J. of the Korean Radioactive Waste Society
Vol.7(1), P. 1-7, Mar. 2009.

Evaluation of ^{14}C Behavior Charateristic in Reactor Coolant from Korean PWR NPP's

국내 경수로형 원자로 냉각재 중의 ^{14}C 거동 특성 평가

Duk-Won Kang[1], Yang-Hee Yang and Kyong-Rok Park*
Korea Electric Power Research Institute, 103-16 Munji-Dong, Yuseong-gu, Daejeon
*Nuclear Engineering & Technology Institute, 25-1 Jangdae-Dong, Yuseong-gu, Daejeon

강덕원[1], 양양희, 박경록*
한전 전력연구원 원자력발전연구소, 대전광역시 유성구 문지동 103-16
*한수원(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 장대동 25-1번지

(Received October 07, 2008 / Revised October 29, 2008 / Approved December 23, 2008)

Abstract

This study has been focused on determining the chemical composition of ^{14}C - in terms of both organic and inorganic ^{14}C contents - in reactor coolant from 3 different PWR's reactor type. The purpose was to evaluate the characteristic of ^{14}C that can serve as a basis for reliable estimation of the environmental release at domestic PWR sites. ^{14}C is the most important nuclide in the inventory, since it contributes one of the main dose contributors in future release scenarios. The reason for this is its high mobility in the environment, biological availability and long half-life(5730yr). More recent studies - where a more detailed investigation of organic ^{14}C species believed to be formed in the coolant under reducing conditions have been made - show that the organic compounds not only are limited to hydrocarbons and CO. Possible organic compounds formed including formaldehyde, formic acid and acetic acid, etc. Under oxidizing conditions shows the oxidized carbon forms, possibly mainly carbon dioxide and bicarbonate forms. Measurements of organic and inorganic ^{14}C in various water systems were also performed. The ^{14}C inventory in the reactor water was found to be 3.1 GBq/kg in PWR of which less than 10% was in inorganic form. Generally, the ^{14}C activity in the water was divided equally between the gas- and water- phase. Even though organic ^{14}C compound shows that dominant species during the reactor operation, But during the releasing of ^{14}C from the plant stack, chemical forms of ^{14}C shows the different composition due to the operation conditions such as temperature, pH, volume control tank venting and shut down chemistry.

Key words : PWR, Radiocarbon dioxide, ^{14}C chemical form, Reactor coolant, Process sample.

요 약

본 논문은 국내에서 가동되고 있는 3개 로형의 원자로 냉각재로부터 유기 및 무기 ^{14}C의 특성을 평가하는

1) Corresponding Author. E-mail : dwkang@kepri.re.kr

데 초점을 맞추었다. 주 목적은 국내 원전 부지에서 환경으로 방출되는 ^{14}C에 대한 신뢰할만 한 특성을 평가하는데 있다. ^{14}C는 방사성핵종 인벤토리 중 가장 중요한 핵종중의 하나로서 처분장에서의 방출 시나리오에서 가장 중요한 선량 기여 핵종중의 하나이다. ^{14}C는 반감기가 5,730 년인 순수 베타방출체로써 환경으로의 이동성이 높을 뿐 아니라 생물학적인 유용성이 높다. 최근의 연구결과에 의하면, 유기화합물 형태의 ^{14}C는 환원환경 하에서 원자로 냉각재내에서 주종을 이루고 있는 것으로 밝혀졌으며 그 외의 유기화합물인 formaldehyde, formic acid 및 acetate도 함께 형성되는 것으로 알려졌다. 그러나 정지화학 처리 기간인 산성 산화환경 하에서는 산화성 탄소형태로 바뀌면서 $^{14}CO_2$나 $H^{14}CO_3^-$형으로 바뀌어 지는 것으로 나타났다. 본 연구에서는 원자력발전소의 다양한 처리계통의 시료에 대해 유기 및 무기화학형의 ^{14}C 농도를 측정, 평가하였다. 원자로 계통 내에서의 ^{14}C 인벤토리는 약 3.1 GBq/kg로 나타났으며 냉각재 계통 내에서는 주로 유기화학형이 주종을 이루고 있었으며 무기화학형은 10% 이내인 것으로 나타났다. 용액중의 ^{14}C 측정은 기상과 액상으로 분리하여 분석하였다. 정상 운전 중에는 유기화학형의 ^{14}C가 주종을 이루고 있지만 발전소의 배기구를 통해 방출되는 ^{14}C의 화학형은 온도, pH, 체적제어탱크의 방출 및 정지화학 처리에 따라 화학형이 달라지고 있는 것으로 나타났다.

중심단어 : 경수로, 방사성이산화탄소($^{14}CO_2$), 방출화학형, 냉각재, 액상시료, 전처리

I. 서 론

^{14}C는 반감기가 5,730 년인 순수 베타방출체로써 최대에너지는 0.156 MeV이고, 평균에너지는 0.045 MeV로 우주선 등의 자연적인 요인과 핵실험, 재처리공장 및 원자력발전소와 같은 인위적인 요인에 의해 생성된다. 상기 시설로부터 방출되는 ^{14}C는 대기와 생물권에서 $^{14}CO_2$ 또는 ^{14}C의 유기화합물 형태로 존재하게 되며, 유기형태의 ^{14}C는 외부로 방출시 가볍기 때문에 바람을 타고 외부로 용이하게 확산되므로 호흡에 의한 체내 피폭 효과는 미미하며, 주로 $^{14}CO_2$ 형태의 방출이 이루어질 경우에 식물체의 광합성 작용과 식물체 섭취를 통해 식물 및 동물의 체내에 체류하게 된다. 식물에 존재하는 ^{14}C 방사능을 함유한 음식물을 섭취하면 인체에 유입되어 보통 안정동위원소의 인체 신진대사와 동일한 과정을 거치게 되므로 생물학적으로 중요하다. 그러므로 발전소에서 배기구를 통해 주변 환경으로 방출되는 ^{14}C의 화학형은 매우 중요한 의미를 지니게 된다. 발전소에서 배기구를 통해 환경으로 방출되는 ^{14}C가 유기화학형(주로 $^{14}CH_4$)이 주종을 이룰 경우에는 $^{14}CO_2$보다 분자량이 가벼워 체내 피폭이나 환경에의 영향은 매우 미약하나 $^{14}CO_2$ 형태의 방출이 주종을 이룰 경우에는 광합성 작용에 의해 곧바로 환경과 우리 인간에 직접적인 영향을 미치게 된다. 이러한 이유로 최근 들어서는 원자력발전소의 배기구를 통해 방출되는 ^{14}C의 화학적 형태가 어떤 종류인지 그리고 방출량은 얼마인지에 대한 관심이 높아지고 있다. 원전 배기구를 통해 대기 중으로 방출되는 ^{14}C 중에는 무기물 형태의 ^{14}C와 유기물 형태의 ^{14}C가 있다. 발전소에서 배기구를 통해 방출되는 ^{14}C가 어떠한 화학형으로 얼마나 방출되는지를 평가하기 위해서는 방출되는 ^{14}C를 유기 형태와 무기형태인 $^{14}CO_2$로 분리, 포집할 수 있는 별도의 ^{14}C 포집장치가 필요하다. 발전소의 배출구를 통해 방출되는 기체중의 ^{14}C를 포집하는 방법으로는 NaOH 용액을 이용한 bubbling법이나 molecular sieve법이 일반적으로 사용된다. 본 연구에서는 Bubbling법을 이용한 원자로 계통수와 사용후 핵연료 저장조수 중에 함유되어 있는 ^{14}C에 대한 분석을 통해 원자로형별 운전 특성에 따라 다양한 형태로 방출되는 ^{14}C의 거동특성에 대해 살펴보았다.

II. ^{14}C 시료 채취 및 분석 현황

2006년도부터 현재까지 국내 경수로 원자력발전소 중에서 로형 별로 선정하여 액상 및 기상방출 시료에 대한 분석을 수행하였다.

가. 액상시료 전 처리 장치구성

액상시료의 전 처리 실험장치의 구성도는 Fig.1과 같다. 제일 왼쪽 입구 측에 위치한 Tedlar 백은 질소 기체를 저장한 백으로 실험 준비 완료 후 실험 개시와 함께 백안에 저장된 질소는 후단에 설치한 진공펌프에 의해 배관 내부에서 부압이 걸려 서서히 빨려 들어가도록 장치를 구성하였다. 장치 배관 내부의 압력은 약 진공상태인 0.8~0.9 기압을 유지시켜 시료의 역류방지 및 외부로의 방사성기체 유출을 방

지하도록 설계하였다. 발전소에서 포집한 방사능을 띤 시료는 외부 공기와의 접촉을 피하기 위해 처음에는 기체피펫에 넣어 두었다가 주사기를 이용하여 시료 저장용기에 주입시킨다. 이 저장용기로부터 시료가 3구 플라스크내로 잘 주입되도록 용기의 상층부에 주사기 바늘을 이용하여 질소 기체를 공급한다. 실험장치의 구성은 제일 하단에 온도조절용 hot plate를 설치하고 자석교반기로 플라스크에 주입된 액상시료가 잘 섞이도록 교반시킨다. 플라스크와 연결된 각 주입장치는 3 곳의 유입구가 있는데 첫째 유입구는 질소가 주입되고 두 번째 유입구는 필요한 시약을 투입할 수 있도록 구성하였고 발전소에서 이송한 액상 시료는 두 번째 주입구를 통해 주입되도록 하였다. 세 번째 연결부는 플라스크 내에서 생성된 기체가 다음 단계로 빠져나가는 출구이다. 그리고 반응플라스크를 통과한 기체는 다음 단의 1.4 몰의 황산용액이 들어있는 acidified water trap 용기에서 빠져나온 기체중의 불순물을 제거토록 하였다. 이러한 trap을 사용하는 이유는 반응 플라스크로부터 빠져나온 ^{14}C 외의 다른 불순물을 제거하기 위함이다. 그 다음 단계의 $^{14}CO_2$ 포집병에서는 2M의 NaOH 용액을 함유하고 있는 용기로서 반응 플라스크로부터 빠져나온 $^{14}CO_2$를 흡수한다. 동일한 NaOH 용액이 들어있는 2, 3번째 흡수병은 같은 용도로서 3번째 용기의 주 역할은 미량이지만 2번 용기에서 미처 흡수되지 못하고 넘어온 $^{14}CO_2$를 최종적으로 흡수한다. 4번째의 $^{14}CO_2$ 포집병은 유기물의 ^{14}C를 포집하기 위한 트랩으로 촉매탑을 통과한 $^{14}CO_2$를 흡수시킨다. 5번째 포집병은 4번에서 포집되지 못한 $^{14}CO_2$를 흡수한다. 2, 3단의 포집병을 통과한 유기 CH화합물은 750℃의 고온 촉매반응로에서 $^{14}CO_2$의 형태로 모두 전환된다. 최종단에는 진공펌프를 설치하였는데 이는 배관내부를 부압상태로 유지하여 배관누설 등으로 인한 예기치 않은 방사능 유출사고에 대한 예방과 시료의 역류방지에도 기여토록 하였다[2]. 그 외에도 반응플라스크에서 발열반응에 의해 발생되는 기체 중에 비말 동반하는 습분의 방지목적으로 낮은 온도를 유지토록 수냉식으로 냉각시킨다[3].

나. 액상시료 전처리 장치의 회수효율 평가

① 실험방법

제작한 액상시료 전 처리장치가 제대로 성능을 지니고 있는지를 확인하고, 분석자의 숙련도를 높이기 위한 검증 실험이 요구된다. 화학형에 따른 회수효율을 평가하기 위해 기지의 알고 있는 표준시료를 사용하여 실험을 수행하였다.[8]

- ^{14}C 표준시료의 조제

수행하고자 하는 분석의 신뢰성을 확보하기 위해 표준선원을 구입하여 표준시료를 다음과 같이 제조해 검증실험을 수행하였다. 첫째, 무기물과 유기물 형태의 표준 ^{14}C 방사능 물질인 $Na_2{}^{14}CO_3$ 와 $^{14}CH_3COONa$ 용액 형태의 표준선원을 구입해 무기형태인 1mCi (37.0×107Bq) $Na_2{}^{14}CO_3$와 유기형태인 0.25 mCi (9.25 × 106 Bq) $^{14}CH_3COONa$ 표준용액 선원을 비방사성물질인 1M-Na_2CO_3 와 1M-CH_3COONa를 이용하여 20 ml의 용액을 제조하였다. 그리고 이 용액 중 0.1*ml*를 취하여 1 몰의 Na_2CO_3와 1M-CH_3COONa 1 *l* 의 용액 속에 각각 첨가하여 1 *l* 의 용액을 만들어 이 Na_2CO_3 용액 중에서 1.0 *ml*를 취해 본 회수율 검증실험에 사용하였다. 이 때 희석 사용한 $Na_2{}^{14}CO_3$의 방사능 농도는 185Bq(3.7 × 107 × 1/200 × 1/1000)이고, $^{14}CH_3{}^{14}COONa$의 방사능 농도는 46.25 Bq(9.25 ×106×1/200×1/1000)이었다.

- 액상시료의 전 처리법

발전소 계통수중의 시료 중에는 ^{14}C가 pH에 따라 화학조성이 유기물과 무기물 형태로 존재하게 된다. 따라서 ^{14}C의 화학적 조성을 정확히 분석하기 위해서는 전 처리 단계에서

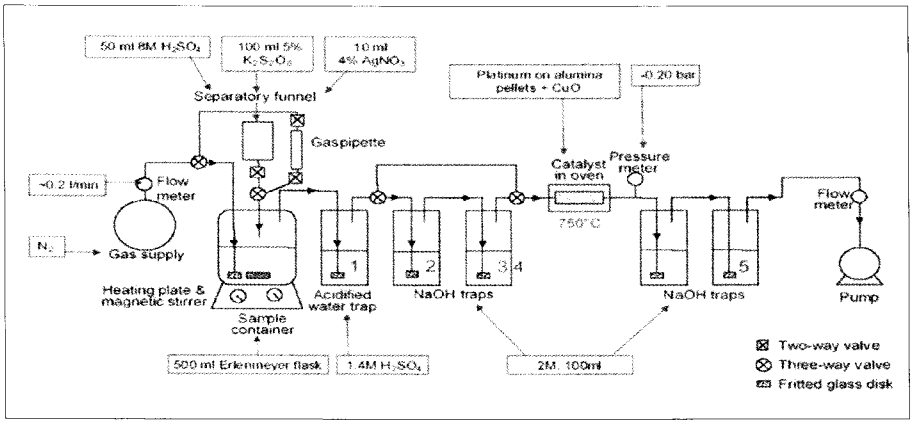

Fig. 1. Schematic drawing of ^{14}C process sampler for measuring of chemical form.

이들을 분리 추출해야 한다. 맨 처음 단계에서는 무기물 형태의 ^{14}C를 먼저 추출하고, 다음 단계에서 유기물형태의 ^{14}C를 추출한다. 시료분석 전 배관 내부의 잔존 불순기체를 제거하기 위해 질소기체를 일정시간 동안 퍼지를 실시한 다음 8M의 진한 황산 50 *ml*를 분액깔대기를 통해 반응플라스크내로 주입한다. 이렇게 진한 황산을 공급하는 이유는 시료를 산성 산화환경으로 만들기 위함이다. pH가 1~2 일 때 용액중의 ^{14}C는 모두 $^{14}CO_2$ 형태로 액상이나 기상 중에 존재하게 되고 액상과 기상중의 $^{14}CO_2$도 평형을 유지한다. 플라스크 내에서 발생된 기체는 tedlar 백에 저장되어 있는 질소의 공급과 함께 NaOH 포집병 내로 이동된다. 이렇게 1시간 동안 계속적으로 질소를 공급하여 무기물질의 ^{14}C는 모두 플라스크 외부로 배출시키며 Fig.1의 2,3번 NaOH 포집병에 $Na_2{}^{14}CO_3$형태로 포집시킨다. 다음 단계에서는 플라스크 내에 용액 상으로 존재하는 유기물 형태의 ^{14}C를 외부로 이동시키기 위해 강산화제인 5%-$K_2S_2O_8$ 과 4%-$AgNO_3$를 주입한다. $K_2S_2O_8$은 산화제로서 용액 중에 있는 유기물을 모두 산화시킨다. 이때 사용하는 $AgNO_3$는 촉매로 사용된다. 이렇게 산화 생성된 유기물은 CO_2의 형태나 혹은 다른 유기물의 형태로 존재하게 되며 three way valve를 이용하여 #2, #3 NaOH 포집병을 거치지 않고 by-pass시켜 촉매탑을 통과하면서 산화 처리시켜 전환된 $^{14}CO_2$는 #4, #5 포집병에서 포집한다[3].

- 분석결과

분류	무기물 형태		유기물 형태		무기물 및 유기물 형태	
	무기물	유기물	무기물	유기물	무기물	유기물
net counts(cpm)	4,288.60	168.28	19.27	1,023.22	3,923.77	1,035.71
포집된 CO_2양(g)	2.54	1.94	2.4	2.3	2.42	2.4
전체 $BaCO_3$양(g)	24.07	24.61	24.04	24.2	24.8	24.06
전체 CO_2 양(g)	5.37	5.39	5.36	5.4	5.53	5.37
전체 counts(cpm)	9,066.84	467.55	43.05	2,402.35	8,966.29	2,317.40
dpm	10,771.7	555.46	51.14	2,854.07	10,652.24	2,753.14
dps	179.53	9.26	0.85	47.57	177.54	45.89
Reference(Bq)	185		46.25		185	46.25
회수율(%)	97.04	5.01	1.84	102.85	95.97	99.21

상기 계산 결과에 대해 간략히 언급하면, 제일 좌측에 위치한 "무기물형태 단일실험" 항목의 무기물 데이터의 경우, net counts는 vial 시료의 LSC 측정 count 값에서 천연대리석을 이용한 백그라운드 count 값을 뺀 수치(4290.401−1.801 = 4288.601)이다. 포집된 CO_2의 양은 LSC 측정용 vial에 포집된 CO_2 양이며, 전체 $BaCO_3$의 양은 포집시료병의 전처리 실험을 통해서 얻은 실험값이다. 전체 CO_2의 양은 24.07 × 44/197.3 = 5.37의 계산 값이며, 여기서 44는 CO_2의 분자량, 197.3은 $BaCO_3$의 분자량 값이다. 전체 counts 수는 5.37/2.54 × 4288.60 = 7638.3의 계산 값이며, 1,0771.7은 시료중 무기물에 대한 효율 보정 dpm값으로서, 산출방법은 알고 있는 옥살산 표준시료의 방사능 값인 12.984 dpm/gC과 LSC을 이용한 표준시료 측정값인 10.929 dpm/gC을 이용하여 LSC 측정장비의 측정효율을 보정한 값(12.984/10.929×9066.84 =1,0771.7)이다. 그리고 이 값을 60으로 나눈 것이 dps로 Bq과 같다. 다른 항목들도 위와 같은 동일한 계산방법을 적용하였다.

Ⅲ. 정상운전중 원자로냉각재의 ^{14}C 특성분석

가압경수로 계통 내에서의 ^{14}C의 조성은 운전 특성상 중수로와는 정반대의 형태를 나타낸다. 가압경수로는 원자로 계통수중의 용존산소 제어를 위해 상당량(25~50cc/kg)의 수소 주입으로 인해 원자로냉각재는 환원환경 상태 하에 놓이기 때문에 대부분의 ^{14}C는 CO 및 hydrocarbon인 유기화학형으로 계통 내에서 존재한다. 경수로 계통 내에서 ^{14}C가 생성되는 주요 선원항(Source term)은 핵연료 피복재에 잔류해 있는 소량의 ^{14}N과 cover gas로 사용되는 N_2에 의한 $^{14}N(n,p)$ 반응과, 원자로보충수탱크(Reactor Make-Up Water Storage Tank) 수중의 ^{17}O 및 붕소증발기를 통해 회수된 응축수 중의 용존 ^{17}O에 의한 $^{17}O(n,\alpha)$ 반응에 의해 ^{14}C 가 생성되어 진다. 본 논문에서는 운전 특성에 따라 달라지는 화학형의 거동평가에 초점을 맞추었다. 원자로 계통의 운전특성에 따라 계통 내 ^{14}C Inventory는 다소 차이가 있지만 원자로 계통수중의 ^{14}C 농도는 Fig.1에서 보여 주듯이 계통 내 농도는 Fra.형>CE형>W형 순으로 나타났으며 계통의 운전 특성에 따라 ^{14}C 의 재고량이 다른 것으로 나타났다. Framatome 로형이 계통 내에서 ^{14}C 농도가 가장 높은 것으로 나타났는데 이는 붕소 희석 운전시 발생되는 다량의 붕산수의 회수 과정에서 발생되는 붕산 응축수를 타 로형과는 달리 계통으로 회수하기 때문에 이로 인해 계통 내 액상으로 존재하는 유기 화합물의 분율도 타 원전에 비해 높은 것으로 나타났다. Fig. 2의 7회 차 분석결과에서는 CE형과 Fra.형의 농도가 뒤바뀌는 것으로 나타났는데 이는 CE형 원자로의 핵연료 손상으로 인해 계통 내 방사성기체의 제거를 위한 Gas Stripper의 지속적 운전으로 인해 ^{14}C Inventory가 낮아졌기 때문인 것으로 여겨진다. Fig. 3에서 보여주듯이 원자로 로형별 계통 내의 화학형 분율은 3개 로형 공히 96% 이상이 유기화학형이 주종을 이루고 있었다. 정상운전 중 3개 로형을 대상으로 한 원

자로 냉각재 시료중의 ^{14}C 에 대한 화학 조성을 평균해 분석해 본 결과, 유기형태의 ^{14}C 는 약 91.1%이고 무기형태가 9.9%를 나타냈다. Fig 4, 5, 6에서 보여주듯이 원자로 냉각재중의 유기형태의 ^{14}C 화합물중 기상에 존재하는 유기화합물은 CE형은 5~6%, Framatome형은 28~35% 정도이고 액상에 남아있는 비 휘발성의 유기화합물(alkanes, formate 혹은 acetate 형)의 비율은 W형과 CE형은 94~95%, Framatome형은 62~75%로 나타났다. W형이나 CE형이 타 로형에 비해 원자로 냉각재중에 존재하는 액상, 기상상태로 존재하는 유기/무기 농도가 상대적으로 매우 낮게 나타났는데 이는 붕소 희석운전 시 발생되는 다량의 붕산 희석수중의 붕소를 회수하기 위한 증발기의 농축 운전 과정에서 응축되어 나오는 응축수를 계통수로 재사용하지 않고 희석 방출시키고 있기 때문에 원자로냉각재내에는 ^{14}C 농도가 상대적으로 낮게 나타난 것으로 본다. 사용후핵연료 저장조(SFP)수는 무기화학형의 분율이 주를 이루고 있었는데 이는 정지화학 처리시 산화공정에 의해 바뀐 무기화학형의 냉각재가 핵연료 교체시 SFP 내로의 일부 혼입

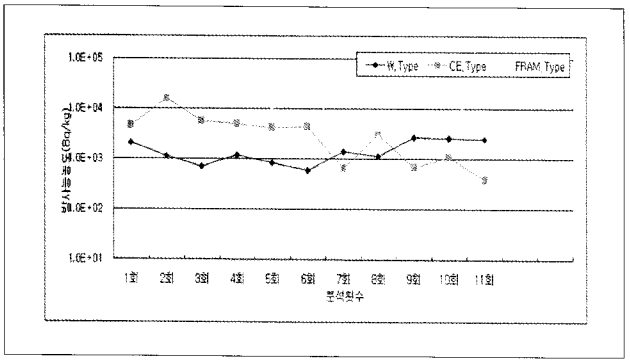

Fig. 2. Total ^{14}C Concentration in RCS from tree Reactors.

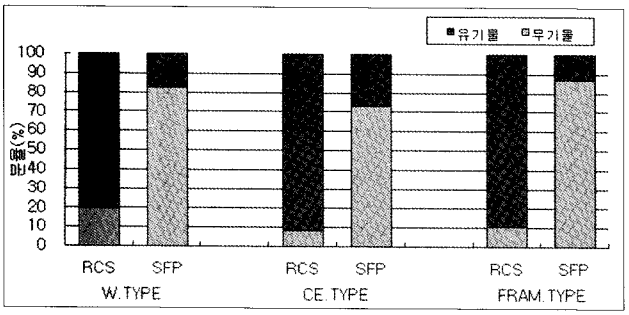

Fig. 3. Inorganic/Organic ^{14}C Fraction in RCS from tree Reactors.

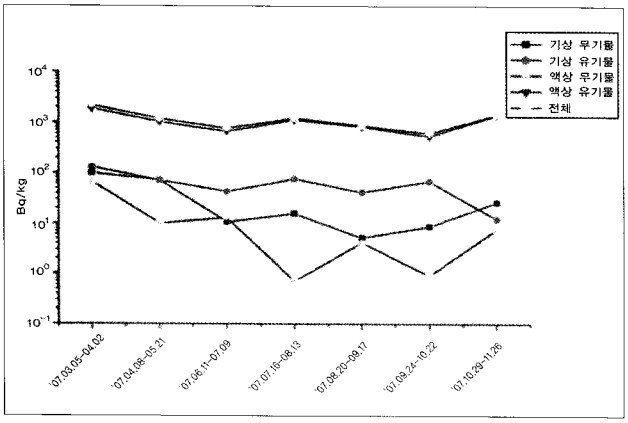

Fig. 4. Behavior of ^{14}C in RCS during normal operation(W Type).

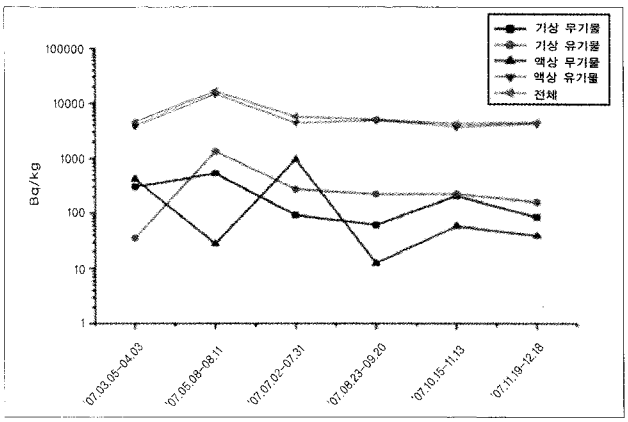

Fig. 5. Behavior of ^{14}C in RCS during normal operation(CE Type).

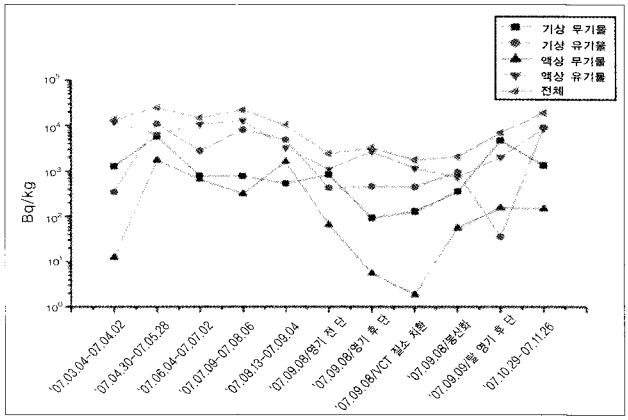

Fig. 6. Behavior of ^{14}C in RCS during normal operation(Fra. Type).

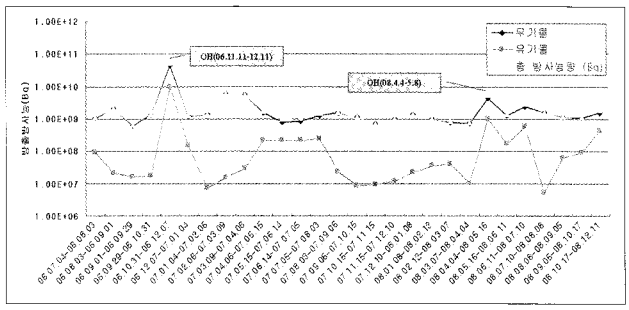

Fig. 7. Behavior of ^{14}C in SFP during normal operation(W Type).

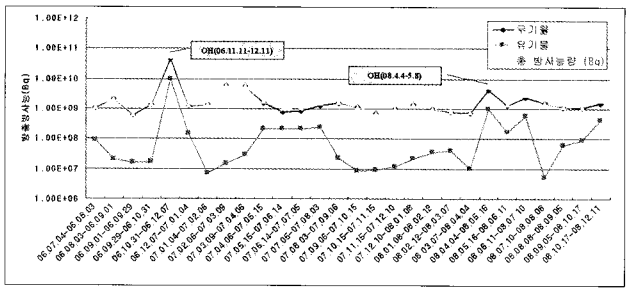

Fig. 8. Behavior of ^{14}C in SFP during normal operation(CE Type).

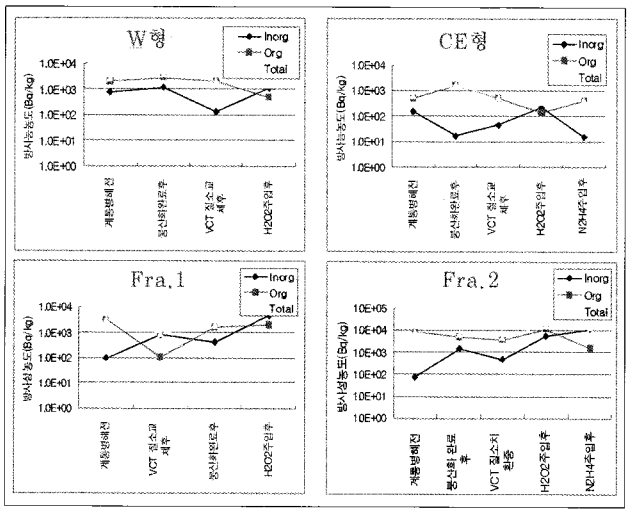

Fig. 9. Behavior of ^{14}C in RCS during shut down period.

과 저장조수의 낮은 pH로 인해 무기화학형으로 존재하고 있는 것으로 확인되었다(Fig.7, 8 참조).

IV. 정지화학 처리기간 중 계통수 중의 ^{14}C 거동특성

원자로 계통수 및 사용 후 핵연료 저장조수 중의 ^{14}C 분석은 2007년 3월부터 3개 노형을 대상으로 분석하였으며 2007~2008년에는 이들 로형에 대한 정기보수(Overhaul)가 이루어 졌다. 계획예방 정비기간 동안 원자로냉각재 계통과 사용후 핵연료저장조수 중의 ^{14}C 에 대한 수화학 거동을 평가하기 위해 정지시 화학처리 공정별로 액상 시료를 분석하여 그 결과를 Fig.9~10에 나타내었다. 그래프에서 보여주듯이, 노심 말기의 정지화학 처리공정 직전의 계통수 중의 ^{14}C 분석결과에 의하면 3개 로형이 유기화학형이 주종을 이루고 있었고, W형은 무기분율이 19%, Framatome형은 27%까지 증가하는 경향을 나타내어 27%의 무기분율을 나타낸 해외 원전[1][5][6]과 유사한 경향을 나타냈다[7]. 화학형별로 살펴보면, Framatome형은 액상과 기상의 유기형이 우세하게 나타났다. Framatome형과 형의 RCS(Reactor Coolant System) 용액중의

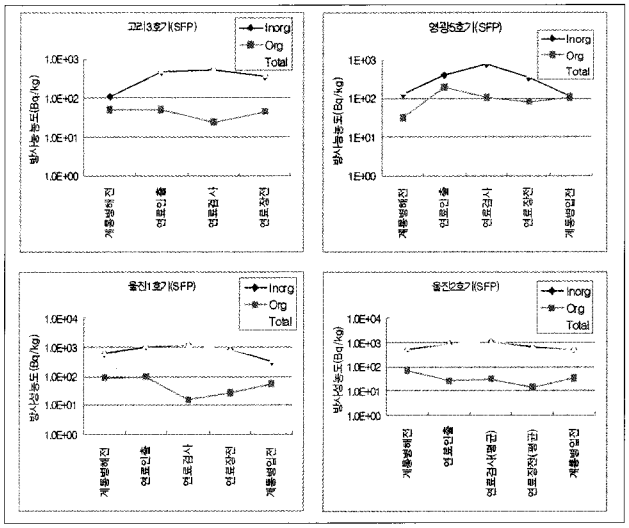

Fig. 10. Behavior of ^{14}C in SFP during shut down period.

^{14}C 화학조성에 대한 분석결과에 의하면, 붕산화 완료시점까지는 계통내의 ^{14}C 는 유기화학형이 주종을 이루고 있었다. 그중에서도 액상에 존재하는 유기형이 약간 우세하게 나타내다가 정지화학 처리를 위한 과산화수소 주입으로 인해 냉각재내 수화학 환경이 환원환경에서 산화환경으로 전환되면서 액상의 유기형은 감소하고 무기물 형태의 ^{14}C 가 증가하는 경향을 나타내어 수화학 환경변화에 매우 민감하게 반응함을 확인할 수 있었다.

V. 결 론

경수로 원전에서 환경으로 방출되는 ^{14}C 의 량 및 화학조성 평가와 원자로 계통수중의 ^{14}C 거동 평가를 위해 W형, Framatome형 및 CE형의 3개 로형을 선정하였다. 대상 원전의 원자로냉각재 내에 존재하는 ^{14}C 의 농도, 화학조성 및 거동평가를 위해 2년동안 주 1회씩 RCS 시료를 20ml씩 채취한 후 5주간의 시료를 혼합시켜 ^{14}C 를 분석하였다. 분석결과, 냉각재 계통 내에는 유기화학형인 $^{14}CnHm$이 주종을 이루고 있었으며, CE형이 90% 이상을 차지하고 있었고, Framatome 로형은 88%를 차지하고 있었다. 계통내의 유기화학형인 $^{14}CnHm$은 노심 말기 산화환경인 정지화학 처리단계를 거치면서 대부분 $^{14}CO_2$ 형으로 바뀌었다. 이의 확인을 위해 사용후핵연료 저장조수와 저장조 주변 및 격납건물내의 공기 중 시료를 분석해 본 결과, $^{14}CO_2$ 형이 주종을 이루고 있었으며 이는 산화환경 분위기에서 무기화학형으로 바뀐 냉각재의 직접 방출에 기인된 것으로 여겨진다. 계획예방 정비기간 동안 배기구를 통해 대기로 방출한 ^{14}C 의 농도는 정상운전 중보다

높게 나타났으며 계획예방 정비기간 동안 대부분의 로형에서 SFP와 CV 주변의 공기 중 ^{14}C 분율은 무기화학형($^{14}CO_2$)이 우세하게 나타났다. RCS 용액의 경우, 발전소 정지화학 처리 공정이 진행되면서 RCS 수환경의 변화에 따라 화학조성비도 변화되는 경향을 나타냈고 SFP 저장조수도 높은 붕소 유지로 인한 낮은 pH 환경과 정지화학 수처리 시의 영향을 받아 무기화학형이 주를 이루고 있었다. 원자로 냉각재계통 내 ^{14}C Inventory를 계산해 본 결과, Framatome 형(5.2 GBq) 〉 CE 형(2.0 GBq) 〉 W형 (0.3 GBq)순으로 Framatome형이 일차냉각재 계통 내 ^{14}C Inventory가 가장 높은 것으로 나타났다. 앞에서 언급한 것처럼 Framatome형은 hold-up 탱크수중의 붕소 회수용 증발기 운전 시 생성되는 응축수를 W형처럼 방출시키지 않고 계통으로 재순환 사용하고 있기 때문에 ^{14}C 의 Inventory는 타 로형 보다 높은 것으로 여겨진다. W 로형의 계통 내 ^{14}C Inventory가 제일 낮은 이유는, 앞에서 언급한 것처럼 붕소증발기에서 발생한 응축수를 계통으로 회수하지 않고 액체폐기물 처리 계통을 통해 전량 방출시키고 있기 때문인 것으로 여겨진다. 이러한 운전 특성의 평가자료는 향후 ^{14}C 의 환경방출 제어와 관련하여 매우 유용하게 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

참고문헌

[1] 강덕원, 양양희,"유럽 경수로 원전 방사성탄소(^{14}C) 방출감시 현황, 한전 전력연구원 보고서, TM.06NS07 (2008)

[2] 강덕원 등, "중수로 감속재 계통 내 ^{14}C 저감기술 개발" 전력연구원 KEPR- 00NC02(2003)

[3] Magnusson A, " ^{14}C Produced by Nuclear Power Reactors" -Generation and Characterization of Gaseous, Liquid and Solis Waste" Lund University(2007)

[4] 강덕원 등, "Evaluation and Characterization of the Discharged Radioactive Carbon Compounds from Domestic PWRs" 전력연구원, KEPRI-R06NS07(2008)

[5] Magnusson A, Stenstrom K, Aronsson P-O. " Characterization of ^{14}C in process water system ,spents resins and off-gas of Swedish LWRs.Lund University:Internal Report LUNFD6/NFFR-3102: (2007)

[6] Hertelendi,E,Uchrin, Gy. and Ormai, " ^{14}C Release in various chemical forms with gaseous effluent from the PAKS nuclear power plant, In Long,A.,Kra,R.S and Srdoc ,D., eds., Proceeding of the 13th International ^{14}C Conference. Radiocarbon 31(3): 754-761(1989)

[7] 양호연 외, " IRN-150혼상수지의 이온흡착 특성 및 폐수지로부터 탈착용액을 이용한 ^{14}C 핵종의 제거특성" 방사성폐기물학회지 Vol.4.n.4 pp.373-384(2006)

[8] 홍상범 외, "연구로2호기 수조 콘크리트의 3H 및 ^{14}C 공간분포" 방사성폐기물학회지 Vol.4.n.4 pp.329-334(2006)