

# A Study on Corrosion Product Behavior Prediction for Domestic PWR Primary System by using CRUDTRAN

## CRUDTRAN을 이용한 국내 PWR 1차계통내 부식생성물 거동예측에 관한 연구

Jong Soon Song, Tae-Bin Yoon, and Sang-Heon Lee\*

*Chosun University, 309 Pilmun-Daero, Dong-Gu, Gwangju, Republic of Korea*

송중순, 윤태빈, 이상헌\*

*조선대학교, 광주광역시 동구 필문대로 309번지*

(Received May 19, 2015 / Revised August 27, 2015 / Approved September 8, 2015)

---

Radionuclide deposited on the surface of several internal and external systems in a nuclear power plant is created by the activation of corrosion products from nuclear reactor structural materials and fission products. Especially, the constant contact between water and the surface corrodes the inside where primary system makes coolants and corrosion products mixed. Also, these are circulated along the systems. For comparing models, CRUDTRAN, DISER, MIGA-RT and CPAIR codes are analyzed to predict the quantity of radionuclide and corrosion product of primary reactor that are used at the stage of designing. The corrosion products behavior of domestic PWR primary system was predicted by using CRUDTRAN. This study aims to increase the reliability of corrosion product evaluation model by comparing the actual values and calculated values with the data of a Westing House-type Nuclear Power Plant.

Keywords: Corrosion product, CRUDTRAN, DISER, MIGA-RT, CPAIR

---

\*Corresponding Author.

Sang-Heon Lee, Chosun University, E-mail: leesanghoen@naver.com, Tel: +82-62-230-7165

### ORCID

Jong Soon Song <http://orcid.org/0000-0001-9162-7631>

Tae-Bin Yoon <http://orcid.org/0000-0001-6585-9295>

Sang-Heon Lee <http://orcid.org/0000-0002-5203-3029>

원자력 발전소 내·외부 계통의 표면에 침적된 방사성핵종은 원자로 구조재 및 핵분열생성물의 부식생성물 활성화에 의해 생성된다. 특히, 1차계통 내부에서 물과 부식된 표면 사이의 지속적인 마찰은 냉각재와 부식생성물을 혼합하게 만든다. 그리고 이것들은 계통을 따라 순환한다. 본 논문에서는 설계단계에서 사용되는 1차 계통의 부식생성물과 방사성 핵종의 양을 예측하는 CRUDTRAN, DISER, MIGA-RT 및 CPAIR 코드를 분석하였다. 또한, CRUDTRAN을 이용하여 국내 경수로 1차계통 내 부식생성물 거동을 예측하였다. 본 연구목적은 웨스팅하우스형 원전의 실제 데이터로 계산된 값을 측정값과 비교하여 부식생성물 평가 모델의 신뢰도를 향상시키는데 있다.

중심단어: 부식생성물, CRUDTRAN, DISER, MIGA-RT, CPAIR

## 1. 서론

원전에서 물은 중성자의 감속재, 원자로 냉각재, 보조급수 등 다양한 용도로 사용되고 있다. 이러한 물은 원전과 같은 고온의 환경에서 화학적으로 매우 활성화된 매질이다. 원전운전 경험상 정상운전 조건에서도 부식, 침식 및 부식생성물의 계통표면 내 침적 등 물로 인해 여러 가지 현상이 발생하게 된다. 물과 1차계통 내 부식된 표면과의 지속적인 접촉은 냉각재와 부식생성물이 혼합되어 계통을 순환하게 한다. 이러한 부식생성물 중 일부는 용해된 상태로 존재하며 다른 일부는 용해되지 않고 크러드(Chalk River Unidentified Deposit)라는 검은 입자 물질을 생성한다. 원전에서의 부식 발생률은 온도, 계통 재질, 방사선장 환경, 재질의 이용년수 등에 의해 결정된다. 일반적으로 원전운전 초기에는 부식 발생률이 가파르게 상승하다 시간이 지나감에 따라 부식 발생률이 일정하게 되는 평형상태에 이르는 것으로 알려졌다[1].

일차계통 내 생성된 부식생성물은 원자로 주위를 순환하면서 중성자 조사 때문에 방사화된다. 특히, 이러한 방사성 부식생성물은 가압경수로(PWR)에서 일차계통 내 표면에 침적되어 계통유지 및 보수를 담당하는 작업종사자의 방사선 피폭에 주된 요인이 되고 있다. 이러한 방사성 부식생성물 거동에 대한 평가를 통해 원전 계통 내 방사 화학적 환경을 검토하고 궁극적으로는 부식생성물을 줄이고 이를 통한 작업종사자의 방사선 피폭 저감을 이끌어낼 필요성이 꾸준히 제기되어 왔다. 또한, 해체 시 안전성 확보를 위한 요소기술들(방사능 재고량 평가 기술, 주된 피폭선량 평가기술, 부지 잔류 방사능을 확인할 수 있는 방사선/능 조사체계 그리고 해체 관련 표준 안전성 평가 기술) 개발이 시급하다.

따라서 본 논문에서는 원전 방사성 부식생성물의 거동을 평가하는 전산코드를 이용하여 국내 원전을 대상으로 모델링 한 결과값을 국내 원전의 실측자료와 비교하여 유사성을 확인 후 모델의 신뢰도를 얻고자 하였으며 향후, 해체 선원량 예측 연구에 기여함을 목적으로 한다.

## 2. 부식생성물의 발생 및 거동

### 2.1 부식생성물 발생

원전 운영에 있어 가장 큰 장애물 중의 하나가 방사성 부식생성물이다. 방사성 부식생성물은 안정한 원소인 부식생성물이 냉각재와 함께 이동하다가 노심의 열전달 표면 즉, 핵연료 피복관에 침적된 후 중성자와 핵반응 하여 생성되거나 노심 재질의 금속물질이 방사화되어 생성된다. 이렇게 방사화된 부식생성물은 물질의 평형 법칙에 따라 일차계통 전 영역으로 확산한다. 이러한 방사성 부식생성물의 발생을 피할 순 없지만, 보조급수 순도유지, 엄격한 수질관리 및 방사화되기 전에 부식생성물을 정화하는 방법으로 핵연료 표면에 침적되는 부식생성물을 줄임으로써 방사성 부식생성물의 발생률을 낮출 수 있다. Table 1에 PWR에서 발생하는 주요 방사성 부식생성물들을 나타내었다.

노심에 침적된 방사성 부식생성물은 냉각재의 전단력에 의해 침식과 파쇄, 침적물의 자체 용해와 마모 등의 현상으로 노심내에서 분리된다. 냉각재 내의 방사성 부식생성물은 용해성과 입자성으로 존재하면서 1차계통 전 영역으로 이동된다. 이중 입자성 방사성 부식생성물(CRUD)는 이동 중 1차계통 내

Table 1. Corrosion product and generation source in coolant

Nuclide	Half life	Generation unit	Source
<sup>3</sup> H	12.26y	<sup>10</sup> B(n,2α) <sup>3</sup> H	Boron in coolant
		<sup>6</sup> Li(n,α) <sup>3</sup> H	Lithium in coolant
<sup>16</sup> N	7.1s	<sup>16</sup> O(n,p) <sup>16</sup> N	coolant
<sup>17</sup> N	4.14s	<sup>17</sup> O(n,p) <sup>17</sup> N	coolant
<sup>18</sup> F	110m	<sup>18</sup> O(p,n) <sup>18</sup> F	coolant
<sup>13</sup> N	9.96m	<sup>13</sup> O(p,α) <sup>13</sup> N	coolant
<sup>24</sup> Na	15h	<sup>23</sup> Na(n,γ) <sup>24</sup> Na	Impurity ions
<sup>41</sup> Ar	1.83h	<sup>40</sup> Ar(n,γ) <sup>41</sup> Ar	Air flows into the coolant
<sup>51</sup> Cr	27.8d	<sup>50</sup> Cr(n,γ) <sup>51</sup> Cr	System material
<sup>54</sup> Mn	312d	<sup>54</sup> Fe(n,p) <sup>54</sup> Mn	System material
<sup>59</sup> Fe	45d	<sup>59</sup> Fe(n,γ) <sup>59</sup> Fe	System material
<sup>58</sup> Co	71d	<sup>57</sup> Co(n,γ) <sup>58</sup> Co	Steam generator tube
<sup>60</sup> Co	5.24y	<sup>59</sup> Co(n,γ) <sup>60</sup> Co	Stellite and Nickel alloy
<sup>64</sup> Cu	12.9h	<sup>63</sup> Cu(n,γ) <sup>64</sup> Cu	Steel
<sup>65</sup> Zn	243.8d	<sup>64</sup> Zn(n,γ) <sup>65</sup> Zn	System material
<sup>95</sup> Zr	65d	<sup>94</sup> Zr(n,γ) <sup>95</sup> Zr	Fuel cladding
<sup>110</sup> Ag	249.8d	<sup>109</sup> Ag(n,γ) <sup>110</sup> Ag	Abrasion of control rod
<sup>181</sup> W	130d	<sup>180</sup> W(n,γ) <sup>181</sup> W	Steel, Carbides
<sup>187</sup> W	24h	<sup>186</sup> W(n,γ) <sup>187</sup> W	Steel, Carbides
<sup>122</sup> Sb	2.7d	<sup>121</sup> Sb(n,γ) <sup>122</sup> Sb	Pump Seals, Bearings
<sup>124</sup> Sb	60.2d	<sup>123</sup> Sb(n,γ) <sup>124</sup> Sb	Pump Seals, Bearings

표면에 침적된다. 원전 방사선관리구역에서 기기의 유지 및 점검을 위해 작업종사자가 계통에 접근할 때, CRUD에서 방출되는 감마선으로 인해 주로 방사선 피폭을 받게 된다. 특히, 이중 <sup>51</sup>Cr, <sup>54</sup>Mn, <sup>59</sup>Fe, <sup>58</sup>Co, <sup>60</sup>Co의 다섯 개 핵종이 부식생성물 대부분을 차지하고 있으며, <sup>60</sup>Co, <sup>58</sup>Co, <sup>65</sup>Zn, <sup>54</sup>Mn, <sup>59</sup>Fe가 계통의 선량률을 올리는 주요 핵종이며 반감기가 긴 <sup>59</sup>Fe, <sup>63</sup>Ni, <sup>60</sup>Co 등은 방사성폐기물의 취급과 처분 시에도 특별한 관리가 요구되는 핵종들이다.

일차계통의 금속재질은 정상운전 중 수소기체의 주입으로 환원조건을 유지하고 있음에도 불구하고 열역학적으로

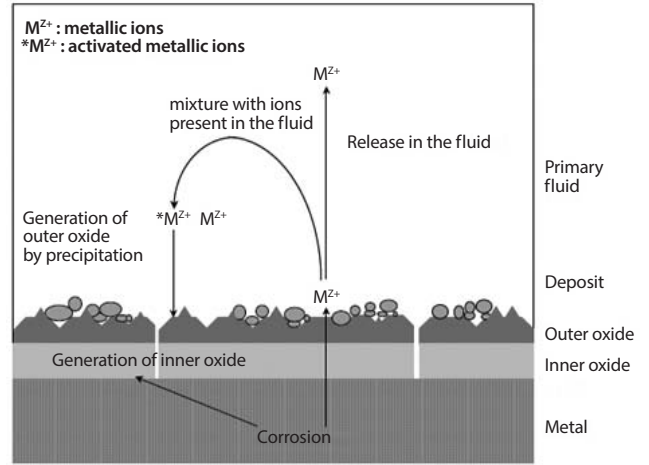


Fig. 1. Growth of the double layer of inner and outer of oxide.

불안정하여 더욱 안정한 산화물의 형태로 변형되려고 하는 경향이 있다. 금속재질이 처음 냉각재와 접촉하게 되면 매우 빠르게 부식이 진행된다. 부식이 진행됨에 따라 금속표면에 산화막이 형성되고 이러한 산화막으로 인해 냉각재와 금속 재질의 직접적인 접촉이 방해를 받아 부식률이 점차 낮아지게 되며, 결국 부식생성물의 유출과 부식이 평형상태에 도달하게 된다. 금속재질이 부식되는 동안 일부 부식생성물들은 침식이나 용출 때문에 냉각재 내로 유출되는데 이렇게 유출된 부식생성물들이 노심에서 방사화되어 원전 방사선 준위의 증가에 직접적 원인이 된다.

원전은 운전 초기의 짧은 기간을 제외하고 안정한 산화막의 존재하에 운전된다. 그러므로 산화 보호막이 형성된 후 평형상태에서의 부식과 유출이 원전 방사선 준위에 중요한 인자가 된다. PWR에서 형성된 산화막은 이중 층(Double Layer)으로 이루어져 있다. 이중 층의 산화막이 형성되는 과정에 대해서는 여러 의견이 있지만, 일반적으로 금속원소가 산화됨에 따라 형성된 Fe, Ni, Cr의 용해성 이온들이 산화막과 금속재질의 경계면에서 결정을 이루어 내부 층을 형성하거나, 산화막의 세공을 통하여 냉각재와 산화막의 경계로 확산하여 나온 후 침전되어 외부 층을 이루는 것으로 알려졌다. Fig. 1에 이중 층 산화물 생성과정을 나타내었다.

부식진행 중 산화막의 세공을 통하여 냉각재 표면으로 확산한 용해성 이온들은 전부 그 위치에 침전되는 것이 아니라 유체 흐름의 형태에 따라 일부 냉각재 내로 유출된다. 부식생성물의 유출은 이외에도 산화 막으로부터 직접 용출되거나

유체의 전단력에 의한 침식으로 인하여 발생한다. 일반적으로 유출물은 부식물에 비례하기 때문에 부식에 영향을 주는 인자들은 마찬가지로 유출물에도 같은 영향을 미치게 된다. 금속의 부식에 영향을 주는 주요 인자는 냉각재의 수소이온 농도(pH), 온도 및 용존 산소의 양이다. 이 중에서 수소이온 농도는 중요한 인자로서 pH가 증가함에 따라 부식률과 유출률은 감소한다. 대표적으로 1차냉각수 내에서 Fe의 경우 300℃에서 상온 pH 7일때 부식률이 감소함과 동시에 부식 막도 안정되어 유출률도 줄어든다. 원전의 정상 출력 운전 시 반응도 조절용으로 첨가되는 H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>는 냉각재를 산성화시키는데 이를 방지하기 위하여 LiOH나 KOH가 사용된다. 현재 대부분의 PWR의 경우 LiOH를 사용하고 있다. 온도 265℃에서 LiOH첨가에 의한 pH가 6.68 이상일 때 핵연료 피복재 표면에 침적된 부식생성물의 증가가 중지되고 일정하게 유지된다.

## 2.2 부식생성물 거동

용출 및 침식 때문에 유출된 부식생성물은 이온 또는 부유 입자의 형태로 냉각재 내에서 계통을 순환하게 된다. 냉각재 내는 계통을 순환하면서 온도가 국지적으로 바뀌게 되는데 이에 따라 용해도도 주기적으로 변하게 된다. 이러한 용해도의 변화는 부식생성물의 침적에 중요한 역할을 한다. 즉, 용해도가 감소하게 되면 금속이온들은 침전되어 부유 입자로 바뀌거나 산화막 표면에서 결정을 이루고 반대로 용해도가 증가하게 되면 역 현상이 발생한다. 냉각재 내의 부유 입자들은 수 $\mu$ m 이하의 크기가 대부분으로 전하를 갖고 콜로이드처럼 행동한다.

전하가 중성이 되는 pH를 PZC(Point of Zero Charge)라 하는데 이는 부식생성물 입자의 종류와 냉각재 온도에 따라 달라진다. 계통표면의 산화막도 마찬가지로 전하를 띄게 되는데 부유 입자 전하의 극성과 전위차에 따라 침적률이 결정된다. 이와 같이 냉각재에 실려 이동되는 부식생성물들이 핵연료 표면에 침적되면 중성자조사를 받아 방사성 핵종으로 바뀌어 원전의 방사선 준위를 높이게 된다. 현재 대부분의 PWR에서 적용하고 있는 수질관리 방법은 부식생성물의 노심 내 침적을 억제하는데 주안점을 두고 있다.

용해성 부식생성물들은 냉각재에 의해 이동되며 용해도의 차이에 의해 침적되거나 용해된다. 니켈페라이트의 용해도는

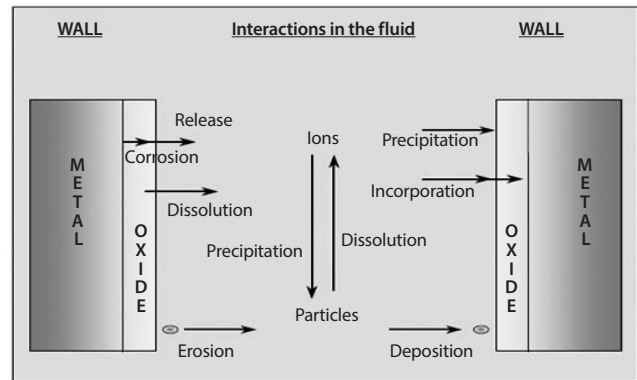


Fig. 2. Mechanisms responsible for activity transport.

온도, pH, 산화/환원(Redox) 포텐셜 등 계통 내의 위치에 따라 변화하는 인자들의 영향을 받는다. pH의 경우 위치와 시간에 따라 원자로 운전과 관련된 붕산의 양에 따라 변화하며 각 이온종의 산화/환원 포텐셜은 화학반응에 따라 각 이온농도에 의해 결정된다. 더불어, 용해성 부식생성물의 농도 및 용해도 한계에 따라 침적의 증가와 감소를 가져오게 된다. Fig. 2에 위에 요약된 내용을 바탕으로 한 방사성 부식생성물의 발생 및 이동 모델을 도식화하여 나타내었다.

## 3. 부식생성물 평가 모델 선정 및 해석

### 3.1 부식생성물 평가 모델 분석

지난 연구에서는 CORA, PACTOLE, CRUDSIM, CREAT 및 ACE 코드를 조사하여 국내 원전의 부식생성물 평가를 위한 적용 가능성 및 사전 연구를 수행하였다[2]. 본 연구에서는 경수로 원전에 적용 가능한 코드를 추가로 비교/분석하였으며 대표코드를 선정하여 1차계통의 부식생성물과 방사성 핵종의 양을 계산하였다.

#### 3.1.1 CRUDTRAN

CRUDTRAN 코드는 용해성 및 입자성 부식생성물의 거동을 예측하기 위해 개발된 실험적 코드이다. Fig. 3과 4는 이 코드에서 적용하고 있는 부식생성물의 발생과 침적에 대한 메커니즘을 보여주고 있다. 비화학량적(Non-Stoichiometric) 니켈페라이트는 대부분의 pH범위에서 온도에 반비례하는



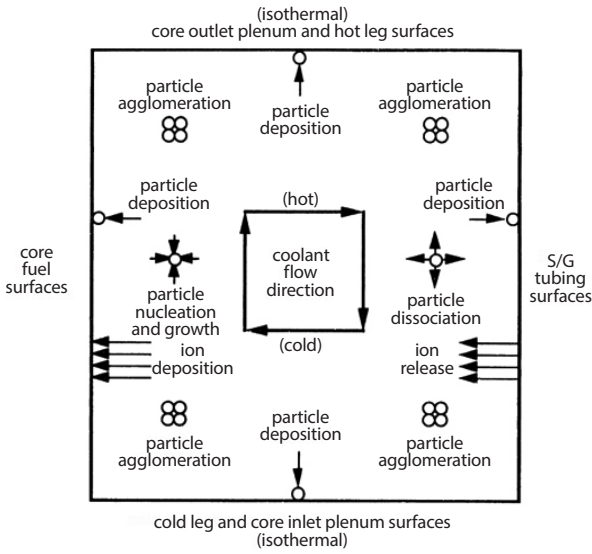


Fig. 3. Movement of corrosion products in a PWR primary system[4].

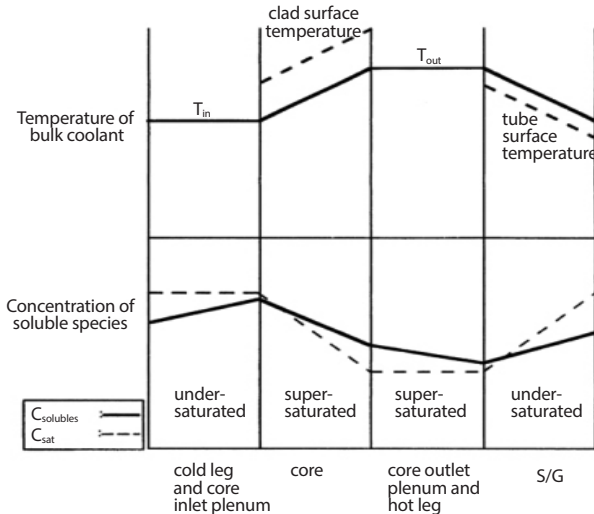


Fig. 4. Profile of coolant temperature and soluble species concentration in PWR primary circuit[3].

용해도를 보여준다[4]. 따라서 냉각재 내 CRUD가 포화한 노심 외부 지역에서 CRUD는 재질 표면에서 용해되어 냉각재로 유출된다. 냉각재 내 CRUD가 과포화 된 노심 내부 지역에서는 CRUD가 노심 표면에 침전 또는 침적된다. 노심 내부에 침적된  $^{58}\text{Co}$ 과  $^{60}\text{Co}$ 의 방사성핵종은 이온교환과정을 통해 냉각재로 확산 이동하며, 동일한 메커니즘에 의해 노심 외부에 침적된다. 냉각재는 용질(Solute)에 대해 시간의 변화와 상관없는 정상상태(Steady State)이나 용해물질과 입자의

방사능은 시간이 지남에 따라 증가하게 된다. 이와 같은 원리로 니켈, 코발트, 철의 용해물질과 입자의 거동을 예측하게 된다. 그리고 냉각재 내, 노심 내부, 노심 외부의 철과 방사성핵종을 기술하기 위해 5가지의 물질균형 수식이 필요하다. 또한, 이 모델은 CRUD와 방사능 거동의 요소를 산출하기 위해 매사추세츠 공과대학(Massachusetts Institute of Technology: MIT)의 PWR Coolant Chemistry Loop (PCCL) 데이터를 가공하여 사용하고 있다. 이러한 요소들은 물질 전달과 용해 거동 상수를 결합하는데 용해 거동 상수와 비교할 때 물질전달은 더 빠른 속도로 일어난다. CRUDTRAN 모델은 증기발생기에서 발생하는 산화물 용해를 고려하며 이러한 용해는 산화막 내 물질의 전달이 아닌 표면의 거동에 의해 영향을 받는 것으로 설계되어 있다. 노심 내 침적물속의 방사성핵종은 확산에 의한 이온교환과정을 통해 노심 외부 부식 산화물 층으로 이동한다[5].

### 3.1.2 DISER

DISER 코드는 체코에서 개발되었으며 냉각재 내에 용질, 콜로이드, 입자성 부식생성물이 존재한다고 기술되어 있다. 비금속(Base metal: 공기 속에서 가열하면 쉽게 산화되고 또 이온화 경향도 비교적 큰 금속)의 부식은 포물선 산화동역학(Parabolic Kinetics: 산화 피막의 두께  $x$ 와 시간  $t$ 와의 관계가  $x^2 = \kappa t$  ( $\kappa$ : 정수)의 관계에 있을 때, 포물선 법칙에 의한 산화라고 한다)에 의해 금속 내부에서만 산화가 일어난다. 용질은 마그네사이트와 니켈페라이트의 용해도에 따라 냉각재 내 용해된 철과 니켈이 불포화 상태일 때 내부 산화층의 용해로 형성된다. 경계 층(Boundary Layer)의 국부 표면 온도에 의해 냉각재가 과포화되었을 경우, 용질은 침전되어 내부 및 외부 산화층 모두를 생성한다. 또한, 대량의 냉각재가 마그네사이트와 니켈페라이트와 같은 산화물에 의해 과포화되었을 경우 용질은 냉각재 내 콜로이드 입자를 생성한다. 콜로이드는 브라운 운동(Brownian Motion)이 콜로이드에 전위차를 극복할 수 있는 충분한 에너지를 줄 때 침적된다. Fig. 5는 재질 표면에서 침적과 유출이 발생하는 전위차를 보여주고 있다. 콜로이드는 수화화 조건의 변화 때문에 재질 표면에서 떨어져 나올 수 있으며, 지름이  $0.8 \mu\text{m}$  이상인 콜로이드는 입자와 유사하게 거동을 한다. 부식생성물이 재질 표면에 부착되는 확률은 재질 표면에 근접한 입자가 표면에 머무르거나 아니면 바로 냉각재로 다시 돌아가는 사건의

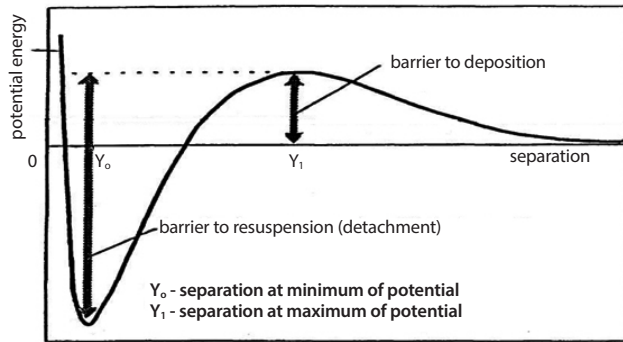


Fig. 5. Microscopic model of particle interaction with surface.

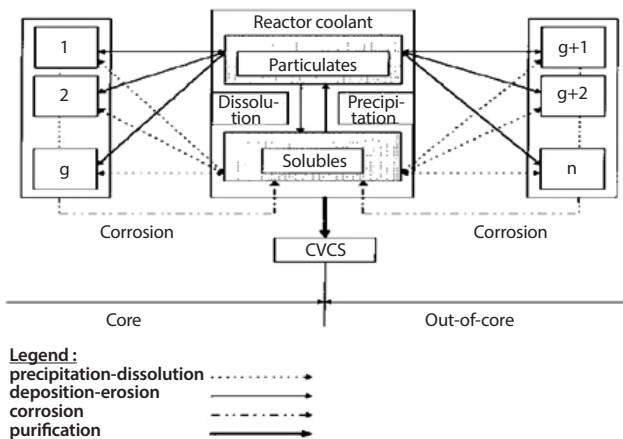


Fig. 6. Transport processes of corrosion products in PWR primary circuit[6].

빈도에 의해 계산된다. 용질, 콜로이드, 입자성 부식생성물 모두 방사화되어 유출되는 노심 표면의 부식도 이와 유사한 메커니즘이 작용한다.

### 3.1.3 MIGA-RT

MIGA-RT 코드는 PWR과 VVER 원자로에서의 부식생성물 거동을 평가하기 위해 불가리아에서 개발되었다. Fig. 6은 코드에서 사용하는 5개의 구역과 각 구역에서 냉각재와 상호작용하는 과정을 도식화하였으며, 부식생성물의 입자성 및 용해성 물질을 모두 고려되었다. 포물선 산화 동역학이 원자로 첫 주기에서 적용되는 것으로 가정하였으며 스테인리스강과 증기발생기 관에서의 부식률은 일정한 것으로 가정하였다[4]. 유출되는 원소는 부식된 물질의 성분에 비례한다. 각각의 표면에 대해 오직 하나의 산화물 또는 침적층만이

고려된다. 입자는 이러한 산화층들의 침식 때문에 생성된다. 용해된 물질의 거동은 마그네타이트, 니켈페라이트, 금속 니켈, 니켈 산화물 등과 같은 특정 상태의 산화물 용해도에 의해 결정된다. 입자의 침적과 유출은 각각 표면에서의 유체역학에 의해 결정된다. 특히, 침적은 부착확률과 경계층에서 유동하는 0.7 ~ 1.0 μm 크기 입자의 물질전달 비율에 따라 결정된다. MIGA-RT 코드에는 각각의 구역에 대해 냉각재 내 화학적 원소에 대한 물질 평형 수식이 포함되어 있다. 또한, 냉각재 내와 재질 표면에서의 각각의 구역에 대한 입자성 및 용해성 방사성핵종(예, <sup>58</sup>Co와 <sup>60</sup>Co)에 대한 수식이 포함되어 있다. <sup>58</sup>Co의 거동이 니켈의 거동을 따르는 것처럼 각각의 방사성핵종들은 모핵종의 거동을 따른다.

### 3.1.4 CPAIR

CPAIR(Corrosion Product Activity In Reactor) 코드는 PWR 1차 냉각재 내 부식생성물 방사능에 대한 유속율과 출력 과도변경(Power Transient)의 영향을 설명하기 위해 개발되었다. 초기에는 유속율 과도상태(Flow Rate Transients)에서의 부식생성물 방사능을 시뮬레이션하기 위해 CPAIR 코드가 만들어졌으나 출력 과도변경에 의한 영향도 같이 고려하기 위해 코드를 부분 변경하면서 코드 이름도 CPAIR-P로 변경하였다. 또한, 변경된 코드는 원자로 운전 중 선형적으로 증가하는 부식률에 의한 영향을 고려하기 위해 다시 수정되었다. 최근에는 비선형적으로 증가하는 부식률에 의한 영향을 고려하기 위해 코드가 재차 변경되었다. CPAIR-P 코드는 PWR 일차 냉각재 계통과 내부 파이프 표면 및 노심의 부식생성물 방사능 축적을 시뮬레이션한다. 또한, PWR 정화계통의 부식생성물 방사능 축적을 시뮬레이션하기 위해 사용되기도 한다. CPAIR 코드에서 사용되는 모델은 다음의 물리적 과정에 근거하고 있다.

- ① 부식생성물의 방사화는 노심을 통과할 때 받는 높은 중성자속에 기인한다.
- ② 방사화된 부식생성물은 이온교환기나 필터에 의한 수질정화로 제거된다.
- ③ 또한, 방사화된 핵종이 일차 냉각재 계통의 내부 재질 표면에 부착됨으로 인해 냉각재로부터 제거되기도 한다.
- ④ 일차계통의 냉각재는 누출되며 부식생성물들은 방사능 붕괴를 한다.

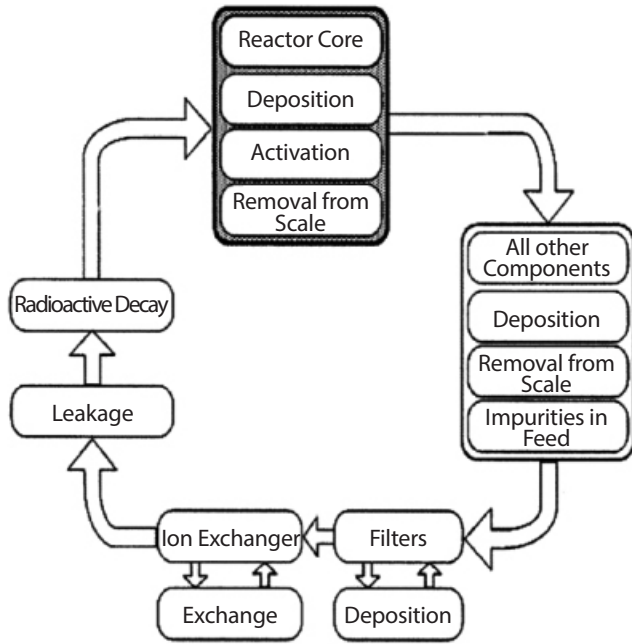


Fig. 7. Process model of CPAIR.

CPAIR-P 코드는 6가지 핵종( $^{24}\text{Na}$ ,  $^{56}\text{Mn}$ ,  $^{59}\text{Fe}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{99}\text{Mo}$ )을 고려하며, 정상운전 중에는  $^{56}\text{Mn}$ 을 주요 방사능 발생 핵종으로 고려하여 방사능을 평가하고, 원자로 정지 시에는  $^{58}\text{Co}$ 을 주요 방사능 발생 핵종으로 고려하여 방사능을 평가한다. Fig. 7에 CPAIR-P 코드에서 사용하고 있는 부식생성물 거동 모델을 나타내었다.

### 3.2 부식생성물 평가 모델 선정 및 해석

#### 3.2.1 부식생성물 평가 모델 선정

본 논문에서는 CRUDTRAN을 이용하여 원전 내 1차 계통에서 생성되는 부식생성물과 방사성 핵종의 이동을 분석 및 비교하였다. 선정 이유로는 CRUDTRAN 코드가 다른 코드들에 비해 평가 결과값을 비교하였을 때, 정확한 결과를 보여주는 장점을 가지고 있는 동시에 한국 원자력연구원에서 개발한 코드로서 코드 사용에 권리제약이 없다는 장점 또한 가지고 있다. CRUDTRAN 코드는 앞에서 설명하였듯 가압경수로형 원자로의 1차 냉각재 계통에서 부식 생성물의 확산과 방사능과의 상관관계에 대한 분석 및 예측을 위한 전산 코드이다. CRUDTRAN 코드는 용해도 차이, 이동성 및 그 외 경험적인 변수들에 기초하여 부식 생성물의 이동을 예측하며,

부식 생성물 이동 시 냉각재 화학변화에 따른 영향해석 능력이 우수하다.

1차 냉각재 계통은 원자로심, 냉각재, 증기발생기 등 3개의 주 구역으로 나누어진다. 그 이유는 부식생성물은 증기발생기 세관에서 생성되어 노심으로 이동하는 반면 방사화 부식생성물은 노심에서 증기발생기로 이동하기 때문이다.

즉, 1차 냉각재 계통 내에서 부식생성물의 주요 이동 경로는 다음과 같다.

- 증기발생기 세관 표면에서 용해
- 증기발생기 경계층을 통하여 냉각재로 이동
- 냉각재로부터 노심 내 핵연료 표면 경계층을 통하여 핵연료 표면으로 이동
- 핵연료 표면에서 부식생성물의 침적, 침전, 결정화

반면, 방사화 부식생성물의 이동 경로는 다음과 같이 구분된다.

- 노심 내 핵연료 표면에서의 용해
- 핵연료 표면 경계층을 통하여 냉각재로 이동
- 냉각재로부터 증기발생기 세관 표면 경계층을 통하여 세관 표면으로 이동
- 증기발생기 세관 표면에서의 결정화

1차 냉각재에서 CRUD의 이동성은 계통 내 냉각재 온도 변화 및 그에 따른 부식 생성물 용해도 변화에서 발생한다. 냉각재 온도가 증가하는 원자로심 내부에서는 원자로심 표면에서 침적되거나 미립자 형태로 존재하기 때문에 용해성 물질에 대한 이동성이 발생한다. 이 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 생성물의 이동 메커니즘은 용해, 이동, CRUD의 결정화로 구분 될 수 있으며, CRUD의 결정화는 냉각수 온도와 화학적 조건에 따라 달라진다.

#### 3.2.2 국내원전 적용 및 해석

CRUDTRAN 코드의 실행을 위한 입력 자료는 크게 11그룹으로 나눌 수 있으며, 주요 그룹의 주요 인자들은 아래의

Table 2. Major factor of CRUDTRAN

Calculation parameter	> DAYS – Duration of operation(day) > BETAC&BETAA – crud&activity transport factor in CRUDTRAN
Plant operating condition	> BORON – concentration of boron(ppm) > ALIT - concentration of LiOH(ppm) > CH2 – hydrogen content(cc/kg-H <sub>2</sub> O) > FLOW – coolant flow rate(kg-H <sub>2</sub> O/day) > TIN&OUT – core inlet & outlet temperature(°C) > DTBL1 – temperature differences across boundary layer in core at full power(°C) > FPUR – bypass flow rate of purification system(kg-H <sub>2</sub> O/day) > DEN – density of average coolant(kg/m <sup>3</sup> ) > VIS – viscosity of average coolant(n-sec/m <sup>3</sup> )
Initial conditions	> IH - initial crud inventory in core(kg-Fe) > IC - initial crud inventory in S/G(kg-Fe)
Plant geometry	> DE1 – hydraulic diameter of core fuel channel(m) > AR1 – surface area of core(m <sup>2</sup> ) > AF1 – coolant flow area in core(m <sup>2</sup> )
Diffusion coefficients	> DSOL – diffusion coefficient of soluble(m <sup>2</sup> /sec)
Radioactivity parameters	> ALPH1 – co-60 production rate in core(Co-60 Ci/kg-fe.day.%power)) > LAMD1 – decay constant of co-60(day <sup>-1</sup> )
Crystal growth and dissolution	> HCRYSC – crystal growth coefficient of corrosion product in core(m/sec) > HDISSC – dissolution coefficient of corrosion product in S/G(m/sec)
Other parameters	> CR – corrosion rate of S/G tube(kg/day)

Table 2와 같다.

앞에서 언급한 바와 같이 본 논문에서는 국내 원전 중 특히 고리1호기의 수화학 자료 및 1차 계통 관련 자료 등을 취합하여 특정 주기를 선정하고 CRUDTRAN 코드를 이용하여 모델링 후 발전소 내의 1차 계통에서 생성되는 부식생성물과 방사성 핵종을 평가하였으며 실제 원전의 측정값과 비교/분석 하였다. 여기서 특정 주기는 고리1호기의 Co 측정자료 중 23주기(2005.04.11. ~ 2006.05.05.)의 측정 데이터를 사용하여 모델링하였다.

초기의 목적은 고리1호기의 S/G 교체 전후의 수치를 비교하며 메커니즘과 특징을 연구함에 있었으나, 한수원에 요청하여 받은 자료들을 검토 결과 S/G 교체 이전의 측정 자료들보다 교체 이후의 측정 자료들이 상대적으로 미비하여 최근 주거나 다른 주기를 사용하지 않고 23주기 데이터를 선정하였다.

CRUDTRAN 모델링에 필요한 인자는 총 50여 개 정도인데 이 인자들의 확보를 위하여 FSAR와 고리1호기의 실측 자료들을 비롯한 각종 보고서를 참고하여 인자들을 확보하였다. 또한, 모델링에 필요하지만 확보하지 못한 인자들(FPUR,

IH)은 동일한 타입의 PWR원전의 수치를 보정하여 사용하였는데 그 방식은 동일한 인자를 가지고 출력비로 보정하여 사용하였다[1].

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. 부식속도는 원전 운전기간, 노심 온도의 종합적인 영향에 따라 그 증가율이 달라진다. 본 논문에서는 고리1호기에 대한 FSAR 및 협조자료 그리고 각종 보고서를 기초한 데이터를 기반으로 S/G와 Core 그리고 Coolant 내의 CRUD의 변화와 Co-58과 Co-60의 변화를 모델링하였다. 고리1호기의 23주기 운전일수는 390 일이고, 본 논문에서는 모델링상 편의를 위하여 운전일수를 400 일로 가정하여 모델링하였다. Fig. 8, 9는 23주기 운전 중 S/G, Core내에서의 방사능과 CRUD 총량의 그래프를 나타내며 Fig. 10은 Coolant내의 방사능량 그래프를 나타낸다.

국내 원전 측정자료에 제시된 계통내의 Co-58과 Co-60의



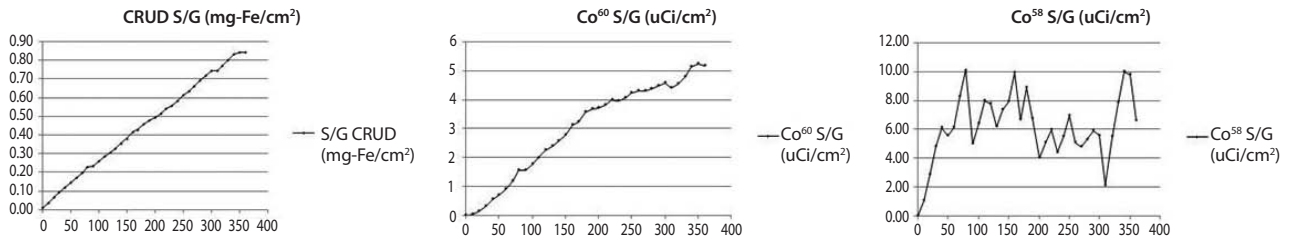


Fig. 8. The variation inventory and radioactivity during 23th cycle of NPP (S/G).

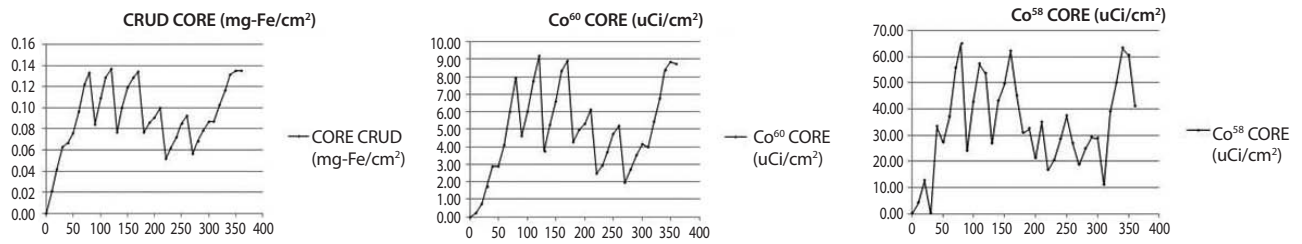


Fig. 9. The variation inventory and radioactivity during the 23th cycle of NPP(Core).

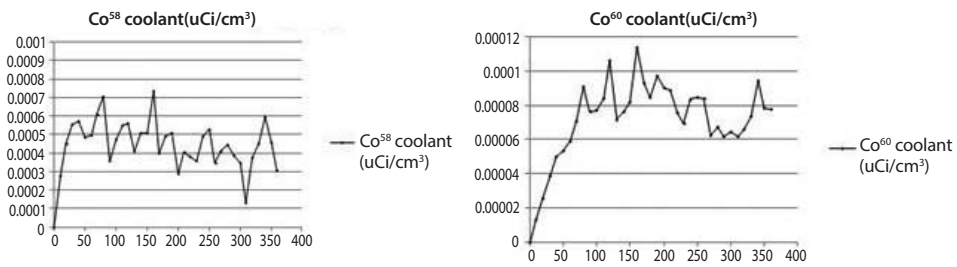


Fig. 10. The variation radioactivity during the 23th cycle of NPP(Coolant).

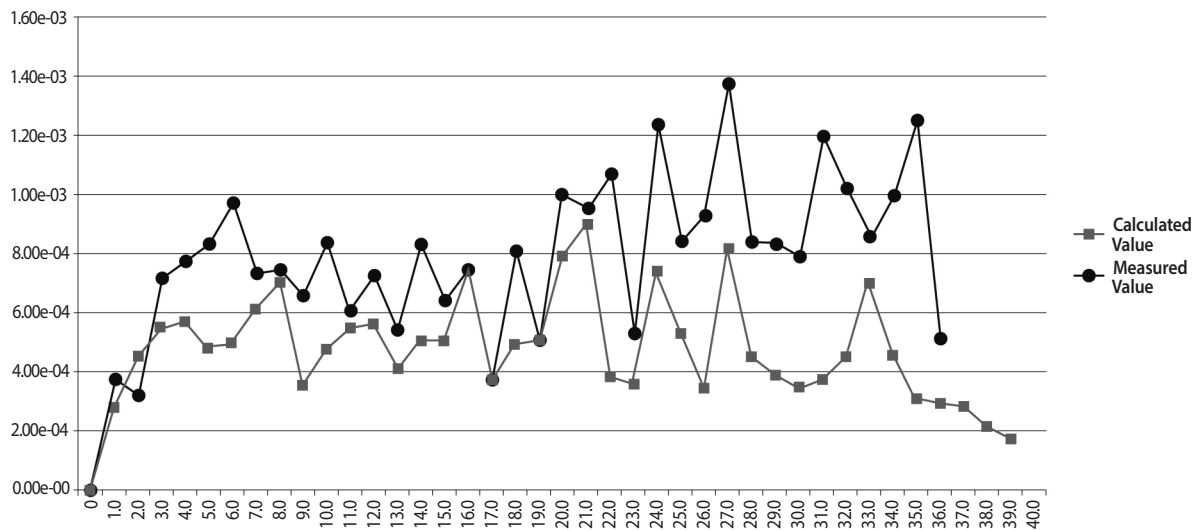


Fig. 11. Comparison of measured and calculated values of Kori #1.

수치를 살펴보면, 계통내의 Co-60은 예방정비기간 중에는 계속되나 정비기간 후의 정상운전 중에는 계속되지 않았다. 모델링의 신뢰도를 검증하기 위하여 실측치가 존재하는 Co-58의 계통 내 방사선량을 실측치와 계산치를 비교해보았다. 비교 그래프는 Fig. 11과 같다.

#### 4. 결론

본 논문에서는 CRUDTRAN 코드를 선정하였고 고리 1호기 원전의 실측자료를 이용하여 Co-58과 Co-60의 부분별 생성을 모델링하고 부식생성물의 거동과 방사능의 축적에 관련된 다양한 전산코드들의 특징에 대해 분석을 하였다.

모델링 결과 CRUDTRAN 코드를 이용한 모델링의 결과 값이 고리1호기의 실측치와 비슷한 추이를 보임을 알 수 있었고, 특히 계통내의 Co-58 방사능 농도는 발전소의 실측치와 근사치를 보이는 결과를 보였다.

고리1호기의 23주기로 모델링을 하였으나 앞으로 제염 및 해체에 적합한 연구를 위해서는 S/G의 교체 전후의 실측 자료들을 수집하고 모델링하여 해체 시의 방사능 준위와 CRUD의 총량을 살펴볼 필요가 있다. 또한 정상운전주기 이외의 사고조건(제어봉 오작동, 냉각재 펌프 정지, Station Black Out 등)의 데이터를 적용한 주기조건을 생성하고 모델링하는 연구도 향후 제염해체 관련 연구에 필요할 것으로 보인다.

본 논문에서 여러 부식생성물 관련 코드들을 살펴본 결과 각각의 코드별로 다양한 시뮬레이션 접근방법을 제시하고 있지만, 코드에 적용된 모델 대부분은 용해성 및 입자성 부식생성물의 거동을 고려하고 이러한 물질들이 일차 냉각재계통의 여러 구역에서 침적된다는 것을 동일하게 적용하고 있다. 또한, 코드 대부분은 실험적으로 결정된 변수를 기반으로 하고 있다. 비록 각각의 코드는 모델에 적용된 조건에 대해 충분한 평가를 수행하지만, 부식생성물의 복잡한 모든 거동 현상을 설명하지는 못한다. 만약 1차 계통재질로 새로운 합금이 도입된다면 현재까지 소개된 코드로는 새로운 재질의 온도변화를 부식생성물 거동 시뮬레이션에 충분히 반영하기에는 한계가 있으며 코드 개선이 요구된다.

#### 감사의 글

본 연구는 지식경제부의 재원으로 한국에너지기술평가원의 지원으로 수행한 연구 과제입니다.(No. 20131510300310)

#### REFERENCES

- [1] T.B. Yoon, "A Study in Corrosion Product Behavior and Mechanism in Domestic Nuclear Power Plants by Using CRUDTRAN", Master's Degree, Chosun University (2015).
- [2] J.S. Song, K.H. Kim, and S.H. Lee, "A Study on Radioactive Source-term Assessment Method for Decommissioning PWR Primary System", JNFCWT, 12(2), 65-76 (2014).
- [3] C.B. Lee, "Modeling of corrosion product transport in PWR primary coolant. PhD Thesis", Nuclear Engineering Department, MIT (1990).
- [4] International Atomic Energy Agency, "Modeling of Transport of Radioactive Substances in the Primary Circuit of Water-Cooled Reactors", IAEA-TECDOC-1672 (2012).
- [5] C.B. Lee. "Evaluation of CRUDTRAN Code to Predict Transport of Corrosion Products and Radioactivity in the PWR Primary Coolant System", International Conference on Water Chemistry in Nuclear Reactors Systems, 22-26 Avignon, France (2002).
- [6] M.C. Song and K.J. Lee, "The evaluation of radioactive corrosion product at PWR as change of primary coolant chemistry for long-term fuel cycle", Annals of Nuclear Energy, 30(12), 1231-1246 (2003).