# TRITGO 코드를 이용한 초고온가스로 (VHTR) 삼중수소 거동 예측

박종화, 박익규, 이원재
한국원자력연구원

2008년 2월 27일 접수 / 2008년 6월 22일 1차수정 / 2008년 7월 28일 2차수정 / 2008년 7월 30일 채택

이 연구에서는 국내 개발중인 초고온가스로 (VHTR: Very High Temperature Reactor)를 대상으로 생산되는 삼중수소 양, 계통 간 이송, 제거, 분포 그리고 최종적으로 생산된 수소에 대한 삼중수소에 의한 오염 준위를 예측할 수 있는 해석 모델인 TRITGO 코드를 소개하였고, 수소를 생산하는 IS (Iodine Sulfide) 계통으로의 삼중수소 투과양을 모의할 수 있도록 개선하였다. 또한 GT-MHR 600MW 열출력을 가정, 최종 수소 생산물의 삼중수소에 의한 오염치를 예측하였다. 예상 오염치는 약 0.055 Bq/Hg 으로 일본 규제치 56 Bq/Hg 에 약 1/1000 수준으로 낮게 예측되었다.
모의 결과 삼중수소 방출을 억제하기 위해서는 피복관의 건전성 유지 및 헬륨 냉각재와 흑연으로 구성된 반사체내 불순물인 $^{3}$He 및 Li을 가능한한 낮은 준위로 유지하는 것이 필요함을 보여 주었다. 또한 냉각재내 불순물을 직접 제거할 수 있는 정화계통의 성능이 중요한 설계인자로 판단되었다.

중심어 : 초고온가스로, 삼중수소, 트리고, 티벡, 수소 생산, GT-MHR 600

## 1. 서론

삼중수소(tritium: T 또는 $^{3}$H)는 중성자 2개와 1개의 양성자로 구성된 수소의 동위원소로서 실온, 대기압 하에서 가스 상태로 존재하며 산소와 결합하여 액체 상태의 $T_2O$ 나 THO를 형성한다. 반감기는 약 12.32년 이다. 이 같은 삼중수소는 초고온가스로내 노심과 냉각재에서 핵분열 및 중성자와의 반응시 생성되어 확산, 대류, 누설(leakage), 흡착, 정화 그리고 투과 과정을 거쳐 최종적으로 생산된 수소에 방사성 물질인 삼중수소가 유입되어 생산물인 수소가 오염될 수 있다.

삼중수소는 붕괴시 낮은 에너지의 베타선 입자를 방출하기 때문에 외부 피폭은 문제가 되지 않지만 물이나 음식 형태로 섭취하거나 호흡에 의해 흡입 또는 피부를 통해 내부로 흡착(absorption) 될 경우 방사선 장해를 일으킬 수 있다.

피폭의 정도는 흡입이나 흡착 이후 붕괴 회수와 양에 관계된다. 초고온가스로에서는 운전시 삼중수소가 인위적으로 대량으로 생산되며, 또한 PWR형 원전과 같이 냉각재로 물이 아닌 헬륨 기체를 사용하기 때문에 삼중수소의 확산이 좀 더 용이하여, 고온의 헬륨을 이용하여 생산된 수소로 삼중수소가 유입, 환경으로 방출될 수 있다.

책임저자 : 박종화 jhpark3@kaeri.re.kr, 한국원자력연구원
305-353 대전광역시 유성구 덕진동 150

그림 1은 한국원자력연구원에서 개발 중인 수소 생산용 초고온가스로 계통을 요약한 개념도이다[1].

수소는 그림 1의 왼쪽 초고온가스로에서 발생된 약 1000K 의 고온 헬륨 가스가 중앙에 있는 열 교환기를 통과하여 그림 1의 오른쪽에 있는 IS 열화학 공정에 수소 생산을 위한 열을 제공하여 궁극적으로 수소를 생산하게 된다[2]. 초고온가스로에서 생산된 수소의 삼중수소에 의한 허용 오염치에 관해서는 오직 일본으로부터 언급된 수치만이 가용하며, 그에 규제치 설정에 관한 명확한 배경을 언급하고 있지 않은 현실이다. 따라서 이 같은 설정 배경에 관한 연구 과정과 관련 자료의 확보가 필요할 것이다. 이 연구에서는 연간 총수소 생산 예상치를 약 $1.0\times10^{10}$ g으로 가정할 경우, JAERI 에서 언급하고 있는 수치 값 56 Bq/Hg (=1512 pCi/g)을 기본으로 TRITGO(트리고) 코드를 이용한 삼중수소에 의한 수소 오염 예측치와 비교할 예정이다[3].

국내 경우, 초고온가스로에서 생산될 수소에 대한 삼중수소에 의한 허용 오염치에 관한 고시는 없다. 따라서 국내 삼중수소와 관련된 일반적인 규제 현황을 언급하고자 한다. 1998년 제정된 방사선 선량에 대한 교육과학기술부 고시 제 98-12호에 의하면, 일반인에 대한 삼중수소 최대 허용 공기중 농도를 $5.1\times10^{-5}$ Bq/g (= $4\times10^{-3}$ pCi/cm$^3$) 그리고 수중(water pool)에서는 $2.22\times10^{2}$ Bq/g (= $6.0\times10^{3}$ pCi/cm$^3$)로 정하였다.

교육과학기술부 고시 제 2002-23호의 방사선 방호등에 관한 기준 중, 방사성 물질의 대기중 농도 및 액체 배출 기준에 의하면, 삼중수소가 결합된 물에 대해서는 대기중으로 약

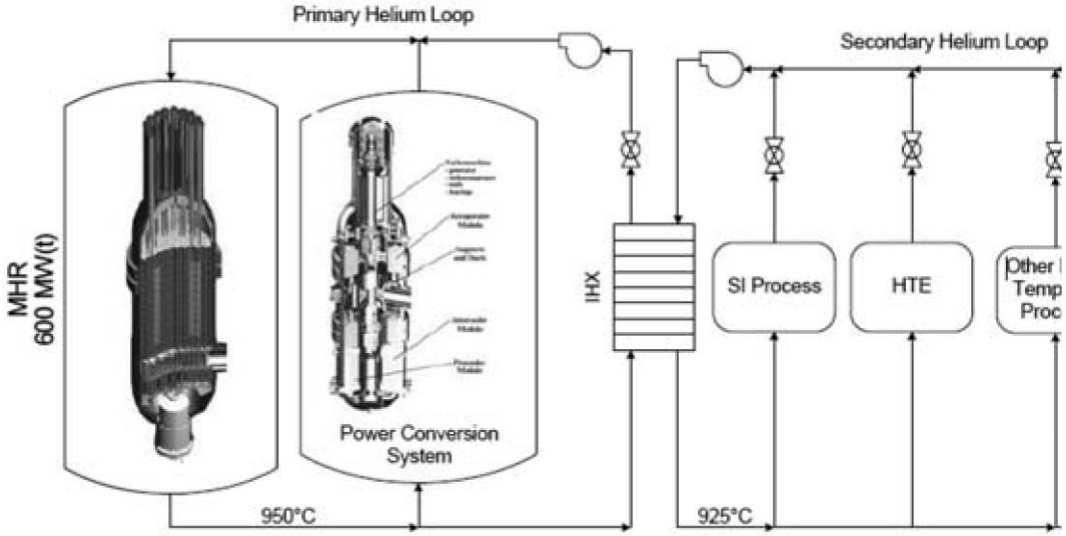


**Fig. 1.** 수소 생산용 초고온가스로 계통 개념도

$3.0x10^3$ Bq/$m^3$ (= $0.103x10^{-6}$Bq/g), 연간 섭취한도는 $1.0x10^9$ Bq (=27 milli Curies)로 각각 규정하고 있다. 그러나 NCRP에서는 연간 섭취 한도를 $2.96x10^8$ Bq (=8 milli Curies)로 설정하고 있다.

10CFR20 Appendix-20 에서는 대기중으로 방출되는 유출물 농도(Effluent concentration)중 삼중수소 허용 농도를 $1.27x10^{-4}$ Bq/g (=1.0x10$^{-6}$μCi/ml)으로 설정하고 있다. 또한 40CFR141 에서는 일반 급수 계통내 인공 방사성 물질로부터 방출된 베타와 감마선에 의한 '최대 오염 준위' 에 대해서 다음과 같이 언급하고 있다. 음용수(drinking water) 내 베타나 감마선을 방출하는 인공 방사성 물질의 농도가 전신(total body)이나 내부 장기(internal organ)에 년간 4 millirem 이상의 피폭(annual dose)을 야기하지 않아야 한다고 규정하고 있다. 또한 년간 4 mrem을 기준으로 음용수내 $0.037x10^{-3}$ Bq/g (=20,000 pCi/L)의 삼중수소 농도를 초과하지 않아야 한다고 규정하고 있다.

또한 IAEA는 면제 기준을 설정하여 설정치 보다 삼중수소의 농도가 적을 경우, 삼중수소를 규제 대상에서 제외할 수 있다고 규정하고 있다. 면제 기준을 위한 값은 10Bq/g으로 설정하고 있다[4].

국내 경우, 중수로원전의 삼중수소 제거설비(TRF : tritium removal facility)에 사용될 삼중수소 제거를 위한 초저온 수소 동위원소 증류 공정 기술 및 저장용기 특성 연구를 수행하여 TRF 시설의 저장용기를 국산화 하였다[3]. 또한 한국원자력연구원에서는 초고온가스로 계통을 통한 삼중수소 거동 연구를 위해서 2006년 TBEC 코드를 개발하였으며[6], 2006년 GA사(General Atomics Company)와 협력하여, 국내 개발중인 초고온가스로 모의에 적합하도록 TRITGO 코드를 개선하였다[7].

TRITGO 코드와 TBEC 코드 모두 삼중수소 생성 모의를 위해 초기에 노심 영역별 온도와 중성자속(neutron flux) 크기 값과 같은 초기 조건들을 외부 코드의 예측 결과를 제공받아 구성해야 하는 단점을 가지고 있다[8,9].

이 연구의 목적은 한국원자력 연구원에서 현재 연구 중인 국내 수소 생산용 600MW 열출력 을 가정한 초고온가스로에서 예상되는 삼중수소 발생양, 계통내 분포 및 궁극적으로 생산된 수소의 삼중수소에 의한 오염치를 예측할 수 있는 방법을 소개하고, 그 구체적인 예상치를 제시하는 것이다.

또한 추후 국내에서 생산할 수소의 삼중수소에 의한 허용 오염치 설정에 참고 자료로 활용될 수 있도록 일반적인 대기와 음용수(drinking water)에 대한 국내.외에서의 삼중수소 관련 규제치를 요약하여 제시하였다. 결론적으로 이 연구에서는 유도된 예상치를 일본에서 적용하고 있는 고온가스로에서 생산된 수소에 대한 삼중수소 오염에 대한 규제치와 비교하여 안전성 여부를 판단하고, 삼중수소 방출 제어와 관련하여 설계시 고려해야 할 필수 인자를 규명하는 것이다.

## 2. TRITGO 코드의 삼중수소 해석 방법

이 연구에서 초고온가스로 계통에서 삼중수소 거동 모의를 위해 1974년 ORNL에 의해서 개발되었고, GA사에 의해 1980년 MHTGR (Modular High Temperature Gas Cooled Reactor)형 계통 모의를 위해서 개선한 TRITGO 코드의 삼중수소 모의 방법에 관해서 설명하겠다. TRITGO 코드는 노심 열출력에 따른 노심과 냉각재로 부터 삼중수소 발생, 흑연 감속체에 의한 흡착, 일차 계통내 이송 및 정화계통에 의한 제거, 증기발생기 이차측 냉각수 보충 및 추출시 누설양, 관벽을 통한 투과양 등을 모의하여 총 삼중수소 생성양, 선원별 생성양, 제거양 그리고 궁극적으로 삼중수소가 일차 계통에서 이차 계통까지 투과되는 양을 예측할 수 있다.

그러나 한국원자력연구원에서는 수소 생산을 위한 IS 계통을 고려하여 2차측으로 부터 IS 계통으로의 삼중수소 투과양도 고려할 수 있도록 TRITGO 코드를 수정하였다. TRITGO

코드는 영역별 삼중수소의 생성과 분포를 선형 일계 미분방정식으로 표현하고 있다. 그러나 이 방정식들을 수치적으로 풀지 않고 유도된 분석해를 직접 적용하여 구한다. 분석해는 해의 형태별로 두 종류로 구분하여 각 형태별로 사전 작성된 함수 기능을 적용, 코드내 모의 과정을 단순화 하였다. 또한 사용자가 지정한 일정 시간 간격별로 모든 삼중수소 양의 변화를 야기하는 인자들을 고려하여, 궁극적(net) 변화 양을 예측, 최종적으로 그때까지 존재한 삼중수소 양을 합하여 각 영역별, 현상별 삼중수소 양(방사능)을 산출한다.

대표적인 출력 정보는 노심과 냉각재로 부터 총 삼중수소 생성양 및 선원별 생성양, 일차계통내 농도 및 흑연 감속체내 흡착양, 일차계통내 정화양, 일차계통으로 부터 이차측으로의 투과양, 이차계통내 삼중수소양 및 수소생성계통(IS)으로의 투과양에 관한 정보들을 출력할 수 있다.

## 2.1 삼중수소 생성

초고온가스로에서 삼중수소는 4가지 선원(sources)들로부터 생성된다. 첫째는 핵연료에서 "삼체 핵분열(ternary fission)"시 생성된다. 일반적으로 핵분열시 두개 핵분열 파편과 중성자 및 감마선을 방출하지만, 아주 드물게(100만 번중 5번 비율) 3개의 핵분열 조각으로 분리되는 경우가 있으며 이때 삼중수소가 발생한다[10].

두번째는 핵연료 다발내 있는 연소용 독소봉(burnable poison rod)이나 제어봉 구성 물질인 Boron(붕소)과 중성자간 반응시 생성된다. 세 번째는 흑연 감속체내 포함된 불순물인 베릴륨(Be)과 리튬(Li)으로 부터 발생한다.

마지막 네 번째는 초고온가스로에서 냉각재로 사용하고 있는 헬륨내에 존재하는 헬륨 동위원소인 $^{3}He$이 중성자와 반응하여 삼중수소를 생성할 수 있다.

## 2.2 삼중수소 방출 및 이송

초고온가스로에서 PBMR (Prismatic Block Type Modular Reactor) 형 핵연료의 경우, 작은 구형의 직경 약 1 mm 크기의 핵연료 입자와 미세 흑연 입자가 함께 압착되어 직경 약 12 mm, 길이 약 8 m의 봉(rod) 형태로 노심에 주입된다. 이때 핵연료 입자 내부에서 핵분열시 생성된 삼중수소가 봉 외부로 탈출하기 위해서는 중심에 위치한 구형의 핵연료와 둘러쌓고 있는 SiC 층을 비롯한 4개 층들을 연속적으로 통과해야 한다. 그러나 핵연료 입자의 건전성은 SiC 층 건전성 여부로 판단한다.

실제로, 핵연료 입자 내부에서의 삼중수소 확산 과정은 다양한 확산 소요 시간의 크기 분포를 가질 수 있을 것이다. 그러나 현재 모델에서는 그 최소 시간 단위가 1년으로서, 방출시 소요되는 시간 분포는 무시되고, 즉발적으로 봉 외부로 방출하여 냉각재로 이송하는 것으로 가정한다. 이때 발생한 삼중수소가 핵연료 내부에 억제(trap)될 수 있는 분율은 사용자가 판단, 입력으로 지정 하도록 하고 있으며 기본값으로는 92.5%가 억제되는 것으로 가정하였다. 그러나 추후 핵연료 입자로 부터의 삼중수소 방출 분율을 예측할 수 있는 모델의 보완이 필요하다.

또한 핵연료 이외에, 각 영역에 존재하는 냉각재인 헬륨 가스가 접근 가능한 좁은 빈공간(유로, clearance annuli, pore, width 등)에서 생성된 삼중수소는 1000 K, 48.2 bar에서의 평균자유 행로 크기인 0.05 cm를 기본으로 인접한 고체 내부에 갇히게(bound) 되는 분율을 산출한 이후, 결과적으로 이송되는 양을 산출한다.

## 2.3 삼중수소 흡착

초고온가스로에서 핵연료로부터 방출된 삼중수소는 다공성(porous) 흑연 감속체 내부에 흡착되어 냉각재로의 방출이 억제될 수 있다. 흑연 감속체에 대한 삼중수소 흡착은 흑연에 대한 수소 흡착 모의용 상관식을 적용하고 있으며, 삼중수소 흡착 현상에 대한 모의를 위해서 두 종류의 상관식이 있다.

첫째 상관식은 "Temkin" 등온식으로 수소의 편압과 표면에서의 포화 농도값을 이용, 흑연표면에 삼중수소 흡착 양을 예측한다. 그러나 이 등온식은 압력 변화 효과는 고려하지만 표면 온도에 관한 의존성은 고려하지 못한다.

반면에 "Myers" 등온식은 흑연 감속재 온도가 약 923 K 이하일 경우, 삼중수소가 흡착되지 않고, 약 1500 K 이상 에서는 오히려 흡착되어 있던 삼중수소가 탈착(desorption)하기 시작하는 것으로 모의하고 있다. 923 K 와 1500 K 온도 구간 에서의 흡착 거동은 수소의 편압 그리고 중성자속(fast fluence [n/m$^2$]) 크기에 관계되며 온도에 따른 효과는 미약한 것으로 가정, 모의하고 있다. 그러나 실제로 온도 증가에 따른 다공성 변화는 흑연 감속체 내부 표면적에 영향을 주게 된다[11]. 이에 관한 모델 보완이 필요하다. 이 모델은 수소의 편압이 높을수록, 온도가 낮을수록 흡착양이 증가하며, 가해지는 중성자속이 클수록 흡착양이 증가하는 경향을 보여준다.

## 2.4 삼중수소 정화

초고온가스로에서 정화계통은 일차계통과 연결되어 일차 계통내 삼중수소를 비롯한 핵분열 생성물 가스와 에어로졸 그리고 불순물을 인위적으로 제거하는 중요한 계통이다. 정화계통에 의해서 제거되는 삼중수소 양은 일차계통내 He 냉각재 총양을 매초 정화 계통을 통과해 가는 냉각재 유동율로 나누어준 분율 값을 기본으로 하여 산출한다. 정화 계통은 일련의 산화구리 층, 분자 포획 층 그리고 목탄(charcoal) 층으로 구성되어있다. 수소 및 삼중수소는 산화구리 층에서 산화 반응시 제거되며 이때 생성된 HTO는 분자 포획층에서 흡착(adsorption)에 의해서 제거된다. 목탄층은 냉각재내 불순물을 제거한다.

## 2.5 삼중수소 투과

일차계통내 존재하는 삼중수소는 배관 벽을 통과하여 이차계통으로 침투할 수 있다. 초고온가스로에서 투과가 예상되는 구역은 증발기(evaporator), 절탄기(節炭器= economizer), 가열기 1단 2단(superheater)으로 구성된, 열 재생 증기발생기(Heat Recovery Steam Generator) 구역, 열교환기 세관 구역 그리고 수소 생산을 위한 열교환기 세관구역이 있다. 투과 현상 모의용 모델은 수소의 배관 물질별 투과 특성을 고려하고 있다.

관벽을 통한 삼중수소의 투과모의는 Sievert's 법칙을 적용, 분자일 경우 압력의 1/2 승에 비례함을 이용, 용해도를 유도한 후, 이를 벽 구성 물질내 에서 삼중수소의 확산계수와

곱하여 침투성(permeability)을 정의한다. 결과적으로 이 침투성을 Arrhenius식 형태로 구성, Fick의 확산 법칙에 침투성을 적용하여, 관벽을 통한 삼중수소의 투과율을 예측한다.

주요 가정은 이차계통내 삼중수소 농도는 '제로' 이며, 수소 투과 모의용 상관식을 적용하기 때문에 수소와 삼중수소 간 투과 특성의 차이를 고려하기 위해서, 삼중수소의 투과율이 수소 투과율의 60% 라고 가정하였다. 경계 계통간 삼중수소 투과양은 관 벽 물질, 관 온도, 두께, 일차계통내 삼중수소 농도 및 계통간 압력차 그리고 투과 가능한 표면적의 크기에 관계된다. 그러나 관 내벽에 산화층이 존재할 경우 투과양이 현저하게 감소되는 것으로 알려져 있다[12]. 따라서 금속 투과 현상 모의시 산화층 효과를 고려할 수 있는 모델의 보완이 필요하다.

## 3. GT-MHR 600 MWt 초고온가스로의 삼중수소 거동 모의

### 3.1 입력 구성

이 연구에서 대상으로 한 600MW 열출력 초고온가스로는 GT-MHR 350 에 증기발생기와 가상의 수소생성 계통을 연결한 형태로 가정하였다[13]. 따라서 이번연구에서 사용한 입력은 GA사가 작성한 GT-MHR 350 정상운전 모의용 입력을 기본으로 구성하였다. 이 연구에서 모의한 600MW 열출력 초고온가스로의 개념적 삼중수소 이송 과정은 그림 2와 같으며, 적용한 주요 입력 변수와 값들은 표 1과 같다.

**Table 1.** 주요 입력변수 및 값

| 변수명 | 값 | 단위 |
|---|---|---|
| 원자로 | 열출력 | 600 MWt |
| 일차계통 압력 | 70.7 | bar |
| $^3$He 존재 분율 | $1.6\times10^{-7}$ | Fraction |
| 총 He 질량 | 4536 | kg |
| He 냉각재 온도 | 1123 | K |
| He 보충율 | $3.17\times10^{-9}$ | Fraction/s |
| 정화 유동율 | $5\times10^{-4}$ | Fraction/s |
| 물질 질량 | | |
| - 흑연 | $6.92\times10^{5}$ | kg |
| - 보론 | 62 | kg |
| - 리튬 | 29 | g |
| - 베릴륨 | 7.5 | g |
| 총 흑연 표면적 | 1.2 | m2/g |
| - 온도 분포 | - 1123~531 | K |
| 중성자속 분포 | 저속 ($8.0\times10^{13}$) | n/cm$^2$-s |
| | 고속 ($2.6\times10^{13}$) | n/cm$^2$-s |
| 투과 물질 (증기발생기) | Incoloy-800 | NA |
| - 가용 면적 | 3174 | cm$^2$ |
| - 벽면 두께 | 3.3 | mm |

### 3.2 모의 결과 및 분석

그림 3은 가상의 600MW 열출력 초고온가스로에서 노심으로 부터 생산된 총 삼중수소 생성양, 핵분열시 생성양 그리고 노심내 물질과 중성자간의 반응에 의해서 각 생성원별 삼중수소 발생양에 관한 예측치를 보여준다.

가상의 600MW 열출력 초고온가스로의 경우, 1년 동안에 총 약 $1.569\times10^{14}$ Bq 정도의 삼중수소를 발생시키며, 운전기간에 비례하여 계속 증가하여, 5년 운전시 총 약 $5.46\times10^{14}$ Bq 의 삼중수소가 발생되는 것으로 예측하였다.

그러나 노심내 물질과 중성자간 반응에 의해서 생성된 삼중수소 양은 운전 기간이 오래될수록 점차 감소하는 경향을 보여 주고 있다. 이는 중성자와 반응으로 삼중수소를 발생하는 물질이 점차 소모되어, 감소하기 때문이다. 또한 핵분열에 의한 삼중수소 생성양은 운전기간이 증가함에 따라서 계속 증가 하지만, 입력시 지정한 바와 같이 대부분(92.5%) 이 핵연료 내부에 억제됨을 보여준다.

따라서 삼중수소 발생원 중에서 인위적으로 생성양을 감

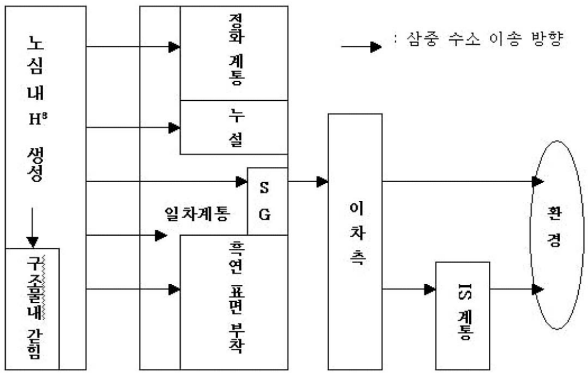


**Fig. 2.** TRITGO 코드의 삼중수소 이송 개념도

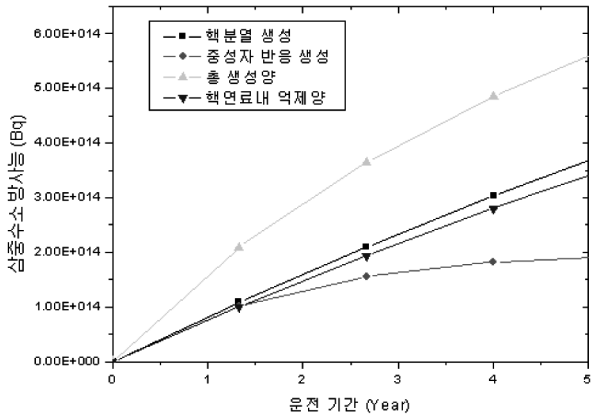


**Fig. 3.** 삼중수소 총생성 및 억제양

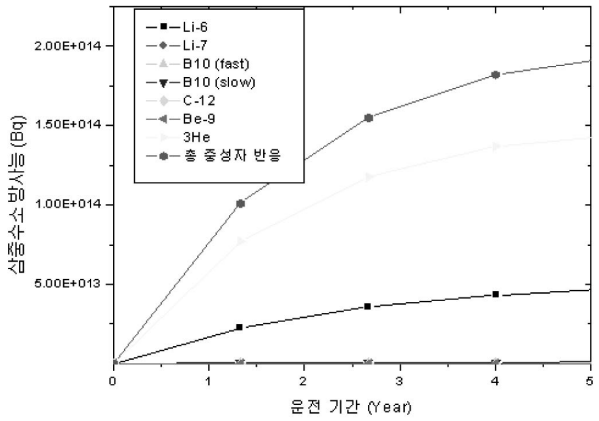


**Fig. 4.** 생성원별 삼중수소 생성양

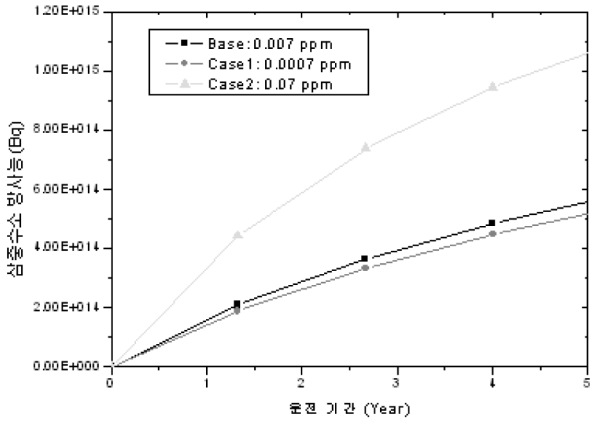


**Fig. 5.** Li 오염 준위에 따른 삼중수소 생성양 변화

소시키는 것이 가능한 것은 노심 물질과 중성자간 반응으로 부터 발생되는 삼중수소 양으로서 이 양을 가능한 억제 함으로서 궁극적인 삼중수소 방출양을 감소시키는 것이 가능할 것으로 판단된다.

그림 4는 노심물질과 중성자간 반응으로 부터 삼중수소를 발생시키는 세부적인 물질별 각각의 생성양을 비교하여 보여주고 있다. 생성양 크기를 순서별로 보면, 핵분열에 의한 생성양이 가장 많고, 다음은 냉각재내 $^{3}$He, 흑연 감속체 내 불순물인 Li 그리고 나머지 생성원들로 부터의 발생양들은 무시할 정도로 작음을 보여주고 있다.

핵분열에 의한 삼중수소 생성은 운전기간에 따라서 계속적으로 증가되는 억제할 수 없는 생성이긴 하지만, TRIRGO 코드에서 기본으로 설정된 생성된 삼중수소의 92.5%가 핵연료 입자 내부에 억제된 상태로 있다는 가정이 타당하기 위해서는, 제조시 핵연료의 피막층 특히, SiC 층의 건전성이 매우 중요하다는 점을 암시한다.

또한 그림 5에서 Base는 Li 불순물 함량이 0.007 ppm 인 경우이고, Case1 은 Li 불순물이 1/10 로 감소한 것으로 가정한 경우, Case2 는 불순물이 10배 많이 존재한 것으로 가정한 경우로 각각의 경우 발생된 총 삼중수소 양을 비교함으로서, Li 불순물 함량이 삼중수소 생성양에 미치는 효과를 보여주고 있다. 비교 결과, 냉각재 내 $^{3}$He 동위원소 및 흑연 감속재 내 Li-6 와 같은 불순물을 가능한 제거하여, 낮은 준위로 관리하는 것이 궁극적인 삼중수소 생성양을 감소시켜서 방출양을 감소시킬 수 있는 중요한 요소임을 보여주고 있다.

첫 번째 삼중수소 방출 억제 기구(mechanism)가 핵연료 자체 및 SiC 층에 의한 것이라면, 두번째 중요한 방출 억제 기구는 냉각 계통으로 유입된 삼중수소가 흑연 감속체 내부에 흡착되는 현상이다.

그림 6은 운전기간에 따른 흑연 감속체 내부에 흡착된 삼중수소 양을 보여준다. 즉 1년 동안 운전한 경우, 삼중수소 흡착양은 약 $2.38\times10^{13}$ Bq로, 1년 운전한 경우 생성된 삼중수소 총양이 $1.569\times10^{14}$ Bq이고, 이중 47.8% 인 약 $0.75\times10^{14}$ Bq이 핵연료 내부에 갇히고, 나머지가 일차측으로 방출되는 점을 고려할 때, 총 생성양의 약 14.9%가 흑연 감속체에 흡착되어 방출이 억제됨을 보여준다.

세번째 중요한 삼중수소 방출 억제 기구는 일차계통내 설치된 정화계통이다. 그림 7은 정화 계통에 의해서 제거되는 삼중수소의 양을 보여준다. 계산 결과에 의하면, 약 1년 운전시 정화 계통에 의해서 제거되는 삼중수소의 양은 약 $5.79\times10^{13}$ Bq로서, 총 생성된 삼중수소의 약 39.6%가 위에서 언급한 핵연료 피막층 내부(47.8%), 감속체 표면 흡착(14.9%)과 정화 계통(36.9%)에 의해서 제거될 수 있음을 보여준다.

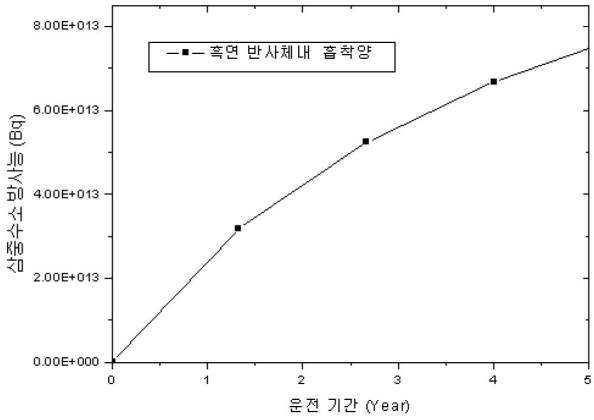


**Fig. 6.** 흑연 감속체내 흡착된 삼중수소 양

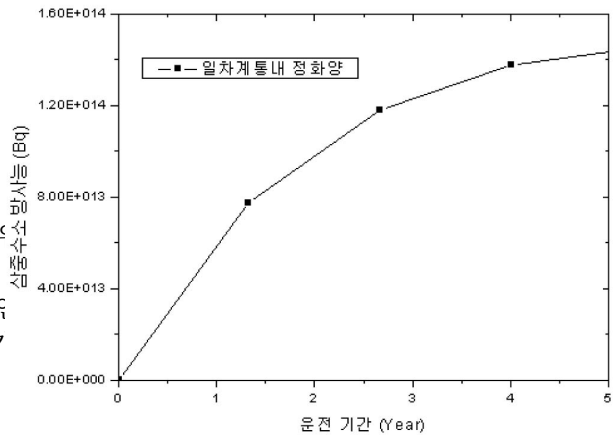


**Fig. 7.** 정화 계통에 의해 제거된 삼중수소 양

그림 8은 일차계통내 존재하는 삼중수소 양의 변화를 보여 준다. 운전 1년 동안은 일차계통내 삼중수소 농도가 증가하지만, 약 1년 운전 이후에는 일차계통으로 유입되는 삼중수소 양보다 제거되는 양이 증가하기 시작하여, 결과적으로, 일차계통내 삼중수소의 양(방사능)이 감소하기 시작하는 것을 보여준다.

일차계통으로 유입되는 삼중수소의 양은 헬륨 냉각재와 흑연 감속체 내부에 $^{3}He$ 이나 Li-6 와 같은 불순물들이 중성자와의 반응으로 소모되어 이들로 부터 삼중수소 생성양이 점차로 감소하기 시작한다. 한편 일차계통으로 부터 제거되는 삼중수소 양은 증기 발생기 보충수 교환시 누출, 흑연 감속체 흡착, 관벽을 통한 이차 계통으로 투과, 정화계통에 의한 강제 제거 및 자연 붕괴양 크기에 관계된다.

일차계통으로부터 이차계통으로의 삼중수소 방출양을 감소시키기 위한 방법으로 정화계통 운전이 있다. 왜냐하면 투과양은 일차계통내 삼중수소 농도 준위에 비례하기 때문이다. 그림 9는 정화계통 용량에 따른 일차계통내 삼중수소 농도 준위 변화를 보여준다. 즉 정화양이 증가할수록 일차계통내 삼중수소 농도가 감소하여, 삼중수소 제어에 대한 정화계통 역할의 중요성을 보여준다.

그림 10은 일차계통내 삼중수소가 증기발생기를 구성하고 있는 증발기, 절탄기 그리고 가열기를 통해서 운전중 이차측으로 투과된 삼중수소 양의 시간에 따른 변화를 보여주고 있다.

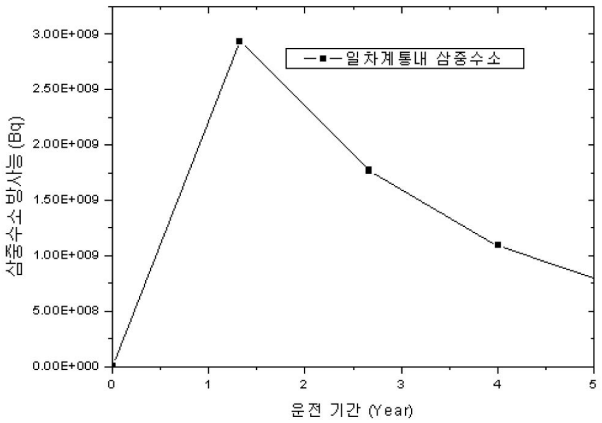


**Fig. 8.** 일차계통내 삼중수소 양

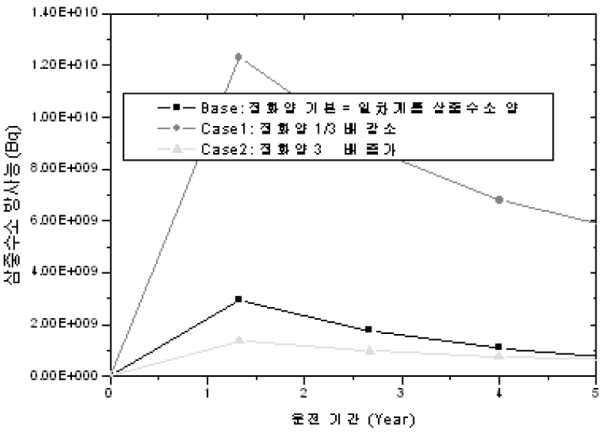


**Fig. 9.** 정화양 증감에 따른 일차계통내 삼중수소 양 변화

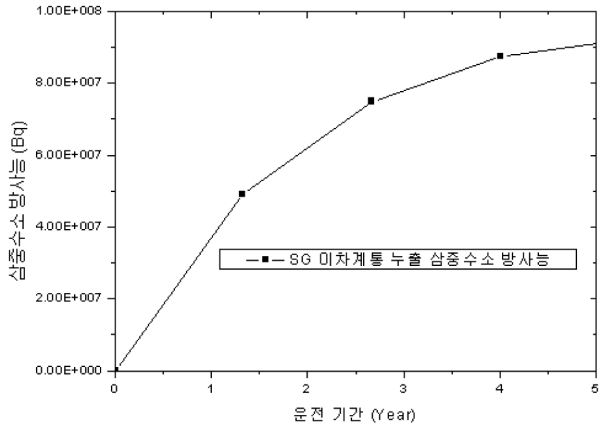


**Fig. 10.** SG 이차측으로 투과된 삼중수소 양

그림 10은 가상의 600MW 열출력 초고온가스로에서, 수증기를 생산할 경우, 설치된 증기 발생기 이차측으로 부터 냉각수 교환시 삼중수소가 대기 환경으로의 방출되는 양을 보여준다. 이 누설율은 냉각재 보충율에 비례한다.

그림 11은 최종적으로 이차계통에서 삼차계통인 IS 계통으로의 투과된 삼중수소 양 예측치를 보여준다. 약 1년 6개월까지의 IS 계통으로의 삼중수소 유입율이 최대를 유지하였기 때문에 1년간 IS 계통으로의 유입된 삼중수소 양 $5.55x10^{8}$ Bq을 기본으로 연간 수소 생산양을 $1.0x10^{10}$ g이라고 가정하여, 일본에서 적용중인 삼중수소 규제치와 비교해 보면 이 연구로부터 예측된 수소 생성물의 삼중수소에 의한 오염치 약 0.055 Bq/Hg 이 일본 규제치인 56 Bq/Hg 에 약 1/1000 수준으로 낮게 예측되었음을 보여준다. 그러나 이 오염 준위 수치는 GT-MHR 350 MWt 설계치로 부터 GT-MHR 600 MWt을 가정한 설계치로 부터 예측된 값이기 때문에, 추후 국내 초고온가스로의 설계가 진행될 때 정확한 설계치를 기본으로 재계산이 필요하다고 판단된다.

그림 12는 정화계통 운전양 변화에 따른 IS 계통으로의

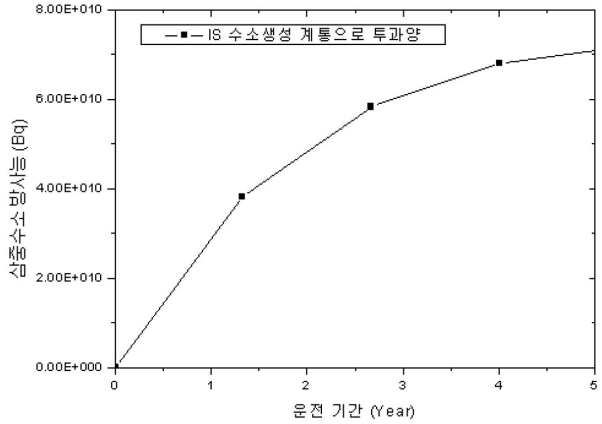


**Fig. 11.** 이차측에서 IS 계통으로 투과된 삼중수소 양

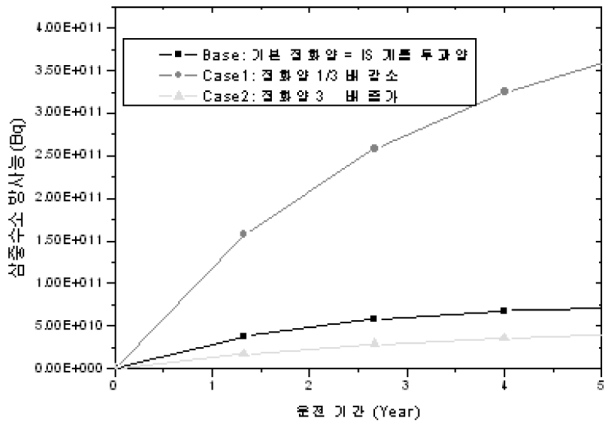


**Fig. 12.** 정화양 증감에 따른 IS 계통으로의 투과양 변화

삼중수소 투과양 변화를 보여준다. 즉 정화양이 증가될 경우, 일차계통뿐만 아니라 IS 계통으로의 투과양을 감소시킬 수 있음을 보여주고 있다.

## 4. 요약 및 결론

TRITGO 코드를 이용하여 초고온가스로에서 발생되는 선원별 삼중수소 생성양 및 계통별 분포와 IS 계통에서 생산될 수소의 삼중수소에 의한 오염 준위를 예측하였다. 이 연구를 통해서 추후 국내 초고온가스로의 삼중수소 제어 설계를 위한 기본 해석 체계를 구축하였다.

GT-MHR 600MW 열출력 초고온가스로에서 생산한 수소의 삼중수소에 의한 오염 예측 결과는 약 0.055 Bq/Hg으로, 일본 규제치 56 Bq/Hg 에 약 1/1000 수준으로 낮게 예측되었다. 이는 IAEA 에서 제시한 3.1 Bq/g 보다 매우 적은 수치로 면제 기준에 해당될 수 있다. 그러나 현재의 예측 결과는 개념적인 자료를 기본으로 예측한 결과이기 때문에 정확한 예상치는 설계가 확정되어야 가능할 것이다. 따라서 제시된 오염 예측치는 값 자체 보다는 오염치를 예측할 수 있는 해석 체제의 구축에 의미가 있다.

모의 결과, 삼중수소 방출을 억제하기 위해서는 TRISO 핵연료의 피막층, 특히 SiC 층 건전성이 중요하며, 이는 불량율 낮은 TRISO 핵연료 제조 기술이 삼중수소 방출 억제에 미치는 영향이 매우 크다는 점을 암시한다. 또한 삼중수소 방출 억제를 위해서는 냉각재내 섞여 있는 $^{4}He$의 동위원소인 $^{3}He$과 흑연으로 구성된 반사체내 불순물인 Li-6 의 함량을 가능한 낮은 수준으로 유지하여 제작하는 것이 중요함을 보여 주었다. 그리고 냉각재내 불순물을 직접 제거할 수 있는 정화계통의 성능은 일차 계통내 삼중수소 농도뿐만 아니라 생산된 수소의 삼중수소에 의한 오염 준위를 인위적으로 낮출 수 있는 중요한 설계 인자로 판단되었다.

## 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부 원자력 연구개발 사업에서 재정적인 지원을 받았습니다.

## 참고문헌

1. Chang JH. A Study of a Nuclear Hydrogen Production Demonstration Plant. Nuclear Engineering and Technology. 2007;39:111-122.
2. Onuki K, Inagaki Y, Hino R, Tachibana Y. Research and Development on Nuclear Hydrogen Production Using HTGR at JAERI. Progress in Nuclear Energy. 2005;47:496-503.
3. Takeda T, Iwatsuski J, Inagaki Y, Ogawa M. Study on Tritium-Hydrogen Permeation in the HTTR Hydrogen Product System. 일본원자력연구소. 1998; JAERI-TECH 98-044:1-2
4. IAEA safety series No.115:81-84. International Basic safety Standards for Protection against Ionizing Radiation and for the Safety of Radiation Sources. 1996.
5. 송규민, 손순환, 이숙경, 김광신, 이성진, 정은HTR 연계성 삼중수소 저장기술. 한국원자력연구소2004;KAERI/CM-729/2003:30-51.
6. 이건재, 황기하, 김성일, 이창민, 육대식, 이상철, 이윤희. 소생산용 초고온가스로 예비개념설계 및 요소기술 개발 선원항 평가 방법론 및 삼중수소 거동 메커니즘 분석. 한국원자력연구소. 2006;KAERI/CM-891/2005:48-52.
7. 박익규, 김동하, 이원재TRITGO 코드를 이용한 초고온가스로의 삼중수소 생성 및 분포 예제 해석. 한국원자력연구원. 2007;KAERI/TR-3362/2007:6-50.
8. GA Co., TRITGO Code Description and User's Guide. 2006; GA project 20128, 911081 Rev0:5.2-5.5.
9. Yook D. Estimation of the Tritium Behavior in the Pebble Type Gas Cooled Reactor for Hydrogen Production. Nuclear Science & Technology. 2006;43(12):1522-1529.
10. Irving Kaplan, Nuclear Fission. In: Addison-Wesley eds. Nuclear Physics. 2nd ed. Singapore: Toppan Printing Co.1962:607-608.
11. GA Co., Review of Tritium Behavior in High Temperature Gas-Cooled Reactors. 2006; PC-000535 Rev0, GA project 20128:39-41.
12. Buchkremer HP, Hecker R, Jonas H, Leyers HJ, Stoever D. Oxide films on austenitic HTR heat exchanger materials as a tritium permeation barrier. specialist meeting on heat exchanging components of gas-cooled reactors Duesseldorf(Germany). IAEA, 1984; IWGGCR-9: 363-376.
13. GA Co., GT-MHR Conceptual Design Description Report. 2002; GA project 30103 GA/NRC-337-02.

# Prediction of the Tritium Behavior in Very High Temperature Gas Cooled Reactor Using TRITGO

Jong-Hwa Park, Ik-Kyu Park and Won-Jae Lee
Korea Atomic Energy Research Institute

**Abstract** - In this study, The TRITGO code was introduced, which can predict the amount of tritium production, it's transport, removal, distribution and the level of contamination for the produced hydrogen by the tritium on the VHTR (very high temperature gas cooled reactor). The TRITGO code was improved so that the permeation to the IS Iodine Sulfide) loop for producing the hydrogen can be simulated. The contamination level of the produced hydrogen by the tritium was predicted by the improved code for the VHTR with 600MW thermal power. The contamination level for the produced hydrogen by tritium was predicted as 0.055 Bq/$H_2$-g. This level is three order of lower than the regulation value of 56 Bq/$H_2$-g from Japan.

From this study, the following results were obtained. it is important that the fuel coating (SiC layer) should be kept intact to prevent the tritium from releasing. Also it is necessary that the level of impurity such as $^3$He and Li in the helium coolant and the reflector consisting of the graphite should be kept as low as possible. It was found that the capacity of the purification system for filtering the impurities directly from the coolant will be the important design parameter.

**Keywords** : VHTR, TRITIUM, TRITGO, TBEC, IS, GT-MHR 600