

연구로용 우라늄 합금 분산 핵연료 제조시설의 화재 가상 사고에 대한
시설 외부로 핵연료물질 누출량 예측을 위한 모의시험연구

An Investigation on the estimation of the released nuclear material from
the uranium alloy dispersion research reactor fuel fabrication facility by
carrying out a simulated experiment

김 창규, 박 희대, 오 석진, 안 현석, 박 영웅*

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150번지

*한일원자력주식회사

요 약

원자력연구소에서 건설추진 중인 핵연료기술개발연구내에서 연구로핵연료가공사
업의 추진하고자 인허가 관련 업무를 수행하고 있다. 시설의 내진등급과 안전등급
은 사고시의 시설로부터 누출되는 핵물질에 의한 주민 피폭량으로 설정된다. 연구
로 핵연료인 금속 핵연료 가공시설의 사고시의 핵물질 누출량 추정 계산 전례가 없
어 건설 계획중인 시설에 대하여 보수적인 개념으로 모의 축소시설을 제작하여 화
재 가상시험을 수행하였다. 연구로 핵연료 가공시설내에 공정장치가 설치되어 있는 상
황을 chamber내 도가니에 핵연료 물질이 담겨져 있는 것으로 간주하고 화재발생을 약
800℃ 가열하고 chamber에 공기를 분당 2회 환기시키는 유량으로 유입시키고 배기는
냉각관을 거쳐 hepa filter를 통하여 외부로 배출하는 것으로 모의 실험을 하였다. 핵물
질은 급격한 연소반응이 없는 것으로 나타났으며 연소 생성물은 99% 이상 도가니에 잔
존하였고 환기와 함께 배기구를 통과한 핵물질은 1% 미만인 것으로 측정되었다. 핵연
료분말과 알루미늄 분말을 혼합한 물질은 알루미늄이 용융되어 핵연료분말을 덮는 현상
이 발생되었으며 배기 filter로 유입된 핵물질은 없는 것으로 측정되었다. 따라서 연구로
핵연료 가공시설에서 사고시에 배기 duct 와 stack을 거쳐 외부로 배출되는 핵물질량은
보유량의 1% 미만일 것으로 추정되며 보수적인 개념에서 사고시 배출량은 1%로 기준
합이 타당할 것으로 판단된다.

ABSTRACT

KAERI (Korea Atomic Energy Research Institute) endeavors to get the license
of research reactor fuel production, which will be carried out in the nuclear fuel
research and fabrication facility under designing. In general, the class of seismic
category and quality group classification is decided according to the estimated
radiation dose on a body in off-site. Because the releasing estimation of nuclear

material for research reactor fuel facility has not been known, a simulated experiment about a fire accident of the planning facility have been carried out with having a conservative concept. The processing equipments in the facility were supposed as a crucible containing nuclear material was located in the chamber. A fire accident was simulated as heating crucible up to 800°C. Air was fed in to chamber at the flow rate of two times circulations per minute. The air went out through the cooling jacket pipe and hepa filter to outside. The explosive reaction was not observed and more than 99% of reacted material appeared to remain in the crucible. The fraction of the overflowed material from chamber was measured to be less than 1 %. The mixed powder of fuel and aluminum powders showed that aluminum material was melted and then covered over fuel particles. In this case, the over flowed nuclear material from chamber was not found. Therefore, the releasing fraction of nuclear material from research reactor fuel facility is assumed to be less than 1 %. Accordingly it is suggested that the releasing factor of nuclear material in the fire accident should be 1 % in the view point of conservative concept.

1. 서론

한국원자력(연)에서 건설 추진 중인 핵연료기술연구동, 즉 연구로 핵연료 가공시설과 첨단 핵연료 연구시설로 구성되는 건물에 대하여 내진 또는 안전 등급을 선정하는데 사고 시의 방사성 물질 누출에 의한 주민의 피폭선량 예측값이 사용된다. 외부 환경으로 누출될 수 있는 방사성물질은 핵종은 대부분 알파붕괴를 하는 우라늄핵종 이므로 외부피폭은 무시하고 호흡에 의한 내부피폭만을 고려한다. 사고시 피폭선량평가를 위해 사용되는 대기확산인자의 계산은 US NRC Reg. Guide 1.145 모델에 따라 지상 방출모델을 사용하며 사고시 피폭선량은 전신선량(whole-body dose)과 호흡으로 인한 갑상선선량(thyroid dose)으로 규제된다[1].

시설에서 방출되는 방사성물질은 핵임계사고를 제외하고는 우라늄핵종에 국한되며, 따라서 갑상선에 대한 선량평가는 생략된다. 그러므로 피폭선량의 평가는 우라늄핵종을 호흡하는 경우 가장 큰 피폭을 받는 폐(Lung) 및 뼈표면(Bone Surface)에서의 피폭선량을 평가하고, 또한 유효피폭선량을 계산하여 전신선량에 대한 규제치와 비교·평가한다. 사고발생 후 2시간 동안 호흡에 의해 개인이 받는 장기별 최대 피폭선량은 다음 식으로 계산된다[2].

$$D_j = (X/Q) \times B \times Q \times \sum(g \cdot A)_j$$

D_j : 호흡에 의해 장기 j가 받는 피폭선량(mSv)

X/Q : 사고시 대기확산인자(sec/m³)

B : 호흡율(m³/sec)

Q : 누출되는 우라늄 물질의 양(kgU)

$\sum(g \cdot A)_j$: 우라늄 1kg당 장기 j에 대한 피폭선량인자(mSv/kgU)

여기에서 누출되는 우라늄 물질량 계산을 다음과 한다.

$$Q = G \times F_B \times (F_A \cdot F_L) \times F_G$$

G : 우라늄 재고량(uranium inventory)

- F_B : 공정장치로부터의 누출율
- F_A : 누출된 우라늄 중 에어로졸을 형성하는 분율
- F_L : 폐의 공기 크기 분율
- F_G : 발생된 에어로졸중 건물로부터 누출되는 분율

발전용 원자로 핵연료 물질은 누출량 예측계산 전례가 있으나 우라늄 합금 분산 핵연료 물질인 경우에는 그 전례를 찾을 수가 없다. 발전용 원자로 핵연료는 수 μm 정도로 미세한 분말이지만 연구로 핵연료 분말입자 크기는 약 80 μm 정도로 조대하다. 연구로 핵연료는 우라늄 금속 원료를 진공분위기에서 용융합금하고 주조하여 얻은 괴를 파쇄/분쇄하여 핵연료분말을 제조하거나 합금용탕을 원심분무하여 핵연료 분말을 제조한 다음 알루미늄 분말과 혼합하여 압분하고 약 400 $^{\circ}\text{C}$ 정도까지 가열시켜 압출 성형하는 방법으로 제조한다[3]. 금속 재료의 핵연료분말은 가연성이며 비표면적이 클수록 반응이 잘 되는 일반적인 성향이 있고, 알루미늄 분말은 표면에 부동성 산화물 피막으로 연소성이 없는 것으로 알려져 있으나 자체 반응성이 화재시 거동을 확신할 수 없는 실정이다.

공정 장치에서 누출되어 환기배관 통하여 시설 외부 환경으로 배출되는 우라늄 누출량을 예측하기 위하여 신규 건설 계획중인 시설에 대하여 보수적인 개념으로 모의 축소시설을 제작하여 화재 가상시험을 수행하였다.

2. 실험방법

연구로 핵연료 가공시설내에 공정장치가 설치되어 있는 상황을 chamber내에 도가니가 있고 도가니에 핵연료 물질이 담겨져 있는 것으로 간주하고 화재발생을 약 800 $^{\circ}\text{C}$ 가열하는 것으로 모의하였다. 일반적으로 우라늄 금속은 약 300 $^{\circ}\text{C}$ 이상 되면 공기중의 산소 및 질소와 반응된다고 보고된 바 있어 800 $^{\circ}\text{C}$ 정도면 화재 영향에 의하여 공기와 충분히 반응된다고 생각된다.

화재시 화염 및 대류로 인하여 분진이 배기 통로를 따라 배출되는 것에 대하여 chamber에 공기를 분당 2회 환기시키는 유량으로 유입시키고 chamber에서 배출되는 기체는 냉각관을 거쳐 hepa filter를 통하여 외부로 배출되도록 그림 1과 같이 제작하였다.

핵연료 물질 연소 중에 발생하는 분진이 모의 장치 외부로 누출되지 않도록 hepa filter 다음에 배출 pump를 설치하여 chamber내에 negative 압력이 형성되도록 하였다. 도나에 금속 우라늄 괴, U-7wt.%Mo 합금의 핵연료 분말 또는 U-7wt.%Mo 분말과 aluminum 분말과의 혼합 분말을 약 50 g 칭량하여 약 40 cc의 고순도 alumina(Al_2O_3)

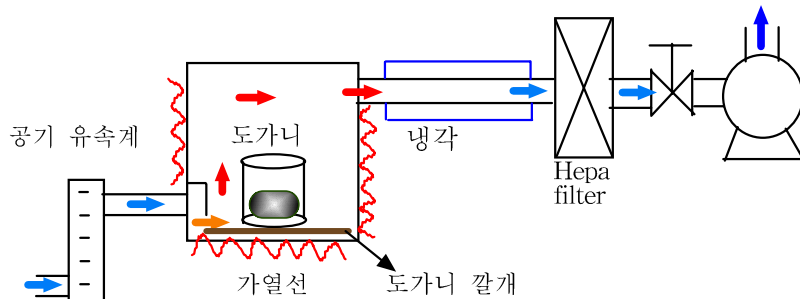


그림 1. 실험장치 개략도

도가니에 넣은 후 chamber에 장입하고, 송풍기를 작동하고 valve를 조정하여 공기 유속계에 분당 7 liter되도록 하고, chamber 출구측의 배관에 붙어 있는 cooling jacket에 냉각수를 유입시킨 다음 가열시켰다. 가열은 chamber 외부에 설치된 저항 열선이며 chamber 내부에 설치한 thermocouple로 온도가 최고 850 °C까지 자동으로 도달되도록 하였고, 통전한 후 시간에 따른 온도를 측정하여 기록하며 온도가 850 °C 도달한 후에도 약 30분 동안 유지시키고 전원을 차단하여 자연 냉각시켰다. Chamber온도가 상온 부근까지 냉각된 후 도가니 및 깔개를 꺼내어 무게를 칭량하고 hepa filter 및 case를 분해하여 무게를 칭량하였다.

4. 결과

가열시키면서 chamber내부가 승온되는 변화를 관찰하여 그림 1 와 같이 나타냈다. 매우 급격한 변화 즉 거의 폭발과 같은 반응의 온도변화는 발생되지 않았다. 이 중에서 가장 급격히 상승된 시료는 U-7wt.%Mo + Al 혼합분말로 알루미늄 분말의 급격한 산화로 추정되고, 가장 완만히 상승된 시료는 우라늄 금속 원료 덩어리였다. 앞에서 설명한 바와 같이 비표면적이 작기 때문인 것으로 생각된다.

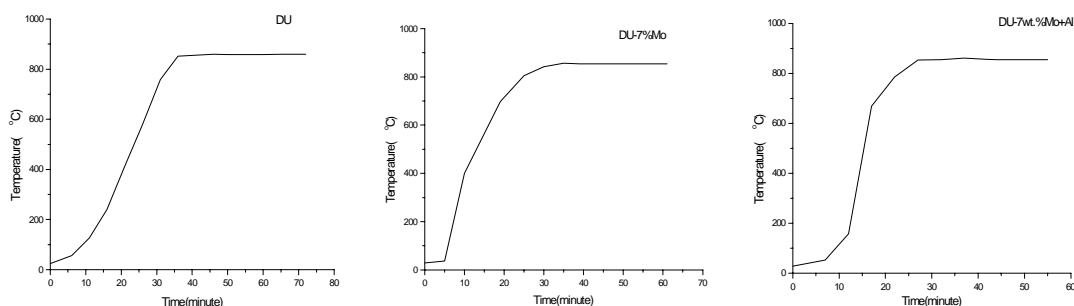


그림 3. 실험장치 chamber 내부 온도 상승 거동

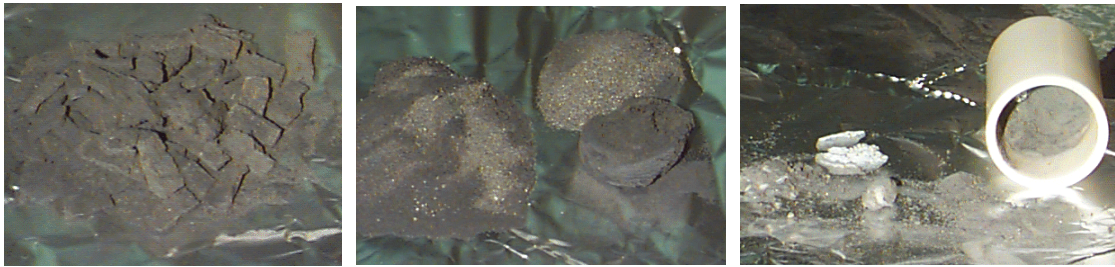
가열 승온되면서 환기중의 산소와 반응전과 후의 무게를 부품별로 칭량하여 표 1 과 같은 결과를 얻었다. 핵물질은 99% 이상 대부분 도가니에 잔존함을 보였다. 이중 U-Mo 핵연료분말 물질이 도가니 외부로 유출된 양이 가장 많은 것으로 나타났다. 분말 입자 크기가 평균 80 μm로 미세하여 비표면적이 상당히 크기 때문에 산소와의 반응이 보다 과격하게 일어난 것으로 생각된다. 반면 이보다 입자 크기가 작은 U-7wt.%Mo +Al 혼합분말인 경우에는 핵물질 유출량이 거의 없는 것으로 측정되었다. 온도가 상승될 때 저융점인 물질인 Al이 먼저 용융되어 핵연료분말을 도포하는 것으로 관찰되었다.

환기 중의 산소와 반응에 의하여 전 시료는 10% 이상 무게가 증가됨을 보였다. 가장 크게 증가함을 보인 시료는 U-7wt.%Mo 분말이다. 같은 분말 형태이나 U-7wt.%Mo + Al 혼합분말은 가장 적은 무게 증가율을 나타냈다. Al분말이 먼저 용융되어 핵연료 입자를 도포하면서 산화를 방해하였고 또한 Al입자 자체는 표면에 형성되는 치밀한 산화막에 의하여 지속적인 산화반응이 잘 진행되지 않았기 때문인 것으로 추정된다.

반응 후의 잔존물질은 우라늄 금속 원료 덩어리는 그림 4 와 같이 도가니 상부 층 우라늄 덩어리는 거의 완전 산화되어 분말화 되었으나 밑층에 있었던 우라늄 덩어리는

표 1. 연소 전후 무게 측정 결과

실험구분		도가니	Chamber바 닥	Filter	합계	무게 증가율	
우라늄 금속	반응 전	무게	49.74 g		49.74 g	10.9%	
	반응 후	무게	54.77 g	0.01 g	0.30 g		55.18 g
		분율	99.26 %	0.02 %	0.54 %		
U-7wt.%Mo 분말	반응 전	무게	49.68 g		49.68g	14.73%	
	반응 후	무게	56.44 g	0.01 g	0.45 g		57.00 g
		분율	99.02 %	0.02 %	0.79 %		
U-7wt.%Mo + Al 혼합분말	반응 전	무게	49.00 g		49.00 g	10.04%	
	반응 후	무게	53.92 g	없음	없음		53.92 g
		분율	100 %				



1) 우라늄 금속 2) U-7wt.%Mo 분말 3) U-7wt.%Mo 과 Al 혼합분말
그림 4. 잔존한 각 시료 사진

금속 덩어리 형태로 잔존하였다. 상층부에서 먼저 산화되어 덮고 있어 산소 공급을 방해하였기 때문인 것으로 생각된다. 또한 금속 덩어리는 표피층에서 산화되어 생성된 물질이 쉽게 박리 되면 반응이 빠르지만 덮고 있을 경우에는 덮고 있는 층을 통하여 산소가 공급되어 반응되는 mechanism으로 다소 반응이 느려진 것으로 추정된다. U-7wt.%Mo + Al 혼합분말은 용융된 알루미늄 물질이 분말을 덩어리로 응집시키는 역할을 하여 Al 금속광택의 덩어리를 형성시킨 것으로 생각된다. U-7wt.%Mo 분말은 보다 산화되어 생성된 분말물질이 가장 많이 존재하는 것으로 관찰되었으나 하부층에는 충분한 산소 공급이 안 되어 소결된 덩어리 형태로 형성됨을 나타냈다.

잔존한 반응물에 대하여 화학분석을 하여 표 2 와 같은 결과를 얻었다. 산소 함량은 U-7wt.%Mo과 Al의 혼합분말이 가장 많았고 우라늄 금속 반응물이 이보다 약간 낮은 함량을 나타냈다. 알루미늄 산화물이 산소 함량 비율이 크기 때문인 것으로 생각된다. U-7wt.%Mo분말에서는 산소 함량이 훨씬 떨어지는 반면 질소 함량이 매우 많은 것으로 분석되었다. Mo 원소가 공기중의 질소와의 친화성이 강하거나 우라늄이 질소와 잘 반

표 2. 잔존한 반응물 화학분석 결과

원소	우라늄 금속	U-7wt.%Mo분말	U-7wt.%Mo과 Al 혼합분말
U	85.80±0.09 wt.%	82.60±0.04 wt.%	39.08±0.02 wt.%
Mo	< 50 ppm	6.2 wt.%	2.8 wt.%
Al	87 ppm	50 ppm	37.3 wt.%
C	980 ppm	210 ppm	40 ppm
H	92 ppm	457 ppm	132 ppm
O	10.4 wt.%	6.86 wt.%	11.31 wt.%
N	3.57 wt.%	8.57 wt.%	1.64 wt.%

응이 일어나도록 촉매작용을 하는 것으로 생각할 수 있다. 반면 U-7wt.%Mo과 Al의 혼합 분말은 가장 질소 함량이 낮은 것으로 나타났다. 우라늄 금속 반응물의 질소 함량은 우라늄과 결합 형태를 UN으로 고려할 경우 질소가 매우 많은 양으로 생각되며 본 실험에서 얻은 특이한 결과이다.

5. 결론

- 연소될 수 있는 공기를 충분히 공급해주는 조건에서 연소시험을 한 결과 급격한 연소반응이 없는 것으로 나타났다.
- 연소 생성물은 99% 이상 도가니에 잔존하였고 환기와 함께 배기구를 통과한 핵물질은 1 % 미만인 것으로 측정되었다.
- 핵연료분말과 알루미늄 분말을 혼합한 물질은 알루미늄이 용융되어 핵연료분말을 덮는 현상이 발생되었으며 배기 filter로 유입된 핵물질은 없는 것으로 측정되었다.
- 따라서 연구로 핵연료 가공시설에서 사고시에 배기 duct 와 stack을 거쳐 외부로 배출되는 핵물질량은 보유량의 1 % 미만일 것으로 추정되며 보수적인 개념에서 사고시 배출량은 1%로 기준함이 타당할 것으로 판단된다.

감사의 글

본 결과는 과학기술부의 원자력연구개발 중장기계획사업의 일환으로 연구로용 개량 핵연료 개발과제에서 수행한 것으로 연구비 지원에 대하여 감사드립니다.

참고문헌

1. US NRC Regulatory Guide 1.145, "Atmospheric Dispersion Models for Potential Accident Consequence Assessments at Nuclear Power Plant", Rev.1, 1982
2. 과학기술부령, 제정 2000. 4. 18
3. Preparation and Characterization of Uranium Silicide Dispersion Nuclear Fuel by Centrifugal Atomization. Journal of Korea Powder Metallurgy Institute, Vol. 1. No. 1, 19943.