2001 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

가연성 방사성 기체폐기물 운반용기에서의 열전달

Heat Transfer in the Shipping Container for a Flammable Radioactive Gaseous Waste

정흥석, 이민수, 노병후, 안도희, 김광락, 이성호, 백승우, 임성팔

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

중수로형 원자로에서 발생되는 트리튬을 안전하게 저장 운반하기 위한 용기의 열전달 해석을 수행하였다. 트리튬은 가연성 기체 방사성 폐기물로 티타늄에 트리타이드화 하여 다중 안전 장치를 갖는 용기에 저장 운반된다. 운반 과정에서 있을 수도 있는 가상적인 화재 사고 시, 용기 외부로부터의 열 전달 해석은 매우 중요하다. 이를 위해 단열 층을 갖는 운반 용기를 구성하고, 비정상 상태 열 전달 모델을 수립하여 전산 모사함으로써 설계 평가를 위한 기초 자료로 활용할 수 있도록 하였다.

Abstract

The use of hydrogen isotopes in a PHWR raises particular safety issues due to the combined effects of their physico-chemical properties and radioactive nature. Even though the hydrogen isotope and titanium hydrides are non-reactive, stable compounds in air and water, the hydrides will be contained in a stainless steel vessel. A transportation overpack should limit the temperature of the vessel to a safe value in the case of a fire. In this study, an unsteady-state model was established to analyze a transient heat-transfer problem in the overpack.

1. 서 론

중수로형 원자력발전소에서 트리튬은 주로 중수 중의 중수소와 중성자와의 핵반응에 의해 생성되며, 그 생성속도는 자연붕괴 등의 소멸속도보다 상대적으로 크므로 발전소 가동년수가 증가함에 따라 계통 중수 중의 트리튬 농도는 지속적으로 증가한다.

트리튬이 인체에 흡수되면 방사선 장해를 일으킬 수 있다. 트리튬에 의한 피폭으로부터 작업자, 주변 환경 및 주민을 보호하기 위해서는 가능한 한 트리튬 농도를 줄일 필요가 있으므로, 한국수력원자력주식회사는 향후 삼중수소 제거시설을 월성 부지에 건설할 예정이다. 이 시설의 기술적인 특징은 중수 중에 산화물 형태로 존재하는 트리튬을 촉매반응으로 기체상의 트리튬으로 전이 시키고 초저온에서 분별 증류하여 트리튬 분자를 저장하는 것이다. 이는 트리튬 분자가 산화물 형태에 비해 방사선 위해도가 1/10,000 - 1/20,000 정도이기 때문이다. 트리튬은 상온 상압에서 저장이 가능하여 안정성이 뛰어난 금속 트리타이드로 저장 운반된다. 본 논문에서는 안전한 트리튬 취급 및 운반을 위해 단열 층을 갖는 운반 용기를 구성하고, 비정상 상태 열전달 모델을 수립하여 전산 모사함으로써 설계 평가를 위한 관련 기술에 대해 연구하였다.

2. 트리튬 저장 및 운반 용기 특성

2-1. 티타늄 트리타이드

트리튬 저장 및 취급 계통의 제 일차 보호 장치는 금속 트리타이드 자체이다. 주로 사용되는 금속인 티타늄의 경우, 실용 범위에서의 상온 평형압이 10^{-12}Pa 정도로 사실 상 수소압이 거의 없는 고체상을 형성하고 있다. 통상적으로 사용되는 사이즈 2~6 ㎜의 수소화물 티타늄 스폰지가 공기에 노출되더라도 이 스폰지는 상온에서 안정하다. 자연발화는 일어 나지 않으며 발화점은 600 ~ 650℃이다. 한편 미세분진은 10회 정도 흡장 및 탈장에 의해서는 매우 조금 밖에 생성되지 않는다. 쉐이커에 수소화물 티타늄 스폰지를 넣고 강하게 진동 시켜도, 일주일 후에 38 ㎛ 이하의 분진이 단지 10% 정도만 생성될 뿐이다. 9.5 ㎜ ~ 38㎛ 이하의 분진의 발화점은 400 ~ 450℃이다. 화학조성이 $TiH_{0.6}$~$TiH_{1.4}$인 경우, 스폰지이거나 분진이거나 상온 공기 중 자연 발화는 일어나지 않는다. 한편, 티타늄 트리타이드 자체는 수중에서도 매우 안정적인 것으로 알려져 있다. 티타늄 트리타이드로부터 수중으로의 HTO 유출은 100일간 총량으로 약 10^{-5} 정도에 불과한 것으로 알려져 있다. 더욱이 침출액 상층 공기 중 HT 양은 약 10^{-7} 정도의 극미량으로 알려져 있다. 수중으로의 트리튬 방출의 주된 메카니즘은 TiT와 H_2O간의 화학교환 반응에 의한 것이다. 수중에서 트리타이드의 색은 은회색에서 짙은 흑갈색으로 변화하며, 이는 산화피막 또는 하이드록실 피막에 의한 것이다. 이 피막은 수중에서의 트리튬 침출을 최소화하는데 기여하는 것으로 평가된다. 참고로 트리타이드를 공기 중에 방치 후 침수 실험을 하면, 방치하지 않았을 때에 비해 침출량이 현저히 감소하는 실험결과로부터도 피막의 침출 억제효과를 입증할 수 있다. 즉 티타늄 트리타이드의 경우, 정상적인 조건에서뿐만 아니라 가상적인 물리적 환경 변화에서도 그 자체가 트리튬의 안정적인 일차 보호 장치 역할을 한다.

2-2. 저장 용기 기술

트리튬은 티타늄에 트리타이드의 형태로 흡장 되어 SS 316 L 로 만들어진 일차 저장 용기에 보관된다. 이 용기는 티타늄의 활성화와 트리튬의 흡탈장 반응기 겸용으로 사용된다. 용기와 그 부품은 “원자력발전소 압력 보유 계통 및 기기 일반 요건”, “보일러 및 압력용기의 건설 및 검사 요건”, 그리고 “품질 보증 확인 요건”을 충족하도록 설계 제작된다. 고정화와 회수에 사용되는 기체 유로는 두 개의 용접된 벨로우 실드 밸브로 확보된다. 미분진 비산을 막기 위해 SS 20㎛필터가 입구 및 출구 밸브에 각각 설치된다. 용기는 약 6.5 리터이며, 트리타이드양은 1.5 리터이다. 남은 용적은 붕괴 생성물 헬륨을 위한 것이다. 스폰지는 850 그람이며, TiT 의 형태로 0.5MCi 를 저장한다. 저장조건 25℃에서 TiT 의 평형압은 약 10^{-12} Pa 로 매우 낮기 때문에, 용기로부터의 트리튬 누출이나 침출은 사실상 없다.

2-3. 운반 용기 기술

운반 용기는 플랜지형 스테인레스 스틸 용기이며, 외피는 탄소강 드럼용기로 구성되어 충격과 화재 저항 기능을 담당한다. 총 무게는 약 200㎏이다. 트리튬의 붕괴열은 17W 에 해당한다. 실험은 17W 의 히터를 스폰지 내부에 설치하여, 일차용기의 상부와 바닥의 온도를 측정한다. 이차용기의 높이 중앙 온도도 측정하여 안전성을 입증해야 한다. 오버팩 탄소강 드럼에서 4㎝ 떨어진 열충격 흡수재의 온도도 측정한다. 운송허가를 얻기 위해 파괴시험이 필요하다. 일차 및 이차용기가 10^{-8}Pa·m^3/s 로 헬륨 유출에 건전한지 입증해야 한다. 크러쉬 테스트를 한다. 500㎏의 강판을 9m 에서 용기 측면으로 떨어뜨려야 한다. 이어서 15㎝ 직경의 강침에 1m 낙하 시험을 한다. 이어서 등유 불로 800℃에서 30 분간 내열 시험을 해야 한다. 시제품을 하나 더 만들어서 상부 가장자리 방향 9m 낙하시험과 1m 강침에의 낙하 시험과 내열 시험을 수행해야 한다. 수송용기는 B(u)형에 해당된다. 본 연구에서는 가상적인 화재 조건에서 내열성을 갖는 단열층 설계를 위한 모델링을 수행하였다 [1-4].

3. 트리튬 저장 운반 용기의 열전달 해석을 위한 모델링

3-1. 용기의 특징

트리튬 저장 운반 용기는 원통형 모양을 갖는 단열 재료로 구성된다. 외부 용기는 carbon steel 로 구성된다. 단열재로 피복된 내부 용기와 저장 용기 사이에는 공기 층이 있다. 단열재는 내한성, 내화학성, 난연성 및 강도 등이 우수한 것으로 제작된다.

3-2. 지배 방정식

본 연구에서는 일차적인 개념 설계 자료 생산을 위하여 가능한 단순한 모델 식을 사용하고자 한다. 저장 용기의 경우에도 열원이 없다고 가정하는 대신 저장 용

기의 초기 온도를 비교적 높게 설정하여 모델 식을 단순화 하였다. 용기 내부에 열원이 없다는 가정 아래 원통형 좌표계에 대한 열전도 방정식은 다음과 같다.

$$\frac{\partial^2 T}{\partial r^2}+\frac{1}{r}\frac{\partial T}{\partial r}+\frac{1}{r^2}\frac{\partial^2 T}{\partial \theta^2}+\frac{\partial^2 T}{\partial z^2}=\frac{1}{\alpha}\frac{\partial T}{\partial t} \tag{1}$$

여기서 r은 반경 좌표, θ는 각 좌표, z는 길이 방향 좌표이며, T는 온도이며, t는 시간이다. 그리고 α는 열확산율(thermal diffusivity)로서 다음과 같이 정의된다.

$$\alpha=\frac{k}{\rho c_p} \tag{2}$$

여기서 ρ는 재료의 밀도(density), c_p는 재료의 정압 비열(specific heat), k는 재료의 열전도도(thermal conductivity)이다. 해석의 용이성을 위하여 트리튬 저장 용기의 길이는 반경에 비하여 충분히 크다라는 가정을 하였으며, 축 대칭성에 의하여 식 (1)은 다음과 같이 된다.

$$\frac{\partial^2 T}{\partial r^2}+\frac{1}{r}\frac{\partial T}{\partial r}=\frac{1}{\alpha}\frac{\partial T}{\partial t} \tag{3}$$

이와 같이 트리튬 저장 용기의 열전달 특성을 일차원 비정상상태 열전달 문제로 단순화 시킬 수 있다.

3-3. 차분화

일차원 비정상상태 열전도 방정식을 다시 쓰면 다음과 같다.

$$\alpha\left[\frac{\partial^2 T}{\partial r^2}+\frac{1}{r}\frac{\partial T}{\partial r}\right]=\frac{\partial T}{\partial t} \tag{4}$$

수치 해석을 위하여 주어진 임의 단열 재료에 대하여 반경 방향의 격자를 Fig. 1과 같이 등 간격으로 분할하였으며, 식 (4)를 수치 해석하기 위한 각 항의 중앙 차분식은 다음과 같다.

$$\frac{\partial^2 T}{\partial r^2}=\frac{\partial}{\partial r}\left(\frac{\partial T}{\partial r}\right)=\frac{\partial}{\partial r}\left[\frac{T_{i-\frac{1}{2}}-T_{i+\frac{1}{2}}}{\Delta r_k}\right]=\frac{1}{\Delta r_k}\left[\frac{\partial}{\partial r}\left(T_{i-\frac{1}{2}}\right)-\frac{\partial}{\partial r}\left(T_{i+\frac{1}{2}}\right)\right]$$

$$= \frac{1}{\Delta r_k}\left[\frac{T_{i-1}-T_i}{\Delta r_k} - \frac{T_i - T_{i+1}}{\Delta r_k}\right] = \frac{1}{(\Delta r_k)^2}\left[T_{i-1}+T_{i+1}-2T_i\right] \tag{5}$$

$$\frac{1}{r}\frac{\partial T}{\partial r} = \frac{1}{r_i}\frac{T_{i-1}-T_{i+1}}{2\Delta r_k} = \frac{1}{2r_i\Delta r_k}\left[T_{i-1}-T_{i+1}\right] \tag{6}$$

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{T_i - T_i^{Old}}{\Delta t} \tag{7}$$

여기서 Δt 는 시간 간격이며, Δr_k 는 주어진 임의 단열 재료에서의 반경 방향 격자 간격이다. 그리고 r_i 는 i-번째 노드에서의 반경 방향 길이이며, T_i 는 시간 t 에서의 i-번째 노드에서의 온도이며, T_i^{Old} 는 시간 t-Δt 에서의 i-번째 노드에서의 온도이다. 식 (5)~(7)을 식 (4)에 대입하면 다음과 같다.

$$\frac{\alpha_k}{(\Delta r_k)^2}\left[T_{i-1}+T_{i+1}-2T_i\right] + \frac{\alpha_k}{2r_i\Delta r_k}\left[T_{i-1}-T_{i+1}\right] = \frac{T_i - T_i^{Old}}{\Delta t} \tag{8}$$

여기서 α_k 는 임의 단열 재료의 열확산율이다. 양변에 Δt 를 곱하고, 이를 i-번째 노드에서의 온도 T_i 에 대하여 정리하면 다음과 같다.

$$\left[1+\frac{2\alpha_k\Delta t}{(\Delta r_k)^2}\right]T_i = T_i^{Old} + \left[\frac{\alpha_k\Delta t}{(\Delta r_k)^2}+\frac{\alpha_k\Delta t}{2r_i\Delta r_k}\right]T_{i-1} + \left[\frac{\alpha_k\Delta t}{(\Delta r_k)^2}-\frac{\alpha_k\Delta t}{2r_i\Delta r_k}\right]T_{i+1} \tag{9}$$

또는 다음과 같다.

$$T_i = \left[T_i^{Old} + A_1 T_{i-1} + A_2 T_{i+1}\right] / A_0 \tag{10}$$

여기서

$$A_0 = 1 + \frac{2\alpha_k\Delta t}{(\Delta r_k)^2} \tag{11a}$$

$$A_1 = \frac{\alpha_k\Delta t}{(\Delta r_k)^2} + \frac{\alpha_k\Delta t}{2r_i\Delta r_k} \tag{11b}$$

$$A_2 = \frac{\alpha_k\Delta t}{(\Delta r_k)^2} - \frac{\alpha_k\Delta t}{2r_i\Delta r_k} \tag{11c}$$

3-4. 경계조건

용기에 대한 열전도 수치 해석을 위해서는 단열 재료 경계에서의 열전달과 관련된 경계 조건이 필요하다. 즉 각 경계면에서의 경계조건은 다음과 같다.

1) 트리튬 저장 용기의 가장 바깥부의 온도(T_o)는 외부 온도(T_e)와 같다.

$$T_o = T_e \tag{12}$$

2) 트리튬 저장 용기 내 단열 재료의 각 경계면에서의 열전도는 같다. 여기서 하첨자 1과 2는 각 경계에서 이웃하는 단열 재료를 의미한다.

$$\left[k\frac{\partial T}{\partial r}\right]_1 = \left[k\frac{\partial T}{\partial r}\right]_2 \tag{13}$$

3) 트리튬 저장 용기 내 공기 층과 이루는 고체면의 경계면에서는 고체면에서의 전도에 의한 열전달량과 공기 층에서의 대류에 의한 열전달량은 같다고 가정하였다.

$$\left[k\frac{\partial T}{\partial r}\right]_{solid} = -\left[h\Delta T\right]_{air} \tag{14}$$

여기서 h는 공기의 열전달계수이다.

3-5. 경계조건에 대한 차분식

경계 조건 (13)에 대한 차분식은 다음과 같다.

$$k_1\frac{T_{i-1}-T_i}{\Delta r_1} = k_2\frac{T_i - T_{i+1}}{\Delta r_2} \tag{15}$$

여기서 하첨자 1과 2는 경계면에서 이웃하는 재료를 의미하며, i-번째의 온도가 경계면에서의 온도이다. 이를 경계면에서의 온도로 정리하면 다음과 같다.

$$\left[\frac{k_1}{\Delta r_1}+\frac{k_2}{\Delta r_2}\right]T_i = \frac{k_1}{\Delta r_1}T_{i-1}+\frac{k_2}{\Delta r_2}T_{i+1} \tag{16}$$

경계 조건 (14)에 대한 차분식은 다음과 같다.

$$k_s \frac{T_i - T_{i-1}}{\Delta r_s} = -h\left(T_i - T_a\right) \tag{17}$$

여기서 k_s는 단열 재료의 열전도도이며, T_i는 재료와 공기 층 경계에서의 온도이다. 그리고 T_a는 공기층에서의 온도이다. 따라서 이를 경계면에서의 온도로 나타내면 다음과 같다.

$$\left[h + \frac{k_s}{\Delta r_s}\right]T_i = hT_a + \frac{k_s}{\Delta r_s}T_{i-1} \tag{18}$$

3-6. 공기 층에서의 혼합평균온도

용기 내 공기 층에서의 온도에 대하여, 공기 층에서의 대류에 의한 열전달량 만큼이 용기 내부의 공기 층의 온도를 상승시키는데 기여한다고 가정하면 공기 층에서의 혼합평균온도(bulk temperature)는 다음과 같다.

$$hA\left(T_w - T_a\right) = \dot{m}c_p\left(T_a^{New} - T_a\right) \tag{19}$$

여기서 T_w는 공기 층과 고체 면이 이웃하고 경계에서의 온도이며, T_a^{New}는 공기의 혼합평균온도이다. 공기 층의 바깥부 반경을 r_o, 안쪽부 반경을 r_i라 하면 식 (19)는 다음과 같다.

$$h\left(2\pi r_o L\right)\left(T_w - T_a\right) = \frac{m}{\Delta t}c_p\left(T_a^{New} - T_a\right) = \frac{\rho V}{\Delta t}c_p\left(T_a^{New} - T_a\right) = \frac{\rho}{\Delta t}\left[\pi\left(r_o^2 - r_i^2\right)L\right]c_p\left(T_a^{New} - T_a\right) \tag{20}$$

따라서 공기 층의 혼합평균온도는 다음과 같다.

$$T_a^{New} = \left[\frac{\rho c_p\left(r_o^2 - r_i^2\right)}{\Delta t}T_a + 2r_o h\left(T_w - T_a\right)\right] \Big/ \left[\frac{\rho c_p\left(r_o^2 - r_i^2\right)}{\Delta t}\right] \tag{21}$$

3-7. 수치 해석

수치해석을 위한 흐름도를 Fig. 2 에 나타내었으며, 일차원 비정상상태 열전달

수치해석 프로그램을 작성하였다. 해석에 사용한 격자 수는 모두 51 개로서, 단열 재료들은 11 개의 노드 점(10 개 간격)의 등 간격으로 구성하였다. 그리고 온도 계산에 사용된 수렴 조건은 다음과 같다.

$$\frac{\sum_{k=1}^{50}\left|T_k^{New} - T_k^{Old}\right|}{\sum_{k=1}^{50} T_k^{New}} \leq 10^{-6} \tag{22}$$

계산 초기에 사용한 온도는 다음과 같다. 용기 바깥부에서는 외부 온도와 같으며 이를 제외한 나머지는 모두 일정온도로 취하였다. 수치 해석의 계산 시간 간격은 수치 해석의 안정성을 고려하여 일반적으로 비정상상태 1 차원 열전도 문제에서 많이 사용되는 값을 사용하였으며 이는 다음과 같다.

$$\Delta t_k = \frac{(\Delta r_k)^2}{2\alpha_k} \tag{23}$$

각 단열 재료에 대하여 식 (23)과 같이 표현되는 시간 간격을 계산하고, 이로부터 계산된 각 단열 재료에 대한 시간 간격 중 가장 작은 시간 간격을 본 해석의 시간 간격으로 취하였다.

3-8. 프로그램 구성

프로그램은 prok1.c 이며, 입력 데이터 파일 prok1.dat 가 필요하다. 실행파일은 prok1.exe 이다. 실행파일 prok1.exe 를 실행시키면 입력 데이터 파일로부터 계산에 필요한 데이터 값을 읽고 수치 해석을 수행한다. 입력 데이터 파일에서 지정된 시간 간격마다 각 노드 점에서의 온도 값을 데이터 파일로 저장하며, 각 데이터 파일은 proktNo.dat 의 이름을 갖는다. 해석에서 수행한 각각의 데이터 파일은 노드 수, 반경 좌표와 온도 값을 기록하게 된다.

4. 열전달 해석 결과

용기의 수치 해석 결과를 Fig. 3 에 나타내었다. 그림에서 가로축은 노드 점을 의미하며, 세로축은 각 노드 점에서의 온도이다. 외부 용기는 계산 초기에 바깥의 경계 온도와 거의 같아짐을 알 수 있으며, 각각의 단열 재료에 의하여 용기 내의 온도가 외부 온도보다 낮게 되어짐을 알 수 있다. 시간이 경과할수록 트리튬 운반 용기의 내부 온도는 상승하나, 저장 용기 외벽은 거의 초기온도를 유지하고 있음을 알 수 있다. 향후 재료에 따른 효과와 단열재 물성 변화를 반영하여 모델을 보완한

후, 삼차원 분석과 실물시험을 실시하여 모델의 신뢰성을 확보할 예정이다.

5. 결 론

중수로형 원자로에서 발생되는 트리튬을 안전하게 저장 운반하기 위한 용기의 열전달 해석을 수행하였다. 트리튬은 가연성 기체 방사성 폐기물로 티타늄에 트리타이드화 하여 다중 안전 장치를 갖는 용기에 저장 운반된다. 운반 과정에서 있을 수도 있는 가상적인 화재 사고 시, 용기 외부로부터의 열 전달 해석은 매우 중요하다. 이를 위해 단열 층을 갖는 운반 용기를 구성하고, 비정상 상태 열 전달 모델을 수립하여 전산 모사함으로써 설계 평가를 위한 기초 자료로 활용할 수 있도록 하였으며 주요 내용은 다음과 같다.

- 일차원 비정상상태 열전달 수치해석 프로그램을 작성하였다.
- 작성된 프로그램에 의하여 트리튬 운반 용기의 단열 특성을 알 수 있었다.
- 해석 결과 시간이 경과할수록 트리튬 운반용기의 내부 온도는 상승하나, 저장 용기 외벽은 거의 초기온도를 유지하고 있음을 알 수 있었다.

6. 참고 문헌

1. 정흥석 등, “트리튬의 특성 및 취급기술”, 동위원소회보, 제 15 권 제 2 호, pp.43-48 (2000)
2. Holtslander, W. J., and Yaraskavitch, J. M., *"Tritium Immobilization and Packaging using Metal Hydrides"*, AECL-7151 (1981)
3. Perevezentsev, A. N., et. al., *"Safety Aspects of Tritium Storage in Metal Hydride Form"*, Fusion Technology vol. 28, No. 3, Pt. 2, pp.1404-1409 **(**1995)
4. Perry, R. H. and D. Green, “Perry’s Chemical Engineer’s Handbook”, McGraw-Hill 6th Edition (1984)

감사의 글 : 본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

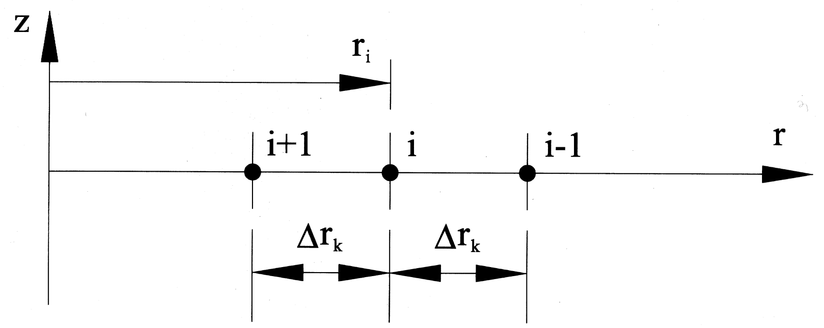

그림 1. 격자 표시

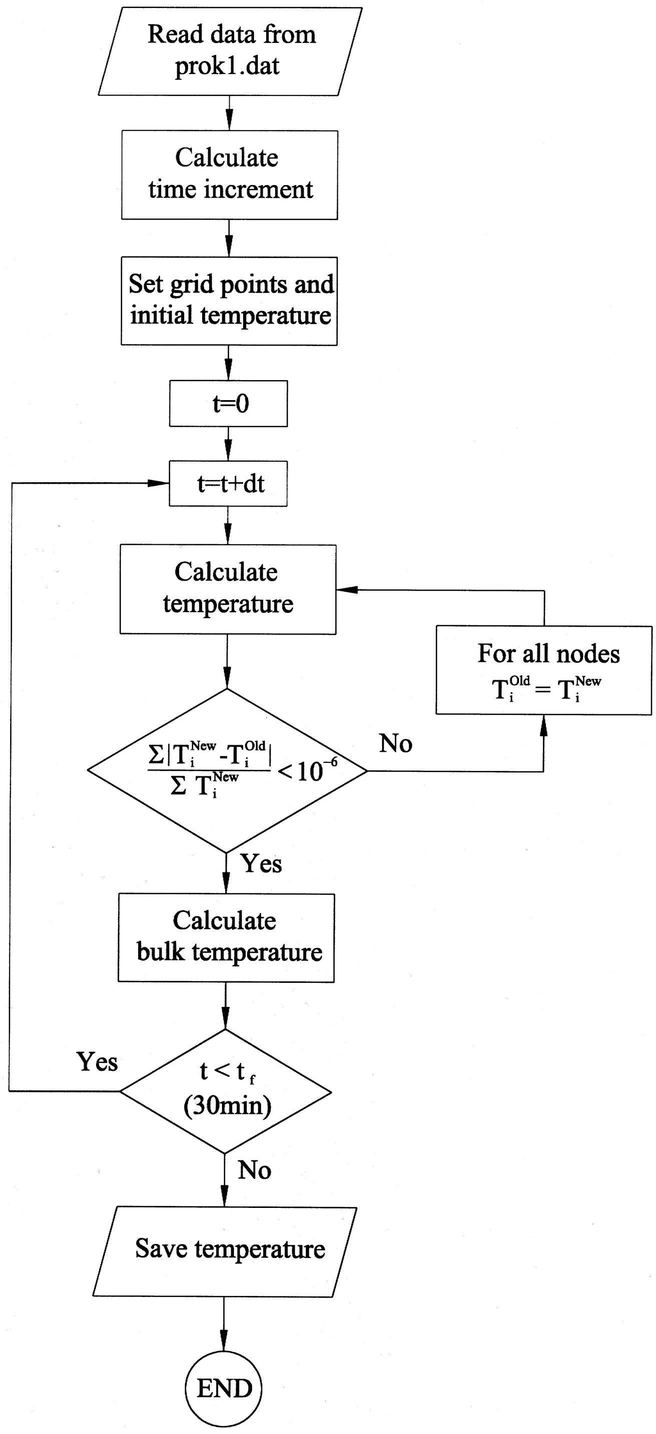
Read data from prok1.dat
Calculate time increment
Set grid points and initial temperature
t=0
t=t+dt
Calculate temperature
For all nodes $T_i^{Old} = T_i^{New}$
$\frac{\Sigma|T_i^{New}-T_i^{Old}|}{\Sigma T_i^{New}} < 10^{-6}$
No
Yes
Calculate bulk temperature
$t < t_f$ (30min)
Yes
No
Save temperature
END

그림 2. 흐름도

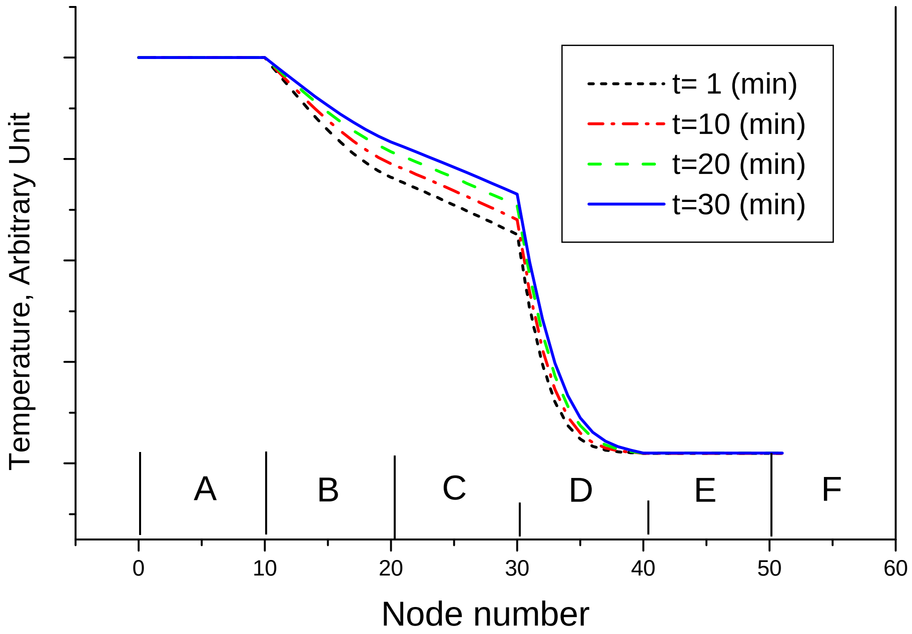
t= 1 (min)
t=10 (min)
t=20 (min)
t=30 (min)
Temperature, Arbitrary Unit
A
B
C
D
E
F
0
10
20
30
40
50
60
Node number

그림 3. 온도 분포