

가압경수로 계통 내 아연주입 기술적용을 위한 타당성 조사

Feasibility Study of Zinc Injection Technology in the Primary Coolant of PWR for Dose Rate Reduction

이두호, 강덕원

한국전력공사 전력연구원

대전광역시 유성구 문지동 103-16

요 약

가압경수로 계통에 아연을 주입하는 기술은 선량을 저감측면과 PWSCC 저감측면에서 접근되어져 왔다. 운영중인 원자로에 대한 아연 주입효과를 평가하기 위해 가압경수로 (PWR) 원전에서는 미국의 Farley 2호기에서 최초로 1994년 6월에 아연주입 시험운전을 실시하였으며, 평가 결과, 양호한 효과를 얻은 것으로 입증되어 Farley 1호기와 Diablo Canyon 1, 2호기에도 확대 적용되었다. 이들 발전소에서는 PWSCC 저감을 목적으로 실험실 수준의 연구를 통해 제안된 30~40 ppb의 아연을 주입하는 것으로 조사되었다. 아울러 Palisades 원전과 독일의 가압경수로 원전들에서도 선량저감을 목적으로 5 ppb 미만의 아연을 주입하고 있는 것으로 나타났다.

현재까지 아연을 계통에 실적용한 발전소들에서는 선량을 저감측면에서 만족할만한 결과를 얻은 것으로 보고되고 있으나, PWSCC 저감측면에서는 주입효과에 대한 정량적인 평가를 내리기에는 아직 이른 것으로 평가되고 있다.

Abstract

Zinc injection to the reactor coolant system of pressurized water reactors (PWRs) is being used for dose rate reduction and primary water stress corrosion cracking (PWSCC) mitigation. The first U.S. demonstration was implemented at Farley 2 in June 1994. Zinc injection was later initiated at Farley 1 and Diablo Canyon 1, 2. The zinc concentration of coolant is in the range of 30~40 ppb, since laboratory results have shown that this concentration is needed to mitigate PWSCC of Alloy 600. And also, zinc injection at low levels (~5 ppb) has been started at three German PWRs and at Palisades, where the aim is to lower radiation fields.

All PWR plants injecting zinc have seen significant dose rate reduction. It is

judged premature to assign a significant role to the addition of zinc in mitigating PWSCC of Alloy 600.

1. 서론

원자로 1차 계통 내 구조재로부터 생성되는 부식생성물은 중성자와의 반응으로 노심내·외에서 방사화 부식생성물로 존재하게 된다. 그동안 계통 내 방사선량 감소 및 1차 계통의 수질 향상을 위해 부식생성물의 생성·이동 억제를 위한 고 pH 수질관리, 냉각재 내 방사화 입자물질 제거를 위한 미세 여과재의 적용 및 정지시 화학처리 기법 개선을 통한 계통 표면의 침적 방사화 물질제거기술 등 다양한 수질관리기술이 개발되어 왔으나, 이러한 다양한 기술의 적용에도 불구하고 이들 기술이 지닌 고유한 취약성으로 인해 그 한계성이 노출되어 왔다. 최근 들어 국제방사선방호위원회(ICRP)는 원전 작업종사자의 연간 허용피폭량을 연간 5 mSv를 넘지 않는 범위에서 5년간 100 mSv 수준으로 유지하도록 권고하고 있으며, 이러한 엄격해지는 방사선 관리규정에 능동적으로 대체할 수 있는 새로운 방호차원에서 계통의 방사선량을 낮출 수 있는 수처리 기술과 증기발생기 전열관 1차측 응력부식균열(PWSCC; Primary Water Stress Corrosion Cracking)의 감소 및 핵연료 피복관의 건전성 확보 등 재질의 건전성을 확보할 수 있는 신기술의 개발이 절실히 요구되고 있다.

원전 냉각재 수질관리 기법 중 아연주입 기술은 원전 1차 냉각재 내에 수십 ppb 이하의 아연을 첨가함으로써 계통 내 주요재질의 건전성 향상과 방사선량의 저하 효과를 동시에 얻을 수 있는 기술이다. 아연주입 기술은 황동 콘덴서로부터 기인한 5-15 ppb의 아연을 함유한 냉각재를 사용하는 비등수로형 원자로(BWR; Boiling Water Reactor)의 배관표면 방사선량율이 아연을 함유하지 않는 발전소들에 비해 낮은 이유를 조사한 결과, 냉각재 내의 아연이 계통 내 스테인레스강의 부식을 억제시키는 효과를 나타낸다는 경험적인 사실로부터 태동되었다. 실험실 규모의 시험과 운영중인 발전소에 대한 실적용 시험을 거쳐 아연주입에 대한 효과가 구체적으로 확인됨에 따라 BWR 원전에서는 아연주입 기술이 범용화되고 있으며, 현재 전 세계적으로 30기 이상의 원전에서 적용되고 있다.

한편 이러한 아연주입 기술을 PWR에 적용하기 위한 연구개발이 원전 선진국들에 의해 활발히 진행되고 있다. 현재 다른 국가에 비해 집중적인 연구개발이 진행되고 있는 미국의 경우, 웨스팅하우스 소유그룹(WOG; Westinghouse Owner Group)과 미국중앙전력연구소(EPRI)가 공동으로 수행중인 기술개발 현황에 대해서는 비교적 많은 내용이 알려져 있으며, 기술개발의 주요 목적은 PWR 적용에 의한 방사선량 감소효과 입증, 증기발생기 전열관과 기타 재질의 PWSCC 저항성 향상효과 해석, 핵연료 피복관의 건전성 평가 및 경제성 분석 등이다. 미국 원전의 경우 Farley 2호기를 시작으로 현재 5개의 원전에서 실적용 중에 있다. 다음으로 활발한 연구 개발과 실적용을 병행, 수행하고 있는 나라가 독일이다. 독일의 경우, Framatome ANP

(최근 들어 프랑스의 Framatome사와 독일의 Siemens사와 합병)사에서 주도적인 연구를 수행해오고 있으며, 독일 원전의 경우는 증기발생기 세관재질로 Alloy-800을 채택하여 사용하고 있기 때문에 아직까지 PWSCC는 별반 문제화되어 있지 않으며, 주로 방사선 작업자 보호를 위한 계통 방사선량 저감화에 초점을 맞추어 미량(5 ppb 수준)의 아연을 계통에 주입하는 연구를 수행해오고 있다. 일본의 경우는 아연주입 효과를 검증하기 위해 일본중앙전력연구소(CRIEPI)에서 아연주입에 대한 광범위한 연구를 전담 수행해오고 있다. 현재 일본의 BWR 발전소는 이전부터 배관 선량률이 1 mSv/hr 이하의 낮은 상태로 유지되고 있기 때문에 아직 실제 적용에는 이르지 않고 있으며, PWR 원전의 경우에도 아직 아연 주입을 결정한 발전소는 없으나 선량을 저감과 계통 배관의 부식 억제 측면에서 매우 유망한 기술로 분류하여 지속적인 연구를 수행하고 있다.

향후 국내 원전에 대한 기술 적용을 고려함에 있어서 위의 상용 PWR 적용 결과와 노내 성능평가 결과가 가장 큰 관심사라 할 수 있다. 따라서 본 논문에서는 현재 PWR 원전에 아연주입 기술을 실적용한 발전소의 운전 경험을 중심으로 아연주입 기술의 현황을 분석하는데 초점을 맞추었다.

2. 본 론

2-1. 냉각재의 수화학

미국의 Farley 1, 2호기와 Diablo Canyon 1, 2호기 등의 경험에 비추어볼 때 원자로 냉각재 계통에 아연을 주입하는 기술은 간단하면서도 비용이 많이 들지 않는 과정임을 알 수 있었다. 이들 발전소외에 Palisades 원전과 Obrigheim 원전, 그리고 Biblis-A, B 원전에서도 아연을 주입하고 적정 농도로 유지하는 데에 별반 어려움을 겪지 않은 것으로 조사되고 있다.

아연농도의 분석은 채취된 냉각재 시료를 산성화시킨 후 AAS나 ICP-MS로 분석을 수행하며, 분석주기는 1회/일이 적당한 것으로 보고되고 있다. 아연 주입량은 주입 목적에 따라 달라지는데 PWSCC 저감측면을 고려하는 경우 주로 natural zinc acetate를 주입하여 냉각재의 아연농도를 30~40 ppb로 유지하는 데 반해, 계통 선량을 저감측면에서 접근하는 경우 depleted (in Zn-64) zinc acetate를 주입하여 5 ppb 수준으로 조절하고 있는 것으로 조사되었다. 한편 주입된 아연으로 인해 냉각재 내 방사성 코발트와 Zn-65, 니켈 등의 함량이 증가하게 되었으나 발전소 운영 기간중 CVCS 이온교환기 성능과 필터 교환주기에는 별다른 영향이 없는 것으로 나타났다. 또한 아연주입이 계속 진행되는 경우 냉각재 계통에 존재하는 방사성 코발트와 니켈 등의 양은 점차적으로 감소하게 되어 궁극적으로 이온교환수지에 의해 처리되어지는 양과 이에 따라 발생하는 폐기물 양도 감소하게 될 것으로 예상할 수 있다.

2-2. 선량율과 계통준위

각 발전소의 아연주입에 따른 방사선량 자료와 주입된 아연의 형태, 평균 농도 등

을 표 1에 나타냈으며, 각 발전소마다 아연주입 기간과 주입된 아연의 농도가 다르기 때문에 아연노출시간에 따른 아연주입 전후의 방사선량 변화를 비교하였다.

표 1. 아연농도와 정지화학 처리후 방사선량 저감 자료의 요약

발전소/주기	아연의 형태	평균 아연농도 (ppb)	아연노출시간 (월)	아연노출 (ppb-mo)	감소율 (%)	⁶⁵ Zn의 기여도 (%)
Biblis B/17	Depleted	5	10.9	35	15.7	-
Dia. Canyon 1/9	Natural	40~30	7.5	235	29	9
Dia. Canyon 2/9	Natural	30~15	6.3	130	28	4
Farley 2/10	Natural	40	8.9	310	27	6.6
Farley 2/12	Depleted	40	3.8	140	15	0
Farley 2/13	45% Depl. 55% Natur.	30	10.2	300	24	- ¹⁾
Palisades	Depleted	5	6.3	30	18	-

1) Gamma spectrometry results for ⁶⁵Zn contribution not performed or available

아연노출은 각 주기동안의 평균 아연농도와 냉각재 내 아연이 존재하는 기간의 곱으로 표현된다. 표 1을 살펴보면 Farley 2호기의 경우 아연노출이 증가하면서 방사선량의 감소가 더욱 효과적으로 일어나고 있음을 알 수 있다. 그러나 Westinghouse사의 방사능 이동에 대한 코드(CORA) 분석을 통한 결과를 살펴보면 10주기 말의 방사선량 감소는 8주기에 시작된 냉각재 화학 운전방식이나 Alloy 718에서 지르칼로이 핵연료 격자 스트랩(fuel grid straps)의 변경으로 인한 효과와 중첩될 수 있음을 염두에 두어야 한다. 이러한 변화로 인한 효과는 주기가 거듭되는 동안 점차 감소하기 때문에 13주기 말에 측정된 결과는 위의 영향들이 배제된 아연주입만의 효과로 해석될 수 있으며, 따라서 300 ppb-mo의 아연노출로 인해 25 % 정도의 방사선량 저감 효과를 가져온 것으로 평가되었다. Diablo Canyon 원전들에서도 운전방식이나 구조의 변화가 2, 3주기를 거치면서 수행되었으나, 9주기에는 이러한 효과가 거의 나타나지 않을 것으로 예상할 수 있다. 또한 표 1에서도 알 수 있듯이 130~235 ppb-mo의 낮은 아연노출에서도 Farley 2호기와 유사한 수준의 방사선량 저감이 일어났음을 알 수 있다. 물론 Farley 2호기와 Diablo Canyon 원전사이의 설계상의 차이에 의해서도 어느 정도 영향을 받을 수 있으나 이러한 현상은 노심의 존재하는 부식 피막의 방사성 코발트를 치환하는 아연의 작용에는 포화효과(saturation effect)가 있음을 나타내며, 방사선량 저감효과를 아연주입의 목표로 삼는 경우 낮은 아연농도로도 충분한 효과를 나타낼 수 있음을 의미한다. 이 경우 위의 두 원전은 모두 natural zinc를 사용한 발전소이므로 depleted zinc를 사용한 경우에는 방사선량 저감측면에서 훨씬 양호한 결과를 얻을 수 있을 것으로 예상할 수 있다. 한편,

Biblis B원전과 Palisades 원전의 자료를 살펴보면 Farley 2호기와 Diablo Canyon 원전에 비해 훨씬 낮은 아연노출에 의해서도 상당한 수준의 방사선량 저감효과를 나타낸 것을 알 수 있다.

아연주입을 적용한 각 발전소의 아연노출과 선량을 저감 효과의 관계를 그림 1에 나타냈다. 비록 각 발전소의 설계상, 운영상의 차이를 감안하지는 않았지만, 전반적으로 아연노출이 증가할수록 선량율이 더 많이 감소하는 지수함수적인 관계를 나타낼 수 있다.

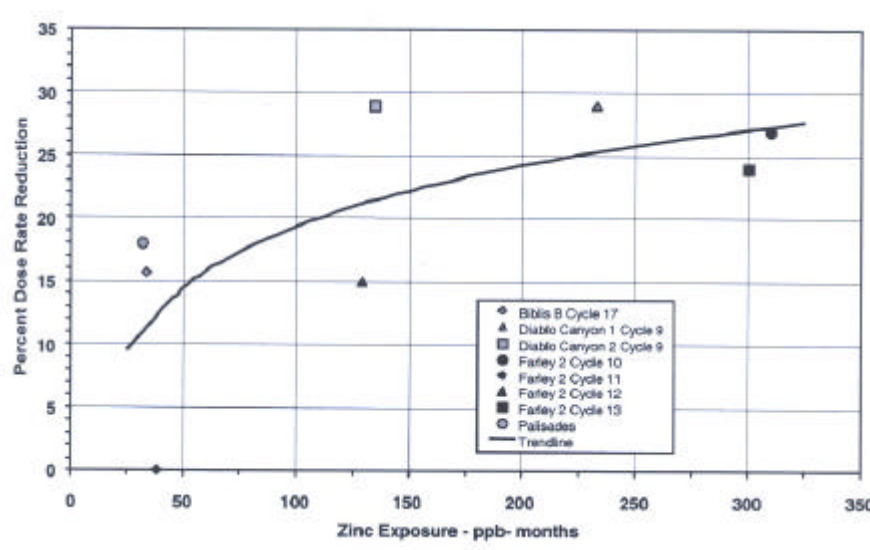


그림 1. 주입된 아연과 선량을 저감(%)과의 관계

2-3. 증기발생기 검사결과

PWSCC 저항성 향상을 위해 아연주입이 실시된 미국 원전들(Farley 1, 2호기와 Diablo Canyon 1, 2호기)에서는 PWSCC 결함으로 인해 관막음 조치가 수행된 전열관의 수가 감소하는 경향을 보이고 있는 것으로 조사되고 있다. 그러나 최근 검사장비의 교체나 plugging criteria 등이 변경되면서 이러한 감소 경향이 전적으로 아연주입에 의한 것인지는 아직 결론 내리기에는 이른 단계로 판단하고 있다. 동 원전들에서는 현재까지 아연주입 운전이 계속 진행되고 있기 때문에, 이러한 발전소 운전 자료들이 축적되어진다면 아연주입으로 인한 PWSCC 저항성 향상 효과에 대한 정량적인 평가도 가능할 것으로 예상하고 있다.

2-4. 핵연료 건전성 평가

Farley 원전과 Dablo Canyon 원전의 경우 아연주입 후 핵연료 계통에 대한 육안검사를 실시한 결과, 옅은 검은색의 침전물의 존재를 확인할 수 있었다. 그러나 이러한 현상은 냉각재 내 아연농도가 대략 20 ppb를 상회하는 수준에서 운전된 경우에만 발생되었으며, 5 ppb 수준으로 운전된 발전소에서는 이러한 현상을 확인할 수

없었다.

핵연료 계통에 대한 전반적인 부식생성물 부하량은 Farley 원전 1, 2호기의 경우 아연주입 전·후에 별다른 차이가 없는 것으로 조사되었으나, Diablo Canyon 1호기의 경우 그 차이가 25 μm 에 이르는 큰 변화를 나타냈다. 현재까지는 아연주입이 이러한 현상에 어느 정도 기여했는지 알 수 없지만, 냉각재 내 아연농도를 높은 수준으로 유지하는 발전소들의 경우 아연주입으로 인해 방사화된 부식생성물의 부피와 분포가 어떠한 영향을 받게 되는지를 계속적으로 관찰하는 것이 필요할 것으로 판단된다. 한편 아연주입 후에 산화막 두께 측정을 실시한 결과 아연주입이 핵연료 피복관의 부식에 있어서 통계적으로 별다른 영향을 미치지 않은 것으로 조사되었다. 그림 2에는 Farley 2호기의 10, 12, 13주기와 Diablo Canyon 1호기, 9주기의 산화막 두께 측정결과를 연소도를 기준으로 나타내었다. 이 때 ZIRLO 피복관의 경우 산화막 두께 측정값이 계속적으로 낮게 나타나고 있으므로 이 그림에는 도시하지 않았다. 그림을 살펴보면 연소도가 45 GWd/MTU를 넘어서면서부터는 측정값의 변화폭이 매우 크다는 것을 알 수 있다.

Diablo Canyon 1호기, 9주기 데이터와 최근의 산화막 두께 측정자료를 이용한 핵연료 피복관의 부식 산정을 위해 FDI(Fuel Duty Index)라는 개념을 도입하였으며, 이 FDI값은 피복관의 표면온도와 운전시간으로부터 계산되어진다. 그림 3에는 이러한 FDI값의 변화에 따른 산화막 두께 측정결과를 전반적인 Zircaloy-4 피복관에서 측정된 데이터베이스와 Diablo Canyon 1호기 9주기말에 측정된 결과를 이용해 가장 적합한 회귀선들로 표현하였다. 그림 3을 살펴보면 Diablo Canyon 1호기에 측정된 데이터들이 전반적인 Zircaloy-4 피복관들에 대해 측정된 자료의 일반적인 범위 내에 속해있음을 알 수 있으며, 따라서 아연주입이 핵연료 피복관의 부식에 큰 영향을 미치지 않았음을 말해주고 있다.

물론 Diablo Canyon 1호기 9주기말에 관찰된 상당한 양의 부식생성물에 대해서는 아직 명확한 원인을 규명할 순 없지만, 주입된 아연이 노심외 부식산화물의 피막과 반응하여 상대적으로 많은 양의 니켈을 용출시키게 되고, 따라서 냉각재 계통내 부식생성물 부하량 역시 증가한 것으로 추정하고 있다. 냉각재 내 니켈의 함량은 축방향 출력편차(AOA)를 발생시키는 원인이 되기도 하므로 니켈 함량에 대한 지속적인 모니터링이 필요한 것으로 판단된다.

3. 결 론

PWR 원전의 일차계통에 아연을 주입하는 기술은 계통내 방사선량의 저하와 주요 재질의 건전성 향상을 동시에 추구할 수 있어 전 세계적으로 여러 국가에서 앞다투어 개발하거나, 적용 발전소가 날이 갈수록 늘어나고 있는 추세이다. Alloy 600 재질의 증기 발생기를 주로 채택해왔던 미국과 일본은 PWSCC 저감 측면에서 많은 접근을 해왔고 Alloy 800을 주로 채택한 유럽 원전의 경우는 방사선량 저감측면에서 많은 실험과 연구가 진행되어져 왔다.

아연주입이 실 적용된 미국의 Farley 1, 2호기와 Diablo Canyon 1, 2호기, 그리고

Palisades 원전과 독일의 Biblis A, B 원전과 Obrigheim 원전의 경험을 바탕으로 평가해 보았을 때, 원자로 냉각재에 아연을 주입하는 기술은 아주 간단하며, 경제성 측면에서도 우수한 장점을 가지고 있음을 알 수 있었다. 아연농도는 산성화시킨 시료를 AAS나 ICP-MS를 이용해 분석했으며, 분석 주기는 하루에 한번 정도가 적당한 것으로 조사되었다. 정해진 주기동안 일차계통으로 순수하게 유입된 아연의 양은 각 발전소마다 약간의 차이가 있지만 대략 1~5 kg의 범위에 속하고 있다. 계통에 주입되는 아연으로 인해 냉각재 중에는 Co-58, 60, Zn-65 및 Ni 등이 용출되어 나오게 되나 한 주기동안의 화학 및 체적제어계통(CVCS) 이온교환기 성능에는 별다른 영향이 없는 것으로 평가되었다.

Farley 2호기의 9주기말에서 13주기말까지 EPRI의 SRMP(Standard Radiation Monitoring Program) 지점에서 측정된 방사선량을 비교해본 결과 약 2배 정도 감소한 것으로 나타났다. 특히 Farley 2호기에는 1주기동안 300 ppb-mo의 아연에 노출된 경우 25 % 정도의 방사선량 저감 효과를 나타낸 반면에 Diablo Canyon 원전에서는 130~235 ppb-mo의 아연에, Palisades와 Biblis B 원전에서는 35 ppb-mo의 아연에 노출된 경우에도 Farley 원전과 동일한 방사선량 감소 효과를 나타낸 것으로 조사되었다.

Farley 2호기의 10주기말 핵연료 와전류 탐상에 의한 산화막 두께 측정결과, 아연 주입 적용 주기에서의 산화막 두께가 아연주입 전주기 결과로부터 예상되었던 것보다 두꺼운 것으로 나타났다. 이에 대한 상세분석을 통해 핵연료봉 표면의 검은 색 침전물은 사용후 핵연료 저장조에서 6개월 이내에 모두 용해되었으며, 이 정도의 침전물은 열적, 화학적으로 피복관의 산화에 영향을 미치지 않는 것으로 밝혀졌다. 또한, 피복관의 부식거동을 예측하는 모델의 산화막 두께 예측값이 너무 낮게 설정되어 있음이 밝혀지면서 Farley 2호기의 아연주입 후 산화막 두께의 비정상적 증가가 전혀 문제되지 않는 것으로 평가되었다. 특히 이러한 현상의 발생은 핵연료봉 성능과 부식과정에서의 고유 변수의 작용에서 기인된 것으로 판명되어, 아연주입이 핵연료 피복관의 부식거동에 해로운 영향을 미치지 않는 것으로 결론지었다.

아울러 원자로 냉각재 펌프 No.1 밀봉장치의 누설율과 축과 프레임의 진동에 대한 조사결과 아연주입으로 인한 문제점이 없는 것으로 나타났으며, 각종 밸브의 유지 보수 이력에도 아연주입 전·후에 큰 차이가 없는 것으로 평가되고 있다.

국내에서도 금년 말부터는 ICRP-60의 권고를 받아들여야 하기 때문에 새로운 방사선 피폭선량 저감대책의 확립이 요구되는 시점에서 가능성 있는 대안으로 부상되고 있는 원전 일차 계통의 아연주입에 관한 연구가 보다 본격적으로 수행해져야 될 것으로 판단된다.

참고문헌

- [1] Evaluation of zinc addition to the primary coolant of PWR, EPRI, TR-104606, 1996.
- [2] Overview report on zinc addition in PWRs, EPRI, TR-1001020, 2001.

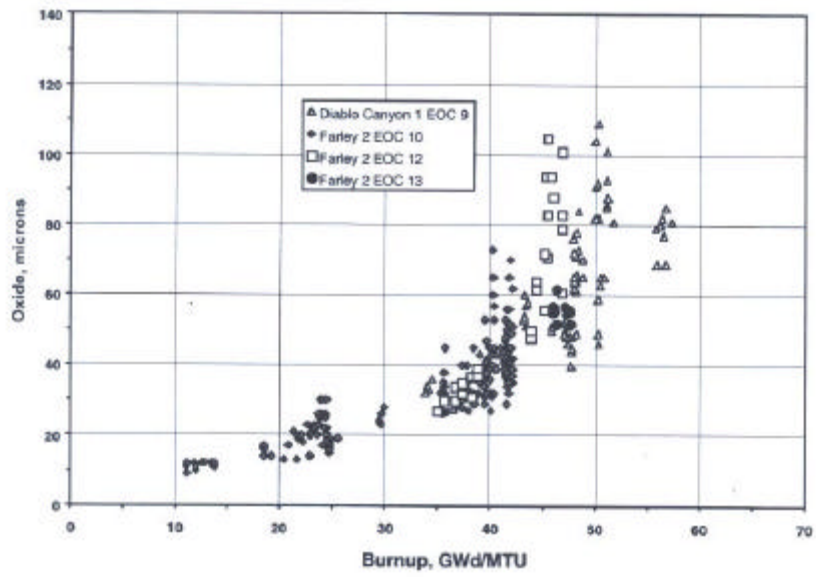


그림 2. Farley 2호기의 10, 12, 13주기와 Diablo Canyon 1호기, 9주기의 Zircaloy-4 핵연료의 연소도와 산화막 두께와의 관계

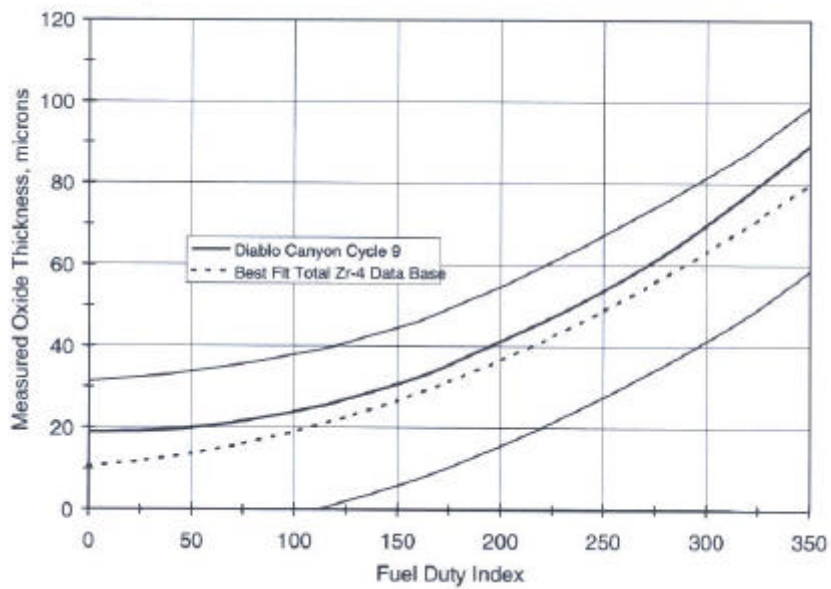


그림 3. Fuel Duty Index와 산화막 두께의 관계(Zircaloy-4 데이터 베이스와 Diablo Canyon 1호기, 9주기의 결과를 바탕으로)