Journal of Radiation Industry 15 (4) : 319~327 (2021) https://doi.org/10.23042/radin.2021.15.4.319

Technical Paper

중수로 원전해체를 위한 방사선원항 특성 고찰

석수동[1,*] · 전병산[1] · 박진호[1] · 장현식[1] · 장미숙[1] · 김성래[1]

[1](주)뉴클리어엔지니어링

Review of Radiological Source Term Characteristics for Decommissioning of PHWR (CANDU) Nuclear Plant

Soodong Suk[1,*], Byungsan Jun[1], Jinho Park[1], Hyeonsik Chang[1], Misuk Jang[1] and Seoungrae Kim[1]

[1]*Nuclear Engineering Services & Solutions, Sejong Daemyung Valeon B-811, 6 Jiphyeonjungang 7-ro, Sejong-si 30141, Republic of Korea*

Abstract - An effort was made in this paper for the decommissioning purpose of the CANDU plant to review a salient characteristics of the major radiological source terms, which arise from the neutron activation of the reactor materials, fission products leaked from fuel cladding and their erosion and corrosion products in the primary heat transport system (PHTS) and moderator system of the plant. One of the most important unique features of the CANDU plant is the use of heavy water both as coolant and moderator in contrast to the use of light water in the PWR nuclear plant. As a result, significant amount of tritium and ^{14}C is produced mostly in heavy water during power operation, about 100 times larger than in PWR. Another important feature in terms of decommissioning is that the primary heat transport system is mainly made of carbon steel (eg., feeder pipes and headers, pumps and shell side of steam generators etc.), while stainless steel is used for the reactor vessel and the major part of the reactor coolant system of PWR plants. Due to the flow accelerated corrosion (FAC) on the outlet feeders, a significant amount of corrosion product iron as magnetite is transferred from the outlet feeders and accumulated on the surfaces of the steam generator and inlet feeders. A relevant method is yet to be developed to decontaminate the corrosion products on the PHTS and moderator system of CANDU for decommissioning purpose. In this paper, the design features and material characteristics of the PHTS and moderator system, which comprise the main sources of radiological source terms, are first briefly described. And then the unique features of the source terms to be considered for decommissioning are described including; (1) neutron activation of the major reactor components such as pressure tube and calandria tube, reactivity devices and calandria tank, (2) erosion and corrosion of activated iron products in the PHTS, and (3) production of tritium and ^{14}C in the PHTS and moderator system.

Key words : PHWR decommissioning, Neutron activation of reactor core material, PHTS crud characteristics, Tritium and ^{14}C generation

* Corresponding author: Soodong Suk, Tel. +82-44-330-8515, Fax. +82-44-330-8509, E-mail. nessrnd@ness.re.kr

서 론

2015년 6월 가압 경수로(Pressurized Water Reactor, PWR) 형 원자력발전소(이하 원전이라 칭함) 고리1호기의 영구 운전정지 결정과 함께 우리나라의 원전 해체 준비 작업은 본격적으로 시작되었다. 고리1호기는 2017년 6월 영구 운전정지 후 사용후연료 관리 상태에 있다. 한국수력원자력㈜(이하 한수원)은 2020년 5월 최종해체계획서를 원자력안전위원회(원안위)에 제출하였으며, 2022년 6월까지는 원안위로부터 해체 승인을 취득한 후, 해체에 착수하여 2032년까지 해체 및 부지복원을 완료할 예정이다. 한편 국내에 4기가 운영되고 있는 가압 중수로형(Pressurized Heavy Water Reactor, PHWR) 원전 중의 하나인 월성1호기는 2019년 12월 영구 정지되어 현재 해체 준비 중이다(한국수력원자력 2020).

원전은 30년 이상의 운영기간 동안 원자로 및 내부구조물과 차폐체 등이 중성자로 인하여 방사화(Activated)가 되고 1차 계통 주기기 및 배관을 비롯한 보조계통과 구조물 등이 오염되게 된다. 따라서 운전정지 이후의 해체 및 부지복원을 위해 방사화 및 오염으로 인한 방사성 핵종의 농도와 방사선량의 평가가 매우 중요하다. 이러한 원전 방사성 특성 평가 결과는 원전 해체 계획 단계부터 부지복원까지 전 과정에 영향을 미치며 제염 규모, 해체 방법 및 장비 선정, 폐기물 등급 분류, 작업자 방사선방호 및 차폐체 설계, 주민 및 환경 보호, 해체 일정 및 경비 산정 등에 광범위하게 활용된다(NEA 2013).

본 논문에서는 중수로형 원전의 해체를 위하여 고려해야 할 방사성 오염원의 핵심 계통인 원자로계통, 즉 주열수송계통(PHTS)과 감속재계통을 중심으로 방사선학적 특성을 살펴보고자 한다. 이를 위하여 우선 월성1호기의 원자로계통 및 기기의 구성과 재료 특성을 알아본 후, 원자로 중성자에 의한 방사화로 인한 계통 배관 및 기기, 구조물의 방사성 오염 특성을 기술하고자 한다. 주요 방사성 오염 선원항으로 (1) 원자로계통의 방사화 및 핵분열 생성물, (2) 주열수송계통 부식생성물의 방사화 및 침전, 그리고 (3) 중수 방사화에 의한 ^{3}H 및 ^{14}C의 생성 및 거동 등을 요약 기술한다.

재료 및 방법

1. 해외 중수로형 원전 해체 현황

중수로형 원전의 경우, 세계적으로 해체완료 및 부지복원 사례는 아직 없는 실정이다. 중수로 개발국인 캐나다는 현재 영구 운전정지 중에 있는 원전에 대해서 대부분 지연 해체(Safe Storage) 방안을 채택하고 있다. 중수로형 원전 개발 초기에 AECL (Atomic Energy Canada Limited)가 개발 운영해 온 원형로인 NPD (Nuclear Power Demonstration, 20 MWe), DP (Douglas Point, 200 MWe), Gentilly-1 원자로(250 MWe)는 1978~1987년 사이에 영구적으로 운전정지되어 핵연료가 제거된 상태로 30년 이상 관리되어 오고 있으며, 2022~2025년에 최종 해체할 계획이다(Shruder 2019).

한편 Gentilly-2 원전은 HQ (Hydro Quebec)이 1983년부터 30년간 가동하여 2012년 12월 영구 운전정지 상태에 들어간 원전으로, 월성1호기와 같은 680 MWe 급의 전형적인 CANDU 6 원전이다. 운전정지 이후 2년간의 안정화 단계를 거쳐 2015년부터 SWS (Storage With Surveillance) 상태에 있다. 2021년부터 2059년까지 38년간 원전은 SWS 단계로 유지될 예정이며, 사용후연료는 2048~2056년간에 향후 건설 예정인 DGR (Deep Geological Repository) 처분장으로 이전될 예정이다. 2059년부터 해체작업을 개시하여 2066년까지는 부지를 복원한다는 계획이다(Plante 2019). 이와 같이 캐나다는 즉시 해체보다는 지연 해체를 국가적인 원전 해체 정책으로 채택하고 있다. 이는 원전에 잔류하는 방사능량의 저감을 기다리는 것이지만, 캐나다에 최종 폐기물 처분 시설이 아직 없고, 원전 부지의 재활용 필요성이 크지 않기 때문이기도 하다.

2. 중수로 원자로계통 구성 및 재료 특성

우리나라에는 2가지 유형의 원자력발전소가 건설되어 전력을 생산하고 있다. 국내 최초로 부산 고리 지역에 건설된 고리 원자력발전소를 포함해 영광, 울진 지역에 건설된 원자력발전소는 모두 가압 경수로(Pressurized Water Reactor, PWR)이며, 경주 월성 지역에 건설된 월성 원자력발전소 1호기부터 4호기의 원자로는 가압 중수로(Pressurized Heavy Water Reactor, PHWR)형 원전으로 CANDU 6 노형이다.

월성1호기는 전기 출력 678 MWe 급의 가압 중수로형 원전이며, 대표적인 고유 설계 특성은 천연 우라늄을 핵연료로 사용하고 가동 중에 연료를 재장전하며, 중수를 냉각재 및 감속재로 사용한다는 것이다. Fig. 1에서 볼 수 있듯이 원자로는 수평 원통형의 칼란드리아(Calandria)이다(한국수력원자력 1995). 380개의 연료 채널이 칼란드리아 양단을 관통하며 연료 채널 내부의 압력관(Pressure Tube)은 각기 피더(Feeder)에 연결되어 냉각 유로를 형성하고, 4대의 펌프 및 4대의 증기발생기와 함께 주열수송계통(PHTS)의 일부가 된다. 핵연료는 채널마개를 열고 냉각 유로 방향으로 압력관에 장전되며 일정기간 연소 후 유로 반대 방향에서 제거된다. 각 연료 채널에는 12개의 핵연료 번들(Fuel Bundle)이 장전되며 노심 전체에는 4,360개(380 × 12)의 번들이 장전된다.

압력관은 지르코늄-니오븀(Zr-2.5% Nb) 합금으로 구성되어 있으나 피더 및 대부분의 계통 기기 배관은 탄소강으로 이루어졌다. 증기발생기 전열관은 Ni 합금(SS Alloy 800)으로 제작되었으며 종단이음관(End Fiiting) 등 일부 기기는 스테

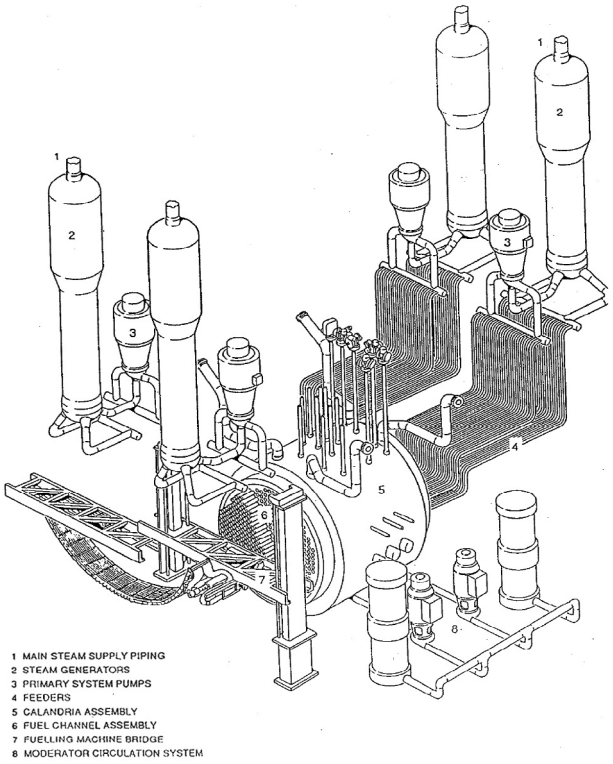

Fig. 1. CANDU 6 PHTS/Moderator system.

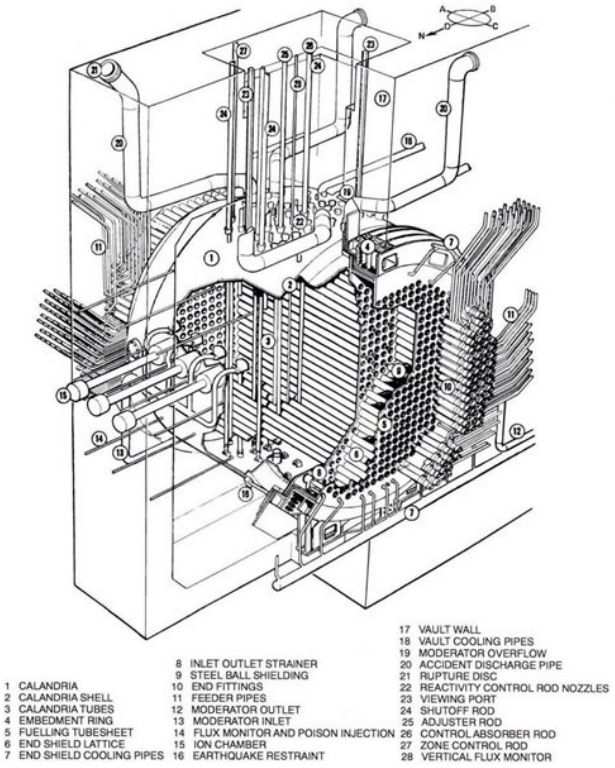

Fig. 2. CANDU 6 reactor assembly.

인리스강으로 만들어져 있다. 주열수송계통은 정상운전 시 고온(266~310℃), 고압(~10.5 MPa)으로 운영되어, 대기압으로 운전되는 감속재계통에 비해 상대적으로 중수의 누출량이 많다.

연료 채널 외부의 칼란드리아관 외부와 칼란드리아 용기는 중수 감속재로 채워져 있으며, 감속재계통의 중추를 이룬다. 원통의 양쪽에 위치한 입구 노즐을 통해 2대의 감속재 펌프에 의해 감속재가 유입되고 수평 원통 바닥에 위치한 출구 노즐을 통해 감속재 순환계통으로 유출되어 2대의 열교환기에 의해 냉각된다.

Fig. 2에서 보듯이 칼란드리아 용기는 내경 7.60 m, 두께 5 cm의 수평, 원통형 쉘(Shell)로서 양단의 종단 차폐체(End Shield)는 2개의 튜브 시트(Tube Sheet)로 둘러싸인 수평 원통형 쉘로 구성되며, 격자 튜브(Lattice Tube)에 의해 수평으로 걸쳐 있다(한국수력원자력 1995). 종단 차폐체는 칼란드리아 쉘의 양단에 용접된다.

칼란드리아 용기에는 수직 및 수평 반응도 제어장치, 압력방출 배관 및 감속재 재순환 배관의 노즐이 설치된다. 중성자속 검출기 관을 제외하고, 모든 반응도 제어관은 전체 관통 코너 용접에 의해 각각의 칼란드리아 노즐에 부착된다. 압력방출 배관은 압력관 및 칼란드리아관 고장이 발생할 경우 칼란드리아 내부의 감속재 및 냉각재를 배출한다. 칼란드리아 용기, 튜브 시트, 노즐, 비상 방출 배관, 반응도 제어관 등은 오스테나이트 스테인리스강 유형 304L로 만들어진다. 칼란드리아관은 지르코늄 합금(Zircaloy)으로 만들어졌다(Garland 2014).

중수로 주열수송계통 및 열수송보조계통(정지냉각계통, 열수송 정화계통, 중수 충전/방출계통 등)은 주열수송계통의 높은 압력으로 인한 중수누출 문제 때문에 대부분 원자로건물에 위치하고 있다. 반면에 운전압력이 대기압 정도로 낮은 중수로계통은 감속재 펌프 및 열교환기 등의 주순환계통(Main Circuit) 및 감속재 커버가스계통만 원자로건물에 위치하고 기타 보조설비(감속재 정화계통, 감속재 중수수집 및 시료채취계통 등)는 서비스 건물에 위치하고 있다(한국수력원자력 1995).

결과 및 고찰

1. 원자로 중성자 방사화 핵종 및 방사능

1.1. 주요 방사화 핵종 특성

원자로 운전 시 원자로 노심에서 생성된 중성자(또는 일부 감마선)로 인해 원자로 내부구조물, 원자로 용기 및 차폐체가 방사화되어 ^{60}Co, ^{55}Fe. ^{14}C, ^{3}H 등의 방사성 핵종이 생성된다. 또한 중성자 틈새 누출(Streaming)로 인해 핵연료 재장전 수조의 벽이나 공기정화계통 등 원자로로부터 일정 거리의 계

통, 기기 및 구조물도 방사화될 수 있다. 따라서 원자로계통의 제염 및 해체 작업은 대부분 원격으로 진행되어야 한다. 원자로 구성 재료별로 생성되는 주요 방사성핵종은 다음과 같다.

(가) 철강: ^{55}Fe, ^{60}Co, ^{59}Ni, ^{94}Nb
(나) 철근 콘크리트: ^{3}H, ^{14}C, ^{55}Fe, ^{60}Co, ^{152}Eu, ^{154}Eu
(다) 중수: ^{3}H, ^{14}C

Table 1은 주요 방사화 핵종의 반감기 및 방출 방사선 등의 특성을 보여준다(IAEA 1998).

Fig. 3은 주요 방사화 핵종의 방사능을 운전정지 후 경과 시간의 함수로 보여준다(IAEA 1998). 원자로 운전정지 초기에는 ^{55}Fe, ^{60}Co, ^{54}Mn 등 반감기가 비교적 짧은(1~5년) 핵종이 주요 방사능 선원이지만, 운전정지 30년 이후에는 장수명 핵종 ^{63}Ni (반감기 100년)의 방사능이 대부분을 차지한다.

1.2. 방사화 핵종 선원항 평가

원자로계통의 방사화 선원항 평가를 위해서는 중성자속 계산코드와 방사화 계산코드가 필요하다. 중성자속 계산코드로 계산한 중성자속과 에너지 스펙트럼을 활용하여 핵반응 단면적 정보를 생산하고, 방사화 계산코드로 중성자속 계산코드에서 생산된 정보를 이용하여 방사화 핵종 생성량을 결정한다. 중성자속 계산코드에는 ANISN 등의 결정론적 방법을 사용하는 코드도 있으나, 원전 해체를 위한 방사선학적 특성 평가를 위한 상세 계산에서는 MCNP (Monte Carlo N-Particle Transport) 코드 등의 확률론적 방법을 주로 사용하는 추세이다. MCNP 코드로 구한 중성자 스펙트럼을 이용하여, ORIGEN (Oak Ridge Isotope GENeration) 코드의 라이브러리를 수정한 후 ORIGEN 코드로 방사화 계산을 수행한다(IAEA 2019).

중수로 노심은 380개 핵연료 채널에 4,560개의 핵연료 번들, 168,720개의 핵연료 봉으로 구성된다. 중수로 노심에 위치한 모든 핵연료 봉 내의 액티나이드 및 핵분열생성물 등에 대한 몬테칼로 계산은 엄청난 기억 용량 및 계산 시간이 요구된다. 따라서 중수로 방사화 평가를 위해서는 압력관 내의 1개 핵연료 번들(37개의 핵연료봉 포함) 및 부속 냉각재를 1개 단위의 균질한 영역으로 평가하는 '연소도 평균 균질 모델

Table 1. Major radionuclide characteristics

Daughter nuclide	Principal emissions	Half-life of daughter (yr)
^{3}H	β^-	12.3
^{14}C	β^-	5,730
^{54}Mn	EC, γ	0.86
^{55}Fe	EC, X	2.7
^{59}Ni	EC, X	76,000
^{63}Ni	β^-	100
^{60}Co	β^-, γ	5.3
^{93}Zr	β^-	1,500,000
^{94}Nb	β^-, γ	20,000

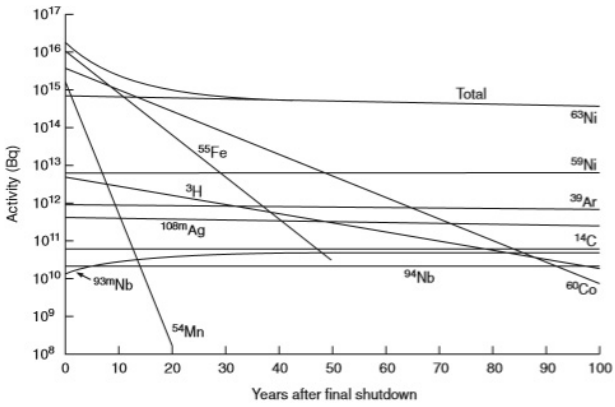

Fig. 3. Decay of principal nuclides after reactor shutdown.

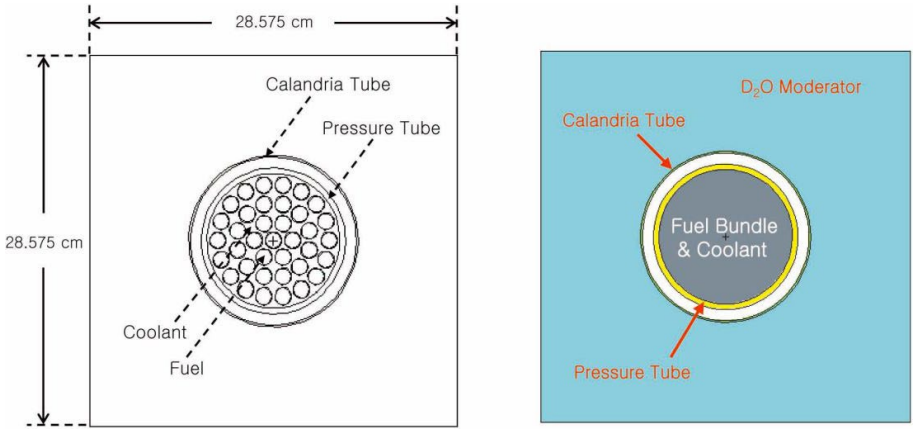

Fig. 4. Lattice cell model in CANDU fuel.

(Burnup-average Homogeneous Model)'이 일반적으로 적용된다. Fig. 4에서 보는 바와 같이 중수로 노심의 중성자속 계산을 위해서는 핵연료 번들과 냉각재, 압력관 및 칼란드리아관 및 감속재로 구성되는 단위 셀(Lattice Cell)을 설정하여 균일한 동위원소 수밀도 및 반응단면적 등을 WIMS-AECL (Winfrith Improved Multigroup Scheme) 코드를 사용하여 시간-평균 연소도의 함수로서 계산한다. 이어서 MCNP 코드 등을 활용한 중성자 수송 계산에서는 압력관, 칼란드리아관, 반응도 제어관, 칼란드리아 탱크 등 노심 구조물에서의 중성자속과 반응단면적 등이 계산된다. 노심 외에 위치한 핵연료채널 양단의 부품 및 기기(격자 튜브, 차폐 플러그, 종단이음관 등)에 대해서도 중성자 방사화가 이루어지는 범위(노심으로부터 ~50 cm 내)에서 방사화 계산이 수행된다(Cho *et al*. 2012; Noh *et al*. 2015).

Table 2는 월성1호기 원자로 노심 각 구조물에서의 방사화 계산 결과를 보여준다(Cho *et al*. 2011). 이 계산에서는 2010년 교체된 압력관 및 칼란드리아관에 대해서는 이후 25년간의 방사화 기간을 가정하였고 교체되지 않은 반응도 제어관 및 칼란드리아 탱크 등에 대해서는 기존의 운영기간을 포함하여 50년 동안 방사화된다고 보수적으로 가정하였다.

Table 2에서 보듯이 반응도 제어관 및 지지물의 방사능이 총 방사능량(10,400 TBq)의 73%를 차지하고, 비방사능도 다른 기기에 비해 100배 정도 큰 것으로 나타났다. 그러나 폐기해야할 물량은 전체 체적 73.8 m^3 (전체 중량 470톤)의 4.5%에 그친다. 한편 노심 외 구조물의 물량은 64.2 m^3로서 전체의 87%에 이르지만 방사능은 6.5%에 그치는 것을 볼 수 있다. 국내 방사성폐기물 분류기준(원자력안전위원회 2020)에 따라 노심 외 구조물은 중·저준위 폐기물로 구분되나, 기타 노심 구조물 9.6 m^3은 고준위 폐기물로 평가되었다. 원자로 방사화 구조물의 주 방사화 핵종으로는 ^{55}Fe, ^{60}Co, ^{63}Ni, ^{94}Nb, ^{134}Cs, ^{125}Sb, ^{125m}Te 등이 도출되었다.

1.3. 핵분열생성물

원전 운전 시 핵연료 피복재의 결손으로 일정량의 핵분열생성물이 누설되고 이로 인해 원자로계통 및 보조계통의 방사성 오염이 추가된다. 핵연료 결함 설계기준은 1%이지만 운전자료 통계에 의하면 대략 0.1%로 나타나며 이는 연간 5개의 핵연료 번들에 해당한다. 대부분의 핵분열생성물은 계통 내에서 붕괴되어 소멸되지만 일부는 정화계통이나 계통 밖으로 누출되기도 한다. 주요 핵종으로는 ^{138}Cs, ^{135}Xe, ^{133}Xe, ^{132}I, ^{131}I, ^{134}I, ^{135}I, ^{95}K95, ^{97}Kr 등이다(한국수력원자력 1995). 또한 U, Pu, Am, Cm 등의 악티나이드 원소도 소량이지만 표면 오염의 원인이 되기도 한다. 감속재계통의 주요 방사선원은 중성자에 의한 중수 및 계통 기기 및 배관 침식물의 방사화이며, 핵분열생성물은 포함되지 않는다.

Table 2. Activity of reactor structural components

Structural components	Volume (m^3)	Activity (TBq)	Specific activity ($GBq \cdot kg^{-1}$)
Pressure tube	3.32	771	35.3
Calandria tube	1.29	352	42.3
Reactivity device	0.245	4,400	2,790
Reactivity device supporter	0.0893	3,220	4,580
Calandria tank	4.63	1,000	27.3
Outside component	64.2	678	1.69
Total	73.8	10,400	

2. 주열수송계통 방사성 오염

중수로형 원전은 원자로 주열수송계통의 피더 및 배관, 기기 등이 탄소강으로 구성됨에 따라 스테인리스강으로 이루어진 경수로 냉각계통과 다른 부식특성을 가지고 있으며, 상대적으로 두꺼운 산화막이 형성된다. 감속재계통은 오스테나이크 스테인리스강과 지르코늄 합금으로 이루어져 침식물의 방사성 농도가 주열수송계통보다 낮다. 탄소강은 철과 탄소의 합금으로 탄소의 함량이 0.025~2%인 합금이다. 중수로형 원전에 사용되고 있는 탄소강은 대부분 중탄소강(탄소 함량 0.2~0.3%) 종류이다(Garland 2014).

주열수송계통의 탄소강 표면의 부식에 의해 용해된 철 이온이 침전물을 형성하게 되어 두꺼운 마그네타이트(Fe_3O_4) 산화막을 형성하게 된다. 부식이 진행되는 동안 탄소강 표면에는 상대적으로 작은 크기의 마그네타이트 입자(30~50 nm)로 이루어진 내부 피막과, 수 μm 크기의 마그네타이트와 고형화된 금속산화물($NiOFe_2O_3$) 형태의 외부 피막으로 이루어진 2중 산화막이 생기게 된다(Fig. 5 참조; Garland 2014). 외부피막에 존재하는 침전물들은 내부피막과 비교적 약한 결합을 하지만, 일부 침전물들은 배관 표면에서 상대적으로 강한 결합을 통해 장기간 고착화된다. 이때 고착된 침전물들은 계통 내 유속을 통해서도 쉽게 제거되지 않는 것으로 알려져 있다. 한편, 경수로의 경우 원자로용기 및 냉각계통 배관은 표면이 내식성이 강한 스테인리스강 재질로 구성되어 있으며, 상대적으로 얇은 2중 산화막이 형성된다. 내부 층은 스피넬 구조의 $FeCr_2O_4$를 구성하고 외부 층은 Nickel Ferrite ($NiFe_2O_4$)의 변형된 형태로 이루어진다.

원전 계통, 기기 및 구조물의 방사성 오염은 주로 주열수송계통 및 연계 보조계통(정지냉각계통, 정화계통, 중수수집계

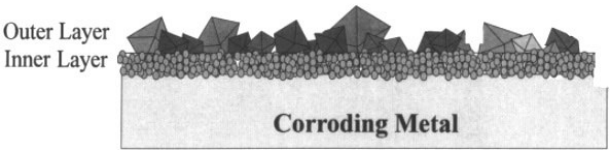

Fig. 5. Magnetite film on carbon steel.

통 등)에서 방사화된 부식물이나 핵분열생성물 등이 계통 배관 및 기기의 표면에 침전하거나 부유하면서 발생한다. 원자로 운전 시에 계통 배관 및 기기 표면은 산화되고 부식 박막층이 형성된다. 이와 같이 고온, 고압에 노출된 산화막이 침식되어 원자로 냉각수와 함께 원자로 노심으로 이송되면, 노심에서 침전되어 방사화된다. 이러한 방사화 침전물이 다시 침식되어 냉각계통으로 이동하여 다시 배관 및 기기 표면에 침전하게 된다.

CANDU 6 주열수송계통의 피더의 내부 표면은 부식을 방지하기 위해 마그네타이트 박막(Magnetite Layer)이 가열 도장되어 있다(Krasznai *et al*. 2019). 원전 가동 중에 냉각 유속이 빠른 고온(325°C)의 출구측 피더의 부식으로 철분 부식물이 마그네타이트와 함께 이송되어 증기발생기와 저온(290°C)의 입구측 피더에 침전하게 된다(Fig. 6 참조; Song *et al*. 2017). 이와 같이 냉각 유체 가속으로 인한 부식을 '유체가속부식' (Flow Accelerated Corrosion)이라 하며 이로 인해

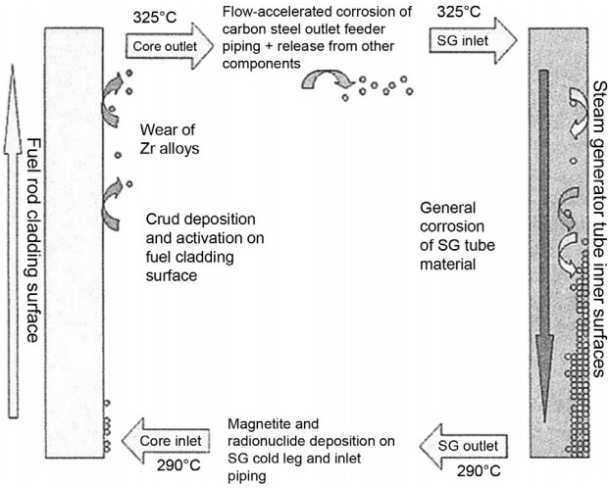

Fig. 6. Activity transport process in CANDU PHTS.

출구 피더가 급격히 부식 마모되어 파손될 위험성이 있다. 최근에는 피더에서의 유체가속부식을 경감하기 위하여 크롬 함량이 높은 탄소강을 사용한다. 월성1호기, Point Lepreau 원전을 비롯한 기존의 CANDU 6 원전도 크롬 함량이 0.019%인 A106 Grade-B 재질로 이루어진 피더를 사용했으나 압력관 교체 시 크롬 함량이 0.33%인 A106 Grade C 재질의 피더로 함께 교체되었으며, 이로 인해 유체가속부식이 50% 정도 감소하였다고 평가된다(Garland 2014).

Fig. 7은 핵연료 채널 출구로부터의 거리에 대한 함수로서 출구 피더, 증기발생기, 입구 피더, 종단 차폐체 및 원자로 노심에서의 용존 철의 용해도($\mu g \cdot Fe \cdot Kg^{-1} \cdot D_2O^{-1}$) 및 표면 오염도($g \cdot Fe \cdot cm^{-2}$)를 보여준다(Odar 2014). Fig. 7(a)의 실선은 마그네타이트의 포화 용해도이며 점선은 철의 농도를 나타낸다. 주열수송계통의 온도 변화에 따라 냉각재 마그네타이트의 용해도가 증가함을 볼 수 있다.

핵연료 채널로부터 출구 피더로 이송되는 불포화 상태의 냉각재는 유체가속부식으로 인해 피더 표면이 부식되고 용존 철 농도는 증가하게 된다. 증기발생기에서의 열 손실로 냉각재 온도는 감소하게 되고 철의 용해도는 과포화되어 철이 용출하게 된다. 이에 따라 입구 피더에도 많은 양의 철이 침전하게 된다(Odar 2014). 주열수송계통에 침전하는 총 11,000 kg의 마그네타이트 철분 부식물 중에 68%가 증기발생기 세관 내부 표면에, 나머지가 피더 및 종단 이음관(End Fitting) 내부에 분포하는 것으로 평가된다. 탄소강의 ^{59}Co 불순물을 비롯한 부식물은 원자로심에서 ^{60}Co로 방사화되어 다시 피더 및 증기발생기 세관 표면에 침식하게 된다.

3. 중수로 고유 방사성핵종 특성

CANDU 6 원전 운전 중의 중수 재고량은 총 500여 톤에 달하며 감속재계통 및 부속계통에 ~57%, 냉각재계통 및 부속계통에 ~39%의 중수가 분포하고 있다. 기타 중수관리계통

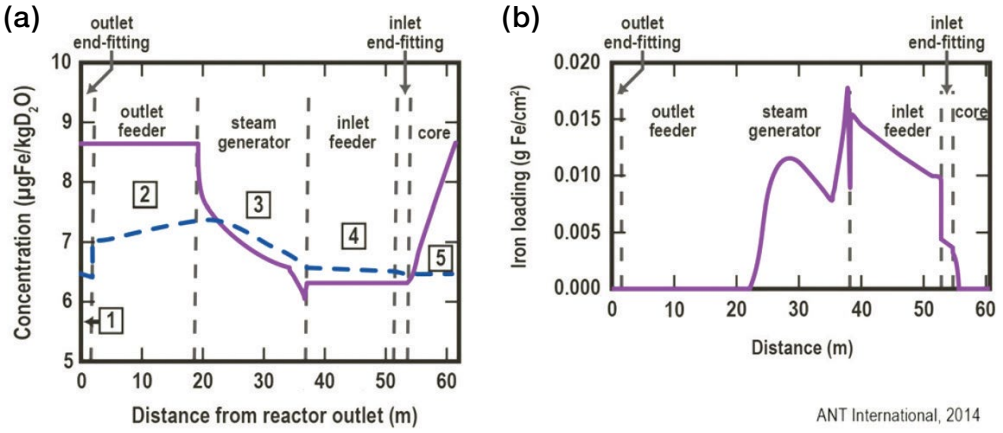

Fig. 7. Magnetite solubility and iron concentration in CANDU PHTS.

및 핵연료 취급계통에 소량 충전되어 있다. 이와 같이 대량의 중수 사용으로 인해 ^{3}H와 ^{14}C이 운전, 유지·보수 중이거나 해체 작업 중의 내부피폭과 방사성폐기물 처리, 부지복원 측면에서 현안이 되고 있다(Hou 2018).

3.1. ^{3}H

CANDU 6 원자로에서 ^{3}H는 주로 열중성자와 중수의 포획반응 $2H(n, \gamma)^{3}H$에 의해 생성된다. 감속재계통에서 95% 이상의 ^{3}H가 생성되며 주열수송계통에서는 5% 미만이 생성된다. 핵분열 생성물로서도 핵연료봉 내에 소량 생성된다. ^{3}H 생성량은 가동연한에 따라 증가하며 30~40년 운전 시, 주열수송계통 비방사능은 중수 1 kg당 ~2Ci (74 GBq)에 도달하게 되며, 감속재계통에서는 중수 1 kg당 88 Ci (~3.3 TBq)에 근접하게 된다(한국수력원자력 1995). 감속재계통 내 중수 재고량이 60% 정도인 것을 고려하면 ^{3}H의 생성량이 상대적으로 지나치게 많이 생성되는 것을 볼 수 있다. 이는 감속재계통에서의 열중성자속이 주열수송계통(압력관 내부)에서 보다 크고 중성자에 노출되는 시간이 길기 때문이다.

주열수송계통에서 감속재계통에 비해 비교적 소량의 (~5%) ^{3}H가 생성되지만 높은 운전 압력으로 인해 격납용기로의 누출량은 전체의 50%에 달하여, ^{3}H 누출방지를 위하여 계통 배관에는 밀봉(leak tightness) 설계가 강화된다(밸브 및 플랜지 등의 사용 제한). 기타 ^{16}N, ^{19}O, ^{17}F 등의 감속재 중수 또는 중수 불순물의 방사화로 인한 방사능도 중수 재고량에 비례하여 주열수송계통보다 크며, 중성자에 의한 조사 기간도 커서 핵종의 반감기에 따라 비방사능 또한 1.5~2배 정도 크다. Table 3에서 보듯이 중수로형 원전의 GWe-yr당 ^{3}H 생성량은 경수로에 비해 대략 100배 정도 큰 것으로 평가된다(IAEA 2004).

감속재계통이나 주열수송계통에서 중수 누출 시 ^{3}H도 원자로 건물이나 보조건물 내에서 증기 형태로 소량 누출되지만, 대부분 중수 회수나 방사선방호 차원에서 중수수집계통(D_2O Collection System) 등에 의해 회수된다(총 재고량의 99.9%). 그러나 감속재계통이나 주열수송계통에서 중수 승급(Upgrading) 또는 탈삼중수소화(Detritiation) 등을 위해 중수를 재순환하는 과정에서 소량의(~0.1%) 중수 및 ^{3}H의 유출이 있을 수 있으나 이들은 대부분 액체 및 기체 폐기물계통에 의해 처리된다.

중수로형 원전에서 내부 피폭은 주로 공기 중에 분포하는 ^{3}H로 인한 것이며, ^{3}H 대부분 원자로건물과 서비스건물에 위치한 감속재 보조계통 및 중수관리계통에 존재한다. 원자로건물에는 ^{3}H 관리를 위하여 주요 ^{3}H 발생구역에 ^{3}H 증기회수계통을 별도로 설치하여 방사성오염 확산을 방지하고 해당 구역에 한정시킨다.

원자로건물의 환기계통도 ^{3}H 농도가 작은 구역에서 큰 구역으로 건물 내 공기가 순차적으로 순환되도록 설계된다. ^{3}H 증기회수계통이 설치된 4개 구역의 환기계통에 의한 공기 흐름은 ^{3}H 농도가 작은 접근허용구역(RB 003~004)으로부터 SG 격실(RB501), 핵연료 교환기 볼트(RB 107~108), 감속재 설비 격실(RB 111~112)까지 고농도 구역으로 순차적으로 순환된다.

감속재 격실에서는 특히 감속재 펌프로부터 상대적으로 다량의 중수 증기 유출로 인해 다른 격실과의 철저한 분리가 필요하며. 또한 주열수송계통으로부터의 증기와 혼합을 방지하기 위하여서도 더욱 중요하다. 따라서 감속재 펌프 및 밸브주위는 특수 밀봉(Enclosure)이 이루어지며, 격실에는 별도의 증기 건조기가 설치된다. 원자로건물에는 총 19 구역에 ^{3}H 감시기가 설치되어 정기적으로 공기 중 농도가 측정된다(한국수력원자력 1995).

3.2. ^{14}C

중수가 원자로 중성자에 방사화되면 ^{3}H뿐만 아니라 ^{14}C도 생성된다. 즉, 원전용 중수는 순도 99.9%까지 농축되며, 이 과정에서 산소도 농축되어 ^{17}O의 농도도 천연 수에 비해 크게 증가하게 된다. ^{17}O가 중성자에 방사화되면 ^{14}C가 생성된다 [$^{17}O(n, \alpha)^{14}C$]. 또한 핵연료나 감속재 및 냉각재에 존재하는 ^{14}N 원소의 방사화에 의해 생성된다[$^{14}N(n, p)^{14}C$]. ^{14}C 핵종은 ^{3}H와 같이 주로 칼란드리아 및 감속재계통과 주열수송계통에서 발생하며, 중수에 용해되어 액체 폐기물로 처리되거나 기체로 방출되기도 한다. Table 4는 유형별 원전의 GWe-yr당 ^{14}C 생성량(GBq·GWe-yr^{-1})을 비교하여 보여준다(IAEA 2004).

중수로의 경우, ^{14}C는 주로 CO_2의 형태로 방출된다. 80%가 CO_2의 형태로, 20%가 메탄가스 등의 탄화수소의 형태로 방출된다. 경수로의 경우, 대부분(75~95%)이 탄화수소의 형태로 생성되어 대부분 대기 중으로 방출된다. 반면 중수로 원전

Table 3. Estimated ^{3}H production rates (GBq·GWe-yr^{-1})

	Fuel	Coolant	Moderator	Total
PWR	5.18×10^{5}	3.70×10^{4}	N/A	5.55×10^{5}
BWR	5.18×10^{5}	Low	N/A	5.18×10^{5}
HWR	5.18×10^{5}	1.85×10^{6}	5.18×10^{7}	5.42×10^{7}

N/A: Data not available

Table 4. Estimated ^{14}C production rates (GBq·GWe-yr^{-1})

	Fuel	Fuel cladding	Coolant/ Moderator	Total
PWR	480	740	260	1,480
BWR	470	630	190	1,290
HWR	1,465	1,260	7,400	10,125

Table 5. Estimated ^{14}C distribution for CANDU 6 reactors

	Total ^{14}C production	Emitted ^{14}C	^{14}C on ion exchange resins
Moderator	95.2	3.77	91.43
Primary heat transport	1.3	0	1.3
Fuel	3.37	0	0
Annulus gas	0.13	0.13	0

에서는 대부분의 ^{14}C이 정화계통의 이온교환수지에 포집 된다. Table 5는 CANDU 6 원전의 계통별 ^{14}C 생성 및 분포(백분율)에 대한 계산 결과를 보여준다(IAEA 2004). 95% 이상의 ^{14}C가 감속재계통에서 생성되고 나머지 5% 정도가 주열수송계통, 핵연료 및 Annular Gas 계통에서 생성된다. 총 ^{14}C 생성량 중에서 3.9%가 감속재계통 및 Annular Gas 계통에서 대기 중으로 방출되고 92.7%는 감속재 및 주열수송계통의 정화계통에 이온교환수지에 의해 포집된다. 핵연료에서 생성된 ^{14}C는 핵연료 내에 잔류한다.

결 론

본 논문에서는 중수로 원전 해체를 위한 해체작업 선량 및 방사성 폐기물량 평가 등을 위하여 필수적으로 규명되어야 할 방사성 오염 선원항에 대하여 분석하였다. 특히 원전 방사성 오염의 핵심 선원항인 원자로계통(주열수송계통 및 감속재계통)의 방사화 및 방사화 침전물의 생성 및 거동 현상을 고찰하였으며, 주요 내용을 다음과 같이 요약할 수 있다.

- 중수로 원자로계통 노심구조물(압력관, 칼란드리아관, 칼란드리아 탱크, 반응도 기구 등)의 방사화로 ^{55}Fe, ^{60}Co, ^{63}Ni, ^{94}Nb, ^{134}Cs 등의 방사성 핵종이 생성되며, 중성자 방사화 오염은 체적오염으로 계통제염 등에 의해서는 제거되지 않는 특성이 있다. 이 들노심 구조물의 폐기물량은 비교적 소량(체적 10 m^3, 중량은 70 Mg 정도)이지만, 방사성폐기물 분류기준에 따라 고준위 방사성 폐기물로 평가된다. 한편 노심 밖에 위치한 핵연료채널 양단 구조물(격자관, 차폐마개, 종단 마개) 등 64.2 m^3는 중저준위로 구분된다. 이러한 계산 결과는 향후 현장 측정 및 Core Sampling 등의 시료 채취/분석에 의해 검증되어야 할 것이다.
- 중수로 원전은 원자로 주열수송계통의 배관이 탄소강으로 구성됨에 따라 탄소강 표면의 유체가속부식(FAC)에 의해 용해된 철 이온이 침전물을 형성하게 되어 증기발생기 및 입구 피더 표면에 두꺼운 마그네타이트(Fe_3O_4) 산화막을 형성하게 된다. 경수로의 경우와 달리, 중수로 원전의 해체를 위한 원자로계통(주열수송계통 및 감속재계통) 제염에 대한 경험이 미흡하고 검증된 방법이 아직 개발되지 않았기 때문에, 이 분야에 대한 기술 개발이 시급한 실정이다.
- 칼란드리아 용기 및 감속재계통과 주열수송계통 그리고 관련 부속계통에 500여 톤의 중수가 사용된다. 감속재계통에서 95% 이상의 ^3H가 생성되며 주열수송계통에서는 5% 미만이 생성된다. 주열수송계통에서 감속재계통에 비해 비교적 소량의 ^3H가 생성되지만 높은 운전 압력으로 인해 격납용기로의 누출량은 전체의 50%에 달한다. 원자로계통 구조물에 침전된 ^3H와 주위 구조물 및 콘크리트 등에 누출된 ^3H는 해체 작업자에 대한 내부피폭 및 ALARA 관리뿐만 아니라 방사성폐기물 측면에서도 매우 중요한 문제이다. 중수가 원자로 중성자에 방사화되면 ^3H뿐만 아니라 ^{14}C도 생성된다. ^{14}C 핵종도 주로 감속재계통에서 생성하며, 중수에 용해되어 액체 폐기물로 처리되거나 기체로 방출되기도 한다.

사 사

본 연구는 산업통상자원부의 재원으로 에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행된 연구 결과입니다(No. 20191510301180).

참 고 문 헌

원자력안전위원회. 2020. 방사성폐기물의 자체 처분에 관한 규정. 고시 제 2020-6호.

한국수력원자력. 1995. 월성 2,3,4 호기 최종안전성분석보고서.

한국수력원자력. 2020. 고리1호기 해체사업 추진현황. 원전해체 기술교육, 사업책임자 과정. 한국원자력산업회의.

Cho DK, Choi HJ, Ahmed R and Heo GY. 2011. Radiological Characteristics of Decommissioning Waste from a CANDU Reactor. *KNS* **43**(6):583-592.

Cho DK, Cha JH, Kook DH, Lee JY, Choi HJ, Choi J, Ko W and Park JH. 2012. Source Term Characterization Program for the Decommissioning Waste from a CANDU Reactor. *Progress in Nuclear Energy* **55**(2012):1-11.

Garland W. 2014. The Essential CANDU. A Textbook on the CANDU Nuclear Power Plant Technology. www.unene.ca/ca/education/candu-textbook.

Hou X. 2018. Tritium and ^{14}C in the Environment and Nuclear facilities : Sources and Analytical Methods. *JNFCWT* **16**(1): 11-39.

International Atomic Energy Agency (IAEA). 1998. Radiological Characterization of Shut Down Nuclear Reactors for Decommissioning Purposes. Technical Report Series No. 389.

International Atomic Energy Agency (IAEA). 2004. Management of Waste Containing Tritium and Carbon-14. Technical

Report Series No. 421.

International Atomic Energy Agency (IAEA). 2019. Methodologies for Assessing the Induced Activation Source Term for use in Decommissioning Applications. Safety Report Series 77.

Krasznai J, Dinner P, Castillo I and Fajurally N. 2019. Roadmap for Technology Development to Support CANDU Decommissioning and Long-Term Waste Management Part 2 - Roadmap Implementation. 4th Canadian Conference on NWMDER, Ottawa, Canada.

Noh K and Hah C. 2015. Verification of MCNP/ORIGEN-2 Model and Preliminary Radiation Source Term Evaluation of Wolsung Unit 1. *JNFCWT* **13**(1):21-34.

Nuclear Energy Agency (NEA). 2013. Radiological Characterization for Decommissioning of Nuclear Installations.

Odar S. 2014. Crud in PWR/VVER Coolant, Volume 1- Sources, Transportation in Coolant, Fuel Deposition and Radiation Build-up. Advanced Nuclear Technology International.

Plante S. 2019. Update on G-2 Decommissioning, 4th NWMDER Canadian Conference, Ottawa, Canada.

Shruder K. 2019. Prototype Reactor Decommissioning Progress. 4th Canadian Conference on NWMDER (Nuclear Waste Management Decommissioning and Environmental Restoration), Ottawa, Canada.

Song J, Cho HJ, Jung MY and Lee SH. 2017. A Study on the Application of CRUDTRAN Code in Primary Systems of Domestic Pressurized Heavy-Water Reactors for Prediction of Radiation Source Term. *KNS* **49**(3):638-644.

Received: 22 November 2021
Revised: 28 December 2021
Revision accepted: 28 December 2021