

## 원자력발전소 냉각수 정화계통의 핵종누적량 예측기법

이 재 민, 황 주 호

경희대학교

### 요 약

원자력발전소에서 발생하는 중·저준위 폐기물의 처분에 있어 안전성을 확보하기 위하여 폐기물내의 방사성물질의 이력 및 특성을 파악하여야한다. 본 연구에서는 발전소에서 주기적으로 측정하는 냉각수내 핵종농도와 정화장치별 계엄계수를 이용하여 방사성폐기물내의 핵종농도를 예측하였다. 본 방법은 순간계엄계수 계산을 통하여 발전소 운전상황 변화를 반영하였으며, 최종정화장치 후단부 방출량을 통한 검증에 있어 평균계엄계수를 사용한 경우보다 정확한 핵종누적량을 예측하였다.

### 1. 서 론

현재 우리나라에서는 총 11기의 원자력발전소 운영을 하고 있으며 울진 3,4 호기 등 여러기의 원전이 건설 중이다. 앞으로도 전력수요의 증가에 따라 지속적인 원전의 확충이 예상된다. 원자력 발전에 있어 수반되는 방사성폐기물의 처리는 원자력이 해결해야하는 중요한 문제 중의 하나이다. 발생하는 중저준위 폐기물은 영구 처분장으로 운송하여 최종처분되는데 운송 및 처분에 있어서의 안전성을 확보하기 위하여 방사성폐기물 내에 함유되어 있는 방사성물질의 핵종 및 방사능량 그리고 폐기물의 물리·화학적 특성을 파악하여야 한다. 우리나라를 포함한 각국은 방사성폐기물의 처분안전성을 확보하기 위하여 방사성 폐기물 고화체의 안전성에 대한 규제와 함께 핵종별 방사능 농도에 대한 규제 및 운송·처분시 함유되어 있는 방사성물질의 핵종 및 방사능량 등을 명시하도록 요구하고 있다. 지금까지 개발된 방사성폐기물 내의 핵종을 분석하는 방법은 고화체의 표면선량을 측정하여 이를 방사능량으로 환산하여 사용하는 방법과 정화장치별 평균적인 계엄계수를 이용하는 방법이 있다. 이들 방법은 장치사용에 따른 경제적 손실과 환산인자 보정을 위한 시료 채취 등으로 작업자의 피폭을 수반하며 폐기물고화체 내의 핵종농도를 정확히 파악하기는 힘든 실정이다. 본 연구에서는 원전에서 발생하는 중·저준위 폐기물 방사능량의 대부분을 차지하는 액체처리계통의 공정폐기물인 폐수조 및 폐필터 내의 누적방사능량을 계산하기 위하여

발전소에서 주기적으로 측정하는 냉각수 내 핵종농도 자료를 이용하고 순간제염계수를 계산하는 방법을 적용하여 정화계통내 핵종누적량 예측법을 개발하고자 하였다.

## 2. 정화장치별 핵종누적량 계산방법 개선

### 2.1 핵종누적량 계산의 필요성

현재 우리나라에서는 방사성폐기물 발생자가 발생시킨 방사성폐기물을 지중매물 또는 지층처분 등의 방법으로 영구처분하기 위하여 고시한 '방사성폐기물 인도 규정'<sup>[1]</sup>에서 폐기물은 종류 및 방사능 농도에 따라 분류하도록 하고 있으며 폐기물을 처분업자에게 인도시 폐기물의 종류 및 특성, 총방사능량 및 주요 핵종농도, 최대 표면선량을 등의 자료를 첨부하도록 정하고 있다. 또한 '방사성물질 등의 포장 및 운반에 관한 규정'<sup>[2]</sup>서도 방사성물질의 종류와 수량에 따라 포장 및 운반기준을 규정하고 있다. 미국의 경우에서도 10CFR61<sup>[3]</sup>에서 방사성폐기물 고화체 내에 들어 있는 핵종별 방사능 농도에 대한 규제 등을 갖추어 폐기물의 등급을 정하도록 하고 폐기물 발생자에게 이를 준수하도록 하고 있다. 특히 미국의 10CFR20.311<sup>[4]</sup>에서는 운송·처분되는 방사성폐기물의 형태, 등급, 핵종 및 그 농도와 총방사능량, 화학적형태 등을 명시하도록 하고 있다.

방사성폐기물 고화체 내에 들어있는 핵종 및 방사능량을 평가하기 위하여 여러 가지 핵종분석 방법 및 장치가 개발되었다. 그러나 일부 개발되어 사용되고 있는 장치 및 방법은 폐기물의 종류에 따라 오차가 커서 처분의 안전성 확보를 위하여 정확도를 향상 시킬 필요가 있다.

### 2.2 현재까지의 핵종누적량 평가 연구<sup>[5],[6],[7]</sup>

방사성폐기물의 특성을 파악하기 위한 방법에는 다음과 같은 것들이 있다. 평균제염계수를 이용한 측정방법이 그 중 하나인데 평균제염계수는 해당발전소의 측정값을 이용하기보다는 이미 많은 발전소를 대상으로 하여 얻어진 연구결과를 통하여 제시된 값을 사용하는 방법이다. 이 경우 발전소의 운전특성에 대한 고려를 할 수 없으며 이를 통해 얻어진 핵종누적량의 경우 너무나 보수적인 값을 갖게된다. 다른 한 방법은 발전소에서 발생하는 중·저준위 방사성 폐기물의 방사능량을 계측기를 이용한 표면선량과 핵종보정인자를 이용하여 평가하는 방법으로서 먼저 주기적인 시료채취를 통하여 핵종보정인자를 구하며 계측기를 이용하여 각 폐기물 내 대표핵종의 방사능량을 구한다. 대표핵종의 방사능량과 핵종보정인자를 이용하여 폐기물의 핵종별 방사능량을 구한다. 각 폐기물에서 총방사능량을 측정하여 핵종보정인자를 사용하여 구한 방사능량 값을 보정한다.

대표핵종의 방사능량 평가에 있어서 폐기물 드립 외부에서 표면선량을 측정하여 피폭변환인자(mR hr per mCi)를 이용하여 폐기물내의 방사능량을 구하는데 이러한 방사선계측기를 통한 방사능량 측정방법에 있어서 피폭변환인자의 결정이 이 방법의 정확성을 결정하는 중요한 변수가 된다. 이 방법은 정확성을 보장하기 위하여 피폭변환인자와 방사성 핵종의 분포비율의 주기적인 보정이 절대적으로 필요하다.

## 2.3 순간제염계수를 사용한 계산방법 개선

### 2.3.1 핵종누적량계산식

정화장치의 배열이 다음 그림 1. 과 같다고 가정할 때 정화장치별 핵종누적량은 다음 식 (1)~(6) 을 이용하여 계산할 수 있다.



그림 1. 가정계통

$$A_{\text{CONC.}} = (IN_{\text{CONC.}} - A_{\text{OUT}}) \cdot \text{FLOW} \quad \text{---(1)}$$

$$B_{\text{CONC.}} = (A_{\text{OUT}} - B_{\text{OUT}}) \cdot \text{FLOW} \quad \text{---(2)}$$

$$C_{\text{CONC.}} = (B_{\text{OUT}} - C_{\text{OUT}}) \cdot \text{FLOW} \quad \text{---(3)}$$

$$A_{\text{OUT}} = \frac{IN_{\text{CONC}}}{DF_A} \quad \text{---(4)}$$

$$B_{\text{OUT}} = \frac{A_{\text{OUT}}}{DF_B} \quad \text{---(5)}$$

$$C_{\text{OUT}} = \frac{B_{\text{OUT}}}{DF_C} \quad \text{---(6)}$$

위 식에서  $A_{\text{OUT}}$ ,  $B_{\text{OUT}}$ ,  $C_{\text{OUT}}$  는 정화장치 A, B, C 를 통과하여 나온 냉각수내 핵종의 농도이며  $IN_{\text{CONC}}$  는 정화장치 A 로 유입되는 냉각수내 핵종농도이다. 그리고  $DF_A$ ,  $DF_B$ ,  $DF_C$  는 정화장치 A, B, C 의 제염계수이며  $A_{\text{CONC.}}$ ,  $B_{\text{CONC.}}$ ,  $C_{\text{CONC.}}$  는 정화장치 A, B, C 에 누적된 핵종누적량이다. 마지막으로 FLOW는 각 정화장치로 유입되는 냉각수의 유량이다.

### 2.3.2 계산 프로그램에서의 입력자료

앞절에서 설명한 식으로 포트란 프로그램을 만들고 정화장치별 핵종누적량계산을 수행함에 있어서 필요한 입력자료는 정화장치로 유입되는 냉각수내의 핵종농도와 최종정화장치의 후단부 핵종농도 그리고 정화장치별로 주기적으로 측정하는 제염계수 값이다. 현재 국내 원전을 기준으로 할 때 화학 및 체적제어계통(CVCS)의 경우 월 1회 측정하도록 운전지침이 마련되어 있다. 또한 냉각수내 핵종농도의 경우 핵분열성물질은 매일 측정하고 있으며 부식생성물의 경우는 며칠 간격으로 측정하고 있다. 본 방법은 발전소에서 이미 수행하고 있는 냉각수내 핵종농도의 자료와 정화장치별 제염계수의 값을 충분히 이용하도록 하였다.

### 2.3.3 방사능량 예측방법

먼저 입력자료로 주어진 제염계수 측정값들을 구간별 선형보간하여 계산기간동안의 일별 제염계수를 생성한다. 이 때 생성되는 일별 제염계수는 계산에 있어서 초기제염계수로 사용된다. 초기제염계수란 계산과정에서 초기값으로 주어지는 제염계수를 말하며 후단부핵종농도와 오차 보정을 통하여 그날 그날의 순간제염계수가 생성된다. 그리고 후단부핵종농도의 측정값을 매일 측정하지 않은 경우 또한 선형보간하여 일별 자료를 생성한다. 일련의 정화장치를 통과한 냉각수내 핵종농도는 매우 작으며 급격한 변화를 보이지 않으므로 선형보간한다. 먼저 입력자료를 통하여 매일 매일의 초기제염계수와 입력자료로서의 후단부핵종농도를 생성하고 핵종누적량계산식을 통하여 핵종누적량과 후단부핵종농도를 계산한다. 계산된 후단부핵종농도와 입력자료로서의 후단부핵종농도와의 차이가 주어진 허용오차보다 클 경우 다음 식 (7)~(10)를 통하여 초기제염계수값을 변화시킨다.

$$DF_{\Sigma} = DF_A + DF_B + DF_C \quad \text{---(7)}$$

$$DF_A = DF_A = \left( \frac{DF_A}{DF_{\Sigma}} \right) \quad \text{---(8)}$$

$$DF_B = DF_B = \left( \frac{DF_B}{DF_{\Sigma}} \right) \quad \text{---(9)}$$

$$DF_C = DF_C = \left( \frac{DF_C}{DF_{\Sigma}} \right) \quad \text{---(10)}$$

여기서  $\alpha$ 는 계산된 후단부핵종농도가 입력자료로서의 후단부핵종농도보다 클 경우  $\alpha$  이고 작을 경우  $-\alpha$  이다. 이러한 방법으로 허용오차를 만족할 때 까지 반복하여 계산을 실행한다. 허용오차를 만족할 경우 초기제염계수는 그날그날의 순간제염계수가 되며 이를 통하여 정화장치별 핵종누적량을 계산한다.

### 2.3.4 초기가동(Start-up)시와 운전정지(Shutdown)시의 부식생성물 입자분율 변화고려

직접가지의 부식생성물에 대한 연구자료<sup>[25]</sup>를 통하여 부식생성물의 경우 운전상황에 따라 입자의 분율이 변하는 것을 알 수 있다. 이러한 부식생성물의 입자분율 변화는 1차냉각수 정화장치의 제염효율에 상당한 영향을 주게되는데 이를 초기가동시와 운전정지시를 비교하여 살펴 보면 표 1. 과 같다.

운전상황	부식생성물 입자분율	필터의 제염효율	이온교환수지의 제염효율
초기가동시	증가	증가	감소
운전정지시	감소	감소	증가

표 1. 운전상황 변화에 따른 제염효율 변화

본방법에서는 계산과정에서 이러한 제염효율의 변화를 고려하여 각 운전상황에 따라 후단부핵

중농도와의 오차 보정시 제염효율 변화에 따라 제염계수를 감소 또는 증가 시키며 반복계산을 통하여 허용오차를 만족시키도록 하였다. 또한 이러한 운전상황의 변화가 1차냉각수를 처리하는 첫 번째 필터와 이온교환수지에 상당히 영향을 미치는 점을 고려하여 배연순으로 가중치를 두어 계산하였다.

## 2.4 실제 발전소 자료를 통한 검증

### 2.4.1 미국 Rancho Seco 발전소 측정자료<sup>[10]</sup>를 통한 검증

핵중누적량계산에 있어서는 부식생성물인 Co-60과 핵분열 생성물인 Cs-137의 누적량만을 계산하여 결과를 살펴보았다. 그리고 정화장치별 척도인자(Scaling Factor)<sup>[11]</sup>를 사용하여 그와 주요 핵종의 누적량을 산출하였다. 본 방법을 통한 계산에 있어서 그 대상이 된 계통은 보충 및 정화 계통을 선정하였는데, 이들 계통내에서 처리하는 액체가 원자로 일차냉각수이므로 정화장치별 누적방사능량도 다른 계통내 방사능량보다 월등히 크므로, 폐수지, 폐필터내 누적방사능량 예측에서 가장 중요한 계통이라 판단되어 대상계통으로 선정하였다. 보충 및 정화계통은 원자로 일차냉각수의 부유입자를 정화하기 위한 취출수여과기(Letdown Filter), 이온성 핵종을 정화하기 위한 완상탈염기(Purification Demineralizer)와 녹아나오는 수지입자를 정화하기 위한 보충수 여과기(Makeup Filter)와 같은 정화장치가 연속적으로 설치되어 있다. 보충수여과기를 통과한 냉각수의 일부는 원자로로 되돌아 가고 일부는 액체처리계통으로 유입된다. Co-60의 핵중농도 측정자료와 Co-60에 대한 제염계수 측정자료를 이용하여 계산기간 중 마지막 정화장치를 통과해 나갈 후단부 핵종 방출량(Co-60)을 통하여 비교하였다. 평균제염계수(Avg. DF)를 사용할 경우 본 프로그램을 사용한 것 보다 후단부 핵종 방출량의 오차가 더 컸다. 비교한 수치는 표 2.에 나타내었다.

	계산 1	계산 2
후단부 핵중농도(Co-60) 측정자료로	3.487	3.487
계산된 총방출량(주지)	E-1	E-7
본방법 계산결과로서의	3.293	3.295
후단부 핵종 총방출량	E-1	E-1
Avg. DF 사용하여 같은	2.248	2.437
후단부 핵종 총방출량	E-1	E-1
본방법의 오차	5.6 %	5.5 %
Avg. DF의 오차	35.5 %	30.1 %

단위 [Ci]

- \* 계산 1 : 이용될 수 있는 모든 제염계수와 후단부핵중농도의 제염자료 사용
- \* 계산 2 : 제염계수에 대한 적절한 범위에서 임의의 산출결과 사용
- \* [주1] : 후단부핵중농도 측정의 오차로 정화계수 오차 발생하였다.

표 2. 평균제염계수 사용방법과 본방법의 계산결과 비교

다음 표 3. 에 척도인자를 이용하여 산출한 각 정화장치별 주요 핵종의 누적량을 나타내었다. 본방법으로 계산된 Co-60 에 대한 그날 그날의 제염계수와 실제 제염계수 측정결과와의 비교는 다

음 그림 2. 와 그림 3. 에 나타내었다. 그림 2는 78년 12월 21일 초기가동시 부터 79년 3월 1일 까지 취출수여과기의 제염계수 변화를 나타낸 것이고 그림 3은 78년 12월 21일 초기가동시 부터 79년 3월 1일 까지 혼상탈염기의 제염계수 변화를 나타낸 것이다. 앞에서 설명한 부식생성물의 운전상황 변화에 따른 제염효율 변화와 본방법으로 계산된 제염계수 값이 일치되는 경향을 나타내고 있음을 알 수 있다.

기 간	핵 종	취출수여과기	혼상탈염기	보충수여과기	
78.12.21( Startup ) -- 79.3.1 까지의 정화장치별 핵종누적량	부식 생성물	Co-60	0.2644E+01	0.2693E+01	0.2136E+00
		C-14	0.1798E-01	0.1697E-01	0.1453E-02
		Fe-55	0.3173E+01	0.7810E+00	0.2564E+00
		Ni-63	0.7403E+00	0.1131E+01	0.5982E-01
		Pu-239	0.2512E-03	0.8348E-04	0.2030E-04
	핵분열 생성물	Cs-137	0.3977E+02	0.5302E-02	0.2175E+02
		Sr-90	0.3977E+00	0.2386E-00	0.2175E-00
		Tc-99	0.1790E+00	0.3712E-02	0.9786E-01
		I-129	0.5568E-02	0.5832E-03	0.3044E-02

[ 단위 Ci ]

표 3. 척도인자를 이용한 주요핵종 누적량 계산결과

### 3. 결 론

대상발전소의 운전상황을 고려한 정화장치별 누적방사능량을 예측하기 위하여 본 방법은 대상 계통의 전·후단에서 측정된 핵종농도 자료와 대상계통에서 초기 측정된 제염계수 자료를 통하여 계산을 수행하였다. 발전소 핵종농도 측정자료를 통하여 평균제염계수를 이용한 계산결과와 비교를 하였다. 본 방법을 통한 계산값의 정확도가 더 우수한 것으로 나타났다. 또한 부식생성물의 경우 운전상황 변화에 따른 제염효율 변화의 경향을 본 방법이 근사하게 계산하는 것으로 나타났다. 그러나 검증을 위한 발전소의 실측자료의 수가 만족할만큼 충분하지 않았다. 그러므로 실험실 규모의 실험을 통하여 제염계수 변화와 누적량 계산에 대한 검증을 하여야 하며 그 외 다른 발전소의 측정자료를 통하여 운전상황 변화에 따른 제염효율 변화를 검증하는 것 또한 필요하다고 판단된다. 특히 국내발전소의 측정자료를 통한 본 방법의 검증은 필수적이라 판단된다.

\* 본 연구는 기초전력공학공동연구소의 기초연구비와 신형원자로센터의 지원에 의해 수행되었습니다.

### 참 고 문 헌

1. ' 방사성폐기물 인도규정 ', 과학기술처고시 제 91-10 호, 1991.11.22
2. ' 방사성물질 등의 포장 및 운반에 관한 규정 ', 과학기술처고시 제 85-8 호, 1985.7.23
3. U.S. NRC, ' Licensing Requirements for Land Disposal Of Radioactive Waste ', 10 CFR Parts 61, U.S. Nuclear Regulatory Commission, 1991

4. U.S. NRC, 10 CFR Parts 20.311, U.S. Nuclear Regulatory Commission, 1991
5. 김환영 외, '고화체 특성규명 연구', KAERI RR-892-1 89, 한국원자력연구소, 1991
6. 조성영, '가압경수로형 원자력발전소의 액체방사성 폐기물 처리계통에 대한 연구', 서울대학교 석사학위 논문, 1983
7. 이병식, '고리 2호기 중·저준위 방사성 폐기물 방사능량 평가', 서울대학교 석사학위논문, 1989
8. EPRI NP-6368, 'Review of the United Kingdom PWR Primary-Circuit-Chemistry Program', Electric Power Research Institute, 1987
9. EPRI NP-6640, 'The Nature and Behavior of particulates in PWR Primary Coolant', Electric Power Research Institute, 1989
10. NUREG CR-2348, 'In-Plant Source Term Measurements at Rancho Seco Station', U.S. Nuclear Regulatory Commission, 1981
11. EPRI NP-4037, 'Radionuclide Correlations in Low-Level Radwaste', Electric Power Research Institute, 1985

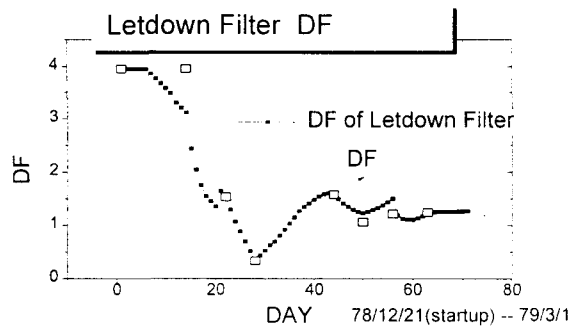


그림 2. 취출수여과기의 제염계수 변화

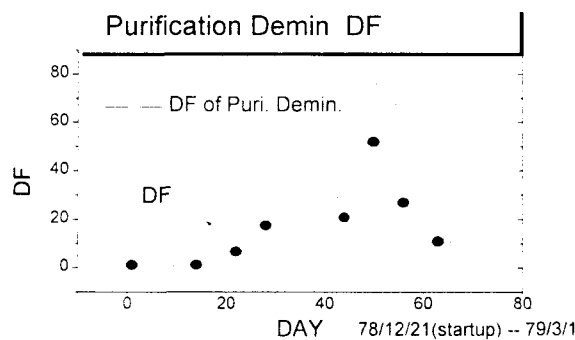


그림 3. 혼상탈염기의 제염계수 변화