

## 원전의 내환경기기검증 화학환경 및 핵분열생성물 제거능력 평가

송동수<sup>†</sup> · 하상준 · 성제중 · 전황용 · 허성철

한국수력원자력(주) 중앙연구원

(2014년 4월 14일 접수, 2014년 9월 10일 수정, 2014년 9월 12일 채택)

### Analysis of EQ pH Condition and Fission Product Removal Capability for Nuclear Power Plant

Dong Soo Song<sup>†</sup> · Sang Jun Ha · Je Joong Seong · Hwang Yong Jeon · Seong Cheol Huh

Korea Hydro & Nuclear Power Company, Central Research Institute

(Received 14 April 2014, Revised 10 September 2014, Accepted 15 September 2014)

#### 요약

원자력발전소는 냉각재상실사고(LOCA)와 같은 과도상태시 pH 조절을 통해 격납건물의 핵분열생성물(요오드) 제거 능력을 유지한다. 이와 더불어 격납건물 내부의 스테인레스강 기기들의 응력부식균열(Stress Corrosion Cracking)을 방지하고 알루미늄 또는 아연 부식에 의한 수소생성을 최소화할 수 있기 때문에 살수 및 집수조냉각수의 화학조건(pH) 조절능력이 요구된다. 현재 원전은 LOCA시 능동형 살수첨가제인 NaOH를 사용하여 격납건물 살수 및 집수조냉각수의 pH를 조절하도록 설계되어있다. 본 논문에서는 LOCA시 집수조냉각수의 pH를 분석하고, 살수화학조건 pH 관련 최신규제요건인 표준심사지침(SRP) 6.5.2에 따라 핵분열생성물제거상수 및 제염계수를 계산하였다. 분석결과, 격납건물집수조 pH는 8.09~9.67로서 설계기준을 만족한다. 그리고 격납건물살수계통에 의한 핵분열생성물 제거상수 및 제염계수는 원전 내환경기기검증을 위한 방사선환경 평가의 입력으로 제공된다.

주요어 : 내환경기기검증, 화학환경, 핵분열생성물제거계수, 응력부식균열, 제염계수

Abstract - Nuclear Power Plants require the control ability of chemical condition (pH) because pH control during transient accident such as LOCA makes an able the fission product removal capability to be maintained, stress corrosion cracking of stainless steel equipment to be prevented and the production of hydrogen by aluminum and zinc to be minimized. An NPP is designed to control the pH of containment spray and sump coolant using the spray additives 30% NaOH in the event of loss of coolant accident. In this paper, the pH of sump coolant of an NPP during LOCA was analyzed and the fission products removal constant and decontamination factor were calculated according to Standard Review Plan 6.5.2 related to spray chemical conditions of pH. The calculated pH value of recirculation mode using the computer code corresponds to 8.09~9.67, which meets the chemical environment regulation requirements. The fission product removal capability caused by containment spray system is performed to provide input to radiation analysis.

**Key words** : Environmental qualification, Chemical condition, Fission product removal capacity, Stress corrosion cracking, Decontamination factor

## 1. 서 론

<sup>†</sup>To whom corresponding should be addressed.  
Korea Hydro & Nuclear Power Company, Central Research Institute  
70 1312-gil Yuseong-daero Yuseong-gu Daejeon, Korea  
Tel : 042-870-5252 E-mail : dssong@khnp.co.kr

원전은 LOCA시 능동형 살수첨가제인 NaOH를 사용하여 격납건물살수 및 집수조 냉각수의 pH를 조

절하도록 설계되어있다. 본 논문의 목적은 원전의 집수조 냉각수의 pH를 분석하고 pH 관련 최신규제요건인 표준심사지침(SRP)에 따라 LOCA시 핵분열생성물제거상수와 제염계수 계산방법을 기술하는데 있다.

본 논문에서는 기존방법인 붕산수와 NaOH만을 고려한 화학평형 계산방법을 통해 계산된 집수조 용액의 평형 pH를 새로운 방법으로 핵분열생성물로부터 방출되는 방사선에 의한 반응 등을 고려하여 Gibbs 자유에너지 및 Lagrange Multiplier 기법을 이용한 수치해석적 방법으로 집수조내의 평형 pH를 계산하고 10CFR50.49[1] 기반으로 화학조건(pH)를 내환경기기검증 인자로 선정하여 SRP 6.5.2 방법론에 따라 핵분열생성물제거상수와 제염계수를 계산하였다.

## 2. 분석 방법론

### 2-1 기술기준

격납건물 집수조 및 재순환 살수용액에 대한 최신 규제지침인 SRP Section 6.5.2 Rev. 3[2]에 따르면 격납건물살수, 비상노심냉각수, 반응도제어를 위한 첨가제와 핵분열생성물 제거 목적을 위한 모든 첨가제의 주입종료 후에 격납건물집수조에 집적되는 수용액의 수소이온농도는 장기적으로 유의할만한 요오드 재취발이 일어나지 않도록 충분히 높은 수준을 유지해야 한다. 요오드의 장기간 억류는 예상되는 장기 분리계수에 근거하여 계산하며 일차냉각재와 비상노심냉각수에 의한 혼합 및 희석이 있을 후 집수조의 평형수소이온농도가 7.0 이상인 경우에만 인정될 수 있다. 이 pH 값은 살수재순환모드 개시시점까지는 도달되어야한다.

### 2-2 집수조 pH 분석 방법

본 논문에서는 집수조 내 물 용액의 평형 pH를 계산하기 위해 System이 일정압력/온도에서 평형에 도달할 때 최소화되는 Chemical Potential인 식 (2-1)의 Gibbs 자유에너지를 이용하여 열역학적 평형몰량과 pH 값을 계산하였다.

$$G_T = \sum_i n_i (G_i^0 + RT \ln a_i) \quad (2-1)$$

- $G_T$  : 총집스자유에너지 (J/mole)
- $n_i$  : 화학종 i의 몰량 (mole)
- $G_i^0$  : 화학종 i의 표준 집스자유에너지 (J/mole)
- $R$  : 이상기체상수 (=8.314472) (J/mole K)
- $T$  : 절대 온도 (K)
- $a_i$  : 화학종 i의 활성도

총자유에너지는 무차원수  $G_T/RT$ 로 나타낼 수 있고 이상적인 조건에서 보면 식 (2-2)와 같다.

$$\begin{aligned} \frac{G_T}{RT} = & \sum_{i=1}^{m_p} \left[ \left( \frac{G^0}{RT} \right)_{p_i} + \ln P + \ln \left( \frac{n_{p_i}}{N_p} \right) \right]_{p=1} \quad (2-2) \\ & + \sum_{p=2}^{q+1} \sum_{i=1}^{m_p} n_{p_i} \left[ \left( \frac{G^0}{RT} \right)_{p_i} + \ln \left( \frac{n_{p_i}}{N_p} \right) \right] \\ & + \sum_{p=q+2}^{q+s+1} n_{p_i} \left( \frac{G^0}{RT} \right)_{p_i} \end{aligned}$$

- $m_p$  : 상태 p에서의 화학종 수
- $P$  : 총 압력 (atm)
- $n_p$  : 상태 p의 몰량 (mole)

기체상태에 대해서는 p=1로, 응축상태의 용액에 대해서는 p=2에서 부터 p=(q+1)까지로, 마지막으로 불변의 응축상태에 대해서는 p=(q+s+1)로 상태를 연속적인 수로 정해진다. 변수인 압력(P)와 상수인 총기체체적 (V)에 대한 계산에서 P는 식 (2-3)과 같이 유도된다.

$$P = \frac{N_1 RT}{V} \quad (2-3)$$

보조방정식 식(2-4)은 모든 원소의 질량들이 보존되어야 한다는 제한조건이 있다.

$$\sum_{p=1}^{q+s+1} \sum_{i=1}^{m_p} A_{p_{ij}} n_{p_i} = b_j \quad (2-4)$$

여기서,

- $A_{p_{ij}}$  : 상태 p에서의 화학종 i의 원소 j 계수
- $b_j$  : 원소 j의 g-atom

임의의 점(각 화학종의 몰량)에 대한 미결정 증배

계수들과 Taylor 확장계수들의 Lagrange의 방법을 이용한 위와 같은 방정식 세트를 계산함으로써 총집스자유에너지의 최소값을 계산한다.

pH 계산방법은 위의 방법에 따라 도출된 평형수소이온의 활성도를 계산하는 방법으로 그 값은 식 (2-5)에 따라 구한다.

$$pH = -\log_{10}(a_{H^+}) = \log_{10}\left(\frac{1}{a_{H^+}}\right) \quad (2-5)$$

여기서,  $a_{H^+}$ 는 수소이온의 활성도이다.

### 2-3 핵분열생성물제거계수 및 제염계수 분석방법

설계기준사고시 선량계산에 사용될 살수에 의한 핵분열생성물(요오드)제거계수와 살수에 의한 원소형 요오드제거계수( $\lambda_s$ )와 입자형 요오드제거계수는 SRP 6.5.2에 기술된 식 (2-6)과 (2-7)을 이용하여 계산되며 살수를 통해 격납건물 대기로 방출된 원소형 요오드가 대기로부터 집수조영역으로 제거될 수 있는 원소형 요오드의 최대제염계수(DF)는 SRP 6.5.2에 기술된 식 (2-8)을 이용하여 계산된다.

$$\lambda_s = \frac{6K_g \cdot T \cdot F}{V \cdot d} \quad (2-6)$$

- $\lambda_s$  : 살수에 의한 원소형 요오드제거계수( $\text{min}^{-1}$ )
- $K_g$  : 기체상 질량전달계수 (m/min)
- T : 살수액적의 낙하시간 (min)
- F : 살수유량 ( $\text{m}^3/\text{min}$ )
- V : 살수영역의 체적 ( $\text{m}^3$ )
- d : 살수액적의 평균직경 (m)

$$\lambda_p = \frac{3h \cdot F}{2V} \left(\frac{E}{D}\right) \quad (2-7)$$

- $\lambda_p$  : 살수에 의한 입자형 요오드제거계수( $\text{min}^{-1}$ )
- h : 살수액적의 낙하높이 (m)
- E/D : 평균살수액적의 집적효율 ( $\text{m}^{-1}$ )

$$DF = 1 + \frac{V_s}{V_c} \cdot H \quad (2-8)$$

- $V_s$  : 격납건물 집수조내 냉각수체적 ( $\text{m}^3$ )
- $V_c$  : 격납건물 자유체적 ( $\text{m}^3$ )
- H : 평형 요오드분할계수

## 3. 분석결과 및 검토

### 3-1 화학분석 결과

최신설계기준을 적용하여 냉각재상실사고(LOCA)에 따라 원자로냉각재계통(RCS), 재장전수저장탱크(RWST), 살수화학첨가탱크(CAT: Chemical Additive Tank) 등으로부터 격납용기 집수조로 모이는 물 용액이 완전 화학평형상태에 도달하였다고 가정했을 때, 계산된 Long Term 평형집수조 pH 최소값과 최대값은 각각 8.09과 9.67이다.

### 3-2 핵분열생성물 제거계수 및 제염계수 계산

#### 3-2-1 원소형 요오드제거계수

원소형 요오드제거계수( $\lambda_s$ )를 계산하기 위해서는 먼저 살수액적의 낙하시간(T)을 식 (3-1)을 이용하여 평가한다.

$$T = \frac{\text{Average Fall Height}}{\text{Terminal Velocity of Droplet}} = \frac{h}{V_g} \quad (3-1)$$

살수액적의 평균낙하높이는 보수적으로 가장 낮은 위치의 살수노즐에서부터 격납건물 내 최상단 구조물인 증기발생기 격실상부까지의 거리로 선정하였다. 질량평균살수액적의 종단속도,  $V_g$ 는 살수액적의 물리적특성 및 격납건물 대기상태에 따라 달라지며 식 (3-2)으로 표현된다.

$$V_g = \sqrt{\frac{4(\rho_a - \rho_g) \cdot g \cdot d}{3\rho_g \cdot C_D}} \quad (3-2)$$

- $V_g$  : 살수액적의 종단속도 (m/sec)
- g : 중력가속도
- d : 살수액적 직경 (m)
- $C_D$  : 항력계수
- $\rho_a$  : 살수액적의 밀도 ( $\text{kg}/\text{m}^3$ )
- $\rho_g$  : 공기 및 증기 혼합물의 밀도 ( $\text{kg}/\text{m}^3$ )

원소형 요오드제거계수( $\lambda_s$ ) 계산에 이용된 각종 변

수는 표(3-1)에 정리되어있으며 이들 변수를 적용한 살수구역의 원소형요오드제거계수는 식(2-6)을 이용하여 계산한 결과 18.6 hr<sup>-1</sup>로 나타났다. 그러나, 원소형 요오드 제거계수( $\lambda_s$ )는 계산치 18.6 대신에 보수적으로 하한치인 10을 방사선량 계산의 입력으로 제공한다.

3-2-2 입자형 요오드제거계수

살수에 의한 입자형 요오드제거계수( $\lambda_p$ ) 계산에 사용된 각종 변수 값은 아래 표 3-2에 정리되어 있으며 이들 변수를 적용한 입자형 요오드제거계수는 수식 (2-7)을 이용하여 0.74 hr<sup>-1</sup>로 계산되었다.

3-2-3 요오드 제염계수(DF, Decontamination Factor)

요오드 제염계수 계산에 사용된 각종 변수 값은 표 3-3과 같다. 이들 변수중 요오드분할계수는 Oak

Ridge National Laboratory(ORNL)의 실험자료를 근거로 250을 적용하였으며[3] 요오드제염계수를 보수적으로 평가하기 위하여 집수조내 냉각수의 최소부피를 가정하였다. 결과적으로 요오드제염계수 계산결과는 10으로 나타났다.

4. 결론

본 논문에서는 Gibbs 자유에너지를 이용하여 계산한 재순환모드에서의 pH 값은 8.09~9.67으로 FSAR[4]의 재순환모드의 pH 값 8.3~9.5의 범위를 포함하며 국내 원전의 화학환경 규제요건[5]를 만족한다.

또한 10CFR50.49를 바탕으로 화학조건(pH)를 내 환경기기검증 인자로 선정하여 SRP 6.5.2에 따라 Sump pH 및 핵분열생성물 제거상수와 제염계수를

Table 3.1. 원소형 요오드제거계수( $\lambda_s$ ) 계산을 위해 사용된 변수값

Item	Description	Units	Parameter Values
$\omega$	Flow Rate per Spray Nozzle	m <sup>3</sup> /sec	0.00093
D	Diameter of Spray Nozzle Throat	m	0.0109
u	Velocity of Spray Flow	m/sec	10
$\rho_a$	Density of Droplet	kg/m <sup>3</sup>	999.55
$\mu$	Viscosity of Droplet	kg/m-sec	10.862 × 10 <sup>-4</sup>
Re	Reynolds Number	-	400
$\xi$	Drag Coefficient	-	0.5081
$\rho_g$	Density of Air/Steam Mixture	kg/m <sup>3</sup>	1.12
g	Gravitational Constant	m/sec <sup>2</sup>	9.81
d	Droplet Diameter	m	1.4 × 10 <sup>-3</sup>
V <sub>g</sub>	Terminal Velocity of Droplet	m/sec	5.666
h	Averaged Fall Height	m	20.0
T	Falling Time of Drop	sec	3.53
K <sub>g</sub>	Gas Phase Mass Transfer Coeff.	m/min	3
F	Spray Pump Flow Rate	m <sup>3</sup> /min	14.17
V	Volume of Sprayed Region	m <sup>3</sup>	34,580

Table 3.2. 입자형 요오드제거계수( $\lambda_p$ ) 계산에 사용된 변수값

항목	설명	단위	값
h	Averaged Fall Height	m	20.0
F	Spray Pump Flow Rate	m <sup>3</sup> /min	14.17
V	Volume of Sprayed Region	m <sup>3</sup>	34,580
E/D	무차원 집적효율과 평균 살수액적 크기의 비	m <sup>-1</sup>	1

Table 3.3. 제염계수 계산에 사용된 변수값

항목	설명	단위	값
H	분할계수	-	250
V <sub>s</sub>	집수조의 최소 냉각수 체적	m <sup>3</sup>	1,742
V <sub>c</sub>	격납건물 자유체적(액체 체적 제외)	m <sup>3</sup>	48,658

결정하였다. SRP 6.5.2의 방법론을 적용하여 새로이 평가된 격납건물살수에 의한 원소형 요오드제거계수는  $10\text{hr}^{-1}$ 이고, 요오드분리상수(IPC)는 250이며, 체염계수(DF)는 10에 해당된다. 요구되는 IPC는 FSAR의 경우, 10,000보다 크나, 표준원전의 경우에는 약 250정도가 사용된다. 원소형 요오드에 대한 살수 제거계수와 체염계수는 기술기준 관점에서 국내원전과의 일관성을 유지하기 위해 SRP 6.5.2를 적용하여 평가된 값을 사용한다.

## References

1. U.S Nuclear Regulatory Commission, Environmental Qualification of Certain Electric Equipment Important to Safety for Nuclear Power Plants, REG Guide 1.89 Rev 1 (1984)
2. U.S Nuclear Regulatory Commission. Standard Review Plan 6.5.2 Containment Spray as a Fission Product Cleanup System(Rev. 4); NUREG-0800 (2007)
3. C.F. Weber and E.C. Beahm. Calculation of pH and Iodine Volatility Under Reactor Accident Conditions; ORNL/NRC/LTR-99/3 (1999)
4. Ulchin 1&2 Final Safety Analysis Report, Chapter 3, 4, 6, 9, 11, 15.
5. 한국원자력안전기술원, 경수로형 원자력발전소 규제기준 및 규제지침(II) (2011.7)