

삼중수소취급계통의 설계(II):
주입계통, 재생계통

**Design of Tritium Handling System(II):
Injection System, Regeneration System**

김광신, 김경숙, 정은수, 손순환, 김위수
한국전력공사 전력연구원

요 약

지난 논문¹⁾에 이어서 삼중수소 취급시설의 일부인 삼중수소 주입계통과 재생계통을 소개하였다. 두 계통은 모두 삼중수소의 유출이 가능한 계통들로서 GB 안에 설치되어야 하는 계통들이다. 삼중수소 주입계통은 삼중수소 취급시설을 사용하여 목적하는 제품을 생산하게 되는 주 계통으로서 삼중수소의 관리를 위하여 정확히 삼중수소의 주입/분배량을 계량할 수 있어야하고, 주입 후 계통 내 잔여 삼중수소를 최대한 회수할 수 있도록 하여 방사성 물질의 환경방출을 최소화 할 뿐만 아니라 귀한 자원의 손실을 최소화하도록 설계되었다. MS, Ni catalyst bed, metal getter 등 재생이 필요한 TRS 내부의 장치들은 별도의 재생계통을 사용하여 재생한다. 다른 장치들의 재생은 장치를 가열하면서 적절한 purge gas를 흘려주는 비교적 간단한 방법으로 재생이 가능하나 삼중수소를 흡착한 metal getter의 재생은 삼중수소를 회수해야 하기 때문에 복잡한 공정을 거쳐야 한다.

Abstract

In succession to the previous paper¹⁾, the tritium injection system and the regeneration system of the tritium handling system are presented. Both systems should be placed inside glove boxes since there can be potential leakage of tritium from these systems. The tritium injection system should be capable of measuring the exact amount of the injected tritium to keep track of the tritium inventory. The tritium injection system is designed to recover the remaining tritium from the system after injection for the minimization of tritium release to the environment as well as for the recovery of precious resource. TRS equipment such as MS, Ni catalyst bed, and metal getter are regenerated with a standalone regeneration system. Unlike other equipments which can be regenerated by heating and purging with appropriate gas, regeneration of the metal getter used to recover tritium is somewhat complicated.

1. 서 론

삼중수소는 수소동위원소로서 수소 및 중수소와 양성자의 수는 같으나 중성자의 수가 다르므로

화학적 특성은 수소와 유사하나 물리적인 특성이 다르게 나타나며, 삼중수소만이 방사성붕괴를 하는 방사성 동위원소로 알려져 있다. 삼중수소는 매우 낮은 에너지의 베타선을 방출하여 적은 양을 취급할 경우에는 인체에 별다른 영향을 주지 않아 일반 산업용으로 많이 이용되는 방사성 동위원소이나 수천 혹은 수만 큐리 정도의 많은 양을 사용할 경우에는 밀폐된 공간에서 사용해야 하며, 사용 후 대기로 방출하기 전에 반드시 회수해야 하고, 항상 대기로 방출되는 양을 감시해야 하는 등의 특별한 관리가 요구되는 방사성물질이다.

현재 국내에서는 수 mCi, 혹은 1 Ci 미만의 매우 적은 양의 삼중수소가 생물, 생화학, 농학 및 의약품 합성연구에 사용되고 있고 이보다 많은 삼중수소를 포함하는 민수용 및 군수용 야광제품 등은 전량 수입하여 사용하고 있으므로 국내의 삼중수소 취급 기술은 거의 개발되지 않은 상태이다. 그렇지만 월성원자력 발전소의 삼중수소 제거설비(Wolsong Tritium Removal Facility, WTRF)가 2005년도 후반에 완공되어 가동이 시작되면 국내에서 삼중수소의 생산이 가능해지고 우리나라가 ITER에 참여하여 삼중수소 관련부문의 80%를 공급하게 됨에 따라 삼중수소 취급 기술의 국내 확보는 필수적인 것으로 보이며 기타 삼중수소를 활용하는 국내연구도 활성화 되리라 기대된다.

한전 전력연구원 (KEPRI)은 2002년 하반기부터 산업자원부 전력기반기금으로 삼중수소를 활용하는 과제를 시작한 이후, 상업화된 군수용과 민수용 자발광유리관 제품을 각각 한 가지씩 선정하여 상업화를 위한 기술개발을 목표로 하여 연구하고 있다. 목표로 하고 있는 이들 제품을 생산하기 위해서는 고농도 (순도 90% 이상)의 삼중수소를 유리관에 봉입, 취급하게 되므로 이를 위해서는 잘 설계된 글로브박스 (glove box, GB)를 포함한 삼중수소 취급시설이 필요하게 된다. 삼중수소 취급시설은 삼중수소 누설방지, 누설된 삼중수소의 산소와의 혼합방지, 누설된 삼중수소의 최대한 회수, 그리고 누출되는 삼중수소량의 감시의 4가지를 기본 목표로 하여 설계 되었다. 지난 번 논문¹⁾에서는 삼중수소 취급 시설 중 2차 격납 시설인 glove box(GB), 삼중수소회수장치 (Tritium Removal System, TRS), 및 배기 계통을 소개하였다. 이 계통 들은 방사선 방호를 위한 계통들로서 삼중수소를 사용하는 제품을 만드는 주계통의 보조 계통 들이다. 본 연구에서는 삼중수소를 사용하는 제품을 만드는 주계통의 하나로서 상기 삼중수소활용과제에서 필요로 하는 유리관에 삼중수소를 주입하는 삼중수소 주입계통을 소개하고 삼중수소 회수 장치 등에 사용되는 metal getter와 molecular sieve 등의 재생을 위한 재생 계통을 소개하고자 한다.

2. 본 론

삼중수소 주입계통은 삼중수소의 양을 정확히 측정하여 용기에 주입하기 위한 계통으로서 본 연구과제에서처럼 유리관에 삼중수소를 주입하거나 대량의 삼중수소를 보관하고 있는 용기로부터 작은 용량의 삼중수소 용기로 삼중수소를 분배하는데 사용될 수 있다.

재생 계통은 보조 계통들에 사용되는 장치들 중 재생이 필요한 장치, 즉 삼중수소를 제거하는 metal getter 들과 수분을 제거하는 molecular sieve(TRS에 있는 것), Ni catalyst bed 들이 삼중수소 및 수분을 흡수하여 기능을 하지 못하게 되면 재생이 필요하므로 이들을 재생을 하기 위한 계통이다. 이는 재생을 하는 과정에서 삼중수소가 발생할 수 있으므로 발생한 삼중수소의 방출을 막고 회수하는 것이 필요하기 때문이다. glove box 내의 수분 및 산소를 제거하기 위한 molecular sieve 및 Cu/CuO bed는 재생계통에서 재생하지 않고 in-situ로 재생하여 발생하는 수분은 TRS에서 처리하도록 한다.

삼중수소 주입계통과 재생계통에서는 삼중수소가 누출될 수 있으므로 이 계통들은 GB안에 설치되어야 한다.

2.1. 삼중수소 주입계통(Process Loop, PL)

삼중수소의 주입량은 제품의 성능을 위해서 뿐만 아니라 삼중수소의 관리를 위해서도 반드시 정확히 측정되고 기록되어야 한다. GB가 실험실내 기압에 대하여 약간 음압으로 유지하여 삼중수소의 누출 가능성을 줄이는 것과는 달리 삼중수소 주입계통의 압력은 주입하고자하는 양에 따라 GB 내부 압력보다 높은 압력으로 유지 될 수도 있으며 하기한 바와 같이 주입과정에서 계통내의 압력은 변하게 된다.

삼중수소 주입계통의 개념도를 그림 1에 나타내었다. 계통을 구성하는 주요 부품은 T gas vessel, circulation pump, vacuum pump, U-bed, metering tank, tritium monitor(TM), gas chromatograph(GC), metal getter 및 온도, 압력 sensor들로 구성된다. T gas vessel은 계통에서 사용할 삼중수소를 초기에 주입하는 용기를 말하는 것으로 과제에 사용할 목적으로 구입한 삼중수소를 담고 있는 용기를 말한다. 삼중수소의 주입과정에서 삼중수소를 반복적으로 저장용기에서 꺼내거나 넣어야 하는데 삼중수소를 구입할 때 오는 용기는 이와 같은 작업에는 적당하지 않다. 그러므로 구입한 삼중수소는 일단 용기를 가열하여 전부 빼내어 다른 적합한 용기에 저장하고 그 용기로부터 삼중수소를 꺼내어 사용해야한다. 이러한 목적으로 사용되는 용기가 U-bed이다. U-bed는 삼중수소의 저장물질로 우라늄을 사용하는 용기이다. 우라늄은 상온에서의 평형수소압력이 낮을 뿐만 아니라 삼중수소의 주입, 추출이 상대적으로 용이한 편이라 일시적인 삼중수소의 저장물질로 적합하다. U-bed는 두개를 병렬로 연결하여 사용하게 되는데 하나는 초기에 주입되는 삼중수소를 저장하게 되며 다른 하나는 주입과정에서 발생하는 잔여 삼중수소를 회수하는데 사용된다. 주입하는 U-bed 내의 삼중수소가 고갈되고 회수하는 U-bed 내에 삼중수소가 증가하게 되면 회수 U-bed를 공급용으로 사용하고 공급용 U-bed를 회수용으로 교대하여 사용하게 된다. U-bed에는 계통 내에서 가장 삼중수소를 많이 포함하고 있는 장치로서 누설 시 삼중수소의 누출이 많아지므로 외부에 용기를 하나 더 설치하여 이중으로 하고 용기사이에는 진공펌프로 수시로 배기하여 누출된 삼중수소를 제거한다. 삼중수소의 주입량은 사전에 정확하게 부피가 측정된 metering tank를 사용하여 주입 전 후의 tank의 압력과 온도를 정확히 측정하여 계산한다. metering tank는 대략 분배 주입되는 삼중수소의 총량과 같은 부피로 한다. 주입 전 metering tank의 압력은 분배 주입하고자 하는 압력의 약 2~3배 정도가 되도록 하여 주입 전후의 압력 변화가 너무 작거나 크지 않도록 한다. 삼중수소의 주입은 압력차에 의해 이루어지나 계통내의 잔여 삼중수소를 회수하기 위해서는 circulation pump가 필요하다. 계통 내 잔여 삼중수소가 U-bed에 회수되면 계통을 개방하기 전에 진공펌프로 잔여기체를 뽑아내고 진공펌프에서 나오는 기체는 metal getter를 거쳐 TRS로 보내어 회수되지 않은 삼중수소를 다시 회수하여 방출이 허용되는 수준까지 삼중수소의 농도를 낮춘 후 배기계통을 통하여 대기 중으로 방출한다. 삼중수소의 농도는 TM을 사용하여 측정한다. GC는 주입기체 중의 삼중수소의 농도를 측정하기 위한 것인데 이는 삼중수소 구입 시 1회만 측정하고 매 주입 시마다 측정하지는 않는다. 마지막으로 manifold는 삼중수소가 분배 주입되는 용기를 연결하는 부분으로서 본 연구과제에서는 형광체로 코팅된 한쪽 끝이 막힌 자발광유리관들을 연결하게 된다. manifold는 연결부위에서의 삼중수소 누출이 일어나지 않도록 설계되어야 한다.

구입한 삼중수소를 U-bed에 초기 장입하는 과정은 다음과 같다. 이해를 돕기 위하여 그림 1의 U-bed 중 위의 것(500℃로 표시된 것)을 U-bed[1], 아래의 것(cold로 표시된 것)을 U-bed[2]로 이름 붙여 설명하겠다.

- (1) T gas vessel을 계통에 연결하기 전 계통이 GB 대기로부터 폐쇄되도록 외부와 연결되는 밸브를 잠그고 계통을 진공 배기한다. 진공 배기하기 전 계통은 GB 대기(본 과제의 경우 Ar)가 차 있게 된다.
- (2) U-bed는 둘 다 삼중수소가 제거되고 활성화된 상태로 연결되어 있어야 한다.
- (3) T gas vessel을 계통에 연결하고 삼중수소를 추출할 수 있도록 가열한다.

- (4) T gas vessel과 삼중수소를 초기 저장할 U-bed[1] 사이의 밸브 들을 열고 다른 밸브들은 닫는다.
- (5) U-bed[1]에 삼중수소의 저장이 완료되면 U-bed[1] 및 T gas vessel 연결 밸브를 닫고 T gas vessel을 계통에서 분리한다.

삼중수소 주입계통의 운전절차는 다음과 같다.

- (1) 유리관들을 manifold에 연결한다.
- (2) 계통을 진공펌프로 배기한다.
- (3) 진공이 유지되는지(GB 대기가 새어 들어오지 않는지) 확인한 후 진공펌프를 계통에서 차단한다.
- (4) 삼중수소를 공급하는 U-bed[1]의 밸브를 열고 다시 진공배기 한다. 이 과정에서는 U-bed[1] 내에 발생한 He-3 등의 잔여기체를 제거한다. 이 때 U-bed[1]의 온도는 아직 상온으로서 삼중수소가 U-bed[1]에서 나오지 않고 있다.
- (5) 유리관에 주입할 삼중수소의 양을 계산한다.
- (6) U-bed[1]과 metering tank 사이의 밸브만 열고 나머지 밸브들은 닫아 삼중수소가 U-bed[1] 으로부터 metering tank로 주입될 수 있도록 한다.
- (7) U-bed[1]을 500℃로 가열하여 삼중수소를 유리관 주입압력(그림1의 경우 0.9 atm)의 약 3배 정도(그림1의 경우 3 atm)가 될 때까지 metering tank에 주입하고 나서 밸브를 닫고 U-bed[1]의 가열을 중지한다. 이때 metering tank의 온도 및 압력을 정확히 기록한다.
- (8) U-bed[1]에 저장된 삼중수소를 처음으로 주입하는 경우에는 소량의 sample을 GC로 보내 구입한 T gas vessel 내의 삼중수소의 농도를 측정한다. 삼중수소는 방사성 동위원소로서 자연 붕괴가 일어나므로 구입한 삼중수소의 정확한 농도는 GC 등의 분석 장치로 측정해야한다.
- (9) metering tank와 manifold간의 밸브를 열어 삼중수소를 유리관에 사전에 계산한 만큼 주입한 후 밸브를 닫고 metering tank의 온도와 압력을 다시 정확히 기록한다.
- (10) metering tank와 U-bed[2]사이의 밸브를 열어 metering tank 내의 삼중수소를 회수한다. U-bed[2]는 상온으로 유지되는데 상온에서의 우라늄의 삼중수소 평형압력은 상당히 낮으므로 metering tank내에 삼중수소가 남아있지 않은 것으로 계산한다. 압력의 변화가 없으면 밸브를 닫는다.
- (11) manifold에 연결되어 있는 유리관들을 밀봉/절단하여 계통으로부터 분리한다.
- (12) manifold와 metering tank사이의 밸브를 열어 잔여 유리관과 manifold내의 삼중수소가 metering tank까지 확산되도록 한 후 metering tank의 온도 및 압력을 정확히 기록한다. 위의 세 번의 온도 및 압력의 기록과 metering tank의 부피로부터 유리관에 주입된 삼중수소의 양을 정확히 계산할 수 있다.
- (13) metering tank와 U-bed[2] 사이의 밸브를 열어 manifold와 metering tank안의 삼중수소를 회수한다. 이 경우 삼중수소는 확산에 의하여 U-bed로 들어가게 된다.
- (14) 계통내의 압력이 더 이상 떨어지지 않으면 circulation pump를 가동하여 삼중수소가 U-bed 내로 들어가는 것을 촉진한다. circulation pump의 가동을 위해 필요하다면 Ar을 계통 내에 주입한 후 pump를 가동한다. (그림 1의 경우 500 Torr가 될 때까지 주입)
- (15) 계통 내 기체를 순환시키면서 TM으로 삼중수소의 농도를 감시하여 삼중수소의 농도가 허용치 이하로 떨어지게 되면 pump를 중지하고 U-bed[2]를 계통에서 고립시킨다.
- (16) 계통 내 잔여 기체를 진공펌프를 사용하여 배기한다. 배기되는 기체는 metal getter(ST198, ZrFe 합금)를 통과시키면서 잔존하는 삼중수소를 제거한 후 TRS로 보내어 삼중수소를 대기 방출 허용한도까지 낮춘 후 방출한다.

- (17) 진공배기가 끝난 계통에 Ar을 주입하여 GB 내 압력과 같도록 조정한 후 manifold에 부착되어 있는 잔여 유리관을 분리한다.
- (18) 새 유리관을 manifold에 부착하고 앞의 과정을 반복한다. 이러한 반복과정에서 U-bed[1]내의 삼중수소를 다 사용하게 되면 잔여 삼중수소가 회수된 U-bed[2]를 삼중수소공급에 사용하고 U-bed[1]은 삼중수소 회수에 사용한다. 이 경우 U-bed[2]는 500℃로 유지되고 U-bed[1]은 상온으로 유지된다.

2.2. 재생계통

재생 계통에서 재생되는 장치들은 TRS의 ST198 metal getter, Ni Catalyst bed, Molecular sieve(MS) 등이다. 재생계통의 개념도를 그림2에 표시하였다.

MS는 350℃로 가열한 후 건조한 Ar(이슬점 -100℃)을 통과시켜 수분을 제거한다. 제거된 수분은 collector에 수집되고 collector에서 나오는 잔여 수분은 Drier(MS)를 통과시켜 제거한다. 방출되는 기체 중의 삼중수소는 TM으로 감시한다. 여기서 사용되는 Drier의 재생도 같은 장치를 사용하여 한다.

Ni catalyst bed는 500℃로 가열한 후 Ar과 수소의 혼합기체를 통과시켜 재생한다. 수소는 일부 산화되어 있는 Ni를 환원시키는 역할을 한다.

ST198 metal getter에 회수된 삼중수소는 재생하는 과정에서 추출하여 회수해야 하는데 ZrFe(ST198) metal getter를 U-bed에 직접 연결하는 것은 바람직하지 않으므로 일단 MS에 흡수시킨 후 다시 U-bed로 보내게 된다. 이 재생과정은 약간 복잡하여 다음과 같은 순서로 하게 된다.

- (1) 재생하려는 ST198 metal getter를 550℃ 가열하여 삼중수소를 추출한다.
- (2) circulation pump를 사용하여 추출된 삼중수소를 77K로 유지되는 MS로 회수한다. 이때 U-bed는 계통에서 격리시킨다.
- (3) 24시간 정도 가열하여 삼중수소가 다 추출되면 metal getter를 계통에서 격리시킨다.
- (4) U-bed를 계통에 연결한 후 MS를 120K로 가열하여 삼중수소를 U-bed로 옮긴다. circulation pump의 원활한 동작을 위하여 계통에 He 가스를 주입한다.
- (5) TM으로 삼중수소의 농도를 감시하여 충분히 삼중수소가 U-bed로 저장되었다고 판단되면 U-bed를 계통에서 격리시킨다.
- (6) MS를 350℃로 가열하여 MS에 흡착되어 있는 삼중수소화 된 화합물들을 탈착시켜 Ni catalyst bed 쪽으로 내보낸다. 탈착된 삼중수소화 유기물 들은 Ni catalyst bed를 통과하면서 분해 된다. Ni catalyst bed를 통과한 기체는 이전의 MS나 Ni catalyst 재생계통과 마찬가지로 경로를 통하여 방출한다.

3. 결 론

지난 논문에서 소개하지 않은 삼중수소 취급시설의 일부인 삼중수소 주입계통과 재생계통을 소개하였다. 두 계통은 모두 삼중수소의 유출이 가능한 계통들로서 GB 안에 설치되어야 하는 계통들이다. 이 계통 들은 Dr. Shmayda, rc-Tritec 등의 해외 전문가/전문기관의 자문과 WTRF 과제를 통해 습득한 기술을 바탕으로 설계되었다.

삼중수소 주입계통은 삼중수소 취급시설을 사용하여 목적하는 제품을 생산하게 되는 주 계통으로서 삼중수소의 관리를 위하여 정확히 삼중수소의 주입/분배량을 계량할 수 있어야하고 주입 후 계통 내 잔여 삼중수소를 최대한 회수할 수 있도록 설계하여 방사성 물질의 환경방출을 최소화 할 뿐만 아니라 귀한 자원의 손실을 최소화해야 한다. 구입한 삼중수소의 용기는 저장/운반용으로 주입공정에 사용하기에는 적합하지 않으므로 임시 저장용인 U-bed를 사용한다. U-bed는 내부

용기와 외부용기 사이를 진공으로 유지하는 이중용기이므로 가열시 쉽게 온도가 떨어지지 않으므로 고온으로 사용되는 공급용 용기와 상온의 회수용 용기 두개를 병렬로 연결하여 사용한다.

삼중수소 취급계통 중의 재생이 필요한 장치들은 in-situ로 재생하고 재생 시 발생하는 기체는 TRS로 처리하는데 이와 같은 방법으로는 TRS 내부의 장치들은 재생할 수 없으므로 별도의 재생계통이 필요하게 된다. 재생계통에서 재생되는 장치들로는 MS, Ni catalyst bed, metal getter 등이 있다. 다른 장치들의 재생은 장치를 가열하면서 적절한 purge gas를 흘려주는 비교적 간단한 방법으로 재생이 가능하나 삼중수소를 흡착한 metal getter의 재생은 삼중수소를 회수해야 하기 때문에 복잡한 공정을 거쳐야 한다.

이로써 QA 계통을 제외한 주요 삼중수소 취급계통들이 다 소개되었다. QA 계통은 QA 절차와 함께 소개하는 것이 적합할 것으로 생각되어 제외되었다.

ACKNOWLEDGEMENT

본 과제는 산업자원부 기반기금 과제로 수행되었다. 삼중수소 주입계통과 재생계통의 설계에 많은 도움을 주신 Dr. Shmayda에게 감사드린다.

참 고 문 헌

1. 김광신 외, "삼중수소취급계통의 설계", 2003년도 한국방사성폐기물학회 춘계학술발표회 P194 (2003)
2. 손순환, 송규민 외, "삼중수소 제거기술 개발 (I) 제 1단계", TR96NJ18.J1998.45, KEPRI (1998).
3. 김위수, 손순환 외, "삼중수소 제거기술 개발 (I) 제 2단계 (최종보고서)", 96NJ18, KHNP (2002).
4. Caffarella, Thomas E., Radda, George J. and Dooly, Harry H, Jr., "Miniature Radioactive Light Source and Method of its Manufacture", US Patent, 4,213,052 (1980).
5. 정홍석, 안도희 외, "삼중수소 자발광체 제조기술, KAERI/AR-411/94 (1994).
6. Lasser, R., "Tritium and Helium-3 in Metals", Springer-Verlag, New York (1989).
7. McNair, Rhett C, "Self-luminous Light Source", US Patent, 4,990,804 (1991).
8. Kim, W. S., Jung, Y. G., Kim, K., Lee, S. K. and Song, K. M., KEPRI Report, TM.00NP34. T2001.175 (2001).
9. Sinclair. K. Warren, "Tritium in the Environment", NCRP Report, 62 (1979).
10. W.T. Shmayda, A.G. Hejes and N.P. Kherani, "Comparison of uranium and zirconium cobalt for tritium storage", Journal of the Less-Common Metals, 162, 117-127 (1990).
11. W.T. Shmayda and N.P. Kherani, "Uranium for hydrogen isotope removal from inert gas streams, Fusion Engineering and Design 10, 359-363 (1989).
12. C.L. Folkers and M.F. Singleton, "Collection of deuterium on a uranium getter during dynamic flow conditions, UCRL Report 76734, Lawrence Livermore National Laboratory (1975).
13. A.G. Hejes and W.T. Shmayda, "Design of a second generation secondary enclosure clean-up system, Fusion Technology, 28, 1509-1514 (1995).
14. N.P. Kherani, W.T. Shmayda, and R. A. Jalbert, "Tritium removal from inert gases using Zr₂Fe", 12th, SOFE, IEEE87CH2507-2, 1239-1242 (1987).

15. N.P. Kherani and W.T. Shmayda, "Zr₂Fe tritium scavenger beds", Ontario HydroResearch Division Report, # 89-199-k (1989).
16. A. Nobile, W.C. Mosley, J.S. Holder and K.N. Brooks, "Deuterium absorption and material phase characteristics of Zr₂Fe", J. Alloys and Compounds, 206, 83-93 (1994).
17. W.T. Shmayda, N.P. Kherani, B. Wallace, and F. Mazza, "Inert gas secondary enclosure clean-up system", Fusion Technology, 21, 616-621 (1992).
18. E-mail communications with Dr. Shmayda
19. Drawings and e-mail communications with rc-Tritec technical staff

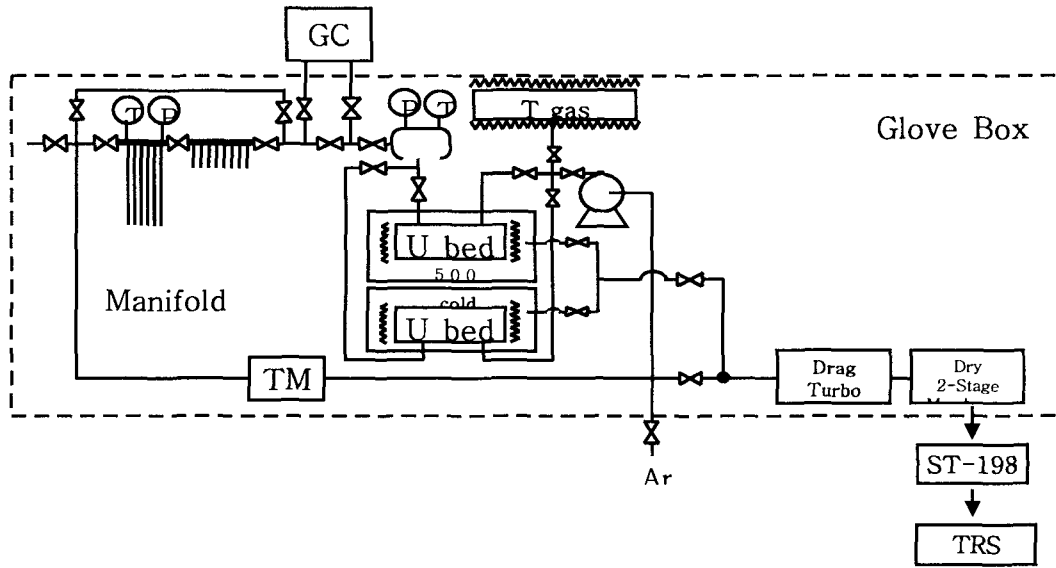


그림 1 삼중수소 주입계통

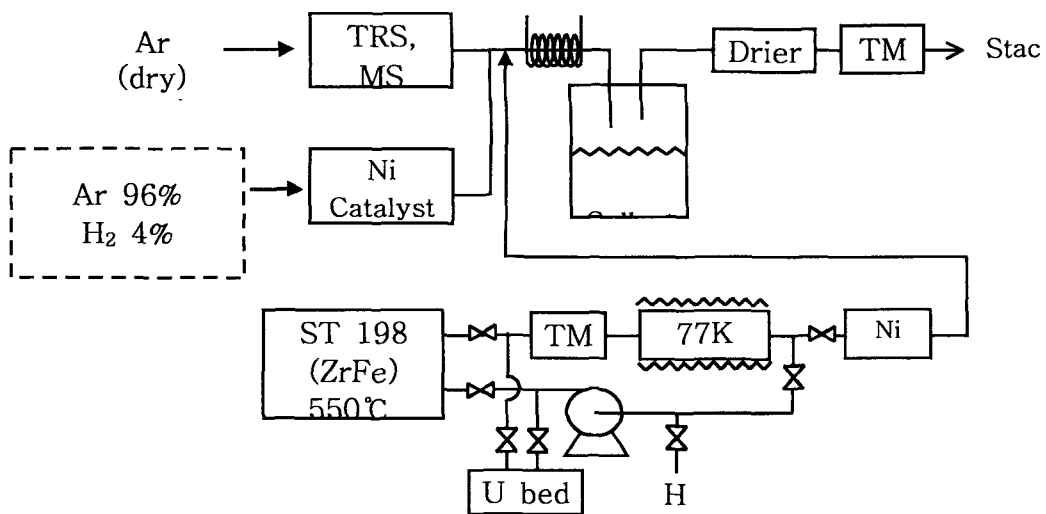


그림 2. 재생 계통