

PTI를 이용한 소듐중 불순물 농도 측정

김병호, 정지영, 정경채, 김태준, 최종현, 권상운
한국원자력연구소

Measurement of Impurity Concentrations in Sodium using PTI

B.H. Kim, J.Y. Jeong, K.C. Jeong, T.J. Kim, J.H. Choi, S.W.Kwon
Korea Atomic Energy Research Institute

서론

액체금속로의 냉각계통이나 혹은 소듐계통을 안전하게 운전하기 위하여 소듐 순도관리를 행하고 있다. 소듐의 순도관리기술은 원자로의 냉각재중에 존재하는 불순물을 정제 및 측정하는 기술로서 구조재의 부식방지, 물질전달현상의 방지, 과손연료 등의 관점에서 매우 중요하다. 냉각재중에 존재하는 불순물은 plugging을 야기시켜 냉각재의 흐름을 방해함과 아울러 열전달계통의 성능을 저하시키며, 액체금속과 접촉되어 있는 구조재의 특성에 악영향을 미친다. 따라서 불순물의 농도는 계속적으로 조절되어야 하며 이러한 경우에 열전달시스템에 있는 정제장치를 사용하여 불순물의 농도를 제어하여야 한다. 불순물의 농도의 측정을 위하여 다양한 방법들이 사용되고 있으나 Plugging Temperature Indicator(PTI)를 이용한 불순물 농도측정법이 가장 널리 이용되고 있다. PTI의 원래 목적은 불순물 침적에 의하여 유로가 막히는 온도를 측정하여 용해성 불순물을 단순히 탐지하는데 있었으나 이러한 목적이 확대되어 plugging temperature를 용해도와 상관시킴으로서 불순물의 농도 측정장치로서 개발되고 있다. 이러한 PTI의 장점으로서는 설계, 설치, 조업이 간단하다. 하지만 측정된 자료를 판독하는데 어려움이 있고 낮은 온도에서 PTI의 성능이 저하되는 단점이 있다. PTI의 조업 특성에 영향을 미치는 변수로서는 불순물의 유형[1], 소듐의 유량속도[2], 냉각과 가열속도, 시스템이나 orifice의 기하학적구조 및 조업변수가 있으며, PTI에 대한 중요 연구내용을 보면 저농도 불순물을 측정하기 위한 기술개발, 다양한 plugging meter의 개발과 성능연구, 조업방법 개선에 의한 정확한 불순물측정, sodium oxide와 sodium hydride의 결정화 거동 관한 다양한 연구, 불순물을 연속적으로 측정하기 위한 기술개발, PTI의 동특성 분석에 의한 오리피스상의 불순물 침적특성 연구 등이 다양하게 연구되고 있다. 본 연구에서는 소듐중에 용해되어 있는 저농도의 불순물을 측정하기 위하여 PTI를 이용한 방법을 연구하였다.

실험장치 및 실험

PTI에 의하여 불순물의 농도를 결정하는 원리는 불순물의 액체소듐에 대한 용해도의 관계를 응용하는 것이다. 즉, Fig.1에 보여지는 PTI의 orifice를 통과하는 소듐이 냉각되면 소듐중에서 과포화된 불순물이 오리피스상에 침적됨으로서 소듐의 유량이 적어지는 막힘 온도를 측정하여 용해도 곡선으로부터 불순물의 농도가 결정된다. PTI는 Fig.1에 나타난 바와 같이 직경이 1.3 mm의 오리피스를 가진 3mm두께의 오리피스 판, 그리고 오리피스 판의 온도제어를 위한 열전대, 소듐유체의 강제공냉과 가열을 위한 blower와 heater로 구성되어 있다. 소듐은 바깥쪽 관으로 들어가서 중앙관을 통하여 나가고 소듐은 오리피스에서 blower와 heater에 의하여 냉각, 가열된다. Fig.2는 소듐루프로서 소듐을 순환시키기 위한 소듐용 전자펌프, 소듐루프내 일정한 불순물 농도를 유지하기 위한 cold trap, PTI, 가스조절계통, 그리고 온도제어 장치 및 각종 저장조로 구성되어 있다.

소듐중 불순물인 산소의 농도를 조절하기 위해서 그 농도의 용해도에 해당하는 온도에서 최소 7시간이상 가동하여 PTI에 의한 산소 농도측정실험을 수행하였다. PTI의 성능 영향 실험을 위하여 분당 1-4℃의 냉각속도, 0.5-1.2 l/min의 소듐유량이 실험변수로서 사용되었다. 본 연구에 사용된 자동조작식 연속조업방법은 오리피스에서 가열과 냉각을 반복하여 partial plug를 얻음으로서 plugging restrictor에 있는 불순물 plug와 가장 가까이 평형상태에 있는 포화온도를 얻을 수 있도록 하기 위하여 냉각조작으로 유량이 설정된 값까지 줄어들면 가열하고, 유량이 다시 증가하여 설정된 유량에 도달하면 냉각하는 과정이 자동제어되도록 하였다. Fig.3에 나타난 실험적 결과는 아래에 서술되는 수학적 모델의 계산을 위하여 이용된다.

토의 및 결과

3.1 PTI의 이론적 해석[3]

PTI의 이론적 해석을 위하여 오리피스의 벽면에 침적물이 균일하게 막힌다고 가정한다. 초기 소듐유량 F_0 에서 소듐이 두께 L , 초기 반경 r_i 를 가진 오리피스 판에 n 개의 오리피스 구멍이 있는 경우, 침적이 시작된 후 시간 t 에서의 유량 F 와 반경 r 에 의하여 다음과 같이 결정화속도가 얻어진다.

$$dm/dt = kA(C - C_s)^g = -2\pi r p (dr/dt) nL = -nLk2\pi r(C - C_s)^g \quad (1)$$

여기에서, m 은 침적된 불순물 양, A 는 불순물이 침적되는 표면, C 는 소듐중 불순물 농도, C_s 는 오리피스온도에 대한 소듐중 불순물의 포화농도, k 는 총괄성장속도상수, g 는 공정도이다.

소듐유량은 다음과 같이 표현된다.

$$F/F_0 = 1 - f \quad (2)$$

여기에서, f 는 침적물에 의하여 오리피스가 막혀지는 분율이다. 시간 t 에서 침적되는 불순물의 양은,

$$m = n p f r_i^2 L \quad (3)$$

침적물에 의하여 막혀지는 오리피스의 분율은 (2)식에 의하여 다음과 같이 주어진다.

$$f = (r_i^2 L - r^2 L) / r_i^2 L \quad (4)$$

$$A = n4Lr = n4Lr_i(1-f)^{1/2} \quad (5)$$

윗 식들을 F 의 함수로 나타내면,

$$F^{-1/2}(dF/dt) = -4k(C - C_s)^g t + F_0^{1/2} / p r_i \quad (6)$$

불순물 농도와 오리피스 온도가 일정하다면 (6)식의 둘째항은 일정하다. 따라서 (6)식을 적분하면,

$$F^{1/2} = -2(F_o^{1/2}/r_i)k(C-C_s)^g t + K \quad (7)$$

여기에서, K는 상수이다.

(7)식에서 총괄성장속도가 알려져 있지 않고 불순물 농도 C와 오리피스 온도가 알려져 있다면 성장속도변수(k와 g)가 계산된다. 반면에 총괄속도가 알려져 있다면 불순물 농도를 계산하는데 사용된다.

3.2 불순물 농도의 측정

액체소듐중 산화물의 농도를 알기위하여 우선 Fig.3으로부터 $F^{1/2} = f(t)$ 의 기울기 a를 구하고 단위 시간 및 단위면적당 결정화되는 결정물의 양 m_s 를 다음 식으로부터 계산한다.

$$m_s = a p r_i / 2 F^{1/2} \quad (8)$$

또한 불순물의 농도는 다음식으로부터 얻어진다.

$$C = C_s + (m_s/k)^{1/g} \quad (9)$$

본 실험장치의 경우, 오리피스 온도 180°C에서 총괄성장속도는 kwon의 실험자료[4]와 (7)식으로부터 구하면 다음과 같이 된다.

$$m = 2.4 \Delta C^{1.4} \quad (10)$$

또한 실험결과인 Fig.3, 그리고 (7), (8), (9)식으로부터 다음과 같은 식이 얻어진다.

$$[O] = 0.84 + 3.74 \times (\tau)^{-1/1.4} \quad (11)$$

여기에서, τ 는 Fig. 3에 보여진 바와 같이 초기유량의 95%에서 85%까지 감소하는데 필요한 시간이다.

이상과 같이 PTI를 이용하여 온도를 측정하는 절차는 주어진 온도에서의 plugging 곡선을 구한 후 초기유량의 95%에서 85%까지 감소하는데 필요한 시간을 곡선으로부터 읽어서 시간 τ 에 해당하는 산소농도를 (11)식으로부터 구하면 된다.

참고문헌

1. C.A.Smith, P.A.Simm, G.Hughes "Analysis of hydride and Oxide Deposition and Resolution in Sodium in Relation to Plugging Meter Behavior" Nucl. Energy, 18(3), 1979.
2. H.Yamamoto, "Investigation of Measuring Accuracy of Plugging Indicators", J. Nucl. Sci. & Tech., 14(10), 1977.
3. D. Feron, "Plugging Indicator-Measurement of Low Impurity Concentrations at a constant orifice Temperature" Material Behavior and Physical Chemistry in Liquid Metal Systems, 1982.
4. S.W.Kwon et. al., "Measurement of Oxygen Content in Liquid Sodium by a Plugging Temperature Indicator", J. Korean Ind Eng. Chem., 11(2), 2000.

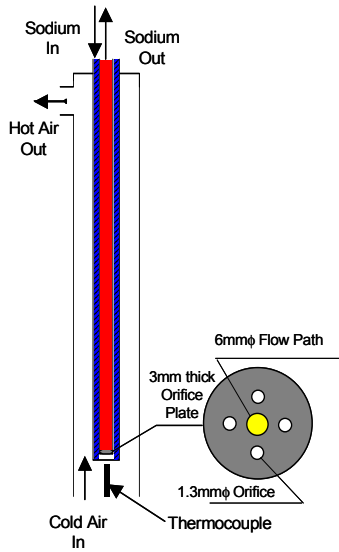


Fig.1 Plugging temperature indicator.

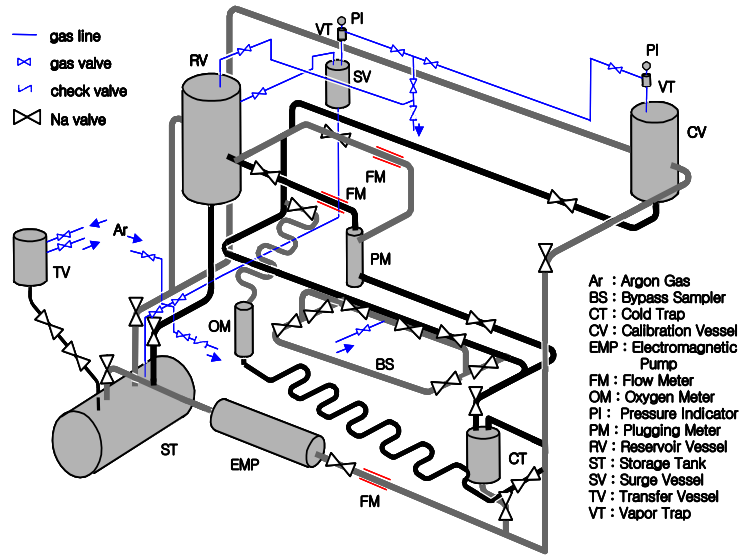


Fig.2 Sodium purification loop.

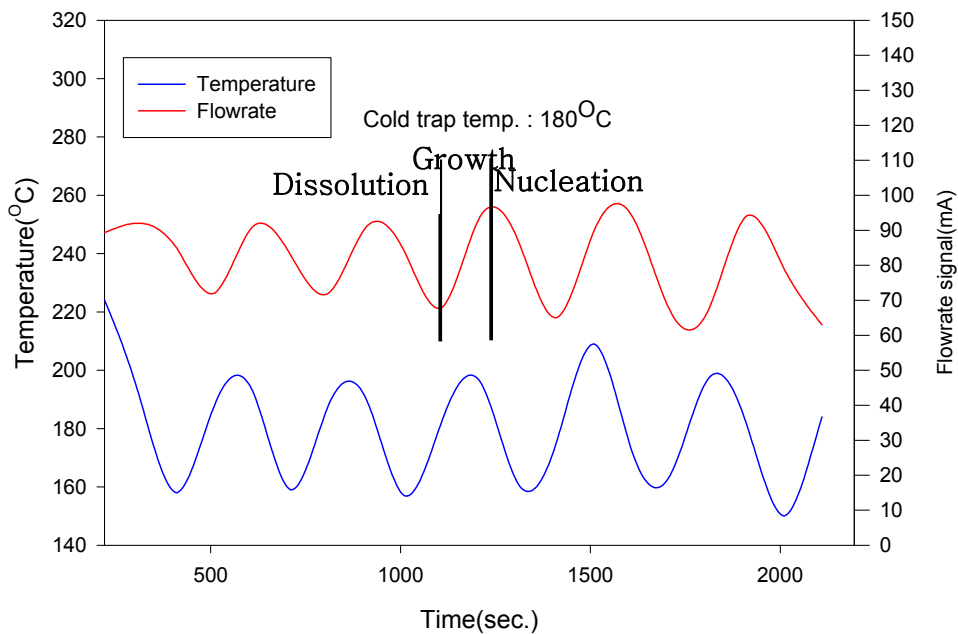


Fig.3 Determination of plugging temperature by partially plugged mode.