

삼중수소 제거공정 모델링 및 정밀 모사

금충기, 배재흠,
수원대학교

김광락, 정홍석, 이한수
한국원자력연구소

송명재, 손순환
한전기술연구원

요약

중수형발전로의 가동에 따라 중수는 삼중수소로 오염된다. 오염된 중수의 정화에 적합한 공정으로 평가되는 기액촉매교환과 초저온증류공정으로 이루어진 촉매복합공정에 대하여 탑내의 유속비 및 이론단수의 변화에 따른 촉매탑과 증류탑에서의 삼중수소 제거율 및 농축률 그리고 탑내의 수소동위원소의 농도분포변화를 Newton-Raphson 방법을 사용하여 전산모사를 수행하여 구하였다. 이러한 해석은 본격적 최적화 설계의 기초입력자료로 활용될 것이다.

1. 서론

중수형발전로의 중수는 중성자와 반응하여 방사능물질인 삼중수소로 오염된다. 장기전력수급 계획에 의하면 우리나라는 2006년까지 총 5기의 중수형발전소를 건설 운전할 예정이다. 활발한 원자력발전사업의 전개에 따라 삼중수소의 축적량은 계속 증가할 것으로 예상된다.

장기전력계획에 따르면 월성 2호기가 가동되는 1997년부터 삼중수소 축적량은 다소 빠르게 증가하여, 2000년이 되면 현재의 삼중수소 축적량의 2배가 되며 2010년에는 삼중수소 총재고가 현재의 약 5배 이상으로 증가하여 총 52 MCi 가 축적될 것으로 전망된다.

삼중수소는 낮은 에너지의 베타선을 방출하지만, 수분상태로 인체에 흡입되면 대단히 위험하다. 운전원에 대한 피폭한계치(DAC: Derived Air Concentration)는 $10\mu\text{Ci}/\text{m}^3$ 이며, 이는 연간 5 Rem 의 피폭을 기준으로한 값이다. 그런데 이러한 삼중수소는 중수와 물리화학적 물성치가 매우 유사하여 분리, 정화가 어렵다. 또한 중수로내의 삼중수소는 극미량인 0.69 ppm(원자분량:삼중수소 농도가 2 Ci/kg 중수일 때)정도 존재하므로 삼중수소의 분리제거는 쉽지 않은 것이다.

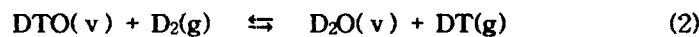
최근 한국원자력연구소와 한전기술연구원 공동연구에 감속재에서 삼중수소를 근원적으로 분리제거하는 여러 공정을 검토한 바에 의하면 촉매복합공정이 월성발전소의 삼중수소 분리제거에 적합한것으로 판단되었다. 그러나, 아직까지 촉매복합공정의 체계적 해석은 거의 수행되지 않은 실정이다. 이에 저자들은 촉매탑에서는 NTU-HTU method, 그리고 수소증류탑에서는 다성분계

에 관한 Fenske-Underwood-Gilliland Equation을 사용하여 공정의 단순 설계 모델을 정립하여 주요 변수가 공정설계에 미치는 영향을 분석한 바 있다[1]. 본 연구는 이들 단순모델을 검증하고 삼중수소제거공정의 최적화 설계에 활용코져 촉매탑과 증류탑의 정밀 모델링을 수행하였다.

2. 공정설명 및 Simulation

이 Simulation 에서의 기본적인 공정은 그림 1에서 보듯이 원자로에서 오염되어 미량의 삼중수소가 함유된 원료수가 촉매탑 상부로 들어가며, 증류탑에서 탈삼중수소화된 수소가 촉매탑하부로 유입되어 촉매탑 내에서 기-액 교환반응과 촉매 반응을 통해 원료수중의 삼중수소가 중수소쪽으로 전이되어 탈삼중수소된 중수를 얻는다. 가스상의 삼중수소를 포함한 중수소는 액화되어 초저온의 증류탑에서 삼중수소가 농축된다.

촉매탑에서는 아래와 같은 반응이 이루어져 삼중수소가 중수소방향으로 농축된다.



따라서, 촉매탑은 반응(1)과 (2)가 진행되는 일련의 water/vapor 평형이 이루어지는 Scrubbing 과정과 water vapor/ hydrogen gas 교환반응이 이루어지는 촉매교환 과정으로 이루어진다고 가정할 수 있다. 촉매탑 Simulation에서는 이를 고려하여 성분물질수지식, 기액평형식, 물-수소교환반응식을 세우고 이들 비선형 연립방정식들을 Newton-Raphson 방법을 사용하여 촉매탑의 기액유량비, 이론단수증가에 따른 삼중수소 제거율과 탑내의 삼중수소농도 분포를 계산하였다.

또한 증류탑에서는 촉매탑상부에서 유입된 중수소를 동위원소(D, HD, DT)간의 증기압차이에 의하여 초저온에서 분리한다. 증류탑의 Simulation에서도 성분물질수지, 기액평형관계식, 열수지식을 세우고 이들 비선형 연립방정식을 Newton-Raphson method를 사용하여 증류탑내에서의 환류비, 이론단수의 변화에 따른 삼중수소의 농축률 및 탑높이에 따른 동위원소농도 분포를 계산하였다. 촉매탑과 농축탑설계에서 사용된 변수는 표1과 같다. 이들 촉매탑과 증류탑의 Simulation 결과는 Kinoshita의 결과치[2,3]와 거의 일치한 값을 얻어 간접적으로 Simulation의 타당성을 검증하였다.

3. 결과 및 고찰

이상의 삼중수소 제거 공정에 대한 수학적 해석을 기초로 하여 전산프로그램을 작성하여 그림 2-4은 촉매탑, 그림 5-7는 증류탑에 대한 결과를 도시하였다.

그림 2는 촉매탑에서 액상(L) 과 기상(V+G)의 유량비가 증가할수록 원료수중의 삼중수소제거

율은 적어지고 유입수소중의 삼중수소 농축률은 증가하며 $L/(V+G)$ 의 비가 0.5일 경우 원료수중의 삼중수소 제거율은 80%이상됨을 알 수 있다. 그림 3은 촉매탑의 이론 단수의 변화에 따른 삼중수소 제거율과 유입수소중의 삼중수소 농축률을 도시한 것으로 예상되는 바와 같이 이론단수가 증가할수록 원료수중의 삼중수소 제거율은 커지고 유입수소중의 삼중수소 농축율이 증가함을 알 수 있다. 그림 4는 촉매탑의 높이에 따른 DTO, DT의 변화를 도시한 것으로 탑상부에서 탑하부로 이동함에 따라 삼중수소의 농도가 감소하고 특히 수소중의 삼중수소가 급격히 변함을 알 수가 있다.

그림 5는 증류탑에서 환류비에 따른 삼중수소의 농축비와 탈삼중수소율의 변화를 도시한 것으로 환류비가 클수록 탑하부에서 삼중수소의 농축과 탑상부에서의 탈삼중수소율이 커짐을 알 수가 있다. 그림 6은 증류탑의 이론단수가 클수록 탑하부에서 삼중수소의 농축비가 커지고 탑상부에서 탈삼중수소율이 커짐을 알 수 있다. 그림 7은 이론단수가 80이고 수소유입이 40인 탑중상부에 이루어질 경우 수소유입단 하부에서는 삼중수소 농축과 HD의 감소가 급격히 이루어짐을 알 수 있다.

4. 결론 및 앞으로의 연구계획

촉매 복합공정의 주요 장치인 촉매탑과 초저온 증류탑의 공정변수(기액유량비, 이론단수)들의 변화에 따른 삼중수소 농축율 및 제거율을 구하여 보았고 탑내의 단수변화에 따른 수소동위원소 농도 분포를 계산하여 예상되는 결과를 얻었다. 이 Simulation을 더욱 보완하여 삼중수소 제거를 위한 촉매복합공정의 최적화 설계에 이용할 계획이다.

참고 문헌

- (1) 배재흠의, "월성발전소의 삼중수소 제거를 위한 촉매 복합공정해석", 한국원자력학회지, 27(1), PP121-131(1995).
- (2) M. Kinoshita and Y. Naruse, "A Mathematical Simulation Procedure for a Multistage-type Water-Hydrogen Exchange Column in Tritium System", Nuclear Technology Fusion, 3, PP112-120(1983)
- (3) M. Kinshits et al., "Computer Analysis on Steady State Separation Characteristics of Hydrogen Isotope Separation System by Cryogenic Distillation", J. of Nuclear Science and Technology, 18(7), PP525-539(1981).

표1. 촉매복합공정의 설계조건 및 변수

탑종류	공정 변수	변수값
촉매탑	온도 압력 원료수 조성 (몰분율) 유입수소조성 (몰분율) 원료수유입유량 이론단 유량비(L/(V+G))	40℃ 760mmHg HDO = 0.01 DTO = 1×10^{-6} HD = 0.01 DT = 0.1884×10^{-7} 1000mol/hr 22 - 30 0.51 - 0.75
증류탑	온도 압력 각단사이의 압력차 이론단 환류비	24°K 760mmHg 0.5mmHg 40 - 90 5 - 20

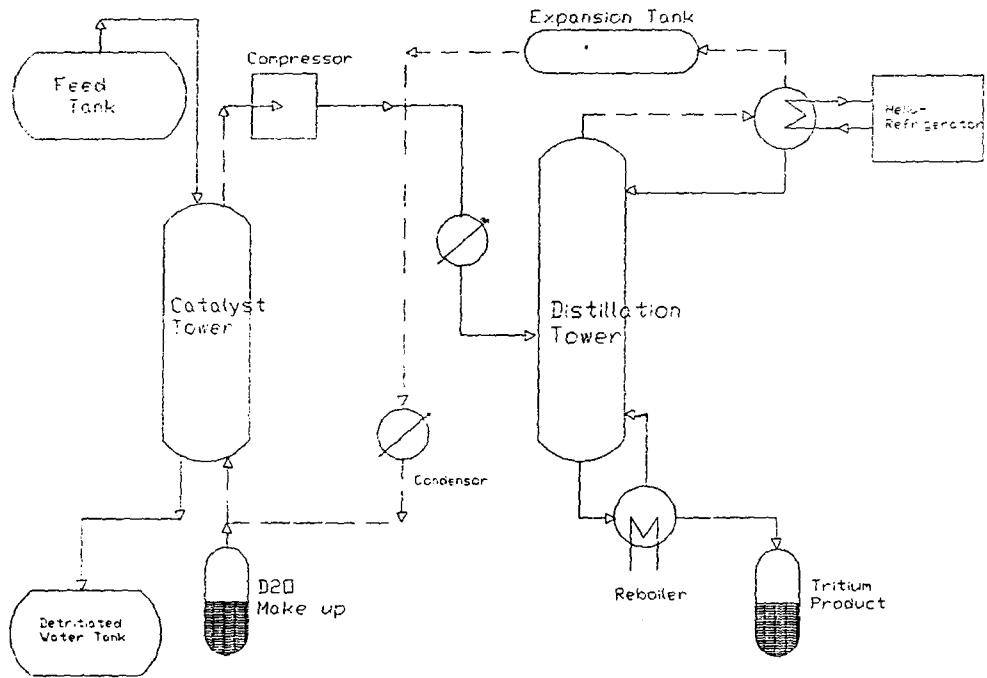


Fig. 1.
- 862 -

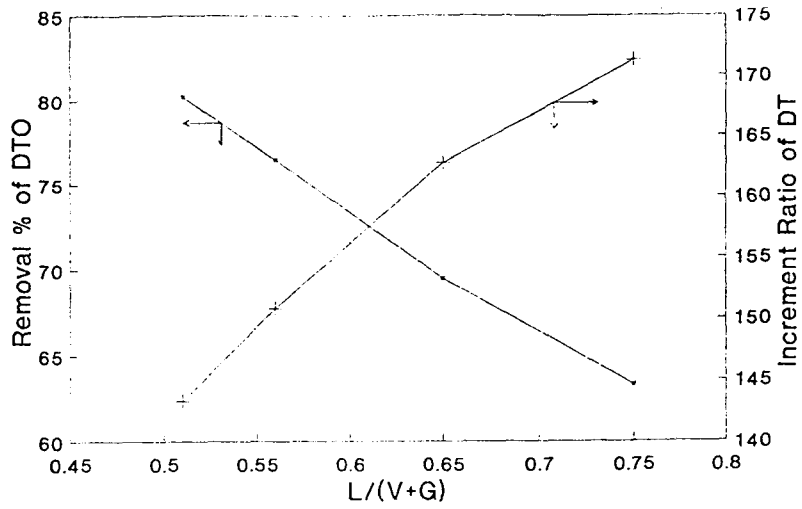


Fig 2. 촉매탑 기액유량비에 따른 삼중수소 제거율

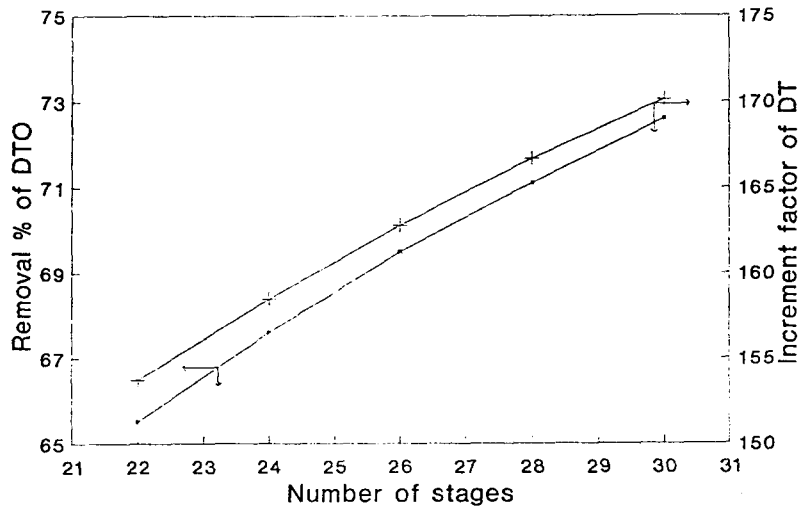


Fig 3. 촉매탑의 총 이론단수 변화에 따른 삼중수소 제거율/농축비 (L/(V+G)=0.65)

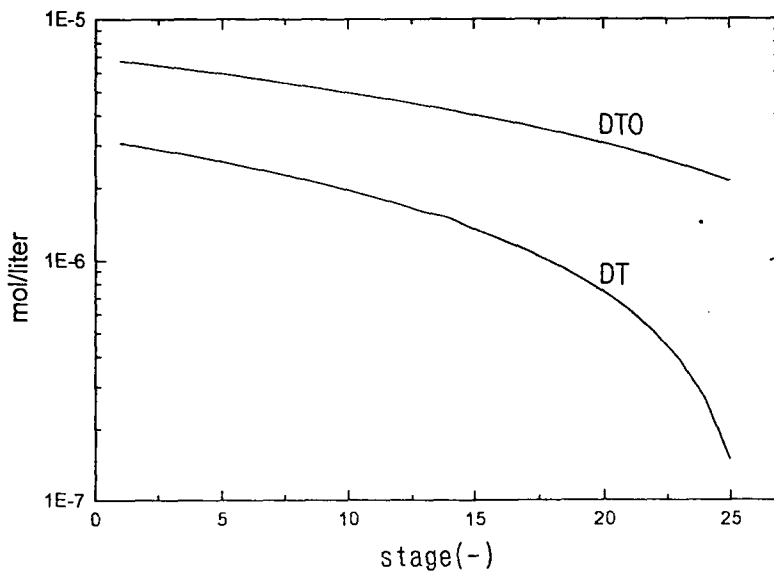


Fig 4. 촉매탑의 높이에 따른 삼중수소 농도변화 (L/(V+G)=0.65, 이론단=26)

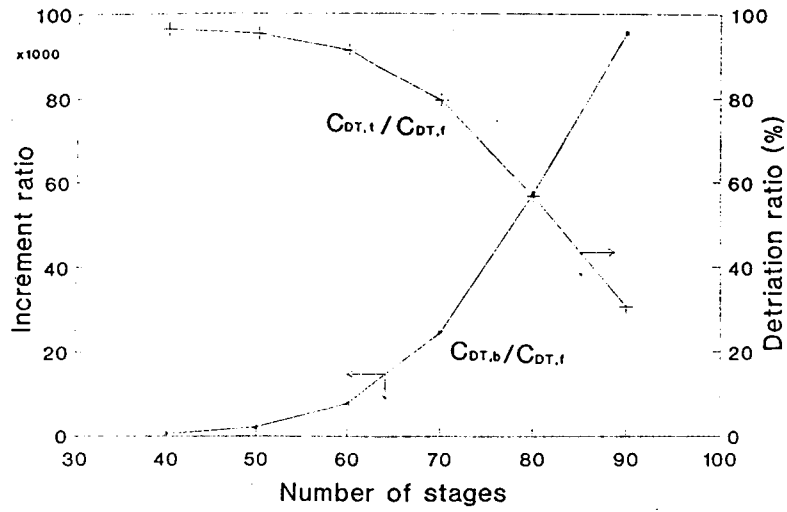


Fig 6. 증류탑에서의 총 이론단수 변화에 따른 삼중수소 농축비/탈삼중수소율 (환류비=6)

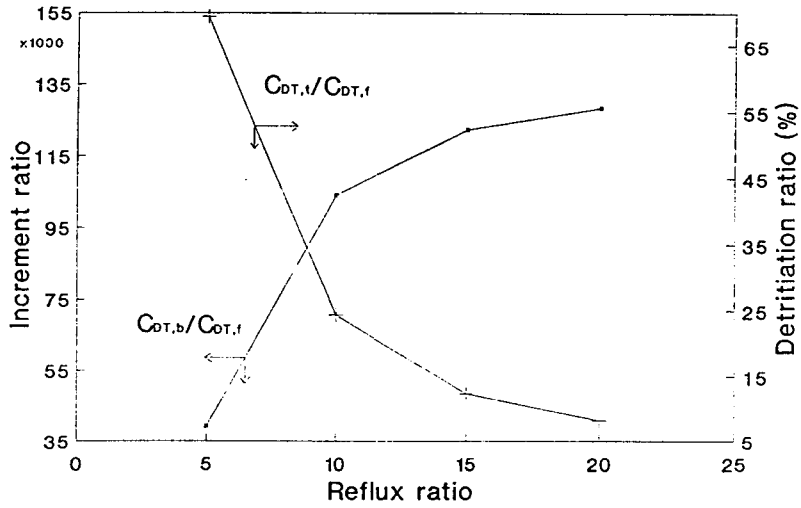


Fig 5. 증류탑에서의 환류변화에 따른 삼중수소 농축비/탈삼중수소율 (이론단=80)

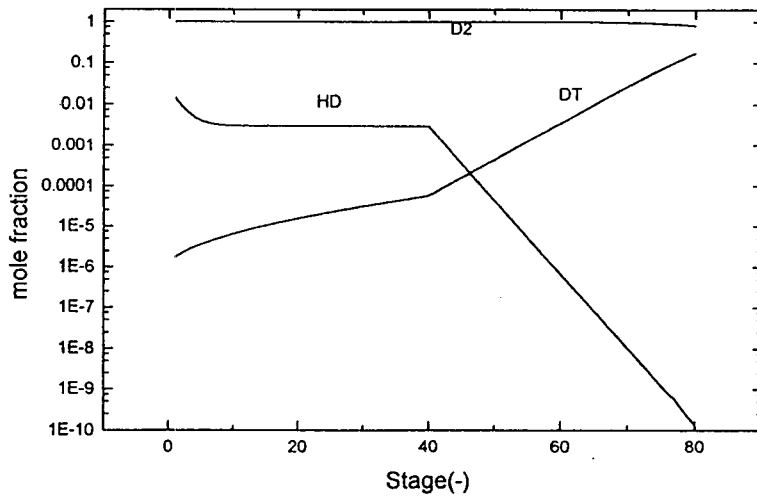


Fig 7. 증류탑 높이에 따른 수소 동위원소 농도분포 (이론단=80, 환류비=6)