Journal of Radiation Industry 14(3) : 233~237(2020)

단반감기 기체상 방사성추적자 활용을 위한 차폐운반용기 제작

문진호[1] · 박장근[1] · 양성우[1] · 조만순[1] · 정성희[1,*]

[1]한국원자력연구부 중성자·동위원소응용연구부

Fabrication of Shielding and Transport Container for Short-lived Gaseous Radiotracer

Jinho Moon[1], Jang-Guen Park[1], Sung Woo Yang[1], Man Soon Cho[1] and Sung-Hee Jung[1,*]

[1]*Neutron and Radioisotope Application Research Division, Korea Atomic Energy Research Institute*
111, Daedeok-daero 989 Beon-gil, Yuseong-gu, Daejeon 34057, Republic of Korea

Abstract - To use radioactive Ar-clathrate in industrial field, a shielding and transportation containers have been fabricated that can recover Ar gas with alcohol and inject it into industrial processes. For evaluating the shielding suitability of the transport container, a Monte Carlo simulation was performed. When ^{41}Ar 100 mCi was transported using the container, it was less than 0.4 mSv·h^{-1} at the point where the surface dose rate was highest. In addition, as a result of calculating the internal temperature of the Ar-clathrate during irradiating neutrons, when irradiated at the point where the thermal neutron flux of the HANARO reactor is highest, it is 77°C, so that radioactive argon gas can be stably produced without decomposition or melting of Ar-clathrate.

Key words : Gaseous radiotacer, Clathrate, Monte Carlo simulation

서 론

정유, 석유화학, 제철 공정과 같은 대규모 장치설비의 운영은 대부분 압력과 온도 측정과 감시에 의존하고 있으나, 이러한 방법으로는 공정의 가동 중 내부에서 발생하는 이상현상에 대한 정확한 원인파악에 필요한 상세정보를 획득할 수 없다. 특히, 원유, 촉매, 증기 등과 같은 다상 혼합유체를 다루는 공정에서는 각 물질들에 대한 동력학적 정보 획득을 필요로 한다. 방사성동위원소를 추적자로 활용하면 공정유체의 이동과 분배 등을 선택적으로 탐지하고 2D 또는 3D 형태의 이미지로 이를 형상화할 수도 있다(Charlton 1986). 추적자로 사용할 방사성동위원소는 계측대상 물질의 물리적, 화학적 특성, 공정의 가동조건 등과 함께 방사성동위원소의 반감기와 방출 감마선 세기를 고려하여 선정하여야 한다(IAEA 2001).

대형 장치설비 내부로 투입된 극미량의 방사성추적자는 외부에서 검출이 용이하도록 높은 투과력을 갖는 감마선을 방출하여야 하고, 실험 이후에 회수될 수 없는 실험환경을 고려하여 짧은 반감기를 갖도록 한다. 고체상 또는 액체상 유체의 탐지에 적합한 방사성추적자의 선택 폭에 비하여 기체상 방사성동위원소 후보군은 상대적으로 크지 않다. 기체상 방사성추적자가 공정 내부에서 공정유체와의 흡착 또는 부가반응 없이 안정적으로 유동을 따르게 하기 위해서는 불활성 기체 방사성동위원소가 선호된다.

방사성 기체인 ^{41}Ar은 대형 장치설비의 고하중 구조물을 투과하여 계측하는 데 용이한 1.294 MeV의 감마선 에너지

* Corresponding author: Sung-Hee Jung, Tel. +82-42-868-8057, Fax. +82-42-868-8448, E-mail. shjung3@kaeri.re.kr

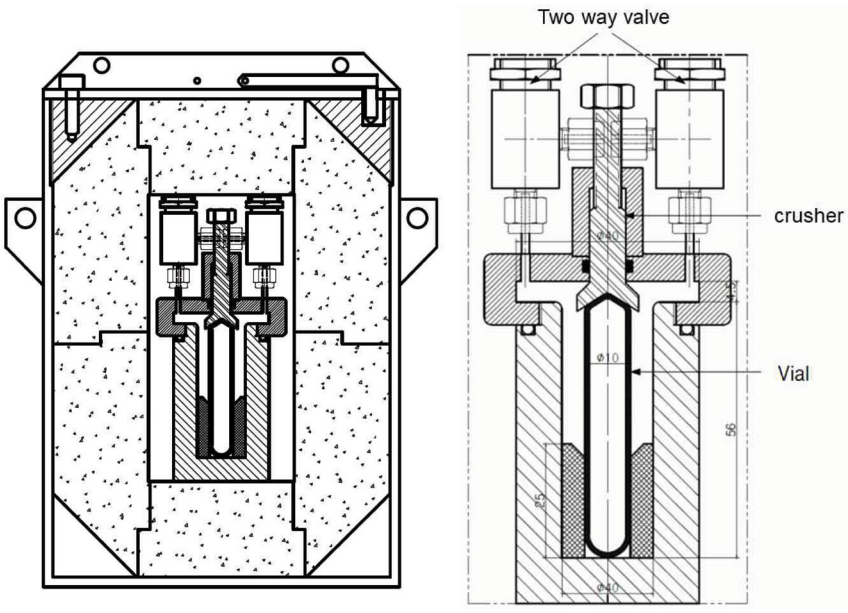

Fig. 1. CAD drawings of radioisotope transport container and gaseous radiotacer extraction device.

와 실험종료 후 잔존 방사능에 대한 우려가 없는 1.83 h의 반감기를 갖고 있는 단원자 불활성 기체로서 다상 공정의 기체상 유체의 거동을 탐지하는 데 매우 적합하다. ^{40}Ar을 석영관 조사용기에 포집한 뒤 중성자 조사하여 (n, γ) 반응으로 ^{41}Ar을 획득할 수 있으나, 원자로에서 생산한 뒤 이를 사용할 산업현장까지 운반하는 과정에서 손실되는 방사능의 양을 고려하여 ^{41}Ar의 생산량을 결정하여야 한다. 기존에는 진공관 (vacuum line)에 석영 조사용기를 연결하고 액체질소를 이용하여 Ar 기체를 냉각 포집 후 불꽃 용접으로 밀봉하는 방법으로 제조하였다 (IAEA 2016). 그러나, 진공상태에 있는 석영유리관을 액체질소에 담근 상태에서 고온 (1600°C 이상) 용접으로 밀봉한 결과물이 작업자와 작업환경에 따라 달라지므로 Ar 기체의 압력에 안정적인 석영유리관을 확보하는 일은 매우 어렵고 실험결과에 대한 성공여부에 결정적인 영향을 끼친다.

하이드로퀴논 (Hydroquinone)의 클래스레이트 (Chlathrate) 화합물은 높은 효율로 기체 원소를 안정적으로 포집하기 위한 매개체로 많은 연구가 이루어졌다 (Park *et al*. 2019; Yoon *et al*. 2019). 하이드로퀴논 클래스레이트의 규칙적으로 배열된 분자 격자 내에 포집된 Ar 기체는 알코올과 같은 용매에 분말을 녹이거나 또는 분말을 고온 (100°C)으로 가열함으로써 회수할 수 있다. Ar 포집 클래스레이트의 안정성에 대한 시간, 온도에 대한 영향은 별도의 논문에 발표한 바 있다 (Jeong *et al*. 2020).

본 논문에서는 ^{41}Ar 담지체인 클래스레이트 화합물의 운반은 물론 산업현장에서 ^{41}Ar을 회수하여 이를 방사성추적자로 사용하기 할 수 있는 차폐체의 설계 제작에 관한 연구와 함께 중성자 조사 조건 하에서 클래스레이트 분말의 안정성 평가 계산결과를 보이고자 한다.

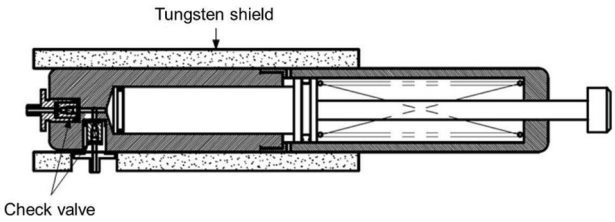

Fig. 2. Gaseous radiotracer injector.

재료 및 방법

1. 차폐용기 설계 요건

방사화된 Ar-클래스레이트를 산업현장에서 사용하기 위하여 운반용 차폐체 내에서 알코올 용매로 융해시켜 방사성 Ar 기체를 회수하고, 산업공정 내부로 주입할 수 있는 시스템을 설계하였다. 추출 시스템은 중성자 조사를 위해 밀봉한 앰풀을 깨트리고, 알코올과 반응시켜 방사성 Ar을 추출하기 위한 추출부 (Fig. 1)와 실험 대상체에 가스상 추적자를 주입할 수 있는 주입장치 (Fig. 2)로 구성된다. 용출 용기는 2개의 밸브와 Ar-클래스레이트가 담긴 쿼츠 바이알을 파쇄할 수 있는 파쇄기로 구성된다. 기체상 방사성 추적자를 회수 및 산업공정 내부로 주입하는 방법은 아래의 절차를 따른다.

① 운반용기의 뚜껑을 제거한 다음 용출용기의 밸브에 진공펌프를 연결한다.
② 용출용기 내부를 진공으로 만든 다음 알코올을 주입한다.
③ 파쇄기를 사용하여 바이알을 깨트리고 15분간 대기한다.
④ 밸브에 주입장치를 연결한 후 피스톤을 뒤로 당겨 방사성 Ar을 회수한다.
⑤ 산업 공정 내부로 방사성 Ar을 주입한다.

기체상 방사성동위원소 주입장치는 역류방지를 위하여 체크밸브를 사용하였으며, 작업자의 피폭을 최소화하고 운반성을 높이기 위하여 텅스텐으로 차폐하였다. 산업공정의 기체상 유체의 유동을 측정하기 위해서 사용하는 기체상 추적자의 방사능은 약 10 mCi 정도이다. 하지만 ^{41}Ar의 짧은 반감기로 인하여 원자로에서 생산한 뒤 이를 사용할 산업현장까지 운반하는 과정에서 감쇄되는 양을 고려하면 50∼100 mCi 정도의 초기 방사능을 고려하여 운반용기를 제작해야 한다. 방사성물질을 운반할 때 운반용기의 최대 방사선량률이 외부 표면에서 2 mSv·h^{-1}, 외부표면으로부터 1 m 이격 거리에서 0.1 mSv·h^{-1}를 초과하지 않아야 하므로, 방사성 기체 추출부는 Fig. 1과 같이 4 cm의 텅스텐으로 차폐한 운반용기에 장착될 수 있도록 설계하였다.

2. 차폐용기의 차폐적정성 평가

^{41}Ar이 포집된 클래스레이트용 운반용기의 차폐적정성 평가를 위하여 MCNP6 몬테칼로 전산모사 시뮬레이션을 수행하였다(Werner *et al*. 2018). 그림 Fig. 3은 MCNP6을 이용하여 구현된 차폐용기를 나타낸다. 스테인리스 스틸은 보수적인 차폐계산을 위하여 가장 밀도가 낮은 409번(밀도: 7.8 g·cm^{-3})으로 고려하였으며, 물성정보는 Pacific Northwest National Laboratory의 자료를 참고하였다(McConn Jr. *et al*. 2011). MCNP6 전산모사를 통해 선량 값을 획득하기 위해서는 플루언스-선량 환산인자의 적용이 필요하며, 본 연구에서는 ICRP 권고사항(ICRP-116)에 명시된 환산인자를 적용하였다(Petoussi-Henss *et al*. 2010). ICRP-116에서는 방사선입자의 입사 방향에 따라서 환산인자를 다르게 정의하고 있으나, 선량의 보수적인 평가를 위하여 Table 1과 같이 에너지마다 가장 큰 수치의 환산인자를 사용하도록 고려하였다.

몬테칼로 기반의 선량 계산을 위하여 ^{41}Ar이 포집된 클래스레이트는 쿼츠 앰풀이 아닌 내부 용기에 가득 차 있다고 가정하였으며, ^{41}Ar로부터 발생하는 감마선은 내부 용기 내 임의의 위치에서 발생하여 임의의 방향으로 수송되도록 전산모사하였다. 표면선량은 외부 용기로부터 위, 아래, 옆으로 10 cm 떨어져 위치한 곳에서 측정되었다.

3. 클래스레이트에 대한 중성자 조사 영향

연구용 원자로 하나로에서 클래스레이트의 중성자 조사에 의한 ^{41}Ar의 생성 방사능량을 평가하였다. 클래스레이트

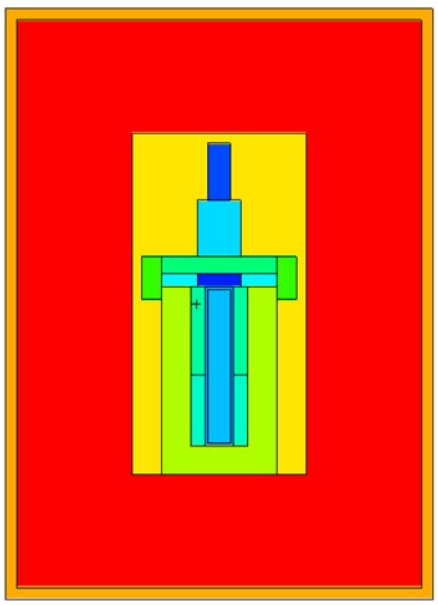

Fig. 3. Simulation geometry for shielding calculation of transport container.

Table 1. Effective dose per fluence (ICRP-116)

Energy [MeV]	Factor [pSv·h^{-1}]	Energy [MeV]	Factor [pSv·h^{-1}]	Energy [MeV]	Factor [pSv·h^{-1}]	Energy [MeV]	Factor [pSv·h^{-1}]
0.01	0.0685	0.008	0.444	0.6	2.91	3	9.75
0.015	0.156	0.1	0.519	0.622	3.17	4	11.7
0.02	0.225	0.15	0.748	0.8	3.73	5	13.4
0.03	0.313	0.2	1	1	4.49	6	15
0.04	0.351	0.3	1.51	1.177	4.9	6.129	15.2
0.05	0.37	0.4	2	1.33	5.59	8	18.6
0.06	0.39	0.5	2.47	1.5	6.12	10	22
0.07	0.413	0.511	2.52	2	7.48		

의 중성자 조사는 일반적인 동위원소 생산 방법과 동일하게 IP5 조사공에서 수행된다고 가정하였으며, 클래스레이트는 알루미늄으로 밀봉된 용기(캡슐)에 담겨 동위원소 생산용 리그에 장착된다. 클래스레이트에 흡착될 수 있는 Ar의 최대량은 10.06 wt%이므로(Jung and Yoon 2019) 본 해석에서는 1 mg의 클래스레이트에 Ar이 0.1 mg이 포집되어 있는 것으로 가정하였다. 중성자 조사에 의해 생성되는 ^{41}Ar의 방사능은 아래의 식으로 계산된다.

$$Radioactivity\ \text{of}\ ^{41}Ar = N_{40Ar}\Phi\sigma_{40Ar}(1-e^{-\lambda t})$$

여기서, N_{40Ar}은 ^{40}Ar의 원자수, Φ는 클래스레이트에 입사되는 중성자속, σ_{40Ar}은 ^{40}Ar의 (n, γ) 중성자 흡수 단면적, λ는 ^{41}Ar의 붕괴상수, t는 조사시간이다. 다른 변수들과 달리 클래스레이트에 입사되는 중성자속의 경우 중성자원이 하나로 핵연료이고 IP5 조사공은 반사체 영역에 위치하기 때문에 정확한 평가를 위해서는 하나로 전체를 대상으로 중성자 수송계산이 필요하다. 이를 위해 하나로에서의 조사시험 해석을 위해 사용 중인 MCNP6를 활용하였다. Fig. 4는 클래스레이트의 하나로 조사에 의한 ^{41}Ar 생성량 평가를 위해 사용된 해석 모델을 나타낸 것인데, 하나로 노심을 기준으로 좌측 하단에 위치한 IP5 조사공과 장착된 동위원소 생산용 리그를 보여준다. 하나로 전출력(30 MW) 운전을 기준으로 클래스레이트의 열중성자속(<0.625 eV)은 약 6.4×10^{13} n·cm^{-2}s^{-1}으로 나타났다. 또한, 하나로의 IP5 조사공에서 중성자 조사 중에 시료와 주변 구조물이 중성자와 반응하여 감마선이 발생하게 되는데, 이에 의해 시료가 발열하게 된다. 하이드로퀴논의 녹는점은 172°C, 끓는점은 287°C이며 이는 상대적으로 낮은 편에 속하기 때문에 조사시험에 따른 시료의 안전성이 평가되어야 한다. 시료의 조사 중 온도를 평가하기 위해 하나로에서 다양한 조사시험 평가용으로 사용되고 있는 1차원 온도계산 프로그램인 GENGTC (Roland 1967)를 사용하여 샘플의 온도를 전산모사하였다.

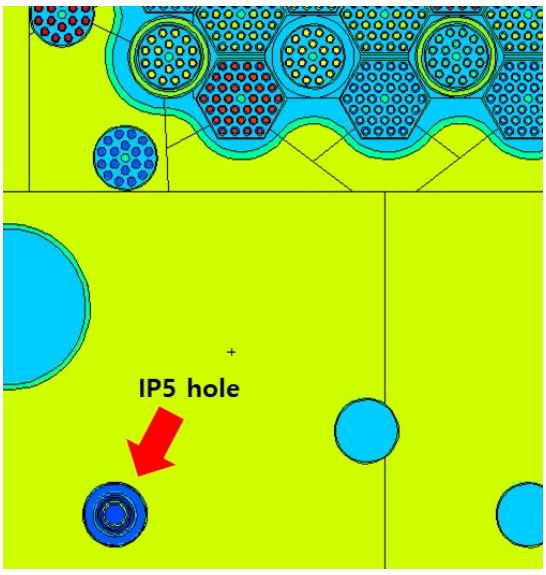

Fig. 4. MCNP simulation geometry of neutron irradiation in HANARO reactor.

결과 및 고찰

1. 차폐용기의 차폐적정성 평가

Table 2는 추출용기 내부에 50 혹은 100 mCi의 ^{41}Ar 포집되어 있을 경우에 대한 표면선량을 나타낸다. 표에서 볼 수 있듯이 ^{41}Ar 50, 100 mCi에 대한 표면선량률(10 cm)은 위치와 관계없이 2 mSv·h^{-1} 이하로 나타났으며, 이에 설계된 차폐용기가 50, 100 mCi에 해당하는 ^{41}Ar의 운반에 사용 가능하다는 것을 확인할 수 있었다. 참고로, 계산결과에 따르면 해당 차폐용기는 ^{41}Ar을 최대 500 mCi까지 운반 가능하다.

2. 클래스레이트에 대한 중성자 조사 영향

Fig. 5는 클래스레이트의 중성자 조사시간에 따라 생성된 ^{41}Ar의 방사능을 나타낸 것이다. ^{41}Ar의 반감기가 109분으로 짧기 때문에 약 10시간의 조사로 충분히 포화되는 것을 확인할 수 있다. Ar이 최대로 포집된 1.1 mg의 클래스레이

Table 2. Surface dose rate (10 cm) of transport container for ^{41}Ar 50 and 100 mCi

Position	Dose rate (50 mCi) [mSv·h^{-1}]	Dose rate (100 mCi) [mSv·h^{-1}]
Top	7.30×10^{-2}	1.46×10^{-1}
Bottom	1.98×10^{-1}	3.96×10^{-1}
Side	7.24×10^{-2}	1.45×10^{-1}

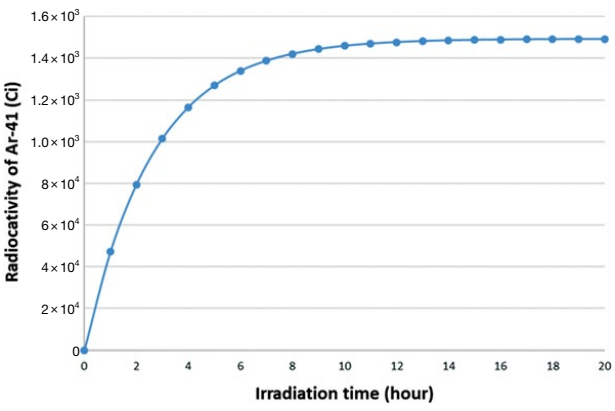

Fig. 5. Produced radioactivity of ^{41}Ar according to neutron irradiation time.

트(Ar 0.1 mg 포함)를 사용하여 생성되는 포화 ^{41}Ar 방사능량은 1.49 mCi이다. ^{41}Ar은 시료의 양을 증가 또는 감소시키거나 하나로의 출력 변화를 통해 생성되는 방사능의 조절이 가능하며, 실제로 ^{41}Ar 생산 시에는 효율성을 고려하여 최대 생성량의 54%가 생성되는 2시간의 조사시간이면 충분할 것으로 보인다. 이에 따라 138 mg의 Ar-클래스레이트를 2시간 조사하면 약 100 mCi의 ^{41}Ar을 생산할 수 있다. 클래스레이트에 포집된 양은 12.9 mg이며, 기존의 방법대로 직경 7 mm, 높이 40 mm의 석영 유리관에 밀봉할 경우 그 압력은 4.7 atm에 달한다.

동위원소 생산용 리그 및 캡슐을 활용한 클래스레이트 중성자 조사시험의 경우 하나로 전출력 운전 조건에서 리그 내 가장 높은 중성자속을 보이는 곳에 위치한 시료 중심의 온도는 103°C로 나타났다. 이 결과는 시료 용기를 헬륨으로 채운 조건에서의 평가 결과로서 시료 용기 주변부를 알루미늄으로 채웠을 때 시료 중심의 온도를 77°C로 하강시킬 수 있었다. 원자로 출력을 3MW로 감발했을 경우 시료 중심의 온도는 약 43°C로 나타났다. 따라서 캡슐의 구조변화 및 원자로 출력 변화에 의해 시료의 온도를 낮추면 성질변화를 최소화할 수 있어 하나로에서 조사시험을 충분히 수행할 수 있을 것으로 판단된다.

결 론

본 연구는 ^{41}Ar 담지체인 클래스레이트 화합물의 운반은 물론 산업현장에서 추가적인 방사선 피폭과정을 배제하면서 ^{41}Ar을 회수하여 진단대상인 설비공정 내부로 주입할 수 있는 차폐용기를 제작하였다. 해당 차폐용기는 ^{41}Ar 100 mCi를 운반하더라도 표면선량률이 가장 높은 지점에서 0.4 $mSv \cdot h^{-1}$ 이하로 나타났다. 방사선 안전관리 등의 기술기준에 관한 규칙에 의거 운반용기 외부표면에서의 방사선량률 2 $mSv \cdot h^{-1}$ 기준으로 최대 505 mCi까지 운반 가능한 것으로 나타났다. 또한, 중성자 조사 안정성을 위해 중성자 조사 시 샘플 내부 온도를 계산한 결과 연구용 원자로 하나로의 전출력 운전 시 열중성자속이 가장 높은 지점에서 조사할 경우 클래스레이트의 온도가 103°C로 나타났다. 시료 주위를 알루미늄으로 채워 열발산을 높이면 77°C까지 내릴 수 있으므로, Ar-클라스레이트의 분해나 용융 없이 안정적으로 방사성 Ar을 생산할 수 있는 것으로 나타났다. 해당 기체상 방사성추적자 차폐 및 주입장치는 정유/석유화학산업 공정의 기체상 유체 거동 특성 파악뿐만 아니라 온실가스 배출권 거래에 따른 온실가스 배출량 직접측정 등에 사용될 예정이다.

사 사

본 연구는 과학기술정통부의 재원으로 한국원자력연구원의 주요사업(524430-20)에 의해 수행되었으며, 그 지원에 감사드립니다.

참 고 문 헌

Charlton JS. 1986. Radioisotope Techniques for Problem-Solving in Industrial Process Plants, Springer Netherlands.

IAEA. 2001. Raiotracer techniques as applied to industry. IAEA-TECDOC-1262. Vienna, Austria.

IAEA. 2016. Meeting report of The IAEA technical meeting on specific application of research reactors: Production an Use of Radiotracers. Vienna, Austria.

Jeong JH, Woo Y, Jang J, Moon J, Park JG, Jung SH, Bang Y, Lee Y and Yoon JH. 2020. Structural stability and guest occupation behavior of gamma-irradiated argon-loaded hydroquinone clathrates. Radiat. Phys. Chem. **174**:108982.

Jung SH and Yoon JH. 2019. A study on preparation of HQ clathrate as gaseous radiotracer carrier, 7th international conference on radiation in various fields of research, Montenegro.

McConn Jr RJ, Gesh CJ, Pagh RT, Rucker RA and Williams III RG. 2011. Compendium of Material Composition Data for Radiation Transport Modeling, PNNL-15870 Rev. 1.

Park KH, Jeong D, Yoon JH and Cha M. 2019. Experimental measurements of phase equilibria conditions for methane hydrates containing methanol/ethylene glycol and NH_4Cl solutions. *Fluid Phase Equilibria* **493**:43-49.

Petoussi-Henss N, Bolch WE, Eckerman KF, Endo A, Hertel N, Hunt J, Pelliccioni M, Schlattl H and Zankl M. 2010. Conversion Coefficients for Radiological Protection Quantities for External Radiation Exposures, ICRP Publication 116.

Roland, HC. 1967. GENGTC: A One Dimensional CEIR Computer Program for Capsule Temperature Calculations in Cylindrical Geometry, ORNL-TM-1942.

Werner CJ, Bull JS, Solomon CJ, Brown FB, McKinney GW, Rising ME, Dixon DA, Martz RL, Hughes HG, Cox LJ, Zukaitis AJ, Armstrong JC, Forster RA and Casswell L. 2018. MCNP Version 6.2 Release Notes. United States.

Yoon SJ, Lee D, Yoon JH and Lee JW. 2019. Swapping and Enhancement of Guest Occupancies in Hydroquinone Clathrates Using CH_4 and CO_2. *Energy Fuels* **33**:6634-6640.

Received: 23 June 2020
Revised: 20 July 2020
Revision accepted: 14 August 2020