

A Study on Radioactive Source-term Assessment Method for Decommissioning PWR Primary System

PWR 1차계통내 해체 방사성선원항 평가방법에 관한 연구

Jong Soon Song, Hyun-Min Kim, and Sang-Heon Lee*
Chosun University, 309 Pilmun-Daero, Dong-Gu, Gwangju, Korea

송중순, 김현민, 이상헌*
조선대학교, 광주광역시 동구 필문대로 309번지

(Received February 4, 2014 / Revised March 6, 2014 / Approved May 20, 2014)

Currently, there are many programs which are now being developed or already developed to predict radionuclide and corrosion product at the stage of designing NPP. However, since there are not many developments in evaluating quantity of activation corrosion products occurring when disassembling a nuclear power plant there exist some difficulties in calculating accurately. In order to evaluate activation products inventory for the research of effect of neutron activation in the reactor vessel, component of nuclear reactor and adjacent structures, it should be evaluated by using operation history of nuclear reactor, material composition of structure and average neutron flux in every field representing fixed structure of nuclear reactor. In this study, CORA, PACTOLE, CRUDSIM, CREAT and ACE codes are analyzed to predict the quantity of radionuclide and corrosion product of primary reactor which is used at the stage of designing. As a future study, the accuracy in calculating the quantity of product corrosion can be increase by finding out the possibility of use and improvement for evaluation of the decontamination.

Keywords: Activation inventory, Corrosion product, CORA, PACTOLE, CRUDSIM, CREAT

현재 전 세계적으로 설계단계에서 부식 생성물과 방사성 핵종의 양을 예측하는 프로그램에 대해서는 개발되거나 개발중인 프로그램이 다양하다. 그러나 원자력 발전소 해체 시 발생하는 방사화 부식생성물의 양을 평가하는 코드에 대한 개발은 이루어지지 않고 있어 정확한 산정에 어려움이 있다. 원자로 용기, 원자로 구성품 및 인접 구조물에서의 특성 원소의 중성자 조사로 인한 방사화재고량을 평가하기 위해서는 원자로의 고정된 구조물을 대표하는 모든 영역에서의 평균 중성자속과 구조물의 물질조성 및 원자로 운전이력 등을 이용하여 평가해야 한다. 본 논문에서는 설계단계에서 사용되는 1차 계통의 부식생성물과 방사성 핵종의 양을 예측하는 CORA, PACTOLE, CRUDSIM, CREAT 및 ACE 코드를 분석하였다. 향후 연구에서는 제염해체 폐기물 발생량 평가에 대한 사용가능성과 개선점을 찾아 부식생성물량 산정에 정확성을 높이고자 한다.

중심단어: 방사화 재고량, 부식생성물, CORA, PACTOLE, CRUDSIM, CREAT

*Corresponding Author.

Sang-Heon Lee, Chosun University, E-mail: leesanghoen@naver.com, Tel: +82-62-230-7157

1. 서론

원자력발전소의 해체는 운전수명이 종료된 원자력설비를 안전하게 처리, 처분하는 최종 마무리 과정으로서 이미 원자력 선진 외국에서는 오래 전부터 국가적 차원으로 관련 규제지침 및 기술 개발에 박차를 가해 상당한 진전을 보아 연구 개발단계에서 실용기술단계로 접어들었다.

우리나라는 1978년 고리 1호기의 운전개시를 시작으로 현재 23기가 운전 중에 있으며, 신월성 2호기, 신고리 3, 4호기 및 신한울 1, 2호기가 건설 중에 있다. 또한 신고리 5, 6, 7, 8호기 및 신한울 3, 4호기가 건설 계획 중에 있다. 최근 정부 정책 발표에 따르면 신규 원자력발전소 6기에 대한 계획이 확정된 상태이다. 이렇듯 신규 원자력발전소에 대한 계획이나 추진은 계속 되고 있지만 수명이 다한 원자력발전소에 대한 계획이나 정책, 관련 규제지침 및 기술개발 등은 거의 전무한 상태이다.

원자력발전소의 운전수명을 고려하여 볼 때 국내에서 가장 오래된 고리 1호기는 2007년 30년 설계수명이 다해 10년 수명을 연장하여 계속 운전 중에 있다. 한편 월성 1호기는 초기 설계 수명 30년이 이미 종료되어, 현재 10년 수명을 연장하기 위한 계속운전 인허가 심사 중에 있다. 하지만 2011년 후쿠시마 원자력 발전소 사고 이후 원자력에 대해 부정적인 여론이 형성되고 있으며, 수명연장에 대해서도 회의적인 분위기가 이어지고 있다. 그에 따라 별도의 조치가 없으면 고리 1호기의 시설을 어떻게 안전하게 해체해야 할 것인가가 매우 중요하게 되었다. 2023년과 2024년에는 고리 2호기와 고리 3호기가 수명완료 예정에 있기 때문에 원자력발전소를 해체할 때 해체 관련 안전성 확보를 위한 요소기술들의 개발이 시급하다. 필요한 주요 기술은 다음과 같다.

- 방사성재고량 및 폐기물량 평가 기술
- 원자로/콘크리트 해체 및 절단기술
- 계통 및 기기 방사능 제어기술
- 방사성폐기물 처리 및 감용기술
- 종사자 피폭평가 및 저감기술
- 잔류방사능 평가 및 부지복원 기술
- 해체 안전성 평가 기술
- 해체 공정관리 기술

해체 대상 원자로 또는 시설물의 방사능 재고량은 원자

로 용기, 원자로 구성품 및 인접 구조물에서 특정 원소의 중성자 조사로 인한 방사화 방사능 재고량과 각종 계통내외부면에 침적된 방사성물질(이하 “표면오염”이라 함)에 의한 방사능 재고량으로 구분할 수 있다. 해체 원전의 전체 방사능 재고량의 정확한 평가는 매우 중요한 사항으로서 시설 내 방사능의 형태와 양은 해체 수행방법의 선택에 직접적인 영향을 미친다. 특히, 방사능 재고량 평가는 적용할 해체기술의 결정부터, 해체작업자의 man-rem 피폭량 평가, 영구 해체작업 수행을 위한 지연기간의 결정, 제염기술 선정, 방사성폐기물의 수송요건 및 처분요건 결정, 일반인의 방사선 피폭량 평가, 그리고 환경영향 평가서 작성에 지침이 된다.

현재 전 세계적으로 설계단계에서 부식생성물과 방사성 핵종의 양을 예측하는 프로그램에 대해서는 개발되거나 개발 중인 프로그램이 다양하다. 하지만 원자력발전소 해체 시 발생하는 방사화 부식생성물의 양을 평가하는 코드에 대한 개발은 이루어지지 않고 있어 정확한 산정에 어려움이 있다. 따라서 본 논문에서는 1차 계통의 부식생성물과 방사성 핵종의 양을 예측하는 CORA, PACTOLE, CRUDSIM, CREAT 및 ACE 코드들의 제염해체 폐기물의 발생량 평가의 적용 가능성을 분석하였다. 이 코드들은 원자력발전소 설계 단계에서 사용되는 예측 코드이나 원자력발전소 해체 시 부식생성물의 평가에 있어 사용 가능성과 사용에 필요한 개선점 등을 찾는 것이 본 연구의 가장 큰 목표라 하겠다. 이들 코드

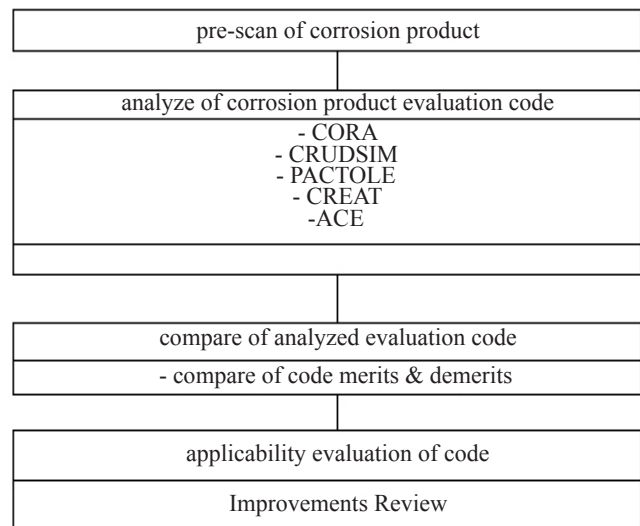


Fig. 1. How to choose a code evaluation of corrosion products.

중 제염해체 폐기물 발생량 평가에 가장 적합한 코드를 선택하고 모델 계산에 필요한 수화학적 인자들과 새롭게 사용될 인자개발 등의 개선할 점을 찾아내어 원자력발전소 해체 시 발생하는 부식생성물량 산정에 정확성을 높이고자 하였다. Fig. 1에 부식생성물 평가 코드를 선정하는 방법을 나타내었다.

2. 부식생성물

2.1 주요 방사화 부식생성물 특성

원자력발전소 해체 시방사선원으로 고려되는 표면오염은 핵연료봉 표면에서 방출된 핵분열생성물(Fission Products)과 일차 냉각재 계통 내에서 생성된 방사성부식생성물(Corrosion Products : Co-58, 60등)이나 침식생성물(Erosion Products : CDRM, Valve, RCP Shaft)등이 주요 생성원이다. 특히 이들 생성원 중에서도 방사성 부식생성물이 주요 선원으로 존재한다.

원자력발전소 여러 계통내의 내부와 외부 표면오염 선원은 시설의 종류(원자로, 핫셀, 핵연료 재처리시설 등)나 침적 그리고 계획에 의한 누출과 사고에 의한 누출, 운전이력에 따라 달라진다. 원자로 1차 및 2차 냉각계통 내에서 고온수에 지속적으로 노출된 금속은 금속표면이 부식되거나 침식되는 결과를 가져온다. 부식 생성물들은 노심을 통과하면서 증성자와의 상호작용에 의해 방사성 물질이 된다. 또한 핵연료 피폭재 결합은 원자로 냉각계통에 핵분열 생성물을 방출하는 결과를 가져온다. 이러한 부식 및 핵분열 생성물들은 1차 계통 내에서 파이프나 부품들의 내벽에 미립자로 된 침적물을 형성하게 된다. 침적물은 1차 냉각계통 표면 방사능의 주선원이 된다. 외부표면 오염은 일반적으로 1차 또는 보조 계통으로부터의 누설에 기인한다. 오염된 물이 있는 핵연료 저장조 또는 원자로 저장조는 오염원들을 공기 중에 증발하거나 누출시키고, 이러한 것들은 구조물, 부품, 배관류, 전기 케이블 등에 달라붙게 된다. 시설보수를 위한 인원접근을 위해 오염된 계통들을 배수할 때도 뜻하지 않은 방출로 인해 오염이 확산될 수도 있다. 침적된 방사선원들은 주로 감마 방출체들로 Co-58, Co-60, Cs-137, Fe-55 및 Mn-54등이며, 주요 방사화 부식생성물의 특성을 Table 1에 정리하였다. 통상

Table 1. The main characteristics of radioactive corrosion products[1,8,9]

Nuclide	Reaction formula	Half-life	Natural abundance [%]	Average energy [Mev]	Major creation
Cr-51	Cr-50(n,r)Cr-51	28 day	4.3	0.30	S/S, Inconel
Mn-54	Fe-54(n,r)Mn-54	313 day	5.8	0.83	S/S
Fe-55	Fe-54(n,r)Fe-55	2.6 year	5.8	-	S/S
Fe-59	Fe-58(n,r)Fe-59	45 day	0.33	1.18	S/S
Co-58	Ni-58(n,p)Co-58	71 day	68	0.81	S/S, Inconel
Co-60	Co-59(n,r)Co-60	5.28 year	100	1.25	Inconel
Zr-95	Zr-94(n,r)Zr-95	65 day	17.4	0.74	Zry

적으로 부식생성물은 가용성과 입자성 물질로 분류된다[3].

2.2 부식생성물 계통 내 이동 메커니즘

부식생성물의 주요 현상은 다음과 같으며, 계통 내에서의 생성 및 계통 내외로의 이동 메커니즘은 Fig. 2와 같다.

- CRUD 형태의 금속불순물이 계통내의 부품이나 파이프 표면으로부터 응축수 또는 급수로 방출되면 원자로 냉각재계통으로 유입된다.
- 금속 이온들은 1차계통내 부식된 표면으로부터 냉각재로 방출되며, 냉각재내의 포화상태를 초과한 금속이온들은 콜로이드나 산화물혹은 비산화물형태의 입자성 물질을 형성하게 된다.
- 가용성 이온들과 CRUD 입자들 사이의 상호작용으로 냉각재 내 부유물인 CRUD 입자표면에 이온성 물질들이 흡착된다.
- CRUD와 가용성 물질들은 다양한 메커니즘으로 연료 표면에 축적된다. 외각층의 일부분의 물질들은 계통 내로 유출되지 않고 연료표면에 고착되어 존재한다.
- 연료표면의 축적물과 노심 내부 구조물질은 증성자에 의해 방사화 된다. 용해와 마찰 작용에 의해 노심 내부 구조물질로부터 방사성물질이 방출되며, 수압에 의한 침식과 박리에 의해 연료표면 침적물로부터 방사성물질이 방출된다.
- 냉각계통 내로 방출된 방사성물질들은 산화물의 용해도와 포집체로서 작용하는 금속 부식생성물의 농도에

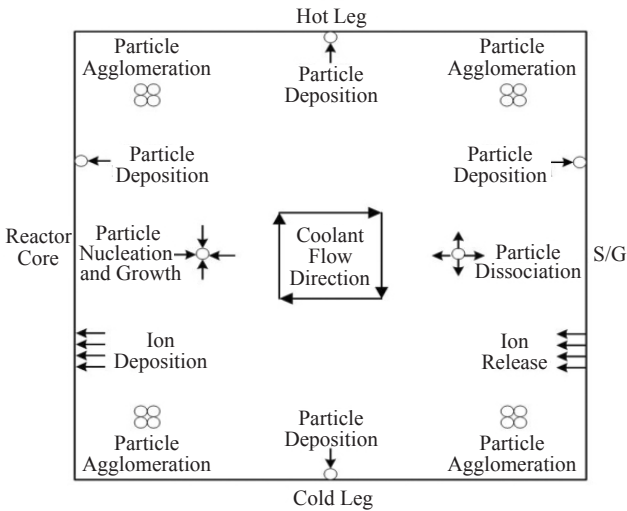


Fig. 2. Moving mechanism of corrosion products in the primary system[1,4].

의해 가용성 및 입자성 물질로 재 분포되며, 이들 방사성물질들은 다양한 상호작용으로 노심 표면 외각에 침적된다.

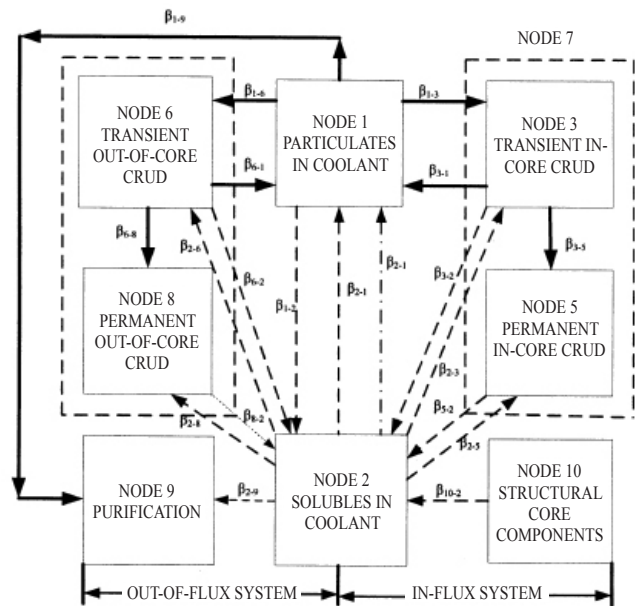
- 노심 표면 외각은 기저금속부식과 물을 함유하고 있는 CRUD 침적물에 의해 이중층을 형성되며, 표면에서 산화작용이 일어나 부식생성물 일부분은 노심 표면 외각 산화층으로부터 냉각재내로 유출된다.

원자력발전소 계통내에 존재하는 표면오염평가 방법에는 직접 측정하여 평가하는 방법과 냉각재내의 부식생성물의 거동을 수학적 모델링으로 해석하여 전산화한 프로그램 등을 이용하여 표면오염 재고량을 평가하고 있다. 1차 계통내의 표면오염의 중요 생성원인 부식생성물의 방사능 거동을 예측하기 위해 이미 여러 코드들이 사용되고 있다.

3. 부식생성물 평가코드 분석

3.1 CORA

CORA 코드는 CORA-II라고도 하며, 미국의 Westinghouse에서 개발된 코드이다. 실험적 값을 고려하여 가압경수로 1차 계통내 부식 생성물의 균일한 생성과 소멸을 나타



LEGEND
 — PARTICULATE TRANSPORT
 - - - MOLECULAR TRANSPORT
 - · - · PARTICULATION PROCESS

Fig. 3. CORA code: diagram of nodes used for PWR primary coolant circuit[6].

내는 각 node사이에서 여러 가지 이동 메커니즘을 모델링한 것으로 노심을 Out-of and in Flux System으로 구분하였다[10]. CORA 코드는 현재 부식생성물의 주성분으로 알려진 니켈 페라이트가 아닌 마그네타이트의 용해도를 사용하였다. 또한, CORA 코드는 1차 냉각계를 크게 노심 내 지역, 노심 외 지역, 일차냉각재, 정화계통, 노심 내 구조물 등으로 구분하고, 산화막을 임시 산화막과 영구 산화막으로 구분하여 계통내 방사화 부식생성물의 거동을 분석하였다 [3]. 가압경수로 1차 냉각재에 대한 포괄적인 모델로 고려되고 있으며 상대적으로 발전소의 설계변수와 운전변수의 함수로서 부식생성물의 거동을 예측하는 유용한 모델로 평가되고 있다.

CORA 프로그램은 Fig. 3과 같이 계통을 10개의 개념적인 node로 분할시켜 각 node간의 상호 거동을 관계하는 인수 값을 실험이나 운전 이력을 이용하여 구하고 있다. 본 프로그램에서 고려되고 있는 표면오염 대상은 부식생성물이다.

CORA 코드에서 적용하고 있는 수학적 모델은 임의의 노드에서의 평형방정식을 이용하여 관계식 (1)을 이용한다.

[총 축적량(net rate of accumulation)]

= 입력(rate of input) + 손실(rate of loss) + 생성(rate of generation)

$$\frac{dn_i}{dt} = a_{ji} \cdot n_j - a_{ij} \cdot n_i \quad (1)$$

여기서,

n_i = i노드에서의 원자 밀도

n_j = j노드에서의 원자 밀도

a_{ji} = i노드에서 j노드로의 전달계수(transfer coefficient)

a_{ij} = j노드에서 i노드로의 전달계수(transfer coefficient)

CORA 모델의 초기 프로그램은 퇴적물 침식만을 나타내는 Yerazunis 공식을 기초로 만들어졌다. 그리고 기본적으로 발전소 내 화학물질의 영향과는 무관하였다. 상업 가동 중인 발전소에 대해서 부식생성물에 대한 보편적인 이해와 부식생성물의 거동에 대한 모의실험의 필요성은 부식생성물의 수송에 관계되는 이론과 여러 가지 자료에 대한 깊은 재검토를 초래하였다.

이미 개발된 기술에 대한 재검토는 새로운 자료를 모으게 되었지만, 불행하게도 확실한 자료는 부족하다는 결과가 나왔다. 이 자료들은 운전 중인 발전소에서 제어된 실험을 수행하거나 실험에서 운전 중인 발전소의 모델을 만들어 실험을 수행함으로써 얻어진 것이다. 그리고 확실한 자료는 부족하지만, 이러한 자료 수집의 노력은 부식 침전물의 거동에서 중요한 통찰력을 제시해 주었다. 따라서 기초적인 원리로서 실용 가능한 자료의 통합은 지금의 CORA 모델을 만드는 데 큰 역할을 하였다. CORA 모델은 다음과 같은 사항을 평가하는데 사용될 수 있다.

- 냉각수에서 일정량의 Lithium과 재조정된 Lithium-Boron으로 운전할 때의 효과
- 합금에서 Cobalt양의 변화
- 정화시스템 인자들의 변화
- 열수력학적 인자들의 변화

CORA 모델에선 자철광(Magnetite)으로부터의 용해도를 기초로 분석이 수행되었다. CORA 모델의 응용 범위와 결과들을 살펴보면, CORA 모델은 PWR 1차 냉각수 시스템에 대한 기술이 매우 자세히 서술된 모델이며 부식 침전물의 수송을 예

상하는 데 유용하다. 하지만 모델을 적용하는 데 필요한 주요 인자들이 많아서 이를 구하는 것이 어려운 과제로 남아있다.

3.2 CRUDSIM

CRUDSIM 모델은 1990년 EPRI(Electric Power Research Institute)에서 개발되었다. 1차 계통수 내에서 일어나는 수 화학을 이해하기 위해서는 여러 가지 수화학 인자들을 고려해야 한다. 이들 수화학 인자를 계산하기 위해서 CRUDSIM 모델은 1차 냉각수에 관한 자료(Lithium, Boric acid, H₂, 온도, 출력)를 이용하였다. 이들 자료들은 시간의 함수로서 석출과 용해의 효과를 평가하기 위한 것이다. 발전소에서 관찰된 피폭량과 계산된 값의 비교는 이 모델이 실제 발전소 결과를 얼마나 잘 모사 하였는가의 기준이 된다. 그리고 이 모델은 발전소 피폭선량에 대한 여러 가지 화학 운전의 영향 평가를 하는데 이용 될 수 있다.

이 모델은 CORA 모델과는 달리 1차 계통을 크게 2개의 노드로 나누었다. 따라서 각 노드 사이의 수송과 관계되는 수송인자인 β값은 하나만 고려하게 된다. 이 β값은 실험 자료에 의해서 쉽게 구할 수 있다.

Fig. 4는 CRUDSIM 모델의 전체적인 개념도를 나타내고 있다. CRUDSIM 모델에서 부식생성물의 존재 공간은 전체적으로 두 개의 부분으로 나뉘지는 (In-core와 Ex-core 표기) 비교적 간단한 개념으로 모델이 설정 되었다.

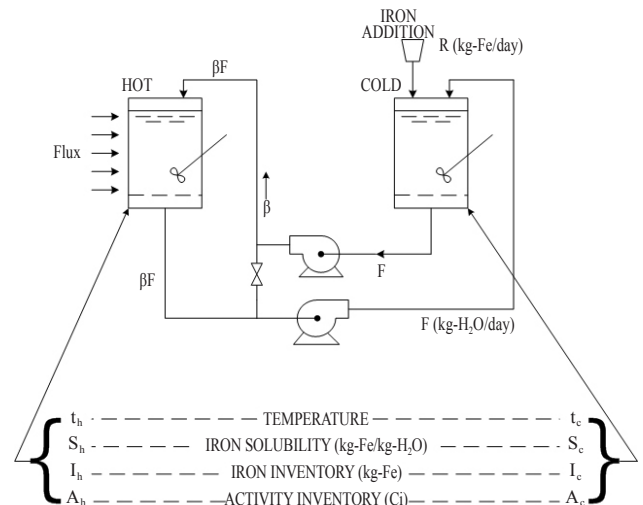


Fig. 4. The whole conceptual diagram of the model CRUDSIM[2].

Hot tank에서 cold tank로의 철의 수송과 cold tank에서 hot tank로의 철의 수송은 용해성물질들에 의한 것이다. 이 모델의 수송과정에서 핵종들과 방사화된 생성물들은 이온화된 철과의 화합물 형태로 1차 계통수 내를 이동한다. 그러나 냉각수 내에서 부식생성물이 수송되는 형태는 이온뿐만 아니라 입자들에 의해서도 이루어진다. CRUDSIM 모델은 입자에 대해서 고려하지 않으므로 입자들에 의한 크러드 양과 방사선의 양은 예측할 수 없다.

Hot region은 노심의 표면을 나타내고 cold region은 냉각수와 증기발생기의 표면을 나타낸다. 이 기본 개념을 이용하여 CRUDSIM 모델에서 사용하는 개념 식을 유도 하면 식 (2, 3, 4, 5)와 같고 CRUDSIM 코드 계산 과정에 대한 전체적인 순서도는 Fig. 5와 같다.

$$\frac{dI_h}{dt} = \beta F(S_c - S_h) \quad (2)$$

$$\frac{dI_c}{dt} = R - \beta F(S_c - S_h) \quad (3)$$

$$\frac{dA_h}{dt} = -\lambda A_h - \beta F\left(\frac{A_h}{I_h} S_h - \frac{A_c}{I_c} S_c\right) + \alpha PI \quad (4)$$

$$\frac{dA_c}{dt} = -\lambda A_c - \beta F\left(\frac{A_h}{I_h} S_h - \frac{A_c}{I_c} S_c\right) \quad (5)$$

여기서,

I_h = hot tank에서 철의 양(kg-Fe),

I_c = cold tank에서의 철의양(kg-Fe)

S_h = hot tank에서 철의 용해도(kg-Fe/kg-H₂O)

S_c = cold tank에서 철의 용해도(kg-Fe/kg-H₂O)

A_h = hot tank에서 방사선양(Ci),

A_c = cold tank에서 방사선양(Ci)

α = 중성자에 의한 방사화 인자
(Ci/kg-Fe % power.sec)

λ = 방사선 붕괴상수(sec⁻¹),

β = 크러드와 방사성물질에 대한 수송인자

R = cold tank에서 유입되는 철(kg-Fe/day)

F = 1차 계통수의 유속(kg-H₂O/day),

P = 출력(% power)[2]

3.2.1 CRUDMIT

CRUDMIT 코드는 CRUDSIM 코드를 MIT에서 수정, 보

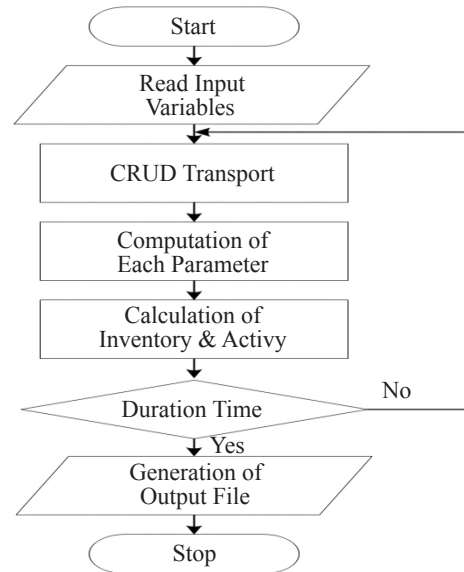


Fig. 5. CRUDSIM code : Flow chart of the calculation process[1,4].

완한 코드로서 가압경수로형 원자로의 1차 냉각재 계통에서 부식 생성물의 확산과 그 방사능과의 상관관계에 대한 분석 및 예측을 위한 전산 코드이다. CRUDMIT 코드는 용해도 차이, 이동성 및 그 외 경험적인 변수들에 기초하여 부식 생성물의 이동을 예측하며, 부식 생성물 이동 시 냉각재 화학변화에 따른 영향을 잘 해석한다.

1차 냉각재 계통은 원자로심, 냉각재, 증기발생기 등 3개의 주 구역으로 나누어진다. 그 이유는 부식물은 증기발생기 세관에서 생성되어 노심으로 이동하는 반면 방사화 부식생성물은 노심에서 증기발생기로 이동하기 때문이다. Table 2는 1차 냉각 계통 내 부식물의 주요 이동경로와 방사화 부식생성물의 이동경로를 비교한 표이다.

1차 냉각재에서 CRUD의 이동성은 계통 내 냉각재 온도의 변화 및 그에 따른 부식 생성물의 용해성 변화에서 발생한다. Fig. 6은 냉각재 온도의 변화에 따른 냉각재 내 부식 생성물의 포화상태 변화를 나타내고 있으며, 냉각재 온도가 증가하는 원자로심 내부에서는 원자로심 표면에서 침적되거나 미립자 형태로 응결된 용해성 물질에 대한 이동성이 발생하기 때문에 용해 물질은 과포화 상태로 존재하게 된다.

반면에 냉각재 온도가 감소하는 증기발생기에서는 용해 물질이 불포화 상태에 있게 되고, 증기발생기 표면의 부식 생성물과 냉각재 내 미립자가 냉각재로 용해된다. 부식 생성물

Table 2. Moving path of corrosives and radio active corrosion products

Major pathway of corrosion product	Major pathway of radioactive corrosion product
- Dissolved from the surface of a steam generator tube	- Dissolving at the surface of the core fuel
- move to coolant through the steam generator boundary layer	- move to the coolant through the fuel surface boundary layer
- move to fuel surface through coolant	- move to steam generator tube surface through coolant
- precipitation, crystallization of fuel surface	- Crystallization of the steam generator tube surface

I = Corrosion Product Inventory (kg)

SD = Deposition Rate of Soluble Species at Core (kg/sec)

SR = Soluble Species Release Rate from S/G (kg/sec)

CR = Corrosion Rate of S/G (kg/sec)[2,4]

식 (6, 7, 8)에서 밀 침자는 각각 원자로심, 냉각재, 증기 발생기를 의미한다. CRUDMIT 코드는 1차 냉각계통 내 부식 생성물과 방사능 이동에 대한 주요 계통으로 이 세 구역을 대상으로 하고 있다[1].

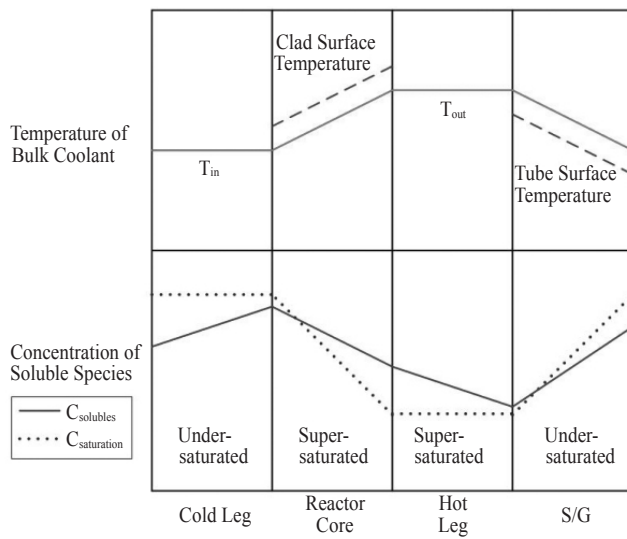


Fig. 6. PWR primary coolant circuit : coolant temperature and solubility[1,4].

의 이동 메커니즘은 용해, 이동, CRUD의 결정화로 구분 될 수 있으며, CRUD의 결정화는 냉각수 온도와 화학적 조건에 따라 달라진다. 각 구역에 대한 부식 생성물의 균형 방정식 (Balance Equation)은 용해성 부식 생성물의 이동만 고려할 때, 다음과 같이 식 (6, 7, 8)로 표현될 수 있다.

$$\frac{dI_1}{dt} = SD \tag{6}$$

$$\frac{dI_2}{dt} = SR - SD \tag{7}$$

$$\frac{dI_3}{dt} = CR - SR \tag{8}$$

여기서,

3.3 PACTOLE

PACTOLE 프로그램은 1994년 프랑스전력(EDF)와 FRAM-ATOME에서 공동프로젝트로 개발된 프로그램이다. 가압경수로 냉각재 계통을 CORA 프로그램보다 더 세밀하게 20개의 node로 구분하여 화학적 조건, 수력학적 조건, 유동 특성, 중성자속 유무, 재질 구성 및 온도 등에 따른 물리화학적 변수들에 의해 각 node를 특성화시켜 해석하도록 구성되어 있다. 본 프로그램은 발전소 이력(출력, 화학변화 및 냉각재 정화효과 등)을 고려하고 계통재질의 용해도를 전체과정을 지배하는 매개변수로 설정하고 있다.

또한, 부식생성물 방출, 침식, 입자이동 같은 다른 과정들도 고려하고 있으며, 부식생성물의 거동을 시간에 따라 예측한다. PACTOLE-2은 현재 프로토타입으로 해석적인 해를 사용해 많은 모델을 분석한다. PACTOLE-3은 PACTOLE-2의 개선 모델이며, 현재 개발 중에 있다. 수치계산법과 객체 지향 프로그래밍(object oriented programming) 언어를 사용하여 수학적 모델들을 분석한다.

가압경수로 1차 냉각재 계통에 매우 포괄적으로 적용될 수 있는 모델이며, 노심, 증기발생기 및 1차냉각재 계통으로 모델링 하였다. CORA 프로그램과 같이 표면오염 대상을 Corrosion Products로 하고 있으며, 고려되는 모핵종으로는 Fe, Ni, Mn, Cr, Co등이고 그 딸핵종은 Fe-59, Co-58, Cr-51, Mn-54, Co-60등이 있다[7]. Fig. 7은 PACTOLE 코드에서 고려하고 있는 메커니즘을 나타내주고 있다[3,5].

3.4 CREAT

본 프로그램은 국내에서 G-7 과제로 연구되었던 APR-

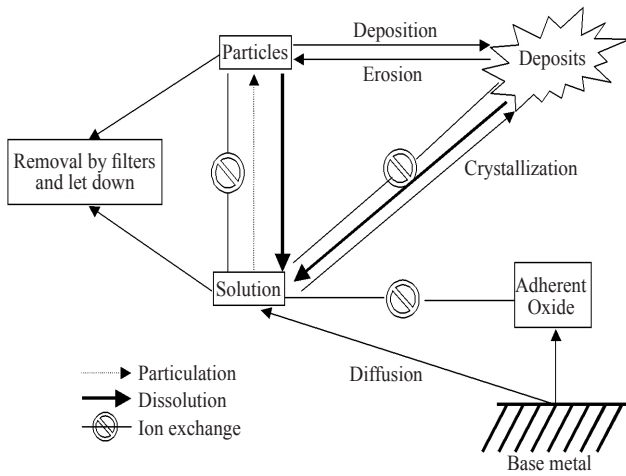


Fig. 7. PACTOLE code : System Model[3].

1400 프로젝트에서 개발된 코드로서 기존의 CRUDSIM-MIT (EPRI의 CRUDSIM 모델을 토대로 하고, MIT 원자로에서 PWR 부식시험 Loop를 설치하여 구한 6개의 측정치로부터 Calibration 된 것으로서 기존의 CRUDSIM에서 묘사하고 있는 1차 계통 모델을 2개 영역에서 3개 영역(노심, 증기발생기, 냉각수)으로 모델링하여 개정한 코드입)을 개정한 것으로서 CRUDSIM-MIT 코드와 CREAT 코드와의 차이점은 다음과 같다.

- 노심 방사화를 계산할 때 Co계 경면의 운전, 보수에서 발생하는 입자성 CRUD의 수송 및 방사화 효과를 반영할 수 있도록 개선
- 증기발생기 세관에 포함된 Co-59 함량의 영향을 평가
- CRUDSIM-MIT에서 핵연료 재장전 주기가 300일로 고정되어 있던 것을 CREAT 코드에서 다양한 발전소 주기를 사용할 수 있도록 개선
- 증기발생기 부식 속도 상수의 입력 값 사용이 가능하도록 개선

CREAT 프로그램에서는 CRUD 수송과 관련한 중요한 매개 변수들이 있다. 가용성 및 입자성 CRUD의 질량 전달 계수, 가용성 및 입자성 CRUD의 확산계수, CRUD의 방사능 침적 계수, CRUD의 방사능 방출 계수, CRUD 전달 인자 그리고 부식 생성물의 용해도를 들 수가 있다. CREAT 프로그램에서 적용한 방사능 수송모델은 Co-60 및 Co-58과 같은 방사성 원소들이 일정한 비율로 철의 가용성 CRUD에 포함되어 함

께 이동한다는 가정과 마모 효과를 고려하여 방사능 수송 모델을 설정하였으며, 다음과 같이 간단한 모델로 표현된다[3].

- The activity change rate in Core
= Fe CRUD Activation + Co wear CRUD Activation
+ Activity deposition as particulates - Decay of activated CRUD
- Activity release as solubles

$$\frac{dA_1}{dt} = I_1 R + I_{wear} R + ADP_1 - \lambda A_1 - ARS \quad (9)$$

- The activity change rate of solubles in coolant
= Activity release as solubles - Decay rate of activate solubles
- Activity precipitation of particulates
- Activity deposition as solubles to S/G

$$\frac{dA_2}{dt} = ARS - \lambda A_2 - APR - ADS \quad (10)$$

- The activity change rate in the S/G
= Activity deposition of solubles + Activity deposition as particulates
- Decay rate of activated CRUD

$$\frac{dA_3}{dt} = ADS + ADP_3 - \lambda A_3 \quad (11)$$

- The activity change rate of particulate in coolant
= Activity precipitation of particulates
- Decay rate of activated particulates
- Activity deposition as particulates to core region
- Activity deposition as particulates to S/G region

$$\frac{dA_4}{dt} = APR - \lambda A_4 - (ADP_1 + ADP_3) \quad (12)$$

3.5 ACE

ACE 코드는 가압경수로 1차 냉각계통 내 부식생성물의 거동을 분석하기 위하여 일본의 미쓰비시사에서 기존의 CRSEC 코드에 최신 연구결과를 반영하여 개발한 프로그램이

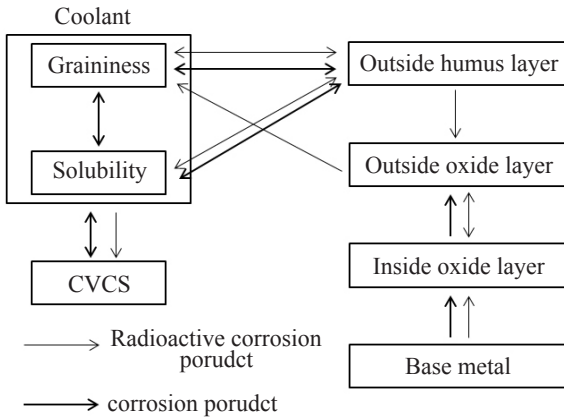


Fig. 8. ACE Code of radioactive corrosion products and corrosion product behavior model.

다. CRSEC 코드는 일차 냉각계통을 노심 부분과 기타 부분으로 나누고, 산화막을 외부산화막과 내부산화막으로 나누어 부식생성물의 거동을 분석한다. 그러나 1차 냉각계통 표면에서 부식생성물의 농도는 냉각재의 유량과 온도 및 재질 특성에 따라 다르기 때문에 증기발생기나 1차 냉각계통 고온관 및 저온 관에서 의방산화 부식생성물의 농도는 각각 달라진다. ACE 코드의 특징은 다음과 같으며, ACE 코드에서 사용하고 있는 부식생성물의 거동분석 모델은 Fig.8과 같다.

- 재질, 온도, 냉각재 유속에 따라 노심 내 표면을 4개로 분류하고 노심 외의 표면을 10개로 분류하여 부식생성물의 거동을 분석
- 핵연료 이외의 표면산화막을산화막 특징에 따라 3개로 분류(외부부식층, 외부산화막, 내부산화막)

4. 평가코드의 비교와분석

앞에서 간단히 살펴본 부식생성물에 대한 수송모델의 장·단점으로는 CORA 모델의 경우, 매우 상세하게 설정된 기본 개념에서 출발하고 있다. 즉, 발전소 1차 계통내의 각 부분에 대해서 계산 영역을 아주 세분화하여 부식생성물의 수송량과 침전량 등의 값들에 대하여 정확한 계산 값을 유도한다.

그러나 실제로 계산한 값을 발전소에서 측정된 값과 비교해 보면, 이론적인 정확성, 즉 여러 개의 노드를 설정하여

각 노드 사이의 수송인자 β 값으로 나타내어 복잡한 계산을 한 것에 비하여 그 결과 값이 예상만큼 정확하지는 않다는 것이다. 하지만 CRUDDSIM 모델의 경우, 기본 원리에서 간단하게 개념을 잡고 한 개의 β 값을 고려하여 계산해도 발전소의 실제 자료와 비교해 보면 CORA 모델과 비슷한 수치를 가지거나 약간의 정확도가 낮은 값을 가지는 것을 알 수 있다.

CORA 모델과 CRUDDSIM 모델의 결과가 측정값과 차이가 있는 것은 발전소의 1차 계통 부식생성물에 대한 수송과 그 계산에 있어서 모델마다 고려해야 할 인자 이외에 우리가 알 수 없거나 찾아내지 못하는 인자들 때문에 실제 발전소의 부식생성물 수송 정도를 정확하게 예측하기 불가능하다는 것을 나타낸다. 그래서 발전소의 운전자들은 기존의 모델에서 필요한 근사 값을 얻어내고 그 값을 기준으로 여유도를 많이 고려하여 발전소내의 운전, 안전성, 조사율 등의 필요한 부분에 적용하고 있다.

PACTOLE은 부식생성물의 생성과 침식 예측 그리고 입자의 용해 및 변환 등의 프로세스를 모두 포함한다는 장점을 가지고 있다. 그런데 PACTOLE의 경우 산소의 영향과 냉각재 과도효과의 영향 등 불확실성이 존재하고 프랑스의 가압경수로 운영 예측에는 높은 정확성을 보이지만 국내 원전 분석사례가 없다는 점이 한계점이다.

CREAT 또한 국내 APR-1400을 기반으로 개발된 코드이나 PACTOLE처럼 원전에 적용한 분석사례가 없고 CRUDDSIM을 기반으로 한다는 점에서 큰 틀을 벗어나지 않는다.

ACE 코드는 모든 과정을 실제 측정값에 의해 정량화하고 기초 이론에 근거하여 모델에 적용한다. 그러므로 ACE 코드는 실험 자료에 근거하기 때문에 다른 스타일과 기하학적 형상을 하는 원자로에는 적용될 수 없다.

각 코드별 장단점을 살펴보았을 때, CORA 모델보다 계산 값이 크게 다르지 않고 이론적 접근법과 모델링이 간단하며 입자에 의한 CRUD예측이 불가능하다는 CRUDDSIM의 단점을 보완한 CRUDDMIT가 유리할 것으로 보인다. 앞에서도 언급 하였지만, CRUDDMIT 모델은 CRUDDSIM 모델과 몇 가지 차이점이 있다. CRUDDMIT 모델은 수송인자인 β 값을 CRUD와 방사성 핵종에 대하여 나눠서 고려하였다. 냉각수 내에서 CRUD의 수송률은 β_c 로 나타내고, 방사성 핵종의 수송률은 β_a 로 나타낸다. 그리고 CRUDDSIM 모델은 부식생성물이 1차 계통수 내에서 이온 상태에서 수송이 된다고 기술하였지만, CRUDDMIT 모델은 냉각수 내에서 수송되는 부식생성물의 형

Table 3. Feature comparison of code

	CORA	CRUDMIT	PACTOLE	CREAT	ACE
Node number	10	3	20	3	2(4/10)
Development instrument	Westinghouse	development (EPRI) improvement (MIT)	EDF & FRAMATOME	KOPEC	MITSUBISHI
Consideration nuclide	Cr-51 Mn-54 Fe-55,59 Co-58,60 Zr-95	Co-58 Co-60	Fe & daughter nuclide Ni & daughter nuclide Mn & daughter nuclide Cr & daughter nuclide Co & daughter nuclide	Co-58 Co-59 Co-60	-
Apply example	Internal and external	Internal and external	PWR (FRANCE)	APR-1400	PWR (JAPAN)

태를 이온상태와 이온이 결정화된 입자들에 대해서도 고려하였다. 그러므로 CRUDSIM 모델을 기본으로 한 CRUDMIT 모델을 본 보고서에서는 기본 모델로 채택하여 발전소내의 1차 계통에서 생성되는 부식생성물과 방사성 핵종의 수송에 대한 비교, 분석에 적용하고자 한다. Table3은 Code들의 특징을 비교해 놓은 것이다.

5. 평가코드의 적용가능성 분석

부식생성물의 방사능은 기하학적 조건 및 화학적 조건에 따라 달라지며, 원자로의 가동 조건은 방사성 핵종의 유형, 포화 준위, 냉각재 내 불순물의 양과 유형, 출력, 노심 내 냉각재 체류 시간, 온도 및 압력, 냉각재 유속, 부식률, 정화 효율, 냉각재 내 CRUD의 침적률에 크게 영향을 준다. 부식은 중성자 수율, 원전 운전기간, 노심 온도의 종합적인 영향에 따라 그 증가율이 달라진다. 한양대학교의 연구보고서는 영광3호기에 대한 핵설계보고서(NDR, Nuclear Design Report) 및 최종안전성분석보고서에 기초한 1차 냉각재 계통의 기하학 정보 및 냉각재의 화학 조건을 CRUDMIT 코드의 입력문으로 채택하였다. 영광3호기 예방정비기간 동안의 방사능을 계산하기 위한 CRUD심 코드 입력 변수를 입력하였으며, 예방정비기간 동안의 붕소 농도는 2100ppm이다.

CRUDMIT 코드를 이용하여 영광 3호기 8주기 동안의 주요 부식생성물에 대한 방사능이 계산되었다. 영광 3호기의 주기별 정상 운전기간과 예방정비기간이 원전 운영 상황에 따라 달라지므로 1주기를 510 일로 가정하였으며, 그 중 정상 운전기간은 450 일, 예방정비기간은 60 일로 가정하였다. 실제로 영광3호기의 1999년 6월 3일 제4차 예방정비기간 시행 일로부터 2006년 2월 7일 제9차 예방정비기간 후 발전 재개 일까지 정상운전기간은 평균 438.6 일(최대 475 일), 예방정비기간은 평균 40 일(최대 51 일)이었다. Fig.9는 계산된 8 주기 동안 운전시간에 따른 각 구역에서의 방사능 분석 결과이다.

계산 결과 Co-58의 방사능이 가장 높게 나타났으며, Cr-51, Co-60, Mn-54, Fe-59의 순으로 방사능이 높게 계산되었다. 주요 부식생성물의 방사능은 정상 운전기간 중에 서서히 증가하다가 예방정비기간 동안에는 핵연료 교체작업 및 정화 작업 등으로 인해 방사능이 급격히 감소하는 것을 확인할 수 있다. 이 중 제 8차 예방정비기간(2004년 10월 2일 ~ 2004년 11월 10일, 40일)동안의 평균 방사능을 방사선원으로 채택하였다. 수정된 CRUDMIT 코드를 이용하여 계산된 냉각재 내부 주요 부식생성물의 방사능을 측정값과 비교하고자 하였다. 최근 국내 연구결과에서 원자로 냉각재 계통의 표면에 부착되는 침적 CRUD에 대한 연구결과가 있으므로, 순환 CRUD에 대해서만 고려하였다. 원자력발전소에서 순환 CRUD에 대한 측정이 거의 매일 이루어지는데, 주요 부식생성물 중 Co-58, Co-60, Cr-51 등 3개의 핵종에 대해서만 이루어진다. 제 8차 예방정비기간 동안 냉각재 내부 순환 CRUD의 평균방사능을 계산 값과 비교하였으며, Fig.10에 나타내었다. Mn-54와 Fe-59는 측정값이 없으므로 계산 값만 나타내었다. 비교 결과 Co-60의 경우 계산 값은 측정값보다 약 2.2배 높았으나, Co-58과 Cr-51의 경우에는 측정값이 계산 값 보다 각각 3.4배, 1.3배 더 높았다. 이는 각 예방정비기간 동안에 있어 정상 운전 기간의 가동 조건에 따라 작업 내용에 차이가 있으며 냉각재 계통에서의 정화 내용 및 정화 정도가 다를 수 있기 때문으로 판단된다. 실제로 측정치는 제8차 예방정비 기간에 2004년 10월 8일 ~ 2004년 11월 2일까지의 정비 기간에 측정된 값이며, 계산 값은 이 기간 중의 냉각재 정화 작업에 대한 변수는 고려하지 않았다.

앞서 그래프의 각 주기별 정상운전 기간 방사능이 유사하게 상승하는 것을 확인할 수 있다. 따라서 주기가 거듭되

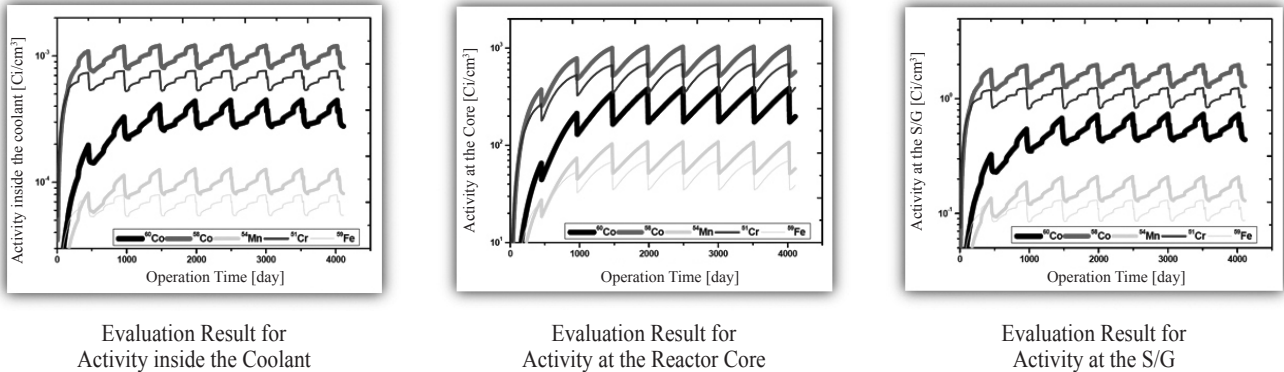


Fig. 9. Evaluation result for each zone[1,4].

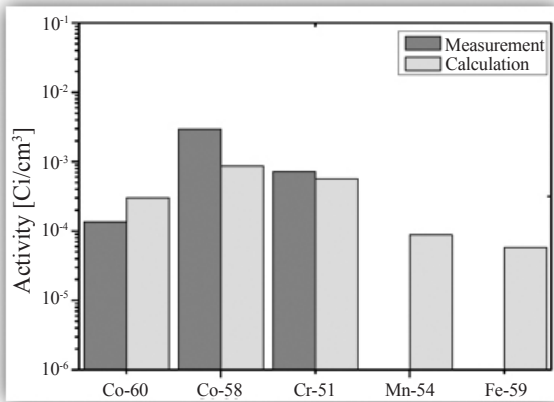


Fig. 10. Comparison between the Calculation and the Measurement for Activity inside the Coolant[1,4].

어 데이터 누적 시, 30주기 정도의 해체시점 방사능량 산정이 가능할 것으로 보인다.

또한, 예방정비기간 동안 감소하는 방사능량의 규칙성을 계산하고 원전 각 호기 별 반복 계산 및 사건 사고 반영으로 정확성 향상을 이루어 사고와 방사능량의 상관관계 계산을 해야 할 것이다. 계산 값을 이용하여 원전 각 호기당 주기별 특징에 따른 상관관계를 수식으로 도출하고, 누적 데이터 및 사건 사고와의 관계를 이용하여 영향이 있는 인자와 영향이 없는 인자로 구분한다. 향후 연구에서는 구분된 인자로 부식 생성물 발생량에 영향을 미치는 인자를 코드에 적용하여 정확성을 향상시키고 기존 사용인자가 아닐 경우 인자로 사용 가능하게 코드를 개선하고자 한다.

6. 결론

본 논문에서는 부식생성물 평가코드를 이용한 제염해체 폐기물 발생량 연구에 대해 CORA, CRUDSIM(CRUDMIT), PACTOLE, CREAT 및 ACE 코드를 비교·분석 하였다. 각 코드의 수화학적 인자와 메커니즘에 따른 계산방식을 분석하였으며, 코드 별 개선이 필요한 부분과 장·단점을 비교하였다. 국내 원전의 적용 사례와 모델의 복잡성 등을 고려할 때, 비교 대상 코드 중 CRUDMIT 코드가 국내 원전 해체 물량 산정 분석에 제일 적합하다고 판단되었다.

그러나 분석 대상 코드들은 발전소 설계 시 적용하였던 코드로 제염 해체 폐기물량 산정에 직접 적용하기에는 어려움이 있으며, 정확한 해체 물량 산정을 위해서는 다음의 사항을 고려할 필요가 있다.

첫째, 기존의 모델링에 의한 코드 계산 값이 해체 후에도 데이터로서의 가치를 지닐 수 있도록 미비점이 보완되어야 한다.

둘째, 기존의 데이터 중에서도 발전소의 운전이력(Operational history)이 특히 중요하며 데이터베이스화 되어야 데이터로서 가치를 지닌다.

셋째, 향후 제염과 해체에 적합한 코드 CRUDMIT를 사용하려면 부식생성물 발생량에 영향을 미치는 인자와 사고와 방사능의 상관관계 수식 적용 등 개선 및 보완이 필요하다.

넷째, 분석한 그래프는 사고가 발생하지 않은 정상운전 상태의 주기이나 제어봉 오작동, 냉각재 펌프 정지, Station Blackout 등과 같은 사건을 적용한 분석이

추가적으로 필요하다.

마지막으로, 현재 원자력발전소에서 측정하지 않는 핵종들(Mn-54와 Fe-59 및 그 밖의 핵종)을 측정하여 향후 평가 시 적용할 수 있도록 자료를 데이터베이스화 할 필요성이 있다.

REFERENCES

- [1] J.K. Kim, J.K. Lee, C.H. Kim, C.H. Kim, S.Y. Kim, C.H. Shin, J.Y. Kim, C.Y. Han, J.C. Kim, J.H. Jung, W.H. Ha, H.C. Kim, H.K. Jang, K.O. Kim, and Nam Hai Luu, "Development of the Radiation Field Measurement and Dose Assessment Technology at NPPs", iTRS/TR-2007-01(2007).
- [2] B.U. Sung, "The Study of Corrosion Product Transport in PWR Primary Coolant", Master's degree, KYUNG HEE UNIVERSITY(1997).
- [3] S.W. Shin, K.D. Kang, H.S. Kim, J.K. Son, Y.J. Choi, K.J. Lee, E.O. Ko, K.D. Kim, and J.H. Ha, "Study on the Safety Evaluation Method Development for D&D of Nuclear Power Plant", KINS/HR-444, KINS(2002).
- [4] W.H. Ha, "Analysis on the gamma dose distribution by major corrosion products during preventive maintenance period in nuclear power plant ", Master's degree, HANYANG UNIVERSITY(2006).
- [5] S.Y. Jang, "Development of a Computer Code for Prediction of Crud Transport in PWRs", Master's degree, KAIST(1991).
- [6] Muhammad Rafique, NasirM. Mirza, Sikander M. Mirza, and Muhammad J. Iqbal, "Review of computer codes for modeling corrosion product transport and activity build-up in light water reactors", NUKLEONIKA –ORIGINAL EDITION-, 55(3), pp.263-270, Institute of Nuclear Chemistry and Technology(2010).
- [7] L. Di Pace, F. Dacquit, P. Schindler, V. Blet, F. Nguyen, Y. Philibert, and B. Larat, "Development of the PACTITER code and its application to safety analyses of ITER Primary Cooling Water System", Fusion Engineering and Design, 82(3), pp.237-247, Elsevier Science B.V, Amsterdam(2007).
- [8] Muhammad Rafique, Nasir M. Mirza, and Sikander M. Mirza, "Kinetic study of corrosion product activity in primary coolant pipes of a typical PWR under flow rate transients and linearly increasing corrosion rates", Journal of Nuclear Materials, Vol.346 No.2-3, pp.282-292, Elsevier Science B.V, Amsterdam(2005).
- [9] Nasir M. Mirza, Muhammad Rafique, Sikander M. Mirza, and M. JavedHyder, "Simulation of corrosion product activity for nonlinearly rising corrosion on inner surfaces of primary coolant pipes of a typical PWR under flow rate transients", Applied Radiation and Isotopes, 62(5), pp.681-692, Elsevier Science B.V, Amsterdam(2005).
- [10] C. B. Lee, "Modeling of corrosion product transport in PWR primary coolant. PhD Thesis", Thesis(doctoral)-Massachusetts Institute of Technology: Nuclear Engineering(1990).