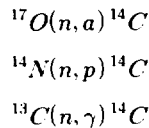


Figure. 1 ¹⁴C production rates in the systems at PHWR [1]

2.1 월성원전 내 ¹⁴C 발생원

¹⁴C는 월성 원전 계통 내에서 다음과 같은 중성자 포획반응으로 생성된다.



¹⁴C 이 많이 발생하는 구역은 열중성자 속이 높아 표적원자와 반응이 잘 일어나는 감속재, 1차측 열수송 계통, 핵연료, 및 환형기체계통이다. 발생된 ¹⁴C 는 정화장치를 통해 제거되지만, 일부가 환경으로 방출된다. Fig. 1은 중수로의 각각의 계통에서 ¹⁴C 생성율을 보여준다.

a) 감속계계통

월성 원전에서는 원자로 내부 상층기체인 헬륨가스를 이용하여 감속재의 압력을 제어한다. 헬륨가스와 냉각수가 맞닿아 생성되는 일부 ¹⁴C 은 ¹⁴CO₂로 변하여 상층기체와 섞인다. 상층기체에는 헬륨기체 외에도 중수 증기, 질소, 중수소 등이 섞여 있으며, ¹⁴C의 일부가 ¹⁴CO₂ 형태로 변해 섞여 있다. 중수소는 폭발성 기체이기 때문에, 일정 농도이하로 제한해야 한다. 따라서 중수소 농도가 증가하면 농도를 줄이기 위해 헬륨가스를 주입하고, 기체 폐기물은 연돌(Stack)을 통해 상층기체와 함께 방출시킨다.

b) 1차측 열수송계통

1차측 열수송계통은 감속재와 마차가지로 중수를 이용하여 핵연료의 열을 냉각하는 냉각재 계통이다. 이 계통은 핵연료로부터 얻은 열에너지를 2차측 열수송계통에 전달하는 역할을 한다. 1차측 열수송계통에 존재하는 중수의 총 무게는 약 205톤이지만, 중성자 속이 높은 지역에 존재하는 중수의 양은 총 무게의 3.1%에 불과하다. 그러므로 중성자 포획반응도 3.1% 일어난다고 가정할 수 있다[2].

c) 환형기체계통

중수로의 압력관과 칼란드리아 사이에 있는 공간에 질소나 탄소를 채우는데 이를 환형기체라고 한다. 환형기체는 압력관 내에 충전되어 있는 냉각재의 열이 칼란드리아 관 외부에 있는 감속재로 전달되는 것을 막는다. 과거에는 질소를 사용하여 열전달을 막았으나, 질소가 방사화 반응을 일으켜 다량의 ¹⁴C 을 생성하기 때문에 현재는 이산화탄소를 이용하고 있다. 그렇지만 여전히 ¹³C 이 표적원자가 되어 ¹⁴C 을 생성하고 있다.

d) 핵연료

핵연료 펠렛은 지르칼로이 피복재로 둘러 쌓여있는데, 이 피복재 안에는 핵연료와의 마찰을 줄이기 위해서 흑연층이 피막 되어있다. 또 내부에는 충전기체로서 질소가 들어가 있어서, 이 질소가 중성자 포획반응을 일으킨다. 중수로에는 상당한 연료봉이 장착되어 있는데 이 연료봉 피복재에는 흑연층이 피막되어 있어 상당한 ¹⁴C 가 발생한다. 이 때문에 Table. 1에서 보듯이, 핵연료 계

월성 원자력발전소의 C-14 처리 기술 및 저감방안 고찰

이정민 · 문주현

원자력 및 에너지 공학부
경북 경주시 석장동 707 동국대학교(경주)

Review of Technologies for Processing and Methods for Reducing C-14 at Wolsung Nuclear Power Plants

Jung Min Lee and Joo Hyun Moon

College of Energy & Environment
Dongguk University Gyeongju Campus 707,
Sekjang-Dong, Gyeong Ju, Gyeongsangbuk-Do,
Korea 780-714

요 약

Safe disposal of radioactive waste is one of the critical issues for the sustainable use of nuclear energy in generating electricity. For this, reduction in the volume of radioactive waste for final disposal is very important under the situation where the storage space is restricted. C-14 is a radionuclide with a half-life of 5,730 years, which causes problems in handling the radioactive wastes including it and then in reducing the volume of the wastes due to its radiological and chemical properties. Hence, this study reviewed the current status of technologies for processing and methods for reducing C-14 in the radioactive wastes at Wolsung nuclear power plants.

Key words : nuclear energy, radioactive wastes, C-14

1. 서 론

원자력 이용이 확대되면서 방사성 폐기물의 안전한 처분은 원전의 지속적 이용을 위한 필요조건이다. 원전 가동에 따라 방사성폐기물 누적량도 증가하여, 처분용량이 한정된 원전 부지 내 방사성폐기물 보관시설을 운영하는데 큰 어려움을 겪고 있다. 장반감기 핵종을 함유한 폐기물은 반감기가 길기 때문에 중·저준위 방사성폐기물 처분시설로 이송할 수 없어, 원전 부지 내 보관시설에 오랜 기간 저장을 해야 하기 때문에 보관시설 운영에 큰 부담이 되고 있다.

원전 부지 내 방사성폐기물 보관시설 운영에 가장 큰 어려움을 유발하는 장반감기 핵종 중 하나가 ^{14}C 이다. ^{14}C 는 반감기가 5,730년이며, ^{14}N 으로 붕괴하면서 최대 0.156 MeV의 베타(β) 입자를 방출한다. ^{14}C 은 우주선에 의해 생성되어 자연에 광범위하게 분포하고 있다. 유기물 형태로 순환하면서 식물에 고정되고, 섭취를 통해 사람 체내로 유입된다. 이렇게 섭취된 ^{14}C 는 혈류를 통해 체내를 순환하는데, 생물학적 반감기는 40일이다. 하지만 끊임없는 섭취와 제로 인해 체내에는 ^{14}C 이 계속 잔류하고 있기 때문에, 주요 관리대상이 되고 있다.

원전 계통에서 발생하는 ^{14}C 총 생성량 중 약 1.717%가 환경으로 방출되고 있다. 원전 특성상, 경수로보다는 중수로에서 ^{14}C 이 더 많이 발생한다. 조사에 따르면, 경수로보다 중수로에서 ^{14}C 이 약 5~6배 더 많이 방출된다[1]. 이 때문에 각국에서는 중수로에 대한 ^{14}C 의 감시를 더 철저하게 하고 있다. 따라서 본 논문에서는 중수로 4기가 위치한 월성 원전의 ^{14}C 처리기술 및 저감방안을 살펴보고자 한다.

2. 본 론

국내 가동 원전 중 월성원전 1~4호기는 중수로이고, 나머지는 모두 경수로이다. 중수로는 경수로에 비해 5~6배 정도 많은 ^{14}C 를 방출한다[1]. 이는 중수로에서 중수(D_2O)를 이용하고 있기 때문인데, 중수에 포함된 ^{17}O 이 중성자의 표적원자가 되어 ^{14}C 을 생성하기 때문이다.

통에서의 ^{14}C 생성율이 감속재 다음으로 많이 발생한다.

발생원	생성율(%)	제거율(%)	방출률(%)
감속재	95.25	91.43	3.17
핵연료	3.37	0.00	0.00
1차열전달	1.30	1.30	0.13
환형기체	0.13	0.00	0.00

Table. 1 Production, removal and release rates of ^{14}C in the PHWR[3]

2.2 ^{14}C 의 제거기술 현황

Fig. 2는 월성원전에서 ^{14}C 의 제거과정을 단순하게 표현한 것이다.

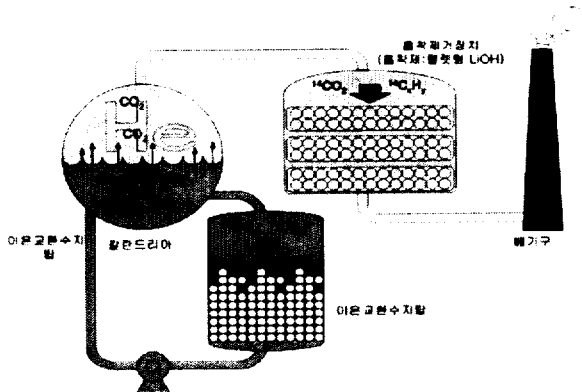


Figure. 2 Principle to remove ^{14}C [4]

현재 월성 원전에는 ^{14}C 을 제거하기 위해 7~9개의 이온교환수지를 사용한다. 이온교환수지는 액체폐기물을 처리하는데 많이 이용된다. 액체폐기물에 포함된 ^{14}C 핵종을 제거하기 위해, IRN-150 이온교환수지(양이온, 음이온 이온교환수지를 동일 당량비로 혼합한 수지)를 주로 이용하고 있다.

참고문헌[2]에 따르면, 월성원전에서 사용 중인 IRN-150 이온교환수지의 HCO_3^- 의 최대 흡착량은 약 11mg-C/g이며 이온 탈착을 위한 후보용액인 $NaOH$, $NaNO_3$, $NH_4H_2PO_4$ 의 이온별 수지에 따른 흡착 친화도는 $NO_3^- > HCO_3^- \geq H_2PO_4^-$ 로 나타났다. 흡착 친화도가 높을수록 이온교환수지에서 잘 붙으며 그 결과 탈착을 원하는 이온의 탈착이 잘 일어난다. 따라서 NO_3^- 이온의

흡착량이 다른 두 이온보다 훨씬 높아 수지로부터 HCO_3^- 이온의 탈착이 매우 용이한 것으로 나타났다. 또한 실제 $NH_4H_2PO_4$ 용액은 HCO_3^- 이온의 수지로부터 탈착율은 $NaNO_3$ 보다는 낮으나 탈착과 동시에 $^{14}CO_2$ 기체화가 잘 일어나 실제 폐수지 처리 시 $^{14}CO_2$ 에 대한 기체화 단계가 필요가 없는 편리성을 가진다는 결론이 나왔다. 즉, ^{14}C 의 수지로부터 제거 및 $^{14}CO_2$ 기체화에 의한 핵종 농축에 유리할 것으로 판단된다는 결론을 도출했다[2].

^{14}C 는 계통 내 pH 특성 때문에 각 계통마다 여러 가지 이온형태로 존재한다[5]. Fig. 3은 계통 내 존재하는 주요 이온들의 분포를 보여준다. Fig. 3에 따르면 감속재 계통에서는 $H_2^{14}CO_3$ (탄산) 과 $H^{14}CO_3^-$ (중탄산이온) 비율이 높다. 감속재가 이온교환수지탑을 통과하면, 이들 이온이 수지 작용기인 H^+ 와 OH^- 이온으로 전환되어 정화된다[3]. 이때 감속재의 pH가 7이상까지 상승하여 감속재 내 이산화탄소와 $H_2^{14}CO_3$ 의 농도가 감소하고 $H^{14}CO_3^-$ 의 농도는 높아진다. 이것들은 음이온 교환수지에 의해 제거되는 비율을 증가시킨다.(이는 $H^{14}CO_3^-$ 이온의 수지 친화력이 좋기 때문이다.). 또한 pH가 10~11로 운전되는 1차측 열수송계통에서 ^{14}C 은 $H^{14}CO_3^-$ 이나 CO_3^{2-} (탄산이온)의 형태로 많이 존재한다. 이 계통 내 탄소는 주로 정화계통에 설치된 음이온 교환수지에 의해 100% 제거되어, 폐수지와 함께 처분장으로 운반되어 저장된다.

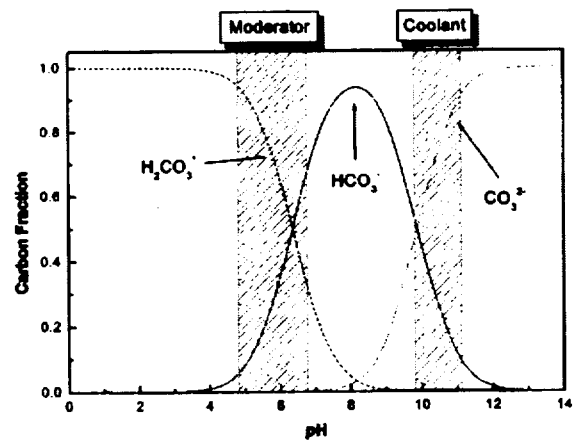


Figure. 3 Distribution of carbon chemical species with solution for the PHWR[5]

^{14}C 는 기체 폐기물로도 방출된다. Fig. 2에서 보듯이 상층기체에 섞여있던 $^{14}\text{CO}_2$ 기체가 증수소와 함께 연돌(Stack)을 통해 빠져나가게 되는데, 배기구에 설치된 흡착 제거장치에 의해 제거된다. 즉, 펠렛 형 고효율 고체 흡착제인 LiOH , $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 가 충전된 세정기를 통과시켜 흡착 처리한다. 그러면 $^{14}\text{CO}_2$ 와 흡착제의 반응으로 안정한 금속 탄산염이 만들어지는데, 이것을 폐수지와 함께 처분장으로 보내 보관한다.

2-3 ^{14}C 배출 저감방안 현황

다음은 ^{14}C 저감 방안이다.[1]

- (a) 감속재 계통에서 90%이상 발생되므로 이 계통의 지속적인 감시 필요
- (b) ^{14}C 방출량 증가는 이온교환수지의 교체 주기와 직결되므로 주기적인 관리 필요
- (c) ^{14}C 발생 메커니즘 억제
- (d) 원자로 계통 및 저장탱크 상층 기체인 CO_2 기체 사용을 가급적 억제

사실 증수를 이용하는 감속재나 1차측 열수송계통에서 ^{14}C 생성을 억제하는 것은 한계가 있으므로, 다른 곳에서 줄이는 수밖에 없다. 원전 운전 경험에 따르면, 원전의 적절한 유지보수만으로도 방사성핵종의 방출을 저감할 수 있다는 것을 보여주고 있다. $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ 반응을 통해 ^{14}C 을 생성하는 질소는 공기와 함께 원전 내부로 들어오는 질소 또는 원자로 구조물의 부식 방지를 위해 사용되는 질소에 의해 공급된다. 따라서 증수공급탱크에 헬륨가스를 살포하여 질소와 공기를 배기하고 있다. 하지만 여기서 ^{14}C 기체가 배출될 가능성이 생기지만 포집기를 이용하여 98% 제거된다.

^{14}C 저감은 감속재 이온교환수지로 90%이상 이뤄진다. 하지만 수지에 ^{14}C 가 포화되어 더 이상 포집이 불가능할 때 ^{14}C 이 방출될 수 있으므로 수지를 주기적으로 교체해주어야 한다. 월성 원전에서는 현재 이온교환수지의 교체 주기를 약 4,300시간(대략 6개월)에서 3,000시간으로 단축하였다. 또한 감시주기를 월 1회에서 월 2회로 늘려 배출가스 감시를 강화하였다. 원전 계획 예방정비 중에는 원자로가 정지되면서 정화계통도 멈추게 되어 ^{14}C 배출량이 증가한다. 이 때문에 공기가 유

입되는 것을 막기 위해, 감속재의 상층기체는 가능한 정상적으로 작동되게 하며, 원자로 가동 시 유입공기를 배출하기위한 가스제거 운전을 시행하고 있다. 또한 원자로 반응도 조절을 위한 독 물질 주입 시, 감속재 정화계통 운전이 일시 정지되는데, 이때도 독 물질 농도와 수지 성능을 적절히 유지하고, ^{14}C 배출량 감시를 강화하며, 정화계통 운전을 가능한 멈추지 않도록 하고 있다.

상기 방안들은 현재 원전 내에서 현실적으로 사용하는 것들이다. 물론 이들 방안 외에도 다양한 방안들을 고려할 수 있다. 더 좋은 흡착제 개발로 ^{14}C 을 더 많이 흡착시키거나, ^{14}C 을 다른 화학 원소와 반응시켜 다른 안정 물질로 변환시키는 것 등을 고려할 수 있다. 하지만 아직까지 이런 방법들은 실제 적용되지 못하고 있다.

3. 논 의

^{14}C 는 약한 베타입자를 방출하지만, 반감기가 길기 때문에 인체와 환경에 장기간 영향을 줄 수 있다. 원전 사용이 늘어남에 따라 ^{14}C 발생량과 외부 환경으로 방출량도 증가하고 있어 주요 감시대상이 되고 있다. 이러한 문제 외에도 ^{14}C 을 포함한 방사성폐기물이 계속 발생함에 따라, 원전 부지내 방사성폐기물 보관시설의 운영에 어려움을 겪고 있다. ^{14}C 의 반감기가 길어서 장기간 보관을 해야 하는데, 보관시설의 용량은 한정이 되어 있기 때문이다. 이 때문에 원전에서 ^{14}C 의 발생을 줄이고, 발생한 ^{14}C 을 적절히 처리하여 처분대상 폐기물의 양을 줄이기 위한 다양한 기술을 개발하고 있는 실정이다.

^{14}C 는 이온교환수지를 통해 거의 제거 되지만 아쉽게도 단독분리가 아직 불가능하다. 따라서 원전에서는 한 달에 약 20톤의 폐수지로 발생되고 있을 만큼, 상당한 양의 폐기물이 발생하고 있다. 그러나 ^{14}C 의 반감기가 길기 때문에 중·저준위 방사성폐기물시설로 운반이 제한되고 있고, ^{14}C 폐기물을 보관할 수 있는 원전 부지내 보관공간은 턱없이 부족하다. 따라서 ^{14}C 폐기물의 부피 최소화는 원전의 지속적 가동을 위해서는 반드시 풀어야할 숙제와도 같다.

이에 따라 본 논문에서는 증수로 4기가 위치한 월성 원전의 ^{14}C 처리기술 및 저감방안을 검토하였다.

월성 원전에서는 ^{14}C 을 제거하기 위해 7~9개의 이온 교환수지를 사용하고 있었다. 액체폐기물에 포함된 ^{14}C 핵종을 제거하기 위해, IRN-150 이온교환수지를 주로 이용하고 있다. 상층기체에 섞여있는 $^{14}\text{CO}_2$ 기체가 외부로 방출되기 전에, 배기구에 설치된 흡착 제거장치를 이용해 제거하고 있다. 이와 함께, (a) 감속재 계통에서 90%이상 발생되므로 이 계통의 지속적인 감시, (b) ^{14}C 방출량 증가는 이온교환수지의 교체 주기와 직결되므로 주기적인 관리, (c) ^{14}C 발생 메커니즘 억제, (d) 원자로 계통 및 저장탱크 상층 기체인 CO_2 기체 사용을 가급적 억제 등을 통해 ^{14}C 의 발생을 억제하고 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 원자력대학생논문연구사업의 지원을 받았습니다.

5. 참고문헌

- [1] 한국전력공사 전력연구원 원자력연구실 방사선 화학 그룹: 국내외 원전의 C-14 관리동향 및 저감기술, 32 (2005)
- [2] 한국전력공사 전력연구원: 중수로 환경방출 방사성 이산화탄소 제거장치 개발(최종연구보고서), 143 (2004)
- [3] 이갑복: 국내원전 주변 H-3 및 C-14 섭취선량 평가 경로인자 해석, 142 (2005)
- [4] 양양희 외: 대한 방사선 방어학회, 이경호 경수로 원전 사용후 연료저장조수 내의 14C 거동 특성 평가, 2 (2009)
- [5] 한국수력원자력: IRN-150 혼상수지의 이온 흡착특성 및 폐수지로부터 탈착용액을 이용한 C-14핵종의 제거 특성, 12 (2006)
- [6] 신진명 외: 방사성탄소 및 이산화탄소 포집재, 그 제조방법 및 이를 이용한 포집 방법, 8 (2005)