

## A Method of Estimating Radionuclide Accumulation in Coolant Purification System

Jooho Whang and Jae Min Lee

Department of Nuclear Engineering, Kyung Hee University

### 원자력발전소 냉각수 정화계통의 핵종누적량 예측기법

황주호 · 이재민

경희대학교

**Abstract**—The amount and kinds of radionuclide contained in waste volume should be known to prepare for occupational exposure management, perform safety assessment and finally to license a repository. Although the volume of filters and resins are small, activities of them comprise most of the radioactivity that made during power generation. This study aims at developing a method of estimating the radionuclide accumulation at the filters and resins of coolant systems. In this study, accumulated amount of radionuclides is estimated by a computer program which makes use of instantaneous decontamination factor, DF, instead of average DF. A FORTRAN program was developed for the estimation. Data from in-plant source-term measurements at Rancho-Seco nuclear power plant in the United States are employed for verification of the estimating method. And experimental data are employed, too. The instantaneous-DF-method showed smaller error than the average-DF-method. Accumulated amount of radionuclides can be calculated with only the DF and the radionuclide concentration, which are measured periodically according to the operating guide. However, especially, when the operating condition of nuclear power plant changes rapidly, the measuring term of DF and radionuclide should be shortened to ensure the accurate estimation.

*Key words:* Accumulated amount of radionuclides, Instantaneous decontamination factor

**요약**—원전 작업자 피폭관리와 안전성 평가 및 최종적으로 처분허가를 위하여 폐기물 내의 핵종 및 농도를 파악하여야만 한다. 이온교환 수지 및 필터는 그 부피는 작으나 원전 운전중 발생하는 폐기물내 방사능의 대부분을 차지하고 있다. 본 연구의 목적은 냉각수 정화 계통내의 수지 및 필터 내에 누적되어 있는 방사성 핵종의 양을 예측할 수 있는 방법을 개발하는 것이다. 핵종누적량을 계산하기 위하여 평균제염계수 대신 순간제염계수를 사용하였으며 포트란언어를 사용하여 프로그램을 작성하여 누적량을 계산하였다. 본 예측기법의 검증에 위하여 미국 Rancho-Seco 발전소의 측정자료를 이용하였으며 실험을 통한 계측자료를 검증에 이용하였다. 순간제염계수를 이용한 본 방법의 계산이 평균제염계수를 이용한

것보다 오차가 작았다. 이 방법을 실제 적용하기 위해서는 운전지침에 의하여 주기적으로 계측한 제염계수와 핵종농도 자료만으로도 핵종누적량 계산이 가능하다. 그러나, 특히 발전소 운전상황이 급격하게 변할 때에는, 정확한 누적량 평가를 위하여 제염계수 및 방사성 핵종농도의 측정주기가 짧아져야 한다.

중심어: 핵종누적량, 순간제염계수

## 서 론

원전 운영시 수반되는 방사성폐기물의 처분 안전성을 확보하기 위하여 폐기물 내의 방사성 핵종 및 방사능량을 알아야만 하며 현재 우리나라를 포함한 각국은 이에 대한 규정을 만들어 준수하도록 하고 있다[1, 2, 3, 4]. 이를 위해서 폐기물 고화체 내의 핵종별 방사능량을 정확하게 계산할 수 있는 방법이 연구되어왔다[5, 6, 7]. 본 연구에서는 냉각수 정화장치 내에 누적되어 있는 방사성핵종의 양을 계산하는 방법을 제시하고자 한다.

이 방법은 포트란 프로그램을 이용하여 발전소에서 측정하는 냉각수내 방사성핵종농도와 주기적으로 측정하는 정화장치별 제염계수 그리고 계산하고자 하는 계통의 최종정화장치를 통과한 냉각수내의 핵종농도를 입력자료로 하여 그날 그날의 순간 제염계수를 생성, 정화장치별 핵종누적량을 계산한다. 부식생성물의 운전상황 변화에 따른 제염효율 변화를 고려하였으며 본 프로그램의 적용범위를 부식생성물뿐만 아니라 냉각수내 주요 핵분열 생성물에도 적용하기 위하여 Co-60 과 함께 Cs-137에 대한 계통내 누적량도 계산하였다. 발전소 측정자료를 통한 적용성 평가 및 모의 시험장치를 통하여 얻은 실험결과와의 비교에서 본 방법이 평균제염계수를 통한 누적량계산 결과에 비해 더 정확한 결과를 나타내었다.

### 원자로냉각수 정화장치내 핵종누적량 계산

#### 핵종누적량 계산의 필요성

국내 가압경수로형 원자력발전소의 경우, 정기보수시의 피폭선량이 전체선량의 83%를 차지하고 있으며 중수로형인 월성 원자력발전소의 경우는 64% 정도로 다른 발전소에 비해 적다. 정기보수 기간중 작업종류를 살펴보면 원자로 연료교체 작업, 증기발생기 점검 및

보수작업, 펌프 및 밸브 보수작업, 가동중 검사, 보 건물리 작업 등 여러 가지 작업들이 있으나 상기한 작업들이 작업자 피폭선량의 약 65%를 점유하고 있고 이중에서도 증기발생기의 점검 및 보수작업과 연료 교체 작업이 전체의 약 51%를 차지하고 있다. 원자력발전소 작업자 피폭선량은 정상운전중 각 계통의 성능확인, 점검을 위해 방사선구역에 출입중 받는 방사선 피폭선량과 고장예방을 위해 1년에 1회씩 실시하는 정기보수 기간중 받는 방사선 피폭선량으로 대별할 수 있다. 이러한 작업시 각 계통내의 방사선원의 누적량을 예측할 경우 작업자 피폭관리를 더욱 합리적으로 할 수 있다. 작업자 피폭의 주요선원 중 특히 부식생성물인 Co-60은 크러드방사화에 의해 생성되는 방사성 핵종중 반감기가 긴 주요 핵종으로 수년이 경과되어도 상당량의 방사선을 방출한다. 또한 Co-60은 방사성 붕괴시 고에너지의  $\gamma$ 선을 방출함으로써 다른 핵종 붕괴시 방출되는  $\gamma$ 선보다 배관이나 구조물을 훨씬 쉽게 투과할 수 있다. 본 연구에서는 이러한 부식생성물의 특성을 분석하여 정화장치내 핵종누적량 계산에 이용하고자 한다.

원자력발전소에서 발생한 중·저준위 방사성 폐기물을 영구처분장에 최종적으로 처분하고자 할 때 운송시의 안전 및 처분의 안전성을 확보하기 위하여 방사성 폐기물 내에 함유되어 있는 방사성물질의 핵종 및 방사능량 그리고 폐기물의 조성 등 그에 관한 이력을 정확하게 알아야만 한다. 현재 우리나라에서는 방사성폐기물 발생자가 발생시킨 방사성폐기물을 친층처분 또는 심층처분 등의 방법으로 영구처분하기 위하여 고시한 '방사성폐기물 인도 규정 (과학기술처고시 제96-10호)'에서 폐기물은 종류 및 방사능도에 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 (과학기술처고시 제96-38호)에서도 방사성물질의 종류와 수량에 따라 포장 및 운반기준을 적용하도록 되어 있다. 미국의 경우에서도 10 CFR 61에서 방사성폐기물 고화체 내에 들어 있는 핵종별 방사능 농도에 대한 규제 등을 갖추어 허용 한도에 따라 A, B, C의 등급을 정하도록 하고 폐기물 발생자에게 이를 준수하도록 하고 있다. 특히 미국의 10 CFR 20.311은 운송·처분되는 방사성폐기물의 형태, 등급, 핵종 및 그 농도와 총방사능량, 화학적형태 등을 명시하도록 하고 있다.

현재까지 우리 나라에서는 계통내의 핵종누적량에 대한 계산방법이 제시되어 있지 않다. 현재까지의 핵종누적량에 대한 연구는 주로 처분규정[1, 2, 3, 4]에 따라 폐기물드럼내의 핵종농도를 계산하는 방법에 대해 이루어져 왔을 뿐이다[5, 6, 7]. 현재 원전에서는 폐기물드럼내의 핵종농도 및 방사능량을 파악하기 위하여 계측기를 이용, 표면선량을 측정하여 이를 다시 핵종보정인자를 통하여 환산하는 방법을 사용하고 있다. 그러나 이 방법은 폐기물드럼내의 핵종 분포가 균일하다는 가정을 통한 방법이다. 실제로 핵종분포가 불균일한 드럼내의 핵종분포를 이러한 가정을 통하여 파악한다는 것은 상당한 문제점을 안고 있다. 원전의 방사성관리 연보를 통해 살펴보면 다음과 같은 문제점을 알 수 있다. 다음 표 1, 2는 영광 원자력발전소 1, 2호기의 유형별 표면선량을 자료이다.

영광 1, 2 호기에서 1993년도와 1994년도에 발생한 폐필터의 핵종농도[8, 9]를 살펴보면 1993년도의 경우 200리터 드럼으로 9 드럼,  $1.97 \text{ E}+11 \text{ Bq}$  의 폐기물이 발생하였고 94년도의 경우 5 드럼  $3.7 \text{ E}+10 \text{ Bq}$  의 폐기물이 발생하였다. 두해 모두 정기보수 기간 중에 발생한 것임에도 불구하고 드럼내 평균 핵종농도가 약 2배 이상 차이가 발생한 것을 알 수 있다. 1995년도 및 1993년도 영광 1, 2 호기의 폐필터에서의 표면선량을 비교하여 보면 1995년도 영광 1, 2호기의 경우 72.2% 가 2000mR/h 이하인데 반하여 1993년도 영광 1,2호기의 경우는 88.9% 가 2000mR/h 이상이다. 1995년도 및 1993년도 영광 1, 2 호기의 정상운전중 폐수지 발생분의 표면선량을 비교하면 1995년도에는 0.5 mR/h 이하가 32.1%, 0.6-2000 mR/h 의 분포가 36.5

%, 2000 mR/h 이상이 31.4% 이나 1993년도에는 0.5 mR/h 이하가 100%이다. 이상의 경우를 고려할 때 현재 발전소에서 폐기물 드럼내의 핵종 및 농도 파악에 사용되고 있는 표면선량 측정을 통한 방법에 상당한 오차가 있을 것을 예측할 수 있다 그러므로 본 연구에서는 발전소에서 측정하고 있는 정화장치별 제염계수 및 냉각수내 핵종농도를 통한 계통내 핵종누적량 계산 방법을 제시하여 피폭관리 및 폐기물관리에 효율적으로 적용하고자 한다.

Table 1. 93년 영광 1, 2호기 폐기물드럼 유형별 표면선량을 분포[8]

표면선량률 폐기물유형	0.5 mR/h 이하	0.5-50 mR/h	50-2000 mR/h	2000 mR/h 초과
잡고체	6.6%	80.9%	12.5%	0%
농축폐액	0%	72.6%	24.8%	2.6%
폐필터	0%	0%	11.1%	88.9%
폐수지	100%	0%	0%	0%
합 계	10.6%	71.7%	15.9%	1.8%

Table 2. 95년 영광 1, 2호기 폐기물드럼 유형별 표면선량을 분포[10]

표면선량률 폐기물유형	0.5 mR/h 이하	0.5-50 mR/h	50-2000 mR/h	2000 mR/h 초과
잡고체	2.0%	79.9%	18.1%	0%
농축폐액	0%	71.5%	28.5%	0%
폐필터	0%	0%	72.2%	27.8%
폐수지	32.1%	5.1%	31.4%	31.4%
합 계	6.7%	62.5%	24.7%	6.1%

#### 부식생성물의 특징

용출 및 침식에 의하여 용출된 부식생성물은 이온 또는 부유입자의 형태로 냉각재에 실려 계통을 순환하게 된다. 냉각재는 계통을 순환하면서 온도가 주기적으로 바뀌게 되는데 이에 따라 용해도도 주기적으로 변하게 된다. 이러한 용해도의 변화는 부식생

성물의 침적에 중요한 역할을 한다. 즉, 용해도가 감소하게 되면 금속이온들은 침전되어 부유입자로 바뀌거나 산화막 표면에서 결정을 이루고 반대로 용해도가 증가하게 되면 역현상이 발생한다. 냉각재의 부유입자들은 수  $\mu\text{m}$  이하의 크기가 대부분으로 이들은 다음과 같은 반응에 의하여 전하를 띠게 되어 콜로이드처럼 행동한다. 이와 같이 냉각재에 실려 이동되는 부식생성물이 핵연료 표면에 침적되면 증성자 조사를 받아 방사성 핵종으로 바뀌어 계통내의 방사선 준위를 높이게 된다. 현재 대부분의 가압경수로에서 적용하고 있는 수질관리 방법은 부식생성물의 노심내 침적을 억제하는 데에 주안점을 두고 있다. 실제로 원자로 냉각재내 크러드 농도는 대단히 낮으며, 통상 0.01-1 ppm 정도이나, 원자로 냉각재가 고속으로 흐르기 때문에 비교적 단시간 내에 상당량의 크러드가 노심내로 이동될 수 있다. 크러드는 불안정하여 이동중에 원자로 냉각재 계통의 여러 부위에 침적되는 경향이 있으며, 많은 실험과 운전 경험을 통해 다음과 같은 결론을 얻게 되었다.

- 크러드는 고열속 (High heat flux) 부위에 침적하는 경향이 있다.
- 방사선속(Radiation flux)에서 크러드의 침적현상이 증가한다.
- 저유속(Low fluid velocity)부위에서 크러드의 침적현상이 증가된다.
- 크러드는 스테인레스 강의 표면보다 Zircaloy 표면에 두껍게 침적되는 경향이 있다.

가압경수로형 원자력 발전소의 장기피폭선원으로 중요한 방사화 부식생성물에 대한 연구결과에서 방사성 피폭의 주요 원천이 되는 크러드 원소 조성과의 선량 기여도를 보면 Co-58이 약 60%, Co-60이 약 10%, Cr이 약 25% 이고, 기타 Mn-54, Fe-59 등이 나머지 5%를 차지하고 있다[11]. 피폭의 측면에서 보면 핵종이 방출하는 감마선 에너지가 중요하다.

부식생성물로 부터 증성자 조사에 의하여 방사화되어 생성되는 주요 방사성핵종과 핵반응 및 주 감마에너지를 표 3에 나타내었다. 피폭의 기여도는 Co-

58이 70%, Co-60이 25%를 차지하고 있으며 결과적으로 가압경수로형 원자력 발전소의 피폭저감에는 Co-58과 Co-60의 저감화 대책이 필요함을 알 수 있다. 특히 Co-60은 크러드방사화에 의해 생성되는 방사성 핵종중 반감기가 긴 주요 핵종으로 다음과 같은 특성을 가지고 있다.

Table 3. 방사성 핵종 및 반응식

방사성 핵종	핵반응	반감기	주감마 에너지 (Kev)	모핵종 자연 존재비
Fe-59	Fe58(n, $\gamma$ )Fe59	45일	1,099 1,292	0.31
Co-58	Ni58(n,p)Co58	74일	810	67.76
Cr-51	Cr50(n, $\gamma$ )Cr51	28일	320	4.31
Co-60	Co59(n, $\gamma$ )Co60	5.27년	1,173 1,332	100
Mn-54	Fe54(n,p)Mn54	313일	835	5.84

- Co-60은 다른 방사화 생성물에 비하여 비교적 긴 반감기를 가진다. 즉 반감기가 5.2년으로 원자로가 정지된 후 수년이 경과되어도 Co-60이 붕괴되어 상당량의 방사선을 방출한다.
- Co-60은 방사성 붕괴시 고에너지의  $\gamma$ 선을 방출함으로써 다른 핵종의 붕괴시 방출되는  $\gamma$ 선보다 배관이나 구조물을 훨씬 쉽게 투과할 수 있다.
- 방사화 부식생성물중 Co-60이 가장 유해한 핵종이므로, 수중 또는 공기중의 최대허용농도 값이 가장 작다.

Westinghouse사에서 제작한 가압경수로들의 증기 발생기 튜브에 침적된 방사성 핵종의 측정자료에 따르면 운전초기에는 Co-58이 중요한 피폭원이 되나 2-3 EFPY(Equivalent Full-Power Years)후에는 Co-60의 중요성이 더 커짐을 알 수 있다.

프로그램 계산식

냉각수 정화장치에 누적된 방사성핵종의 양을 계

산하는 기본개념은 “정화시스템에 들어간 양에서 정화 계통을 빠져 나온 양을 빼게되면 그 나머지가 누적 량이다”라는 간단한 것이다. 정화장치별 핵종누적량은 다음 식 (1)~(6)을 이용하여 계산할 수 있다.

$$A_{CONC.} = (INCONC. - A_{OUT}) \times FLOW \quad (1)$$

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

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

$$A_{OUT} = \frac{INCONC}{DF_A} \quad (4)$$

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

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

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

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 후단부핵종농도와와의 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 후단부 핵종농도를 생성하고 핵종누적량계산식을 통하여 핵종누적량과 후단부핵종농도를 계산한다. 계산된 후단부 핵종농도와 입력자료로서의 후단부핵종농도와의 차이가 주어진 허용오차보다 클 경우 다음 식 (7)~

(10)를 통하여 초기제염계수값을 변화시킨다.

$$DF_E = DF_A + DF_B + DF_C \quad (7)$$

$$DF_A = DF_{A\pm} \left( \frac{DF_A}{DF_E} \right) \times C_1 \quad (8)$$

$$DF_B = DF_{B\pm} \left( \frac{DF_B}{DF_E} \right) \times C_2 \quad (9)$$

$$DF_C = DF_{C\pm} \left( \frac{DF_C}{DF_E} \right) \times C_3 \quad (10)$$

여기서 +는 계산된 후단부핵종농도가 입력자료로서의 후단부핵종농도보다 클 경우이고 -는 그 반대로 작을 경우이다.

이러한 방법으로 허용오차를 만족할 때까지 반복하여 계산을 실행한다. 허용오차를 만족할 경우 초기제염계수는 그날그날의 순간제염계수가 되며 이를 통하여 정화장치별 핵종누적량을 계산한다. 이 과정을 간략히 그림 1의 흐름도를 통해 나타내었다. 그리고 식(8)~(10)에서의  $C_1$ ,  $C_2$ ,  $C_3$  는 부식생성물의 입자분을 변화에 따른 보정 상수로서 다음 2.2.3 절에서 설명하였다.

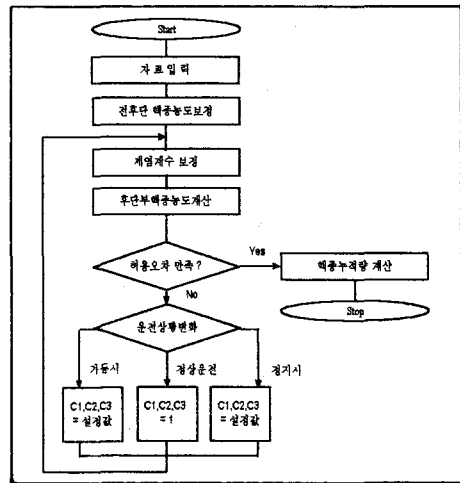


Fig. 1. 핵종누적량 계산 흐름도

부식생성물은 운전상황에 따라 입자의 분율이 변한다 [12, 13]. 부식생성물의 입자분을 변화는 1차냉각수 정화장치의 제염효율에 상당한 영향을 주게 되는데 이를 가동시와 정지시를 비교하여 살펴보면 표 4와 같다.

Table 4. 운전상황 변화에 따른 제염효율 변화

운전 상황	부식생성물 입자분율	필터의 제염효율	이온교환수지의 제염효율
초기 가동시	증가	증가	감소
운전 정지시	감소	감소	증가

본 방법에서는 계산과정에서 이러한 제염효율의 변화를 고려하여 각 운전상황에 따라 후단부핵종농도와외의 오차 보정시 제염효율 변화에 따라 제염계수를 감소 또는 증가시키며 반복계산을 통하여 허용오차를 만족시키도록 하였다. 또한 이러한 운전상황의 변화가 1차냉각수를 처리하는 첫 번째 필터와 이온교환수지에 상당히 영향을 미치는 점을 고려하여 배열순으로 가중치를 두어 계산하였다.

운전상황 변화가 일어난 경우 부식생성물의 입자분율에 변화가 온다. 이러한 입자분율의 변화는 냉각수 정화장치의 제염효율에 변화를 주게 된다. 표 4에서 알 수 있듯이 초기가동시의 경우 부식생성물 입자분율의 증가는 필터의 제염효율의 증가를 가져 오며 이온교환수지의 제염효율은 감소의 경향을 갖게 된다. 본 프로그램의 경우 보정상수를 사용하여 입자분율 변화를 반영하였다. 입자분율 변화로 제염효율의 변화가 일어난 경우 급격한 제염효율 변화를 2.32 절에 설명한 식으로 계산할 경우 계산효율이 떨어질 뿐만 아니라 계산 오차가 크게 발생할 수 있다. 그래서 제염효율 변화에 따라 제염계수 보정시 제염계수의 변화폭을 조정하여 계산의 효율성을 향상하였다. 운전상황, 정화장치 배열순서, 정화장치 종류별로 보정상수 값을 적용하였으며 보정상수 값은 표 5에 나타내었다.

Table 5. 부식생성물 보정상수

운전상황	제염매질	C1	C2	C3
가동시	필터	15	15	15
	이온교환수지	0.2	0.2	0.5
정지시	필터	0.5	0.75	0.75
	이온교환수지	20	15	15

실제 발전소 자료를 통한 검증

- 미국 Rancho Seco 발전소 측정자료[14]를 통한 검증  
핵종누적량계산에 있어서는 부식생성물인 Co-60과 핵분열 생성물인 Cs-137의 누적량만을 계산하여 결과를

살펴보았다. 그리고 정화장치별 척도인자(Scaling Factor) [15]를 사용하여 그 외 주요 핵종의 누적량을 산출하였다. 본 방법을 통한 계산의 대상으로 보충 및 정화계통을 선정하였는데, 그 이유는 이들 계통이 원자로 일차냉각수를 처리하는 계통으로서 정화장치별 누적방사능량도 다른 계통내 방사능량보다 월등히 많아, 폐수지, 폐필터내 누적방사능량 예측에서 가장 중요한 계통이라 판단되었기 때문이다. 보충 및 정화계통은 원자로 일차냉각수의 부유입자를 정화하기 위한 취출수여과기(Letdown Filter), 이온성 핵종을 정화하기 위한 혼상탈염기(Purification Demineralizer)와 녹아 나오는 수지입자를 정화하기 위한 보충수 여과기(Makeup Filter)와 같은 정화장치가 연속적으로 설치되어 있다. 보충수여과기를 통과한 냉각수의 일부는 원자로로 되돌아가고 일부는 액체처리계통으로 유입된다. Co-60의 핵종농도 측정자료와 Co-60에 대한 제염계수 측정자료를 이용하여 계산기간 중 마지막 정화장치를 통과해 나간 후단부 핵종 방출량(Co-60)을 통하여 비교하였다. 그 결과 평균제염계수(Avg. DF)를 통한 계산 결과에 비해 본 프로그램의 계산 결과가 더 우수하였다. 비교한 수치는 표 6에 나타내었다.

Table 6. 평균제염계수 사용방법과 본방법의 계산결과 비교

	계산 1	계산 2
후단부 핵종농도(Co-60) 측정자료로 계산된 총방출량[주1]	1.290E+10	1.290E+10
본방법 계산결과로서의 후단부 핵종 총방출량	1.218E+10	1.219E+10
Avg DF 사용하여 얻은 후단부 핵종 총방출량	8.318E+09	9.017E+09
본방법의 오차	56%	55%
Avg DF의 오차	35.5%	30.1%

단위[Bq]

\* 계산 1: 모든 제염계수와 후단부핵종농도의 측정자료 사용

계산 2: 제염계수에 대한 자료를 변화 폭이 큰 자료로 선별하여 사용

\*[주 1]: 후단부핵종농도 측정구간별로 평균값을 얻어 산출하였다.

본 방법으로 계산된 Co-60에 대한 그날 그날의 제염계수와 실제 제염계수 측정값과의 비교는 다음 그림 2와 그림 3에 나타내었다. 그림 2와 3은 1978년 12월 21일 초기가동시부터 1979년 3월 1일까지 취출수여과기의 제염계수 변화와 혼상탈염기의 제염계수 변화를 각각 나타낸 것이다. 앞에서 설명한 부식생성물의 운전상황 변화에 따른 제염효율 변화와 본 방법으로 계산된 제염계수 값이 일치되는 경향을 나타내고 있음을 알 수 있다.

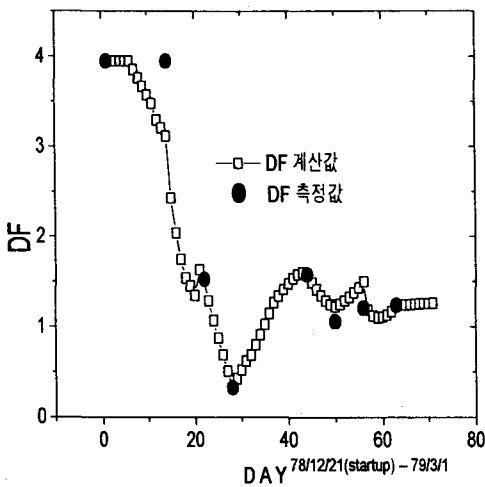


Fig. 2. Rancho-Secco 취출수여과기 제염계수(Co-60)

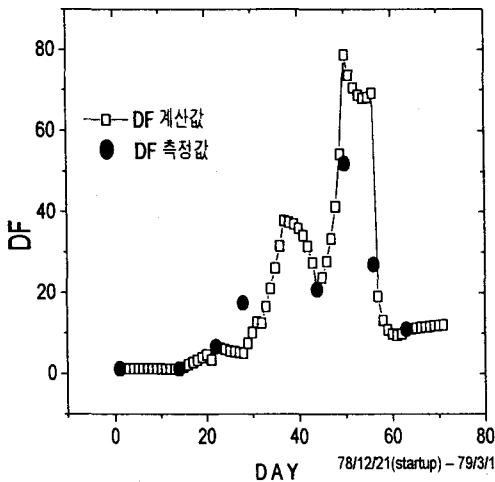


Fig. 3. Rancho-Secco 혼상탈염기 제염계수(Co-60)

미국 Rancho Seco 발전소의 핵종농도 및 제염계수 자료와 미국 EPRI에서 제시한 Scaling Factor를 통한 핵종누적량 계산에 있어 Co-60과 Cs-137을 이용하여 Pu-239의 양을 계산한 경우 Pu-239의 값이 적용한 Scaling Factor에 따라 10 배 이상의 차이가 나는 것을 표 7의 정화장치별 각 핵종 누적량을 보면 알 수 있다. 이러한 오차가 나는 것을 볼 때 미국 EPRI의 Scaling Factor를 우리나라 원전에 적용할 경우 그 오차는 더욱 증가하리라 예상된다. EPRI NP-5077 보고서의 경우 가압경수로형 원자로 냉각수에서의 Co-60/Cs-137의 비가 12644 E-01 이다. 그러나 국내 영광 2호기 1995년도 1/4분기 핵종농도를 분석한 결과 Co-60/Cs-137의 비가 9.2213E-03 으로 계산되었다. 국내 원전의 종합적인 핵종분석을 통한 결과를 제시하지는 못하여 정확한 비교라고는 할 수는 없다. 그러나 영광 2호기에 비해 약 10배 이상의 차이가 나는 것을 볼 때 우리나라도 조속히 Scaling Factor를 개발하여야 할 필요가 있다고 판단된다.

Table 7. 정화장치별 각 핵종 누적량[15]

기 간	핵 종	Letdown filter	Purification demineralizer	Makeup filter	
Rancho -Seco 발전소 정화장치별 핵종누적량	부 식	Co-60	9.783E+10	9.764E+10	7.903E+09
	생 성	C-14	6.653E-08	6.279E-08	5.376E-07
	물	Fe-55	1.174E+11	2.890E+10	9.487E+09
		Ni-63	2.739E+10	4.207E+10	2.213E-09
		Pu-239	9.294E-06	3.089E-06	7.511E-05
1978.12.21 (Startup) ... 1979.3.1	핵 분 열 생 성 물	Cs-137	1.471E+12	1.962E+12	8.048E+11
		Sr-90	7.576E+09	8.828E+09	4.214E+09
		Tc-99	6.662E+09	1.373E-08	3.621E-09
		I-129	2.060E-08	2.158E-07	1.126E-08
		Pu-239 [주2]	1.340E-08	1.157E-08	1.127E-09

단위 [Bq]

[주 1] : Pu-239/Co-60의 척도인자[15]를 사용하여 계산

[주 2] : Pu-239/Cs-137의 척도인자[15]를 사용하여 계산

실험장치구성

실험장치는 국내 웨스팅하우스형 원자로(고리 1,2 호기 및 영광 1,2 호기)의 화학 및 체적 조절 계통(CVCS)을 모사하여 제작하였다. 실험장치에 장착된 정화장치는 혼상탈염기 #1, 혼상탈염기 #2, 양이온탈염기, 필터이며 모의 냉각수는 증류수에 Co-60 (Co분자 형태로 0.1M HCl에 녹아 있는 액체선원)과 Cs-137(CsCl의 형태로 0.1M HCl에 녹아 있는 액체선원)을 희석하여 사용하였다.

실험장치의 개략적인 구성은 그림 4와 같다. 혼상탈염기에 사용된 이온교환수지는 IRN-150 이며 양이온탈염기에는 IRN-77 이온교환수지를 사용하였다. 필터는 스테인레스스틸 (25 $\mu$ m)을 사용하였다. 각 정화장치의 제염계수 측정을 위하여 정화장치 전·후 단부에서 시료를 채취하여 핵종농도를 계측하였으며 저장조의 시료를 채취하여 저장조내의 방사성핵종의 양을 계산하였다. 혼상탈염기의 경우 #1과 #2를 교대로 운전하였으며 이 때마다 수지를 교체하였다. 수지의 양을 초기 5ml 에서 10ml 로 증가시켜 실험하였다. 이는 정화장치에 사용되는 이온교환수지의 성능향상으로 인한 제염효율변화를 고려한 것이며 양이온탈염기의 경우 실험 전기간 동안 수지의 양을 5 ml로 하여 실험하였다.

계측장비로는 미국 CANBERRA사의 NaI 계측기 (Resolution 7.7%)를 사용하였으며 MCA는 CANBERRA사의 Accuspec NaI보드를 PC에 연결하여 사용하였다.

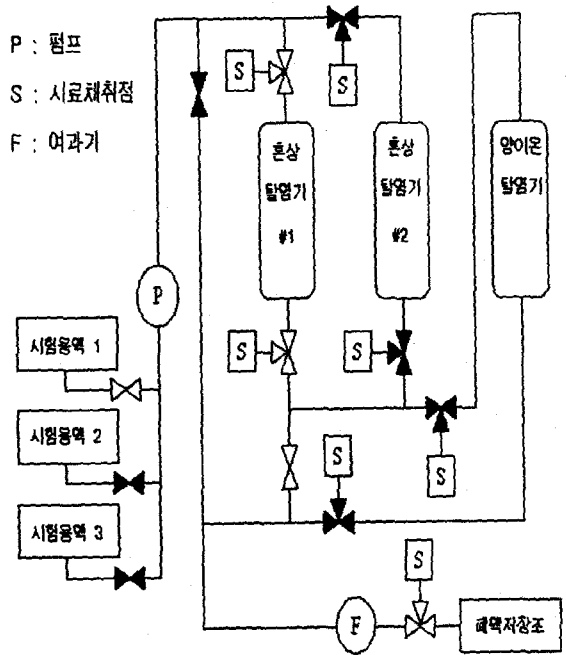


Fig. 4. 실험장치도

실험자료를 통한 프로그램 검증

실험을 통하여 혼상탈염기의 제염계수 46개와 필터의 제염계수 45개, 양이온탈염기의 제염계수 9개를 얻었으며 저장조의 시료분석을 통하여 저장조내의 핵종량을 계산하였다. 실험을 통하여 얻은 핵종농도 자료와 제염계수를 통하여 프로그램을 실행하여 정화장치 내의 핵종량을 계산하였다. 정화장치내 핵종량은 다음 식(11)과 같은 방법으로 계산할 수 있다.

$$\begin{aligned} \text{정화장치내 총핵종량} = & \text{실험에 사용한} \\ & \text{모의냉각수내 핵종량} \\ & - \text{채취한 시료중에 포함된} \\ & \text{핵종량} \\ & - \text{저장조내의 핵종량 (11)} \end{aligned}$$

실험을 통한 결과와 프로그램을 통한 정화장치내 핵종누적량 계산의 비교에 있어 실험을 통하여 각각의 정화장치내에 누적된 핵종량을 얻을 수 없어 모든 정화장치 내에 누적된 총핵종량을 통하여 검증하였다. 프로그램의 실행에 있어서 입력자료로서의 각 정화장치별 제염계수를 줄여가며 입력하여 계산을 수행



하였다. 실험을 통하여 얻은 계산결과와 프로그램을 통하여 얻은 계산결과를 표 8에 나타내었다. 또한 제염계수 측정값과 계산값을 그림 5, 6에 나타내었다.

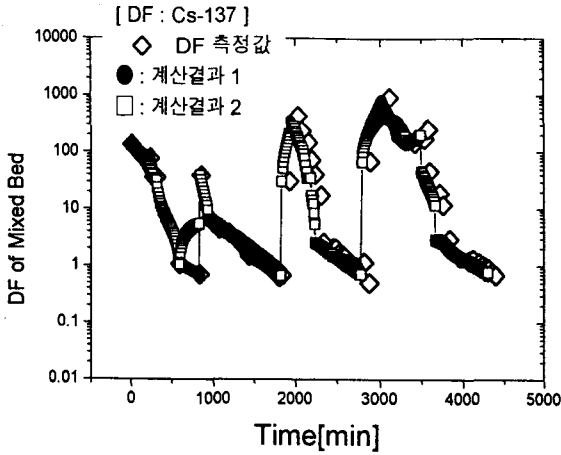


Fig. 5. 혼상탈염기 제염계수(Cs-137)

- \* 계산 1 : 모든 제염계수를 입력자료로 사용
- 계산 2 : 제염계수의 수를 계산 1의 2/3으로 줄여 입력

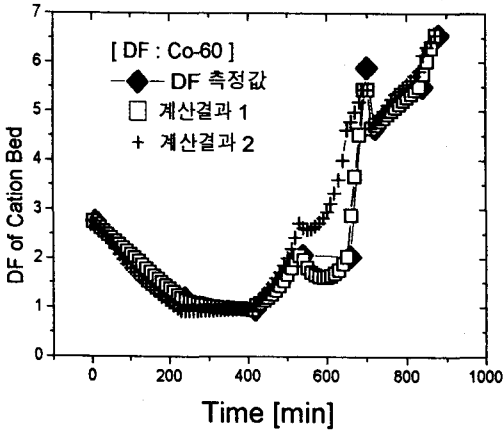


Fig. 6. 양이온탈염기 제염계수(Co-60)

- \* 계산 1 : 모든 제염계수를 입력자료로 사용
- 계산 2 : 제염계수의 수를 계산 1의 2/3으로 줄여 입력

Table 8. 정화장치내 총핵종량 계산

핵종량 및 오차		Co-60	Cs-137
모의냉각수내 핵종량		2.048E+06	2.048E+06
채취시료내 핵종량		1.650E+05	2.623E+05
저장조내 핵종량		3.485E+05	7.711E+05
정화장치내 총핵종량		1.534E+06	1.015E+06
프로그램 계산	계산 1	1.613E+06	1.093E+06
	계산 2	1.603E+06	1.202E+06
정화장치내 총핵종량	계산 1	5.12%	7.73%
	계산 2	6.90%	18.45%
평균제염계수 계산		1.818E+06	1.756E+06
평균제염계수 오차		18.47%	73.05%

단위[Bq/ml]

- \* 계산 1: 모든 제염계수를 입력자료로 사용
- \* 계산 2: 제염계수의 수를 계산 1의 2/3으로 줄여 입력

프로그램 적용성 분석

본 계산 프로그램에서는 입력자료로 정화장치별 제염계수와 정화장치의 전·후단부를 통과하는 핵종 농도를 사용한다. 프로그램의 적용성을 분석하기 위하여 입력자료중 제염계수와 후단부 핵종농도의 입력수를 줄여나가면서 정화장치를 통과해나간 냉각수 내의 핵종 총방출량을 실제값과 비교하였다. 발전소의 측정자료로는 앞서와 마찬가지로 미국 Rancho-Seco 발전소의 측정자료를 이용하였으며 계산 대상핵종은 Co-60이다. 먼저 제염계수 입력자료만을 일정 기간 간격으로 줄여나가며 계산 오차의 변화를 살펴보았다. 다음 표에 각 계산별 결과를 나타내었다. 표 9는 1978. 9. 7 정상운전 기간부터 1978. 11. 15 가동정지기까지의 계산 결과이고 표 10은 1978. 12. 21 가동시부터 1979. 3. 1 정상운전 기간까지의 계산 결과이다. 또한 표 11, 12 에 제염계수 및 후단부핵종농도 입력 감소에 따른 오차분석을 나타내었다.

**Table 9. 제염계수 입력 감소에 따른 계산(1)**  
(1978. 9. 7 정상운전기간~1978. 11. 15 가동정지기)

총방출량 및 오차	계산 1	계산 2	계산 3
실제 총방출량	1.290E+10	1.290E+10	1.290E+10
본방법으로 계산한 총방출량	1.234E+10	1.232E+10	1.227E+10
본방법의 오차	4.39%	4.50%	4.93%

[단위 : Bq]

\* 제염계수 입력자료수 :

- Letdown filter : 계산 1, 2, 3에 대하여 각각 8, 5, 3
- Purification : 계산 1, 2, 3에 대하여 각각 8, 5, 3 Demineralizer
- Makeup Filter : 계산 1, 2, 3에 대하여 각각 2, 2, 2

**Table 10. 제염계수 입력 감소에 따른 계산(2)**  
(1978. 12. 21 가동시~1979. 3. 1 정상운전시간)

총방출량 및 오차	계산 1	계산 2	계산 3
실제 총방출량	2.688E+10	2.688E+10	2.688E+10
본방법으로 계산한 총방출량	2.690E+10	2.687E+10	2.627E+10
본방법의 오차	0.10%	0.03%	2.26%

[단위 : Bq]

\* 제염계수 입력자료수 :

- Letdown filter : 계산 1, 2, 3에 대하여 각각 7, 5, 2
- Purification : 계산 1, 2, 3에 대하여 각각 7, 4, 3 Demineralizer
- Makeup Filter : 계산 1, 2, 3에 대하여 각각 4, 4, 2

**Table 11. 제염계수 및 후단부 핵종농도 입력 감소에 따른 계산(1)**  
(1978. 9. 7 정상운전기간~1978. 11. 15 가동정지기)

총방출량 및 오차	계산 1	계산 2	계산 3
실제 총방출량	1.290E+10	1.290E+10	1.290E+10
본방법으로 계산한 총방출량	1.111E+10	1.355E+10	1.726E+10
본방법의 오차	13.91%	5.02%	33.75%

[단위 : Bq]

\* 후단부핵종 농도입력수 : 계산 1, 2, 3에 대하여 각각 8, 7, 6

**Table 12. 제염계수 및 후단부 핵종농도 입력 감소에 따른 계산(2)**  
(1978. 12. 21 가동시~1979. 3. 1 정상운전기간)

총방출량 및 오차	계산 1	계산 2	계산 3
실제 총방출량	2.688E+10	2.688E+10	2.688E+10
본방법으로 계산한 총방출량	2.629E+10	3.004E+10	1.069E+10
본방법의 오차	2.189%	11.76%	60.23%

[단위 : Bq]

\* 후단부핵종 농도입력수 : 계산 1, 2, 3에 대하여 각각 5, 4, 3

위의 계산결과를 보면 본 계산 프로그램의 오차가 제염계수만의 입력수를 줄였을 때는 오차의 증가폭이 매우 작았으나 제염계수와 후단부농도 입력을 동시에 줄였을 때는 오차의 증가 폭이 매우 큼을 알 수 있다. 이는 본 계산 프로그램에 있어 후단부 핵종자료를 기준으로 계산의 허용오차를 계산하여 제염계수 생성 및 핵종누적량을 계산하기 때문에 계산의 기준이 되는 후단부 핵종농도 입력 자료 수의 감소가 계산 오차의 증가를 가져온 것으로 분석된다. 이상과 같은 결과를 통하여 본 계산 프로그램의 적용에 있어서 제염계수 및 후단부 핵종농도 자료의 입력시 운전상황변화에 따른 입력이 계산 정확성에 많은 영향을 미치고 있음을 알 수 있다.

그러므로 본 계산 프로그램의 정확성 향상을 위하여 제염계수 및 후단부 핵종농도 측정이 가능한 많을수록 좋으며 특히 운전상황 변화시의 제염계수 및 후단부 핵종농도 측정치의 입력은 필수적이라고 할 수 있다. 그러므로 원전의 운전에 있어서 운전중 정화장치의 교환 및 기타 운전상황의 변화로 제염계수 및 후단부 핵종농도의 변화가 예측될 경우에는 제염계수 및 후단부 핵종농도를 측정하여야 한다고 판단된다.

## 결 론

본 연구에서는 중·저준위 폐기물의 대부분을 차지하는 공정폐기물인 폐필터 및 폐수지에 대하여 누적방사능량을 순간제염계수를 이용한 방법으로 계산

하였다.

대상발전소의 운전상황을 고려한 정화장치별 누적 방사능량을 예측하기 위하여, 본 방법은 대상계통의 전·후단에서 측정된 핵종농도 자료와 대상계통에서 초기 측정된 제염계수 자료를 통하여 계산을 수행하였다. 발전소 핵종농도 측정자료 및 모의실험 자료를 통하여 평균제염계수로 계산한 결과와 비교하였다. 본 방법을 통한 계산값의 정확도가 더 우수한 것으로 나타났으며 부식생성물의 경우 운전상황 변화에 따른 제염효율 변화의 경향을 본 방법에서는 일치되게 계산하는 것으로 나타났다.

부식생성물의 경우 원자력발전소의 운전이력 및 운전상황에 따라 발생량 및 용해도에 따라 입자분율의 변화가 일어나게 된다. 이러한 변화는 정화장치의 제염효율에 영향을 주게 되므로 정화장치별 핵종누적량 예측에 있어 운전상황에 따른 변화를 반영하여야 한다. 본 계산방법에 있어서 프로그램 입력자료인 제염계수 계측값과 후단부 핵종농도는 계산의 정확성에 상당한 영향을 미친다. 그러므로 원전 운전중 운전상황의 변화가 일어난 경우, 정화장치별 제염계수 측정 및 정화장치 후단부 핵종농도의 측정이 이루어져야 한다.

현재 주기적으로 측정하는 제염계수 및 핵종농도 자료는 운전상황과 무관하게 일정한 주기로 이루어지므로 운전상황변화에 따라 계속할 경우 본 방법 적용시 정확성을 향상시킬 수 있다. 그러므로 본 방법의 효율적인 적용을 위하여 원전 운전 중 운전상황변화에 따른 제염계수 및 정화장치 후단부 핵종농도의 계측이 선행되어야 한다고 판단된다. 본 방법의 계산에 필요한 자료는 계산하고자 하는 정화장치의 전단부 핵종농도와 후단부 핵종농도 그리고 정화장치별 제염계수이다. 특히 원자력발전소의 화학 및 체적조절 계통(CVCS)의 경우 냉각수내 핵종농도 및 정화장치별 제염계수를 주기적으로 측정하고 있으므로 이러한 자료를 적극적으로 활용한다면 방사선관리 및 폐기물관리에 본 방법을 적용할 수 있다.

## 참고문헌

1. 과학기술처, 방사성폐기물 인도규정, 과학기술처 고시 제96-10호.
2. 과학기술처, 방사성물질등의 포장 및 운반에 관한 규정, 과학기술처고시 제96-38호.
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 Part 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 방사성폐기물방사능량 평가," 서울대학교 석사학위논문(1989).
8. 1993년도 방사선관리연보, 한국전력공사(1994).
9. 1994년도 방사선관리연보, 한국전력공사(1995).
10. 1995년도 방사선관리연보, 한국전력공사(1996).
11. 백승우 외, "원전종사자 방사선피폭 저감화를 위한 1차계통수 최적화학 관리," KEARI/AR321/90, 한국원자력연구소, pp. 25-26(1990).
12. T. Swan, *Review of the United Kingdom PWR Primary-Circuit-Chemistry Program*, Electric Power Research Institute, EPRI NP-6368(1987).
13. D. A. Bridle, *The Nature and Behavior of particulates in PWR Primary Coolant*, Electric Power Research Institute, EPRI NP-6640(1989).
14. J. W. Mandler, *In-Plant Source Term Measurements at Rancho Seco Station*, U. S. Nuclear Regulatory Commission, NUREG/CR-2348(1981).
15. W. T. Best, *Updated Scaling Factors in Low-Level Radwaste*, Electric Power Research Institute, Palo Alto, California, NP-5077(1987).

## 감사의 글

\*본 연구는 기초전력공학공동연구소의 지원에 의하여 수행되었습니다.