 가능)</p> <p>category II : 10^{-6} - 10^{-3} $\mu\text{Ci/ml}$ (처리, 차폐 불필요)</p> <p>category III : 10^{-3} - 10^{-1} $\mu\text{Ci/ml}$ (처리, 필요에 따라 일부차폐)</p> <p>category IV : 10^{-1} - 10^{-4} $\mu\text{Ci/ml}$ (처리, 차폐)</p> <p>category V : 10^4 $\mu\text{Ci/ml}$ (폐기물로 저장, 냉각 필요)</p>

Table 2-4. Design basis for classification of liquid wastes.

구 분	기 준	시설내 관리	처 리
고준위 폐액	10^{-3} $\mu\text{Ci}/\text{lm}$ 이상	폐액 종류별 수집소 설치	폐액 종류별로 별도 처리시설로 이송
중·저준위 폐액	$10^{-3} - 10^{-8}$ $\mu\text{Ci}/\text{ml}$	시설내 종합 수집소 설치	별도 처리시설로 이송
배 출 수	10^{-8} $\mu\text{Ci}/\text{ml}$ 이하	수집소 설치	분석 확인후 10배 희석후 일반 산업폐수 기준적용

- 고준위 폐액
 - 균분리 공정 처리 후 폐액
 - Mo-99 분리 정제 후 fuel element용액 및 알루미늄 세척용액
 - 폐가스 흡수용액
 - 차폐 시설내 공정장치로부터 drain 또는 누출되는 용액
- 중·저준위 폐액
 - 차폐실 내 세척용액 및 누출 냉각수
 - 조업지역(amber zone)내 floor drain

- 배출 가능 폐액

- 오염되지 않은 교체 냉각수 및 floor drain 등

상기 폐액의 처리 방법으로는 고준위 폐액은 가능한 폐액 종류별로 저장, 관리하며, fission products를 함유하는 폐액의 경우는 일정기간(최소 1년 이상) 저장 후 처리시설로 이송하여야 한다.

중·저준위 폐액의 경우는 시설내 종합 수집조를 설치하여 관리하며, 일정량 이상이되면 분석후 처리시설로 이송된다.

배출가능 폐액은 수집조를 설치하여 분석, 확인 후 방사능이 $10^{-8}\mu\text{Ci}/\text{ml}$ 이하이면 10배 희석 후 일반 산업폐수 기준을 적용하여 처리 후 배출되도록 한다.

배기가스의 배출기준은 각국의 규제기준을 근거로 설정하는 것이 일반적이며, 군분리 공정의 취급 핵종이 다양한 점을 고려하여 국내 규제기준인 방사성 원소의 일반인에 대한 공기중 허용농도($2 \times 10^{-14}\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)를 기준하여 10배인 $2 \times 10^{-15}\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 을 설계 기준으로 공정중 발생하는 폐가스 처리시설, 환기계통 및 방사선 감시시설의 설계에 반영되도록 한다.

3. 차폐기준

차폐기준은 차폐실 내에서 취급되는 최대 취급 방사능준위를 기준으로한 차폐평가를 통하여 앞에서 설정된 작업자 피폭 설계기준 및 표면오염 설계기준(최대 허용 표면오염도의 10배 ; $10^{-6}\text{Ci}/\text{cm}^2$) 이하로 유지되도록 설계되어야 한다.

군 분리공정의 실증실험을 위해 시설내 공정상에서 취급될 방사능 물질의 최대 방사능준위는 군분리 공정의 경우 28,000MW/Mt 용량으로 연소된 HWR 연료처리 폐액 1t를 기준하여 약 1000ci 정도로 예상되며, Mo-99 생산시설의 경우는 3.5% 농축우라늄으로 제조된 target을 사용하여 batch당 60ci의 Mo-99 생산을 기준할 때 조사

후 target의 최대 방사능준위가 약 4500ci 정도로 예측된다.

차폐실의 최대 취급 방사능준위의 설계기준은 실제 최대 취급 방사능준위의 10배 이상 100배까지를 적용하여 보수적으로 설계한다. 본 시설의 경우 기존시설 내에 차폐시설을 설치하여 활용할 계획이며, 기존시설의 설계기준을 고려하여 실제 최대 취급 방사능준위의 10배 이상(군분리 공정용 차폐셀 : 10,000ci, Mo-99 생산용 차폐셀 : 45,000ci 이상)을 기준하는 것이 타당할 것으로 판단되며, 이 경우 피폭 설계기준과 표면오염 설계기준이 국제기준의 1/10로 설정된 것을 고려할때 보수적인 설계기준으로 생각된다.

제 3 절 방사선 방호시설

1. Containment (차폐셀)

차폐셀은 고준위 방사성 물질을 취급할 때 조업자들이 규정된 허용피폭선량 이하의 안전한 조건에서 운전할 수 있도록 설치되며, 중콘크리트 구조나 납 재질의 벽을 이용하여 차폐된다. 차폐셀은 그 용도에 따라 β - γ 셀과 α - β - γ 셀의 2가지 종류로 구분되며, β - γ 셀의 경우는 기밀유지가 엄격하게 적용되지 않으나, α - β - γ 셀의 경우는 기밀유지가 매우 중요하다. 군분리공정과 Mo-99 생산공정을 위하여 설치되는 차폐셀은 α - β - γ 셀의 기능으로 설계되어야 한다.

차폐셀은 hot laboratories로 널리 사용되는 shielded box와 콘크리트 구조의 hot cell로 구분되며, 납이나 철로 차폐되는 shielded box는 기밀이 잘 유지되어 α - β - γ 셀로 사용이 가능하지만 콘크리트 구조의 hot cell은 α - β - γ 셀로 사용하기위해서는 내부에 별도의 stainless-steel box 형태의 containment를 설치하여야 한다. 본 시설에서는 기존시설의 공간을 활용하기 위하여 납 차폐셀을 차폐시설로 설정하였으며, 차폐셀 내에서 취급되는 공정용액에 의한 부식등을 방지하기 위하여 차폐

셀의 바닥과 공정용액의 접촉이 가능한 높이까지의 차폐벽 내부를 stainless-steel 로 lining 하여야 한다.

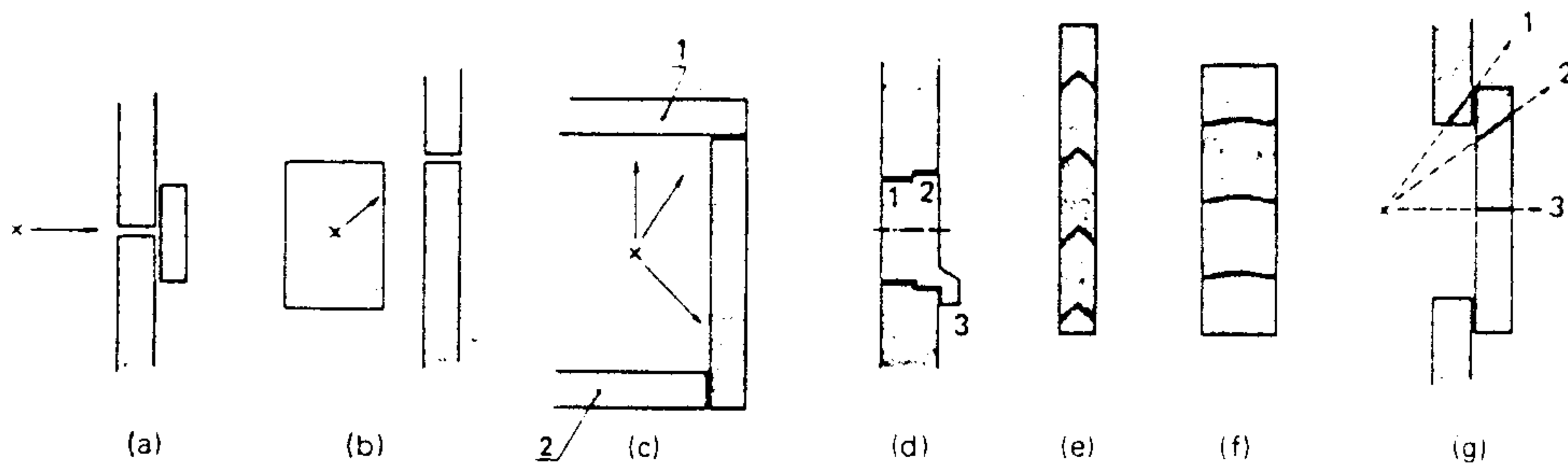
납 차폐셀은 납 블럭을 쌓아서 설치하는 경우와 panel을 연결하여 설치하는 경우로 구분되며, 본 시설의 차폐셀의 경우는 방사선 누출을 방지하기 위하여 가능한 panel형태의 구조로 연결부위는 그림 2-1에 표기된 내용을 참고로하여 설계하는 것이 바람직하다. 이 경우 유지, 보수를 위한 access와 공정의 개선을 위한 개조 등이 용이하도록 차폐벽의 한면은 움직이는 것이 용이한 구조로 설계되어야 하며, 출입을 위한 차폐실 문은 이중구조로 하고 문을 열었을 때 α 방사선이 방출되지 않도록 설계되어야 한다. 또한 차폐셀 내의 공정장치로 연결되는 배관이나 배선의 connection 부분에서의 누출 방지를 위하여 그림 2-2와 같이 S자 형태의 이중 sealing 구조로 연결부분이 설계되어야 한다.

그리고 차폐셀의 α -tight seal을 위한 설계기준으로 leak rate는 50mmAq에서 환기설계 기준량의 1%/min 이하, 차폐셀 및 차폐문의 sealing 압력은 250mmAq 이상이 유지되어야 한다.

이상의 설계내용을 기준할때 방사선 누출을 방지하기 위한 containment로는 방사성 물질을 담고있는 공정상의 용기 및 배관, 차폐벽 내부에 lining 형태로 설치되는 stainless-steel box, 납 차폐셀의 3중의 containment 개념이 설계에 적용되었다.

2. Air flow

방사성 물질의 취급시설에서 고려될 수 있는 위험은 방사성 물질의 오염과 확산으로 인한 시설내 종사자와 외부환경에 대한 방사선 피폭 가능성의 증가이며, 이러한 위험을 최소화하기 위해서는 시설 내에서의 공기의 흐름에 대한 설계기준의 설정이 시설의 안전성을 확보하는데 매우 중요한 요소이다.



- (a) A straight joint in front of a source can be compensated (path through material) by a small block;
- (b) A straight joint which is never in front of a source can be accepted if scattered radiation is not too high;
- (c) Typical arrangement of joints of the wall with roof 1 and bench 2;
- (d) Typical step joint: radiation leakage through the gap is reduced by radiation suffering several reflections (absorptions) at interfaces (i.e. no straight radiation path through the gap – the maze principle); the direct radiation path through the joint is the same as for the solid wall. Occasionally, when gaps 1 and 2 are large, it is necessary to provide a 'nose' (part 3) to guarantee no straight leakage path through the gaps;
- (e) Chevron-type joint;
- (f) Curved joint, used for thick shielding walls;
- (g) Shielding requirements at door openings: the shielding thickness provided in line $x \rightarrow 1$ must be the same as that provided in line $x \rightarrow 3$.

Fig.2-1. Construction joints in shield walls.

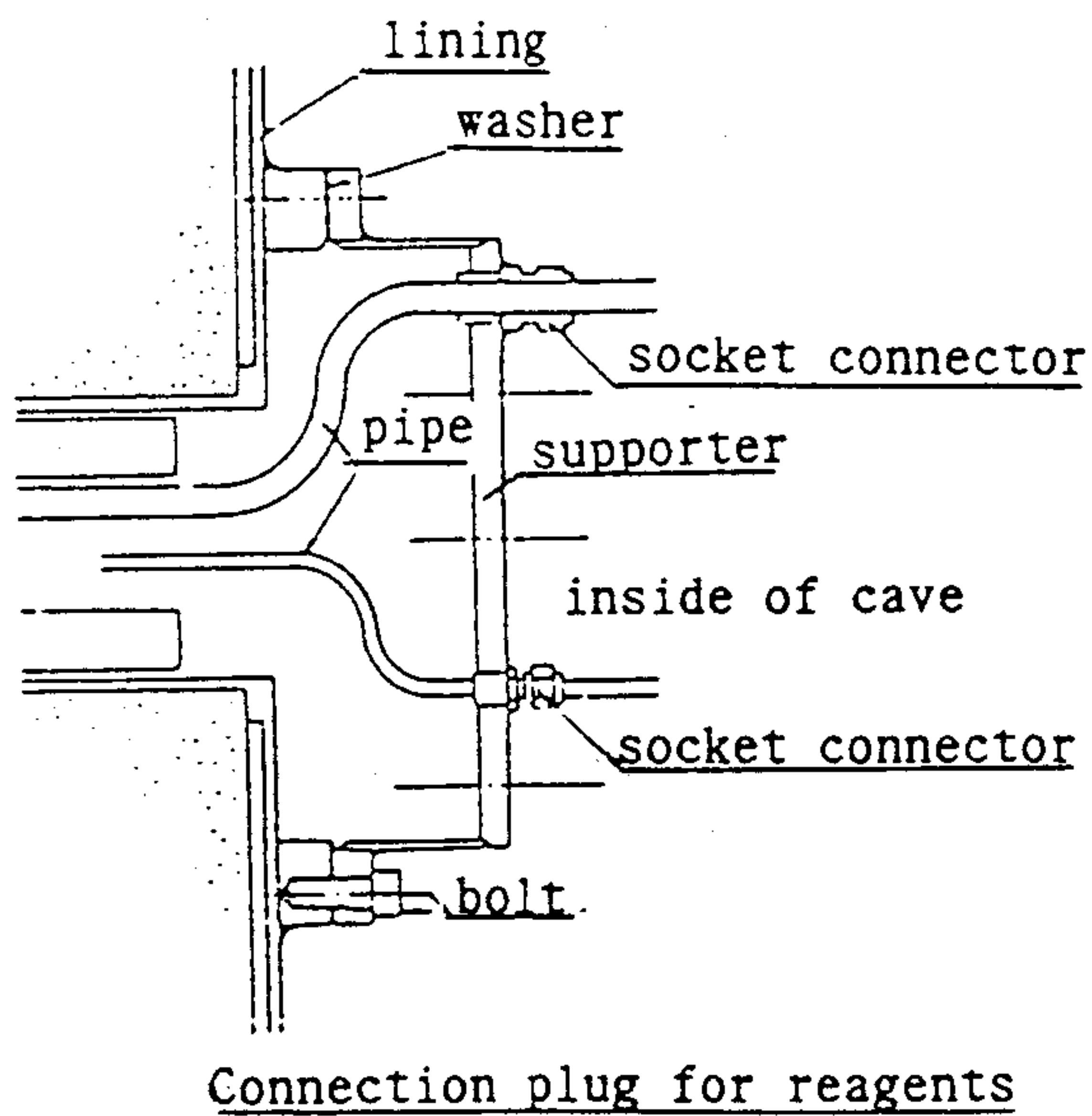
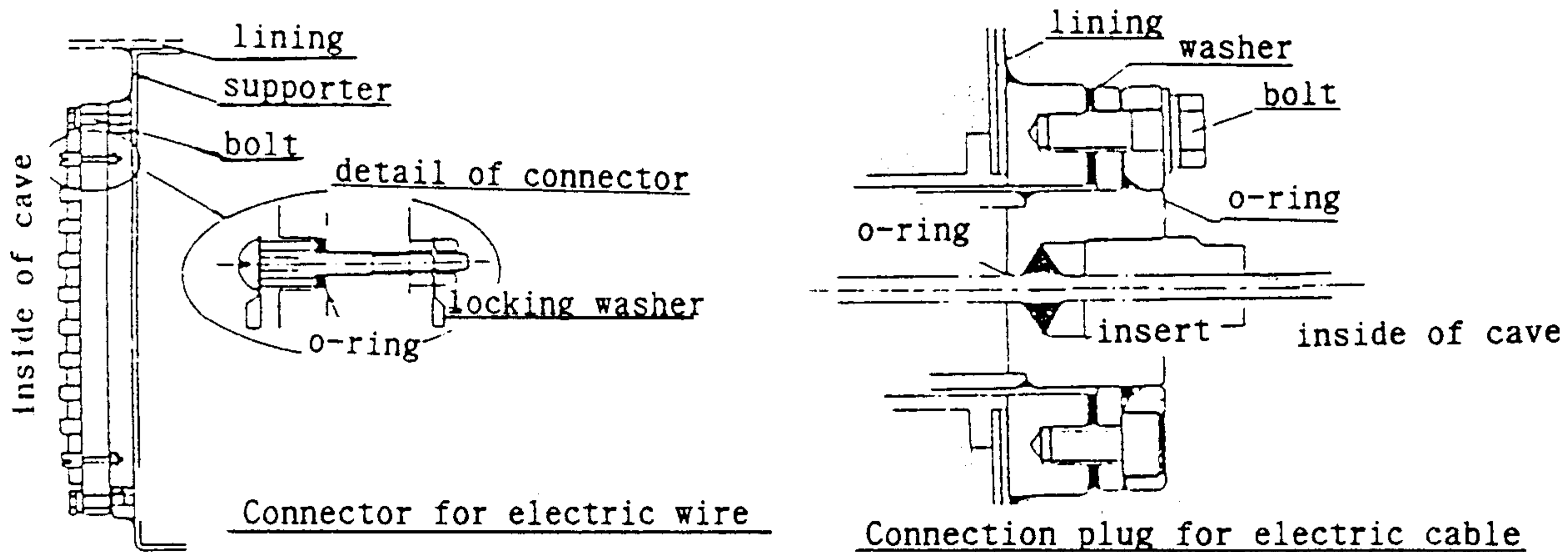


Fig.2-2. Connection drawing of pipes and cables for airtight sealing.

일반적으로 방사성 물질 취급시설은 방사성 물질의 취급 정도에 따라 4개 구역으로 구분되며, 오염의 확산방지를 위하여 항상 청정지역 또는 오염 잠재력이 낮은 지역으로부터 오염 잠재력이 높은 지역으로 공기흐름이 유지되도록 설계되어야 한다.

이러한 흐름은 환기시설에 대한 설계를 수행할때 환기용량의 조절에 의해 오염 잠재력이 높은 지역일수록 부압의 정도가 크게 유지되도록 함으로서 가능하다.

시설내의 공기공급 및 배기흐름은 순환방식과 one-through방식이 있으며, 방사능 오염 가능성이 있는 지역은 일반적으로 one-through흐름 방식을 적용하여 방사성 오염물질의 축적으로 인한 방사능 오염도의 상승을 방지하고, 순환흐름 방식은 냉·난방이 필요한 지역에서 에너지 절약을 위하여 비 오염지역에 부분적으로 적용하는 것이 일반적이다.

차폐셀 내는 정상조업 중에는 작업 종사자가 접근하는 지역이 아니므로 냉·난방의 필요성이 요구되지 않으므로 순환흐름 방식을 적용하는 예가 거의 없고 one-through흐름 방식을 적용하여 설계된다. 환기횟수, 부압정도등은 제3절의 환기계통의 개념설계 내용에서 기술하였다. 배기속도의 설계기준은 차폐셀에 leakage가 발생하거나 차폐셀 내의 공정장치의 유지, 보수를 위하여 차폐셀의 출입문을 개방할때 등의 비 정상상태에서 차폐셀 내의 오염이 외부로 확산되지 않도록 유지(back-diffusion 방지)할 수 있으며, active particle이 덕트내에 체류되지 않는 속도 이상 유지되도록 하여야 한다. 이를 위한 IAEA에서 제시된 기준속도는 0.5m/sec 이상이며, 미국 Reg. guide에서는 125ft/min(0.625m/sec) 이상을 기준으로 한다.

그러나 영국의 BNFL에서는 smoke에 의한 cupboard phase 유지 여부 측정실험에서 최소속도가 0.75cm/sec인 실험결과를 근거로 현재 배기속도의 설계기준을 1.0m/sec 이상으로 설정하고 있다. 그러나 높은 공기 배기속도는 지나친 소음발생을 유발하며, 분말형태의 방사능 물질을 취급하는 공정에서는 분말의 부유로 인해 오히려 오

염이 확산되는 경우도 있다.

따라서 대부분 습식공정 장치들이 설치되어 운전되는 본 시설의 차폐시설에서 배기속도 설계기준은 1m/sec로 설정하며, 단지 Mo-99 생산을 위하여 조사 후 target을 해체하는 공정을 위한 차폐셀의 경우는 일부 오염물질의 부유 가능성을 배제할 수 없으므로 back-diffusion을 방지할 수 있는 최소속도인 0.75m/sec를 설계기준으로 설정하는 것이 타당한 것으로 판단된다.

3. 오염감시 및 경보시설

일반적으로 방사성 물질 취급시설에서 방사선으로부터 조업자들을 보호하기 위하여 요구되는 방사선 안전 방호체계는 1차적으로 차폐시설이나 원격 조작장치에 의한 운전등의 물리적 방법에 의한 방법과 함께 2차적으로 안전관리 체계에 의한 방호방법이 있으며, 이는 특히 시설내의 종사자와 시설의 오염감시를 통한 방호개념이다.

시설내 종사자에 대한 오염감시는 시설내 공정장치의 조작을 위하여 방사선원에 노출될 가능성이 있는 조업자들의 불필요한 피폭을 방지하며, 피폭량의 관리를 통하여 과도한 피폭을 예방할 수 있다.

이를 관리하기 위한 장비로는 인체 전체의 피폭량을 측정할 수 있는 whole-body counter와 손, 발의 오염정도를 측정할 수 있는 hand-foot monitor가 있으며, 개인이 휴대함으로써 개인 피폭량을 측정할 수 있는 film badge, ring or pocket dosimeter, TLD 등이 있다.

시설내 종사자들의 피폭관리를 위하여 오염 가능 지역내에서 항상 개인이 휴대할 수 있는 장비로는 여러가지의 핵종과 fission-product의 오염 가능성등을 고려하여 기준 피폭량 이상일 때 경보가 울리는 개인 monitor를 착용하도록 하며, 시설내로부터 밖으로 나올때 의복이나 피부등의 오염여부를 측정, 감시할 수 있는 장비가

설치되어야 한다.

시설내에 종사하는 조업자의 피폭량 대부분이 조업지역의 오염으로 인하는 점을 고려할때 오염 가능 지역에서의 방사선량을 계속 감시함으로써 조업자의 피폭원인 및 이력을 확인할 수 있으며, 시설내 방사선에 의한 위험이 발생할 경우 이를 감지하고 알려주기 위해서 시설의 오염을 감시하는 장비가 필요하다. 시설오염 감시 장비로는 주로 area monitoring 방법이 많이 사용되고 있다. Area monitoring은 공기중의 방사성 aerosols이나 가스의 농도측정이나 표면오염을 측정하는 감시방법을 이용하며, 대부분의 hot laboratories에서는 조업자가 주로 상주하는 지역에 고정식의 2중 측정장치를 설치하여 측정 신뢰도를 높이도록 한다.

또한 차폐셀 내에도 오염도를 측정하는 측정장치를 설치하여 감시하며, 각 차폐셀에서 배기되는 공기도 각각 가스 monitor를 설치하여 방사선량을 감시하여야 한다. 그리고 모든 area monitoring 장치와 가스 monitor에서 측정된 방사선량은 중앙 제어실과 차폐실 조작판넬에서 시간별로 감지되어야 하며, 일정 기준선량 이상일 경우 표시등과 함께 경보가 울리도록 설계되어야 한다.

따라서 시설내에 설치, 운영될 감시 및 오염 측정장치는 다음과 같다.

- 개인 피폭관리
 - Hand-foot monitors
 - Film badges
- 시설 오염관리
 - Area radiation monitor/constant air monitors
 - Air sampling monitors
 - 차폐셀 배기가스 monitors
- Central readout and alarm system

제 4 절 결 언

국내, 외 관련시설의 규제기준 및 설계기준들을 참고로하여 군분리 공정의 실증 실험을 위한 시설에서의 조업자 피폭 설계기준은 최대허용선량(MPC)의 1/10을 기준으로 설정하였으며, 시설에서 발생하는 폐액의 방류기준으로는 국내 규제기준중 가장 보수적인 방사성 동위원소의 종류를 알 수 없는 경우의 허용농도 규정인 $3 \times 10^{-8} \mu\text{Ci/ml}$ 를 기준하고 10배 희석후 일반 산업폐수 기준을 적용하여 배출할 수 있도록 설계기준을 설정하였다.

또한 배기가스의 배출기준도 국내 규제기준인 방사능원소의 일반인에 대한 공기 허용농도인 $2 \times 10^{-14} \mu\text{Ci/ml}$ 의 10배를 설계기준으로 설정하였다.

차폐기준은 시설내 취급최대 방사능 준위를 고려하여 군분리 공정을 위한 차폐셀의 경우는 10,000Ci, Mo-99 생산을 위한 차폐셀의 경우는 45,000Ci를 설계기준 최대취급 방사능준위로 설정하였다.

Containment 유지를 위하여 차폐셀은 α - β - γ 셀의 기준형태로 기밀이 유지되도록 하며, 사고시를 대비하여 취급용기, stainless steel box, 납 차폐셀의 3중 barrier로 구성되는 containment 기준을 설정하였다.

차폐시설의 공기흐름은 안전성을 우선적으로 고려하여 one-through 흐름방식을 적용하고 배기속도는 BNFL의 cup board phase 유지여부 실험결과를 활용하여 1m/sec를 기준으로하며, Mo-99 생산을 위한 조사후시료 해체를 위한 차폐셀의 경우는 비산을 고려하여 최소속도인 0.75m/sec를 기준속도로 설정하였다.

오염 및 경보시설로는 개인 피폭관리장비와 시설 오염감시장비를 이용하며, 지역내 방사능준위 및 이력이 operating console과 시설의 중앙제어실에서 판독 및 감시되고 이상시 경보되도록 기준을 설정하였다.

이상의 내용을 기준으로 시설의 기본 및 상세설계가 수행되며, 시설의 안전성분석 및 인.허가 자료로 활용될 수 있다.

여 백

제 3 장 시설의 개념설계

여 백

제 1 절 서 설

고준위 방사성 폐액중에 잔류하는 장수명 핵종과 유용 핵종을 분리하기 위한 군 분리공정의 개발을 위해서는 공정조건 및 공정장치의 개발과 함께 습식공정 상에서 고준위 방사성 물질을 안전하게 취급할 수 있는 기술이 확보되어야 한다.

또한 실험실에서 비방사능 물질을 이용하여 공정이 개발되었다 하더라도 실제 방사성 물질을 공정상에서 사용하였을때 물질의 방사성 특성이 화학적 반응이나 공정 처리 과정에서 미치는 영향을 확인하기 위한 실증실험이 수행되어야 하며, 이를 위해서는 시설의 확보가 필요하다.

본 절에서는 1차 년도에 수행한 외국의 시설현황 및 설계현황에 대한 조사, 분석 내용을 기초로 하고 군분리 공정 개발내용을 참고로하여 군분리 개략 공정도를 설정하였으며, 공정용액중 핵종별 기준농도를 설정하였다. 그리고 군 분리 공정내에서 취급되는 비방사능 물질의 물리, 화학적 특성을 정리, 기술함으로서 화학적 특성 또는 부식등과 관련된 사항이 고려되어 설계에 반영될 수 있도록 하였다.

또한 방사성 물질의 취급시설에서 중요한 환기시설과 공정 폐가스 처리계통의 계통구성 및 설계기준 등을 설정하였으며, 공정에서 필요한 시약 및 유틸리티의 공급종류, 방법에 대한 내용을 기술하였다.

그리고 각 단위공정을 위한 차폐셀과 부대시설의 개략 배치도를 기존시설(다목적 연구로 시험시설내 동위원소 시험시설)을 활용하여 설치하는 것을 전제로하여 작성하였다.

차폐셀내 설치되는 공정장치의 안전하면서도 효율적인 운전 및 유지, 보수를 위한 원격 조작장치의 설계를 위하여 군분리 공정장치 특성에 적합한 시험용 원격 조작장치를 선정하였으며, 주요 분야별 설계시 고려사항 등 설계기준을 설정하여 기술하였다.

제 2 절 공정 및 설비계통

1. 공정계통

군분리공정의 실증실험을 위한 시설의 설계를 위해서는 적용될 군분리공정 및 공정장치의 특성등을 이해하는 것이 필요하고, 공정장치들의 효율적인 운전 및 유지, 보수를 고려한 설계의 수행을 위하여서는 기준공정의 설정이 필요하며, 이를 위해 그림 3-1에서와 같이 군분리 기준공정을 설정하였다.

군분리 기준공정은 Cs, Sr과 TRU 및 란탄족 원소로 분리되는 3군 분리공정을 기준으로 고준위 폐액으로부터 mixer-settler를 사용하여 우라늄을 분리하는 TBP 용매추출 공정, 후속 공정에서 TRU와의 공추출을 방지하기 위하여 reflux evaporator를 이용하여 Zr과 Mo원소를 분리하는 탈질 및 고액분리 공정 등의 전처리 공정과 전처리 후 3군 분리를 위한 2가지의 기준공정을 선택하였다.

첫째공정은 용매추출 공정으로서 mixer-settler를 이용하여 organic phase의 TRU 및 란탄족 원소와 aqueous phase의 fission products로 분리한 후 organic phase는 mixer settler를 이용한 역추출 방법에 의해 TRU원소와 란탄족 원소로 분리하고, aqueous phase의 fission products 중 Cs, Sr을 무기이온 교체를 이용하여 분리하는 공정이다.

또다른 공정은 OXAL공정으로서 수산(oxalic acid)를 이용한 침전법에 의해 TRU와 란탄족 원소의 침전물과 fission products를 포함하는 여액으로 분리한 후 여액으로부터 Cs, Sr은 앞의 용매추출 공정에서와 같은 방법으로 분리하고 침전물은 다시 질산용액에 용해한 후 용매추출 방법이나 이온교환 방법에 의한 란탄원소와 TRU로 분리하는 공정이다.

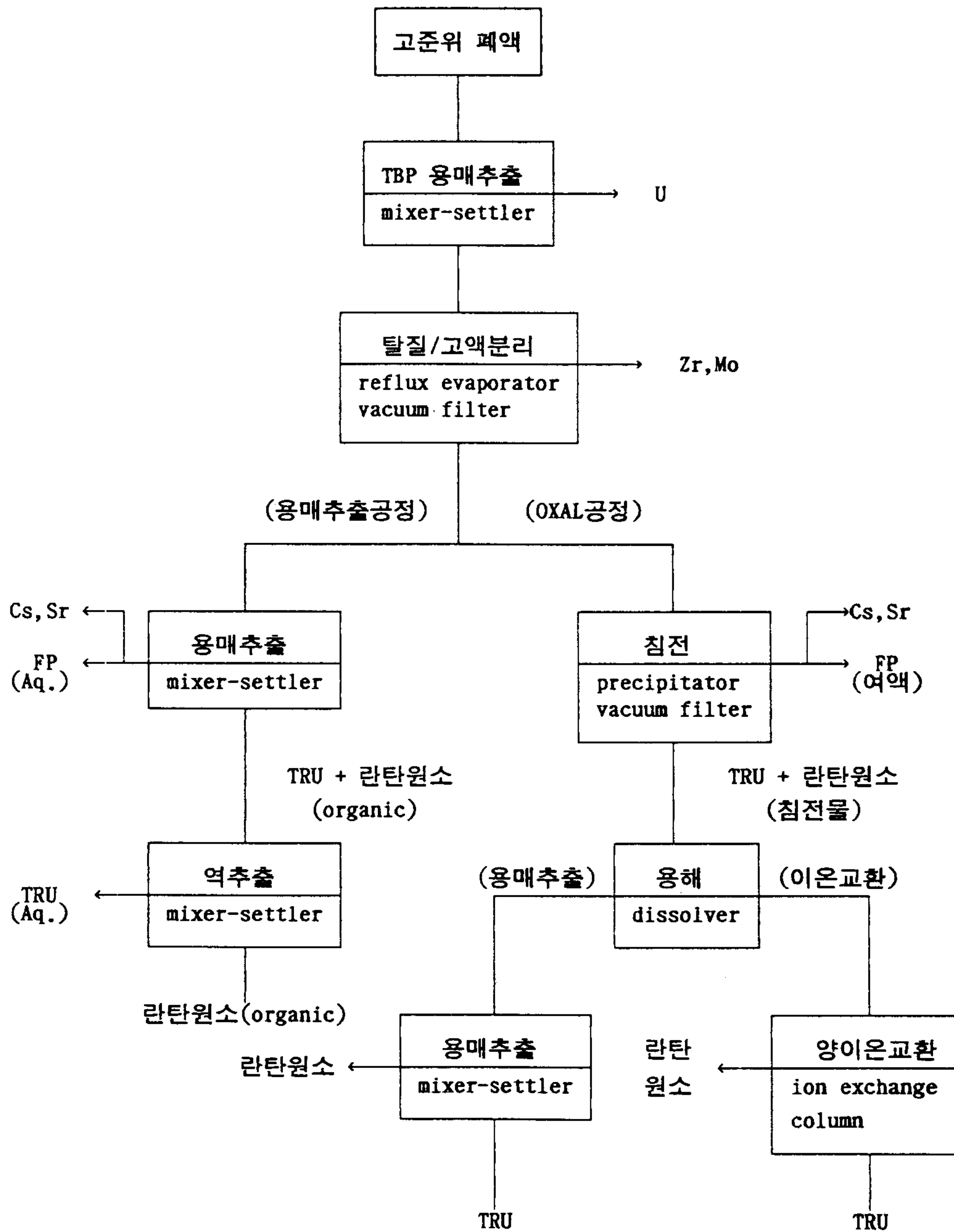


Fig.3-1. Block diagram of group separation process.

군분리 공정의 단위 공정별 주요특징은 표 3-1과 같으며, 실증실험을 위해 이용될 모액의 핵종별 기준농도는 표 3-2와 같다.

Table 3-1. The characteristics of each unit process.

단위 공정	기능	주요 장치	취급 물질	운전 조건
TBP에 의한 U 제거공정	고준위 폐액중 잔존한 U의 제거공정	mixer-settler	TBP	상온
탈질 및 고액 분리공정	Zr, Mo의 침전분리 및 산도조절	탈질조, 여과장치	HCOOH	90℃
용매 추출 공정	회토류 및 악티나이드의 상호분리	mixer-settler	HDEHP, DTPA, HNO ₃ lactic acid, dodecane	상온
OXAL 공정	회토류 및 악티나이드의 상호분리	침전조, 여과장치 용해조	H ₂ C ₂ O ₄ , HNO ₃	상온
양이온 교환공정	회토류 및 악티나이드의 상호분리	양이온 교환탑	DTPA	60-70℃ 1000 psia

Table 3-2. Estimation of chemical composition in high level liquid wastes.

핵종	기준농도 (mol/l)	핵종	기준농도 (mol/l)
Fe	0.038	Cd	0.0085
Cr	0.0091	Te	0.0068
Ni	0.0060	La	0.0147
Al	0.00076	Ce	0.0330
Na	0.076	Pr	0.0137
Mo	0.069	Nd	0.0434
Tc	0.015	Pm	0.0012
Sr	0.0165	Sm	0.0086
Ba	0.0207	Eu	0.0019
Cs	0.0371	Gd	0.0010
Rb	0.0074	Y	0.0084
Zr	0.069	Am	0.0012
Ru	0.034	Cm	0.00025
Rh	0.0080	U	0.0076
Pd	0.018	Pu	0.00095
Ag	0.00085		

모액의 기준농도는 28,000Mwd/Mt으로 연소된 LWR 핵연료를 purex공정에 의해 처리한 후의 고준위 폐액을 기준으로 제시된 농도이다. 또한 공정 중에서 취급되는 비 방사성 화학물질의 특성을 조사하였으며 그 내용은 표 3-3과 같다.

Table 3-3. The properties of dangerous materials used in process.

구 분	취급 물질명	분자식	비 고
화재 위험 물질	formic acid	HCOOH	인화점 : 69℃
	TBP	(C ₄ H ₉) ₃ PO ₄	146℃
	DIDPA	(C ₂ OH ₄) ₃ PO ₄	204℃
유독 물질	formic acid	HCOOH	허용치 : 5mg/m ² in air
	oxalic acid	H ₂ C ₂ O ₄	1mg/m ² in air
	TBP	(C ₄ H ₉) ₃ PO ₄	2.5mg/m ² in air
	nitric acid	HNO	2.5mg/m ² in air

추가로 시설내 설치 예정인 Mo-99 제조를 위한 공정은 우라늄 fission method에 의한 알루미나 흡착공정을 기준공정으로 그림 3-2와 같으며, 제조용량은 batch당 Mo-99 60 Ci 생산을 기준으로 설정하였다. Mo-99 제조를 위한 공정에서 사용되는 주요 비 방사성 화학 물질로는 Al₂O₃, HNO₃, NH₄OH 등이 있으며 이중에 HNO₃와 NH₄OH는 화학적으로 독성이 있으며, 부식성이 강한 물질이다.

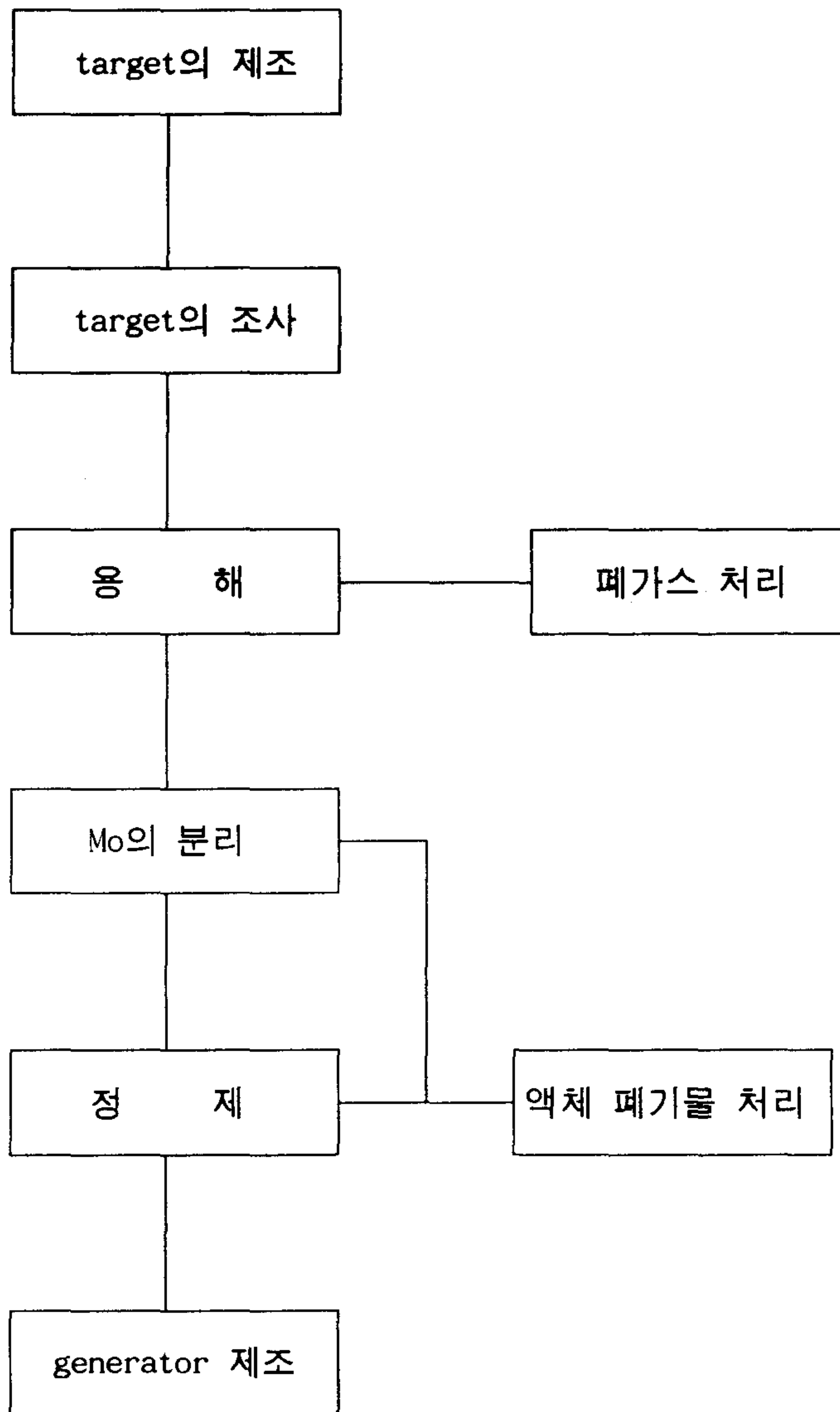


Fig. 3-2. Flow chart of fission ⁹⁹Mo production process.

2. 폐가스 처리계통

군분리 공정의 운전과정에서 발생하는 폐가스로는 차폐셀 내에 설치되는 공정장치로부터 반응에 의해 생성되는 반응가스와 반응가스의 배출시 동반되는 aerosol등이 있으며, 이러한 폐가스들은 방사성 용액의 화학적 처리과정에서 발생하는 것으로 방사성 물질들이 함유되므로 환기시설로 배기하기 전에 공정시설 내에서 반드시 처리되어야 한다.

군분리 공정에서 발생이 예상되는 폐가스의 종류로는 전 처리공정인 탈질 및 고액 분리공정과 oxal공정 중 용해공정 과정에서 reflux condenser나 dissolver에서 질산, formic acid ; oxalic acid와의 반응에 의해 발생하는 NOx, CO₂, H₂O 등과 이들 가스에 동반되는 fission aerosol이 주성분으로 군분리 공정에서 발생하는 폐가스의 50% 이상이 이 공정에서 생성된다. 그 이외에도 buffer 저장조 또는 폐액 저장조의 open vent를 통해 배출 가능한 fission aerosol등이 있으며, 그 내용을 요약하면 표 3-4와 같다.

또한 발생하는 폐가스 중 NOx와 fission aerosol은 가능한 95%이상 제거되어야 한다.

NOx가스의 경우 그림 3-3에서 보는바와 같이 가스 세정장치(gas scrubber)에서 산화시켜 NO₂를 변화시킨 후 water scrubber나 alkali scrubber에서 세정하면 폐가스 중 NO₂가스 농도가 10%이상인 경우는 제거효율이 95%이상이며, fiber packing이 채워진 HEME(high efficiency mist eliminator) 충전 흡수탑을 설치할 경우는 탈질 및 용해공정에서 발생하는 NOx 및 fission aerosol의 99%이상 제거된다.

또한 공정용액 용기나 폐액 저장조에서 발생하는 aerosol의 경우는 냉각수를 이용한 gas cooler를 이용하면 80~90%가 제거된다.

따라서 본 시설에서 적용되는 폐가스 처리공정은 그림 3-4에서와 같이 탈질 및

Table 3-4. The kinds of off-gas released from process equipments.

단 위 공 정	발 생 장 치	폐가스 종류
탈질 및 고, 액 분리공정	reflux condenser vacuum filter	NOx, fission aerosol
oxal 공정 - 침전 공정 - 용해 공정	pricipitator vacuum filter dissolver	fission aerosol NOx, fission aerosol
공정 용액 buffer 저장	tanks	fission aerosol
폐액 저장	tanks	fission aerosol

용해공정에서 발생하는 폐가스는 aeration에 의한 산화공정, 가스 세정기 및 HEME를 거치도록 하며, 공정용기 또는 폐액 저장조의 open vent에서 배출되는 aerosol은 gas cooler를 설치하여 통과시키고, HEPA 여과기를 거친후 환기시설로 배출되도록 하며, 이 모든 장치는 차폐시설내에 설치되어야 한다.

또한 각 차폐셀에서 발생하는 공정 폐가스는 각 차폐셀에서 처리한 후 각 차폐셀에 설치된 HEPA 여과기를 거친후 시설의 종합 환기시설로 배기되도록 설계기준을 설정하였다.

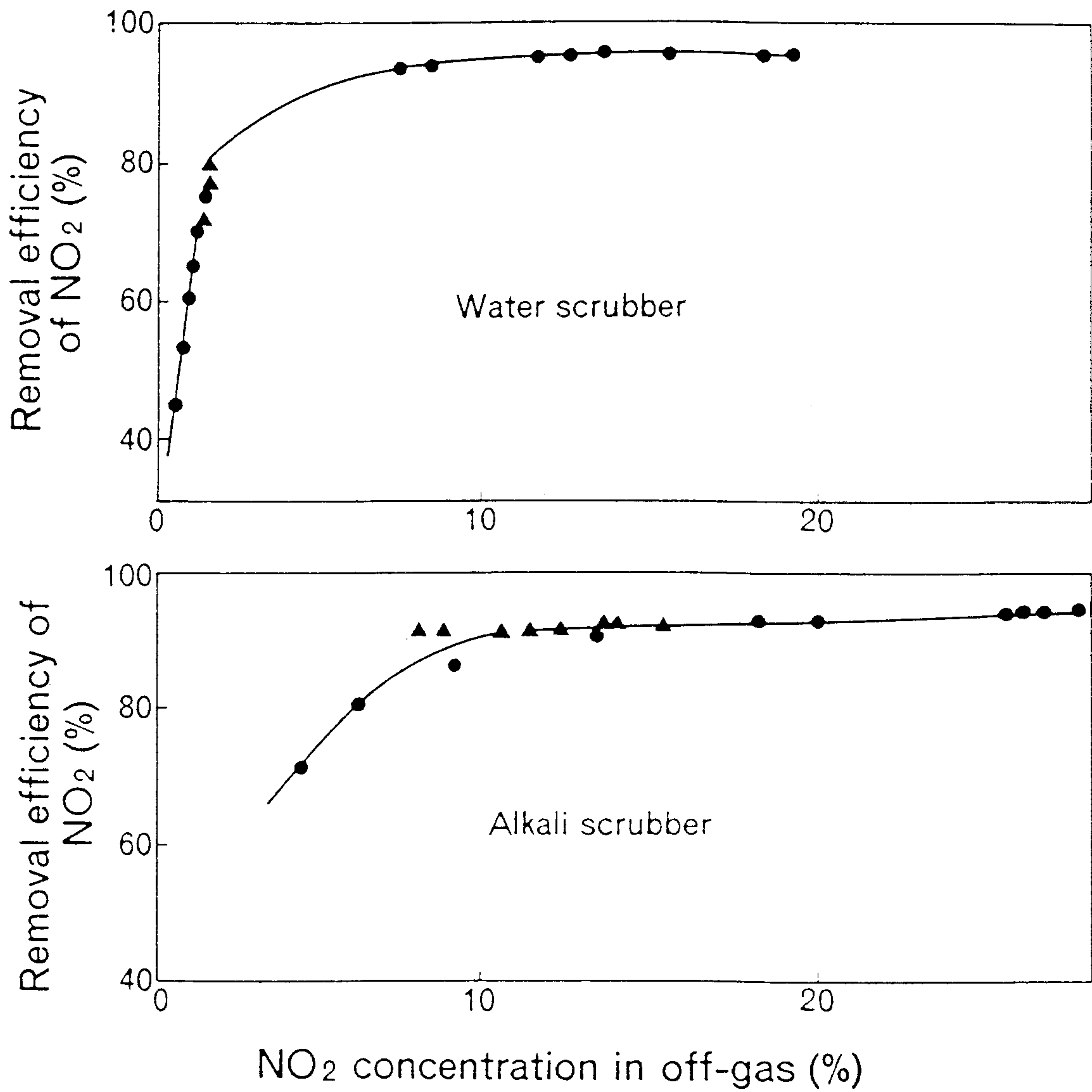


Fig.3-3. Removal efficiency of NO₂ in water and alkali scrubbers.

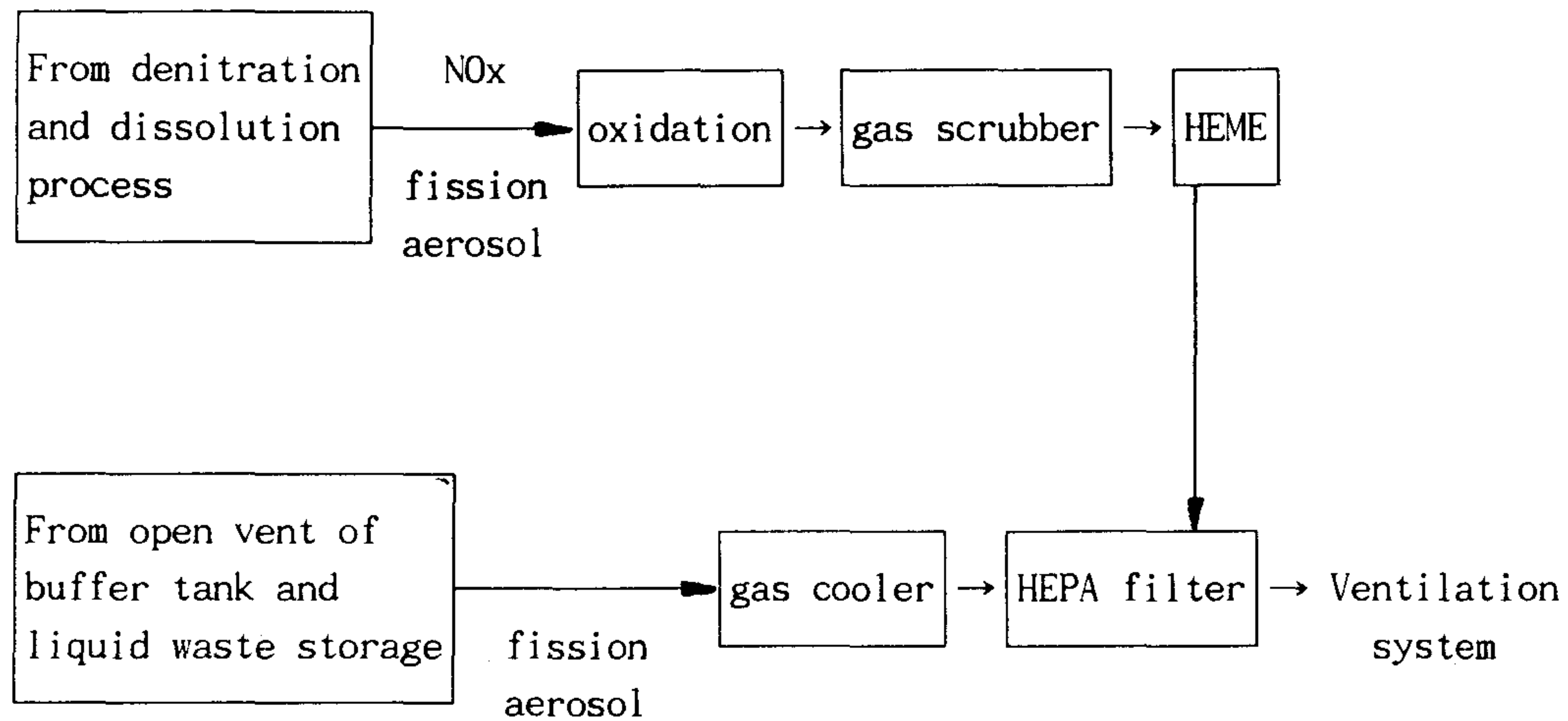


Fig.3-4. Block diagram for off-gas treatment process.

추가로 설치 예정인 Mo-99 제조공정에서 발생하는 폐가스는 조사후 target을 질산용액에 용해하는 과정에서 주로 생성되며, 발생하는 폐가스의 종류는 균분리공정에서 언급된 폐가스 외에 휘발성 fission 가스인 I-131과 Xe-133이 발생된다.

I-131을 제거하기 위해서는 AgNO_3 가 함유된 silica gel로 채워진 여과기나 활성탄 여과기가 설치되며, Xe-133을 제거하기 위해서는 Xenon의 기화온도가 약 -140°C 이므로 액체 질소에 의해 -140°C 까지 냉각되는 활성탄 trap과 잔존하는 Xe-133의 방사능도를 낮추기 위한 Xenon가스 체류장치(약 30일 ~ 50일 정도)가 추가로 설치되어야 한다.

3. 환기계통

방사능 물질을 취급하는 시설에서 환기설비의 설치는 방사선 피폭과 시설의 오염을 방지하기 위한 것으로 주 목적은 공기의 오염 및 확산으로인해 초래될 수 있는 시설내 조업자들의 피폭을 최소화하고 오염된 공기가 외부로의 누출되는 것을 방지함으로써 시설의 안전을 확보하기 위함이다.

환기계통의 설계에 고려되어야 하는 사항으로는 오염의 확산을 방지하기 위하여 오염정도에 따라 구역을 구분하고, 각 구역의 기능 및 특성에 따라 환기횟수 및 인접 구역과의 차압기준, 시설내 공기의 흐름을 유지하기 위한 환기방법(one-through flow, circulation flow, partial circulation 등)과 배기속도 기준등이 설정되어야 한다. 또한 환기설비의 중요성을 고려하여 설정된 설계기준의 유지여부를 확인하고, 시설의 신뢰성 유지를 위한 운전상태의 감시, 차압제어, 사고시 대비하기 위한 설계가 수반되어야 한다.

오염정도에 따른 구역설정은 ISO기준, UKAEA기준, ORNL의 기준과 국내 시설기준 등을 검토한 후 ISO기준을 근거로 표 3-5와 같이 설계기준을 설정하였다.

구역간의 차압설정은 시설내의 오염의 확산을 방지하기 위하여 오염도가 낮은 지역으로부터 높은 지역으로 공기의 흐름이 유지되도록 하기 위함이며, 공정물질이나 조업자의 구역간 출입 시에도 설정된 차압이 유지될 수 있도록 transition zone의 설치를 통한 air lock system을 도입하여 출입시에도 차압이 유지되도록 하여야 한다.

또한 환기횟수는 공정특성에 따라 조업자들이 쾌적하고 안전한 환경에서 작업을 수행할 수 있도록 설정되며, 시설내에 설치되는 장치특성, 취급물질의 종류 및 취급되는 방사능 물질의 방사능준위 등을 고려하여 구역간 차압 및 환기횟수 등이 결정된다. 따라서 본시설의 경우 고준위 방사능 물질을 취급하며, 화학적으로 독성

이 큰 시약류를 취급하는 습식공정인 점을 고려하여 설계기준을 표 3-6과 같이 설정하였다.

Table 3-5. The classification and definition of zones for design.

구 분	구 역
zone 4 (red zone)	hot cell 또는 glove box 내부 (정상운전 상태에서 모든 access 차단)
zone 3 (amber zone)	공정장치의 조작 및 유지, 보수지역 (오염지역, hot cell open시에 오염가능)
zone 2 (green zone)	일반 작업구역, 실험실 등 (정상운전 상태에서 비 오염구역)
zone 1 (white zone)	일반 사무실 (청정 구역)

() : UKAEA 구분기준

* zone 3과 2, zone 2와 1 사이에는 transition zone 설치

Table 3-6. Design basis of air changes and pressure differentials.

구역	환기횟수	차압
zone 4	hot cell : 20~40회/시간 wet glove box : 15회/시간 dry glove box : *1) 6회/시간	25~50mmAq *2) (8~25mmAq)
zone 3	15 ~ 20회/시간	10~30mmAq
zone 2	12회/시간	2.5mmAq
zone 1	일반건물(3~5회/시간) 기준	AMB

*1) : 분말 취급 공정에서는 지나친 환기횟수는 분말의 부유 유발

*2) : IAEA 권고 수치

* Transition zone은 인접 고준위 지역 기준

환기시스템의 구성은 그림 3-5에 표기된 것과 같이 2가지의 모델을 적용하여 설계하는 것이 일반적이며, white zone의 경우는 냉, 난방을 위한 에너지 절약을 위하여 부분적인 순환 loop로 구성한다.

모델 1의 경우는 구역별 독립된 공기흐름을 갖게되므로 구역별 containment 유지가 용이하며, 공기흐름을 위한 loop 구성이 간편한 반면 시설비용 및 운전비용이 높은 단점이 있다.

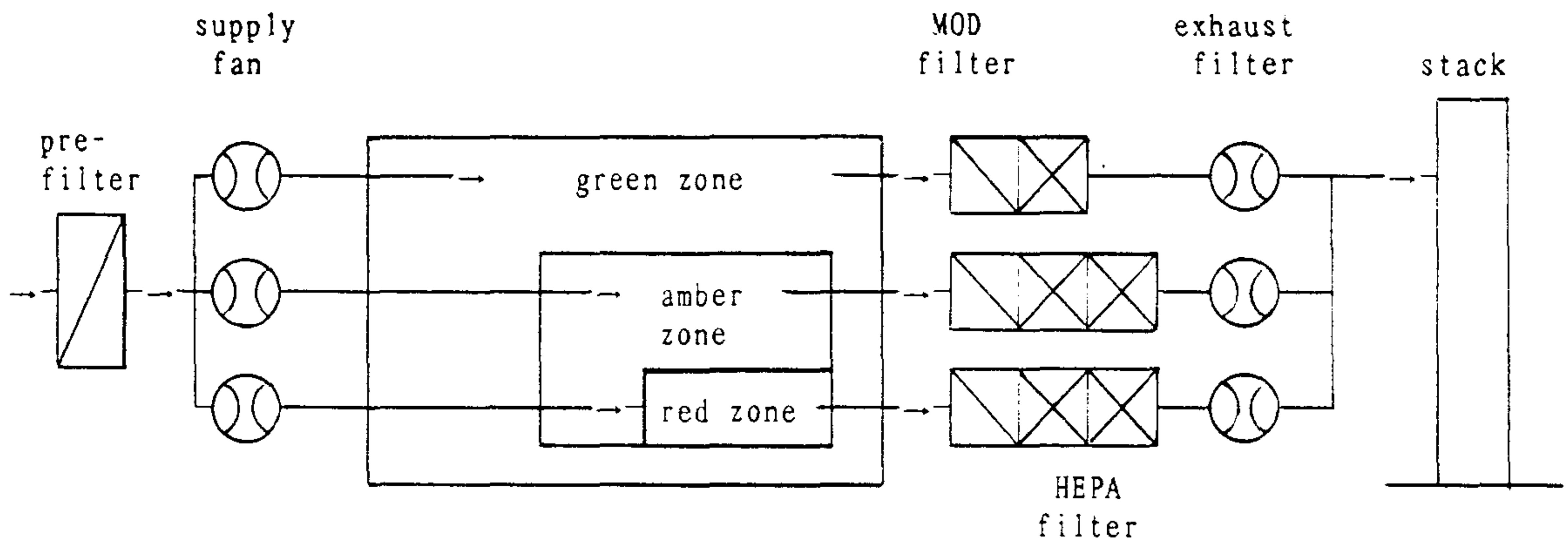
모델 2의 경우는 사고시 구역별 containment 유지가 어렵고 공기의 순환흐름으로 인해 사고시 loop 간 간섭이 발생할 우려가 있으며, 모델 1에 비해 복잡하지만 시설비용 및 운전비용이 모델 1에 비해 저렴하다.

본 시설의 경우는 소규모 시험시설이며, 고준위 방사성 물질을 취급하는 시설인 점을 고려할때 소요비용 보다는 안전성이 더 중요시 고려되어야 하므로 환기시스템의 기준 계통도를 그림 3-6와 같이 설정하였다.

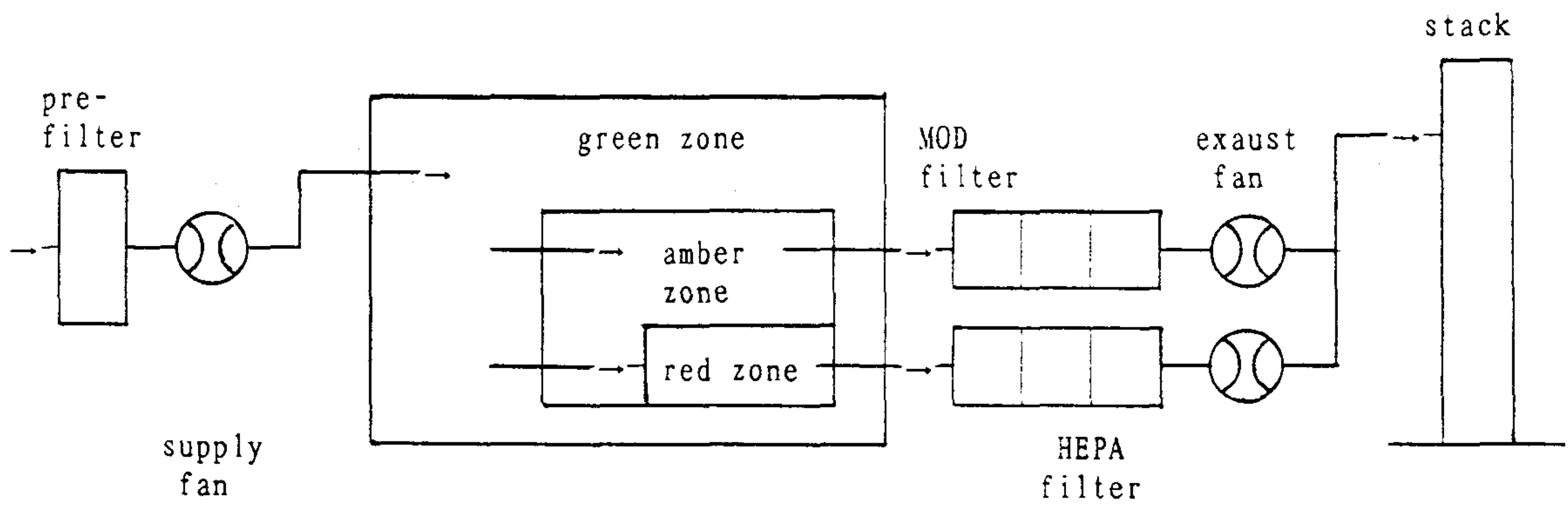
그러나 기존시설을 활용할 경우는 red zone(zone 4)과 amber zone(zone 3)만을 설계에 반영하면 될 것으로 판단된다.

특히 차폐셀 내의 환기시스템 운전상태를 확인하기 위한 계측기기가 설계에 반드시 반영되어야 하며, 그 내용은 그림 3-7에 표기된 바와 같이 차폐셀의 HEAP 여과기의 압력강하, 배기량, 차폐셀의 부압등이 계측기기에 의해 측정되어 조업자가 조작판넬에서 감시 가능하여야 하고, 기준 설정치를 넘을 경우는 표시등과 함께 경보되어야 하며, 동시에 작동중인 fan 및 damper의 운전상태의 정상여부도 감시되도록 설계되어야 한다.

또한 차폐셀 내의 사고발생으로 인해 방사능 준위가 기준 설정치 이상일 경우는 오염의 확산을 위하여 경보와 동시에 차폐셀 내부의 공기흐름이 자동으로 차단되어야 하며 오염 가능지역의 배기덕트가 절대로 청정구역을 통과하지 않도록 덕트가 배열되도록 설계되어야 한다.



환기 system 개략 개통도 (model. I)



환기 system 개략 개통도 (model. II)

Fig.3-5. Basic ventilation model.

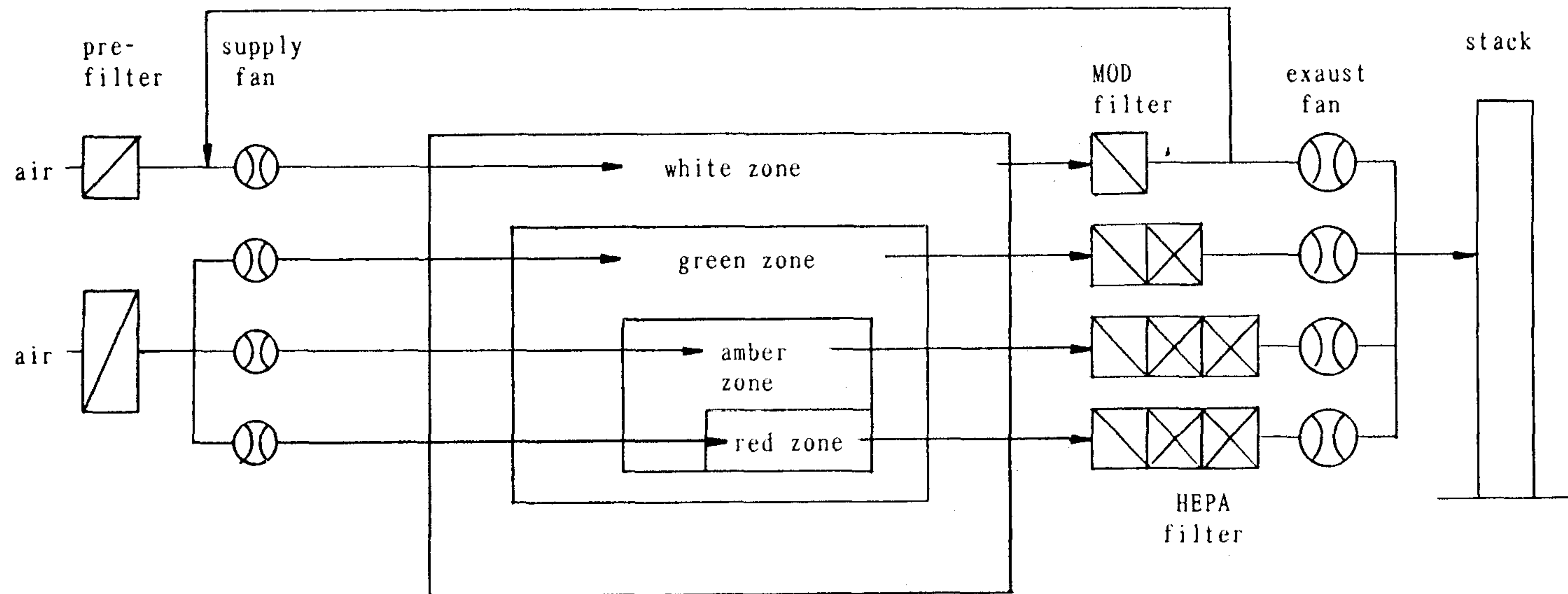


Fig.3-6. Schematic diagram for ventilation system.

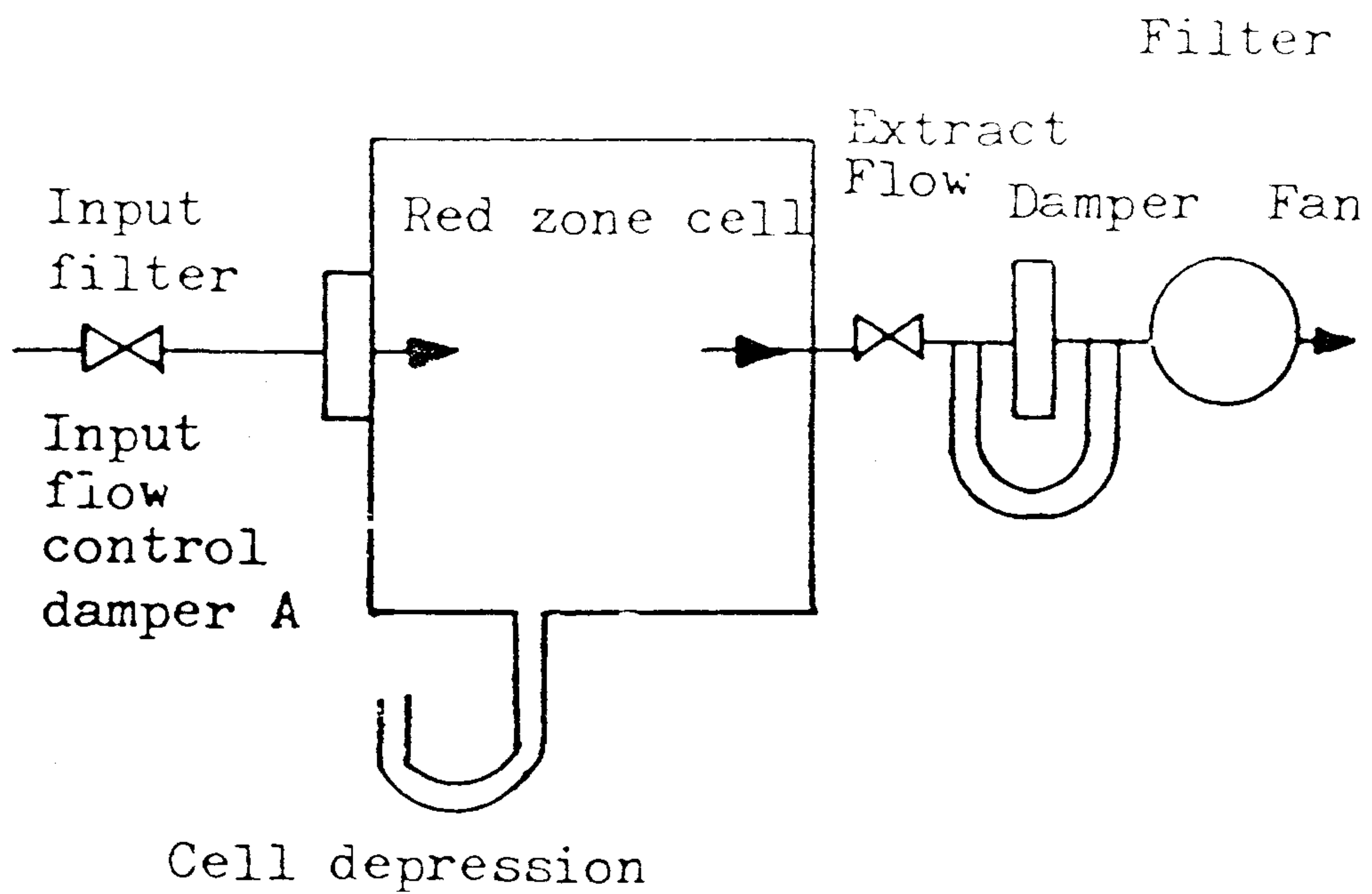


Fig.3-7. Typical red zone instrumentation for ventilation.

4. 유틸리티 공급계통

가. 냉각수

냉각수는 공정내 탈질 또는 질산 용해공정에서 기화되어 발생하는 폐가스를 응축시키기 위한 응축기와 공정용기나 폐액 저장조에서 발생하는 aerosol의 배출을 방지하기 위하여 설치되는 가스 cooler에 주로 사용되며, 사용량도 100l/hr를 넘지 않을 것으로 판단된다.

냉각수의 공급방법은 중앙공급 시설로부터 본 시설이 설치될 기존시설로 공급되는 기존 배관으로부터 분기하여 설치될 냉각수 저장조로 공급되며, 저장조의 용량은 누출등의 사고시에 폐액의 발생량을 최소화 하기 위하여 공정장치 운전을 위한 최소 저장용량(약 350l)을 기준한다.

차폐셀 내의 공정장치로의 공급은 저장조로 부터 펌프에 의해 차폐셀 내로 배관에 의해 이송되도록 한다.

또한 냉각수 저장조로부터 차폐셀 내로 냉각수를 공급하는 방법은 순환공급 방식과 one-through 공급방식이 고려될 수 있다.

순환공급 방식은 close loop로 공급되므로 냉각수로 인한 외부 오염확산의 위험을 감소시킬 수 있으나 순환으로 인해 상승되는 온도를 낮추기 위한 냉각장치가 필요하며, one-through 공급방식은 냉각장치는 불필요하나 사고로 인한 오염시 냉각수에 의한 오염확산의 위험이 있으며 배출시 오염분석을 위한 retention 탱크가 추가로 필요하다.

본 시설에서는 오염의 확산방지를 위한 안전성을 고려하여 순환공급 방법을 선택하는 것이 타당할 것으로 판단하였으며, 공정장치의 이상으로 인한 냉각수의 오염 감시를 위하여 본 연구과제에서 개발중인 용액중 방사능 측정장치를 냉각수 회수 line에 설치하여 on-line 감시가 되도록 설계기준을 설정하였다.

그리고 냉각수 저장조에서 누출이 발생하더라도 냉각수가 floor로 흐르지 않도록 저장용량에 해당하는 barrier를 스텐레스 강판으로 설치하며, 펌프에서의 누출을 방지하기 위하여 공급펌프는 non-seal type을 선정하여야 한다.

또한 냉각수의 설계공급 압력은 가능한 공정장치의 이상이 발생할 경우라도 방사능 물질이 냉각수 loop로 침투되어 냉각수로 인한 오염확산을 방지하기 위하여 냉각수를 사용하는 공정장치의 최고 운전압력보다 높은 압력을 기준으로 설정되어야 한다.

나. 순수(Demi-Water)

시설내에서 사용되는 순수의 용도는 차폐셀내에 설치되는 공정에 공급되는 시약들을 공정조건에 맞춰 농도를 희석하기 위하여 사용되며, 또한 공정중 생성되는 반응가스의 흡수장치인 가스 scrubber에서 흡수용액으로 사용된다.

순수의 공급방법은 군분리 공정장치가 설치될 기존시설내 공급배관으로부터 분기하여 차폐셀 주변에 설치되는 저장조(약 1m^3)로 공급되며, 저장조로부터 이송펌프에 의해 배관을 통해 시약제조 용기와 차폐셀내 공정장치로 공급된다.

순수용액의 누수로 인한 폐액의 발생을 최소화하기 위하여 저장조 주변에 순수용액이 누수되더라도 오염된 바닥으로의 확산을 방지하기 위하여 스텐레스 강판 구조의 저장조 용량과 크기가 일치하는 barrier를 설치하며, 이송펌프는 non-seal 펌프를 사용하여 펌프 seal부분에서의 누수요인을 방지하도록 한다. 또한 이송배관도 가능한 연결부분을 용접처리하고 connector 사용이 최소화되도록 설계하는 것이 바람직하다.

다. 시약류

군분리 공정에서 사용되는 시약으로는 질산(HNO_3), Dodecane, TBP[(C_4H_9) $_3\text{PO}_4$], 개미산(HCOOH), 옥살산($\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4$)등이 있으며, Mo-99 제조공정에서는

질산, 수산화 암모니움(NH₄OH)등이 있다.

시약류들은 시설 외부에서 용기에 담겨져 시설내 차폐셀 인접위치에 격리 설치되는 시약 저장조로 운반되며, 여기서 공정조건에 알맞는 농도로 준비된다. 시약 저장조의 바닥 및 저장용량에 해당하는 벽 높이까지는 스텐레스 강판으로 lining하여 시약이 저장조로부터 누출되더라도 이로인한 위험을 방지할 수 있도록 한다.

시약 저장조로부터 차폐셀 내의 공정장치까지 시약의 공급은 펌프를 이용하여 배관을 통하여 이송하며, 이송펌프는 non-seal 펌프를 사용하고 연결부분은 최소화하여 가능한 용접처리 하도록 설계하는 것이 바람직하다.

시약 저장조의 용량은 국내 위험물 관리 법규를 참고로하여 다음의 규제 기준용량 이하로 설계하여야 한다.

- 농질산(비중 1.49이상) : 200Kg
- | | | |
|---|---------|--------|
| { | Dodecan | : 500l |
| | TBP | |
- 개미산 : 200l

라. 전기설비

전력공급은 군분리공정 및 Mo-99 생산시설이 설치된 기존시설의 안정된 수/배전 설비로부터 전원을 공급받게 되며, 460V MCC, 전선로계통, 통신계통, 조명계통 및 접지계통 등으로 구성되어 있다.

- 460V MCC

MCC는 전원공급 설비로 사용전원과 비상전원 및 무정전 전원으로 나뉘어 각 부하전원을 공급한다.

- 전선로계통

전선로는 내부식성 재질로하여 전력 및 제어용 선로를 구분하여 설치하고, 특히 전선은 높은 온도와 습기 분위기에서 그 기능을 유지할 수 있는 절연강도를 가지고 내방사성 재질의 XLPE/EPR로 하고 외피는 hypalon으로 한다.

- 통신계통

시설운영을 위한 전화/인터폰 및 대피 방송설비를 갖추어 비상사태에 대비한 설비를 갖춘다.

- 조명계통

정상조명, 비상조명 및 필수조명으로 구분하고 특히 차폐실내의 조명은 차폐창을 통한 작업면의 조도가 200lux 이상을 기준으로 하며, 방열성이 좋고 교환이 쉬운 구조로 한다.

- 접지계통

전기장치 외함과 각 설비 및 전선로 등에 접지하여 전기적인 사고시 피해를 최소화 한다.

제 3 절 원격 조작장치

1. 개요

원격 조작장치의 사용 목적은 고준위 방사선 물질의 취급시 작업자와 주변 환경을 방사선으로부터 보호하기 위해 방사선 물체와 작업자와의 거리를 충분히 격리시키거나 또는 그 사이에 방사선을 차폐하는 물체를 설치하는 등의 방법을 취할 필요가 있으므로 원격조작이 필수적이라 하겠다.

그러므로 고준위 방사선 물질을 취급하는 시설에서 이용되고 있는 원격조작 장치는 차폐벽을 사이에 두고 내부에 설치된 장치와 외부 작업자 간에 적절한 신호 및 구동에 의해 요구되는 작업을 수행하는 것이 보통이다. 본 시설에서도 20~25cm 두께의 납차폐 벽을 사이에 두고 차폐창을 통하여 조작 상태를 확인하면서 공정장치를 조작하게 되며, 조작장치는 공정 및 공정장치의 특성에 따라서 선정되어야 한다.

2. 원격 조작장치의 요건

원격 조작장치는 차폐실내의 장치와 부대설비의 유지, 보수 및 해체 등의 작업을 수행하므로 동작의 유연성, 신뢰성, 안전성을 갖추어야 하므로 원격장비에 요구되는 조건은 다음과 같다.

- 중량을 가진 작업물의 취급
- 부품교체 작업의 신속성
- 기용성(dexterity)의 확대
- 크기가 작을것
- 표준규격 및 상업성이 좋은 부품 사용
- 주위 작업물과 충돌시 파손이 작을것
- 예상치 못한 작업에의 대체능력
- 자유도가 클것
- 전용공구가 많을것

3. 원격 조작장치의 특성 비교

원격 조작장치의 선정을 위해서 몇 가지 형태의 원격 조작장치의 기능과 성능을 알아보면 다음과 같다.

원격 조작장치는 master와 slave간의 동력 전달방식에 따라서 servo 기능을 이용한 전기식과 전파 신호를 이용한 무선식 및 cable/bend를 통한 기계식으로 구분되는데, 작은 규모의 차폐실에서 주로 사용되는 원격 조작장치의 종류로는 전기식인 power manipulator와 servo manipulator 및 기계식인 master-slave manipulator 등이 있으며, 그 특성을 살펴보면 다음과 같다.

가. Power manipulator(or Electro mechanical manipulator, EMM)

Power manipulator는 크레인을 사용하여 해결할 수 없는 많은량의 작업을 소화하기 위해 개발되어 천정 크레인에 전기식 manipulator를 장착해서 impact wrench를 이용하여 작업을 수행한다. 대표적으로 많이 사용되고 있는 모형으로는 Par system의 모델 3000/6000, Teleoperator system의 모델 Ap4500 등으로 60~80Kg의 중량물을 가지고 차폐실 전체 공간취급이 가능하나 작업의 효율성이 떨어지고, 전기식 신호에 의해서만 조작이 가능하여 작업시 manipulator에 작용되는 힘을 측정할 수 없는 단점이 있다.

나. Servo manipulator

Servo manipulator는 슬래브 측의 각 관절에 부가되는 힘 또는 토크가 다시 마스터 측으로 전달되는 양방향성(bilateral servo) manipulator로 각 관절의 구동원인 직류 servo motor에 인가되는 전류로 힘 또는토크를 추정하고, 위치제어가 가능하며, 기중량은 10~46Kg으로 작업시 설정치와의 오차에 따른 경보장치를 가지고 있어 안전한 조업이 가능하다.

대표적인 모형으로는 La Calhene의 MA23과 Sargent/CRL의 M2등이다. 그러나 근래에 와서는 성능이 우수하고 보수가 용이한 ORNL의 advanced servo manipulator(ASM)의 사용빈도가 많아지고 있다.

다. Master slave manipulator (MSM)

MSM은 차폐시설에서 가장 많이 사용되는 원격 조작장치로 차폐벽을 관통하는 sleeve와 master, slave, gripper 등으로 구성되며, cable/ bend-pulley 구동장치에 의해서 기계적으로 연결되어 있다. 따라서 슬래브 측의 힘은 cable/bend-pulley 동력전달 장치에 의해서 마스터 측으로 전달되므로 작업자가 그 힘을 감지할 수 있으므로 힘의 반영성(force reflection)이 가장 우수하다.

MSM은 차폐창을 통해서 작업자가 일을 수행하므로 가장 중요한, 시각과 힘을 동시에 감지할 수 있기 때문에 많은 작업량을 해결할 수 있다. 대표적인 모형으로는 Sargent/CRL의 모델 8, E-HD, F와 La Calhene의 MA11 등이 있다.

위의 3가지 원격 조작장치의 성능 및 특성을 비교하면 표 3-7과 같다.

Table 3-7. Typical remote manipulator capabilities.

장치 성능	power manipulator	servo manipulator	master slave manipulator
중 량	60 ~ 80 Kg	10 ~ 40 Kg	경량 : 4~9Kg 중량 : 23~46Kg
자 유 도	7 자유도	7 자유도	7 자유도
end effector의 속도	0.1 ~ 0.5m/s	0.8 ~ 1.5m/s	운전자의 작업속도
힘 의 반 영	없 음	우수함	우수함
작업시간 비 장치 : 인간	joy-stick 40-80 : 1	8 : 1	8 : 1
취급가능 영역	차폐실 전체	차폐실 전체 (주행장치 탑재시)	2.5 x 2.5 x 2.5 (m)

앞에서 기술된 원격 조작장치들의 특징과 균분리공정 및 Mo-99 생산시설에 설치되는 공정기기들의 특성이 반응기, 열교환기, 펌프류 및 배관등의 복잡한 장치류들임을 고려하여 좁은 공간의 차폐실에서 조작이 용이하며, 신뢰성이 높고 힘의 반영성이 우수한 경량물 취급용 master slave manipulator를 선정하였다. 선정된 MSM은 그림 3-8에서와 같이 7의 자유도를 가지며, 또한 그림 3-9에서와 같이 다양한 tongs을 removal fixture를 이용하여 교체 사용할 수 있어 특히 복잡한 구조의 장치를 조작하는데 유리하다. 그리고 비록 경량물을 취급하는 장치이지만 슬래브 암이 수직상태에서는 후크를 이용하여 45Kg정도까지의 중량물을 들어올릴 수 있다.

따라서 본 연구에서는 장치특성에 알맞는 원격 조작장치의 구성 및 설계를 위하여 시험용 원격 조작장치를 구입, 실제 실험장치의 조작시험을 통하여 예상되는 문제점을 보완하여 설계에 반영하는 것이 바람직한 것으로 판단되었다. 조작시험용으로 구입될 원격 조작장치와 유사 모델인 Sargent/CRL model G-HDE의 납차폐 셀에 설치된 외형은 그림 3-10과 같으며, 특징 및 성능을 요약하면 표 3-8과 같다.

Table 3-8. Specification and performance of model G-HDE.

handling capacity	9 Kg
vertical lift capacity with load hook	45 Kg
typical volume coverage	7.7 m ³
typical mounting coverage	3050 mm
typical maximum ceiling height	3060 mm

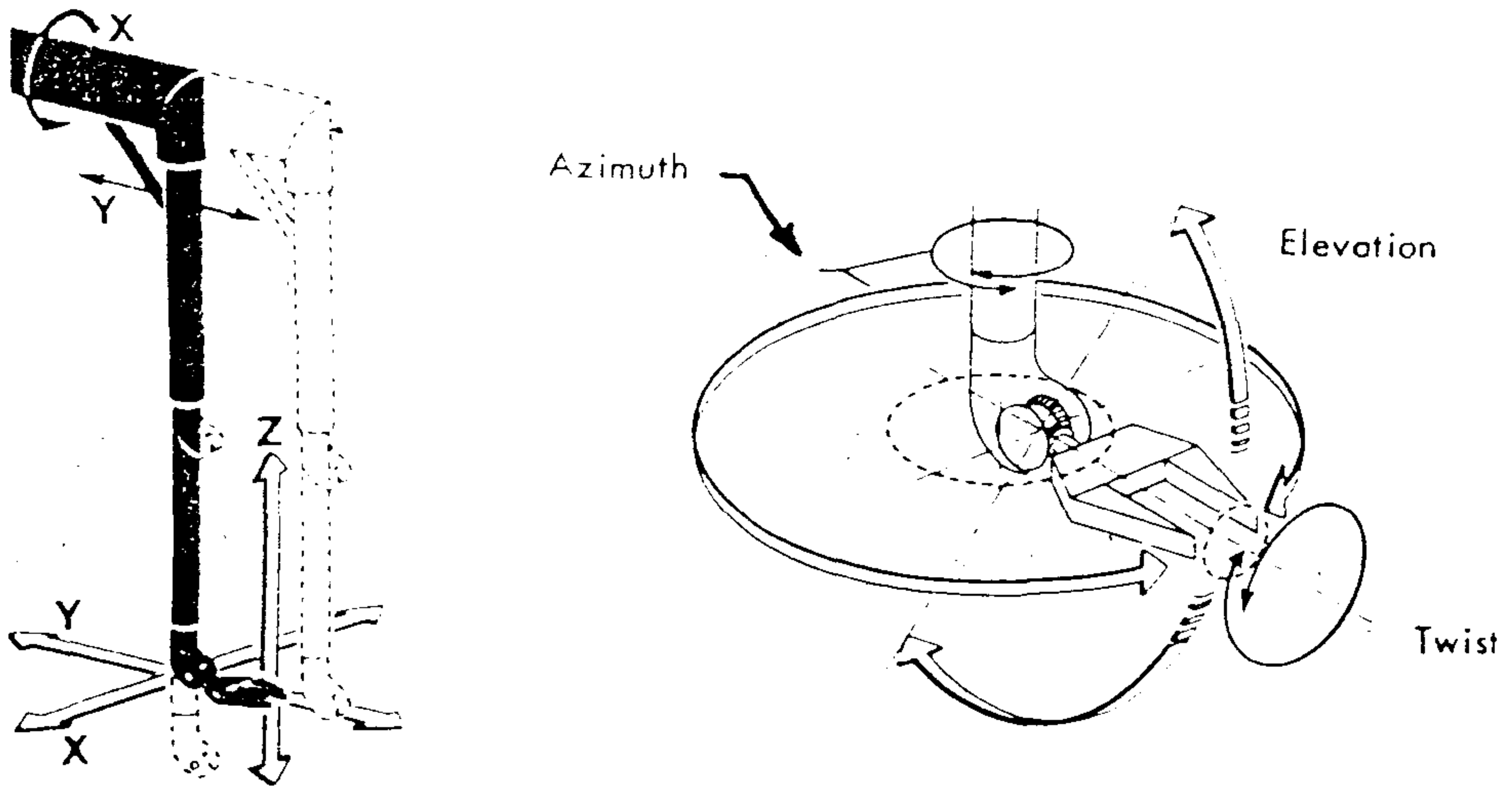


Fig 3-8. The seven degrees of freedom of MSM.

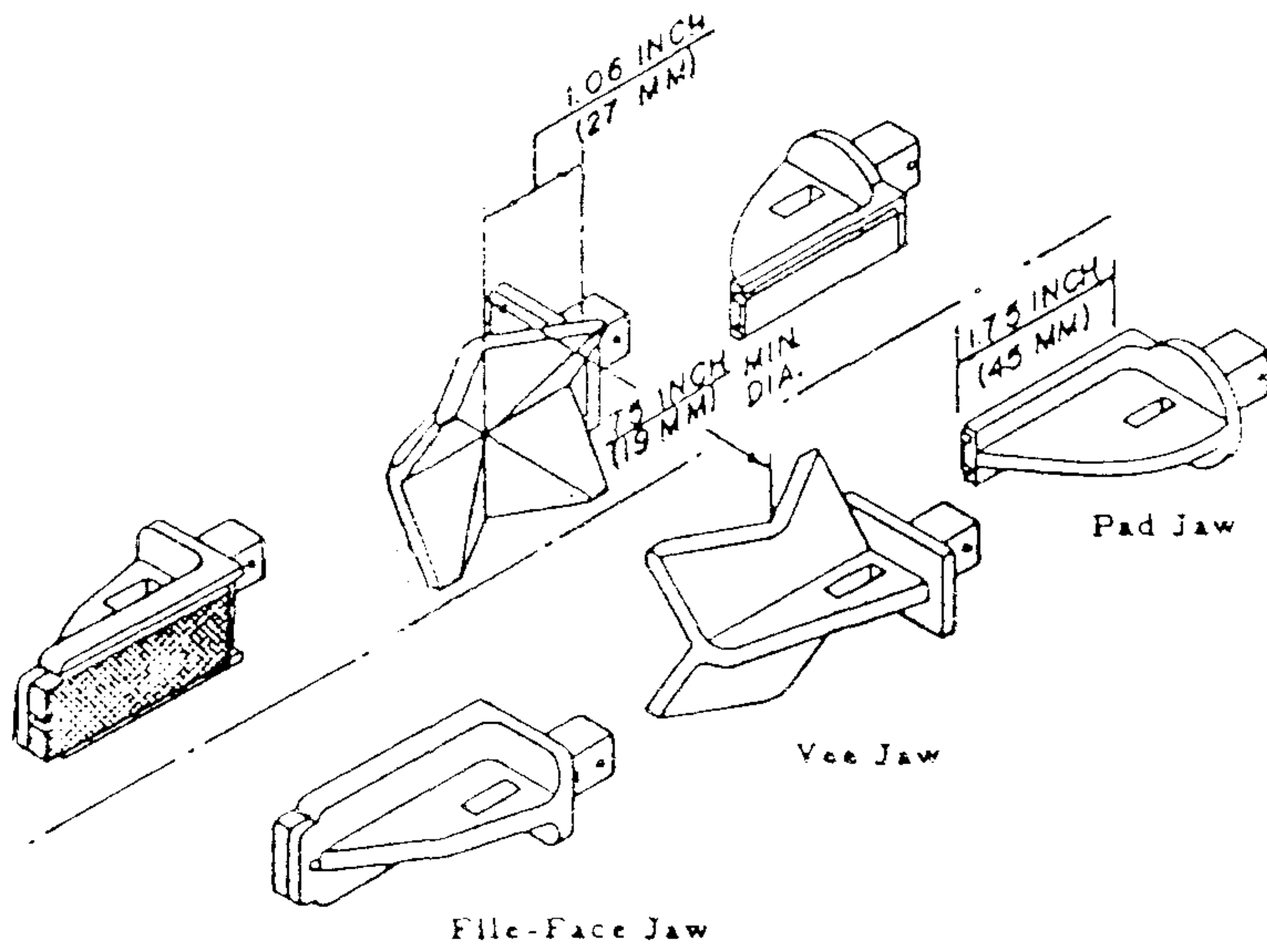


Fig 3-9. Squeeze tongs.

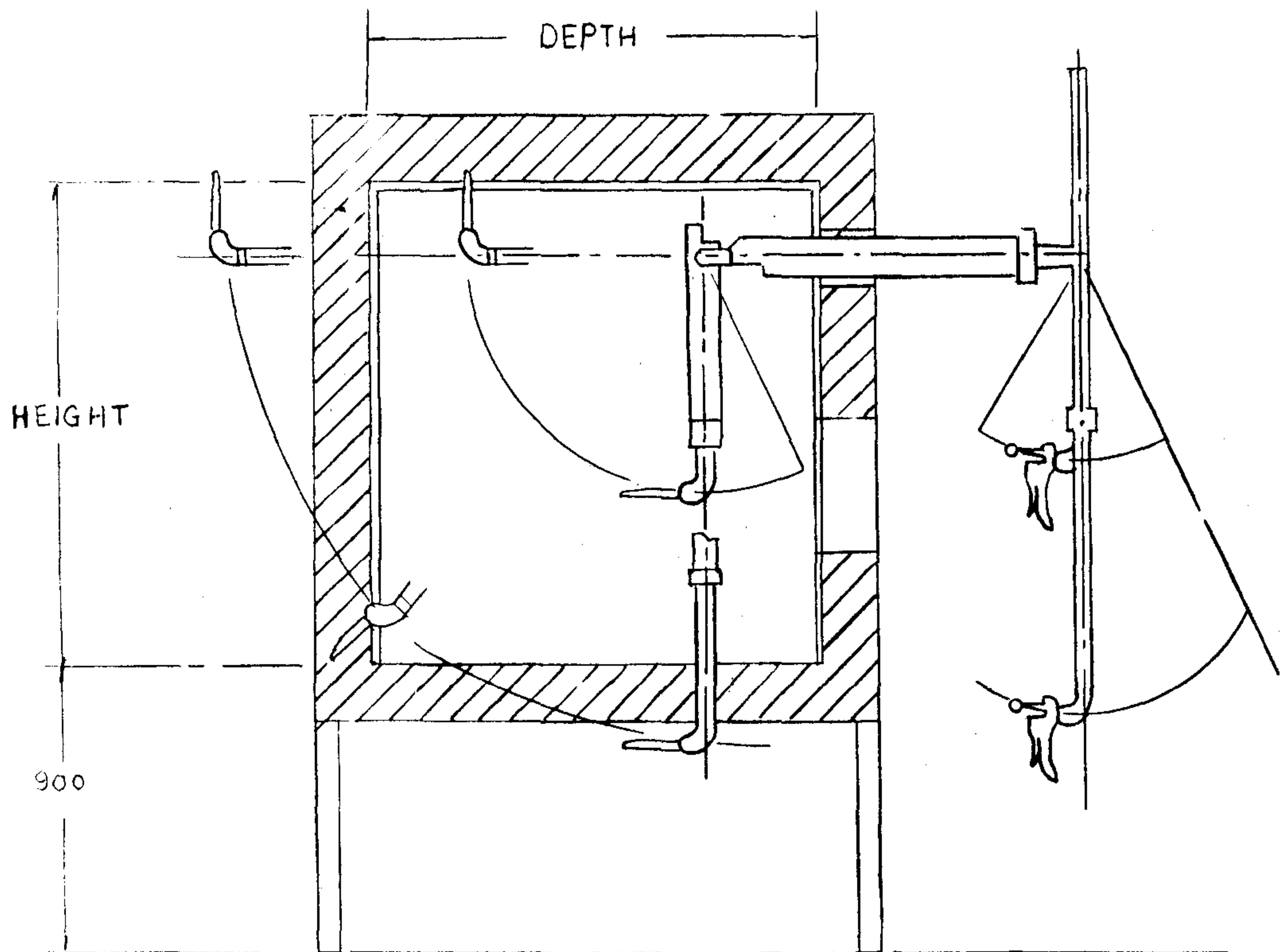


Fig 3-10. Model G-HDE master slave manipulator on lead cell.

4. 시험조작용 MSM의 선정

가. 일반사항

MSM은 차폐벽에 부착되기 때문에 한정된 작업공간을 가지나 작업자가 manipulator 팔에 부과되는 하중이나 물리적인 힘/토크를 작업자의 손에 느낄수 있도록 해주는 힘의 반영성이 뛰어나고 연속동작을 할 수 있어 조작성이 용이하다.

또한 차폐창을 통하여 슬래브 암의 tong을 관찰해가면서 X·Y·Z-motion, azimuth rotation, wrist elevation, wrist twist, tong-squeeze/open 등의 7-자유도를 가지고 공정장치 및 부대시설의 유지/보수작업을 수행한다.

나. 구성

MSM은 cable type으로 마스터 암과 슬래브 암 및 thru tube로 구성되며, 마스터 암과 슬래브 암은 cable과 pulley에 의해 연결되어 있다. 특히 thru tube는 차폐벽으로 관통되기 때문에 시설 건설시 thru tube를 위한 프렌지형 wall tube를 미리 설치해야 한다.

다. 계통설명

- Handling capacity

Manipulator는 tong tips가 최대용량을 움켜쥐고 boom tube를 완전히 뺄거나 접어서 Z-motion을 원활히 수행하는 용량으로 최대 9Kg, 최소 8Kg이다.

- Friction and balance

Boom tube를 완전히 뺄어 천천히 X·Y·Z-motion시 manipulator 장착용 롤러에 힘이 0.85Kg을 넘지 않아야 한다.

- Motion

- X motion : X motion은 작업자가 마스터 암을 가지고 X motion을 행하면 슬래브 암도 같이 좌/우 25° 움직인다.

- Y motion : Y motion은 작업자가 암을 가지고 수직운동을 하면 슬래브 암이 차폐창을 통해 볼때 뒤로 25° , 앞으로 80° 움직인다.

- Z motion : Z motion은 슬래브 암을 수직상태에서 늘이는 동작을 말한다.

- Azimuth rotation

Boom tube를 축으로하여 슬래브 암의 손목부는 25° 기울기를 가지고 회전이 가능하며 공회전 각도는 4° 를 넘지 않는다.

- Wrist twist

슬래브 암의 손목이 수평상태에서 15° 기울기를 가지고 회전 가능하며 공회전 각도는 4° 를 넘지 않는다.

- Wrist elevation

슬래브 암은 X·Y·Z-motion시 최대용량을 가지고 손목 관절을 15° 정도 들어올린다.

- Motion lock

Manipulator가 X·Y·Z-motion 조작시 어떠한 위치에서도 그 동작 상태를 유지시키는 고정장치이다.

- Tamper lock

Manipulator 설치시 또는 운전 휴지시 외부로부터의 간섭을 막기위해 마스터 자체를 고정시키는 장치이다.

- Air restrictor

Thru tube를 통하여 공기의 흐름을 차단시키는 밀폐장치이다.

- Tong

Manipulator의 tongs는 사람의 손가락과 같은 기능을 가진 집게형태로 움켜잡거나 벌리는 기능을 가지며 선회하는 동작 등 여러가지 변화를 가진다. 또한 취급하는 물체에따라 pad jaw, vee jaw, file-face jaw등 다양한 형태의 tongs가 있다.

- Tong jaw removal fixture

Removal fixture는 tong jaw를 제거하거나 교체시에 tong jaw를 fixture에 삽입하여 슬래브 앞의 손목관절을 비틀어 올리면 빠지는 구조가 대부분이다.

- Boot

Boot는 hot side에 있는 슬래브 암을 cold side로 보수를 위해 빼낼 때 방사선 물질등의 오염방지를 위해 슬래브 암에 hypalon으로 코팅된 polyurethan 재질의 boot를 seal ring을 이용해서 덮어 씌우는 장치이다.

라. 재질

Manipulator의 모든 재질은 스테인레스 스틸과 알루미늄 재질로 되어 있다. 전기부품이나 구동부의 베어링은 내 방사성 기름을 충전하고 어깨 및 손목부 기어는 고감도와 내부식성 재질로 되어있다. 마스터 암과 슬래브 암의 알루미늄 재질은 anodized 처리된다. 특히 재질들은 ANSI H38.24/3 및 ASTM 351/A167 등을 만족하여야 한다.

마. Control

- Electrical indexing을 위한 수동조작 스위치는 작업자가 안전한 조작을 위하여 마스터 암의 pistol grip과 finger lever를 움켜 잡으면서 수행한다.

- 표시등

Manipulator의 X·Y·Z-motion은 pistol grip handle에 장착된 선택버튼

으로 운전모드를 선택하고, 운전시에는 해당동작의 램프가 점등되고 정지시에는 꺼진다.

- 속도제어

X·Z-motion은 일정한 속도로 이동하고 Y motion은 속도제어가 가능하여 pistol grip handle 위의 indicator box에 장착된 노브로 운전한다.

- Manipulator용 전원은 110v, AC, 60Hz이다.

제 4 절 시설배치

군분리 시험시설은 당초 별도의 독립시설을 건설하는 것으로 계획을 수립하였으나 독립시설을 확보하기 위해서는 많은 재원과 인력을 필요로하는 등 어려운 점들이 있어, 군분리 공정의 실증실험을 위한 시설규모를 가능한 최소화하고 연구개발 계획일정에 맞추기 위하여 기존시설을 활용하는 것으로 시설확보 계획을 변경하였다.

따라서 군분리 공정의 실증실험과 Mo-99생산을 위한 차폐셀을 다목적 연구로 시험시설 내의 동위원소를 생산하기 위한 일부공간을 활용하기로 하였다.

군분리 공정시설 및 Mo-99 생산시설을 위한 공간은 가로 8.5m, 세로 20.5m, 높이 4m 크기의 지상 1층과 지하층으로 구성된다.

지상 1층에는 공정장치가 설치될 납 차폐셀과 실험용 glove box 및 부대시설(냉각수, 순수, 시약 공급시설 등)이 설치되며, 지하층은 폐액저장 및 관리시설로 활용된다.

지상 1층의 시설 예상 배치도는 그림 3-11과 같이 가로 1.5m, 세로 2m 크기의 납 차폐셀 2기와 가로 2.3m, 세로 2m 크기의 납 차폐셀 3기가 설치된다. 이중 군 분리 공정 실증실험을 위한 공정장치는 b₂, b₃ 납 차폐셀 내에 설치되며, a₁, a₂, b₁ 납 차폐셀은 Mo-99 생산용으로 활용된다.

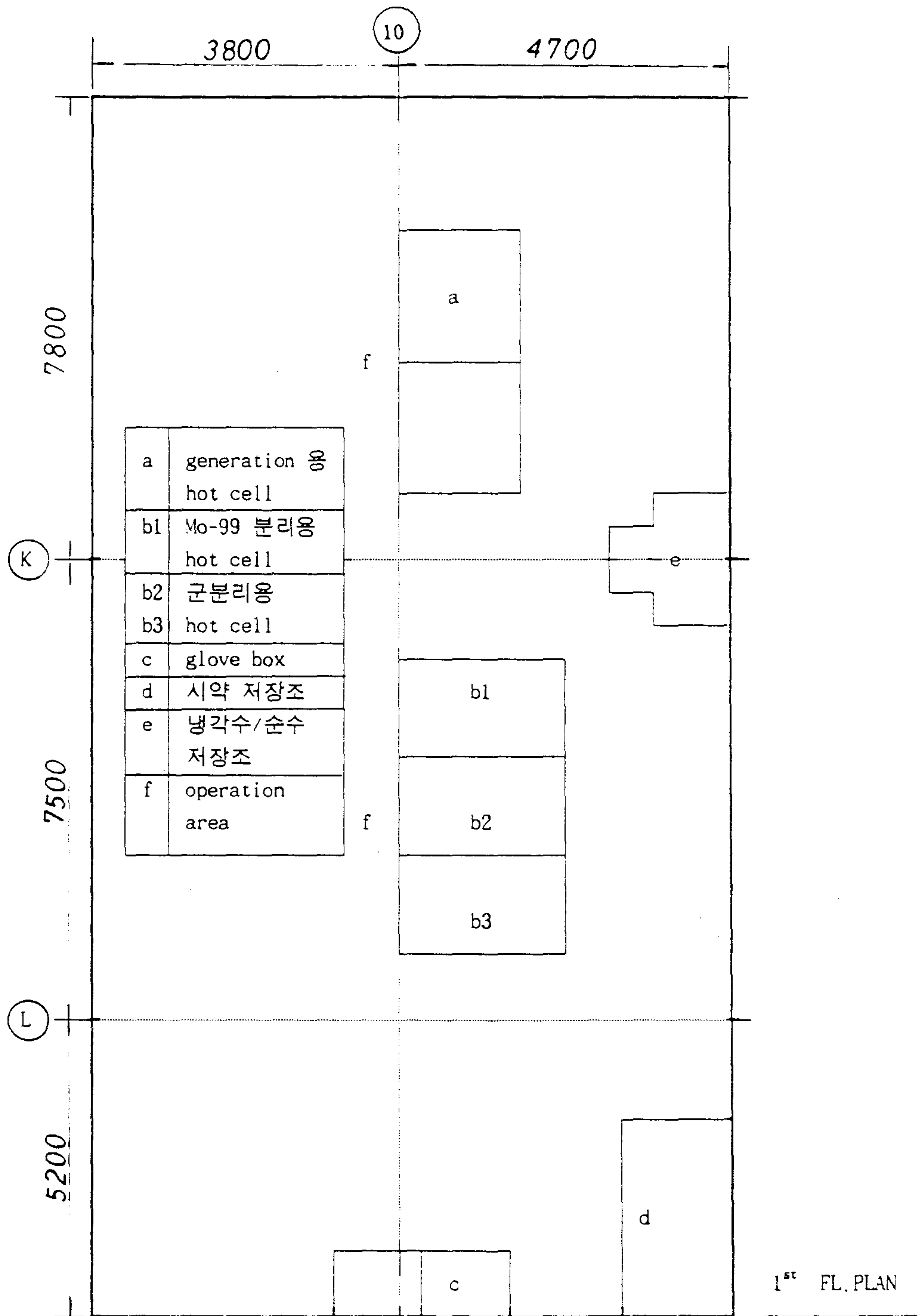


Fig.3-11. Overall lay-out on 1st floor.

그리고 가로 1.5m, 세로 1.3m 크기의 glove box를 설치하여 추가로 필요한 실험 및 시험, 분석을 위해 활용되며, 냉각수 및 순수 공급시설과 시약 공급시설도 같은 공간내에 가능한 격리되어 설치되도록 배치하였다.

지하층의 폐액 저장조 예상 배치도는 그림 3-12와 같으며, 각 단위 공정별로 폐액 저장조는 분리하여 설치하고, 1층에 설치된 해당 납 차폐셀 지하에 각 단위 공정별로 바로 설치되어 배관의 길이가 가능한 짧게 설치되도록 설계한다.

특히 Mo-99 생산시설의 폐액 저장조는 2기를 설치하여 일정기간 체류후(약 2년 이상) 처리될 수 있도록 하여야 한다.

제 5 절 설계기준

1. 구조

군분리 공정 실증실험 및 Mo-99 생산을 위한 시설이 설치될 기존시설은 내진범주 구조물로 분류되어 설계되었다. 따라서 본 시설이 설치되는 지역에서의 납 차폐셀과 부대시설의 추가로 인한 구조의 안전성 확인을 위하여 하중계산이 수행되어야 하며, 이때 적용되는 하중조합 기준은 추가 설치되는 시설들이 철 구조물이므로 Dead loads(D)와 Live loads(L)의 합을 기준하중으로 하여 기존시설의 내진해석(추가시설에 의한 총 응답 스펙트럼 포함) 결과에 영향을 미치는지 여부를 확인하여 보완하여야 한다.

설계에 적용되는 주요 참고규격 및 표준은 다음과 같다.

- USNRC Regulatory Guides

- 1.60 : Design Response Spectra for Seismic Design of Nuclear Power Plants

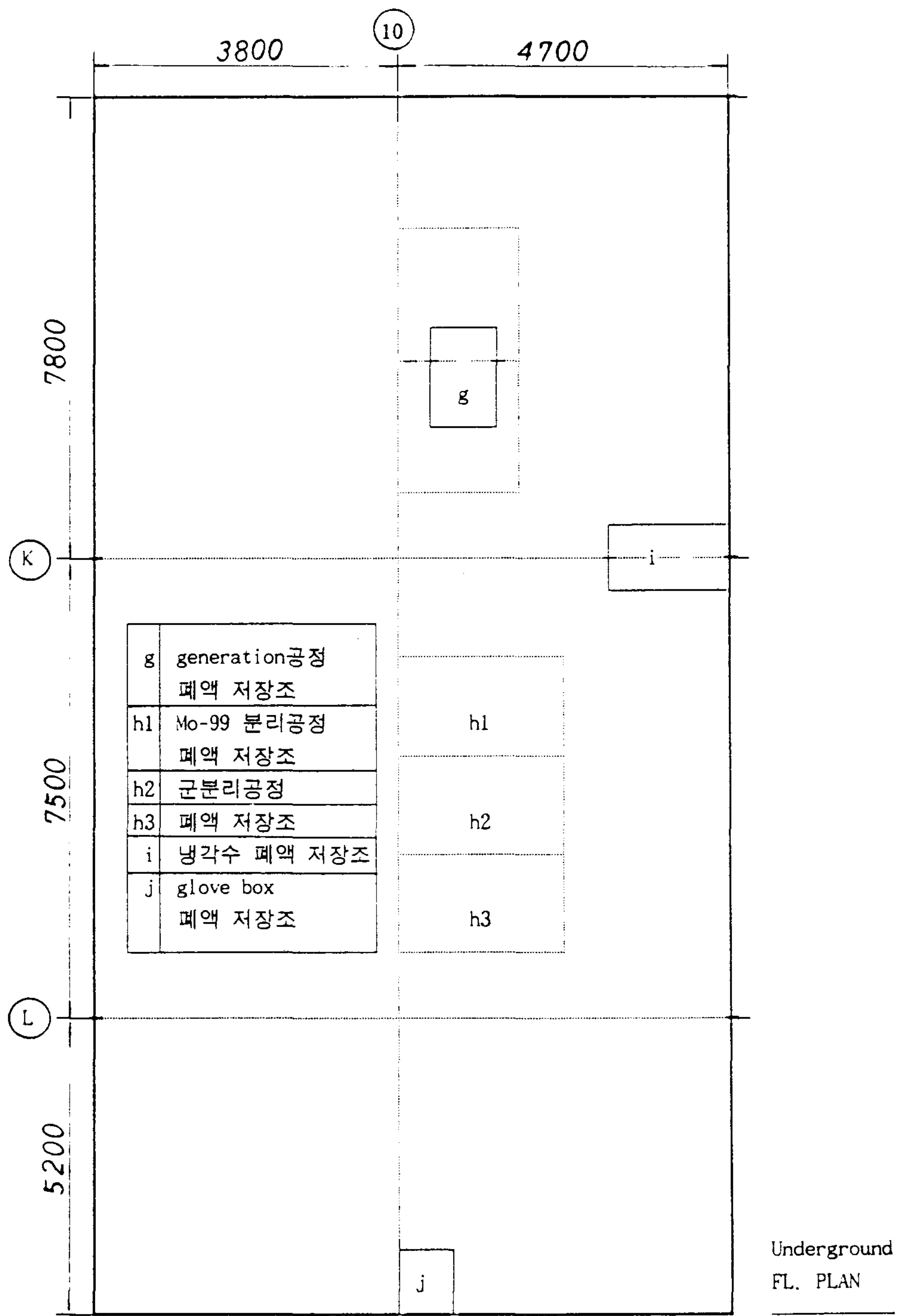


Fig.3-12. Overall lay-out on underground floor.

- 1.61 : Damping values for Seismic Design of Nuclear Power Plants
- 1.92 : Combining Modal Response and Spatial Components in Seismic Response Analysis
- American Institute of steel Construction
 - AISC S326-78 : Specification for the Design, Fabrication and Erection of Structural Steel for Buildings
- American National Standards Institute
 - ANSI A58.1 : Minimum Design Loads for Buildings and Other structures

2. Vessels

시설내에 설치되는 vessel류는 차폐셀 내에 설치되는 공정용기, 열교환기, 흡수조 및 column 및 반응기 등과 부대시설(냉각수, 순수, 시약 공급시설)로 설치되는 유틸리티 및 시약 공급을 위한 저장조, 지하에 설치되는 폐액 저장조 등이 있으며, 특히 고준위 방사성 물질을 취급하는 시설에서 vessel류에서의 누출은 폐액의 발생을 의미하므로 설계 및 제작에 세밀한 주의를 기울여야 한다. 또한 크기가 유사한 vessel의 경우는 가능한 동일한 크기로 제작하며, 구조는 가능한 단순하고 간편하도록 설계되어 원격조작 및 유지, 보수가 용이하도록 설계되어야 한다.

- 설계기준 압력

Vessel의 설계압력은 정상운전 압력의 1.5배와 최대운전 압력의 1.1배 중 큰 수치를 기준압력으로 하며, 운전압력이 진공인 용기는 full vacuum을 기준압력으로 한다.

- 설계기준 온도

Vessel의 설계기준 온도는 예상되는 최대운전 온도와 정상운전 온도에 15℃를 더한 수치중 큰 것을 기준온도로 설정한다.

- Corrosion Allowance

Vessel의 두께를 결정할 때 적용하는 부식허용 두께는 carbon과 low alloy steel은 1mm, high alloy steel은 0.3mm를 기준하고 non-ferrous 재질은 부식허용 두께를 고려하지 않으며, vessel내 internal의 경우는 제시된 기준의 2배를 적용하여 설계한다.

또한 vessel의 설계에 적용되는 주요표준 및 규격은 다음과 같다.

- Pressure Vessel : ASME Section III Div.1 Class 2
- Shell and Tube Type Heat Exchanger : TEMA Sixth Edition
- Material : ASTM
- Welding : AWS
- Fitting, Flanges and Gaskets, nozzles : ANSI B16.5, B16.9, B16.11, B16.18, B16.20, B16.21, B36.10, 19

3. 기계류

본 시설에 설치될 주요 기계류로는 차폐셀 내에 설치되는 공정용액의 이송을 위한 펌프들과 반응기에 설치되는 교반기, 차폐셀 외부에 설치될 냉각수, 순수 및 시약류의 공급을 위한 이송펌프와 환기설비에 설치되는 송풍기 등이 있다. 사용될 펌프의 종류로는 원심펌프, 정량펌프 및 고액분리 과정의 여과공정에서 사용될 진공펌프로 구분된다.

차폐시설 내에 설치되는 펌프들과 시약이송을 위한 펌프들은 부식으로 인한 오염요인을 줄이기 위하여 스텐레스 재질로 제작되어야 하며, 특히 질산용액을 이송하

는 펌프는 low carbon의 스테인레스 재질로 제작되어야 한다.

본 시설에서 용액의 누출은 방사성 폐액의 발생을 초래하는 점을 고려하여 원심 펌프의 경우 누출의 우려가 있는 seal type 펌프보다는 non-seal type 펌프를 설계 시 선정하여야 하며, 진공펌프의 경우도 건식 진공펌프를 선정하는것이 바람직하다.

또한 교반기의 경우는 반응가스의 누출을 방지하기 위하여 mechanical seal type 의 교반기가 선정되어야 한다.

기계류의 설계에 적용될 표준 및 규격은 다음과 같다.

- Material : ASTM
- 구조 및 설계 : ASME
- Connection : ANSI 16.5
- Welding : ANS

4. 배관

군분리 공정 및 Mo-99 생산공정은 공정내에서 취급되는 물질들이 대부분 용액상태이기 때문에 물질의 이동이 배관을 통해서 이루어진다. 그러나 차폐셀 내부나 외부에서 배관으로 부터의 누출은 방사성폐액을 발생시키고, 오염의 확산을 초래하기 때문에 배관에서의 누출요인이 최소화되도록 설계하는 것이 매우 중요하다.

또한 차폐셀의 안전한 containment 유지를 위하여 차폐셀 벽을 통과하는 배관부분에서 기밀이 잘 유지되도록 하여야한다.

따라서 장치에 적용되는 배관의 크기는 가능한 동일 크기로 설계하며, 차폐셀 내에서의 배관의 분기는 차폐벽에 별도의 분기 box를 설치하여 분기되도록하고 차폐실 내에서의 연결 부위는 가능한 최소화하며 불기피한 경우는 socket welding을 하도록 설계한다.

배관의 차폐벽 관통 부분은 S자 모양의 2중 sealing 구조를 갖도록한다.

배관의 재질은 모두 stainless steel을 사용하며, 특히 질산용액을 취급하는 배관은 low carbon의 stainless steel 재질을 사용한다.

차폐실내에 설치되는 개폐용 밸브는 원격조작이 용이하도록 solenoid 밸브를 사용하고 용액중 침전물이 존재하는 용액을 취급하는 배관에는 ball 밸브가 설치되도록 하며, 누출시 위험한 배관 또는 장치에는 가능한 이중으로 밸브가 설치되도록 설계되어야한다. 밸브 또는 장치와 배관의 연결 부분은 가능한 swage lock 형태의 connection type을 선정하도록 하는 것이 바람직하다.

배관을 위해 적용되는 주요 표준 및 규격은 다음과 같다.

- ANSI B 16.5/ 16.9/ 16.21
- ASTM (material)
- ASME SEC. III
- MSS
- ISO

5. 전기 및 계측제어

가. 전기

시설의 전력공급은 안전성 관련 정도에 따라 등급을 분류하여 일반적인 부하는 상용전원으로 하고, 주요장치(폐가스처리, 원격조작장치, 조작 및 제어 console 등)는 비상전원과 연결되며, 방사능 감시장비는 무정전 전원과 연결되도록 한다.

또한 전기설비의 배치 시에 유지,보수의 빈도가 잦은 전기기기 및 부품들은 가능한 차폐셀 밖에 설치되도록 하며, 차폐벽을 관통하는 원격조작장치용 wall tube, 전선용 슬리브 및 플러그 등은 관통부분을 통한 오염의 확산 요인을 줄이기 위하여

가능한 그 면적이 최소화되도록 설계한다.

그리고 차폐실 내에서 전기적으로 연결되는 플러그, 리셉터클 등은 junction box 로 하여 방습, 방진 및 내부식성 구조로 설계한다.

전기설비에 적용되는 규격 및 표준은 다음과 같다.

- IEEE 141-1976
- NEPA 70-1984(NEC)
- IES-CP-41(Nuclear power plant lighting)
- ANSI N2-3(통신계통) 및 기타 관련규격

나. 계측제어

군분리 공정은 장치들이 주로 차폐셀 내에 설치되어 원격조작에 의해 운전되므로 모든 계측제어시스템도 원격으로 감지되고 제어되어야 한다. 또한 operating console이 차폐창 인접 위치에 설치되며, 모든 공정기기의 운전조작, 운전상태의 감시 및 운전조건의 설정 및 기록이 이 operating console에서 수행되도록 설계되어야 한다.

공정시스템의 안전성과 계측시스템의 신뢰성을 높이기 위하여 failure 시 공정으로부터 입력되는 전기신호 및 출력신호는 모두 isolator 또는 safty barrier에 의해 외부로부터 인입되는 간섭을 차단하고 이로 인한 사고를 예방할 수 있도록 하며, 주요 공정의 계측 및 제어는 local unit로 부터 operating console까지 dual 또는 duplexed redundant로 구성하여 설계되어야 한다.

또한 취급되는 공정용액이 고준위 방사성물질들이므로 유지,보수시 가능한 피폭을 최소화하기 위하여 계측기의 sensor 만을 차폐셀 내에 설치하고 indicator 또는 control unit는 가능한 차폐셀의 밖에 설치되도록 한다

모든 계측 및 제어기기는 fail safe type을 선정하는 것을 기준으로 하며 field loop 구성시 차폐셀 내에 설치되는 loop, 차폐셀 내의 계측기와 operating console

간의 loop는 electric 방식을 사용하고 차폐셀 밖에서는 electric 방식과 pneumatic 방식을 함께 사용하여 설계한다.

계측제어 설계시 적용되는 규격 및 표준은 다음과 같다.

- ISA S5.1 : Instrumentation symbols and identification
- ISA S5.3 : Graphic symbols for distributed control/shared display instrumentation, logic and computer systems
- ANSI C39.1 : Requirement for electrical analog indicating instrument
- ANSI C39.5 : Electrical safety requirements for measuring and controlling equipment
- NEMA-ICS 1.1 : Enclosures for industrial control and systems
- IP 43
 - ANSI/MC 96.1 : Temperature measurement thermocouples
 - ASTM: E235 : Standard specification for thermocouples, sheathed for nuclear high-reliability application

제 6 절 결 언

개념설계는 당초 계획하였던 독립시설의 확보가 많은 재원과 인력을 필요로 하는 점등을 고려하여 기존시설 내에 필요한 차폐시설과 부대시설을 추가로 설치하여 활용하는 것으로 계획을 수정하였다.

개념설계를 위한 균분리 공정으로 Cs, Sr과 TRU 및 란탄족원소로 분리되는 3군 분리공정을 기준공정으로 설정하였으며, Mo-99 생산을 위한 공정으로는 우라늄 fission 법에 의한 알루미늄 흡착공정을 기준공정으로 설정하였다.

설정된 공정들을 기준으로 장치특성, 조업조건, 취급 화학물질의 조성 및 특성등을 정리하였고, 공정중 발생하는 폐가스의 처리를 위하여 가스세정기(scrubber)와 HEME(High Efficiency Mist Eliminator) 또는 가스냉각기 등으로 구성되는 폐가스 처리공정을 설정하였으며, Mo-99 생산공정에서 발생하는 fission가스인 I-131과 Xe-133의 제거를 위한 특수장치의 필요성을 제시하였다.

또한 환기계통의 개념설계를 통하여 환기회수(hot cell:20회 이상), 부압기준(hot cell:25mmAq 이상) 및 계통도와 설계에 고려되어야 하는 사항들을 제시하였다.

그리고 주요 유틸리티 공급방법으로 냉각수는 별도의 저장조를 이용하여 순환공급방식으로 공급하고, 순수 및 시약류도 별도의 저장조를 설치하여 공급하며, 특히 시약저장조의 용량은 국내 위험물 규제 기준용량 이하로 기준을 설정하였다.

원격조작장치는 공정특성, 기준중량, 자유도 등을 고려하여 G-HDE 모델의 MSM을 선정하였고, 시험용 원격조작장치를 이용한 시험조작 후 보완하여 공정설계에 반영하는 것이 바람직할 것으로 판단되었으며, 이를 위해 시험용 원격조작장치의 사양을 결정하여 제시하였다.

시설의 배치도는 기존 시설의 공간을 고려하여 1층에 5개의 납 차폐셀을 설치하여 2개는 균분리 공정 실증실험용으로 3개는 Mo-99 생산용으로 활용되도록 배치하였으며, 지하층은 폐액저장조를 위한 공간으로 활용하였다.

마지막으로 분야별 설계기준들을 설정하여 앞에서 기술된 내용과 함께 기본설계 및 상세설계를 위해 고려되어야 할 사항과 기준들을 제시할 수 있었다.

여 백

제 4 장 방사능 측정장치 개발

여 백

제 1 절 서 설

군분리 공정의 실증실험을 위해 차폐셀 내에 설치되는 공정장치 중에는 반응가스 또는 폐가스를 응축시키기 위해서 열교환기가 이용되고, 열교환기에는 냉각수가 공급된다. 그러나 차폐실 내에 설치되는 공정장치의 경우는 고준위 방사성 물질을 취급하게 되므로 장치의 결함으로 인하여 냉각수 등이 방사능 물질로 오염될 가능성을 배제할 수 없으며, 이로인하여 오염의 확산을 방지하기 위하여 냉각수를 순환 공급하는 것이 바람직하다. 그리고 이러한 위험성을 사전에 감지하고 조치를 취할 수 있도록 순환수를 연속적으로 감시하는 것이 매우 중요하다.

또한 군분리 단위공정별 운전상태의 확인을 위하여 공정별 공급용액과 배출용액 중 핵종 및 농도를 연속적으로 감시할 필요가 있다. 이와 같은 연속감시를 위한 on-line 분석의 가능성을 타진하고 신뢰성 있는 장치의 개발을 위하여 1차년도에 수행한 측정장치들에 대한 기술현황 분석결과를 토대로 on-line 측정이 비교적 용이하며, 여러가지 핵분열 핵종의 농도를 동시에 측정가능한 감마분광 분석법을 측정방법으로 선정하였다. 그리고 분석을 위한 측정장치로는 검출기의 경우 순환수의 오염여부 및 공정상의 특정 핵종에 대한 연속적인 감시를 위해 검출효율이 높은 NaI(Tl) 형광 검출기를 선정하였고, 핵종 및 농도 분석을 위하여는 분해능이 상대적으로 양호한 Ge 반도체 검출기를 선정하였다.

또한 스펙트럼 상에서 여러 핵종을 동시에 분석하고 이를 data화 할 수 있도록 다중채널 분석기와 개인용 컴퓨터를 측정장치에 연결하였다.

이와같이 선정된 측정기기를 이용하여 공정상에서 on-line 측정방법에 의해 순환냉각수의 오염여부 감시와 공정용액의 핵종 및 농도분석의 신뢰도와 최적의 측정조건의 확립을 위한 실험을 수행하기 위하여 on-line 순환 측정장치를 구성하였다. On-line 순환 측정장치는 감마선 측정장치, 기저 방사선 차폐장치, 분석시료 용액 순환장치로 구성하였으며, 이들 장치들을 설계하여 제작, 설치하였다.

설치된 on-line 순환 측정장치를 이용하여 분석시 거의 실시간(near real time)으로 측정할 수 있는 조건을 찾기위해 측정기기의 최소 검출한계와 측정시간 사이의 관계를 Cs-137 동위원소를 이용한 실험을 통하여 파악하고자 하였다. 또한 장시간 분석기기를 on-line 상태로 가동시 측정시료 용기의 내부 벽에 방사능 핵종의 흡착으로 인한 기저방사능(background)의 증가로 인해 발생하는 측정오차 문제점을 해결하기 위하여 시료용기의 재질에 따른 방사능 핵종의 흡착특성을 확인할 필요성을 인식하여 일차적으로 측정용액의 pH변화에 따른 stainless steel(sus 304) 표면에서 핵종의 흡착특성을 확인하기 위한 실험을 수행하였다.

제 2 절 측정장치 선정 및 구성

1. 개 요

순환냉각수 및 공정용액에서의 방사능 농도 및 핵종분석을 위한 측정장치의 선정 및 구성을 위하여 군분리공정에 대한 이해와 공정내 취급핵종의 종류 등에 대한 기준이 필요하며, 이를 위해 제3장의 제2절에 기술된 내용을 기준으로하였다.

또한 분석방법으로는 시료를 채취하여 별도의 분석기기를 이용하여 분석하는 off-line 방법과 분석기기를 분석이 필요한 공정의 각 line에 직접 설치하거나 직접 설치가 불가능할 경우 연속적으로 순환되는 분석용 by-pass line을 설치하여 분석하는 on-line 방법이 있다.

Off-line 측정방법은 공정의 물질수지나 핵물질 계량 목적을 수행하기 위하여 좀더 정확한 방법이 될수 있으나 공정상의 흐름과 분석자료 사이에 생기는 시간 지연(time-lag)으로 인해 이상발생시 신속한 대처가 어렵고, 고준위 방사능 용액 시료의 취급으로 인한 피폭의 위험이 있다. On-line 측정방법의 경우 높은

방사선 준위를 갖는 시료를 안전하게 분석할 수 있으며, off-line에서 생기는 시간 지연을 해결할 수 있다.

On-line 방사능 측정 및 분석을 위해 이용되고 있는 방법들은 다음과 같이 크게 두가지 방법으로 구별할 수 있다.

- 방사분석 방법

감마 흡수법, 감마 분광법, x-선 형광 분석법, k-edge 농도법

- 물리 화학적 및 물리적 분석방법

비색 분석법, 플라노 그래피법, 전도도 측정법, 전위차 적정법, pH 측정법, 비중 측정법, 유전상수 측정법, 혼탁도 측정법

위의 분석 방법들을 이용한 on-line 분석 기술은 현재도 계속 개선되고 있으며, 또한 새로운 기술이 개발되고 있다.

이들 분석방법중 감마분광법은 투과거리가 멀리 미치는 감마선의 스펙트럼 특성을 이용하여 감마 에너지준위가 높은 핵분열 생성물(420-850Kev)의 정량측정은 물론 초우라늄원소(TRU)의 낮은 감마에너지를 이용한 화학적 농도와 여러가지 핵종의 동시분석이 가능하고 여러형태의 on-line 측정장치에 활용이 용이하며, 실제 가장 널리 이용되고 있는 분석방법이다.

따라서 본 연구에서도 용액중 방사능 측정을 위한 분석방법으로 감마분광법을 선정하였으며, 이를 기준으로 감마선 측정장치, 기저방사선(background) 차폐장치, 시료용액 순환장치로 구성되는 on-line 순환 실험측정장치를 제작, 설치하였다.

2. 감마선 측정장치 선정

감마선 측정장치로서 선정된 감마 분광법에 의한 분석기기의 선정은 분석 목적에 따라 여러가지 형태로 구성되어 있으나 연구목적에 부합되는 장치의 선정

및 구성을 하는것이 필요하다.

본 연구에서는 순환냉각수의 오염여부와 공정장치의 운전상태의 지속적인 on-line 감시를 위하여 다음과 같은 기본적인 조건들을 일차적으로 만족하는 분석 기기를 선정 및 구성하였다.

- 분석 시료용액중 감마선을 방출하는 핵종을 연속적으로 감시할 수 있는 대표적인 핵종 즉 용액중에 많은 양이 존재하며 핵종의 특성상 감마선 방출비가 높은 ^{137}Cs (662Kev), ^{134}Cs (605Kev), ^{154}Eu (1274Kev)와 같은 핵종을 측정할 수 있어야 한다.

- 냉각수의 배출수 기준이 $3 \times 10^{-8} \mu\text{Ci/ml}$ 이므로 저준위 환경시료를 측정할 수 있도록 검출기의 검출효율이 높아야 된다.

- 용액중의 핵종 및 농도를 정량적으로 분석하기 위해 검출기의 분해능이 양호해야 된다.

- 공정상의 흐름과 분석자료 사이에 생기는 시간지연(time-lag)을 최소한으로 줄일수 있어야 된다.

위와같은 조건을 만족시키기 위해서는 검출기의 선택이 가장 중요하며, 기타 주변 장치는 전기, 전자기술의 발달로 인하여 크게 차이가 없는것으로 판단되었다.

가. 검출기 선정

검출기의 선정시 고려될 사항으로 검출기의 에너지 분해능, 검출기 검출 효율, 그리고 검출기의 크기 및 FWTM/FWHM 비율, peak-to-compton 비율등을 고려되어야 한다.

- 에너지 분해능 : 검출기의 에너지 분해능은 스펙트럼 상에서 두개의 피크가 에너지 측면에서 서로 가까이 있을때 이를 분별할 수 있는 능력을 말하며 다음과 같이 정의된다.

$$R = \frac{\text{FWHM}}{H_0}$$

여기서 FWHM : 전 에너지 봉우리의 반폭치

H_0 : 이 봉우리에 해당하는 평균 펄스높이

이렇게 정의된 R값이 적을수록 에너지 분해능이 양호하며, 정밀한 스펙트럼을 얻을수 있다. 에너지 분해능의 측면에서는 NaI와 같은 섬광형 검출기는 Ge 반도체 검출기보다 분해능이 크게 나쁘다. 실례로 그림 4-1과 같이 입사 감마선 스펙트럼에 대한 NaI(Tl) 섬광검출기와 게르마늄 검출기의 펄스높이 스펙트럼을 비교하면 게르마늄 검출기의 에너지 분해능이 매우 우수하기 때문에 NaI(Tl) 섬광형 검출기로 분해할 수 없는 에너지가 서로 접근하여 있는 감마선들을 분리할 수 있다. 따라서 복잡한 에너지 스펙트럼을 갖는 감마선 분광법에서는 대부분 게르마늄 검출기를 사용한다.

본 연구에서도 균분리 공정에서 취급되는 예상 동위원소가 300여종 이상이므로 핵종 및 농도를 분석위해 스펙트럼상에서 분해능이 양호한 게르마늄 검출기를 선정하였다. 게르마늄 검출기중 대표적인 검출기로는 Ge(Li) 검출기와 고순도 Ge 검출기가 있다. 이들 두 종류의 게르마늄 검출기는 일반적으로 검출효율이나 에너지 분해능이 같은 결정크기에 대해서 거의 일치하고 있으나 1980년대 이후 고순도 Ge 검출기를 광범위하게 이용하고 있다. 이러한 주요 원인으로는 Ge(Li) 검출기는 사용중에는 물론 보관중에도 계속적으로 액체 질소와 같은 물질로 항상 저온으로 유지, 보관해야되는 단점이 있는 반면에 고순도 Ge 검출기는 사용시에만 저온으로 유지하면 되는 큰 장점을 가지고 있기 때문에 정확한 방사선 농도 및 핵종 분석용으로 고순도 Ge 검출기를 선정하였다.

- 검출효율 : 모든 방사선 검출기는 기본적으로는 유감체적(active volume)에서 상호작용한 각각의 방사선의 양자(photon)마다 한개의 출력펄스가

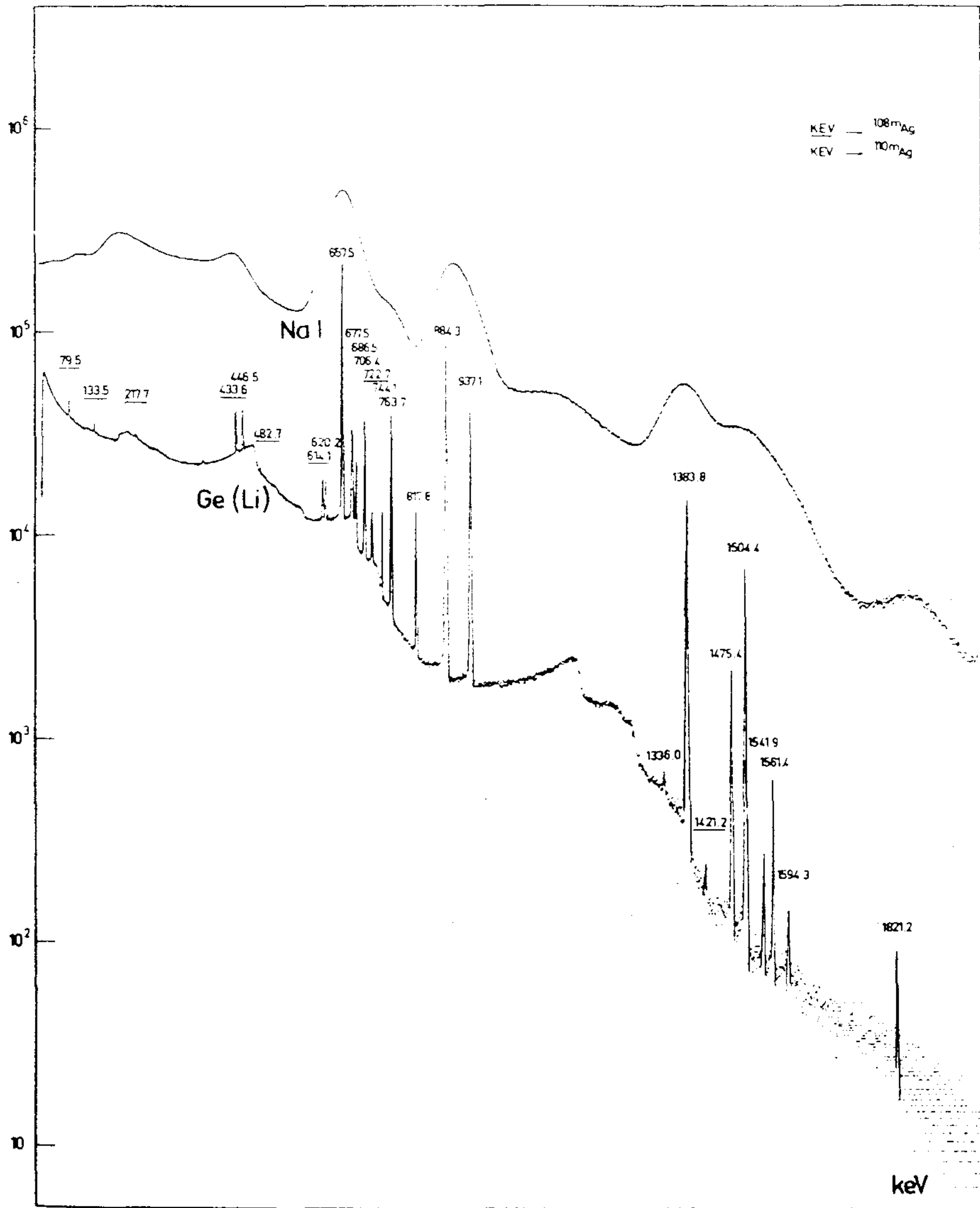


Fig. 4-1. Comparative pulse height spectra recorded using a sodium iodide scintillator and a Ge(Li) detector. The source was gamma radiation from the decay of ^{108m}Ag and ^{110m}Ag. Energy of peaks are labeled in KeV.

생긴다. 따라서 측정된 펄스의 수를 검출기에 입사한 광자수와 관련짓기 위해서는 정확한 검출기의 검출효율 값을 구할 필요가 있다. 계수효율은 일반적으로 절대효율과 고유효율 두 종류로 분류되며 다음과 같이 정의된다.

$$\text{- 절대효율(absolute efficiency)} = \frac{\text{기록된 펄스의 수}}{\text{선원으로부터 방출된 양자의 수}}$$

$$\text{- 고유효율(intrinsic efficiency)} = \frac{\text{기록된 펄스의 수}}{\text{검출기에 입사된 양자의 수}}$$

여기서 절대효율은 검출기의 특성뿐만 아니라 계수장치의 형태(주로 선원과 검출기 사이의 거리)에 의존하며, 고유효율은 가장 중요한 요소로서 검출기에서 다른 입체각은 다루지 않는다는 것이다. 이 두 종류의 효율은 등방적인 선원의 경우 $\epsilon_{int} = \epsilon_{abs}(4\pi/\Omega)$ 라고 하는 간단한 관계가 성립되며, 여기서 Ω 는 실제의 선원의 위치로부터 검출기를 본 입체각이다.

일반적으로 검출기의 기하학적 형상이 복잡한 동축형 검출기와 같이 검출기의 유효입체각이 정확하게 판명되지 않기 때문에 계수율의 측정치로부터 고유효율을 계산하는 것이 어려운 경우가 많으며, 이러한 문제점을 해소하기 위하여 검출기 제조업자 대부분은 지름이 7.65cm(3"), 길이가 7.62cm(3")인 원판형 NaI(Tl) 섬광검출기의 검출효율을 100%로 기준하고 Ge검출기의 검출효율과 비교하면, 1960년대에는 수% 정도의 효율을 갖는 검출기를 사용할 수 있었으나 최근에는 대형 Ge 검출기의 경우 효율이 80%까지 이른다.

또한 반도체 결정의 제작기술이 계속적으로 증가됨에 따라 앞으로 그 효율은 더욱 증가될 것이다. 그러나 Ge 검출기의 검출 효율이 NaI(Tl) 검출기의 검출효율에 대해 80%까지 되는 검출기의 경우, 앞에서 설명한 것처럼 Ge 검출기의 분해능이 훨씬 우수하고 아울러 검출효율도 양호한 80% 검출기를 선정하여 사용하는 것이 타당하나 현재 Ge 검출기의 검출효율이 양호할수록 가격이 현저히 증가하기

때문에 연구목적과 필요성에 따라 적당히 검출기의 검출효율을 결정해야 된다.

본 연구에서는 일반적으로 환경시료나 저준위 방사성 물질을 계측하는데 사용되는 계측효율이 25%정도 되는 고순도 Ge 검출기를 선정하였으며, 연속적인 공정감시를 위하여서는 앞에서 언급했듯이 검출효율이 보다더 양호한 7.62cm X 7.62cm 크기의 NaI(Tl) 검출기를 선정하였다.

- FWTM/FWHM의 비율 : 피크의 모양을 가끔 FWTM/FWHM으로 표현하며 참고로 FWTM과 FWHM은 피크를 이루는 하단의 base line으로부터 피크의 정점까지 높이의 1/2과 1/10인 지점의 피크의 폭으로서 이론적으로 완전한 Gaussian 곡선일 때 FWTM/FWHM 비율은 1.82이고 이 값을 가질때 가장 이상적이며, 이 값에 근사한 값을 갖는 검출기일수록 양호한 것이다.

- Peak-to-compton 비율 : 이 비율은 Cs-137의 1332Kev에서 피크의 최대진폭과 Co-60의 1040 및 1096Kev와의 사이에서 ⁶⁰Co에 대한 효과를 잡음처럼 적용함으로써 이 비율이 클수록 분석이 용이한 스펙트럼을 얻을 수 있다.

이와같이 검출기 선정시 고려할 사항들을 종합한 결과 선정된 검출기는 연속적인 공정감시를 위하여 NaI(Tl) 섬광 검출기를 선정하였고 정량적인 방사능 농도 및 핵종분석을 위하여 고순도 Ge 반도체 검출기를 선정하였다. 나머지 감마선 측정장치의 선정 및 구성은 다음과 같다.

나. 감마선 측정장치 구성

본 실험에서 사용된 감마선 측정장치는 그림 4-2, 4-3과 같이 두종류의 검출기(NaI(Tl) 섬광 검출기와 고순도 Ge 반도체 검출기)와 검출기 각각에 연결된 전치증폭기, 주증폭기, ADC(Analog to Digital Converter), MCA(MultiChannel Analyzer), 그리고 MCA운용 및 스펙트럼 분석용 컴퓨터와 주변기기로 구성되어 있다.

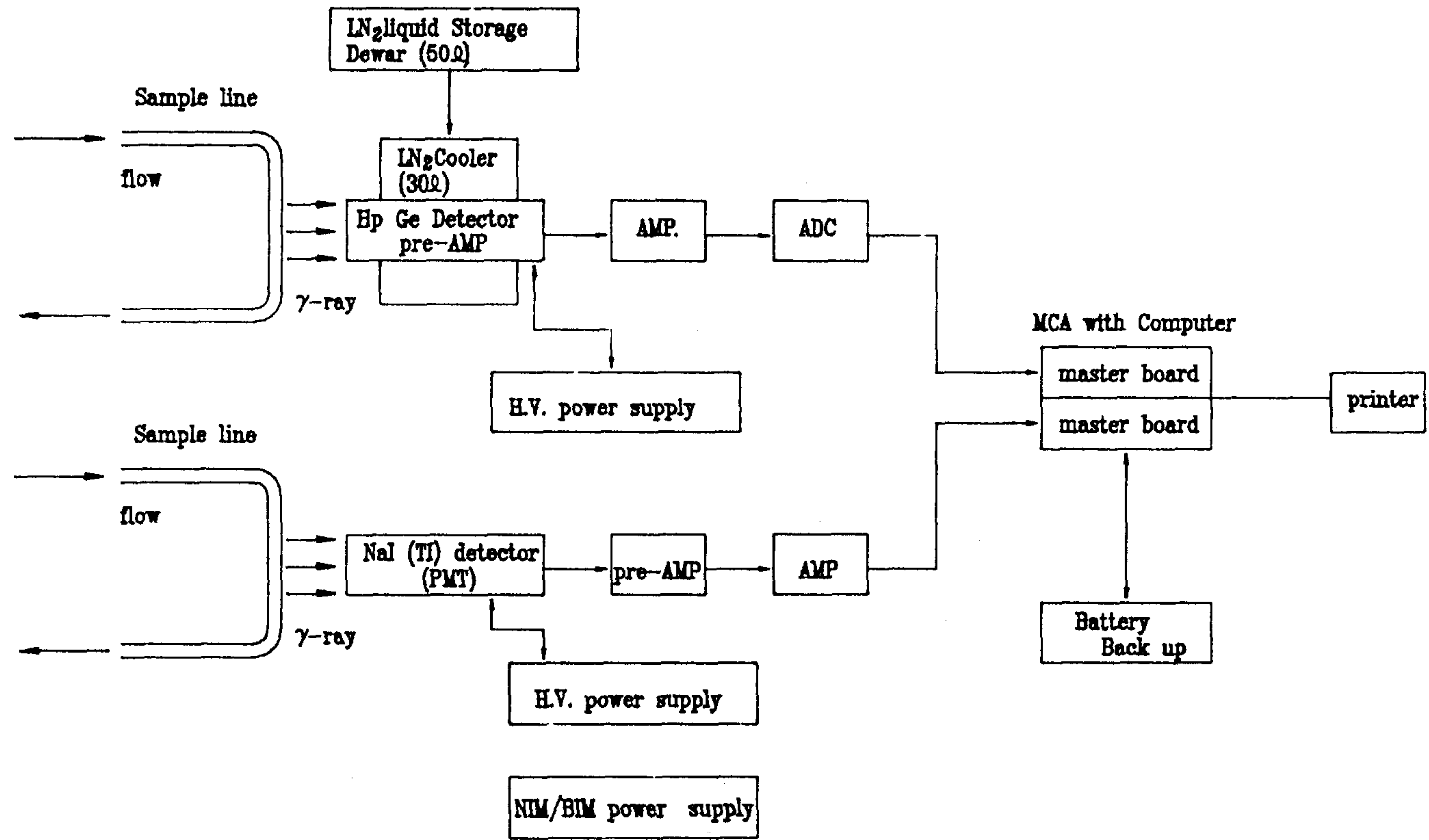


Fig.4-2. Block diagram of r-ray spectroscopy system.

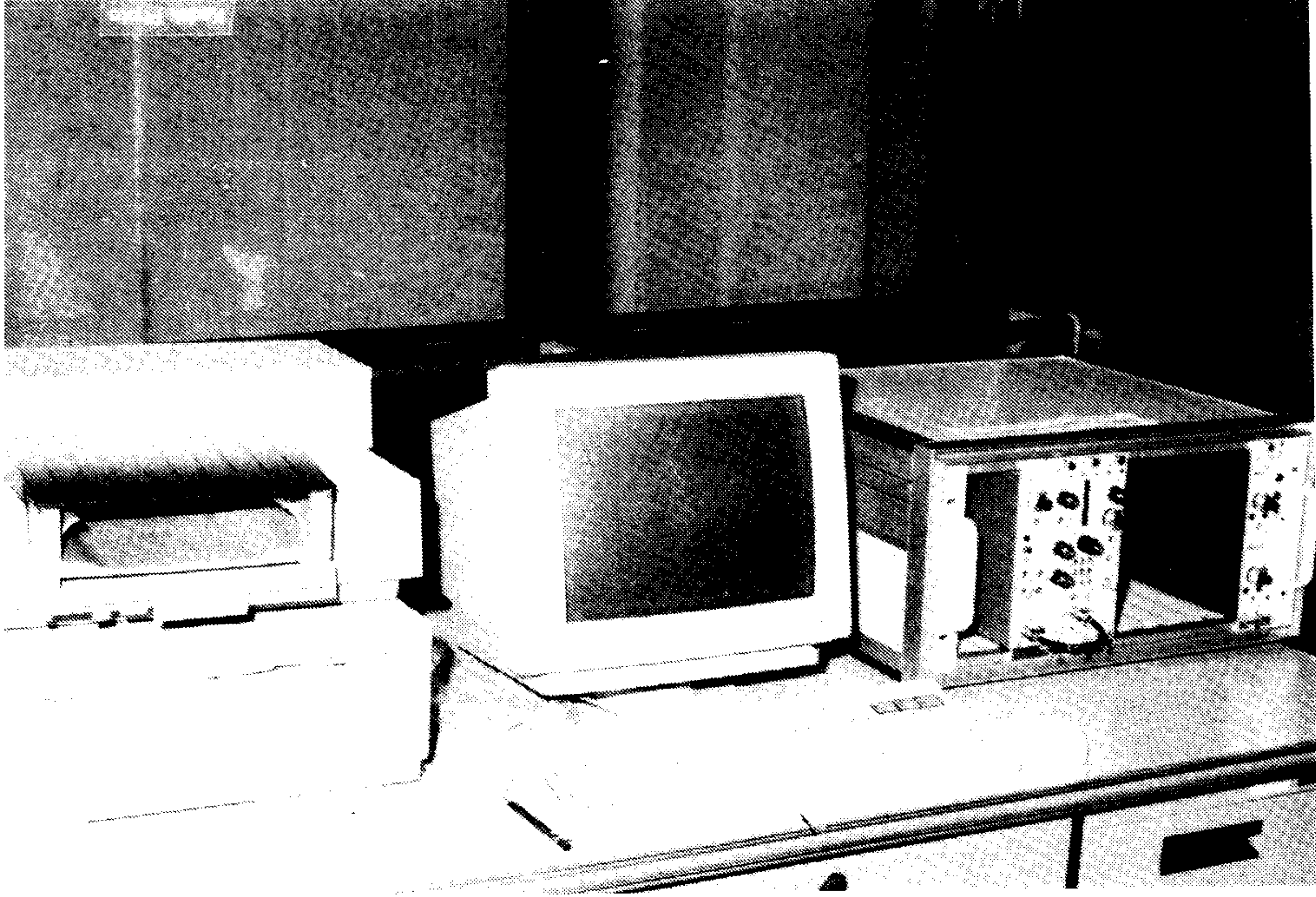


Fig. 4-3. Photograph of x-ray spectrometry

두개의 검출기는 상대적으로 검출효율이 양호하나 에너지 분해능이 떨어지는 NaI(Tl) 섬광 검출기를 공정의 연속적인 공정감시를 위하여 사용하였고 반면에 에너지 분해능은 양호하나 검출효율이 떨어지는 고순도 Ge 반도체 검출기는 정량적인 방사능 농도 및 핵종분석을 위하여 사용하였다. NaI 검출기의 결정크기는 직경이 7.62cm(3"), 길이가 7.62cm(3")이며, 에너지 분해능이 ^{137}Cs , 662Kev 피크에서 7.5% 이고 window는 알루미늄 판 0.05mm 두께로 된 검출기이다. 이 검출기의 최대 channel은 2084 channel이다.

고순도 Ge 반도체검출기는 동축형 Ge 검출기로서 검출기의 결정크기는 직경이 52.1mm, 높이는 56mm이고 window로부터 거리는 5mm이다. 검출기의 상대효율은 25% 이고 분해능은 ^{60}Co 의 1.33Mev에서 1.8Kev(FWHM)이고 peak to comppton 비율이 54이다.

전치 증폭장치는 NaI(Tl) 검출기의 경우 PMT가 결합된 일체형으로 고전압 및 과전류 보호장치와 잡음분포가 0.1fcrms 이하이고 Rize time 20ms이하인 것을 선정하였다. 증폭기의 경우 MCA Board에 내장되어 있으며, 증폭기의 이득치는 2~1000배 까지 조절이 가능하며 gain drift < 0.02%/ $^{\circ}\text{C}$ 이었다.

고순도 Ge 검출기의 경우 전치증폭기는 검출기에 내장되어 있으며, 열적 잡음에 의한 영향을 최소화 하기위해 압력단에 diode FET가 설치되었다.

ADC는 NaI(Tl) 검출기의 경우 MCA Board에 내장되어 있으며, 100MHz clock과 연결된 wilkinson type으로 conversion gain은 256, 512, 1024, 2048이고 conversion time은 $5.3\mu\text{s} + 0.01(N+G/16)\mu\text{s}$ 이다. 여기서 N=address count, G=conversion gain으로 된 기능을 갖는다. 이것은 개인용 컴퓨터 조작에 의해 제어된다.

고순도 Ge 검출기의 경우 450MHz clock wilkinson type으로 16K channel의 분해능을 가지며, gain drift는 < $\pm 0.009\%$ (full seale/ $^{\circ}\text{C}$)이며 변환시간(conversion time)은 $0.7\mu\text{s} + 0.0022(N+X)\mu\text{s}$ 이다. 여기서 N= address count,

X= effective digital off set으로 된 기능을 가지고 있다.

MCA의 경우 증폭기로부터 발생된 펄스파고는 ADC를 통하여 analog신호를 digital 신호로 변환시켜 MCA에 저장되도록 하였으며, NaI(Tl)와 HPGe 검출기 모두 개인용 컴퓨터에 의해 운영되는 PC-Board형으로 하였다.

NaI(Tl)용 MCA Board는 고전압 공급기, 증폭기, ADC를 모두 내장하고 있으며, 모든 조작은 컴퓨터를 이용한 PHA mode로서 2048 channel까지 사용 가능하고 data 저장능력은 16KB이다. 고순도 Ge용 MCA Board에 스펙트럼은 16K까지 저장이 가능하며 PHA mode와 loss free PHA mode 두개를 이용할 수 있다. 이외에 PC 컴퓨터는 국내 IBM 486을 사용하였으며, 프린터는 ink jet printer를 사용하였다.

3. 시료용기 차폐장치

가. 차폐장치 선정

차폐장치는 검출기가 검출한 전체계측수에는 검출기 주변 및 차폐체의 영향을 크게 받기 때문에 기저 방사선에 의한 계수율을 줄이기 위하여 검출기의 선정 장소, 방사선의 종류에 따른 검출기의 선정, 측정장치 주변의 대기정화, 외부 방사선의 영향을 최소화하기 위한 방사성 차폐장치가 고려되어야 한다.

또한 기저 방사선은 최소검출 방사능을 결정하는 중요한 역할을 함으로 저준위 및 환경 방사능 측정에 신중하게 처리해야 한다.

기저 방사선의 주요 원천은 편의상 다음 다섯부류로 나눈다.

첫째, 검출기 자체의 구성 재료종의 자연 방사능에 의한 방사선 (^{40}K , ^{238}U 계열, ^{232}Th 계열, ^{60}Co , ^{137}Cs 등)

둘째, 검출기에 가까이 있는 부속장치, 지지물 및 차폐체 내에서 자연 방사능에 의한 방사선 (potasium, thorium, uranium 등)

셋째, 지구표면의 방사능이나 실험실 벽 또는 훨씬 떨어진 구조물 중의 방사능에 의한 방사선

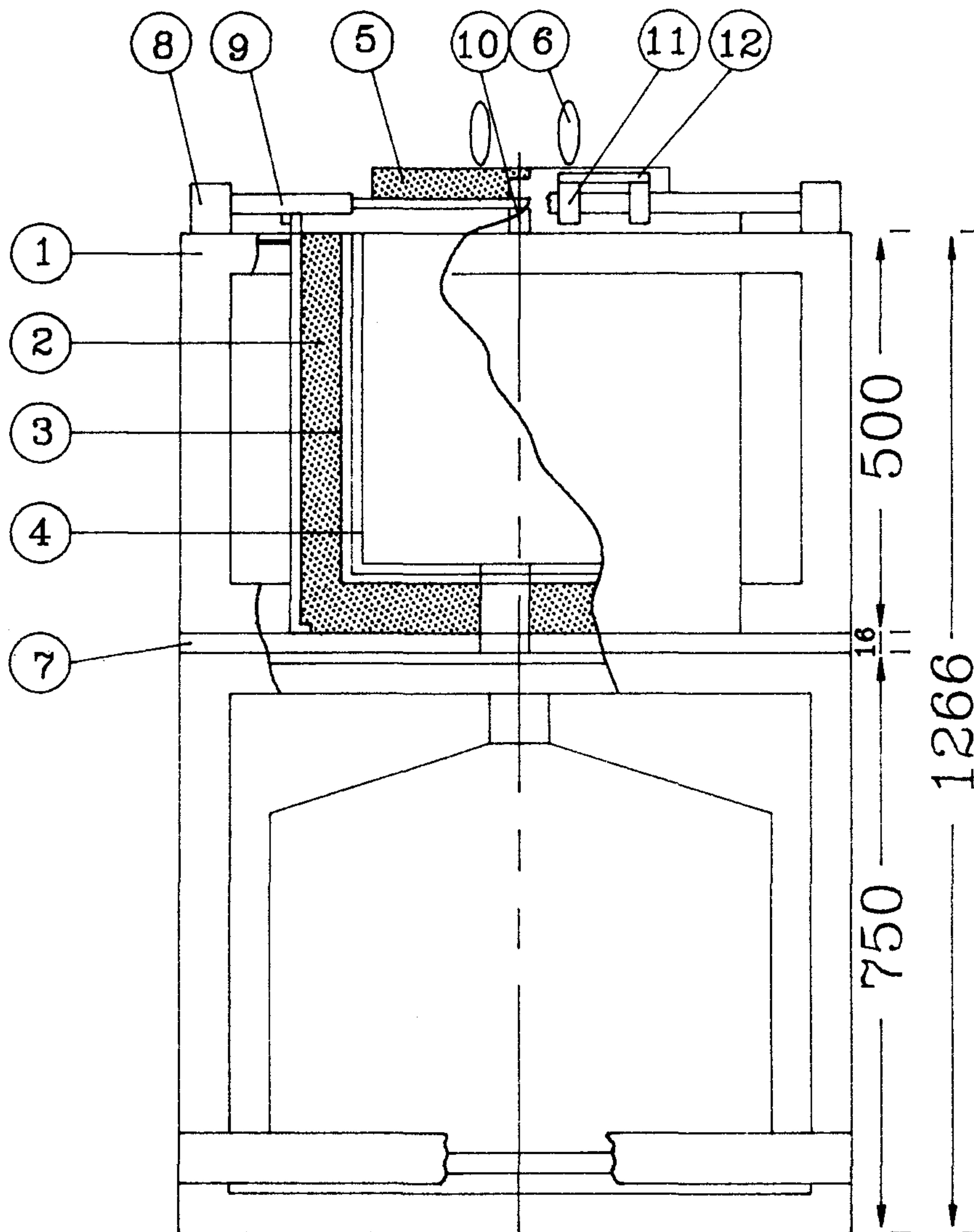
넷째, 검출기를 둘러싼 공기중의 방사능에 의한 방사선 (^{222}Rn , ^{220}Rn 등)

다섯째, 우주선의 일차 및 이차 전기방사선

위의 방사선 등이 계측수에 기저 방사선으로 작용하며, 이들을 차폐하기 위하여 방사선 차폐물질을 선정하여 차폐시켜야 한다. 방사선 차폐용으로 많이 사용되는 물질로는 납, 철, 수은, 콘크리트, 물 등이 있으며, 특히 감마선 차폐용으로는 납을 많이 사용하고 있다. 그 이유로는 밀도가 높고(11.34g/cm^3), 제작이 용이하고, 가격이 상대적으로 저렴하기 때문이다. 그러나 납 차폐벽을 사용할 경우 외부 방사선과 납 차폐체와의 상호 작용으로 72Kev에서 특성 x-선이 발생될 수 있다. 또한 납 차폐벽의 내부에 불순물로서 미량의 ^{210}Pb , ^{210}Bi , ^{60}Co , ^{137}Cs 핵종 등이 포함되어 기저 방사선의 계수율을 높일 수 있기 때문에 정련이 된 후 오래된 납을 사용하기도 한다. 본 차폐장치에 사용된 납은 순도가 99.997%인 순수한 납을 사용하였으며, 납차폐체가 함유하고 있는 불순물로 부터 방출되는 방사능을 최소화하기 위하여 카드뮴판과 구리판을 차례대로 납 차폐 내부에 설치하여 납으로부터 방출되는 특성x-선을 차폐하였다.

나. 납 차폐장치 구성

본 연구에서 제작, 설치된 납 차폐장치는 그림 4-4, 4-5와 같고 차폐장치의 납 두께는 문헌등을 참고하여 10cm로 하였으며, 내부 크기는 compton 산란에 의한 저에너지 광자스펙트럼의 영향을 줄이기 위하여 30x30x40cm의 크기로 하였다. 또한 고순도 Ge 검출기의 냉각용 LN2 dewar(30l)을 배출하기 위하여 전체높이를 126.6cm로 하였으며, 차폐장치 내부에 1mm 두께의 카드뮴판과 1mm 구리판을 설치하였으며 차폐벽 상단에는 측정시료의 출입이 원활하도록 slide 개폐문을 설치하였다. 또한 차폐효과를 높이기 위하여 개폐문의 접촉부분을 겹쳐지도록 제작하였다.



- 1.Frame(SS41), 2.Lead shield(STS304), 3.Cadnium sheet, 4.Copper sheet
 5.Lead shield cover(STS304), 6.Handle(acetal), 7.Base plate(SS41)
 8.LM shaft support(STS304), 9.LM shaft(STD), 10.Adjust bolt(SS41)
 11.LM shaft guide(STS304), 12.Cover bracket(STS304)

Fig.4-4. Fabrication drawing of Pb shielder.

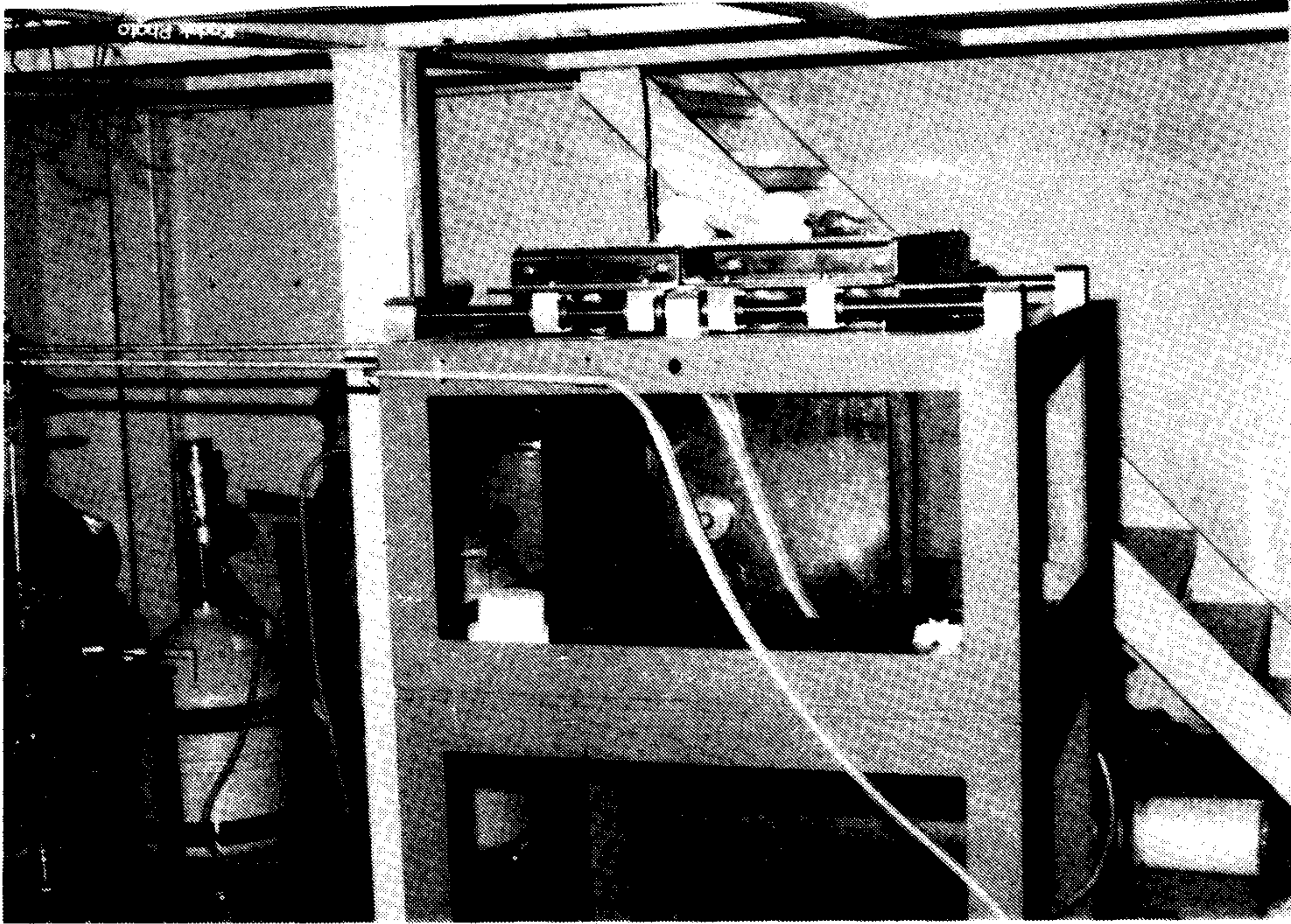


Fig. 4-5. Photograph of Pb shielder.

그리고 on-line 장치를 위하여 납 차폐장치의 측면 상단부에 1/2" tube가 들어갈 수 있도록 \varnothing 12mm인 구멍을 좌우 마주보게 뚫었으며, 같은면의 납 차폐벽 하단부에 2" sus pipe를 관통시킬 수 있도록 구멍을 뚫었다. 이들 구멍은 사용하지 않을때는 납 차폐체의 두께만큼 납과 카드뮴판 그리고 구리판으로 제작된 Rod로 끼워 차폐시켜 주었다.

3. 시료용액 순환장치

시료용액 순환장치는 on-line 측정실험을 위하여 그림 4-6, 4-7과 같이 측정 시료 저장조, 표준시료 저장조, 저장조 세척용액 저장조와 함께 이 저장조의 용액을 순환시키는 각각의 저장조에 펌프가 설치되어 순환되도록 하였으며, 측정시료 저장조에는 측정시료를 순환시킬때의 flow-rate를 측정하기 위한 flow-meter가 설치되었다. 또한 측정시료의 농도를 증가시킬 때 일정량을 공급하기 위한 측정시료 첨가용 저장조와 flow-meter가 설치되어 있고 각 라인은 1/2" sus 튜브관을 사용하였다. 라인의 흐름은 1/2" ball 밸브로 사용하였다.

이들의 규격은 표 4-1과 같다.

Table 4-1. The specification of equipments for on-line monitoring system.

장치의 품목	크기 및 용량	비고
시료용액 저장조	18 x 18 x 30 cm (7.6l)	내산, 내알칼리용
세척조 저장조	18 x 18 x 30 cm (7.6l)	
표준시료 저장조	18 x 18 x 30 cm (7.6l)	
순환용 펌프	최대유량 20l/min 표준유량 10l/min (2m)	
시료용액 측정 유량계	1.8 ~ 18 l/min	내산, 내알칼리용
첨가용액 측정 유량계	5 ~ 50 ml/min	내산, 내알칼리용

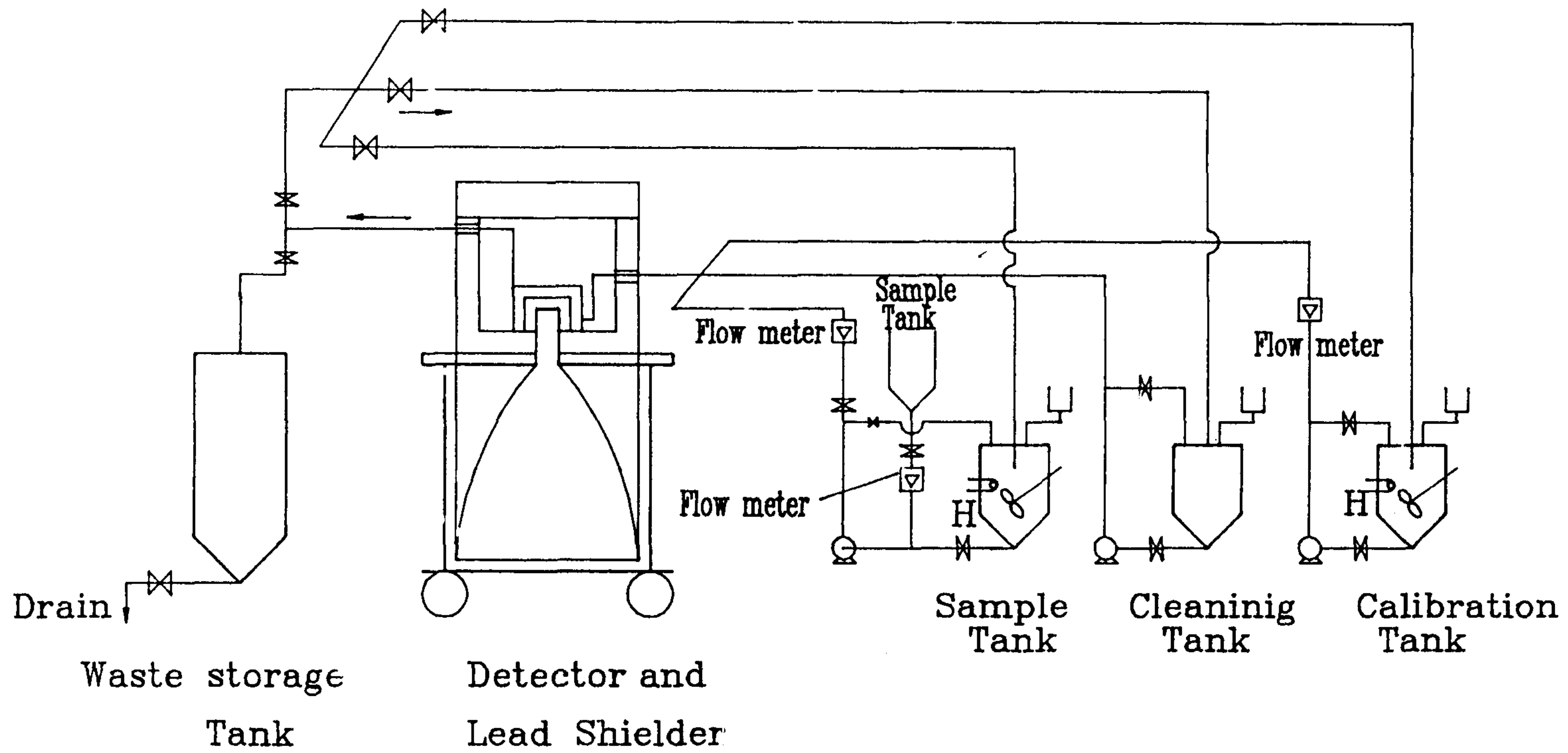


Fig.4-6. Schematic diagram of detection system for on-line monitoring of radioactive materials in fluid.

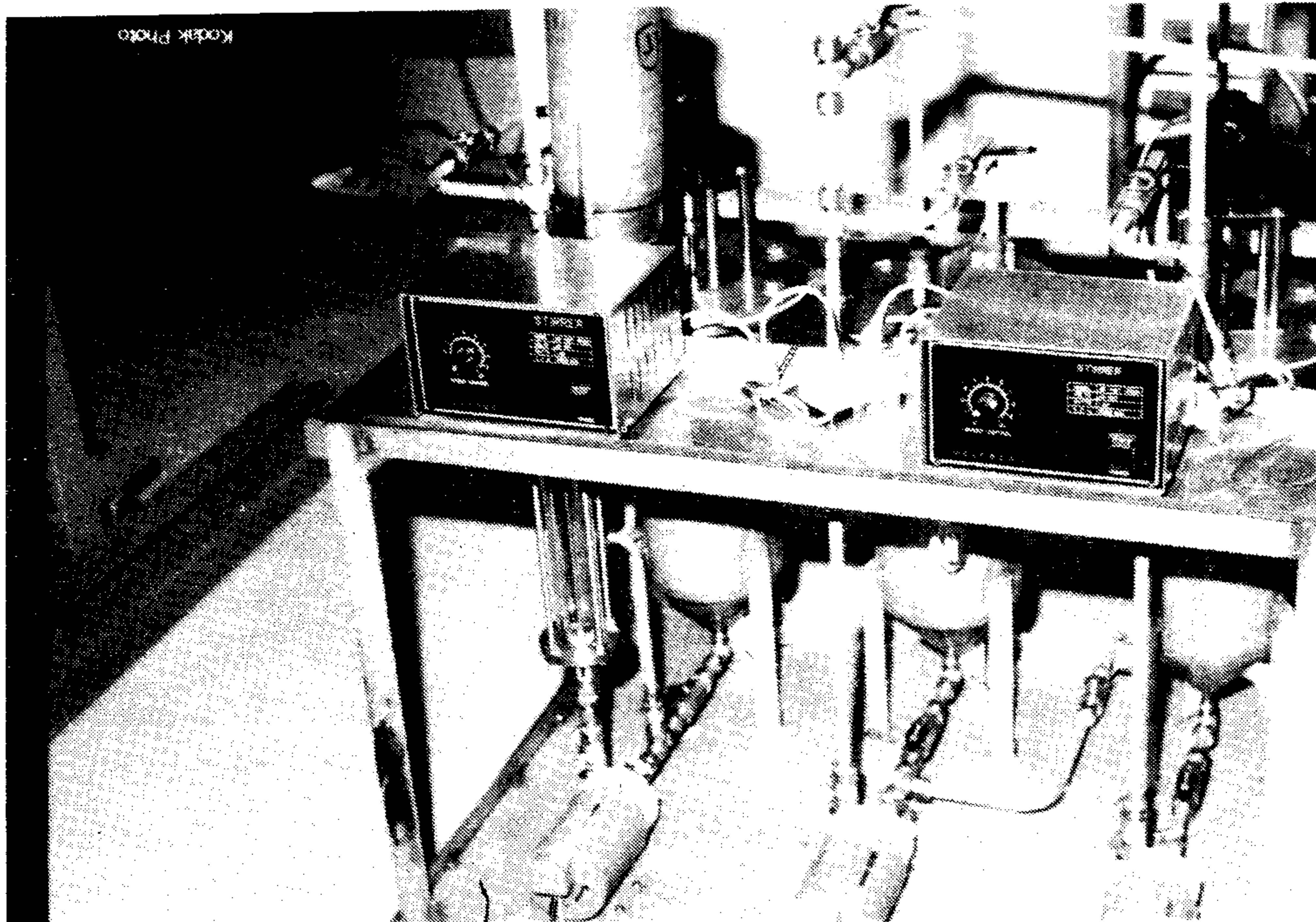


Fig.4-7. Photograph of on-line monitoring system installed for experimental measurement.

제 3 절 측정실험

1. 측정시료 용기 내부표면의 핵종 흡착실험

가. 실험배경

미국 Hanford PUREX 공정에서 생산라인에 NaI(Tl) 검출기를 사용하여 핵종의 방출에너지가 450Kev 이상인 총량 감마선을 모니터링한다. 이 측정장치의 시료용기의 내부벽에 용액중의 핵종이 흡착되어 장시간 모니터링하는 동안 기저방사선이 증가함으로써 계측값의 정확도에 문제가 되고 있다. 이러한 문제점을 해결하기 위하여 시료용기 내부 벽의 흡착량이 최소화 되도록 용기의 재질을 Kel-F(chloro trifluoro ethylene)로 제작하거나, 또는 stainless steel 재질을 사용할 경우 표면을 polishing하여 사용한다. 뿐만 아니라 시료용기의 내부를 세척수로 세척하거나 필요시 아세톤으로 세척 또는 시료용기를 완전 교체한다. 그리고 기저 방사선에 대한 보정을 위하여 수시간을 주기로 5분씩 표준시료를 이용하여 보정을 수행한다. 이와같은 방법들을 사용하여 20~30일 동안 운전하여 $\pm 2\%$ 정도로 기저 방사선을 줄이고 있으나 이 방법들은 고준위 방사능 물질을 감시하는데 매우복잡하고 어려운 작업들이다.

이러한 문제점을 해결하기 위하여 여러가지 방법들이 제시 되었다.

- 초음파를 이용하여 시료용기의 내부벽을 세정하는 방법
- 시료용기의 외벽에 얼음층을 형성시켜 핵종이 부착하는 것을 억제하는 방법 (^{60}Co 를 10분 동안 측정시 기저방사능을 $2 \times 10^{-8} \mu\text{Ci/ml}$ 로 유지)
- 시료용기를 중력방향으로 설치하여 용액을 용기의 내벽에 접촉하지 않도록 중심부분으로 자유낙하시켜 오염을 방지하는 방법(^{60}Co , ^{54}Mn 의 혼합용액을 300초 동안 측정할 때 기저방사능을 $5.9 \times 10^{-4} \mu\text{Ci/ml}$ 로 유지)

이와같이 기계적 또는 물리적으로 해결방법을 모색한 반면 1967년 C.B. Morgan이나 1983년 E. Raber등은 여러가지 재질과 핵종간의 흡착정도를 알아보았다.

특히 후자의 경우 원자가 상태가 Cs^{+1} , Sr^{+2} , SeO_3^{-2} 인 세가지 핵종을 22개 재질에 흡착실험을 수행한 결과 흡착이 잘 되지않는 재질($< 0.01ml/cm^2$)로는 zirconium, lucite, urethan, polycarbonate, viton, teflon, polyethylen등이고 흡착이 잘되는 재질 ($> 0.01ml/cm^2$)로는 neopren, steel, nitrate, stainless-316 등으로 보고하고 있다. 또한 재질과 핵종간의 흡착특성에 관한 많은 연구가 이루어지고 있으나, 방사능 물질을 취급하는 대부분의 화학공정에서 장치의 구조물로 사용되는 stainless steel 표면에 핵종 흡착에 관한 연구는 일부 특정핵종에 대해 흡착정도를 연구한 정도이다. 본연구에서는 stainless steel 표면에 흡착특성을 파악하므로써 최대한 흡착량을 줄이는 방법이나 또다른 재질을 선택하고자 하였다.

그리고 공정상의 on-line 측정장치의 검출효율을 높이기 위하여 검출기와 시료용기의 접촉면적이 큰 마리넬리 비이커를 사용하였고, 이 비이커의 재질은 일반적으로 핵종흡착이 적은 polyethylen을 주로 사용한다.

본 연구에서는 stainless steel 및 polyethylen의 표면에 방사능 핵종의 흡착에 대한 특성을 파악하는 것이 장시간 검출기의 초기감도를 유지하는데 중요하다고 판단하여 일차적으로 stainless steel과 용액중의 방사능 핵종의 흡착특성에 관한 실험을 하였다.

나. 흡착이론

고-액 경계면에서 흡착은 원칙적으로 2가지 형태로 분명하게 구별할 수 있다.

먼저, 물리흡착은 영구적인 이중극자나 유도된 이중극자, 사중극자 인력을 포함하는 분자 상호작용의 힘에 의해 일어나며, 이러한 이유때문에 주로 vander

waals 흡착으로 표현하기도 한다. 그리고 화학흡착은 흡착제의 표면층에 한정된 화학반응을 하여 결과적으로 화학결합을 형성하는 것으로서 가스나 solid의 전자 재결정력을 포함한다. 특히 고-액 경계면에서의 흡착에 대한 연구중 흡착제가 금속이고 흡착질이 단원자가나 이원자간의 양이온이 흡착되는 것을 설명하는 것은 다음과 같은 흡착 이론중 타당한 하나의 방법으로 설명하고 있다.

- 음극영역에 전기적 흡착
- Radio colloid 형성 흡착
- 산화물의 부식층에서 이온교환 흡착
- 금속이온 자체가 용액속으로 녹아들어가는 교환 흡착
- 전기 2중층 흡착

이들 방법중 stainless steel 표면에 Cs-137 의 흡착특성을 설명하기 위하여 고-액 경계면에서 전기 2중층 구조는 2가지 형태로 구별할 수 있다.

먼저, 전기 2중층 구조는 고체의 내부에 결정의 결함 또는 치환에 의하여 solid 표면에 전기적 전하를 띠게 되며, 이 전하에 반대되는 전하를 띤 이온이 고체표면에 부분적으로 많이 모이게 됨으로써 전기적으로 평형을 이루고 있다. 이 반대 이온들은 주변의 용액으로부터 고체표면으로 이동되며, 고체의 표면에 하전을 띠고있는 층을 고정층이라고 하고 전기적으로 평형을 이루기위해 이동하는 반대이온을 이동층 또는 확산층이라고 한다. 그 결과 이들 두층은 전기 2중층을 이루게된다.(그림 4-8 type I 참조)

두번째, 확산 2중층은 특정한 화학적인 힘에 의해 형성되는 것으로 예를 들어 고체표면에 흡착된 이온이 전하를 띠게되고 또 전위차를 결정하게 된다. 그리고 이들 이온들은 고정층을 형성하게 되며 이동층 또는 확산층은 전기 2중층에서와 같이 반대전하를 띤 반대이온이 된다.(그림.4-8 type II 참조)

이와같이 2중층 구조는 고-액 경계면에 전기적으로 평형을 이루기위해 경계면상에 반대이온이 이동하게 되어 부분적으로 전기적인 전위차를 형성하게 된다.

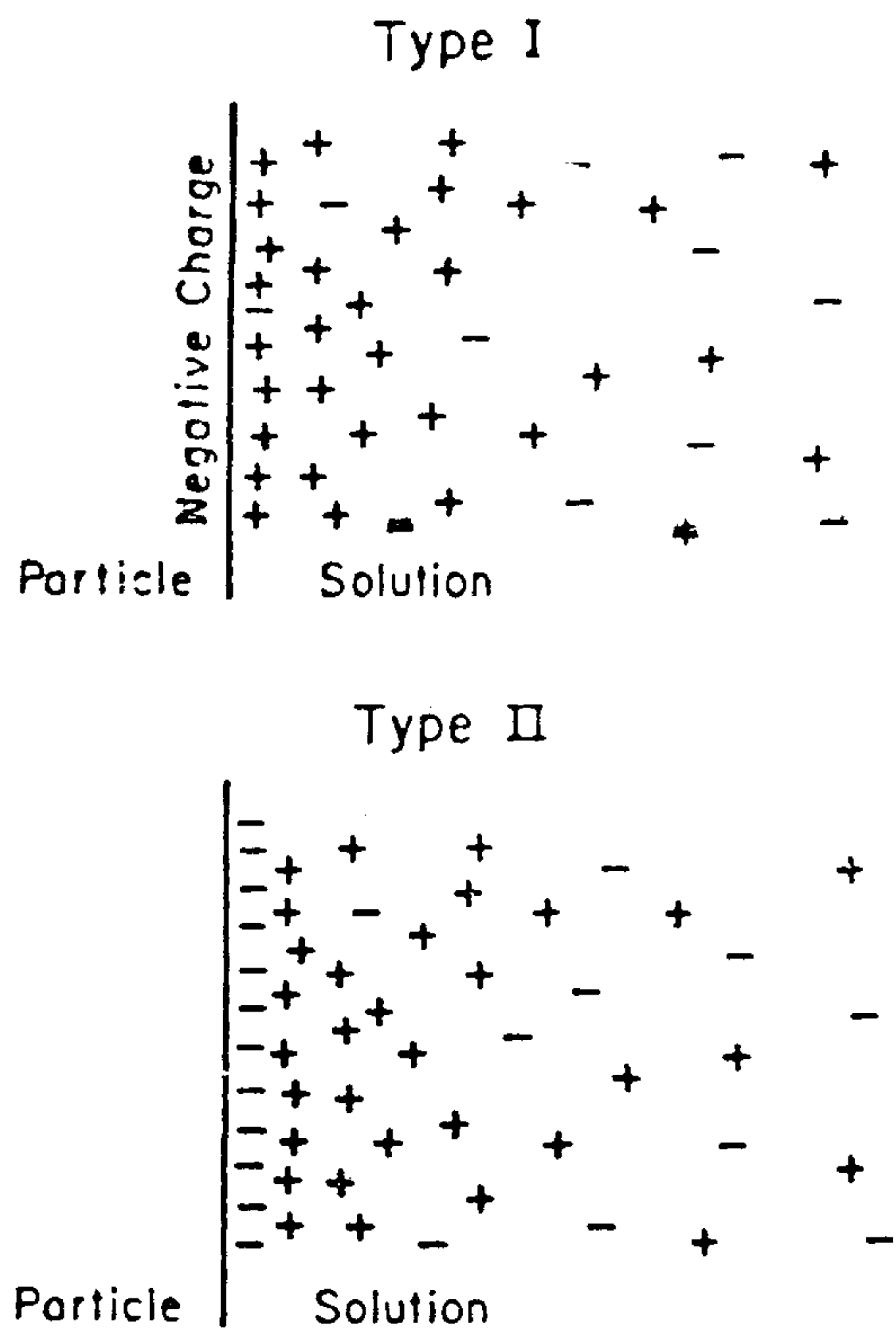


Fig. 4-8. Electrical double layers.

여기서 반대이온은 주로 H^+ 이온이나 OH^- 이온이 되기 때문에 전기적인 전위차인 zeta-potential은 pH에 의존하는 변수가 된다. 즉 pH값은 전위차를 결정하는 함수가 된다면 pH값이 변화하여 특정 pH 영역에서는 용액속에 담겨있는 금속표면 즉 가역적인 경계면에서 전기적으로 전위차가 zero인 점이 존재하게 될 것이며, 이점을 영전하점(Zero point of charge, ZPC)이라고한다.

이 영전하점이나 그 부근에서는 흡착제의 표면 전위차가 최소 또는 zero에 가까워 떨어지기 때문에 Colloid크기의 전기적 2중층이 없어지거나 붕괴되기 시작하며 용액중의 입자사이의 반발력 뿐만아니라 흡착제와 흡착질간의 반발력 역시 최소가 된다. 그래서 particle은 흡착제의 표면에 부착되고 보다 더 큰 particle 즉, colloid를 형성하게 된다.

본 연구에서는 stainless steel의 표면에 핵종의 흡착 특성을 알아보기 위하여 stainless steel의 표면에 대한 영전하점을 측정하기 위하여 다음과 같은 실험을 하였다.

다. 흡착실험

(1) 영전하점 측정실험

- 시편 제조 : stainless steel의 흡착 표면적을 크게하기 위하여 sus 304 봉를 선반으로 절삭한 sus 칩(chip)을 증류수에 6회 세척한 후 degreasing을 하기 위하여 아세톤으로 2회 세척하였다. 또한 금속 표면의 불순물을 제거하기 위하여 2N 질산용액에 6시간 동안 담근후 증류수로 다시 10회 정도 세척하여 금속 표면이 중성으로 되게하였다. 이때 증류수에 sus 칩을 6시간 이상 담가둔 후 pH meter로 측정하여 pH 6.0이 될때까지 세척하였다. 세척을 완료한 다음 130℃의 전기오븐에 24시간 건조시켜 상온으로 냉각시켰으며, 시편의 크기는 두께 0.5mm, 폭 4mm 길이 10mm가 되게 가위로 잘라서 사용하였다.

• 영전하점 측정 : 본실험에 사용된 시약들은 분석용 시약급을 사용하였다. 먼저 세척한 30ml polyethylen 용기에 0.1N-KCl용액 25ml씩을 넣고, 원하는 pH 값으로 조절하기 위하여 1ml크기의 주사기를 이용하여 0.1-0.01N HCl 또는 KOH용액으로 적당히 조절하였다. pH가 조절된 용기에 준비된 sus 칩을 5g씩 전자저울로 무게를 달아 넣고 48시간 동안 shaker를 이용하여 반응시킨 다음 pH를 측정하였다. 측정된 결과는 표 4-2와 같다. 이때 사용된 pH-meter는 orion-940 model을 사용하였다.

Table 4-2. The data measured for confirmation ZPC of charge on surface of sus chip

시료 번호	초기 PH	최종 PH	PH _f - PH _i
1	1.03	1.10	+ 0.07
2	2.01	2.01	+ 0.05
3	2.99	3.20	+ 0.21
4	4.03	5.40	+ 1.37
5	4.42	5.83	+ 1.41
6	5.48	6.07	+ 0.59
7	5.82	6.23	+ 0.41
8	5.90	6.16	+ 0.26
9	6.48	6.21	- 0.27
10	7.00	6.48	- 0.52
11	8.91	6.83	- 2.08
12	10.04	9.45	- 0.59
13	10.44	10.22	- 0.22
14	11.08	11.00	- 0.08

(2) 핵종 흡착실험

- 시편제조 : Sus 304 봉를 선반을 이용하여 절삭하였고 제조방법은 영전 하점 측정실험에서 제조한 방법과 동일하게 만들었다.

- 시료용액 제조 : 1000ml 부피 플라스크에 CsNO_3 (Aldrich 社, 순도 99%)를 0.0197g 넣은후 증류수 및 HCl용액으로 플라스크 표선까지 맞추어 0.1N HCl의 용액에 CsNO_3 농도가 $1 \times 10^{-4} \text{Mole/l}$ 인 용액을 만들었으며, 또한 trace법으로 흡착량을 분석하기 위하여 사용한 Cs-137 방사선 동위원소는 미국 IPL사에서 공급한 총 방사능량이 $1 \mu\text{Ci}$ 인 동위원소를 250ml부피 플라스크에 넣고 증류수 및 HCl용액으로 표선까지 채운다음 혼합하였다. 이 용액 역시 0.1N HCl용액에 Cs-137의 방사능 농도가 $4 \times 10^{-2} \mu\text{Ci/ml}$ 인 용액으로 제조하여 사용하였다.

- 흡착실험 절차 :

- 100ml용 polyethylen용기를 전자저울에 소수점 2자리까지 무게 측정한다. 그리고 sus 304 칩을 약 10g씩 정확하게 무게를 측정하여 기록한다.

- 이 용기에 Cs-137용액을 5ml씩 마이크로 피펫을 사용하여 넣은 다음, 70ml의 CsNO_3 용액을 메스실린더에 정량하여 넣는다.

- 이 용기에 1ml용 주사기를 사용하여 10^{-1} , 10^{-2} , 10^{-3}N 으로 희석시킨 HCl, NaOH용액을 제조하여 원하는 pH로 조절하기 위하여 사용하였으며, 이때 사용한 pH-meter는 orion-940 이었다.

- 이렇게 pH별로 조절된 polyethylene통의 전체 무게는 전자저울에서 소수점 4자리까지 측정하여 기록하였다.

- 이렇게 제조된 용액을 shaker를 이용하여 7일 동안 흡착시킨 다음 4시간 동안 정제시키고 상등액을 마이크로 피펫을 이용하여 2ml씩 조심히 채취한 다음 측정용 바이알에 넣어 well type NaI(Tl) 검출기를 이용하여 방사능을 측정하였다. 이때 측정시간은 10분으로 하였으며 5회씩 측정하여 평균한 값을 count수로 하였다.

- Polyethylen에 대한 Cs의 흡착은 PE통에 sus 칩을 넣지않고 앞에서 설명한 방법과 동일하게 흡착실험을 수행하였다.

- 흡착량의 계산방법은 다음과 같은 식으로 계산하였다.

$$C = \frac{A_0 - A}{A_0} \times 100$$

여기서 A_0 : 초기 전체 방사능량

A : 흡착된 후 용액중 잔류한 방사능량

라. 결과 및 고찰

Sus 304 chip의 영전하 측정실험 결과는 표4-2와 같으며 $\Delta pH = pH_f - pH_i$ 대 pH_f 에 대해 plotting한 결과는 그림4-9와 같다. 이 그림에서 알수 있듯이 sus 304 칩의 등전점은 $pH=6.3$ 이었다. 즉 수용액 중에서 sus 304 칩의 표면은 $pH=6.3$ 보다 낮은 pH영역에서는 H^+ 이온의 흡착이 상대적으로 크며 반대로 높은 pH영역에서는 OH^- 이온의 흡착이 크게 된다. 그리고 어떤 pH영역에서는 H^+ 뿐만 아니라 OH^- 이온의 흡착이 동시에 일어나는 점이 있는데 이점을 금속표면의 등전점이라고 하며 일반적으로 등전위 점과 영전하 점이 같게 된다.

또한 sus 304 칩의 표면에 Cs 흡착실험 결과는 그림4-10과 같다. 이 그림에서 polyethylen 및 sus 304 칩의 표면에 흡착되는 2개의 곡선은 두개의 흡착피크를 각각보여 주고 있다. $pH \approx 3$ 부근의 흡착피크는 2개의 곡선이 거의 비슷하며 polyethylen에 흡착되는 양이 더 높게 나타나고 있다. 그리고 두번째 피크는 반대로 polyethylen에 흡착되는 양이 적게 나타나고 있다.

앞부분의 피크에서 polyethylen의 흡착량이 많은 이유는 검출된 스펙트럼의 ROI 설정시 약간 넓게 설정한 결과로 판단된다. 뒤부분의 피크는 SUS및 polyethylen의 표면에 동시 흡착된 양이 polyethylene표면에 흡착된 양보다 크다. G.Benes 등은 HCl용액 내에서 polyethylen 표면에 gold의 흡착량을 pH함수로

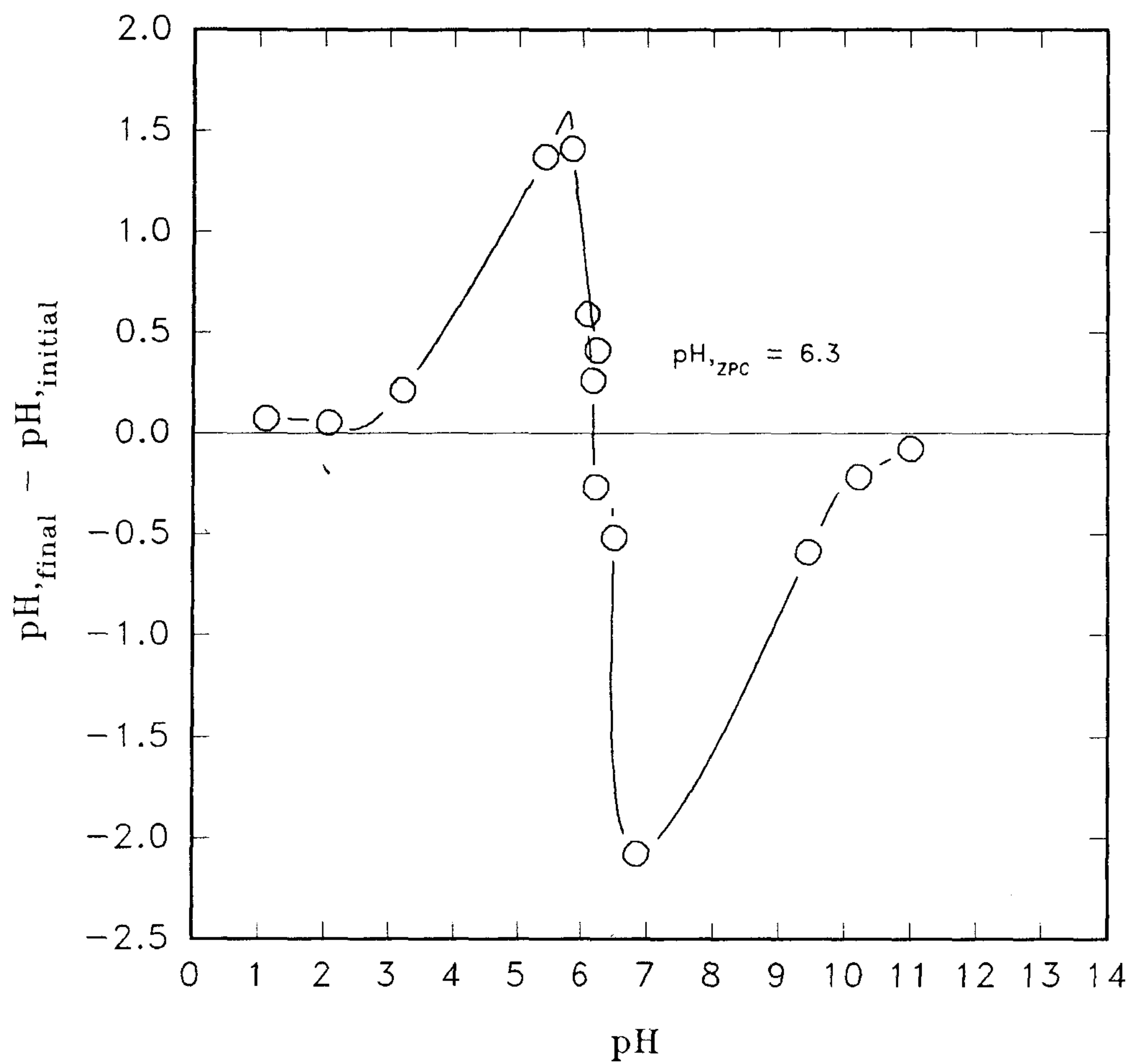


Fig.4-9. Confirmation of zero point of charge by pH measurement.

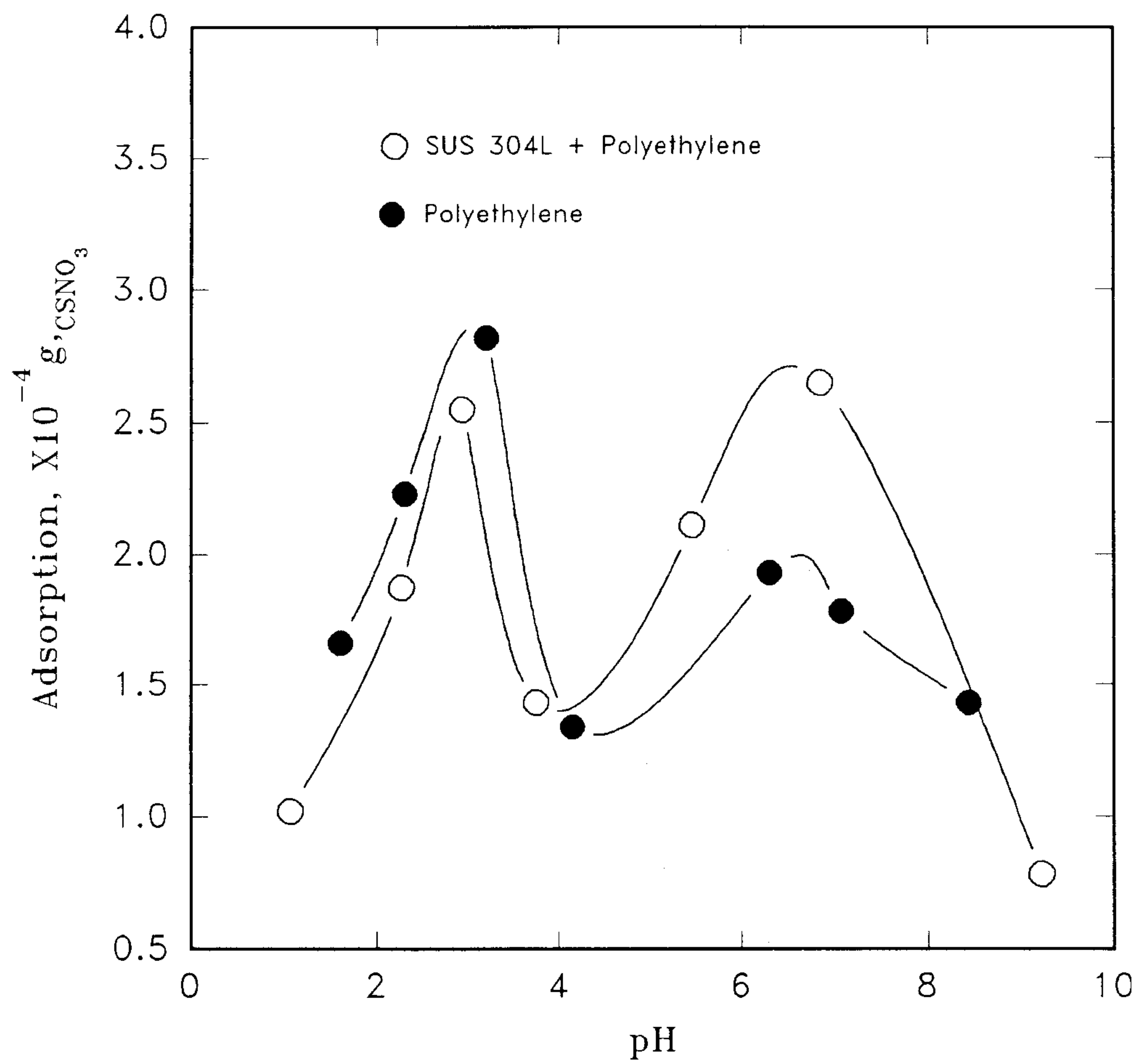


Fig.4-10. Adsorption of Cs-137 according to change of pH on sus304 and PE.

서 pH 1.5 부근에서 흡착이 최대로 일어나고 있으며, pH가 증가할수록 흡착량이 감소하고 있다.

또한 J.Belloni 등은 stainless steel 표면에 Pm의 흡착실험 결과 최대 흡착피크는 pH 5.6 부근에서 일어나는 것을 알 수 있다. 이 두가지 흡착제의 표면에 흡착질의 종류가 본실험과 서로 다르지만 흡착피크는 같은 pH영역에서 일어나고 있다. 즉 pH 3부근에서는 polyethylen의 흡착 곡선이고, pH가 3보다 큰 부분은 stainless steel의 흡착곡선으로 볼 수 있다. 따라서 stainless steel표면에서 Cs의 흡착특성은 그림 4-10과같이 pH 4부근에서 흡착이 시작되며, pH 6.3 부근에서 최대 흡착이 일어나고 계속해서 pH가 증가할수록 흡착량은 감소하고 있다. 그리고 그림4-9에서 보면 stainless steel의 등전위 점은 $pH_{zpc} = 6.3$ 으로 Cs가 흡착되는 최대점과 sus의 등전위 점이 일치하고 있음을 알 수 있다. 이것은 앞에서 언급하였듯이 흡착제의 표면전위가 최소 또는 zero에 가깝게 떨어지면 용액중의 흡착질의 입자들 사이의 반발력이나 또는 흡착질과 흡착제 사이의 반발력이 최소가 되기 때문에 흡착질인 particle은 van der waals힘에 의한 흡착이 가능하며, 또한 colloid를 형성하여 흡착하게 되는 물리흡착으로 설명할 수 있다.

본 연구에서는 pH변화에 따른 흡착 특성만을 보았으나 흡착은 흡착질의 분자나 이온의 특성, 농도, 온도 등 여러가지 변수에 따라 기본적으로 변화하기 때문에 본 연구에서는 앞으로 핵종의 원자가에 따른 실험 즉 2원자가와 3원자가 등 다원자가의 흡착실험 및 흡착질의 농도에 따른 흡착량의 변화등에 관한 실험을 하여 흡착특성을 보다더 확실하게 규명하고자 한다.

2. 용액중 방사능 측정실험

가. 이론적 배경

제작된 on-line 장치의 성능시험 및 측정, 감시하고자 하는 농도($10^{-8}\mu$

Ci/ml)를 측정하기 위해 측정장치의 최저 측정한계가 중요하게 된다. 일반적으로 측정장치의 측정한계를 결정하는 용어는 2가지가 있다.

첫째, 최소검출 방사능(minimum detectable activity)으로서 다른 방사핵종의 존재로부터 간섭 및 사용자가 요구한 감지도(sensitivity) 설정에 따라 달라지며 다음과 같은 식으로 표현된다.

$$MDA = \frac{c}{E \cdot f \cdot T} \left(\left(2B \frac{c^2}{4} \right)^{1/2} \frac{c}{2} \right) \text{ (dps)}$$

여기서 MDA : 최소 측정 농도(d/s)

E : 피크 절대효율(%)

T : 측정시간(min)

f : 감마선의 방출율(γ/d)

c : 사용자가 설정한 감지도(감지도/100)

B : 기저 방사능 계측수

둘째, 검출 최소한계 (lower limit of detection)로서 시료가 없는 blank상태에서 background spectrum의 통계적 분석으로서 시료중의 방사능 물질을 측정할수있는 가장 낮은 농도 의미하며, 다음과 같은 식으로 표현된다.

$$LLD = \frac{4.66 S_b}{E \times V \times 2.22 \times Y \times \exp(-\lambda \Delta t)} \left(\frac{PCi}{l} \right)$$

여기서 LLD : 최소 측정한계 (PCi/ml)

S_b : 기저 방사선 계수률의 표준편차(counts/minute)

$$S_b = \sqrt{\frac{\text{background 계수률}}{T^2}} = \frac{\sqrt{\text{background count 수}}}{T}$$

E : 각 피크의 효율 (c/d)

V : 시료량(ml or g)

Y : 각 핵종의 방사 화학적 수율

λ : 핵종의 붕괴상수

2.22 : PCi당 1 분에 핵종의 붕괴되는수

Δt : 시료채취 시간과 계측시간과의 차이

이들 두가지 용어는 통상적으로 같은 의미로 사용하기도 한다.

NRC regulatory guid 4.16의 부록 A에서 측정장치의 최저 측정한계는 방사능 물질의 시료를 측정할 때 최저농도를 95% 신뢰도를 갖을 수 있는 측정한계로 정의하고 있으며, 위의 LLD식과 같이 주어져 있다. LLD 식에서 기저 방사능의 표준편차 S_b 는 기저 방사능의 측정계수의 제곱근에 비례하고 측정시간(T)에 반비례하게 된다. 그리고 이미 설치된 측정 장치에서는 E값, V값, 및 시료의 농도 및 조성성분이 거의 일정할때는 이들 값은 상수가되고 결국 LLD값은 측정시간에 반비례 함수가 된다. 본 연구에서는 측정시간에따른 측정장치의 최저측정한계값을 구하여 on-line 측정시 측정할 특정농도에 대해 거의 실시간에 가깝게 측정할 수 있는 시간을 결정 하므로써 공정의 장치설계시 기본자료로 사용하고자 하였다.

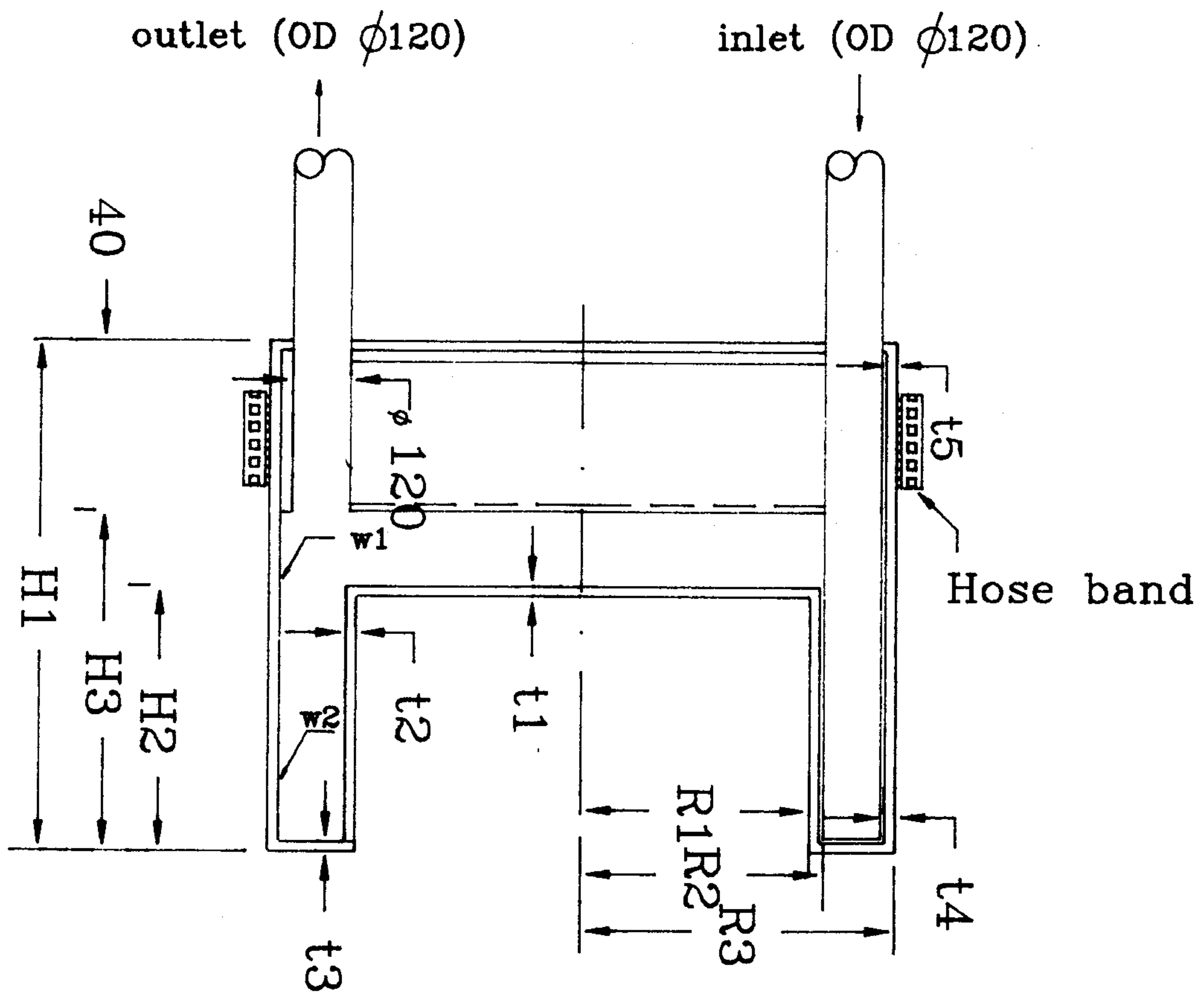
나. 측정실험

(1) 선원제작

저준위 및 환경방사능 측정에 널리 사용되고 있는 측정용기는 marinelli beaker, cylindrical bottle, petri dish, planchet 등이 있으며, 측정시료의 물리 화학적 형태, 요구되는 측정 정확도, 그리고 측정 방사선의 종류에 따라 측정용기가 선택 되어진다. 이들 측정용기 중 marinelli beaker와 cylindrical bottle은 감마 환경방사능 측정에 널리 사용되고 있으며 전처리 과정이 간단하고 측정시료의 양이 상대적으로 많이 사용할 수 있는 장점이 있다. Marinelli beaker 선원은 cylindrical bottle 선원에 비하여 검출효율이 상대적으로 높기 때문에 저준위 및 방사능 측정에 매우 적합한 용기이다. 이 marinelli beaker의 재질은 polyethylene을 사용하였다.

본 실험에서는 off-line으로 측정시 1L 용량의 marinelli beaker를 사용하였으며 이 beaker의 특성은 고순도 Ge 반도체 검출기와 3"x3" NaI 섬광검출기에 모두 사용 가능하도록 beaker 하단의 공동의 크기를 직경 85mm로 제작하였으며, 공동의 깊이는 1L의 경우 73.2mm로 하였다. 또한 beaker 용기에 측정시료가 충전되어 있을 때, 측면시료의 두께와 공동면 위의 시료높이가 같도록 제작하여 측정시료로부터 검출기 방향으로 방출되는 감마선의 흡수효과를 최소화하였다. 또한 on-line으로 측정시 사용된 marinelli beaker는 off-line시 사용된 beaker의 크기 및 모형은 동일하나 beaker의 상단부 뚜껑부분은 시료용액의 순환을 위하여 그림4-11과 같이 polyethylen을 선반가공하여 제작, 설치하였다. 크기는 직경이 141mm x 두께가 40mm이며, 시료의 출입구는 역시 polyethylen의 외경이 12mm인 단단한 튜브를 사용하였다. 이 beaker 제작시 주의할 점은 용액의 leak가 발생시 납 차폐장치의 오염 등 매우 곤란한 일이 발생하게 된다. 때문에 본 연구에서는 leak를 방지하기 위하여 실리콘 접착제 및 강력 순간 접착제 등을 사용하여 접착시켜 보았으나 모두 leak가 발생하였다. 그리고 이러한 이물질 특히 실리콘의 경우 핵종의 흡착이 잘 되기 때문에 본 연구에서는 접착제를 사용하는 대신 marinelli beaker에 꼭 맞게 선반가공하여 강제로 결합시킨 다음 stainless steel로 제작된 hose bend를 이용하여 bending하였다. 시료 출입구의 polyethylen 튜브의 접촉부위 역시 직경 1mm정도 적게 구멍을 뚫어 튜브를 결합시켰으며, 실제장치에서 펌프를 이용하여 leak test를 한 결과 8시간 동안 leak가 없었다.

선원제작은 용기의 내벽에 방사성 동위원소의 흡착을 방지하고 균일하게 분포시키기 위하여 방사성 동위원소의 화학적 조성과 같이 0.1-N HCl 수용액을 만들어 용기에 담았으며, 전체 방사능 세기가 1 μ Ci인 Cs-137 동위원소를 0.1N HCl용액 250ml에 희석시켜 표준용액을 만든 다음 미세조정이 가능한 자동피펫을 이용하여 1L marinelli beaker에 4×10^{-8} , 4×10^{-6} , 4×10^{-5} μ Ci/ml의 농도를 갖는 선원을



(Unit : mm)

MB	H1	H2	H3	t1	t2	t3	t4	R1	R2	R3	W1	W2
1000ml	140.0	73.2	98.1	2.00	2.00	3.00	3.00	42.5	42.9	70.9	24.7	23.9

Fig.4-11. Drawing of marnelli beaker.

만들었다.

(2) 감마선 스펙트럼 측정

본 실험에서는 일차적으로 Cs-137의 단일 감마선 방출 핵종을 선정하여 7.62cm X 7.62cm 크기의 NaI(Tl) 형광검출기의 효율을 Cs-137에 대하여 결정하였으며 스펙트럼의 측정은 측정선원과 검출기 사이의 기하학적 조건과 측정 정확도를 높이기 위하여 5회씩 반복 측정하여 평균값을 사용하였으며 측정시간은 live time을 기준으로 측정하였다.

효율 결정은 1L 용기의 marinelli beaker를 설치한 geometry에서 정확한 방사능 농도를 알고있는 Cs-137의 662Kev의 단일 감마선을 이용하여 사용하였다.

검출기의 검출효율은 감마선의 에너지 함수로서 다음식과 같이 나타낼 수 있다.

$$\epsilon_p = \frac{N(E)}{A \cdot Pr(E)} \times 100$$

여기서 A는 측정선원의 방사능, Pr(E)은 감마선 에너지 E의 방출확률 그리고 N(E)는 감마선 에너지 E에서의 스펙트럼 면적의 계수율이다.

피크면적의 계산은 각 채널당 계수값의 합으로부터 구하는 summation 방법을 사용하였으며 다음식과 같이 나타낼 수 있다.

$$N = G - C \times \frac{(B_1 + B_2)}{2A}$$

여기서, G는 감마선 스펙트럼 에너지 E에서의 전체 피크면적, C는 피크의 채널수, A는 피크양쪽의 저 에너지와 고 에너지 부분의 background 채널수, B₁은 저 에너지 피크 부분에서의 A채널에 대한 계수값의 합 그리고 B₂는 고 에너지 피크 부분의 A채널에 대한 계수값의 합이다. 실험에서 peak 채널범위 C는 전체 피크면적의 99.7%를 포함할 수 있도록 피크 채널로부터 ±5 채널로 주었다.

1L marinelli beaker의 선원에 대한 full energy 피크효율은 Cs-137에 대하여 4.66%였다.

(3) 최소검출 한계측정

앞에서 설명한 것처럼 측정장치가 설치되고 측정시료의 부피(V)와 측정시료의 조성 및 농도가 거의 일정할때는 결국 최소검출한계 측정값은 측정시간(T)에 반비례관계에 있다. 일반적으로 on-line 계측기기의 계측시간과 분석결과 사이의 시간차는 측정기기와 공정의 특성에 따라 다르나 30-60초 미만이 일반적인 범위이며, 경우에 따라서는 20-30분이 걸려도 공정상 큰 문제가 없는 경우가 있으므로 이를 고려하여 본 연구에서는 측정시간을 30분 까지 측정하였다.

3"x 3"크기의 NaI(Tl)검출기의 최소측정한계를 결정하기 위하여 차폐장치내에 시료가 없는 상태에서 측정시간(T)에 대하여 CS-137의 ROI범위가 103-131채널인 곳에서 기저 방사능을 측정하였다. 측정의 정확도를 높이기 위하여 5회씩 측정하여 평균 값을 사용하였으며 측정결과는 표 4-3과 그림 4-12와 같다.

결과를 살펴보면 1분 측정시 1.7×10^{-7} uci/ml이고 30분 측정시 4.5×10^{-8} uci/ml로 시간이 길어질수록 낮은 방사능 세기의 농도를 측정할 수 있고, 그림 4-12에서 보면 측정시간이 5분 이전에는 측정시간에 따라 측정할 수 있는 최소 측정한계가 크게 낮아지고 있으며, 측정시간이 10분 이상일 때는 시간에 비해 측정한계가 크게 낮지않다. 때문에 on-line 측정시 측정시간을 되도록 짧게 해야하므로 5-10분 사이에서 측정하는 것이 짧은시간에 낮은 농도를 측정할 수 있을 것으로 판단된다. 그리고 제조된 Cs-137의 방사능세기가 4×10^{-8} , 4×10^{-6} , 4×10^{-5} uci/ml의 용액을 시간에 따라 측정한 결과는 표4-4와 같다. 표4-4에 의하면 측정장치의 계측율이 시료의 방사능 세기가 4×10^{-8} uCi/ml인경우 total count수에 대한 cps는 0.42정도이며, net count수에 대한 cps는 영 으로 계측이 되지 않았다. 그리고 4×10^{-6} , 4×10^{-5} uCi/ml의 경우 total cps와 net cps는 각각 5.97과 5.28이고 또 58.7과 51.1이었다. 여기서 4×10^{-8} uCi/ml의 측정되지 않는 이유는 30분을 측정해도 장치의 최소검출한계 보다 낮기 때문으로 생각된다.

Table 4-3. Lower limit of detection with counting time.

Counting time/min	BKG	Sb	LLD(uci/ml)
1	11	3.3	1.7×10^{-7}
3	50	2.35	1.2×10^{-7}
5	81	1.8	9.5×10^{-8}
7	118	1.55	8.2×10^{-8}
10	173	1.32	7.0×10^{-8}
15	278	1.11	5.9×10^{-8}
20	429	1.03	5.4×10^{-8}
25	543	0.92	4.9×10^{-8}
30	648	0.85	4.5×10^{-8}

Table 4-4. Counting rate with radioactivity and counting time.

Counting time(min)	4×10^{-8} uci/ml		4×10^{-6} uci/ml		4×10^{-5} uci/ml	
	total cps	net cps	total cps	net cps	total cps	net cps
1	0.45	0	6.25	5.45	56	53
3	0.38	0	5.84	5.22	49	44
5	0.47	0	5.88	5.16	57	55
7	0.43	0	5.91	5.19	52	47
10	0.40	0	5.96	5.28	48	46
15	0.39	0	5.97	5.31	69	69
20	0.41	0	5.98	5.29	49	49
25	0.39	0	5.96	5.30	48	48
30	0.45	0	5.99	5.35	52	49

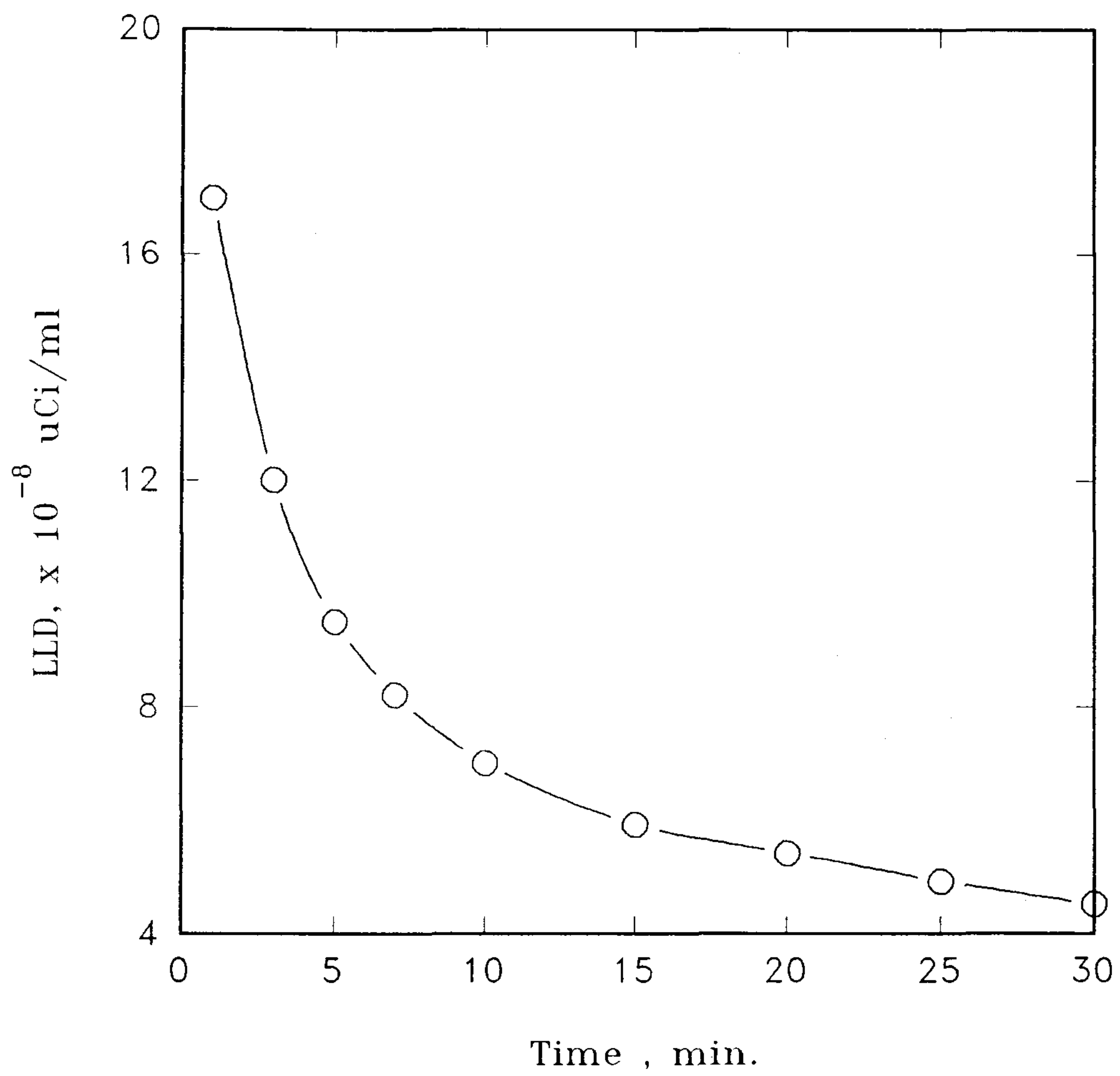


Fig.4-12. Low limit of detection according to counting time.

또한 4×10^{-6} , 4×10^{-5} uCi/ml인 경우는 1분 이내에 검출이 가능하다. 즉 환경시료와 같은 수준의 냉각수에 방사능 물질의 오염여부는 1분 이내에 감지가 가능하며 10^{-7} uCi/ml의 경우도 계산된 최소측정 한계값으로 미루어 1분 이내에 측정 가능할 것이다.

그림 4-13에서 측정시간에 따라 측정계수율 cps의 변화를 살펴보면 4×10^{-6} uCi/ml의 경우 편차가 최고 2.2%이내이고 또 4×10^{-5} uCi/ml는 최고 10%이내로 변화하고 있다. 때문에 앞으로 공정에서 on-line 측정 장치를 이용하여 공정을 제어하거나 방사능 오염여부를 감시할때 cps를 기준으로 측정범위를 설정하여 1분 이내에 제어 및 감시를 할 수 있을 것으로 판단된다. 그러나 10^{-8} uCi/ml의 농도 범위에서는 앞으로 실험을 더욱더 하여 정확한 결론을 얻고자 한다.

제 4 절 결 언

본 연구에서는 균분리 공정의 순환수의 방사능 오염 여부 및 단위공정별 운전상태를 연속적으로 감시하기 위한 시험용 on-line 측정장치를 구성하였다.

장치의 구성은 감마선 총량을 감시하기 위해 계측효율이 양호한 7.62cm X 7.62cm 크기의 NaI(Tl)검출기를 선정하였고, 핵종 및 농도를 측정하기 위하여 분해능이 양호한 검출효율이 25%인 고순도Ge반도체 검출기를 선정하였다. 그리고 각각의 검출기에 전치증폭기, 주증폭기, ADC변환기, 그리고 다중채널분석기를 연결하고 컴퓨터를 이용하여 data가 분석되도록 하였으며, on-line 분석을 시료순환 장치와 납차폐 장치를 제작, 설치하였다.

또한 방사능 측정장치를 장시간 운전할 경우 측정시료 용기의 내부벽에 방사능 핵종이 흡착되어 기저방사능(background)이 증가하기 때문에 초기의 측정감도를 유지하기 어렵다. 그래서 이 문제점을 해소하기 위하여 본 연구에서는 SUS 304L 표면에 pH의 변화에 따른 Cs의 흡착특성을 파악하기 위하여 표면의 영전하

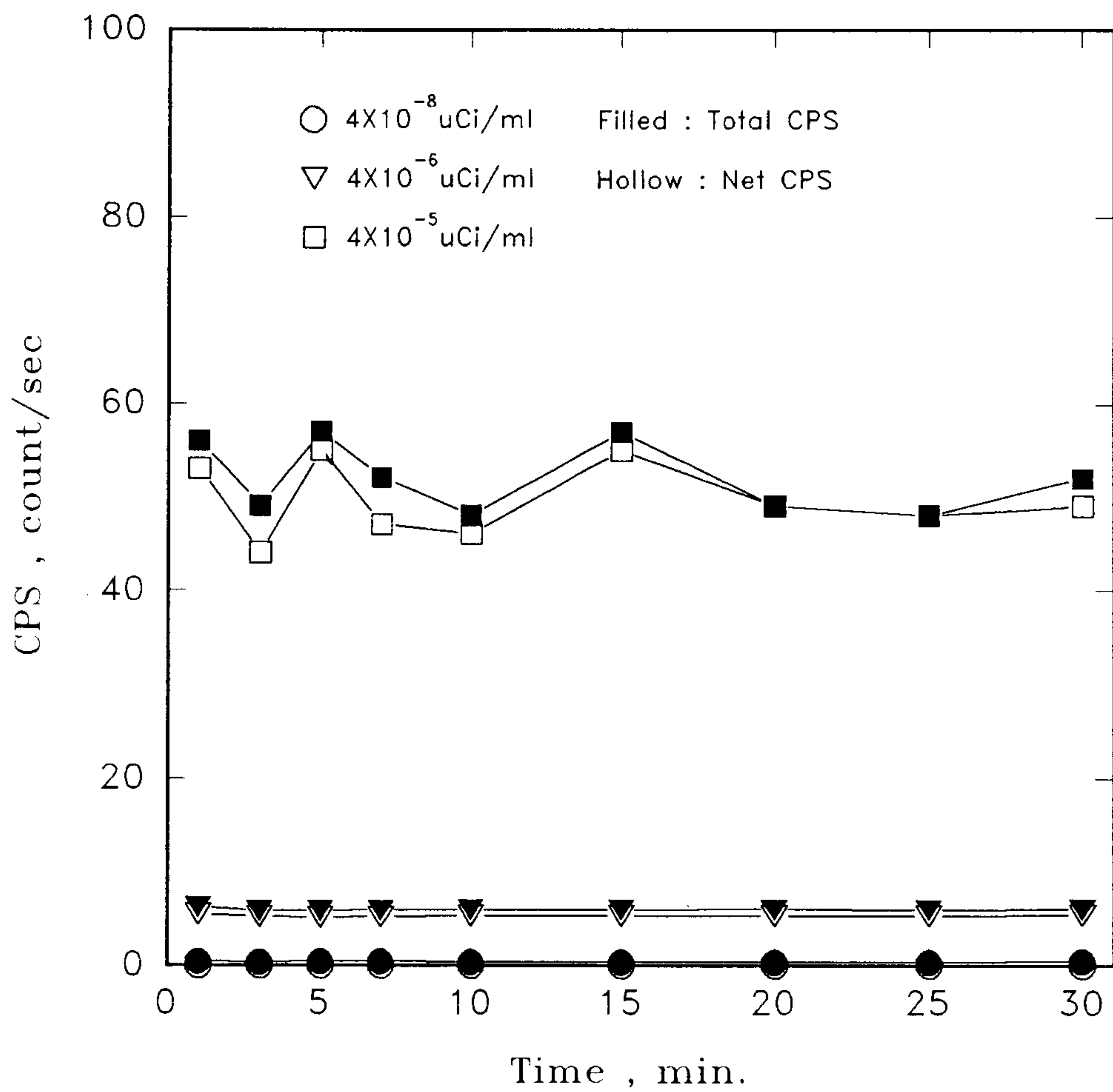


Fig.4-13. Counting rate according to concentration of radioactivity.

(ZPC) 측정 실험을 수행하였으며, 그 결과 SUS 304 표면에서 영전하점은 $pH_{ZPC}=6.3$ 으로 Cs의 최대 흡착점과 일치하는 것으로 보아 물리적흡착이 일어나는 것으로 판단할 수 있었다. 따라서 다원자가 핵종과 농도의 변화에 대한 흡착 실험을 수행할 필요가 있는 것으로 판단되었다.

또한 on-line측정시 거의 실시간(near real time)에 가까운 시간에 최소농도를 측정할 수 있는 최소측정한계(LLD)의 값을 시간에 따라 측정한 결과 $10^{-7}uCi/ml$ 까지는 1분이내에 측정이 가능할 것으로 판단되며, $10^{-8}uCi/ml$ 의 경우 30분까지 측정했으나 계측이 되지 않았으나, 추가실험을 통하여 재 확인한 후 공정설계에 적용할 자료를 확보하는 것이 바람직하다.

제 5 장 Mo-99 분리, 정제실험

여 백

제 1 절 서 설

Tc-99m은 의료용 방사선 진단제로서 세계적으로 널리 이용되고 있으며, 그 수요도 최근 급격히 증가하고 있다. 그러나 제조기술의 발달과 Tc-99m의 매우 짧은 반감기로 인해 점차 각국의 국내에서 생산하려는 추세이다. Tc-99m의 제조 원료로는 Mo-99가 유일하게 사용되며, Mo-99 제조방법으로는 neutron capture법과 우라늄 fission법이 있다. 그러나 neutron capture 방법은 낮은 비 방사능(specific activities)과 높은 제조비용으로 인해 대량생산을 위한 제조방법으로는 활용되지 못하며, 우라늄 fission법에 의한 제조방법은 고준위 방사성 물질의 취급으로 인한 어려움이 있음에도 불구하고 높은 비 방사능과 낮은 제조비용으로 인해 공정개발 및 그 응용이 활발하여 대량생산을 위한 공정으로 이용되고 있다.

본 연구과제에서는 우라늄 fission법에 의한 Mo-99 분리 및 정제 공정이 고준위 방사성 물질을 취급하는 공정이며, 균분리 공정과 같은 습식 화학공정으로서 공정 장치 특성과 장치규모등이 유사하여, 현재 수행중인 차폐시설의 설계 및 장치개발의 효과를 높이고, 공정개발과 동시에 국내 동위원소 수요를 위한 생산시설로서 활용이 가능한 점을 고려하여 본 연구를 수행하게 되었다.

따라서 Mo-99 분리, 정제 기술현황에 대한 조사, 분석을 통하여 우라늄 fission법을 이용한 여러가지 Mo-99 분리, 정제공정의 특성을 검토하여 개발을 위한 공정으로 알루미늄나 흡착공정을 선택하였으며, 최적 조업조건의 설정과 장치의 개발을 위한 기초 실험을 수행하였다.

본 절에서는 우라늄 fission법에 의한 여러가지의 Mo-99 제조공정의 특성과 개발을 위한 공정으로 선정된 알루미늄나 흡착공정의 특징과 수행한 기초실험 방법, 장치 및 실험결과 등을 기술하였다.

제 2 절 Fission Mo-99의 제조방법

1. 제조공정의 개요

지금까지 개발된 U-235의 fission에 의한 Mo-99의 제조법은 매우 다양하여 사용되는 국가에 따라서 매우 다른 방법을 보이고 있으나 target의 제조로부터 정제에 이르기까지 몇개의 단위공정으로 구성되어 있으며, 이의 일반적인 개념은 제3장의 그림 3-2와 같다.

여기에서 보는 것과 같이 Mo-99 제조공정의 제 1단계는 target의 제조와 이의 원자로에서의 조사이다. Target의 형태는 사용되는 우라늄의 형태에 따라서 대개 두 가지 형태의 것이 많이 사용되며, 이는 UAlx 형태의 금속 우라늄의 합금 형태와 UO₂의 세라믹 형태의 소결체이다.

이러한 우라늄의 화학적 형태는 농축도에도 영향을 받는 것으로서 고농축의 경우 단위 부피당 높은 발열량으로 인한 온도의 상승을 억제하기 위하여 금속 형태가 사용되며, 낮은 농축도나 천연 우라늄인 경우에는 화학적으로 안정한 UO₂ 소결체가 많이 사용되고 있다. 이 우라늄의 화학 형태에 따라서 target의 형태나 후속 용해공정이 결정되며, 이들 각각의 특징은 표 5-1과 같다.

조사는 모든 경우에 각국이 보유하는 연구용 원자로를 이용하고 있으며, 중성자 속은 대개 $10^{13} \sim 10^{14}$ n/cm²sec로서 보고된 자료에 의하면 5×10^{13} 의 경우가 가장 많다. 동일한 농축도를 사용하는 경우에는 조사조건에 따라서 생산량이 좌우되는데 중성자 속이 높을수록 생산량이 많다. 세계 각국에서 생산용이나 또는 연구용으로 수행되었던 우라늄의 농축도, 조사조건에 따른 Mo-99의 생산량의 예는 표 5-2와 같다.

Table 5-1. Process characteristics according to enrichment of uranium.

enrichment	high(> 20%)	low (< 5%)
chemical form	UAlx alloy	UO ₂
target form	plate or rod in Al cladding	pellets in SUS/Al cladding
dissolution	NaOH/HNO ₃	HNO ₃
characteristics	high density high thermal conductivity not easy handling for small production	low price availability high Pu production

Table 5-2. Worldwide examples for target forms, irradiation conditions and production rates for fission ⁹⁹Mo production.

nation	target	irradiation	production	remark
Japan	UO ₂ pellet, 120g 2.6% enriched	2-3 x10 ¹³ n/cm ² sec 4 days	20 ci	
Belgium	UA1x alloy, 4g 93% enriched	1.5 x10 ¹⁴ n/cm ² sec 120 hours	50 ci	
	UA1x alloy, 4.2gx6ea 89-93% enriched	1.5-2.5 x10 ¹⁴ n/cm ² sec 100-120 hours	300-500 ci	commercial production
Germany	UA1x alloy, 105g 36% enriched	5 x10 ¹³ n/cm ² sec 200 hours	1200 ci	commercial production
	UO ₂ pellets, 400g natural	5 x10 ¹³ n/cm ² sec 100 hours	40 ci	
Argentina	UA1x alloy, 1g x6ea 90% enriched	1.5 x10 ¹³ n/cm ² sec 5 days	80 ci	commercial
Taiwan	UO ₂ pellets, 384g natural	5 x10 ¹³ n/cm ² sec 5 days	30 ci	
USA	UA1x alloy, 16.1g 93% enriched	--	532 ci	after irr.
	UA1x alloy, 93.7g 19.75% enriched	--	545 ci	"

용해는 우라늄의 화학적 형태에 따라서 질산이나 NaOH 용액으로 수행되는데 금속 우라늄의 경우 양자를 전부 선택할 수 있으나 UO₂인 경우에는 반드시 질산을 선택하여야 한다. 금속 우라늄의 경우에는 주로 NaOH(알칼리) 용액이 선택되며, 이때 우라늄과 일부 다른 fission product들은 ADU나 다른 금속 수산화물의 형태로 제거되어 용해과정에서 어느 정도 정제효과도 얻을 수 있는 장점이 있다.

그러나 다음의 정제과정이 대부분 산성 용액에서 이루어지기 때문에 다시 산성화할 필요가 있다. UO₂의 경우는 질산과 같은 산화성 산이 아니면 용해되지 않기 때문에 이의 선택은 거의 필수적이라고 하겠으며, 이때에는 용해속도를 빠르게 하는 것이 바람직하나 너무 빠른 경우에는 foam이 형성되어 condenser로 넘쳐 흐르기 때문에 속도를 적당한 범위내에서 선택하여야 한다.

용해된 용액에서의 Mo의 분리나 그 이후의 정제는 같은 과정으로 일어나며, 개념도 동일하나 처음 높은 농도의 우라늄 용액에서 Mo를 회수하는 것을 편의상 분리하고 정의한다. 이러한 분리 정제법으로 개발된 것은 매우 다양하지만, 공업적으로 이용되고 있거나 연구의 대상이 자주 되었던 것으로서는 알루미나를 이용한 무기 흡착제 흡착법, chelex-100등 음이온 교환체를 이용한 이온 교환법, D2EHPA를 이용한 용매 추출법, 그리고 α -benzoin oxime을 이용한 침전법 등을 예로 들 수 있다. 이들 각각의 공정원리와 특징은 표 5-3과 같다.

2. 제조공정의 선택

이상에서 설명한 개략적인 분리공정의 특징을 고찰하여 보면 공정의 단순성, 사용되는 시약의 단순성, 발생하는 폐기물의 단순성 및 개발을 위한 기술성 등을 고려할때 알루미나 흡착에 의한 흡착법이 가장 바람직할 것으로 생각된다.

용매 추출법은 공정이 추출·역추출의 다단계 공정으로 이루어져 이들 사이에

Table 5-3. Comparison of the purification process for Mo-99 production.

공 정	대표적 시약	공 정 원 리
무기 흡착재 흡착법	Al ₂ O ₃	용액중 Mo 음이온과 알루미나의 (+)하전 과의 전기적 흡착 및 탈착 (산성용액)
음이온 교환법	Chelex-100 (상품명)	Mo(SCN) ₆ ⁻³ 음이온이 이온교환수지에 loading ----> 회수 (알카리 용액)
용매 추출법	D ₂ EHPA	MoO ₂ ⁺² 양이온을 용매로 추출 ----> 역추출 (산성용액)
침전법	α - Benzoin oxine	Oxine와 모리브덴의 반응으로 인한 Mo의 침전, 회수 (산성용액)

용액의 이송, 추출장치의 공정 변수제어 등 공정 및 조업이 단순하지 않으며, 또한 유기용매의 폐기물화로 인한 폐기물의 처리가 용이하지 않고, PUREX법과 비슷하여 핵 확산의 투명성을 보장받기 어렵다.

α -benzoin oxime법은 공정이 비교적 단순하고 높은 자유 산도에서도 사용 가능하지만 5mg의 소량의 침전물을 1~2liter의 용액에서 분리하는, 특히 천연 우라늄의 사용의 경우 어려움이 많다. 이 과정에서 조사후 생성된 Mo의 손실이 우려되기 때문에 이에 관한 연구가 계속되어야 하며, 공정이 복잡해질 염려가 있다. 이온 교환법은 Mo의 산화상태의 이동 (즉 환원), 착화합물의 제조 등 화학적인 형태의 변화가 공정 중 너무 많이 일어나 공정의 제어가 매우 어렵다고 생각된다.

알루미나 공정을 좀 더 요약하여 그 개념을 나타내면 그림 5-1과 같다.

0.2~0.3 N의 자유산도가 유지되는 몰리브덴 용액을 Al_2O_3 흡착층을 통과시켜 MoO_4^{2-} (molybdate ion)을 알루미나 입자의 표면으로 이동 시켰다가 1N 정도의 NH_4OH 용액으로 회수하는 방법이다. 그러나 이 방법을 한번만 사용해서는 원하는 순도가 얻어지지 않기 때문에 이를 두번 반복하는 것이 바람직하다.

분리 정제공정이 선택된 후 고려하여야 될 사항은 우라늄의 형태와 농축도이다. 90%에 가까운 농축 우라늄은 얻기 어렵고 회수하여 사용하지 않으면 경제적으로 큰 손실이 있기 때문에 본 연구의 대상은 20% 농축도 미만으로서, 천연 우라늄, 경수로 핵 연료로서 많이 사용되고 있는 3.5%, 그리고 검토의 상한선인 20%의 경우 Mo-99 100Ci를 생산하기 위한 물질 요구량의 개요는 표 5-4와 같다.

여기서 보는 것과 같이 천연 우라늄인 경우 UO_2 의 양이나 취급해야할 용액의 부피가 크고, 따라서 발생하는 폐액의 양 등이 너무 많으며, 농축도가 20%인 경우 100Ci의 소량생산을 위하여서는 용액의 부피가 적어 취급에 용이하지 않다. 따라서 3.3% 정도의 아주 낮은 농축도의 우라늄을 사용하여 일본에서 제안한 경우와 같이 UO_2 pellet 형태로 사용하는 것이 바람직할 것으로 생각된다.

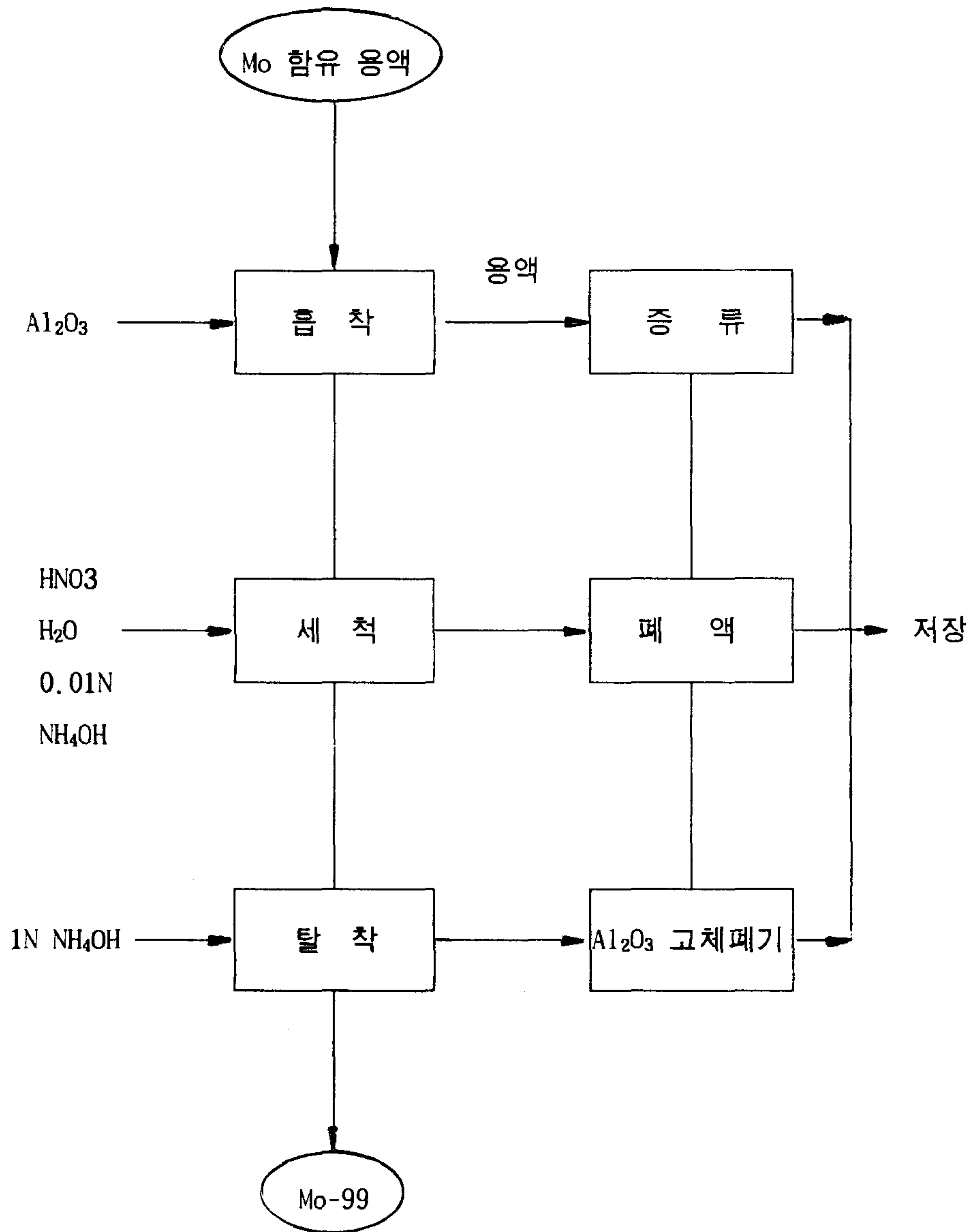


Fig. 5-1. The flow chart of alumina adsorption process for ⁹⁹Mo recovery

Table 5-4. Material balance calculation for 100 Ci ⁹⁹Mo production.

Enrichment		natural	3.3%	20%
UO2 amount (g)		1000	270	50
HNO3 (8N, l)		1.4	0.4	0.1
Volume of solution (l)		5	2	0.6
Carrier molybdenum (mg)		100	40	20
Alumina amount (g)		500	200	100
Washing solution	0.2N HNO3 (l)	1	0.2	0.1
	DW (l)	1	0.2	0.1
	0.01N NH4OH (l)	0.5	0.1	0.1
1N NH4OH solution for elution (l)		1	0.5	0.3
Liquid waste (l)		10	4	1.6
Specific activities (Ci/Mo-99)		1000	2500	5000

제 3 절 알루미나 흡착공정의 개발

조사된 우라늄 용액으로부터 Mo를 분리, 회수하기 위한 많은 공정 중 앞에서 설명한 바와 같이 알루미나 흡착법을 선택하였으며, 이 흡착공정의 최적 운전조건, 흡착기구의 이해 및 흡착합(column)의 설계를 위한 설계식의 획득 등을 위하여 기초실험이 수행되었다.

1. 알루미나의 특성

알루미나는 Al_2O_3 로 표현되는 다공성인 분말로서 비표면적이 매우 커 gas chromatography 등에 많이 사용되고 있는 흡착제이다. 그러나 가스상이나 액상에서의 흡착특성은 매우 다르다. 가스상에서의 흡착은 일반적인 물리적 흡착인데 비하여 액상에서는 전기적 흡착특성을 가진다. 즉 알루미나는 수용액에서 수소이온의 농도에 따라서 그림 5-2와 같이 구조가 변하고, 여기서 보는것과 같이 산성 용액에서는 (+)하전을 띠게 된다. 이는 수용액 중의 H^+ 이온이 알루미나 표면의 $-OH$ group과 반응하여 H_2O 를 형성하고 알루미나 표면에 (+)전하를 남기기 때문이며, 따라서 알루미나의 수용액 중의 흡착특성을 이해하기 위하여서는 알루미나 표면의 (+)하전의 양을 먼저 알아야 한다. 그러나 이를 직접적으로 측정하기는 어렵고 간접적인 방법으로 예측하고자 하였다.

알루미나의 일정량을 알려진 H^+ 이온 농도의 용액에 주입한 후 약 4일동안 방치하여 알루미나 표면의 $-OH$ 기와 반응한 H^+ 이온의 양을 측정하는 것으로서 그 결과는 그림 5-3과 같다.

여기서 보는 것과 같이 PH의 값이 약 4까지는 알루미나 단위 무게당 수소이온 농도가 0.034mole로서 대개 일정한 값을 보이며, 그 이후에는 급격한 감소를 보이게 된다. 따라서 알루미나의 표면은 pH=4까지는 일정한 (+)하전의 양을 보이게 되고,

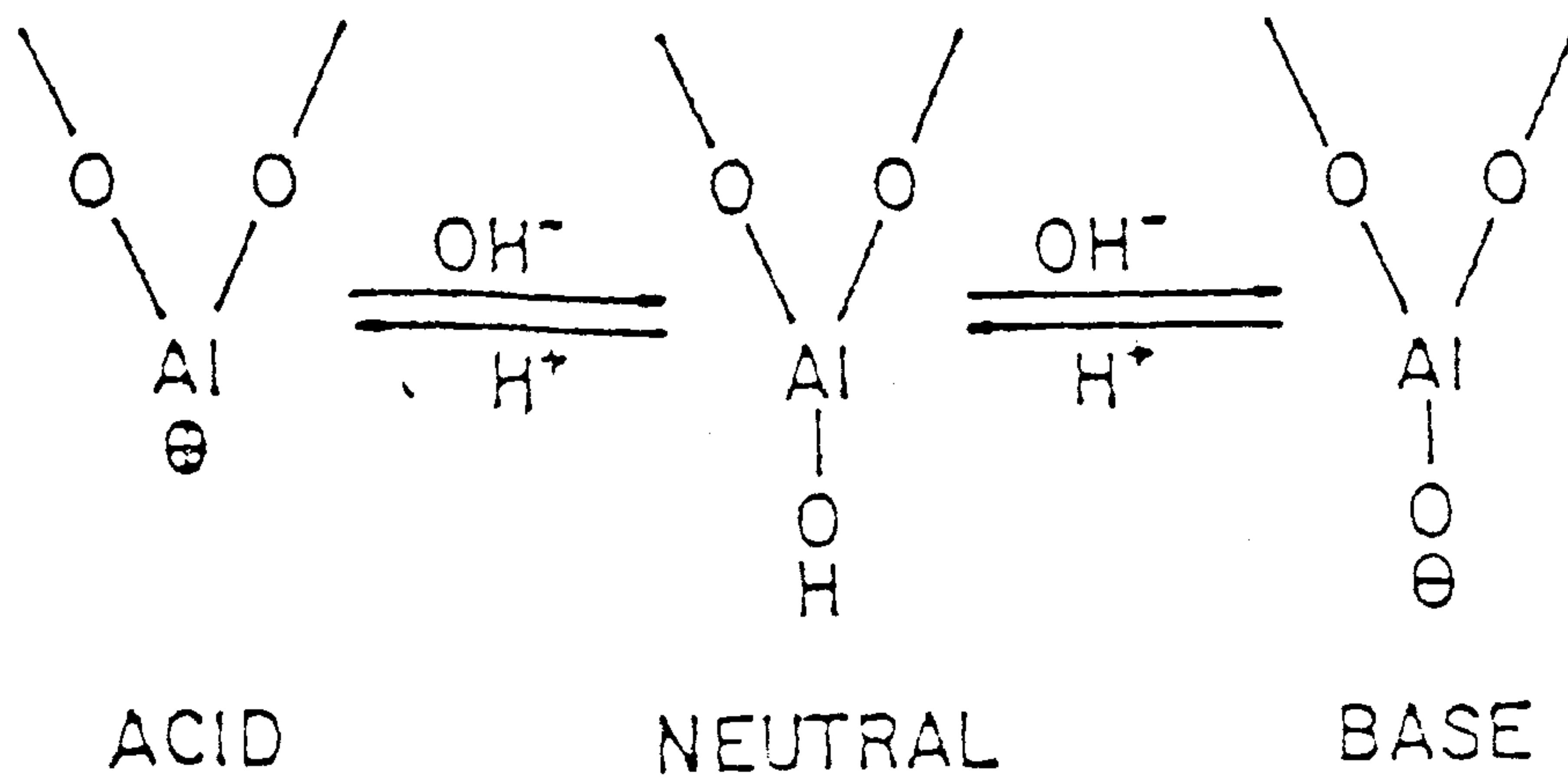


Fig. 5-2. Electrical charge on surface of alumina according to pH.

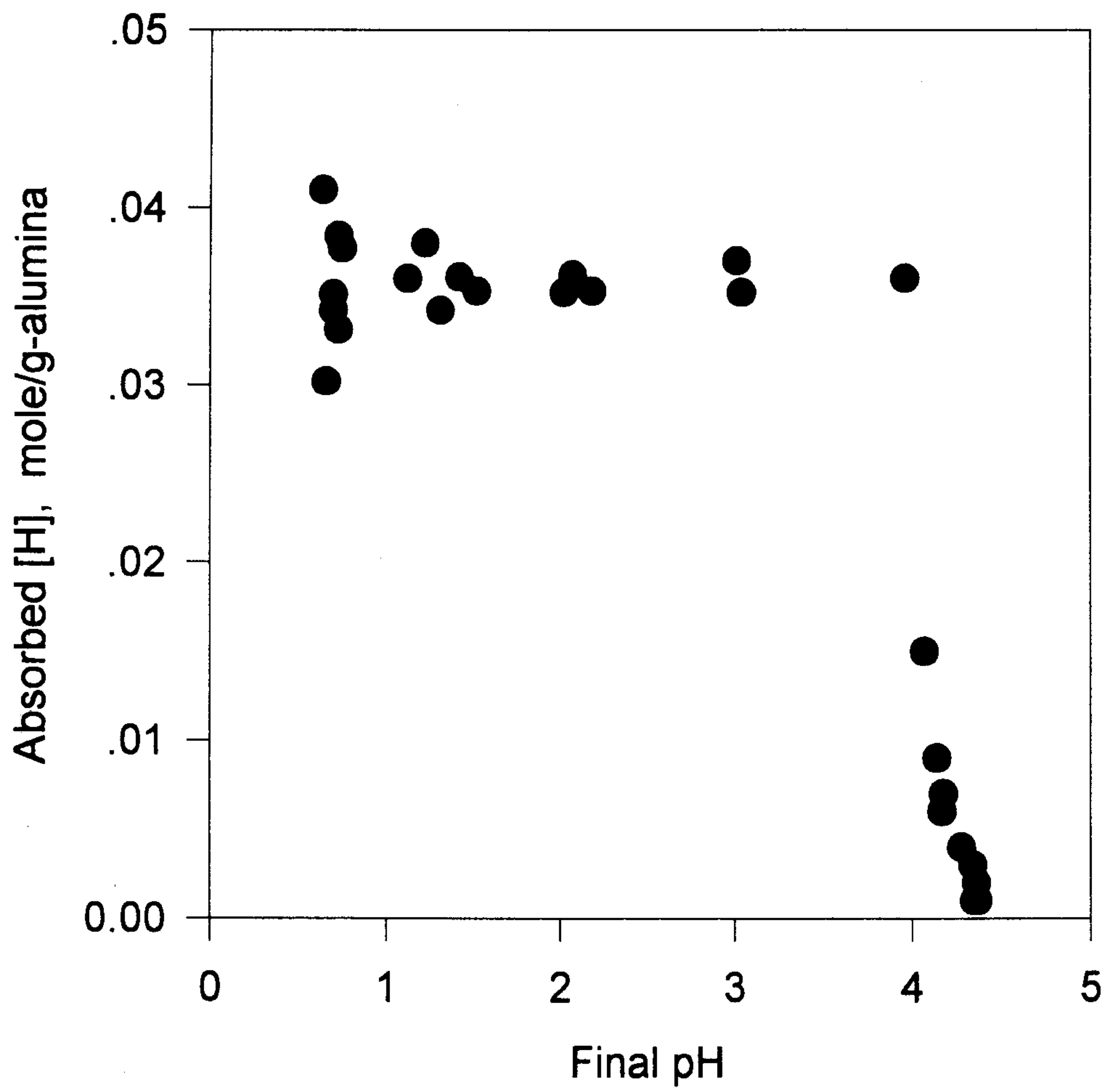


Fig. 5-3. Adsorption of hydrogen on alumina according to pH.

(-)이온의 흡착은 pH=4 이상에서 수행하는 것이 바람직하며, 이론적으로는 하나의 (+)하전이 하나의 음이온에 해당한다면 알루미나의 흡착능력은 0.034 mole eq/g-alumina로 예상되나, 실제의 몰리브덴의 흡착의 경우는 실험범위가 이곳에까지 미치지 못하게 된다.

산도에 따른 알루미나 단위 무게당 Mo의 흡착능력은 그림 5-4와 같으며 pH=2.4인 경우에는 24mg-Mo/g-Al₂O₃까지 흡착능력이 증가하였으며, pH=4 부근이 되면 약 40mg-Mo까지 증가할 수 있을것으로 기대되지만 본 실험에서는 Mo의 흡착조업이 가능한 범위가 아니므로 이는 수행하지 않았다.

그림 5-4에서 보는 것과 같이 Mo의 흡착능력은 pH에 따라서 많이 변화하여 pH의 값이 적어질수록 흡착의 효율은 급속히 감소하지만 이는 알루미나의 흡착력의 감소 때문이라기 보다는 그림 5-5와 같은 molybdate이온의 산 농도에 따른 이온 structure의 변화에 따른 것이라고 하겠다. 즉 molybdate이온은 점차 산성으로 갈수록 (-)이온인 polymer를 형성하고 더 산성이 될수록 molybdyl [MoO₂²⁺], 또는 molybdenyl 이온과 같은 (+)이온으로 바뀌기 때문에 높은 산농도에서는 흡착이 가능하지 않을 것으로 생각되며, 많이 사용되고 있는 조업조건인 pH=0.64 ([H⁺]=0.3N)에서는 약 13mg/Al₂O₃까지 증대될 것으로 예상된다. 이는 이미 보고된 9mg/g-Al₂O₃의 값과 대개 일치한다.

2. Mo의 흡착, 탈착 특성

지금까지 보고된 Mo의 알루미나에 대한 흡착특성에 관한 자료는 몇가지가 발표되어 있으나 이들이 서로 상이한 결과를 보이며 또 알루미나 양에 대한 자료가 없어 흡착, 탈착실험의 수행이 필수적이라 하겠다.

• 시약

- Mo용액 : 몰리브덴으로서 ADM[Ammonium Di-Molybdate]을 사용하였으며

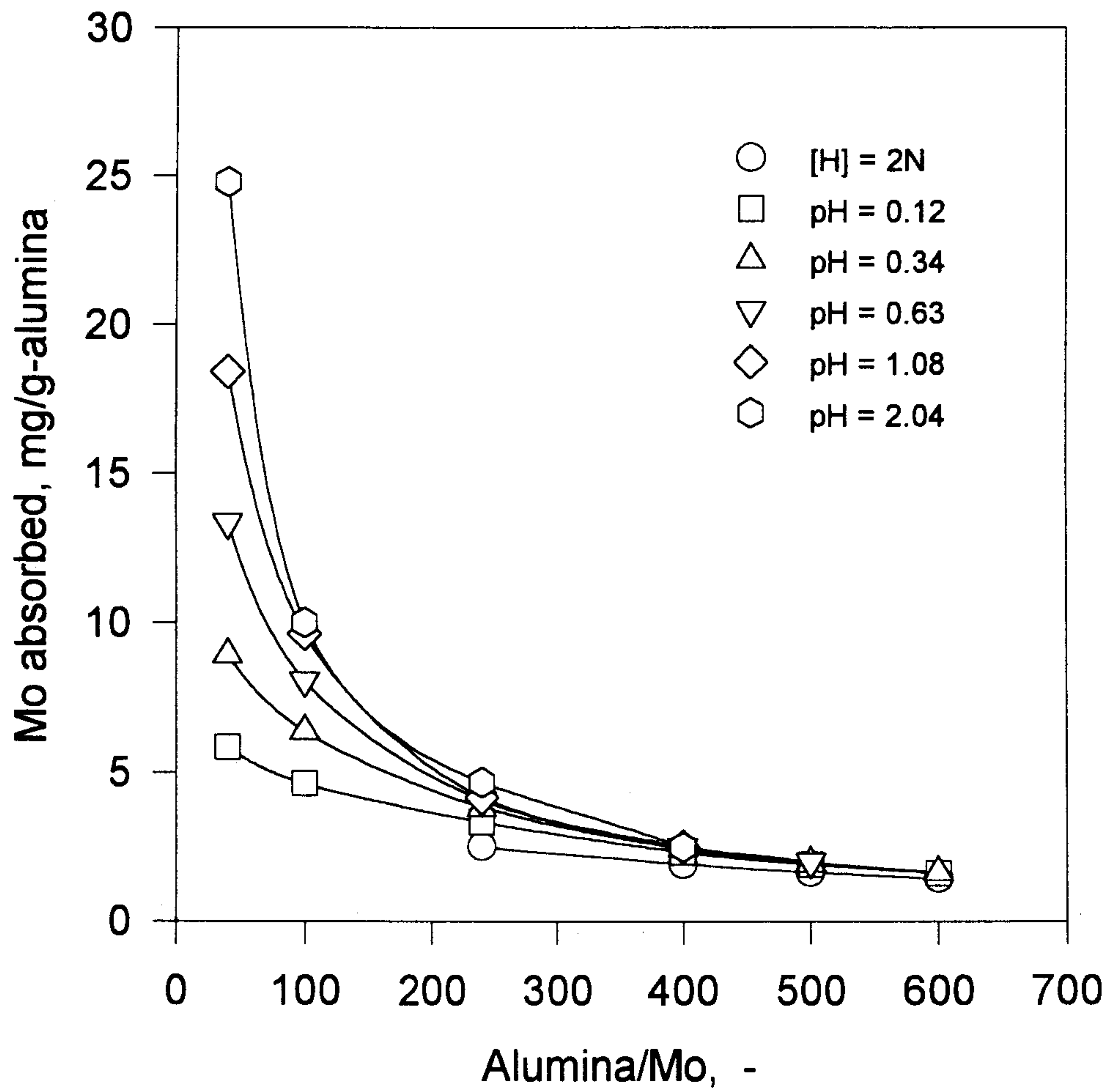


Fig. 5-4. Mo adsorption capacity of alumina.

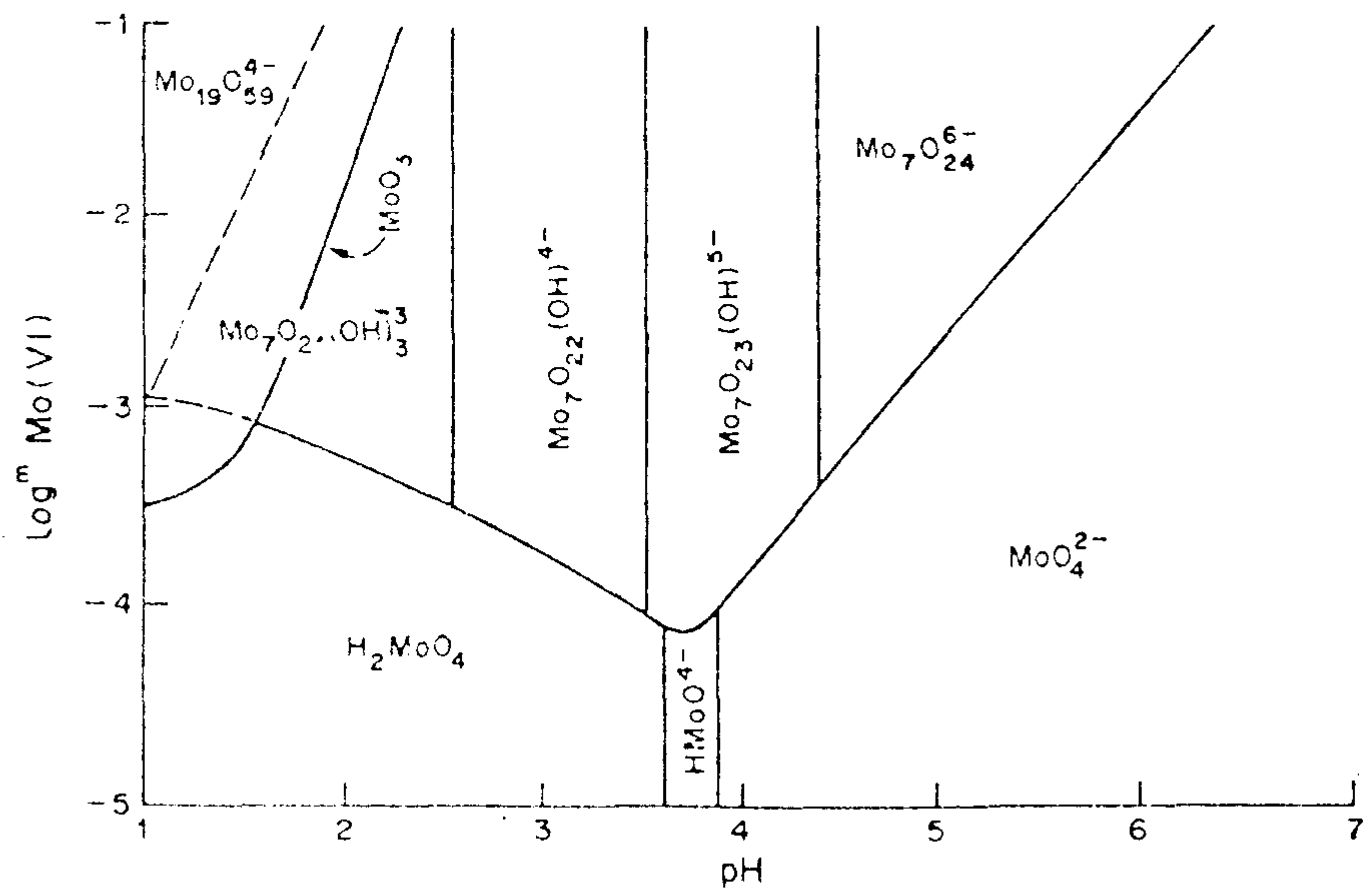


Fig. 5-5. Predominance diagram for Mo(VI)-OH species at 26 °C and I=3

1000ml의 volumetric flask에 일정량의 ADM, 질산 및 증류수를 첨가한 후 ADM을 완전히 용해시킨 후 용액의 부피를 1000ml로 조정하였다. 이렇게 제조된 용액의 농도는 Mo로서 50ppm, 자유산도는 2N~0.001N로 하였다.

- 알루미나 : Merck사 제품인 산성 알루미나로서 입도는 70~230mesh이며 비표면적은 230m²/g이다.

- 질산 : Merck사 제품인 분석급 시약을 사용하였다.

• 실험 방법

위와 같이 제조한 Mo용액 50ml에 Al₂O₃/Mo의 비가 40~600이 되도록 알루미나 분말을 첨가한 후 시약병에 넣어 48시간 방치(8시간 shaking)하여 여과후 용액의 분석을 통하여 Mo 흡수효율을 측정하였다. 분석은 GBC사 제품인 AA(모델명 GBC 906)으로 수행하였으며, 10ppm 미만의 몇개의 시료를 분석실에 의뢰 ICP로 분석하고 그 결과를 비교하였다. 또한 탈착실험은 위와같이 실험후 흡착된 알루미나를 분리, 물로 세척한 다음 1.0N NH₄OH용액에 첨가하여 4시간 동안 shaking하여 탈착시킨 후 고액 분리후 용액 중의 Mo농도를 측정하여 탈착효율을 계산하였다.

이상의 실험결과중 산 농도에 따른 Mo의 흡착효율은 그림 5-6과 같다. 여기서 보는 바와 같이 산 농도에 따른 흡착효율은 산의 농도가 감소할수록 계속 증가하고 있으며 이는 Chen 등이 발표한 0.2~0.3 N의 산도에서 흡착효율이 최대가 되는 경향과 상이하다. 알루미나에 Mo의 흡착효율이 최대점을 보이는 것은 용액이 산성으로 갈수록 모리브덴의 이온이 양이온으로 되어 흡착 효율이 감소하고 반대로 약산성이 될수록 알루미나의 흡착능력의 감소때문이라고 설명하고 있으나 앞의 가 항에서 설명한 바와 같이 알루미나의 흡착능력의 감소는 pH가 4이상에서 이루어지기 때문에 본실험의 범위내에서는 모리브덴의 양이온으로의 변화 효과만 고려 대상이 되며, 따라서 0.2 또는 0.3 N의 농도에서 최대치를 보이는 것보다는 단순 감소의 경향이 더 타당성이 있는 것으로 생각된다.

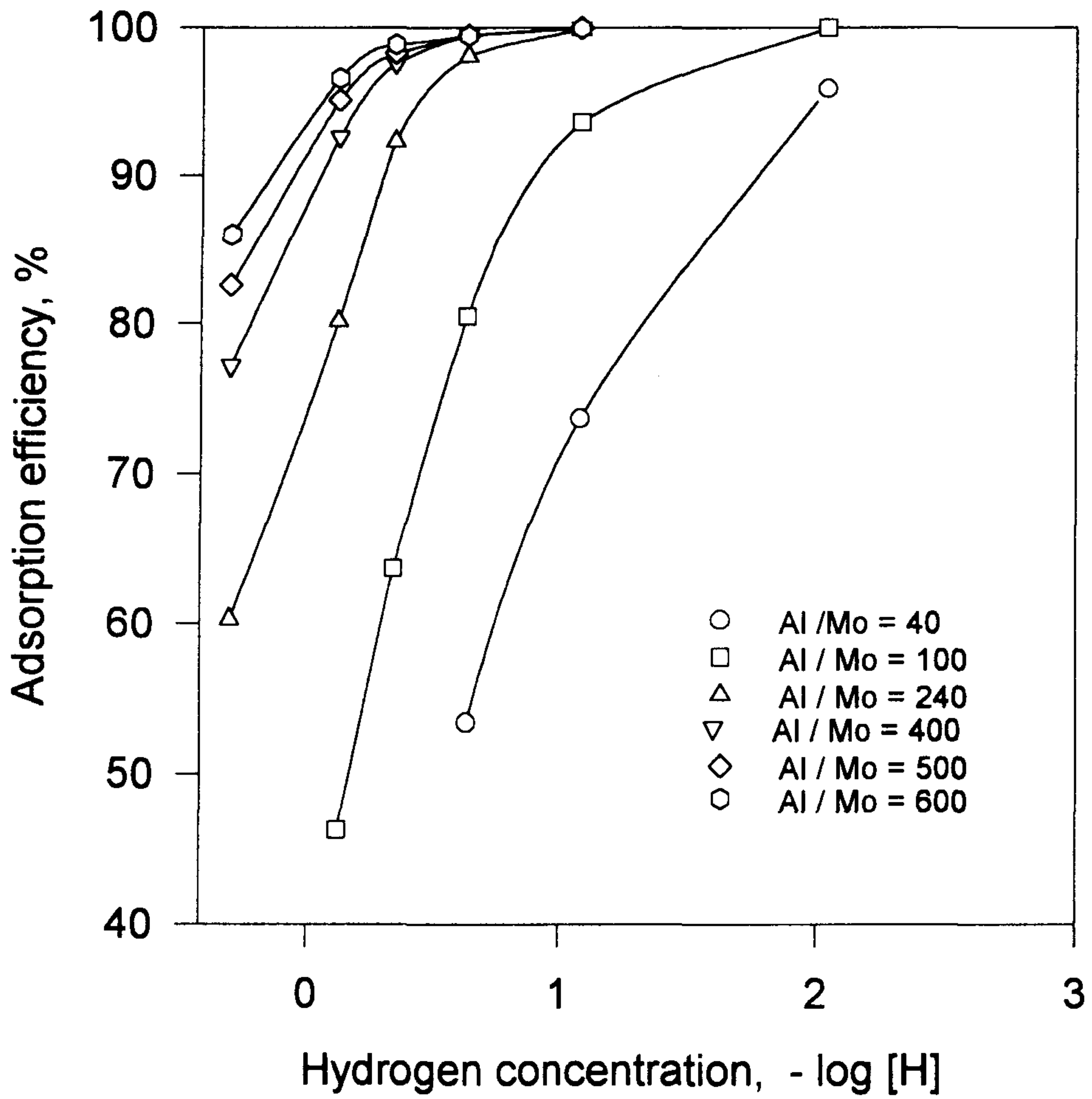


Fig. 5-6. Effects of hydrogen ion concentration on adsorption efficiency

흡착 효율은 사용된 알루미나의 양에 따라서 큰 차이를 보이고 있으며, 알루미나의 양에 따른 흡착효율의 변화는 그림 5-7과 같다. 여기서 보는 것과 같이 알루미나의 양이 많을 수록 흡착효율은 증가하는 바 이는 몰리브덴을 흡착할 수 있는 표면적을 증가시킴으로서 더 많은 양을 흡착시킬 수 있도록 하였기 때문이라고 생각한다.

일정량의 몰리브덴을 흡착시킨 후 1N 암모니아수에 앞에서 설명한 바와 같이 탈착시켰을때 탈착효과는 그림 5-8과 같다. 여기서 보는 바와 같이 탈착효율은 Al/Mo의 비가 증가할수록 직선적인 감소를 보여 이 비가 600 정도일때 약 90% 정도의 탈착효율을 보인다. 이는 탈착후에도 알루미나에 흡착된 몰리브덴의 존재를 나타내는 것으로서 이미 보고된 바와 같이 약 10%의 irreversible 몰리브덴에 해당되는 것으로서 회수가 불가능하다. 따라서 전체적으로 회수효율은 그림 5-9 와 같으며, Al/Mo의 비가 낮을 경우에는 흡착효율이 낮기때문에 회수효율이 낮고, Al/Mo의 비가 높은 경우에는 탈착의 효율이 나쁘기 때문에 감소하는 경향을 보인다. 따라서 250~300사이의 값에서 최대가되지만 약 600까지는 90% 이상의 회수율을 보이는 것으로서 250 이상에서는 회수율에 큰 차이가 없는 것으로 판단된다.

또 몰리브덴 용액중 nitrate 농도의 영향은 그림 5-10과 같다. nitrate 농도의 영향을 선택하여 실험한 이유는 알루미나가 (+)로 하전되어 음이온을 흡착하기 때문에 음이온의 농도가 흡착특성에 미치는 영향을 보기위한 것으로서 우라늄이 $UO_2(NO_3)_2$ 의 형태로써 용액 중에 존재하기 때문에 이는 수용액에서 해리되어 NO_3^- 이온을 형성하기 때문에 UN농도에 영향을 간접적으로 나타내는 것이기도 하기 때문이다.

이상에서 보는 것과 같이 몰리브덴의 흡착을 위한 조건은 pH가 낮을수록(pH<4.0 범위내에서), Al/Mo의 비가 250~600의 범위내가 최적의 범위라고 할 수 있다. 그러나 UO_2 또는 금속 우라늄의 질산에 용해시에는 0.2~0.3N 이하의 자유

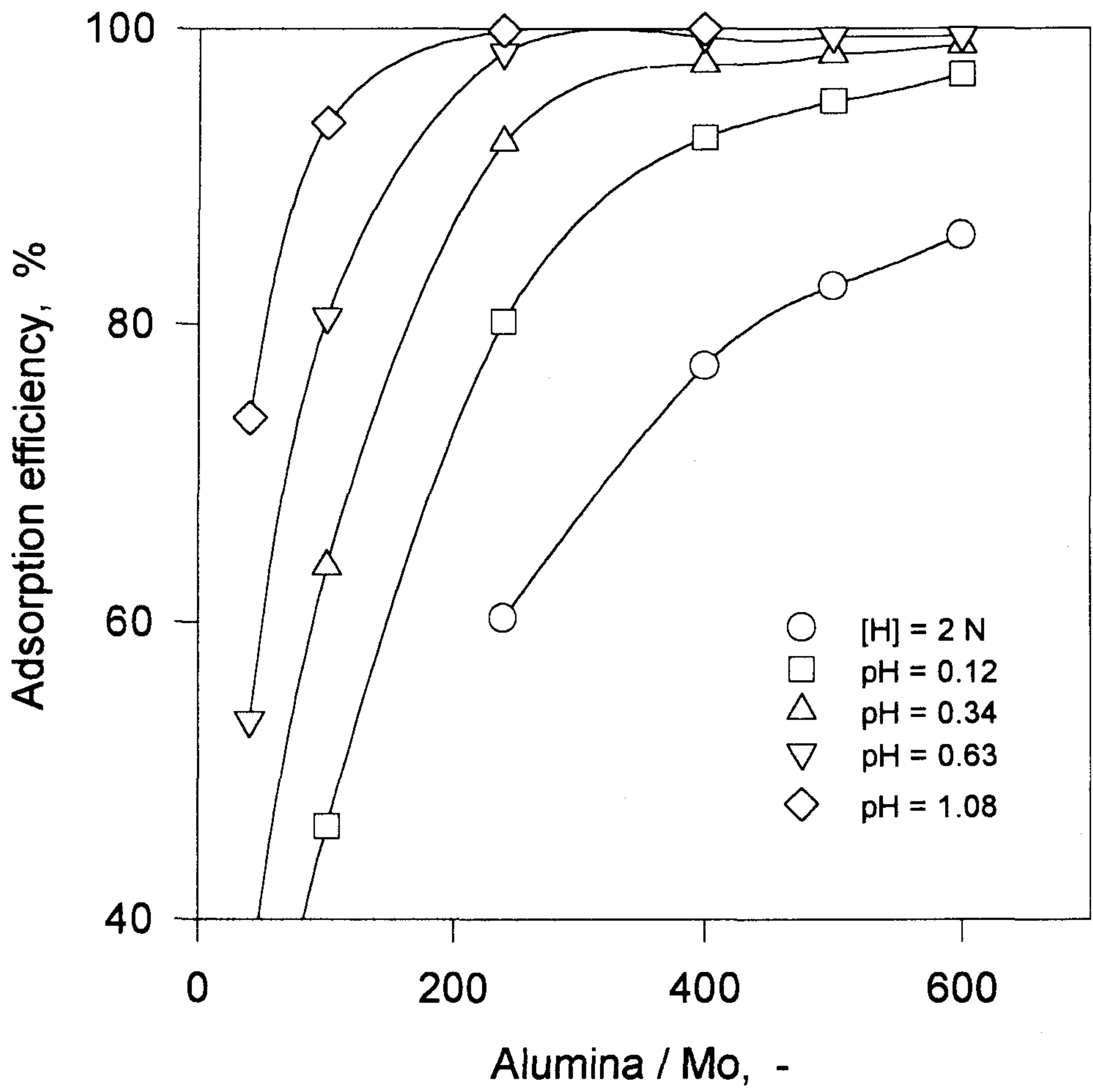


Fig. 5-7. Effects of alumina/Mo ratio on adsorption efficiency.

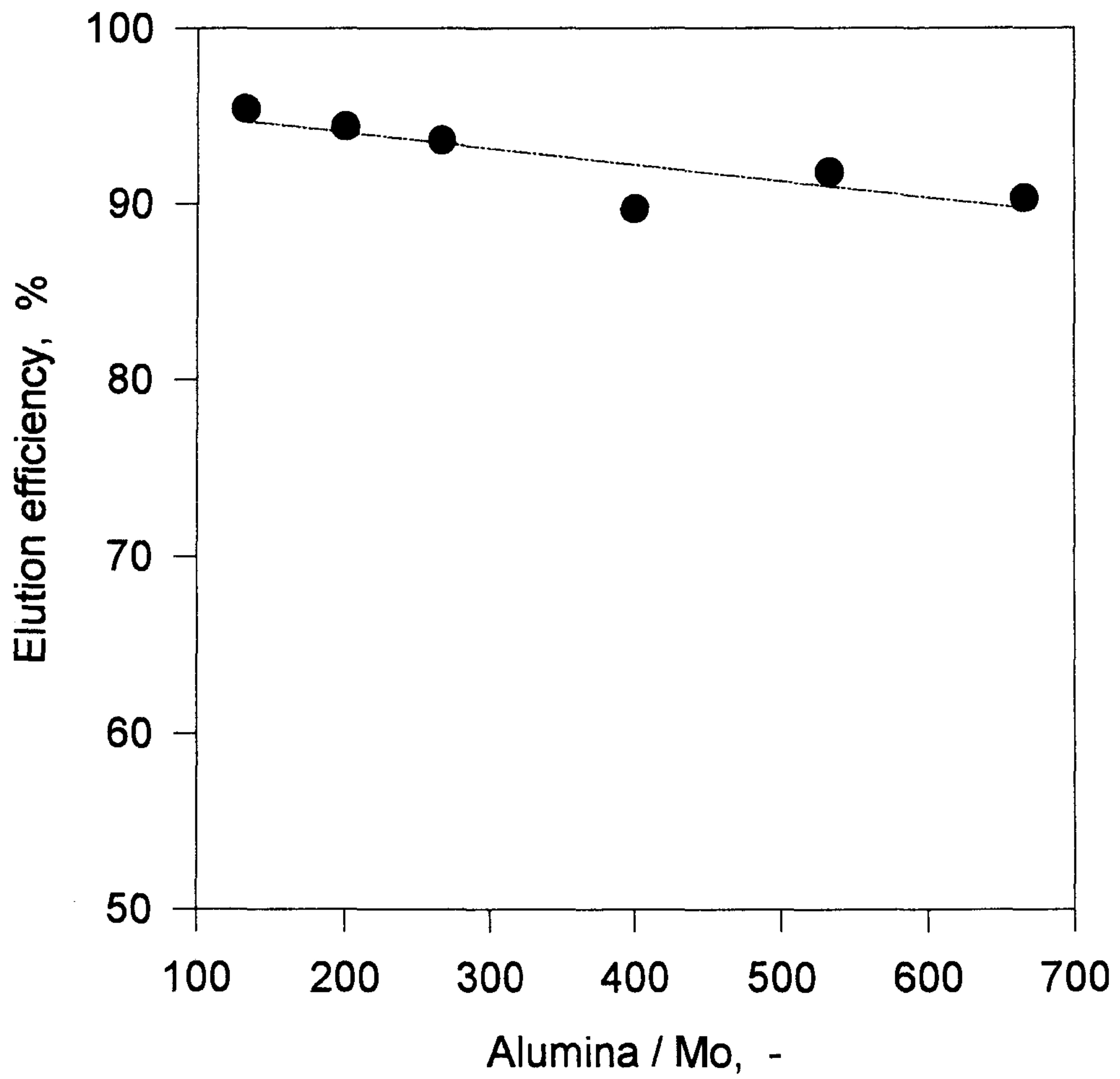


Fig. 5-8. Elution efficiency of Mo from alumina.

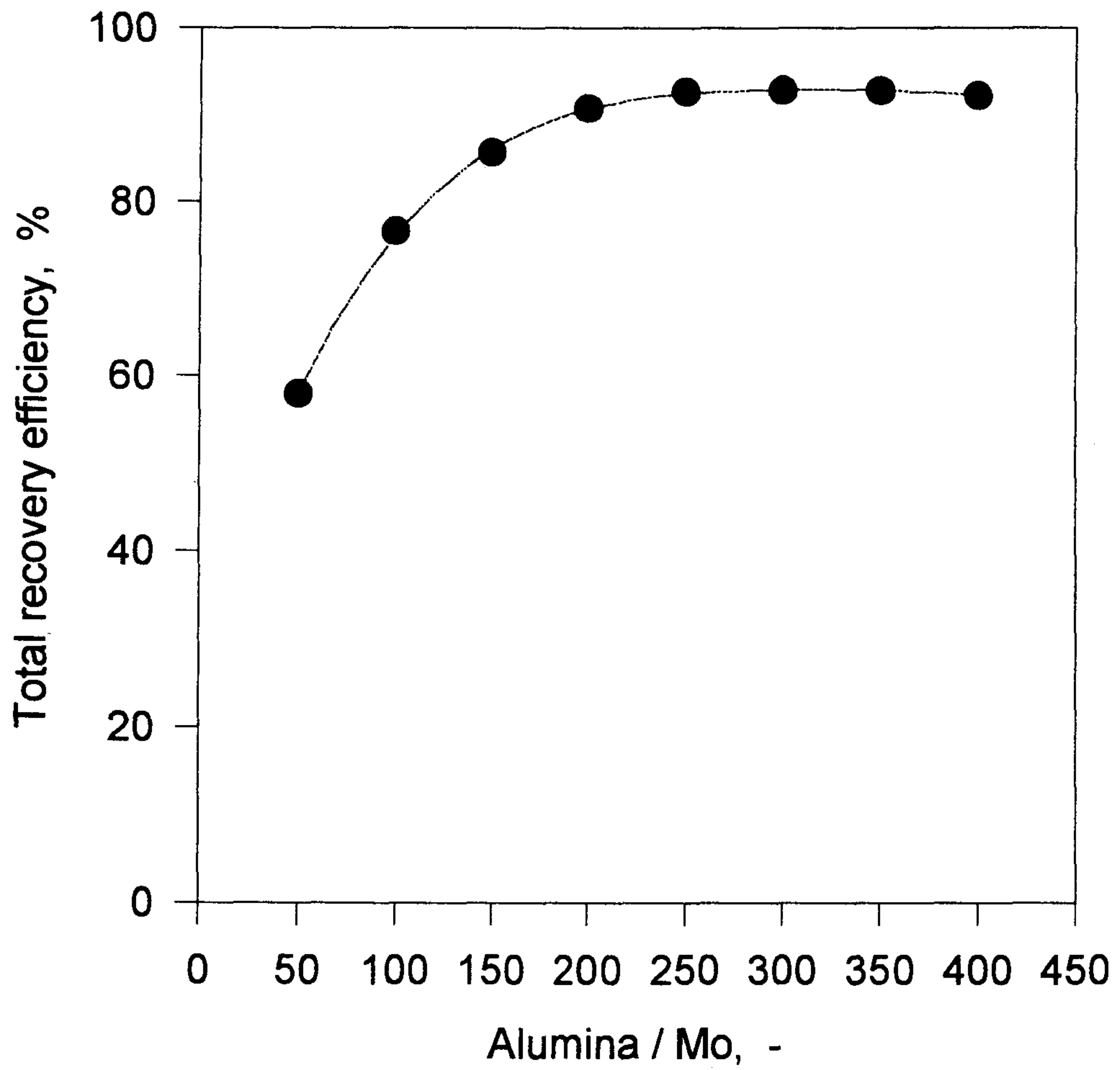


Fig. 5-9. Total recovery efficiency of Mo as a function of alumina/Mo ratio

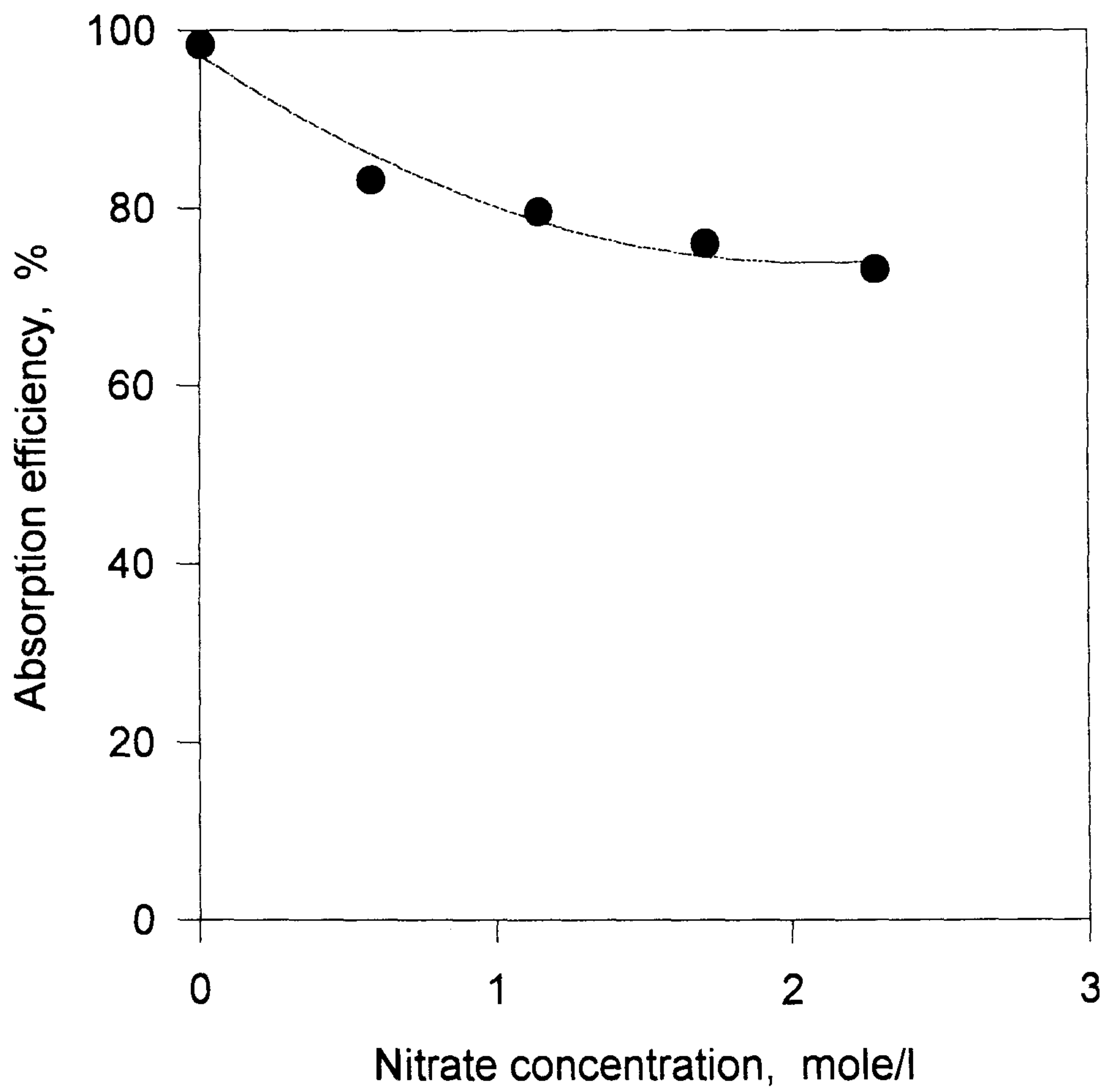


Fig. 5-10. Effects of nitrate concentration on adsorption efficiency.

산도로 조절하기는 매우 어렵기 때문에 자유 산도 0.2~0.3N 범위가 좋다. 또 0.2~0.3N의 자유 산도인 경우에 암모니아수를 첨가하여 자유 산도를 0.1N로 하는 경우에 nitrate 농도의 영향으로는 1% 감소하나 산도의 영향으로 3~5% 증가하기 때문에 자유 산도를 암모니아수로 중화시켜 흡착시키는 것도 바람직하다고 하겠다.

3. 흡착 등온곡선

흡착공정의 설계 또는 특성의 예측을 위하여서 가장 중요한 것이 흡착 등온곡선이다. 그러나 이 자료는 설계를 위한 기본 자료이기 때문에 상용공장에 직접 이용되는 모리브덴의 흡착에 관하여서는 지금까지 보고된 자료가 전무하다. 따라서 본 연구에서는 pH에 따른 흡착 등온곡선을 구하였으며 각 산도에 따른 곡선은 그림 5-11과 같다.

이 흡착 등온곡선은 다음과 같이 표현되는 Langmuir 흡착식에 잘 맞을 것으로 예상된다.

$$q = \frac{ac^n}{1 + bc^n} \quad \text{-----} \quad (1)$$

여기서 a, b, n : 상수

c : 용액 중 몰리브덴의 농도, ppm

q : 흡착된 알루미늄의 양, mg/g-alumina

그림 5-11의 등온 곡선으로부터 curve fitting 방법에 의하여 상수 a, b, n을 구하였으며 그 결과는 다음과 같다.

pH	a	b	c
0.12	1.4143	0.0609	0.4316
0.34	1.7317	- 0.2124	0.2578
0.63	2.8855	- 0.2727	0.2273
1.08	4.1052	- 0.3585	0.2108

4. 흡착기구

액상으로부터 고체표면으로의 흡착과정에서 일반적인 흡착기구(mechanism)은 보통 다음과 같이 분류된다.

가. 액체상의 외부확산 : 고체의 표면과 외부의 액체상의 bulk와의 사이에 흡착 되는 이온의 확산에 의하여 흡착속도가 결정되며, 이 확산되는 부분을 film이라고 부른다. 이때 흡착되는 속도식은 다음과 같이 표시된다.

$$dq/dt = k_{ra_p}(C_A - C_A^*) \quad \text{-----} \quad (2)$$

나. 고체 내부의 기공내 확산 : 고체입자가 기공이 많을 때, 또 흡착의 속도가 매우 빠를때 흡착되는 이온이 고체입자 내부의 기공으로 확산속도가 늦으므로 이 확산이 전체 흡착속도를 지배하는 경우로서 속도식은 다음과 같이 표시된다.

$$D_{po} \left(\frac{\partial^2 C_i}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial C_i}{\partial r} \right) = x \frac{\partial C_i}{\partial t} + \frac{\partial q_i}{\partial t} \quad \text{----} \quad (3)$$

여기서 전체 흡착된 양 q는 다음과 같이 표시된다.

$$q = (3/r_p^3) \int_0^{r_p} (q_i r^2) dr \quad \text{-----} \quad (4)$$

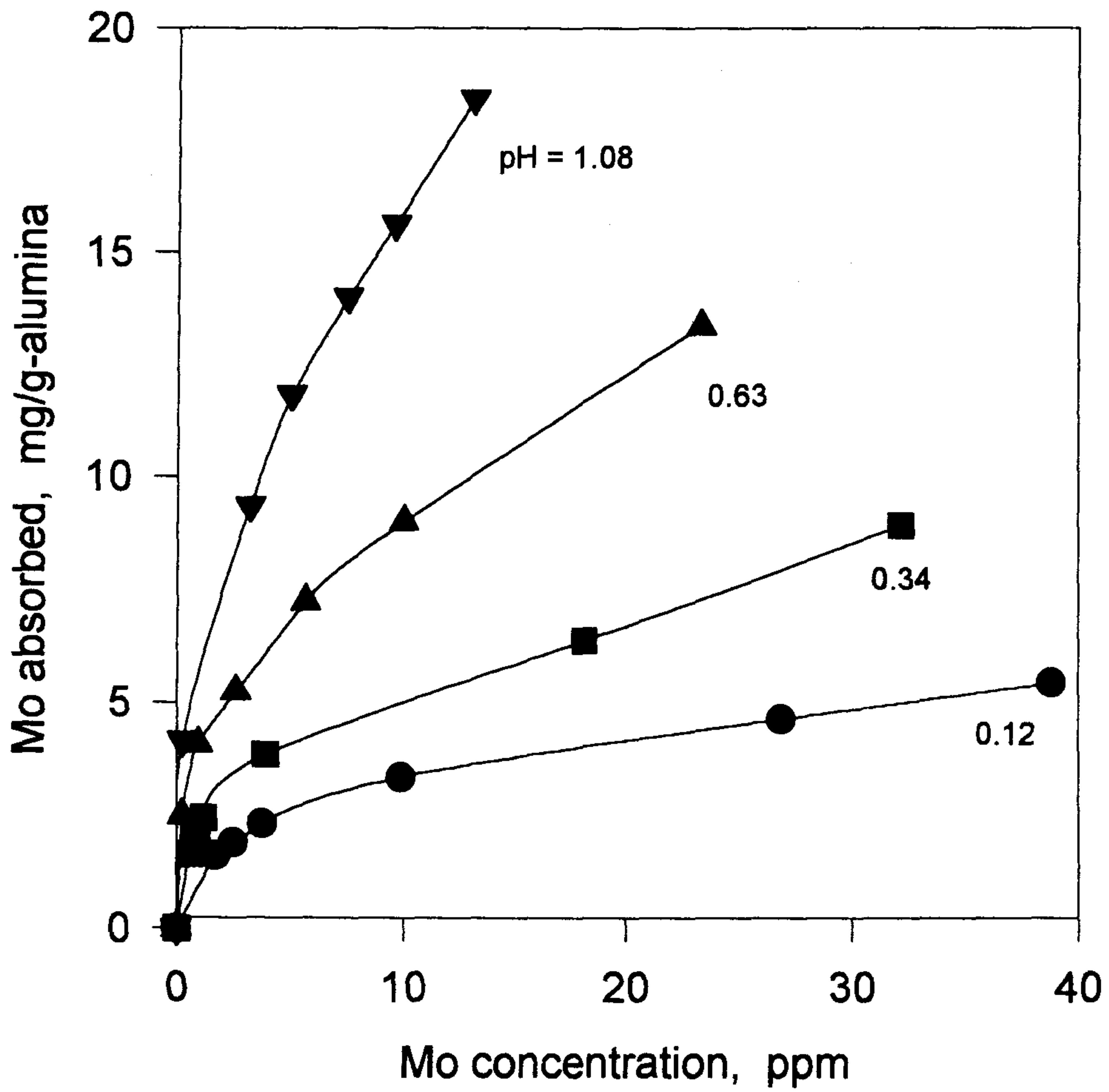


Fig. 5-11. Adsorption isotherm.

다. 고체입자 표면에서의 확산 : 고체표면에 어떤 흡착기구에 의하여 흡착이 되던 입자내에서는 흡착이 많이된 부분(일반적으로 표면)과 흡착이 많이 일어나지 않은 부분이 나누어지며, 이때의 농도 gradient($\partial q/\partial r$)에 의하여 흡착된 이온의 이동이 일어나고, 이를 일종의 확산기구로 설명하고자 하는 모델로서 속도식은 다음과 같다.

$$D_p \left(\frac{\partial^2 q_i}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial q_i}{\partial r} \right) = \frac{\partial q_i}{\partial t} \quad (5)$$

모든 흡착공정에서는 한가지 기구에 의하여 일어나는 것은 아니며, 위에서 설명한 세가지 흡착기구가 조합되어 일어나는 것이 일반적이다. 또한 흡착되는 정도에 따라서 지배되는 흡착기구가 변하기도 하여 대개는 흡착이 진행될수록 확산에 의한 흡착기구가 우세하여진다. 그러나 한 순간에서는 이중 한가지 대개는 흡착흡착기구가 지배적일 수 있으며, 흡착과정의 해석은 이를 기초로하여 이루어진다.

이러한 세가지 흡착기구 중 어떤것이 지배적인가는 흡착탑(column)의 설계와 특성해석에 필수적이며, 이를 반드시 결정하여야 한다. 이를 규명하기 위하여 다음과 같은 회분식 흡착실험을 수행하였다.

- 시약 : 앞의 나항과 동일한 방법으로 Mo용액을 제조하였으며 자유 산도는 pH=0.63의 경우만 수행하였다.

- 실험장치 : 본 연구를 위하여 사용한 시험장치의 개요는 그림 5-12와 같다. 흡착조는 혼합에 의하여 알루미나의 거동을 관찰하기 위하여 투명한 아크릴 수지를 사용하였으며 vortex를 없애기 위하여 4각통을 사용하였다. 즉 원통형으로 흡착조를 제작하고 baffle을 설치하는 경우에는 baffle의 연결부위 또는 baffle과 흡착조 사이에 알루미나의 침강이 생성되어 전 흡착조 내의 균일도를 저하시키기 때문에 baffle이 없이도 vortex가 생성되지 않게 하기 위함이다. 혼합기는 100~1000rpm까지 조절할 수 있는 것으로서 알루미나의 입자가 흡착조 밑면에 침강되지 않고 전부 부유되는 rpm으로서 약 300rpm을 선택하였다.

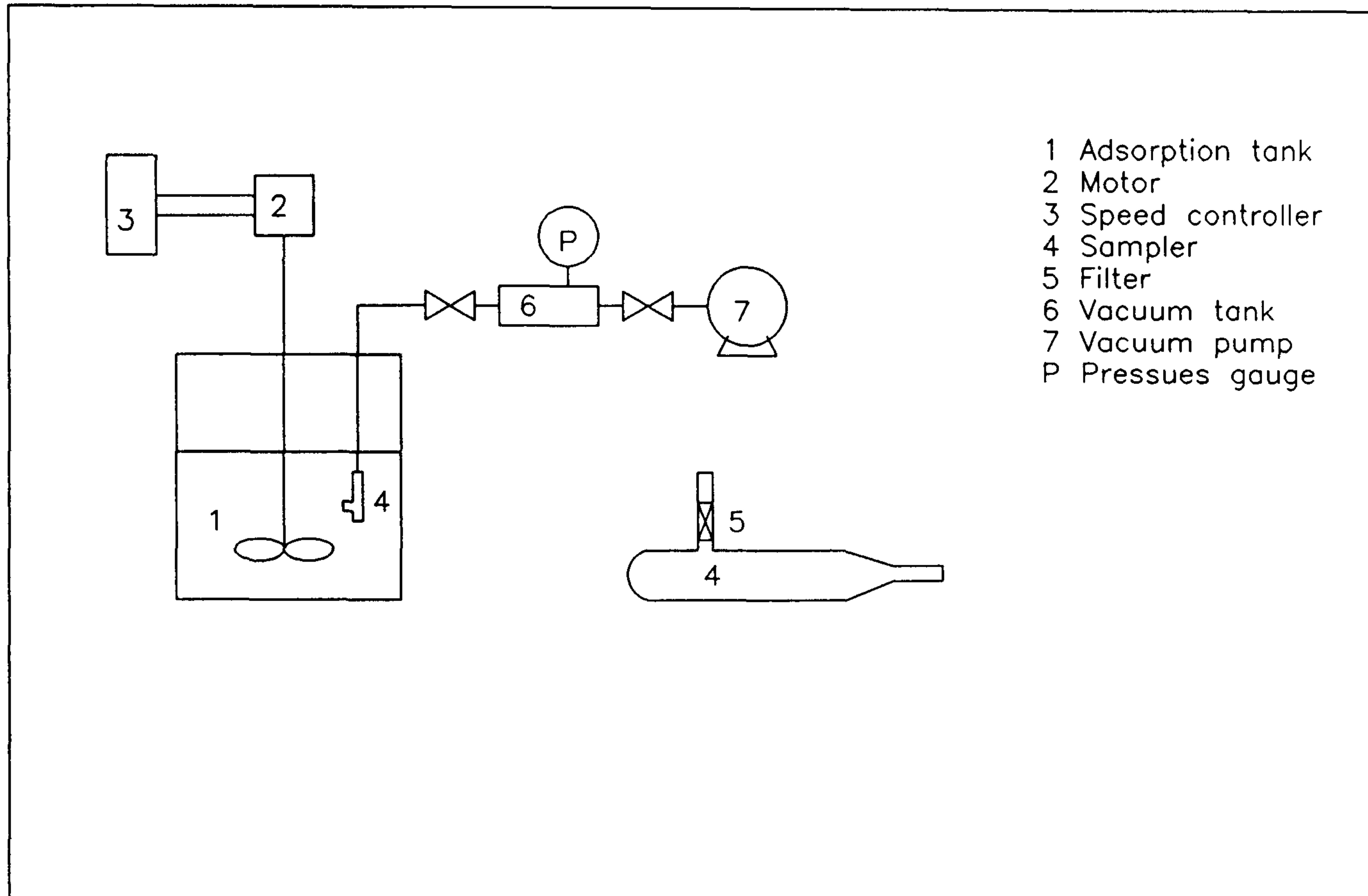


Fig. 5-12. Experimental apparatus for batchwise Mo adsorption.

• 실험방법 : Mo용액 1200ml를 넣고 교반을 시작한 후 일정량의 알루미나를 Al/Mo의 비가 100, 200, 300이 되도록 주입하고 일정한 시간에 시료를 채취하여 Mo를 분석하였다. 이때 시료채취를 위한 sampler의 구조는 그림 4-11과 같으며, 용액의 시료를 채취하는 동안 용액과 고체 알루미나의 분리가 순간적으로 일어나도록 하였으며 채취된 용액중의 알루미나 입자는 흡입구에 공간을 두어 다시 흡착조 내부로 들어가지 못하도록 하였다.

흡착의 기구를 선택하기 위하여 가장 간단하고 기본적인 액체상의 외부 확산모델로서 결과와 비교하였다. 이때의 속도식을 본 연구의 계에 적합하도록 변형하면 다음과 같이 표현된다.

$$W(dq/dt) = kgSV(C-C^*) \quad \text{-----} \quad (6)$$

여기에서 W : 사용된 알루미나의 무게, g

kg : film 을 통한 물질전달 계수, $1/cm^2sec$

S : 알루미나의 비 표면적, cm^2 ($S = aW$)

V : 전체 용액 부피

C^* : 흡착된 양과 평형상태에 있는 Mo의 농도

이를 변형하면 다음과 같이 표현된다.

$$dq/dt = kgaVCo(C/Co - C^*/Co) \quad \text{-----} \quad (7)$$

또 q와 C의 관계는 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$V(Co - C) = Wq \quad \text{-----} \quad (8)$$

(1), (7) 및 (8)식을 연립하여 q와 t의 관계를 구할 수 있으나 (1)식이 비 선형이기 때문에 직접 해는 구할 수 없으며, 본 연구에서는 Range Kutta fourth order 방법을 사용하였다. 이러한 방법으로 계산한 흡착량과 실험에 의한 결과를 비교하면 그림 5-13과 같다. 여기서 보는 바와 같이 Al/Mo의 비가 300인 경우는 아주 잘 일치하고 있으나 이 비가 적은 100에서는 매우 큰 편차를 보이고 있다.

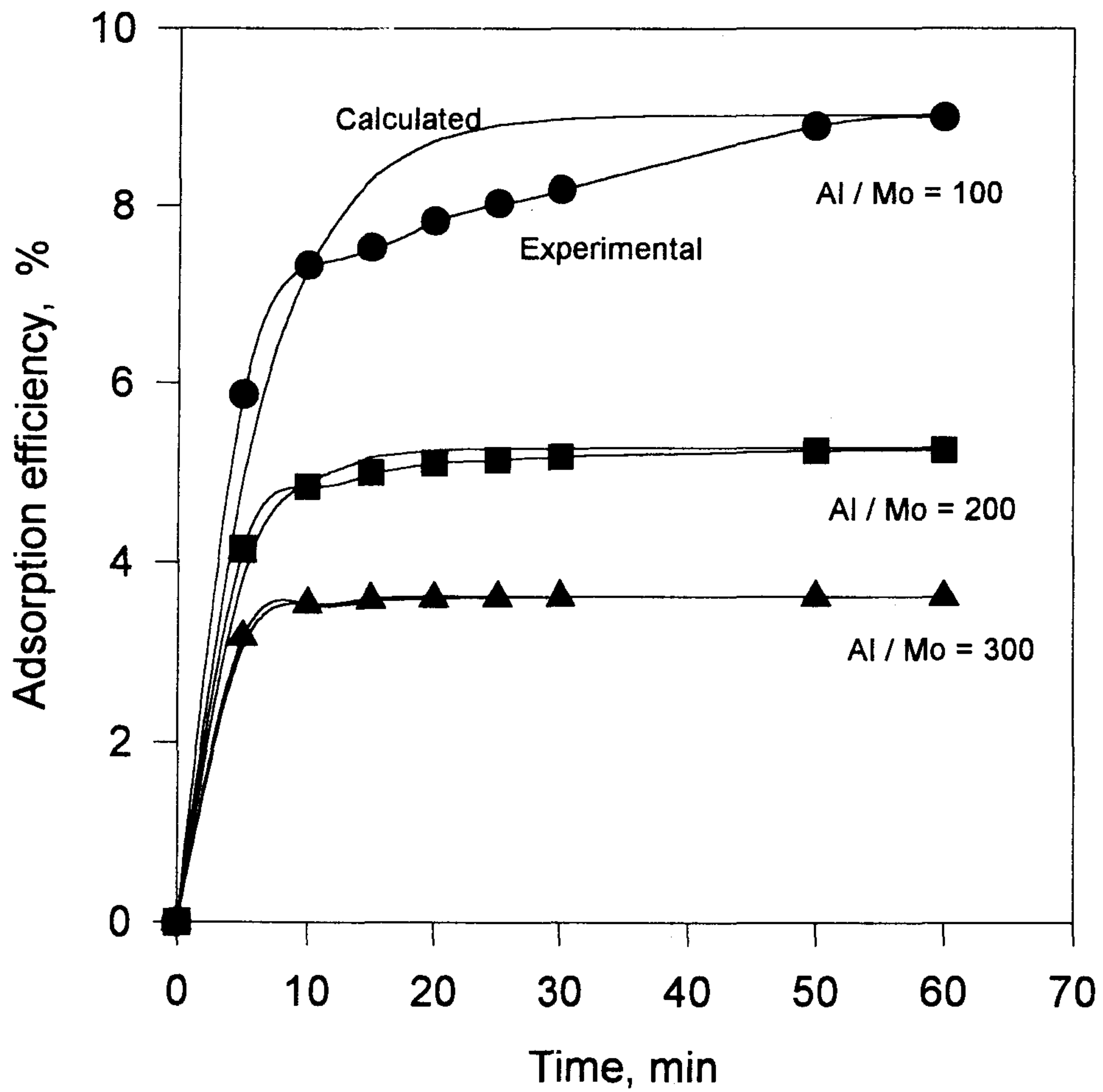


Fig. 5-13. Comparison of adsorption efficiency measured and calculated by fluid film resistance model.

이는 이 비가 큰 경우에는 본 모델이 잘 맞고있음을 보이는 것이며 비가 적을수록 편차가 큼을 알 수 있다. 이것은 알루미나에 몰리브덴이 흡수되는 경우에 초기에는 알루미나 입자표면 부근에 액체 film을 통한 확산이 속도를 지배하고 있음을 시사하고 있다. Al/Mo의 비가 적으면 표면 부근의 알루미나 표면이 거의 흡착 능력 대로 흡착되었음에도 아직 용액중 몰리브덴의 농도가 높아 diffusion 등 다음의 mechanism이 일어날 여력이 있으나, 이 비가 큰 경우에는 표면 흡착만으로도 전체의 Mo를 흡수하고도 남음이 있음을 알 수 있다.

이러한 모델에 의하여 시간이 지나도 흡착량 q 에 1% 이상의 영향을 주지 못하는 경우를 평형상태라고 규정하면 Al/Mo의 비와 평형시간과의 관계는 그림 5-14 와 같다. 여기서 보는 바와 같이 Al/Mo의 비가 클수록 평형시간은 급격히 감소함을 알 수 있으며 이는 다른 column의 조업조건 결정에 큰 영향을 준다. 즉 column내의 체제시간을 위 평형시간보다는 길어야 함을 의미하며, 비가 400의 경우라고 하여도 약 20분의 체제시간을 유지하여야 한다.

제 4 절 기타 공정

기술현황 분석보고서에서 밝힌 것과 같이 조사된 우라늄 용액내에는 매우 다양한 fission product들이 존재하고 이들의 분리, 정제조건이 매우 상이하기 때문에 독일에서 공업적으로 적용되고 있는 공정을 제외하고는 같은 종류의 공정을 두번이상 사용하는 예가 매우 드물다. 이는 다른 방법을 이용하여 다른 조건에서 Mo를 정제하여 다른 조건에 의한 다른 핵종의 분리효과를 높이는데 그 목적이 있다. 또한 새로운 공정의 개발을 위하여서는 다른 공정의 시도도 의미있는 일이라 하겠다.

따라서 본 연구에서는 알루미나 흡착공정 이외에 두가지 다른 방법에 관한 아주 기본적인 실험이 수행되었고 이로부터 가능성의 판단을 하고자 하였다.

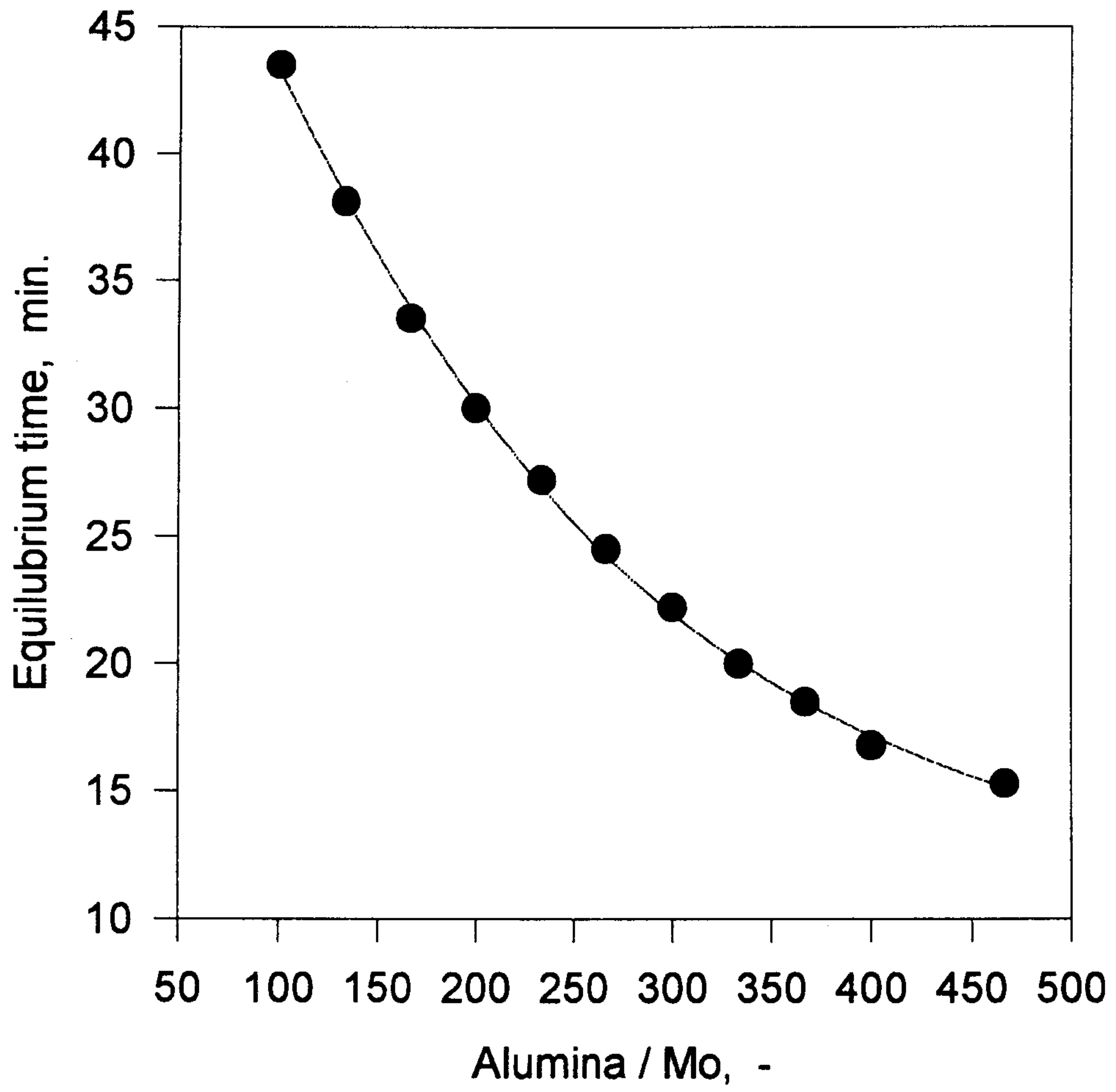


Fig. 5-14. Time required for equilibrium of adsorption.

1. 침전법

몰리브덴의 α -benzoin oxime [$C_6H_5CH(OH)C = NOHC_6H_5$]에 의한 침전법은 몰리브덴의 분석을 위하여 개발된 것으로서 후에 fission 몰리브덴의 회수를 위하여 개발된 공정이다. 이 α -benzoin oxime에 의한 침전법의 효율을 얻기 위하여 다음과 같은 실험을 수행하였다.

- Mo 용액 : 앞의 Mo의 흡착, 탈착 특성에서 설명한 바와 같다.
- α -benzoin oxime 용액 : 1000ml volumetric flask에 증류수를 600ml 정도 넣은 후 NaOH와 흰 분말 형태인 oxime을 적당량 넣고 최고온도를 40℃를 넘지않게 약 12시간 이상 혼합시킨다. 그리고 완전히 용해된 다음 용액의 부피를 1000ml로 조정한다. 이때 NaOH의 농도는 0.4N, oxime의 농도는 2%로 하였다. 40℃이상으로 가열하거나 제조후 2일 이상 방치하면 용액은 무색에서 연한 녹색으로 바뀌므로 필요한 양을 제조하여 1일 이내에 사용하였다.
- 실험방법 : Mo용액을 일정량 beaker에 넣고 oxime용액을 천천히 dropwise로 beaker에 첨가하면서 교반하였다. 이때 온도는 상온 이하가 되어야 바람직하기 때문에 Mo용액과 oxime용액을 미리 냉장고에 넣어 10℃로 냉각한 후 첨가하였으며 침전반응 시간은 40분으로 하였다.

이상과 같은 실험 방법에 따라서 산도와 oxime/Mo 비에 따른 침전효율에 미치는 영향을 고찰하였으며 그 결과는 다음과 같다.

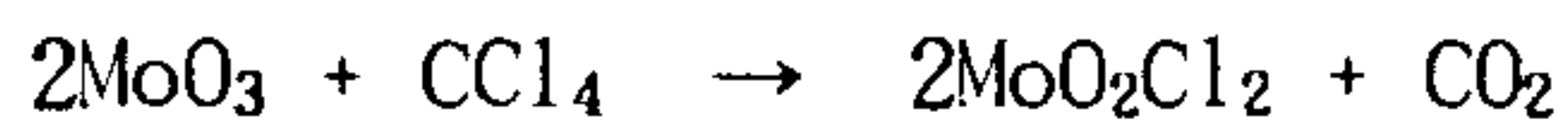
(단위 %)

산도 Al/Mo비	16	20	24	28
2N	86.6	99.4	99.8	99.9
0.6N	87.2	99.0	99.9	98.7
0.1N	54.2	72.8	80.3	81.2

이상에서 보는것과 같이 산도 0.6N이상 oxime/Mo의 비가 20 이상에서는 99% 이상의 침전효율을 보이고 있다. 그러나 이것을 다시 1%의 H₂O₂를 포함하는 1N NH₄OH 용액에 다시 용해시켰을때 회수효율은 92% 미만으로서 약 7% 정도는 여과과정에서 손실된다. 이것은 여과 medium을 여과지를 이용하였기 때문에 여과지 내부의 기공에 침전이 침투되어 이것이 다시 회수하는 과정에서 손실로 작용하였기 때문인 것으로 생각된다. 따라서 회수방법은 다시 고려되어야 한다고 생각된다.

2. 승화법

MoO₃는 약 750℃에서 승화되지만 이것이 다른 물질과 혼합물 또는 흡착된 상태에 있는 경우에는 이의 승화온도가 1200℃까지 높아지는 것으로 보고되고 있다. 따라서 승화온도를 저하시키기 위하여 Cl₂가스와 반응시켜 MoO₂Cl₂ 등 oxychloride 형태로 승화시킬 수 있다. 이때의 화학 반응식은 다음과 같을 것으로 예상된다.



이와 같은 회수방법을 확인하기 위하여 다음과 같은 실험을 수행하였다.

- 시료 : 시약급 MoO₃와 MoO₃가 포함되어 있는 UO₂ 분말을 사용하였다. UO₂ 분말은 MoO₃와 직접 혼합하는 경우에는 분말 MoO₃와 차이가 나타나지 않을 것으로서 UO₂(NO₃)₂ 용액에 ADM으로 Mo 약 500ppm으로 첨가한 후, (NH₄)₂CO₃ 용액을 다시 첨가하여 AUC를 제조한 후 이를 배소, 환원하여 UO₂를 제조하였다. 이때 Mo는 불순물로서 작용하여 UO₂내에 고른 분포를 보일것으로 예상되며 함량은 3.1ppm 이었다.

- 실험방법 : 사용한 실험장치는 그림 5-15와 같으며 시료는 반응기 위쪽의 hole을 통하여 주입하였으며 질소 분위기에서 500℃까지 가열한 다음 수소를 주입하여 완전히 UO₂로 만들고 다시 질소로 교환한다. 이 후 가스 공급부에 CCl₄를 첨가하여 증기압에 의하여 증발되어 반응기 내로 공급되도록 하였다. 가스의 공급속도는 20m/min으로서 이는 UO₂ 분말이 비산하지 않는 속도로 결정하였다.

이상과 같은 실험에서 먼저 MoO₃와 CCl₄와의 반응속도를 측정하였다. 이는 시료를 넣은 부분에 MoO₃을 공급한 후 300℃부터 500℃까지 50℃를 간격으로 온도를 상승시키고 반응온도에서 충분한 시간이 지난 후 가스 배출구에 승화(deposit)된 MoO₂Cl₂를 회수하여 반응속도를 측정하는 것이며 MoO₃의 양에 반응속도가 무관할 것으로 가정하여 반응속도식을 다음과 같이 표현하였다.

$$-r_A = kf(\text{CCl}_4)$$

$$k = k_0 \exp(-E/RT)$$

측정된 반응속도와 1/T을 표시하면 그림 5-16과 같으며, 이로부터 이 반응의 활성화 에너지 E의 값은 21.744 Kcal/gmole 이었다.

UO₂ 분말로서 실험하는 경우에는 회수효율은 약 83%정도 이었다. 이 값은 습식으로 Mo의 분리방법보다는 약간 떨어지는 (약 92%) 것이었으나, 우라늄의 대부분이 용액상으로 되지 않는다는 점에서 바람직 하겠으나 우라늄도 UOCl₂ 같은 형태의 물질로서 일부 동시에 승화하기 때문에 우라늄의 decontamination factor가 0.8 정도로서 이를 높이기 위한 연구가 계속되어야 할 것이다.

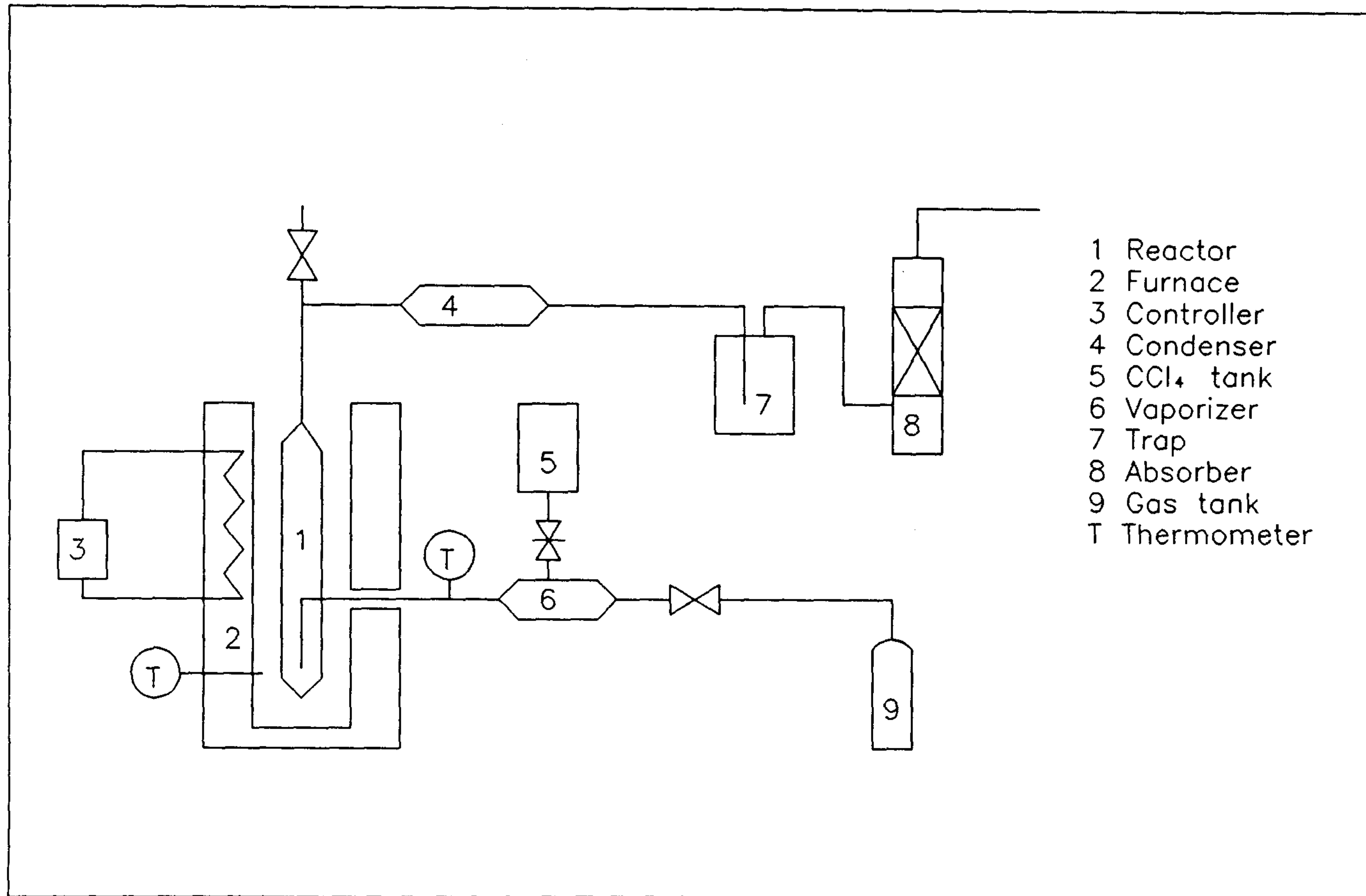


Fig. 5-15. Experimental apparatus for Mo recovery by sublimation.

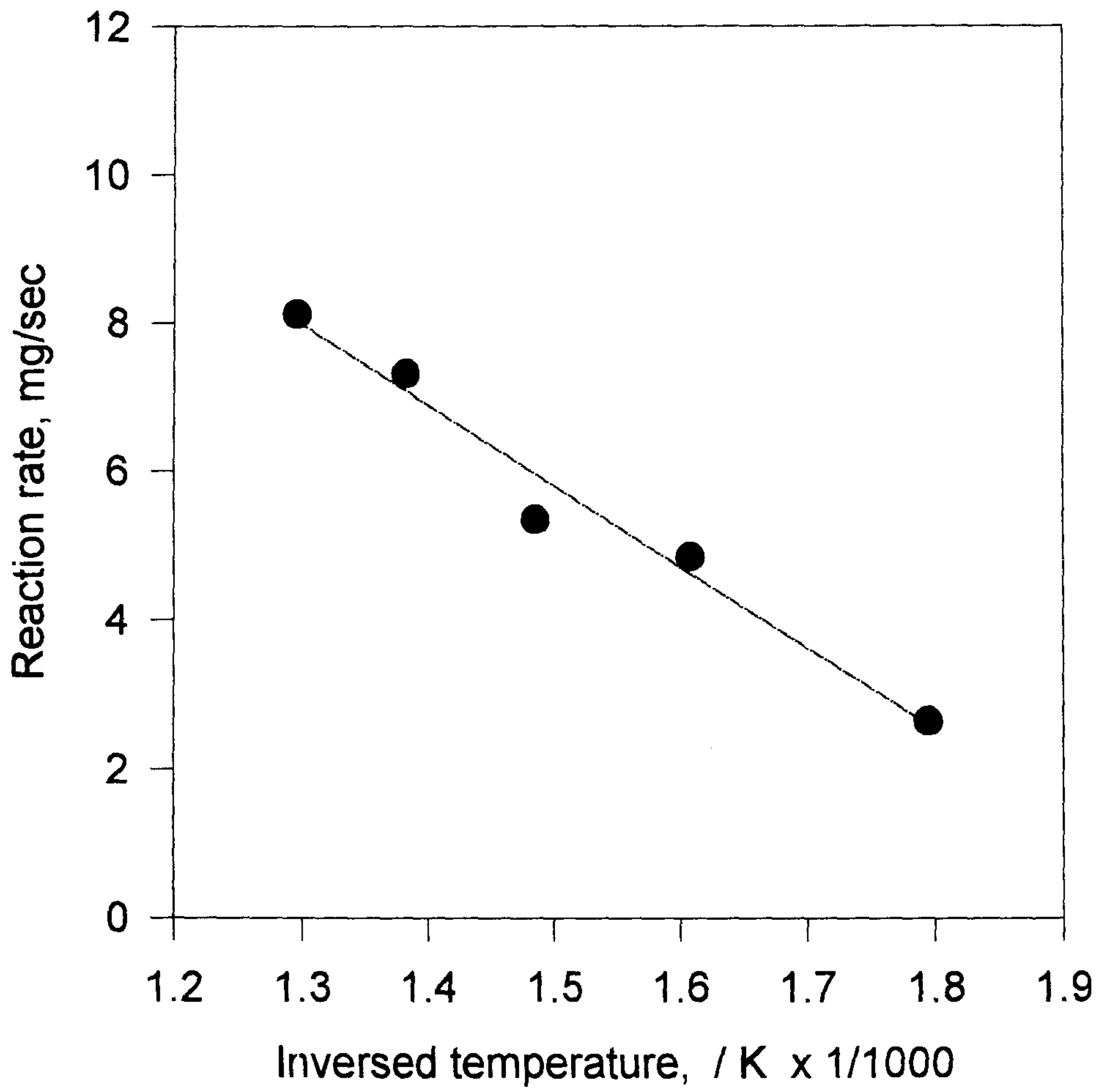


Fig. 5-16. Arrhenius plot of chlorination of molybdenum oxies.

제 5 절 결 언

이상에서 설명한 바와 같이 Mo-99를 fission법에 의한 제조법의 기술현황 분석과 최적의 운전조건, 장치의 선택기준 및 설계를 위한 기초실험에서 다음과 같은 결론을 얻게 되었다.

- 사용하는 우라늄의 농축도는 3.3%, 화학적 형태는 UO₂ 세라믹으로서 이를 활용한 target은 경수로의 핵 연료 형태인 pellet in cladding으로 선택하는 것이 바람직하다.

- 여러가지 기술성, 물질의 수지계산 등으로 부터 분리, 정제공정은 두번 반복하는 알루미나 흡착법이 바람직하다.

- 알루미나 흡착법의 기초 실험에서 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 자유 산도는 가능한 한 낮출수록 유리하며
- 사용되는 알루미나의 양은 250~500배 정도가 좋다.
- 흡착전 알루미나에 1N NH₄OH에 탈착되지 않는 irreversible 흡착과정이 존재하며 이는 알루미나의 양에 따라서 약 10%까지 이른다.

- 흡착 기구는 알루미나의 양이 많을수록 fluid film을 통한 물질전달이, 적을수록 입자내의 확산이 지배적이나 시간적으로 보면 전자의 경우를 선택하는 것이 좋다.

Mo-99의 국내 사용량으로 비추어 보아 이 Mo-99 생산공정이 완성되면 년 200만불의 수입 대체효과가 있을것으로 예상되며, 차폐장치를 제외한 모든 기술이 국내에 보유되어 있어 이에 관한 연구와 제조시설의 건설은 바람직하다고 생각된다. 본 연구팀은 장수명 핵종의 분리기술 개발을 위한 도구로서의 Mo-99의 분리공정을 선택하였으며, 이로부터 장수명핵종의 분리기술 개발을 위한 차폐 또는 취급시설의 효과적인 개발도 예상되고, 또한 위와 같은 연구효과를 얻을 수 있으므로 표 5-5와 같은 Mo-99 제조공정의 건설을 위한 일정계획을 수립하였으며 이를 위한 지원을 건의하고자 한다.

Table 5-5. Proposed schedule for development and construction for ⁹⁹Mo production process.

연구 내용	'94	'95	'96	'97	'98	'99
0 기초 실험 (최적 공정조건 설정)	—					
0 장치 개발	—					
0 공정 및 원격조작장치 설치, 시험		—				
0 Hot cell 적용 및 실증실험			—			
0 Mo-99 생산시설 구매 및 설치				—	—	
0 시운전 및 생산					—	—

참고문헌

1. A.Benadik, M.Durick, and K.Martinek, "Safety features in the design of Pu laboratory of the nuclear research institute", IAEA-SM-209/50
2. A.A.Abdel-Rassoul, "Small scale hot facility for reprocessing and alpha research", IAEA-SM-209/50
3. W.Ochsefeld, and W.Iefenbacher, "The highly shielded extraction facility MILLI at KfK", IAEA-SM-209/25
4. J.R.Roeder, "New safety concepts in the design of plutonium facilities", IAEA-SM-209/36
5. Y.Hirose, and N.Oi, "Design of the nuclear fuel development hot laboratory", IAEA-SM-209/30
6. H.Bristow, and S.Hunter, "Design of facilities for processing pyrophoric radioactive material", IAEA-SM-209/33
7. C.M.Unruh, "Radiological design of hot laboratories", IAEA-SM-209/35
8. G.Bohme, and O.Romer, "Safety aspects of the design and layout of cells and equipment in the extended α - β - γ laboratory at the Karlsruhe Nuclear Research Center", IAEA-SM-209/27
9. B.Clark, P.Mullner, and S.Deron, "An analytical laboratory to facilitate international safeguards", IAEA-SM-209/48
10. F.May, E.Hespe, and R.Hilditch, "Radioiodine removal system for a small fission-product separation plant", IAEA-SM-209/49
11. N.Sasaki, and H.Nagaki, "Development of the vitrification process of high-level liquid waste in the engineering test facility", PNCT831-81-01 (1981).

12. E. Bernard, and H. Burres, "Design and analysis of the Sandra laboratories hot cell facility safety ventilation system", SAND-76-5231, (1976).
13. J. Nixon, and E. Chapman, "Ventilation and filtration of active buildings", IAEA-SM-209/52
14. K. Kuhn, and J. Furrer, et al., "New findings in designing an off-gas system for the Wackersdorf reprocessing plant", (1989).
15. D. Francois and G. Mercey, "MA23 contained maintenance servo manipulator with computer aided control", Proc. 32nd Conf. Remote System Technology, p 3, (1984).
16. P. W. MaGuinness and D. F. Hicks, "Large remote manipulator operating and maintenance experience at the hot cell", Proc. 33rd Conf. Remote System Technology, p 130, (1985).
17. J. N. Herndon and C. T. Kring, "Advanced remote handling for future applications", Conf-270301, (1987).
18. J. H. Evans and C. F. Metz, "Head-end reprocessing equipment remote maintenance demonstration", Conf-890304-37, (1989).
19. J. Vertut, et al., "Analytical zoning of manipulator coverage", Proc. 21st Conf. Remote System Technology, p 28, (1973).
20. ANS Remote Systems Technology Division, "Design guides for radioactive material handling facilities and equipment", (1988).
21. Sargent/CRL, Installation, operation and maintenance manual for Model G-HDE master slave manipulator
22. 유재형 외, KAERI-NEMAC/TR-1/93, p 175, (1993).
23. 유재형 외, KAERI/AR-284/88 (1988).
24. Glenn E. Knoll, "Radiation detection and measurement", p 399 (1989).

25. 영인과학, “방사선 분광 시스템”
26. 박태문외, “저준위 및 환경 방사능 측정기술 개발에 관한 연구”,
KRISS-93-084-IR (1993).
27. F.Shahrokhi, et al., ORNL-TM-4586, p 36 (1974).
28. C.E.Mellish, et al., J. Phys. Chem., Vol.63, p 881 (1959).
29. C.M.Jantzen, DP-MS-83-108, p2 (1982)
30. P.Benes, et al., Radiochimica Acta, Vol.159 (1964).
31. J. Belloni, et al., J. Phys. Chem., Vol.63, p 881 (1959).
32. Manual on Safty Aspects of the Design and Equipment of Hot Lab.,
IAEA,1981.
33. Eiji Shikata and Akim Iguchi, 日本 原子力 學會誌, 26(8) 662 1982.
34. R. E. Boyd, Radiochim. Acta, 30 123 1982.
35. A. Kruger and K. H. Liscer, Radiochimica Acta, 28 29 1981.
36. L. A. Fucugauchi, O. R. Lara and A. G. Madock, Radiochim. Acta, 26 39
1979.
37. J. V. Evans and R. W. Matthew, USP 4280053.
38. D. V. S. Narashimhan, Kum P. Vanaja and R. S. Mani, J. Radioanal. Nucl.
Chem., Letters, 85 163 1984.
39. J. V. Evans, P. W. Moore, H. E. Shying and J. M. Sodeau, Appl. Radiat.
Isot., 38(1) 19 1987.
40. J. V. Evans, P. W. Moore, H. E. Shying and J. M. Sodeau, Appl. Radiat.
Isot., 38(1) 25 1987.
41. K. Svoboda, J. Lezama, J. Tendilla, F. Melichar and M. Tympl, J.
Radioanal., Nucl. Chem., Letters, 94(6) 405 1985.
42. F. Melichar, K Svoboda, J. Prokop and F. Budsky, Jaderna Energie,
33 369 1987.

43. K. A. Burril and R. J. Harrison, IAEA TECDOC-515 35, 1987.
44. R. Munze, O. Hladick, G. Bernhart, W. Boessert and R. Schwarzback,
Int. J. Appl. Radiat. Isot., 35(8) 749 1984.
45. G. F. Vandegrift, D. J. Chaiko, R. R. Heinrich, E. T. Kucera, K. J.
Jensen, D. S. Poa, D. R. Vissers and R. Varma, IAEA TECDOC-515, 1987
46. O. Hladick, G. Bernhart, W. Boessert, R. Munze, IAEA TECDOC-515 1987
47. G. F. Vandegrift, J. D. Kwok, S. L. Marshall, D. R. Vissers and J. E.
Mutos, IAEA TECDOC-515 1987.