

## 붕산수용액에서 $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 핵반응에 의해 생성된 Li 정량

최계천\* · 정용주 · 연제원 · 김원호

한국원자력연구소, 원자력화학연구부

대전광역시 유성구 덕진동 150

(2003. 9. 18 접수, 2003. 11. 27 승인)

### Determination of Li generated from $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ reaction in Boric acid solution

Ke-Chon Choi\*, Yongju Jung, Jei-Won Yeon and Won-Ho Kim

Korea Atomic Energy Research Institute,

150 Dukjin-dong, Yusong-gu, Taejon 305-353, Korea

(Received Sep. 18, 2003, Accepted Nov. 27, 2003)

**요 약 :** 붕산수에 대한 열중성자 (thermal neutron) 조사실험을 하나를 이용하여 다음과 같은 세 가지 조건에서 수행하였다: (A)  $^{10}\text{B}$  농도 = 203.0  $\mu\text{g}/\text{mL}$ , 조사시간 = 1 시간; (B)  $^{10}\text{B}$  농도 = 381.4  $\mu\text{g}/\text{mL}$ , 조사시간 = 1 시간; (C)  $^{10}\text{B}$  농도 = 381.4  $\mu\text{g}/\text{mL}$ , 조사시간 = 0.5 시간. 열중성자 조사 시 발생하는 핵반응 [ $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ ]으로부터 생성된  $^7\text{Li}$ 의 양은 불꽃 없는 원자흡수분광분석법 (flameless atomic absorption spectroscopy)으로 측정하였다. (A), (B), (C) 실험에서 측정된  $^7\text{Li}$ 의 농도는 각각 0.18 (이론치 = 0.23), 0.31 (이론치 = 0.44), 0.16 (이론치 = 0.22)  $\mu\text{g}/\text{mL}$ 로 이 값들은 각각 이론치의 78.3, 70.5, 71.6%에 해당한다. 중성자 조사 후 붕산수의 pH는 조사 전의 값에 비하여 상당히 낮은 값을 보였다. 이는 물의 방사분해물의 영향으로 붕산수가 해리도가 큰 polyborate 형태로 전이되기 때문으로 판단된다.

**Abstract :** Thermal neutron irradiation experiment of boric acid solution was carried out using HANARO in following three conditions: (A)  $^{10}\text{B}$  concentration = 203.0  $\mu\text{g}/\text{mL}$ , irradiation time = 1 hr; (B)  $^{10}\text{B}$  concentration = 381.4  $\mu\text{g}/\text{mL}$ , irradiation time = 1 hr; (C)  $^{10}\text{B}$  concentration = 381.4  $\mu\text{g}/\text{mL}$ , irradiation time = 0.5 hr. The amount of lithium produced from  $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$  reaction which was generated on neutron irradiation, was measured by flameless atomic absorption spectroscopy. The concentration of  $^7\text{Li}$  measured in the three experiments was 0.18  $\mu\text{g}/\text{mL}$  (78.3% of theoretical value, 0.23  $\mu\text{g}/\text{mL}$ ) in (A), 0.31  $\mu\text{g}/\text{mL}$  (70.5% of theoretical value, 0.44  $\mu\text{g}/\text{mL}$ ) in (B) and 0.16  $\mu\text{g}/\text{mL}$  (71.6% of theoretical value, 0.22  $\mu\text{g}/\text{mL}$ ) in (C). The pH value of irradiated boric acid was shifted to considerably low. It is estimated that boric acid would be transformed into the polyborate form, by

★ Corresponding author

Phone : +82+(0)42-868-2471 Fax : +82+(0)42-868-8148

E-mail : nkcchoi@kaeri.re.kr

radiolysis products of water, which has high dissociation constant.

**Key words** : Neutron irradiation, boric acid, lithium, pH

## 1. 서 론

최근 원자로의 수명연장과 방사선량 (radioactivity)의 저감화를 위하여 냉각계통의 수화학 (water chemistry) 조절에 대한 다양한 방법과 기술들이 제안되고 있다. 원자로내 일차 냉각 계에 부식생성물 입자의 생성등은 냉각재의 방사분해 (radiolysis)로 생성되는 화학종과  $H_3BO_3$ ,  $LiOH$ ,  $H_2$  및 pH 등 수화학 조절제와 밀접한 관계가 있다. 원자로의 수화학에서 이용되고 있는 기술은 계통내 공급수에 일정한 농도의 수소기체를 주입 (hydrogen injection chemistry)하여 환원분위기를 조성해줌으로써 응력 부식균열 (stress corrosion cracking)을 완화시키는 방법<sup>1,3</sup>과 작업자의 보호측면에서 방사선피폭의 주선원인 Co-60, Co-58의 침적을 억제하기 위하여 일차 냉각계통의 표면에 Zn을 침투시켜 산화막을 형성시키는 방법,<sup>4,6</sup> FAC (flow accelerated corrosion)를 낮추기 위하여 ETA (ethanol amine)를 첨가하는 방법<sup>7</sup> 등은 최근 여러 나라에서 활발하게 연구하고 있는 수화학 (water chemistry) 기술 내용이다.

원자로의 최적화 운영을 위하여 냉각재로 첨가되는 화학첨가제와 원자로 내 재료물질들은 핵반응에 의하여 핵 분열성 입자를 생성시켜 방사선량을 높게 하거나 구조물에 퇴적되기도 하고 pH를 비롯한 물리 화학적 특성에 영향을 미칠 것으로 예측하고 있다. 따라서 원자로 내 운영환경에서 첨가제에 대한 특성과 거동을 정확히 알고 평가하기 위하여, 먼저 냉각재의 성분원소에 대한 분석법의 확립과 원자로 내 모사환경에서 방사화학적 검증 실험이 필요하다. 특히 열중성자를 이용한 조사실험의 경우 조사제가 고체일 때, 장시간의 조사에 따라 수반되는 물리적 현상을 비교적 쉽게 제어할 수 있어 조사를 이용한 이화학적 특성연구가 활발하게 이루어지고 있으나<sup>8,9</sup> 조사제가 용액상태인 경우 방사선 조사에 의한 용기내의 압력상승과 발열에 의한 온도제어의 어려움으로 아직까지 국내에서는 액상의 시료를 전처리 과정 없이 장시간 직접 조사시킨 예는 거의 없었다. 또한 용액내의 방사분해에 의한 가스의 팽창으로

캡슐이 파손될 경우 오염확산의 문제 때문에 용액에 대한 중성자조사 실험은 매우 제한적이다.

몇몇 해외의 수화학 연구발표 자료를 보면, B. Pastina, J. Isabey, B. Hickel<sup>10</sup> 등이 가압 경수로 (PWR) 일차 냉각재의 방사분해에 관한 수화학 영향 연구에서, 수소와 붕소가 함유되어있는 용액을 실험 원자로에서 중성자 조사시킨 후, 냉각재의 방사분해로 생성되는 산소와 과산화수소의 양을 측정하여 조사선량과 붕산수의 농도, pH, 수소 및 아연을 첨가하였을 때의 영향을 조사하였다. 이와 같이 용액에 대한 열 중성자 모사실험은 방사분해에 의한 생성물들의 거동을 예측하게 하여 원자로 내의 최적화 운영 환경에 문제점 해결을 용이하게 할 수 있다. 특히 원자로 내 냉각재에 있어서 pH 조절은 방사선 준위뿐만 아니라 부식생성물의 확산 및 핵연료 피복관의 부식문제에도 매우 밀접한 관계가 있다. 가압 경수로의 경우 일차 냉각수에 열중성자 흡수체인 수용성  $^{10}B$ 을 핵반응 조절용으로 첨가하고 있으며  $^{10}B$ 에 의한 pH 저하를 막기 위해  $LiOH$ 를 첨가하여 pH를 6.9~7.4로 유지하고 있다. 이러한 pH조절은 S. Anthoni<sup>11</sup>의 가압 경수로 냉각재의 pH 변화에 따른 이론적인 연구와 loop 실험에서 pH를 7.0~7.2로 유지시킨 후 일차계통의 방사선의 세기를 측정된 결과 낮은 pH에서 측정된 방사선 선량을 보다 중성부근의 선량을 이 현저하게 저하되었음을 확인하였다. 그러나 pH조절을 위한 과도한  $LiOH$ 의 첨가로 pH가 상승하면 Zr 피복관을 부식시키는 원인이 된다. 또한  $^{10}B(n, \alpha)^7Li$ 의 핵반응으로 하루에 1.73%의  $^{10}B$ 가  $^7Li$ 로 전환되는 과정에서<sup>12</sup> pH 및 원자로 내 재료물질에 직·간접적인 영향을 미칠 수 있게 되므로 붕산과  $LiOH$ 의 농도유지는 원자로의 반응도와 경제적 운용측면에서 매우 밀접한 관계가 있다.

본 연구에서는 수용액상의  $^{10}B$ 에 중성자가 조사되었을 때 생성되는  $Li$ 의 양을 결정하기 위하여 연구용 원자로에서 중성자를 조사시켰다. 붕산수용액중의  $Li$  정량법을 확립하고 핵반응에 의하여 생성된  $Li$ 이 용액의 pH에 미치는 영향을 고찰하기 위하여 장갑상자 (glove

box)내에서 증성자 조사 전·후의 pH를 측정하였다.  $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$  핵반응으로 생성되는  $^7\text{Li}$  양을 예측하고 증성자 조사 후에 생성된 Li를 측정하여 비교 분석하였다. 이와 같이 액상의 시료를 조사하여 얻은 실험적 경험은 원자로의 내 최적화를 위한 화학조건을 더욱 근접하게 모사할 수 있는 정보를 제공함으로써 화학 첨가제의 화학적 특성과 영향평가에 대한 연구가 보다 활발하게 진행될 수 있을 것으로 생각한다.

Table 1. Instrumental parameter for Lithium analysis

Graphite furnace/Temperature program					
Step	Temp.( $^{\circ}\text{C}$ )	Ramp	Hold(sec.)	Gas flow (mm/min.)	Gas type
1	110	1	20	250	Norm
2	130	5	30	250	Norm
3	900	10	20	250	Norm
4	2200	0	5	0	Norm
5	2400	1	2	250	Norm

Injection Temp: 20  $^{\circ}\text{C}$  , Pipette Speed : 100% ,  
Extraction System: n

Wavelength : 670.8 nm, Slit : 0.2 low ,  
Signal Type: Zeeman AA

## 2. 실험

### 2.1. 기기 및 시약

Li의 정량은 Zeeman 효과의 보정이 가능한 불꽃 없는 원자 흡수 분광 광도기(Perkin elmer Model 5100, USA)로서 원자화장치로서는 전기 흑연로가 장착된 기기를 이용하였으며 원자화를 위한 흑연로의 온도설정 및 시료의 주입속도와 측정과장, 슬릿, 기타의 측정요소 항목을 Table 1에 나타내었다. 실험에 사용된  $^{10}\text{B}$ 은 Aldrich사의 ACS급으로서  $^{10}\text{B}$ 의 함량이 99.5%이다. 표준검정용 LiOH는 Spec사(ICP-AES 용)의 1,000  $\mu\text{g}/\text{mL}$ 을 희석하여 사용하였다. 붕산용액의 표정을 위하여 사용된 NaOH는 Merck사(순도99%, pellet)의 제품을 표정하여 사용하였다.

### 2.2. 실험

#### 2.2.1. 0.1 N-NaOH 표정

4.0 g pellet 형태의 NaOH를 달아서 증류수에 녹여 1

L의 용량플라스크에 넣고 증류수로 표선 까지 채운다음 500 mL 용량의 적정용기(부렛)에 옮겨 넣는다. 0.1 N 옥살산 용액 100 mL를 beaker에 넣고 3~4 방울의 페놀프탈레인 용액을 떨어트린 다음 저어주면서 NaOH 용액을 가하고 분홍색으로 변하는 시점을 종말 점으로 하여 이 때의 소비된 NaOH 량을 측정하여 농도를 계산하였다.

#### 2.2.2. 붕산용액의 표정

20 mL의 5000  $\mu\text{g}/\text{mL}$  붕산용액을 beaker에 넣고 페놀프탈레인 용액을 3~4 방울을 떨어트린 후 마니톨(Mannitol,  $K_a = 1.5 \times 10^{-4}$ ) 0.737 g(붕산:마니톨의 몰 비 1:2) 보다 약간 과량인 1.0 g을 첨가한 다음 저어주면서 표준 NaOH 용액을 가하고 분홍색의 종말 점까지 소비된 NaOH 량을 측정하여 붕산수의 농도를 계산하였다.

#### 2.2.3. 증성자조사용 앰플 제작 및 시료의 밀봉

Fig. 1에 붕산수 증성자조사에 필요한 조사용 앰플과 이송용 캡슐을 나타내었다. 앰플과 캡슐의 재료는 원자로 내에서 장시간 조사하였을 경우 주성분 원소가 방사화 되지 않거나 방사화 하여도 반감기가 짧아 방사능의 감쇠가 빠르고 외부의 충격과 고온에서도 견딜 수 있도록 석영 및 알루미늄 관을 이용하였다. 직경 0.8 cm의 석영관 길이를 10 cm가 넘지 않도록(8.5~9.5 cm) 자르고 중간부분을 오목하게 하고, 끝 부분을 모세관으로 뽑아 쉽게 밀봉이 가능하도록 세공하였다. 알루미늄 재료의 이송캡슐을 길이 10.0 cm, 직경 2.0 cm의 원통형으로 제작하고 밀봉할 수 있는 덮게도 함께 제작하였다. 원통형의 알루미늄 캡슐에는 벽면과 밀면에 직경 3 mm로 구멍을 뚫어 원자로의 냉각수 흐름을 자유롭게 하여 증성자 조사가 진행되는 동안 캡슐내부의 온도가

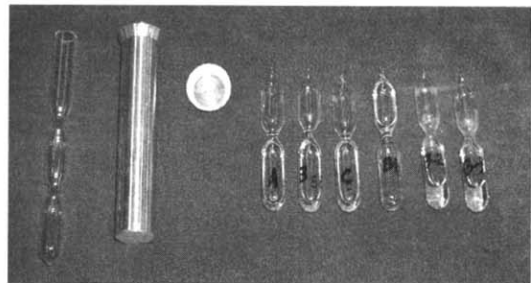


Fig. 1. Quartz ampoules and aluminum container for neutron irradiation of liquid samples.

Table 2. Characteristics of HANARO and available maximum neutron flux (30 MW)\*

Irradiation hole	Neutron Flux ( $\Phi, n/cm^2 \cdot sec$ )		Utilization	Specification
	Fast ( $>0.82$ MeV)	Thermal ( $<0.62$ MeV)		
System #1 (NAA1)	$2.4 \times 10^{10}$	$2.4 \times 10^{10}$	For production of RI and NAA	Manual system
System #2 (NAA2)	$2.5 \times 10^{11}$	$9.4 \times 10^{13}$	For NAA only (ENAA, DNAA)	Automatic system Auto/PC control PE capsule : 27CC. O.D 25, L 162 mm Air pressure : 0.6 bar
System #2 (NAA3)	$1.3 \times 10^{12}$	$1.6 \times 10^{14}$		

\*data from KAERI/TR 1630/2000

상승되는 것을 억제하였다. 석영 앰플의 전체 부피 중 20% 미만으로 붕산용액을 채우고 액체질소를 이용하여 급속 냉동시켰다. 냉동상태의 캡슐의 내부를  $1 \times 10^{-4}$  torr 까지 낮은 상태에서 진공하고 밀봉하였으며 석영 앰플을 이송용 알루미늄 캡슐에 넣고 덮개를 하고 다시 밀봉하였다.

2.2.4. 붕산수의 열중성자 조사

밀봉캡슐을 원자로에서 조사시키기 위하여 Table 2와 같은 특성을 갖고 있는 하나로 (한국원자력연구소 소재 연구용 원자로)에서 조사하였다. 조사공 (irradiation hole) 은 캡슐을 수압으로 Pool형의 원자로 노심부로 보내는 수압 이송관 (Hydraulic Tube System: HTS)을 이용하였다. HTS공의 평균 중성자 속의 세기는  $6.5 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>.sec. 이고, 붕산수 농도와 조사시간을 달리하면서 조사하였으며 조사 후 실온에서 48시간 냉각하였다.

2.2.5. 중성자조사전 후 시료의 pH 변화 측정

조사 후 붕산수의 pH 변화 범위가 중성 부근으로 예측되므로 pH 측정 시 공기 중 CO<sub>2</sub>의 영향을 배제하기 위하여 글로브상자 안에 측정장치를 설치하고 내부에 Ar 가스를 뿌려주어 불활성 분위기에서 pH를 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 붕산수의 정량

열중성자 조사를 위한 붕소의 농도를 결정하기 위하여 산 염기 적정법으로 적정하였다. 표정에 사용된 0.1 N NaOH의 양을 측정하여 붕산수의 농도를 계산하였으며 5회 적정한 붕산수의 농도는 평균 894.2 (RSD 0.3%)  $\mu\text{g}$

/mL이었다. 분석결과에 대한 정확도를 확인하기 위하여 같은 시료를 유도 결합 플라즈마 분광기 (ICP-AES)로 5회 분석한 결과 893.3 (RSD 0.23%)  $\mu\text{g}/\text{mL}$ 으로서 호환성이 좋은 것을 알 수 있었으며 그 결과를 Table 3에 나타내었다.

Table 3. The measurement of boron solution by titration method and ICP-AES method

Detection method of Boron		
No.	Titration ( $\mu\text{g}/\text{mL}$ )	ICP-AES ( $\mu\text{g}/\text{mL}$ )
1	891.2	890.8
2	897.8	896.0
3	893.0	892.5
4	895.2	894.3
5	893.7	892.8
Ave.	894.2(RSD 0.3%)	893.3(RSD 0.23%)

3.2. Li 정량 시 붕소의 간섭영향

붕산수에 존재하는 리튬을 분석할 때 붕소의 간섭영향을 측정하였다. 원자로 내 붕소 농도인 50~2000  $\mu\text{g}/\text{mL}$ 의 붕산용액에 0.1~1.0  $\mu\text{g}/\text{mL}$ 의 Li을 가한 다음 Flameless-AAS를 이용하여 측정하였으며 그 결과를 Fig. 2와 Table 4에 나타내었다. Li 표준용액을 0.1  $\mu\text{g}/\text{mL}$  첨가하였을 때 상대적으로 표준편차의 값이 큰 이유는 붕산에 의한 간섭보다는 측정 가능한 Li의 농도가 낮기 때문이다. 과량의 붕소는 Li 측정 시 0.1~10%의 양의 간섭효과를 보였고, Li 농도 0.1  $\mu\text{g}/\text{mL}$ 를 제외하고는 붕소 농도에 따라 일정한 간섭영향을 보여주어 6.4%의 상

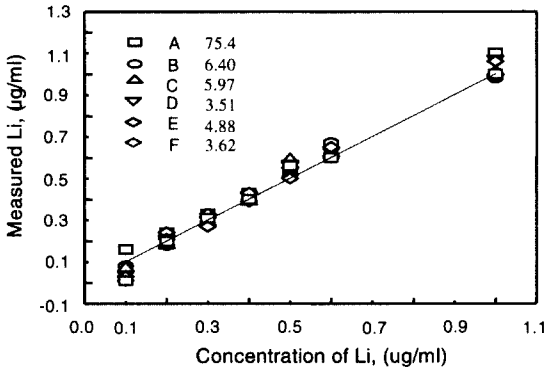


Fig. 2. Determination of Li content in the boric acid A;50, B;100, C;500, D;1000, E;1500, F;2000 ppm respectively.

Table 4. Analytical results of Li in variation of boric acid concentration

Add Li( $\mu\text{g}/\text{mL}$ )	Concentration of Boric acid ( $\mu\text{g}/\text{mL}$ )							RSD(%)
	50	100	500	800	1000	1500	2000	
0.1	0.16	0.08	0.07	0.04	0.03	0.01	0.01	75.4
0.2	0.24	0.20	0.22	0.21	0.24	0.21	0.20	6.4
0.3	0.33	0.29	0.29	0.30	0.27	0.33	0.31	5.9
0.4	0.43	0.40	0.39	0.42	0.43	0.39	0.40	3.5
0.5	0.53	0.51	0.59	0.57	0.55	0.50	0.56	4.8
0.6	0.66	0.67	0.62	0.63	0.65	0.60	0.60	3.6
1.0	1.10	0.98	1.01	1.07	1.06	0.99	1.00	3.6

대 표준편차를 나타내었다. 따라서, 표준 검정곡선방법에 의한 Li의 측정 시 시료 중에 들어 있는 붕소의 양과 같은 양의 붕소를 표준물에 첨가해 주어야 한다.

### 3.3. 붕산수의 열중성자 조사에 의한 Li의 정량

붕산수의 농도와 조사시간을 각각 다르게 하여 조사 후, 핵반응으로 생성된 Li의 양을 측정하였으며 그 결과를 Table 5에 나타내었다. 203.0  $\mu\text{g}/\text{mL}$ 의  $^{10}\text{B}$ 을 1.0 시간 조사시켰을 경우,  $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ 의 열중성자흡수 단면적을 3847 barn (at 0.0253 eV)으로 하였을 때 이론적 계산(이하 계산값)에 의하여 생성되는 Li의 농도는 0.23  $\mu\text{g}/\text{mL}$  이고 실제 중성자조사 후 측정(이하 측정값)한 값은 0.18  $\mu\text{g}/\text{mL}$ 으로서 계산값의 78.3%를 나타내었다. 381.4  $\mu\text{g}/\text{mL}$ 의  $^{10}\text{B}$ 을 0.5시간 조사시켰을 때 생성된 Li

Table 5. Measurements of total Lithium by thermal neutron irradiation of  $^{10}\text{Boron}$

$^{10}\text{B}$ ( $\mu\text{g}/\text{mL}$ ) <sub>(1)</sub>	Irradiation time(hr) <sub>(2)</sub>	Theoretical Li( $\mu\text{g}/\text{mL}$ )	Measured Li( $\mu\text{g}/\text{mL}$ ) <sub>(3)</sub>	Ratio % <sub>(4)</sub>	
A	203.0	1.0	0.23	0.18	78.3
B	381.4	1.0	0.44	0.31	70.5
C	381.4	0.5	0.22	0.16	71.6
Average ratio				73.5	

- (1)  $^{10}\text{B}$ (99.5 atomic percent,  $\text{H}_3^{10}\text{BO}_3$ )
- (2) Nuclear reaction  $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ , Neutron flux :  $6.5 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>.sec.,  $^{10}\text{B}(n, \alpha)$  cross section: 3840 barn (at 0.0235 eV)
- (3) Measured by Flameless-AAS
- (4) Amount of measured Li / Amount of theoretical Li

을 측정한 결과 0.16  $\mu\text{g}/\text{mL}$ 으로서 계산 값의 71.6%의 생성도를 나타내었다. 같은 농도의 시료에 대한 조사시간을 1.0시간 조사시켰을 경우, 계산값은 0.44  $\mu\text{g}/\text{mL}$ 이고 조사 후 생성된 Li의 농도는 0.31  $\mu\text{g}/\text{mL}$ 으로서 생성도는 70.5%이었다. 실험에 사용된 붕소농도 범위 내에서 생성된 Li의 양은 조사시간과 붕소의 농도에 비례하였고, 계산값의 73.5%에 해당하였다. 조사 후 측정된 Li의 양이 계산값 보다 약 26.5% 적게 나온 원인은 조사시 핵반응 열에 의한 셀 내부온도의 상승으로 중성자 흡수 단면적의 감소로 인한 핵반응도가 떨어진 것으로 생각된다

### 3.4. 중성자조사 전.후 pH 변화

중성자 조사전 붕산수용액에 대한 pH를 25 °C에서 측정하여 그 결과를 Fig. 3에 나타내었다. Fig. 3에서 보는 바와 같이 4종류의 시료 중 붕산수의 농도가 상대적으로 진할 수록 pH 변화량이 작음을 나타내었으며 4주 동안 pH를 측정된 결과 CO<sub>2</sub>에 의한 영향은 거의 받지 않은 것으로 나타났다. 붕소의 핵반응에 의하여 생성된 Li이 용액의 pH에 미치는 영향을 고찰하기 위하여 233, 466, 699, 932  $\mu\text{g}/\text{mL}$ 의 붕산수를 30분 간 중성자 조사시킨 후 pH의 변화를 측정하여 그 결과를 Table 6에 나타내었다. Table 6에서 나타낸 바와 같이 중성자 조사 후 생성된 Li의 영향으로 pH가 상승(알칼리화)할 것으로 예상되었으나 붕소의 농도가 진할수록 pH는 오히려 낮아지는 경향을 나타내었다. 이와 같이 pH가 낮아지는

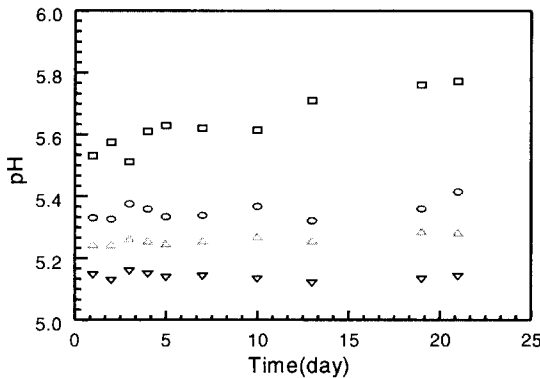


Fig. 3. pH measurement of boric acid solution of various concentration at 25 °C : □; 250, ○; 500, △; 750, ▽; 1,000 µg/ml respectively.

Table 6. Thermal neutron irradiation before and after pH change for boric acid solution of various concentration

<sup>10</sup> B (µg/ml) <sub>(1)</sub>	Measured pH, at 25 °C, CO <sub>2</sub> free			
	before	Irradiation time, (min.) <sub>(2)</sub>		
		30	60	120
233	5.70	5.25	4.68	3.85
466	5.37	4.95	4.52	2.97
699	5.27	4.69	4.20	2.47
932	5.13	3.72	2.92	2.33

(1) <sup>10</sup>B(99.5 atomic percent , H<sub>3</sub><sup>10</sup>BO<sub>3</sub>)

(2) Nuclear reaction <sup>10</sup>B(n, α)<sup>7</sup>Li, Neutron flux: 6.5×10<sup>13</sup> n/cm<sup>2</sup>.sec. <sup>10</sup>B(n, α) cross section : 3840 barn(at 0.0235 eV)

이유는 핵반응에 의한 셀 내부의 온도상승과 물의 방사 분해로 생성된 분자성 물질 (H<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) 및 작용기 (H, OH, HO<sub>2</sub>) 등이 붕소와의 결합으로 polyborate를 형성함으로써<sup>13</sup> 중성자 조사 전 붕산수의 해리 상수보다 조사후의 해리 상수가 커져 강한 산성을 띠기 때문으로 생각되며 보다 구체적인 보강 실험이 필요하다.

#### 4. 결 론

붕산수용액 내 존재하는 미량의 Li를 정량하기 위하여, 50~2,000 µg/mL 범위의 붕소조건에서 0.1~1.0 µg

/mL 농도의 Li를 Flameless-AAS 법으로 측정하였다. 과량의 붕소는 Li 측정 시 0.1~10%의 양의 간섭효과를 보였고, Li 농도 0.1 µg/mL를 제외하고는 붕소농도에 따라 일정한 간섭영향을 보여주어 상대표준편차 6.4% 내에서 정량이 가능하였다.

381.4 µg/mL 붕소 (<sup>10</sup>B)를 0.5 시간과 1시간 조사시켰을 때 생성된 Li의 양은 각각 0.22와 0.44 µg/mL 이었고, 203.0 µg/mL 붕소 (<sup>10</sup>B)를 1시간 조사하였을 때 측정된 Li의 양은 0.18 µg/mL이었다. 실험에 사용된 붕소 농도 범위 내에서 생성된 Li의 양은 조사시간과 붕소의 농도에 비례하였고, <sup>10</sup>B 열중성자 흡수 단면적(3847 barn, at 0.0253 eV)으로 계산한 Li 생성량의 73.5%에 해당하였다. 생성된 Li의 양이 계산값 보다 적은 것은 조사환경의 온도 (> 80°C)영향으로 유효 중성자 흡수 단면적이 줄어지기 때문이라고 판단한다.

붕산수의 산도는 중성자 조사 전, 붕소농도 233~932 µg/mL에 따라 pH 5.7~5.1 범위의 값을 보였으나, 조사 후에는 pH 5.3~3.7 범위로 산도의 증가가 관찰되었다. 이는 핵반응에 의한 영향보다는 물의 방사분해 (radiolysis) 영향으로 붕산수의 해리도가 높은 polyborate 형태로 전이되기 때문에 나타나는 현상으로 판단된다.

붕산수용액 시료를 원자로 내에서 조사하여 얻은 실험적 경험은 원자로 냉각재 화학조건을 더욱 근접하게 모사할 수 있는 정보를 제공하여, 화학첨가제의 화학특성평가와 금속 콜로이드 거동예측에 기여할 것으로 예측된다.

#### 후 기

본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

#### 참고 문헌

1. R. L. Cowan, Independent Consultant, Livermore CA and C. J. Wood, EPRI, Palo Alto CA, "Control of Radiation Fields in BWRs After Noble Metal Chemical Addition," *Chimie 2002*, Avignon France, 22-26. 2002.
2. R. S. Lillard, D. L. Pile, D. P. Butt, *Journal of Nuclear Materials*, **278**, 277-289 (2000).
3. Chien C. Lin, F. R. Smith, R. L. Cowan, *Nuclear*

- Engineering and Design*, **166**, 31-36(1996).
4. M. Domae, N. Chitose, Z. Zuo, Y. Katsumura, *Radiation Physics and Chemistry*, **56**, 315-322 (1999).
  5. W. S. Walters, J. D. Page, A. P. Gaffka, A. F. Kingsbury, J. Foster, A. Anderson, D. Wicken, J. Henshaw, "The effect of zinc addition on PWR corrosion product deposition on Zircaloy-4", *Chimie 2002*, Avignon France, 22-26, 2002.
  6. B. Stellwag, Framatome Anp Gmbh, M. Juergensen, Kernkraftwerk Biblis, "Zinc Injection in German PWR Plants", *Chimie 2002*, Avignon France, 22-26, 2002.
  7. Francis Nordmann, Jean-Marie Fiquet, *Nuclear Engineering and Design*, **160**, 193-201(1996).
  8. P. A. Dokhale, V. N. Bhoraskar, P. R. Vijayaraghavan, *Materials Science and Engineering*, B **57**, 1-8(1998).
  9. X. Deschanel, D. Simeone, J. P. Bonal, *Journal of Nuclear Materials*, **265**, 321-324(1999).
  10. B. Pastina, J. Isabey, B. Hickel., *Journal of Nuclear Materials*, **264**, 309-318(1999).
  11. S. Anthoni, CEA-CEN Cadarache, France, "Effects of pH of primary coolant on PWR contamination", *Water Chemistry of Nuclear reactor systems 6*. BNES, London, (1992).
  12. J. A. Sawicki, "Nuclear Chemistry Model of Borated Fuel Crud", *Chimie 2002*, Avignon France, 11-13(2002).
  13. D. Stetten, Jr., *Anal.Chem*, **23**. 1177-1178(1951).