

RACKLIFE 전산코드를 이용한 보라플렉스 사용후연료 조밀저장대
최적관리 분석

Optimum Management Analysis for Boraflex Spent Nuclear
Fuel Storage Rack with RACKLIFE

박영목, 전제근, 고덕준, 김병태, 홍순관*, 명선엽*

원자력환경기술원/한국전력공사*

대전광역시 유성우체국사서함 149호

요 약

보라플렉스 사용후연료저장조 조밀저장대는 수중 환경에서 방사선에 노출될 경우 물성변화를 일으켜, 서서히 용해되어 실리카 또는 실리카 구성 물질로 변환되고 있는 것으로 알려져 있다. 수중 환경에서 감마선 집적선량에 의해 보라플렉스가 손상되어 실리카가 용해되면 냉각수의 실리카 준위를 높여 저장조 수질을 오염시키는 요인이 되고 있으며, 중성자 흡수재인 B₄C의 용출로 인하여 핵임계안전성 재평가 필요성이 제기되기도 한다. 본 연구에서는 보라플렉스의 수명에 영향을 미치는 주요 인자들 분석하였으며, 방사선의 조사선량, 냉각수의 화학적 성질, 냉각수의 온도, 보라플렉스의 두께, 보라플렉스 저장대설계, 보라플렉스의 B₄C 및 기타 충전제의 조성 등이 영향을 미치는 것으로 분석하였다. 또한 RACKLIFE 전산코드를 이용하여 보라플렉스 사용후연료저장대 성능저하를 평가하였다. 보라플렉스 저장대 집적선량은 약 0.25×10^{19} rad이며, 그에 따른 B₄C의 손실량은 약 1%인 것으로 평가되었다. 그러나 이로 인하여 미임계여유도에의 영향은 미미한 것으로 분석되었다. 보라플렉스를 사용한 저장조의 냉각수의 온도를 가능한 낮추고, 냉각수의 순환속도를 감소시킴으로써 사용후연료저장조의 운영을 개선할 수 있으며, 전산코드를 이용하여 저장조에서 사용후연료의 재배치하여 보라플렉스 저장대에 미치는 집적선량을 감소시켜 건전성을 향상시킬 수 있는 것으로 분석되었다.

Abstract

When Boraflex is subjected to a gamma radiation in the pool aqueous environment, Boraflex is known to undergo changes and the polymer matrix is transformed into silica and silica dominated material. In a typical spent fuel pool the irradiated Boraflex turned out to be a significant source of silica and spent fuel storage racks were needed to be reanalyzed due to Boraflex degradation and the potential loss of boron carbide. In this study, the major factors to service life of Boraflex were analyzed to result in the cumulative radiation dose, chemical properties of coolant, coolant temperature, thickness of Boraflex, storage rack design, B₄C and other material composition of Boraflex, etc. Boraflex degradation analysis was carried out using RACKLIFE. Resultant cumulative radiation dose to Boraflex panel was evaluated at 0.25×10^{19} rad and subsequent B₄C loss at 1%. However, it was estimated that B₄C loss does not have significant effect on subcriticality to spent fuel storage rack. The operation of spent fuel storage should be optimized by decreasing temperature and circulation rate of coolant. The performance of Boraflex should be improved by optimal shuffling of discharged fuel with computer code in order to reduce the cumulative dose to Boraflex panel, as well.

1. 서론

울진원전2호기는 사용후연료 저장조 저장용량을 증대시키기 위하여 1990년 중성자 흡수재인 B₄C가 함유

된 보라플렉스(Boraflex) 조밀저장대를 설치하였다. 보라플렉스의 구성요소인 중합체 PDMS(Poly dimethyl siloxane)는 무기고분자로서, 이종고분자에 유기유도체가 도입된 폴리머이며, B₂C가 충전되고 인장강도를 높이기 위해 실리카를 보강시킨 중성자 흡수재이다.

보라플렉스 조밀저장대는 70, 80년대에 미국을 중심으로 여러 국가에서 사용되었으며, '80년대 중반까지만 하여도 외국 원전의 경우 보라플렉스 저장대를 사용한 사용후연료저장조 저장수의 실리카 준위를 상시 감시하지 않았다. 그러나 상승되는 저장조 냉각수의 실리카 준위가 보라플렉스 손상과 상호관계 가능성이 있어, 냉각수의 실리카 준위를 계속 감시하고 있다[1,2]. 사용후연료저장조에서 방사선 조사에 장시간 노출된 보라플렉스의 폴리머 매질은 수중 환경에서 가교결합 및 절단에 의해 물성이 변화되어 체적의 수축, open porosity, gap 및 가스의 발생 등의 현상을 일으키게 된다. 이러한 방사화 작용으로 인해 사용후연료저장조의 수중 환경에서 보라플렉스는 서서히 용해되어 실리카 또는 실리카 구성 물질로 변환된다[1,2].

현재 보라플렉스 사용후연료저장조에서 냉각수의 실리카 준위가 운영기간이 증가됨에 따라 계속 상승되고 있음이 보고되고 있다. 수중 환경에서 감마선 집적선량에 의해 보라플렉스가 손상되어 실리카가 용해되면서 냉각수의 실리카 준위를 높여 저장조 수질을 오염시키는 등 악화시키는 요인이 되고 있으며, 중성자 흡수재인 B₂C의 용출로 인하여 책임계안전성 재평가의 필요성이 제기되고 있다.

2. 보라플렉스 조밀저장대 성능저하

돌진원전2호기 사용후연료저장조는 기존의 저장대를 철거하고, '90년 9월 보라플렉스를 사용한 새로운 저장조 조밀저장대를 설치하였다. 보라플렉스의 수명은 B₂C를 함유한 충전제인 폴리머 매질의 성능에 의해 결정되며, 보라플렉스의 성능은 방사선의 집적조사선량 및 저장조 냉각수의 환경에서 장기간 노출된 결과 등의 영향을 받고 있다. 보라플렉스의 수명에 영향을 미치는 주요 인자는 방사선의 조사선량, 냉각수의 화학적 성질, 냉각수의 온도, 보라플렉스의 두께, 보라플렉스의 주위 국지적 물흐름에 대한 특수조건의 저장대설계, 보라플렉스의 B₂C 및 기타 충전제의 조성 등으로 알려지고 있다[1,2]. 그리고 사용후연료 저장조의 냉각수 실리카 용해속도는 보라플렉스에서 손실된 보론 카바이드의 손실속도와 관련이 있는데, 보라플렉스의 표면에 존재하는 실리카는 서서히 냉각수에 용해하며, 표면에 있는 보론 카바이드는 잔류하지 않고 실리카 손실에 비례하여 손실된다.

그림 1에 나타난 바와 같이 돌진2호기 사용후연료 저장조 보라플렉스 저장대의 감마선 조사선량은 '90년부터 '95년까지 5년간 약 $\sim 10^{10}$ Rads이고 실리카의 용해속도는 약 0.5ppb/day 미만이며, '96년부터는 실리카용해율이 급격히 증가하고 있다. 또한 보라플렉스 저장조 구역에서 기포가 발생하고 있으며, '96년 이후 보라플렉스 패널이 방사선 조사에 의해 물성변화를 일으키고 있는 것으로 추정된다. 그림 1에 따르면 '99년 3월 돌진 원전2호기 사용후연료저장조의 실리카 용해속도는 9~10ppb/day 정도를 나타내고 있으며, 실리카의 농도는 약 8ppm이며, RO(역삼투압)를 이용한 제염작업이 계속 이루어지지 않아 저장조내 실리카 준위가 점점 증가추세를 보이고 있다. 냉각수의 수소이온 농도(pH)는 4.6 ~ 4.8으로 약한 산성을 내고 있으며, 보론 농도의 범위는 2065ppm~ 2398ppm 이고, 약간의 탁도를 나타내고 있다. 그 외 염소(Cl), 몰소(F), 칼슘(Ca), 마그네슘(Mg) 및 알루미늄(Al)이 미량 존재하는 것으로 분석되었다.

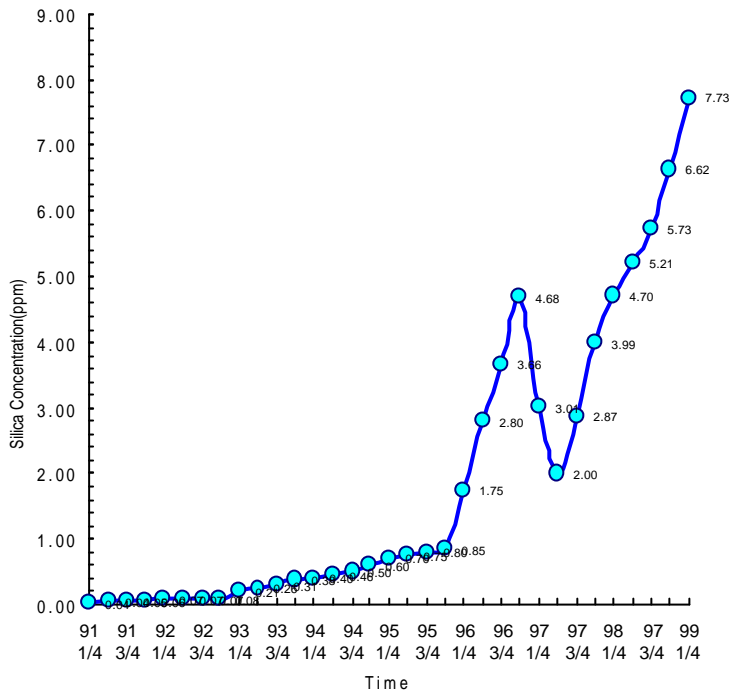


그림 1. 울진 원전2호기 사용후연료 저장조내 분기별 실리카 농도

3. RACKLIFE 전산코드를 이용한 보라플렉스 저장대 성능저하 해석

3.1 RACKLIFE 전산코드 특성

RACKLIFE(Rack Life Extension) 전산코드는 보라플렉스 저장대의 방사선 조사량과 그에 따른 보라플렉스 저장대의 성능저하를 평가할 수 있으며, 계산결과는 보라플렉스 저장대의 성능저하를 방지하기 위하여 사용후연료를 저장조내에 최적 재배치를 결정할 수 있도록 그래픽으로 표현된다[3].

3.2 보라플렉스 조밀저장대 성능저하 모델링

가. 저장조내 Silica 용해모델

반응성 실리카가 저장대 캐비티에서 생성되고 캐비티내의 실리카 농도가 상승함에 따라, 규산의 일부는 중합되고, 일부는 보라플렉스에 재침적, 캐비티 표면에 침적, 일부는 캐비티에서 용출되어 냉각수로 이동한다. 반응성 실리카와 중합 실리카가 캐비티에서 용출되는 정도는 용적교환률로 표시되며, 용적교환률은 단위 시간당 캐비티 용적이 냉각수로 교체되는 횟수를 나타낸다. 전체적인 모델링은 그림 2에 나타나 있다.

저장조의 실리카 선원은 저장대 캐비티에 존재하는 반응성 실리카와 중합 실리카로 구성되며, 저장조에서 반응성 실리카가 중합되면, 저장조 표면에 침적되고, 저장조 정화시스템에 의해 제거된다. 보충수계통은 누출 및 증발손실에 의한 냉각수 보충을 기술하기 위해 모델링되며, 연료재장전 정지기간동안 희석효과를 기술하기 위해 사용된다. 중합 실리카가 저장조에 존재하면 중합방지 또는 정화계통을 통해 전부, 또는 부분적 제거를 실시할 수 있다.

각 저장대 캐비티는 다른 캐비티로부터 독립되었으나 용적교환률을 통해 냉각수 용적과 직접 반응하는

control volume으로 취급된다. N개의 저장대 패널 중에서 특정 저장대 패널 캐비티 [에 대해 반응성 실리카의 선원항은 다음 식(1)과 같이 나타낼 수 있다.

$$S_j = \lambda_j (1 - R_j/R_{eq}) \dots\dots\dots(1)$$

- λ_i = 실리카 농도가 0인 냉각수로의 용해율[mg/d]
- R_i = 반응성 실리카 농도[ppm]
- R_{eqi} = 반응성 실리카 평형농도[ppm]

특정 저장대 캐비티 [에 대해, 반응성 실리카 농도의 시간에 대한 변화율은 다음 식(2)와 같이 저장대 캐비티 유동부피에 대한 무게평형에 의해 나타내 진다.

$$\frac{dR_j}{dt} = S_j \quad \text{source term} \dots\dots\dots(2)$$

$$- [k_{RR}R_j(1 - R_j/R_{eq}) - k_{RR}R(1 - R_j/R_{eq})] \quad \text{net leakage of reactive}$$

$$- [k_{RP}R_j - k_{PP}P_j(1 - R_j/R_{eq})] \quad \text{net polymerization}$$

$$- [k_{RD}R_j - k_{DD}D_j(1 - R_j/R_{eq})] \quad \text{net deposition}$$

캐비티에서 유출된 반응성 실리카에 의한 풀 반응성 실리카의 시간에 대한 변화율은 다음 식(3)과 같이 표현된다.

$$\frac{dR}{dt} = \sum_{j=0}^N [k_{RR}R_j(1 - R_j/R_{eq}) - k_{RR}R(1 - R_j/R_{eq})] \quad \text{net leakage from all } N \text{ panel cavities} \quad (3)$$

$$- [k_{RP}R - k_{PP}P(1 - R/R_{eq})] \quad \text{net polymerization}$$

$$- [k_{RD}R + k_{DD}D(1 - R/R_{eq})] \quad \text{net deposition}$$

또한 중합 실리카 농도의 시간에 대한 변화율은 다음 식(4)와 같이 표현된다.

$$\frac{dP_j}{dt} = [k_{RP}R_j - k_{PP}P_j(1 - R_j/R_{eq})] \dots\dots\dots(4)$$

$$- [k_{PP}P_j - k_{PP}P]$$

저장조내 중합 실리카의 시간에 대한 변화율은 다음 식(5)와 같이 표현된다.

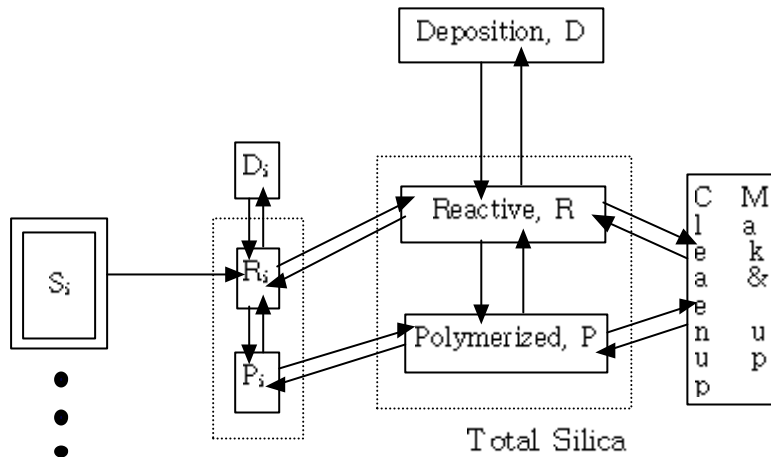
$$\frac{dP}{dt} = [k_{RP} - k_{PP}P(1 - R/R_{eq})] \dots\dots\dots(5)$$

$$+ \sum_{j=0}^N [k_{PP}P_j - k_{PP}P]$$

$$+ \text{cleaning terms}$$

그리고 총 실리카량은 주어진 부피내에서의 반응성 실리카와 중합 실리카의 합으로 구할 수 있으며, 다음 식(6)과 같다.

$$\text{Pool Total Silica}(t) = R(t) + P(t) \dots\dots\dots(6)$$



i=1 ... N

그림 2 사용후연료 저장조내 실리카 모델링

나. Boron Carbide 용출모델

일정 시간구간(t1, t2)에서 저장대 판 i로부터 용출된 실리카의 총 무게를 평가하기 위한 선형항은 다음 식 (7)과 같이 표현된다.

$$\begin{aligned}
 \text{Silica Mass Lost} \Big|_{t_1}^{t_2} &= \int_{t_1}^{t_2} S_i(t) dt \dots\dots\dots(7) \\
 &= \int_{t_1}^{t_2} \lambda_i(t) (1 - R_i(t) / R_{eq}(t)) dt
 \end{aligned}$$

저장대 패널내의 B₄C 무게와 실리카 무게비를 상기 식의 결과와 합산하게 되면 시간구간(t1, t2)에 대해 저장대로부터 용출된 B₄C의 총 무게나 저장대 판에 존재하는 B₄C의 초기무게에 대한 백분율로 구할 수 있으며, 식(8)과 같다.

$$\% B_4C \text{ lost} \Big|_{t_1}^{t_2} = \frac{\text{Silica Mass Lost} \Big|_{t_1}^{t_2} \cdot \frac{w/o B_4C \text{ in Boraflex}}{w/o SiO_2 \text{ in Boraflex}}}{\text{initial mass of } B_4C} \dots\dots\dots(8)$$

식(8)에서 실리카는 보라플렉스의 비결정형 실리카 성분을 의미하며, 상대적으로 비용해성인 석영필터 성분은 고려하지 않았다.

3.3. 해석결과

RACKLIFE 전산코드를 이용하여 보라플렉스 사용후연료저장대 성능저하를 평가하였으며, 그 결과를 그림3 ~ 그림6에 나타내었다. 그림3에 따르면 저장대 패널에 집적선량은 '99년초까지 평균 약 0.25X10²⁴rad, 최대 약 0.14X10²⁴rad로서 최대 집적선량이 1X10²⁴rad를 상회하여 일부 저장대에서 보라플렉스 저장대의 손상이 진행되고 있음을 나타내고 있다. 실제로 그림4, 5에 의하면 '96년초부터 저장조내 실리카농도가 상승하고 있음을 알 수 있다. 또한 그림4, 5는 저장대 손상에 따른 B₄C 손실률과 손실량을 기술하고 있는데, 저장대에 집적선량이 증가함에 따라 손실률이 증가함을 보이고 있다. 계산결과에 의하면 '99년초까지 약 1%의 B₄C가 손실되었으며, 2.8mg/day의 속도로 B₄C가 손실되고 있다. 그림6은 저장대 패널 캐비티 실리카 농도를 기술하고 있으며, '99초 평균 44ppm으로 계산되었다.

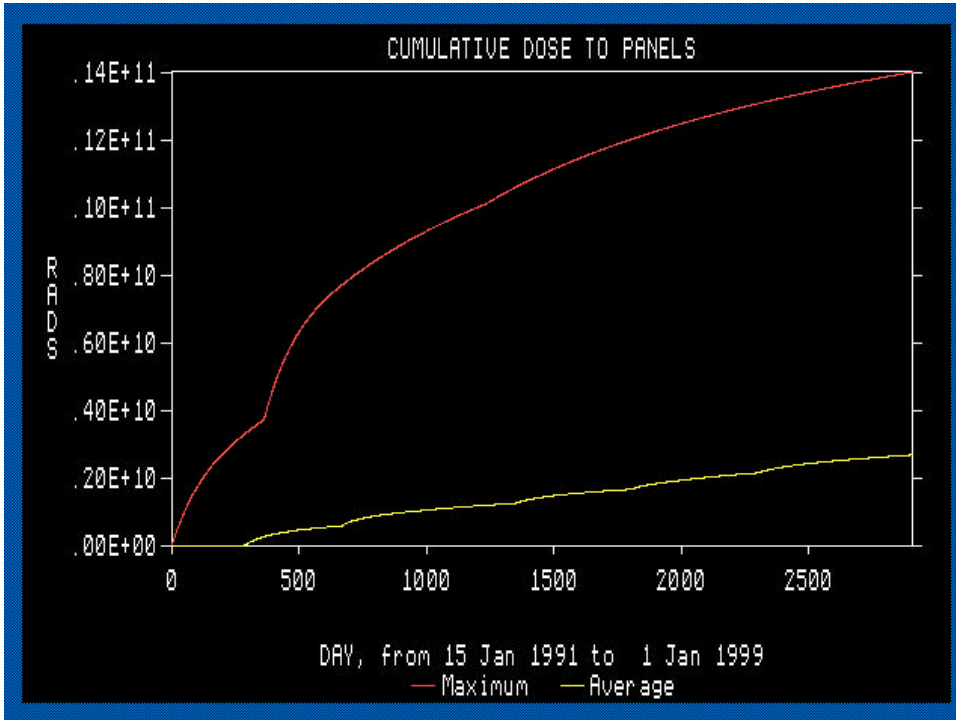


그림 3. 보라플렉스 저장대 패널 집적선량 (Rad)

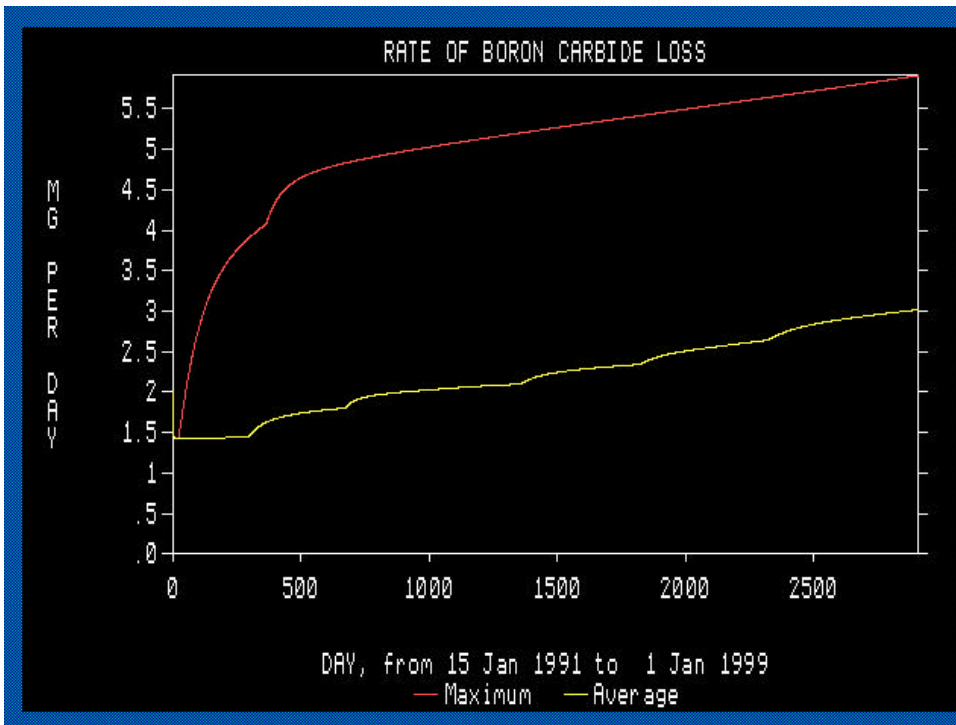


그림 4. 보라플렉스 저장대로부터 B₄C 손실율(mg/day)

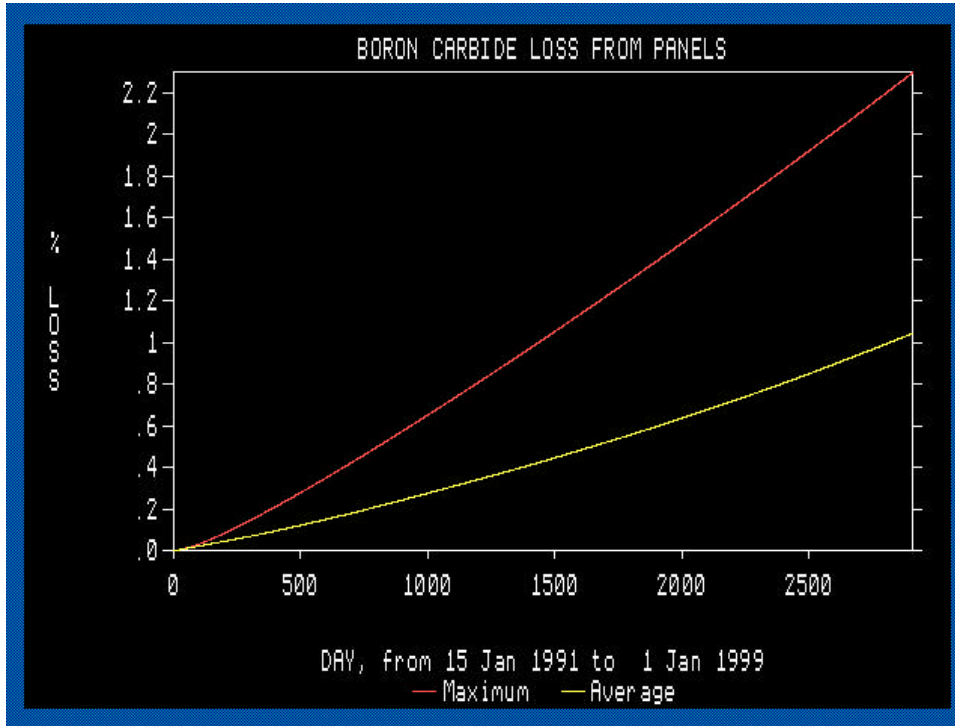


그림 5. 보라플렉스 저장대로부터 B₄C 손실비율(%)

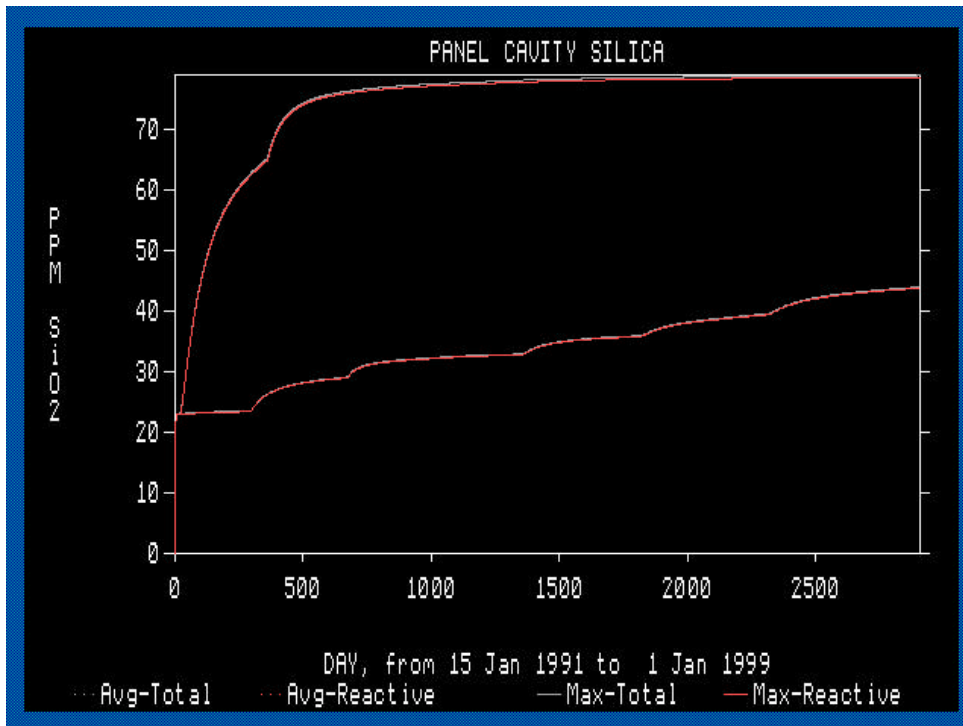


그림 6. 보라플렉스 저장대 패널 캐비티 실리카 농도

4. 사용후연료 저장조 최적운영 방안

사용후연료저장조의 보라플렉스 손상을 최소화하고 냉각수의 수질을 개선하기 위하여 저장조 운영이 최적화 되어야 한다. 실리카 용해속도는 온도의 증가에 따라 증가하므로 열교환속도에 의존하게 되므로, 냉각 시스템을 이용하여 저장조 온도를 낮춤으로써 실리카 용해율을 감소시킬 수 있다. 또한 저장조에서 실리카의 용해속도는 감마선 조사선량에 의해 증가하므로, 보라플렉스 저장대의 감마선조사량을 최소화할 수 있도록 전산코드를 이용하여 사용후핵연료를 분산 재배치하여 보라플렉스의 건전성을 향상시킬 수 있다. 연료장전 정지기간에 반응성 실리카의 준위가 높은 저장조의 냉각수와 준위가 낮은 원자로냉각수계통(RCS) 냉각수가 혼합되는 경우, RCS 실리카 준위가 상승하게 된다. 결과적으로 RCS의 냉각수의 수질을 오염시키며, 노심내 핵연료에 침적되어 핵연료 열전달 효율저하 등 원자로 운영에 영향을 미칠 수 있다. RO 제염설비는 실리카를 제거한 이후에도 용해속도가 곧장 상승하는 경향이 있으나 수질을 개선하는데 효과적이다. 또한 보라플렉스를 사용하는 저장조에서 연료장전시 RCS으로 이동하는 반응성 실리카 및 냉각수의 실리카 농도를 낮추기 위해 RO 제염설비를 연료장전 전에 일정기간 가동하는 것이 수질관리를 위해 효율적인 운영관리가 될 수 있다. 표 1에 보라플렉스 사용후연료저장조의 RO제염설비 운영방식을 비교하였다.

5. 결 론

본 연구결과 보라플렉스 저장대는 수중 환경에서 감마선 조사에 의해 손상되어 실리카가 용해되면서 냉각수의 실리카 준위를 높여 수질을 오염시키는 주요 요인인 것으로 분석되었으며, 중성자 흡수재인 B₄C의 용출로 인하여 핵임계안전성의 재평가 필요성이 대두되고 있다. RACKLIFE 전산코드를 이용한 보라플렉스 저장대의 성능평가결과 보라플렉스 저장대 집적선량은 약 $0.25 \times 10^{14} \text{ rad}$ 이며, 그에 따른 B₄C의 손실량은 약 1%인 것으로 평가되었다. 또한 이로 인하여 미임계여유도에는 크게 영향을 미치지 않는 것으로 분석되었다.

보라플렉스를 사용한 저장조의 실리카 준위에 영향을 미치는 주요인자를 분석한 결과에 따라 냉각수의 온도를 가능한 낮추고, 냉각수의 순환속도를 감소시킴으로써 사용후연료저장조의 운영을 개선할 수 있다. 또한 보라플렉스의 수명과 냉각수의 수질에 영향을 미치는 인자는 사용후연료의 조사선량이므로, 전산코드를 이용하여 저장조에서 사용후연료의 재배치를 수행할 수 있다. 그리고 앞에서 기술한 3가지 조건으로 냉각수 관리를 하면서 냉각수의 실리카 준위가 일정치 이상이면, RO 제염설비를 연료장전 3~4개월 전에 가동하여 냉각수의 수질을 개선하는 것이 바람직하다. 만약 열교환기설비의 조정이 곤란한 경우, 사용후연료의 감마선을 적정 분산시켜 최적화하고, 병행하여 실리카 준위가 일정치 이상이 되면, RO 제염설비를 연료장전 직전 3~4개월간 가동하여 수질을 개선하는 것이 예방차원의 수질관리 측면에서도 바람직한 방안으로 분석되었다.

참고문헌

1. Northeast technology Corp.: An Assessment of Boraflex Performance in Spent Nuclear Fuel Storage racks, EPRI-6159, Dec, 1988.
2. Northeast technology Corp.: Guidelines for Boraflex Use in Spent Fuel Storage racks, EPRI TR-103300, Dec, 1993.
3. Northeast Technology Corp., The Boraflex Rack Life Extension Computer Code-RACKLIFE, EPRI TR-107333, Sep, 1997.

표 1. 물진 원전2호기 사용후연료저장조의 RO제염설비 운영방안

운영방안	소요비용	장 점	단 점	평 가
[1안] ○ RO제염설비 년중 가동	고비용	<ul style="list-style-type: none"> ① 기존 RO제염설비 년중 최대한 활용 ② 냉각수 실리카 준위 적정 수준 유지 ③ RCS 운영 효율화에 기여 	<ul style="list-style-type: none"> ① 경제적으로 많은 폐기물 처리비용 발생 ② 보라플렉스의 급속한 손상으로 수명연장에 악영향 ③ 년중 가동에 의한 문전인력 배치 ④ 폐기물 다량 발생 	불 리
[2안] ○ RO제염설비 부분 가동 (연료장전 직전 가동)	저비용	<ul style="list-style-type: none"> ① 폐기물 처리비용 발생이 적음 ② 냉각수 실리카 준위 어느 정도 저감 가능 ③ RCS 실리카 준위 저감 효과 	<ul style="list-style-type: none"> ① 기존RO 제염설비의 부분 문전으로 이용률 저조 ② 문전시간 증가로 냉각수 실리카준이 상승에 의한 하향조정 곤란 ③ 폐기물 소량 발생 	유 리
[3안] ○ RO제염설비 가동 중지	-	<ul style="list-style-type: none"> ① 보라플렉스의 수명 연장에 기여 ② 폐기물 처리비용이 거의 발생하지 않음 ③ RO 제염설비 문전 중단으로 문전요원 불필요 ④ 폐기물 미발생 	<ul style="list-style-type: none"> ① 기존도입 RO제염설비 미 가동으로 이용률 "0" ② 냉각수 실리카 준위 계속 상승으로 관리에 어려움 내재 ③ RCS 운영에 간접영향을 주며, RCS 폐기물의 증가요인 발생 	유 보