

The Effects of Impurity Composition and Concentration in Reactor Structure Material on Neutron Activation Inventory in Pressurized Water Reactor

경수로 구조재 내 불순물 조성 및 함량이 중성자 방사화 핵종 재고량에 미치는 영향 분석

Gil Yong Cha¹, Soon Young Kim^{1*}, Jae Min Lee², and Yong Soo Kim³

¹RADCORE, 65 Technojungangro, Yuseong-gu, Daejeon, Republic of Korea

²TUV Rheinland Korea, E&C 197-28 Guro-dong, Guro-gu, Seoul, Republic of Korea

³Hanyang Univ., 222 Wangsimniro, Seongdong-gu, Seoul, Republic of Korea

차길용¹, 김순영^{1*}, 이재민², 김용수³

¹㈜래드코어, 대전광역시 유성구 테크노중앙로 65

²TUV 라인란드코리아, 서울특별시 구로구 구로동 197-28 E&C

³한양대학교, 서울특별시 성동구 왕십리로 222

(Received May 22, 2015 / Revised September 4, 2015 / Approved January 8, 2016)

The neutron activation inventories in reactor vessel and its internals, and bio-shield of a PWR nuclear power plant were calculated to evaluate the effect of impurity elements contained in the structural materials on the activation inventory. Carbon steel is, in this work, used as the reactor vessel material, stainless steel as the reactor vessel internals, and ordinary concrete as the bio-shield. For stainless steel and carbon steel, one kind of impurity concentration was employed, and for ordinary concrete five kinds were employed in this study using MCNP5 and FISPACT for the calculation of neutron flux and activation inventory, respectively. As the results, specific activities for the cases with impurity elements were calculated to be more than twice than those for the cases without impurity elements in stainless and carbon steel. Especially, the specific activity for the concrete material with impurity elements was calculated to be 30 times higher than that without impurity. Neutron induced reactions and activation inventories in each material were also investigated, and it is noted that major radioactive nuclide in steel material is Co-60 from cobalt impurity element, and, in concrete material, Co-60 and Eu-152 from cobalt and europium impurity elements, respectively. The results of this study can be used for nuclear decommissioning plan during activation inventory assessment and regulation, and it is expected to be used as a reference in the design phase of nuclear power plant, considering the decommissioning of nuclear power plants or nuclear facilities.

Keywords: PWR, Activation inventory, Impurity, MCNP, FISPACT, Decommissioning, Radioactive waste

*Corresponding Author.

Soon Young Kim, RADCORE, E-mail: sykim@radcore.co.kr, Tel: +82-42-934-4690

ORCID

Gil Yong Cha <http://orcid.org/0000-0002-2595-3161>

Soon Young Kim

<http://orcid.org/0000-0003-3502-112X>

Jae Min Lee <http://orcid.org/0000-0001-8342-6338>

Yong Soo Kim

<http://orcid.org/0000-0002-9922-0008>

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited

경수로 원전을 대상으로 원전 내 방사화 대상 물질인 스테인리스강, 탄소강 및 콘크리트의 불순물 정보 적용여부에 따른 방사화 핵종 재고량을 계산하였다. 본 연구에서 탄소강은 압력용기 물질에 사용되었고, 스테인리스강은 압력용기 내부 물질에 사용되었으며, 일반 콘크리트가 생체 차폐체에 사용되었다. 금속 물질에 대해서는 참고자료 1개의 불순물 함량 정보를 적용하였고, 콘크리트 물질에서는 참고자료 5개의 불순물 함량 정보를 적용하여 평가를 수행하였다. 방사화 핵종 재고량 전산해석 시 중성자속 계산에는 MCNP 전산코드를, 방사화 계산에는 FISPACT 전산코드를 각각 사용하였다. 계산 결과, 금속 물질에서 불순물을 포함한 경우가 그렇지 않은 경우보다 비방사능이 2배 이상 높았으며, 특히 콘크리트에서는 불순물을 포함한 경우가 그렇지 않은 경우보다 최대 30배 이상 비방사능이 높게 계산되었다. 방사화 핵종의 생성반응과 재고량을 분석한 결과, 금속 구조물에서는 불순물 중 Co 원소와 중성자에 의해 생성되는 방사화 핵종인 Co-60이, 콘크리트에서는 불순물 중 Co, Eu 원소와 중성자에 의해 생성되는 방사화 핵종인 Co-60, Eu-152, Eu-154 이 방사성폐기물 준위 결정에 큰 영향을 미치고 있음을 확인하였다. 본 연구의 결과는 원전 해체 계획 수립 시 방사화 핵종 재고량 평가 및 규제에 활용될 수 있을 뿐 아니라, 해체를 고려한 원전 또는 원자력시설의 설계 단계에서도 참고자료로 활용 될 것으로 판단된다.

중심단어: 경수로, 방사화 재고량, 불순물, MCNP, FISPACT, 원전 해체, 방사성폐기물

1. 서론

2014년 기준 전 세계적으로 149기의 상용 원전이 운전중 지 상태이며, 이 가운데 18기의 원전만이 해체를 완료한 상태로 해체 경험은 소수의 원자력 선진국만이 보유하고 있다. 한편, 국내에서는 가장 오래된 상용 원전인 고리 1호기의 계속 운전이 2017년까지 예정되어 있으며, 운영기관인 한국수력원자력에서는 2015년 6월에 계속 운전 이후 폐로를 결정하였으므로, 본격적인 원전 해체 시장을 대비하기 위해 원전 해체 기술 개발을 위한 연구가 활발히 진행되고 있다.

원전 해체는 운전종료, 계획수립, 방사능 오염물질 제거, 절단철거, 폐기물 처리, 환경복원의 단계로 이루어진다. 원전 해체 계획수립 단계에서는 해체 시점의 원전 내 방사성 핵종 재고량을 평가하고 그에 따른 폐기물량을 예측하는 작업이 요구되며, 이를 위해서는 노심 주변 구조물 방사화에 의한 핵종 재고량 평가가 수반되어야 한다. 방사화는 원전 내에서 방사성 핵종이 생성되는 주요 요인 중 하나로, 압력용기 및 주변 구조물 내 원자핵이 노심에서 생성된 중성자와 반응하여 방사성 핵종으로 변하는 현상을 말한다.

경수로 원전 내에서 방사화가 이루어지는 영역은 압력용기 내부, 압력용기 및 생체 콘크리트 영역이며, 각 구조물을 구성하는 물질들은 주요 구성 핵종 이외에 불순물 핵종들을 포함하고 있다. 이러한 불순물 핵종은 주요 구성원소에 비해

그 함량이 미미하나 중성자 흡수단면적이 큰 일부 불순물 핵종은 방사화 핵종 재고량에 많은 영향을 미칠 수 있다. 원자력선진국이며 해체 기술을 보유하고 있는 미국에서는 이와 관련된 연구가 이미 1980년대부터 수행되었으며, 미국 원자력규제위원회에서 발간한 NUREG/CR-3474[1]에서는 원자로 및 주변 구성 물질인 스테인리스강, 탄소강, 콘크리트에 포함된 주요 구성 원소 및 불순물 핵종 함량을 평가한 바 있다.

국내에서는 노심 주변 구조물에 함유된 불순물이 방사화 핵종 생성에 미치는 영향에 대한 연구가 이루어진 경험이 없으므로, 본 연구에서는 국내 대표 원전을 대상으로 각 물질별 불순물 함량을 적용한 경우와 불순물을 적용하지 않은 경우, 각각에 대해 방사화 핵종 재고량을 계산하였으며, 그 결과가 방사성폐기물 준위에 미치는 영향을 정량적으로 평가하였다.

2. 연구 방법

2.1 방사화 핵종 재고량 평가 방법론

원전 해체 계획 단계에서는 원자로 및 주변 구조물에서 시료를 채취하여 실험적으로 방사화 핵종 재고량을 평가하는데 한계가 있으며, 일반적으로 전산코드를 사용한

시뮬레이션에 의해 방사화 핵종 재고량 평가가 이루어진다. 시뮬레이션을 통한 방사화 핵종 재고량 평가를 위해서는 중성자속 계산 전산코드와 방사화 계산 전산코드가 필요하다. 중성자속 계산코드는 노심 내 핵연료에서 발생한 중성자의 거동을 시뮬레이션하여 사용자가 원하는 위치에서의 중성자속 및 에너지 스펙트럼을 계산하며, 방사화 계산코드는 중성자속 계산코드에서 생산된 중성자 정보를 입력으로 방사화 핵종 재고량을 계산한다. 본 연구에서는 중성자속 계산에 MCNP 전산코드가, 방사화 계산에 FISPACT 전산코드가 사용되었다.

미국 로스알라모스 국립 연구소(Los Alamos National Laboratory)에서 개발된 MCNP(Monte Carlo N-Particle Transport Code) 전산코드는 중성자, 광자, 전자를 포함한 방사선 수송해석 분야에서 가장 널리 사용되는 코드로서 다양한 물질 구조를 상세하게 모델링 할 수 있어 복잡한 구조에서도 정확도 높은 차폐 계산이 가능하다. FISPACT 코드는 영국 원자력공사(UKAEA, United Kingdom Atomic Energy Authority)에 의해 개발되었다. 핵분열로에 대한 방사화 계산 코드 FISPIN을 기반으로 1980년에 개발된 FISPACT는 초기에는 핵융합로를 대상으로 한 방사화 분석에 사용하기 위해서 개발되었으나, 현재는 FISPIN의 기능을 흡수했을 뿐만 아니라 부가적 기능을 다수 탑재하여 핵융합로에 국한되지 않고 범용적인 방사화 계산에 사용되고 있다. FISPACT 코드는 WIMS(69 그룹), GAM-II(100 그룹), XMAS(172 그룹), VITAMIN-J(211 그룹), TRIPOLI(315 그룹) 총 5개의 20 MeV 이하 에너지 그룹 구조에 대한 핵단면적을 보유하고 있다. FISPACT 코드는 방사화 계산에 특화된 코드로서, 816개 핵종이 중성자와 반응하여 발생하는 66256 가지의 반응에 대해 방사화 계산이 가능하며 최대 200 MeV의 중성자 에너지 영역에 대한 핵단면적 라이브러리를 제공하고 있다. FISPACT 코드는 MCNP 코드에서 생산한 중성자 스펙트럼을 입력으로 받아들이며 별도의 인터페이스 프로그램 없이도 방사화 계산을 수행할 수 있어 MCNP와의 호환성이 높을 뿐 아니라, 에너지 그룹 구조를 결정함에 있어서도 그 선택의 폭이 넓다. Fig. 1은 MCNP/FISPACT코드체계를 사용한 방사화 핵종 재고량 계산의 흐름을 나타낸 그림이다.

본 연구에서는 MCNP5(build 1.60)전산코드[2]를 사용하였으며, F4 tally를 통해 관심영역에서의 평균 중성자속을 도출하였다. 방사화 계산에는 EASY-2007[3] 코드 패키지에

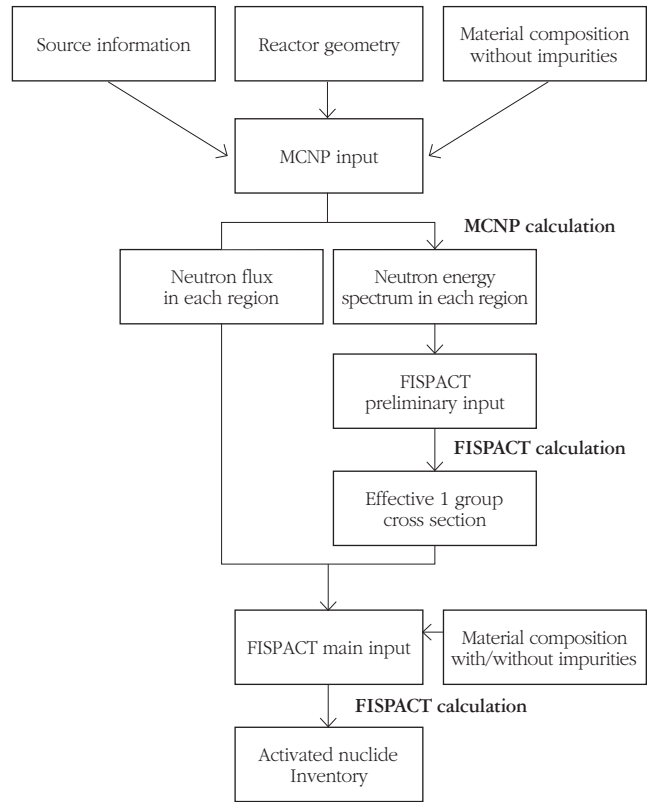


Fig. 1. MCNP/FISPACT computational code system.

포함된 FISPACT-2007전산코드를 사용하였다. MCNP5전산코드의 핵단면적 라이브러리는 ENDF-B/VII을 사용하였으며, FISPACT전산코드에서는 MCNP5 전산코드로 계산된 69 그룹 에너지 스펙트럼을 별도의 변환과정 없이 입력하여 방사화 핵종 재고량을 평가하였다.

2.2 대상원전 특성 및 방사화 핵종 재고량 평가 영역

본 연구에서는 대상 원전이 30 년 및 50 년 동안 가동되었다고 가정하고, 이로부터 10 년 후 원전을 해체하는 가상의 계획을 기준으로 방사화 핵종 재고량을 평가하였다. 이를 위해 압력용기 내부구조물, 압력용기 및 생체 콘크리트를 Fig. 2와 같이 모델링하였으며 스테리인리스강을 대표하는 영역으로 배럴, 탄소강을 대표하는 영역으로 압력용기의 유효 핵연료 영역, 콘크리트를 대표하는 영역으로 깊이 1 ~ 1.3m의 생체 콘크리트를 선정하였다.

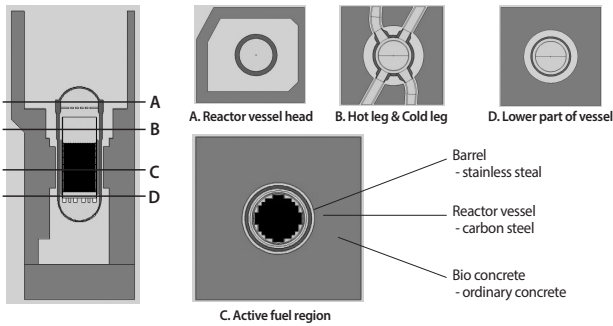


Fig. 2. MCNP modeling for calculation of neutron flux and energy spectrum.

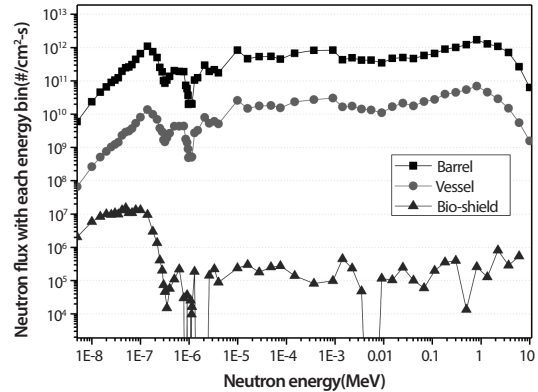


Fig. 3. 69-group neutron energy spectra at the reactor components.

Table 1. Classification standard of radioactivity waste in Korea

Waste Level	Waste Level
High Level Waste (HLW)	$T_{1/2} > 20 \text{ y}$ or Specific activity for alpha $> 4000 \text{ Bq/g}$ or Heat generation $> 2 \text{ kW/m}^3$
Intermediate Level Waste (ILW)	$\sum_{i=1}^n \frac{A_i}{LD_i} > 1$
Low Level Waste (LLW)	$\sum_{i=1}^n \frac{A_i}{CW_i} > 100$ and $\sum_{i=1}^n \frac{A_i}{LD_i} \leq 1$
Very Low Level Waste (VLLW)	$1 < \sum_{i=1}^n \frac{A_i}{CW_i} \leq 100$
Clearance Waste (CW)	$\sum_{i=1}^n \frac{A_i}{CW_i} \leq 1$

A_i : Specific activity of isotope i (Bq/g)
 LD_i : The radioactivity limit of LLW disposal(Bq/g)
 CW_i : The radioactivity limit of clearance waste (Bq/g)

Table 2. Neutron flux at the reactor components

Component	Neutron flux(#/cm²-s)
Barrel	2.60E+13
Vessel	4.74E+11
Bio-shield	1.03E+07

2.3 방사성폐기물 분류

IAEA에서는 환경 및 인간을 방사선으로부터 보호하기 위한 방사성폐기물 준위에 대한 국제 표준을 2009년 개정하였으며, 이를 기반으로 제정한 국내 규정인 원자력안전위원회 고시 제 2014-003호[4]에서는 방사성폐기물을 분류하는

기준을 제공하고 있다. 해당 문헌 별표 1과 별표 2에는 국내 규정에 근거하여 저준위 방사성폐기물로 분류할 수 있는 방사능 농도 제한치와 자체처분 제한치에 대한 허용농도를 제공하고 있다. 한편, 방사성폐기물 내 복수의 방사성 핵종이 포함된 경우, 각각의 항목에 대해 Table 1과 같이 평가하여 폐기물 준위를 결정할 수 있다.

3. 불순물 정보 적용에 따른 방사화 영향 평가

3.1 중성자속 및 에너지 스펙트럼

본 연구에서FISPACT방사화 계산코드의 입력으로 사용되는 중성자속 및 에너지 스펙트럼은 MCNP5전산코드로 계산하였다. 각 영역에 대해 계산된 중성자속은 Table 2에, 에너지 스펙트럼은 Fig. 3에 각각 나타내었다. 이 때, barrel과 vessel구조물에 대해서는 유효핵연료영역 높이방향 중심부에서 계산된 중성자속 및 에너지 스펙트럼을 적용하였으며, 생체 콘크리트에 대해서는 vessel의 계산영역과 마주하고 있는 콘크리트 표면으로부터 100 ~ 130 cm 지점에 대해 중성자 수송해석을 하여 중성자속 및 에너지 스펙트럼을 결정하였고, 각각의 중성자 정보를 적용하여 방사화 계산을 수행하였다.

3.2 스테인리스강 불순물에 따른 방사화 영향 분석

원전 내 방사화 영역 중 압력용기 내부구조물은 SS-304

Table 3. Barrel composition (SS-304)

Element	weight fraction	Element	weight fraction	Element	weight fraction
Cr	18.40 %	Cu	3080.00 ppm	Ba	500.00 ppm
Mn	1.53 %	Zn	457.00 ppm	La	0.20 ppm
Fe	70.60 %	Ga	129.00 ppm	Ce	371.00 ppm
Ni	10.00 %	As	194.00 ppm	Sm	0.10 ppm
Li	0.13 ppm	Se	35.00 ppm	Eu	0.02 ppm
N	452.00 ppm	Br	2.00 ppm	Tb	0.47 ppm
Na	9.70 ppm	Rb	10.00 ppm	Dy	1.00 ppm
Al	100.00 ppm	Sr	0.20 ppm	Ho	1.00 ppm
Cl	70.00 ppm	Y	5.00 ppm	Yb	2.00 ppm
K	3.00 ppm	Zr	10.00 ppm	Lu	0.80 ppm
Ca	19.00 ppm	Nb	89.00 ppm	Hf	2.00 ppm
Sc	0.03 ppm	Mo	2600.00 ppm	W	186.00 ppm
Ti	600.00 ppm	Ag	2.00 ppm	Pb	67.00 ppm
V	456.00 ppm	Sb	12.30 ppm	Th	1.00 ppm
Co	2214.00 ppm	Cs	0.30 ppm	U	2.00 ppm

스테인리스강으로 이루어져 있으며 NUREG/CR-3474에서 제공하고 있는 물질정보인 Table 3을 대상으로 방사화 핵종 재고량을 평가하였다. 원소 구성비를 % 단위로 나타낸 원소는 주요 구성원소, ppm 단위로 나타낸 원소는 불순물에 해당하는 원소이다.

Table 3에서 불순물 원소를 적용한 경우와 그렇지 않은 경우, Table 2 및 Fig. 3의 중성자 정보를 입력하여 방사화 핵종 재고량을 평가하였으며 그 결과는 Fig. 4 및 Fig. 5와 같다.

30년 운전 10년 냉각 시 평가 결과, 불순물 함량을 고려한 경우가 그렇지 않은 경우에 비해, 총 비방사능을 기준으로 2.77배 높은 비방사능이 계산되었다. 총 비방사능 증가에 가장 크게 기여한 핵종은 Co-60으로, 불순물을 적용하지 않은 계산에서는 전체 비방사능의 1%, 불순물을 적용한 계산에서는 총 비방사능의 70%를 차지한다. Co 원소는 자연계에 100% Co-59 상태로 존재하며 중성자와의 핵단면적이 18.7 barn인 Co-59가 $^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$ 반응에 의해 Co-60 핵종이 생성되므로, Co 원소의 불순물 함량이 스테인리스강의 방사화 핵종 재고량 평가 시 주요 불순물로 고려되고 있다.

한편, Fig. 4에서와 같이 불순물을 적용하지 않은 계산에서도 불순물을 적용했을 때의 1/100 수준으로 Co-60이 발생하고 있다. 이는 금속 재질에 가장 많이 포함되어있는 Fe-58과 같은 철의 동위원소가 방사화 및 붕괴 과정을 거치면서 Co-59를 생산하기 때문이다.

또한, NUREG/CR-3474에서 제공하고 있는 원전 별 8개 SS-304 샘플의 화학적 분석 결과에서는 Co 원소의 불순물 함량이 최소 229 ~ 2570 ppm 으로 나타나 최대 11.2배의 차이를 보였으므로, 가능한 정확한 Co 원소의 불순물 함량을 사용해야 방사화 핵종 재고량 계산의 불확실성을 줄일 수 있을 것으로 판단된다.

방사성폐기물을 분류함에 있어 비방사능과 함께 핵종별 자체치분 허용농도 또는 저준위방사성폐기물 농도 제한치가 주요 인자로 작용하므로 Table 1의 기준에 따라 방사성폐기물 분류 작업을 수행하였으며 이를 Table 4에 나타내었다.

계산결과, 불순물 정보 적용 유무와 상관없이 복수 방사성 핵종의 저준위 방사성폐기물 방사능 농도($\sum_{i=1}^n \frac{A_i}{LD_i}$)가 1을 초과하므로, 중준위 폐기물로 구분되고 있으며, 불순물을

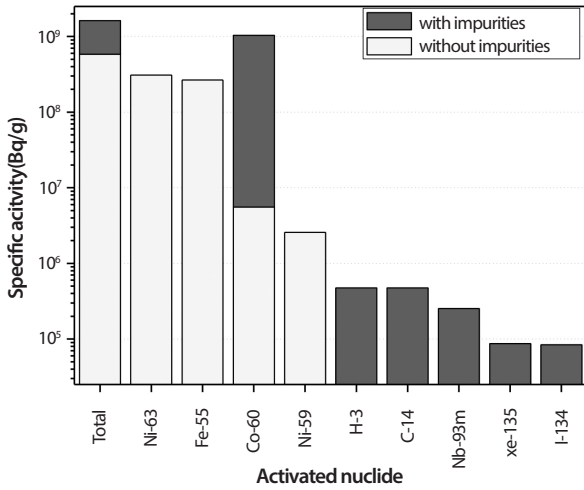


Fig. 4. Specific activity with and without impurities in barrel after 30 y operating and 10 y cooling.

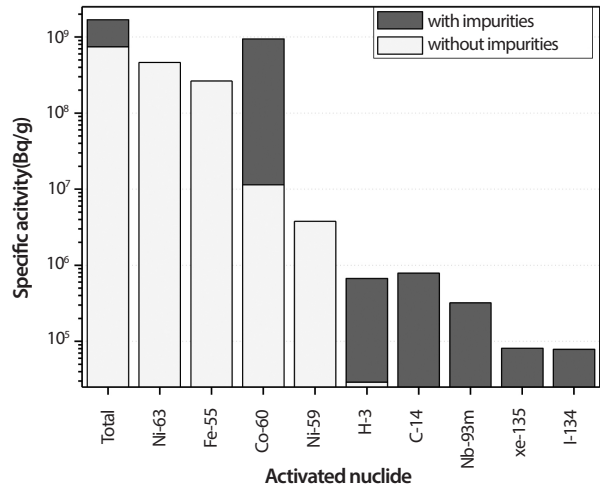


Fig. 5. Specific activity with and without impurities in barrel after 50 y operating and 10 y cooling.

포함했을 경우 그렇지 않은 경우에 비해 1.45배 높은 값을 보이고 있다.

한편, 50년 운전 10년 냉각 시 평가결과는 30년 운전 10년 냉각 시 평가결과보다 총 방사능이 약 3% 증가하였다. 장반감기 핵종인 Ni-63, Ni-59, C-14 과 같은 경우 그 함량이 최대 30% 증가하였으며, 반감기가 수년 이내의 핵종의 경우 함량 변화가 거의 없는 것으로 계산되었다.

3.3 탄소강 불순물에 따른 방사화 영향 분석

원전 내 압력용기는 탄소강으로 이루어져 있으며 NUREG/CR-3474에서 제공하고 있는 물질정보인 Table 5를 대상으로 방사화 핵종 재고량을 평가하였다. 원소 구성비를 % 단위로 나타낸 원소는 주요 구성원소, ppm 단위로 나타낸 원소는 불순물에 해당하는 원소이다.

Table 3과 Table 5에서 제공되고 있는 정보는 NUREG-3474에서 제공된 탄소강과 스테인리스강의 핵종 함량 평균 값이다. 두 표를 비교하면 핵종은 대부분 일치하며, 각 핵종 별 함량은 최대 수배 차이를 보이고 있다.

Table 5에서 불순물 원소를 적용한 경우와 그렇지 않은 경우, Table 2 및 Fig. 3의 중성자 정보를 입력하여 방사화 핵종 재고량을 평가하였으며 그 결과는 Fig. 6 과 7에 나타내었다.

30년 운전 10년 냉각 시 평가 결과, 불순물 함량을 고려한 경우가 그렇지 않은 경우에 비해, 총 비방사능을 기준으로

3.14배 높은 비방사능이 계산되었다. 총 비방사능 증가에 가장 크게 기여한 핵종은 스테인리스강과 동일한 Co-60이며, 주요 방사화 핵종의 증가 경향도 스테인리스강과 유사하게 평가되었다.

또한, 방사성폐기물 분류를 위해 Table 1의 기준에 따라 방사성폐기물 분류 작업을 수행하였으며 이를 Table 6에 나타내었다.

계산결과, 불순물 정보 적용 유무와 상관없이 복수 방사성 핵종의 저준위방사성폐기물 방사능 농도 제한 ($\sum_{i=1}^n \frac{A_i}{LD_i}$)가 1 미만이며, 자체처분 허용 방사능 농도 제한치 ($\sum_{i=1}^n \frac{A_i}{CW_i}$)가 100 이상이므로, 저준위 폐기물로 구분되고 있다. 저준위 방사능폐기물 농도 값은 불순물을 포함했을 경우 그렇지 않은 경우에 비해 11.8배 높은 값으로 계산되었으며, 자체 처분 허용 방사능 농도 값은 3630배 높은 값으로 계산되었다.

한편, 50년 운전 10년 냉각 시 평가결과는 30년 운전 10년 냉각 시 평가결과보다 총 방사능이 약 3% 증가하였다. Barrel 에서와 동일하게 장반감기 핵종인 Ni-63, Ni-59, C-14 과 같은 경우 그 함량이 최대 30% 증가하였으며, 반감기가 수년 이내의 핵종의 경우 함량 변화가 거의 없는 것으로 계산되었다.

3.4 생체 콘크리트 불순물에 따른 방사화 영향 분석

콘크리트는, 미국 기계학회(ASME)의 기술기준에서 그 구성성분 및 허용범위를 지정하고 있는 금속물질과 달리, 구성

Table 4. Radioactive waste level of barrel with and without impurities

Nuclide	Without impurities					With impurities				
	A_i	LD_i	CW_i	A_i/LD_i	A_i / CW_i	A_i	LD_i	CW_i	A_i/LD_i	A_i / CW_i
Ni-63	3.10E+08	1.11E+07	100	2.79E+01	3.10E+06	3.10E+08	1.11E+07	100	2.79E+01	3.10E+06
Fe-55	2.66E+08	-	1000	-	2.66E+05	2.66E+08	-	1000	-	2.66E+05
Co-60	5.56E+06	3.70E+07	0.1	1.50E-01	5.56E+07	1.03E+09	3.70E+07	0.1	2.78E+01	1.03E+10
Ni-59	2.58E+06	7.40E+04	100	3.49E+01	2.58E+04	2.58E+06	7.40E+04	100	3.49E+01	2.58E+04
H-3	1.19E-01	1.11E+06	100	1.07E-07	1.19E-03	4.73E5	1.11E+06	100	4.26E-01	4.73E+03
C-14	0	-	1	-	0.00E+00	4.73E5	-	1	-	4.73E+05
Nb-93m	0	-	10	-	0.00E+00	2.52E5	-	10	-	2.52E+04
Xe-135	0	-	-	-	-	8.69E4	-	-	-	-
I-134	0	-	10	-	0.00E+00	8.38E4	-	10	-	8.38E+03
Total				6.29E+01	5.90E+07				9.11E+01	1.03E+10

Table 5. Composition of the reactor vessel

Element	weight fraction	Element	weight fraction	Element	weight fraction
Cr	0.17 %	Zn	100.00 ppm	Ce	1.00 ppm
Mn	1.02 %	Ga	80.00 ppm	Sm	0.02 ppm
Fe	98.00 %	As	532.00 ppm	Eu	0.03 ppm
Ni	0.66 %	Se	0.70 ppm	Tb	0.45 ppm
Li	0.30 ppm	Br	0.85 ppm	Dy	- ppm
N	84.00 ppm	Rb	48.00 ppm	Ho	0.80 ppm
Na	23.00 ppm	Sr	0.15 ppm	Yb	1.00 ppm
Al	330.00 ppm	Y	20.00 ppm	Lu	0.20 ppm
Cl	40.00 ppm	Zr	10.00 ppm	Hf	0.21 ppm
K	12.00 ppm	Nb	18.80 ppm	Ta	0.13 ppm
Ca	14.00 ppm	Mo	0.56 %	W	5.50 ppm
Sc	0.26 ppm	Ag	2.00 ppm	Pb	820.00 ppm
Ti	2.00 ppm	Sb	11.00 ppm	Th	0.18 ppm
V	80.00 ppm	Cs	0.20 ppm	U	0.20 ppm
Co	122.00 ppm	Ba	273.00 ppm		
Cu	1274.00 ppm	La	0.10 ppm		

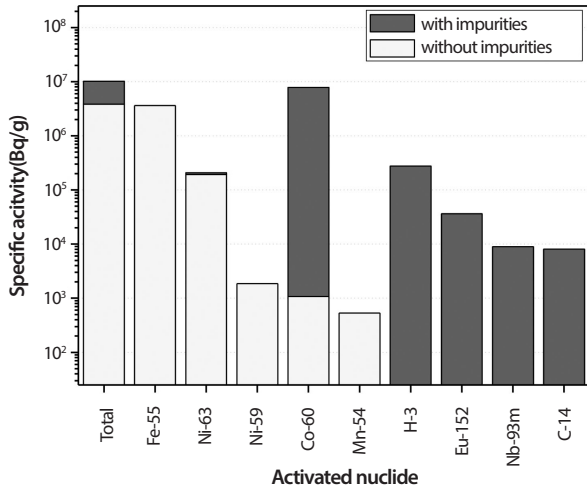


Fig. 6. Specific activity with and without impurities in barrel after 30 y operating and 10 y cooling.

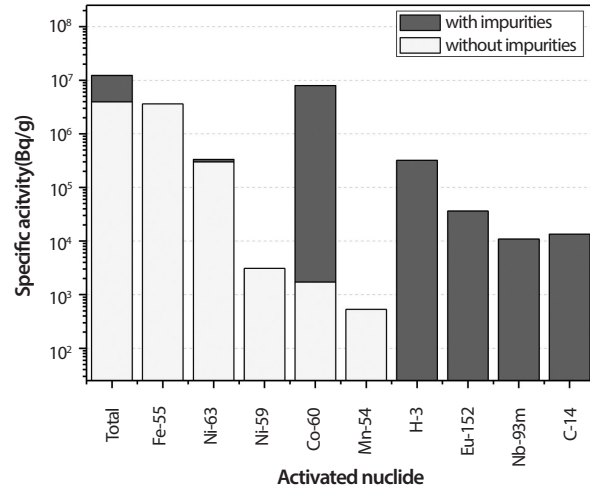


Fig. 7. Specific activity with and without impurities in barrel after 50 y operating and 10 y cooling.

Table 6. Radioactive waste level of reactor vessel with and without impurities

Nuclide	Without impurities					With impurities				
	A _i	LD _i	CW _i	A _i /LD _i	A _i / CW _i	A _i	LD _i	CW _i	A _i /LD _i	A _i / CW _i
Fe-55	3.63E+06	-	1000	-	3.63E+03	3.63E+06	-	1000	-	3.63E+03
Ni-63	1.93E+05	1.11E+07	100	1.74E-02	1.93E+03	2.07E+05	1.11E+07	100	1.86E-02	2.07E+03
Ni-59	1.86E+03	7.40E+04	100	2.51E-02	1.86E+01	1.86E+03	7.40E+04	100	2.51E-02	1.86E+01
Co-60	1.07E+03	3.70E+07	0.1	2.89E-05	1.07E+04	7.80E+06	3.70E+07	0.1	2.11E-01	7.80E+07
Mn-54	5.35E+02	-	0.1	-	5.35E+03	5.35E+02	-	0.1	-	5.35E+03
H-3	1.89E-07	1.11E+06	100	1.70E-13	1.89E-09	2.76E+05	1.11E+06	100	2.49E-01	2.76E+03
Eu-152	0	-	0.1	-	0.00E+00	3.62E+04	-	0.1	-	3.62E+05
Nb-93m	0	-	10	-	0.00E+00	8.97E+03	-	10	-	8.97E+02
C-14	0	-	1	-	0.00E+00	8.08E+03	-	1	-	8.08E+03
Total				4.25E-02	2.16E+04				5.03E-01	7.84E+07

성분 함량의 제한치가 없으며 제작공정, 첨가 골재 등의 요인에 따라 불순물의 함량이 크게 달라질 수 있다. 국내외에서는 방사화 핵종 재고량 평가 시 각각의 콘크리트 불순물 정보를 적용하여 평가한 사례가 다수 있으며, 본 연구에서는 Table 7과 같은 콘크리트 기본 조성을 사용하였으며, 콘크리트 불순물 중 방사화에 주로 기여하는 7개 핵종에 대해 Table 8과 같이 NUREG/CR-3474를 포함한 5개 참고자료[5][6][7][8]에서 적용한 불순물 정보를 사용하여 30년 운전 10년

냉각 시 방사화 핵종 재고량을 평가하였다.

Table 9는 불순물이 포함되지 않은 경우 및 Table 8에서 제시한 5개 참고자료의 불순물 정보를 적용한 경우에 대한 방사화 평가 결과이다. 생체 콘크리트 영역은 배럴 및 압력용기 영역에 비해 상대적으로 중성자속이 낮아 저준위 방사성폐기물의 방사능 농도 제한치 1보다 현저히 작으므로, 자체처분 허용 농도 값($\sum_{i=1}^n \frac{A_i}{EW_i}$)에 대한 평가결과만 나타내었다. 불순물을 적용하지 않았을 경우에는 C-14이 방사성

Table 7. Composition of the bio concrete without impurity

Element	weight fraction
H	0.55 %
O	49.83 %
Si	31.57 %
Ca	8.26 %
Na	1.70 %
Mg	0.26 %
Al	4.55 %
S	0.13 %
K	1.91 %
Fe	1.23 %

폐기물 분류 시 기여도가 가장 큰 핵종으로 평가되었으나, 불순물 정보를 적용한 경우에는 Eu-152, Eu-154, Co-60등이 방사성폐기물 분류 시 주로 기여하는 것으로 평가되었다. 생체 콘크리트 내에 불순물로 존재하며 불순물로 존재하며 수천~수만 barn의 매우 큰 핵단면적을 갖는 Eu-151과 Eu-153의 중성자 포획으로 인해 생성되는 Eu-152, Eu-154는 생체 콘크리트의 방사화 핵종 재고량 평가 시 폐기물 분류에 가장 큰 영향을 주는 핵종이다.

평가 결과, 불순물을 적용하지 않는 계산은 극저준위로 폐기물 준위가 평가되었으며, 불순물을 적용한 모든 계산에서 저준위 폐기물로 평가되었다. 특히, 참고자료[8]를 적용한 계산 시 가장 방사화 핵종 재고량이 크게 계산되었으며, 이 때 불순물이 미포함된 계산에 비해 비방사능은 30배, $\sum_{i=1}^n \frac{A_i}{CW_i}$ 값은 50,000배 큰 결과를 보이고 있다.

Table 8. Concrete impurity concentration

Impurity nuclides	Reaction	Concentration of impurity[ppm]				
		Ref.[5]	Ref.[6]	Ref.[7]	Ref.[8]	Ref.[1]
Li-6	(n, α)H-3	-	-	-	20.00	20.00
Co-59	(n, γ)Co-60	3.92	10.00	2.20	10.00	9.80
Ni-58	(n, p)Co-58	-	-	-	30.00	25.84
Ni-62	(n, γ)Ni-63	-	-	2.20	-	1.38
Cs-133	(n, γ)Cs-134	1.20	1.20	0.03	1.20	1.30
Eu-151	(n, γ)Eu-152	0.17	0.80	0.0019	1.00	0.55
Eu-153	(n, γ)Eu-154			0.0019		

Table 9. Results of the activation analysis

Item	No impurity	Ref.[5]	Ref.[6]	Ref.[7]	Ref.[8]	Ref.[1]
Specific activity (Bq/g)	3.99E+02	2.44E+03	8.62E+03	5.12E+02	1.27E+04	8.14E+03
Major nuclide of waste level	C-14	Eu-152	Eu-152	Co-60	Eu-152	Eu-152
$\sum_{i=1}^n \frac{A_i}{CW_i}$	2	20,275	82,143	1,032	101,548	57,969
Waste Level	VLLW	LLW	LLW	LLW	LLW	LLW

한편 50년 운전 10년 냉각 시 방사화 핵종 재고량은 30년 운전 10년 냉각 시에 비해 15% 증가하였다. 이는, 콘크리트 구조물 내 총 방사능의 90% 이상을 차지하는 H-3 원소가 15% 증가하여 발생하였으며, 앞에서 불순물로 인해 생성되는 주요 핵종으로 언급한 Co-60, Eu-152 및 Eu-154는 각각 2~8% 증가하는 경향을 보였다.

4. 결론

본 연구에서는 원전 해체 계획 수립 시점에서 경수로 원전의 방사화 핵종 재고량 평가 시, 방사화 대상 물질의 불순물 정보에 따른 방사화 영향을 분석하였다.

이를 위해 원전 방사화 물질에 따라 스테인리스강을 대표하는 배럴, 탄소강을 대표하는 압력용기, 생체 콘크리트 영역으로 분류하고, 각각 영역에서의 불순물을 적용한 경우와 적용하지 않은 경우에 대해 방사화 핵종 재고량을 평가하였다. 평가 결과, 불순물을 적용한 계산의 경우, 그렇지 않은 경우에 비해 총 비방사능을 기준으로 스테인리스강에서 2.77배, 탄소강에서 3.14배, 콘크리트에서는 최대 30배 크게 평가됨을 확인하였다.

각 영역별 방사화 핵종별 분석 결과, 스테인리스강과 탄소강에서는 Co 원소 불순물 정보를 적용함에 따라 Co-60의 비방사능이 크게 증가하였으며, 방사성폐기물 분류 시에도 주요 영향 핵종으로 고려되어야 함을 확인하였다. 한편, 콘크리트에서는 Co 원소 및 Eu 원소 불순물 정보를 적용함에 따라 비방사능이 크게 증가하고 있으며, Co-60, Eu-152, Eu-154이 방사성폐기물 분류 시 주요 핵종으로 고려되어야 함을 확인하였다.

이와는 별도로, 30년 운전 10년 냉각 시와 50년 운전 10년 냉각 시의 핵종별 방사능량을 평가하여 원전의 운전 기간이 불순물로 인한 방사화에 크게 영향을 미치지 않음을 확인하였다. 이는 운전 시간 동안 생성되는 다수 방사화 핵종의 생성되는 양과 붕괴하는 양이 평형상태에 도달하거나, 반감기에 따라 수렴하는 경향을 보이기 때문이다.

본 연구의 결과는 원전 해체 계획 수립 시 방사화 핵종 재고량 평가 및 규제에 활용될 수 있을 뿐 아니라, 해체를 고려한 원전 또는 원자력시설의 설계 단계에서도 참고자료로서 활용될 것으로 판단된다.

감사의 글

본 연구는 원자력안전위원회에서 주관하는 원자력안전 연구사업의 일환으로 수행된 연구입니다.

REFERENCES

- [1] United States Nuclear Regulatory Commission(U.S.NRC), "Long lived activation products in reactor materials", NUREG-3474, US (1984).
- [2] Los Alamos National Laboratory(LANL), "MCNP: A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5", LA-CP-03-0245, US (2003).
- [3] R.A.Forrest, "European Activation System: EASY-2007", European Atomic Energy Community(EURATOM) & United Kingdom Atomic Energy Authority(UKAEA), UKAEA-FUS-533, UK (2007).
- [4] KOREA Nuclear Safety and Security Commission, "Regulations concerning the disposal of radioactive waste classification and its own criteria", Notification 2014-003 of KOREA Nuclear Safety and Security Commission (2014).
- [5] T. Zager, M. Bozic, and M. Ravnik, "Long-lived activation products in TRIGA Mark II research reactor concrete shield: Calculation and experiment," Journal of Nuclear Materials, 335, 379-386 (2004)
- [6] K. Masumoto, A. Toyoda, K. Eda, Y. Izumi, and T. Shibata, "Evaluation of reactivity induced in the accelerator building and its application to decontamination work," Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 255(3), 465-469 (2003).
- [7] G. Hampel, F. Scheller, W. Bernhart, G. Pfister, U. Klaus, and E. Gerhards, Calculation of the activity inventory for the TRIGA reactor at the medical university of Hannover(MHH) in preparation for dismantling the facility," WM'02 Conference, Feb. 24-28, Tucson, AZ, US (2002).
- [8] KOREA Nuclear Safety and Security Commission, "Development of radiation safety control technology for a giant radiation factory", MONO120141529 (2013).