

## 수소동위원소 분리를 위한 초저온증류장치

송규민, 손순환, 김광신, 김위수  
한전 전력연구원

### Cryogenic Distillation Apparatus for Hydrogen Isotopes Separation

Kyu-Min Song, Soon Hwan Sohn, Kwang Shin Kim and Wi Soo Kim  
Korea Electric Power Research Institute

kmsong@kepri.re.kr

**Abstract** - KEPCO has a plan to construct TRF(tritium removal facility) in wolsong nuclear power plant site by 2005. In advance of WTRF construction, the pilot plant was installed at KEPRI in order to show process reliability of WTRF. The main processes of this pilot plant are LPCE(liquid phase catalytic exchange) and CD(cryogenic distillation). Deuterium is separated from heavy water in LPCE process and concentrated in CD process. CD process consists of cold box, where are a distillation column and heat exchangers, vacuum system, cryogenic refrigerant supply system and instrument & control system. The experience of the pilot plant will be used in WTRF design review, operating procedure revision and fundamental education for the operators.

### 1. 서 론

월성 원전에 2005년까지 건설될 삼중수소 제거설비(TRF : Tritium Removal Facility)는 중수로 계통내 삼중수소를 제거하기 위한 설비이다. 본 설비는 삼중수소의 분리-농축-저장이라는 3단계 공정으로 이루어져 있는데, 농축공정에 초저온증류공정이 적용될 예정이다. 삼중수소 분리 공정으로는 한전전력연구원과 원자력연구소가 공동 개발한 국산소수성 촉매를 이용한 액상촉매교환공정을, 그리고 저장공정은 금속 수소화물 형태로 저장하기 위해 티타늄 스폰지를 이용할 계획이다. 월성 삼중수소 제거설비에 적용될 액상촉매교환공정은 상업설비로는 세계 최초로 적용하는 것으로 초저온증류공정과 연계된 복합공정 실증과 운전절차 보안을 위해 파일럿 플랜트를 설치하게 되었다[1].

초저온증류공정은 기체를 끓는점까지 낮추어

상대휘발도 차이로 분리하는 공정으로, 이미 국내에서 산소/질소 생산공정으로 이용되고 있지만 수소동위원소 분리를 위한 설비는 본 설비가 최초가 될 것이다. 초저온증류를 이용한 수소동위원소의 분리는 중수생산공정[2], 중수로 계통내 삼중수소 제거공정[2], 핵융합 연료순환공정[3-6] 등에 적용되고 있다. 특히 핵융합 발전에서 사용되는 원료인 중수소/삼중수소의 순도유지를 위한 초저온증류공정에 대한 연구는 국외에서 많이 이루어지고 있다.

월성원전 계통내에서 생성되는 삼중수소를 제거하기 위한 농축공정으로 초저온증류공정을 사용하는 이유중 하나는 방사선물질인 삼중수소에 대한 위험성을 크게 줄일 수 있기 때문이다. 삼중수소를 농축할 수 있는 전기분해나, 중수/삼중수소 증류법은 삼중수소가 산화물형태로 농축되기 때문에 초저온증류법에 비해 상대적으로 피폭 위험성이 많다. 따라서 월성 TRF 설비는 액상촉매교환공정과 초저온증류공정에 의한 설비로 설계 중에 있다.

본 연구에서는 액상촉매교환공정의 복합공정 실증과 운전절차 보완 및 신뢰성 확보를 위해 초저온증류설비를 보조설비로 설치하게 되었다. 본 설비의 운전경험을 통해 월성 TRF 설계의 적합성 분석·평가를 위한 전산프로그램 개발 및 검증에 활용할 계획이다.

### 2. 본 론

#### 2.1 월성 TRF 실증용 설비

월성 TRF는 중수전처리공정, 액상촉매교환공정, 초저온증류공정, 티타늄 수소화물 저장공정으로 이루어져 있다. 이 중 전력연구원에서는 액상촉매교환공정과 초저온증류공정을 주요 공정으로 하는 파일럿 플랜트를 설치하였다. 본 설비는 Fig. 1에서 보듯이 액상촉매교환반응계통, 기체순환계통, 초저온증류계통, 초저온냉매공급계통, 계측·제어계통의 5개 주요 계통으로 이루어져 있다. 본 설비는 월성 TRF와는 달리 중수소/삼중

수소 분리를 취급하지 않으며 동일한 메카니즘인 수소/중수소 분리를 취급한다.

탈기장치에 의해 전처리된 중수가 액상축매교환반응계통으로 공급되어 기상으로 중수소를 분리하고 분리된 중수소가 불순물 제거된 후 초저온증류계통으로 이송되어 수소와 중수소로 분리된다. 중수소가 제거된 수소는 다시 액상축매교환공정으로 재순환 되어 중수소와 교환반응에 참여하게 되며, 중수소는 저장용기에 저장된다.

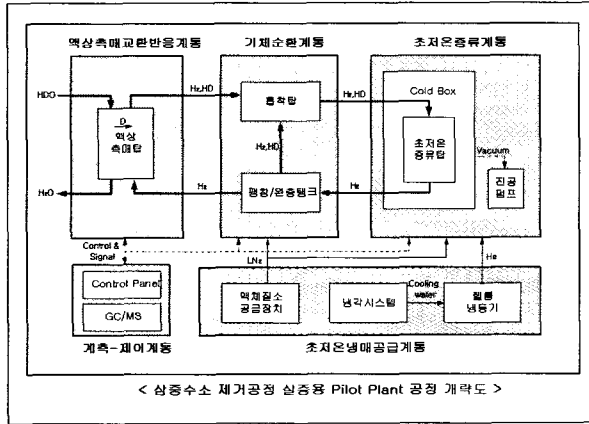


Fig.1. Conceptual Flow Diagram of WTRF Pilot Plant

### 2.2 초저온증류계통

초저온 증류계통은 수소동위원소의 원활한 분리를 위해 20K 이하의 초저온으로 유지되어야 하므로 단열을 위해 진공시스템을 제외한 모든 설비가 cold box안에 들어가 있어 외부에서 볼 수는 없다. Cold box 내부에는 초저온 증류탑, 열교환기, 액체질소조, 각종 센서 및 계측기가 설치되어 있으며, 모두 cold box 상단에 매달린 상태로 있다. 모든 배관은 자동용접을 적용하고 Cajon VCR 타입을 사용하여 누설을 최소로 줄였다.

#### 2.2.1. 초저온증류탑

초저온증류계통의 핵심부로 수소동위원소 분리가 일어나는 부분이며, 물질전달면적을 증가시키기 위해 내부에 직경 4cm의 스테인레스 강 재질 Sulzer-CY packing을 충전하였다. 초저온 증류탑은 전체적으로 세 부분으로 구성되는데, 상단의 응축기는 수소기체를 액체로 응축시켜 환류시키는 역할을 하며, 하단의 재비기는 상부에서 떨어진 액체수소를 기화시켜 환류시키는 역할을 한다. 가운데의 증류탑부는 기액접촉을 통해 실제 수소동위원소 분리가 일어나는 부분으로 상대 휘발도 차이에 의해 수소는 기상으로 중수소는 액상으로 농축시키는 역할을 한다. 초저온증류탑의 높이는 1.5m이며 직경은 4cm이다. 실리콘 다이오드 방식의 온도센서를 설치하였고, 탑상부와 탑하부 그리고 재비기 하부의 압력차를 측정하기 위해 차압계를 설치하였으며, 이를 통해 재비기내 액체수소량 추정할 수 있도록 하였

다. 안전성을 확보하기 위해 증류탑 응축기 상부는 팽창 탱크로 직접 연결된 배관이 있으며, 초저온 유지 불가 혹은 열침입에 의한 수소 기화에 의한 초저온증류탑 가압시 폭발을 방지하도록 되어 있다.

#### 2.2.2 Cold Box

초저온 증류탑이 원활한 기능을 할 수 있도록 열침입을 방지하고, 진공을 유지하는 기능을 하며, 방폭 및 열교환 기능도 한다. Fig. 2에서 cold box와 cold box상부에 연결된 수소/중수소 라인, 액체질소 공급라인, 헬륨냉매 공급라인 및 각종 밸브들을 볼 수 있다. 열 침입 방지는 알루미늄 코팅필름, shield chamber(20K 헬륨), 액체질소조(78K 액체질소), 고진공( $10^{-5}$  Torr)의 다단계로 이루어진다. Cold box 중간부에는 ISO250 크기의 배관연결부가 있어 이를 통해 진공시스템과 연결된다. Cold box 내부상단과 내부 바깥면 쪽에는 액체질소조가 설치되어 있다. 또한 유입된 수소기체의 온도를 낮추기 위한 열교환기가 설치되어 있다. 1단계로 cold box 상단에 설치된 액체질소조가 열교환기 역할을 하며 이때 78K까지 온도가 내려간다. 2단계로 헬륨냉매와의 열교환 하여 20K까지 온도가 내려간다.

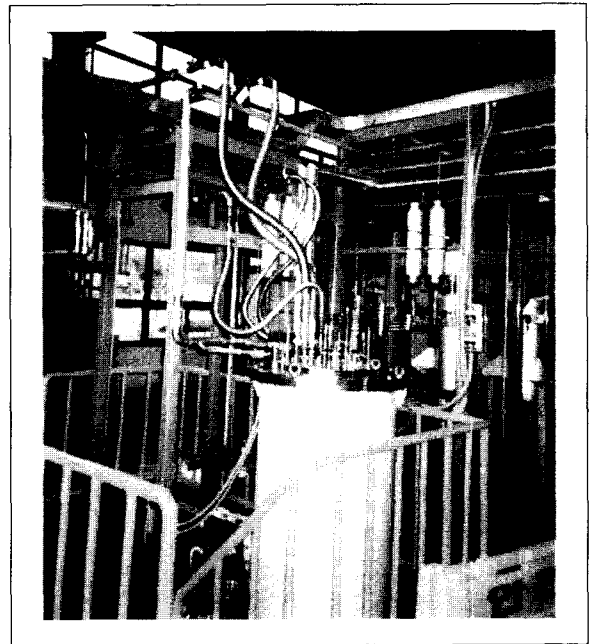


Fig.2. Cold Box

#### 2.2.3 진공시스템

외부로부터 유입된 열이 대류에 의해 증류탑으로 전달되는 것을 차단하기 위해 cold box 내부 압력을  $10^{-5}$  Torr 이하로 유지시키기 위한 설비이다. 1800 l/sec용량의 터보펌프와 2개의 보조진공펌프(로터리 방식)가 설치되어 있다. 보조진공펌프는 초기 cold box의 진공을 위해 가동되며 진공도가 약  $10^{-3}$  Torr가 되면 터보펌

프를 가동한다. 이때 이들이 원활하게 작동할 수 있도록 5개의 공압밸브가 압력계 및 펌프제어기가 주어진 로직에 의해 작동된다.

### 2.3 초저온냉매공급계통

초저온증류계통에서 사용되는 냉매를 원활하게 공급하여 각 계통의 초저온을 유지시키는 기능을 한다. 초저온 냉매로는 헬륨냉동기에서 공급되는 15K의 헬륨냉매와 보조냉매인 액체질소로 구분된다. 따라서 초저온냉매공급계통은 액체질소 공급장치와, 헬륨냉매 공급장치로 구분할 수 있다. 액체질소 공급계통은 액체질소 흡착탑, cold box의 상단 액체질소조 및 cold jacket의 액체질소가 일정 수위 이하로 낮아지면 액체 질소가 공급되도록 하였다. 액체질소공급은 외부에 설치된 액체질소 탱크로부터 이루어지며, 액체질소 수위 제어기와 솔레노이드 밸브에 의해 제어된다.

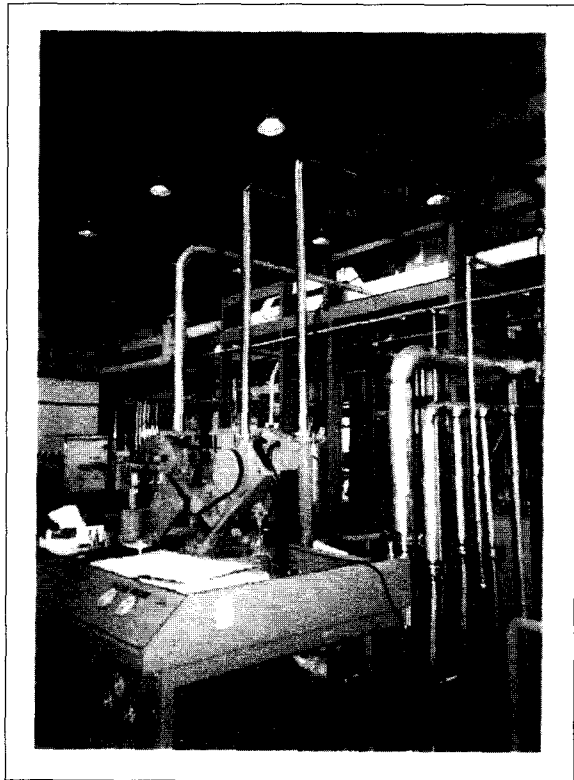


Fig.3. Helium Refrigerator and Cold Helium Gas Transfer Line

헬륨냉매 공급장치는 헬륨냉동기(Fig. 3), 헬륨냉동기용 압축기(Fig. 4) 및 냉각탑으로 구성되어 있다. 헬륨냉동기 용량은 15K 기준으로 360W이며 배관을 통한 열침입을 최소로 하기 위하여 cold box에 가깝게 설치하였다. 헬륨냉동기는 자체적으로 열교환기, 팽창엔진, 두 개의 활성탄 흡착장치, 진공시스템 및 제어기기를 갖추고 있어 독립적으로 제어된다.

헬륨압축기는 열교환 및 압력손실이 발생한 헬륨을 약 250 psi까지 가압하여 헬륨냉동기로

이송하는 역할을 한다. 전력소모량은 약 100kW 정도가 된다. 헬륨냉동기에서 사용되는 360W를 제외한 대부분의 전력은 열로 발생하는데 이때 발생하는 열을 제거하기 위하여 냉각 시스템과 연결되어 있다. 냉각시스템은 15~24 °C로 유지되는 냉각수를 30 psi 이상의 압력으로 유량 60 l/min 만큼 공급할 수 있다.(Fig. 4)

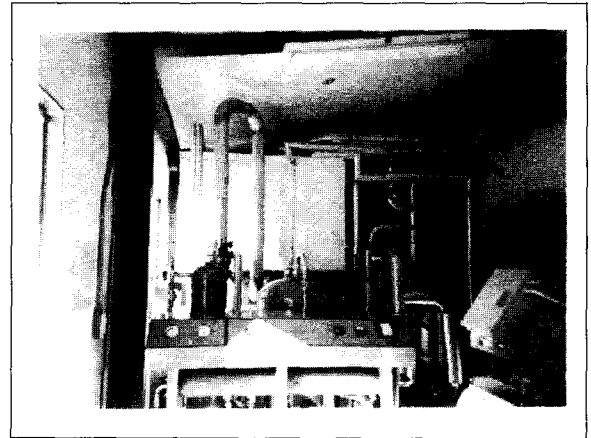


Fig.4. Helium Compressor and Cooling Water System

헬륨냉동기 제어를 위해 공압밸브가 사용되며 유량 9 l/min 이상, 압력 2.4 bar 이상의 압축 공기가 사용된다. 헬륨냉동기에서 필요로 하는 헬륨은 초기 장전시 및 가동시 소모되는 헬륨은 헬륨가스통에서 공급되며, 재가동시나 정지시에는 자체 저장/공급기능을 이용한다.

### 2.4 계측·제어 계통

#### 2.4.1 Control Panel

본 설비의 모든 계측·제어기기를 한 곳에 배치하여 신속한 자료수집과 감시 및 제어기능을 한다. MFC를 제어하며, 공압밸브, solenoid 밸브의 조작을 할 수 있으며, 유량, 온도, 압력을 지시한다. 또한 운전 모드에 따른 밸브의 on/off 상태를 표시한다.

Fig. 5는 control panel 전면으로 상단에 그래픽보드가 있으며 데스크에 각종 밸브 및 기기 작동용 버튼과 전원스위치가 있다. 그래픽보드는 모자이크 방식으로 제작되었다. 데스크와 그래픽 보드 사이에 MFC, 터보펌프 컨트롤러 등의 각종 제어기가 설치되어 있다.

#### 2.4.2 기체시료 분석장치

기체시료는 온라인으로 분석하기 위해 질량분석기를 설치하였다. 기체시료의 온라인 분석을 위해 시료채취가 필요한 곳에 1/8"의 시료채취 라인을 연결하여 질량분석기까지 연결하였다. 시료채취라인은 총 8개이며 질량분석기 진공펌프에 의해 유입된다. 질량분석기는 마그네틱 섹터 방식으로 시료분석이 가능한 최대시간간격은 5분이

며 측정 가능한 최소 농도는 5 ppb이다.

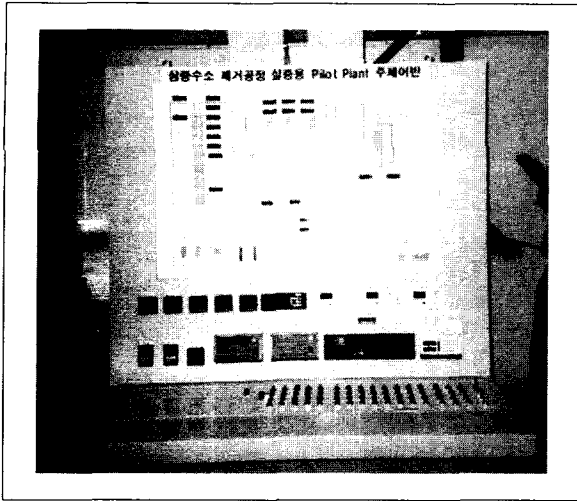


Fig.5. Control Panel

## 2.5 기체순환계통

### 2.5.1 평형장치

일반적으로 공급액내 중수소 혹은 삼중수소의 조성이 매우 낮아 이원자분자(HD, HT, DT) 형태로 존재할 가능성이 크므로 D<sub>2</sub> 형태나 T<sub>2</sub> 형태로 분리할 경우 평형장치를 사용하여야 한다. 평형장치는 수소동위원소들 간의 분자구성비율을 온도에 따라 변환시켜 주는 장치이다. 즉 수소와 수소동위원소들에 의해 가능한 분자형태는 H<sub>2</sub>, HD, HT, D<sub>2</sub>, DT, T<sub>2</sub>의 6가지인데, 이들은 Table 1의 평형상수에 따라 구성비가 바뀔 수 있다.

본 설비의 평형장치는 백금촉매를 담지한 활성탄을 사용하여 상온에서 반응하도록 하였다. 수소동위원소의 반응은 가역반응으로 원하는 성분의 조성이 최소로 되는 지점을 예측하여 평형장치를 설치/운전하는 기술이 필요하다[7].

Table 1. Equilibrium Constants of Hydrogen Isotopes Reaction.

평형상수식	온도 (K)				
	0	273.1	298.1	400	500
$H_2 + D_2 \leftrightarrow 2HD$	0	3.18	3.25	3.48	3.62
$H_2 + T_2 \leftrightarrow 2HT$	0	2.42	2.56	2.97	3.24
$D_2 + T_2 \leftrightarrow 2DT$	0	3.79	3.82	3.88	3.92

### 2.5.2 수소이송장치

수소이송장치는 불순물 침입이 없고 외부와 접촉이 없는 2개의 metal bellows pump를 사용하였다. 각각의 용량은 50 mole/hr와 32 mole/hr이다. 운전초기 수소공급과 수소/중수소

평형반응을 위한 순환운전을 위해 압축공기 구동 방식의 가스부스터를 사용하였다.

### 2.5.3 탱크

수소/중수소 혼합기체 저장을 위하여 2개의 저장탱크를 설치하였으며, metal bellows pump구동에 의한 펄스를 없애기 위해 완충탱크를 2개 설치하였다. 또한 계통내 수소 재고량에 해당되는 팽창탱크를 설치하여 안전성을 높였다.

### 2.5.4 액체질소 흡착탑

수소기체내에 존재하는 불순물 기체를 초저온 증류탑으로 유입되기 전에 제거하기 위해 액체질소 흡착탑을 설치하였다. 액체질소 흡착탑은 외부는 진공자켓으로 되어 있으며, 내부에 액체질소조와 열교환기 및 흡착탑이 있으며, 흡착재로는 molecular sieve 5A를 사용하였다.

## 3. 결 론

월성 TRF 공정실증용 파일럿 플랜트의 수소 동위원소 농축을 위해 초저온증류공정을 적용하였다. 본 초저온증류설비는 국산소수성 촉매를 적용한 액상촉매교환공정의 복합공정 실증을 위한 보조설비로 운전경험을 통해 월성 TRF의 설계지원, 운전절차보완 및 운전원 교육 및 시뮬레이션개발 등에 활용할 계획이다.

## [참 고 문 헌]

- [1] 송규민 등, "월성 TRF 공정실증용 파일럿 플랜트", 원자력공학회, Oct. 24-25, 2000
- [2] G. Vasaru, "Tritium Isotope Separation", CRC Press, Boca Raton, 97, 1993
- [3] O. K. Kveton et al, *Fusion Techn.*, 28, 636 (1986)
- [4] V. D. Trenin et al, *Fusion Techn.*, 28, 761 (1995)
- [5] T. Yamanishi et al, *J. Nuclear Sci. Techn.*, 21(1), 61 (1984)
- [6] T. Yamanishi, et al, *Fusion Techn.*, 14, 495 (1988)
- [7] 송규민 등, "초저온 증류공정에서 sidestream equilibrators가 수소동위원소 분리에 미치는 영향", 원자력공학회, Oct. 24-25, p343-348, 1997