

우라늄용액에 의한 오염금속 제염

Decontamination of Metal Surface Contaminated by Uranyl Solution

이규일, 최윤동, 황두성, 박진호, 황성태
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

우라늄변환시설 내 금속 반응장치에 대한 오염확인과 화학제염에 의한 제염정도를 측정하였다. 변환시설에 설치된 반응장치 대부분은 stainless steel 재료로 이루어져 있으며, 이들은 우라늄용액 및 부식성 화학약품인 질산과 접촉되어 있었다. 따라서 금속표면에 대한 오염은 우라늄 물질에 대한 것이며, 알파 방사선 측정으로 제염정도를 확인할 수 있었다. 알파 방사선측정을 위하여 대표공정인 용해공정 용매추출 공정 그리고 AUC 침전공정에서 사용되었던 장치 중에서 대표시료를 취하였으며, 시편은 18mm x 18mm x 5mm 크기로 가공하였다. 우라늄으로 오염된 금속표면은 물에 의한 물리적 제염만으로 우라늄에 의한 알파 방사선량을 약 10 Bq/cm² 이하로 제염시킬 수 있었으며, 10% 질산용액을 사용하였을 경우 바탕 값 준위인 0.04 Bq/cm² 이하로 제염시킬 수 있음을 확인하였다.

Abstract

Decontamination degrees was measured for the metallic equipments in the uranium conversion plant by a chemical decontamination and contamination degrees also measured. Most equipments was made of stainless steel and contacted with uranium(VI) and nitric acid solution. So, metallic surfaces was contaminated with uranium(VI) materials. And decontamination degrees can be expressed by alpha activity measurements. For the alpha activity measurements, metallic specimens were selected in the three representative processes, dissolution process, solvent extraction, and ammonium uranyl carbonate(AUC) precipitation and were prepared to rectangular parallelepipeds with 18mm width and 18mm length and 5mm height. The metallic surfaces can be decontaminated under 10 Bq/cm² alpha activity due to uranium by only water decontamination,

and under 0.04 Bq/cm^2 alpha activity by 10% nitric acid decontamination that is ground activity level.

1. 서론

우라늄 변환시설[1]은 천연 우라늄 정광(U_3O_8)으로부터 중수로용 핵연료 원료가 되는 이산화우라늄분말(UO_2)을 생산하는 시설이다. 본 시설은 우라늄 정광의 용해, 정제, AUC 또는 ADU(ammonium di-uranate) 침전, 그리고 이들 침전물을 배소 및 환원시키는 일련의 화학처리공정으로 이루어져 있다. 이 중에서 최종 생산물인 UO_2 분말을 제조하는 AUC 또는 ADU 공정을 제외한 모든 공정에서는 우라늄 6가 물질을 취급하고 있다. 우라늄 6가 물질은 물에 대한 용해도가 크고 산성 매질 내에서 액체상태를 이루고 있어서, 이들 물질을 취급하는 용기(stainless steel) 표면을 부식 시키어 용기 표면에 쉽게 흡착된다. 일반적으로 금속표면에 흡착된 우라늄(VI) 물질은 물에 의한 단순세척 또는 물리적 단순제염 등의 수단으로 대부분이 제거되지만 완전히 제거되기는 쉽지 않다. 특히 장기간 우라늄(VI) 용액에 노출되어 있던 금속표면에 대한 완전제염을 위해서는 화학 제염제를 이용[2,3,4]하거나 전기화학적 제염 수단[5]을 이용한다. 변환시설 내 대부분의 장치들은 금속용기로 이루어져 있으며 이들 장치들에 대한 제염 수준을 바탕값 수준으로 만들 수 있다면, 변환시설환경복원 시 발생하는 고체폐기물량을 크게 줄일 수 있게된다. 이는 고체폐기물 부피의 대부분을 차지하고 있는 것이 금속용기이기 때문이다. 본 실험은 우라늄(VI) 물질에 의하여 오염된 금속표면을 화학제염에 의해서 바탕 값 수준으로 제염시킬 수 있는지에 대한 가능성을 확인하는 연구이다.

2. 방사선 측정

본 실험을 위한 방사선 측정은 저준위 α , β counting system (LB5100W, Oxford Co.)을 사용하였으며 방사선 계측시간은 방사선량에 따라 각 시편마다 10분 또는 50분씩 3회 측정하였으며, 단위시편에 대한 측정 한계는 0.05 Bq 미만이다.

3. 실험

1) 대표시료 채취:

그림1에 우라늄(VI) 물질을 취급했던 공정 중에 대표적인 3가지 공정장치로부터 금속부품을 해체한 것으로, 그림1(a)는 우라늄용해공정으로부터 나오는 우라늄(VI) 용액을 여과하는 장치로서 화학반응조건은 상대적으로 매우 격렬한 조건(80°C , 진한 질산)에서 사용되었던 장치이다. 그림1(b)는 용매추출공정으로부터 해체시킨 부품으로 유기용매 및 수용액 매질에서 사용되었던 장치이다. 그리고 그림1(c)는 AUC 공정으로부터 나온 부품으로 비교적 높은 농도의 우라늄(VI) 용액과 접촉되었던 장치이다. 이와 같이 3가지 공정으로부터 얻은 각 부품에 대한 방사선(α)량 측정을 위하여 그림2에서와 같이 가로 세로 그리고 높이가 각각

18mm 18mm 그리고 5mm되는 시편크기로 가공하였다. 그림3은 앞에서 언급한 표준시편을 가공하고 난 후 남은 공정부품을 보여주고 있다. 그림1(a)로부터 표준시료 가공 시 용접부위와 용접부위가 아닌 곳으로 분류하여 2종류 시편을 마련하였다.



(a)

(b)

(c)

그림 1. 변환시설 내 대표공정으로부터 해체한 장치 부품: (a) 용해공정 여과장치, (b) 용매 추출공정 추출 탭 부품, (c) AUC 침전장치 부품

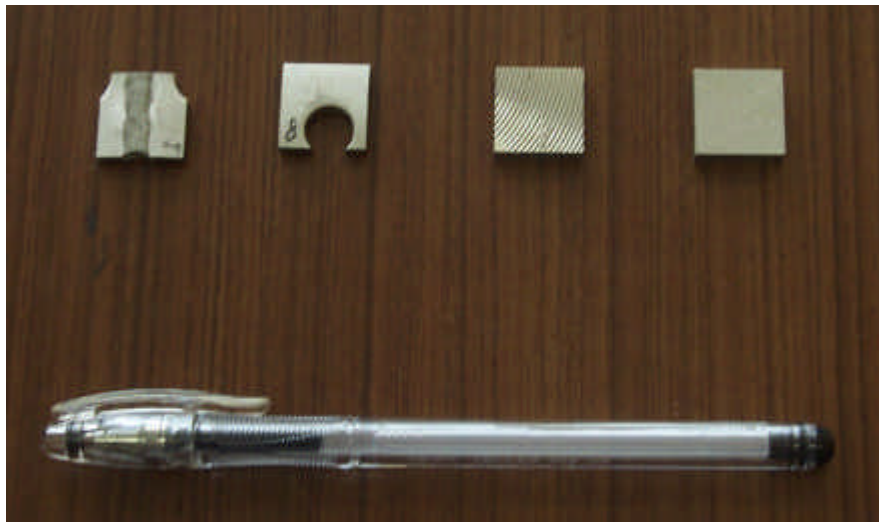


그림 2. 표준시료: 각 시편 크기=18mmx18mmx5mm

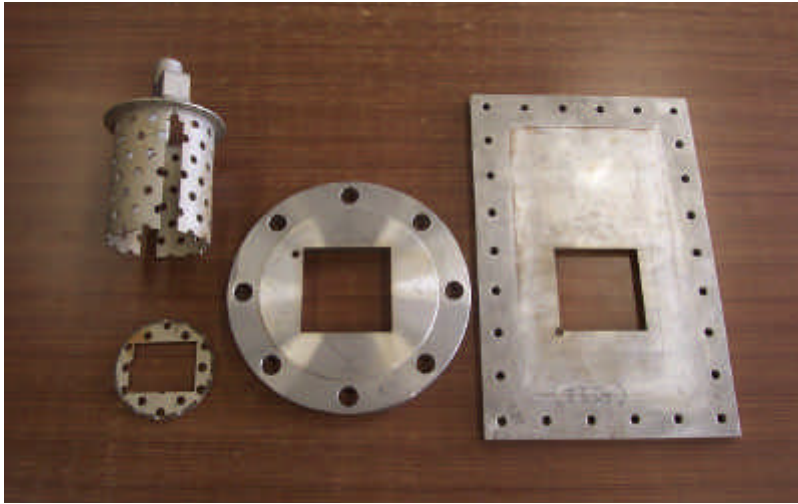


그림 3. 표준시편 가공 후 남은 대표공정장치 부품

2) 화학제염:

화학제염은 질산을 이용하였으며, 5% 및 10% 질산용액을 사용하였으며, 제염온도 및 제염 처리시간에 따른 제염효과를 측정하였다.

4. 결과 및 고찰

표준시편에 대한 금속표면으로부터 방출되는 방사선(α)량 측정값을 표1에 나타내었다. 표준시편은 1차로 물로 단순하게 세척한 상태인 것으로서 용매추출공정으로부터 나온 시편에 대한 방사선량이 시편 당 약 0.1Bq로서 다른 공정에서 나온 시편보다 가장 적은 값을 보였다. 이는 용매추출공정에서는 유기물이 사용되며, 이때 유기물은 금속용기표면에 보호막을 형성하게 되고 이것이 금속표면에 우라늄산화물이 침투하는 것을 막아주는 역할을 하기 때문인 것으로 보인다. 용해공정으로부터 얻어진 시편에 대한 방사선량은 시편 당 약 1~10Bq 이었으며 특히 용접부위가 있는 시편에서 방사선량이 높게 나타남을 알 수 있다. 이는 용접 부위에 쉽게 우라늄산화물이 침투됨을 보여주고 있다. 한편 AUC공정으로부터 얻은 시편에 대한 방사선량은 약 5Bq 이하의 값을 나타내고 있다. AUC공정 시편에서 이처럼 비교적 높은 방사선량을 보이는 것은 AUC공정에서 다루는 우라늄(VI)농도가 비교적 높고(300~400 gU/l) AUC 침전물과 금속표면과의 마찰 작용에 의해서 금속표면에 우라늄산화물 막의 형성을 용이하게 해주는 영향으로 생각 할 수 있다.

그림4는 20℃에서 5% 및 10% 질산용액을 사용하여 표준시편을 제염처리 시켰을 경우 제염 정도를 나타내고 있다. 표준시편은 3가지 대표공정 장치로부터 나온 시편을 선택하였다. 그림4에서 나타났듯이 제염시간이 증가되면서 표면방사선량은 급격히 감소하고 있다. 그러나 제염시간이 길어져도 마지막으로 남아있는 미량의 방사선량을 바탕 값 이하의 수준으로 떨어뜨릴 수는 없었다. 그림5는 50℃에서 5% 및 10% 질산용액을 사용하여 표준시편을 제염처리 시켰을 경우 제염 정도를 보여주고 있다. 제염효과는 그림4의 20℃에서 제염 시켰을 경우와 유사하게 나타났다. 그러나 제염시간을 24시간으로 하였을 경우 표준시편들에 대한 방사선량은 모두 바탕 값 수준으로 줄었음을 알 수 있다. 이는 금속표면에 흡착된 우라늄산화 막이 완전하게 제거되었음을 의미한다. 다시 말해서 50℃에서 5% 나 10% 질산용액으

로 금속표면을 제염시키면 제염 후 방사선량을 바탕 값 수준($0.04\text{Bq}/\text{cm}^2$)으로 낮출 수 있음을 나타내고 있다. 바탕 값 수준으로 제염시켰을 경우 오염되었던 금속은 모두 규제해제 고체폐기물로 분류되며 타 용도로 이용 할 수 있게 된다.

표1. 금속표면으로부터 방출되는 방사능(α)

시료종류	Gross Alpha Activity(Bq/unit) ^a			
용해공정 여과장치용접시편	3.33 ± 0.27	5.51 ± 0.37	6.50 ± 0.41	6.40 ± 0.41
	4.91 ± 0.34	7.11 ± 0.43	9.24 ± 0.51	
용해공정 여과장치시편	0.82 ± 0.13	1.18 ± 0.16	4.38 ± 0.32	0.52 ± 0.10
	1.85 ± 0.20	0.99 ± 0.14	1.22 ± 0.16	0.63 ± 0.11
	2.49 ± 0.23	2.69 ± 0.24	1.43 ± 0.17	1.75 ± 0.19
	0.65 ± 0.11	0.66 ± 0.12	0.48 ± 0.10	0.50 ± 0.10
	0.97 ± 0.14	2.56 ± 0.24	0.90 ± 0.13	0.35 ± 0.08
	3.47 ± 0.28	3.34 ± 0.27	0.76 ± 0.12	0.83 ± 0.13
	1.17 ± 0.15	0.99 ± 0.14	0.81 ± 0.13	1.23 ± 0.16
용매추출공정 추출탑시편	N.D	0.10 ± 0.05	N.D	0.10 ± 0.05
	N.D	0.06 ± 0.04	N.D	N.D
	0.07 ± 0.04	0.07 ± 0.04	N.D	N.D
	0.09 ± 0.05	0.06 ± 0.04	N.D	0.06 ± 0.04
	N.D	0.06 ± 0.04	0.13 ± 0.05	N.D
	N.D	N.D	N.D	N.D
AUC침전공정 침전생산장치시편	3.91 ± 0.30	3.02 ± 0.26	3.37 ± 0.27	1.55 ± 0.18
	3.80 ± 0.29	3.64 ± 0.29	3.87 ± 0.30	3.84 ± 0.30
	2.93 ± 0.25	3.94 ± 0.30	3.68 ± 0.29	3.04 ± 0.26
	2.10 ± 0.21	3.19 ± 0.27	3.34 ± 0.27	2.35 ± 0.22
	2.78 ± 0.25	4.49 ± 0.32	3.51 ± 0.28	4.13 ± 0.31
	3.07 ± 0.26	3.90 ± 0.30	3.46 ± 0.28	3.40 ± 0.28

a: 계측시간= 10분(3회 측정), N.D<0.05 Bq/unit

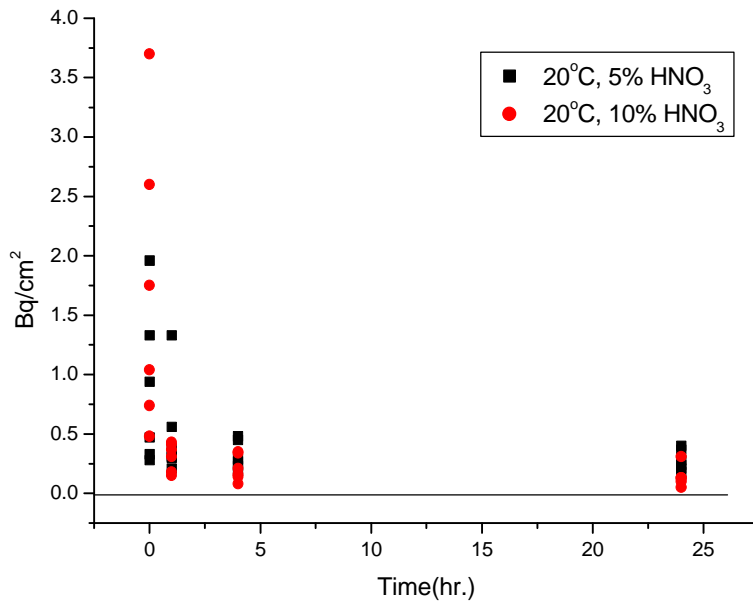


그림 4. 오염금속에 대한 20°C에서 질산용액 제염 효과

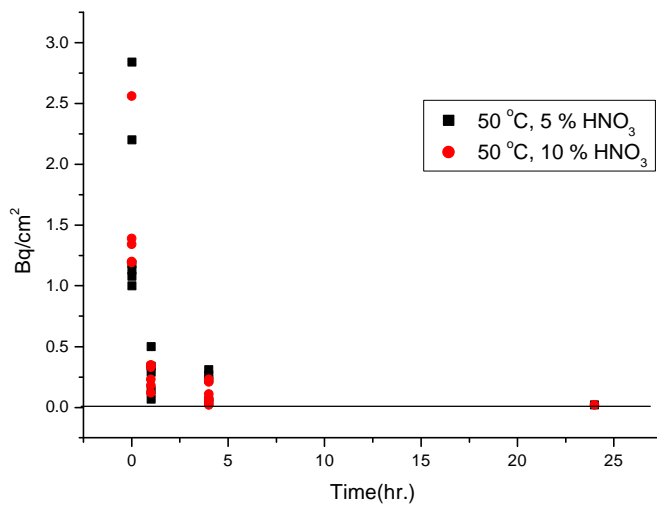


그림 5. 오염금속에 대한 50°C에서 질산용액 제염효과

5. 결론

변환시설 내 여러 공정설비 대부분은 금속장치들로 이루어져 있으며, 향후 변환시설 환경 복원을 위하여 이들 금속장치들에 대한 제염이 불가피하다. 변환시설은 천연우라늄을 다루

어 왔으며, 대부분의 공정은 우라늄(VI) 산화물을 취급하였기 때문에 금속설비 표면은 우라늄(VI) 산화물 막으로 오염되어 있다. 그러므로 일반적 물을 이용한 오염장비에 대한 세척으로 표면에 부착된 우라늄산화물의 대부분을 쉽게 제거 할 수 있다. 그러나 오염된 장비에 대한 방사선량을 바탕 값 수준으로 만들기는 쉽지 않다. 본 연구에서는 묽은 질산용액(5% 및 10%)을 사용하여 50℃에서 오염금속장치시편을 제염 시켰을 경우 하루 이상의 제염시간을 유지시키면 제염 후 금속시편에 대한 방사선량을 바탕 값 준위로 줄일 수 있었다. 따라서 오염금속 대부분은 제염시켜서 규제해제 폐기물로 전용이 가능하다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부 재정 지원 아래 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었으며 이에 감사 드립니다.

참고문헌

1. 정기정 외, “변환시설 제염 및 해체” 2001 추계학술발표회 논문집 한국원자력학회, 2001. 10.24~26.
2. L. Chen, D. B. Chamberlain, C. Conner, and G. F. Vandegrift, " A Survey of Decontamination Processes Applicable to DOE Nuclear Facilities" ANL-97/19 (1998)
3. Decommissioning Handbook, DOE/EM-0142P, USA (1994)
4. IAEA, State of the Art Technology for Decontamination and Dismantling of Nuclear Facilities, Technical Reports Series No. 395, IAEA, Viena (1999).
5. D. E. Wedman, J. L. Lugo, D. K. Ford, T. O. Nelson, V. L. Trujillo, H. E. Martinez, "Electrochemical Decontamination System for Actinide Processing Gloveboxes" CONF-980307 (1998)