

우라늄 부스러기의 안전한 저장을 위한 분위기 조절 산화처리의 최적 조건 수립

김창규, 우윤명, 김정도, 지철구, 배상오, 김중구
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
ckkim2@kaeri.re.kr

1. 서론

우라늄 금속 부스러기(uranium chip)는 핵연료 및 감마 방사선 차폐체 개발에서 모의 물질로 감손 우라늄 금속을 사용하는 중에 절단 및 기계가공 작업에서 주로 발생되어 왔다. 한국원자력연구원에서 임시 저장 중인 우라늄 금속 부스러기 량이 2008년 기준 약 1,000 kg 정도이다. 우라늄 금속은 산소와의 반응성이 커서 입자가 작아 비표면적이 크면 자연발화가 일어날 수 있다. 우라늄 금속 분말은 입자크기가 10 μm 이하로 작으면 100 $^{\circ}\text{C}$ 이하에서 공기 중에서 발화된다고 알려져 있다. 물이나 수증기를 접촉하면 상호 반응하여 발화성이 강한 우라늄수소화합물이 형성되어 더욱 발화 위험성이 커지게 되는데 그 사례로 2005년에 한국원자력(연)의 새빛연료과학동에서 발생한 자연발화 사건을 들 수 있다.

비표면적이 큰 우라늄 부스러기를 가장 흔히 중유 또는 윤활유에 침적하여 보관하고 있으나 영구 처분 또는 수하기 위해 기름 성분 제거작업이 어려워 우라늄 금속부스러기를 물에 넣어 보관하기도 하는데 미국 Oak Ridge 연구소와 한국원자력(연)에서 이러한 방법을 적용하고 있다.

한국원자력(연)은 물에 넣어 보관 중인 우라늄 금속 부스러기를 산화시켜 안전하게 저장하고자 연구 개발을 수행하였다. 우라늄 부스러기에는 질산염이 소량 함유되어 있어 공기 중에서 가열연소시키면 화염과 연기가 나오며 우라늄 핵물질이 연진으로 오염 확산 위험성이 있다. 해결방안으로 우라늄 금속 부스러기를 밀폐용기에서 배기 건조시키고 산화가 가능한 온도로 올리고 산소를 적절히 공급하면서 천천히 산화시켜 연진발생을 최소화하고 배기 측에 filter를 설치하여 방사성 물질 오염이 발생되지 않는 장치를 개발하였다.

2. 분위기 조절 우라늄 금속 부스러기 산화 장치 개발 및 산화처리 추진

2006년에는 500 gram 용량의 진공 분위기 가열 및 산소 분위기를 조절하여 산화시키는 장치를 제작 구매하여 실험을 수행하였다. 순수한 우라늄 분말은 산화가 잘 되었으나 물에 장기간 저장한 진득진득한 우라늄 부스러기는 산소와 접촉이 불충분하여 산화시킨 후에 꺼내어 뒤적거리면 발화되어 격렬하게 발화되는 문제점이 발견되었다.

2007년에는 상기 문제점을 우라늄 부스러기를 drum에 넣어 회전시키면서 산화시키는 방법을 채택하였고 진공 가열 중에 기화된 수분이나 질산염 물질을 응축 회수할 수 있도록 하였고 1회 취급량을 10 kg 정도로 실제 임시 보관 중이 우라늄 부스러기를 산화처리할 수 있도록 신규 장치를 설계 제작하였다.

2008년에는 신규 장치를 설치하여 가동할 수 있도록 환기 장치 급배수, 산소 가스 공급 장치, 각종 장비 및 운반 용 주변 장치를 설치하여 장치를 시운전하였다. 진흙같은 우라늄 부스러기는 산화반응이 예상보다 더 완만히 반응되어 반응온도를 더 올리는 과정에서 장치의 손상을 초래하여, 고장수리 및 장치 개조에 많은 시간이 걸려 우라늄 부스러기를 조속 산화 안정화 처리하는데 제동이 걸렸다. 현재의 여건 하에 최적의 산화 처리 조업 조건을 수립하여 우라늄 부스러기 처리를 일부 추진하였다.

2009년은 기 수립한 산화 조건으로 우라늄 부스러기를 산화처리를 계속 추진하면서 현재의 산화처리 장치에서 온도 별로 건조 및 산화 거동 실험을 하여 우라늄 부스러기의 산화거동을 보다 세밀히 관찰 분석을 산화 조건을 최적화하여 2009년 10월초 기준 산화처리한 우라늄 부스러기는 약 450 kg이다. 금년 말까지 전 원자력연구소 서울에서 발생한 우라늄 부스러기를 제외한 모든 것을 처리될 것으로 전망된다.

3. 온도 별 우라늄 부스러기 건조 및 산화처리 시험

앞에서 기술한 산화처리 장치는 산화 분위기 조절되는 chamber내에 회전되는 drum을 장착하고 그 내부에 우라늄 부스러기를 넣어 산화시키는 구조이어서 가열 최대온도가 약 500 $^{\circ}\text{C}$ 제한되고 온도가 높을수록 장치의 내구성이 저하된다. 따라서 온도를 300 $^{\circ}\text{C}$, 400 $^{\circ}\text{C}$, 500 $^{\circ}\text{C}$ 선정하여 산화 거동을 시험하였다.

진득진득한 우라늄 부스러기 15.56 kg을 장입하고 우선 100 °C에서 진공 약 7시간 정도 진공 건조한 다음 상온에서 산소를 장입하여 자연 발화를 시험하였다. 온도 변화가 없는 현상에서 자연 발화는 일어나지 않는 것으로 판단되었다. 이어서 300 °C로 온도를 올려 약 7시간 정도 진공 건조를 시킨 후 냉각이 된 그 다음 날 산소를 천천히 주입하여 자연발화 여부 시험을 하였다. 온도가 11 °C에서 점점 상승하여 75분 정도 경과 시점에서 65 °C 최고점에 이른 후 온도가 점점 하강되는 현상을 보였다. Drum을 꺼내어 무게를 측정하여 우라늄 부스러기가 장입 무게 대비 앞의 100 °C 건조는 약 15% 정도 감소되었으나 300 °C 건조 후에는 약 20% 정도가 감소되었음을 나타냈다. Drum을 다시 장전하여 진공을 걸고 1시간정도 300 °C 승온 시키고 약 7시간 동안 산화처리를 하였다. 익일 상온까지 냉각된 장치에 산소를 천천히 자연발화 시험을 하였다. 온도가 8 °C에서 약 75분간 매우 천천히 상승하여 18 °C까지 이른 후 유지 됨을 보였다. 산화 처리 후 무게의 변화는 약 0.4 %정도 약간 감소함을 보였다. 다시 장치에 장전하고 1시간 정도 온도를 300 °C로 올리고 7시간 정도 추가로 산화처리를 하였다. 같은 방법으로 한 자연발화 시험에서 온도가 8 °C에서 서서히 상승하여 60분 경과 시점에서 34 °C의 최고 온도를 나타낸 후 하강함을 보였다.

400 °C 산화 시험으로 우라늄 부스러기 15.32 kg을 채취 장입한 다음 진공 pump로 배기를 시키면서 1 시간에 걸쳐 400 °C로 올린 다음 7시간 동안 건조를 시켰다. 익일 상온까지 냉각된 상태에서 상기와 같이 자연발화 시험을 하였다. 온도가 비교적 큰 폭으로 상승하여 95분 경과 시점에서 123 °C 최고 온도를 나타냈다. 무게 변화는 30% 정도로 300 °C의 경우보다 크게 감소됨을 보였다. 다시 장입하여 400 °C까지 1 시간 동안 올리고 7시간 동안 산소를 주입하여 산화처리를 하였다. 익일 상온에서 자연 발화 시험에서 11 °C에서 상승하여 약 1 시간 후 71 °C까지 상승됨을 보였다. 무게 변화는 약 0,7 %로 작게 나타났다. 다시 장입하여 산화처리를 2차 반복하여 실시한 후, 익일 상온에서 자연발화 시험에서 13 °C에서 45분에 걸쳐 20 °C까지 약간 상승하는 결과를 보였다.

500 °C 산화시험을 우라늄 부스러기 14.01 kg을 채취하여 수행하였다. 500 °C에서 7시간 건조한 시료의 자연발화 시험에서 100분에 걸쳐 98 °C까지 큰 폭으로 상승하였다. 이어서 500 °C에서 1차 7시간 산화처리한 시료의 자연발화 시험에서 온도 변화가 일어나지 않았고, 2차 7시간 산화처리한 시료의 자연발화시험에서 도 온도변화가 거의 없었다. 무게변화는 28.6%로 400 °C의 산화처리보다 손실율은 작다. 이 결과는 채취한 시료의 수분 또는 질산염 함량이 상이한 것에 유래된 것으로 판단된다.

상기 결과에서 장기 저장 중에 자연 발화 화재 위험성을 없애기 위한 산화처리 조건은 500 °C에서 1일 건조 1일 산화처리가 충분하지만 장치 특성상 500 °C가 장치 내구성에 악영향을 줄 가능성이 있어 최적의 산화처리 조건을 400 °C 1일 건조 후 2일 산화처리 조건으로 생각되었다.

4. 산화처리한 시료의 관찰 및 분석

100 °C 진공 건조 및 이어서 300 °C에서 7시간 진공 건조한 시료는 진득진득하여 취급하기 어려울 정도였다. 300 °C 14시간 산화처리는 부슬부슬한 분말한 형태로 되었으나 탄소 함량이 8% 이상은 것에서 질산염이 다량 잔류되어 있는 것으로 추정된다. 400 °C 산화처리한 시료는 탄소 함량이 1% 미만으로 감소되고 우라늄산화물 함량이 85% 이상이 되었고, 500 °C 산화처리하면 탄소 함량이 0.5% 미만으로 저하되고 우라늄 산화물 함량도 약 90% 가되어 저장 중에 산화열로 문제발생이 전혀 없을 것으로 판단된다. 300 °C 14시간 산화처리한 시료를 추가로 산화처리한 시료의 IR분석 결과에서도 420 °C 산화처리 시료는 UO₂의 결정구조를 보였고, 650 °C 산화처리한 시료는 U₃O₈ 결정구조를 보였다.

5. 결론

핵연료 개발 등에서 모의 물질로 감손 우라늄 금속을 사용하는 과정에서 발생하는 우라늄 부스러기는 자연발화 위험성이 있어 안전한 저장을 하기 위해 산화처리할 경우에 적합한 조건을 수립하기 위해 여러 온도 조건으로 산화처리 시험한 결과 400 °C 1일 이상 산화처리 하면 산소와 추가 반응열도 거의 없고 가연성 물질 탄소 함량도 1% 미만으로 저하되어 본 장치의 온도에 대한 장치의 내구성 영향을 감안하여 400 °C에서 1일(7시간) 건조 후 2일 이상 산화처리 조건을 최적 조건으로 수립하였다.