

## 경수로 원자로냉각재 중의 무기/유기 $^{14}\text{C}$ 화학형의 거동특성

강덕원, 양양희, 이두호, 홍선욱\*, 박경록\*\*  
 한전전력연구원, 대전광역시 유성구 문지로 65  
 \*액트(주), 대전광역시 대덕구 신일동 306-230  
 \*\*한수원(주) 원자력발전기술원.  
[dwkang@kepri.re.kr](mailto:dwkang@kepri.re.kr)

### 1. 서론

원자로 계통에서의  $^{14}\text{C}$ 의 생성은 핵연료, 연료피복재, 냉각재, 감속재 및 원자로의 구조물 내에 존재하는 산소( $^{17}\text{O}$ ), 질소( $^{17}\text{N}$ ) 및 탄소( $^{13}\text{C}$ )와 원자로에서 발생하는 중성자와의 반응을 통해 일어난다. 발생하는 형태는  $^{14}\text{C}$ 가 함유된 기상, 고상 및 액상폐기물 등 다양한 형태로 발생한다. 경수로 원전에서 발생하는 주요 선원항은 원자로 냉각재에서 생성된  $^{14}\text{C}$ 이며 소량이지만 생성된 대부분의  $^{14}\text{C}$ 는  $\text{CnHm}$  화학형을 이루면서 발전소 방출단을 통해 기상으로 방출되고 나머지는 이온교환수지에 축적되거나 액상형태로 방출된다.  $^{14}\text{C}$ 는 5730년이라는 긴 반감기를 가진 약한 베타방출체(최고 에너지 156 keV)라는 특징 때문에 대상폐기물에서의  $^{14}\text{C}$ 의 농도 분석은 타 핵종과의 까다로운 분리공정을 거친 후에만 측정이 가능해 원자로 계통수중의  $^{14}\text{C}$ 나 사용된 이온교환수지로부터의  $^{14}\text{C}$  분석자료는 매우 제한적이다. 본 논문은 발전소의 운전 특성이 다른 2개 로형(CE형, Framatome형)을 대상으로 원자로 계통 내에서의  $^{14}\text{C}$ 의 화학형별 거동 특성에 대해 기술하였다.

### 2. 분석 및 결과

가압경수로에서의  $^{14}\text{C}$  거동은 중수로와는 전혀 다른 형태를 나타낸다. 가압경수로 원자로 계통수중의 용존산소 제어를 위해 상당량(25~50cc/kg)의 수소 주입으로 인해 원자로냉각재는 환원 환경 상태 하에 놓이기 때문에 대부분의  $^{14}\text{C}$ 는  $\text{CO}$ , alkanes 및 hydrocarbon의 화합물 형태로 계통 내에서 형성되어진다. 1차계통내에서  $^{14}\text{C}$ 가 생성되는 주요 선원항은 주로 원자로보충수탱크 및 증발기를 통해 회수된 응축수 중의 용존산소( $^{17}\text{O}$ )와 용존질소( $^{17}\text{NO}_2^-$ )이며 이들이 계통으로 유입 시 중성자와의 반응에 의해  $^{14}\text{C}$ 가 생성되어진다. 원자로 계통의 운전특성에 따라 계통 내  $^{14}\text{C}$  Inventory는 많은 차이를 보여주고 있다. 계통수중의  $^{14}\text{C}$  농도는 로형별로 차이는 있지만 평형상태를 이루면서 일정한 값을 보여주고 있다(그림 1, 2 참조). 또한, 계통 내에서는 두 로형이 공히 유기형태의 화학종이 주종을 이루고 있음을 나타내고 있다. 원자로 계통 내의  $^{14}\text{C}$ 의 화학형이 바뀌는 시점은 핵연료 재 장전을 위해 1차 계통을 개방하기 전으로 정지화학 처리과정에서 계통 내 방사성크러드의 제거를 위한  $\text{H}_2\text{O}_2$ 의 주입으로 인해 산화환경으로 바뀌면서 대부분의 유기성  $^{14}\text{C}$  화합물은  $^{14}\text{CO}_2$  형태로 바뀌어진 상태로 체적제어계통(VCT)을 통한 탈기가 수행되면서 폐기물 처리계통을 거쳐 환경으로 방출된다. 정상운전 중 원자로 냉각재 계통 내  $^{14}\text{C}$  inventory는 Framatome 형이 CE형보다 높았으며 계통의 운전 특성에 따라  $^{14}\text{C}$ 의 재고량이 다른 것으로 나타났다. CE형은 총 8개월간에 걸쳐 원자로 냉각재중의  $^{14}\text{C}$ 의 조성과 방사능량을 분석하였으며 냉각재 중의 액상에 존재하는 유기형태의 조성은 96.5% 이상으로 냉각재 내에는 유기물 형태가 지배적인 것으로 나타났다. 최근에 스웨덴의 Ringhal 원전에서 입수한 자료에 의하면, Ringhal 원전은 냉각재중의 유기물 형태의  $^{14}\text{C}$ 는 99.7%이고 무기물 형태의  $^{14}\text{C}$ 는 0.3%로 국내 원전의 화학조성보다 유기물 형태의 조성이 약간 더 높은 비율로 존재하는 것으로 나타났으나 대체로 Ringhal 원전과 유사한 경향을 나타내고 있었다. 그러나, 냉각재중의 액상과 기상의 유기형태의 비율에 대한 비교 결과, 국내 원전이 냉각재중에 유기물 비율이 훨씬 높은 것으로 나타나 추후 이에 대한 보다

상세한 검토가 이루어질 것이다. 원자로 냉각재중의 유기형태의  $^{14}\text{C}$  화합물중 기상에 존재하는 유기화합물은 CE형은 5~6%, Framatome 형은 28~35% 정도이고 액상에 남아있는 비 휘발성의 유기화합물(alkanes, 포름산염 혹은 아세테이트 형)의 비율은 CE형은 94~95%, Framatome 형은 62~75%로 나타났다. CE형은 타 로형에 비해 냉각재중에 존재하는 액상, 기상상태로 존재하는 유기/무기  $^{14}\text{C}$  농도가 상대적으로 매우 낮게 나타났는데 이는 붕소 회석운전 시 발생하는 다량의 붕산 회석수중의 붕소를 회수하기 위한 증발기의 농축 운전과정에서 응축되어 나오는 응축수를 계통수로 재사용하지 않고 회석 방출시키기 때문에 원자로 냉각재내에는  $^{14}\text{C}$  농도가 상대적으로 낮게 나타나는 것으로 여겨진다. 그러나 스웨덴의 Ringhal 원전이나 CE형 원전에 비해 비휘발성 유기형태의  $^{14}\text{C}$  조성이 높게 나타난 이유에 대해서는 좀더 상세한 평가가 요구된다. Framatome 형은 계통 내  $^{14}\text{C}$  농도가 CE형 로형에 비해 약 15배 정도 높은 것으로 나타났다.

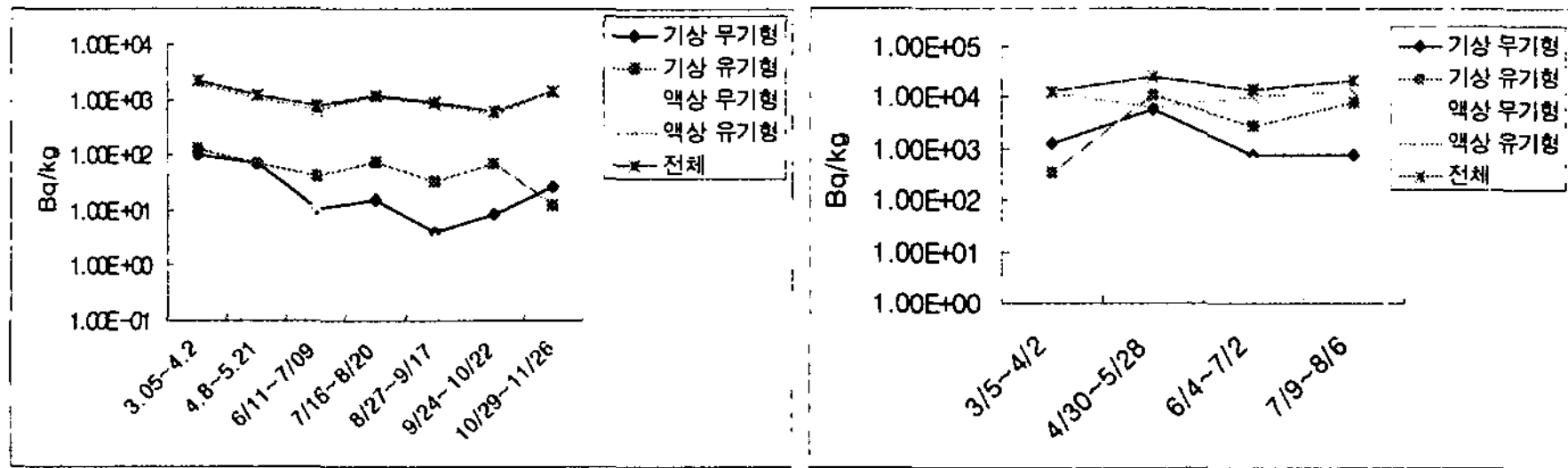


그림1. 정상운전 중 냉각재중의  $^{14}\text{C}$  거동 (CE형)      그림2. 정상운전 중 냉각재중의  $^{14}\text{C}$  거동 (Framatome 형)

### 3. 결론

경수로 원전에서 환경으로 방출되는  $^{14}\text{C}$ 의 량 및 화학조성을 평가하기 위해서는 계통수 중에 존재하는  $^{14}\text{C}$ 의 화학형에 대한 분석은 매우 중요하다. 대상 원전의 냉각재중에 존재하는  $^{14}\text{C}$ 의 농도 및 화학조성을 평가하기 위해 CE형과 Framatome형 로형을 선정하여 일주일 간격으로 원자로 냉각재 시료를 20ml씩 채취한 후 5주간의 시료를 혼합시켜 100ml의 시료로 만든 다음 분석해 오고 있다. 정상운전 중에는 계통수중의  $^{14}\text{C}$ 는 유기형인  $^{14}\text{CnHm}$ 형이 95% 이상으로 주종을 이루고 있었으나 노심말기 정지화학 처리공정을 거치면서 대부분이  $^{14}\text{CO}_2$  형으로 바뀌었다. 또한, 사용후 핵연료저장조 건물동의 방출 특성을 규명하기 위해 Framatome형을 대상으로 사용후 핵연료 저장조수와 저장조 주변의 공기시료를 정기정비기간(O/H)동안 채취하여 분석해 본 결과,  $^{14}\text{CO}_2$  형이 주종을 이루고 있는 것으로 확인되어 배기구를 통해 방출되는 화학형은 사용후 핵연료저장조와도 직접적인 연관이 있음을 알 수 있었다. 원자로 냉각재 계통 내  $^{14}\text{C}$  Inventory를 계산해 본 결과, Framatome 형은 호기 당 평균 5.6GBq을 나타냈고 CE형은 0.3GBq로 Framatome 형이 계통 내  $^{14}\text{C}$  Inventory가 훨씬 높은 것으로 나타났다. Framatome형이 원자로 냉각재 계통내에서  $^{14}\text{C}$  Inventory가 높은 이유는 원자로 계통 회석 운전시 발생되어 나오는 용액을 임시 저장해 놓는 Hold-up 탱크수의 붕소 회수과정에서 증발기 운전시 생성되는 응축수를 CE형처럼 방출시키지 않고 계통으로 재순환, 사용하고 있기 때문에  $^{14}\text{C}$ 의 Inventory는 타원전보다 높아진 것으로 보인다. 현재까지는 전 주기 동안의 계통수중의  $^{14}\text{C}$ 에 대한 화학종별 분석 자료를 얻지 못해 계통내 거동 특성을 충분히 파악하지 못했지만 차기 발표시에는 계통의 운전 특성과 방출량 변화에 큰 변수로 작용할 수 있는 이온교환수지의 포화 유무도 평가하여  $^{14}\text{C}$ 의 거동 특성을 보다 명확히 밝힐 수 있을 것으로 기대된다.