

Spatial Distributions of ^3H and ^{14}C in the Shielding Concrete of KRR-2

연구로 2호기 수조 콘크리트의 ^3H 및 ^{14}C 공간분포

Sang Bum Hong, Hee Reyoung Kim, Kun Ho Chung, Mun Ja Kang,
Gyeong Hwan Jeong, Un Soo Chung and Jin Ho Park
Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Deokjin-dong, Yuseong-gu, Daejeon

sbhong@kaeri.re.kr

홍상범, 김희령, 정근호, 강문자, 정경환, 정운수, 박진호
한국원자력연구소, 대전시 유성구 덕진동 150번지

(Received July 20, 2006 / Approved September 25, 2006)

Abstract

The depth distributions of total ^3H and ^{14}C activities were characterized for the activated shielding concrete from a decommissioning of KRR-2 using the commercially available tube furnace and a liquid scintillation counter. The correlation of measurement results between ^3H , ^{14}C and gammer emitter was evaluated to apply for estimating radionuclide inventory of the concrete waste generated from decommissioning KRR-2. The detection limits for ^3H and ^{14}C are 0.048 and 0.028 Bq/g respectively. The specific activities of the ^3H and ^{14}C tend to decrease exponentially as the depth of the concrete becomes deeper from the surface. In addition, the ^3H and ^{14}C activities were in good correlation with the ^{60}Co activities analysed for the shielding concrete of KRR-2.

Key words : ^3H , ^{14}C , Concrete, Activation, Decommissioning, Liquid scintillation counter.

요약

연구로 2호기 해체과정에서 발생한 방사화된 수조 콘크리트 내의 깊이에 따른 ^3H 및 ^{14}C 의 방사능 분포를 고온연소로와 액체섬광계수기를 이용하여 분석하였다. 또한 향후 연구로 2호기 해체과정에서 발생된 콘크리트폐기물의 핵종재고량 평가에 활용하기 위하여 ^3H 및 ^{14}C 측정결과와 감마방출핵종과의 상관관계를 도출하였다. ^3H 및 ^{14}C 의 검출하한값은 0.048 및 0.028 Bq/g이다. 연구로 2호기 수조 콘크리트 내의 ^3H 및 ^{14}C 의 깊이별 방사능 분포는 콘크리트 표면으로부터 멀어질수록 지수적으로 감소하는 경향을 보여주었다. 또한, ^3H 및 ^{14}C 의 비방사능은 콘크리트에 존

재하는 ^{60}Co 의 비방사능과 좋은 상관관계를 나타내었다.

중심단어: ^3H , ^{14}C , 콘크리트, 방사화, 해체, 액체섬광계수기

I. 서론

수명을 다한 원자력시설의 해체과정에서 다양하고, 많은 양의 해체폐기물이 발생하게 된다. 이러한 해체폐기물을 안전하고 효율적으로 관리하기 위한 연구가 활발히 진행되고 있다. 한국원자력연구소의 연구로 2호기의 경우 2005년 말까지 원자로실 및 부속시설에 대한 해체를 완료하였다. 연구로 2호기 해체과정에서 콘크리트폐기물이 가장 많이 발생되었고, 이러한 폐기물은 연구로 2호기 수조 콘크리트 해체과정에서 발생되었다[1].

수조 콘크리트의 경우 일부는 중성자에 의해 방사화되어 다양한 핵종이 검출된다. 그중에서 가장 많은 방사능을 차지하는 핵종이 ^3H 및 ^{14}C 이다. 수조 콘크리트 내의 ^3H 및 ^{14}C 은 중성자의 방사화에 의해서 생성된다. ^3H 이 생성되는 주요 반응은 $^6\text{Li}(n, \alpha)^3\text{H}$ 이며, $^2\text{H}(n, \gamma)^3\text{H}$ 및 $^3\text{He}(n, p)^3\text{H}$ 반응에 의하여 미량의 ^3H 가 생성된다. ^{14}C 은 $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ 반응에 의해서 주로 생성되며, $^{13}\text{C}(n, \gamma)^{14}\text{C}$ 및 $^{17}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$ 반응에 의해서 미량의 ^{14}C 가 생성된다. ^3H 및 ^{14}C 은 순베타 방출 핵종으로 상대적으로 낮은 에너지를 가지고 있으며 ($E_{\beta\text{max}}(^3\text{H})=18.6 \text{ keV}$, $E_{\beta\text{max}}(^{14}\text{C})=156.5 \text{ keV}$) 측정은 LSC(Liquid Scintillation Counter)를 이용한다. ^3H 및 ^{14}C 은 콘크리트의 공극(gap)내에서 ^3H 은 HT 및 HTO 형태로 존재하며, ^{14}C 은 Carbonate 및 Carbon 형태로 존재하게 된다. 일반적으로 방사화된 콘크리트 내의 ^3H 및 ^{14}C 을 측정하기 위한 분석방법은 산화연소방법(Oxidization combustion method)과 산분해방법(Acid digestion method)이 사용된다[2-4].

본 논문에서는 산화연소방법을 적용하여 연구로 2호기 수조 콘크리트 내의 깊이에 따른 ^3H 및 ^{14}C 의 방사능분포를 분석하였다. 산화연소법은 산분해방법에 비해 시료의 전처리과정이 없고, 시료의 추출 및 분석에 소요되는 시간이 적게 걸리며, 낮은 MDA(Minimum

Detectable Activity)를 확보할 수 있는 장점이 있다[5-6]. 또한 분석에 사용된 고온연소로는 동시에 6개의 시료를 분석할 수 있다.

II. 본론

가. 시료의 준비

연구로 2호기 전단부 수조 콘크리트는 중성자 차폐를 위하여 밀도가 3.4 g/cm^3 인 고강도콘크리트(heavy concrete)로 제작되어 있다. 수조 콘크리트는 Figure 1 에서 보는 바와 같이 중성자 실험을 위하여 10개의 Beamport 및 흑연블럭이 채워져 있는 Thermal Column이 관통하는 구조로 되어있다. 분석을 위한 시료는 연구로 2호기에서 가장 방사화가 되었을 것으로 예상되는 전단부 수조 콘크리트 내에 Thermal Column 주변의 높이 90 cm(노심과 동일한 높이)에서 시료를 채취하여 ^3H 및 ^{14}C 의 핵종별 방사능을 측정하였다. 수조 콘크리트의 깊이별 방사화분포를 측정하기 위하여 연구로 2호기 수조 콘크리트 내부에서 외부로 1m까지, 각 10cm 단위로 core

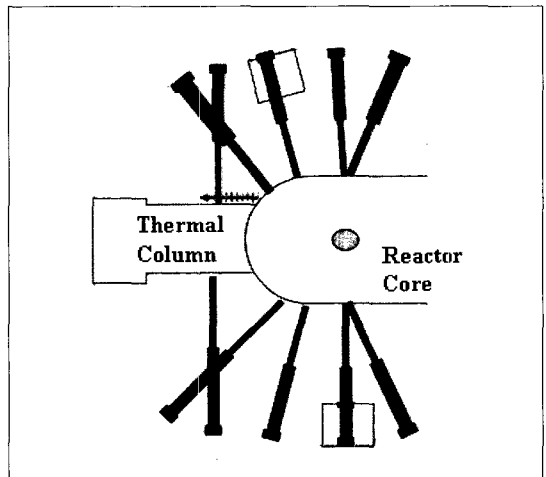


Figure 1. The structure of the bio-shielding concrete of KRR-2.

drilling 장비를 이용하여 10개의 시료를 채취하였다. 연구로 2호기 전단부 수조 콘크리트의 구조 및 채취된 시료의 위치는 Figure 1과 같다.

나. 소광효과 보정

^3H 및 ^{14}C 의 측정을 위하여 소광효과에 따른 계측 효율을 우선 결정해야 한다. ^3H 및 ^{14}C 표준선원인 165 Bq/g 및 185 Bq/g을 각각 0.1g 씩 vial에 취하였다. ^3H 의 경우 0.1M HNO_3 과 Goldstar의 혼합비를 6 : 14 ~ 9.5 : 10.5의 비율로 0.5 ml씩 변화시켜서 Vial을 제조하였고, ^{14}C 의 경우 Carbosorb-ETM과 Goldstar의 혼합비를 2 : 18 ~ 9 : 11까지 1ml씩 변화시키면서 vial을 제조하였다. 제조된 시료를 계측장비인 Wallac 1220 QuantulusTM Liquid Scintillation Counter를 이용하여 30분 3회씩 계측하여, 3회 계측의 평균치를 계산하였다. 소광효과에 대한 보정곡선은 SQP(E) 방법을 적용하였고 그 결과는 Figure 2에 제시하였다. 측정결과 ^3H 의 경우 33.2%로 상대적으로 낮은 계측효율을 보였으며, ^{14}C 의 경우는 67.2%로 상대적으로 높은 계측효율을 보여주고 있다.

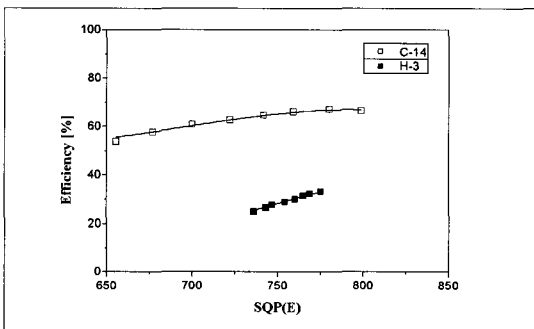


Figure 2. Counting efficiency of ^3H and ^{14}C for different quenching levels.

다. ^3H 및 ^{14}C 의 분석

방사화된 콘크리트 내의 ^3H 및 ^{14}C 을 분석하기 위하여 산화연소방법을 적용하였다. 고온연소로인 Tube Furnace(Pyrolyser 6TM)는 영국 RADDECTM에서 개발되었고, 현재 영국 내 원자력시설의 해체과정에서 발생하는 다양한 해체폐기물 뿐만 아니라 환경시료의 분석에도 유용하게 적용하고 있다. Tube Furnace는 시료영역(Sample Zone)과 백금 촉매영역(Catalyst Zone)으로 분리되어 있다. 시료 분석을 위해서 시료영역은 온도를 최대 900 $^{\circ}\text{C}$ 까지 상승시킬 수 있고, 촉매영역은 800 $^{\circ}\text{C}$ 를 계속 유지하게 된다. Tube Furnace는 Quartz glass로 만들어진 6개의 Worktube가 설치되어 있어 한번에 6개의 시료를 분석할 수 있다. Worktube 내에는 10g의 0.5% Pt-alumina catalyst 촉매를 넣으며, 그 역할은 연소과정에 발생된 ^3H 및 ^{14}C 를 HTO와 $^{14}\text{CO}_2$ 형태로 전환시켜 주는 역할을 한다.

우선, Tube Furnace 장비의 회수율을 측정하기 위하여 표준선원(^3H =165 Bq/g, ^{14}C =185 Bq/g)을 Filter paper(Whatman(42) Ash less 0.01%)에 도포하여 Tube Furnace를 이용하여 연소 및 회수 과정을 통하여 회수율을 측정하였다. 측정결과 ^3H 의 경우 90 \pm 5%, ^{14}C 의 경우 95 \pm 5%의 효율을 보여주었다. 이러한 측정결과는 향후 콘크리트 시료의 방사능 분석에 기초자료로 활용하였다.

수조 콘크리트 내의 ^3H 및 ^{14}C 을 분석하기 위하여 채취된 시료 중 5g을 Aluminum boat에 넣고 도포하여 준비한다. 연소로의 온도는 촉매영역의 경우 800 $^{\circ}\text{C}$ 까지 상승시키고, 시료영역에 준비한 시료를 넣고 500 $^{\circ}\text{C}$ 까지 3 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ (0~200 $^{\circ}\text{C}$), 5 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ (200~

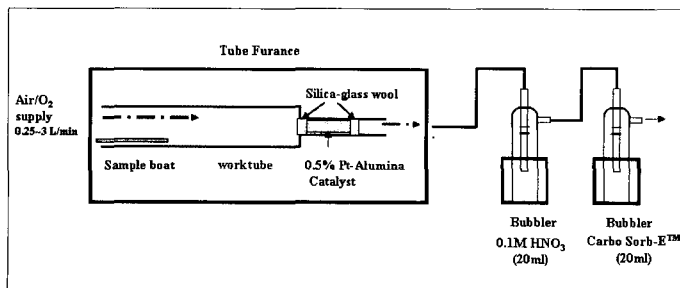


Figure 3. Schematic diagram of the analysis procedure using oxidation combustion method.

500℃)으로 온도를 상승시킨다. 이 과정에서 200℃와 300℃에서 약 30분 정도 온도를 유지하게 된다. 이러한 이유는 시료의 예상하지 못한 급격한 연소를 막기 위함이다. 연소과정동안 발생된 ³H 및 ¹⁴C는 운반가스(순수공기/산소)와 같이 Bubbler를 통과하여 포집되게 된다. 운반가스의 유량은 0.2~0.25 ml/min의 유소를 유지하게 되며, 처음에는 공기만을 운반가스로 이용하고, 시료영역이 500℃가 되면 공기의 유입을 차단하고, 산소로 전환하여 약 1시간정도 연소과정을 지속하여 시료의 연소를 촉진하게 된다. ³H는 0.1M HNO₃(20ml)에 포집되며, 포집된 용액에서 8ml를 취하고, Goldstar를 12ml를 취하여 Cocktail을 제조한다. ¹⁴C는 Carbo Sorb-E™(20ml)에 포집되며, 포집된 용액에서 5ml를 취하고, Goldstar를 15ml를 취하여 제조된 Cocktail을 액체섬광계수기를 이용하여 분석하였다.

III. 결과

산화연소방법을 이용하여 액체섬광계수기로 측정된 ³H 및 ¹⁴C의 방사능에서 배경값(Background)을 차감하고, 차감된 계측값에서 소광효과를 보정하여 방사능 값이 계산된다. ³H 및 ¹⁴C의 방사능은 아래의 계산식에 따라 이루어지며 액체섬광계수기를 이용하여 각각의 시료에 대하여 30분 3회씩 계측하여, 3회 계측의 평균치를 이용하여 LSC+ software를 이용하여 계산하게 된다. 검출하한값(MDA)은 Curie의 식

$$A_B = \frac{C-B}{60} \times \frac{100}{E} \times \frac{1}{m}$$

- A_B = Bubble내의 방사능 농도(Bq/g)
- C = 시료의 계수율 (CPM)
- B = Background 계수율 (CPM)
- E = 계측기 효율 (%)
- m = 분석을 위해 추출한 시료의 무게 (g)

$$A_s = A_B \times \frac{(m_f - m_t)}{M_s} \times \frac{100}{R}$$

- A_s = 시료내 방사능 농도 (Bq/g)
- m_f = 최종 Bubbler의 무게 (g)
- m_t = 순수 Bubbler의 무게 (g)
- M_s = 분석을 위해 추출한 시료의 무게 (g)
- R = 연소로의 회수율 (%)

을 이용하여 계산하였고(기, 배경값은 ³H 및 ¹⁴C에 대하여 각각 0.27 cpm 및 1.24 cpm으로 측정되었고, 검출하한값은 ³H는 0.048 Bq/g 그리고 ¹⁴C는 0.028 Bq/g으로 계산되었다. 연구로 2호기 수조 콘크리트의 깊이별 방사능 분포에 대하여 분석한 결과는 Figure 4에 제시하였다. 측정결과 수조 콘크리트의 내부 표면 거리에 따른 방사화 분포는 ³H의 경우 1689.58 ~ 3.21 Bq/g으로, ¹⁴C는 0.25 ~ 0.03 Bq/g으로 측정되었다.

연구로 2호기 수조 콘크리트 내의 ³H, ¹⁴C의 측정결과와 감마방출 핵종과의 상관관계를 알아보기 위해 우선 동일한 시료에 대하여 감마 방출핵종에 대하여 HPGe 검출기를 이용하여 측정하였다. 깊이별 방사화분포를 측정결과 최대 150 Bq/g으로 측정되었으며, 깊이에 따라 방사능 분포가 지수적으로 감소하는 형태를 보여주고 있다. 주요검출핵종은 ⁶⁰Co 및 ¹⁵²Eu이며 일부 방사화정도가 높은 지역에서는 ¹⁵⁴Eu 및 ¹³⁴Cs이 검출되었다[8]. 측정된 결과를 바탕으로 난 분석(DTM : difficult to measure)핵종인 ³H 및 ¹⁴C과 감마방출 핵종과의 상관관계를 살펴보기 위해 우선

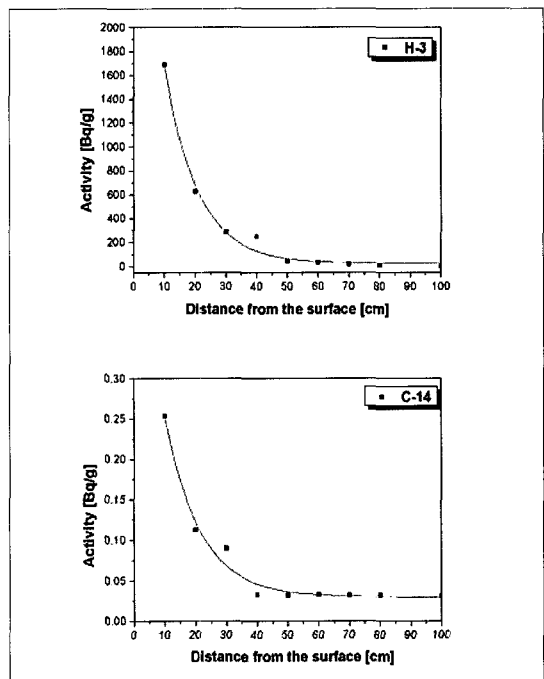


Figure 4. Analytical results of the Shielding concrete for ³H and ¹⁴C from the KRR-2

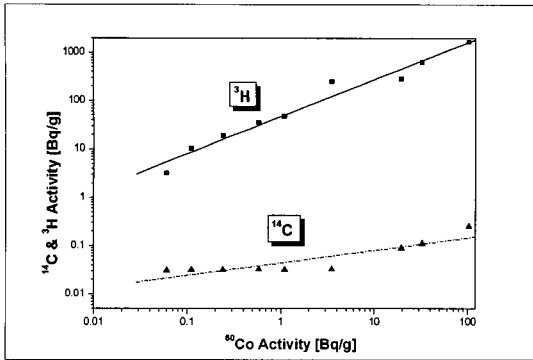


Figure 5. Correlation between ^{60}Co and ^3H , ^{14}C in activated concrete from KRR-2

Key 핵종으로 ^{60}Co 를 선정하였다. 그 이유는 깊이별 방사능 감쇄분포가 동일한 경향을 보여주었기 때문이다. 선정된 key 핵종인 ^{60}Co 과 ^3H 및 ^{14}C 의 깊이에 따른 방사능 분포를 Figure 5에 나타내었다. 각각의 콘크리트 시료에서 ^{60}Co 의 방사능에 대한 ^3H 및 ^{14}C 의 로그스케일에 대한 상관관계식 및 상관계수(r : correlation coefficient)는 $y=0.768x+1.674$ ($r=0.983$) 및 $y=0.259x-1.349$ ($r=0.885$)로 계산되었다. 일반적으로 척도인자(scaling factor)를 계산하는데 있어 상관계수만을 놓고 보았을 때 상관계수의 값이 0.6 이상인 경우 상관성이 존재하여 척도인자를 적용할 수 있는 것으로 판단하고 있다[9]. 본 분석결과는 좋은 상관관계를 보여주고 있는 것으로 판단된다.

IV. 결론

연구로 2호기 수조 콘크리트는 중성자와 상호작용에 의하여 방사화되어 다양한 핵종이 검출된다. 수조 콘크리트에서 깊이별로 시료를 채취하여 ^3H 및 ^{14}C 를 고온연소로를 이용하여 추출하고 액체섬광계수기를 이용하여 측정하였다. 측정을 위해 우선 고온연소로의 회수율을 측정하기 위해 Filter paper와 표준선원을 이용하여 측정하였고, 그 결과를 이용하여 콘크리트 시료분석의 기초자료로 활용하였다. 실제 콘크리트 시료의 분석결과 연구로 2호기 수조 콘크리트 내부에서 깊이별에 따라 방사능이 지수적으로 감쇄하는 경향을 보여주었고, ^3H 및 ^{14}C 는 최대 1689.58 Bq/g, 0.25 Bq/g으로 측정되었다. 측정된 결과를 바

탕으로 ^{60}Co 과 난분석 핵종인 ^3H 및 ^{14}C 와의 상관관계를 살펴본 결과 일정한 선형관계를 보여주었다. 본 측정결과는 향후 연구로 2호기 해체과정에서 발생된 콘크리트폐기물의 핵종 재고량 평가의 기초자료로 활용될 수 있을 것으로 사료된다.

참고문헌

- [1] K. W. Lee, S. K. Prak, S. B. Hong, U. S. Chung and J. H. Park, "Experiences of the dismantling on non-activated and activated bio-shielding concrete of KRR-2," Proceedings of the 7th joint workshop between China and Korea," pp. 271-281(2006).
- [2] Akira Endo, Yasunori Harada, Katsuya Kawasaki and Masamitsu Kikuchi, "Measurement of depth distributions of ^3H and ^{14}C induced in concrete shielding of and electron accelerator facility," Applied Radiation and Isotopes, 60, pp. 955-958(2004).
- [3] J. P. Krasznai, "The radiochemical characterization of regular- and high-density concrete from a decommissioning reactor," Waste Management, Vol. 13, pp. 131-140(1993).
- [4] H. J. Ahn, H. N. Lee, S. H. Han, "Simultaneous assay of ^{14}C and ^3H in Evaporator bottom by Chemical oxidation method," J. of the Korean Radioactive Waste Society, vol.3(3), pp193-200(2005).
- [5] Xiaolin Hou, "Rapid analysis of ^{14}C and ^3H in graphite and concrete for decommissioning of nuclear reactor," Applied Radiation and Isotopes, 62, pp. 871-882(2005).
- [6] 박진호 외., "The 5rd Technical Information Exchange Meeting on Decommissioning between KAERI and CEA," KAER/OT-1599/2006, pp. 335-336(2006).
- [7] L. Curie, "Limits for Qualitative Determination and Quantitative Determination," Anal. Chem.,

vol. 40, no. 3, pp 586-593(1968).

- [8] 홍상범 외., “연구로 2호기 전단부 차폐콘크리트의 방사선/능 분포 측정,” 대한방사선방어학회 국제심포지엄 및 추계학술발표회 보문집, pp.48-49, 2005.11.3-4, 지리산 가족호텔.
- [9] 이건재 외., “방사성폐기물 처분을 위한 핵종 재고량 평가방법에 관한 연구,” KINS/HR-590(2004).