

## 원자력발전소 1차계통 탈염기 제염계수 특성 분석

성기방, 강덕원

전력연구원

대전광역시 유성구 문지동 103-16

### 요 약

냉각재중의 방사능을 띤 성분중에는 이온교환기에서 제거가 가능한 이온성분과 함께 필터에 의해서 주로 제거되는 입자성 물질로 존재한다. 운전중의 냉각재내 방사성 부식생성물의 물리적 조성 분포 측정 결과에 따르면 90%이상이 0.45 $\mu$ m 필터에 의해 제거되는 입자성 물질로 구성되어 있다. 이로 인해 새수지 충전후 얼마 사용하지 않은 탈염기의 제염계수가 탈염기에서 완벽한 제거가 어려운 입자성 부식생성물로 인해 10이하를 나타낼 수 있다. 1차계통에 쓰이는 수지의 성능검사를 위해 사용하고 있는 현재의 제염계수 측정법은 다음과 같은 두가지 이유로 완벽하지 않음을 알 수 있다. 첫째, 냉각재중의 방사능을 띤 성분중에는 이온교환기에서 제거가 가능한 이온성분과 함께 필터에 의해 제거되는 입자성 물질도 함께 존재하므로 탈염기의 제염계수 측정 절차는 입자성 물질을 배제한 후 측정해야 하며, 특히 수지 교체를 결정하기 위한 제염계수 측정시에는 여과된 여액으로 방사능 농도를 측정하는 것이 바람직하다. 둘째 운전중인 냉각재의 시료중에는 핵분열 수율이 높고 핵연료봉 손상부위로 유출이 용이한 불활성 기체핵종들이 많이 존재하며, 탈염기 후단에서 채취한 시료중에도 많이 존재하고, 시료 이송과 방사능 측정동안의 짧은 시간동안에도 계속 붕괴반응함으로서 새로 생긴 핵종으로 인해 마치 탈염기의 제거능이 낮은 것으로 오판될 수 있다. 이러한 측정 오차인자를 고려하여야 1차계통 탈염기의 교환능력을 정확히 판정할 수 있다.

### 1. 서 론

원자력발전소 일차계통(CVCS)에 설치된 탈염기의 용도는 다양하다. 탈염기의 주요 기능은 계통 재질의 부식을 억제하기 위해 계통 부식을 촉진하는 불순물(F, Cl<sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> : 기술지침서 항목)들의 제거, 운전 중에 핵연료 손상이 발생할 때 손상부위를 통해 빠져 나온 핵분열 생성물과 Tramp 우라늄에 의한 핵연료봉 바깥에서 생성된 방사성 물질(Iodine, Cs, ...)들의 제거 및, 계통재질중의 부식생성물들이 노심내에 침적된 후 속중성자와의 반응으로 생성된 방사화 부식생성물(<sup>58</sup>Co, <sup>60</sup>Co, <sup>54</sup>Mn, <sup>95</sup>Zr ...)들을 제거하는 정화기능을 갖고 있다. 또한 음이온교환수지의 교환반응 기능과 붕산의 온도에 따른 해리 평형반응 차이를 이용하여 냉각재중의 붕산농도를 조절하므로써 원자로의

반응도를 조절하는 기능과 붕소와 중성자가 반응후 생성된 Li를 제거하므로서 냉각재 pH를 조절하는 기능 등을 갖는다. 냉각재 pH 조절은 부식생성물의 생성과 이동을 억제하고 방사성 부식생성물의 농도를 낮춤으로서 일차계통내 방사능 준위 증가를 억제한다. 위의 기능을 다하지 못할 때는 적절한 기능 판단 기준을 정하여 탈염기내 수지를 교체하게 되며 판정 기준중 제염계수 10 이하시 수지를 교체하는 기준을 검토하하므로써 정상 기능을 갖고 있는 탈염기의 빈번한 교체를 억제하고 방사성 폐기물의 발생량 감소, 방사선 구역에서 수지교체 작업시 작업자의 방사선피폭 저감 및 고가의  $^7\text{Li}$  동위원소의 효율적 사용 등의 효과를 도모하고자 한다.

## 2. 1차계통 탈염기 교체 기준 및 문제점

대부분의 원전에서는 제염계수 즉 탈염기 입구방사능 농도와 탈염기 출구방사능 농도비가 10 이하일 때를 교체시기로 판정하고 있다. 제염계수를 10으로 선정한 이유는 정화 기능은 충분(90% 이상 제거)하나 조만간 수지의 제거능이 포화될 가능성이 높고, 일시적인 과부하(핵연료 손상등)시에 적절히 대응하기 위함이다. 냉각재중의 방사능을 띤 성분중에는 이온교환기에서 제거가 가능한 이온성분과 필터에 의해서 주로 제거되는 입자성 물질도 함께 존재한다. 운전중의 부식생성물의 입도분포 측정 결과에 따르면 90%정도가 0.45 $\mu\text{m}$ 필터에 제거되는 입자성 물질로서 필터가 탈염기 후단에 설치되어 있는 경우는, 탈염기에서 입자성 부식생성물의 완벽한 제거가 어렵기 때문에 새수지를 충전하였다더라도 제염계수가 10이하를 나타낼 수 있다. 또한 냉각재내에 함유된 방사성 기체핵종들은 대부분 반감기가 짧기 때문에 시료채취후 붕괴된후 이온성 핵종으로 새로이 생성됨으로서 탈염기의 제거능이 낮아진 것처럼 나타난다.

## 3. 원전 1차계통 탈염기수지 특성 및 제거용량 (정화탈염기 기준)

### 가. 수지 특성

원자력발전소에 사용하는 이온교환수지는 일반 산업용 수처리에 쓰이는 수지와는 다른 Nuclear Grade로서 양이온수지인 경우  $\text{Na}^+$ 형 대신  $\text{H}^+$ 형, 음이온수지인 경우  $\text{Cl}^-$ 형 대신  $\text{OH}^-$ 형을 사용함으로서 냉각재내로 유입될 수 있는  $\text{Na}^+$ 와  $\text{Cl}^-$ 를 엄격히 제한하고 있다. 원자력발전소에서 사용되는 강산성 양이온수지와 강염기성 음이온수지의 사양은 다음과 같다.

표 1 정화탈염기 수지 사양

수지명		양이온수지	음이온수지	비 고
수지 형태	사용전	$\text{H}^+$ 형	$\text{OH}^-$ 형	
	사용시	$\text{Li}^+$ 형	$\text{H}_2\text{BO}_3^-$ 형	
교환 용량		1.8(meq/ml)	1.2(meq/ml)	
수지 충전량		500(ℓ )	500(ℓ )	30~35 ft <sup>3</sup>
총 교환능		900( eq )	600( eq )	
이온제거량		17.4 kg ( $^{60}\text{Co}$ 기준)	78.6 kg ( $^{131}\text{I}$ 기준)	

나. 제거 능력에 근거한 탈염기 사용 시간

원전 냉각재 정화는 화학 및 체적 조절계통으로 연속적으로 일정량의 냉각재를 취출한 후 정화탈염기와 필터를 거치면서 방사성 물질과 화학적 불순물이 제거된다. 냉각재내에는 방사성 물질보다 비방사성 물질이 더 존재하지만 방사능 농도를 기준으로 정화탈염기의 용량이 어느정도 사용할 수 있는지 살펴보면 다음과 같다.

냉각재 비방사능을 농도로 환산하는 식은 다음과 같다.

$$A (\mu \text{Ci/cc}) = 37000(\text{dis}/\mu \text{Ci}) \frac{T_{1/2} (\text{sec})}{\text{Ln}2} \frac{M.W(\text{g/mole})}{\text{Avogadro수}(\text{dis/mole})} 10^9 \frac{(\text{ppb})}{(\text{g/cc})}$$

위의 식을 활용하면, <sup>58</sup>Co의 비방사능(1 μCi/cc)는 <sup>58</sup>Co 무게농도로 0.0315ppb 이고 <sup>131</sup>I의 비방사능(1 μCi/cc)은 무게농도로 0.000807ppb 에 상당하다. 그러나, 냉각재중의 비방사능은 10<sup>-3</sup> μCi/cc 이하이기 때문에 화학적인 방법으로는 측정이 불가능하다. 이렇게 낮은 방사성 물질의 질량 농도로 인해 탈염기의 사용 수명은 CVCS letdown(탈염기 통과)유량이 약 23m<sup>3</sup>/Hr(100gpm) 일 때 양이온 수지와 음이온 수지의 예측 사용 시간은 각각 양이온수지 2.41e<sup>7</sup> 시간, 음이온수지 : 1.41e<sup>8</sup> 시간 즉 16095년 동안 사용 가능한 용량이다.

#### 4. 탈염기 교체원인 분석

##### 가. 화학종 제염계수 저하 원인

기술지침서에서 F, Cl의 냉각재 농도 제한치는 0.15 ppm 으로 깨끗한 음이온 수지를 주입했을 때 냉각재중 초기 농도가 각각 0.15 ppm정도이며, 보충수와 봉산수중의 F, Cl의 농도가 0.15ppm으로 계속해서 시간당 1 m<sup>3</sup>로 Boration/ Dilution 한다고 가정할 때 사용 가능한 수리의 처리 능력은 약 4년 정도 된다. 실제로 원자로 보충수탱크(RMWT)의 순수와 원자로 교체용수 저장탱크(RWST)의 봉산수중에는 F, Cl의 농도가 0.15보다 훨씬 낮으며 실험실에서 분석한 결과에 의하면 측정장비 검출한계보다 낮은 값을 갖기 때문에 F, Cl 농도 증가로 인해 탈염기 운전 도중에 교체할 가능성은 거의 없다.

##### 나. 핵분열 생성물에 의한 제염계수 저하

원자력발전소에서 정격 출력에 필요한 에너지를 발생하기 위해 필요한 우라늄량은 약 MWD 당 1.05g 이 필요하다. 이를 국내 원전의 1000 MW 용량을 기준으로 할 때 하루에 약 1.05kg의 우라늄이 핵분열된다. 연료의 평균 연소기간을 500일 이라 가정할 때 525Kg의 우라늄이 핵분열되고 그에 상당하는 핵분열 물질이 핵연료봉 내에 잔류한다고 볼 수 있다. 핵분열시 생성되는 이온성 분열물질들의 비율 중 특히 이온화가 가능한 핵종들만을 고려하였을 때의 비율은 표 2와 같다.

표 2. 이온성 핵분열생성물 분율

핵분열 생성물		분열수율(%) ( U+Pu)/2 )	총합(%)
양이온성	<sup>86</sup> Rb	2.5	98.2
	<sup>89</sup> Rb	3.2	
	<sup>90m</sup> Rb	1.0	
	<sup>91</sup> Rb	3.9	
	<sup>89,90,91,92,93</sup> Sr	22	
	<sup>91,92,93</sup> Y	13.9	
	<sup>103,105,106</sup> Ru	10.5	
	<sup>137,138,139</sup> Cs	18.5	
	<sup>139,140,141,142</sup> Ba	22.7	
음이온성	<sup>84</sup> Br	0.7	37.7
	<sup>131,132,133,134,135,136</sup> I	37	

위 이온들의 전체 합은 약 140%이며 나머지는 불활성 기체 핵종과 비이온성이 약 60% 정도가 된다. 원자력발전소의 설계기준은 대개 핵연료 손상율을 전체핵연료봉의 1%로 기준하고 손상부위를 통해 모든 핵분열물들이 냉각재로 유출(유출율 100%)된다는 가정하에 냉각재에 유출되는 분열물들의 질량은 대략 4.2kg으로(525kg(U)×160/200×0.01)설정 하였으며 핵분열 단편물질들이 냉각재 내로 유출될 것이다. 그러나 정화탈염기의 정화능력은 약 113kg 즉 양이온성 35 kg(원자량 137, 2가 이온 기준), 음이온성 78kg (Iodine 기준 )으로서 유출되는 모든 분열물들을 제거할 수 있는 용량이다. 그러나 탈염기의 제염계수는 계산상에 의한 교환시기의 지표로 단지 참고수치일 뿐이며, 실제 고리2호기 핵연료 손상시 수지의 방사는 농도가 너무 높아 교체 시기와는 상관없이 취급상의 문제야기로 인해 운전중에 수지 교체한 경험이 있다.

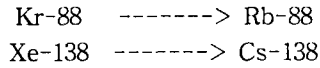
다. 방사화 부식생성물에 의한 제염 계수 저하

원자로내 재질의 중성자 반응에 의한 방사화되는 핵종들은 붙임 2.와 같다. 재질의 중성자에 의한 방사화는 다음식과 같으며,

$$A = \lambda N = \phi N_0 \sigma (1 - e^{-\lambda t})$$

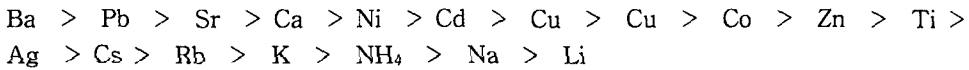
여기서 :  $\phi = 7.0 \text{ e}^{13} \text{ n/cm}^2\cdot\text{sec}$   
 $N_0 = \text{아보가드로 수} * \text{g수} / \text{M.W}$   
 $\sigma (\text{Ni-58}) = 0.146 \text{ e}^{-24} \text{ cm}^2$   
 니켈중 Ni-58의 동위원소비 = 0.683

위에서 <sup>58</sup>Co을 기준으로 할 때 생성되는 비방사능은 약 2Ci/g Ni 정도이다. 정지화학처리 기간중 노심내외의 방사능재고량중 외부 산화피막이 30%정도 제거 된다고 가정하면 운전 및 정지화학처리시 제거되는 총 방사능은 약 2000Ci 정도가 되고 제거되는 Ni 량은 대략 2000Ci / 2Ci/g.Ni = 1.0 kg Ni(노심내) 정도로 측정되며 노심외의 Ni 재고량은 약 3.3 kg정도가 될것이다. 또한 냉각재 재질 표면적비는 노심 내/외비가 대략 1:3으로 노심내 표면적 (25%;주로 핵연료봉 표면) : 노심외 표면적 (75%; 증기발생기 세관표면) 운전 및 정지시 산화제에 의해 냉각재로 유출되는 경향이 노심내외에서 비슷하다고 가정하면 약 4kg의 Ni이 제거될 수 있을 것으로

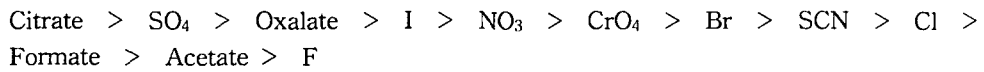


이때의 모핵종(Kr)의 비방사능은  $C_A = C_{A0} e^{-\lambda A t}$  이고 딸핵종(B)의 비방사능은  $C_B = (\lambda A / \lambda B - \lambda A) C_{A0} (e^{-\lambda A t} - e^{-\lambda B t})$  으로서 위의 식을 기본으로 냉각재중의 Kr-88과 Xe-138의 방사능에 따라 생성되는 비율은 시료채취후 탈기까지 15분이 경과했을 때 Rb-88은 Kr-88의 25%, Cs-138은 Xe-138의 45%가 새로 생성되므로 이로 인해, 탈염기의 제염계수는 원하는 10이상을 얻기가 매우 힘들다는 것을 알 수 있다. 만약 일부 자료에서 언급하는 Rb와 Cs의 이온선택성이 낮아 제염계수가 낮다고 하면 아래의 이온선택성 순서와 상반된다.

양이온 선택성 순서



음이온 선택성 순서



#### 다. 감마핵종 분석시의 계산 오차

방사능 분석은 감마핵종 분석기의 분석라이브러리에 입력된 상수값을 사용하여 계산하며 만약 핵종분석 라이브러리에 잘못된 값이 입력되었을 경우 시료의 방사능 계산이 차이가 날 수 있다 이 부분은 핵종분석기 공급자가 공급한 핵종 라이브러리와 현재 입력하여 사용중인 라이브러리를 비교하여 수정하여야 한다.

## 6. 토의 및 결론

원자력발전소 1차계통에 쓰이는 수지의 성능검사를 위해 사용하고 있는 현재의 제염계수 측정법은 다음과 같은 두가지 이유로 완벽하지 않음을 알 수 있다. 첫째, 냉각재중의 방사능을 띤 성분중에는 이온교환기에서 제거가 가능한 이온성분과 함께 필터에 의해 제거되는 입자성 물질도 함께 존재하므로 탈염기의 제염계수 측정 절차는 입자성 물질을 제거한 후 측정 해야 하며, 특히 수치 교체를 결정하기 위한 제염계수 측정시에는 여과된 여액으로 방사능 농도를 측정하는 것이 바람직하다. 둘째 운전중인 냉각재의 시료중에는 핵분열 수율이 높고 핵연료봉 손상부위로 유출이 잘되는 불활성 기체핵종들은 시료채취후 곧바로 붕괴되기 때문에 새로 생긴 핵종으로 인해 마치 탈염기의 제거능이 낮은 것으로 판단될 수 있다. 이러한 원인을 충분히 고려하여 제염계수를 판정하고 이에 맞게 측정 절차를 수립하는 것이 바람직하다고 본다.