

A Study on the Removal Method of Radioactive Corrosion Product using its Magnetic Property

방사성 부식생성물의 자기적 성질을 이용한 제거방법에 대한 연구

Min-Chul Song, Tae-Young Kong, and Kun-Jai Lee

Korea Advanced Institute of Science and Technology, 373-1, gus대ng-dong, Yuseong, Daejeon, Korea
mcsong@nuchen.kaist.ac.kr

송민철, 공태영, 이진재

한국과학기술원, 대전광역시 유성구 구성동 373-1

(Received December 1, 2003, Approved December 15, 2003)

Abstract

In a pressurized water reactor, radioactive corrosion products (CRUD) in primary coolant system are one of the major sources for the occupational radiation exposure of the personnel in a nuclear power plant. Through the recent trend of long term fuel cycle in a nuclear power plant, radioactive corrosion products deposited in reactor core for a long time are also the cause of Axial Offset Anomaly (AOA) having an effect on reactor power by the hideout of boron. CRUD consist primarily of magnetite, nickel ferrite, cobalt ferrite, and so on. They have the characteristic of strong magnetism. Therefore it is performed the conceptual design to develop the filter which removes the CRUD by magnetic field that is generated by an arrangement of permanent and electric magnets. Contrary to the conventional filter, the proposed filter does not interrupt the fluid flow, so there is little pressure drop and it can be used continuously. It is expected to be applied as one of the technologies for removal of the CRUD.

Key words : Radioactive Corrosion Product, Magnetic Separation, Magnetic Filter,
Permanent Magnets

요약

가압경수형 원자력발전소 일차계통에서 발생하는 방사성 부식생성물(크러드)은 원자력발전소 작업 종사자 피폭의 주요원인이다. 또한, 최근 원자력발전소의 장주기운전 추세에 따라 장기간 노심에 침적된 방사성 부식생성물은 hideout 현상으로 노심의 출력에 영향을 주는 축방향이상출력 (AOA) 현상의 원인이 되고 있다. 크러드의 주요 성분은 마그네타이트, 니켈 페라이트, 코발트 페라이트가 주

를 이루며, 이러한 산화물 형태는 강자성의 자기적 성질을 가지고 있다. 따라서, 전자석과 영구자석의 적절한 배치를 통하여 자기장을 발생시켜 크러드를 제거하는 필터 개발을 위해 개념 설계를 하였다. 기존의 필터와 달리 유체의 흐름을 방해하지 않아 압력저하 현상이 발생하지 않고, 연속적으로 사용할 수 있는 장점이 있다. 크러드 제거 기술의 하나로써 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

Key words : 방사성 부식생성물, 자기분리, 마그네틱 필터, 영구자석

I 서론

가압경수형 원자력발전소 일차계통 재질의 부식물이 노심에 침적되면, 중성자 속에 의해 방사성 핵종으로 바뀌게 된다. 대표적인 핵종이 60Co과 58Co 로써 60Co은 미량 발생되나 긴 반감기(5.27년) 및 높은 감마에너지를 가지고 있으며, 58Co 핵종은 증기발생기 전열관의 주요 재질인 니켈이 방사성 핵종으로 변화된 것으로 그 발생량이 다른 핵종에 비해 많아 주요 핵종으로 취급 되고 있다. 코발트 핵종 이외에도 철, 니켈, 크롬, 망간등의 핵종도 발생하는 주요 방사성 핵종이다. 이 핵종들은 발전소내에 종사하는 작업자들의 피폭에 주요 원인이 되고 있다고 알려져 있다.[1] 최근 작업자 피폭량의 규제치가 ICRP 60 권고안에 의해 대폭적으로 저감되어야 하는 상황에 놓여있어, 방사성 부식생성물의 저감 및 제어는 매우 중요하다. 그리고 국내 대부분의 가압경수로형의 발전소는 경제성을 높이기 위해 18개월의 장주기 운전이 적용중이다. 그러나 장주기 운전은 수질 관리 측면에서 불리한 면을 가지고 있는 관계로 화학조절(pH 조절)을 통한 방사성 부식생성물의 생성억제가 어려운 단점을 가지고 있다.[2] 따라서, 방사성 부식생성물의 발생 증가로 인하여 노심에서의 출력이 비뚤어지는 축방향 이상출력(AOA) 현상이 일부 보고 되고 있다. 이 현상은 표면비등(subcooled boiling)과 봉산 그리고 방사성 부식생성물의 침적이 복합적으로 이루어져 발생하는 것으로 이 중 제어가 가능한 것은 방사성 부식생성물 뿐인 관계로 최근 노심관련 연구에서도 매우 중요한 연구 중 하나로 부각되고 있다.[3]

방사성 부식생성물들은 이온 상태로 존재하거나, 화합물(주로 oxide) 형태의 입자(크러드)로 존재하게 된

다. 화합물은 페라이트 형태로 주로 존재하며 이들은 보통 강한 자기적 성질(ferrimagnetism)을 가지고 있다. 주로 마그네타이트, 니켈페라이트, 코발트페라이트의 형태이며, 주위 환경에 의해 일부 조성이 바뀌는 것으로 알려져 있다.[1] 이온 상태로 존재하는 것들은 대부분 이온교환수지에 의해 제거가 되며, 입자상으로 존재하는 것들은 여과기(일반적으로 마이크로 필터)에 의해 제거가 되고 있다. 그러나 여과기의 경우 필터 전후단간의 압력차이가 발생하여 유체의 흐름을 원활하게 할 수 없어 연속적인 사용의 어려움이 있다. 따라서 크러드의 강한 자기적 성질을 이용하여 전자석 및 영구자석의 자기장을 이용하는 방법을 제안하고자 한다. 전자석은 온도에 거의 영향을 받지 않고 영구자석에 비해 강한 자기장을 발생시킬 수 있으며, 영구자석은 최근 제조기술의 발달로 비교적 높은 자기장을 발생시키며 에너지 소비가 없고 소형화가 가능하다는 장점이 있다. 본 연구에서는 영구자석을 이용하여 제작한 마그네틱 필터의 실험 결과와 효율을 증진시키기 위한 방안으로 마그네틱 필터 전단에 전자석을 이용한 조립장치(size enlarger)의 설계에 대한 연구를 수행하였다.

II. 본론

1. 자기분리의 이론

자기장을 이용하여 불순물을 분리하는 기본적인 식은 아래와 같다. 제거하고자 하는 물질의 자화율과 매질(유체)의 자화율 차이를 이용하는 간단한 원리이다.[4]

$$F_m = -\nabla(\Delta U_p) = -\nabla \left\{ \frac{V_p(\mu_0 M_p \cdot H)}{2} - \frac{V_p(\mu_0 M_f \cdot H)}{2} \right\} \quad (\text{Eq. 1})$$

V_p 자화된 입자의 부피(m³)
 μ_0 투자율 (H/m)
 M_p 입자의 자화율
 M_f : 유체의 자화율
 H 자기 강도 (Tesla, A/m)
 F_m : 자기력 (N)

위 식은 일반적으로 철분이 자석에 붙는 현상을 수식적으로 표현한 것으로, 물질의 자화율뿐만 아니라 자기구배의 강도 또한 매우 중요하다는 것을 보여준다. 자기구배의 강도를 높이기 위해 자기장 내에 메트릭스(mesh type or ball type)를 두어 자기장을 형성하는 것이 전자기 필터에 많이 사용되는 고구배 자장(high gradient magnetic field)이다.

본 연구실에서 개발된 영구자석을 이용한 마그네틱 필터의 이론식은 다음과 같다.

Eq. 1에서 자기력이 한 방향(x방향)으로 작용하고, 유체의 자화율은 무시할 정도로 작은 값이므로 이를 정리하면 아래와 같은 식이 유도된다.

$$F_m = \frac{V\mu_0 M_p H}{2} \frac{dH}{dx} \quad (\text{Eq. 2})$$

그리고, 유체내에서 입자가 자기력에 의해 이동할 때, 유체의 저항력(drag force)이 그 반대되는 힘으로 작용을 하며, 그 식은 아래와 같다.[5]

$$F_D = \frac{\rho V^2 A_p C_D}{2}, \quad C_D = \frac{24}{Re} \quad (\text{Eq. 3})$$

F_D : 유체의 저항력(N) : 밀도 (kg/m³)
 V : 입자의 속도 (m/sec)
 A_p : 입자의 단면적 (m²)
 C_D : 저항 상수(drag coefficient)
 Re : 레이놀즈 수

따라서, 유체내의 입자의 움직임은 아래의 식으로 나타내어 진다. 자장의 변화율이 일정하다고 가정을 하면 입자의 이동은 자화율, 입자의 크기 등에 영향을 받는다.

$$m \frac{dV}{dt} = -F_D + F_m \Rightarrow$$

$$\frac{dV}{dt} + \frac{9\mu}{2a^2\rho_p} V = \frac{\mu_0\chi H}{2\rho_p} \frac{dH}{dx}$$

a : 입자의 반지름(m)

χ : 입자의 자화율(susceptibility)

2. 영구자석을 이용한 마그네틱 필터의 개발

영구자석은 외부 에너지를 이용하지 않고 반영구적으로 자기장을 형성하는 큰 장점을 가지고 있다. 현재까지 여러 가지 재료의 영구자석이 개발되었으며, 1980년대 중반 이후 희토류 원소인 네오뎴(Nd) 자석의 제조기술이 급속히 발달하여, 강한 자기장 형성뿐만 아니라 저렴한 가격으로 공급이 가능하게 되었다. 높은 퀴리(curie) 온도를 가지고 있어 다른 영구자석에 비해 비교적 고온에서도 자기장을 유지하는 장점이 있다. 철을 이용하여 자기회로를 구성하면 5KGauss 이상의 높은 자기장을 형성할 수 있다. 이러한 특징을 가진 희토류 영구자석을 이용한 필터는 전자기 필터에 비해 에너지 소모량이 적고 소형으로 제작할 수 있는 이점이 있을 것이다. 현재 연구중인 마그네틱 필터는 유체내에 포함된 크러드 입자를 영구자석을 이용하여 포집한 후 영구자석의 회전을 이용하여 유체의 흐름이 거의 없는 곳으로 이동시켜 제거하는 원리이다. 그림 1, 2는 영구자석을 이용한 마그네틱 필터의 단면도 및 유체가 이동하는 통로의 개략도를 나타낸 것이다.[6,7]

그림에서 보듯이 S-N극의 교차배열로 영구자석이 이루어져 있으며, 유로용기 내외측에 각각 자석 어셈블리가 위치하고 있다. 반대극끼리 마주보고 있으며, 이들은 구동 모터에 의해 같은 회전속도로 회전하게 된다. 유로용기 내부로 들어온 유체는 유로용기 바닥을 한 바퀴 돌면서 밖으로 유출이 되며, 유체내에 함유된 불순물은 유로용기에 형성된 자기장에 의해 그 움직임이 지배된다. 즉, 자석의 이동에 따라 움직이게 되며, 이는 자석이 회전하여 크러드의 출구(중간그림의 아래쪽 출구) 부근에 쌓이게 되는 효과를 가져올 것이다. 그림 3은 마그네틱 필터 시스템의 전체 개략도를 나타낸 것이다. 실험실 스케일에서는 고온 고압의 루프 구성이 현실적으로 매우 어려운 관계로, 풀 형태(pool type)로 상온에서 실험을 하였다. 제작된

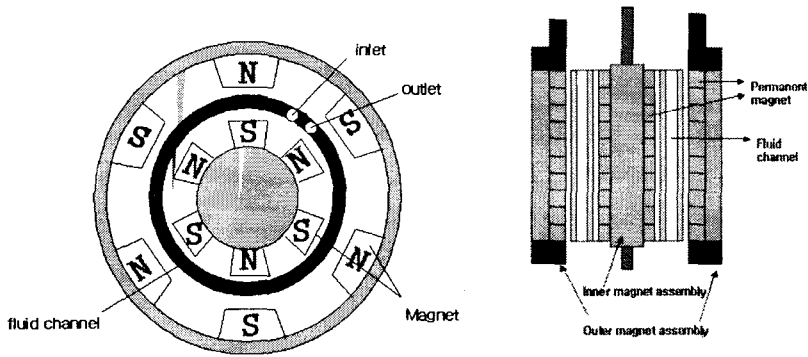


Fig.1 Sectional view of magnetic filter using permanent magnets

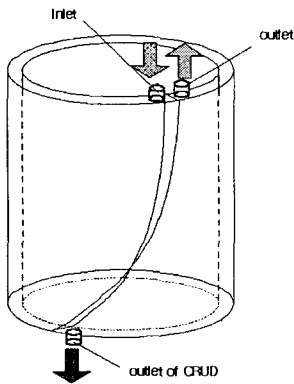


Fig.2 Fluid channel

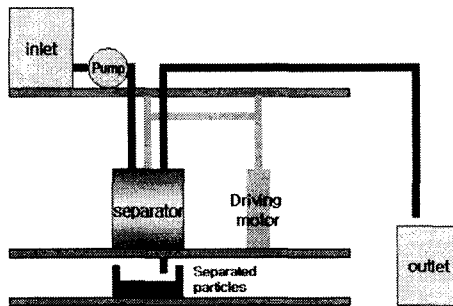


Fig.3 Schematic of magnetic filter system

마그네틱 필터를 이용하여 다양한 조건에서 실험을 실시하였으며, 사용된 시료로는 마그네타이트, 니켈 페라이트, 코발트 페라이트, 헤마타이트 파우더를 이용하였다. 유체의 속도, 자석 어셈블리의 회전속도, 입자의 크기에 제거효율이 영향을 많이 받는 것으로 결과가 나왔으며, 본 논문에서는 입자의 크기와 관련된 제거효율을 소개한다.

그림 4는 입자 크기에 따른 제거효율을 나타낸 그래프이다. 첫번째 그래프는 마그네타이트 (Fe₃O₄)의 경우를 나타낸 것이며, 두 번째 그래프는 여러 가지 입자를 이용하여 실험한 결과이다. 즉, 입자크기가 커질수록 제거효율이 상당히 높아짐을 알 수 있다. 전체

적으로 좋은 제거효율을 보여주고 있으며, 영구자석으로 인한 자기장이 온도의 영향을 일부 받기 때문에 실제조건(고온 고압)에서의 결과와는 일부 상이한 점이 나타날 수 있을 가능성은 있으나 제거효율의 경향은 대체로 유사할 것으로 예상된다. 다음절에서 설명할 전자석의 이용한 조립장치가 마그네틱 필터의 전단에 설치되어 입자 크기를 증대 시킬 수 있다면 입자의 제거효율은 더욱 높아질 것으로 판단된다.

현재 단계에서는 영구자석을 이용한 마그네틱 필터만 본 연구에서 설계 및 제작 되었으며, 전자석을 이용한 조립장치는 설계중인 상태에 있다.

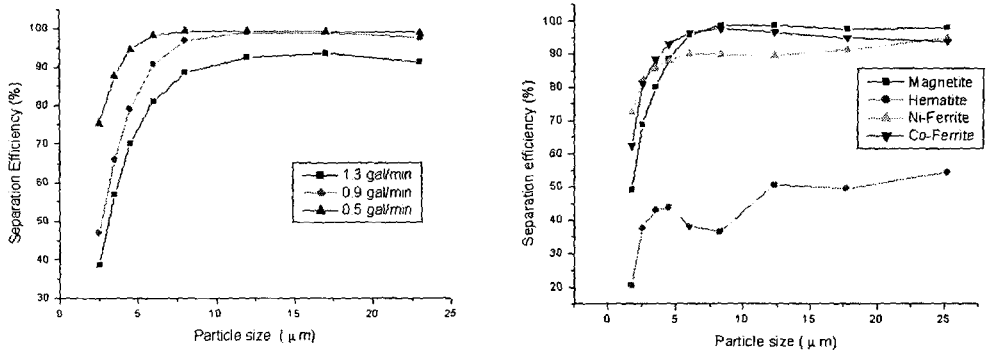


Fig.4 Separation Efficiency (0.9gal/min)

3. Size Enlarger의 설계

1980년대 중반까지 전자기 필터에 대한 연구가 전 세계적으로 많이 수행되었으나 에너지 소비가 많으며, 냉각장치의 부피가 크고 역세척(backflushing)시 몇몇 문제점이 발생되어 원자력 발전소에서 범용적으로 사용되지 못하고 있다. 전자석을 이용한 전자기 필터는 대용량의 유체를 처리할 수 있으며, 상대적으로 자성이 약한 물질의 제거에도 유용하다는 장점이 있다. 특히, 고전적인 open gradient magnetic separation (OGMS) 보다 효율이 뛰어난 high gradient magnetic separation(HGMS)이 1970년대에 미국에서 개발되어

연구가 활발히 진행되었으며, 최근에는 초전도체를 이용한 연구 또한 이루어지고 있다. 그림 5에는 HGMS와 OGMS를 이용한 전자기 필터의 개략도를 나타내었다. HGMS의 경우 입구와 출구가 각각 하나씩 있으며, 자기장을 형성하는 매트릭스에 포집된 입자가 포화상태에 이를 경우 운전을 정지시키고 역세척을 해주어야 하는 운전상의 복잡함이 있다.[8] 그러나, HGMS는 OGMS보다 강한 자기장을 형성하기 때문에 불순물의 제거 효율관점에서는 더 뛰어나다고 알려져 있다. OGMS는 유체내에서 강하게 자기장을 형성

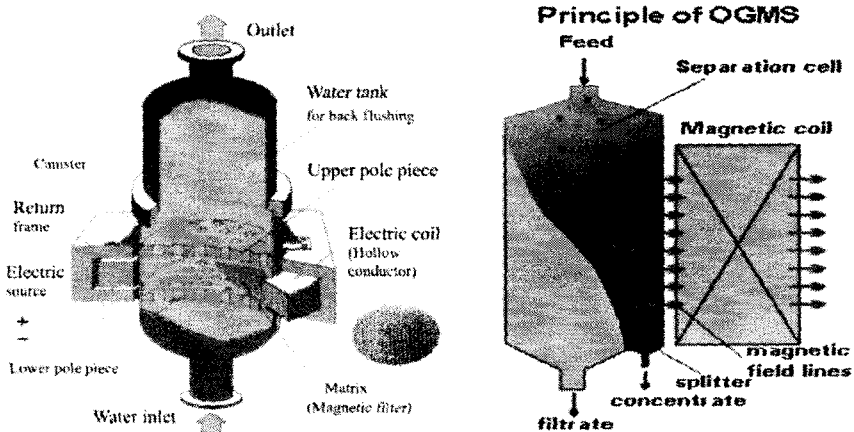


Fig.5 HGMS&OGMS

하는 매트릭스가 없기 때문에 자기장 세기에서는 HGMS에 비해 약하며, 한 개의 입구와 두 개 이상의 출구를 가지고 있어 연속적인 사용이 가능하다는 장점이 있으나, 2차 폐기물의 양이 많다는 단점을 가지고 있다.

본 연구에서는 강한 자기장을 형성시키는 HGMS의 장점과 연속적인 사용이 가능한 OGMS의 장점을 함께 가진 시스템을 개발 목표로 하고 있으며, 이를 위해 전자기 필터로서의 역할이 아니라 전자석을 이용하여 불순물의 입자 크기를 증가 시키는데 그 목적이 있다. 전자기 필터의 핵심 요소인 매트릭스는 강자성체(ferromagnetic)로 이루어져 있어 외부의 자장을 받으면 곧 자화되어 자기장내에 큰 자기장 구배를 형성함으로써 자성의 부유성 입자의 근접시 이를 자화시킨다. 이러한 전자기 필터의 특성은 매우 미세한 자성의 입자들이 자기장의 영향으로 인해 서로 응집되어 큰 덩어리로 이루게 하는 역할을 한다.[8] 크기가 증가된 입자들은 후단에 설치된 또 다른 필터에 의해 쉽게 제거할 수 있도록 설계에 주안점을 두고 있다. 그림 6에 그 개념도를 나타내었으며, 입자를 크게 하는 조립장치는 (또는 응집기) 전자기 필터의 원리와 유사하며, 자기장의 세기를 적절히 조절하여, 크기가 어느 정도 커지면 유체의 흐름에 의해 빠져나가게

하는 원리이다. 여기서 핵심이 되는 것은 크기가 증대된 입자들이 매트릭스에 계속 남아있지 않고 다시 배출되어야 하는 점으로써 자기장의 조절 및 매트릭스의 다양한 적용을 통해서 이루어져야 할 것으로 판단된다. 조립장치의 후단에는 다른 여러 가지 필터의 적용이 가능하다. 그림 7은 전자석을 이용한 조립장치의 설계 도면을 나타낸 것이다. 유체의 입구와 출구 사이에 코일로 형성된 전자석이 설치되어 있으며, 그 사이에 매트릭스 어셈블리가 설치되어 입자가 서로 뭉치게 하는 역할을 하게 된다.

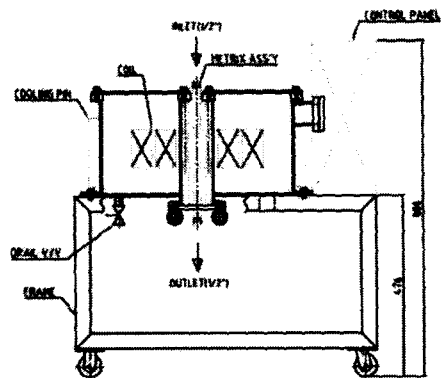


Fig.7 Design of size enlarger (HGMS)

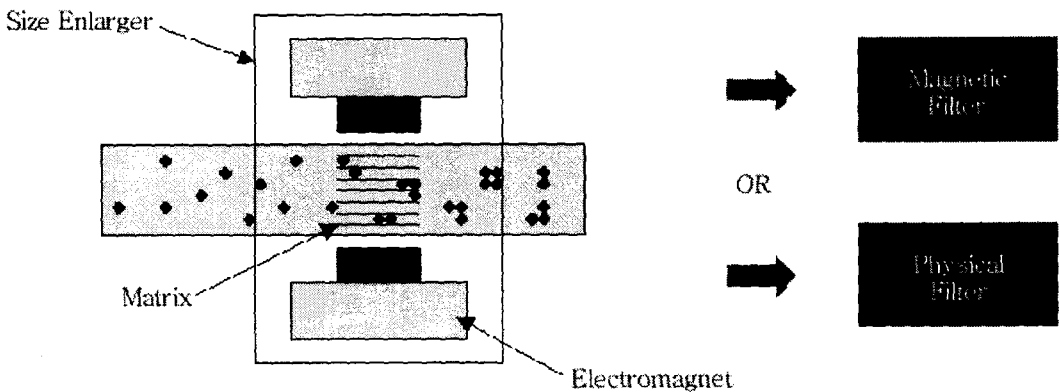


Fig.6 Schematic of size enlarger using electromagnet

III. 결론

원자력 발전소에서 발생하는 크러드에 대한 관리가 최근 매우 중요한 문제로 부각되고 있다. 이를 효과적으로 제거하기 위한 하나의 방안으로써 영구자석과 전자석을 이용한 마그네틱 필터를 제안하였다. 개발된 마그네틱 필터의 효율은 대체적으로 80% 이상의 비교적 높은 제거효율을 보여주고 있으나, 효율을 더욱 높이기 위해 영구자석보다 더 큰 자기장을 형성하는 전자석을 이용하여 유체내에 포함되어 있는 크러드 입자를 증가시키는 역할을 하는 조립장치에 대한 개념을 본 연구에서 제시하였다. 두 가지 타입의 자석을 적절히 배치함으로써 효율적인 크러드 제거 방법의 하나로써 적용할 수 있을 것이라 기대된다.

감사의글

본 연구는 과학기술부 원자력 기초연구과제 (BAERI)의 일환으로 수행된 것입니다.

참고문헌

- [1] Min Chul Song, A Study on the Evaluation of Radioactive Corrosion Product Behavior at PWR for Extended Fuel Cycle, MS thesis, KAIST, 1999
- [2] Min Chul Song, Kun Jai Lee, The evaluation of radioactive corrosion product at PWR as change of primary coolant chemistry for long-time fuel cycle, Annals of Nuclear Energy, vol. 30, 2003
- [3] EPRI. PWR Axial Offset Anomaly(AOA) Guidelines. EPRI TR-110070, 1999
- [4] John R. Reits, etal. Foundation of Electromagnetic Theory, Addison Wesley, 1993
- [5] Robert W. Fox, Alan T. McDonald, Introduction to Fluid Mechanics, John Wiley & Sons, p 422, 1994

- [6] Min Chul Song and Kun Jai Lee, "The experimental result of magnetic filter using permanent magnet for removal of radioactive corrosion product ", SFEN, Avignon, France, April 22-26, 2003
- [7] Min Chul Song and Kun Jai Lee, "The Experimental study on the magnetic filter system using permanent magnet for separation of Radioactive Corrosion Products", Water chemistry and corrosion workshop, Muju, Korea, 2003
- [8] Paul cohen, The ASME handbook on water technology for thermal power system, ASME, 1989