

'98춘계 학술발표회 논문집

한국원자력학회

## 차세대원전 일차계통 방사화 부식생성물 평가 연구

송민철, 이건재

한국과학기술원

한병섭

한국전력기술주식회사

### 요약

원전 발전의 초기단계에서는 작업자 피폭의 대부분이 핵연료 파손에 의한 피폭이었으며, 부식 생성물의 방사화에 의한 피폭이 상대적으로 적었으나 재료 가공 처리 기술의 진보에 의해 핵연료 파손율이 감소함에 따라 상대적으로 부식 생성물의 축적에 의한 작업자 피폭이 해결해야 할 중요한 과제가 되었다. 여러 가지 자료들을 통해 작업자 피폭이 부식 생성물의 이동 메카니즘들에 의해 일어남이 밝혀지고 ICRP 권장 작업자 피폭 제한치가 연간 5rem 에서 2rem 으로 대폭 하향 조정됨에 따라 부식 생성물의 제어와 예측이 필요하게 되었다. 이를 위해 본 연구에서는 COTRAN을 이용해 차세대 원전 1차계통내 부식 생성물 평가를 하였다. 특히 여러인자중 pH, 재질 및 제염 등을 고려하여 각각에 대한 영향을 평가하였다.

### 1. 서론

보편적으로 적용되는 냉각계통 수화학의 목적은 구성 기기 및 재료의 건전성을 확보하고 핵연료의 건전성을 확보하는 동시에 노심 외부의 방사능 준위를 최소화하는데 있다. 가압경수로 1차계통에서 pH 조절에 의한 방사선 피폭저감이 전 세계적인 추세이지만 현재 가장 중요한 문제점은 최적 pH와 수산화 리튬(LiOH)농도를 결정하는 것이다. 일반적으로 최적 pH는 지르칼로이 피복재의 부식이나 증가 발생기에서 감성이 있는 인코넬 600튜브(또는 690)의 1차측 응력부식 등을 가속시키지 않고 어느 정도의 리튬농도를 증가시킬 수 있는가에 대한 불확실성 때문에 지속적인 연구가 필요하다. 신규 원전의 경우는 수화학적 제어 방법과 더불어 계통의 재질을 방사선원의 모핵종(Co)을 적게 함유한 재질로 선택함으로써 방사선 피폭을 근본적으로 차단할 수 있는 방법을 고려중이다. 그러나 1차계통에서의 부식 생성물에 의한 방사성 물질의 생성, 축적을 평가, 예측 할 수 있는 방법론이나 도구의 개발이 아직 이뤄지지 않음에 따라 작업자 관리, 계통 설계, 방호 시스템 설계를 체계적으로 수행 할 수 없는 실정이다.

가압경수로에서 고려되는 주된 장수명 선원항에는  $Co^{59}$ 의 중성자 조사로 발생되는  $Co^{60}$ 이 있다.

또한 Ni<sup>58</sup>로부터 야기되는 Co<sup>58</sup>이 Co<sup>60</sup>에 이어 방사선장에 대한 두 번째 선원이다. Co<sup>58</sup>은 발전소의 초창기 방사선장 형성에 미치는 주요한 핵종이며 운전년수가 증가할수록 Co<sup>60</sup>이 중요한 핵종으로 나타난다. 방사능 핵종의 일부는 정화계통을 통해 제거되지만 노심 외부 계통표면의 부식막으로 핵종들이 끼어들어 방사선장의 증가를 가져온다. 발전소별 방사선 준위의 차이는 운전년수 이외에도 기타인자(수화학 체계, 구조재의 재료 등)들에 의해 영향을 받게되며 운전이력에도 영향을 받게된다.

부식생성물은 원자로 냉각재 내에서 고체형태 또는 용해성물질의 형태로 운반된다. 부식생성침적물들은 산화금속이며 비 화학양론적인 니켈페라이트(Ni<sub>x</sub>Fe<sub>3-x</sub>O<sub>4</sub>)의 형태를 가진다. 또한 Co의 농도가 낮은 경우에 Co<sub>y</sub>Ni<sub>x</sub>Fe<sub>3-x-y</sub>O<sub>4</sub>의 형태를 가지게 되고 이때 y는 x보다 매우 작은 값을 가진다. 증기발생기 튜브 내부는 두 개의 층으로 구성되는데 안쪽 층은 Ni-Cr-Fe 스피넬이며 바깥층은 니켈페라이트로 되어있다. 이 니켈페라이트는 1차계통내의 온도와 화학조건이 위치마다 다르기 때문에 그 화학적 조성도 달라지며 주어진 위치에서 어떠한 조성이 안정적인지를 결정하게 된다.

## II. 본론

### 1. 부식생성물의 거동

#### 1.1 CRUD의 발생

CRUD 내의 비방사성 금속은 급수계의 배관 기기의 부식에 의해 발생한 급수에 의해 냉각재 내에서 유입된 것과 원자로 냉각계 배관 및 연료봉 구성재의 부식에 의해 직접 냉각재에 방출되는 것으로 구분할 수 있다.

Fe는 급수계 및 1차계통의 구조재에 있는 탄소강이 주발생원으로 급수와 함께 냉각재 내에 유입되거나 1차계통 구조재에서 직접 누출된다. Ni, Co는 구조재에 있는 탄소강, 스테인레스, stellite의 부식에 의해 발생하는 것이 누출된 것과 급수계 가열 tube의 스테인레스에서 발생하는 것이 급수에 의해 냉각재로 유입된다. 또한 1차 계통 구조재에서는 금속 및 방사능이 부식에 의하여 직접 냉각재에 방출된다.

#### 1.2 연료봉에서의 거동

냉각재종의 금속은 연료봉에 부착되며 방사화되어 CRUD로 된다. 또한 이것들은 이탈, 용출되는 것에 의해 여러 가지 방사능 CRUD 및 방사능 ion이 되어 냉각재로 방출된다.

#### 1.3 배관에서의 거동

배관에서는 냉각재종 ion이 부식피막 내부에 복잡하게 축적된 층과 그 표면에 CRUD가 부착되어 형성된 층이 있다. 앞의 것은 산화 내층, 뒤에 것을 산화 외층(또는 축적 층)으로 분류해 생각한다. 즉, 해석에서는 이러한 층은 균일하게 부착하고있다고 가정한다.

#### 1.4 제염 및 연료교환에서의 CRUD의 노외 방출

연료교환에서의 CRUD의 노외 방출을 고려할 때 노심 핵연료봉의 CRUD 축적량이 연료 재장전 비율만큼 제거된다고 가정한다. 또한 제염에 의한 CRUD는 제염계수(DF)를 이용한 일정 분율만큼의 제거로 가정한다.

### 2. 해석 프로그램

기존 프로그램은 주기중의 화학 운전 결과를 해석함이 주된 목적이었으나 본 연구의 경우 원전의 운전 수명동안의 해석을 주된 목적으로 수행하고있기 때문에 기존 프로그램의 수행 조건들을 실제

장주기 운전에 적합하도록 변형하였다. 주된 변경 사항으로는 1) 주기 사이에서 수행되는 제염 조건을 포함, 2) 핵연료 재장전에 의한 노심 부식 생성물의 제거, 등을 들 수 있다.

### 2.1 운전이력

KNGR에 대한 기상 운전 이력자료의 설정은 운전 pH를 조정함으로써 반영해준다. pH 값을 6.8 ~ 7.4 로 변화시킴에 따른 운전 결과를 해석한다.

### 2.2 부식에 의한 금속, 방사능 발생량

원자로 냉각재 배관에서의 부식에 의해 냉각재로의 금속 발생량, 연료체 구성재료로부터의 방사능 발생량을 평가하기 위해 계통 재질의 조성을 변화시킨다.

### 2.3 방사능 생성량

방사능 생성량이라는 것은 연료 구조재료로부터의 생성량을 평가한다. 방사능 용출 속도의 계산에 있어 비방사능 S( $\mu\text{Ci/g}$ )은 아래의 식에서 계산된다.

$$S = \phi \sigma N_A (1 - \exp(-\lambda t))$$

여기서,

$$\begin{aligned} \phi &: \text{중성자속} & (\text{n/cm}^2/\text{s}) & \quad \sigma &: \text{방사화단면적} & (\text{cm}^2) \\ N_A &: \text{아보가드로 수} & 6.02 \times 10^{23} & \quad \lambda &: \text{Co}^{60} \text{의 붕괴상수} & (\text{s}^{-1}) \end{aligned}$$

### 2.4 핵연료 교환 및 제염 효과

방사능 생성량의 계산에 있어 연료 교환에 의한 간접적인 제염효과를 고려하기 위해 연료봉을 3분할하여 연료 교환이 수행된다고 계산한다. 주기 말에서 다음 주기 초에 일어나는 1차계통에서의 제염의 효과를 고려해주기 위해 부식생성물 및 방사성 물질의 제염계수를 도입하여 방사성물질의 저감을 묘사한다. 이러한 과정에는 원전이 기동후 정상 상태 운전으로 유지될 때까지의 과정과 주기말 shutdown후에 실제 제염이 일어날 때까지의 부식 생성물 및 방사성 물질의 재배치도 포함한다

### 3. 해석적 방법론

수학적 모델의 해석하는 매우 많은 변수와 비 선형적인 특성에 의해 해석해를 구하기 위해서는 적절한 가정과 단순화가 필요하다. 부식 생성물의 거동 해석에 있어서 입자상의 존재를 무시하면 노심 영역에서의 물질 이동식은 다음과 같이 해석해를 유도해낼 수 있다. 이러한 가정은 1차계통에서의 입자상 부식 생성물의 역할이 중요시되고있으나 많은 발전소에서의 실측 자료 및 평가 자료들을 취합한 결과 입자상 부식 생성물이 이온상의 약 1/10정도 존재한다는 결과를 이용하여 그 타당성을 부여할 수 있다.

$$\begin{aligned} C_y &= C_e + (C_y^0 - C_e) \exp[-\gamma t] \\ m_{y/o} &= m_{y/o}^0 + \frac{K_c(C_y^0 - C_e)}{\gamma} (1 - \exp[-\gamma t]) \end{aligned}$$

여기서,  $\gamma = \frac{P}{A} K_c$

또한 노심에서의 방사성 핵종의 이동은 정상 상태에서 산화 외층의 질량이 일정하게 유지된다고 가정하면

$$A_{i,y/o} = \frac{m_{y/o} + y}{z} + (A_{i,y/o}^0 - \frac{m_{y/o} + y}{z})e^{-zt}$$

여기서,  $y = \frac{K_d A_{i,b} S_b}{C_b}$ ,  $z = \frac{K_d S_y}{m_{y/o}} + \lambda$

$C_y$  = y 노드에서의 이온농도(g/cm<sup>3</sup>)       $C_o$  = 포화층에서의 이온농도(g/cm<sup>3</sup>)

$A$  = 유동단면적(cm<sup>2</sup>)       $P$  = Perimeter

$K_c$  = 침적계수(cm/s)       $K_d$  = 용출계수(cm/s)

$m_{y/o}$  = y노드 산화외층의 축적량(g)       $\lambda$  = 붕괴상수(1/s)

$A_{i,y/o}$  = y노드 산화 외층에서의 방사능( $\mu$ Ci/cm<sup>2</sup>)

$S$  = 용해도

#### 4. 컴퓨터 코드를 이용한 결과

본 연구를 통해 개발한 프로그램을 이용하여 차세대 원자로를 대상으로 한 부식생성물 거동을 평가는 현재 KNGR의 정확한 설계 방침이 알려지지 않았기 때문에 화학 운전 조건, 제염의 정도, 핵연료 재장전 분율, Co함량에 따른 계통 재질의 변경 및 재장전주기 등의 여러 가지 조건들에 대한 해석을 수행하였다. 이를 통하여 각 조건들의 변화에 의한 방사성 핵종들의 축적을 평가하고 이를 원전 수명 기간동안 안전하였을 때 예측되는 방사성 핵종의 축적량을 추정하였다. 이때 설정한 기준 값은 고 pH, Inconel 690, 3 batch 및 장주기 운전을 기본으로 설정하였다.

원전 수명을 60년으로 가정하여 계산을 수행한 결과 주기 초기에는 Co<sup>58</sup>의 방사능이 Co<sup>60</sup> 보다 높게 나타났다. 이는 Co<sup>58</sup>의 노심에서의 생성량이 Co<sup>60</sup>에 비해 많기 때문이다. 그러나 주기가 반복될수록 증기 발생기에서의 Co<sup>60</sup>은 방사선 붕괴에 의해 소멸되는 비율이 적기 때문에 계속 축적되는 현상을 나타내었다. Co<sup>58</sup>은 비교적 빠른 시간 안에 포화 상태를 유지하며 Co60은 반감기정도 지난 후에 포화되는 경향을 나타내었다 pH 6.9에서 계산한 결과 노심이 증기발생기보다 높은 방사능 준위를 나타내었으며 해석 결과 증기발생기에서의 Co<sup>60</sup> 및 Co<sup>58</sup>의 농도는 각각 5,10  $\mu$ Ci/cm<sup>2</sup>이며 pH 7.4자료에 의한 해석 결과 각각 1.5, 3  $\mu$ Ci/cm<sup>2</sup> 로 예측되었다.

### III. 결론

본 연구를 통해 개발한 프로그램을 이용하여 차세대 원자로를 대상으로 한 부식생성물 거동을 평가한 결과 다음과 같은 결론을 내릴 수 있다.

(1) pH를 기존의 운전모드인 pH 6.9에서 고 pH 운전(pH 7.4)으로 증가시킴에 따라 용해도의 절대량은 감소하였으며 노심 및 증기 발생기의 방사능 준위의 현격함 저감을 가져왔다. 따라서 고 pH 운전이 방사능 준위의 현격한 저감을 가져옴을 알 수 있었다.

(2) 운전기간이 증가함에 따라 Co<sup>58</sup>/Co<sup>60</sup>의 비가 감소한다. Co<sup>60</sup>의 상대적인 중요성이 커짐에 따라 1차 계통 재질 내에서의 Co 저감화 노력이 장기적인 피폭 관리 측면에서 중요한 변수가 됨을 알 수 있었다. 이용 가능한 자료를 이용하여 증기 발생기에서의 방사능 축적량을 계산한 결과 Co<sup>58</sup> 및 Co<sup>60</sup>이 각각 5~10 및 1~5  $\mu$ Ci/cm<sup>2</sup> 정도 축적되는 것으로 예측되었다. 이로부터 내식성이 강한 증기발생기 재질, 내마모성이 강하고 Co함량이 낮은 기기 및 배관의 재질 변경 등의 방법을 적용, 적절한 운전 조건의 설정, 효율성 높은 제염 방법 등을 적용하면 1차계통에서의 작업자 피폭선량을

상당량 낮출 수 있을 것으로 판단된다.

그러나 컴퓨터 코드를 이용한 KNGR에서의 부식 생성물의 거동해석에는 물질(부식 생성물 및 방사능) 이동을 지배하는 물질전달 계수를 선정하기 위한 많은 운전자료 및 측정자료(각 부위의 부식 생성물 및 방사능의 양)가 필요하며, 또한 이동현상의 기술에 필요한 각 메카니즘에 대한 지식이 필요하다. 이를 위해 폭넓은 1차계통에 대한 연구와 자료의 입수가 수반되어야한다.

### Acknowledgment

본 연구에 도움을 주신 한국전력기술(주)의 이여중 선배님 및 여러분들께 감사함을 드립니다. 본 연구는 한국전력기술(주)의 과제 일환으로 수행되었습니다.

### 참고문헌

- 1) PWR Primary Water Chemistry Guideline: Revision 3 ,EPRI, 1995, TR-105714
- 2) Chris Wood, "Approaching Consensus on the Optimum pH for PWRs", Nucl. Eng. Int, p28, August 1990
- 3) 원전 1차계통 방사선량 감소기술개발, 한국전력공사, KRC-90N-J04
- 4) K. Abe, H. Mizusaki and H. Ohta, "Solubility Measurement of Crud and Evaluation of Optimum pH", International Conference on Water Chemistry in Nuclear Power Plants, JAIF, Apr., 1991
- 5) P. Beslu, G. Frejaville and A. Lalet, "Computer Prediction in Radiation Exposure Reduction", International Conference on Water Chemistry in Nuclear Power Plants, JAIF, Tokyo, 1988

운전 주기 (cycle)	재질	pH	SG crud (mg/cm <sup>2</sup> )	Core crud (mg/cm <sup>2</sup> )	SG Co60 (μCi/cm <sup>2</sup> )	SG Co58 (μCi/cm <sup>2</sup> )	SG Co58/Co60	Core Co60 (μCi/cm <sup>2</sup> )	Core Co58 (μCi/cm <sup>2</sup> )	Core Co58/Co60
1	Inconel 600	pH 7.4	.440E-01	.476E-01	.959E+00	.437E+01	.456E+01	.369E+00	.265E+01	.720E+01
1	Inconel 600	pH 7.2	.532E-01	.823E-01	.125E+01	.602E+01	.481E+01	.968E+00	.785E+01	.811E+01
1	Inconel 600	pH 7.0	.605E-01	.109E+00	.142E+01	.684E+01	.482E+01	.166E+01	.135E+02	.812E+01
1	Inconel 600	pH 6.9	.641E-01	.121E+00	.146E+01	.704E+01	.481E+01	.207E+01	.166E+02	.801E+01
1	Inconel 600	pH 6.7	.746E-01	.146E+00	.157E+01	.751E+01	.478E+01	.285E+01	.229E+02	.801E+01
1	Inconel 690	pH 7.4	.452E-01	.489E-01	.933E+00	.445E+01	.447E+01	.311E+00	.277E+01	.890E+01
1	Inconel 690	pH 7.2	.550E-01	.844E-01	.132E+01	.621E+01	.470E+01	.868E+00	.794E+01	.915E+01
1	Inconel 690	pH 7.0	.635E-01	.112E+00	.152E+01	.712E+01	.469E+01	.151E+01	.137E+02	.907E+01
1	Inconel 690	pH 6.9	.676E-01	.125E+00	.159E+01	.742E+01	.466E+01	.184E+01	.165E+02	.899E+01
1	Inconel 690	pH 6.7	.766E-01	.149E+00	.172E+01	.794E+01	.461E+01	.257E+01	.227E+02	.884E+01
30	Inconel 600	pH 7.4	.436E-01	.330E-01	.121E+01	.306E+01	.253E+01	.381E+00	.169E+01	.443E+01
30	Inconel 600	pH 7.2	.755E-01	.968E-01	.312E+01	.712E+01	.228E+01	.244E+01	.115E+02	.470E+01
30	Inconel 600	pH 7.0	.106E+00	.152E+00	.444E+01	.949E+01	.214E+01	.448E+01	.235E+02	.524E+01
30	Inconel 600	pH 6.9	.116E+00	.172E+00	.498E+01	.978E+01	.196E+01	.526E+01	.297E+02	.564E+01
30	Inconel 600	pH 6.7	.148E+00	.218E+00	.597E+01	.111E+02	.186E+01	.773E+01	.426E+02	.551E+01
30	Inconel 690	pH 7.4	.409E-01	.300E-01	.118E+01	.286E+01	.241E+01	.304E+00	.142E+01	.468E+01
30	Inconel 690	pH 7.2	.775E-01	.989E-01	.325E+01	.725E+01	.223E+01	.224E+01	.117E+02	.524E+01
30	Inconel 690	pH 7.0	.109E+00	.154E+00	.475E+01	.935E+01	.197E+01	.401E+01	.248E+02	.620E+01
30	Inconel 690	pH 6.9	.121E+00	.176E+00	.526E+01	.100E+02	.190E+01	.499E+01	.308E+02	.617E+01
30	Inconel 690	pH 6.7	.147E+00	.217E+00	.608E+01	.112E+02	.185E+01	.748E+01	.417E+02	.558E+01

표. 계통 재질 및 pH에 의한 부식 생성물 및 방사성 핵종의 농도분포

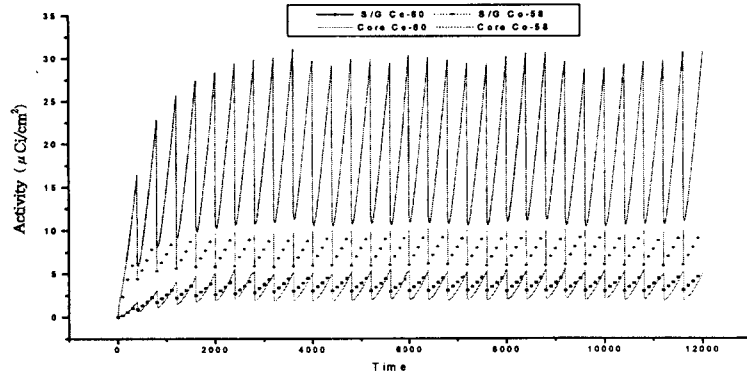


그림1. pH 6.9에서의 방사능 축적량

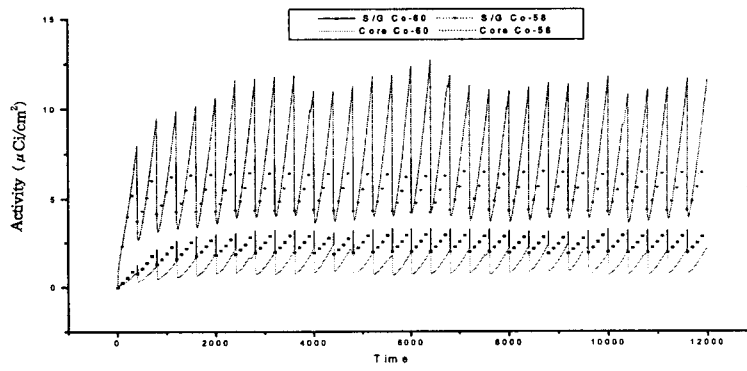


그림2. pH 7.2에서의 방사능 축적량

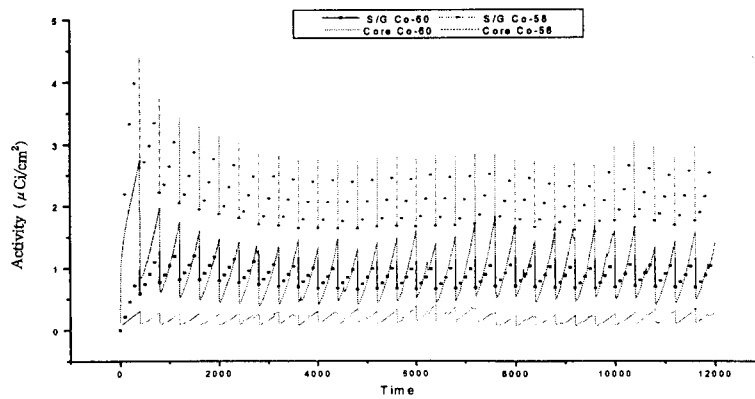


그림3. pH 7.4에서의 방사능 축적량