

액체 중금속(Pb-Bi alloy, Pb) 냉각재의 이용

정지영·김병호

한국원자력연구소 칼리머기술개발팀 선임연구원

서론

지구상에 있는 많은 국가들의 에너지 수급에 있어서 원자력 발전이 차지하는 비중이 매우 큼에도 불구하고, 오늘날 대부분의 국가들에 있어서 원자력 발전에 대한 투자 및 개발에 대한 전망은 그다지 밝지 못한 것 같다. 여기에는 선진 국가들에 있어서의 전력 수지가 어느 정도 수급 안정화를 이루는 등의 몇 가지 이유들이 있겠지만 가장 큰 이유 중 하나가 복잡한 원자력 시설의 안전성 때문이다.

원자력 발전 시설에 있어서의 안전성 문제는 곧 시설의 부지 확보 단계에 있어서 주민들의 저항을 불러일으키고, 방호 시설의 확충에 따른 경제성 저하를 가져와 이에 대한 연구 개발을 둔화시킨다.

액체중금속로는 원자력 발전 시설의 취약점인 사용후 핵연료 처분과 우라늄 자원의 유한성을 극복할 수

있는 기술적 대안으로 제시되어 개발되었으며, 열 물리적 특성이 우수한 액체 소듐을 그 냉각재로 채택한 일명 꿈의 원자로였다.

하지만 액체 소듐이 갖고 있는 공기·물과의 높은 화학적 활성으로 인한 화재 및 폭발 등의 위험적인 요소에 대한 뚜렷한 해결책을 오늘날까지 제시하지 못함으로 인한 안전성 시비와 방호 시설의 증대에 따른 경제성 저하가 문제되어 이 사업을 추진한 많은 국가들에 있어서 이의 개발 및 수급이 철회되거나 제한적으로 이루어지게 되었다.

그러나 화석 연료의 사용에 따른 지구 환경 파괴 및 이들 연료의 고갈과 국제적 사용 제한 법안 등에 대해 우리 나라와 같이 부존 자원이 적어 뚜렷한 대안이 없는 국가들의 경우 원자력 발전에 대한 의존성은 당분간 지속될 수밖에 없다.

따라서 현재 개발중인 액체중금속로 역시 고유의 안전성 및 경제적 타당성을 확보해 대내외적으로 경

쟁력을 갖추기 위해서는 소듐을 대체할 수 있는 보다 안전한 냉각재 개발에 대한 연구를 병행하는 것이 필요하다 하겠다.

많은 대체 냉각재 후보 물질들 가운데 액체 중금속 물질들이 열 물리 및 핵적 특성이 가장 우수하며, 그들 가운데서도 K·Li·Pb·Bi·Sn 등이 대체 가능한 냉각재로 알려졌다.

하지만 K·Li 등은 소듐과 마찬가지로 화학적 활성이 높아 이를 사용할 경우 안전성 문제가 여전히 남게 되고, Sn은 물과 약간의 반응성이 있고 결정적으로 구조재의 주성분인 Fe·Cr·Ni 등과의 산화 반응에 대한 자유 에너지 값이 비슷한 것으로 나타나[1] 현재까지의 조사 결과로는 Pb-Bi 합금 또는 Pb가 액체중금속로의 대체 냉각재로서 그 타당성을 갖는다.

Pb-Bi 합금 등과 같은 비활성 액체 중금속은 화학적 활성이 낮아 대기 중의 산소 또는 물 등과 반응하여도

화재 및 폭발의 위험성이 없어 원자력 안전성을 보장해 주는 매우 바람직한 냉각재로 알려져 있다.[2-5]

비록 옛 소련을 제외한 여타 국가들에 있어서는 이 합금을 실제로 이용한 경험이 없어 연구 및 적용 가능성 판단에 어느 정도 어려움은 있지만, 최근 러시아에서 유출되는 자료들을 검토해 볼 때 충분히 연구적 가치가 있는 것으로 판단된다.

기술 개발 현황 및 활용 방안

1. 납-비스무트계 냉각재 기술 개발 현황

소듐을 냉각재로 사용하는 액체 금속속에 있어서 그 개발 및 이용에 최대 걸림돌이 되고 있는 안전성 및 경제성 문제를 해결할 수 있는 대안으로서, 납-비스무트나 납을 냉각재로 사용하는 신개념의 원자로 개발이 제안되고 있다.

이들 냉각재들은 낮은 화학적 활성으로 인하여 공기·물·중기와의 상호 작용에 의한 폭발 및 화재 가능성이 없고, 비등점이 높으며, 루프 내에서의 냉각재 작동 압력이 낮아 시설의 안전성을 높이고, 장치 설계 및 건조를 단순화시킬 수 있으며, 핵연료 작업 환경을 크게 단순화시키는 등의 장점으로 인해 유망한 열 전달 유체로 고려되고 또한 일부 사용되어왔다.[2-5]

이들 냉각재에 대한 연구는 러시

아를 중심으로 미국·일본·한국·인도 및 몇몇 유럽 국가들에 의해 수행되고 있으나, 러시아를 제외하고는 원자로에 대한 이의 활용 경험이 없이 아직은 설계 연구 및 개념 설계 연구 단계이다.

따라서 본 기술을 현재 개발중인 액체금속속에 적용하여 활용하기 위해서는 보다 정확하고 다양한 정보 수집 등을 통한 충분한 사전 검토 및 타당성 평가 작업을 거쳐야 할 것으로 사료된다.

가. 러시아

1950년대 초 Alexander Ilyich Leipunskii에 의해 납-비스무트 공용 합금을 원자로 냉각재로 사용하는 방안이 처음으로 제안된 이래 1952년 이후 고기동성 핵잠수함용 원자로 설계에 착수, 1960년대 초 첫 잠수함을 진수시켰으나 냉각재에 의한 구조재 부식에 따른 slag 형성이 주요 원인이 되어 1968년 그 운영을 일시 중지하였다.

그 후 러시아에서는 납-비스무트 냉각재의 온도 관리 기술 및 구조재의 내식성 향상 기술 개발 등을 통해 부식 문제를 해결하고 8기의 잠수함과 2기의 full-scale 원형 원자로(27/VT, KM-1)을 성공적으로 건조하여 운영함으로써, 오늘날까지 총 80 reactor-year의 운전 경험을 갖게 되었다.

러시아의 납-비스무트 냉각재에 대한 연구 및 이용 역사는 40년 이

상으로 냉각재 온도 관리 및 부식 문제를 해결한 이후 지금까지 이를 원자로에 이용함에 있어 별다른 기술적인 문제는 발생되지 않은 것으로 알려져 있다.

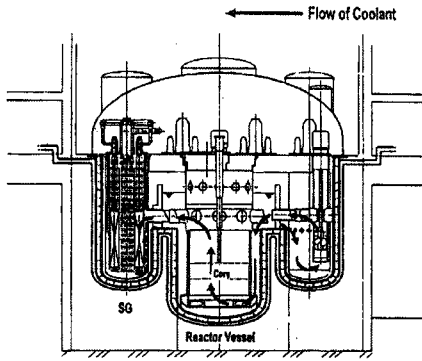
현재 수행되고 있는 주요 연구 내용으로는 75MW(e)급의 액체금속로 SVBR-75를 상세 설계하는 중에 있으며, 지역 난방이나 제염 등과 같은 특수 목적에 사용할 수 있는 이동성 소형 장주기 운전의 소형로 설계 작업, 그리고 순수 납만을 냉각재로 사용하는 300 및 1200MW(e)급의 중대형 원자로 BREST-300과 -1200 개발을 위한 국제적인 협력 추진 등이 IPPE와 RDB 'Gidropress' 주도로 이루어지고 있다.

이 외에도 약 15개의 관련 실험 시설을 보유하여 이를 운영중이며, 미국과 공동으로 납-비스무트를 냉각재와 핵파쇄 표적으로 사용하는 가속기 구동형 핵변환로 개발을 수행하고 있다.

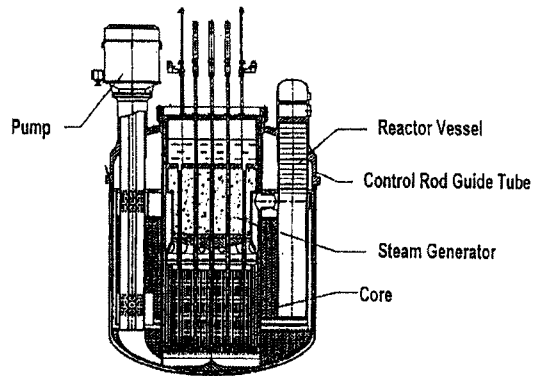
납-비스무트를 원자로 냉각재로 이용하는 분야에 있어서만큼은 러시아가 가장 선진 기술을 보유하고 있으며, 개발 및 이용에 선도적인 역할을 하고 있다.

나. 미국

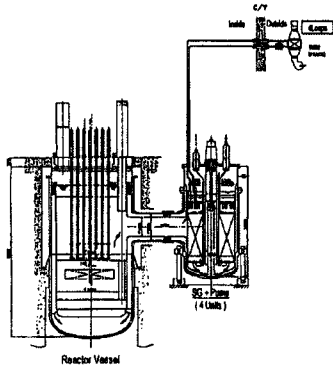
제 2차 세계 대전 후 미국 원자력 위원회에서는 원자력을 평화적으로 이용하기 위한 원자로 개발 연구의 일환으로 납·비스무트 및 이들 공



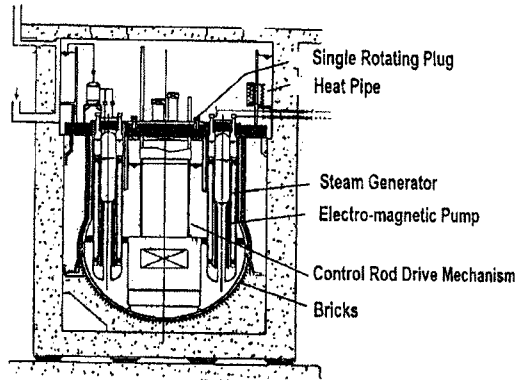
Tank Type Large Reactor with Seismic Pond



Tank Type Module Reactor (SVBR)



Loop Type Large Reactor (Side Entry Method)



Tank Type Module Reactor

〈그림〉 액체 중금속 냉각 원자로 설계 개념

용 합금의 좋은 핵적 특성을 들어 이를 냉각재로 활용할 것을 제안하여 이에 대한 연구를 착수하였다.

BNL(Brookhaven National Laboratory)이 주도한 연구 결과는 결국 이들 냉각재의 구조재에 대한 부식성 문제를 근본적으로 해결하지 못하여 이에 대한 연구를 포기한 것으로 알려져 있다. 비슷한 시기에 캐나다 역시 동일한 문제로 관련 연구를 포기하였다.

하지만 옛 소련의 붕괴와 함께 납-비스무트 공용 합금이 원자로 냉각재로 사용된 사실이 알려지면 서부터 이에 대한 연구를 재개하여,

현재 Los Alamos National Laboratory에서는 납-비스무트를 냉각재와 핵파쇄 표적으로 사용하는 고속기 구동형 핵변환로의 설계를, 국가적으로는 NERI(Nuclear Energy Research Initiative) program을 통해 납이나 납-비스무트를 냉각재로 사용하고 원자로 수명 기간 중 핵연료 재장전이나 재배치가 필요 없는 장주기(약 15년) 운전의 소형 모듈로 원자로 개념인 ENHS(Encapsulated Nuclear Heat Source)의 개념 설계 연구를 수행하는 중에 있다.[6]

다. 일본

현재 일본은 고속로 실용화를 위한 장기 전략을 수립하기 위하여 1999년부터 「상용 고속로 주기 계통의 타당성 연구」를 일본 핵연료 주기회사(JNC)를 위시하여 전력중앙연구소(CRIEPI)·일본 원자력연구소(JAERI) 등이 협력하여 공동으로 수행하고 있다.

여기에서는 기존의 경수로와 비교해서 경제성 및 안전성 등에 있어 경쟁력있는 원자로의 형태, 관련 핵연료 및 핵연료 주기, 냉각재 선정 등과 같은 고속로 개발에 필요한 모든 분야에 대한 타당성 평가를 전반

〈표 1〉 주요 액체 금속의 물리적 성질

Properties (at atmospheric pressure)	Pb	Pb-Bi (44.5wt%Pb)	Na
Atomic weight	207.21	208(cal.)	22.997
Melting point (°C)	327.4	125	97.8
Boiling point (°C)	1737	1677	883
Density at 500°C (g/cm ³)	10.39	10.05	8.33
Thermal conductivity at 300°C (cal/sec.cm.°C)	0.039	0.026	0.181
Viscosity at 500°C (cP)	1.90	1.29	0.25
Heat capacity at 500°C (cal/g.°C)	0.037	0.035	0.303
Saturated vapor pressure (bar)	5.1×10^{-6}	8.7×10^{-6}	0.009

적으로 수행하고 있는데, 납과 납-비스무트를 냉각재로 사용하는 원자로 연구개발 관련 타당성 조사 역시 이곳에서 체계적으로 수행되고 있다.[7]

일차적인 연구 검토 결과 일본에서는 액체 중금속을 냉각재로 사용하는 원자로의 경우 납을 냉각재로 이용한 중·대형 원자로보다는, 납-비스무트를 냉각재로 사용하는 medium and small-scale modular reactor가 경제성 및 안전성 등을 포함한 여러 가지 기술적인 측면에서 볼 때 연구 개발에 타당성 있는 것으로 판단하고, 이의 개념 설계를 추진하기 위한 세부 사항 검토 작업에 들어가 있다.

일본은 향후 보다 심도있는 타당성 검토를 위해 액체 중금속 냉각재 활용에 있어서 가장 문제가 되고 있는 재료의 부식 및 방사성 물질인 Polonium 생성 문제를 직접 확인하고 이를 해결하기 위한 기초 실험을 수행할 예정이며, 관련 기술을 보유하고 있는 러시아·미국 등과의 국제적인 연구 협력 방안도 추진할 예정이다.

라. 한국

우리 나라의 경우 서울대학교 황일순 교수팀이 이들 냉각재의 물리·화학적 특성 및 구조재 부식 현상 연구를 통해 가장 먼저 이 분야에 대한 연구를 시작하였으며, 뒤이어 KAERI에서 수행중인 핵변환로 과

제에서 납-비스무트를 원자로 냉각재 및 중성자원 표적으로 사용할 것을 결정하고 관련 연구를 수행중이다.[8]

하지만 이들 기관들에 있어서의 연구 수행 기간은 대체적으로 짧고 연구 방향 역시 일부에 국한되어 있는 실정이며, 현재 냉각재 특성에 관련된 기본 물성 실험을 수행하고 관련 기초 자료를 수집하고 있는 상태이다.

마. 기타

프랑스·이탈리아 등을 포함한 몇몇 유럽 국가들과 인도 및 일부 중동 국가 등에서 액체금속로와 핵변환로의 냉각재 또는 중성자원 표적으로서 이들 냉각재에 대한 연구를 수행중이거나 관련 연구 내용에 관심을 표명하고 있는 상태이다.

2. 활용 방안

가. 활용 분야

세계적으로 납-비스무트계 액체 중금속을 활용하고자 계획 및 연구하고 있는 분야를 종합해보면 다음

과 같다.

- 액체금속로의 대체 냉각재(1차 or 2차 or S/G의 소듐과 물배관 사이의 중간 매체)

- 가속기 구동 핵변환로의 냉각재 및 중성자원 표적

- 소형 특수 목적로(지역 난방·제염 등)의 냉각재

- 납-비스무트 냉각재를 이용한 자연 순환로(미국, ANL)

- 차세대 연료 처리 공정인 전식재처리 방식에서의 추출 용매

- 수송용 NPI(Nuclear Power Installations)의 냉각재 등

나. 발전 용량별 이용 방안

비스무트의 전체 매장 및 생산량과 원자로의 제반 경제성 및 안전성 등을 고려해 볼 때 일반적으로 금속이나 질화물 연료를 사용하는 300MW(e) 이하의 중·소형로에 대해서는 납-비스무트를 냉각재로 사용하는 것이 좋은 것으로 알려져 있다.[9]

납 냉각재의 경우 중·대형 발전 용량을 갖는 원자로의 후보 냉각재

로 고려되고 있으나 아직은 기술적으로 해결해야 될 부분들이 많은 것으로 평가되고 있다.

다. 상용화 시점에 따른 이용 방안

일반적으로 냉각재의 활용 경험 및 관련 기술의 개발 정도 등에 따라 향후 20년 이내에 상용화를 추진할 경우엔 납-비스무트를 냉각재로 사용하는 원자로 개발을, 30년 이후를 계획할 경우엔 납을 냉각재로 사용하는 원자로를 개발하는 것이 바람직하다는 의견이 지배적이다.[10]

이는 납-비스무트를 핵잠수함 원자로 냉각재로 사용한 러시아의 그동안의 경험과 관련 기술의 확보 문제는 어느 정도 인정하나, 이를 대형 납 원자로에 적용하여 활용하기에는 기술적으로나 경제적으로 아직 해결되어야 하는 부분들이 많은 데 의견을 같이 하기 때문인 것 같다.

하지만 러시아의 경우 2020년까지 납 냉각재를 이용한 300 및 1200MW(e)급의 BREST-원자로 건설을 목표로 국제 협력을 통한 이의 개발을 추진하고 있다.

라. 냉각재 확보 가능성에 따른 이용 방안

비스무트의 매장 및 생산량이 제한적이어서 중·소형 원자로 냉각재로는 납-비스무트 합금이, 그리고 대형 원자로 냉각재로는 납이 후보 물질로 대두된다.

〈표 2〉 핵연료 피복관 재료의 화학적 조성

Steel	Element's content, mass%												
	C	Si	Mn	S	P	W	Cr	Ni	Mo	V	Nb	B	Ce
E1852	0.10 - 0.15	1.4 - 2.1	up to 0.6	up to 0.02	up to 0.03		12.0 - 14.0	up to 0.30	1.2 - 2.0				
	0.14 - 0.18	1.0 - 1.3	0.5 - 0.6	up to 0.01	up to 0.015	0.5 - 0.8	10.0 - 12.0	0.5 - 0.8	0.6 - 0.9	0.2 - 0.4	0.2 - 0.4	up to 0.006	up to 0.1

원자로 냉각재로서의 특성

1. 주요 물리적 성질(2,4,11,12) 〈표 1〉

2. 부식성 및 방사성 위해성

납-비스무트계 액체 중금속을 냉각재로 사용함에 있어서 가장 문제가 되는 것은 이들 금속이 원자로 구조재를 부식시키며 방사성 위해 물질인 폴로늄-210을 생성시키는 것이다.

가. 구조재의 부식

납-비스무트계 금속은 원자로 냉각재로서 많은 장점을 가지고 있는 반면에 구조재로 사용되는 강과 합금 등에 대한 부식력이 강한 단점을 지니고 있다.

예를 들어 재래적으로 사용되어 온 강(ferritic-martensitic and austenitic)은 Na와 K에 대해 700℃ 이상의 온도까지 내식성을 가지나, 납이나 납-비스무트 합금에 대해서는 Cr-Ni강은 ≒400℃, Cr강은 ≒450℃의 온도 이하에서만 사용이 가능하다.[13]

납-비스무트 냉각재를 사용하는 구조재에 있어서의 부식은 주로 구조재 강 성분 중 이 합금에 용해되기 쉬운 원소들(Fe·Cr·Ni 등)이 강과 냉각재의 계면에서 냉각재 중에 녹아 들어가거나, 강의 표면에 형성된 산화물 보호막($Me_3O_4 \cdot Me_2O_3$)이 기계적인 응력이나 방사선 조사 영향 등으로 인해 깨짐에 따라 이 부분이 냉각재에 침식되어 일어난다.

구조재 강의 일부 성분이 녹아 들어간 부위는 기계적 강도가 약화됨과 동시에 고온으로 순환되는 냉각재에 의해 침식되며, 냉각재 중에 형성된 금속 산화물들은 특정한 조건하에서 열 전달 표면에 퇴적됨으로 인해 slag blockage를 형성하고, 펌프 및 밸브의 작동을 방해하며, 루프의 수력학적 저항성을 증가시킬 수 있어 결국 냉각재 계통을 운전할 수 없는 심각한 문제를 야기한다. 따라서 구조재의 부식을 억제하기 위한(내식성 향상) 기술 개발이 최우선되어야 한다.

납-비스무트계에 사용되는 구조

재의 부식을 억제시키고 강에 내식성을 주는 방법으로는 다음과 같은 것들이 있다.

- 적합한 강의 선정 및 개발
 - 강 위에 산화물 보호막을 형성
 - 냉각재 중 산소 농도(O₂) 제어
- 이들 가운데 어느 한 가지 방법만을 적용하기보다는 상호 보완적으로 같이 사용할 때 구조재의 내식-내침식성은 보다 효과적으로 보장되어질 수 있다.

A 적합한 강의 선정 및 개발

납-비스무트 합금 중 강의 내식성은 강을 구성하고 있는 일부 성분의 양을 조절하거나, 강에 새로운 성분을 첨가시켜 줌으로써 향상될 수 있다. 이 방법을 통해 열 저항성 역시 증가시킬 수 있다.

가장 큰 영향을 미치는 것은 강에 Si나 Al을 첨가시켜 합금화 하였을 때 얻어지는 것으로 밝혀짐에 따라 이들 원소가 함유된 재료의 연구가 권장되는데, 그 중 Si가 함유된 재료의 연구에 대한 비중이 크다.[2,14]

납-비스무트를 냉각재로 사용하는 원자로에 있어서 모든 구조재 중 내식성 항목에서 가장 엄격한 요구 조건을 갖는 것이 바로 핵연료 피복판이다.

러시아에서 수행된 연구 결과를 보면, 기존의 ferrite-martensitic 강에 1.5~2%의 Si를 첨가한 강이 600~650℃의 온도 범위에서 납-

비스무트 합금에 대해 내식성 · 고온 강도 · 방사선 저항, 실용성 및 핵연료와의 공존성 등에 최적의 성질을 보인 것으로 알려져 있다.

러시아의 납-비스무트를 냉각재로 이용한 기존의 NPPs에 있어서는 핵연료 피복판의 재료로 EI852강이 가장 널리 사용되었으며, 현재 상세 설계중인 소형 납-비스무트 냉각 원자로(SVBR-75)의 핵연료 피복판 후보 재료로 EP823강이 선정되었는데 이들 강의 조성은 <표 2>와 같다.

B. 강 위에 산화물 보호막을 형성

이 방법은 납 · 비스무트에 비해 상대적으로 높은 산소 친화력을 가진 강의 조성물(Fe · Cr · Si 등)이 용해되면서 산화 반응을 일으켜 금속 산화물 보호막(Me₃O₄ · Me₂O₃)을 강 표면 위에 형성, 이 막이 강의 표면과 부식성을 지닌 냉각재와의 직접적인 접촉을 막아 강에 내식성을 제공토록 하는 것이다.



다른 방법으로는 부식 억제제인 Zr · Ti 등을 50~300ppm 정도 첨가해 줌으로써, 이들이 질소 및 탄소와 반응하여 강의 표면에 질화/탄화물 막을 형성하여 내식성을 갖도록 하는 것이 있다.

이들 방법을 사용함에 있어 주의해야 될 점은 만일 냉각재 중 산소

농도가 충분하지 않으면 국부적으로 균일하지 않은 막을 형성하게 됨으로써 막이 형성되지 않은 부분에서 재료의 부식이 일어날 수 있으며, 반대로 과량의 산소가 존재하게 되면 냉각재 중에 산화물을 형성시킴으로 인해 또 다른 문제를 일으키게 된다는 것이다.

또한 기계적 응력이나 방사선 조사 영향으로 인해 이들 보호막이 깨져 공식(孔蝕)을 일으킬 수도 있다.

C. 냉각재 중의 산소 농도(O₂) 제어

보호막의 성질이 저하됨으로 인하여 구조재 강에 부식이 일어나는 현상을 예방하기 위해서는 냉각재 중의 산소 농도를 다음 식(2)에 의해 얻어진 값 이상으로 유지시켜(일반적으로 루프 운전시에는 '하한 값 × 10² 이상으로) 주어야 된다 [15].

$$\log C = -0.33 - \frac{2790}{T} + \log C_s + \log f C_{pb} \quad (2)$$

C = 냉각재 중에 용해된 산소의 농도 (mass%)

T = 루프 내에서 냉각재의 최대 온도 (°K)

C_s = 온도 T에서 냉각재에 용해된 산소의 포화 농도 (mass%)

f = 냉각재 중 납의 열역학적 활동도 계수 (inverse mass%)

C_{pb} = 냉각재 중의 납 농도

(mass%)

C_s 값과 f 값은 각각 Gromov[12]와 R. Prasad 등[16]에 의해 주어 진 다음의 수식들을 이용하여 구할 수 있다.

$$\log C_s = 1.2 - \frac{3400}{T}, \text{ (mass \%)} \quad (3)$$

$$\ln f_{pb} = -\left(0.2693 + \frac{391.5}{T}\right) (1 - X_{pb})^2 \quad (4)$$

이 방법은 약 627°C까지의 루프 운전 온도에 적용 가능한 것으로, 냉각재 중에 용해된 산소의 농도는 산소 자체를 루프 안으로 주입하거나 gas류 또는 수증기와 혼합하여 주입시킴으로서 유지될 수 있다. 이때 기체 혼합물은 냉각재 내부로 주입하거나 기체 상태로 냉각재 표면에 공급된다.

위의 식(2)로부터 얻어진 값보다 더 낮지 않은 수준으로 산소 농도를 유지시키면 구조재 강 표면의 내식막이 용해되거나 파손되는 것을 방지할 수 있다.

나. 냉각재 순도 관리 기법

납-비스무트계 냉각재 순도 관리 기법으로는 수소 혼합물을 이용한 금속 환원법과 여과법이 있다.

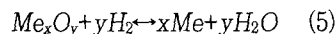
A 수소 혼합물을 이용한 금속 환원법

이는 수소+수증기+불활성 기체

〈표 3〉 Po핵종의 activity(15MW, 1GeV 1년 운전 후 shutdown시)

Nuclide	Half-life, days	α -particle yield per disintegration, %	Activity, Ci
Po-210	1.384 E+02	100.00	2.310 E+04
Po-209	3.726 E+04	99.74	3.610 E+01
Po-208	1.058 E+03	100.00	2.570 E+03
Po-207	2.429 E-01	0.02	1.724 E+04
Po-206	8.800 E+00	5.45	1.902 E+04
Po-205	7.500 E-02	0.04	1.420 E+04
Po-204	1.471 E-01	0.66	1.376 E+04
Po-203	2.549 E-02	0.11	7.700 E+03
Po-202	3.104 E-02	2.00	5.465 E+03
Po-201	1.062 E-02	1.60	2.853 E+03
Po-200	7.986 E-03	15.00	8.510 E+02

로 구성된 기체 혼합물을 냉각재 흐름속으로 주입하여 강 표면에 퇴적되어 있는 냉각재 성분의 혼합 산화물(PbO+Bi₂O₃+ α ...)을 환원시켜 냉각재 기본 성분(Pb·Bi)를 냉각재 속으로 되돌려 주는, 일종의 냉각재 재생 기법이다.



이 기법을 사용할 경우 기체 혼합물은 반드시 유동성 냉각재와 함께 공급되어야 하며, 비록 수증기가 보완적 역할을 할지라도 수소에 의한 보호막의 환원 가능성에 유의해야 된다.

B. 여과 기법

여과 기법은 흡착성 유리 섬유, 특수 섬유 또는 알루미늄 산화물을 기초로 한 grain material을 여과기 재료로 사용하여 냉각재 중의 부

유 산화물과 수소 환원 후 냉각재에 남아있는 잔류물을 제거하는 방법이다.

만일 여과기가 불순물로 어느 정도까지 차게 되면 수소 환원 기법과 동일한 기체 혼합물을 이용하여 여과기 내부를 재생시킨 후 계속 사용할 수 있다.

다. 폴로늄 생성 문제(17-20)

납-비스무트계 금속을 냉각재로 사용함에 있어서 문제가 되는 것 중의 또 하나가 냉각재 중의 비스무트가 중성자에 조사되어 반감기가 약 138.4일인 알파 방출 방사성 동위원소인 polonium-210을 발생시키는 것이다.

이는 정상 가동중에는 별다른 문제가 되질 않으나 일차 냉각 계통이 건전성을 상실하게 되면 공기와 접하게 됨으로써 방사선을 가진 에어로졸과 폴로늄 수화물을 생성시켜

안전성을 저하시킨다. 납 냉각재의 경우엔 폴로늄에 의한 위해성이 납-비스무트 합금의 1/1000정도로 크게 감소된다.

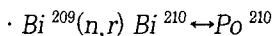
A. 폴로늄의 일반적 성질

폴로늄은 원자번호 84의 원소로 천연적으로는 질량수 218(반감기 3분, α붕괴 99.98%), 질량수 214(반감기 1.6×10^{-4} 초, α붕괴)의 우라늄계 핵종 외에 215(1.8×10^{-3} 초, α), 211(0.52초, α)의 악티늄계 핵종, 216(0.16초, α), 212(3×10^{-7} 초, α)의 토륨계 핵종이 존재하며, 이 밖에 20종의 인공 방사성 핵종이 존재하는 것으로 알려져 있다.

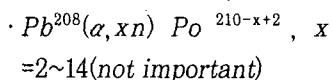
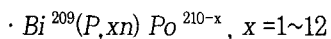
α형 (저온형 · 低溫型)은 단순 입방 격자, 격자 상수 $a=3.345 \text{ \AA}$ 이다. 금속 폴로늄은 회백색(灰白色), 용점 254°C, 비등점 962°C, 밀도 9.32 g/cm^3 (α형, β형은 9.51)으로 화학적으로는 텔루르 및 비스무트와 비슷하다. 이온화 경향은 은보다 작으며 ^{210}Po 은 단순한 α선원으로 자주 사용된다.

B. 납-비스무트 냉각재에 있어서 Po의 생성원 및 Po 핵종의 activity

① 생성원



(main mechanism)



② Po 핵종의 activity (15MW,

1GeV 1년 운전 후 shutdown 시) <표 3>

C. 폴로늄의 위해성 및 규제 기준

폴로늄은 원자로 사고 및 정비, 핵연료 교환 등을 위해 루프를 해체할 경우 방사선을 띤 냉각재로부터 누출되어 gas-에어로졸과 표면 방사능을 형성하여 작업자에게 해를 미칠 수 있다.

이에 따라 미국과 러시아에서는 작업장 중의 폴로늄 허용 가능한 농도 한계(LPC)를 다음과 같이 설정하여 규제하고 있다.

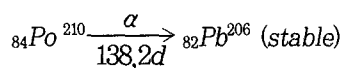
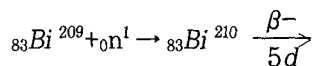
· 러시아(NRB-76/87) ; $0.93 \times 10^{-13} \text{ Ci/l}$

· 미국(Federal Register of 5/21/91 Vol.56 #98) ; $3 \times 10^{-13} \text{ Ci/l}$

** Staff working 1700hrs/yr. 기준

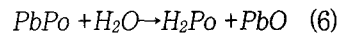
D. 납-비스무트 냉각재 중 폴로늄 문제

비스무트가 중성자에 노출되면 냉각재는 α, β 및 γ-선의 선원이 된다. 반감기가 138일인 polonium-210은 다음과 같은 반응에 따라 생성된다.



Po는 납-비스무트 냉각재 내에

PbPo의 형태로 존재하며 Po 보다 훨씬 느리게 증발한다. 이 방사선이 위험한 주된 원인은 뜨거운 납-비스무트 냉각재가 공기와 접촉될 때 방사성 에어로졸과 휘발성 폴로늄 수화물을 생성시키기 때문이다.



이는 일차 계통의 기밀 손실 및 냉각재 누출시에 일어날 수 있다. 발전소급 냉각재에서 원자로 작업을 하는 동안 방사능은 20~50Ci/l에 달할 수 있다.

만일 불활성 기체 계통을 포함한 1차 액체 금속 순환 루프가 밀폐되어 있다면 폴로늄은 개별적 전체 선량에 어떤 영향을 미치지 않는다.

일차 루프 장치(원자로 · 펌프 · 열교환기 등)는 일반적으로 특별히 밀폐된 공간 내에 배치되며 그 안에서 기체 압력은 원자로 실보다 더 낮게 유지된다.

따라서 만일 이 공간 내에서 불시에 냉각재 누출이 발생한다 할지라도 뚜렷한 방사선 방호 문제를 야기하지는 않는다. 그러나 수리 및 핵연료 교환 등을 위해 원자로 액체금속 루프를 분해할 경우엔 방사선 위험을 받을 수 있다.

고온의 폴로늄과 그 화합물들은 공용물의 기본 화합물인 납과 비스무트에 비해 증기 휘발성이 상당히 높다. 그러므로 누출된 공용물에 담

겨있는 폴로늄은 증발되고 α-에어로졸을 형성한다. 특히 습한 대기 중에서 일부 폴로늄(3~5%)은 기체 형태의 수소화물(hydride)을 형성할 수 있다.

α-에어로졸 방사능의 위해성은 다음과 같은 많은 인자들에 의존된다:

공용물 온도, 냉각재 중 폴로늄 농도, 공용물을 흘린 면적(또는 불활성 기체 루프 계통으로부터 가스 누출), 방의 통풍 시설 등.

많은 양의 공용물을 누출시켰을 경우 이를 흘린 곳 주위의 α-에어로졸 방사능은 $10^{-1} \sim 10^{-11}$ Ci/l 로 증가되나, 공용물이 고체화된 후엔 $10^{-13} \sim 10^{-11}$ Ci/l 로 감소된다.

일, 이차 열 제거 루프가 있는 발전소에서 열 교환기 내 이들 루프 사이에서 누출이 발생할 수 있다. 작업자의 실수와 운전 계통의 오작동으로 인해 방사선을 띤 공용물이 steam-water 루프 속으로 침투될 수 있고 water α-activity가 10^{-8} Ci/l 에 달할 수 있다. 이러한 경우엔 2차 루프 내부 표면의 비방사화 및 세정 작업이 필요하다.

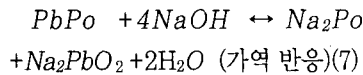
E Po 제거 방법

① 진공 승화법

이는 냉각재가 700℃까지 가열되었을 때 증발에 의해 polonium을 제거하는 방법으로 군사적인 목적에 사용된다.

② 알칼리성 물질에 의한 추출

알칼리 용융물과 냉각재를 접촉시켜 추출하는 방법으로 IPPE 경험에 의하면 접촉 2분 이내에 Po의 90%가 전송되며, 다른 핵파쇄 생성물도 함께 제거하는 부수적인 이득이 있다. 계에 있어서 산화제는 Po의 역 전송을 일으킨다.



③ 저장

산화제를 첨가하여 알칼리 용융물로부터 LBE나 Pb로 역 전송

F. 방호 방법

방사선을 띤 공용물을 운전하거나 오염된 장치를 취급함에 있어서는 특별한 개인 및 집단적인 방호 설비를 갖추어야 하는데, 개인 방호 장비로는 장갑·산소호흡기·압축된 isolating suits가 널리 사용되고, 집합적인 방호 수단으로는 국부 공기의 흡입, 특수 필터를 이용한 대기 중의 폴로늄 세정, 오염된 방과 장치 표면의 비방사화, 쉽게 제거되는 합성 흡수 coat를 오염된 표면에 적용, 대기보다 더 낮은 공기 압력의 유지와 함께 주위로부터 격리된 엄격한 통제 지역의 설정 방법 등이 있다

3. 냉각재로서의 장·단점

가. 장점

◦ 낮은 화학적 활성으로 인해 공

기·물·수증기와의 반응에 의한 화재 및 폭발의 가능성이 거의 없어 중간 열교환 계통 등의 배제로 인한 계통의 단순화가 가능하다.

◦ 용점이 낮고(Pb-Bi ; 125℃) 비등점이 높아(1670℃), 운전의 여유도가 높으며, 가장 심각한 사고 상황에서도 냉각재가 비등되고 기포가 발생할 가능성이 거의 없다.

◦ 냉각재 자체가 방사성 물질에 대한 좋은 차폐막이 된다.

◦ 열중성자 반응 단면적이 작고, 방사선에 의한 방사화 정도가 낮다.

◦ 자연 대류 특성이 좋다.

◦ 경한 중성자 스펙트럼으로 고중식비 달성이 가능하다.

◦ 음의 기화 반응도 및 작은 연소 반응도 값을 가져 안전성이 확보된다.

◦ 냉각재 압력이 낮아 원자로 용기 설계, 건조 및 운전에 대한 신뢰도가 향상된다.

◦ 납 냉각재의 경우 재료를 얻기가 쉽고 구매 비용 역시 소듐과 비슷하며, Po의 활성 역시 납-비스무트의 1/1000 수준으로 낮다.

나. 단점

◦ 구조재에 대한 부식성이 크다. 현재 러시아에서 내식성있는 신재료 및 기존 재료들의 내식성 향상 방법이 개발되었으나 절차가 다소 복잡하고, 대형 시설에 적용된 사례가 없다.

◦ 점도가 크고, 소듐에 비해 열

전달 특성이 좋지 못함으로 인해 양 수력이 커진다.

- 비스무트가 반감기 138.4일인 위해성 방사성 물질인 Po-210을 생성시킨다.

- 비스무트의 매장 및 생산량이 적고 비스무트의 생산 단가가 높아 (소듐의 10배) 납-비스무트를 중·대형 NPPs 냉각재로 다량 사용하기에는 어려움이 있다.

- 액체 중금속 냉각재의 경우 금속 연료를 사용하면 냉각재와 핵연료 피복관 사이의 온도 차가 소듐보다 훨씬 커져(약 5배) 열효율이 낮아진다.

- 냉각재 순도 관리 공정이 복잡하며, 납 냉각재의 경우 그 용점이 높아(327.4℃) 원자로 운전·보수 시계를 고온으로 유지시켜야 됨으로 인해 부대 비용이 증가되고 일부에서는 냉각재가 응결될 가능성도 있으며, 구조재와의 양립성에 따른 냉각재 활용 운전 온도 범위가 축소된다.

- 냉각재 밀도가 커서 기계적 구조의 건전성에 영향을 줄 수 있다.

- 액체 중금속을 냉각재로 사용할 경우 구조재의 부식 방지를 위해 유속이 제한된다.

- 관련 기술의 개발 및 활용 실적이 특정 국가에 한정되어 있으며, 중·대형 시설에 적용되어 사용된 사례가 없다. 특히 개발된 관련 기술 역시 납-비스무트 합금에만 적

용되어 활용되었을 뿐이다.

- 납 냉각재의 경우 납-비스무트 합금에 비해 불순물의 양과 정도가 심해 냉각재 순도 관리에 어려움이 따른다.

결론

산업 경제 발달로 인해 삶의 수준이 향상됨에 따라 이제 인류는 새로운 모험과 도전적인 일에 뛰어들기 보다는 안정되고 평안한 생활을 추구하는 습성을 지니게 되는데, 이러한 의식 구조가 세계 각국의 에너지 수급 문제에도 많은 영향을 미치고 있다.

많은 국가들에 있어서 자국의 안정적인 에너지 수급 및 대기 오염 방지를 위해 원자력 발전이 필요하다는 것에는 동감하며, 또한 현실적으로도 원자력 발전이 차지하고 있는 비율도 높다. 하지만 복잡한 원자력 발전 시설이 안고 있는 제반의 안전성 및 경제성을 이유로 이에 대한 투자 및 개발에는 제한을 두고 있는 것이 사실이다.

특히 몇몇 개발 도상국을 포함한 일부 특정 국가들을 제외하곤 중·소형의 특수 목적을 갖는 원자로나, 경제성 및 안전성 차원에서 진정으로 혁신적인 개념을 지닌 원자로 개발을 제외하고는 관심조차 끌지 못한다.

이러한 시대적 흐름에 따라 기존

의 액체금속로 냉각재인 소듐보다 화학적으로 더 안전하고 핵적 특성이 비슷한 납-비스무트계 액체 중금속을 냉각재로 사용하는 중·소형의 특수 목적으로 및 액체금속로 개발에 대한 관심이 새로이 싹트고 있다.

비록 납-비스무트계 냉각재의 연구 및 관련 기술의 원자로 이용 실적이 '옛 소련'이라는 특정 국가에 한정되어 있고 중규모 이상의 발전 시설에 적용된 사례가 없으며, 장·단점 역시 어느 정도 상존하고 있어 현실점에서 이의 개발에 대한 당위성을 엄밀하게 판단하기에는 많은 어려움이 있다.

하지만 기존의 소듐을 이용한 고속로에서 갖지 못하던 장점 부분을 적극 수용하고 이를 통한 최적 규모의 원자로를 추적해 나아간다면 지금보다는 경제성 및 안전성이 더 향상되고 비핵확산성 핵연료 주기를 실현할 수 있는 원자로가 탄생될 수 있을 것으로 기대된다.

〈참고 문헌〉

[1] 황일순 등, "비활성 액체금속에 대한 물리화학적 특성연구", MOST-251/98, p.24

[2] Yu.I.Orlov et al., "The problems of technology of the heavy liquid metal coolants (Lead-Bismuth, Lead)", Conference on Heavy Liquid Metal Coolants in Nuclear Techn

- ology, Vol.1, 1999 pp.87-100
- [3] Yu.I.Orlov, "Stages of development of Lead-Bismuth as a coolant for nuclear reactors in Russia", MIT ATW Technical Review, 1998
- [4] Stanley J. Stachura et al., "The lead-bismuth eutectic", IS-316, 1960
- [5] B.F.Gromov et al., "Use of lead-bismuth coolant in nuclear reactors and accelerator-driven systems", Nucl. Eng. and Des., Vol.173, 1997 pp.207-217
- [6] E. Greenspan et al., "The Encapsulated Nuclear Reactor Heat Source Reactor Concept", Proc. of ICONE-8, 8th International Conf. on Nucl. Eng., April 2-6, Baltimore, USA, 2000
- [7] "FBR cycle의 실용화전략 조사연구(진척상황 개요)", 일본장기계획정책회의 제3분과 회의 자료, JNC, 2000
- [8] Won S. Park et al., "HYPER System Design Study", KAERI/TR-1316, 1999
- [9] S. Zaki and H. Sekimoto, "Accident analysis of lead or lead-bismuth cooled small safe long-life fast reactor using metallic or nitride fuel", Nucl. Eng. and Design, vol. 162, 1996 pp.205-222
- [10] Won S. Yang, "ANL의 ATW 활동", 초청 세미나, 2000
- [11] Richard N. Lyon et al., "Liquid-metals handbook", Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, June 1952
- [12] Gromov et al., "Physical and chemical properties of Pb-Bi eutectic, used as coolant for liquid metal target", Proceedings of the 2. international conference on accelerator-driven transmutation technologies and applications, vol.2, Uppsala, 1997 pp.912-916
- [13] A.Ye. Rusannov et al., "The problems of structural materials corrosion in leadbismuth coolant", Conference on Heavy Liquid Metal Coolants in Nuclear Technology, Vol.1, 1999 pp.133-142
- [14] V.G.markov et al., "Structural materials for power plants with heavy liquid metals as coolants", Conference on Heavy Liquid Metal Coolants in Nuclear Technology, Vol.1, 1999 pp.120-132
- [15] Gromov et al., "Method of maintaining the corrosion resistance of a steel circulation system with a lead-containing coolant", EP0829556 A1, 1998
- [16] R. Prasad et al., "Thermodynamic study on lead-bismuth system", B.A.R.C-880, 1976
- [17] Pankratov D.V. et al., "Polonium problem in nuclear power plants with lead-bismuth as a coolant", Conference on Heavy Liquid Metal Coolants in Nuclear Technology, Vol.1, 1999 pp.101-109
- [18] Ermolaev N.P. et al., "Methods of removal and containment radioactive polonium from lead-bismuth coolant", Conference on Heavy Liquid Metal Coolants in Nuclear Technology, Vol.1, 1999 pp.194-200
- [19] B.F. Gromov et al., "The experience in Handling of Lead-Bismuth Coolant Contaminated by Polonium-210", Transactions of the American Nuclear Society, Vol.67 (supl.1), 1993 pp.256
- [20] Ning Li, "Polonium Removal Technology", Presentation materials for MIT ATW Technical Review, Jan. 15-16, 1998