Journal of RADIATION INDUSTRY
Vol. 19, No. 4, pp. 509-515, 2025
https://doi.org/10.23042/radin.2025.19.4.509

Technical article

해체폐기물 내 ^{59}Ni 및 ^{63}Ni 핵종 농도비 평가를 위한 분석 사례 연구

김규현[1] · 한승재[1,*]

[1](주)코라솔 대덕연구센터

Research of Case Study Analysis for the Evaluation of ^{59}Ni and ^{63}Ni Concentration Ratio in Nuclear Decommissioning Waste

Gyuhyeon Kim[1] and Seungjae Han[1,*]

[1]Korasol Co., Ltd., Daedeok Research Center, Deogam-ro 213, Daedeok-gu, Daejeon 34329, Republic of Korea

ABSTRACT Reliable radionuclide analysis of activated metals and concrete waste generated during nuclear power plant decommissioning is an essential procedure for ensuring radiological safety and establishing disposal strategies. In particular, the long-lived activation products ^{59}Ni and ^{63}Ni are difficult to analyze, requiring expensive instrumentation, which poses limitations to quantitative analysis. In this study, eight analytical cases conducted on research and power reactors, both domestic and abroad, were reviewed, and the measured and calculated ratios of ^{59}Ni and ^{63}Ni concentrations were compared. As a result, it was confirmed that, based on the known ^{59}Ni and ^{63}Ni ratio ($\simeq$144) derived from previous studies and core history-based activation calculations, this ratio can be used as a constant for predicting one value when the other is known, provided that an allowable margin of error is applied. These results are expected to contribute as a supplementary tool for the analysis of the difficult-to-measure radionuclides ^{59}Ni and ^{63}Ni, thereby facilitating the efficient classification and management of radioactive waste.

Key words: ^{59}Ni, ^{63}Ni, Radionuclide Analysis, Decommissioning Waste, Scaling Factor

1. 서 론

우리나라 최초의 원전 고리1호기 원자력발전소는 2017년 영구 정지 이후 조만간 해체를 앞두고 있으며, 이에 따라 방사성폐기물의 정밀한 방사선 분석이 요구된다. 해체 시 대량으로 발생하는 방사성폐기물(해체폐기물)은 원자력안전위원회 고시 제2024-13호 중·저준위 방사성폐기물 인도 규정[1]에 따라 폐기물 내 핵종 및 그 농도를 규명해야 한다. 방사성폐기물 특성화를 위해 중요한 동위원소 가운데 방사성 니켈 ^{59}Ni와 ^{63}Ni은 원전 구조물 내 안정 니켈 동위원소 ^{58}Ni와 ^{62}Ni의 중성자 방사화 생성물로서 ^{59}Ni은 반감기가 76,000년이며 6.93 keV x-선을 방출하고, ^{63}Ni은 반감기가 100년이며, 최대에너지 66.9 keV의 베타입자를 방출한다. ^{59}Ni는 스테인리스강 및 인코넬 계열의 구조재료에서 중성자 포획반응으로 생성되며, 그 특성상 처분시설의 방사선 안전성을 평가하는 데 핵심적인 핵종이다. ^{59}Ni는 ^{58}Ni에서 열 중성자로 조사하여 형성되고 ^{60}Ni에서 고속 중성자로 조사하여 형성되는 방사화 생성물로서 가동 중인 원자로에서 ^{59}Ni의 공급원은 원자로의 오스테나이트강과 냉각수에 용해된 니켈의 방사화 및 노심에 침적된 부식 입자이다. 한편, ^{63}Ni은 열중성자 조사에 의해 ^{62}Ni로부터 형성되는 방사화 생성물이고, 고속 중성자에 의해 ^{66}Zn 및 ^{63}Cu으로부터 생성되는 방사화 생성물이다. 천연 Ni의 동위원소 성분은 Table 1과 같으며[2] 원자로의 구조물에 포함된 ^{58}Ni (67.8%) 및 ^{62}Ni (3.7%) 성분 함량에 따라 중성자 방사화에 의한 각각 다른 농도의 ^{59}Ni와 ^{63}Ni 핵종을 생성한다. 한국원자력연구원의 연구로 2호기의 경우 해체 당시에 수조 콘크리트 내의 천연 Ni의 성분은 1.55×10^{-4}wt%로 분포하는 것으로 보고되었다[3]. 이러한 니켈 동위원소는 반감기가 길고 감마선을 방출하지 않는 붕괴 특성 때문에 '측정이 어려운 방사성핵종(DTM, Difficult-To-Measure radionuclides)'으로 분류되며, ^{63}Ni은 중요한 부식 생성물로서, 일반적으로 다른 어떤 부식 생성물보다도 폐기물 분류에서 중요한

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

Copyright© 2025 by Korean Society of Radiation Industry

*Corresponding author: Seungjae Han
Tel: +82-70-4837-1107, Fax: +82-70-4009-2151, E-mail: sjhan975@gmail.com

Received 29 October 2025 Revised 4 November 2025 Accepted 9 December 2025

Table 1. Isotopic Composition of Natural Nickel [2]

	^{58}Ni	^{60}Ni	^{61}Ni	^{62}Ni	^{64}Ni
Abandunce (%)	67.77	26.16	1.25	3.66	1.16

영향을 가지는 동위원소이다[4].

원자로 내에서 발생한 중성자에 의한 방사화에 의한 방사성 니켈 핵종 ^{59}Ni와 ^{63}Ni 원자수의 생성율 및 방사성 붕괴율의 계산은 이론적으로 가능하다. 중성자 조사에 의한 방사성핵종 생성 및 방사성 붕괴 및 흡수로 인한 소멸을 포함하는 핵종 균형 방정식으로부터 ^{59}Ni와 ^{63}Ni 핵종 농도를 이론적으로 계산할 수 있는 방법들이 제시되었다[5]. 한편, 방사화학분석에 의한 니켈(Ni)의 정제에 널리 사용되는 방법 중 하나는 디메틸글리옥심(DMG)을 이용한 침전법이 잘 알려져 있다. 암모니아 용액 내에서 Ni 원소가 보라색 킬레이트 착화합물인 $Ni(C_4H_7O_2N_2)_2$로 침전되며, DMG와 착화합물을 형성하는 금속이 거의 없기 때문에, 이 공정을 통해 Ni은 다른 화학 원소들로부터 선택적으로 분리될 수 있다[5]. 이렇게 분리된 Ni 동위원소 중 ^{63}Ni은 액체 섬광 계수법(Liquid Scintillation Counting, LSC)을 통해 비교적 용이하게 분석할 수 있으며, Ni 방사성핵종에 대한 계수 효율이 높기 때문에, 일반적으로 ^{63}Ni의 방사능 농도를 측정하기 위해 사용된다. 그러나 연속적인 베타 스펙트럼만으로 방사성핵종을 식별하는 것은 어렵기 때문에, 측정 전에 폐기물 매트릭스로부터 ^{63}Ni을 완전히 분리하고, 다른 베타 방출 핵종과도 분리하는 것이 필수적이다. 전자포획(Electron Capture)에 의해 붕괴하는 ^{59}Ni는 6.9 keV의 전 에너지 피크를 이용한 x-선 분광법을 통해 동일한 침전물 내에서 측정할 수 있다.

본 논문은 국내외 연구용 및 발전용 원자로의 방사성폐기물의 ^{59}Ni와 ^{63}Ni 농도비 (^{63}Ni/^{59}Ni) 분포에 대한 조사 결과를 기술한다. 원자로 형태, 가동/해체 상태 및 폐기물 유형별로 방사성폐기물의 ^{63}Ni/^{59}Ni의 실제 분석값 및 계산값 데이터를 비교 및 검토하였다. 또한, 실제 폐기물 분석에서 얻은 ^{63}Ni 분석 결과를 이용하여 DTM 핵종 ^{59}Ni의 방사능 농도를 예측할 수 있는 상수값으로서의 사용이 가능한지를 검토하였다.

2. 재료 및 방법

2.1 ^{63}Ni/^{59}Ni 계산

원자로 내에서 운전 중에 발생하는 방사화 니켈 핵종의 생성 및 방사성 붕괴 현상은 이론적으로 묘사가 가능하다. 중성자 플럭스의 평균값(상수), 중성자가 조사된 시료 부피 및 총평균 흡수단면적으로 표현되는 해석적 미분방정식을 풀면 방사화 생성물의 방사능량을 산출할 수 있다. 예를 들면, 가동 중인 원자로 내의 방사화 핵종 ^{63}Ni의 방사능은 매질의 단위 부피당 표적핵을 포함하는 원자의 수, N_{62}, 방사화 핵반응에 대한 흡수(포획) 단면적의 평균값, σ_{62}는 매질에 입사하는 중성자 플럭스의 평균값, ϕ, 매질 부피, V, 생성된 방사성핵종의 방사성 붕괴 상수, λ_{62}, 및 총조사 시간, t를 고려하면, $A_{63}=\lambda_{63}N_{63}=\lambda_{63}N_{62}\sigma_{62}\phi Vt$으로 표현된다. 또한 매질에 존재하는 ^{62}Ni 표적 핵의 동위원소 존재비를 f라고 하면 조사(Irradiation) 이전의 시료 단위 부피당 원자 수는 $N_{62}=f_{62}N$이므로 ^{63}Ni의 방사능은 $A_{63}=f_{62}N\lambda_{63}\sigma_{62}\phi Vt$이 되고, 같은 방법으로 ^{59}Ni의 방사능은 $A_{59}=f_{58}N_c\lambda_{59}\sigma_{58}\phi Vol_it$이 된다. 여기서 ^{62}Ni과 ^{58}Ni의 포획단면적, 동위원소존재비 및 반감기는 각각 $\sigma_{62}=14.5\pm0.3$b, $\sigma_{58}=4.5\pm0.3$b, $f_{58}=68\%$, $f_{62}=3.6\%$, $T_{59}=7.6\times10^4$ y 및 $T_{63}=100$ y이고, 이러한 수치로부터 Taddei MHT *et al.* [5]는 방사성 니켈 핵종의 방사능비 $A_{63}/A_{59}=120\sim140$를 도출하였다. 컴퓨터를 이용한 계산 방법으로는 원자로에 대해 1차원 확산 코드 ANISN (평판, 원통 또는 구형 기하에서의 1차원 볼츠만 수송 방정식을 푸는 FORTRAN IV 프로그램)을 이용하여 상세한 중성자 수송을 계산하고, 중성자 수송 데이터와 조성 데이터를 결합하여, ORIGEN (Oak Ridge Isotope GENeration (ORIGEN) code) 코드를 통해 예상 방사화 준위를 계산한다. 이러한 이론적 계산은 오래전부터 미국 등 대부분의 원자력 선진국들이 원자로 핵임계와 더불어 사용해 온 친숙한 방법의 하나로 알려져 있다.

2.2. 분석사례 조사

Table 2는 본 연구를 통하여 조사한 국내외 연구용 원자로 및 발전용 원자로에 대하여 각각 가동 중 또는 해체 시 채취된 시료별 방사화 생성물 ^{59}Ni와 ^{63}Ni의 분석 사례 현황을 나타낸다. Table 2에서와 같이 분석 사례 조사는 연구용 원자로와 발전용 원자로에 대하여 각각 가동 중 연구용 원자로, 해체 연구용 원자로에 대해 조사하였고, 가동 중 발전용 원자로 및 해체 발전용 원자로에 대하여 수행하였다. Table 2에 나타낸 바와 같이 원자로 형태는 연구용 원자로(NRR)와 발전용 원자로(NPP)로 원자로의 상태는 가동 중(OP) 및 해체(DC) 원자로로 구분하였으며, 각 사례에서 대표적인 시료를 기술하였으며 시료마다 확인코드를 부여하였다. 조사는 ^{59}Ni와 ^{63}Ni 시료의 종류, 핵종 분석 방법 및 이론적인 평가 결과들로 구분하여 수행하였다. 특히, 조사한 ^{59}Ni와 ^{63}Ni의 방사능 농도로부터 ^{63}Ni/^{59}Ni를 계산하여 시료별로 분류하고 분석하였다.

Table 2에서 사례 A는 국내 최초의 연구로인 한국연구로(Korea Research Reactors, KRR) 1호기 및 2호기(TRIGA Mark-II 및 TRIGA Mark-III)의 1997년 해체 시 발생된 필터, 레진, 플라스틱 및 의복과 같은 2차 방사성폐기물로부터 채취한 공기필터 및 공기 및 물 필터 혼합물 시료에 대한 ^{59}Ni 및 ^{63}Ni의 평균 방사능

Table 2. Overview of Domestic and International Analytical Cases for Reactor-Activated ^{59}Ni and ^{63}Ni

Cases	Reactor type[1)]	Reactor status[2)]	Sample	Sample type	Sample description	Reference
A	NRR	DC	Filters Waste Samples	A	Analysis of Activated Nickel in Radioactive Wastes from the Decommissioning of Korea's First Research Reactor	Suh K *et al.* [6]
B	NRR	OP	Irradiated Nickel Sample	B	Analysis of Irradiated Nickels in Metal and Reactor Coolant Filter Resins from a Research Reactor	Song BC *et al.* [7]
C	NPP	OP	DAW[2)]	C	Analysis of Domestic Nuclear Power Plant's Dry Active Waste (DAW) in 200 L Drum	Jung KI *et al.* [8]
UA	NPP	OP	SS304L Inconel Bioshield	UA-1 UA-2 UA-3	Calculation of ^{59}Ni and ^{63}Ni Assessment of Radionuclide Production	Evans JC *et al.* [9]
UB	NPP	OP	SS304 Inconel Spent Ion-exchange Resins	UB-1 UB-2 UB-3	Scaling Factor in Low-level Waste (LLW) from Operating Nuclear Power Plants and ^{59}Ni and ^{63}Ni Assessment of Radionuclide Production	Robertson DE *et al.* [10]
UC	NPP	DC	Core Baffle Core Barrel Vessel Wall Bioshield	UC-1 UC-2 UC-3 UC-4	30 Effective Full Power Years (EFPY) ^{59}Ni and ^{63}Ni Radionuclide Assessment for Metals and Bioshields Related to the Decommissioning of the Trojan NPP, U.S.	Trojan NPP [11]
UD	NRR	OP	Spent Ion-exchange Resins Spent Activated Charcoal	UD-1 UD-1	Calculation of the Average Activity Concentration Ratio of ^{59}Ni and ^{63}Ni Measured in the Radioactive Waste Matrix	Taddei MHT *et al.* [5]
UE	NPP	OP	Reactor Coolant etc.	UE	Radiochemical Analysis of Waste Stream Samples from Operating Nuclear Power Plants and Establishment of a 10 CFR Part 61 Radionuclide Concentration Database	Cline JE *et al.* [9]

[1)]NRR: Research Reactor, NPP: Nuclear Power Plant, OP: Operating Reactor, DC: Decommissioning Reactor
[2)]Dry Active Waste (DAW) from Nuclear Power Plants (200 L drum)

농도 분석 사례이다. 시료에서 ^{59}Ni 방사능은 일부 시료를 제외하고 최소검출한계(MDA) 이하이었기 때문에 거의 검출되지 않았다. 반면, ^{63}Ni는 모든 시료에서 검출되었으므로 두 핵종의 비율을 비교할 수 있는 데이터를 확보하였다[6].

사례 B에서는 연구용 원자로 내 Ni의 방사화된 금속이나 냉각수에 존재하는 핵종들을 포집하는 수지(resin) 방사성폐기물에서 채취한 시료의 분석 결과로써, DMG를 사용하여 얻은 Ni $(DMG)_2$ 침전물을 처리하여 저에너지 감마선 분광분석기 및 액체섬광계수기를 사용하여 ^{59}Ni 및 ^{63}Ni의 방사능 농도를 측정하였다[7].

사례 C는 국내 원전 잡고체 폐기물(DAW) 시료의 분석 결과로써 처분장에서 수행한 200 L 드럼에 대한 분석 결과이다. 잡고체 폐기물의 처분 검사와 관련하여 개별포장물의 방사능량 산출, 비방사능을 기준으로 산출한 준위별 핵종별 포장물 당 평균 비방사능과 방사능량을 근거로 측정한 ^{59}Ni 및 ^{63}Ni의 방사능 농도를 사용하였다[8].

사례 UA는 스텐리스스틸 및 인코넬에 대하여 ^{59}Ni 및 ^{63}Ni의 계산값을 구하고, 생물학적 차폐체(Bioshield)에 대한 계산값을 평가한 사례이다. 연료 지지 구조물(Fuel Support Structure)로부터 계획된 정기 정비 정지 기간 중에 제거하여 절단된 304L형 스테인리스강(UA-1)과 718형 인코넬(Inconel)(UA-2) 시료 및 304L형 스테인리스 노심 지지 핀 시료의 방사화학분석 및 계산을 수행하였다. 그러나, 원자로에서 채취한 일련의 콘크리트 시료는 분석으로부터 유의미한 결과는 없었다. 실제로, 시료 채취 대상 Bioshield의 고방사화 영역에 접근할 수 없었기 때문에, 높은 감쇠를 거친 중성자 플럭스를 받는 영역에서 시료를 얻을 수밖에 없었다. 시료에 대하여 방사성핵종으로부터 니켈 동위원소 분리는 킬레이트제와 홀드백 담체의 존재하에서 DMG로 침전시키는 방법을 사용하였다. 니켈은 황산 매질에서 스테인리스강 디스크 위에 전기도금한 후 ^{59}Ni은 두께 0.13 mm의 베릴륨 창을 가진 다이오드를 사용하여 특성 코발트 K x-선이 측정되었다. ^{63}Ni 방사능 농도는 화학적 분리 후 LSC를 통해 측정되었다[9].

Table 3. Evaluated ^{63}Ni to ^{59}Ni Ratios of Activated Nickel for Selected Domestic and International Radioactive Waste Cases

Cases	Reactor type[1)]	Reactor status[2)]	Sample	Sample type	$^{63}Ni/^{59}Ni$	
					Measured	Calculated
A	NRR	DC	Filter Waste Samples	A	93	-
B	NRR	OP	Irradiated Nickel Samples	B	150[3)]	-
C	NPP	OP	DAW	C	20[3)]	-
UA	NPP	OP	SS304L	UA-1	54	159
			Inconel	UA-2	102	156
			Bioshield	UA-3	-	125
UB	NPP	OP	SS304	UB-1	115±32	-
			Inconel	UB-2	129±44	-
			Spent Ion-exchange Resins	UB-3	107±25	-
UC	NPP	DC	Core Baffle	UC-1	-	169
			Core Barrel	UC-2	-	147
			Vessel Wall	UC-3	-	145
			Bioshield	UC-4	-	135
UD	NRR	OP	Spent Ion-exchange Resins	UD-1	132±58	131
			Spent Activated Charcoals	UD-2	131±66	131
UE	NPP	OP	Reactor Coolant etc.	UE	57±31	-

[1)]NRR: Research Reactor, NPP: Nuclear Power Plant, OP: Operating Reactor, DC: Decommissioning Reactor
[2)]Dry Active Waste (DAW) from Nuclear Power Plants (200 L drum)
[3)]The median was obtained from the data given in ranges.

사례 UB는 저준위방사성폐기물 내 방사능 척도인자(Scaling Factor) 및 ^{59}Ni 및 ^{63}Ni 방사성핵종 생성을 평가함으로써 측정값의 정확도를 평가하기 위해 수행된 사례이다. SS304, Inconel의 방사화 금속과 Spent Ion-exchange Resins 내의 니켈 방사성핵종을 분석하였다[10].

사례 UC는 미국 Trojan NPP의 해체와 관련하여 계산된 스텐리스스틸 및 차폐 콘크리트(Bioshield Concrete)의 30 유효전출력년수(EFPY)에 대하여 ^{59}Ni 및 ^{63}Ni 방사성핵종을 평가한 사례이다[11].

사례 UD에서는 연구용 원자로의 방사성폐기물 매질에서 채취한 28개의 이온교환수지 시료 및 24개의 활성탄 시료를 분석하여 $^{63}Ni/^{59}Ni$의 평균값을 계산하였다. 또한 측정값을 원자로의 조사조건에서 이론적으로 도출된 값과 비교하였다[5].

사례 UE에서는 가압 경수형 원자로(PWR)와 비등 경수형 원자로(BWR) 등 50기 이상의 상업 운전 원자로에서 발생하는 전형적인 폐기물 스트림(Waste Streams) 시료에 대한 방사화학분석을 수행하여 10 CFR Part 61 핵종 농도 대규모 데이터베이스를 구축한 사례이다[4]. 화학분리 방법으로는 다음과 같은 절차가 이용되었다. 슬러지 및 수지와 같은 고체 시료는 혼합 강산으로 용해하여 용해된 고체 또는 액체 시료의 일부를 분석용으로 채취하였다. 니켈은 NH_4OH로 $Fe(OH)_3$를 침전시켜 오염 핵종으로부터 분리하였다. 암모니아 착물로 용액 중에 남아있는 니켈은 DMG와의 특이적 침전을 통해 추가적인 제염이 수행되었다. 이 착물은 1:1 HNO_3 : $HClO_4$ 혼합액으로 용해한 후 건조될 때까지 가열하여 유기물을 분해하였다. 생성된 염은 용해시킨 뒤 부피를 10 mL로 정밀 희석하였으며 수율은 원자 흡수분석으로 측정하였다. ^{63}Ni의 방사능은 LSC으로, ^{59}Ni의 방사능은 박형 창 NaI (Tl) 검출기를 사용하여 측정하였다.

Table 2의 사례 외에도, Konzek GJ *et al*. [12]은 참조 연구용 원자로의 해체와 관련하여 스텐리스스틸 및 차폐 콘크리트(Bioshield Concrete)의 30 유효전출력년수(EFPY)에 대하여 ^{59}Ni 및 ^{63}Ni 방사능 농도를 계산하였다. 또한, 본 연구에서는 미국 및 스웨덴과 같이 서로 다른 국가 간 원자로 형태에서 원전 내부 구조물의 구성 요소별(Shroud, Core Barrel, Cladding) 방사화 ^{59}Ni 및 ^{63}Ni의 농도를 조사하여 비교하였다.

방사능 농도의 이론적 계산과 관련해서 미국 및 스웨덴[13] 등에서는 원자로에 대해 1차원 확산 코드 ANISN을 이용하여 상세한 중성자 수송 계산이 일반적으로 수행되었다. 중성자 수송 데이터와 조성 데이터를 결합하여, ORIGEN 코드를 통해 30 유효전출력년수(EFPY)에 해당하는 예상 방사화 준위를 계산하였다. 축 방향 플럭스 분포(Axial Flux Distribution)에 대해 적분하여, ^{59}Ni 및 ^{63}Ni 등의 방사화 생성물과 기타 동위원소에 대한 방사성핵종 재고량을 산출하였다.

그 외에도, Hong SB *et al*. [14]은 국내 최초로 2009년에 해

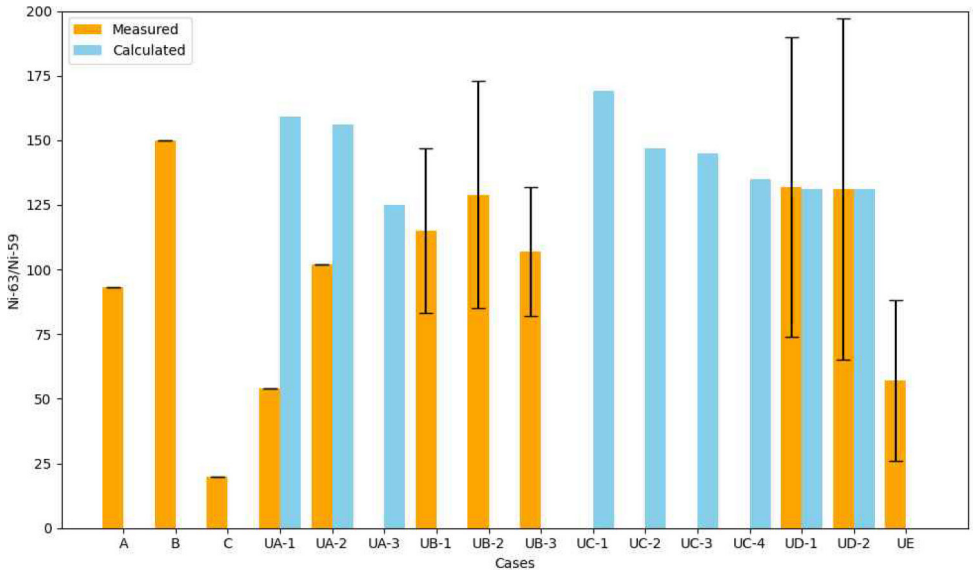

Fig. 1. ^{63}Ni to ^{59}Ni ratios of measured and calculated activated nickels for each case.

체된 국내 연구로 2호기(KRR-2) 수조 콘크리트에 대하여 방사화 핵종 재고량을 평가하였다. 추출크로마토그래피법(Extraction Chromatograph Method)과 LSC를 이용하여 중성자 방사화 핵종을 분석하였으나 모든 시료에 대하여 ^{63}Ni의 분석결과는 MDA 이하로 보고되었기 때문에 본 연구에서는 ^{63}Ni/^{59}Ni 를 얻을 수 없었다.

3. 결과 및 고찰

국내외 원자로의 8가지 분석 사례별 방사화 니켈 ^{63}Ni/^{59}Ni의 평가 결과는 Table 3과 같다. Table 3에서와 같이 측정에 근거한 ^{63}Ni/^{59}Ni 는 최소 20에서 150까지의 범위를 가지며, 계산에 근거한 ^{63}Ni/^{59}Ni 는 최소 125에서 169까지의 평균 144인 것으로 나타났다. Table 3에서는 사례 UB, UD 및 UE는 측정값의 불확도가 포함되었다. 이러한 측정값의 불확도와 함께 사례별 ^{63}Ni/^{59}Ni의 분포를 시각적으로 나타내기 위해 Fig. 1에 그래프로 표시하였다.

3.1. 운영 중 또는 해체 연구용 원자로에서의 ^{63}Ni/^{59}Ni

Table 3에서 사례 A는 해체 연구용 원자로의 폐기물 시료(Filter Waste Samples)에서 분석된 ^{63}Ni/^{59}Ni를 나타내고 사례 B는 가동 중 연구용 원자로의 저준위폐기물로부터 분석된 ^{63}Ni/^{59}Ni를 나타낸다. Table 3에서 사례 B의 ^{63}Ni/^{59}Ni 150은, 다른 가동 중 연구용 원자로의 방사성폐기물 분석 사례인 사례 UD의 ^{63}Ni/^{59}Ni = 132 ± 58 (UD-1) 및 ^{63}Ni/^{59}Ni = 131 ± 66 (UD-2) 값과 유사한 값을 나타내고, 측정 시료와 이론적 결과 사이에서도 일치함을 보였다. 따라서 이러한 비교 방법은 방사화학적 분석 결과의 신뢰성을 확인하는 보조 수단으로 활용할 수 있을 것으로 판단되었다.

Table 3에서 사례 A의 경우 ^{63}Ni/^{59}Ni는 또한 운영 중 연구용 원자로인 사례 B의 UB-3 및 사례 UD의 UD-1 및 UD-2와 유사한 값을 나타내었다. 결과적으로, ^{63}Ni/^{59}Ni는 운영 중 또는 해체 연구용 원자로의 방사성폐기물 시료에 구별 없이 사례 UD의 계산값(^{63}Ni/^{59}Ni = 131) 또는 여러 사례에서 계산한 ^{63}Ni/^{59}Ni의 평균값 144가 대표할 수 있는 것으로 판단된다.

사례 UD에서는 이온교환수지 시료의 분석 결과로부터 ^{59}Ni/^{63}Ni는 132 ± 58 (UD-1), 활성탄 시료로부터 ^{59}Ni/^{63}Ni는 131 ± 66 (UD-2)의 값을 얻었다.

3.2. 운영 중 또는 해체 원전에서의 ^{63}Ni/^{59}Ni

Table 3에서 사례 C는 ^{63}Ni/^{59}Ni이 약 20 (median)으로 나타났다. 이는 방사성폐기물 처분장에서의 분석 결과이지만, 미국의 5개의 가동 원전에서 각 원전 발생 방사성폐기물, 즉 냉각수, 증발기 시료 및 레진 등 시료(Reactor coolant etc., UE)로부터 ^{63}Ni/^{59}Ni 평균값 57 ± 31과 일치한다(Table 4). Table 3에서, 또 하나의 미국 가동 중 원전 사례 UA에서 스텐리스스틸(UD-1) 및 인코넬 시료(UD-2)에 대한 ^{63}Ni/^{59}Ni 계산값은 각각 159 및 156이다. 측정값은 각각 54 및 102이다. 또한, Bioshield (UD-3)에 대한 계산값은 ^{63}Ni/^{59}Ni = 125이다. 사례 UA의 결과는 운영 중인 PWR 원전의 각각 UB-1 및 UB-2의 측정값의 허용 가능한 불확도 범위에서 계산값과 부합할 수 있는 것으로 판단된다.

사례 UB에서는 304L형 스테인리스강(UB-1)과 718형 인코넬(Inconel)(UB-2) 시료에 대하여 각각 ^{63}Ni/^{59}Ni = 115 ± 32 및 ^{63}Ni/^{59}Ni = 129 ± 44으로 평가되었다. 이러한 결과로부터 사례 UA 및 사례 UB는 스텐리스스틸 및 인코넬 시료에 대한 제시한 측정값 및 계산값을 비교할 때 크게 다르지 않음을 보여준다.

사례 UC에서는 해체가 종료된 Trojan 원전의 Core Baffle

Table 4. Distribution of ^{63}Ni to ^{59}Ni Ratios in Waste Samples from Operating U.S. Nuclear Power Plants (Case UE)

Case	Number of Analytical Samples per Waste Type								$^{63}Ni/^{59}Ni$ Mean Value
	Reactor coolant	Evaporator Bottom	Fuel Sludge	Resin	Fuel Pool	Crud	Filter Sludge	Filter Cartridge	
1	5	1							66±40
2	2	1	1	4	1				41±42
3	2	1		1					42±23
4						1	4		62±7
5	2	1		1				2	76±44

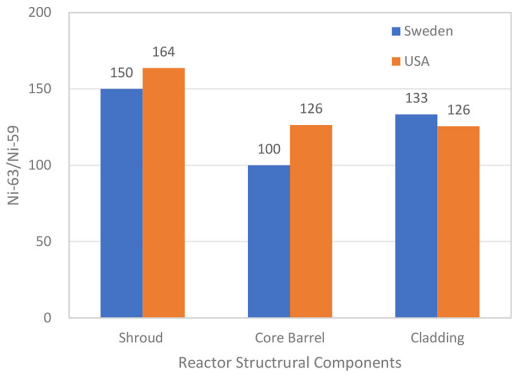

Fig. 2. Distribution of ^{63}Ni to ^{59}Ni ratios in reactor structural components (Shroud, Core Barrel and Vessel Cladding) in U.S. and Swedish nuclear power plants.

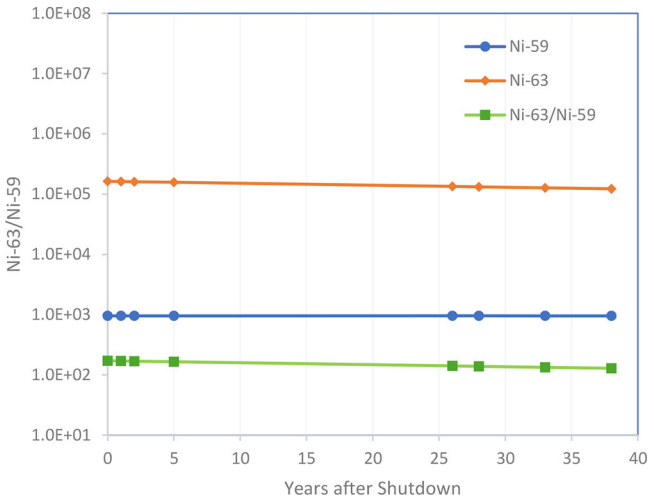

Fig. 3. ^{63}Ni to ^{59}Ni ratios as a function of time after reactor shutdown (Model evaluation based on the Trojan nuclear power plant, U.S. [11]).

(UC-1)에서 계산에 의한 $^{63}Ni/^{59}Ni$는 최대 169로 평가되었다[11]. 이 사례에서는 해당 시료에 대한 측정값은 구할 수 없었으나 가동 중 원전 UA에서 평가된 값들과 계산값의 분포는 일치하고 있음을 보여주었다.

사례 UE에서는 슬러지 및 수지 시료에 대해서 측정한 $^{63}Ni/^{59}Ni$는 57±31로서 사례 UB의 $^{63}Ni/^{59}Ni = 107 \pm 25$ (Spent ion-exchange resins, UB-3)와 비교되었다.

Fig. 2는 각각 미국[9] 및 스웨덴[12]의 원전 내부 구조물의 구성 요소별 생성된 방사화 니켈 $^{63}Ni/^{59}Ni$ 분포의 결과이다. $^{63}Ni/^{59}Ni$는 최저 100에서 최대 164까지 분포하는 것으로 나타났다. 이처럼 $^{63}Ni/^{59}Ni$ 분포는 미국 및 스웨덴의 다른 노형 원전 간에도 비교가 가능하며 Table 3에 예시한 사례 UA 및 사례 UC에서의 결과와도 일치한다. 이러한 경우는 국내 원자력안전법 고시 [1] 제6조의 ^{59}Ni 및 ^{63}Ni 핵종의 중저준위 방사성폐기물의 처분 농도제한치(Bq g^{-1}), 7.4×10^4 및 1.11×10^7 Bq g^{-1}로부터 산출된 $^{63}Ni/^{59}Ni$의 150과 본 연구에서 논의하고 있는 $^{63}Ni/^{59}Ni$의 전형적인 상수값 144와 크게 다르지 않았다.

Fig. 3은 미국의 해체 Trojan 원전의 40년 가동 후 정지 시점에서의 측정된 비방사능으로부터 산출된 원자로 정지 후 시간이 경과에 따른 $^{63}Ni/^{59}Ni$를 나타낸다. Fig. 3에서와 같이 $^{63}Ni/^{59}Ni$ 분포는 정지 후 추가적인 40년의 기간이 경과함에 따라 ^{63}Ni의 반감기로 인하여 약 25% 감소하는 것을 보여준다. 이러한 사실로부터 ^{59}Ni와 ^{63}Ni의 방사능 농도 변화는 원자로 정지 후 해체 시점까지의 기간을 고려할 때 장기간 안정적이고 따라서 두 핵종에 대한 비교적 신뢰도 있는 방사능 농도를 예측할 수 있음을 알 수 있다.

4. 결 론

우리나라 최초의 원전 고리1호기 원자력발전소는 영구 정지 이후 조만간 해체를 앞두고 있다. 국내 원전 해체가 본격화됨에 따라 해체폐기물의 처분을 위한 신뢰도 높은 방사성핵종 분석이 요구되고 있다. 원자력안전위원회 고시에 따라 규명해야 하는 방사성폐기물 내의 방사성 니켈 핵종은 저준위폐기물의 분류를 결정하는 핵종으로서의 중요성뿐만 아니라 측정이 어려운(DTM) 방사성핵종 분석의 중요한 의미가 있다. 본 연구는 실제 폐기물 분석에서 얻은 ^{63}Ni 분석 결과에 대하여 DTM 핵종 ^{59}Ni의 방사능 농도를 예측할 수 있는 상수값으로서의 사용이 가능한지를 조사할 목적으로 수행되었다.

수년간 국내외 연구용 원자로 및 발전용 원자로에서 수행되었던 8개의 분석 사례(연구용 원자로와 발전용 원자로)에 대하여 각각 가동 중 연구용 원자로, 해체 연구용 원자로, 그리고 가동 중 발전용 원자로 및 해체 발전용 원자로에 대한 ^{59}Ni와 ^{63}Ni의 분석 자료를 조사 및 분석하였다.

연구 결과, 원자로에서 발생한 열중성자 조사에 의한 니켈 방사성핵종 생성 및 방사성 붕괴 및 흡수를 포함하는 핵종 균형 방정식 또는 컴퓨터 코드로부터 매질 내의 안정 원자수, 중성자 플럭스 및 단면적을 고려하여 계산한 ^{59}Ni와 ^{63}Ni 핵종의 방사능 농도비, ^{63}Ni/^{59}Ni는 상수값 144로 산출되었다. 또한, 방사화학분석을 통해 측정한 ^{63}Ni/^{59}Ni는 계산된 상수값과 유사한 값을 가지는 것으로 평가되었다. 따라서, 상수값을 토대로 이론적 및 경험적 허용 오차범위를 적용하면, ^{63}Ni 방사능 농도 또는 ^{59}Ni 방사능 농도의 어느 쪽 값을 알면 다른 한쪽 값을 예측할 수 있는 상수값으로서의 사용할 수 있음을 확인하였다. 그러므로, 이러한 방법은 방사성 니켈 동위원소가 '측정이 어려운 방사성핵종'이기 때문에 이 핵종을 분석 전후에 사용할 수 있는 필요한 보조 수단으로 방사성폐기물의 효율적 분류 및 관리에 기여할 수 있을 것 판단되었다. 이 방법은 대량 시료 선별, 예비 방사선 재고량 평가 및 보완 분석용 데이터로 활용할 수 있다. 또한 정밀 분석의 보조 수단으로써 특히, 대량 분석이 필요한 해체 현장에서는 시간 및 비용 절감 효과와 함께 향후, 원전 해체폐기물의 효과적 분류 및 방사선 안전 관리에 유용하게 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

사 사

본 연구는 산업통상자원부(MOTIE)와 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다. (No. RS-2023-00233621).

참고문헌

1. Nuclear Safety and Security Commission. 2024. Notice No. 2024-13: Regulations on the Transfer of Low- and Intermediate-Level Radioactive Waste.
2. U.S. Department of Health, Education and Welfare, Public Health Service. 1970. Radiological Health Handbook.
3. International Atomic Energy Agency. 2009. Determination and Use of Scaling Factors for Waste Characterization in Nuclear Power Plants. IAEA Nuclear Energy Series. NW-T-1.18.
4. Cline JE, Noyce JR, Coe LJ and Wright KW. 1985. Assay of Long-Lived Radionuclides in Low-Level Wastes from Power Reactors. United States Nuclear Regulatory Commission Report. NUREG/CR-4101.
5. Taddei MHT, Macacini JF, Vicente R, Marumo JT, Sakata SK and Terremoto LAA. 2013. Determination of ^{63}Ni and ^{59}Ni in spent ion-exchange resin and activated charcoal from the IEA-R1 nuclear research reactor. Applied Radiation and Isotopes 77.
6. Suh K, Yoo JB, Choi K, Kim GY, Oh S, Yoo K, Lee KE, Lee S, Lee YS, Lee H, Kim J, Jung K, Choi S and Park T. 2022. Radiochemical Analysis of Filters Used During the Decommissioning of Research Reactor for Disposal. JNCWT Vol. 20 No. 4 pp. 489-500.
7. Song BS, Kim YB, Lee CH, Han SH, Lee MH and Song GS. 2011. Review of Measurement Methods for ^{59}Ni and ^{63}Ni Activities in Low- and Intermediate-Level Radioactive Waste. Proceedings of the 2011 Spring Conference of the Korean Radioactive Waste Society pp. 355-356.
8. Jung KI, Kim JH, Jeong NG and Park JB. 2017. Comparison of Radionuclide Inventory between Predicted and Measured Activity of Dry Active Waste from Korea Nuclear Power Plant. JNCWT Vol. 15 No. 3 pp. 281-299.
9. Evans JC, Lepel EL, Sanders RW, Wilkerson CL, Silker W, Thomas CW, Abel KH and Robertson DR. 1984. Long-lived Activation Products in Reactor Materials. NUREG/CR-3474.
10. Robertson DE, Thomas CW, Pratt SL, Lepel EA and Thomas VW. 2000. Low-Level Radioactive Waste Classification, Characterization, and Assessment: Waste Stream and Neutron-Activated Metals. NUREG/CT-6567.
11. Radiological Site Characterization Plan for the TROJAN Nuclear Power Plant, Rev. 01. 1995.
12. Konzek GJ, Ludwick JD, Kennedy WE Jr and Smith RI. 1982. Technology, Safety and Costs of Decommissioning Reference Nuclear Research and Test Reactors. United States Nuclear Regulatory Commission Report. NUREG/CR-1756.
13. Lindgren M, Pettersson M, Wiborgh M and Kemakta AB. 2007. Correlation factors for C-14, Cl-36, Ni-59, Ni-63, Mo-93, Tc-99, I-129 and Cs-135 in operational waste for SFR 1.
14. Hong SB, Suh BK, Cho DG, Chung KW and Moon JK. 2012. Study on the Inventory Assessment of Activated Pool Concrete in Research Reactor No. 2. Journal of Radiation Protection. Vol. 37 No. 4.