

TRIGA 연구로 해체 시 발생하는 덕트 폐기물의 제염

Decontamination of Duct Waste Arising from the Decommissioning of TRIGA Research Reactor

최왕규, 이근우, 정경환, 오원진, 박진호
한국원자력연구소

요 약

국내의 가동중지 된 TRIGA 연구로의 해체 시 발생하는 다양한 덕트 폐기물의 자체처분을 위한 제염 공정을 개발할 목적으로 TRIGA 연구로에서 직접 인출한 덕트 시편을 대상으로 오염물의 성상을 조사하였고, 이를 통해 적절한 제염공정을 선정하였다. 페인트 도막이 입혀진 덕트 내부 계통 표면은 주로 Co-60과 Cs-137로 오염이 되어 있었으며, 이들 핵종은 페인트 층 내부뿐만 아니라 덕트 재료인 합석 표면의 아연 도금막까지 침투되어 있음을 알 수 있었다. 이들 표면 오염을 제거하기 위한 공정으로 NaOH와 황산을 교대로 사용하는 두 단계의 화학제염을 제시하였으며, 이들 제염제를 사용하는 제염공정의 적용을 통해 덕트 폐기물을 효과적으로 제염할 수 있었다.

Abstract

In order to develop the decontamination process for self-disposal with authorization of duct waste generated from the decommissioning of retired TRIGA research reactors, the surface characterization of duct specimen taken from TRIGA research reactor was carried out and the adequate decontamination method was selected. It can be known that the paint coated internal surface of duct is contaminated with ^{60}Co and ^{137}Cs , which are penetrated into the paint layer and incorporated into zinc plated surface of galvanized iron as the material of duct. Two step chemical decontamination process, in which sodium hydroxide and sulfuric acid solutions are used in turn, is quite successful to remove the surface contamination of duct waste.

1. 서 론

국내 최초의 연구용 원자로인 TRIGA MARK-II 및 TRIGA MARK-III의 해체가 진행됨에 따라 원자로 시설 및 부속시설의 공기 조화 및 배기체 처리에 사용되었던 덕트가 고체폐기물의 하나로 발생되고 있다. 현재 실험실측의 덕트는 일부 절단 해체되어 고체 폐기물로 소량 발생되어 있으며, 대부분의 덕트는 2004년 초부터 본격적으로 해체될 전망이어서 시설의 해체가 더욱 심도 있게 진행될수록 오염된 덕트 폐기물이 비교적 대량으로 발생될 것이 예상되고 있다. 그러나 일부 절단 해체된 덕트 폐기물은 처리 방법이 설정되어 있지 않아 임시로 제염·해체 중인 연구로 부속 건물의 일부 실험실 공간에 저장하고 있는 상태로서 임시 저장 공간의 협소, 작업 공간의 안전성 및 해체 폐기물 관리의 효율성 등을 고려하여 조속한 처리 방안의 설정이 요구되고 있는 시점에서 제염기술의 적용이 필요한 시점이다. 또한 연구소 내 폐기물 저장고의 한계 및 국내 처분장의

미비 문제를 안고 있는 현재 시점에서 오염된 덕트를 비 방사성 폐기물화 하여 방사성폐기물의 부피를 최소화 할 수 있는 제염기술 개발이 필요하다.

원자력 산업에서 시설 자체 및 내부 기기 등은 필연적으로 방사성 물질로 오염된다. 이들 오염은 시설 및 기기의 재질과 방사성 공정 물질과의 화학적 반응에 의해 발생하기도 하지만 비교적 흔히 미세하게 부착된 방사성 입자의 박막 침적에 의해 발생된다. 시설 및 기기의 설계 및 조업 절차서 등에 의하여 이러한 오염의 영향을 최소화시킬 수는 있지만 작업 환경에서 방사선 준위를 감소시키기 위해서는 제염이 필수적인 공정으로 알려져 있다. 제염은 대상 표면으로부터 불필요한 방사성 핵종의 제거로 정의된다[1]. 제염공정은 오염물의 형태, 오염물의 양 및 제거 정도를 제외하고는 불필요한 비방사성 표면 오염물을 제거하는 전통적인 표면 세정 공정과 유사하다. 원자력 산업에서의 제염은 근본적으로 반도체 산업에서와 같이 외부 오염물에 매우 민감한 제조 공정에서 고도의 세정이 요구되는 것과 마찬가지로 완벽한 수준의 오염 제거가 요구되고 있다. 이를 위해 현재 대부분의 제염 공정은 연마재를 사용하는 기계적 방법 또는 강한 세정 용액을 사용하는 화학적 방법 등이 포함되고 있다[1,2].

덕트 내부 오염은 주로 미세한 방사성 입자들이 달라붙어 있는 박막의 침적물 형태로 존재하며, 마이크로미터 크기보다 작은 미세 입자는 입자-기질간 이차 valence forces에 기인하여 다른 고체표면에 매우 강하게 고착되므로 단순한 기계적 방법으로는 제거가 곤란하다고 알려져 있다[3].

따라서 본 연구에서는 TRIGA 연구로 해체 시 발생하는 덕트 폐기물의 자체처분을 위한 제염 공정을 개발하는데 목표를 두고 실제 TRIGA 연구로에서 인출한 덕트 시편을 대상으로 제염실험을 수행하였다. 이를 위해 우선적으로 덕트 표면에 부착된 입자성 오염물의 부착 형태와 화학적 조성 및 오염된 방사성 핵종 등의 분석을 수행하여 덕트 표면으로부터 오염물을 제거하는데 적절한 제염제를 선정하였고, 이를 사용한 제염 실험을 통해 본 덕트 폐기물에 적합한 제염 공정을 제시하였다.

2. 실험

TRIGA 연구로에서 직접 인출한 덕트폐기물 시편을 대상으로 적합한 제염공정을 확립하기 위하여 덕트 시편 표면의 특성 조사와 아울러 몇 가지 제염 실험을 수행하였다. 인출된 덕트폐기물 시편은 약 4 cm × 4 cm 크기가 되도록 준비하였으며, 시편 표면의 상세한 형상은 광학현미경 (KH-2200 MD2, Hi-Scope Compact Microvision, System, Hirox)을 사용하여 조사하였다. 덕트 표면에 집적되어 있는 분진들의 화학적 특성을 조사하기 위하여 브러시를 사용하여 시편 표면으로부터 적당량의 분진을 수집한 후 EPMA (Electron Probe Micro Analyzer, JEOL8600)를 사용하여 분진의 화학적 성분을 분석하였다. 또한MCA를 사용하여 덕트폐기물에 오염된 핵종을 분석하였다.

덕트 폐기물 시편에 대한 제염은 온도가 일정하게 유지되는 유리 비이커 내에서 수행하였으며, 탈염수 내에서 브러시를 사용하여 표면 오염입자를 제거하는 물리적 제염과 KOH 및 황산 용액 내에서의 화학적 제염을 적용하였다. 이때 용액의 온도 및 부가적으로 동시에 초음파를 적용한 경우의 제염 성능을 비교하였으며, 제염 성능의 평가는 덕트폐기물 시편의 제염 전과 후의 β 방사능을 측정(Tennelec™ series 5 XLB, Canberra)하여 수행하였다.

3. 결과 및 고찰

가. 덕트폐기물의 오염특성

TRIGA 연구로 덕트 내부 표면의 오염 특성을 조사하기 위하여 일반 실험실측에서 해체 철거된 덕트 일부로부터 덕트를 이루고 있는 상, 하, 측면 시편과 핫셀측에서 해체된 시편을 인출하였으며, 이들 표면의 외형적인 형상을 디지털 카메라로 촬영하여 Fig. 1에 수록하였다. 좌측으로부터 덕트 밑면, 측면, 그리고 윗면에 대한 표면 사진으로 표면의 위치별로 예측되어질 수 있는

바와 같이 밑면은 상당한 두께로 먼지 등이 침적되어 있으며, 측면은 밑면에 비해서는 침적된 분진의 양이 작지만 상당량이 존재하고 있다. 윗면의 경우는 밑면 또는 측면과는 달리 표면에 집적된 분진의 양은 많지 않으나 표면이 군데군데 부식되어 상당히 고르지 못한 것으로 보인다.

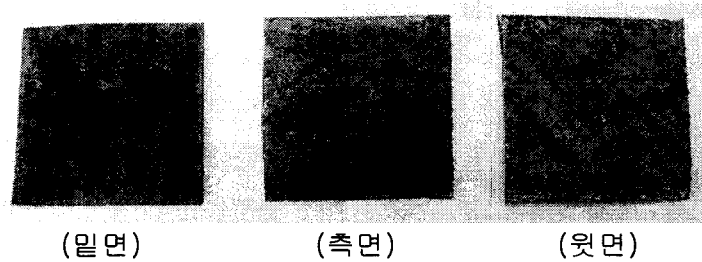


Fig.1. Photograph of the surfaces of duct taken from TRIGA research reactor.

덕트 표면에 집적되어 있는 분진들의 화학적 특성을 조사하기 위하여 브러시를 사용하여 분진을 표면으로부터 떨어뜨려 적당량을 수집한 후 EPMA(Electron Probe Micro Analyzer, JEOL8600)를 사용하여 분진의 화학적 성분을 분석하였다. 이 결과는 Table 1에 수록하였다.

Table 1. Chemical composition of dust collected from the surface of duct

Element	O	Na	Mg	Al	Si	S	Cl	K	Ca	Ti	Fe	Zn
%	47.63	1.89	0.40	2.02	5.13	8.81	1.31	0.86	11.49	1.49	2.29	16.68

분진의 화학적 조성을 살펴보면 S, Ca, 및 Zn의 함유량을 제외하고는 비교적 토양 먼지와 유사한 것으로 보인다. 토양의 경우 S, Ca 및 Zn는 거의 발견되지 않는 반면에 본 덕트 표면 오염 분진 시료에는 다량의 이러한 성분이 검출되었다. 여기서 Zn는 합석 표면의 아연 도금이 산화되어 부스러져 입자와 같이 혼합됨에 의한 것으로 사료되며, S 및 Ca는 본 덕트가 해체되기 전에 일부 실험실의 콘크리트 바닥을 파쇄하여 제염할 때 발생된 콘크리트 분진이 공기정화 계통에 집적된 것으로 판단된다.

또한 덕트 내부 표면의 방사능 오염 특성을 분석하였으며, 이때 계수 시간은 86400 초 (24 시간)이었고, 분석 결과는 Table 2에 수록하였다. 일반 실험실 및 핫셀 측 덕트 표면에 오염된 핵종은 Co-60와 Cs-137로 분석되었으며, Cs-137의 비방사능은 0.13 Bq/cm² 으로 덕트 위치에 관계없이 동일하였으나 Co-60의 비방사능은 핫셀 측이 일반실험실 측보다 약 10배정도 더 크게 나타났다. 일반실험실 측의 Co-60의 비방사능은 덕트 밑면에 비해 측면이 약간 낮기는 하지만 별로 차이가 없는 것으로 보인다.

Table 2. Specific radioactivity of the ducts.

Sample	Radionuclide	Specific Radioactivity (Bq/cm ²)	
		Co-60	Cs-137
1		0.14	0.13
2		0.13	0.13
3		1.44	0.13

※ Note) 1: A lower surface of duct sample taken from a general laboratory.

2: A side surface of duct sample taken from a general laboratory.

3: A surface of duct sample taken from a hot cell.

나. 덕트폐기물의 제염결과

TRIGA 연구로의 일반 실험실로부터 인출된 덕트 밀면의 시편을 탈염수 내에서 브러시로 닦아내거나 초음파를 적용하여 제염하였으며, 그 결과는 Fig. 2에 수록하였다.

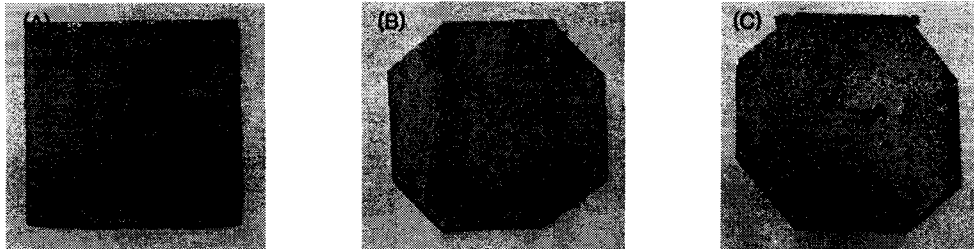


Fig. 2. Comparison of duct surfaces after decontamination by brushing(B), and ultrasonication for 2 minutes(C) in demineralized water at room temperature and before decontamination(A)

덕트 시편을 물로 세척하거나 물을 매체로 한 초음파를 적용한 경우에 표면 방사능은 초기에 비하여 10~30% 정도만이 제거됨을 알 수 있었으며 이는 오염물질이 페인트 도막 내부까지 침투되었음을 의미한다. 따라서 효과적인 제염을 위해서는 페인트 도막을 제거할 필요성이 있음을 알 수 있다.

페인트 제거제로써 염 및 염기성 화합물들이 다른 화합물들과 혼합하여 사용되고 있다는 사례 조사 [4]를 통해 KOH를 페인트 제거제로 선정하여, 페인트 도막 제거 실험과 함께 방사능이 제거되는 거동을 살펴보았다. 시편 표면을 상온 및 65°C의 1 M KOH 용액 내에 5~20분 동안 잠기도록 하여 제염한 경우에도 페인트 도막은 완전히 제거되지 않았으며, 온도가 증가함에 따라 페인트 제거 속도 역시 훨씬 증진됨을 보였으며, 이때 방사능은 초기의 40~50%가 제거되었다. 그러나 65°C의 1 M KOH 용액 내에서 초음파를 동시에 2분 동안 적용한 경우 덕트 표면에 있었던 페인트 도막은 완전히 제거되어 아연으로 도금된 함석 표면의 형상이 나타났으며, 방사능 준위도 95% 이상 제거되었다. 이 표면의 형상은 Fig. 3에 수록하였다.

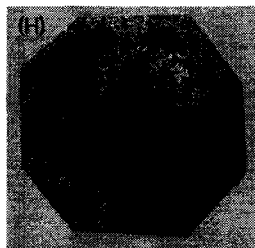


Fig. 3. The surface of duct specimen after decontamination by ultrasonication for 2 minutes in 1 M KOH solution at 65°C.

Fig. 3과 같은 결과에서도 방사능 준위가 background보다 약간 높게 나타나고 있으며 이는 일부 방사능 물질이 산화된 아연 도금막에 함침 되었다고 보이며, 따라서 덕트 폐기물을 비방사성 물질로 분류할 수 있게 되기 위해서는 아연 도금막까지 제거할 필요성이 있고 이를 위해 페인트 도막이 완전 제거된 시편을 1 M 질산 및 1 M 황산 용액을 사용하여 제염하였으며, 아연 도금막을 5분 내에 완전히 제거함으로써 자연방사능 준위까지 제염할 수 있었다. (Fig. 4)

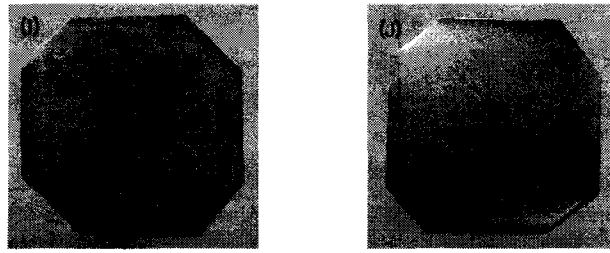


Fig. 4. The surface of duct specimens by decontaminating in 1 M HNO₃ for 5 minutes(I), and 1 M H₂SO₄ for 5 minutes(J) after treatment with the ultrasonication for 2 minutes in 1 M KOH solution at 65°C.

일반 실험실 덕트 윗면 및 페인트 도막의 종류가 다른 핫셀 내 덕트 시편 표면을 초음파 적용 유무에서 탈염수, KOH 용액 및 황산 용액으로 적용한 경우 일반 실험실 덕트 밑면 제염과 동일한 결과를 얻을 수 있었다.

다. 덕트 폐기물 제염 공정의 제안

덕트폐기물 제염 실험을 통해서 얻은 결과로부터 TRIGA 연구로 덕트폐기물의 자체처분을 위한 제염공정을 제안하였다. 덕트폐기물의 제염공정은 초음파 제염조에 맞게 적절한 크기로 절단된 덕트폐기물을 넣고 약 5분 동안 상온의 탈염수 내에서 표면에 loose하게 부착된 먼지 및 열화된 페인트 도막을 제거한 다음, 60°C 이상의 1 M KOH 용액 내에서 2분 동안 초음파 적용에 의해 페인트 도막을 완전 제거하고, 탈염수 내에서 KOH 제염 후 표면을 세척하는 세정단계를 거친다. 그래도 오염이 목표치까지 제거되지 않으면 상온의 1 M 황산 용액 내에서 5분 동안의 초음파를 적용하여 페인트 도막이 완전히 제거된 덕트 표면의 아연 도금막을 제거한 다음 최종적으로 탈염수 내에서 황산 제염 후 표면을 세척하고 건조시킨다. 이 과정을 거치면 덕트 표면 오염이 거의 완전하게 제거될 수 있을 것으로 기대된다.

사 사

본 연구는 과학기술부에서 지원하는 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

참 고 문 헌

1. J. A. Ayers, "Decontamination of Nuclear Reactors and Equipment", p. 4 in Sect. 1, The Ronald Press Company, New York (1970).
2. W. N. Rankin and J. F. McGlynn, "Overview of Decontamination Technology", DOE Report WSRC-RP-89-1080 (1990).
3. R. Kaiser, in "Particles on surfaces 2: Detection, adhesion, and removal", K.L.Mittal, Ed., pp. 269-282, Plenum Press, New York, NY (1989).
4. International Atomic Energy Agency, "State of the Art Technology for Decontamination and dismantling of Nuclear Facilities", Technical Reports Series No. 395, IAEA, Vienna (1999).