

原子炉의 稀釋式 化學淨化

*A Dilute Chemical Decontamination Process
for Nuclear Reactors*

J. E. 르서프 <런던 뉴클리어社 專務理事>
J. L. 스 미 <런던 뉴클리어社 主任技師>

1. 概 要

CAN-DECON* 稀釋式化學淨化工程은 켄두原子炉에 사용하기 위해 1970年代初에 開發되었다. 1979年以來 이 工程은 輕水型 原子炉의 처브系統에 20번 以上이나 使用되어 왔다. 대부분은 沸騰水型 原子炉에 使用되었지만 이 經驗은 原子炉壓力容器的 에놀러스를 비롯하여 再循環配管 및 펌프들 전체에 적용된다.

加壓水型 原子炉에 사용하기는 1982年이 처음이며 이 工程은 이제 3基의 加壓水型 증기발생기의 채널헤드에 사용하여 성공을 거두었다. 더욱 광범한 加壓水型 原子炉의 淨化工程을 곧 실시할 예정이다.

2. 歷史의 背景

1969年과 1970年에 200MWe 原型 CANDU-PHW 原子炉인 Douglas Point 原子炉의 重要부위에 있는 放射線區域이 점점 늘어나는 것이 관찰되었으며 또한 그 증가율 역시 加速化되고 있었다. 만일 그당시 건설중이던 규모가 훨씬 더 큰 Pickering 原子炉에서도 이와 유사한 現象이 일어난다면 많은 수의 중사자들에 대해서 1人당 허용된 피폭선량의 한도를 넘지 않도록 특별

한 조치가 취해져야 했다.

따라서 放射線區域의 팽창을 막고 기존 방사선구역을 축소시키려는 重要한 조치가 취해졌다. 이 조치는 성공했으며 Pickering 과 그후의 켄두原子炉에서의 방사선구역은 현재 이들 發電所의 중사자들의 피폭선량수준으로 낮아졌다.

이 조치의 1차목적은 Douglas Point에 있는 蒸氣發生器 주변의 방사선구역을 축소시키는 것이었다. 이 作業은 Parametric Cycling 이라는 方法을 통해 아주 만족스럽게 수행되었다.

이 技術은 Douglas Point의 Monel 蒸氣發生器의 방사선구역을 축소시키는데는 큰 효과를 보았지만 나머지 회로에 사용되고 있는 炭素鋼 배관주위의 방사선구역에 대해서는 근본적으로 아무런 효과도 미치지 못했다. AP-CITROX와 같은 濃縮化工藥品工程은 켄두原子炉에 적절하지 못했다.

이 淨化工程을 다시 면밀히 조사한 결과 CAN-DECON이라는 독특한 공정이 開發되었다. 이 工程은 1975年 8月 燃料가 裝填되어 있는 Douglas Point 原子炉에 사용되었다. 이 實驗은 4 내지 6 레인지의 DFs*를 확보하게 되어 큰 성

*CAN-DECON은 등록상표명임

*淨化係數(DF) = $\frac{\text{淨化前의 방사선구역}}{\text{淨化後의 방사선구역}}$

공을 거두었다.

캐나다에서 CAN-DECON 공정을 개발하고 실험하는 도중에 이 공정이 강한 화학적 정화 기술면에 많은 장점을 가진 것이 밝혀졌으며 이 공정을 경수형 원자로에 이용해보자는 의견이 전세계의 전력회사들로부터 대두되었다. 이 공정이 성공을 거두고 국제적 관심을 끌었기 때문에 1977년 런던 뉴클리어社(LN)는 캐나다 원자력公社(AECL)로부터 CAN-DECON을 전세계에 판매할 수 있는 특허를 얻었다. 그 이후 이 공정은 沸騰水型 원자로와 加壓水型 원자로에 여러 방식으로 사용되고 있다.

3. CAN-DECON 공정이란?

CAN-DECON 공정은 원자로 시스템의 배관과 機資材의 내부 표면을 청소하는데 사용되는 稀釋式, 再生式 化學淨化 工程으로서 淨化할 系統을 물로 씻어내거나 배수할 필요가 없다. 따라서 作業이 간단하고 燃料 또한 깨끗하게 간직할 수 있다. 이 공정은 상당한 양의 이미 放射化된 부식 생성물을 系統으로부터 제거하기 때문에 淨化工程全體로 보아 아주 有利하다. 즉, 이 부식물들을 그대로 놔두면 결국 용해되어 爐心 밖에 다시 쌓여서 部分的으로 淨化효과를 둔화시킬 것이기 때문이다. 공정을 마치고 불순물과 시약을 제거하는데는 陽이온 交換樹脂가 사용된다. 이온 교환 수지와 필터들로 된 고체상태의 찌꺼기들만 남기 때문에 제거하기가 아주 간단하다.

CAN-DECON 공정의 기본개념은 다음과 같다.

- 낮은 試藥濃度는
 - 부식을 극소화한다.
 - 重水의 저질화를 극소화 한다.
- 試藥을 原子爐 冷却材에 직접 첨가한다.
- 시약을 配管과 機資材에 循環시킨다.

- 系統을 물로 씻거나 배수할 필요가 없다.
 - 큰 저수조가 不必要하다.
- 원자로로부터 燃料를 제거할 필요가 없다.
 - 작업이 간단해진다.
 - 연료도 淨化된다.
- 가용성 오염물들이 陽이온 교환수지로 제거된다.
- 입자상태의 오염물들은 여과장치로 제거된다.
- 陽이온 교환수지로 試藥이 再生된다.
 - 시약의 再使用이 가능하다.
 - 처음의 濃度보다도 훨씬 더 높은 效果的인 濃度를 얻는다.
- 陰이온 교환수지로 시약이 제거된다.
- 고체상태의 폐기물들만
 - 이온 교환수지들과
 - 여과필터들을 사용한다.

CAN-DECON 淨化 工程의 기본 단계들은 다음과 같다.

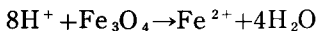
- 原子爐의 稼動은 중지되지만 燃料를 제거하거나 배수하지 않는다.
- 淨化할 系統의 순환수를 精確한 온도와 化學的 狀態로 만든다(PH는 中性에다가 전도율이 낮아야 하고 용해된 산소가 없어야 한다).
- 精確시약인 약산성과 다른 화학 약품들의 혼합액을 무게 0.1%의 전형적 농도로 얻기 위해 농축된 슬러리로 冷却材에 직접 첨가한다.
- 용해된 시약을 갖고있는 冷却材를 原子爐 系統과 그 機資材 및 휴대용 이온 교환수지세정 장치를 통해 순환시킨다.
- 시약이 오염된 산화막과 크루드가 쌓인 곳에 작용하여 입자와 용해된 물질을 벗긴다.
- 冷却材로부터 粒子物質을 제거하는데는 미세한 필터를 사용한다.
- 冷却材로부터 용해된 금속 이온들을 제거하는데는 陽이온 교환수지가 사용된다.
- 시약은 陽이온 교환 수지에 의해 계속하여 再生된다.

- 이 공정은 오염물들이 전부 제거되거나 허용된 시간이 다 지날 때까지 계속된다.
 - 양이온과 음이온 교환수지들의 혼합포상을 사용하여 시약과 남은 용해물질들을 제거한다.
 - 다 써버린 수지는 固体化시켜 파묻기 전에 폐기물처리장이나 차폐된 플라스크에 담는다.
- CAN-DECON 工程의 특징은 다음과 같다.

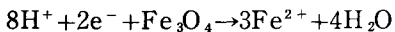
- 系統에 들어 있는 물이 정화시약을 운반하는데 사용된다.
- 입자상태의 오염물과 용해된 오염물을 계속 제거하는데 이온 교환세정장치가 사용된다.
- 세정장치의 이온교환수지로 試藥은 계속 再生된다.
- 시약을 제거하는 데는 이온교환수지가 사용된다.

4. CAN-DECON의 化學反應式

沸騰水型原子炉와 캔두型原子炉의 산화물 막은 주로 적철광(Fe_2O_3), 자철광(Fe_3O_4) 및 아철산니켈($NiFe_2O_4$)의 혼합물들로 형성된다. 이 막들은 전부 간단한 산성용해



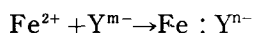
또는 환원용해



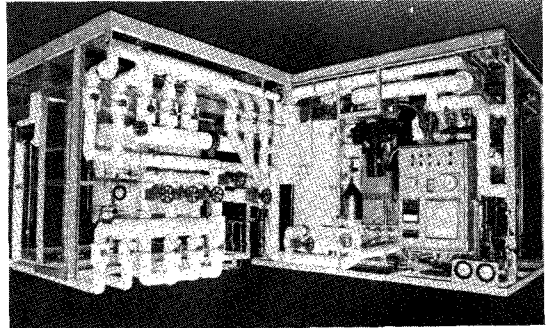
를 거쳐 성분이 분해되는 CAN-DECON 試藥으로 쉽게 용해된다.

Co-60, Co-58, Fe-59, Mn-54 등과 같은 放射性불순물들이 동시에 벗겨진다.

금속 이온들, 특히 철과 니켈과 함께 방출되는 放射性 금속 이온들의 재침전을 방지하기 위해 chelating 약품(Y^{m-})을 공급한다. 이렇게 되면 chelating 複合체가 생겨남으로 용액중의 금속 이온들의 용해도가 증가한다.

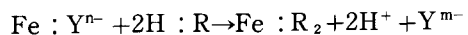


이 複合체를 강한 양이온 교환수지(H : R)에 통과시키면 CAN-DECON 시약이 再生된다. 이



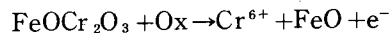
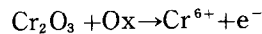
후대용 淨化 장비

수지는 금속 이온과 chelating 藥品과의 化學的結合을 깨뜨리고 금속 이온을 포획, 보유하고 chelating 藥品과 水素 이온을 방출한다.



이것들은 앞에서의 방정식들에 나타난 바와 같이 더 많은 침전물을 용해하기 위해 系統으로 돌아간다. 성분이 분해되는 약품은 再生되지 않으므로 淨化工程에는 추가량이 필요할 수도 있다.

加壓輕水型 原子炉에서는 이 막이 산화크롬(Cr_2O_3)이나 아크롬산철($FeCr_2O_4$)로 된 크롬을 40% 함유한다. 이 混合物들은 성분이 분해되는 시약에서는 용해되지 않는다. 크롬을 불용해성인 +3의 상태에서 쉽게 용해되는 +6의 상태로 산화시키는데는 산화제에 의한 사전 처리가 필요하다.



남아있는 철과 니켈의 산화물들은 앞서 설명했듯이 용해될 수 있다.

런던뉴클리어는 낮은 試藥濃도와 液体廢棄物이 없는 CAN-DECON의 기본 개념과 완벽하게 양립할 수 있는 稀釋式 산화제에 의한 사전 처리 방식을 개발했다. 試藥은 농축 슬러리상태로 첨가할 수 있고 산화 단계가 끝나면 이온 교환수지로 제거할 수 있는 固体이다. 여러가지 다른 加壓水型 原子炉로부터 나오는 乾本들을 사용하여 여러 해 동안 수많은 實驗室 實驗을 거쳐 이

工程을 最適化 시켜왔다.

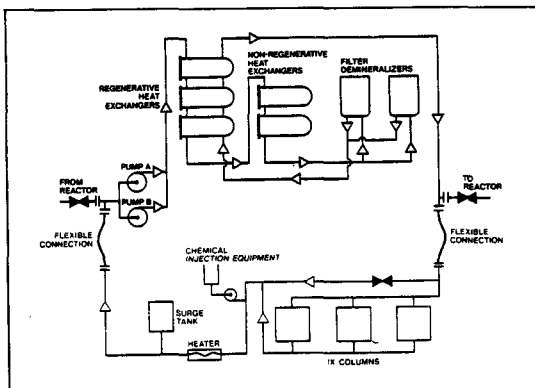
5. 엔지니어링과 裝備

CAN-DECON 工程을 原子爐 水세정장치 (RWCS)나 再循環펌프, 또는 1次 再循環系統이나 蒸氣發生器같이 격리된 系統이나 機資材에 使用하려면 임시장비가 필요하다. 이 장비는 주로 양수기, 가열기, surge 탱크, 화공약품주입장치, 견본채취장치, 이온교환칼럼과 필터등으로 이루어진다. 사진은 휴대용 淨化裝備로서 이 裝備가 RWCS와 증기발생기 채널들과 어떻게 연결되는지 보여주는 모형도가 그림 1 과 2 에 각각 표시되어 있다. 연결장치를 잘 사용하면 이 장치로부터 수백피트 떨어진 곳에도 이 裝備를 설치할 수 있다.

6. 代表的인 應用方法

1975年 以來 沸騰水型原子爐와 加壓水型原子爐 및 CANDU-PHW型 原子爐등에 20번 이상이나 CAN-DECON 工程을 使用해 왔다. 淨化할 수 있는 系統과 機資材로는 原子爐 水세정계통, 자철광 여과 계통, 증기발생기 채널헤드, 재순환펌프와 배관, 보조증기계통및 燃料를 포

〈그림 1〉 原子爐水세정 계통의 淨化유동 통로



합한 1次 系統 全部를 들 수 있다.

6.1 Douglas Point 1次 系統

앞서 말한 것처럼 Douglas Point 原子爐는 1975년에 그 정화공정을 성공리에 끝냈다.

1982년이 되자 原子爐 주위의 放射線區域들은 정화 이전의 수준으로 돌아갔다. 1983년 봄으로 예정된 메인テナンス 作業量이 많았으므로 第2次 淨化工程을 시행할 필요가 있었다.

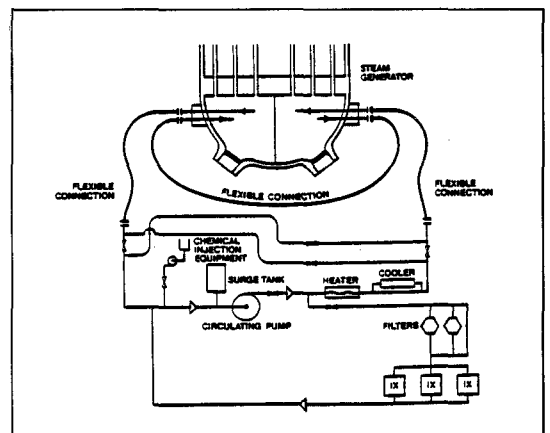
1982년 12월 Douglas Point의 소유주인 캐나다 原子力公社는 이 2次 淨化工程을 수행하기 위해 런던 뉴클리어츠와 접촉했다. 제동기가 달린 배관조립품이 설계되어 만들어졌다.

본질적으로 1975년의 정화공정에서 사용하였던 것과 똑같은 공정이 1983년의 정화공정에도 사용되었다. 열 운반계통의 농도를 0.1%로 유지하기 위해 충분한 試藥이 첨가되었다. 시약은 原子爐冷却材 펌프들로 순환시켰다. 처음 여섯 시간 동안의 온도는 82°C였고 나머지 14시간 동안의 온도는 88°C였다.

132kg의 철과 함께 약 60Ci의 Co-60과 30Ci의 핵分裂生成物이 陽이온 수지로 제거되었다. 이 외에도 384Ci의 방사능을 갖고있는 31kg의 크루드가 여과계통을 통해 제거되었다.

정화공정중 炭素鋼의 일반적 부식률은 0.26 μm

〈그림 2〉 증기 발생기의 淨化유동 통로



h였다. DF係수를 설정하기 위해 정화공정 前과 後에 많은 곳의 감미放射線을 측정했다. 측정치중 가장 높은 개별적 DF係수는 25였다.

방사능이 증가한 곳은 없었다. 表1은 그 결과에 대한 개요를 보여준다. 發電所의 방사능 운반 과정의 일부로서 항상 모니터되는 40곳에서의 측정치를 계산하여 나온 전반적 DF係수는 4.3이었다. 정화공정중 보일러의 반 수는 회로로부터 분리하여 정화공정에서 제외했다. 그럼에도 불구하고 보일러 수용실에서 달성된 DF係수는 1.8이었다. 마찬가지로 bleed 회로의 부품들도 정화공정에서 제외했지만 平均 DF係수는 2.8을 기록했다.

정화공정으로부터 얻어지는 이익은 많으며 여러해 동안의稼動과 장차 겪게 될 여러번의 가동 중지 기간에 이익을 보게 된다.

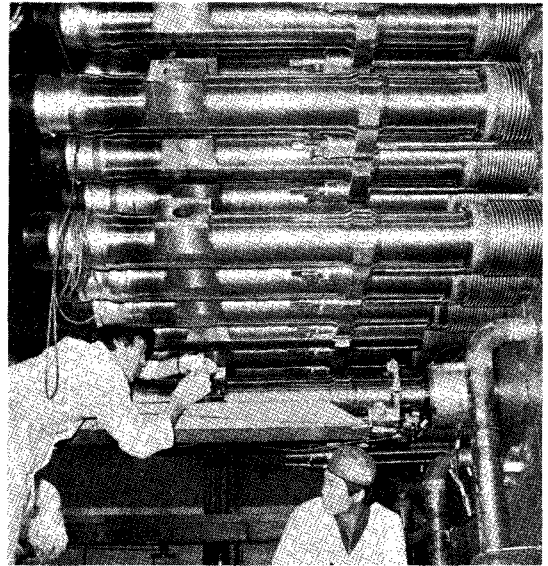
6.2 Robert E. Ginna 蒸氣發生器 채널헤드

1983년 4월 뉴욕시 로체스터에 위치하고 있는 Robert E. Ginna 發電所의 증기발생기 채널헤드를 정화하는데 런던 뉴클리어社は CAN-DEC ON工程을 사용했다.

이 공정은 2 루프로 설계된 웨스팅 하우스사가 제작한 'A'형과 'B'형 蒸氣發生器 두 대에 대해 시행되었다. 이 정화공정으로 증기발생기 채

(表 1) 1983년의 Douglas point의 淨化工程

위 치	측정치	정화전 (mR/h)	정화후 (mR/h)	정화 계수
전반적 열운반계통	40	2175	505	4.3
보일러 수용실	8	540	300	1.8
블리드 회로	17	1350	485	2.8
임시 '블리드' 클러	9	340	110	3.1
동쪽 연료공급기 볼트	7	685	205	3.3
서쪽 연료공급기 볼트	7	745	190	3.9
동쪽 원자로 변	5	1625	315	5.2
서쪽 원자로 변	5	1820	234	7.8
동쪽 급송기 실	4	7250	2025	3.6
서쪽 급송기 실	4	6625	1050	6.3



原電의 核燃料裝填

널헤드 내부의 개조 작업과 메인터넌스 作業을 수행하는 요원들의 방사선 피폭선량이 감소되었다.

이 공정으로 채널헤드(304스테인레스강철)의 内部表面과 蒸氣發生器 튜브들의 아래쪽 2 피트(인코넬600)에 이미 시작된 부식 생성물들이 제거되었다. 이 정화공정에서는 다음과 같은 작업들이 병행되었다.

- 蒸氣發生器를 nozzle dams가 달린 재순환 펌프들로부터 분리했다.
- 재순환유동통로를 마련하기 위해 특수 고안된 사람과 길을 동시에 덮는 카버를 써서 런던 뉴클리어社の 정화장비를 채널헤드에 연결했다(그림 2 참조).
- 산화막과 그외의 放射性 核種들을 용해하기 위해 稀釋된 특유의 성분이 분해되는 약품과 산화약품들을 再循環水에 연속 첨가했다.
- 양이온 교환수지(성분이 분해되는 중에)로 용해되는 금속과 방사성 핵종을 계속 제거하였고 이어 혼합포상의 이온교환수지로 시약을 제거했다.

B型 蒸氣發生器를 정화하는데는 다섯 단계의

(세 단계는 성분을 분해시키고 두 단계는 산화시키는) 과정을 거쳤고 5 일이 걸렸다. ^{38}Ci 의放射能($\text{Co}-58$ 38%와 $\text{Co}-60$ 47%)을 갖고있는 합계20kg의 산화물이 제거되었다. 이렇게 함으로서 약10개의 채널헤드가 효과적으로 정화되었다. 채널헤드에서 요원이 작업할 수 있는 시간이淨化前에는 8 분이던 것이淨化後에는 1 시간 이상으로 늘어났다. 채널헤드의 内部表面이 깨끗해졌고 금속 특유의 모양을 보이고 있어 CAN-DECON 試藥과 접촉한 막이 표면으로부터 완전히 제거된 모습을 볼 수 있었다.

이 裝備를 A型 증기발생기에 연결하여 압력을 가하고 가득 채우자 서서히 그러나 꾸준한 누출현상이 관찰되었다. 결국 그 원인은 nozzle이 등글지 않기때문에 nozzle dam의 하나가 밀봉이 잘되지 않은 탓으로 밝혀졌다. 이 dam을 재밀봉하기 위한 수많은 시도를 해보았지만 완벽한 밀봉을 할 수가 없었다. 그럼에도 불구하고 세 단계의 정화공정이 수행되었다. 이 공정으로 ^{34}Ci 의放射能을 갖고 있는 산화물 4.5kg을 제거했으며 효과적인 DF係數3을 달성했다. 니켈과 철 그리고 크롬이 산화막의 주 구성요소들이었다. 이 산화막의 방사능은 총 71 Ci의 감마 방사능으로서 ^{37}Ci 는 B型으로부터, ^{34}Ci 는 A型으로부터 나왔다. 제거된 전체 방사능의 87%는 $\text{Co}-60$ 과 $\text{Co}-58$ 이었다.

淨化藥品들과 함께 방사성 핵종들을 갖고 있는 고체상태의 이온 교환 수지 폐기물들은 차폐막이 달린 운반용 플라스크에 넣어서 固体化시켜 處理場에 보냈다. 합계75ft³의 이온교환수지가 사용되었다.

이淨化工程으로 런던뉴클리어의 作業員들은 3.7렘 피폭되었다. 이 정화공정으로 감소된 방사선 피폭선량은 대단한 것이었다. 피폭선량을 상당히 감소시키지 않았더라면 불가능했을 추가작업을 B型증기발생기에 실시했다.

7. 앞으로의 展望

沸騰水型原子炉의 2次系統과 機資材에 CAN-DECON工程을 여러방법으로 사용해 왔다. 이러한 형태의 정화공정들은 거의 일상화되어가고 있지만 모든 原子炉의 침전물들이 거의 비슷한 다른 원자로의 침전물들과 똑같다고 생각해서는 안된다. 그러므로 각淨化工程은 독특한 것이어야 하며 공정을 시행하기 전에 제거할 막의 대표적인 견본들을 채취하여 實驗室에서 試驗해보는 것이 바람직하다.

1984년 Vermont Yankee에서 炉心을 비롯하여 1次회로 전체를 정화할 계획이 잘 진척되고 있다. 이 정화공정에서는 연료가 제거될 것이다.

炉心과 그 機資材들의 성공적인 정화공정이 이루어지면 다음 단계는 燃料를 裝填한채 1次系統을淨化하는 것이다. CANDU-PHW型原子炉에 대해서는 燃料要素들에 전혀 아무런 해를 끼치지 않고 이 공정을 여러번 시행해왔다. 희석식화학정화공정으로 연료 집합체에 아무런 해를 입히지 않고 크루드층을 제거하고 열전도성을 진전시킬수 있으며 사실상 실패율을 감소시키게 되리라는 사실을 증명하는 자료가 있다.

증기 발생기에 대한 CAN-DECON 工程의 세가지 응용은 다단계의 CAN-DECON工程이 加壓水型原子炉 系統들을 효과적으로 정화할 수 있음을 증명하였다. 채널헤드만이 아닌 증기발생기 회로전체를淨化한다면 nozzle dam에 관한 요건도 제거할 수 있다.

加壓水型原子炉淨化工程의 다음 단계는 정화공정 유동통로에 炉心을 포함시키는 것이다. 이런 방식을 처음 사용하려면 연료를 제거하고 수행하여야겠지만 만일 沸騰水型原子炉 燃料를 정화하는데 성공을 거둔다면 燃料를 裝填한채 原子炉全体를 직접 정화하는 일도 가능해질 것이다.