

변환시설 제염 및 해체

Decommissioning of Uranium Conversion Plant

최윤동, 황두성, 이규일, 정운수, 박진호, 황성태, 정기정

한국원자력연구소,
대전시 유성구 덕진동 150

요약

우라늄변환시설은 건설된 지 20년이 경과하여 설치된 대부분의 장치들이 노후화 되었으며, Lagoon에 저장된 본 시설 가동 중 발생되었던 액체폐기물에 대한 안전한 처리가 요구되고 있다. 따라서 2001년도부터 변환시설에 대한 제염 및 해체를 결정하게 되었다. 본 연구는 변환시설 제염 및 해체를 위한 준비단계로서 우라늄변환시설 내부 및 외부에 대한 시설 내용과 이력 등 시설 전반에 대한 현황을 조사하고, 오염특성에 따른 제염 및 해체 방법을 검토하여 주요 대상물에 대한 몇 가지 처리방안을 도출하였다.

Abstract

Since about 20 years have passed after the construction of the uranium conversion plant, most equipments installed have worn out. Liquid wastes stored in lagoons which were generated during the operation of this plant are needed to be treated safely. Therefore, the decommissioning project on the uranium conversion plant was started from 2001. This study is a preliminary step for the decommissioning of the uranium conversion plant. It was reviewed on the plant status overall, especially facility descriptions and operational histories for the installations located inside and outside of the plant and methods of decontamination and of dismantling to the contamination conditions. And some proper options on each main object was proposed.

1. 배경

변환시설은 중수로 형 핵연료인 이산화우라늄(UO_2) 분말 국산화를 목적으로 1982년에 한-불 기술협력에 의하여 건설된 년 100 톤-U 규모 시설[1]이다. 그러나 초기 우라늄변환 공정인 ADU(Ammonium Di-Uranate)공정을 거친 이산화우라늄분말 특성이 중수로 발전소 월성1호기 핵연료로 사용하기에는 부적합[2]하였기 때문에, 1983~1987년 동안에 원자력연구소 자체 연구[3,4]를 통하여 AUC(Ammonium Uranyl Carbonate)공정을 개발하여 변환시설 보완 및 추가 시설을 건설[5,6,7]하였다. 그 후 1987년 한국전력과 중수로 형 핵연료 공급 계약을 체결하고, 1989~1992년 동안에 이산화우라늄 분말 약 320톤-U를 생산[8,9,10]하여 한국전력에 공급함으로써 중수로 형 핵연료 국산화를 이룩하였다. 동시에 본 AUC 공정 기술을 바탕으로 원전연료(주)에 년 200톤-U 규모 재변환 시설을 한국원자력연구소 기술로 설계 건설하고, 이와 관련된 운영요원의 교육을 완료함으로써 약 200억원 정도의 건설비 절감효과를 가져왔다. 이로서 본 변환시설은 본래의 목적인 핵연료 국산화 기술 자립에 십분 기여하였으며, 관련된 기술은 한국전력에 이관하게됨에 따라

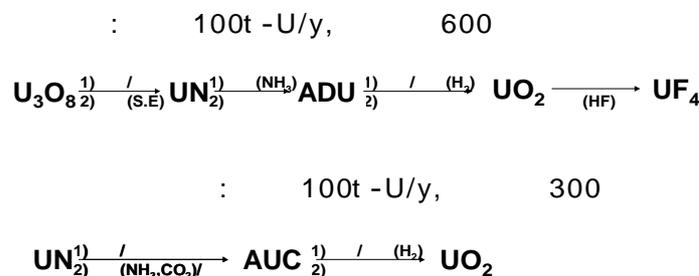
1993년 4월에 본 시설에 대한 휴지를 신고하였다. 변환시설 휴지 이후 방사선 물질 오염방지를 위하여 내부 및 외부 시설물에 대한 유지 및 관리를 수행[11-17]하여왔다.

변환시설 내부에는 우라늄변환을 위한 여러 가지 단위공정 이 있으며 이에 속해있는 각종 배관, 반응용기 및 저장용기 등은 일차로 물로 한차례 세척한 후 모든 액체는 비워져 있는 상태에 있다. 그러나 저장용기바닥에 일부 남아있는 액체가 부식된 밸브를 통해서 시설 내부로 누출되는 경우가 있어 이런 경우에는 제염조치하고, 매 분기별로 시설 내부에 대한 방사선 표면오염도, 공간선량 및 공기 오염도를 측정하여 오염관리를 수행하여왔다. 결과적으로, 이러한 시설관리는 변환시설 제염 및 해체로 종결되어야한다. 변환시설 외부에는 시설 가동 시 공급되었던 각종 화공약품 저장용기 및 유틸리티 시설이 설치되어 있었으나 현재에는 이들 모두가 철거된 상태이며, 단지 액체폐기물이 저장된 두 개의 라군(lagoon)만이 관리되고 있다. 시설 휴지 당시에는 두 개 라군에 저장된 액체 폐기물의 수위는 거의 만 수위를 나타내었으나, 약 9년이 지난 지금은 휘발성 물은 자연증발에 의하여 모두 제거되었고 우라늄을 함유한 무기염류만이 남아있다. 그러나 궁극적으로 이것 역시 처리되어야 할 것이다.

본 변환시설은 천연우라늄을 취급했던 시설로서 변환시설을 제염 및 해체에 있어서 방사선학적 측면에서 안전성에대한 비중은 재변환 시설 또는 인공적으로 방사선 핵 종이 생산되는 원자로 시설 등에 대한 것보다는 훨씬 적다. 그러나 제염 및 해체 대상에 우라늄이 포함되어 있기 때문에 이를 취급 처리[20]함에 있어서 법적인 절차는 물론 대중에게 공개되어 만족되고 합리적인 완전하고 안전한 처리가 이루어져야 할 것이다.

2. 우라늄변환시설

본 우라늄변환시설은 크게 두 개의 건물로 나눌 수 있다. 그 중 하나는 한-불 기술협력으로 건설되었던 선행 핵주기 시설 과 후에 추가로 건설되었던 중수로형 핵연료 제조 시설이다. 이에 대한 공정흐름을 아래에 나타내었다.



변환시설에 대한 올바른 제염을 위하여 먼저 시설에서 다루었던 각종 화합물의 종류와 반응조건 그리고 각 공정에서 사용된 각종 반응용기에 대한 재료 등에 대한 조사가 필요하다.

가. 선행 핵주기 시설

선행 핵주기 시설은 앞에서 나타낸 바와 같이 크게 우라늄 정광(U₃O₈) 용해공정, UN(Uranyl Nitrate)여과 및 정제(용매추출)공정, ADU침전 및 여과공정, ADU 배소 및 환원공정(UO₂제조공정), UF₄제조공정, 그리고 폐기물 처리공정으로 이루어져 있다. 표1은 각 공정에서 사용되었던 화합물 형태, 반응조건, 반응장치, 그리고 장치 재질 등을 나타내었다. 표1은 각 공정에 설치된 장비에 대한 이력을 나타낸 것으로서 효과적 제염을 위하여 필요한 기본 자료가 된다.

ADU침전 및 여과공정, UO₂제조공정, 그리고 UF₄제조공정은 변환시설 건설 후 초기에 가동되었던 시설로서 가동기간은 약3개월 정도이었으며 길지 않았다. 반면에 정광 용해공정, UN여과 및 정제공정, 그리고 폐기물처리공정에 포함된 시설은 후에 추가로 건설된 중수로형 핵연료 제조

시설과 함께 변환시설 휴지 전까지 가동되었다.

나. 중수로형 핵연료 제조 시설

중수로형 핵연료 제조시설은 선행 핵주기 시설로부터 나온 UN용액을 증발 농축시켜서 AUC침전반응에 적합한 우라늄용액으로 만드는 공정, AUC침전 및 여과공정, AUC 배소 및 환원 공정(UO₂제조공정), 그리고 액체폐기물 처리공정으로 이루어져 있으며, 표1에 각 공정에서 사용되었던 화합물 형태, 반응조건, 반응장치, 그리고 장치 재질 등을 나타내었다.

다. 액체폐기물 저장(lagoon) 시설

변환시설로부터 발생된 모든 액체폐기물은 일차로 옥외에 설치된 액체폐기물 저장 연못(lagoon-I)으로 이송되었으며, 라군(lagoon)-I에 저장된 액체폐기물은 폐기물처리공정을 거쳐서 액체폐기물 중에 존재하는 대부분의 우라늄이 제거된 상태로 라군-II에 저장되었다. 액체폐기물 저장연못 바닥은 고무로 코팅된 콘크리트 구조이며, 상부는 유리 지붕을 설치하여 빗물이나 눈으로 인한 물의 유입을 차단시킨 상태에 있다. 그림1은 라군의 현재 상태를 보여주고 있다. 각 라군 상층부에는 무기염이 포화된 연한 미색 투명한 액체 층이 약4~8cm 두께로 놓여있고 그 아래층은 슬러지 상태로 있다. 투명 액체 층은 여름에는 액체 상태로 존재하며 기온이 낮은 겨울에는 흰색 고체상태로 존재한다. 변환시설을 휴지 시킨 직후 라군-I과 라군-II에 대한 액체폐기물 수위는 각기 약2.8m와 2.0m 정도를 나타내었으나, 지금은 대부분의 물이 자연 증발되어 각 라군 모두 무기염으로 포화된 상태에 이르러서 더 이상의 물이 증발되지 못하고 있다. 따라서 라군에 저장 중인 폐기물은 현재 슬러지(sludge) 상태로 존재하며, 라군-I과 라군-II에는 각각 약 150m³ 및 100m³의 슬러지 폐기물이 있다. 두 개 라군 슬러지 모두는 상층부분과 하층부분 슬러지 구성에 차이가 있으나 물리적으로 분리할 수 없는 상태로 있다. 표2에 각 라군에 있는 슬러지의 대략적 화학조성을 나타내었다. 라군-I에 있는 슬러지 중에 우라늄함량은 약22gU/1나 되며, 변환시설 내에 우라늄 핵 물질 계량관리하에 있는 우라늄 양(3.262톤-U)은 모두 라군-I에 보관되어 있다. 라군-I 슬러지 혼합물을 이루고 있는 주요 무기염은 표2에 나타낸 바와 같이 NH₄NO₃와 NaNO₃이며 소량 Ca(NO₃)₂이다. 라군-II 슬러지 중에도 역시 우라늄이 소량(약100ppm) 포함되어 있으며, 주요 무기염으로 Ca(NO₃)₂와 Ca(OH)₂가 포함되어 있다.

3. 제염 및 해체

변환시설 제염은 각 공정오염특성에 따라서 제염방법이 결정되어야 할 것이며, 이때 결정된 제염방법을 적용 시 취급의 용이성과 아울러 방사선 및 화학물질에 대한 위해 성을 줄여야 한다. 또한 제염 효과가 최대가 됨은 물론 제염에 의한 2차 폐기물 발생 양이 최소화 되도록 하여야 하며, 제염 중에 발생된 액체폐기물을 처리하여 환경에 방출시킬 경우 환경 친화물질로 변환시켜서 피해가 최소화될 수 있어야 한다.

변환시설 내부 각 공정에 설치된 장비나 반응용기 그리고 배관장치에 대한 제염은 표면에 오염된 우라늄 화합물에 대한 제염이며 화학제염이 적당하다[18,19]. 화학제염을 실시할 경우, 제염 후 발생되는 액체폐기물은 재 순환시켜서 사용될 수 있어야하고, 폐기물 중에 함유된 우라늄은 제거시키거나 회수되어서 최종적으로 남는 고체폐기물 양이 가능한 적게 발생되도록 하여야 한다. 변환공정에 사용된 장비는 표1에서 보는 바와 같이 몇 가지 특수 반응용기를 제외하고는 모두 스텐(stainless steel) 재료로 만들어 졌다. 이와 같이 스텐 재질 표면제염을 위하여, 지금까지 알려진 많은 화학제염 방법 중에서 본 시설에 적합한 방법으로는 표3에 제시한 몇 가지를 들 수 있다. 화학제염에 널리 쓰이는 강산성 무기산으로는 표3에 제시한 것 외에도 황산, 인산 등이 있으나 황산은 변환시설과 같은 규모로 취급하기에는 작업자 안전에 특별한 주의를 요하므로 배

제되었으며, 인산은 가격이 비싸기 때문에 제외시켰다. 강산성 무기산을 사용할 경우 다른 제염제를 사용할 경우보다 가격이 저렴하고 제염시간이 짧으며 제염효율이 높다. 염산과 질산은 금속 표면 세척에 매우 효과적이며, 특히 질산은 우라늄산화물을 용해시키는데 매우 효과적이다.

변환시설에서 우라늄화합물을 용해시키는데 질산을 사용했으며 우라늄용액 상태로 있는 모든 공정은 질산 매질을 사용하였다. 따라서 우라늄용액을 취급했던 공정에 관련된 시설물 제염에는 질산을 사용함이 적절하다. 그러나 정광 용해조와 같은 우라늄 취급조건이 강했던 장치에 관해서는 질산만을 사용해서 제염이 완전하지 못할 경우가 있다. 이런 경우에는 표3에 언급된 무기염(Na_2SO_4 , $(\text{NH}_4)_2\text{C}_2\text{O}_4$)이나 유기산($\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4$) 또는 산화제(KMnO_4 , H_2O_2) 등을 첨가하여 사용할 수 있으며, 더 강력한 제염 시약인 불화붕산 등을 사용할 수 있다. 또한 같은 제염시약을 사용하더라도 제염조건에 따라서 제염정도가 크게 차이가 나는데, 일반적으로 높은 온도($70\sim 80^\circ\text{C}$)를 유지시키거나 사용시약의 농도를 높이면 제염효율이 증대된다.

우라늄 정제(용매추출)공정은 유기물질을 다루었던 관계로 먼저 반응장치에 부착된 유기물을 세척하여야 한다. 이때는 kerosene과 같은 유기용매를 사용해서 장치 내에 남아있는 유기물을 먼저 제거 해야하며, 때에 따라서는 계면활성제를 포함한 세척제(sodium lauryl sulfate, sodium oleate)를 사용해서 남아있는 유기물을 완전하게 제거해야 한다. 그 후 강산을 적용해서 제염을 수행하고, 때로는 착화합물 형성제인 EDTA를 함께 사용하여 제염효과를 높일 수 있다. 그러나 변환시설에 실제 적용은 그 절차가 단순함이 바람직하며, 곧 바로 강산 제염과정으로 들어갈 수도 있다.

ADU나 AUC를 배소 및 환원시켜서 UO_2 를 만드는 공정이나 UF_4 를 제조하는 공정에 사용된 반응장치는 약 600°C 이상의 높은 온도에서 반응이 진행되었기 때문에 우라늄금속산화물이 반응장치를 이루고 있는 금속재료 속으로 확산되어 침투될 수 있다. 따라서 이 경우 단순하게 금속 표면 제염만으로 완전한 제염을 이루기가 어렵다. 이런 경우에는 일차로 화학제염을 수행한 후에 전해연마와 같은 수단을 동원하여 우라늄이 침투되어 있는 층까지 녹여 내는 방법을 취할 수 있는데, 이 방법은 제염장치 설치비용이 고가이므로 전해연마법을 택하기 전에 경제성 검토가 필요하다. 선형 핵주기시설에 있는 rotary kilns 등은 가동기간이 짧았기 때문에 화학제염으로 충분히 제염될 수 있을 것으로 보이며, 중수로 핵연료 제조시설에 있는 유동화 반응장치는 가동기간이 길었기(약5년) 때문에 우라늄금속이 반응용기 재료 속으로 상당부분 침투되어 있을 것으로 예상된다.

변환시설 각 단위공정에 설치된 장치는 반응용기, 액체 저장용기, 배관, 밸브, 액체 이송 펌프, 등으로 이루어져 있다. 변환시설 해체를 위하여 이들은 제염이나 해체 철거에 용이하도록 분해되거나 작은 조각으로 절단되어야 한다. 시설해체를 위한 절단은 주로 배관과 오염정도가 심하고 부피가 큰 반응용기 등에 적용될 것이다. 배관 절단에는 배관절단기, 연마절단기, 쇠톱, 그리고 날 절단기 등과 같은 일반절단 공구를 사용할 수 있다. 그리고 반응용기 절단에는, 용기를 이루고 있는 스텐 재료의 두께가 대부분 $4\sim 16\text{mm}$ 로 두껍기 때문에 플라즈마 아크(plasma arc), 아크 톱(arc saw), 열 랜스(thermic lance) 등을 이용해서 절단할 수 있다[21]. 변환시설은 천연우라늄만을 취급했던 시설이므로 고 방사선 선원이 없으며, 모든 절단 작업은 직접 수 작업이 가능하다.

변환시설 해체를 위하여 화학제염을 택한 것은 화학제염 시 발생하는 액체폐기물은 별도 폐기물처리과정을 두어서 쉽게 처리할 수 있다는 전제를 둔 것이다. 그러므로 화학제염 후 발생하는 우라늄 함유 액체폐기물에 대한 처리방안이 함께 고려되어야 한다. 제염으로 생성되는 액체폐기물에는 우라늄 양이 매우 적을 것이며, 이러한 우라늄은 이온교환 수지를 이용하여 회수하거나 침전시켜 회수하고 남은 액체 폐기물은 증발시키는 방법으로 쉽게 처리할 수 있을 것이다.

4. 결론

변환시설은 핵연료국산화기술을 실증하고 관련 기술자료를 원전연료(주)에 이전 완료함으로써 그 목적을 성취하였다. 현재 시설 내 기기 및 장치들은 노후 화되어 재가동이 불가하며, 기존 변환시설규모(년 100톤)로는 경제성이 없다. 또한 라군에 저장 중인 액체폐기물은 변환시설 가동 중지 이후 약9년이 경과함에 따라 지금은 더 이상 부피가 감소되지 않는 슬러지 상태 폐기물로 남아있다. 이러한 시점에서 변환시설해체는 당연한 결정이며, 변환시설 해체 시 얻어진 기술은 TRIGA 연구로 해체에도 적용할 수 있을 것이다.

시설 내 제반 장치들은 질산 매질 내에서 사용되었던 장치들로서 우라늄에 대한 제염은 질산을 주 제염시약으로 사용하여 처리될 수 있을 것이다. 다만 고온에서 사용되었던 몇몇 장치에 대하여는 질산 농도나 제염온도를 조절할 필요성이 있을 것이며, 때로는 HBF₄와 같은 제염 능력이 큰 시약을 사용해서 제염이 가능할 것으로 판단된다.

변환시설은 천연우라늄을 다루었던 시설이었기 때문에 각 장치에 대한 방사선 준위는 매우 낮다. 따라서 이들 시설물을 절단 해체 시 작업자가 직접 수 작업으로 일을 수행할 수 있다. 주요 반응용기에 적용될 절단방법은 플라즈마 아크, 아크 톱, 그리고 열 랜스 법 등이 될 것이다.

라군 슬러지에 대한 처리는 따로 연구가 필요하며, 궁극적으로 폐기물 장기저장에 안정한 형태로 변환되어 처리되어야 할 것이다.

시설 내 제반 공정 장치들에 대한 화학제염은 필연적으로 다량의 액체폐기물을 발생시킨다. 비록 이때 발생된 액체폐기물 중의 우라늄농도는 매우 적을 것이나 이에 대한 완전한 처리가 이루어져야 한다. 따라서 변환시설 해체 작업 시에는 적은 규모 액체폐기물 처리시설을 함께 운영해 나가야 할 것이다.

감사

본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발사업의 일환으로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

참고문헌

1. 서인석 외, “정련·변환 기술 개발” KAERI/RR-358/82
2. 장인순 외, “변환 공정 비교 연구” KAERI/AR-206/83
3. 서인석 외, “중수로 형 핵연료 물질 생산 기술 개발” KAERI/RR-398/84
4. 장인순 외, “우라늄 정제 공정 개선 연구” KAERI/RR-460/84
5. 장인순 외, “변환 시설 운영” KAERI/MR-95/85
6. 장인순 외, “변환 시설 운영” KAERI/MR-125/87
7. 황성태 외, “변환 시설 운영” KAERI/MR-145/88
8. 황성태 외, “ADU-UO₂ 제조 공정 운영” KAERI/MR-159/89
9. 황성태 외, “ADU-UO₂ 제조 공정 운영” KAERI/MR-950/90
10. 황성태 외, “중수로용 고밀도 핵연료 제조” KAERI/MR-1056/91
11. 황성태 외, “핵연료 변환시설 사후관리” KAERI/MR-245/94
12. 황성태 외, “핵연료 변환시설 사후관리” KAERI/MR-261/95
13. 황성태 외, “핵주기 시험시설 운영: 중수로용 핵연료 운영 변환시설 사후관리”
KAERI/MR-261/96
14. 김은가 외, “조사후 시험시설 운영” KAERI/MR-313/97
15. 김은가 외, “조사후 시험시설 운영” KAERI/MR-329/98
16. 민덕기 외, “조사후 시험시설 운영” KAERI/MR-341/99

17. 민덕기 외, “조사후 시험시설 운영” KAERI/MR-348/2000
18. IAEA, State of the Art Technology for Decontamination and Dismantling of Nuclear Facilities, Technical Reports Series No. 395, IAEA, Viena (1999).
19. Decommissioning Handbook, DOE/EM-0142P, USA (1994)
20. IAEA, Planning and Management for the Decommissioning of Research Reactors and Other Small Nuclear Facilities, Technical Reports Series No. 351, IAEA, Vienna (1993)
21. IAEA, Decontamination and Demolition of Concrete and Metal Structures During the Decommissioning of Nuclear Facilities, Technical Reports Series No. 286, IAEA, Viena (1988).

표1. 공정별 사용장비 및 반응처리조건

시설	공정	화합물형태	온도 (°C)	장비	재질
선행 핵주기 시설	정광 용해/여과	U ₃ O ₈ , HNO ₃	~95	dissolvers, tanks, pipes, pumps rotary drum filters, valves	stainless steel
	정제(용매추출)	UN, HNO ₃ , TBP, Dodecane	~60	pulse columns, pumps, tanks, pipes, valves	"
	ADC침전	UN, ADU, NH ₃	~90	rotary drum filter, precipitator, pumps, tanks, pipes, valves	"
	ADU배소/환원	ADU, UO ₃ , UO ₂	~650	rotary kilns, pipes, valves	Inconell
	UF ₄ 제조	UO ₂ , UF ₄ , HF	~600	rotary kiln, pipes, valves	"
	폐기물처리	NO _x , NH ₄ NO ₃ , NaOH, Ca(OH) ₂	~60	scrubber, tanks, pipes, pumps, valves	stainless steel
중수로형 핵연료 제조 시설	증발/농축	UN, HNO ₃	~100	evaporator, pipes, pumps, valves	"
	AUC침전/여과	UN, NH ₃ , CO ₂ , MeOH	~80	precipitator, rotary filters, pipes, pumps, valves	"
	AUC배소/환원/혼합	AUC, UO ₃ , UO ₂	~650	fluidized bed reactors, mixers, pipes, pumps, valves	Inconell
	폐기물처리	AUC, NH ₃	~90	precipitator, tanks, pipes, pumps, valves	stainless steel

표2. 슬러지(sludge) 화학조성

성분	라군-I	라군-II
U	~22g/l	~0.1g/l
NH ₄ NO ₃	~25%	~3%
NaNO ₃	~15%	~2%
Ca(NO ₃) ₂	~5%	~25%
Ca(OH) ₂	-	~15%
H ₂ O+Others	~55%	~55%

표3. 화학제염 방법 및 특징

화학제염 방법	시약	특징
무기 강 산	염산(HCL) 질산(HNO ₃) 불화붕산(HBF ₄)	금속산화물 용해 우라늄화합물 용해 금속산화물 용해
산성 염	NaHSO ₄ , Na ₂ SO ₄ , Fe ₂ (SO ₄) ₃ , (NH ₄) ₂ C ₂ O ₄	강산과 혼용 시 제염효과 증가
강 무기 염기	NaOH	grease, oil, paint 등 코팅 막 제거
유기 약 산	수산(H ₂ C ₂ O ₄)	금속표면 산화 막 용해
유기용매	Kerosene, trichloroethylene	유기물질 제거
산화제	KMnO ₄ , H ₂ O ₂	불용성 Cr(III)산화물을 산화시켜서 용해성 물질로 변환
킬레이트제	EDTA	킬레이트 화합물로 변환시켜서 용해



그림1. 라군-I(왼쪽) 및 라군-II(오른쪽)