

PWR 냉각재계통 방사능 제거에 관한 정지수화학 특성평가

나정원 · 성기웅

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

성기방 · 강덕원

전력연구원

대전광역시 유성구 문지동 103-16

정홍호

충남대학교

대전광역시 유성구 궁동 220

요 약

PWR 원전에서는 계획예방 정지운전시 효과적인 정지수화학 제어에 의해 일차계통 방사능 준위를 감소시키고 작업종사자의 피폭을 최소화하기 위해 정지운전 자료에 대한 보다 정확한 해석이 필요하다. 본 연구에서는 국내 PWR 원전 주기(A호기의 I 및 II주기와 B호기의 II주기)별 정지수화학 특성을 SCALP(Shutdown chemistry CALculation Program)프로그램으로 계산하고 정지운전 기간중 일차냉각재계통에서 제거되는 방사능량에 영향을 미치는 정지수화학 특성을 주요 인자별로 평가하였다.

1. 서 론

계획예방 정지운전중의 정화반감기, 방사능제거량, 누적제거율, 방사능 방출속도, Co/Ni 비방사능, Co-58/Co-60 방사능비, 니켈제거량, 용존수소 농도와 수소탈기 속도 등, 정지수화학 특성을 계산하기 위해 SCALP 프로그램을 개발하였다.

SCALP로 해석한 정지운전 자료는 국내 PWR 원전의 A-I, A-II와 B-II 주기이었다. A와 B 원전은 Westinghouse 형이고 전기출력도 같다. A-II와 B-II 주기는 동일주기이나 상업운전은 7개월의 시차가 있다. 본 연구에서는 A-I, A-II와 B-II 주기별 증기발생기 수실선량률과 방사능제거량의 상관관계를 비교검토하였다. 또 각 주기별 방사능제거량에 영향을 미치는 정지수화학 특성을 붕산화 시기, 용존수소 농도, 과산화수소 농도 및 정지운전 기간 등의 주요 인자별로 평가하여 정지수화학 조건을 제시하였다.

2. 본 론

PWR 원전의 정지운전은 크게 산성환원과 산성산화 상태인 2단계로 나눌 수 있다. 산성환원 단계에서 방사성 부식생성물인 nickel(cobalt) ferrite중 니켈(방사성코발트 포함)이 금속형태로 환원되고 산성산화 단계에서는 이온형태로 산화되어 이온교환기나 여과재에 의해 제거되므로서 냉각재의 방사능준위가 감소된다.

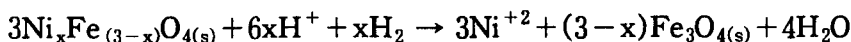
2.1 산성환원 단계운전

산성환원 조건하에서 비화학양론적 nickel ferrite가 용존수소와 반응하여 금속니켈로 분해될 때 아래와 같은 주 화학반응이 일어나는 것으로 생각된다.



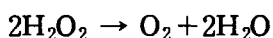
이 반응은 온도와 용존수소 농도에 의존한다. x 가 1일 때 온도와 용존수소 농도에 따른 nickel ferrite의 개략적인 안정한계를 Fig. 5에 나타내었다.

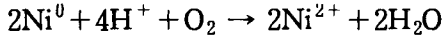
냉각재가 붕산화되어 pH가 낮은 환원분위기에서 nickel ferrite가 용해되는 부차반응(즉 느린 반응)으로 아래 반응이 고려되고 있다.



2.2 산성산화 단계운전

산성환원 단계운전 이후 냉각재중 용존수소는 탈기제거되고 과산화수소를 주입하여 냉각재 수질환경은 산성산화 상태로 바뀐다. 즉 정지운전의 산성환원 단계가 끝나면 산성산화 단계의 운전이 시작된다. 이 단계에서 중요한 반응은 과산화수소에서 생성된 산소에 의해 니켈금속이 니켈이온으로 산화되는 반응이다.





이 반응은 급격히 진행된다. 용해된 니켈이온 및 코발트이온은 정화계통 이온교환기에서 제거된다.

3. 결 과

3.1 방사능 제거량과 증기발생기 수실선량률

PWR 원전주기(A-I, A-II와 B-II 주기)별로 증기발생기 수실선량률 최대치를 Fig. 1에, 방사성 코발트(방사능) 제거량을 Fig. 2에 나타내었다. 동일원전이 아닐 때는 A-I 및 A-II와 B-II 주기에서 보는 바와 같이 수실선량률과 방사능제거량은 상관관계를 나타내지 않았으나 동일원전인 A-I과 A-II 주기에서는 반비례경향을 나타내었다. 이는 동일원전에서 방사능제거량이 많아지면 수실선량률도 감소해야 하는 일반적 사실과 일치한다.

3.2 조기 봉산화

냉각재에 봉산을 주입했을 때 냉각재의 pH 변화를 Fig. 4에 나타내었다. 조기 봉산화를 실시한 B-II 주기가 가장 빨리 낮은 pH에 도달하였다. B-II 주기가 Fig. 9에서 보는 바와 같이 환원단계에서의 누적 방사능제거량이 제일 많다. 이와 같은 현상은 냉각재의 봉산농도가 높아 pH가 낮을 경우 nickel ferrite의 부차적 용해반응이 일어나는 것으로 설명될 수 있다.

그러므로 원전정지후 조기에 봉산을 주입하여 냉각재의 봉산농도를 핵연료재장전농도까지 올리는 것이 중요하다. 또한 봉산화와 lithium 제거에 걸리는 시간은 환원기간과 직결되므로 이 기간을 단축하여 실질적인 환원기간을 늘리는 것이 중요하다.

3.3 용존수소 농도

Fig. 5에 정지운전중 냉각재 온도하강에 따른 용존수소 탈기속도를 나타내었다. Fig. 5의 nickel ferrite의 안정도곡선 왼쪽 영역, 즉, 불안정 영역에서의 용존수소 농도는 B-II, A-I, A-II 주기 순이었고 Fig. 9에서 보는 바와 같이 환원단계에서의 누적 방사능제거량 순서와 일치한다.

이와 같은 일치경향은 nickel ferrite가 금속니켈로 분해되는 반응이 용존수소 농도에 비례하기 때문이다. 그러므로 nickel ferrite의 분해반응을 증진하기 위해서는 온도에 따른 안정도곡선보다 다소 높은 수소농도를 유지하여야 한다.

3.4 과산화수소 주입량

Fig. 6에 산화단계 운전시 과산화수소 총주입량을 나타내었다. Fig. 2의 방사능제거량과 Fig. 6의 과산화수소 주입량을 비교해 보면 방사능제거량은 주입량에 대체적으로 비례하는 것을 알 수 있다. 방사능제거량, 과산화수소 주입량, Fig. 3의 냉각재중 방사능 준위 침투치와 Fig. 8의 방사성 Co-58(방사능) 제거속도 침투치는 서로 비례하였으나 Fig. 7의 냉각재내 과산화수소 농도와는 명확한 상관관계를 보이지 않았다.

B-II 주기시 방사능제거량이 많은 이유중의 하나는 과산화수소 주입량이 많았기 때문으로 판단된다. 과산화수소 주입량 30 liter(30 w/o)이내에서 주입량 증가는 산성산화 단계운전 시간을 단축시키고 방사능제거량을 증가시킴을 알 수 있다.

3.5 정지운전 기간

Fig. 10에 정지운전의 환원(reduction)기간, 정화(purification)기간, 배수(drain)기간, 충수(fill)만족기간을 나타내었다. A-II 주기 경우 Fig. 2를 보면 방사능제거량이 적었는데 그 이유는 Fig. 10에서 보는 바와 같이 환원기간이 짧고 정화기간도 짧은 데 기인한다. 그러나 B-II 주기는 정지기간은 짧지만 환원+정화 기간은 긴 편에 속해 방사능제거량이 많았음을 알 수 있다.

4. 결 론

1. 동일원전에서는 증기발생기 수실선량률과 방사능제거량은 반비례경향을 나타내었고 30 w/o 과산화수소 주입량 30 리터이내에서 주입량과 방사능 제거량은 대체적으로 비례하였다.
2. 냉각재계통 방사능을 보다 더 제거하기 위해서는, 핵연료재장전 농도까지 조기에 붕산화하고, 용존수소 탈기속도는 nickel ferrite 안정도곡선의 왼쪽(불안정 영역)에서 수행하고, 주어진 발전소 여건에서 환원운전 기간을 연장하는 것이 바람직하다.

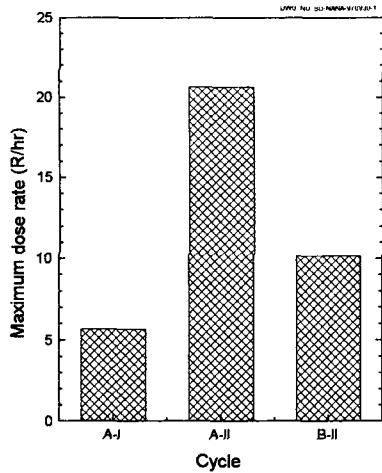


Fig. 1. Maximum dose rate of steam generator.

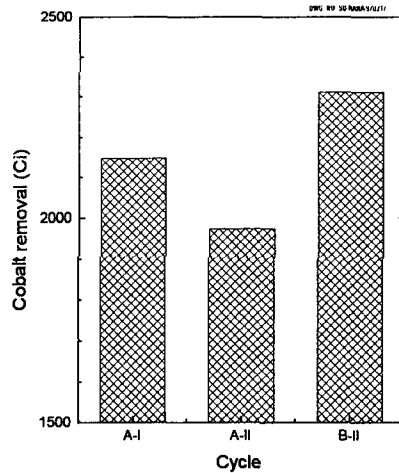


Fig. 2. Cobalt removal during shutdown operation.

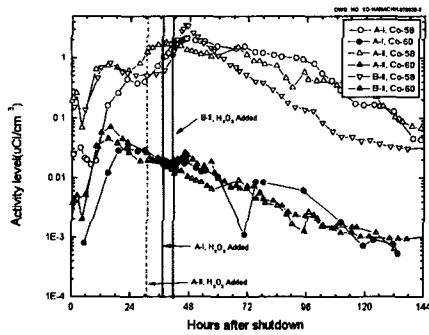


Fig. 3. Activity levels during shutdown operation.

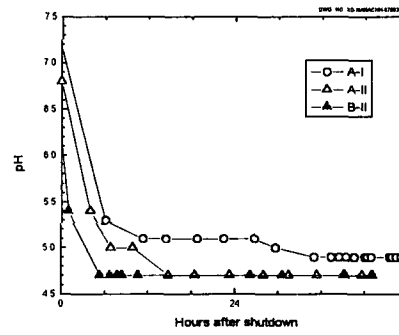


Fig. 4. pH change during shutdown operation.

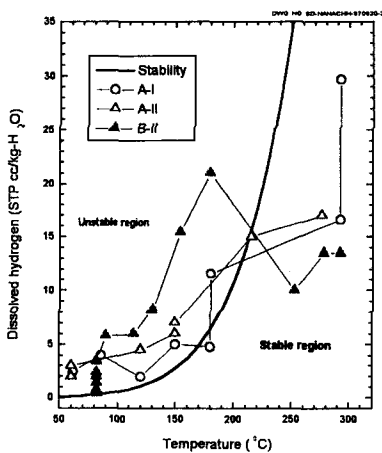


Fig. 5. Degasification rate with temperature during shutdown operation.

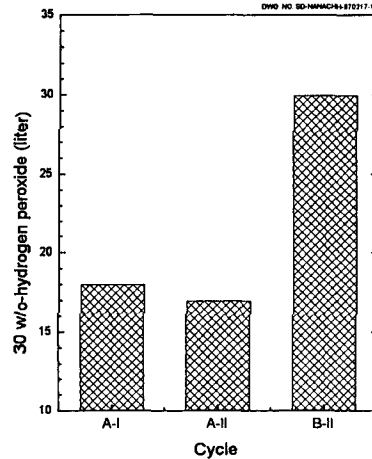


Fig. 6. Hydrogen peroxide addition quantity during shutdown operation.

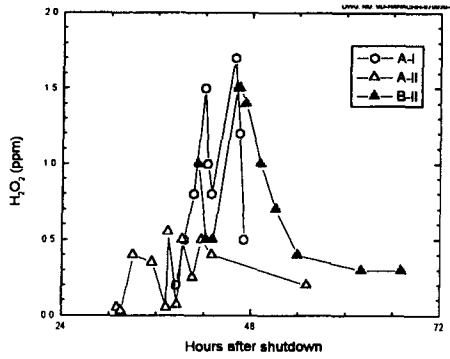


Fig. 7. Hydrogen peroxide concentration during shutdown operation.

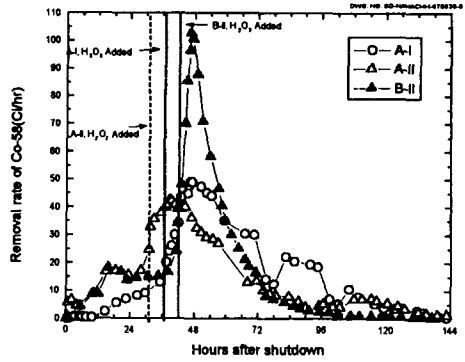


Fig. 8. Removal rate of Co-58 during shutdown operation.

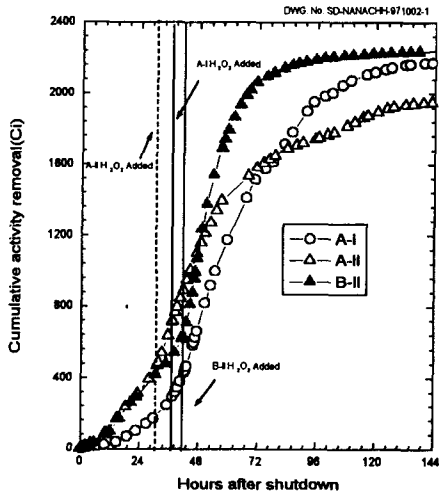


Fig. 9. Cumulative activity removal during shutdown operation.

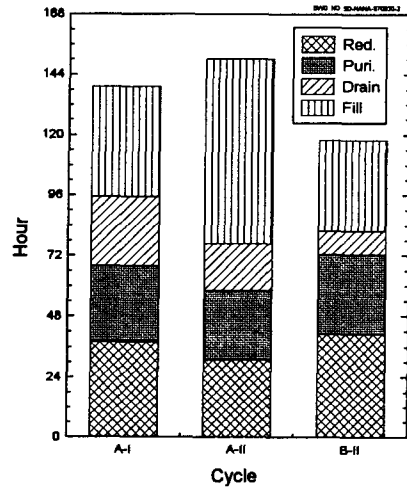


Fig. 10. Stepwise operation time during shutdown.