

모세관법을 이용한 원자로냉각재 대표시료 채취기술 소개

강덕원, 김승일, 김현기, 허준, 성진현

한국정수공업(주), 경기도 시흥시 정왕동 1281-2

world2@haji.co.kr

1. 서론

경수로 원전은 장주기 고연소 운전을 하기 때문에 핵연료 표면에 크러드(CRUD)가 침적되거나 축방향 출력편차(AOA)가 발생하여 종종 출력 감발운전을 하고 있으며 핵연료 피복재에 침적되어 국부적인 부식 손상이 우려되고 있다. 이러한 문제점을 사전에 예방하기 위해서는 재생성이 있는 크러드의 핵종 농도값과 원소들에 대해 정확하고 재생성이 높은 분석이 선행되어져야 한다. 원자로 계통 내 환경변화로 인해 기존의 grab sampling법으로는 대표적인 부식생성물의 농도 분석값을 얻는 데에는 한계가 있어 미국 EPRI는 수화학 지침서상에 대표시료를 채취토록 권고하고 있으며, 일부 해외 원전 운영국에서는 발전소의 특성을 고려하여 크러드 분석값의 재생성이 크게 향상된 대표시료 채취 기술을 자체적으로 적용하거나 개발 중에 있다. 현재 Capillary 포집 기술을 채택하고 있는 대표적인 원전으로는 미국의 Diablo Cayon, Calloway 원전과 스웨덴의 Ringhals 2, 3 & 4, 영국의 Sizewell B 원전 및 스페인의 Vandellös 원전 등이 있다. 스웨덴 Ringhals 2 원전에서 수년에 걸쳐 분석한 결과에 의하면, 우세한 원소의 부식생성물은 Fe로 나타났으며 주종을 이루는 방사성 핵종은 용해성 종인 ^{59}Fe 과 ^{60}Co 이며 Ni은 거칠면서 고르게 분포되어져 있거나 입자상 분율이 우세한 것으로 나타났고 분석 값도 매우 안정적이며 재생성이 높은 것으로 나타났다.

2. 원자로냉각재의 대표시료 채취기술

2.1 대표시료 채취 배경

장주기, 고연소 운전 환경에 따른 핵연료 표면상에 크러드 축적으로 축방향 출력편차 (AOA)현상이 증가추세에 있으며 크러드의 핵연료 피복재 침적에 따른 국부적 부식손상 우려된다. 원자로 냉각재를 Grab 채취할 경우, 시료채취 과정에서 공기 중의 산소에 노출되면서 쉽게 산화·침전을 일으

켜 용해성 부식생성물의 방사성 핵종(^{51}Cr , ^{58}Co , ^{60}Co , ^{59}Fe , ^{54}Mn , ^{137}Cs)들은 파인의 철 이온들과 함께 공침되기 때문에 대표성있는 분석 값을 얻지 못하고 있다. 이로 인해 계통 크러드 분석자료의 미흡으로 크러드 이동메커니즘 규명이나 계통 방사선량 저감화에 별반 기여하지 못하고 있다. 계통 내 환경변화로 기존의 grab sampling 법으로는 대표적인 부식생성물의 농도 분석 값을 얻는 데 어려움이 있기 때문에 해외 원전에서는 원전 적용용 integrated capillary 포집기술을 적용해 RCS 및 CVCS 시료를 포집, 분석함으로서 부식생성물 농도 분석 값을 재생성을 향상시킬 수 있게 되었다.

2.2 방사성 부식생성물의 축적과정

2.2.1 대표시료 채취 필요성

유로상에서 입자의 밀도와 크기의 다양성 존재하며 시료채취 최종단에서 공기와 접촉시 액상시료는 용해와 침전 발생함. 온도 감소시 Fe와 Ni의 용해도는 감소하지만, 산소 존재 하에서는 Ni의 용해도는 증가되고 Fe 용해도는 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 형으로 감소된다. grab sampling법은 Lab에서 취급 시 입자와 용해성 물질에 대해 잘못된 정보 제공 가능성이 높을 뿐 아니라 크러드의 용해는 시료 통과량과 밀접하기 때문에 최적의 시료량을 통과시켜야 한다. 기존의 시료 채취계통은 대표적인 부식생성물 채취가 고려되어 있지 않으며 유로가 붕산혼합물과 냉각되므로 용해도 변화와 시료벽면에서 입자의 상호작용으로 노심으로부터의 이송에 대한 정량적 해석을 위한 대표성 있는 시료 채취가 어렵다. 크러드의 거동특성을 정확히 평가하기 위해서는 현상을 바르게 파악한 다음, 상호간에 발전소의 데이터를 비교하는 것이 무엇보다도 중요하다. 시료 채취법, 분석법 및 실험법 등에 대해 표준화되고 재생성이 높은 자료를 얻을 수 있는 방안이 강구되어져야 한다.

2.3 대표시료 채취시스템 구성

RCS capillary 시료채취 배관은 고온관 시료

배관의 출구 가까이에 설치(Fig. 2 참조)하며 capillary 배관의 유량은 $30\text{ml}/\text{m} \sim 40\text{ml}/\text{m}$, 유속은 $2.5\sim 5\text{m}/\text{s}$ 환경에서 Iso kinetic 포집법을 적용해 1회 약 $200\sim 300\ell$ 정도 포집한다. 홀더 안에는 미세한 millipore filter를, 아래쪽은 Gelman사의 양이온 멤브레인 2개를 포개어 장착시킨 다음, capillary 배관의 말단과 연결해 시료가 공기 중에 노출되지 않도록 한 후 포집한다.

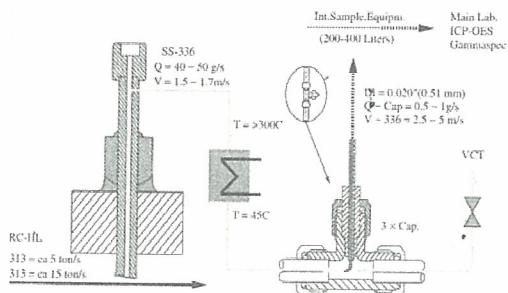


Fig. 1. Integrated Capillary Sampling System.

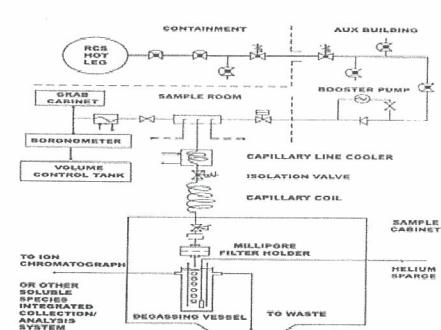


Fig. 2. Lay-out Drawing for Capillary Sampling System.

2.4 Capillary 포집시료의 분석 결과(Ringhal 원전)

2.4.1 RCS 이온농도 변화

아래 그림은 스웨덴 Ringhals 2 원전에서 원자로 정지 6개월 전, 후에 걸쳐 Grab 및 Capillary 포집법을 이용해 분석한 철, 니켈 및 코발트의 분석 값으로 우세한 원소의 부식생성물은 $\text{Fe} > \text{Ni} > \text{Co}$ 순이며, 정지 화학 처리 전에는 분석 값이 텁니바퀴처럼 들쭉날쭉 하는 그래프가 정지화학 처리후의 Capillary 포집법에 의한 분석값은 훨씬 안정적이고 이온별로 뚜렷한 재생성을 지닌 그래프로 나타내고 있음을 보여준다.

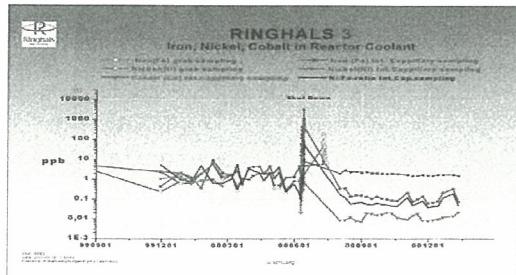


Fig. 3. Comparison on Grab and Capillary Sampling Method.

2.4.2 CVCS 유출수 배관시료 채취 및 분석

CVCS 유출수를 이용한 바람직한 입자상 시료 채취를 nominal isokinetic sample head를 수직으로 설치해 공기와의 차단을 통해 용해성 및 입자상 시료의 분석을 가능하게 하였다. 포집된 필터는 용해성 및 입자상 방사성 핵종별 농도를 얻기 위해 X spectroscopy로 측정하였고, 양이온 종은 용해성 원소의 분율 제거를 위해 염산을 millipore 필터는 입자상 원소 분율을 얻기 위해 왕수로 분해시킨 ICP-MS로 분석하였다(Fig. 4 참조).

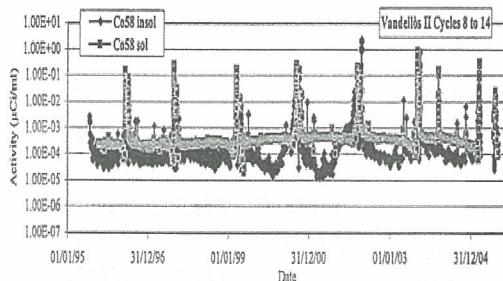


Fig. 4. Results of CVCS Sample Using Capillary Method.

3. 결론

Capillary 시료 포집기술은 재생성 높은 분석기술로 계통내의 이온상물질과 입자상물질의 변화 추이를 신뢰성 높게 평가할 수 있으며 핵연료주기, 열효율, 전 주기 pH 및 핵연료 장전 형태 등의 변경에 탄력적 대응이 가능하다. Capillary 포집법은 현행 Grab 포집법보다 안정적이며 재생성 높은 분석값을 얻을 수 있기 때문에 장주기 운전에 따른 RCS CRUD의 거동 평가와 계통선량 저감대책 수립 시에도 매우 유용하게 활용될 수 있다.

4. 참고문헌

- [1] “PWR 1차계통 수질관리지침” EPRI.1002884 Vol.1 Rev.5 부록 F.