

Inventory Estimation of ^{36}Cl and ^{41}Ca in Concrete of Kori Unit 1

고리 1호기의 콘크리트 내 ^{36}Cl 및 ^{41}Ca 의 방사화재고량 평가

Mee Jang*, Jong Myoung Lim, Hyun Chul Kim, and Chang-Jong Kim

Korea Atomic Energy Research Institute, 111, Daedeok-daero 989beon-gil, Yuseong-gu, Daejeon, Republic of Korea

장미*, 임종명, 김현철, 김창중

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로989번길 111

(Received January 29, 2019 / Revised February 15, 2019 / Approved February 19, 2019)

The radionuclide inventory prediction of a nuclear power plant can help establish decommissioning plan by providing information of radiation environment. Accumulated radionuclides in reactors and related facilities after reactor shutdown can be divided into neutron activated materials and contaminated materials. Among the neutron activated radionuclides, ^{36}Cl and ^{41}Ca are important from the viewpoint of disposal because of its long half-life and physiochemical characteristics. In this research, we calculated the radionuclides of ^{36}Cl and ^{41}Ca in bioshielding concrete by estimating the neutron flux and cross section using the MCNPX. And we evaluated the inventories of ^{36}Cl and ^{41}Ca using the activation calculation code ORIGEN2.

Keywords: Bioshielding concrete, Radionuclide inventory, ^{36}Cl , ^{41}Ca

* Corresponding Author.

Mee Jang, Korea Atomic Energy Research Institute, E-mail: mjang@kaeri.re.kr, Tel: +82-42-868-8007

ORCID

Mee Jang <http://orcid.org/0000-0002-0115-3178>

Hyun Chul Kim <http://orcid.org/0000-0002-1396-6563>

Jong Myoung Lim <http://orcid.org/0000-0003-2434-699X>

Chang-Jong Kim <http://orcid.org/0000-0002-8399-9053>

원자력발전소 해체과정에서 방사화 재고량에 대한 평가는 방사선 환경에 정보를 제공함으로써 해체 계획을 수립하는데 중요한 정보를 제공한다. 원자로 운전 정지 후 원자로 및 관계시설에서의 축적된 방사능은 노심 구조물, 반사체 및 차폐체 등의 구조재가 중성자 조사에 의해 방사화된것이다. 방사화생성물 중 ³⁶Cl 과 ⁴¹Ca 은 반감기와 화학적 물리학적 특성에 의해 해체 처분 관점에서 매우 중요한 핵종이며 이에 따라 본 연구에서는 차폐 콘크리트 내 생성량을 평가하였다. MCNPX 코드를 사용하여 중성자속과 반응단면적을 계산하였으며 이 결과를 토대로 ORIGEN2 코드를 사용하여 방사화생성물의 양을 평가하였다.

중심단어: 차폐콘크리트, 방사화재고량, ³⁶Cl, ⁴¹Ca

1. 서론

원자력발전소 해체과정에서 방사화 재고량에 대한 정보는 방사선환경에 대한 정보를 제공함으로써 해체계획을 수립하는데 도움을 줄 수 있다. 원자로 운전 정지 후 원자로 및 관계시설에서의 축적된 방사능은 노심 구조물, 반사체 및 차폐체 등의 구조재가 중성자 조사에 의해 방사화됨으로써 생성된 방사능과 방사화 부식 생성물의 오염에 의한 방사능으로 구분할 수 있다. 이들 방사능은 노심 구조물 및 반사체, 차폐체 등의 물질 조성, 원자로 가동시간 및 출력 등에 의해 생성량이 다르다. 특히 차폐 콘크리트 같은 경우에는 노심과 많이 떨어져 있어서 중성자 스펙트럼이 노심영역과 다르며 이에 따라 방사화생성물을 평가하기가 쉽지 않다. 이 영역에서는 핵분열에 의한 중성자 생성은 없으며, 속중성자는 대부분 열중성자화 되어 반응이 일어나기 때문이다. 또한 콘크리트는 미국 기계학회(ASME)의 기술기준에서 그 구성성분 및 허용범위를 지정하고 있는 금속물질과 달리, 구성성분 함량의 제한치가 없으며 제작공정, 첨가물재 등의 요인에 따라 불순물의 종류나 함량이 달라질 수 있다. 따라서 콘크리트 내 불순물의 함량에 따라 다양한 핵종이 생성될 수 있으며 특히 ³⁶Cl 및 ⁴¹Ca 의 경우 Table 1과 같이 장반감기 핵종이며 화학적 생물학적 특성 때문에 해체시 고려해야 할 중요한 핵종들이나 이에 대한 연구는 거의 이루어진 바가 없다.

2. 중성자속 및 방사화생성물 평가

방사화생성물을 계산하기 위해서는 보통 2단계로 나누어 평가가 이루어지는데 1단계에서는 원자로의 구성물질,

Table 1. Characteristics of ³⁶Cl and ⁴¹Ca

Parent	Nuclear reaction	Daughter nuclide	Principal emissions	Half-life (years)
³⁵ Cl	n, γ	³⁶ Cl	β-(β+, EC)	301000
⁴⁰ Ca	n, γ	⁴¹ Ca	EC	103000

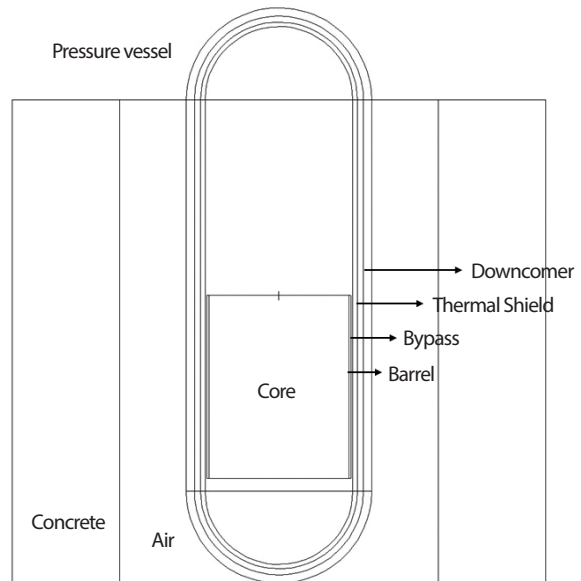


Fig. 1. Geometry of Kori Unit 1.

구성 및 운영 이력으로부터 각 영역에서의 중성자속과 유효 반응단면적을 계산한다. 2단계에서는 계산된 중성자속과 유효반응단면적으로부터 구조재 내의 방사화생성물 평가코드를 사용한다. [1] 1단계 중성자속과 유효반응단면적을 평가할

Table 2. Characteristics of each zone

Zone	Radius (cm)	Height (cm)	Medium
1	138.43	366	UO_2 , H_2O , Zr
2	142.88	366	Stainless steel (Type 304)
3	146.99	1075.7	H_2O
4	155.58	1093.48	Stainless steel (Type 304)
5	167.64	1117.6	H_2O
6	184.15	1150.62	Carbon steel
7	316.80	-	Air
8	530.00	966.47	Concrete

Table 3. Constituent material and ratio of fuel, SS304, carbon steel and concrete

Element	Fuel ($4.29 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$, %)	SS304 ($7.94 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$, %)	Carbon Steel ($7.85 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$, %)	Concrete ($2.3 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$, %)
Hydrogen	2.76	-	-	0.55
Boron	2.30×10^{-2}	-	-	-
Carbon	-	-	-	-
Oxygen	2.68	-	-	49.83
Sodium	-	-	-	1.70
Aluminum	-	-	-	4.55
Silicon	-	-	-	31.57
Sulfur	-	-	-	0.13
Potassium	-	-	-	1.91
Calcium	-	-	-	8.26
Chromium	-	18.4	0.17	-
Manganese	-	1.53	0.12	0.26
Iron	-	70.6	98.0	1.23
Nickel	-	10.0	0.66	-
Zirconium	4.52×10^{-1}	-	-	-
Uranium-235	1.15×10^{-2}	-	-	-
Uranium-238	6.64×10^{-1}	-	-	-

때 구조가 단순한 경우 ANISN과 같은 1차원 코드를 사용할 수 있으며 본 연구에서는 매우 복잡한 구조에 사용할 수 있는 몬테카를로 코드인 MCNPX 코드를 사용하여 평균 중성자속 및 이에 따른 유효반응단면적을 평가하였다. 2단계에서는 가장 많이 사용되는 방사화생성물 평가 코드인 ORIGEN2를 사용하였다. 고리 1호기의 정확한 중성자속을 평가하기 위해서는 운전이력 및 노심의 구조, 구성물 등에 대한 정확한 정보가 필요하다. 특히 운전이력은 중성자 총 조사량을 결정하는 것이며, 중성자속 준위 또는 출력 준위와 원자로 운전/정지 기간이 이를 결정한다. 그러나 실제 원자력발전소의 운전이력은 매우 복잡하며 이를 그대로 방사화 계산에 적용하기 어렵다. 단반감기 핵종의 경우에는 운전이력 적용 방법에 따라

방사능농도 값이 크게 차이를 보이지만 장반감기 핵종의 경우에는 운전이력 적용방법과 관계없이 비슷한 방사능농도 값을 보이므로[2] 본 연구에서는 고리 1호기 운전이력을 40년 연속 운영하였다고 단순화하여 중성자속을 평가하였다. Fig. 1과 같이 고리 1호기의 구조를 단순화하여 원자로심을 기준으로 Baffle, Barrel, Bypass, Thermal shield, Downcomer, 압력용기(RPV), 공기, 차폐콘크리트로 구성된 8개 구역으로 나누었으며[3] 그 구성 물질은 Table 2와 같다.

원자로심의 핵연료 집합체는 핵연료, 피복관 물질, 가연성 독봉, 냉각수의 부피에 따라 균질한 것으로 가정하였다. 스테인레스강, 탄소강, 콘크리트의 구성물질과 비율은 Table 3과 같다. [4]

위의 단순화된 구조와 구성물질에 대해 몬테카를로 코드인 MCNPX를 사용하여 중성자속을 계산하였다. MCNPX 코드에서 중성자선원을 사용하기 위해서는 KCODE 및 KSRC 카드를 사용하였으며 중성자속은 F4 tally를 이용하였다. F4 tally는 셀에 대한 평균 중성자속을 계산하는 track length tally로써 하나의 중성자에 의한 결과만을 제시하기 때문에 실제 실험값과 비교하기 위해서는 다음과 같은 conversion factor를 사용해야 한다.

$$\left(\frac{1 \text{ joules}}{s}\right) \left(\frac{1 \text{ MeV}}{1.602 \times 10^{-13} \text{ joule}}\right) \left(\frac{1 \text{ fission}}{200 \text{ MeV}}\right) = 3.12 \times 10^{10} \left(\frac{\text{fission}}{W} \cdot s\right) \quad (1)$$

Table 4. Neutron flux in each zone of Kori Unit 1

Zone	Neutron Flux (n·(cm ² ·s) ⁻¹)
1	7.79×10 ¹²
2	4.41×10 ¹¹
3	2.70×10 ¹⁰
4	3.59×10 ¹⁰
5	1.28×10 ¹⁰
6	7.40×10 ⁸
7	3.10×10 ⁸
8	1.34×10 ⁷

Table 5. Effective Cross Section of ³⁵Cl and ⁴⁰Ca

Radionuclide	Cross section (ORIGEN2, barn)	Reaction Rate (MCNPX, #·(cm ³ ·s) ⁻¹)	Cross section (MCNPX, barn)
³⁵ Cl	4.300×10 ¹	3.145×10 ²³	5.921×10 ⁻⁴
⁴⁰ Ca	4.000×10 ⁻¹	9.153×10 ²⁴	3.147×10 ⁻⁴

Table 6. Total activity of ³⁶Cl and ⁴¹Ca in concrete

Radionuclide	Weight fraction (%)	Radioactivity (Bq)
³⁶ Cl	0.001	2.342×10 ⁴
⁴¹ Ca	6.26	2.533×10 ⁶

따라서 587 MWe급의 고리 1호기인 경우 scaling factor는 다음과 같다.

$$(587 \text{ MW}_e) \left(\frac{1 \text{ neutron}}{\text{cm}^2 \cdot \text{source}} \right) \left(\frac{2.4 \text{ source}}{\text{fission}} \right) \left(\frac{10^6 \text{ W}}{1 \text{ MW}} \right) \left(\frac{3.12 \times 10^{10} \text{ fission}}{\text{W} \cdot \text{s}} \right) = 4.4 \times 10^{19} \text{ n}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s}) \quad (2)$$

Scaling factor를 사용하여 얻은 평균 중성자속 결과는 Table 4와 같다. 이 때 핵연료의 농축도나 구성물질이 달라질 경우 중성자속은 달라질 수 있으며 이는 향후 고리 1호기의 노심에 대한 정보를 추가할 경우 더욱 정확한 값을 얻을 수 있다.

ORIGEN2 코드는 원자로를 하나의 점으로 보고 문제를 해석하므로 단일 그룹 반응 단면적을 라이브러리로 사용한다. 코드에 내장되어 있는 반응 단면적 라이브러리는 노심 위주의 중성자 스펙트럼에 의해 계산된 것이므로 노심과 많이 떨어져 있는 콘크리트에 대해서는 반응단면적 값이 다를 수 있다. MCNPX를 이용하여 얻은 전체반응률 결과를 중성자속과 핵중수밀도로 나눈 값을 유효반응단면적(effective cross section)이라고 하였을 때, ^{35}Cl 과 ^{40}Ca 이 각각 0.1%, 6.26% 존재할 경우 반응 단면적은 Table 5와 같다.

3. 결과

다군반응단면적(multi-group cross section)이나 연속에너지반응단면적(continuous energy cross section)을 사용할 경우 좀 더 정확한 값을 얻을 수 있으나 ORIGEN2의 경우 단일반응단면적(one group cross section)을 사용하기 때문에 실제 결과와는 다를 수 있다. 또한 발전소 운영 이력도 40년 계속 운영으로 단순화하였기 때문에 실제 핵종재고량과는 차이가 있을 수 있으나 ^{35}Cl 와 ^{40}Ca 이 있을 경우 방사화 생성물이 어느 정도 생성될 가능성이 있는지는 예측할 수 있다. 앞서 계산된 반응단면적 결과를 이용하여 ORIGEN2 코드의 라이브러리를 수정하고, 40년 동안 같은 중성자속으로 조사하였을 경우 콘크리트 내 ^{36}Cl 과 ^{41}Ca 의 전체 방사능량은 Table 6과 같다.

콘크리트 내 불순물의 종류나 함량은 매우 다양할 수

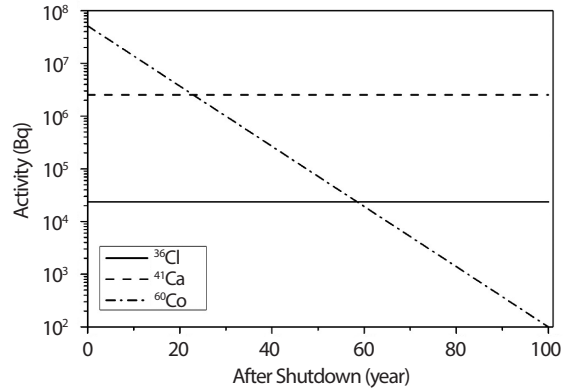


Fig. 2. Activity of ^{36}Cl , ^{41}Ca and ^{60}Co after shutdown.

있다. 특히 ^{40}Ca 의 경우에는 콘크리트 내에 일정비율 존재하고 있으며 ^{35}Cl 의 경우에도 소량이라도 콘크리트 내에 불순물로서 함유될 수 있다. 따라서 원자로의 중성자속에 의해 ^{36}Cl 과 ^{41}Ca 이 생성될 수 있으며 긴 반감기로 인해 처분 관점 및 환경 감시의 측면에서 중요한 핵종이 될 수 있다. Fig. 2는 ^{60}Co 가 ^{35}Cl 과 같은 양이 존재할 때, 폐로 후 방사능의 양의 변화를 살펴본 것이며 그림에서 보듯이 ^{60}Co 은 짧은 반감기로 인해 방사능이 감소하며 폐로 후 60년 이후에는 ^{36}Cl 과 ^{41}Ca 의 방사능이 높아지게 된다.

4. 결론

원자력발전소 해체과정에서 방사화 재고량에 대한 평가는 방사선 환경에 대한 정보를 제공함으로써 해체계획을 수립하는데 중요한 정보를 제공한다. 특히 차폐체로 사용하는 콘크리트의 경우 구성성분 함량의 제한치가 없으며 제작공정, 첨가 골재 등의 요인에 따라 불순물의 종류나 함량이 달라질 수 있다. 따라서 ^{36}Cl 과 ^{41}Ca 의 생성량도 콘크리트 내 불순물의 함량에 따라 달라질 수 있으며 긴 반감기로 인해 처분 관점 및 환경 감시의 측면에서 중요한 핵종이 될 수 있다.

REFERENCES

[1] International Atomic Energy Agency, Radiological Characterization of Shut Down Nuclear Reactors for

Decommissioning Purposes, IAEA Technical Reports Series No.389 (1998).

- [2] K.H. Noh and C.J. Hah, “Verification of MCNP/ORIGEN-2 Model and Preliminary Radiation Source Term Evaluation of Wolsung Unit 1”, J. Nucl. Fuel Cycle Waste Technol., 13(1), 21-34 (2015).
- [3] K.J. Kee, H.S. Kim, S.W. Shin, M.J. Song, and Y.K. Lee, “Preliminary Estimation of Activation Products Inventory in Reactor Components for Kori Unit 1 Decommissioning”, J. Radiat. Prot. Res., 28(2), 109-116 (2003).
- [4] G.Y. Cha, S.Y. Kim, J.M. Lee, and Y.S. Kim, “The Effects of Impurity Composition and Concentration in Reactor Structure Material on Neutron Activation Inventory in Pressurized Water Reactor”, J. Nucl. Fuel Cycle Waste Technol., 14(2), 91-100 (2016).