

삼중수소 저장기술

정흥석[†], 정동유*, 구대서*, 이지성*, 심명화***, 조승연**, 정기정**, 윤세훈**

*한국원자력연구원 핵주기공정기술개발부, **국가핵융합연구소 이터한국사업단,

***한국폐기물협회 사업지원팀

Storage and Delivery of Hydrogen Isotopes

HONGSUK CHUNG[†], DONGYOU CHUNG*, DAESOO KOO*, JISUNG LEE*, MYUNGHWA SHIM***,
SEUNGYON CHO**, KIJUNG JUNG**, SEIHUN YUN**

*KAERI, 989-111 Daedeokdaero, Yuseong, Daejeon, 305-353, Korea

**NFRI, 113 Gwahakro, Yuseong, Daejeon 305-353, Korea

***KWA, 681-1 Deungchon3dong, Gangseogu, Seoul 157-730, Korea

ABSTRACT

A nuclear fusion fuel cycle plant is composed of various subsystems such as a hydrogen isotope storage and delivery system, a tokamak exhaust processing system, and a hydrogen isotope separation system. Korea shares in the construction of its ITER fuel cycle plant with the EU, Japan, and the US, and is responsible for the development and supply of the storage and delivery system. The authors thus present details on the development status of hydrogen isotope storage technologies for nuclear fusion fuel cycle plants. We have developed various hydride beds of different size. We have realized a hydrogen delivery rate of 12.5 Pam³/s with a typical 1242g-ZrCo bed.

KEY WORDS : Hydrogen isotope(수소동위원소), Storage(저장), Vessel(용기), ZrCo(지르코늄 코발트), Hydride(수소화물)

1. 서 론

삼중수소는 수소의 동위원소이다. 삼중수소의 원자핵은 수소의 원자핵에 두 개의 중성자가 추가되어 구성된다. 삼중수소는 수소의 원자핵에 한 개의 중성자가 추가되어 구성된 중수소와 더불어 핵융합 반응의 원료이다.

핵융합반응은 미래에너지원으로 중요성이 알려져 있다. 핵융합연료 주기에 필수적인 기술로는 삼중수소 분리, 저장 공급, 삼중수소 정화기술 등이 있다.

우리나라는 국제핵융합실험로(ITER)에 삼중수소 저장 공급 시스템을 공급하게 되어 있다. 이에 따라 우리나라에서는 한국원자력연구원과 국가핵융합연구소가 중심이 되어 삼중수소의 저장 공급에 관한 연구를 수행하여 왔다. 수소 및 신에너지 분야의 새로운 가능성이 삼중수소에 있음은 물론이다. 따라

[†]Corresponding author : hschung1@kaeri.kr

[접수일 : 2011.4.19 수정일 : 2011.6.5 게재확정일 : 2011.6.20]

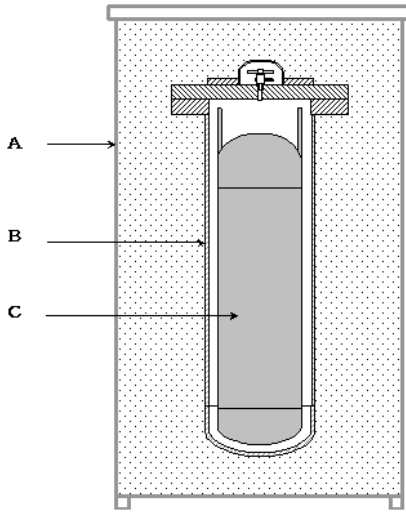


Fig. 1 Schematic diagram of a 500 kCi BU-type shipping container (A: Drum, B: Secondary vessel, C: Primary vessel)

서 본 연구에서는 수소동위원소 특히 삼중수소의 금속수소화물 저장 공급에 관한 저자 등의 최근 연구 결과를 소개하고자 한다.

2. 수소동위원소

2.1 중수소

중수소는 분자량 4.028로 비등점은 -249.4°C 이며, 경수소의 비등점 -252.6°C 보다 약간 높은 온도에서 끓는다. 삼중수소와 8억K에서 $10^{-21}\text{m}^3/\text{s}$ 의 핵융합반응율을 나타낸다. 천연수 중 0.015%가 함유되어 있으며, 천연수와 황화수소 가스 간의 이온도(bithermal) 다단 화학교환 반응으로 약 10% 이상의 중수로 농축한 뒤, 이를 다단계 다단 진공증류 하여 99.75% 이상의 원자로급 중수로 농축하여, 전기분해하면 중수소가 제조된다.

2.2 삼중수소

삼중수소는 원자량 3.016으로 중수소 원자량 2.014 및 경수소 원자량 1.008과 비교된다. 원자핵에 두 개의 중성자가 들어 있어 불안정하며, 따라서 방사성 붕괴를 한다. 반감기는 12.32년이다. 중수로형 원전

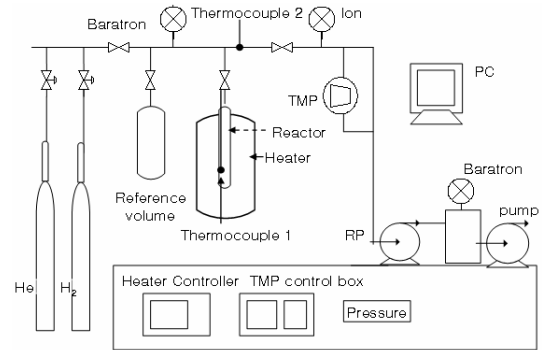


Fig. 2 Experimental schematic

에서 감속재 중수 중의 중수소가 중성자와 반응하여 삼중수소가 생성된다. 삼중수소는 베타선을 방출하는 방사성폐기물이므로, 우리나라의 경우, 월성 원전 삼중수소제거설비로 제거한다. 삼중수소화된 중수를 중수소와 향류 접촉 시켜 삼중수소를 중수소 기체 내로 다단 화학교환반응을 일으킨다. 이 반응에는 PSDBC(폴리스티렌 디비닐벤젠 공중합체) 같은 소수성 다공체를 담체로 하는 백금촉매가 사용된다. 삼중수소화된 중수소는 다단 초저온증류공정에서 농축된다. 삼중수소기체는 최종적으로 티타늄 스펀지 용기에 안전하게 저장된다.

2.3 삼중수소의 저장 및 운반

삼중수소는 티타늄 스펀지 또는 ZrCo 및 DU (감손우라늄)에 저장 운반된다. 국제핵융합실험로와 같은 대형 연구시설에서는 매년 최대 1200g의 삼중수소가 사용될 수도 있다. Fig. 1은 한국원자력연구원이 교육과학기술부의 인허가를 받은 500kCi급 삼중수소 저장 운반용기의 구조이다¹⁾. 삼중수소 운반용기는 9m 자유낙하와 800°C 화염 속에서 30분 간 견전성을 유지함이 실험적으로 입증된 특수용기이다. 이에선 운반용기의 내열, 내충격은 물론, 금속수소화물 저장재의 사용이 안전성에 크게 기여하고 있다.

3. 삼중수소 저장 및 공급

3.1 ZrCo 저장재 반복 사용 특성 실험

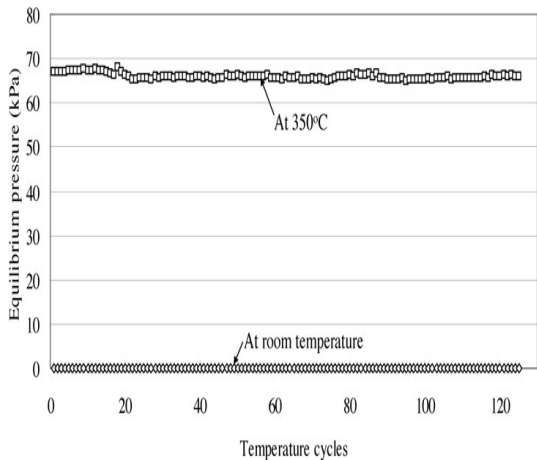


Fig. 3 Pressure change during thermal cycling²⁾

저자 등은 ZrCo의 수소화 및 탈수소화 반응의 반복에 따른 금속수소화물의 성능 변화를 실험을 통해 관찰하였다²⁾. ZrCo의 경우, 반복 사용에 따라 ZrH₂ 및 ZrCo₂로 불균일화 되므로 불균일화 속도의 정량적 평가는 매우 중요하다.

실험 장치는 Fig. 2와 같으며, 30.1cm³의 수직반응관 내에 SAES ZrCo getter를 충전하여 사용하였다. 표준용기는 2008cm³이며, 압력은 Baratron gauge(full scale 133kPa, 정밀도 0.25%)로 측정하였다. 매니폴드의 체적은 134.4cm³이며, 밸브에 의해 수소의 공급과 이송이 이루어진다. 진공은 터보분자 펌프와 진공 펌프로 유지된다. 반응기 히터는 PID 프로그램으로 컨트롤된다. 온도와 압력은 DAQ 시스템으로 실시간 계측된다. ZrCo는 수차례의 흡장(hydriding) 탈장(dehydriding) 과정을 거쳐 미분화되었다. Fig. 3은 흡탈장 반복 125 주기에 따른 350°C에서의 하이드라이드 평형압이다. 초기 67.1kPa로부터 약1.5%의 압력 감소가 관찰되었다.

3.2 ZrCo 저장재 흡탈장 특성 실험

상기 소형 반응관 실험에 이어, 저자 등은 수평 원통관 내 흡탈장 특성 실험을 수행하였다. 소형 반응관 실험에서는 반복 사용에 따른 ZrCo 불균일화도가 비교적 낮은 온도인 350°C의 진공 분위기에서

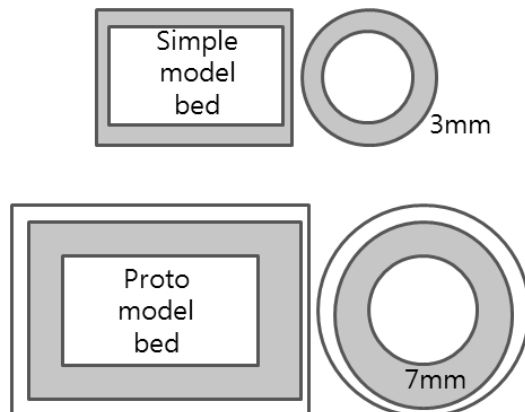


Fig. 4 Schematic diagram of the simple and proto model

는 심각하지 않음이 확인되었다. 따라서 저자 등은 Fig. 4와 같은 수평 원통관 내에 127g의 ZrCo를 충전하여 흡탈장 특성 실험을 수행함으로써 핵융합연료주기에 필요한 삼중수소 급속공급 시스템 기술을 확보하고자 하였다³⁾. 본 디자인은 저장재의 적층 높이가 낮을수록 수소 흡장 및 탈장 속도가 빠르다는 저자 등의 선행 연구 결과를 반영한 것이다⁴⁾. Fig. 4의 단순 모델에는 ZrCo를 원통관과 내부의 필터 사이 3mm의 공극에 채워 넣고, 1kW의 몰드 히터로 가열하는 방식을 채택하였다. 반면 프로토 모델에서는 공극 사이에 모사 헬륨 루프를 채워 넣고, 따라

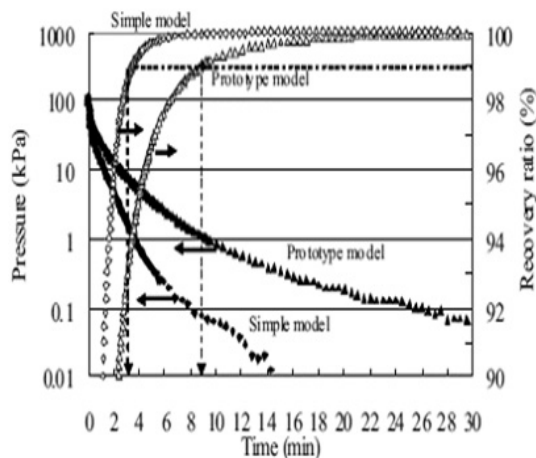


Fig. 5 Changes of hydrogen pressure and recovery ratio³⁾

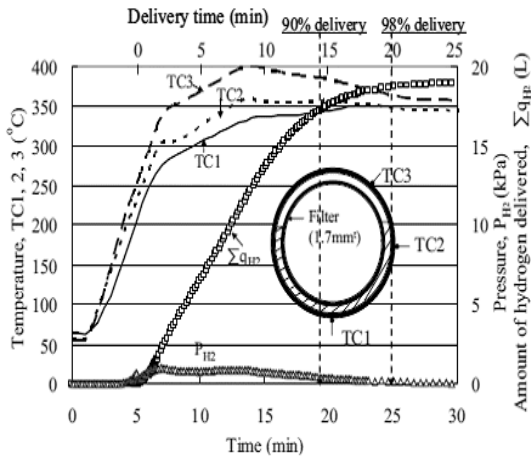


Fig. 6 Changes of hydrogen pressure and delivery rate³⁾

서 ZrCo 적층 공극의 폭도 7mm가 되게 하였다. 뒤에 언급하지만, 핵융합연료주기의 삼중수소 용기에는 내부 열량계 기능을 담당하는 헬륨 루프가 필요하기 때문이다.

이 실험 결과는 Fig. 5와 같다. 흡장 반응 속도의 경우 별도의 냉각 없이 99%의 수소 흡장 회수에 단순 모델은 2.9분, 프로토 모델은 8.8분이 소요됨이 확인되었다.

수소 탈장 속도 측정 결과는 Fig. 6과 같다. 단순 모델의 경우 270°C 예열, 350°C 가열 조작에 의한 탈장 시간은 90% 탈장에 14.0분, 98% 탈장에 19.6분이 소요되었다. 이는 수소 공급속도로 각각 2.0과 1.6Pam³/s에 해당하는 높은 값이다. 참고로 프로토 모델의 수소 공급속도는 90% 탈장에 17.6분, 98% 탈장에 30.5분이 소요 되었다. 이는 수소 공급속도로 각각 1.61과 1.16Pam³/s에 해당하는 값이다.

3.3 수소 저장 공급 특성 실험

상기 수평 원통관 실험에 이어, 저자 등은 다양한 수평관형 저장용기의 실험과⁵⁾ 대형 저장용기 모형에서의 열전달 모사를 통해⁶⁾ ZrCo 893.75g 이 충전된 실험용 저장공급용기를 제작하였다⁷⁾. Fig. 7은 실험용 저장공급용기 단면도이며, 내부 일차용기와 외부 이차용기로 구성된다. 이차 및 이차용기 사이

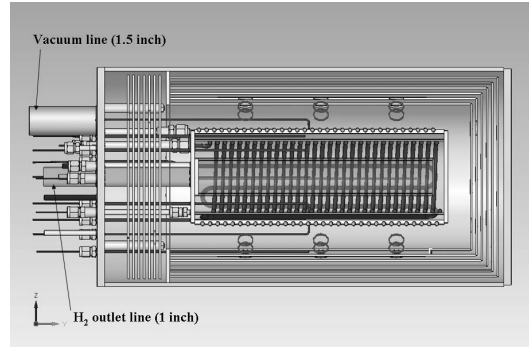


Fig. 7 Cross sectional view of the bed

에는 열차폐관이 설치되어 있다. 다수의 열차폐관은 일차용기로부터의 복사열 손실을 차단한다. 일차용기 내에는 원통형 철망 필터를 설치하고 그 사이에 ZrCo를 충전하였다. Fig. 7의 중앙부에 일차용기가 그 외곽에 5겹의 열차폐관이, 그리고 최외각에 이차용기가 위치한다.

상기 실험용 저장공급용기를 저자 등은 Fig. 8과 같은 수소 저장 공급 실험 장치에 설치하여 그 성능을 측정하였다.

Fig. 8은 실험용 저장공급용기와 260L의 수소저장탱크를 보여 주고 있다. 수소 진공 이송 펌프로는 ISP 펌프를 사용하였다. Fig. 8의 왼편 중앙에 저장용기가, 그 우측에 수소이송펌프가, 그리고 최우측에 수소저장탱크가 위치한다. Fig. 9는 수소저장탱

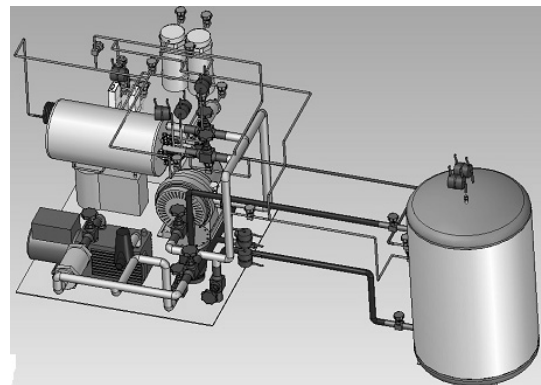


Fig. 8 Hydrogen storage and delivery test rig

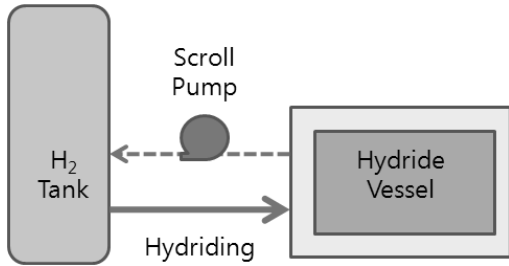


Fig. 9 Hydrogen recovery test

크로부터 실험용 저장공급용기로 수소를 흡장하는 모습을 개략도를 이용해 보여주고 있다.

상기 장치에서의 수소 흡장 성능을 측정해 Fig. 10에 표시하였다. ZrCo는 흡장 후 $ZrCoH_{1.8}$ 이 되었다. 흡장 초기 압력을 50kPa로 하였을 때, 90% 흡장에는 7.4분, 그리고 99% 흡장에는 37.6분이 소요되었다. 흡장열의 발생으로 수소화물의 온도는 240°C까지 상승하였다. 한편 흡장 초기 압력을 90kPa로 하였을 때, 90% 흡장에는 2.1분, 그리고 99% 흡장에는 3.0분이 소요되었다. 흡장열의 발생으로 수소화물의 온도는 288°C까지 상승하였다. 이 실험에서 ZrCo 적층 높이는 8mm이었으며, 초기압력이 90kPa로 높은 경우(즉, Fig. 10 내의 위쪽 실험 곡선과 같이), 99% 흡장에는 3.0분이 소요되는 매우 빠른 흡장이 가능함을 실험적으로 밝히었다. Fig. 11은 상

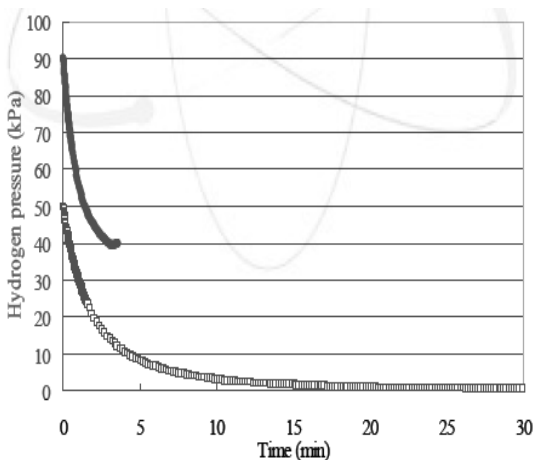


Fig. 10 Hydrogen recovery performance

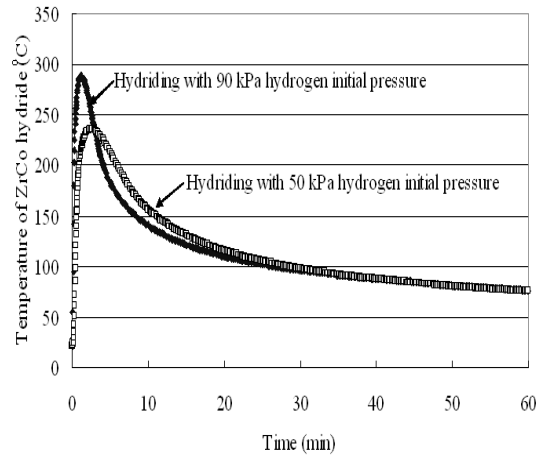


Fig. 11 Hydride temperature variation during hydrogen recovery

기 흡장 반응에 따른 금속수소화물의 온도 변화를 나타낸다. 흡장에 따라 급속히 온도가 상승한 후, 자연 열전도에 의해 서서히 온도가 하강함을 알 수 있다. Fig. 12에 실험용 저장공급용기의 수소공급성능 실험 결과를 나타내었다. 예열 14분 후 340°C로 가열하였으며, 90%의 수소가 36분 안에 공급되었다. ZrCo의 비균질화를 억제하기 위해 가능한 낮은 온도를 유지하고자 하였다. 또한 압력을 낮게 유지하기 위해 수소 흡입 라인을 25.4mm의 관을 사용해 컨덕턴스를 크게 유지하였다. Fig. 12 내 위쪽에 시

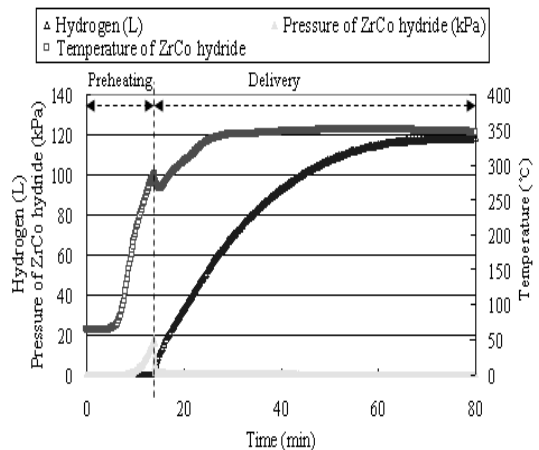


Fig. 12 Hydrogen delivery performance

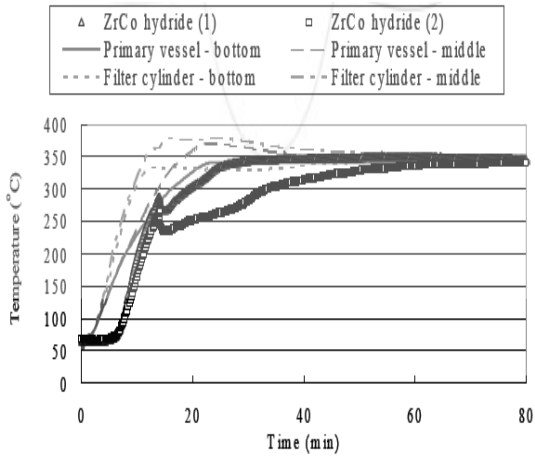


Fig. 13 Hydride temperature variation during hydrogen delivery

간에 따른 ZrCo의 온도 변화를 나타내었다. 예열 시 ZrCo는 300°C 이하를 유지하도록 하였다. 그림 중앙의 곡선은 탈장되는 수소량을 나타낸다. 예열 시에는 거의 수소가 방출되지 않고 있음을 알 수 있다. 그림의 가장 아래쪽에는 수소화물의 압력을 나타내었는데, 운전 기간 중 스크롤 펌프의 작동에 따라 압력은 진공 상태를 유지함을 알 수 있다.

Fig. 12의 탈장 반응 중 용기 내 각 부위의 온도 변화를 Fig. 13에 나타 내었다. Fig. 12에는 용기 중앙부의 ZrCo hydride 온도를 표시하였다. 용기 내

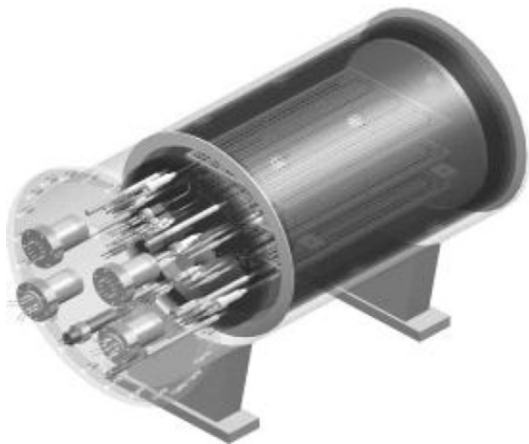


Fig. 14 Hydride storage vessel⁸⁾

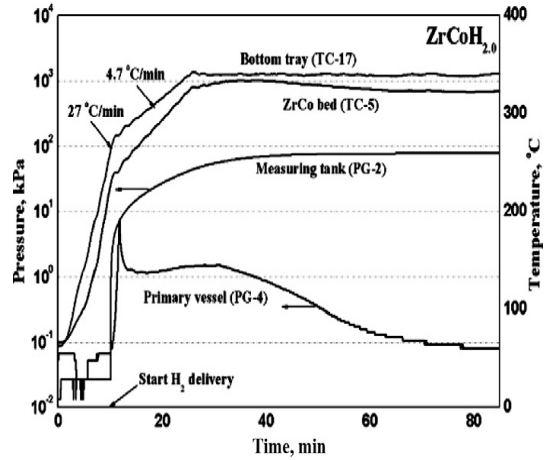


Fig. 15 Pressure and temperature transient during hydrogen delivery⁸⁾

부위에 따른 ZrCo hydride 및 기타 부위 별 온도를 측정하여 Fig. 13에 표시하였다. 전체적으로 불균일화 반응을 억제하기 위해 대개 330~340°C 이하를 유지하도록 하였다. Fig. 13 내 ZrCo hydride의 온도분포를 측정하기 위해 열전대를 용기 중앙부(1)와 하부(2)에 설치하였다. 즉 용기 중앙부 온도인 ZrCo hydride(1)은 ZrCo hydride(2) 보다 다소 빠른 시간에 높은 온도에 도달하였다.

3.4 수소 급속 저장 공급 연구

저자 등은 최근 총 1242g의 ZrCo를 평면의 다단 트레이에 설치하여 일차용기를 구성하고, 다시 이를



Fig. 16 Test rig for in-bed calorimetry

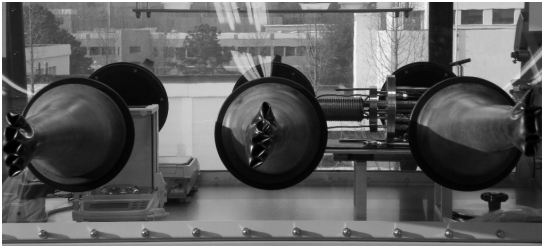


Fig. 17 Depleted uranium treatment in a glovebox

이차용기로 보호하는 트레이형 저장공급용기를 Fig. 14와 같이 제작하여 그 성능을 측정한다(8).

트레이형 저장공급용기의 수소 탈장 공급에 따른 용기 내 압력 및 온도 변화를 Fig. 15에 나타내었다. 수소 탈장 온도는 350°C로 하였으며, ISP 펌프로 진공 이송하였다. 실험 조건에 따라 최대 이송속도 12.5Pam³/s를 구현하였다.

3.5 삼중수소 열량계 및 우라늄 저장재

최근 저자 등은 삼중수소 붕괴열을 자동으로 측정할 수 있는 헬륨 루프 시스템 장치를 구성하였다. 이는 저장용기 내부를 순환한 헬륨이 Fig. 16과 같은 용기 외부의 헬륨 루프를 통과하면서 전달한 삼중수소 붕괴열에 따른 발열량을 측정하는 장치이다.

Fig. 17은 방사능 물질인 우라늄 저장재 연구를 위한 글러브박스이다.

저자 등은 개선된 삼중수소 저장용기 개발을 위해 상기 헬륨 루프 시스템 장치 및 글러브박스를 이용한 실험을 지속적으로 수행 중이다. 이러한 실험적 연구는 수소저장용기의 수치 해석적 연구⁹⁾와 더불어 향후 수소에너지 시대를 앞당기는데 기여할 것이 기대된다.

4. 결 론

삼중수소는 수소의 동위원소이다. 삼중수소는 미래에너지원 핵융합반응의 원료 물질로 화학적 성질이 수소와 유사하다. 우리나라는 국제핵융합실험로에 삼중수소 저장 공급 시스템을 공급하게 되어 있

다. 이에 따라 본 연구에서는 삼중수소의 저장 공급에 관한 연구를 실험적 연구를 수행하였다. 삼중수소의 금속수소화물 저장 공급에 관한 저자 등의 최근 연구 결과는 다음과 같다.

- 1) 삼중수소의 저장 공급에 적합한 ZrCo 수소화물의 특성을 연구하였다. ZrCo 수소화물의 반복적 사용을 위해서는 1기압, 350°C 이하의 조건을 유지해야 하는데, 이를 125 사이클의 반복 시험을 통해 확인하였다.
- 2) 수소저장용기의 구조를 넓은 가열면적과 넓은 필터면적을 갖는 형태로 제작하여 흡장 탈장 실험을 수행하였다. 이 개념을 적용하여 수평 원통관 내에 127g의 ZrCo를 충전하여 90% 탈장에 수소 공급속도로 2.0Pam³/s에 해당하는 높은 값을 실험적으로 구현하였다.
- 3) ZrCo 893.75g 이 충전된 실험용 저장공급용기를 제작하여 초기압력이 90kPa로 높은 경우, 99% 흡장에는 3.0분이 소요되는 매우 빠른 흡장이 가능함을 실험적으로 밝히었다.
- 4) 총 1242 g의 ZrCo를 평면의 다단 트레이에 설치하여 일차용기를 구성하고, 다시 이를 이차용기로 보호하는 트레이형 저장공급용기를 제작하였다. 수소 탈장 온도는 350°C로 하였으며, ISP 펌프로 진공 이송하였다. 실험 조건에 따라 수소 가열 탈장 최대 이송속도 12.5Pam³/s를 구현하였다.
- 5) 저자 등은 개선된 삼중수소 저장용기 개발을 위해 내장형 열량계 헬륨 루프 시스템 장치 및 글러브박스를 이용한 우라늄 저장재 활용 연구를 지속적으로 수행 중이다.

후 기

본 연구는 교육과학기술부와 지식경제부의 국제핵융합실험로 공동개발사업으로 수행되었음(NRF 2011-0000296).

참고문헌

- 1) H. Chung, M. Shim, D. Ahn, M. Lee, C. Hong, H. Yoshida, K. Song, D. Kim, K. Jung, and S. Cho, "Korea's Activities for the Development of ITER Tritium Storage and Delivery Systems", *Fusion Science and Technology*, Vol. 54, 2008, p. 18.
- 2) M. Shim, H. Chung, S. Cho, and H. Yoshida, "Disproportionation Characteristics of a Zirconium-Cobalt Hydride Bed under ITER Operating Conditions", *Fusion Science and Technology*, Vol. 53, 2008, p. 830.
- 3) M. Shim, H. Chung, H. Yoshida, H. Jin, M. Chang, S. Yun, and S. Cho, "Initial Test Results of a Fast Heat Transfer Response ZrCo Hydride Bed", *Fusion Science and Technology*, Vol. 56, 2009, p. 857.
- 4) M. Shim, H. Chung, H. Yoshida, K. Kim, S. Cho, E. Lee, and M. Chang, "Experimental Study on the Delivery Rate and Recovery Rate of ZrCo Hydride for ITER Application", *Fusion Science and Technology*, Vol. 54, 2008, p. 27.
- 5) M. Shim, H. Chung, H. Yoshida, H. Jin, J. Lee, K. Song, M. Chang, H. Kang, S. Yun, and S. Cho, "Hydriding/dehydriding Characteristics on Fast Heat Transfer Response ZrCo Bed for ITER", *Fusion Engineering and Design*, Vol. 84, 2009, p. 1763.
- 6) M. Shim, H. Chung, K. Kim, H. Yoshida, S. Cho, D. Kim, and M. Ahn, "Heat analysis on the initial reference design of ZrCo hydride beds for ITER", *Fusion Engineering and Design*, Vol. 83, 2008, p. 1433.
- 7) 정홍석, 안도희, 김광락, 백승우, 구대서, 정경기, 심명화, 진학수, 이종국, "ITER 삼중수소 저장·공급 용기 개발 및 시험", KAERI/CR-324/2008, 국가핵융합연구소, 2009, pp. 49-165.
- 8) D. Chung, D. Jeong, D. Koo, H. Yoshida, K. Song, M. Chang, H. Kang, S. Yun, S. Cho, K. Jung, and H. Chung, "Fusion fuel gas recovery and delivery characteristics on a tray-type ZrCo bed", *Fusion Engineering and Design*, doi:10.1016/j.fusengdes.2010.11.026, 2011.
- 9) J. Nam, K. Kang, and H. JU, "Numerical Study of Hydrogen Absorption in a Metal Hydride Hydrogen Storage Vessel", *Trans. of the Korean Hydrogen and New Energy Society*, Vol. 21, No. 4, 2010, p. 249.