

우소방사능 수화학거동 특성 파악을 위한 정지시 화학처리 개선

최병선, 맹완영, 연제원, 박종석*, 이승호*, 김운상*, 송영일*

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 150

*한국수력원자력(주) 영광 3발전소, 전남 영광군 홍농읍 계마리 514

bschoi@kaeri.re.kr, parkiosu@khnppco.kr

1. 서론

핵증기공급계통 일차계통의 수화학의 목적은 어떤 운전 모드에서도 원자로 노심 및 기기들의 신뢰성 있고 안전한 운전을 보장하기 위하여 구조물의 부식을 최소화하고, 핵연료 다발에 부식생성물의 부착을 최소화하고, 구조물의 선택적인 부식을 배제하며 일차냉각재의 방사분해반응을 억제하는데 있다. 가압경수로(PWR) 일차계통에서는 반응도 조절을 위하여 노심 초기에서 고농도의 붕산 농도를 유지하여야 하는데 이렇게 높은 붕산 농도로 말미암아 일차계통의 원하는 pH를 유지하기 위하여 많은 양의 수산화리튬(LiOH)을 주입하여야 하고, 그 결과 높은 농도의 리튬은 지르칼로이의 부식 및 증기발생기 튜브의 응력부식균열을 초래할 수 있다. 국내원전에는 플랜트의 이용률을 향상시키기 위해 장주기/고연소도를 적용하고 있으며, 이에 따른 핵연료를 공급하고 있는 실정이다. 장주기 및 고연소도에 따른 핵연료 손상을 방지하고, 계통재료의 부식방지와 함께 방사선 작업종사자의 피폭저감에 필요한 최적화 된 수화학적 제어의 중요성이 증가하고 있다. 가동원전에서 핵연료 손상이 발생한 경우 다량의 방사성 기체가 발생되는데, 가동원전에서 발생하는 방사성 기체폐기물 중 방사성요오드는 발생량이 비교적 많을 뿐 아니라 인체 및 자연환경에 미치는 위해도가 크다. 따라서 방사성 요오드는 정상 운전시 뿐만 아니라 사고시에도 방사성 기체의 방출 규제치 이하로 처리되어야 한다. 이를 위하여 방사성요오드의 발생원 및 화학적 형태, 제거 방법등에 대하여 많은 연구가 수행되어 왔다. 본 연구에서는 영광3발전소 화학기술팀의 플랜트 운전경험 및 운전자료를 바탕으로 핵연료 결합이 발생했을 때 플랜트 정지시 작업종사자의 체내 피폭을 방지하고 최적의 작업환경을 조성하기 위하여 정지시 수화학 변수값에 따른 격납용기 대기중의 방사성 요오드의 농도변화를 시험하였으며, 이를 바탕으로 핵연료손상시 원자로 정지수화학 개선방안을 제시하였다.

2. 정지수화학 운전절차

가동원전의 정지운전시 원자로냉각재에 존재하는 요오드의 화학적 형태는 매우 다양하다. 국내 가동원전에서는 핵연료주기말에 발전소의 계획예방정비를 위해 원자로를 정지한 후 17℃/hr 이내에서 냉각 운전을 수행한다. 노심말기의 원자로냉각재의 붕산농도는 약 20~30 ppm하고 있기 때문에 정지여유도를 확보하기 위하여 재장전수탱크에 저장되어 있는 4,000ppm의 고농도 붕산수를 주입한다. 이러한 원자로 냉각과정에서 붕산주입에 따라 pH가 감소하고, 용존수소농도가 감소(40 cc/kg → 5.0 cc/kg)하게 됨으로써 원자로냉각재내에 용해되어 있던 코발트를 비롯한 방사선 핵종들이 용출되어 작업자의 피폭을 증가시키는 요인으로 작용하고 있다. 원자로의 온도가 약 150℃에 도달하면, 화학 및 체적제어계통의 탈염기를 이용하여 원자로냉각재에 존재하는 요오드를 제거하는 운전을 수행하여 원자로냉각재 내의 방사성 요오드 농도가 방사능 배수기준인 1.0E-02 μCi/cc를 만족할 경우 원자로냉각재계통으로부터 화학 및 체적제어계통의 수용탱크로 배수한다. 영광 5호기 및 6호기의 경우 이러한 요건을 만족시키기 위하여 배수시간을 원자로 정지 시점으로부터 각각 54시간, 45시간동안 정화운전을 수행한 후 약품주입(H₂O₂) 운전을 수행하여 원자로냉각재를 배수하였다. 한편, 영광3발전소의 정지시 격납용기 대기중의 요오드방사능 농도추이를 측정할 결과 영광 5호기와 6호기 격납용기 대기중 요오드 방사능농도의 경우는 매우 다른 양상을 보였다. 이는 정지수화학 운전방법에 따라 격납용기 대기중에 존재하는 요오드의 화학적 형태가 달라짐을 확인할 수 있었다. 그림 1에서 나타난 바와 같이 영광 5호기는 영광 6호기에 비해 격납용기 대기중 방사성 요오드농도가 매우 높게 나타났다. 이는 정지운전시 원자로냉각재내의 방사성요오드를 제거하기 위한 수화학적 운전절차에 따라 매우 다른 결과를 보이는 것으로 나타났다. 영광 5호기는 원자로냉각재계통으로부터 원자로냉각재 배수 이후에 I₂가 존재하여 격납용기내의 원자로 cavity 표면을 통해 휘발하여 격납용기 내부의 방사성 요오드의 농도가 매우 높았던 반면, 영광 6호기는 원자로

냉각계통내의 방사성 요오드의 산화수가 변화하여 $\text{IO}_3^- (aq)$ 형태로 존재하기 때문에 격납용기 대기중으로 휘발하지 않고 격납용기내 공기 오염도가 낮게 유지되었다.

수화학적 형태에 따른 방사성 요오드의 휘발도를 확인하기 위하여 요오드 휘발도 착색시험을 수행하였다. 한 결과 분석에서도 하였다. ICP-AES를 이용하여 잔류 요오드 농도 분석결과 그림 1에 나타난 바와 같이 과산화수소를 주입하지 않은 경우가 주입한 경우보다 잔류 요오드 농도가 낮게 나타났다. 또한 과산화수소의 주입량이 증가할수록 초기의 잔류요오드 농도는 증가하나 약 20시간 이후에는 거의 동일한 잔류농도를 보였다. 이는 과량의 산소 또는 과산화수소 주입시 $\text{I}_2(g)$ 의 산화수가 증가하여 $\text{IO}_3^- (aq)$ 가 생성되는 것으로 판단된다. 실험결과, 요오드는 물에 용해되어 있을 경우 대부분 I_2 형태로 휘발하며, 요오드 용액에 과산화수소를 주입시 $\text{IO}_3^- (aq)$ 형태의 요오드 화합물이 형성됨을 알 수 있었다.

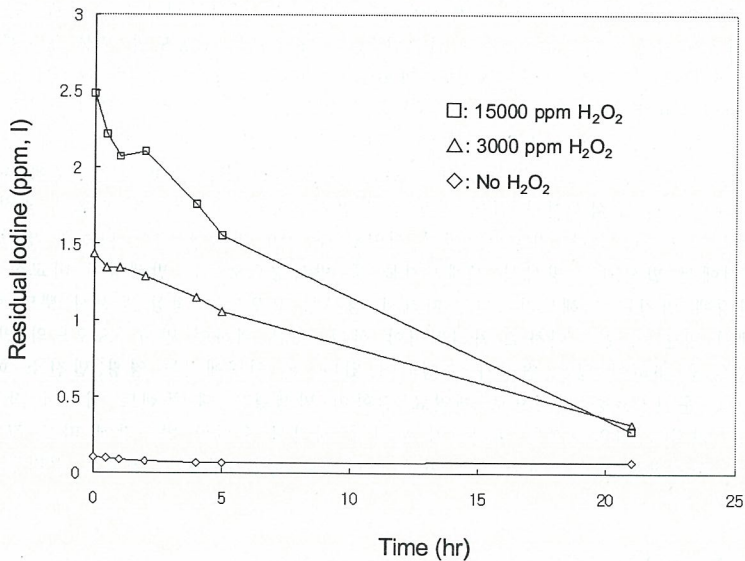


그림 1. 증발 후 시간에 따른 요오드 잔존량(25℃)

3. 결론

본 연구에서는 영광 3발전소의 정지수화학적 수화학 운전조건에 따른 원자로냉각재 및 격납용기 대기중의 방사성요오드의 형태 및 거동을 고찰하였다. 원자로냉각재에 용해되어 있는 방사성 요오드는 $\text{I}_2(g)$ 형태로 휘발하여 격납용기 대기에 존재하게 되어 예방정비기간동안 계획예방정비 기간동안 작업자의 체내피폭을 증가시키는 원인으로 작용하고 있다고 판단된다. 이러한 작업자 체내피폭을 감소시키기 위해서는 원자로 정지운전시 원자로냉각재 온도가 약 150℃ 근방에서 과산화수소와 수산화리튬을 과량 주입함으로써 원자로냉각재내에 존재하는 방사성 요오드의 산화수를 변화시켜 방사성요오드가 휘발하지 않고 원자로냉각재에 $\text{IO}_3^- (aq)$ 와 Li^+I^- 형태로 유지시키는 것이 가능한 것으로 판단된다. 한편, 원자로 정지운전시 화학제(H_2O_2)는 정지냉각계통이 병입되기 이전에(원자로냉각재 온도는 150℃) 주입되어야 한다. 이는 원자로냉각재계통에 정지냉각계통이 병입될 경우, 정화해야 하는 계통의 물체적이 약 1.5배 증가하게 되어 화학 및 체적제어계통을 이용한 원자로냉각재의 정화시간이 증가하게 된다. 이러한 정화시간의 증가는 발전소의 효율적인 예방정비기간의 운용에 매우 불리한 측면으로 작용하게 되어 플랜트 이용률 저하요인으로 작용할 수 있기 때문이다. 향후 과량의 과산화수소를 주입한 후 원자로냉각재내에서의 요오드 이온 및 요오드 산화물의 조성변화를 확인하고, Li^+I^- 형성시 시간에 따른 화학적 형태의 변화를 확인한 후 영광 5호기 6차 계획예방정비 공정에 반영할 계획이다.