소형 ZrCo 용기의 흡탈장 반복 성능 평가

<u>심명화</u>, 정흥석^{*},이종국, 조승연¹, 안무영¹, 장민호¹, 송규민² 한국원자력연구원, ¹한국핵융합연구소, ²한국전력연구원 (hschung1@kaeri.re.kr^{*})

Performance of a small ZrCo bed during successive hydridings/dehydridings

Myung-Hwa Shim, Hongsuk Chung^{*}, Jong-kuk Lee, Seungyon Cho¹, Mu-Young Ahn¹, Min-Ho Chang¹, Kyu-Min Song²

Korea Atomic Energy Research Institute, ¹National Fusion Research Institute,

²Korea Electric Power Research Institute

(hschung1@kaeri.re.kr^{*})

<u>서론</u>

ITER(International thermal experimental reactor) SDS(Storage and delivery system) 용기는 삼중수소를 저장 후 핵융합 반응을 위한 연료 공급 시 삼중수소를 공급 하는 장치이다 [1]. ITER SDS 용기는 요구 성능으로 90% 수소를 수 분 내에 흡장하고, 90% 수소를 20 Pam³/s 속도로 공급하고, 1~70 g의 삼중수소를 ±1% 정확도 이내로 24시간 내 측정해야한다 [2, 3]. 현재 ITER SDS 용기에 삼중수소 저장재로 ZrCo를 쓰도록 되어 있다 [1, 2]. ZrCo 하이드라이드는 자발적인 반응으로 ZrH₂와 ZrCo₂로 깨지는 불균일화 반응이 일어난다 [4]. ZrCo 하이드라이드 불균일화 반응은 온도가 높을수록 평형 압력이 높을수록 기하급수적으로 반응 속도가 높아진다 [4].

ITER SDS 용기를 위해 개발된 ZrCo 용기는 두 가지가 있다 [3, 5]. JAEA TPL에서 개발 한 ZrCo 용기는 10 g의 삼중수소를 ZrCoT_{1.8}까지 흡장하고, ~280 g ZrCo에 구리 볼을 부 피비로 ZrCo의 1.5배 썩어 1차 용기에 담고 1차 용기 외벽에 가열기를 설치하였다 [3]. 이 용기에서 ZrCo 하이드라이드를 350°C로 예열한 후 350°C 온도에서 탈장시 0.94 Pam³/s ((3.4×10⁻³Pam³/s)/(g-ZrCo)) 평균 공급 속도로 90% 수소가 60 분 만에 공급되었다. 이 용기에서 흡탈장 14 번 반복 후 몇 %의 성능 감소가 발생하였다. FzK TLK에서 개발한 ZrCo 용기는 ~72 g의 삼중수소를 ZrCoT_{1.8}까지 흡장하는 용기로 2 kg의 ZrCo를 1차 용기 내 1 mm 두께의 구리 핀 사이에 넣고, 1차 용기 중심축에 내부 가열기와 1차 용기 외벽 에 외부 가열기로 가열한다. 실내 온도에서 350°C로 5분 가열하면서 350°C에서 탈장시 11.8 Pm³/s (5.9×10⁻³Pam³/s)/(g-ZrCo)) 평균 속도로 90%의 수소가 34 분 만에 공급되었 다. 또한 이 용기에서 50번 흡탈장 반복시 불균일화 반응으로 약 9%의 성능 감소가 측정 되었다.

SDS 용기 1개당 저장되는 최대 삼중수소의 양이 최근 ITER 사이트 프랑스 안전 규제에 따라 100 g에서 70 g 으로 바뀌었다. 1:1 용기는 70 g의 삼중수소를 1274 g ZrCo에 ZrCoT_{2.75}까지 물리적 한계로 흡장하고, 운전 시에는 ZrCoT_{2.0}에서 ZrCoT_{0.2}까지 45.8 g의 삼중수소를 공급한다. 1/10 용기에는 127.4 g ZrCo에 7 g의 삼중수소를 ZrCoT_{2.75}까지 물리적 한계로 흡장하고, 운전을 위해서는 ZrCoT_{2.0}까지 5.09 g을 흡장한다.

본 연구에서는 1/10 용기를 제작하여 흡탈장 속도를 측정하고, 25번의 흡탈장 반복시 흡탈장 성능 지속 정도를 평가하였다. 또한 25번 흡탈장 반복후 500°C에서 잔류 수소를 제거하고 흡탈장 속도를 측정하였다.

실험

Fig. 1은 1/10 용기의 구조와 수치를 나타낸다. 빠른 흡탈장을 구현하기 위해 0.5µm 필터 원통 (51 mm 외경)과 1차 용기 (57 mm 내경, 61 mm 외경) 사이 3 mm 간격에 127.4 g ZrCo를 약 60~70% 높이로 담았다. 수소 유입과 유출을 위한 튜브를 필터 원통 내부 중 심에 설치하여, 흡장시 수소가 필터를 통해 ZrCo 층으로 공급되고, 탈장시 수소가 ZrCo 하이드라이드에서 필터를 통해 공급되도록 하였다. 새로운 1/10 용기의 장점은 ZrCo 적 층 높이가 3mm로 낮고, ZrCo의 전열면적이 ~2.04 cm²/g-ZrCo으로 높고, 필터 전열면적 또한 ~1.82 cm²/g으로 높다.

수소 초기 압력 약 100 kPa에서 ZrCoH_{1.8}까지 흡장시 흡장 속도와 온도 변화를 측정하였다. ZrCoH_{1.8}까지 흡장후 표 1과 같이 ZrCo 하이드라이드를 300℃까지 예열한 후 진공 펌프로 수소를 공급하면서 350℃로 가열하여 탈장하였다. 위와 같은 흡탈장을 25 번 반 복하면서 흡장 속도와 탈장 속도의 변화를 측정하였다. 26번 탈장후 500℃로 가열하여 잔류 수소를 제거한 후 흡탈장 속도를 측정하였다.

and and and an and an and and and and an		
State	Heater Temperature	Heating time (min)
Preheating	Room temperature → 300℃	5
D 11	$300^{\circ}C \rightarrow 350^{\circ}C$	5

350℃

Table 1. Heating conditions during preheating and delivery

실험 결과

<u>1. 수소 흡탈장 속도</u>

Delivery

ZrCoT_{1.8}까지 흡장시 3.2 분 안에 99%의 수소가 흡장되었고, 용기 맨 윗부분의 온도측 정점에서 온도는 약 120℃까지 높아졌다. 탈장시 평균 탈장 속도는 0.89Pam³/s로 90%의 수소가 32분 만에 공급되었다 (Fig. 2). 탈장시 용기 상부 중심의 가열기 온도는 350℃ 이지만 상부에서 2~3cm 떨어진 지점에서의 온도가 약 340℃로 측정되었다. 가열기에서 용기가 2~3 cm 떨어져 공기를 통해 가열되기 때문에 용기 온도가 가열기 온도보다 떨어 짐을 알 수 있다.

60

2. 25번 흡탈장 반복시 흡탈장 속도

1/10 용기에 흡탈장 25번 반복시 흡탈장 지속 성능을 다음과 같이 평가하였다. 25번의 흡장 반복 시 350°C에서 1시간 탈장하여 수소가 100% 탈장되지 않기 때문에 탈장으로 나 온 양에 맞추어 Fig 3과 같이 수소를 흡장하였다. 25번 흡장 반복시 ZrCo에 최대 흡장되 는 양은 ZrCoH_{1.8}에서 ZrCoH_{2.05}로 증가하였다. 25번 흡장이 반복되면서 90% 흡장 시간은 ~0.6 분에서 ~7 분으로 증가하고, 95% 흡장 시간은 ~1분에서 ~25분으로, 99.5% 흡장 시 간은 ~4분에서 ~39분으로 증가하였다. 25번 흡탈장이 반복되면서 ZrCo에 축적되는 수소 의 양이 증가하면서 흡장 시간이 증가된 것으로 예측된다.

Fig. 4는 25번의 흡탈장 반복시 90% 수소 탈장 시간과 탈장 속도의 변화를 보여주고 있다. 약 24번 흡탈장까지는 거의 탈장 속도가 거의 일정하고, 25번째 탈장시에는 탈장 속도가 약간 감소했음을 알 수 있다. 25번의 흡탈장시 탈장을 반복할수록 350°C에서 1시 간 탈장후 ZrCo에 남아있는 수소의 양이 ZrCo에 남은 수소의 몰비 (ZrCoHx, x)로 0.02에 서 0.25까지 증가하였다. 이로써 1번의 탈장으로 수소가 약 0.01[H]/[ZrCo] 비율로 ZrCo 에 축적됨을 알 수 있다.

3. 축적된 수소 제거후 흡탈장 속도

26번째 탈장시 350°C로 예열후 350°C에서 탈장시 90% 수소 탈장 시간은 300°C 예열후 350°C로 가열하여 탈장시의 탈장 시간 ~35.5 분에서 34.1 분으로 약 1.4 분 감소하였다 (Fig. 5). 350°C에서 탈장 후 온도를 400°C와 500°C로 높여 탈장시 ZrCo로부터 거의 모든 수소가 빠져나왔다. 이로써 25번 흡탈장을 반복함으로 ZrCo에 축적된 수소 ~0.2[H]/[ZrCo]를 진공 펌핑하에 용기 온도를 500°C까지 높임으로 약 2시간 만에 제거할 수 있음을 알 수 있다. 26번째 탈장과 잔류 수소 제거후 27번째 흡장 속도와 탈장 속도 특 측정하였다. 27번째 흡장 속도와 탈장 속도는 첫 번째 흡장 속도와 탈장 속도와 거의 같았다.

결론

ZrCo의 적층 높이가 낮고, 전열 면적이 크고, 필터 표면적이 큰 1/10 용기에 90%의 수 소가 1 분내 흡장되었고, 90%의 수소는 약 32 분 내에 공급되었다. 이 용기에서 25번의 흡탈장시 90% 수소 흡장 시간은 ~1 분에서 ~7 분으로 증가하였고, 90% 수소 탈장 시간은 ~32 분에서 ~35.5분으로 증가하였다. 25 번 흡탈장 반복으로 수소가 몰비로 0.25[H]/[ZrCo]로 축적되어 1 번의 탈장시 ~0.01[H]/[ZrCo]의 수소가 축적되는 것으로 예상된다. 26 번 흡탈장 반복후에 500℃에서 약 두시간 잔류 수소 제거하고 난뒤 흡탈장 속도는 처음과 같이 환원되었다.

본 연구는 과학기술부 국제핵융합실험로(ITER) 공동개발사업의 일환으로 수행되었음.

참고문헌

1. R. Lasser, L. Dorr, M. Glugla, T. Hayashi, D.K. Murdoch, "Storage and Delivery System of the ITER Fuel Processing Plant", *Fusion Sci. & Tech.*, **41**, 854-858 (2002).

2. ITER Joint Central Team and Home Teams, "Design Description Document 3.2 Tritium Plant", ITER EDA Document, (2002).

3. T. Hayashi, T. Suzuki, S. Konishi, T. Yamanishi, "Development of ZrCo beds for ITER tritium storage and delivery", *Fusion Sci. & Tech.*, **41**, 801-804 (2002).

4. S. Konishi, T. Nagasaki, K. Okuno, "Reversible Disproportionation of ZrCo under high temperature and hydrogen pressure ", *J. Nucl. Mater.*, **223**, 294-299 (1995).

5. M. Glugla, D.K. Murdoch, A. Antipenkov, S. Beloglazov, I. Cristescu, I.-R.

Cristescu, C. Day, R. Lasser, A. Mack, "ITER fuel cycle R&D: Consequences for the design", *Fusion Eng. & Des.*, **81**, 733-744 (2006).



Fig. 2. Change of the delivered hydrogen and temperature during a delivery

Fig. 3. Change of the reaction time 99.5% hydriding during 25 successive hydriding/dehydridings



Fig. 4. Reaction time and average delivery rate for a 90% delivery during 25 successive hydridings/dehydridings

Fig. 5. Residual hydrogen in ZrCo at the 26th dehydriding