

가압 중수형 원전의 수화학 운전과 C-14 방출량의 관계 검토
Assessment of Relation between C-14 Discharge & Water
Chemistry of Domestic PHWRs

지준화, 강덕원, 김경숙, 전선주, 이두호
김학진, 이근원

한국전력공사 전력연구원
대전광역시 유성구 문지동 103-16

한국수력원자력주식회사
경상북도 양남면 나아리 260

요 약

C-14 방출량 저감안 중의 하나인 최적 이온교환수지 관리 방안 도출의 일환으로, 국내 가압중수형 원전인 월성 원전의 전 호기를 대상으로, 월성 원전의 감속재, 감속재 정화 계통, 감속재 상층기체 계통에 대한 운전 이력 및 화학 분석 자료를 검토하였고 이들과 C-14 방출량과의 상관관계를 조사하였다. 지금까지 수행된 조사 결과에 의하면, 연돌을 통해 방출되는 C-14의 양을 낮추기 위해서는, 원자로 기동시 가돌리늄 제거를 위해 사용된 이온교환수지를 정상 운전용으로 재사용하는 것을 지양하고, 손상된 수지로부터 유리되는 탄산이나 중탄산 이온에 의해 수지에 과부하가 걸리는 것을 막기 위해 수지 운전 시작 후 약 80일이 지나기 전에 수지를 교체하는 것이 필요함을 알 수 있었다.

Abstract

To investigate the relation between the maintenance of IX columns and the amount of C-14 release, we reviewed the operation records and chemical analysis data of Moderator and Moderator Cover Gas systems of all the four units of Wolsong NPPs, the domestic Pressurized Heavy Water Reactors. According to the result of the present surveys, it is suggested that the IX columns be changed at least every 80 days and not be re-used during the normal operations of reactors if they have been already used in the course of Gadolinium level control in the Moderator for the reactivity control before and after the reactor shutdown.

1. 서 론

원자력발전소 연돌을 통한 C-14 방출과 관련하여 국내 가압 중수형 원전인 월성 원전의 운전 이력과 감속재 화학 분석 자료를 검토하였다. 월성 발전소의 CANDU형 원자로는 현재 AECL SIB 99-01, Rev. 1의 권고사항을 따르고 있으며 현재까지의 결과에 의하면 각 호

기에서 방출되는 C-14의 방출량은 국외의 CANDU형 발전소인 Point Lepeau나 Gentilly-2 원전에서의 방출량보다 낮게 유지하고 있다. C-14의 방출량을 낮게 유지하기 위해서는 감속재 정화계통의 이온교환수지를 자주 교체해 주어야 하지만, 이럴 경우 수지가 채 포화되기 전에 계통으로부터 분리, 폐기처분될 가능성이 있다. 이로 인해 다량의 불필요한 방사성 폐기물의 발생을 초래할 수 있다. 현재, C-14 방출량을 가급적 낮게 유지하면서 동시에 감속재 정화용 이온교환수지의 교체 주기를 연장시켜 사용할 수 있게끔 하기 위한 두 가지 방안을 검토 중에 있다. 첫 번째는 감속재 정화계통의 용존 탄소량을 화학적인 방법을 사용하여 조절, 유지하는 것이고, 두 번째는 감속재 상층기체로부터 C-14을 제거하기 위한 별도의 제거장치를 설치, 사용하는 것이다. 이들 두 가지 방안에 대한 평가를 수행함에 앞서, 현재의 이온교환수지 운전 방식의 적절성을 타진하고, 개선된 수지 관리 방안을 도출키 위해 감속재 계통, 감속재 정화계통, 감속재 상층기체 계통의 운전 자료와 화학 분석 결과를 면밀히 검토하였고, 이들이 C-14의 생성과 방출에 미치는 영향을 조사, 분석하였다.

2. 본 론

2.1 수치리 현황 분석 및 C-14 연돌 방출에 대한 검토

4개 호기의 월성 CANDU 원자로에서 연돌을 통해 방출되는 C-14 방출현황을 그림 1에 종합하여 나타내었다. 1999년의 1, 2호기 C-14 방출량은 $5\text{Ci} \cdot \text{month}^{-1}$ 를 상회하고 있으며 이는 1998년보다 더 증가한 양이다. 이 기간 이후로는 4기의 원자로에서 모두 월평균 방출량 $1\text{Ci}/\text{month}$ 의 수준으로 C-14 방출량이 낮게 유지되었다.

이러한 최근의 방출값은 Point Lepreau ($\sim 0.3\text{--}1.0\text{ Ci month}^{-1}$)와 Gentilly-2 ($0.3\text{--}0.5\text{ Ci month}^{-1}$) 발전소에서 최근에 보고된 값과 비교하였을 때 같은 수준이거나 더 낮은 값이다.

2000년, 월성 원전의 C-14 방출량이 정화 계통내에 설치된 산성형 혼상 이온교환수지를 매 80일마다 교체해 줌으로써, 수지와 의 결합력이 약한 중탄산이나 탄산 음이온이 질산이온과 같은 다른 음이온에 의해 수지로부터 이탈되지 않도록 한 결과인 것으로 예상할 수 있다. 뿐만 아니라 이미 일반적 계통수 정화용으로 사용된 칼럼은, 원자로 기동시 수행되는 감속재로부터의 질산가돌리늄 제거용으로 더 이상 사용되지 않았다. 이렇게 함으로써, C-14은 정화계통의 이온교환수지 상에 고정된 채로 남아있게 되었으며, 이는 AECL 1999 Station Information Bulletin SIB 99-01 Rev.1.에서 권고된 방법을 따름으로써 훨씬 더 낮게 방출량을 유지할 수 있음을 시사한다. 관례상 많은 수의 CANDU 발전소에서 원자로 기동시 질산가돌리늄의 제거를 위해 사용한 이온교환수지 칼럼을, 이들 칼럼이 가돌리늄 이온과 질산염 이온 제거에만 관여하는 한 새 칼럼과 다름없다고 여기기 때문에 정상 운전조건에서 재사용하는 것이 보편화되어 있다. 그러나 가돌리늄 제거 측면에서는 이러한 사용 후 칼럼들이 제거능을 할 수 있을지 모르지만, 탄산/중탄산 이온(C-12, C-14 공히) 제거 측면에서는 이 칼럼들은 분명 소모되었거나 거의 수명이 다한 칼럼이라고 할 수 있다. 원자로 기동시 가돌리늄을 제거하는 과정에서 수지와 의 친화력이 강한 질산 이온들이 재사용 수지에 이미 흡착되어 있는 탄산/중탄산 이온을 감속재 계통으로 다시 유리시킬 수 있다. (감속재의 pH는 6이하이며, 수지에서 이탈된 탄산/중탄산이온은 대부분 탄산, D_2CO_3 (pKa \sim 6.8)의 형태로 전환되어 전도도에 변화를 주지 못하므로 전도도 측정만으로 이러한 현상이 일어나고 있는지의 여부를 판단할 수 없다.) 탄산/중탄산 이온이 수지로부터 이탈되는지의 여부를 확인할 수 있는 가장 좋은 잠정적인 방법으로는, 수지탑의 전·후단에서 총무기탄소(Total Inorganic Carbon, TIC)를 연속적으로 감시하거나, 직접 C-14의 양을 측정하는 방안을 고려해 볼 수 있다.

월성 원전에서는 현재, 상층기체 계통으로부터의 중수소 방출을 줄이기 위해, 상층기체 계통에 산소를 가압하고 있으며, 이렇게 하면 중수소에 비해 산소의 농도가 상대적으로 높아져서 재결합기(recombiner) 내의 촉매에 의한 중수소→중수 전환이 용이해진다.

2.2 호기별 수처리 현황 및 C-14 방출 추이

2.2.1 월성 1호기

1999년 1월 이전까지 월성 1호기에서 방출되는 C-14의 양은 ~1Ci/month보다 조금 높았다. 그 후 6개월이 넘는 기간 동안, 방출량이 꾸준히 증가하면서 1999년 5월 이후로는 최대 점에 이르러 약 7 Ci/month까지 상승하였다. 그 후 방출량은 현저히 감소하여 보통 ~1Ci/month 보다 낮았다.

1998년 4월(그래프상 90일)부터 2000년 3월(그래프상 814일)에 이르는 기간에는 상세한 감속제의 화학 운전 자료가 확보되어 있다. 이들 중 일부가 그림 2에서 3에 요약되어 있다. 다음에 기술되는 것은 이러한 화학자료에 바탕을 둔 분석 결과이다.

1. 감속제 상층기체내의 질소와 중수소 농도가 크게 상승한 것과 전도도의 급변(day~230)에 근거하건대, 1998년 8월~9월(그림 2) 기간에 관련 계통 내에 심각한 화학적 요동(교란)이 있었던 것으로 보이지만 C-14 방출량은 별 영향을 받지 않았다. 이것은 C-14이 이 기간동안은 정화계통 내에 대부분 고정되어 있었다는 것을 암시한다.

2. 보수정지 기간인 1999년 2월~5월(약 450일 근처-그림 3)사이 C-14의 연돌 방출량이 상승했다. 이것은 시간상 이 시점에서 over-poisoned guarantees 정지 상태의 요구사항으로서 정화계통이 주 감속제 계통에서 분리되었던 점을 고려하건대 특기할 만 하다. 정지 기간의 마지막 단계에서 보여지는 높은 농도의 잔류 질소에 의해 판단컨대 이 기간동안 감속제 상층기체 계통이 정비를 위해 개방되어 있었을 가능성이 있다. 이 시기의 높은 C-14 방출량은 아마 정비 활동과 관련된 퍼어징과 관련되어 있을 것이다. 이것은 감속제 내의 C-14 량이 발전소 정지 전에 상승했었다는 것을 의미한다.

기동 직후에 높은 C-14 방출이 수반된 것은 가돌리늄 질산염의 제거를 위해 사전에 사용된 이온교환수지 칼럼을 재 사용한 것에 의한 직접적인 결과가 될 것이다; 월성에서의 이러한 수지 운전 방식은 1999년 이후로 중단되었다. 수지로부터 이탈된 $D_2^{14}CO_3/D^{14}CO_3$ 은 감속제 상층기체와 평형을 이룰 것이고, $^{14}CO_2$ 는 기동 중과 기동 후에 감속제 상층기체의 화학적 조건과 압력을 설정하기 위한 배기나 퍼어징의 결과로써 연돌을 통해 방출될 것이다.

3. 월성 1호기에서는, 핵연료 장전 장치를 사용하지 못할 경우에 대비하여 일정 중성자속을 유지하기 위한 'neutron shim'의 역할을 할 수 있도록 저농도의 가돌리늄이 사용된다. 그림 4에 나와있는 자료를 근거로 판단컨대, 이러한 조치 행위와 C-14의 농도에 연관성이 있는 것으로 보인다. 정화계통에서 제거되는 질산가돌리늄을 보충하기위하여 미량의 질산가돌리늄을 첨가함으로써, 감속제 계통내 질산가돌리늄의 농도를 종종 화학적으로 감지조차 할 수 없을 정도로 매우 낮게 유지한다. 월성-3과 월성-4에서는 붕산이 중성자 shim제로 사용된다. 붕산은 수지에 약하게 흡착되는 음이온이며 수지 칼럼에서 C-14를 이탈시키는 정도가 덜한 것으로 보인다.

2.2.2 월성 2호기

월성 2호기에서의 C-14 연돌 방출의 양상은 월성 1호기와 유사하다(그림 1 참조). 1998년, C-14의 연돌 방출량은 1~2 Ci/month 이었지만 1999년 초에는 증가하였다. 비록 1999년 5월의 보수정지 동안의 방출량은 낮았지만, 1999년 6월 기동시부터 증가하여 1998년 9월에는 최대 14~15Ci/month에 이르렀다. 이렇게 방출량이 첨두치에 이른 후로는 1Ci/month 이하로 감소했다.

1998년 7월(운전개시 170일)에서 2000년 8월 9일(운전개시 974일) 사이의 감속재 관련 화학자료에 대한 검토 결과는 다음과 같다.

1. 그림 5에 표시된 기간동안 화학을 제어하는 데 있어서 어려움이 있었음을 알 수 있다. 정화계통 전·후단에서의 감속재의 전도도는 정상운전에서의 값인 0.05mS/m에 비해 상승하였다. 감속재 상층기체 중의 중수소 농도 또한 상승하였다. 상층기체에 산소가 가압되고 재 결합기가 정상적으로 작동될 때, 감속재 상층기체에서의 중수소 농도는 보통 0.2vol% 미만이며 흔히 감지조차 되지 않는다.

2. 한 개의 정화칼럼(1998. 10. 1에 슬러리화된 IX-3)이 1999년 5월 월자로가 정지한 후 1999년 6월(~day 525 in 그림 5) 다시 기동되면서 계통에 투입된 뒤, 1999년 9월에 계통으로부터 분리되었고, 새로운 칼럼이 교체, 투입되었다. C-14 방출은 1999년 9월(day 625)에 첨두치에 도달한 후 다음 달인 1999년 10월에 매우 낮은 값으로 떨어졌다가 시간이 지남에 따라 더욱 떨어졌다(그림 1 참조). 월성 1, 2호기 화학관련 실무자와의 토론을 통해 칼럼 IX-3은 1999년 5월 보수정지 전에 이미 계통에 투입되었음을 알게 되었다.

2.2.3 월성 3호기

월성 3호기는 1998년 3월경에 운전을 시작했다; 운전 초기에 연돌 C-14 방출은 $1\sim 3\text{Ci} \cdot \text{month}^{-1}$ 의 범위에 있었으며, 이 양상은 방출량이 $\sim 0.1\text{Ci} \cdot \text{month}^{-1}$ 정도의 낮은 수치로 떨어지는 1999년 7월경까지 이어졌다(그림 1참조).

감속재계통의 화학자료(일부의 화학자료를 위해 그림 6과 7 참조)를 검토한 결과, 1999년 5월(day 500)까지 정화과정을 거치기 전·후에서 공히 다소 상승된 전도도가 나타났으며, 이는 이 시기에 계통수의 화학 제어에 어려움이 있었음을 시사한다. 게다가 이 기간동안 중수소가 상층기체 내에서 감지되었다. 그림 7에 1999년 5월부터 2000년 9월까지 C-14 방출과 계통의 화학적 변화에 대해서 요약하였다. 여기에서 볼 수 있듯이 연돌을 통한 C-14 방출 정도는 상당히 낮을 뿐만 아니라 전도도 역시 낮고, 상층기체 내의 중수소는 1999년 12월의 기동 전에서만 감지되었다(day~700).

2.2.4 월성 4호기

그림 8에, 2000년 9월말까지의 월성 4호기의 자료를 나타내었다. 그림에서 볼 수 있듯이, 초기에 C-14 방출량의 일시적 증가($\sim 0.3\text{Ci} \cdot \text{month}^{-1}$)가 있는 후, C-14은 $0.1\text{Ci} \cdot \text{month}^{-1}$ 보다 낮은 방출량을 보였다.

2.3 감속재 수지의 효율적 운영 방안

그림 1에서 볼 수 있듯이, 비록 1999년 5월~9월에 월성 1호기와 2호기에서 높은 C-14 방출이 발생하였지만, 현재 월성 원전의 연돌 C-14 방출량은 매우 낮다. 이 기간 이후 이루어진 C-14 방출량의 감소는 대부분 다음에 열거되는 AECL SIB 99-01 Rev. 01의 권고사항을 따랐기 때문인 것으로 사료된다.

1. 기동시에 질산가돌리늄 제거를 위해 이미 사용된 칼럼을 재사용하지 말 것;

2. 수지 운전 중에 퍼록사이드(peroxide)로 인해 수지가 손상되거나, 손상된 수지에서 나오는 탄산/중탄산 이온으로 수지에 연속적인 과부하가 걸리는 것을 사전에 막기 위해, 운전 시작후 약 80일이 지나기 전에 수지를 교체해줄 것.

매 ~80일마다 감속재 정화계통 이온교환수지 칼럼을 교체하는 방안은, 1990년 중반에 실시되어 Canadian CANDU Point Lepreau와 Gentilly-2의 C-14 방출량을 낮춘 경험에 입각한 것이다. 현재 수지의 교체는 운전시간(~80일)에 기초하여 이루어지고 있는데, 이렇게 하면 감속재 정화칼럼이 너무 자주 교체될 수 있어서 방사성 이온교환수지 폐기물 양의 증

가를 초래할 수 있다. C-14 방출의 관점에서 감속재 이온교환 수지의 유효기간을 연장하기 위해, 감속재 정화칼럼의 교체 주기 설정의 기준은 직접적으로 C-14 방출을 야기하거나 영향을 줄 수 있는 화학종에 대한 분석 결과에 근거하여야 한다.

2.4 수지사용의 최적화를 위한 추후 연구 계획

최적의 감속재 이온교환수지 사용을 위한 기준을 설정하기 위해서는 감속재 정화 계통내에서 C-14 화학제어에 포함된 모든 요소들을 서로 관련시킬 체계적인 측정 프로그램이 필요하다. 최소한 각각의 월성 발전소 중 한 호기씩(예를 들면, 월성 1, 3호기)을 선정하여 이들을 대상으로 특별한 조사가 이루어져야 한다. 이러한 집중 조사 기간 동안 다음 사항이 실시될 것이다:

1. 1주일 또는 그 이하의 주기로 연돌을 통한 C-14 방출량 측정;
2. 아래의 3과 4와 같은 시간에 최소한 매주 한번 감속재 상층기체 내의 $^{14}\text{CO}_2$ 와 $^{12}\text{CO}_2$ 농도를 측정;
3. 전체 감속재와 감속재 정화 회수 흐름(return flow)에서 최소한 매주 한번씩 Total Organic Carbon (TOC)/Total Inorganic Carbon (TIC)을 측정;
4. 전체 감속재와 감속재 정화회수 흐름(return flow)내에서 최소한 주 1회씩 C-14 준위를 측정;
5. 현재 월성에서 실시하고 있는 바 그대로의 상세한 화학측정;
6. 가능할 경우, 전체 감속재 내의 용존 중수소 농도 측정;
7. ~1주일 단위의 일상적인 과산화중수소(D_2O_2) 농도 측정;
8. 감속재 상층기체의 배기 및 퍼어징과 기타 감속재 상층기체 관리에 관련된 상세한 기록;
9. 감속재 정화 칼럼 사용 기록에 대한 상세한 기록

이 특별 조사 기간동안 월성 각 발전소 당 하나의 정화칼럼은 연돌 C-14 방출이 현저한 증가를 나타낼 때까지 사용중인 상태로 남겨두어야 한다. 그런 다음 이 칼럼을 제거하여 새로운 칼럼으로 교체한다. 지속적으로 C-14 방출량 감시를 통하여 연돌 방출 기체 중 C-14 준위의 증가가 지나치게 오래 사용한 이온교환수지 칼럼에 기인하는지를 알 수 있다.

사용 중인 칼럼에 대한 적절한 교체 주기를 결정함에 있어 가장 좋은 지시계(indicator)가 될 화학적 변수를 찾기 위하여, 이러한 특별 조사 기간 동안 수집되는 상기의 여러 화학 측정 결과와 운전결과에 대한 면밀한 검토와 상호 비교가 수행되어야 한다. 이러한 방법의 신뢰성을 입증하기 위해 각 호기당 최소한 2회의 조사가 수행되어야 한다.

3. 결 론

현재 월성 원전에서 수행되고 있는 이온교환수지 운전 방식의 적절성을 타진하고, 개선된 수지 관리 방안을 도출키 위해 감속재 계통, 감속재 정화계통, 감속재 상층기체 계통의 운전 자료와 화학 분석 결과를 조사한 결과, 정화 계통내에 설치된 산성형 혼상 이온교환수지를 매 80일마다 교체해 줌으로써, 수지와 결합력이 약한 중탄산이나 탄산 음이온이 질산이온과 같은 다른 음이온에 의해 수지로부터 이탈되지 않게 되었고 그 결과 월성 원전의 C-14 방출량이 현저하게 줄어들었음을 알 수 있었다. 또한 수지 운전 중에 퍼록사이드(peroxide)로 인해 수지가 손상되거나, 손상된 수지에서 나오는 탄산/중탄산 이온으로 수지에 연속적인 과부하가 걸리는 것을 사전에 막기 위해, 운전 시작후 약 80일이 지나기 전에 수지를 교체하는 것이 바람직함을 알 수 있었다. 그러나 이러한 수지의 잦은 교체는 폐기물

발생량의 증가를 초래할 수 있으므로 최적의 감속재 이온교환수지 교체 주기를 도출하기 위하여, 감속재 정화 계통내 C-14 화학 제어에 포함된 모든 요소들을 서로 관련시킬 체계적인 측정 프로그램과, 연돌 방출 기체 중 C-14 준위의 증가가 지나치게 오래 사용한 이온교환수지 칼럼에 기인하는지를 규명키 위한 지속적 C-14 방출량 감시가 필요함을 알 수 있었다.

참고 문헌

1. Carbon-14 in the Environment", NCRP report No.81 (1985).
2. Cain W. F. and Suess H. E., *J. Geophys. Res.*, **81**, 3688 (1976).
3. Nydal R. and Lovseth K., *J. Geophys. Res.*, **88**, 3621 (1983).
4. 중수로 운전중 발생하는 C-14 방출감시 기술 개발, TR.95ZJ14.J1998.11, 전력연구원 (1998).

Carbon-14 Stack Emissions

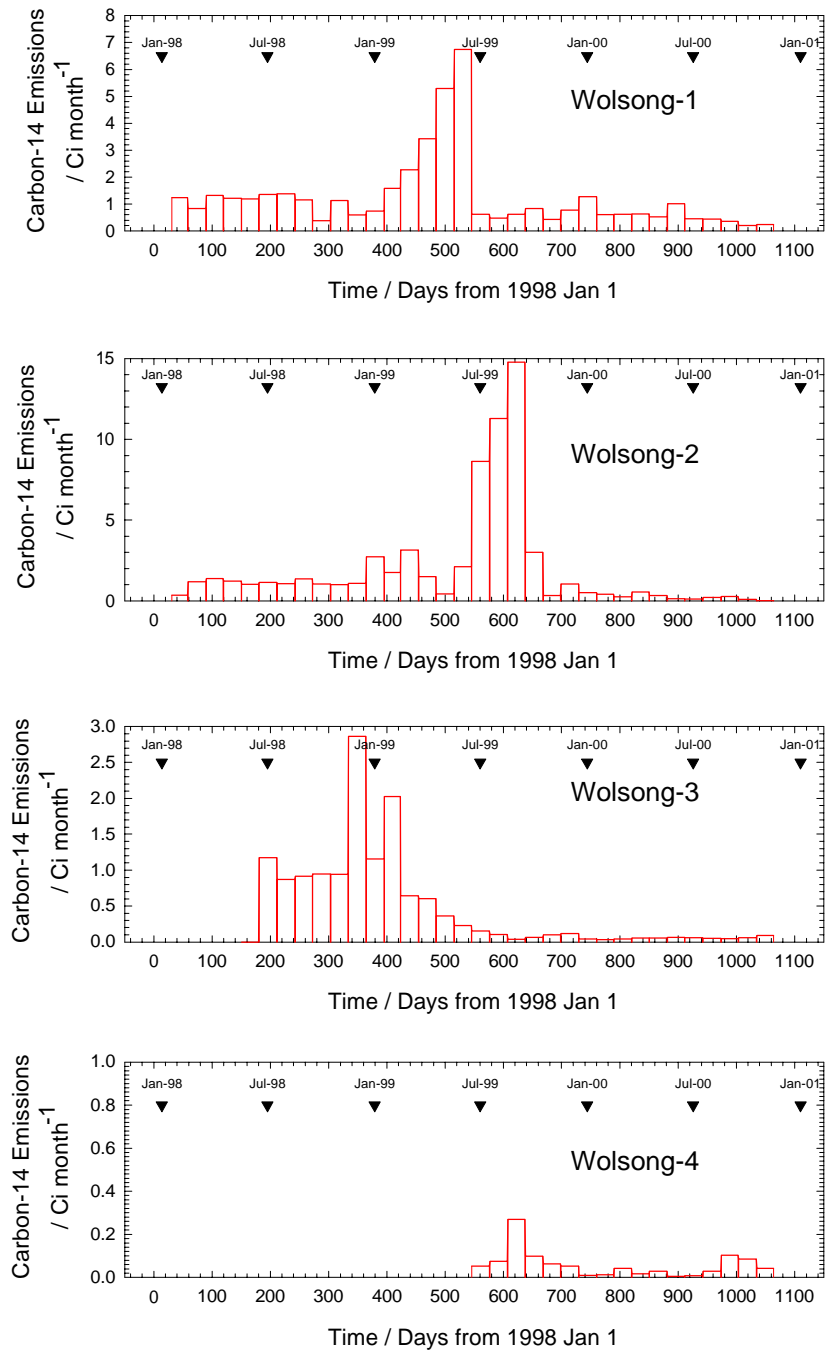


Fig. 1 Stack C-14 Discharge of Wolsong NPPs

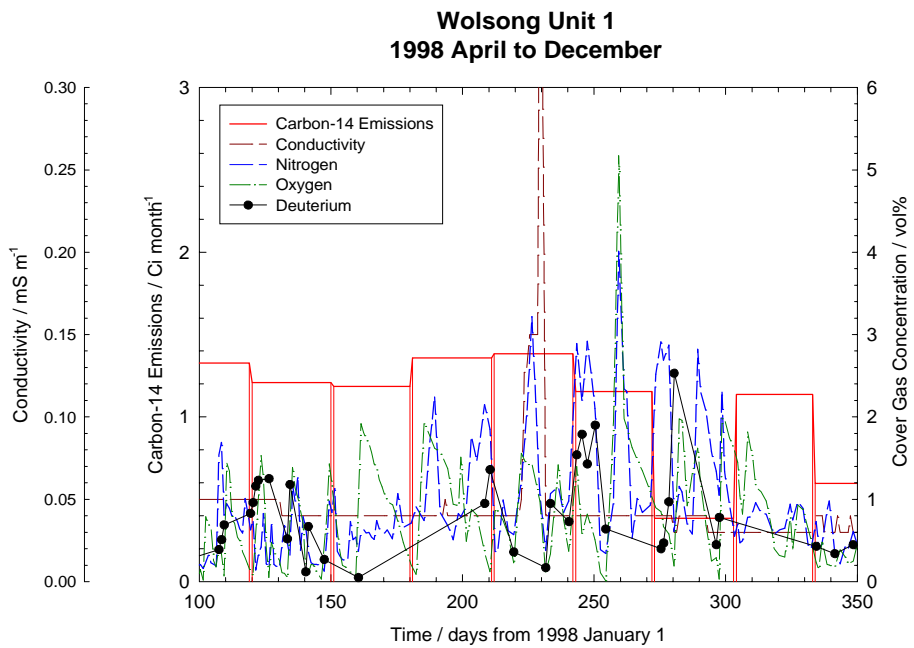


Fig. 2 C-14 Discharge vs. System Chemistry of Wolsong Unit 1(1998.04.~12.)

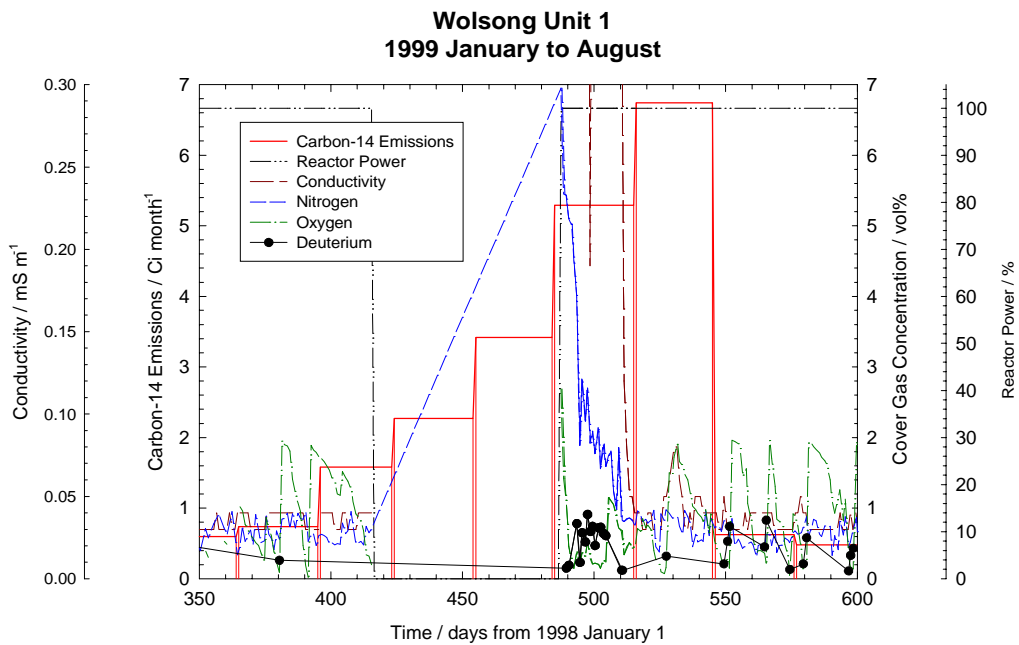


Fig. 3 C-14 Discharge vs. System Chemistry of Wolsong Unit 1(1999.01.~08.)

**Wolsong Unit 1
1999 August to 2000 March**

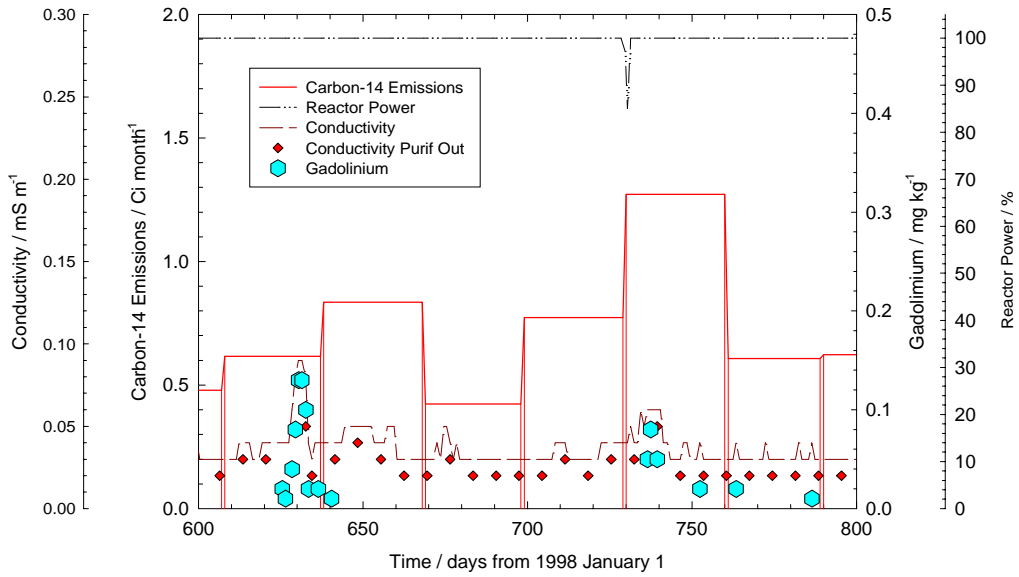


Fig. 4 Effect of Gd on C-14 Discharge(Wolsong Unit 1)

**Wolsong Unit 2
1998 December to 1999 December**

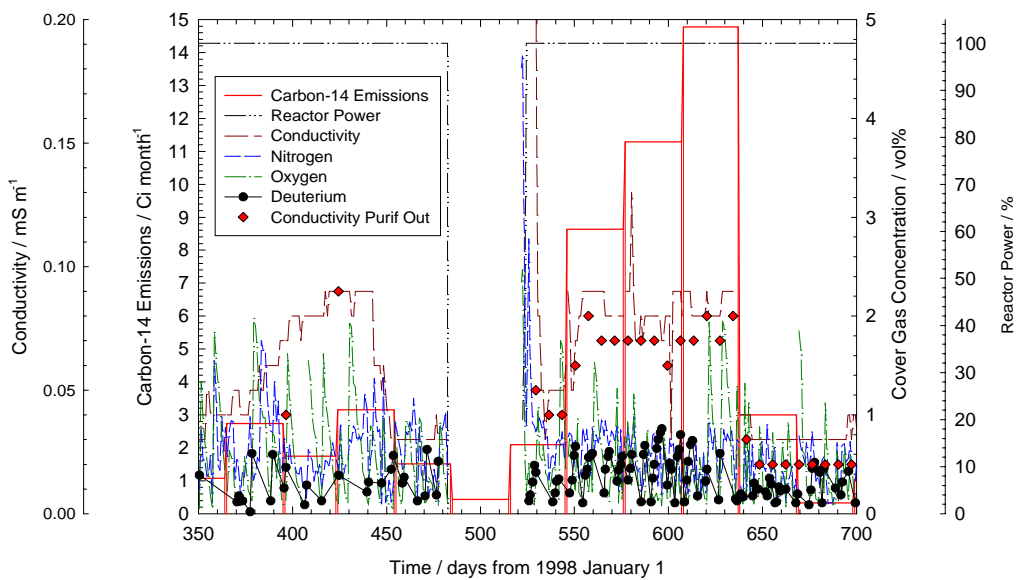


Fig. 5 C-14 Discharge vs. System Chemistry of Wolsong Unit 2(1998.12.~1999.12.)

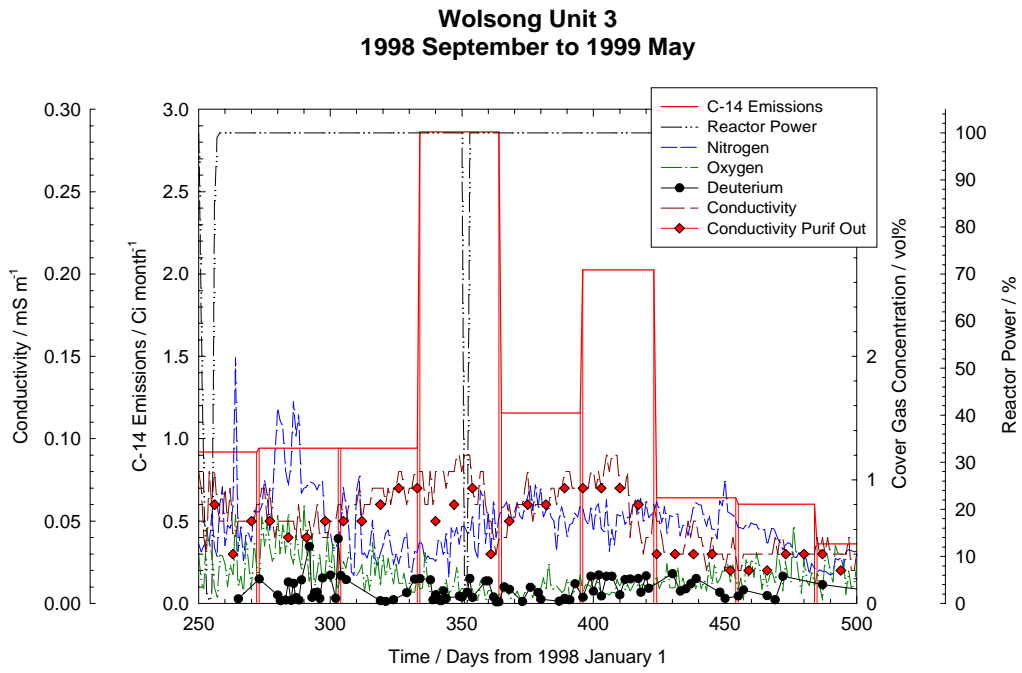


Fig. 6 C-14 Discharge vs. System Chemistry of Wolsong Unit 3(1998.09.~1999.05)

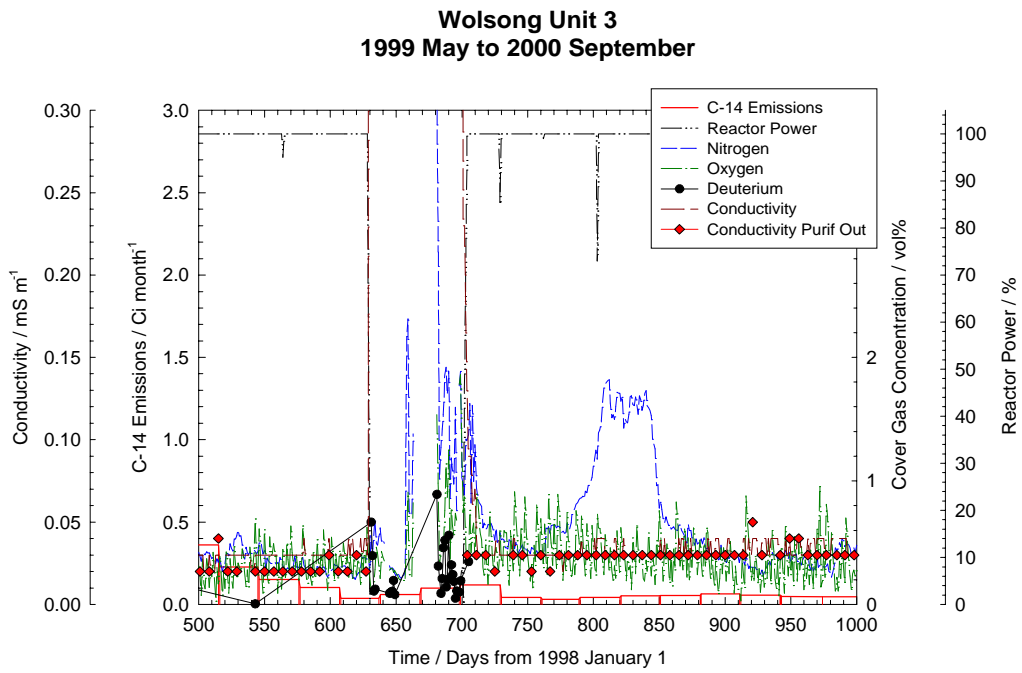


Fig. 7 C-14 Discharge vs. System Chemistry of Wolsong Unit 3(1999.05.~2000.09.)

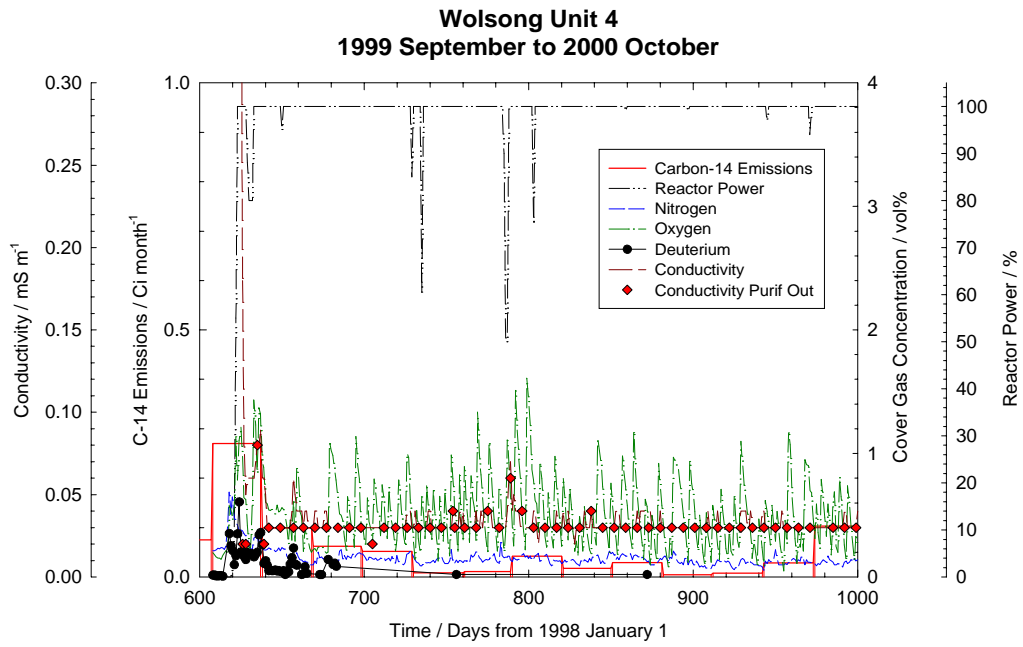


Fig. 8 C-14 Discharge vs. System Chemistry of Wolsong Unit 4(1999.09.~2000.10.)