

울진1호기 원자로냉각재 아연주입에 따른 부식생성물 영향 평가

최진수, 양호연, 성기방

한국수력원자력(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 장동 25-1

feliz@khnp.co.kr

1. 서론

1989~1992년 웨스팅하우스와 웨스팅하우스 사용자 그룹(WOG; Westinghouse Owners Group)에서 Pressurized Water Reactor (PWR) 원전 일차계통의 아연주입 연구를 수행하였다. 그 연구 결과로 아연주입이 계통 선량률 및 금속 재질 부식을 저감, Alloy 600 재질의 PWSCC (Primary Water Stress Corrosion Cracking)를 억제하는 효과가 있다고 보고되었다[1]. 그에 따라 1994년 미국 Farley 2호기 원자로냉각재에 아연주입을 시행하였고, 이후로 현재 전 세계 60개의 PWR 원전 (PWR의 23%)에서 선량저감 및 부식저감 목적으로 원자로냉각재에 아연주입을 시행하고 있다[2,3].

국내 원전에서도 운전년수 증가에 따른 니켈, ^{58}Co , ^{60}Co 과 같은 부식생성물로 인한 누적선량 증가 문제로 선량저감 기술에 대한 관심이 증가되고 있다. 따라서 울진1호기에서 17주기 운전 중 선량 저감을 목적으로 원자로냉각재에 아연주입을 실시하였다. 울진1호기 아연주입은 국내 최초로 적용된 아연주입 기술로써 1차측 수질환경에서의 아연의 거동과 주요 관심 부식생성물에 대한 아연주입 효과에 대해 분석 및 평가가 수행되어야 할 필요가 있다.

본 논문에서는 울진1호기 원자로냉각재 아연주입에 따른 아연, 니켈, ^{58}Co , ^{60}Co 의 농도 분석을 수행하였고, 아연 주입량에 따른 아연농도 검출 시점에 대한 평가 및 아연 농도에 따른 니켈, ^{58}Co , ^{60}Co 농도에 대한 아연주입 영향평가를 수행하였다.

2. 본론

2.1 부식생성물 제거 메커니즘

아연이 원자로냉각재에 주입되면, 높은 치환에너지로 산화막의 부식생성물과 치환반응을 일으켜 기존의 산화막을 얇고 부식 환경에 강한 안정된 산화막으로 재형성하게 된다[3]. 이러한 치환반응에서 아연은 1차측의 주요 부식생성물이자 누적선량에 가장 영향을 많이 미치는 니켈 및 ^{58}Co , ^{60}Co 을 용출시키게 되고, 이렇게 용출된 부식생성물은 이온교환수지에서 제거된다[3].

2.2 울진1호기 아연주입

울진1호기 아연주입은 국내 최초로 수행되었으며, 17주기 운전 중에 수행하였다. 주입시점은 노심에 미치는 영향을 최소화하기 위해 노심 출력이 안정된 운전주기 후반에 주입을 시작하였다. 1차 아연주입은 '10.4.19에 시작하여 '10.8.25 종료하였으며, 129일간 아연수용액을 지속적으로 주입하였다. 아연 수용액은 5~10 ml/min의 유량으로 10~20 g/day 주입하였으며, 누적 아연주입량은 1.8 kg 이다.

아연주입은 Chemical and Volume Control System (CVCS)의 Charging Pump 전단에서 이루어 졌으며, 아연수용액은 자체 제작한 주입장치의 미량 정량펌프를 이용하여 유량제어를 통해 주입하였다.

2.3 원자로냉각재 부식생성물 측정

원자로냉각재의 시료채취는 CVCS 탈염기 전단에서 Grab Sampling으로 수행하였다. 아연 및 니켈 분석은 Inductively Coupled Plasma - Optical Emission Spectrometer (ICP-OES), ^{58}Co 과 ^{60}Co 은 High Purity Germanium (HPGe) Detector를 이용하여 분석하였다. Table 1에서는 각 항목에 대한 측정농도와 분석주기에 대해서 보여주고 있다.

Table 1. Monitoring Primary Water Parameters

분석 항목	측정 농도	분석 주기
Zn	ppb	1회/일
Ni	ppb	1회/주
^{58}Co	$\mu\text{Ci/cc}$	1회/주
^{60}Co	$\mu\text{Ci/cc}$	1회/주

분석주기는 EPRI 아연주입지침서(TR-1013420) 권고에 따라 아연은 원자로냉각재의 농도 제어를 위해 1회/일 분석을 수행하였고, 니켈, ^{58}Co , ^{60}Co 은 1회/주 분석을 수행하였다[3,4].

2.4 결과 및 논의

Fig. 1은 울진1호기 17주기 운전 중 누적 아연주입량에 따른 아연농도 검출 시점 및 아연농도에 따른 니켈의 농도 변화를 보여주고 있다. Fig. 1에서

아연농도 검출 시점을 살펴보면 원자로냉각재에 아연을 주입한 후 약 65일 경과 후 (누적 아연주입량 587 g) 아연이 검출이 되었다. 해외의 경우 아연주입 후 약 30일 정도 (누적 아연주입량 270~480 g)에 검출이 되는데, 울진1발의 경우 정화유량이 119 gpm으로 해외원전보다 약 2배 정도 높아 검출 지연시간이 좀 더 긴 것으로 판단된다[3]. 아연 검출지연 현상은 아연주입 첫 주기에 일반적으로 발생하며, 아연의 산화막에서의 활발한 치환반응에 따른 영향으로 볼 수 있다. 아연이 주입이 되면 주입 지점에서 가장 가까운 산화막 부터 치환을 한다[5]. 아연이 시료채취 지점의 산화막까지 치환이 된 후 원자로냉각재 시료에서 아연이 검출되게 되는데, 이러한 치환시간에 따라 아연주입 후 검출 지연시간이 발생하게 된다.

아연이 원자로냉각재에서 검출되는 시점부터는 1차 계통 산화막 전반적으로 아연이 치환반응을 일으키게 되어, 눈에 띄는 부식생성물 농도 증가를 발생시킨다. Fig. 1에서 볼 수 있듯이 아연 검출 시점에서 니켈이 검출되었고, 아연농도 증가에 따라 니켈농도가 증가하여 아연주입 종료 시 최대 4.5 ppb까지 검출됨을 볼 수 있다.

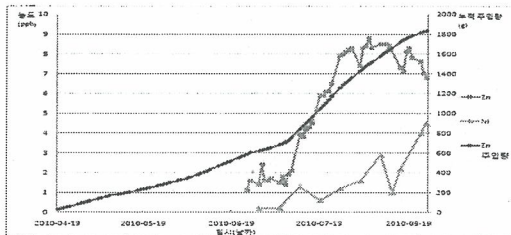


Fig. 1. Zinc and Nickel Concentration Trends with Cumulative Injected Zinc Amount

Fig. 2, 3은 원자로냉각재의 아연농도에 따른 ^{58}Co , ^{60}Co 의 농도변화를 보여주고 있다.

Fig. 2와 같이 아연주입 후 아연농도의 증가에 따라 ^{58}Co 의 농도는 $1.0\text{E}-3 \mu\text{Ci}/\text{cc}$ 에서 $4.2\text{E}-3 \mu\text{Ci}/\text{cc}$ 로 약 4배 증가하였다. 또한 ^{60}Co 은 Fig. 3과 같이 $7.4\text{E}-6 \mu\text{Ci}/\text{cc}$ 에서 $8.4\text{E}-5 \mu\text{Ci}/\text{cc}$ 로 약 11배 증가 하였다.

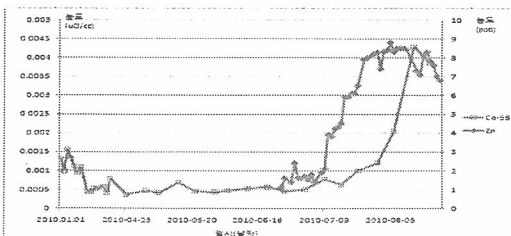


Fig. 2. ^{58}Co Activity Trends with Zinc Concentration

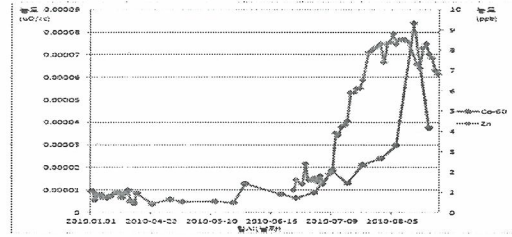


Fig. 3. ^{60}Co Activity Trends with Zinc Concentration

Fig. 1, 2, 3에서의 같이 아연농도의 증가에 따라 부식 생성물인 니켈, ^{58}Co , ^{60}Co 의 농도가 증가됨을 공통적으로 볼 수 있다. 아연은 2가 이온으로 원자로냉각재에 주입이 되면 1차측 산화막의 2가 이온들과 치환반응을 일으킨다. 따라서 같은 2가 이온이며, 주 부식생성물인 ^{58}Co , ^{60}Co 및 니켈 농도가 아연과의 치환반응을 통해 증가되는 것으로 판단이 된다. 이러한 현상을 고려했을 때, 울진1호기 원자로냉각재 아연주입에 따라, 1차측 산화막에서 아연 치환반응이 효과적으로 진행되고 있음을 알 수 있다.

3. 결론

울진 1호기 17주기 운전기간 동안 원자로냉각재에 아연 주입을 실시하였고 그에 따른 부식생성물 영향평가를 수행하였다. 아연주입에 따른 아연의 산화막 치환반응으로 산화막에서 ^{58}Co , ^{60}Co 및 니켈이 방출이 되어 원자로냉각재에서 ^{58}Co , ^{60}Co 농도는 각 4배, 11배, 니켈은 4.5 ppb까지 증가하였다. 이렇게 방출된 부식생성물은 이온교환수지에서 제거 되었다. 이 부식생성물은 방사선량의 주 영향인자로 아연주입에 따른 용출 및 제거로 인해 발전정지시 선량저감 효과를 가져올 수 있을 것으로 판단된다.

본 평가 결과는 국내 최초 아연주입 적용 경험 자료로써, 향후 아연주입 확대적용 시 아연의 원자로냉각재 부식생성물에 대한 영향 평가의 기초자료로 활용될 것으로 기대된다. 아연주입에 따른 선량 저감 효과에 대한 평가는 울진1호기 17차 계획예방정비시 선량측정을 통해 수행할 예정이다.

4. 참고문헌

- [1] Evaluation of Zinc Addition in Cycle 13 at Farley Unit 2. EPRI, 2000, TR-1000251.
- [2] EPRI Chemistry Update, EPRI, 2010, TR-1002618.
- [3] PWR Primary Water Zinc Application Guidelines, Revision 6. EPRI, CA:2006, TR-1013420.
- [4] PWR Primary Water Chemistry Guidelines, Volume 1, Revision 6. EPRI, Palo Alto, CA:2003, TR-1002884.
- [5] PWR Operating Experience with Zinc Addition and the Impact on Plant Radiation Fields. EPRI, 2003, TR-1003389.