

원전의 C-14 방출 및 이에 대한 선량평가
C-14 Discharge and Dose Assessment at Nuclear Power Plants

김희근, 이형석, 양양희, 강덕원, 엄희문
전력연구원
대전광역시 유성구 문지동 103-16

요 약

^{14}C 은 원전 냉각재내에서 미량 존재하는 ^{17}O 이나 ^{14}N 가 중성자의 방사화에 의해 주로 생성된다. PWR 원전에서는 생성된 ^{14}C 중에서 약 7 Ci/yr 정도가 환경으로 방출된다고 보고 있다. 그 방출형태로 PHWR과 BWR에서는 90 % 이상 이산화탄소(CO_2)의 형태로 보이며 탄화수소(Hydrocarbon)가 10 % 정도인 것으로 알려지고 있다. 반면에 PWR에서는 이산화탄소가 20 %, 탄화수소(Hydrocarbon)가 80 % 이상을 보이는 것으로 조사되고 있다. 본 논문에서는 예비적으로 지금까지 연구결과 및 보고서 등을 근거로 ^{14}C 의 방출 화학형 등을 조사하였고, 환경으로 방출시 방출경로 등을 분석하여 선량을 평가해 보았다.

Abstract

Carbon-14 is produced in primarily by the neutron activation of naturally occurring ^{17}O in the reactor coolant and of ^{14}N from nitrogen gas dissolved in the reactor coolant. For the PWR the discharge rate of gaseous ^{14}C was nominally 7 Ci/yr. The average chemical composition was approximately 90 % as carbon dioxide, 10 % as hydrocarbon for PHWRs and BWRs. But 20 % as carbon dioxide, 80 % as hydrocarbon for PWRs. In this paper, we reviewed the released chemical form and pathways, and calculated the dose due to environmental release of ^{14}C .

1. 서 론

자연계에서 ^{14}C 은 주로 우주선에 의해 생성되며 화학형은 CO , CO_2 , CH_4 , C_2H_6 등 다양하게 존재한다. 원자로에서 ^{14}C 은 주로 냉각재내에 포함된 ^{17}O 의 방사화에 의해 생성

된다. ^{14}C 은 5,730년의 긴 반감기를 가지는 저에너지 베타방출체로서 대부분은 원자로 Stack을 통해 배출된다. 환경에서의 ^{14}C 은 화학형에 따라 약간씩 다르나 대부분 Noble gas와 같은 거동을 보인다[1]. 중수로(PHWR) 원전이나 비등경수로(BWR) 원전에서는 90 % 이상이 CO_2 형태를 보이며 CH_4 , C_2H_6 등 탄화수소는 10 % 미만인 것으로 알려지고 있다. 이에 비해 가압경수로(PWR) 원전에서는 주로 CH_4 와 C_2H_6 인 탄화수소가 80 % 이상을 보이며 CO_2 형태는 20 % 미만으로 알려져 있다[2].

원자로 Stack으로부터 방출된 ^{14}C 의 환경내 거동은 대기확산, 식물의 광합성 매카니즘을 포함한 상태계 이동, 먹이사슬 그리고 호흡 및 섭취에 의한 피폭경로 등을 통해 인체에 피폭을 주게 된다. 이들 핵종 이동을 모델링하는데는 방대한 사회 환경 자료를 필요로 한다. 대기확산을 해석하는데도 원전 부지의 풍향, 풍속, 대기안정도, 강우량 등에 대한 자료가 필요하고, 광합성을 고려하기 위한 일사량, 피폭선량 계산에는 표준한국인 자료, 농작물 수확량 분포, 음식물 섭취량 및 인구분포 등 방대한 자료가 필요하게 된다.

본 논문에서는 원전에서 발생하는 ^{14}C 에 의한 선량평가를 위해 문헌조사 및 연구결과를 바탕으로 발생하는 화학형과 각 피폭경로를 조사하였다. 이를 근거로 예비적으로 피폭선량을 평가해 보았다.

2. 원전에서 ^{14}C 의 생성

원전에서 ^{14}C 이 생성되는 반응은 원자로 냉각재와 감속재에 존재하는 산소, 질소 및 탄소가 중성자와 반응하여 생성된다. 이를 정리하면 다음과 같다.



원전에서 ^{14}C 의 생성률은 원자로형에 따라 좌우된다. 표 1에서 보듯이 중수로형에서 가장 많은 ^{14}C 이 발생되었으며, 그 다음으로는 흑연감속로 순으로 조사되었다[3]. 중수로 원전의 경우 냉각재와 감속재로 중수를 사용하는데, 이 중수에는 ^{17}O 의 함량이 자연함량 0.037 % 보다 1.5 배 더 높은 0.055 %를 포함하고 있기 때문이다. 흑연을 감속재로 사용하는 흑연감속로의 경우에는 탄소 동위원소인 ^{13}C 의 자연함량이 약 1.11 %로 ^{17}O 에 비해 다소 높기 때문에 다소 높은 양의 ^{14}C 이 발생되기 때문이다.

Table 1. ^{14}C production rate in the moderator and coolant according to various reactor types

Reactor Type	C-14 production rate (Ci/GW _e .yr)
PWR	10.8 (0.4 TBq/GW _e .yr)
BWR	13.5 (0.5 TBq/GW _e .yr)
HWR	540.5 (20 TBq/GW _e .yr)
Graphite	224.3 (8.3 TBq/GW _e .yr)

3. ^{14}C 방출, 화학형 및 방출경로 조사

미국 3개 원전(2개 PWR, 1개 BWR)에서 기체상으로 방출되는 ^{14}C 방출률과 화학형 및 방출경로에 대한 분석이 1980년대에 진행되었다. 그 결과, 20 % 정도는 CO_2 형태로 80 % 정도는 탄화수소 형태로 방출되는 것으로 조사되었다. 그 결과가 아래 표 2와 같다. 한편 액체상 및 고체상으로 방출은 기체상에서의 방출률의 5 %미만으로 무시할 수 있는 수준이라고 밝히고 있다[4].

표 2에서 보듯이 기체상의 ^{14}C 의 화학적 형태는 PWR과 BWR에서 많은 차이가 있음을 알 수 있다. PWR 원전의 경우는 ^{14}C 의 주요 화학적 형태는 유기화합물로 존재하는데 반해 BWR 원전의 경우 90 % 이상이 $^{14}\text{CO}_2$ 형태로 방출됨을 알 수 있었다. 한편, 중수로 원전에 대해서도 ^{14}C 에 대한 화학형 조사가 이루어졌는데 95 % 이상이 CO_2 형태를 보이며 5 % 정도만 탄화수소 형태를 보이는 것으로 알려지고 있다[5].

Table 2. Carbon-14 gaseous release rate, chemical form and discharge pathways for 2 light water reactors

Parameter	R.E. Ginna PWR, 490 MW(e)	Indian Pt. Unit 3 PWR, 1000 MW(e)	J.A. FitzPatrick BWR, 850 MW(e)
Release rate Ci/GW(e)-yr	11.6	9.6	12.4
Chemical form $^{14}\text{CO}_2$ $^{14}\text{CH}_4$, $^{14}\text{C}_2\text{H}_6$, etc.	10 % 90 %	26 % 74 %	95 % 5 %
Discharge pathway Gas decay tanks Containment vent Auxiliary bldg vent Off-gas vent	42 % 23 % 35 % -	7 % 78 % 15 % -	- - 3 % 97 %

이외에도 미국 EPRI 보고서에 따르면 ^{14}C 방출률 및 화학형 등에 대한 조사가 미국의 2개 원전과 독일의 6개 원전에 대해 이루어졌는데 그 결과는 아래 표 3과 같다[2]. 이 표 3에서 보듯이 PWR 8개 원전의 경우 기체상의 방출되는 ^{14}C 의 화학적 형태는 대부분 CH_4 와 C_2H_6 인 탄화수소 형태로 방출되는 것으로 나타나 표 2와 유사한 결과를 보이는 것으로 조사되었다.

Table 3. Measured release of gaseous ^{14}C from two U.S and six German commercial PWRs

PWR Station	Rated Power MW(e)	Measurement Period	Plant Availability (%)	Gaseous ^{14}C Releases		
				Inorganic Release Fraction (%)	Organic Release Fraction (%)	Total Curies/GW(e)-yr
E*	965	1980-82	41	25	75	9.6
F*	490	1980-81	75	10	90	11.6
H**	1204	1978	71	29	71	2.5
I**	1300	1978	54	9	91	6.3
J**	345	1978-79	80	35	65	3.6
K**	662	1978-80	76	40	60	6.6
L**	855	1978-81	71	10	90	7.0
M**	1300	1979	75	7	93	7.3
*US, **German				Average		6.4

4. ^{14}C 방출에 따른 예비적 선량평가

^{14}C 방출에 따른 피폭경로는 대기중에 존재하는 ^{14}C 에 의한 외부피폭(External irradiation), 대기중에 존재하는 ^{14}C 의 흡입(Inhalation)과 ^{14}C 이 포함된 음식물 섭취(Ingestion)에 의한 내부피폭으로 나누어진다. 그러나 ^{14}C 은 저에너지 베타방출체로서 외부피폭은 거의 무시할 수준이며, CO_2 와 CH_4 등은 불활성기체와 같은 거동을 보이기 때문에 호흡에 의한 선량(Inhalation dose)은 음식물섭취(Ingestion dose)에 의한 선량의 1% 미만으로 추정되고 있다. 따라서 가장 중요한 경로(Pathway)는 음식물 섭취에 의한 선량으로 해석된다. 이와 유사한 모델을 사용하여 USNRC Regulatory Guide 1.109에서는 선량을 평가하고 있다[6,7]. 이들 3가지 피폭경로 중 선량평가의 위해도를 수치화한 모델을 나타내면 아래와 같다[3].

$$H_{ext}(t) = 3.9 \times 10^{-12} A(t) \quad (4)$$

$$H_{inh}(t) = 7 \times 10^{-12} A(t) \quad (5)$$

$$H_{ing}(t) = 6.3 \times 10^{-8} A_f(t) \quad (6)$$

여기서, $H_{ext}(t)$ = External irradiation에 의한 선량당량(Sv/yr)

$A(t)$ = 대기중의 ^{14}C 농도 (Bq/kg-C)

$H_{inh}(t)$ = 호흡에 의한 선량당량

$H_{ing}(t)$ = 음식물 섭취에 의한 선량당량

$A_f(t)$ = 음식물중에 존재하는 ^{14}C 의 농도이나 대기중의 농도와 비교적 짧은시간에 평형을 이루므로 $A(t)$ 와 동일하다고 볼 수 있다.

ICRP-23의 Reference Man을 기준으로 음식물 섭취에 의한 ^{14}C 의 선량을 계산하면 표 4와 같이 약 0.015 ~ 0.02mSv(1.5 ~ 2 mrem) 정도이다. 이는 위 식 (6)의 계산결과 유사한 결과를 보여주고 있다.

Table 4. The ^{14}C calculated dose due to ingestions

<ul style="list-style-type: none"> ○ 대기중에 존재하는 ^{14}C의 자연준위는 : 6 ~ 7 pCi $^{14}\text{C}/\text{g-C}$ (≈ 0.25 Bq/g) ○ 연간섭취 탄소 : 1.0×10^5 g Carbon/yr ○ 연간 음식물 섭취를 통한 유입되는 탄소의 Activity : 7×10^5 pCi ($\sim 2.6 \times 10^4$ Bq) ○ Background ^{14}C에 의한 연간선량 : $= (^{14}\text{C} \text{ 선량환산계수})(\text{연간 유입된 } ^{14}\text{C} \text{의 Activity}) = (5.8 \times 10^{-10} \text{ Sv/Bq})(2.6 \times 10^4 \text{ Bq})$ $\approx 0.015 \sim 0.02 \text{ mSv/yr}$ 수준
--

5. 맺는말

^{14}C 은 긴반감기와 높은 선량환산계수($5.8 \times 10^{-10} \text{ Sv/Bq}$)를 가지고 있어 선량평가에 있어 중요한 핵종임에는 틀림이 없으나 ^{14}C 에 의한 선량평가는 많은 불확실성이 내포되어 있다. 따라서 이러한 점에서 ^{14}C 에 대한 자연방사능 준위 측정, 분석방법 정립, 원전의 방출량 측

정 및 ^{14}C Metabolism 등에 대한 연구가 진행되어야 한다고 본다.

6. 참고문헌

1. USNRC NUREG-0016/0017, Calculation of Release of Radioactive Material in Gaseous and Liquid Effluent from BWRs/PWRs(BWR/PWR GALE Code), 1976.
2. EPRI TR-105715s, Characterization of Carbon-14 Generated by the Nuclear Power Industry, 1995
3. E. M. Scott, F. H. Begg and M. McCartney, C-14 in the Environment/Low-level Measurements of Radioactivity in the Environment, World Scientific, 1993.
4. C. Kuuz, Carbon-14 Discharge at Three Light-Water Reactors, *Health Physics*, **49**(1), 1985.
5. 강덕원 외 3인, 중수로 운전중 발생하는 C-14 방출 감시기술개발, KEPRI, TR.95ZJ14.J1998.11, (1998).
6. USNRC Regulatory Guide 1.109, Calculation of Annual Doses to Man from Routine Releases of Reactor Effluent for the Purpose of Evaluating Compliance with 10 CFR 50, Appendix I, 1997
7. E. Wirth, The Applicability of the C-14 Specific Activity Model. *Health Physics*, **43**, 1982.