

용해도 측정을 위한 고온·고압 흐름측정 장치의 최적화

최계천, 황대식, 인제원, 송규석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150

nkccchoi@kaeri.re.kr

1 서론

원자력 발전소의 운영은 냉각계통 내에서 진행되고 있는 부식, 질량 이동, 부식생성물의 침적 그리고 방사능의 전파와 같은 수많은 물리·화학적 공정들과 연계되어 있다. 이러한 냉각계통 내에서 일어나는 공정들은 에너지자원 극대화를 위한 핵연료 교체주기의 장주기 추세로 인하여 금속의 부식 정도, 온도, 유체 역학, 그리고 냉각재의 화학적 조성 같은 수많은 물리·화학적 요인들에 의해 더욱 많은 영향을 받게 된다. 이러한 이유로 현재 상업발전 중인 원자력 발전소의 신뢰도와 안정성을 위해서는 현존하고 있는 발전소의 수화학 조절에 대한 향상이 필요한 실정이다. 최적의 수화학 조건에서 원전을 운영하기 위해서는 냉각재 내 순환계 및 계통 조건에서 질량이동, 침적 및 부식생성물의 용해도에 미치는 영향에 대한 구체적인 자료가 필요하다. 특히 구조물 및 계통 내 부식현상은 재료물질의 용해도와 온도 및 압력 등 원자로의 운영환경조건에 따라 크게 달라진다. 용해도를 시험하는 방법에는 고전적(static state)인 방법과 유동적(dynamic state)방법을 이용할 수 있다. 유동적인방법으로서 용해도 흐름측정 장치는 시료의 표면적을 크게 하여 화학평형에 도달하는 시간을 크게 단축시켜 주고 같은 조건의 시료를 반복하여 측정할 수 있어 측정 자료에 대한 신뢰도를 확보할 수 있는 장점이 있다. 흐름측정 장치는 원자로 내 냉각재의 순환계를 모사할 수 있는 loop 시스템으로서 향후 원자로 냉각재 내 용해도 측정자료 생산 시 보다 현장성에 접근된 결과를 도출할 수 있을 것으로 생각된다. 본 연구에서는 저온에서 금속산화물에 대한 화학평형농도를 고전적인 정제상태와 유동적인 흐름 상태에서 시험하여 그 결과를 비교하였다. 또한 고온에서 니켈페라이트의 용해도측정을 위한 흐름측정 장치의 최적화 조건을 결정하기 위하여 물리·화학적 변수에 대하여 조사하였다.

2. 실험 및 결과

붕산수매질을 순환계에 주입하였을 때 흐름측정 장치의 시스템으로부터 용출되어 나오는 Fe 및 Ni 이온에 대한 농도를 측정하기 위하여 용출되는 용액을 0.22 μm 원판 거르개로 여과한 후 분석하여 재료로부터 용출되는 금속이온의 농도와 함하여 바탕 값으로 결정하였다. 시스템의 최적화를 위한 매질의 유속을 결정하기 위하여 붕산수 용액을 320°C에서 0.22 ~ 1.20 ml/min의 유속으로 흘려 보내준 다음 용출 액에 대한 금속이온의 농도를 정량하였고, 같은 유속으로 4회씩 반복하여 시료를 취한 후 금속이온의 농도에 대한 평균값과 상대표준편차(RSD)를 구하였다. 흐름측정 장치를 이용한 용해도 측정 방법의 신뢰도 확보를 위하여 용출액을 50, 100, 200 ml를 각각 포집한 후 용출액속에 포함되어있는 Fe 및 Ni이온의 농도를 4회 반복 후 RSD 값을 산출하여 재현성을 확인하였다.

FTA를 이용한 용해도 측정시스템에서 $\text{NiFe}_2\text{O}_4\text{-H}_2\text{BO}_3\text{-water}$ 계의 화학평형농도를 측정하였다. Fe 이온의 경우 pH 4.8에서 48-50시간 후에 평형에 도달하였고 pH 7.0의 경우 알칼리도의 증가에 따른 가수분해물의 영향으로 평형도달시간을 측정하기 어려웠다. pH 8.9의 경우 pH 4.8의 경우와 같이 50시간 이 지나면 평형에 도달하는 것으로 나타났다. 같은 조건에서 Ni이온의 경우 pH 4.8에서 75시간이후에 평형상태에 도달하였으며 Fe의 경우보다 평형에 도달하는 시간이 긴 것으로 나타났다.

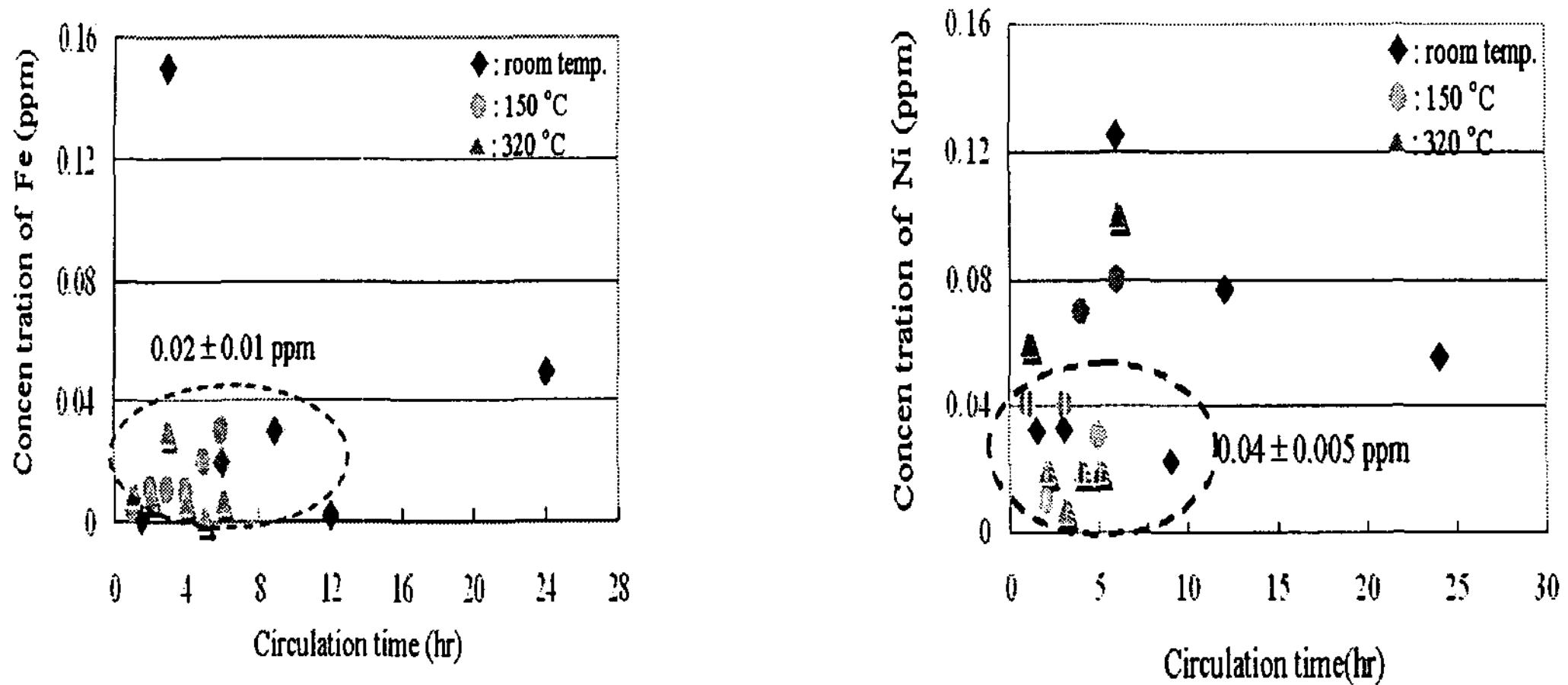


Fig 1. Background value of Fe, Ni according to temperature at flow through autoclave system

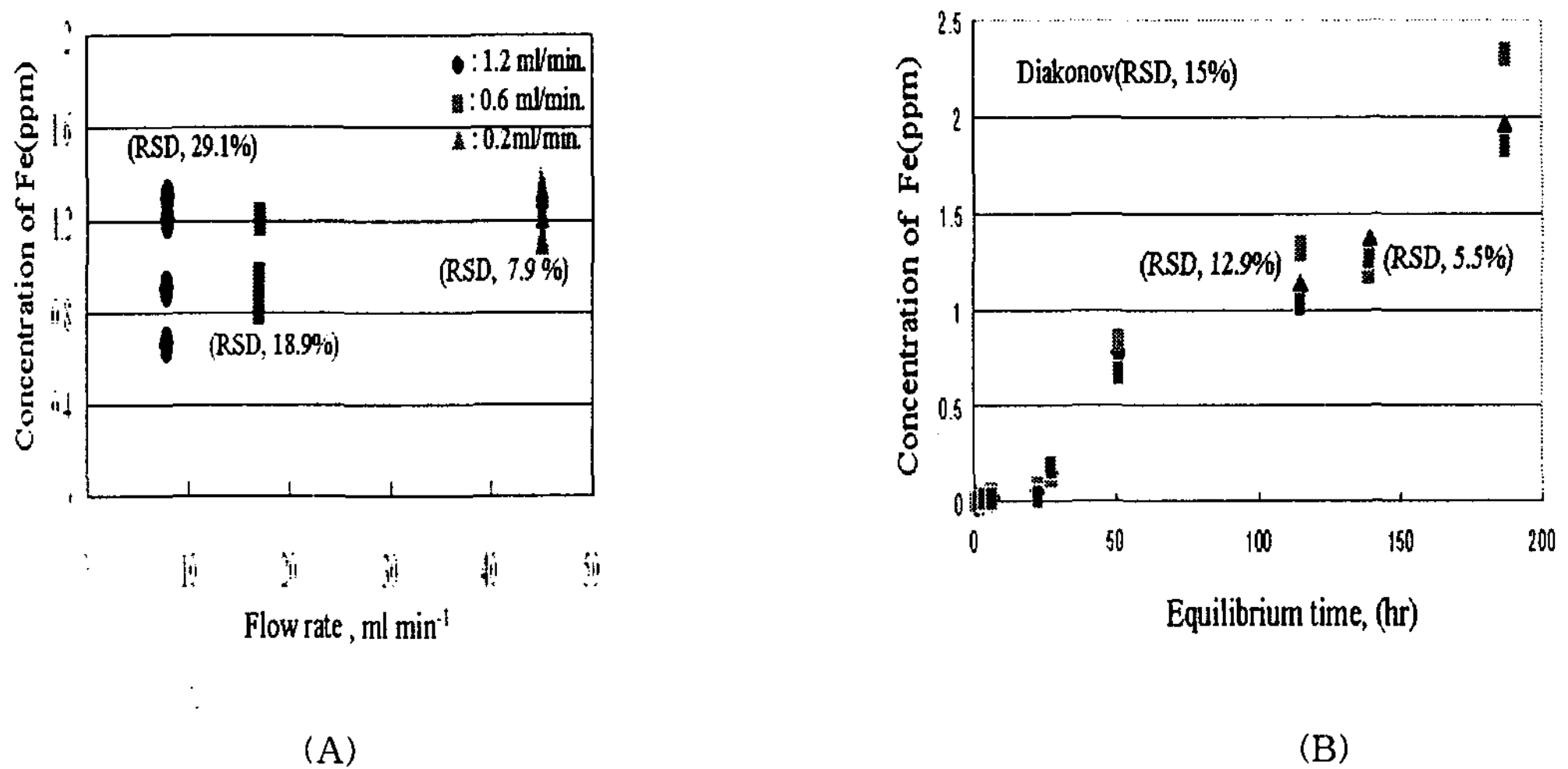


Fig 2. The flow rate dependence of measured Fe concentrations of feed solution (A), and the reproducibility of F_2O_3 solubilities in 1200ppm H_3BO_3 solutions by static state system. (B)

3. 결론

흐름측정장치를 이용한 니켈페라이트의 용해도를 측정하기 위하여 시스템의 바탕값 결정 및 매질의 유속, 재현성을 조사하였다. 고온고압하에서 시스템으로부터 용출되는 Fe 이온의 농도는 0.02 ± 0.01 ppm, Ni 이온은 0.040 ± 0.05 ppm 이었다. 반응기로 유입되는 최적의 유속은 0.2 ml/min (RSD 7.9%) 이었다. 시스템의 재현성을 알아보기 위하여 니켈페라이트 중 전체 철의 농도가 평형에 도달될 때의 농도를 3회 반복하여 측정한 결과 5.9~12.9%의 RSD 값을 나타내었다.

본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.