Journal of RADIATION INDUSTRY
Vol. 18, No. 4, pp. 295-299, 2024
https://doi.org/10.23042/radin.2024.18.4.295

Original article

해체시 방사화구조물에서의 선량평가를 위한 주요핵종 선정 방법론 연구

이상헌 · 하우범 · 이민호 · 송종순*

[1]조선대학교

A Study on the Selecting Methodology of Major Nuclides for Dose Assessment in Activation Structures at Decommissioning

Sang-Heon Lee, Woo-Beom Ha, Min-Ho Lee, and Jong-soon Song*

Nuclear Engineering, Chosun University, 309 Pilmun-daero, Dong-gu, Gwangju 61452, Republic of Korea

ABSTRACT The activation corrosion products generated in the primary system, which is the main activation structure at decommissioning of a nuclear power plant, contain various levels and nuclides. The primary system's main equipment is mainly contaminated by neutrons, and the pipes through which the coolant passes are contaminated by CRUD. The contaminating nuclides from radiation vary slightly depending on the nature of the materials used in the structure and the reactor type. The main activation nuclides presented in the reference literature include ^{55}Fe, ^{60}Co, ^{59}Ni, ^{94}Nb, and ^{54}Mn, and it has been investigated that long-lived nuclides account for most of the radioactivity. In this paper, a step-by-step selection methodology was presented to select the main representative nuclides that affect workers during nuclear power plant decommissioning. Starting with the radionuclides present as the reference nuclide, ^{60}Co was selected as the representative nuclide through four steps.

Key words: Radioactive Metal waste, External exposure, Activation nuclide

1. 서 론

원자로 내 핵연료에서의 중성자 방사화로 인한 방사화구조물(Reactor Pressure Vessel, Core, Steam Generator etc.)은 영구정지 직후 알파선, 베타선, 감마선 등을 방출하는 수많은 핵종이 존재한다. 영구정지 시점에서의 고려핵종들은 단반감기 핵종이 다수이므로 해체 시 방사화부식생성물 내 존재하는 수많은 핵종을 모두 고려하는 것은 해체작업자의 피폭관리를 위한 목적으로서 타당하지 않는 것으로 판단하였다. 또한, 해체 시점에서의 작업자 피폭선량 평가 연구와 연계하기 위한 목적으로 본 논문은 단계별 접근법을 통해 최종 주요핵종을 다루는 논문으로써 대표핵종 선정방법론을 도출하여 타당성을 확보하고자 한다.

평가대상 기준핵종을 선정하기 위한 참고자료로서 국외 및 국내 규제지침을 조사하여 대표핵종을 도출하였다. IAEA RS-G-1.7 (Application of the Concepts of Exclusion, Exemption and Clearance에서는 IAEA GSR Part 3의 규제제외, 규제면제, 규제해제 개념에 근거가 되며, 규제면제 또는 규제해제를 위한 핵종별 농도 기준의 유도근거인 선량기준(개인선량: 10 μSv y^{-1}, 집단선량: 1 man · Sv y^{-1})을 제시하고 있다. 식품 및 음용수를 제외한 모든 물질에 적용 가능하며, 자연 방사성핵종과 257개의 인공 방사성핵종 농도 기준을 제시하고 있다[1]. 국내 방사성폐기물 분류 및 자체처분 기준에 관한 규정(원자력안전위원회고시 제2023-7호)에서는 방사성폐기물의 처분관점에서 방사성핵종별 자체처분 허용농도 또는 자체처분 허용선량을 만족함이 입증되는 농도에 대해서 자체처분이 가능하도록 명시하고 있다[2].

2. 대상 및 방법

2.1. 기준 핵종

Table 1은 방사성핵종은 원자력관계사업자(자체처분사업자)가 방사능 검출목표를 설정하여 계측기 등을 활용하여 검출해야 하는 대부분의 핵종 및 농도를 제시하고 있으며, IAEA RS-G-

ISSN 1976-2402 http://www.ksri.kr/

Copyright© 2024 by Korean Society of Radiation Industry

*Corresponding author: Jong-soon Song
Tel: +82-62-230-7165, E-mail: jssong@chosun.ac.kr

Received 26 September 2024 Revised 28 October 2024 Accepted 4 November 2024

Table 1. Reference nuclides for selecting key nuclides in CRUD [2]

Radionuclide	Acceptance criteria ($Bq\ g^{-1}$)
^{129}I	0.01
^{22}Na, ^{46}Sc, ^{54}Mn, ^{56}Co, ^{60}Co, ^{65}Zn, ^{94}Nb, ^{106}Ru, ^{110m}Ag, ^{125}Sb, ^{134}Cs, ^{137}Cs, ^{152}Eu, ^{154}Eu, ^{182}Ta, ^{207}Bi, ^{229}Th, ^{232}U, ^{238}Pu, ^{239}Pu, ^{240}Pu, ^{242}Pu, ^{244}Pu, ^{241}Am, ^{212m}Am, ^{243}Am, ^{245}Cm, ^{246}Cm, ^{247}Cm, ^{248}Cm, ^{249}Cf, ^{251}Cf, ^{254}Es	0.1
^{14}C, ^{24}Na, ^{36}Cl, ^{48}Sc, ^{48}V, ^{52}Mn, ^{59}Fe, ^{57}Co, ^{58}Co, ^{75}Se, ^{82}Br, ^{85}Sr, ^{90}Sr, ^{95}Zr, ^{95}Nb, ^{96}Tc, ^{99}Tc, ^{103}Ru, ^{105}Ag, ^{109}Cd, ^{113}Sn, ^{124}Sb, ^{123m}Te, ^{132}Te, ^{136}Cs, ^{140}Ba, ^{140}La, ^{139}Ce, ^{155}Eu, ^{160}Tb, ^{181}Hf, ^{185}Os, ^{190}Ir, ^{192}Ir, ^{204}Tl, ^{206}Bi, ^{233}U, ^{237}Np, ^{236}Pu, ^{238}Pu, ^{243}Cm, ^{244}Cm, ^{248}Cf, ^{250}Cf, ^{252}Cf, ^{254}Cf	1
^{7}Be, ^{18}F, ^{38}Cl, ^{43}K, ^{47}Ca, ^{51}Mn, ^{52m}Mn, ^{56}Mn, ^{52}Fe, ^{55}Co, ^{62m}Co, ^{65}Ni, ^{69m}Zn, ^{72}Ga, ^{74}As, ^{76}As, ^{91}Sr, ^{92}Sr, ^{93}Zr, ^{97}Zr, ^{93m}Nb, ^{97}Nb, ^{98}Nb, ^{90}Mo, ^{93}Mo, ^{99}Mo, ^{101}Mo, ^{97}Tc, ^{97}Ru, ^{105}Ru, ^{115}Cd, ^{111}In, ^{114m}In, ^{125}Sn, ^{122}Sb, ^{127m}Te, ^{129m}Te, ^{131m}Te, ^{133}Te, ^{133m}Te, ^{134}Te, ^{126}I, ^{130}I, ^{131}I, ^{132}I, ^{133}I, ^{134}I, ^{135}I, ^{129}Cs, ^{132}Cs, ^{138}Cs, ^{131}Ba, ^{143}Ce, ^{144}Ce, ^{153}Gd, ^{181}W, ^{187}W, ^{191}Pt, ^{198}Au, ^{203}Hg, ^{200}Tl, ^{202}Tl, ^{203}Pb, ^{203}Po, ^{205}Po, ^{207}Po, ^{225}Ra, ^{230}Pa, ^{233}Pa, ^{230b}U, ^{236}U, ^{240}Np, ^{241}Pu, ^{242}Cm, ^{254m}Es	10
^{3}H, ^{35}S, ^{42}K, ^{45}Ca, ^{47}Sc, ^{51}Cr, ^{53}Mn, ^{61}Co, ^{59}Ni, ^{63}Ni, ^{64}Cu, ^{86}Rb, ^{85m}Sr, ^{87m}Sr, ^{91}Y, ^{91m}Y, ^{92}Y, ^{93}Y, ^{97m}Tc, ^{99m}Tc, ^{105}Rh, ^{109}Pd, ^{111}Ag, ^{115m}Cd, ^{113m}In, ^{115m}In, ^{129}Te, ^{131}Te, ^{123}I, ^{125}I, ^{135}Cs, ^{141}Ce, ^{142}Pr, ^{147}Nd, ^{149}Nd, ^{153}Sm, ^{152m}Eu, ^{159}Gd, ^{166}Dy, ^{166}Ho, ^{171}Er, ^{170}Tm, ^{175}Yb, ^{177}Lu, ^{188}Re, ^{191}Os, ^{193}Os, ^{194}Ir, ^{197m}Pt, ^{199}Au, ^{197}Hg, ^{197m}Hg, ^{201}Tl, ^{227}Ra, ^{231}U, ^{237}U, ^{239}U, ^{240}U, ^{239}Np, ^{234}Pu, ^{235}Pu, ^{237}Pu, ^{249}Bk, ^{253}Cf, ^{253}Es, ^{255}Fm	100
^{31}Si, ^{32}P, ^{33}P, ^{55}Fe, ^{60m}Co, ^{69}Zn, ^{73}As, ^{77}As, ^{89}Sr, ^{90}Y, ^{96m}Tc, ^{103}Pd, ^{125m}Te, ^{127}Te, ^{131}Cs, ^{134m}Cs, ^{143}Pr, ^{147}Pm, ^{149}Pm, ^{151}Sm, ^{165}Dy, ^{169}Er, ^{171}Tm, ^{185}W, ^{186}Re, ^{191m}Os, ^{193m}Pt, ^{197}Pt, ^{211}At, ^{226}Th, ^{243}Pu, ^{242}Am, ^{246}Cf	1,000
^{58m}Co, ^{71}Ge, ^{103m}Rh, ^{254}Fm	10,000

1.7에서 제시하는 방사성핵종 수보다 더 많은 핵종을 대상으로 하고 있다. 그러므로 본 논문에서의 원전 해체 시 작업자피폭 방호측면에서의 방사성핵종을 선정하기 위한 기준 핵종은 "방사성핵종별 자체처분 허용농도에 관한 기준"에서 제시하고 있는 핵종을 기준 핵종으로 결정하였다.

2.2. 주요 핵종 선정 방법론 도출

2.2.1. 발생원에 따른 핵종별 동위원소의 분류

방사화부식생성물에 존재하는 평가핵종을 선별하기 위한 첫 단계로서 핵분열생성물, 중성자에 의한 방사화생성물, 냉각수로 인한 부식생성물, 기타 불순물의 방사화에서 발생되는 주요 핵종들의 동위원소를 포함하여 다음과 같은 분류방법으로 Table 2와 같이 정리하였다.

일반적으로 사용후핵연료 내에 분포되어 있는 핵분열생성물의 종류는 다음과 같이 분류된다[3,4].

- 물질 내 용해된 원소: Sr, Zr, Nb, Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm
- 금속 석출물 원소: Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Ag, Cd, In, Sb, Te
- 산화 석출물 원소: Ba, Zr, Nb, Mo, (Rb, Cs, Te)
- 기화성 원소: Kr, Xe, Br, I, (Rb, Cs, Te)

조사된 내용을 반영하여 다음 네 가지 기준핵종을 선정하였다. 첫째, 핵분열생성물(^{235}U)은 생성비율에 따라 ^{134}Cs, ^{135}I, ^{93}Zr, ^{99}Mo, ^{137}Cs, ^{99}Tc, ^{90}Sr, ^{131}I, ^{147}Pm, ^{149}Sm, ^{129}I, ^{151}Sm, ^{106}Ru, ^{85}Kr, ^{107}Pd, ^{79}Se 등의 핵종이 고려된다. 둘째, 중성자에 의한 방사화부식생성물은 구조물에 따라 주요 기기배관(Fe, Cr, Ni합금), 연료피복관(Zr, Sn, Fe, Cr), 기타구조물(Co)에서 고려되는 대상핵종으로 ^{54}Mn, ^{64}Cu, ^{137}W, ^{58}Co, ^{60}Co, ^{51}Cr, ^{59}Fe, ^{65}Zn, ^{110m}Ag, ^{95}Zr 등이다. 셋째, 냉각수에 의한 부식생성물은 가압경수로의 경우 ^{54}Mn, ^{56}Mn, ^{58}Co, ^{59}Fe, ^{60}Co이 주요 고려 핵종이다. 넷째, 기타 불순물에 의한 방사화는 ^{3}H, ^{13}N, ^{16}N, ^{17}N, ^{19}O, ^{18}F이 주요 고려 핵종이다[1].

2.2.2. 해체 시점의 반감기를 고려한 주요 방사성핵종

해체 시점에서 고려되는 방사화부식생성물 내 주요 방사성핵종을 선정하기 위해서는 반감기를 고려한 핵종의 선정이 필요하다. 원전 해체는 영구정지 승인 이후 5년 이내에 최종해체계획서를 규제기관에 제출하여야 하며 약 2년의 규제기관의 승인 이후 해체작업에 착수하게 된다. 방사성핵종 별 고유 반감기는 지수함수로서 Fig. 1을 따라 약 10번 이상의 반감기를 거칠 경우 $(1/2)^{10}$의 방사능이 거의 0에 수렴하게 된다. 그러므로 본 단계에서는 Table 2에서의 핵종 중에서 영구정지 이후 약 7년 동안 대략 10번의 반감기가 도래하는 250일 미만인 핵종은 제외하였으며, 핵종분류 결과는 Table 3과 같다.

2.2.3. 감마선 방출과 관련된 주요 핵종의 분류 및 특성

핵종의 붕괴형식 중 핵이성체 전이는 여기상태 전이, 준여기

1) Yeom YS. 2021. "Radiology and Radiation", NCS-based Radiation Measurement and Evaluation Specialist Training. Korean Association for Radiation Application.

Table 2. Derivation of major nuclides considering sources within the primary system

Radionuclide			
^{105}Ag	^{137}Cs	^{53}Mn	^{87m}Sr
^{110m}Ag	^{138}Cs	^{54}Mn	^{89}Sr
^{111}Ag	^{64}Cu	^{56}Mn	^{90}Sr
^{55}Co	^{52}Fe	^{101}Mo	^{91}Sr
^{56}Co	^{55}Fe	^{90}Mo	^{92}Sr
^{57}Co	^{59}Fe	^{93}Mo	^{96}Tc
^{58}Co	^{3}H	^{99}Mo	^{96m}Tc
^{58m}Co	^{123}I	^{103}Pd	^{97}Tc
^{60}Co	^{125}I	^{109}Pd	^{97m}Tc
^{60m}Co	^{126}I	^{147}Pm	^{99}Tc
^{61}Co	^{129}I	^{149}Pm	^{99m}Tc
^{62m}Co	^{130}I	^{103}Ru	^{181}W
^{51}Cr	^{131}I	^{105}Ru	^{185}W
^{129}Cs	^{132}I	^{106}Ru	^{187}W
^{131}Cs	^{133}I	^{97}Ru	^{65}Zn
^{132}Cs	^{134}I	^{75}Se	^{69}Zn
^{134}Cs	^{135}I	^{151}Sm	^{69m}Zn
^{134m}Cs	^{51}Mn	^{153}Sm	^{93}Zr
^{135}Cs	^{52}Mn	^{85}Sr	^{95}Zr
^{136}Cs	^{52m}Mn	^{85m}Sr	^{97}Zr

상태의 전이, 내부전환[2]에 의해 감마선 및 특성 X선을 방출하며, 대부분의 감마선을 방출하는 핵종은 알파 및 베타 붕괴 후 원자핵이 불안정한 여기상태로 존재할 때 안정한 상태로 변환되기 위하여 에너지를 방출하는 특성을 갖고 있다. 그러므로 Table 3에서의 핵종을 대상으로 핵종붕괴 시 감마선을 방출하는 핵종을 Table 4에 분류하였으며, 분류된 핵종의 특성은 Figs. 2, 3, 4, 5, 6과 같이 도식으로 제시하였다[5,6,7,8].

2.2.4. 생성메커니즘 및 흡수단면적의 특성을 고려한 최종 선정

^{60}Co과 ^{54}Mn를 제외한 나머지 핵종은 원자로의 연료봉에서의 방사화로 인하여 만들어진 물질로 흔히 원자력발전소의 중대사고 발생 시 발견되는 핵분열생성물이다. 구조적 안전성이 확보된 경우에는 검출 되지 않으므로 해체 시 평가를 위한 핵종에서는 제외하는 것이 타당하다고 판단되며, ^{54}Mn의 경우에는 반감기가 약 312일 정도이므로 해체시점에는 상당부분의 방사능이 감쇠된다. 또한, 방사화로 인한 생성메커니즘을 보면 ^{54}Fe(n,p)^{54}Mn 반응에서의 중성자 흡수단면적이 ^{59}Co(n,r)^{60}Co 대비 약 1/270 수준으로 큰 차이를 보이므로 배제하였다[5].

본 논문에서 최종 선정된 ^{60}Co의 생성은 크게 두 가지로 설명된다. 첫 번째, 불안정한 방사성동위원소에 의해 ^{60}Fe이 베타 붕괴를 통해 ^{60}Co으로 붕괴한 후 최종적으로 ^{60}Ni으로 붕괴하는 과정에서 생성된다. 두 번째, 안정적인 동위원소 ^{59}Co에서의 (n,r) 반응에 의하여 인공적으로 생성된다. 원자력발전소에서 1차계통

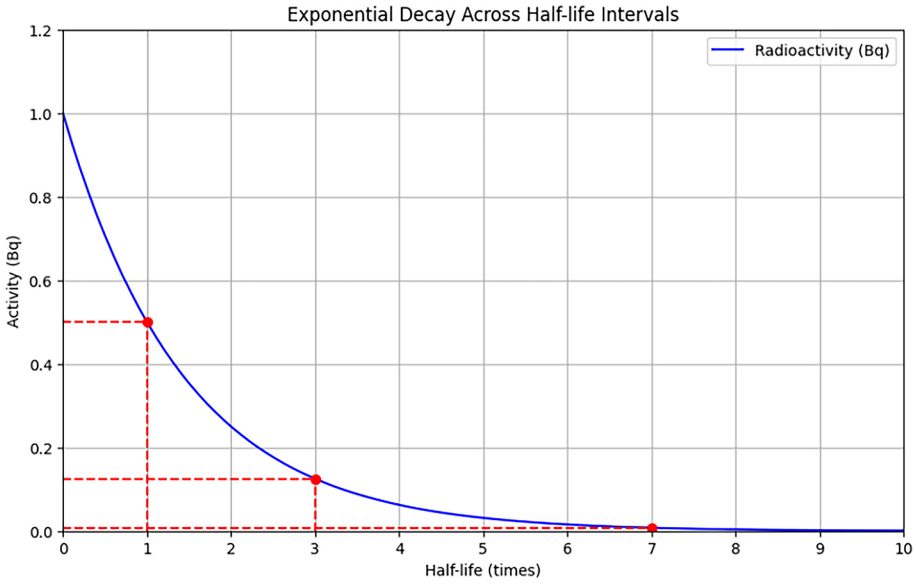

Fig. 1. Radiation concentration trend over half-life

2) 원자핵에서 방출된 감마선이 전자를 원자로부터 방출시켜 특성X선 방출

Table 3. Classification of nuclides with half-lives longer than 250 days

Nuclide	Half-life	Nuclide	Half-life	Nuclide	Half-life
^{106}Ru	373.59 d	^{3}H	12.32 y	^{151}Sm	90 y
^{57}Co	271.74 d	^{129}I	1.57×10^{7} y	^{90}Sr	28.90 y
^{60}Co	5.27 y	^{53}Mn	3.74×10^{6} y	^{97}Tc	2.6×10^{6} y
^{134}Cs	2.06 y	^{54}Mn	312.3 d	^{99}Tc	2.11×10^{5} y
^{135}Cs	2.3×10^{6} y	^{93}Mo	4,000 y	^{65}Zn	243.66 d
^{137}Cs	30.16 y	^{147}Pm	2.62 y	^{93}Zr	1.53×10^{6} y
^{55}Fe	2.73 y				

Table 4. Classification of nuclides according to gamma-ray emission and production mechanisms

Nuclide	Half-life	Decay	Generation Mechanism
^{54}Mn	312.03 d	β^{-}/ EC	Radiation Products
^{60}Co	5.27 y	β^{-}/γ	Radiation Products
^{134}Cs	2.06 y	β^{-}/ EC	Fission products
^{137}Cs	30.17 y	β^{-}/γ	Fission products
^{129}I	1.57×10^{7} y	β^{-}/γ	Fission products

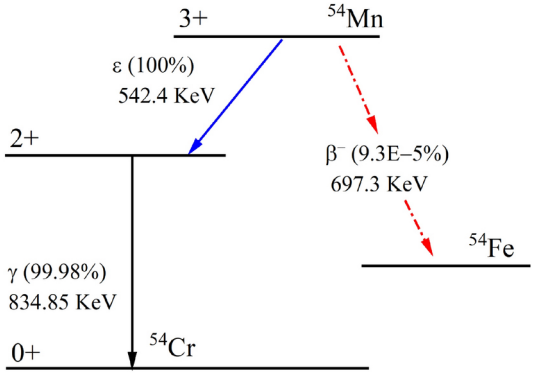

Fig. 2. The decay scheme of ^{54}Mn.

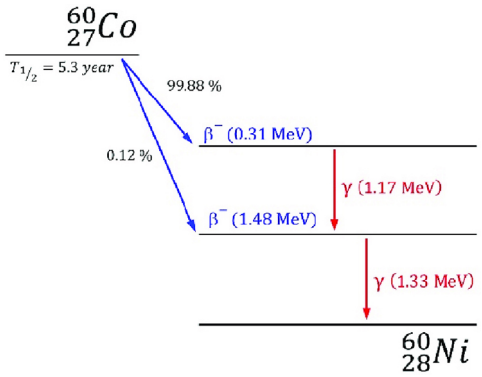

Fig. 3. The decay scheme of ^{60}Co.

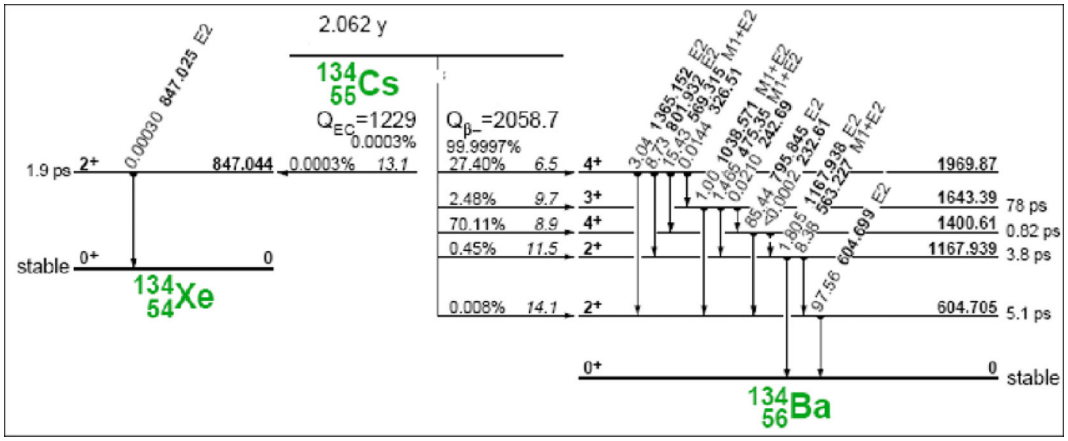

Fig. 4. The decay scheme of ^{134}Cs.

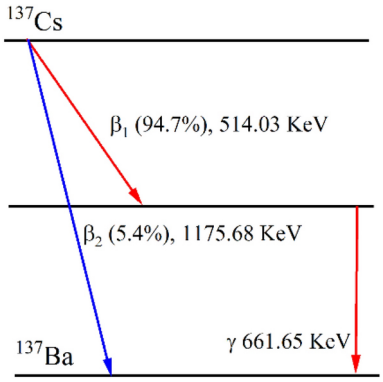

Fig. 5. The decay scheme of ^{137}Cs.

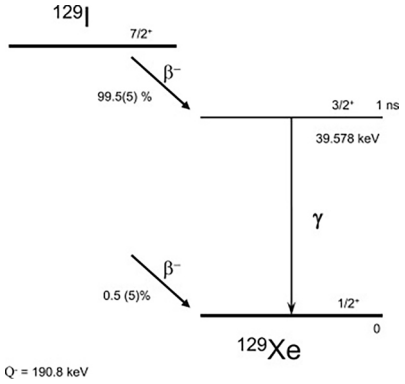

Fig. 6. The decay scheme of ^{129}I.

에서 발생되는 ^{60}Co은 두 번째 반응에 의해 생성되며, 고에너지 감마선을 방출하기 때문에 외부피폭 평가를 위한 선원항에서의 대표 핵종으로 선정하였다.

3. 결 론

본 연구는 원전 해체 시 발생하는 방사화부식생성물을 처리하는 과정에서의 주요 고려사항을 도출하기 위해 연구로서 선원항 관점에서의 주요핵종 선정방법론을 수립하여 대표핵종을 선정하였다. 도출된 ^{60}Co는 고에너지 감마선 및 베타선을 방출하는 특성으로 인해 방사선 피폭관점에서는 매우 중요한 핵종으로 분류된다. 원전 내 주요 기기 및 배관을 구성하는 원소는 중성자 방사화에 의해 Co, Fe, Cr, Ni 등을 포함하는 수많은 방사성핵종이 존재한다. 본 연구에서는 이러한 수많은 핵종을 작업자 피폭선량 시 고려하는 것은 해체작업을 위한 시점에서는 타당하지 않는 것으로 판단하여 주요 핵종을 선정하기 위한 방법론을 도출하였다. 향후 본문에서 도출된 주요 핵종을 활용하여 작업자 피폭선량을 평가하기 위한 후속연구로 연계하여 해체 작업자의 방사선학적 영향평가 연구를 수행할 계획이다.

사 사

본 논문은 산업자원부의 재원으로 한국에너지기술평가원의 지원을 받아 수행된 연구입니다(No. RS-2023-00235379 and No. RS-2024-00419806).

참고문헌

1. Balonov M, et al. 2004. “Application of the Concepts of Exclusion, Exemption and Clearance”. Safety Standards Series No. RS-G-1.7. International Atomic Energy Agency.
2. NSSC Notice No. 2023-7, Aug. 1, 2023. Regulations on the Radioactive Waste Classification and Clearance of Radioactive Waste.
3. You GS, Jung YH, Ju JS, and Shin YJ. 2000. “The Characteristics of Fission Products in Dry Sotred Spent Fuel”. Korea Nuclear Society.
4. Lucuta PG, Palmer BJ, Matzke Hj, and Hartwig DS. 1989. International Conference on CANDU Fuel. Canadian Nuclear Society, Toronto, ON(Canada); 464 p; p 132-146.
5. Almutairi B, et al. 2020. Experimental evaluation of the deadtime phenomenon for GM detector: deadtime dependence on operating voltages. scientific reports. https://doi.org/10.1038/s41598-020-75310-3.
6. Krucińska I, Skrzetuska E, Puszkarz A, and Kawełczyk M. 2022. Assessment of the Impact of Ionizing Radiation Absorption on the Structural, Mechanical and Biophysical Properties of Textiles Used in Multilayer Space Suit. Publisher of Open Access Journals. https://doi.org/10.3390/ma15144992.
7. Qwasmsmeh A. 2008. Environmental Radioactivity in Different Climate Types: Measurement, Terrestrial Transport Process and Radiation Exposure. Doctor’s theis, Dept. physics, Bremen University, Bremen, Germany.
8. Torano EG, et al. 2018. The half-life of 129I. Jounal of Elsevier, Volume 140:157-162, https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2018.06.007.
9. Lee CB. 2017. “Modeling of Corrosion Product Transport in PWR Primary Coolant”, Doctor’s Degree, Massachusetts Institute of Technology.