

## Ringhals 加壓輕水爐, 高pH值 利點 立證

최근 Ringhals 2號機는 baffle Jetting에 의한 燃料損傷과 燃料内部의 코발트에 의해 문제를 겪었으나, 運轉經驗으로 高 수소이온농도(高 리튬농도)의 효과가 입증되었다. 현재 3基의 Ringhals 輕水爐에서는 高 수소이온농도방법이 채택되어, 종사원 피폭의 주 원인인 放射化 부식생성물의 축적을 제어할 수 있음을 보여주고 있다. 다음은 Nuclear Engineering International誌 '87年 10月號에 게재된 내용을 번역한 것이다.

이미 알려진 바와 같이 最新의 標準加壓輕水爐에서 종사원 피폭의 주 인자는 Co-58과 Co-60이다. Co-60은 半減期가 더 길므로 운전 몇 년후에는 대부분을 차지한다.

Co-58과 Co-60은 發電所 構造物의 材質에서 기인한다. Co-58은 구조물 재질인 스테인레스, Inconel, Incoloy 등 합금 중에 포함된 니켈로부터, Co-60은 니켈의 불순물로 존재하는 코발트로부터 생성된다.

### 理論的 背景

몇 년간 의문이 되었던 것은 1次冷却水 化學制御로 Co-58과 Co-60을 조절할 수는 없는가였다.

본질적으로 輕水爐의 1次冷却水는 反應度 조절을 위한 붕소가 첨가된 脫酸素水이다. 붕산을 중화하기 위해 수산화 리튬이 첨가되며, 리튬은 붕소의 중성자 흡수반응에 의해 爐心内에서도 생성된다.

水化學을 이용한 放射線管理方法理論이 여러 會合에서 광범위하게 거론되어 왔다. 그러나 運轉中인 발전소에 이 이론을 실제 적용한 것은 드물며, 최근 Ringhals 2,3,4號機의 經驗중 방사선량률 제어를 위한 일차계통 화학처리 실시 효과로 몇가지 결론이 가능해졌다.

1983年 3基의 Ringhals 輕水爐 중 2기(2,4호기)에 최초 일차계통수 pH를 약간 조정했다. 그 목적은 水化學에 의한 방사선 피폭 제어의 보다 적극적인 방법이었다. 1984년과 1985년 기간중 水化學處理의 조정이 3基의 유니트에서 조금씩 계속되었다. 현재 3基의 유니트는 동일한 수질 규격으로 운전되고 있다. 原子爐 및 核燃料 供給者가 권고한 것과는 다소 차이는 있으나 현재까지의 결과는 고무적이다.

### Co-ordinated Chemistry

방사선량률 제어 수단으로서의 1次冷却水 化學處理를 이해하기 위해서는 Ringhals의 3基 經수로 중 제일 먼저 1975년에 商業運轉에 들어

간 Ringhals 2 號機의 운전이력을 검토해 볼 필요가 있다.

3 週期 (1978年/1979年) 末 試驗에서 아주 길었던 1 주기 동안 연료 표면에 상당한 crud 유착(산화 zirconium 에 100 $\mu$ m 까지 유착)이 확인됐다. 이 crud 유착은 리튬농도 0.22ppm 과 수소농도 25ml/kg STP 에 근접하여 낮게 운전한 결과였다.

1979年 웨스팅하우스社는 crud 유착문제를 해결코자 수질규격을 변경했다. 즉, 리튬농도는 0.7ppm, 수소농도는 30ml/kgSTP 로 상향 조정했다.

다음 해인 1980年 웨스팅하우스社의 Co-ordinated chemistry 가 소개되었다(그림 1 참조). Co-ordinated chemistry 의 의도는 冷却材의 pH 를 일정 준위 이상으로 유지하기 위해 리튬농도를 유지하는 것이다.

Co-ordinated chemistry 는 放射化된 부식성물질 침적을 최소화하고, 핵연료 피복재 과열과 zirconium 부식률 면에서 양호한 운전을 하여 깨끗하고 crud 가 없는 연료상태를 유지하는 利點을 가지는데 목적이 있다.

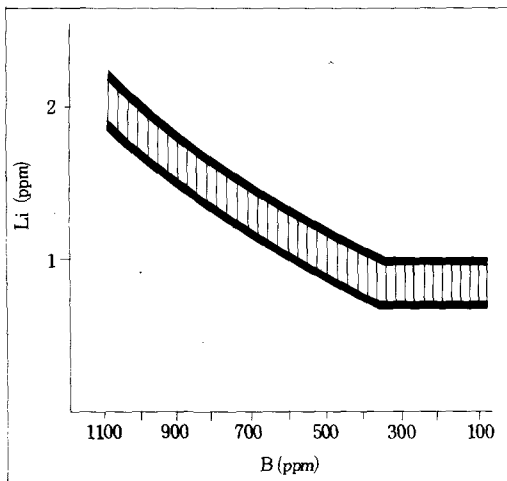
근래 웨스팅하우스社, KWU, EDF 는 붕소-리튬 高温溶液에서의 부식성성물로 생각되는

magnetite 의 용해도에 그들의 Co-ordinated chemistry 권고사항을 기초했다. 그것은 pH 가 6.9 이상의 고온에서 magnetite 의 용해도가 증가한다는 것이다. 즉, 1次冷却材의 pH 를 높게 유지함으로써 가용 물질의 노심 표면 유착과 계통내 표면 방사선준위 상승을 최소화한다.

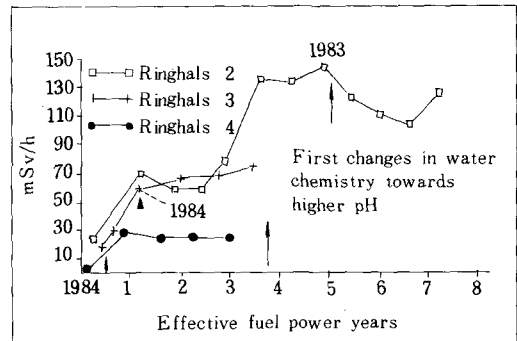
Ringhals 의 運轉員들은 웨스팅하우스社로 부터 Co-ordinated chemistry 에 대한 설명을 처음 듣고 매우 흥미롭고 긍정적이었다. 週期末 약 350ppm 붕소농도에서 리튬 0.7ppm 을 유지해야 하는 것을 잘 이해는 못했지만 기본이론은 신뢰했다. 이 리튬농도 값은 중요한 기간(부분적으로 운전연장/coast down mode)인 燃料週期 후반기에 pH 를 7.4 까지 올리는 것을 의미한다.

### 線量率 上昇

1979年~1983年/1984年 期間(4~8 週期)에 2 號機는 蒸氣發生器 1次冷却材 水室에서 기록적인 선량률 증가를 경험했다. 즉, 70mSv/hr 에서 140mSv/hr 로 (7R/h~14R/h) 증가했다(그림 2 참조).



(그림 1) 종래의 웨스팅하우스社 리튬/붕소 濃度比



(註) 각 표시는 核燃料 재장전기간에 해당하며, 맨 끝은 각 호기의 1987年 outage 임. 1987年 Ringhals 2 號機의 상승추세는 연료손상에 의한 것임. 1987年의 25% 정도는 核分裂生成物과 손상된 연료로 부터 생긴 연료 피복재 파편이 放射化된 것으로 부터 온 것임.

(그림 2) Ringhals 2, 3, 4 號機의 蒸氣發生器 1次冷却材 水室內 平均線量率

처음에 이 선량률 증가추세가 리튬농도 규격 변경과 Co-ordinated chemistry로의 전환에 기인한 것으로 생각했다. magnetite가 crud의 주 성분이라는 가정의 Co-ordinated chemistry 이론에 대한 견해는 爐心内 crud는 웨스팅하우스社와 其他社가 말한 바와 같이 주로 nickel-fer-rite가 될 것이라는 것이다. 이 요지는 陽의 용해도 온도계수를 가지며, magnetite에 대한 것보다 더 높은 pH가 필요하다.

Co-ordinated chemistry에서 권고된 pH 6.9에서 crud는 週期初에 放射線照射를 받을 수 있는 핵연료 표면과 같은 곳에 쌓이게 되어 負의 용해도 온도계수를 가진다. 그러나 높은 pH에서도(주기 후반기 같은) 계수는 負의 값을 가진다. crud는 뜨거운 곳(爐心 등)에서 용해하기 쉽고, 찬 곳(증기발생기 등)에서 침적되어 높은 선량률로 유도되는 경향이 있다.

이러한 검토 결과 Ringhals에 높은 pH를 유지하도록 하기 위해 1983년 Co-ordinated chemistry에서 탈피할 것을 결정했다. 이것은 1차 수실내 선량률 감소를 위해 1982년 水化學處理를 개정한 西獨 Biblis에서의 경험과 같다.

사실은 1979년~1983년에 Ringhals 2號機의 水室 선량률 증가 원인은 연료 그리드에 사용된 니켈에 평균치 이상의 코발트 함유량을 가진 연료가 裝填되었을 것으로 생각되었다. 이에 대한 의심은 네덜란드의 Borssele 輕水爐에서 보고된 증기발생기 수실 선량률의 아주 유사한 증가 추이와 독일내에서 제작된 연료의 높은 코발트 함유에서 비롯된다. 그 후의 調査에서 같은 기간 같은 원료로 만들어진 연료가 Ringhals 2號機에 있음을 밝혀냈다.

## 高pH 維持利點

그럼에도 불구하고 선량률을 저하하는데 주로 기여한 3基의 Ringhals 輕水爐에서 채택하고 있는 높은 pH 유지에 대한 경험을 믿는다.

Co-ordinated chemistry에서 권고된 pH 6.9에서 crud는 週期初에 放射線照射를 받을 수 있는 핵연료 표면과 같은 곳에 쌓이게 되어 負의 용해도 온도계수를 가진다. 그러나 높은 pH에서도(주기 후반기 같은) 계수는 負의 값을 가진다. crud는 뜨거운 곳(爐心 등)에서 용해되기 쉽고, 찬 곳(증기발생기 등)에서 침적되어 높은 선량률로 유도되는 경향이 있다.

따라서 높은 리튬농도가 zirconium부식 가속으로 인한 연료손상 위험 증가 가능성을 우려하는 核燃料 供給者의 반대에도 불구하고 水處理方法을 변경했다.

본질적으로는 높은 pH 유지 수처리방법은 부식생성물에 대한 陽 또는 0의 용해도 값을 갖는 계수를 목표로 燃料週期가 끝날 때까지 pH를 7.3으로 유지하는 것이다. 전체 부식률은 적어지고 crud는 系統-방사화가 가능한 爐心 제외-의 찬 부분에 쌓이는 경향이 될 것이다.

이 높은 pH 유지를 달성키 위해서는 주기 시작시 리튬농도는 최대치인 2.2ppm이 초과하게 된다. 이상적으로는 爐心과 週期設計에 따라 리튬농도는 4~6 ppm 범위가 된다.

이것은 核燃料 供給者의 규격과 어긋나는 것이다. 이미 언급했지만 그들의 주관심은 zirconium에 대한 부식률 증가 위험이다. 하지만 결국 핵연료 공급자들은 최대 리튬농도 3.5ppm 제의에 동의했으며, zirconium 부식에 대한 연료의 시험에 동의했다.

리튬 최대 3.5ppm은 1주기 동안 crud가 많이 유착된 연료로 운전해 왔기 때문에 1985년까지 Ringhals 2호기에 적용안된 것이 사실이었다. 그리고 상온정지 또는 고온대기 동안만 化

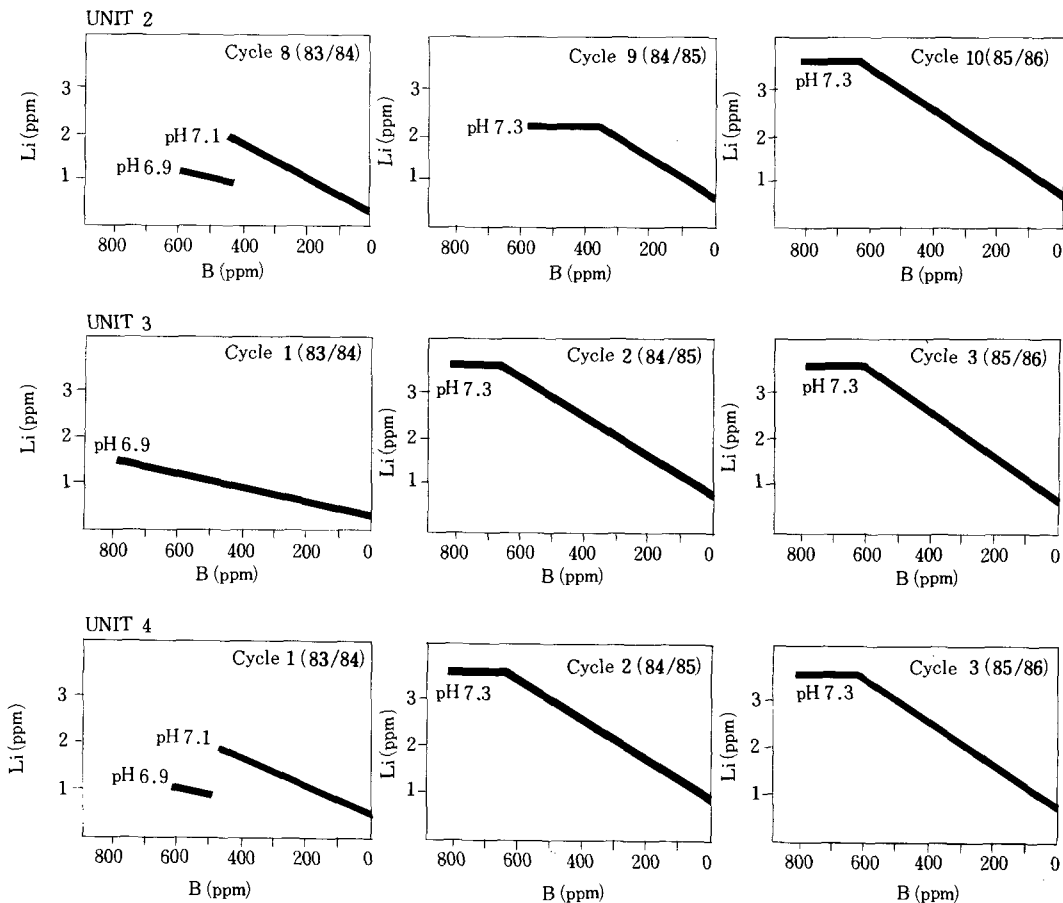
學處理를 단계적으로 변경토록 했다. 이는 부식생성물에 대한 전이기구 (transport mechanisms)에 대한 지식의 제한 때문이었다.

pH 증가와 용해도 온도계수 부호가 음에서 양으로 변할 가능성, 연료에 유착된 crud의 얇은 외부 고 방사성 부분이 이동할 수 있다는 것을 우려했다.

이것은 爐心을 떠나 등온상태가 아닌 다른 부분 표면에 쌓일 수 있다. 이러한 한정은 1 주기 동안 pH 6.9를 유지 운전했던 3號機가 해당된다. 2號機와 4號機에서 주기 중 단계적인 pH

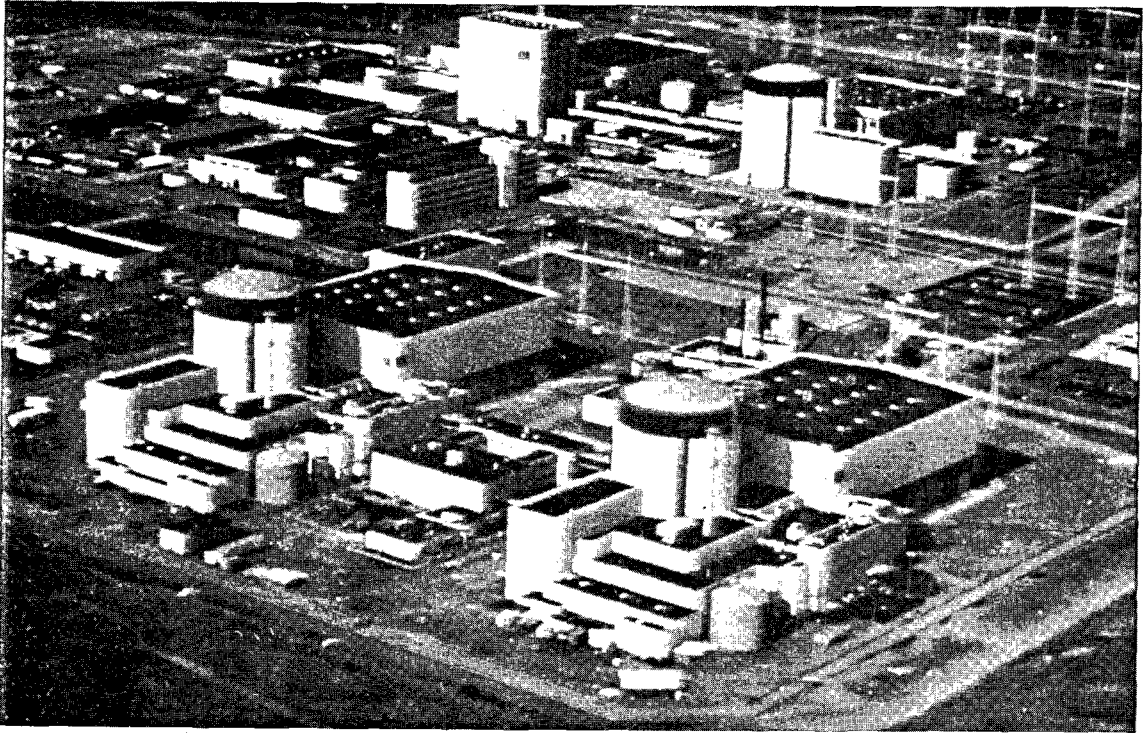
변화 (pH 6.9~pH 7.1)는 1983년말 각각 고온대기 (4 일), 상온정지상태에서 이루어졌다 (그림 3 참조).

현재 化學處理方法 (pH 7.3 고온에서 붕소, 리튬이 조정된)은 취급이 간단하다. 기동 후 리튬이 첨가되고, 리튬농도 3.5ppm에 도달된다 (1~2 일내). 리튬은 30~100일 후 pH 7.3에 도달할 때까지 유지한다 (週期 및 爐心設計에 의해). 그 시점 (붕소 650ppm, 리튬 3.5ppm), pH는 주기 말까지 일정하게 유지한다. 붕소와 리튬분석은 주당 5~7 회, 리튬은 매일 실시하



(註) 圖表는 1983년/1984년부터 현재까지 Ringhals 2, 3, 4號機에서 채택한 붕소/리튬농도를 나타낸다. 8 주기 이전에 2號機는 주기초 pH를 6.9로 한 종래의 Co-ordinated Chemistry에 있었음. 각 호기의 1986년/1987년 주기는 1985년/1986년과 같음.

〈그림 3〉 Ringhals 輕水爐에서의 高수소이온농도 유지 변천



▲ Ringhals 原電의 全景. 1號機 (750MWe Asea Atom BWR)는 1976年 1月에 상업운전 개시. 2號機는 1975年 5月 상업운전을 개시한 WH社製 PWR (800MWe). 3, 4號機는 同一한 WH社製 915MWe PWR로서 1981年 9月과 1983年 11月에 각각 상업운전에 들어갔다.

여 정확을 기한다.

pH 7.3은 붕소와 리튬 값에서 계산된다(계산법에 따라 7.4가 될 수도 있다).

## 結 果

불행하게도 2號機의 선량률이 금년에 연료 손상으로 인해서 변화가 있었다. 최근의 outage (1987年 7月)기간 중 측정된 수실 선량률은 燃料 펠렛이 baffle jetting에 의해 燃料棒에서 유출되었고, 1次冷却材로 核分裂生成物이 확산되었기 때문에 높다.

그러나 이에 대해 정확하게 말한다면 高pH 유지가 放射化된 crud 침적을 억제하는 효과가 입증된다는 생각을 할 수가 있다. 아마도 높은 pH 유지의 장점을 가장 확실히 알 수 있는 것

은 그림 2에서와 같이 4호기의 수실 준위가 아주 낮다는 것이다. 그것은 이 유닛이 새로운 방법으로 변경하기 전 종래의 pH(Co-ordinated chemistry)로 반주기동안 운전된 것이라는 것이 중요할 것이다. 高 pH 유지로 변경전 종래의 Co-ordinated chemistry (pH = 6.9)로 長週期 運轉한 3號機보다 선량률이 양호하다.

새로운 방법에 의한 연료상태 (baffle jetting 문제 제외)는 양호하며, crud 유착은 상당히 얇아졌고 (1 - 1.5  $\mu\text{m}$ ), zirconium 부식물은 정상이다.

오염면에서 새로운 化學處理方法是 系統內 표면과 핵연료 재장전 후 원자로 수조(cavity)의 방사선 준위를 아주 낮게 유지하기 위해 오염 가능량을 줄일 수 있는 능력이 있음을 나타내고 있다.