

산분해법을 이용한 모의 CRUD의 Capillary 시료 정량검증 및 고찰

김민재, 정성엽, 강덕원*, 박종석**

(주)성우이엔티, 서울특별시 강동구 천호1동 34-2, 화성빌딩 8층

* 한전 전력연구원, 대전광역시 유성구 문지동 103-16

** (주)한국수력원자력, 전남 영광군 홍농읍 계마리 514 영광원자력본부
apollo93@naver.com

1. 서론

국내 경수로 원전의 경우, 원전의 효율적, 경제적 운영차원에서 장주기 운전으로 패턴을 바꾸면서 핵연료봉 표면상에 크러드(crud)의 침적량은 점점 증가하는 경향을 나타내고 있다. 이러한 경향은 원자로의 출력 제어와 직결되면서 이에 대한 문제 해결을 위한 대표성이 있는 시료의 채취와 재현성이 있는 부식 생성물의 측정이 요구되어져 왔다. 원자로 계통 내에서 부식생성물의 농도변화에 대한 평가, 특히 입자농도가 증가되어지면 축방향 출력편차(Axial Offset Anomaly, AOA)가 발생될 수 있는 위험에 노출되거나, 핵연료 교체를 위해 발전소 정지시(shut down) 부식생성물의 방출이 급격히 증가되는 것으로 나타났다. 특히 입자성을 띤 물질은 존재의 특성상 이들 물질에 대한 대표시료의 채취가 어려울 뿐 아니라 grab 채취로 인해, 분석결과에 대한 재현성이 낮으며 계통 선량율의 제어와 작업자 피폭관리에 많은 어려움이 뒤따르고 있어 선진 원전 운영국에서는 앞 다투어 대표시료를 채취 할 수 있는 capillary sampling 법이나 integrated sampling법을 적용해 오고 있다.

본 논문에서는 원자로 계통시료와 유사한 모의 CRUD 시료를 만들어 capillary sampler를 통과한 시료의 비교검증을 위해 산분해 처리 후 각각의 원소들에 대한 정량비교를 수행하였다.

2. 실험

가. 모의 CRUD 정상분석

본 실험에서 사용된 모의 CRUD 시료는 위에서 살펴본 바와 같이 발전소에서 발생하는 부식생성물과 유사한 조성을 가지고 있는 니켈 페라이트 분말 시료(Nickel Ferrite, NiFe₂O₄, 99.9 %, MW=234.402)를 사용하였다. 입도분석장치를 이용하여 모의 CRUD의 입자의 크기를 알아보았다.

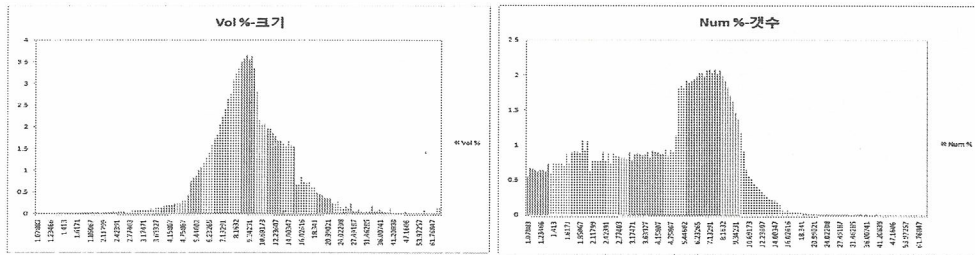


그림 1. Nickel ferrite 입자크기별 분포

그림 1에서 보는 바와 같이 입자의 크기가 5~15 μm 정도로 측정되었으며, 실제 발전소에서 발생하는 방사화 부식생성물의 약 80% 내외가 5 μm 크기 것파 비교해 볼 때 비교적 유사한 모의 CRUD 시료라고 할 수 있었다.

나. 모의 CRUD 및 필터 용해

Capillary sampling 법으로 시료를 채취 할 경우, 일정한 유속으로 시료를 흘려주면서 0.45 μm 필터(PALL, GH Polypro 47mm 0.45 μm)로 여과하여 그 여과액과 필터를 산분해 장치(Milestone, START D)로 용해하여 분석하는 방법을 취할 수 있다. 본 연구에서는 모의 CRUD를 이용하여 걸러진 시료와 필터의 용해 방법을 조사하였다.

3개의 teflon vessel을 준비하여 각각의 vessel에 ① nickel ferrite 0.1 g과 0.45 μm filter, ② cobalt ferrite 0.1 g과 0.45 μm filter, 그리고 나머지 vessel에는 ③ 0.45 μm filter 만을 넣는다, 각 vessel에 HNO₃ 4 mL와 HCl 4 mL를 넣고, 산분해 장치에 넣는다. 산분해 장치의 프로그램에 의해 약 30분 동안 시료를 분해하고 충분히 식힌 다음, 꺼내어 volumetric flask에 옮겨 담는다. 그림 2에서 보는 바와 같이 시료가 깨끗하게 녹아 있는 것을 확인할 수 있었다.

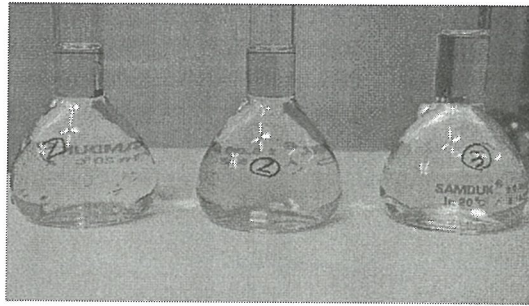


그림 2. Microwave Digestion을 이용한 모의CRUD 시료와 Filter 분해. ①Nickel ferrite+ Filter, ②Cobalt ferrite+ Filter, ③Filter

또한 몇 개의 nickel ferrite 시료와 0.45 μm filter를 산분해 장치를 이용하여 분해하고 ICP-AES(Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectrometer)로 분석하였다. 그림 3에서 보는 바와 같이 각 시료마다 시료의 양을 다르게 하고, 계산된 농도값과 측정된 농도값을 비교하였다.

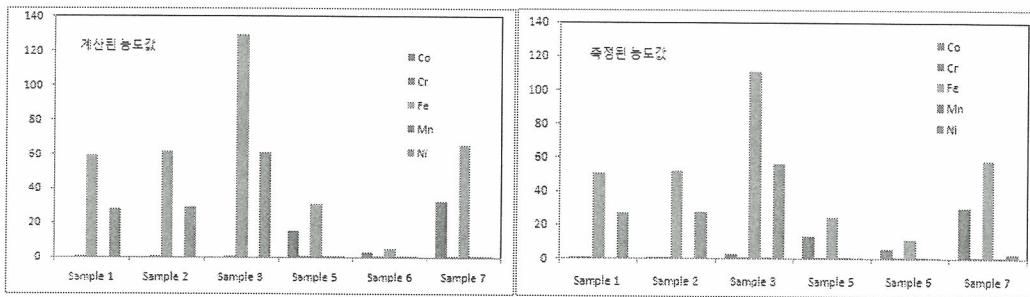


그림 3. 모의 CRUD 양에 따른 농도값 비교

sample 1부터 7까지 농도값을 비교한 결과, nickel ferrite의 주성분을 이루는 Fe, Ni 그리고 Co가 주로 두드러지게 측정이 되었으며, 계산된 농도값과 측정된 농도값과의 표준편차는 대부분 0.01 ~ 6 정도 이나 모의 CRUD의 대부분을 차지하는 Fe의 경우는 그 모체효과로 인하여 결과값에 다소 큰 차이가 발견되었다.

3. 고찰

본 연구에서는 모의 CRUD를 이용하여 시료를 채취하였을 때, 채취된 시료의 분석방법과 분석값에 대한 신뢰도를 조사하였다. 실험에서 얻은 결과를 바탕으로 부식생성물 시료에 대한 분석방법을 확립하고, 또한 "capillary" 방식의 시료채취법을 정량적으로 검증함으로써 용해성 입자상인 부식생성물에 대한 정확한 분석결과값을 얻을 수 있을 것으로 기대된다.

참고문헌

1. S.H. Kim, I.S. Kim, and K.J Lee, Study on the Simulation of Crud Formation using Piping Materials of Nuclear Power Plant in High Temperature Water. J. of the Korean Radioactive Waste Society. 3, 31, 2005.
2. C.A. Bergmann, J. Roesmer and D.W. Perone, Primary-side Deposites on the PWR Steam Generator Tubes, Electric Power Research Institute, EPRI NP-2968, 1983.
3. D.A. Bridle, K.R. Butter, P. Cake, G.C.W. Comley and C.R. Mitchell, The Nature and Behavior of Particulates in PWR Primary Coolant, Electric Power Research Institute, EPRI NP-6640, 1989.