

연구로 2호기 방사화 수조 콘크리트의 재고량 평가에 관한 연구

홍상범, 서범경, 조동진, 정경환, 문제권
한국원자력연구원

2012년 9월 25일 접수 / 2012년 10월 27일 1차 수정 / 2012년 10월 29일 채택

방사능재고량 평가는 해체과정에서 요구되는 계획 수립, 비용 평가, 위험도 평가, 폐기물관리 및 잔류방사능 조사 등에 중요한 영향을 준다. 연구로 2호기 해체사업은 2009년 완료하였고, 해체과정에서 많은 양의 방사화 콘크리트가 발생되었다. 연구로 수조 콘크리트는 연구로 운영과정에서 발생된 중성자와 상호작용에 의해 콘크리트 내 극미량으로 존재하는 불순물이 방사화되어 다양한 핵종(^3H , ^{14}C , ^{55}Fe , ^{60}Co , ^{63}Ni , ^{134}Cs , ^{152}Eu 및 ^{154}Eu) 검출되었다. 본 논문에서는 연구로 방사화 콘크리트에 대한 핵종 재고량을 계산하기 위해 MCNP5, ORIGEN2.1를 조합하여 평가하였고, 계산 결과는 측정된 결과와 비교평가를 수행하였다. 연구로 2호기 수조 콘크리트의 경우 연구로 운전정지 후 12년 동안 안전격리 기간을 거쳐 해체가 착수되었으며, 해체시점에서 ^3H , ^{55}Fe , ^{60}Co 및 ^{152}Eu 방사능이 전체방사능의 99.8%를 차지하였다. 운전기간 및 냉각기간에 따른 방사화 재고량의 영향을 분석하였다.

중심어: 재고량, 방사화, 수조 콘크리트, 해체

1. 서론

수명을 다한 원자력시설의 해체를 위해 시설 내 방사성핵종 재고량의 정확한 평가는 매우 중요한 사항으로서 핵종의 종류 및 방사능준위에 따라 해체 수행방법의 선택에 직접적인 영향을 준다. 특히, 방사능 재고량 평가는 해체계획의 수립 및 해체방법의 결정, 해체작업 종사자의 피폭량 예측, 제염기술 선정, 방사성폐기물의 관리 및 처분요건 결정, 환경영향 평가 및 잔류방사능 조사를 위한 기본 자료로 활용된다. 해체폐기물의 대부분을 차지하는 것이 콘크리트 폐기물이며, 폐기물의 안전하고 효율적인 관리, 제염 및 재활용을 위한 다양한 연구가 수행되었다 [1]. 연구로 2호기(TRIGA MARK-III, 2 MW)는 1972년에 준공, 가동을 시작하여 1995년까지 운전하여 동위원소생산 및 원자력관련 교육에 활용되었다. 연구로 2호기의 구체적인 특성은 표 1과 같다. 연구로 2호기 해체는 2009년 완료하였고, 수조 콘크리트를 포함하여 모든 방사성물질을 제거하여 방사성폐기물의 경우 200 L 및 4 m³ 용기에 포장하여 저장 관리하고 있다[2]. 연구로 수조콘크리트는 운영과정에서 발생된 중성자와 콘크리트 내에 존재하는 미량의 불순물에 의해서 방사화되어 다양한 핵종이 검출된다. 그 대표적인 핵종으로는 ^3H , ^{14}C , ^{41}Ca , ^{55}Fe , ^{60}Co , ^{63}Ni , ^{134}Cs , ^{152}Eu 및 ^{154}Eu 이며, 핵종별 특성 및 측정방법

Table 1. Key Characteristics of KRR-2.

Reactor Type	TRIGA Mark III
Start operation	May, 1972
Power	2 MWth
Neutron flux	$7 \times 10^{13} \text{ \#}/\text{cm}^2 \text{ sec}$
Fuel	Uranium content: 8.5 w/o Cladding : 304 SS Composition: Er-U-ZrH1,6
Moderator and Coolant	H2O
Total operating time	55,226 hours
Total generating power	68,740 MWh
Shutdown	Dec, 1995

을 표 2에 정리하였다. 감마선 방출핵종은 감마분광분석을 통해 용이하게 측정할 수 있으나, ^3H , ^{14}C , ^{41}Ca , ^{55}Fe 및 ^{63}Ni 은 순베타 및 X선 방출 핵종으로 상대적으로 낮은 에너지를 가지고 있어서 분석에 많은 어려움이 있다. 원자로 구조재의 방사화에 따른 재고량을 평가하기 위해 직접측정방법을 대신하여 전산코드를 이용하여 평가하는 방안과 척도인자(scaling factor)를 이용하는 방법이 적용되고 있다[3,4,5].

본 논문에서는 연구로 2호기 수조콘크리트 내에 존재하는 핵종 재고량의 평가를 위해 ^3H , ^{14}C , ^{55}Fe , ^{60}Co , ^{63}Ni , ^{134}Cs , ^{152}Eu 및 ^{154}Eu 을 대상으로 실험을 통해 분석된 결과를 바탕으로, 전산코드를 이용하여 계산된 결과와

책임저자 : 서범경, bumja@kaeri.er.kr
대전 유성구 덕진동 150

Table 2. The Property and Detection Method for Radionuclides in Activated Concrete.

Radionuclide	Half-life(year)	Emission	Primary reaction	Detection methods
^3H	12.3	β	$^6\text{Li}(n,\alpha)^3\text{H}$	LSC
^{14}C	5730	β	$^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ $^{13}\text{C}(n,\gamma)^{14}\text{C}$	LSC
^{41}Ca	103000	EC	$^{40}\text{Ca}(n,\gamma)^{41}\text{Ca}$	LSC
^{55}Fe	2.72	EC, X	$^{54}\text{Fe}(n,\gamma)^{55}\text{Fe}$	LSC
^{60}Co	5.27	β, γ	$^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$	γ -Spectrometry
^{134}Cs	2.1	β, γ	$^{133}\text{Cs}(n,\gamma)^{134}\text{Cs}$	γ -Spectrometry
^{152}Eu	13	EC, β, X, γ	$^{151}\text{Eu}(n,\gamma)^{152}\text{Eu}$	γ -Spectrometry
^{154}Eu	8.6	β, X, γ	$^{153}\text{Eu}(n,\gamma)^{154}\text{Eu}$	γ -Spectrometry

비교하였다. 콘크리트 내에 방사능 재고량 평가 시 중요한 입력인자는 콘크리트의 구성성분, 중성자속 분포 및 운전시간이다. 연구로 수조 콘크리트의 구성성분 중에서 콘크리트 내에 극미량으로 존재하는 원소를 화학분석을 통해 정량분석을 수행하였고, 콘크리트의 깊이별 중성자속 분포는 MCNP를 이용하여 계산하였으며, 그 결과를 이용하여 중성자의 상호작용으로 생성되는 방사성물질의 양은 ORIGEN을 이용하여 평가하여 그 결과를 비교하였다. 원자력시설의 해체를 고려하여 연구로 운전시간 변화에 따른 핵종 재고량의 변화에 대한 결과를 제시하였다. 또한 폐기물의 최종 처분관점에서 장반감기 핵종인 ^{41}Ca 에 대한 재고량을 평가하였다.

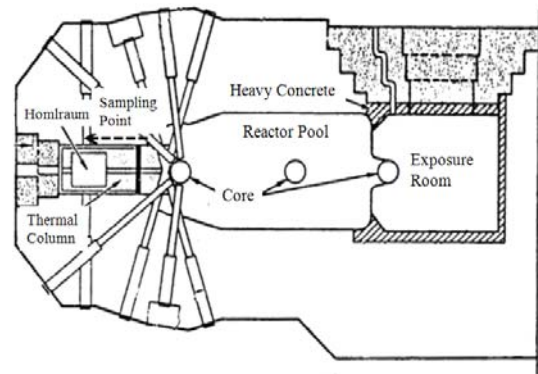


Fig. 1. Structure and sampling points of the bioshield concrete of KRR-2.

2. 재료 및 방법

2.1 시료 채취 및 방사선계측

연구로 2호기 수조 콘크리트는 다양한 중성자 실험을 위해 빔포트 및 흑연블럭이 채워져 있는 thermal column이 관통하는 구조로 되어있다. 수조 콘크리트의 재고량 평가를 위해 가장 방사화가 많이 진행된 것으로 판단되는 thermal column 주변에서 높이 90 cm (노심과 동일한 높이) 깊이별로 10개(10 cm 단위)로 1 m까지 코어드릴(core drilling) 장비를 이용하여 시료를 채취하였다. 시료가 채취된 수조 콘크리트는 중성자 차폐를 위하여 자철광을 함유한 밀도가 3.4 g cm^{-3} 인 고강도콘크리트(magnetite heavy concrete)로 제작되어 있다. 고강도 콘크리트의 열중성자에 대한 감쇄계수(attenuation coefficient) 0.375 cm^{-1} 로 밀도가 2.3 g cm^{-3} 인 일반 콘크리트 0.139 cm^{-1} 에 비하여 중성자 및 감마선에 대한 차폐능력이 우수하다[5]. 콘크리트 연구로 2호기 전단부 수조 콘크리트의 구조 및 채취된 시료의 위치는 그림 1과 같다.

연구로 수조콘크리트의 깊이에 따른 핵종별 방사능 분포를 확인하기 위해 우선 감마분광분석을 수행하였다. 깊이별로 채취된 시료는 균질하게 혼합 후 U-8 용기에 충전하여 동축형 HPGe (Canberra 사) 장비를 이용하여 계측하였다. 측정결과 핵종별 방사능이 지수적으로 감소하는 경향을 보여주었으며, 검출된 핵종은 ^{60}Co , ^{152}Eu , ^{154}Eu

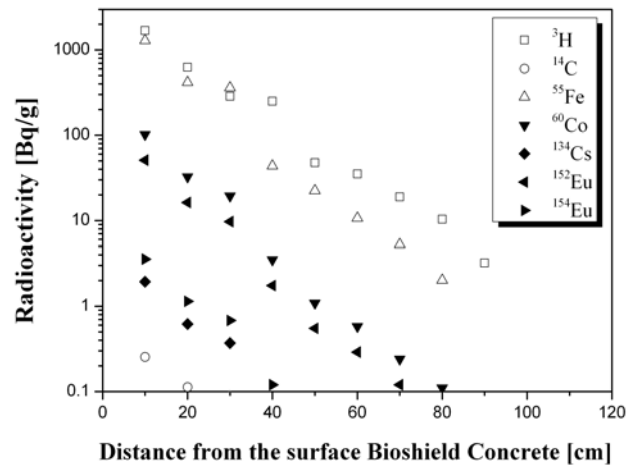


Fig. 2. The measured radioactivity distributions of long lived radionuclides in different depth of the bioshield concrete of KRR-2.

및 ^{134}Cs 이다. 시료내의 ^3H 및 ^{14}C 의 분석을 위하여 산화연소법(Oxidization combustion method)을 적용하여 포집하고, 섬광액(Goldstar)과 일정비율로 혼합하여 액체섬광계수기(liquid scintillation counter)를 이용하여 분석하였다. ^{55}Fe 와 ^{63}N 의 분석을 위해 추출크로마토그래피법(extraction chromatography method)과 액체섬광계수기를 이용하여 방사능을 분석하였다.

측정 결과 검출된 핵종은 ^{60}Co , ^{134}Cs , ^{152}Eu 및 ^{154}Eu

이고, 원자로심과 가까운 부분에서 채취된 시료(표면에서 10 cm 깊이)는 상대적으로 방사능 준위가 높고, 깊이별 방사능 분포는 지수적으로 감소하는 형태를 보여주었다. ³H의 경우 최대 1690 Bq g⁻¹이 검출되었으며, ¹⁴C의 경우 매우 미량이 검출되었다. ⁵⁵Fe의 경우도 최대 1298 Bq g⁻¹ 까지 검출되었다. 그러나 ⁶³Ni은 모든 시료에 대하여 MDA이하의 결과를 보여주었으며, 구체적인 결과는 그림 2에 제시하였다.

2.2 방사화재고량 계산

원자로 구조물에서의 중성자 조사에 따른 재고량을 평가하는 방법으로 전산코드를 이용하여 예측할 수 있다. 일반적으로 전산코드를 이용한 방법은 원자로의 구조물을 대표하는 모든 영역에서 평균 중성자속과 구조물의 물질조성 및 운전이력 등을 이용하여 계산한다[6,7]. 본 연구에서는 MCNP5/ORIGEN2.1 계산 체계를 이용하여 연구로 2호기 원자로 차폐 콘크리트의 방사화 재고량을 평가하였다. 우선, 차폐 콘크리트의 방사화 재고량에 중요한 기여를 하는 핵종은 방사선측정을 통해 확인된 핵종을 대상으로 선정하였고, 그 이외에 콘크리트의 주요성분인 Ca의 방사화로 인해 생성되는 ⁴¹Ca, ⁴⁵Ca를 추가적으로 고려하였다. MCNP 코드를 이용하여 노심 외곽 구조물의 중성자속 분포 및 반응 단면적을 계산하고 여기서 얻어진 반응 단면적을 ORIGEN에 적용하여 조사에 따른 핵종의 방사능 양을 평가하였다. MCNP 코드는 Monte Carlo 방법론을 이용하여 중성자 수송방정식의 해를 얻으며, 난수(random number)를 생성하여 임계도 해석은 물론 중성자, 전자, 광자 또는 중성자-광자 연계문제를 통계적으로 해석하여 그 자료로서 핵단면적, 균정수를 생산할 수 있는 코드이다. MCNP 코드의 특징은 기하학적 형태에 대한 자유도가 매우 높으므로 복잡하게 구성되어 있는 실제 문제를 3차원적으로 거의 완벽하게 묘사할 수 있다. 연속 핵자료집(pointwise cross section)을 사용하므로 반응단면적에 대한 균축약을 하지 않아 신뢰성이 매우 높은 장점을 가지고 있다. ORIGEN 코드는 원자로를 하나의 점으로 보고 문제를 해석하므로 기하학적 형태에 대한 묘사가 전혀 없으며 단일 그룹 반응 단면적을 라이브러리로 사용한다. ORIGEN의 라이브러리는 노심영역을 기준으로 생산되었으므로 노심외곽 선원항의 평가에 보정 없이 적용하면 많은 오차를 기인할 수 있다. 그러므로 핵단면적에 대한 보정이 필요한데, 이는 MCNP를 이용하여 단일 군으로 핵반응 단면적을 생산하고 이를 ORIGEN 코드의 입력 자료로 대체하여 사용하면 중성자 선원항에 대한 모

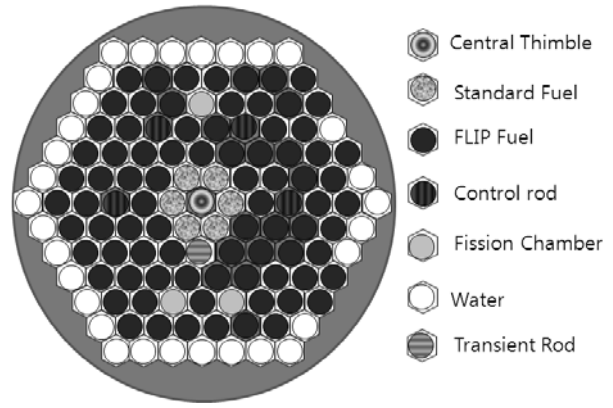


Fig 4. The core diagram modeling by using MCNP5.

사를 매우 정확히 수행 할 수 있다[8]. 그림 3은 MCNP/ORIGEN의 계산 수행 절차를 보여주고 있다.

본 연구의 원자로 차폐 콘크리트 방사화 재고량의 평가 대상인 연구로 2호기의 노심은 97개의 핵연료봉이 나열되어 있으며, 노심 형태는 각 장전시마다 핵연료봉의 장전 모형에 변동이 있지만 1979년 4월에 적용된 Model을 적용하였다. 당시의 장전모형은 그림 4와 같으며, 이를 MCNP5 코드를 이용하여 모델링하였다. 장전모형을 구체적으로 살펴보면 filp fuel 91개(농축도 70%), standard fuel 6개(농축도 20%), central thimble 1개, control rod 4개, fission chamber 3개, irradiation hole 2개, water 16개, transient rod 1개로 구성되어 있다[9].

연구로 2호기 원자로 수조콘크리트의 중성자속 및 반응단면적 계산을 위해 시료를 채취하여 분석한 지점과 동일한 위치에서 수조 콘크리트 내부 표면에서 10 cm 간격으로 1 m 까지 10개의 구역으로 나누어 계산하였다. 재고량을 계산하기 위해 사용된 반응단면적 라이브러리는 PWR 모형의 라이브러리를 이용하였다. 그 이유는 PWR 모형의 중성자 스펙트럼이 TRIGA 모형의 중성자 스펙트

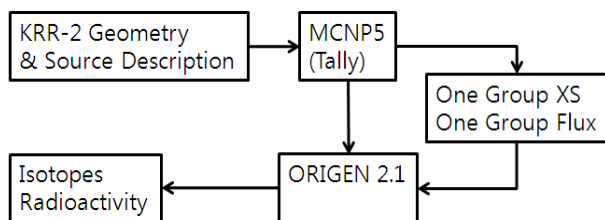


Fig 3. Calculation procedure of MCNP and ORIGEN.

Table 3. The Composition of the Concrete of KKR-2.

Radionuclide	KRR 2 Concrete(Wt%)
Li	2.31×10 ⁻³
C	1.15
O	53.25
Na	1.20
Mg	0.35
Al	4.21
Si	18.44
K	3.81
Ca	6.70
Fe	3.54
Ni	1.55×10 ⁻⁴
Co	2.97×10 ⁻⁴
Cs	1.21×10 ⁻⁴
Eu	3.93×10 ⁻⁵

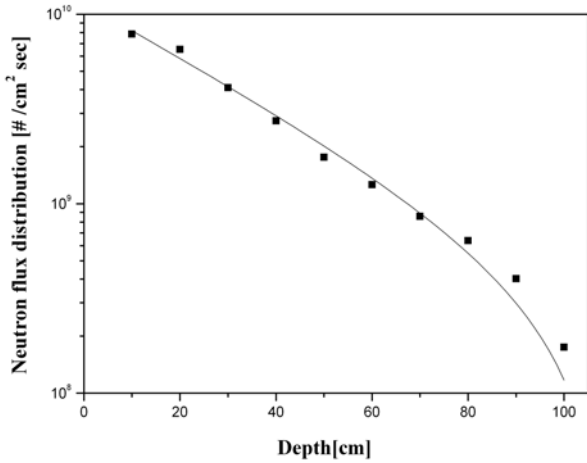


Fig. 5. Neutron flux distribution depending on the depth in the bioshield concrete.

럼과 가장 비슷하다고 평가되었기 때문이다[10]. 연구로 수조콘크리트는 화학분석(ICP-MS 및 ICP-AES)을 통해 주요성분 및 불순물의 양을 측정하여 표 3에 제시하였다. 이러한 결과를 이용하여 ORIGEN 전산코드를 이용하여 핵종별 방사능 분포를 계산하고, 해체를 고려하여 운전기간 및 냉각기간에 따른 영향을 평가하였다.

3. 결과 및 논의

연구로 2호기 수조콘크리트의 깊이에 따른 핵종별 재고량을 실험을 통해 측정하고, MCNP와 ORIGEN 전산코드를 조합하여 그 결과를 비교하였다. MCNP를 이용하여 원자로심의 핵연료 배열 및 주요 구조물을 모델링하고, 깊이에 따른 중속자속 분포를 계산하였다. 계산결과 내부 표면에서 10 cm 깊이에서 평균 중성자속은 7.85×10^9 #/cm² sec이고, 상대오차는 약 5% 정도로 나타났으며, 중성자속은 깊이가 증가함에 따라 지수적으로 감소하고, 구체적인 결과는 그림 5에 제시하였다. 연구로 수조콘크리트는 화학분석을 통해 주요성분 및 불순물의 양을 측정하였고 Al, Ca 및 Si과 같은 주요성분의 경우 최소 1 wt% 이상 존재하고, Fe 및 Ba 등은 100 ppm~1 wt%이고, Co는 1~100 ppm 이고, Eu는 1 ppm 이하로 검출되는 것으로 보고하고 있다[11, 12]. 연구로 수조 콘크리트의 경우 이러한 평가결과와 잘 일치하여 평가를 위한 입력 자료로 활용하였다.

연구로 2호기 수조 콘크리트의 주요 성분 및 불순물의 양에 대한 측정결과를 이용하여 연구로 해체 시점에서의 방사능 준위가 가장 높은 연구로 수조 표면에서 10 cm 깊이 지점에서 측정결과와 계산결과를 비교하여 평가하여 그림 6에 제시하였다. 평가결과 주요핵종에 대한 상대오차는 ³H (4.3%) 및 ⁶⁰Co (18.2%)이고, 총방사능에 대한 상대오차는 25.1%로 평가되었다. 이러한 오차는 수조 콘크리트 내 극미량으로 존재하는 불순물이 균질하게 분포되어 있지 않고, 연구로의 경우 원전과 달리 운전시간이 일정하지 않은 것에서 기인하는 것으로 판단된다. 운전시

간(operating time or irradiation time) 및 냉각기간(cooling time)에 따른 핵종별 재고량의 변화를 살펴보았다. 운전시간에 따른 핵종별 재고량 변화를 확인하기 위해 운전기간을 1년, 5년, 10년, 20년 50년 변화에 따른 총방사능의 변화를 계산하여 그림 7에 제시하였다. 1년 운전된 결과를 제외하면 운전기간이 증가가 총 방사능의 변화가 크지 않고 유사한 경향을 확인할 수 있다. 냉각기간의 경우 운전종료 후 해체 시점까지 안전격리(SAFSTOR)기간을 산정하고, 해체폐기물 양을 예측하는데 중요한 근거 자료가 된다. 연구로 2호기의 경우 운전종료 냉각기간에 따른 방사능 변화를 그림 8에 제시하였다. 특히 운전정지 후 해체가 시작된 12년 경과 시점에서 ³H, ⁵⁵Fe, ⁶⁰Co 및 ¹⁵²Eu 방사능이 전체방사능의 99.8%를 차지하고 있으며, 30년 이상의 냉각 후 방사능은 연구로 정지시점과 비교하여 약 0.5% 이하로 감소되는 것으로 평가되었다. 특히 콘크리트의 주요 구성성분인 Ca의 방사화로 인해 생성되는 ⁴¹Ca은 장반감기 핵종으로 운전정지 후 100년 경과시점에서는 전체방사능의 92%를 차지하는 것으로 평가되어 폐기물관리 및 처분 관점에서 주요하게 고려되어야 할 핵종임을 알 수 있다.

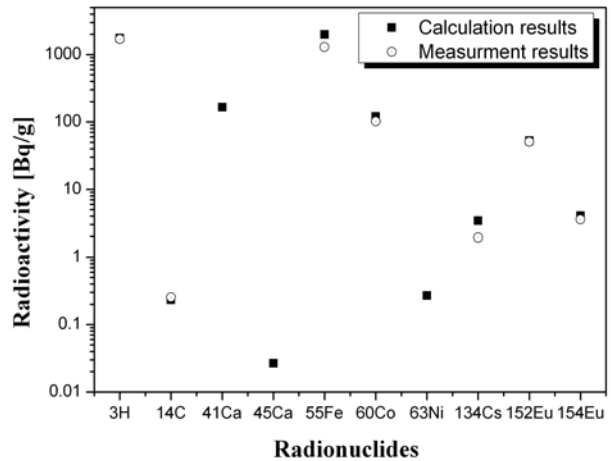


Fig. 6. The comparison results between calculation and measurement at the 10cm depth of the bioshield concrete.

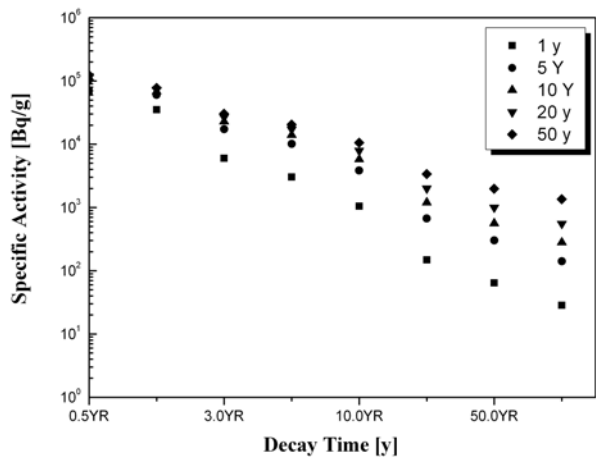


Fig. 7. The time dependence of specific activity in bioshield concrete for different irradiation time.

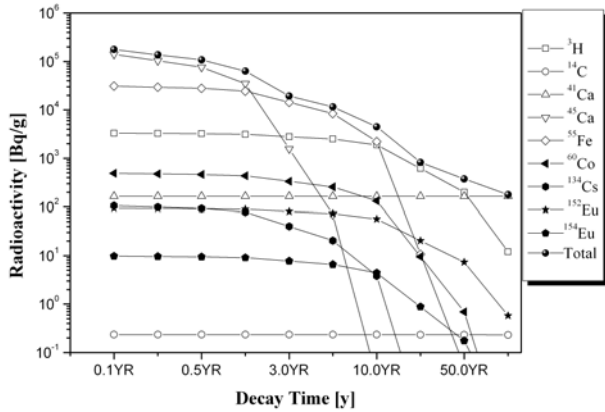


Fig. 8. The isotropic activity versus decay time at 10 cm depth and 12 years of irradiation time.

4. 결론

본 논문에서는 연구로 2호기 수조 콘크리트 내에 존재하는 핵종 재고량을 평가하기 위해 깊이별 시료를 채취하고, 방사선계측을 수행하였다. 이를 통해서 얻어진 결과를 바탕으로 MCNP/ORIGEN 전산코드를 이용하여 계산된 결과와 비교를 통해 방사능 재고량을 비교 평가하였다. 측정결과와 계산결과를 비교하며 총방사능을 기준으로 25.1%의 상대오차가 발생하였다. 이는 수조 콘크리트 내에 극미량으로 존재하는 불순물의 분포 및 연구로의 운전특성에 기인하는 것으로 판단된다. 운전기간 따른 재고량의 변화는 약 5년 이상 운전된 경우 운전기간에 따른 총 방사능의 변화는 1년 운전된 경우와 비교하여 변화가 적음을 알 수 있다. 냉각기간의 경우 재고량 평가에 있어서 매우 중요한 인자로 연구로 2호기 해체시점을 고려하여 ^3H , ^{55}Fe , ^{60}Co , ^{152}Eu 는 여전히 상당량이 존재하고 있으며, 특히 ^{41}Ca 과 같은 장반기감 핵종은 폐기물 관리 및 처분을 위해 특별히 고려되어야 하며, 시료를 분석하여 계산결과에 대한 검증이 요구된다. 이 결과는 연구로 및 원전 해체를 위한 재고량 평가 등에 기술적인 자료로 활용 될 수 있을 것으로 기대된다.

참고문헌

1. 민병연, 박정우, 최왕규, 이근우. 방사성 콘크리트 미분말 슬래깅 고화체의 특성 평가. 한국폐기물학회지, 2009; 26(3):271-278.
2. Lee KW, Hong SB, Park JH, Chung US. Final status of decommissioning of research reactor in Korea. J.

- Nucl. Sci. Tech, 2010;47(12):1227-1232.
3. 홍상범, 김희령, 정근호, 강문자, 정경환, 정운수, 박진호. 연구로 2호기 수조 콘크리트 ^3H 및 ^{14}C 의 공간분포. 방사성폐기물학회지. 2006;4(4):329-334.
4. 강문자, 정근호, 홍상범, 최근식, 이창우. 해체 콘크리트 폐기물에 포함된 ^{55}Fe 및 ^{63}Ni 방사능 분석. 방사성폐기물학회지. 2007;5(1):19-27.
5. Kaplan MF. Concrete radiation shielding nuclear physics concrete properties, design and construction. New York;Longman Scientific & Technology. 1989:235-260.
6. IAEA. Radiological characterization of shut down nuclear reactors for decommissioning purposes. Technical Report Series No. 389. 1998.
7. Croff AG. A user's manual for the ORIGEN2 computer codes. Oak Ridge National Laboratory Report ORNL/TM-7175. 1980.
8. Zagar T, Bozic M, Ravnik M. Long-lived activation products in TRIGA MARK II research reactor concrete shield: calculation and experiment. J. Nucl. Mater. 2004;335:379-386.
9. 육종철, 한기양, 전병진, 이지복, 이창진. TRIGA MARK-III 원자로의 노심특성계산. 원자력학회지, 1981;13(4):30-34.
10. Zagar T, Ravnik M. Determination of long-lived neutron activation products in reactor shielding concrete samples. Nucl. Technol. 2002;140:113-126.
11. Evans JC, Lepel EL, Samnders RW, Wikerson CL, Siker W, Thomas CW, Abel KH, Robertson DR. Long-lived activation products in reactor materials. Pacific Northwest Laboratory. NUREG/CR-3474. 1984:49-54.
12. Harms A, Gilligan C. Development of a neutron-activation concrete powder reference material. Appl. Radiat. Isotopes. 2010; 68:1471-1476.

A Study on the Inventory Estimation for the Activated Bioshield Concrete of KRR-2

Sang Bum Hong, Bum Kyoung Seo, Dong Keun Cho, Gyeong Hwan Jeong, and Jei Kwon Moon
Korea Atomic Energy Research Institute

Abstract - The radioactivity inventory significantly affects all steps of decommissioning projects including planning, cost estimation, risk assessment, waste management and site remediation. The decommissioning project of the KRR-2 was completed in 2009 and a large amount of activated concrete waste was generated. The bioshield concrete, containing minute amount of impurity elements, was activated by neutron reaction during the operation of the reactor. A variety radionuclides was generated in the concrete, including ^3H , ^{14}C , ^{55}Fe , ^{60}Co , ^{63}Ni , ^{134}Cs , ^{152}Eu and ^{154}Eu . In this paper, the comparison between the calculated results and previous measured results was carried out to estimate the inventory of the bioshield concrete of the KRR-2. The combined computer codes of MCNP5 and ORIGEN 2.1 for calculation of the distribution of neutron flux, cross-section and generation of radionuclides were used. The results were shown that 99.8% of the total radioactivity of ^3H , ^{55}Fe , ^{60}Co and ^{152}Eu in the bioshield concrete 12 years after shutdown. The effects on the variation of inventory were analysed depending on the operation periods and the cooling times in the bioshield concrete.

Keywords : Inventory, Activation, Bioshield concrete, Decommissioning