2002 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

월성원전의 각 호기별 ^{14}C Inventory 평가

An Estimation of ^{14}C Inventory on Each Unit of Wolsong N.P.P.

손욱, 지준화, 강덕원, 이동훈
한국전력공사 전력연구원
대전광역시 유성구 문지동 103-16

요약

월성원전 가압중수로에서의 ^{14}C 에 대한 원활한 감시와 관리에 있어서 ^{14}C Inventory 의 평가가 매우 중요하기 때문에 그 방법의 수립을 시도하였다. 이번 보고서에서는 ^{14}C Inventory 는 ^{14}C 생성량에서 ^{14}C 방출량을 뺀 값으로 계산하였다. 즉, [Inventory] = [^{14}C 생성량] - [^{14}C 방출량]. 이 값들 중에서 ^{14}C 생성량은 ^{14}C 가 ^{13}C, ^{14}N 와 ^{17}O 의 각각의 중성자 포획반응[$^{13}C(n,\gamma)^{14}C$, $^{14}N(n, p)^{14}C$, $^{17}O(n,\alpha)^{14}C$]을 통해서 생성되기 때문에 각 계통에서의 이들 원자의 양과 열중성자속을 구하여 이론적으로 계산하였다. 반면에 ^{14}C 방출량은 이론적인 계산이 힘들고 월성원전의 경우 그 측정이 최근에 와서야 행해졌기 때문에 다른 원전에서 산출된 생성 ^{14}C 에 대한 평균비율을 취하여 계산하였다. 이렇게 계산된 방출량과 측정된 방출량 사이에는 만족하지는 못하지만 어느 정도의 상관성을 보여 이번에 적용한 Inventory 에 관한 기본 수식이 유효함을 확인할 수 있었다.

Abstract

In the present report, it is tried to establish the method of estimating ^{14}C Inventory on Wolsong N.P.P(CNADU type). Here, ^{14}C Inventory is defined as ^{14}C production minus ^{14}C release, that is, [^{14}C Inventory] = [^{14}C production] - [^{14}C release]. Since ^{14}C is produced through three neutron reactions such as $^{13}C(n,\gamma)^{14}C$, $^{14}N(n,p)^{14}C$ and $^{17}O(n,\alpha)^{14}C$) for ^{13}C, ^{14}N and ^{17}O, the term [^{14}C production] can be calculated using thermal neutron fluxes and amounts of these atoms in each system concerned. In other hand, since ^{14}C release is difficult to calculate and begins to be monitored recently, it is assumed to follow the averaged release ratio to total ^{14}C production obtained in other N.P.P. Although the comparison of ^{14}C releases from calculation and that from measurement does not give a satisfactory result, it shows sometimes good agreement between two figures. Accordingly, it seems that the assumption on which the calculation is based in this report is useful for the estimation of ^{14}C in CANDU type N.P.P.

1. 서론

^{14}C 는 반감기가 5.730 년으로 β^-선을 방출하여 ^{14}N 로 붕괴되는 탄소의 방사성 동위원소이

다. 천연에서는 대기상층부의 대기구성분자와 우주선의 중성자와의 반응에 의해서 생성되며, 인공적으로는 핵무기의 실험과 원자력발전소에서의 발전과정 등에서 생성된다. 이 중 원자력 발전소의 경우는 원자로내의 냉각재, 감속재, 원자로 구조재료 및 연료물질 중에 존재하는 탄소, 산소, 질소 등의 동위원소의 중성자 포획반응에 의해 ^{14}C 이 생성되며, 미량이지만 배기구를 통해 이산화탄소 및 탄화수소의 형태로 지속적으로 외부로 방출되게 된다. 이러한 ^{14}C 는 광합성 작용에 의해서 탄수화물에 고정된 음식물의 섭취나 호흡에 의해 인간의 체내에 쉽게 흡수될 수 있으며 일단 체내에 흡수된 ^{14}C 는 긴 반감기 때문에 다양한 메커니즘을 통하여 인체 각 기관에 영향을 줄 수 있어 방사선방호측면에서 매우 중요하다. 특히 가압중수로(CANDU)의 경우 그 특성상 ^{14}C 의 생성율이 경수로에 비해 약 30 배 가량 많으며(환형기체가 CO_2 인 경우), 또한 감속재의 상층기체를 필요에 따라 외부로 방출시켜야 하므로 방출량이 큰 문제로 대두될 수 있다(표 1). 이러한 이유로 1996 년 8 월 12 일 과기부 고시 제 96-31 에 의해서 월성원전 주변의 환경을 대상으로 ^{14}C 이 분석항목에 추가되었다.

표 1. 여러 원자로형별 ^{14}C 방출량 비교 ($TBq\cdot GW^{1}y^{-1}$)

원자로형	생성율	방출률
LWR-PWR	0.7	0.4
LWR-BWR	1.0	0.4
HWR (N_2 annulus gas)	50	25[1)]
HWR (CO_2 annulus gas)	26	1[2)]
GCR-MGR	10	0.7
GCR-AGR	11	2
GCR-HTGR	3.0	0

1) Anuulus gas가 100 % 방출되는 것으로 가정
2) 생성량의 4 %가 방출되는 것으로 가정

이번 논문에서는 CANDU 원전에서 생성되는 ^{14}C 를 총체적으로 감시하고 관리하는데 있어서 기초적이면서도 매우 중요한 자료가 되는 원자로 내에서의 ^{14}C 의 생성 부위 및 메커니즘의 규명을 통한 ^{14}C 생성량의 이론적 계산과, 그것에 기초한 가압중수로에서의 ^{14}C Inventory 의 산출에 대해 설명하고 실제 월성원전에서의 ^{14}C Inventory 를 각 호기별로 계산해 보았다. 이러한 ^{14}C Inventory 평가는 영구 처리처분과 관련하여 중요한 정보를 제공할 수 있으며 향후 폐수지의 처리 및 처분 정책을 수립하는데 매우 유용하게 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

2.본론

2.1 가압중수로에서의 ^{14}C 생성 메커니즘과 생성부위

서론에서 언급했듯이 가압중수로에서의 ^{14}C 는 산소, 질소 그리고 탄소 동위원소의 다음과 같은 중성자 포획반응에 의하여 생성된다.

$$^{13}C(n, \gamma)^{14}C \quad (1)$$

$$^{14}N(n, p)\,^{14}C \quad (2)$$

$$^{17}O(n, \alpha)\,^{14}C \quad (3)$$

따라서 ^{14}C 이 생성되기 위해서는 열중성자속(thermal neutron flux)이 높아야 하며, 동시에 이들 반응에 필요한 동위원소가 존재하여야 한다. 가압중수로에서 이러한 조건을 충족시키는 곳으로는 감속재계통(Moderator System), 1 차측 열수송계통(Primary Heat Transport System), 환형기체계통 (Annulus Gas System), 핵연료(Fuel) 등을 들 수 있다. 이후의 논의에서 직접 중성자와 반응해서 ^{14}C 를 생성시키는 ^{17}O 과 같은 동위원소를 표적원자(target atom), 그리고 이 표적원자를 포함하고 있는 물질(예를 들면 감속재의 경우, ^{17}O 를 포함하는 D_2O)을 표적물질(target material)이라 칭하기로 한다. 아래에서 각 계통과 그 계통에서의 ^{14}C 생성 메커니즘에 대해 설명하기로 한다.

가. 감속재계통

원자로내의 감속재계통에는 약 260 톤의 중수가 장전되어 있다. 원자로 내에서 생성된 ^{14}C 의 일부는 이 상층기체에서 이산화탄소의 형태로 존재하다가 상층기체계통의 중수소의 압력조절을 위한 방출 시 상층기체와 함께 연돌(stack)을 통해서 환경으로 배출된다. 한편 감속재의 평균 pH 의 값이 5.5 정도이므로 감속재 내에서는 생성된 ^{14}C 는 주로 중탄산염이온($D^{14}CO_3^-$)과 용존 탄산($D_2{}^{14}CO_3$)의 형태로 존재하게 된다. 이중 중탄산염이온은 감속재계통을 순환하다가 감속재계통의 정화계통에 설치된 이온교환(IX) 수지에 의해서 제거되게 된다.

감속재계통의 표적물질로서는 중수, 용존 질소와 산소, 용해된 질산염과 아질산염이 있으며, 각 표적물질 중에 존재하는 표적원자로는 중수, 용존 산소, 질산염과 아질산염 중의 ^{17}O, 용존 질소, 질산염과 아질산염 중의 ^{14}N 가 있다. ^{17}O 는 (3)의 반응에 의해서, ^{14}N 은 (2)의 반응에 의해서 각각 ^{14}C 를 생성한다.

나. 1차측 열수송계통

1 차측 열수송계통에서 생성된 ^{14}C 는 냉각재인 중수의 pH 가 감속재 계통과 달리 10.2 10.8 사이의 값을 보이므로 주로 탄산염이온($^{14}CO_3^{2-}$)의 형태로 계통 내를 순환하다가 1 차측 열수송계통의 정화계통에 설치된 이온 교화수지에 의해서 제거된다.

1 차측 열수송계통의 표적물질로서는 중수만이 존재하며 따라서 표적원소로서는 ^{17}O 만을 고려하면 된다. ^{17}O 는 (3)의 반응에 의해서 ^{14}C 를 생성한다. 1 차측 열수송계통의 중수의 총 무게는 약 205 톤이나 열중성자속이 높은 지역에 존재하는 중수의 양은 그것의 3.1 %에 지나지 않기 때문에 이 중성자 포획반응은 냉각재 무게의 3.1 % 해당하는 양에서만 일어나는 것으로 간주한다.

다. 환형기체계통

환형기체계통은 압력관내에 충전되어 있는 냉각재의 열이 칼란드리아관 외부를 둘러싸며 있는 감속재로 전달되는 것을 방지하기 위한 계통으로서 압력관과 칼란드리아관 사이의 환형공간(annulus gap)이라고 불리는 공간과 여기에 채워진 환형기체로 구성된다.

환형기체계통에서의 표적물질로는 사용되는 환형기체의 종류에 따라 다르다. 질소가스와

이산화탄소가 사용될 수 있으며 전자의 경우에는 ^{14}N 가, 그리고 후자의 경우에는 ^{17}O 와 ^{13}C 가 표적원자가 되어 각각 (2), (3)과 (1)의 반응에 의해서 ^{14}C 를 생성하게 된다. 그러나 환형기체가 질소 가스인 경우에 생성되는 ^{14}C 의 양이 이산화탄소를 환형기체로 사용하는 계통에서 보다 많이 생성되기 때문에 현재 환형기체는 모두 이산화탄소로 교체된 상태이며(표 1 참조) 따라서 이 보고서에서는 질소 기체는 고려하지 않기로 한다.

라. 핵연료

CANDU 형 노심은 칼란드리아라고 불리는 반응용기와 그 내부에 수평으로 배치된 총 380 개의 칼라드리아관으로 구성되어 있으며 각각의 칼란드리아관에는 환형 간격을 사이에 두고 압력관이 존재한다. 한 개의 압력관내에는 12 개의 연료 번들(bundle)이 병렬로 장착되고 한 개의 연료 번들에는 37 개의 연료봉이 원형을 이루며 들어 있으며 또한 각각의 연료봉에는 29 개의 핵연료 펠렛(pellet)이 병렬로 장착되어 있다. 따라서 칼란드리아에는 380 ×12 ×37 ×29 = 4,892,880 개의 펠렛이 장착되게 된다. 한 개의 연료 번들에는 21.67 kg 의 UO_2 가 들어 있으므로 칼란드리아에 장착되는 총 UO_2 의 무게는 380 ×12 ×21.67 = 98,815.2 kg 이 된다. 펠렛은 지르칼로이(zircaloy) 피복재로 쌓여 있으며 이 피복재와 펠렛 사이는 서로의 마찰을 줄이기 위해서 흑연 층이 피막 되어있다.

핵연료에서의 표적물질로서 산화우라늄(UO_2), 연료내 질소 불순물, 핵연료 충진 가스(fuel filling gas) 그리고 연료피복성분인 흑연(graphite) 등을 들 수 있다. 이때의 표적원자는 산화우라늄과 충진 기체 성분의 하나인 산소기체의 ^{17}O, 질소 불순물과 충진 기체 성분의 하나인 질소의 ^{14}N, 그리고 연료피복재인 흑연(graphite)의 ^{13}C 가 된다. ^{17}O, ^{14}N, 그리고 ^{13}C 는 각각 반응 (3), (2)와 (1)에 의해서 ^{14}C 를 생성시킨다.

위에서 설명한 가압중수로 내에서의 ^{14}C 의 생성 장소에서의 표적물질과 표적원자, 그리고 그 외 관련된 자료를 정리하면 표 2 와 같이 된다. 표 2 를 보면 가압중수로에서 ^{14}C 가 생성되는 장소가 많은 것을 알 수 있으나, 그 중에서 ^{14}C 생성이 높은 비율을 차지하는 곳은 중수 내 ^{17}O 의 $^{17}O(n, \alpha)^{14}C$ 반응이 일어나는 감속재계통이다. 이 반응을 포함한 감속재계통 전체에서의 ^{14}C 생성의 전체 생성량에 대한 비율은 CO_2 를 환형기체로 사용하고 있는 현재의 가압중수로의 경우 92 %에 이르는 것으로 보고 되고 있다. 그 외 1 차측 열수송계통과 핵연료에서의 ^{14}C 생성 비율은 각각 1 %와 7 %인 반면 환형기체계통의 비율은 0.1 % 이하이다(그림 1).

2.2 중성자 포획에 의한 ^{14}C의 생성의 계산식

중성자 포획반응 i 에서 표적원자가 중성자와 반응해서 생성되는 ^{14}C 의 생성량 ($dN_{p,i}$)은 다음과 같이 이론적으로 계산할 수 있다.

$$dN_{p,i} = \phi_i \sigma_i n_i dt \tag{4}$$

여기서, F_i: 표적원자 i가 존재하는 곳의 평균 열중성자속

n_{i} : 원자로에 존재하는 중성자 포획반응에 관여하는 표적원자 i의 개수

s_i: 각 중성자 포획반응에서의 표적원자 i의 중성자에 대한 유효 단면적

표 2. ^{14}C 생성에 있어서의 표적물질과 표적원자

계통	표적물질		표적원자
감속재계통 (MOD)	moderator D_2O		^{17}O
	dissolved air in moderator D_2O	N_2	^{14}N
		O_2	^{17}O
	nitrate (NO_3) in moderator D_2O		^{14}N
			^{17}O
	nitrite (NO_2) in moderator D_2O		^{14}N
			^{17}O
일차측 열수송계통 (PHTS)	PHTS D_2O		^{17}O
환형기체계통 (AGS)	CO_2 annulus gas		^{13}C
			^{17}O
			^{14}N
			^{14}N
핵연료 (Fuel)	fuel impurities N_2		^{14}N
	uranium fuel UO_2		^{17}O
	fuel filling gas	N_2	^{14}N
		O_2	^{17}O
	graphite coating		^{13}C

한편 dt 시간 내에 $dN_{\mathrm{p,i}}$ 의 ^{14}C 이 생길 때 동시에 $dN_{\mathrm{d,i}}$ 만큼의 ^{14}C 이 붕괴되어 소멸되며 그 양은 다음과 같이 계산할 수 있다.

$$dN_{d,\,i} = \lambda N_i dt \tag{5}$$

여기서, λ: ^{14}C의 붕괴상수

N_{i} : i 번째 중성자 포획반응에서 존재하는 ^{14}C의 수

따라서 표적원자 i 번째 중성자 포획반응에 의한 ^{14}C 의 축적속도 $d\ N_{\mathrm{i}}$ 는 $dN_{\mathrm{p,i}}$ - $dN_{\mathrm{d,i}}$ 로부터 계산할 수 있다. 즉,

$$\begin{aligned} dN_i &= dN_{p,\,i} - dN_{d,\,i} \\ &= \phi_i \sigma_i n_i dt - \lambda N_i dt \end{aligned} \tag{6}$$

이것을 정리하면,

$$\frac{dN_i}{dt} + \lambda N_i = \phi_i \sigma_i n_i \tag{7}$$

가 되고, 이것은 $y' + f(x)y = r(x)$의 비제차 일차 미분방정식의 형태를 취하므로 그 해는 다음과 같이 되고,

$$N_i = \phi_i \sigma_i n_i (1 - e^{-\lambda t})/\lambda \tag{8}$$

여기서 구하고자 하는 것은 생성된 ^{14}C 의 방사능 A_{i} 이므로, N_{i} 에 ^{14}C 붕괴상수 l 를 곱하면,

$$A_i = N_i \lambda = \phi_i \sigma_i n_i (1 - e^{-\lambda t}) \tag{9}$$

가 되며, 또 e^{t} 1 + t 이므로 $e^{-\lambda t}$ 를 $1 - \lambda t$ 로 놓으면 위 식은 다음과 같이 된다. 즉,

$$A_i = \phi_i \sigma_i n_i \lambda t \tag{10}$$

한 호기에서 생성되는 ^{14}C 에 의한 총 방사능 A 는 각 포획반응에서 생성된 A_i 를 총 포획반응의 가지 수 n_T에 대해 합을 구하면 얻을 수 있고 따라서,

$$A = \sum_{i=1}^{n_T} A_i \quad (11)$$

가 된다. 식 10 에서 시간 t 에 1 년에 해당하는 값을 삽입하면 A 는 연간 ^{14}C 붕괴율, 즉 연간 방사능을 나타내게 된다. 이 식에서 사용된 값들을 다시 한번 정의 하면 다음과 같다.

A_i : i번째 중성자 포획반응에서의 ^{14}C 연간 방사능 (Bq a^{-1})

F_i : i번째 포획반응에서의 평균 열중성자속 (n cm^{-1} s^{-1})

s_i: i번째 포획반응에 관련된 핵종의 중성자에 대한 유효 단면적 (cm^2)

λ: 붕괴상수 (=ln(2)/$t_{1/2}$, s^{-1}, 여기서 $t_{1/2}$: ^{14}C의 반감기, 5730· 3.15576· 10^7, s)

t : 연간 중성자 조사시간 (= CF×t_0, CF: annual reactor power capacity factor, t_0: 해당 년도 적용 시간, 초)

n_i : i번째 포획반응에서 ^{14}C 생성에 기여하는 표적원자의 원자 수.

n_i 은 표적물질의 양이 무게로 주어지면

$$n_i = \frac{W_i}{M_i} \cdot k_i \cdot f_i \cdot A_v \quad (12)$$

부터 계산되고, 부피(L)로 주어지면

$$n_i = \frac{W_i}{22.4} \cdot k_i \cdot f_i \cdot A_v \quad (13)$$

부터 계산된다.

여기서, W_i : 표적물질의 무게 (g)

M_i : 표적물질의 분자량

k_i : 단위 표적물질 분자식 중의 표적원자의 수

f_i : 표적원자의 동위원소 존재비

A_v : 아보가드로 수 (6.023 10^{23})

위의 내용을 요약하면, 하나의 중성자 포획반응에서 그 반응에 참가하는 표적원자의 수와 열중성자속의 값으로부터 생성되는 ^{14}C 에 의한 연간 방사능을 알 수 있으며 표적원자의 수는 그 표적원자가 포함된 표적물질의 몰(mole) 수에 표적원자의 동위원소 존재비를 곱하여 구할 수 있다. 여기서 표적물질의 몰 수는 표적물질의 양(또는 부피)을 표적물질의 분자량(부피일 경우는 22.4L)으로 나눠서 얻는다. 이렇게 각각의 중성자 포획반응에 대해서 구한 방사능을 전체 중성자 포획반응 수(n_T=17)에 대해서 더하면 중수로 한 호기에서 생성된 전체 ^{14}C 에 의한 연간 방사능을 구할 수 있다.

위 계산을 하기 위해서는 여러 값들이 주어져야 하며 그 값들은 발전소에 상관없이 일정한 값과 발전소마다 측정해서 구해야 되는 특수한 값들로 이루어진다. 표 3 에 ^{14}C 생성 계산에 필요한 항목과 그 값의 측정 필요성 여부를 정리하였다. 발전소마다 측정되어야 할 값에는 연간 노심 발전용량(CF) 값(표 3 에서 항목 h), 각 계통에서의 표적원자를 포함하는 표

적물질의 양(표 3 에서 항목 g)과 평균 열중성자속 값(표 3 에서 항목 f)이 있다. 이 가운데 표적물질의 양은 그것에 포함되는 표적원자의 개수(표 3 에서 항목 j)의 계산에 필요하게 된다.

표 3. 가압중수로에서의 ^{14}C 생성의 이론적 계산에 필요한 항목과 그 제시된 값 및 구하는 방식

구 분	항 목	값 또는 구하는 방식
알려져 있는 값	a. 표적원자의 중성자에 대한 유효 단면적, s_i	^{13}C : 1.4 10^{-27} cm^2 ^{14}N : 1.82 10^{-24} cm^2 ^{17}O : 2.35 10^{-25} cm^2
	b. ^{14}C의 반감기, $t_{1/2}$	5730· 3.15576 10^7 s
	c. 표적원자의 동위원소 존재비, f_i	^{13}C : 1.11 atom% ^{14}N : 99.63 atom% ^{17}O : 0.0539-0.059 atom% (중수의 경우) 0.037 atom% (중수 이외의 경우)
	d. 표적물질의 원자량 (또는 1 몰의 기체가 표준상태에서 차지하는 부피), M_i, 22.4	표 4 참조
	e. 아보가드로 수, A_v	6.023 10^{23}
측정이 필요한 값	f. 평균 열중성자속, F_i	직접 측정(혹은 설계치) · 감속재계통 · 1차측 열수송계통 · 환형기체계통 · 핵연료
	g. 표적물질의 무게, W_i	표 4 참조
	h. 연간 노심 발전 용량, CF	연도별로 직접 측정
다른 값부터 계산되는 값	i. ^{14}C의 붕괴상수, λ	$\ln(2)/t_{1/2}$ 부터 계산
	j. 표적원자의 개수, n_i	$n_i = \frac{W_i}{M_i} \cdot k_i \cdot f_i \cdot A_v$ 혹은 $n_i = \frac{W_i}{22.4} \quad k_i \quad f_i \quad A_v$ 부터 계산

2.3 ^{14}C 생성량 계산 예

월성 1 호기의 1984 년도의 감속재계통에서의 ^{14}C 생성중 감속재(D_2O)의 산소의 $^{17}O(n,\alpha)C^{14}$ 반응에 의한 ^{14}C 의 생성 (i 가 1 인 경우)의 계산을 예로서 설명한다.

먼저 이 계통에서의 ^{14}C 생성량의 계산에 필요한 값은 표 4 에 나타나있다. 이 밖에 월성 1 호기의 1984 년도 중성자 조사시간의 값이 필요한데, 1 년 동안 계속 운전된 경우는 1 년의 적용시간으로 365.25 일에 해당하는 3.15576 10^7 s 를 취하나 월성 1 호기의 경우 1984 년도에는 운전이 4 월 22 부터 시작되었으므로 당해 연도의 적용시간 t_0 는

$$t_0 = (9 + 31 + 30 + 31 + 31 + 30 + 31 + 30 + 31)\ \mathrm{d} \times 24\ \mathrm{h/d} \times 3600\ \mathrm{s/d}$$

$$= 2.19456\ 10^7\ \mathrm{s}$$

와 같이 계산된다.

CF 값은 해당 호기의 평균 운전율을 의미하며 1984 년도의 월성 1 호기의 CF 값은 0.68 로 보고 되고 있다(표 5). 그외 필요한 값으로는 ^{14}C 의 반감기와 붕괴상수, 그리고 마지막으로 아보가드로 상수가 있다. 이상의 값들을 정리하면 다음과 같다.

1984 연도의 월성 1 호기의 CF 값 = 0.68

t (연간 총 조사 시간) = CF $\times t_0$ = 0.68 $\times$2.19456 10^7 s a^{-1}

= 1.459168 10^7 s a^{-1}

$t_{1/2}$ (^{14}C 반감기) = 5,730 $\times$3.15576 10^7

= 1.80825 10^{11} s

λ (붕괴상수) = $\ln(2)/t_{1/2} = \ln(2)/1.80825\ 10^{11}$

= 3.833 10^{-12} s^{-1}

A_v (아보가드로 수) = 6.023 10^{23} mol^{-1}

표 4. 월성원전 각 호기별 ^{14}C 생성량 계산에 필요한 값

시스템	i†	표적원자	표적물질의 양 W_I 1호기	2호기	3호기	4호기	k_i	존재비 f_i	표적물질의 분자량 (M_i, g mol^{-1}) 또는 22.4 (L mol^{-1})	열중성자속 ϕ_i (n cm^{-2} s^{-1})	중성자 단면적 σ_i (cm^2)
MOD	1	^{17}O	264 Mg D_2O‡	265 Mg D_2O‡	262 Mg D_2O ‡		1	0.058	20	1.89 × 10^{14}	2.35 × 10^{-25}
	2	^{14}N	95.2 L N_2‡				2	99.63	22.4	〃	1.82 × 10^{-24}
	3	^{17}O	114.2 L O_2‡				2	0.037	22.4	〃	2.35 × 10^{-25}
	4	^{14}N	20 μg NO_3‡/Kg D_2O × 264 Mg D_2O	20 μg NO_3‡/Kg D_2O × 265 Mg D_2O	20 μg NO_3‡/Kg D_2O × 264 Mg D_2O		1	99.63	62	〃	1.82 × 10^{-24}
	5	^{17}O	20 μg NO_3‡/Kg D_2O × 264 Mg D_2O	20 μg NO_3‡/Kg D_2O × 265 Mg D_2O	20 μg NO_3‡/Kg D_2O × 262 Mg D_2O		3	0.037	62	〃	2.35 × 10^{-25}
	6	^{14}N	20 μg NO_2‡/Kg D_2O × 264 Mg D_2O	20 μg NO_2‡/Kg D_2O × 265 Mg D_2O	20 μg NO_2‡/Kg D_2O × 262 Mg D_2O		1	99.63	46	〃	1.82 × 10^{-24}
	7	^{17}O	20 μg NO_2‡/Kg D_2O × 264 Mg D_2O	20 μg NO_2‡/Kg D_2O × 265 Mg D_2O	20 μg NO_2‡/Kg D_2O × 262 Mg D_2O		2	0.037	46	〃	2.35 × 10^{-25}
PHTS	8	^{17}O	205 Mg D_2O × 3.1%	207 Mg D_2O × 3.1%	205 Mg D_2O × 3.1%		1	0.058	20	1.235 × 10^{14}	〃
AGS	9	^{13}C	26.5 Kg CO_2				1	1.11	44	1.65 × 10^{14}	1.4 × 10^{-27}
	10	^{17}O	26.5 Kg CO_2				2	0.037	44	〃	2.35 × 10^{-25}
	11	^{14}N	-				2	99.63	28	〃	1.82 × 10^{-24}
	12	^{14}N	-				2	99.63	28	〃	〃
Fuel	13	^{14}N	16 μg N‡/g U × 238 g U/270 g UO_2 × 98.8 Mg UO_2				1	99.63	28	1.131 × 10^{14}	〃
	14	^{17}O	98.815 Mg UO_2				2	0.037	270	〃	2.35 × 10^{-25}
	15	^{14}N	49.7 L N_2‡				2	99.63	22.4	〃	1.82 × 10^{-24}
	16	^{17}O	13.2 L O_2‡				2	0.037	22.4	〃	2.35 × 10^{-25}
	17	^{13}C	10.4 Kg C‡				1	1.11	12	〃	1.4 × 10^{-27}

†중성자 포획반응의 ID번호

‡이 값들에 대해서는 월성원전과 같은 CANDU-600급인 Pickering A 원전의 값을 인용함

표 5. 월성 각 호기의 CF 값

호기 / 연도	월성1호기	월성2호기	월성3호기	월성4호기
1984	0.68	-	-	-
1985	0.9394	-	-	-
1986	0.7933	-	-	-
1987	0.9223	-	-	-
1988	0.7905	-	-	-
1989	0.9101	-	-	-
1990	0.8524	-	-	-
1991	0.897	-	-	-
1992	0.8531	-	-	-
1993	0.9898	-	-	-
1994	0.8151	-	-	-
1995	0.8202	-	-	-
1996	0.7944	-	-	-
1997	1.0002	0.9518	-	-
1998	0.7696	0.8175	0.985	-
1999	0.8112	0.8856	0.876	1.03
2000	0.7937	0.8934	0.938	0.959
2001	0.815	0.9339	0.8598	0.9554
2002	0.9246	0.7126	0.9936	0.8133

위의 값들을 이용하여 계산을 하면 다음과 같다.

표적원자 : ^{17}O

$W_1 = 2.64\ 10^{8}$ g (D_2O)

$k_1 = 1$

$f_1 = 0.058$ %

$M_1 = 20$ g mol^{-1} (D_2O)

$F_i = 1.89\ 10^{14}$ n cm^{-2} s^{-1}

$s_i = 2.35\ 10^{-25}$ cm^2

$n_1 = W_1 k_1 f_1 A_v / M_1$

$= 2.64\ 10^{8}$ g $\times 1 \times 0.00058 \times 6.023\ 10^{23}$ mol^{-1} $\div 20$ g· mol^{-1}

$= 4.61\ 10^{27}$

$A_1 = F_i\ s_i\ n_1 \lambda t$

$= 1.89\ 10^{14}$ n cm^{-2} s^{-1} $\times 2.35\ 10^{-25}$ cm^2 $\times 4.61\ 10^{27}$ $\times 3.833\ 10^{-12}$ s^{-1} $\times 1.459168\ 10^{7}$ s a^{-1}

$= 1.17\ 10^{13}$ Bq a^{-1}

1984 년도의 월성 1 호기의 총 ^{14}C 발생량은 다른 중성자 포획반응(i:2~17)에 대한 값을 계산하여 더하면 구할 수 있다. 월성 전체 호기에 대해서 같은 식으로 계산한 연도별 ^{14}C 발생량의 계산 결과를 표 6~9 에 나타내었다. 이 계산에 필요한 값들을 표 4 와 5 에 정리하였다.

2.4 가압중수로에서의 ^{14}C Inventory 평가 방법 월성 원전의 ^{14}C Inventory 평가

가압중수로에서의 ^{14}C 의 Inventory 란 생성된 ^{14}C 의 양에서 환경으로 방출된 양(방출량)을 뺀 값으로 계산되는 양으로 구체적으로는 계통 내 머물게 되어 축적되는 ^{14}C 의 양을 의미한다. 이러한 Inventory 는 다음과 같은 간단한 식에 의해서 표현할 수 있다.

$$[\text{Inventory}] = [^{14}\text{C 생성량}] - [^{14}\text{C 방출량}] \quad (14)$$

여러 계통 중 특히 감속재계통과 1 차측 열수송계통에서 생성되는 ^{14}C 은 전체 대비 약 93 %로 전체 생성량의 대부분을 차지하고 있다. 그리고 생성된 ^{14}C 의 96 % 이상이 각 계통의 이온교환수지(IX resin)에 의해 제거된다. 나머지 약 4 %는 감속재 상층기체 중에서 재결합기(recombiner)에 의해 CO_2 의 형태로 산화되어 존재하다가 상층기체 내 중수소(D_2)의 농도가 2 % 이상이 되면 행해지는 압력방출도관을 통한 퍼지 시에 같이 방출된다. 반면에 별도의 ^{14}C 의 제거장치가 없는 환형기체계통의 경우 발생된 ^{14}C 를 포함하는 $^{14}CO_2$ 의 100 %가 그대로 대기환경으로 방출된다. 또한 핵연료에서 생성된 ^{14}C 는 매우 적은 양을 제외한 나머지는 핵연료의 연료집합체 내에 그대로 머물게 된다.

가압중수로 원전에서 주로 ^{14}C 이 축적되는 장소로는 다음과 같은 곳을 들 수 있다.

감속재계통 중수
감속재 상층기체
1차측 열수송계통
사용 후 감속재계통 및 열수송계통 수지 칼럼
사용 후 수지 저장 탱크 내의 사용 후 수지
사용 후 핵연료 집합체

위에서 각 계통 내 존재하는 대부분의 ^{14}C 가 각 계통의 이온교환수지에 의해서 96 % 이상이 제거되며 핵연료에서 발생된 ^{14}C 는 그대로 연료집합체에 남는다고 하였으므로 ^{14}C Inventory 는 결국 각 계통에서 사용된 후 보관되고 있는 폐수지와 사용 후 핵연료 내에 존재하는 ^{14}C 의 양, 혹은 방사능을 의미하게 된다.

식 14 의 계산에 필요한 ^{14}C 의 총 생성량과 방출량 중 전자는 이론적 계산이 가능하나 후자는 실제로 측정해야 한다. 그러나 많은 원전에서 측정이 이루어지지 않아 방출량에 대한 자료가 없는 경우에는 다른 원전에서 얻은 방출량에 대한 평균비율을 적용하여 대강의 값을 구할 수 있다. 방출량의 평균비율을 설명하면 다음과 같다.

측정된 방출량의 평균비율에 의하면 감속재와 1 차측 열수송계통에서 발생된 양 가운데 4 %가 환경에 방출이 되며, 반면에 환형기체계통에서는 발생된 양 전부가 환경으로 방출되는 것으로 되어있다. 따라서 일반적으로 감속재와 1 차측 열수송계통에서 생성되는 ^{14}C 의 양은 중수로 원전 전체 ^{14}C 생성의 93 % (감속재: 92 % + 1 차측 열수송계통: 1 %)를 차지하고 그 중 약 4 %가 방출되므로, 이들 계통에서 생성된 전체 ^{14}C 의 3.72 % (= 93 % $\times$0.04)가 방출되는 셈이 된다. 또한 환형기체계통에서는 전체 대비 약 0.1 %에 해당하는 ^{14}C 가 생성되고 생성된 양 모두가 방출되므로 전체 대비 0.1 %에 해당하는 ^{14}C 발생량이 모두 환경으로 방출되는 셈이 된다. 한편 핵연료에서도 전체 대비 약 7 %의 ^{14}C 가 생성되나 이것은 대부분 연료집합체내에 남게 되므로 ^{14}C 의 방출은 없는 것으로 간주할 수 있다.

이상을 정리하면 결국 중수로 원전에서 생성된 총 ^{14}C 가운데 약 3.82 %만이 환경으로 방출되고 나머지 약 96.18 %가 여러 계통의 이온교환수지와 사용 후 연료집합체에 남게 되는 셈이 된다. 방출되는 ^{14}C 의 3.82 % 중 약 99 %가 기체인 이산화탄소 및 탄화수소의 형태로

방출되며 약 1 %만이 액체의 형태로 방출된다. 식 14 의 각 항에 언급한 값들을 대입하면

$$0.9618 = 1.0000 - 0.0382 \qquad (15)$$

와 같이 된다(총 ^{14}C 생성량을 1 로 본 경우).

앞 절에서 언급한 월성 1 호기의 1984 년의 경우 당해 연도의 총 ^{14}C 생성량이 3.51×10^{2} 이고 이 중 3.82 %가 방출된다고 하면 그 양은 3.51×10^{2} 가 된다(표 6).

따라서 Inventory 는

$$3.39\times 10^{2}\,Ci\,a^{-1}\,(1.25\times 10^{13}\,Bq\,a^{-1}) = 3.51\times 10^{2}\,Ci\,a^{-1}\,(1.30\times 10^{13}\,Bq\,a^{-1}) - 1.19\times 10\,Ci\,a^{-1}\,(4.97\times 10^{11}\,Bq\,a^{-1}) \qquad (16)$$

가 됨을 알 수 있다.

전 호기에 대한 Inventory 계산 결과를 표 6~9 와 그림 2 에 나타내었으며 방출량에 대한 측정된 값이 있는 경우는 함께 실었다. 이들 표에서 방출량에 대한 계산 값과 실제로 측정된 값을 비교해보면 만족스럽지는 않지만 어느 경우에는 계산 값이 측정된 값과 매우 근접한 값을 지니는 것을 알 수 있으며 이것은 위의 가정이 크게 틀리지 않았음을 의미한다. 계산된 값과 측정된 값 사이의 차이가 크게 나는 이유로는 평년과는 다른 원전운전이나 수지의 교환 등을 생각할 수 있다.

표 6. 월성 1 호기의 연도별 ^{14}C 의 발생량, 방출량과 Inventory 의 계산 및 측정

Item / Year	Inventory (Ci)		Total Production (Ci)	Total Emission (Ci)	
	Calculated	Measured	Calculated	Calculated	Measured
1984	3.39E+02	-	3.51E+02	1.19E+01	-
1985	6.73E+02	-	6.97E+02	2.36E+01	-
1986	5.68E+02	-	5.88E+02	1.99E+01	-
1987	6.61E+02	-	6.84E+02	2.32E+01	-
1988	5.66E+02	-	5.86E+02	1.99E+01	-
1989	6.52E+02	-	6.75E+02	2.29E+01	-
1990	6.11E+02	-	6.32E+02	2.14E+01	-
1991	6.43E+02	-	6.65E+02	2.25E+01	-
1992	6.11E+02	-	6.33E+02	2.14E+01	-
1993	7.09E+02	-	7.34E+02	2.49E+01	-
1994	5.84E+02	-	6.05E+02	2.05E+01	-
1995	5.88E+02	-	6.08E+02	2.06E+01	-
1996	5.69E+02	-	5.89E+02	2.00E+01	-
1997	7.17E+02	-	7.42E+02	2.51E+01	-
1998	5.51E+02	5.59E+02	5.71E+02	1.93E+01	1.18E+01
1999	5.81E+02	5.78E+02	6.02E+02	2.04E+01	2.38E+01
2000	5.69E+02	5.82E+02	5.89E+02	2.00E+01	6.57E+00
2001	5.84E+02	6.03E+02	6.04E+02	2.05E+01	1.33E+00
2002	2.18E+02	2.25E+02	2.25E+02	7.64E+00	6.50E-02
Total	1.10E+04	2.55E+03	1.14E+04	3.86E+02	4.36E+01

표 7. 월성 2호기의 연도별 ^{14}C의 발생량, 방출량과 Inventory의 계산 및 측정

Item / Year	Inventory (Ci)		Total Production (Ci)	Total Emission (Ci)	
	Calculated	Measured	Calculated	Calculated	Measured
1997	3.37E+02		3.49E+02	1.18E+01	
1998	5.74E+02	5.83E+02	5.95E+02	2.01E+01	1.19E+01
1999	6.22E+02	5.93E+02	6.44E+02	2.18E+01	5.08E+01
2000	6.28E+02	6.47E+02	6.50E+02	2.20E+01	2.87E+00
2001	6.56E+02	6.79E+02	6.79E+02	2.30E+01	6.10E-01
2002	1.65E+02	1.70E+02	1.70E+02	5.76E+00	2.10E-01
Total	2.98E+03	2.67E+03	3.09E+03	1.05E+02	6.64E+01

표 8. 월성 3호기의 연도별 ^{14}C의 발생량, 방출량과 Inventory의 계산 및 측정

Item / Year	Inventory (Ci)		Total Production (Ci)	Total Emission (Ci)	
	Calculated	Measured	Calculated	Calculated	Measured
1998	3.43E+02	3.47E+02	3.55E+02	1.20E+01	7.71E+00
1999	6.12E+02	6.27E+02	6.33E+02	2.14E+01	5.59E+00
2000	6.55E+02	6.77E+02	6.78E+02	2.29E+01	6.38E-01
2001	6.00E+02	6.17E+02	6.21E+02	2.10E+01	4.41E+00
2002	2.28E+02	2.29E+02	2.36E+02	7.98E+00	6.75E+00
Total	2.44E+03	2.50E+03	2.52E+03	8.54E+01	2.51E+01

표 9. 월성 4호기의 연도별 ^{14}C의 발생량, 방출량과 Inventory의 계산 및 측정

Item / Year	Inventory (Ci)		Total Production (Ci)	Total Emission (Ci)	
	Calculated	Measured	Calculated	Calculated	Measured
1999	1.83E+02	1.89E+02	1.90E+02	6.43E+00	6.10E-01
2000	6.76E+02	6.99E+02	7.00E+02	2.37E+01	4.84E-01
2001	6.73E+02	6.94E+02	6.97E+02	2.36E+01	3.02E+00
2002	1.88E+02	1.94E+02	1.95E+02	6.60E+00	5.91E-01
Total	1.72E+03	1.78E+03	1.78E+03	6.03E+01	4.71E+00

3. 결론

가압중수로에서의 ^{14}C에 대한 원활한 감시와 관리를 위해 먼저 그 기본이 되는 ^{14}C의 발생 부위 및 부위별 발생 메커니즘 등에 대한 규명과 그것을 통한 ^{14}C 발생량의 계산을 실시하였다. 이론적으로 계산한 ^{14}C의 발생량으로부터 ^{14}C 감시와 관리에 귀중한 자료가 되는 가압중수로에서의 ^{14}C의 Inventory 에 대한 값을 얻을 수 있었다. ^{14}C의 Inventory 다음과 같은 간단한 산술 식에 의해서 구할 수 있다.

$$[\text{Inventory}] = [^{14}C \text{ 생성량}] - [^{14}C \text{ 방출량}]$$

^{14}C 발생에 관여하는 거의 모든 부위와 메커니즘을 망라하여 계산한 결과, 가압중수로에서는 감속재계통의 감속재인 중수의 ^{17}O의 중성자 포획반응에 의한 ^{14}C의 생성이 전체 ^{14}C 생성량의 약 92 %를 차지한다는 기존의 보고를 확인할 수 있었으며, 향후 ^{14}C 발생량 및

Inventory 에 대한 대략적인 값만을 필요로 하는 경우에는 이 값만 구해도 크게 문제가 되지 않음을 알 수 있었다.

또한 ^{14}C 의 Inventory 를 구하는 식에서 [^{14}C 방출량]의 항은 이론적 계산이 힘들기 때문에 실제로 측정한 값이 필요하나 월성 원전에서 이에 대한 측정이 최근(1998 년)에 와서야 이루어져 금번 기술보고서에서는 타 원전에서 기존에 측정되어 보고된 가압중수로에서의 ^{14}C 방출량의 평균비율을 그대로 적용하여 Inventory 를 계산하였다. 몇 안 되는 ^{14}C 방출량에 대한 측정값에 해당되는 계산 값 사이에는 차이가 있었으나 매우 비슷한 값을 보여주는 경우도 있어, ^{14}C 방출량 계산 시 적용한 다른 원전에서의 방출량의 평균비율이 어느 정도 유효함을 알 수 있었다. 다만 방출량에 대한 실제 측정값이 완전하지 않고 또한 계산 시에 이용한 각 계통의 열중성자속의 값도 실제로 측정된 값이 없던 관계로 실제와 가까우리라고 예상되는 값을 이용하였으므로, 이 보고서에서 계산된 ^{14}C 의 방출량 및 그에 의한 방사능은 어디까지나 참고 값에 불가하며 보다 더 정확한 값을 구하고자 한다면 실제 측정된 ^{14}C 방출량과 각 계통의 열중성자속에 대한 값을 이용할 필요가 있다.

따라서 신뢰성 높은 ^{14}C 의 Inventory 의 계산을 위해서는 현장에서의 ^{14}C 방출량과 열중성자속의 측정이 매우 중요하다고 할 수 있으며 이러한 값들이 얻어진다면 매우 신뢰성 있는 ^{14}C Inventory 평가가 가능하여 처분장에서의 ^{14}C 관리에도 매우 유용하게 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

참고문헌

1. 중수로 운전중 발생되는 C-14 방출 감시기술 개발 [최종보고서], 전력연구원(1998).
2. 중수로 운전중 발생되는 C-14 방출 감시기술 개발 [최종보고서(위탁분)], 전력연구원(1998).
3. 중수로개요, pp. 5-22, 한국전력공사(1992).
3. 월성원전의 각 호기별 ^{14}C Inventory 평가 [TM], 전력연구원 (2002)
4. Analysis Report, Wolsong NPP 2,3,4, 86-03320-AR-003, Rev.1. AECL (1995)

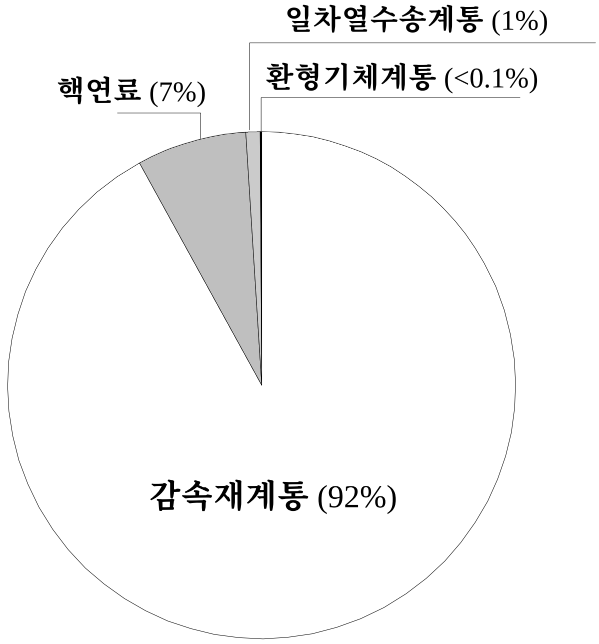

그림 1. 가압중수로에서의 계통별 ^{14}C 생성비율

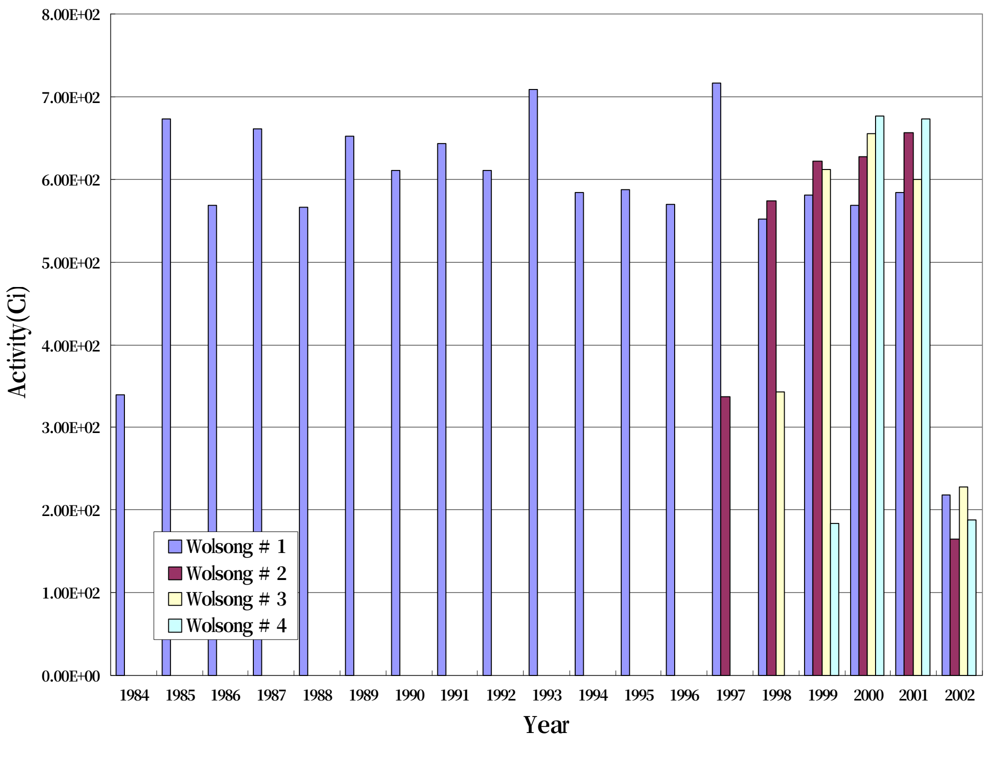

그림 2. 월성 1,2,3,4 호기의 연도별 ^{14}C Inventory 계산