'2000 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

수소동위원소 고정화 반응실험

Immobilization of Hydrogen Isotopes

정흥석, 이민수, 이한수, 안도희, 김광락, 이성호, 최희주, 백승우, 강희석, 김유선

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

중수형 원자로에서 발생되는 삼중수소를 안전하게 저장하기 위해서 금속 수소화물을 이용한 저장법을 모색하였다. 이를 위하여 수소흡장 실험장치를 제작하고 저장재로 사용되는 티타늄과 지르코늄 등의 금속에 대하여 수소흡수 능력을 평가하였다. 또한 장기적으로 안정하게 보관할 수 있게 하기 위하여 저장용기의 저장특성을 평가할 수 있는 저장장치를 제작하고 우라늄을 이용하여 저장 특성을 시험하였다. 티타늄과 지르코늄의 경우에 있어서 H/M값은 2.0으로 나타났으며, 충분히 활성화된 티타늄과 지르코늄 스폰지는 상온에서도 우수한 흡수능력을 나타내었다. 한편 우라늄의 경우에 있어서는 H/M값은 2.5 정도로 나타남을 알 수 있었다. 수소동위원소 흡장 시에 동위원소 효과가 존재함을 확인하였다.

Abstract

Storage of hydrogen isotope gas in a cylinder is a well established technology. However, Immobilization in the solid form is preferred for long-term storage of radioactive isotope gas because of the concern for leakage of the gas. The experimental thermodynamic P-C-T data show that Ti, Zr and U soak up hydrogen isotope gas at a temperature of a few hundred ℃ and modest pressures. Eventually compounds are formed in the metal matrices upon cooling having the approximate stoichiometry MH_2 or $MH_{2.5}$.

1. 서 론

트리튬은 수소의 방사성 동위원소로서 낮은 에너지의 β-입자를 방출하면서 ^{3}He로 방사성 붕괴를 일으킨다. 이 동위원소는 자연환경에서도 많은 양이 존재하지만 인공적으로도

제조되고 사용되어 왔다.[1)]

중수를 냉각재로 이용하고 있는 원자로에서는 다음 반응식과 같이 주로 중수 중의 중수소와 중성자가 반응하여 트리튬이 생성되고 있다.

$$ {}^{2}_{1}H \; + \; {}^{1}_{0}n \rightarrow {}^{3}_{1}H $$

캔두형 원자로에서 생산되는 삼중수소의 양은 약 $89TBq[MW(e) \cdot a]^{-1}$ 정도인 것으로 알려져 있다.[2)] 카나다에서는 중수로 총용량 5565MW(e)에 대해 약 0.5EBq/a 정도의 삼중수소가 생성된 실적이 있다. 카나다 내 캔두형 원자력발전소에서는 삼중수소의 환경방출량을 허용기준치의 1% 이내로 국한시키고자 노력하고 있다. 중수 내의 삼중수소 농도는 발전소 운전시간에 비례하여 증가되고 있어 운전기간 중 미량의 중수의 누출로 인해 방사선 피폭량이 극미량 증가되는 경향에 있다. 이러한 방사선 피폭량을 최소화시키기 위해서는 중수로 내의 중수계통으로부터 삼중수소를 회수하여 그 농도를 낮게 유지해야 할 필요가 있다. 이 과정에서 회수되는 삼중수소는 중수소와의 혼합물로서 수소분자 형태를 지니고 있거나, 또는 삼중수소 자체의 분자로 구성되어 있다. 이렇게 회수되는 삼중수소는 정제 후 장기적으로 안전하게 저장되어야 하는데, 그 방법에는 여러 가지 형식이 있으며, 카나다 등에서 여러 방면으로 연구가 진행되어 왔다.[2)3)4)] 특히 삼중수소의 안전한 저장 및 재활용법에 관해서는 미국을 위시하여 유럽 여러 나라에서도 많은 연구개발이 수행되고 있다.[1)5)6)]

삼중수소 저장법에는 여러 방법이 연구 개발되어 왔다. 삼중수소는 물분자 또는 수소분자와 같이 두 가지 형태로 존재하는데, 물분자 형태의 것은 수소분자 형태의 것보다 인체흡수 독성이 매우 크기 때문에 삼중수소의 농도가 아주 낮지 않다면, 물분자 형태의 것을 그대로 장기 저장하는 것은 가급적 피하는 것이 좋다. 현재까지 알려지고 있는 여러 가지 저장방법들을 종합 정리하여 보면 다음과 같다.

가. 탱크내에 저장

물분자형태의 삼중수소는 탱크 내에 그대로 저장할 수 있지만, 장기 저장기간 중에 누설될 염려가 있으므로 농도가 큰 삼중수소의 장기 저장에는 부적합하다.

나. 시멘트내 저장

물분자형태의 삼중수소는 시멘트 내에서 화학적으로 결합된 수화물 형태로 고정시킬 수 있고, 이러한 시멘트들은 저장이나 폐기물 처리 시 편리한 형태로 포장시킬 수 있다.[7)] 또한, 이 방법은 여러 나라에서 이용되어 왔고, 특히 삼중수소의 농도가 낮은 경우에 상당량이 이 방법으로 처리되어 왔다. 그러나 저장기간 중에는 물과의 화학교환반응으로 삼중수소가 누출될 수 있는 우려가 있고, 500 ℃이상으로 가열되면 삼중수소수가 방출되는 단점이 있다. 한편, 이러한 시멘트들은 유기중합체로 그 표면을 피복 처리하면 물에 의한 삼중수소 누출을 감소시킬 수는 있으나[8)] 삼중수소를 완전하게 저장하기 위해서는 그 시멘트를 항상 건조 상태로 유지시켜 두어야 한다.

다. 흡착제 이용

Zeolite나 Silica gel 등에도 삼중수소수를 흡착 저장시킬 수 있다. 그러나 시멘트의 경우에서와 같이 물에 의해 삼중수소가 누출되기 쉬우며, 200 300 ℃ 이상의 온도에서는 흡수된 물이 방출되어 버리는 단점이 있다.

라. 유기 중합체의 이용

수화물로서 화학적으로 결합하는 것과는 달리 유기 중합체 분자 내에 있는 탄소원자에 수소 및 삼중수소가 결합된 경우 물분자와의 화학교환 반응속도가 매우 느리며, 삼중수소 누출량도 매우 작다. 따라서 이 방법을 삼중수소의 고정화 방법으로 활용할 수 있겠으나, 이러한 형태의 것을 만드는데는 복잡한 공정이 필요하며, 고농도의 삼중수소의 경우에는 이러한 취급공정에서 방사선피복이 심하다는 단점이 있다. 대개 300 ℃이상에서는 이러한 중합체들이 융해 또는 분해하고 결과적으로 연소해 버림으로서 삼중수소가 쉽게 방출될 수도 있다.

마. 삼중수소 가스로서의 저장

수소 분자형태의 삼중수소는 가스 상태이므로 탱크 내에 가스로서 저장될 수도 있다. 가스 저장법은 그 조작기술이 충분하게 개발되어 있음으로 취급이 용이하고, 그 가스를 회수하여 재사용하기에도 매우 편리하다. 그러나 고압의 부피가 큰 기체 상이므로 고체 상태로 저장하는 경우보다 누출될 위험성이 크다는 결점이 있다.

바. 금속 수소화물로서의 저장

금속은 수소와 작용하여 고체상의 금속 수소화물을 생성할 수 있으나, 삼중수소 저장에 이용될 수 있는 금속은 전이금속에 국한되고 있다. 이들 금속 수소화물은 상온에서 분해압력이 낮고 삼중수소의 수용용량이 크다. 또한, 그 제조가 비교적 용이하고, 저장온도에서의 공기 중 또는 물 안에서의 안전성이 크다는 특성을 가지고 있어 삼중수소 저장에 적합한 것으로 알려지고 있다. 이 방법에는 금속수소화물을 만들고 취급하는데 여러 가지 조작이 필요하며, 저장된 삼중수소를 꺼내어 재 사용하는데 있어 주의가 필요하다. 또한, 삼중수소의 방사성 붕괴로 생성되는 ^3He 가스가 금속수소화물의 경우에는 분리되기가 쉬우므로 삼중수소가스의 순도가 높다는 장점이 있다. 따라서 세계각국에서는 금속수소화물을 이용하여 삼중수소를 안전하게 장기 저장하고 있다.

이상과 같이 삼중수소를 안정하게 저장하는 방법들 중에서 금속수소화물을 이용한 저장법이 가장 적합한 것으로 판단되며, 본 논문에서는 삼중수소를 금속 수소화물로서 안전하게 저장하기 위한 목적으로 수소저장 금속의 활성화, 수소동위 원소의 흡착, 저장 및 탈착 거동 및 동위원소 효과 등에 대하여 연구하였다.

2. 실 험

2-1. 저장재 성능실험 장치 제작

실험장치는 그림 1과 같이 구성되어 있다. 전체 시스템은 stainless steel로 되었으며 이

음새 부분은 용접 처리하여 진공 및 고압에서도 누설이 없게 제작하였다. Manifold는 closed system으로서 이의 부피를 측정하기 위해서는 부피를 알고있는 reference가 필요하다. 따라서 50cc의 부피를 가지고 있는 cylinder가 manifold에 부착되어 있다. 반응기는 4개로서 4개의 실험을 순차적으로 행할 수 있도록 되어 있으며 반응기와 manifold 간에는 solenoid valve로 연결되어 외부에서 조절이 가능하도록 하였다.[10]

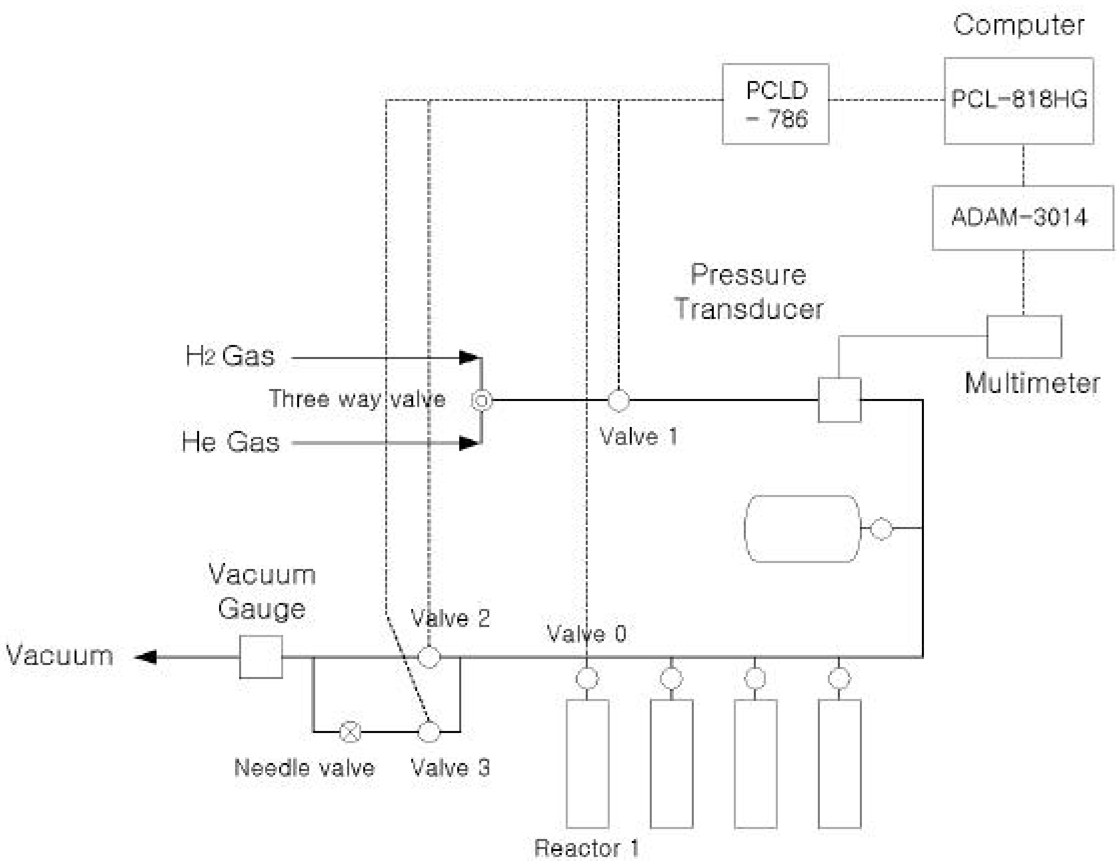

그림 1. 수소흡장 실험장치

시스템 내로 들어오는 기체는 수소와 헬륨으로, 헬륨은 반응관 내부의 부피를 측정하는데 사용되며 수소는 흡착량을 측정하는데 사용된다. 이 두 라인은 three way valve에 연결되어 필요에 따라 유로를 변경시켜 원하는 기체를 주입할 수 있도록 하였으며 기체 주입라인에 solenoid valve를 달아 외부에서 개폐 가능하도록 하였다. 진공은 rotary vacuum pump를 사용하여 약 10^{-2}torr를 유지하도록 하였으며 진공유량을 조절하기 위하여 유량이 큰 라인과 metering valve를 달아 유량을 작게 조절할 수 있도록 한 또다른 라인을 설치하였다. 두 라인의 valve 전부 solenoid로 하여 외부의 control이 가능하도록 하였다. vacuum gauge는 Granville-Phillips 사의 275 convectron gauge로 최대 1000 torr, 최저 4 mtorr를 측정할 수 있다.

Manifold에는 압력을 측정할 수 있는 Omega의 pressure transducer가 부착되어 있어 최대 1000psi의 압력을 측정할 수 있도록 하였고 여기에서 나오는 출력은 multimeter로 입력되어 mV로 나타내진다. 이 신호는 ADAM-3014를 거쳐 -5V - +5V로 증폭되고 이

는 컴퓨터에 내장되어 있는 PCL-818HG로 전송된다. 다시 PCL-818HG에서 나온 출력은 solenoid valves 0,1,2,3에 연결되어 밸브를 on/off 할 수 있도록 구성되어 있다.

PCL-818HG를 이용한 입출력의 control은 GENIE software를 사용하여 TASK를 구성하여 시스템을 control하였다.

2-2. Ti 및 Zr 의 수소 저장 특성 실험방법

실험은 GENIE software를 이용하여 자동으로 실험을 수행하도록 하였다. 수소흡장실험은 다음의 4단계로 구분할 수 있다.

① 진공탈기

시스템 내를 진공으로 처리하는 과정이다. 그림 1에서 보면 수소나 헬륨을 목적에 따라 사용한 후 three way valve로부터 solenoid valve 1까지 잔여기체가 남게되므로 일단 시스템을 원하는 기체로 일정기압까지 올린 후 진공으로 뽑아낸다.

② 기체 부피 측정

Ti 또는 Zr 시료를 반응관 1에 넣은 후 반응관의 빈 부피를 측정하기 위한 것으로 시스템 내를 일정압력으로 올린 후 기체압이 평형에 도달하면 valve 0를 열어 헬륨기체를 반응관 내에 넣는다. 그 후 평형상태가 되면 압력을 측정한 후 전체 시스템을 다시 진공으로 뽑는다. 이 과정을 3번 되풀이하여 평균값을 취한다.

③ 활성화

초기에 시료 표면에 있는 산소 피막을 제거하기 위한 과정이다. 먼저 반응관 내를 진공으로 뽑으면서 반응관을 활성화 온도로 올린다. 활성화 온도는 600℃, 800℃, 1000℃로 하였다. 반응기가 원하는 온도까지 올라간 후 시스템 내에 수소 또는 중수소를 일정압력으로 채운 후 그림 1의 valve 0를 열어 지르칼로이 시료와 수소동위원소를 접촉시킨다. 원하는 시간 후에 다시 진공으로 뽑아내며 반응관의 온도를 실험온도로 낮춘다.

④ 수소동위원소 흡장실험

활성화가 끝난 시료에 원하는 실험온도에서 수소를 흡장 시킨다. 평형압력에 도달하면 다시 진공으로 시스템내의 수소를 제거한다. 이 과정을 3회 반복하는데 반복할 때마다 압력을 측정하여 수소흡착량을 계산하고 궁극적으로 H/M 비율을 산출한다.

그림 1에서 반응기는 직경 3/8inch, 길이 150mm의 S.S. tube를 이용하였다. 실험 결과 흡착량 계산은 식(1)과 같이 수행하였다. 수소흡착 장치 및 반응관을 진공으로 한 후 manifold에 수소를 40atm의 압력으로 채운 후 반응관을 열면 수소가 금속에 흡장된다. 반응관과 manifold를 연결하는 부분이 양끝의 온도가 매우 차이가 난다. 즉 반응관의 온도를 400℃로 할 경우 반응관 쪽의 온도는 400℃인데 비하여 다른 끝은 water bath의 온도 즉 약 18℃정도로 되어 연결부분을 통한 온도구배가 생긴다. 이를 고려한 수소의 흡착양은 다음의 식에 의하여 구해질 수 있다.

$$\frac{P_i V_m}{T_m} = \frac{P_e V_m}{T_m} + \int_0^L \frac{P_e \, dV}{T} + \frac{P_e V_r}{T_r} + n_{ads}R$$
$$= \frac{P_e V_m}{T_m} + \int_0^L \frac{P_e A \, dx}{T(x)} + \frac{P_e V_r}{T_r} + n_{ads}R \quad \text{.......................} \quad (1)$$
$$= \frac{P_e V_m}{T_m} + \frac{P_e V_c}{T_{LM}} + \frac{P_e V_r}{T_r} + n_{ads}R$$

여기서 P = **압력**(atm)
V = **부피**(ml)
T = **온도**(K)
n_{ads} = **흡착량** (mole)
R = gas constant(22400/273)
subscript i = **처음 상태**
e = **평형상태**
m = manifold
c = solenoid valve**로부터 반응관까지의 연결부분**
r = **반응관**

여기서 T_{LM}**은** x=0 **에서의 온도** T_0**와** x=L**에서의 온도** T_L**의** logarithmic mean**을 나타낸다**.

2-3. 저장용기의 특성실험 장치 제작

저장용기의 수소동위원소 저장 특성 실험을 위한 장치를 그림 2**와 같이 설계하여 제작하였다**. **이 장치의 특징은 저장용기 내 수소의 순환 유량에 따른 저장특성을 파악하기 위한 순환펌프와 관련 밸브 및 배관이 설치되어 있으며**, **저장재의 활성화 및 수소 탈착시 진공도를** 1×10^{-6} Torr **이하로 유지하기 위한** molecular turbo pump **및 관련 계측기가 부착되어 있다는 점이다**. **실험장치의 주요 사양을 정리하면 다음과 같다**.

o material : stainless steel, welded
o **진공도** : 1×10^{-6} Torr
o Baratron gauge (0 1,000 Torr)
o Calibrated gas volume : 510㎤
o Circulation pump : diaphragm type
o 1 UHV and 1 Convectorr gauge tubes for molecular turbo pump
o all metal, welded bellows-sealed valve
o socket welded or Cajon VCR with a retainer couplings

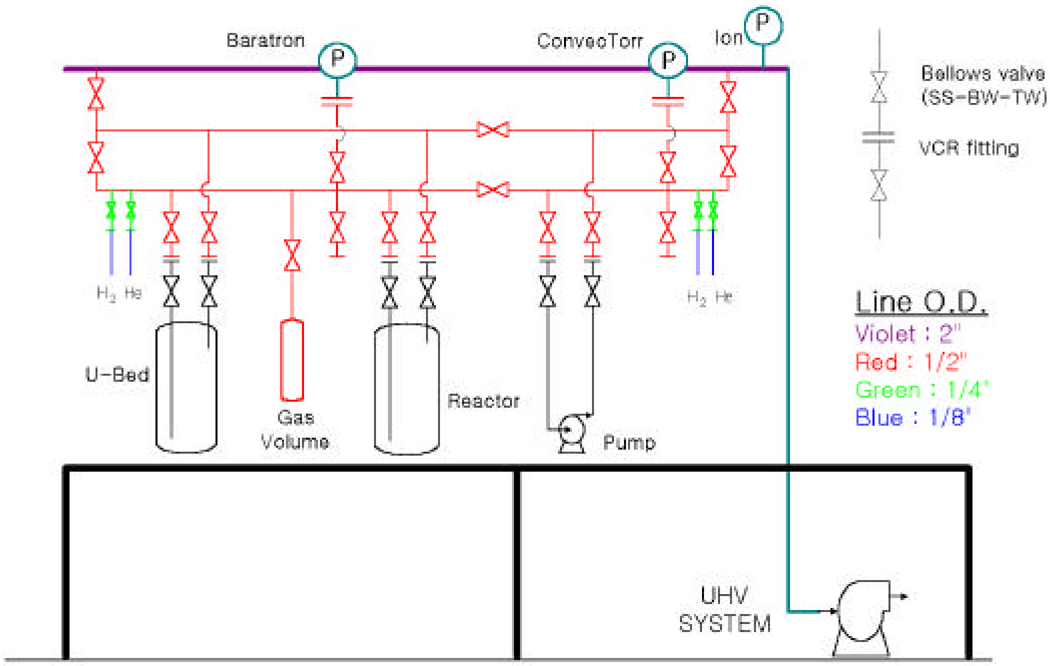

그림 2. 저장용기의 저장특성 실험장치

2-4. 우라늄 반응관 설계 및 제작

우라늄의 트리튬 저장특성 실험을 위하여 그림 3과 같이 반응관을 제작하였다. 한 쪽 끝이 막힌 1/2“ SUS tube **내에 우라늄을 충진하고, 튜브의 상부는 그림 2의 실험장치에 연결할 수 있는** VCR male nut **그리고 우라늄 분말의 유출 방지를 위한** 2μm filter gasket retainer**가 부착되어 있다.**

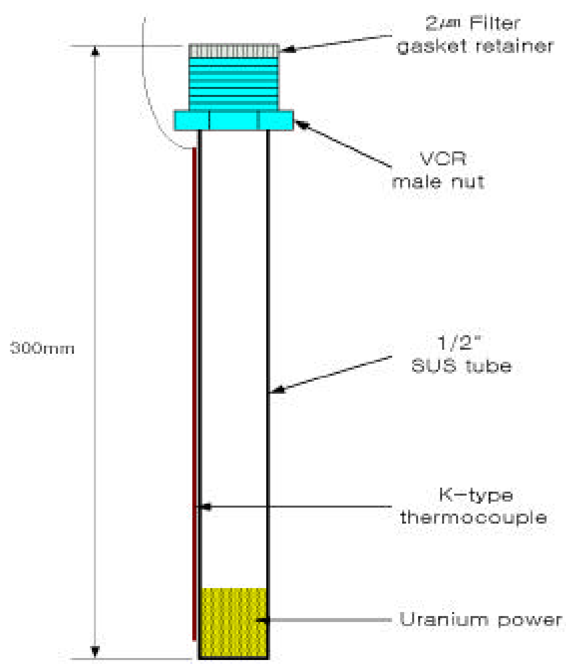

그림 3. 우라늄의 수소동위원소 저장 특성 실험을 위한 반응관

2-5. 우라늄의 수소동위원소 저장 특성실험

트리튬의 임시 저장재로 사용되는 우라늄의 수소저장 특성을 확인하기 위하여 제작된 그림 2의 실험장치와 그림 3의 우라늄 반응관를 이용하여 우라늄의 수소저장 특성 실험을 수행하였다. 우라늄 시료중 전체 우라늄 함량은 99.7 wt% 정도로 상당히 높은 값의 순수 우라늄 시료로서, U^{235}가 빠져나가고 99.8wt% 정도가 U^{238}인 감손 우라늄을 사용하였다. 감손 우라늄에 함유된 불순물은 대부분의 원소들이 극미량으로 존재하므로 우라늄의 수소저장 특성에는 영향을 미치지 않을 것으로 판단되었다.

실험수행 전에 510cc의 standard bulb를 이용하여 manifold의 체적을 구한 결과 119.4cc 이었다. 준비된 우라늄 시료 1.52g을 그림 2-7의 반응관에 충진하고 활성화시켰는데 그 과정은 다음과 같다.

o evacuation at 10^{-6}Torr and 460℃ for 5hr

o hydriding at 25℃ and 2atm for 3hr

o evacuation at 10^{-6}Torr and 460℃ for 5hr

그리고 온도를 상온으로 내린 후, 약 20 Torr의 수소가스를 manifold에 채운 후 시료 cell의 밸브를 열어 hydriding 반응을 시켰다. 계속적으로 소량씩의 수소를 더하면서 반응을 시켜 PCT 곡선을 구하였다. 실험이 끝난 후 manifold와 반응 cell 내의 수소가스를 evacuation 한 후에 헬륨가스를 이용하여 volume calibration을 수행하였다. 흡장 반응 실험은 200℃, 225℃ 및 250℃에서 수행하였다.

3. 실험결과 및 고찰

3-1. Ti 및 Zr 의 수소 저장 특성

1) 활성화 특성

일반적으로 수소 저장금속들은 대기 중에서 수소보다 친화력이 더 큰 산소와 반응하여 금속 표면에 산소 피막을 형성하고 이로 인하여 수소의 chemisorption 반응이 blocking 되어 수소화반응이 일어나지 못하게 한다. 이러한 상태의 수소저장금속에 수소가 이동하여 수소화 반응이 쉽게 일어나도록 하는 과정을 활성화 처리라 하며 모든 수소저장 금속 및 합금에 대하여 수소 저장실험을 수행하기 전 반드시 전처리 과정이 필요하다.

본 연구에서는 Zr sponge를 이용하여 600℃, 800℃ 및 1000℃에서 각각 1시간 동안 활성화 시킨 후, 활성화 온도에 따른 상온에서의 수소 저장 특성 연구하였다. GENIE program 을 이용한 저장재의 활성화 방법은 우선 반응관 내를 진공으로 뽑으면서 반응관을 활성화 온도로 각각 상승시킨 후 시스템 내에 수소를 20atm으로 채운 후 valve를 열어 저장재와 수소를 접촉시킨다. 30분 후에 다시 진공으로 뽑아내며 1시간 이상 degasing 처리하였다. 그림 4 (A)는 1.5g의 Zr sponge를 1000℃에서 activation 시킨 후 25℃의 상온에서 수소흡수 반응 결과이다. 실험결과에서와 같이 25℃, 40기압에서 Zr sponge는 H/M의 값을 2.0을 보여줌으로서 수소흡수의 효과가 탁월하다는 것을 보여주고 있다. 그림 4 (B)는 1.5g 의 Zr sponge를 800℃에서 activation 시킨 후 25℃의 상온에서 수소흡수 반응 결과이다. 실험결과에서 알 수 있듯이 1000℃에서 activation 시킨 후 나타

낸 수소 흡착량에 비하여 다소 낮은 1.97 의 H/M의 값을 나타내었다. 그림 4 (C)는 1.5g 의 Zr sponge를 600℃에서 activation 시킨 후 25℃의 상온에서 수소흡착 반응 결과이다. 실험결과에서와 같이 800℃ 및 1000℃에서 activation 시킨 후 수소흡착시 보다 다소 낮은 1.95 의 H/M의 값을 나타내었다. 이러한 실험결과들로 미루어 보아 Zr sponge를 600℃ 이상에서 활성화시킬 경우 활성화온도에 따른 수소 흡수능의 영향의 거의 없음을 알 수 있었다.

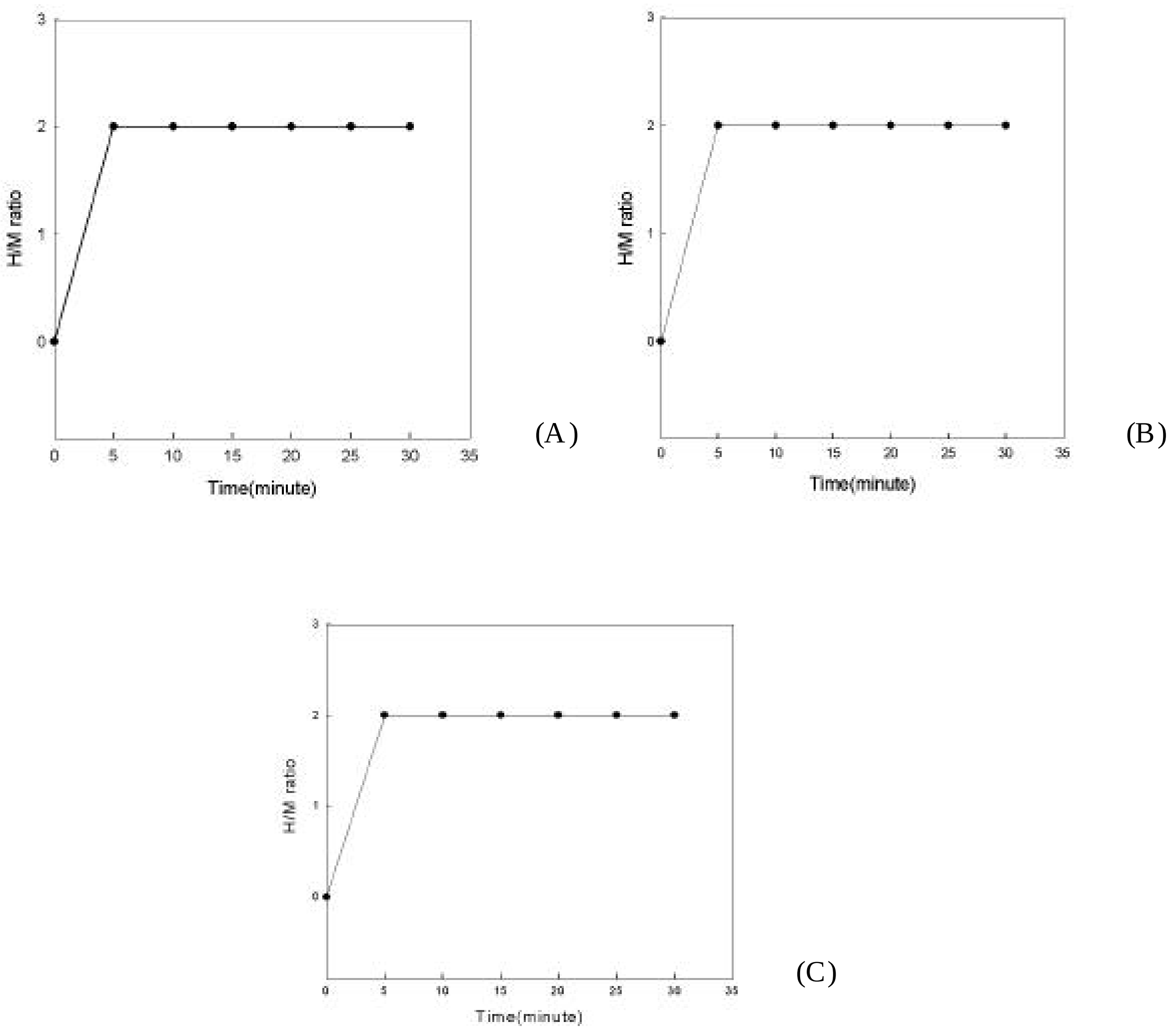

그림 4. Hydrogen absorption by Zr sponge at 25℃
(activation temp.: (A)1000℃, (B)800℃, (C)600℃))

2) 반응온도의 영향

그림 5의 실험결과들은 800℃에서 활성화시킨 Ti sponge을 각각 이용하여 온도 25℃, 200℃ 및 500℃에서의 반응온도에 따른 수소흡수 특성을 나타내었다. 그림에서와 같이 Ti sponge를 800℃에서 activation 시켰을 경우, 25℃의 상온, 40기압에서도 H/M의 값을 2.0을 나타냄으로서 수소흡수의 효과가 탁월하다는 것을 보여주었고, 반응온도에 따른 수소 흡수능의 영향은 거의 없었다. 또한 반응이 단시간에 완료될 정도로 수소 흡수에 대한

반응속도가 비교적 빠르게 일어났으며, 저장재에 대한 수소흡수반응이 발열 반응이므로 수소가 반응기로 처음 주입될 때 반응기 온도가 초기 반응온도 25℃ **에서** 157℃ **까지 급상승하였다. 또한 이와 같은 실험결과들로 미루어 볼 때** 800℃ **이상에서** Ti sponge**를 잘** activation **시켰을 경우 반응온도에 다른 수소흡수량의 차이는 거의 없었다. 이러한 실험결과들을 볼 때** sponge **형태의** Ti **은 수소를 흡수할 수 있는 표면적이 상당히 높음을 알 수 있었다.**

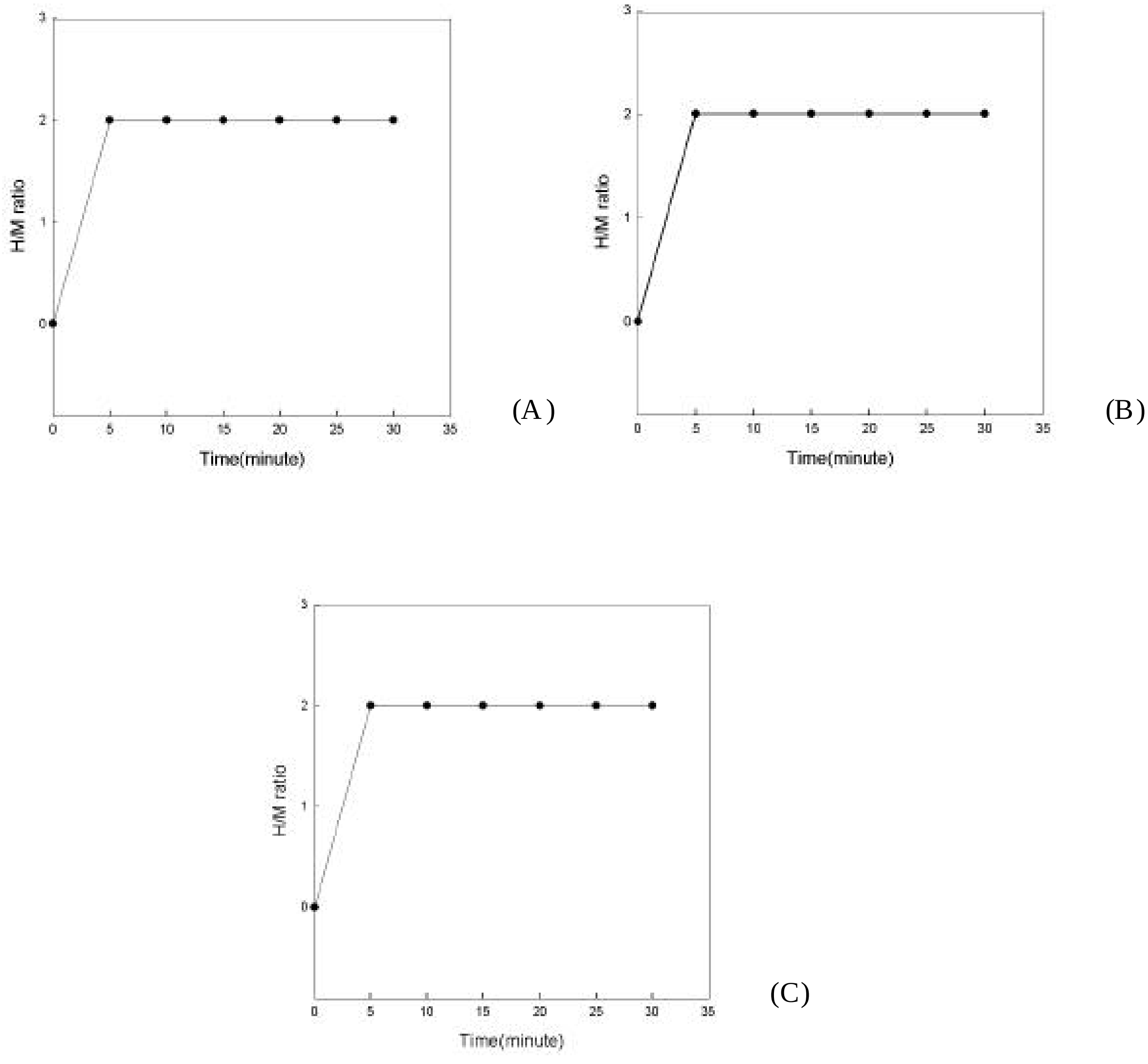

그림 5. Hydrogen absorption by Ti sponge at (A)25℃, (B)300℃, (C)500℃
(activation temp.: 800℃)

3-2. 우라늄의 수소 저장 특성

그림 6**에 나타난 바와 같이 수소의 평형압력은 수소와 우라늄의 원자비** H/M**의 증가에 따라 거의 일정하다가** H/M**의 값이** 2.0**일 때부터 급격히 증가함을 알 수 있다. 이와 같이** H/M**의 증가에 관계없이 수소 평형압력이 거의 일정한 부분을** plateau **영역이라고 부른**

다. 이 때의 수소 평형압력은 수소를 가역적으로 저장-방출시키는 수소의 양을 의미하는데, 200, 225 및 250℃에서 각각 1.2, 6.1, 9.2Torr로 온도의 증가에 따라 크게 증가함을 알 수 있다. 한편 수소저장 용량은 200-250℃, 수소평형압력 100Torr 이하에서 수소와 우라늄의 원자비 H/M로 2.5 정도를 나타내었다. 반응 전과 후의 우라늄의 상태변화를 살펴보면 실험 이전에는 금속 덩어리 형태이었으나 반복적인 수소화와 탈수소화 반응에 의해 분말 상태로 변화되었다

.

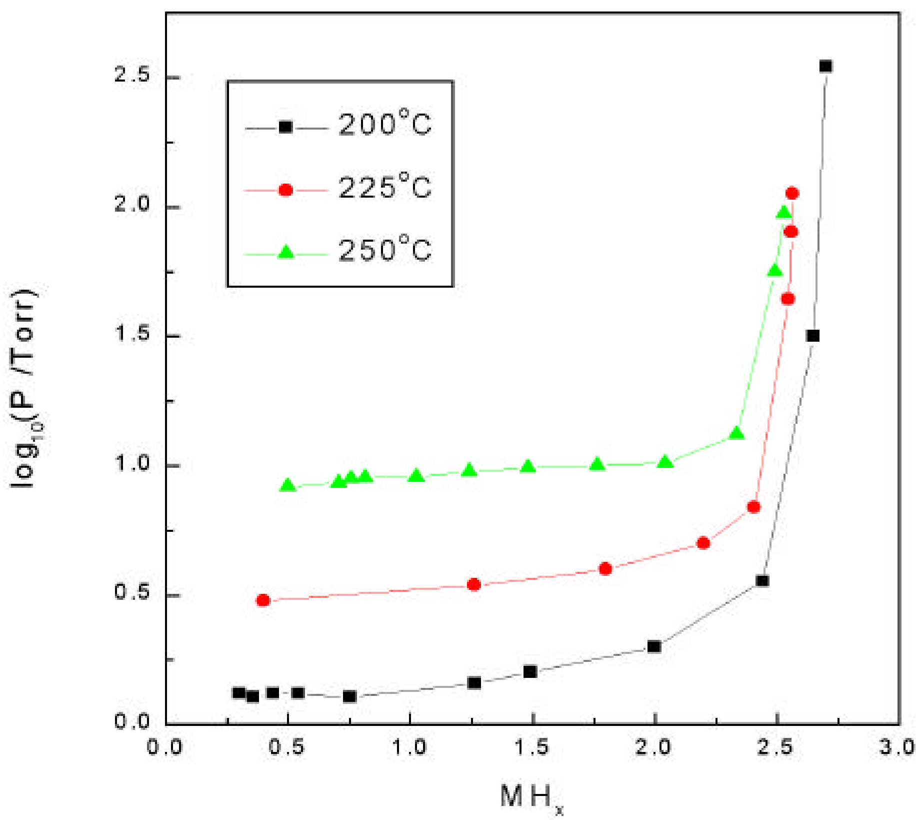

그림 6. 우라늄-수소 반응의 PCT 측정 결과.

3-3. 동위원소 효과

그림 7에 수소와 중수소를 사용하였을 때의 동위원소 효과 차이를 나타내었다.

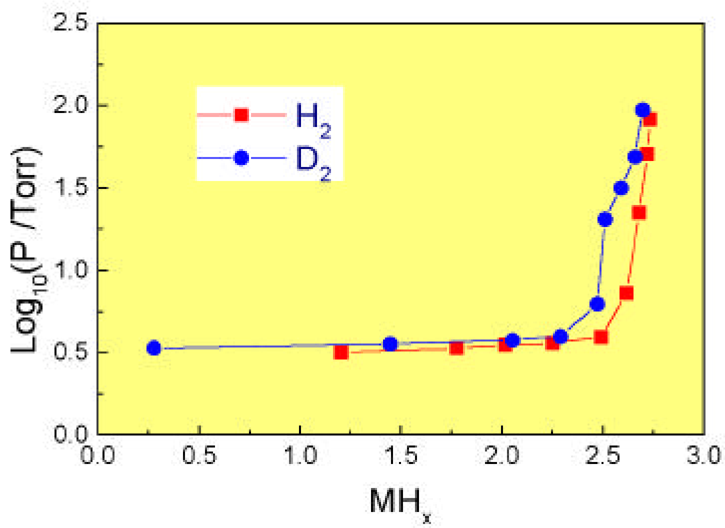

그림 7. 동위원소 효과

중수소의 경우 수소 보다 평형압력이 약간 큼을 알 수 있었다.

3-4. 안전한 장기저장

원자력발전소에서 회수된 트리튬의 안전한 취급을 위해 다음 내용들을 병행 연구하고 있다.

(1) **온도 및 압력에 관한 안전성**

삼중수소를 안전하게 장기 저장하는데 있어 무엇보다도 가장 중요한 것은 삼중수소가 자연환경에 누설될 가능성을 최소한 억제하는 문제이다. 이러한 가능성 중에서 가장 중요한 것은 삼중수소 저장재 내부에 높은 압력이 발생하고, 이 압력으로 삼중수소가 누설될 수도 있다는 점이 있다. 즉, 삼중수소 저장재가 돌발적인 가열현상, 삼중수소의 방사성붕괴열의 축적, 일반적인 화재사건 등으로 과열되면 높은 압력이 발생된다. 삼중수소의 방사선붕괴열은 1.95watt/g-mole**정도이지만, 이러한 열이라도 제거됨 없이 축적만 된다면 금속수소화물 자체의 온도를 상승시켜 수십 내지 수백 기압의 압력까지도 발생할 수 있게 된다. 따라서 용기설계에 있어서는 이러한 돌발적인 가열현상 및 이에 따른 압력증가에 의한 삼중수소의 누설 가능성 문제들을 면밀하게 검토 분석하여, 그 설계내용에 적극 반영시키고 있다.**

(2) **삼중수소 방사선붕괴로 발생될** ^{3}He **가스 처리문제**

삼중수소가 그 방사선붕괴로 생성한 ^{3}He **가스가 생성될 경우, 장기 저장기간 중에** ^{3}He **가스가 외부로 누설될 가능성에 대한 예방조치를 용기설계 단계에서 적극 검토 중이다.**

(3) **삼중수소 누설 및** ^{3}He **가스 누설 경보장치**

(1), (2)항목에서 제시한 내용들이 용기 설계 및 그 작동절차 설정에 적극 반영되었다고 해도 최악의 경우에 대비한 검출장치 및 이에 관련된 경보장치가 반드시 마련되어 있어야 한다. 즉, 삼중수소가스와 ^{3}He 가스의 누설상태를 표시하여 주는 검출장치와 일정한 수준이상에 도달한 경우 알려주는 경보장치를 마련하고 있다.

(4) 삼중수소 함량의 정기적 측정

저장되고 있는 삼중수소의 양을 측정할 수 있는 장치를 마련하여 두고, 정기적으로 그 함량을 측정하여 삼중수소가스의 누설여부, ^{3}He 가스의 보전 또는 누설 가능성 등을 검토하고 있다.

(5) 삼중수소의 방사능 측정 및 그 차폐조치

삼중수소의 방사능은 낮은 에너지의 β-선에 인한 것임으로 그 차폐가 용이하지만 장기 저장되는 시설의 방사선 차폐효과를 주기적으로 검토, 분석하여 작업자의 방사선피복을 최대한 예방하도록 하고 있다.

(6) 저장된 삼중수소의 탈착 재활용 또는 운반대책

저장되고 있는 삼중수소를 탈착, 재활용할 필요가 발생하였을 경우를 대비하여 탈착방법, 가열장치, 탈착된 삼중수소가스의 취급절차 등에 관한 장치[11] 및 작동절차들을 사전에 준비해 두어야 한다. 또한, 저장된 삼중수소를 다른 곳으로 옮겨가야 하는 경우에 대비하여 운반용기를 사전에 준비하여 두어야 한다.

4. 결 론

중수형 원자력발전소에서 발생되는 트리튬을 안전하게 저장하기 위해서 금속 수소화물을 이용한 저장법을 실험하였다. 이를 위하여 수소흡장 실험장치를 제작하고 저장재로 사용되는 티타늄과 지르코늄 등의 금속에 대하여 수소흡수 능력을 평가하였다. 또한 장기적으로 안정하게 보관할 수 있게 하기 위하여 저장용기의 저장특성을 평가할 수 있는 저장장치를 제작하고 우라늄을 이용하여 저장 특성을 시험하였으며 주요 실험 결과는 다음과 같다.

- 티타늄과 지르코늄의 경우에 있어서 H/M값은 2.0으로 나타났으며, 충분히 활성화된 티타늄과 지르코늄 스폰지는 저온에서도 우수한 흡수능력을 나타내었다.
- 우라늄의 경우에 있어서는 H/M값은 2.5 정도로 나타남을 알 수 있었다.
- 수소동위원소 흡장 시에 동위원소 효과가 존재함을 확인하였다.
  같은 조성에서 중수소의 경우 수소 보다 평형압력이 다소 큼을 알 수 있었다.

5. 참고 문헌

1. Heung, L. K., *"Developments in Tritium Storage and Transportation at the Savannah River, (U)"*, **WSRC-MS-93-281.**(1993)

2. Holtslander, W. J., Drolet, T. S., and Osborane, R. V., *"Recovery of Tritium from CANDU Reactors, Its Storages and Monitoring of its Migration in the Environment",* Report **AECL-6544.** (July, 1979)

3. Holtslander, W. J., and Yaraskavitch, J. M., *"Tritium Immobilization and Packaging using Metal Hydrides",* Report **AECL-7151.**(April, 1981)

4. Shmayda, W. T., et. al., *"St. 737 for Tritium Service, Experimental Evaluation",* Fusion Technology, Vol. 21, No. 2, **p-1024-1029.**(1992)

5. Ortman, M. S., et. al., *"Tritium processing at the Savannah River Site",* J. Vac. Sci. Technol. **A-8(3)** May/June.(1990)

6. Perevezentsev, A. N., et. al., *"Safety Aspects of Tritium Storage in Metal Hydride Form",* Fusion Technology vol. 28, No. 3, Pt. 2, **p-1404-1409.**(1995)

7. Mckay, HAC, *"Tritium Immobilization",* European Appl. Res. Rept. Nucl. Sci. Technol. **I-3.**(1979)

8. Colunb, O. P., et. al., Proc. Int Conf. *"On Radiation Effects and Tritium Technology for Fusion Reactors",* Conf. 750989, **III-129.**(1976)

9. Mullins, D. F., et. al., *"Development of Organic Tritium Light Technology at Ontario Hydro",* Ibid. Vol. 21, **p-312 317.**(1992)

10. **이한수 등**, "**지르칼로이 스크랩을 이용한 수소동위원소 저장**", **한국원자력연구소**, **KAERI/RR-1928/98.**(1999)

11. Its, R. Y., *"Method of Tritium Storage and its Container and Accessory",* Jap. Patent, **平 4-42322.**(1992)

감사의 글 : 본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었음.