

KAERI/RR-2131/2000

최종보고서

고준위폐기물 처리전환기술개발

Development of High-Level Radioactive waste
Treatment and Conversion Technologies

고방사능 건식제염 기술개발

Dry Decontamination Technology Development
for Highly Radioactive Contaminants

연구기관

한국원자력연구소

과 학 기 술 부

제 출 문

과 학 기 술 부 장 관 귀하

본 보고서를 “고준위 폐기물 처리전환 기술개발” 과제(세부과제 “고방사능 건식제염기술 개발”)의 최종보고서로 제출합니다.

2001. 4.

주관연구기관명 : 한국원자력연구소

주관연구책임자 : 오 원 진

연 구 원 : 이 근 우
원 휘 준
정 종 헌
최 왕 규
김 계 남
문 제 권

요 약 문

I. 제 목

고방사능 건식제염 기술 개발

II. 연구개발의 목적 및 필요성

1. 고방사능 건식제염 기술 개발

원자력증장기 연구개발과제로 수행중인 DUPIC, 사용후핵연료차세대 관리, 장수명핵종변환 등 사용후핵연료처리 공정개발은 고방사성 핵물질의 건식처리기술로 아직 해외에서도 기술이용이 안된 국내 고유의 후행핵연료주기 기술개발이다. 본 건식처리는 고방사성 건식 Hot Cell에서 원격조작으로 처리되는 공정이기 때문에 고방사능 건식 제염기술을 적용하는 것이 매우 중요하다. 해외 선진국들은 대부분 습식처리 기술을 이용하고 있기 때문에 고방사능 건식제염 기술은 해외에서 아직 기술개발이 안되었다. 그러므로, 사용후핵연료 건식처리기술을 추진하고 있는 우리나라에만 필요한 기술로 독자적인 고 방사능 건식제염기술의 개발이 요구된다. 또한 고방사능 설비의 제염이 건식 제염으로 이루어졌을 경우 제염 후 잔류방사능으로 인해 작업자에게 미치는 영향을 평가하기 위해 설비 및 구조물에 남는 잔류방사능의 양을 예측하는 기술개발이 요구된다.

본 연구개발로 DUPIC, 사용후핵연료차세대관리 등 국내 고방사성 핵물질처리 공정장치 개발 및 시험실증에 요구되는 고방사성 핵물질 건식처리의 공통 애로기술인 고 방사능 제염의 기반기술이 확보될 것으로 본다.

2. 토양 제염 기술 개발

원자력연구소에 보관 중인 방사능 오염토양을 환경에 방출할 수 있는 수준까지 제염할 수 있는 기술을 개발하고 TRIGA 연구로 해체 및 핵시설 인근지역 토양오염에 대비한다.

III. 연구개발의 내용 및 범위

1. 제염대상 설비별 오염특성 및 건식제염 단위기술 적용성 평가

국내 핵연료주기기술개발의 일환으로 수행중인 경증수로 연계 핵연료주기 기술개발, 사용후 핵연료 관리이용 기술개발, 핵종변환 기술개발 등 관련 연구과제에서 제시한 기술개발 요건을 토대로 하여 오염물에 대한 오염설비의 특성, 형상 및 제염의 난이도 등을 고려하여 오염설비를 분류하였다. 또한 오염설비별 제염기술 개발 요건에 따른 기술 수요를 조사하여 적용 가능한 건식 제염기술을 비교 평가하였다.

2. 건식제염 단위기술 성능 평가

가. PFC 제염기술

우선적으로 PFC계 음이온 계면활성제, PFC계 양이온 계면활성제를 합성하고, PFC계 계면활성제 자체의 물성을 밝히며, 상업적으로 알려진 PFC계 계면활성제 및 본 연구를 통해 합성한 화합물들의 용액을 제조하여 용액의 전기화학적 특성을 포함한 물리화학적 특성을 측정함과 아울러 용액과 고체표면과의 상호 작용을 조사하여 PFC 유체를 사용하는 고방사능 입자성 오염물의 건식제염 공정을 이해하는데 기여하고자 하였다. 이를 기초로 하여 사용후핵연료 건식처리 공정에서 발생하는 고방사능 알파 오염물의 제염을 위하여 입자성 물질로 오염되는 모의 오염시편을 대상으로 PFC 유체를 사용하는 건식제염기술을 적용하고 제염공정의 성능을 평가하였다.

나. CO₂ 제염기술

2차 폐기물 발생이 최소화될 수 있는 환경 친화적인 건식제염기술의 하나로 CO₂ 제염기술을 선택하여 CO₂ 분사체의 종류에 따라 CO₂ snow 제염기술과 CO₂ pellet 제염기술로 나누어 이들 기술의 후행 핵연료주기 연구개발시설 적용을 목표로 단위 제염기술 성능 평가를 수행하였다.

다. 플라즈마 제염기술

1) 플라즈마 제염 단위 기술 적용성 분석 및 기초 실험

대상시설의 오염 특성을 파악한 후 이 시설들에 적합한 단위공

정의 적용성을 분석하고 이 단위 공정에 대한 플라즈마 제염 기초 실험을 수행하였다.

2) 방사성 오염 핵종별 건식 제염 공정 연구

RF 기체 플라즈마를 이용하여 오염 핵종별(CP, FP, TRU)로 여러 조건에서 제염율을 측정하고 단위 공정 변수, 온도, 압력, 혼합 기체 비에 대한 최적 제염율을 측정 분석하여 최적 제염 공정을 도출하였다.

3) QMS/OES를 이용한 플라즈마 건식 제염 진단 및 정량 분석

QMS와 OES, 그리고 ESP를 이용하여 확보된 공정 플라즈마의 밀도, 온도, 에너지 등을 분석 진단하였다.

4) 특성 기초 실험용 토치 설계(2.45GHz, Microwave Plasma)

확보된 공정 parameter를 기준으로 특성 기초 실험용 상압 플라즈마 토치를 설계하였다.

3. 잔류방사능 평가 방법론 개발

고 방사능 시설에서 방사능 물질로 오염되는 대상에 대한 조사와 고 방사능 시설 운영 시 구조물이나 기타 다른 금속류를 오염시키는 오염원에 대한 특성을 분석하였다. 이러한 선원항 특성 결과를 이용하여 핵종이 설비나 구조물 표면에 오염되는 특성과 구조물 표면을 오염시킨 방사성 핵종들이 구조물 내부로 확산되는 확산 현상의 발생 가능성과 그 과정에 대한 수학적 메커니즘에 대한 특성을 연구·분석하였다. 특히 내부오염이 주로 발생하는 다공성 매질인 콘크리트는 그 내부에 수분이 함유되어 있으며 콘크리트 내에 존재하는 수분이 방사성 핵종들의 확산현상에 어떻게 영향을 미치는지에 대한 모델링을 수행하였다.

이러한 내부오염 특성 파악을 통하여 구조물에의 방사성 핵종으로 인한 오염 분포를 도출하였으며 오염 분포를 바탕으로 표면 오염 제염 후 구조물 표면에 남아있는 잔류방사능의 양을 예측하였다. 또한 ICRP, IAEA, OECD/NEA와 같은 여러 국제기관에서 권고하는 최대 허용 표면 오염 농도를 본 연구에서 구한 제염 후 표면의 잔류방사능과 비교 평가하였다.

4. 고방사능 건식제염 공정장치 설계방향 설정 연구

Hot Cell 개·보수에 필요한 고방사능 건식제염기술을 개발하는데 있어서 그 1단계 연구로 다음과 같이 두 가지 경우에 대하여 고려되는 고방사능건식제염 설비의 공정장치 개념설계 방향을 정립하고자 하였다.

- IMEF (DUPIC, SF차세대관리 포함), PIEF 등 국내 Hot Cell에서 발생하는 고방사성 오염물(폐기물 포함)의 재사용 및 폐기물 저준위화 목적의 이송제염설비 공정장치
- IMEF (DUPIC, SF차세대관리 포함), PIEF 등 국내 Hot Cell의 보수 또는 내부설비 개조를 위한 현장제염설비 공정장치

5. TRIGA 토양제염 단위기술 개발

가. Soil washing 단위 기술 개발

- TRIGA 주변 토양 물리화학적 특성 분석, Co^{2+} 이온에 대한 평형 흡착계수 결정, citric acid에 의한 토양 반복세척 실험
- pH 및 유기물의 Sr^{2+} 이온의 토양 흡착에 미치는 영향 파악 및 citric acid의 농도변화에 따른 Sr^{2+} 이온의 제거율 변화 평가

나. Soil flushing 단위기술 개발

- Soil flushing 이론 수립 및 모델입력 변수 측정
- Soil flushing 장치 제작 및 제염실험

다. 동전기적 토양제염기술 개발

- 동전기적 토양제염 이론 수립 및 모델입력 변수 측정
- 제염 장치를 사용한 제염의 pH 영향 파악 및 초산 완충용액에 의한 pH 저감 방안

라. TRIGA 부지 토양폐기물 제염 적용성 실험

- 토양폐기물 분류, 오염특성 분석 및 제염실험

IV. 연구개발결과

1. 제염대상 설비별 오염특성 및 건식제염 단위기술 적용성 평가

오염설비는 크게 기계 장치류, 분석 및 전자 설비류, 계통 배관 및 탱크류, 벽면 및 바닥 구조물 및 hot cell 운전폐기물로 분류된다. 대부분 사용후핵연료를 고온에서 산화환원에 의한 분말을 취급하거나 중성자 조사된 재료들을 취급하는 시설들이므로, 오염특성은 사용후핵연료 취급 과정 중에 누출되는 TRU 원소와 fission products에 의한 미세 입자성 오염과 큰 에너지 방사선에 의해 방사화된 고방사능 알파 오염물이다. 오염 형태별로는 대부분 제염 대상이 상대적으로 넓은 면적의 표면 오염이며, 기기나 부품의 경우 제염 시 문제가 될 수 있는 깊은 홈이나 crevice 등이 많이 존재할 것으로 판단되며 이들 오염면의 기저 물질(base material)이 대개 화학적 물질에 내성이 강한 stainless steel 계통의 물질이다.

제염기술 수요는 현장제염 기술수요 보다는 오염설비 및 장비 등을 이송하여 제염전용 Hot Cell에서 제염하여 재사용 또는 저준위 방사성 폐기물화하는 이송제염기술 수요가 더 많을 것으로 판단된다.

제염대상물에 대하여 제염기술의 요건을 파악하고, 이에 근거한 적용 가능한 건식 제염기술을 제염성능, 이차폐기물의 발생정도, 기술 적용의 제한성, 원격조작 가능성 등 여러 인자들을 고려한 기술의 장단점 측면에서 고찰하고 비교 평가하였다.

또한 고방사능 건식제염의 주요 기술인 오염특성 평가기술, 단위제염공정, 제염폐기물 포집기술 등을 평가하여 제염대상물별 건식제염공정을 선정 하였고 공정흐름도를 도출하였다.

2. 건식제염 단위기술 성능 평가

가. PFC 제염기술

아세톤, 물, 에탄올 등의 용매를 사용하여 화학 치환법으로 화학적으로 안정한 대표적인 음이온성 PFC계 계면활성제인 metal pentadecafluoro-octanoate (metal : Li, Na, K, Cs)와 양이온성 PFC계

계면활성제인 N-perfluorooctyl-N'-methyl viologen를 합성하였고, 그것들의 물리화학적 특성을 용해도 및 계면활성도 측면에서 측정하고 분석하였다. 또한 고체표면과 PFC 및 PFC 계면활성제의 상호작용은 Si₃N₄ cantilever와 실리콘 웨이퍼 사이에 작용하는 힘을 측정 분석하는 AFM 방법을 사용하여 평가하였다. 이 결과 PFC 용액 내에 PFC계 계면활성제로 Krytox, Perfluoro-1-octanesulfonyl fluoride 및 Perfluoro-1-octyl bromide 등이 0.1% 정도만 포함되더라도 우수한 계면활성도를 나타내었다.

입자성 오염시편에 대한 건식 제염방법으로 PFC에 의한 초음파 제염실험 결과 순수한 PFC 용액 내에서의 제염에 비해 PFC 계면활성제가 포함된 PFC 용액에서의 제염효과가 훨씬 우수하였으며, 이 PFC 건식 제염으로 입자성 오염을 효과적으로 제거할 수 있었다. 또한 장시간의 단 한차례 초음파 제염을 적용하는 것보다 초음파 적용시간을 짧게 해서 새로 교체된 제염 용액 내에서 반복적으로 제염을 수행함으로써 입자성 오염을 더욱 효과적으로 제거할 수 있었다. 결론적으로 PFC계 계면활성제가 포함된 PFC 용액 내에서 초음파 제염에 의해 다음과 같은 본 연구의 제염성능 목표치를 달성할 수 있었다.

제염 목적	대상 오염물	제염 성능 목표치 (DF)
재활용	스테인레스강 전자기판	>200
피폭저감화	페인트 도막표면	>20
저준위폐기물화	실험 가운 등 피복류	>5

제염 종료 후에 이차폐기물의 발생이 최소화 되도록 PFC를 회수하여 재사용할 목적으로 증발 응축에 의한 회수 실험을 수행하였으며, 계면활성제가 혼합된 폐 제염용액으로부터 비교적 고가의 PFC를 회수할 수 있었다.

나. CO₂ 제염기술

SUS 304 금속시편에 형성시킨 느슨한 Co 오염에 대해 CO₂ snow 분사제염 성능평가 결과, 분사압력 10 Kg/cm², 접촉거리 10 mm, 분사시간 2.0 min에서 비교적 높은 제염효과를 얻을 수 있었으며(제염계수 61), 구동 메카니즘의 구비와 열풍히터 설치에 의한 제염 표면의 CO₂ 응결방지에 의해 제염효과를 각각 40-55%, DF 2-2.5배 증가시킬 수 있었다.

CO₂ pellet 분사제염 성능시험 결과, 건식 입자오염의 경우 제염 후 오염성분이 거의 검출되지 않아 거의 완벽한 제염효과를 나타내었고, 습식 오염 입자의 경우 CO₂ pellet 크기, 오염입자 크기, 분사압력 및 접촉시간의 증가에 따라 제염계수가 증가하였으며, CO₂ snow 분사제염 성능에 비해 약 10배 이상의 제염효과를 나타내었다.

다. 플라즈마 제염기술

1) 플라즈마 제염 단위 기술 적용성 분석 및 기초실험

시설이나 부품의 제염 대상에 대해 플라즈마 제염 적용성을 분석한 결과 기계장치류(Tool and machinery), 계통 및 배관류(system piping and tanks), 벽면 및 바닥류(floors, walls, and ceilings)의 제염에 충분히 적용할 수 있으며, 넓은 면적의 제염도 가능하고 정밀한 국부제염의 경우도 문제가 없을 것으로 판단된다.

따라서 먼저 이들 시설에서 주요 오염원으로 판단되는 부식 생성물(CP), 핵분열 생성물(FP) 그리고 TRU 핵종에 대한 플라즈마 제염 기술의 적용성 검토를 위해 기초 실험을 수행하였다. 실험 수행 결과 모든 대상 오염 핵종의 경우 온도와 RF 플라즈마 출력에 관계없이 O₂의 몰비가 20%에서 최대로 높은 식각률을 갖는 것으로 밝혀졌으며 UO₂의 경우 주요 생성물은 육불화우라늄(UF₆)로 전체 식각 반응은 $UO_2 + 3/2CF_4 + 3/8O_2 \rightarrow UF_6 + 3/2(CO \text{ or } CO_2)$ 로 진행되는 것으로 밝혀졌다.

Co의 경우 290℃에서는 반응이 일어나지 않지만 350~380℃ 사이에서의 식각율은 온도에 따라 거의 선형적인 증가를 보였고 Mo의 경우는 낮은 온도에서도 매우 높은 식각율을 보였다..

따라서 이들 핵종에 대한 기초 실험을 통하여 이들 대상 시설의 오염

제거에 플라즈마 제염을 충분히 적용할 수 있는 것으로 드러났다.

2) 방사성 오염 핵종별 플라즈마 제염 공정 연구

기초 실험을 근거로 대상 시설 대상 오염 핵종별 건식 제염 공정 연구를 수행하였다.

TRU를 대표하는 UO_2 의 경우 최적 $CF_4 + O_2$ 기체 혼합비(O_2 부피비가 20%)일 때 가장 높은 제염율을 나타내어 $380^\circ C$ 에서 최대 $0.4 \mu m/min.$ 의 높은 식각율을 확보하였다. 또한 최적의 제염 조건에서 RF Plasma의 출력에 따른 제염 실험 수행 결과 식각율은 RF plasma power에 비례하여 증가하였으며 power에 관계없이 $CF_4 + O_2$ 의 최적비를 유지한 채 N_2 를 5% 첨가하였을 때 동일한 조건에서 N_2 를 첨가하지 않았을 때보다 제염율이 약 2배 가량 증가하였다. 이 식각 반응은 일차 반응 속도 법칙을 따르는 것으로 밝혀졌으며 CF_4/O_2 와 $CF_4/O_2/N_2$ 제염에 대한 추가 비교 연구 결과 이 표면 식각 반응의 메카니즘은 변화하지 않는 것으로 나타나 N_2 가 반응에 참여하는 F 원자와 같은 반응 radical을 다량 생성하는 역할을 하는 것으로 밝혀졌다. 따라서 현재 확보된 식각율은 약 $2.0 \mu m/min.$ 에 이른다.

Co 실험 결과 $350^\circ C$ 부근에서 식각 반응이 일어나기 시작하여 온도에 따라 반응율이 증가하여 $380^\circ C$ 에서는 $0.06 \mu m/min$ 의 식각율을 보였다. 또한 식각 반응이 일어난 전후의 Co 표면의 미세 조직 분석 결과 표면 전체에서 고르게 식각 반응이 일어난 것을 알 수 있었다. Co 실험에서와 같이 Mo 핵종의 식각에 대한 온도 의존성 실험을 수행한 결과 금속 몰리브데늄의 반응율은 매우 높으며 온도가 증가함에 따라 식각율이 선형적으로 증가함을 알 수 있다. $380^\circ C$ 에서는 식각율이 $1.9 \mu m/min$ 에 이르는 것으로 나타났다. Mo 역시 표면에서 전체적으로 균일하게 식각 반응이 일어났다.

따라서 연구 결과 이제까지 확보된 공정은 방사성 핵종에 관계 없이 온도는 $350^\circ C$ 이상, r. f. power는 220W 이상에서 $80\%CF_4 + 20\%O_2$ 혼합 기체를 사용하는 것으로 모든 경우 좀 더 높은 온도와 플라즈마 출력을 증가시키면 짧은 시간 내에 충분히 실용적 제염이 가능한 것으로 드러났다.

3) QMS/OES를 이용한 플라즈마 건식 제염 진단 및 정량 분석

$CF_4 + O_2$ 플라즈마와 이산화우라늄의 반응 생성물을 분석한 결과

주요 반응 생성물은 UF₆라는 사실이 밝혀졌으며 OES 진단 결과 제염 공정
에 있어 반응을 일으키는 지배적인 반응물로 판단되는 F 원자와 CO 분자
가 이 20% O₂에서 가장 많이 검출되어 앞의 공정 반응 연구 결과를 충실
히 뒷받침해 주고 있다.

4) 특성 기초 실험용 토치 설계(2.45GHz, Microwave Plasma)

공정 개발 연구를 통해 확보된 공정 parameter를 기준으로 특성
기초 실험용 상압 플라즈마 토치(2.45 GHz, micro-wave plasma torch)의
설계를 성공적으로 수행하였다.

3. 잔류방사능 평가 방법론 개발

본 연구에서는 핵종의 확산 모델링을 선정된 다섯 가지 핵종(
Fe-55, Co-60, Sr-90, Cs-137 그리고 Rn-226)에 대해 적용하였고, 다섯
종류 핵종의 콘크리트에 대한 침투 깊이에 대한 결과를 얻을 수 있었으며
이 침투깊이를 통하여 제염 후 최대 허용 표면 오염 농도인 4×10^{-4} Bq/mm²에 도달하는데 필요한 제염깊이를 구할 수 있었다. 적용된 확산
모델링은 두 가지의 경우로 나누어 수행하였는데 첫째는, 콘크리트내에
존재하는 수분분포를 고려하지 않고 모델링 하였으며 둘째는, 수분분포를
고려하여 확산영역을 두 가지로 나누어 모델링을 하였다. 이렇게 두 가
지 경우로 나누어 계산하여 비교 평가한 결과 필요한 제염 깊이가 약
100mm이상의 차이가 생김을 알 수 있었다.

4. 고방사능 건식제염 공정장치 설계방향 설정 연구

사용후핵연료 건식처리기술개발 과정에서 발생하는 고방사능 오염
물의 건식제염을 위한 설비 개념 및 설계 요건을 도출하였으며, 이를 토대
로 고방사능 건식제염 공정장치의 개념설계 방향을 정립하였다.

본 설비는 IMEF(DUPIC, SF차세대관리 포함), PIEF 등 국내 Hot Cell에
서 발생하는 고방사성 오염물(폐기물 포함)의 재사용 및 폐기물 저준위화
목적의 이송제염설비와 IMEF, PIEF 등 국내 Hot Cell의 보수 또는 내부설
비 개조를 위한 현장제염 설비로 대별된다. 이러한 제염 설비 중 이송제

염설비는 현재 연구소에서 고화체 검사시설로 활용되고 있는 핫셀을 개조하여 설치하는 개념을 채택하였으며, 현장제염설비는 기존의 IMEF와 PIEF 핫셀의 개·보수를 위한 것으로 각 설비의 목적에 부합되도록 설계 방향을 제시하였다.

5. TRIGA 토양제염 단위기술 개발

가. Soil washing 단위 기술 개발

- 토양에 흡착된 Co^{2+} 이온의 양을 수용액의 평형농도에 대해 도시하여 구한 토양의 흡착평형계수는 0.48 l/mg 이었다.
- 토양에 흡착된 Co^{2+} 이온에 대해 $0.01 \text{ M citric acid}$ 로 세척 실험 결과 5차 세척에 의해 91 %가 세척되었다. 그러나, 사용한 $0.01 \text{ M citric acid}$ 를 다시 사용하는 것은 비 효율적이었다.
- pH가 1에서 5까지 변화함에 따라 Sr^{2+} 이온의 탈착량 변화가 미세하였다. 용액의 pH가 6이 되면 탈착량이 크게 감소하기 시작하였다.
- 유기물을 함유한 토양에 대한 Sr^{2+} 이온의 흡착량은 360 분 경과 후 $1.0 \times 10^{-5} \text{ mole/g}$ 이었고, 전 처리한 토양의 흡착량은 $9.01 \times 10^{-6} \text{ mole/g}$ 이었다. TRIGA 토양에 대한 Sr^{2+} 이온의 제거율은 citric acid의 농도가 0.005에서 0.1 M로 변화함에 따라 12.6 %에서 73.2 %로 증가하는 것으로 나타났다.

나. Soil flushing 단위기술 개발

- 물을 solvent로 하여 토양을 제염하였다. Pore volume의 다섯 배가 경과되었을 때 수리전도도가 $2.31 \times 10^{-3} \text{ cm/min}$ 인 토양은 초기 유출액 농도의 1/20, 수리전도도가 $8.46 \times 10^{-4} \text{ cm/min}$ 인 경우 1/10로 감소하였다. 그러므로, 토양의 수리전도도가 클수록 물에 의한 토양 제염효과가 크다는 것을 알 수 있다.
- Citric acid을 사용하여 수리전도도가 $8.46 \times 10^{-4} \text{ cm/min}$ 인 토양을 제염한 결과, citric acid에 의한 초기의 토양 제염효과는 물 보다 높아 제염 시 유출액 농도가 높게 나타났다. Citric

acid를 Co^{2+} 이온 오염 토양 컬럼에 20 공극 부피만큼 주입했을 때 컬럼 내 총 코발트양의 96 %가 제거되는 것으로 나타났다.

- 비평형 흡착모델이 평형흡착모델보다 실험치에 잘 일치하였다.

다. 등전기적 토양제염기술 개발

- Kaolin Clay에 흡착된 금속 이온의 제염 시 음극 쪽에 수산이온이 발생되어 음극 쪽 컬럼의 pH가 상승되었다. 그 결과, 제염 효율이 낮게 나타났다.
- 음극 쪽 토양 내의 pH 상승을 억제하기 위해 컬럼 토양 내에 pH 상승 억제용 초산 완충 용액을 주입하였다. 초산 완충 용액을 음극 저수조에 계속적으로 주입하면서 토양 제염실험을 수행한 결과 음극 인근의 pH 는 43.6 시간 후에도 단지 6.5로 상승하였다.
- 초산 완충용액을 첨가하여 토양제염을 수행한 결과, 43.6시간 후에는 Co^{2+} 이온의 94.6 %가 제염되었다.
- 개발된 잔류농도 예측 모델에 의한 계산 값과 토양제염 실험에 의한 실험값이 일치했다.

라. TRIGA 부지 토양폐기물 제염 적용성 실험

- 방사능 오염준위가 가장 높은 TRIGA 토양 폐기물을 사용한 soil washing 실험을 수행하였다. 전체 토양 질량의 84%를 환경 방출 조건까지 제염이 가능함을 파악하였다.

V. 연구개발결과의 활용계획

1. 건식제염 단위기술 성능 평가

건식제염기술은 DUPIC, 사용후핵연료 관리이용 기술개발, 군분리 공정개발 및 장수명핵종 전환기술 개발 실증시설의 설계 및 운전에 기초 기술로 활용할 수 있을 것이다.

PFC 건식제염 및 CO_2 snow 분사제염 기술은 DUPIC 핵연료제조 hot cell의 내부 검사나 측정용 광학기기 및 파괴되기 쉬운 예민한 고가 기기에 형성된 느슨한 입자오염의 제거에 직접 활용될 수 있으며, 비원자력분야

의 반도체나 도장 분야 등의 청정작업에 세척기술로 효과적으로 이용될 수 있다. 또한 CO₂ pellet 분사제염 기술은 우라늄 변환시설의 재활용 제염기술에 직접 활용될 수 있으며, TRIGA 연구로의 hot cell 내 입자성 오염의 제거에도 효과적으로 활용될 수 있을 것이다.

플라즈마 건식 제염 기술은 원자력 방사성 폐기물의 제염에 적용성이 매우 큰 신기술로 현재 연구진이 추진/진행 중인 제염공정확보 및 기초실험용 torch system의 설계 연구 개발은 곧바로 실증규모 공정장치 설계 및 제작에 곧바로 적용될 수 있을 것이다. 또한 이 기술은 기존의 방사성 폐기물 습식 제염 방식에서 탈피하여 건식 처리 분야에 다양하게 적용이 가능할 것이며 산업현장에서의 적용을 목적으로 설계된 도면과 시방은 적합한 기기 판매회사와 제작 회사의 참여를 통해 곧 바로 현장 투입용 장치의 제작에 활용될 수 있을 것이다.

2. 잔류방사능 평가 방법론 개발

본 연구에서 수행된 결과를 이용하여 국내 고방사능 물질 취급 시설이나 원자력 시설의 제염 및 해체 작업시 위해도 평가를 위한 기본적인 바탕으로 이용될 수 있을 것으로 예상된다. 또한 구조물내의 오염농도 분포 예측결과를 이용하여 고방사능 취급 시설물의 제염 후 재사용시 작업자에 대한 최대 허용 선량 한도를 도출하여 작업자 피폭 선량 평가를 수행하는데 기본 자료로 활용이 가능하다.

3. 고방사능 건식제염 공정장치 설계방향 설정 연구

본 설비의 개념설계 방향은 향후 시설 개념 최적화 작업을 거쳐 기본 설계요건을 확정하고, 기본설계 자료로 활용될 수 있다.

4. TRIGA 토양제염 단위기술 개발

- TRIGA 해체 사업 추진 시 발생하는 토양폐기물을 제염에 의해 비 방사성 폐기물화한다.
- 1988년 발생하여 KAERI 에 보관중인 TRIGA 토양 폐기물과 원자력 연구소에서 발생된 토양 폐기물을 제염함으로써 비 방사성폐기물화 한다.

S U M M A R Y

I. Project Title

Dry Decontamination Technology Development for Highly Radioactive Contaminants

II. Objective and Importance of the Project

1. Dry Decontamination Technologies Applicable to Highly Radioactive Contaminants

The national nuclear fuel cycle projects, such as DUPIC, advanced spend fuel management and transmutation of long-lived radionuclides, being studied as a middle-long term research and development project on atomic energy, are dry decontamination activities on highly radioactive contaminants and a domestic inherent spent nuclear fuel cycle development which has not yet been applied to foreign countries. Because the dry decontamination is executed in hot cell by remote control, it is very important to apply the dry decontamination to contaminated facilities. The dry decontamination activities on highly radioactive contaminants has not yet developed for advanced states using wet decontamination technology. This technology is required in domestic state to propel the dry decontamination activities on spent nuclear fuel cycle.

The dry decontamination activities on highly radioactive contaminants which are common bottleneck in dry decontamination on highly radioactive nuclear material, are required to develop and verify a process equipment for treatment of highly radioactive nuclear material. Also, It is required to study assessment of the residual radioactivity to assess the influence got to workers due to

residual radioactivity after dry decontamination on highly radioactive facilities.

2. Soil Decontamination Technology Development

The main objective of the study is to develop the soil decontamination technologies by which the radioactivity of soils stored in KAERI(Korea Atomic Energy Research Institute) is reduced to an exemption level. These technologies will be applied to the site restoration after the TRIGA reactor decommissioning and to the site contamination around the nuclear facility.

III. Scope and Contents of the Projects

1. Contaminant Characteristics Analysis and Applicability Study of the Unit Dry-Decontamination Techniques

This report is intended to establish their needs to support the dry decontamination activities applicable to highly radioactive contaminants based on the requirement of technologies development suggested from the national nuclear fuel cycle projects, such as DUPIC, advanced spent fuel management and long-lived radionuclides conversion.

2. Performance Evaluation of Unit Dry Decontamination Technique

1) PFC Decontamination Technique

Both anionic and cationic PFC surfactants were synthesized and their physical properties which encompass solubility and electrochemical characteristics were measured. An interaction between solid surface and commercially available PFC surfactants as well as synthesized one produced via this study was investigated to understand dry decontamination process using PFC fluids for removal

of highly radioactive contaminants. On the bases of these results, the dry decontamination technique using PFC fluids was applied to the simulated specimen contaminated with particulate and the decontamination performance was evaluated to develop dry decontamination process applicable to highly contaminated alpha wastes arising from dry spent nuclear fuel treatment processes.

2) CO₂ Decontamination Technique

The performance test and evaluation on the CO₂ blasting decontamination technology which is a dry process without secondary waste streams and a non-destructive method, have been performed for application to the back end nuclear fuel cycle R&D facilities as follows :

- Performance test on the CO₂ snow blasting decontamination technology as a laboratory scale
- Performance test and evaluation on the CO₂ pellet blasting decontamination technology

3) Plasma Decontamination Technique

(1) Feasibility and applicability study of the unit techniques for the facilities dry-decontamination and preliminary experiments on the unit techniques.

(2) Process development study on the plasma decontamination.

Optimum process is investigated for the decontamination of CP, FP, and TRU using RF gas plasma. Decontamination rate is measured and analyzed under various experimental conditions: unit process parameter, temperature, pressure, and the ratio of respective gas in a gas mixture.

(3) Plasma diagnostics and quantitative analysis of dry decontamination by QMS and OES.

Plasma density, temperature, and energy in the optimum

process are diagnosed and analyzed by QMS and OES.

(4) Design of microwave torch system

High power microwave plasma torch system is designed for atmospheric operation based on the developed optimum process.

3. Development of Residual Radiation Assessment Methodology for High Radioactive Facility Decontamination

Humidity around the concrete structure can make the moisture distribution within the concrete. Moisture content of the structure will change due to the diffusion process with time. Radioactive material on the surface of concrete will eventually diffuse into the porous concrete and contaminates the internal region of the concrete.

In this study, we have assumed two different diffusion processes depending on the different moisture content. One is for slow diffusion process near the surface and the other is for fast diffusion process in deep region. We have developed the mathematical diffusion model for the two different diffusion regions and the corresponding analytic solutions for the two regions are obtained.

4. Establishment of the Design Concept of Dry Decontamination Process Equipment Applicable to Highly Radioactive Contaminants

In the development of dry decontamination technology applicable to highly radioactive contaminants needed in repair and maintenance of hot cell, a study on the establishment of the design concept of dry decontamination process equipment was carried out by considering two cases as follows:

- Movable decontamination process equipment aimed at reuse or declassification of highly radioactive contaminants arising from domestic hot cells in IMEF and PIEF, and
- On-site decontamination process equipment aimed at repair or refurbishment of domestic hot cells in IMEF and PIEF.

5. TRIGA Soil Unit Decontamination Technology Development

A. Soil washing

- Measurement of physicochemical properties of soils around the TRIGA reactor, determination of distribution coefficient of Co^{2+} ion and the repetitive applications of citric acid to soils

- Investigation of the effect of pH and organic content on the sorption of Sr^{2+} ion to soils and evaluation of the variation of desorption ratio of Sr^{2+} ion against the change of citric acid concentration

B. Soil flushing

- Investigation of the soil flushing model and measurement of the input model parameters

- Fabrication of soil flushing equipment and decontamination tests

C. Electrokinetic soil decontamination

- Investigation of electrokinetic soil decontamination model and measurement of the input model parameters

- Investigation of the effect of solution pH on the decontamination performance of electrokinetic soil decontamination and the decrease of solution pH by the acetic acid buffer solution

D. Applicability of decontamination technology on soils gathered from the TRIGA site

- Classification of radioactive soils in KAERI, radioactive

analysis of soils and decontamination tests

IV. Results and Proposal for Application

1. Contaminant Characteristics Analysis and Applicability Study of the Unit Dry-Decontamination Techniques

The contaminants are classified as analytical and electronic instruments, machine tool and machinery, system piping and tanks, floors and walls, and technological wastes generated from hot cell. Their characteristic is alpha-contaminated small particles generated from leakage of high temperature oxidation-reduction processes of spent fuels. This fine particles are generally observed to adhere tenaciously and non-specifically to other solid surfaces, and can not be removed by simple mechanical means. There is a large body of physical evidence that suggests that their adhesion is due to secondary valence forces between the particles and the substrate.

The most substrates are contaminated at surface of equipment and facility, but a part of substrates are contaminated at complex parts with some grooves and crevices.

The technology needs associated with decontamination addressed the requirements associated with the efficiency of decontamination technology, the reduction of secondary wastes, applicabilities and the remote operation. And also, Characterization and decontamination technologies for various contaminants are reviewed and analysed. Based on the assessment, unit dry decontamination processes are selected and the schematic flow diagram for decontamination of highly radioactive contaminants.

2. Performance Evaluation of Unit Dry Decontamination Technique

1) PFC Decontamination Technique

Chemically stable metal pentadecafluoro-octanoate (metal : Li, Na, K, Cs) and N-perfluorooctyl-N'-methyl viologen as an anionic and a cationic PFC surfactant, respectively, were synthesized by chemical substitution method using the solvents such as acetone, water, and ethanol. Their physical characteristics, which encompass solubility and surface active effect were measured and analyzed. An interaction between silicon wafer as a model solid surface and PFC and PFC surfactants was evaluated from the results obtained by AFM which can measure the interactive force between silicon wafer surface and Si_3N_4 cantilever. It was obtained that the PFC solution containing Krytox, Perfluoro-1-octanesulfonyl fluoride, and Perfluoro-1-octyl bromide as a PFC surfactants displays a good surface active effect even in the concentration of PFC surfactant of as low as 0.1 wt%.

As a result of dry decontamination using PFC fluids for simulated specimen contaminated with radioactive particulate, decontamination performances in PFC fluid containing PFC surfactant was far better than those in the pure PFC fluid. The particulate contaminants were removed very effectively and the decontamination factor expected in this study could be achieved in the PFC fluids containing PFC surfactant with ultrasonic cleaning as follows.

Purpose of Decontamination	Contaminates Objects	Final Goal of Decontamination (DF)
Reuse	Stainless Steel Electronic Circuit Board	>200
Reduction of exposure	Paint Coated Surface	>20
Declassification	Clothes, Tissue, etc.	>5

PFC recovery was carried out to minimize secondary wastes produced after the completion of decontamination. The pure PFC can be recovered successfully from the PFC solution mixed with PFC surfactant by evaporation and condensation.

2) CO₂ Decontamination Technique

Testing of CO₂ snow blasting decontamination as a laboratory scale showed that the highest decontamination efficiency (decontamination factor of about 61) for CO₂ blasting was obtained at conditions using a blasting pressures of 45 Kg/cm², a stand-off distance of about 10mm during 2 min. And also decontamination efficiency has been enhanced by installation of pneumatic heater for the prevention of CO₂ snow condensation (decontamination percentage of 40-55%) and rotating wheel for the homogeneous decontamination (decontamination factor of 2-2.5 times).

Evaluation for performance test of CO₂ pellet blasting decontamination reveals that decontamination factor increased with CO₂ pellet size, contamination particle size, blasting pressures, and contact time. DF values for CO₂ pellet blasting decontamination are higher ten times than that for CO₂ snow blasting decontamination. The use of CO₂ blasting proved very effective at removing loose contamination, but of significantly effectiveness on fixed contamination.

3) Plasma Decontamination Technique

- (1) Feasibility and applicability study of the unit techniques for the facilities dry-decontamination and preliminary experiments on the unit techniques.

According to the feasibility and the applicability study, this technique is competent and adequate to be brought into use

for decontamination of contaminated tools and machinery, and floors and walls of the facilities. In addition, preliminary experimental results demonstrate that not only TRU nuclides but also CP and FP elements are easily vaporized in the plasma decontamination reaction. Cobalt etching requires relatively high temperature above 350°C while Mo can be removed very rapidly even at room temperature. In case of UO₂, overall reaction in r.f. plasma turns out to be $UO_2 + 3/2 CF_4 + 3/8 O_2 \rightarrow UF_6 + 3/2 (CO \text{ or } CO_2)$.

(2) Process development study on the plasma decontamination.

Optimum process is searched for the decontamination of CP, FP, and TRU using r.f. gas plasma. In order to find the optimum process, the reaction rates of UO₂ were investigated as functions of CF₄/O₂ ratio, plasma power, and substrate temperature. Experimental results revealed that there exists an optimum CF₄/O₂ ratio for the efficient fluorination of UO₂, regardless of r.f. power and substrate temperature, and that is around 4. It was found that the highest etching rate of 0.4 μm/min was obtained at the optimum 20%O₂ mole fraction at 370°C under 150W and the etching rate was enhanced linearly as the substrate temperature and r.f. power increase. Additionally it was revealed that reaction was at least twice enhanced when about 5% N₂ gas was added. Experimental results CP and FP decontamination process showed that CF₄/O₂ plasma was also the best etchant gas with the optimum composition of also 80%CF₄ - 20%O₂. Co had the lowest etching rate while Mo had the highest rate. Therefore, the optimum process for the dry decontamination of TRU, CP, and FP nuclides required the optimum CF₄/O₂ gas composition above 350°C and 220W power. It was also demonstrated that this optimum process could be extrapolated to atmospheric high power torch system. Therefore, if plasma power

and temperature were increased with maintaining the optimum gas composition, dry decontamination of the contaminants must be definitely effective.

- (3) Plasma diagnostics and quantitative analysis of dry decontamination by QMS and OES.

According to the plasma diagnostics using QMS and OES, major reaction product of UO_2 in r.f. plasma was turned out to be UF_6 and F atom and CO molecules were produced most abundantly in 80% CF_4 - 20% O_2 composition, which is believed to be the major reactants in the plasma process. This backs up the acquired optimum process in the current research.

- (4) Design of microwave torch system

Atmospheric plasma torch using microwave plasma was successfully designed with the detailed specification of the major equipments and instrument.

3. Development of Residual Radiation Assessment Methodology for High Radioactive Facility Decontamination

The decontamination work schedule should be planned when the refurbishment or decommissioning of hot cell facility was required. To apply the humidity effect, the diffusion process was assumed to follow the two different diffusion processes and then the radioactive nuclides were turned out to penetrate around three or four times deeper than the diffusion process without considering the humidity effect. Also the radioactive concentration level at the same depth shows one order of the magnitude difference.

When the relative radioactivity level below the surface reaches 10^{-3} level of the surface activity, the penetration

depth of the radioactive nuclides except Cs-137 and Ra-226 was turned out to be around 100 mm. To allow the unrestricted access, concrete should be decontaminated up to 100mm, otherwise the decontamination work should be carried out within a short period.

4. Establishment of the Design Concept of Dry Decontamination Process Equipment Applicable to Highly Radioactive Contaminants

The concept and design requirements of dry decontamination facility for decontamination of highly radioactive contaminants produced in the course of the technology development of dry process for the treatment of spent fuel were drawn and the design concept of dry decontamination process equipment applicable to highly radioactive contaminants was established. The dry decontamination facility can be classified into two process equipments according to the purpose of decontamination. One is the movable decontamination process equipment aimed at reuse or declassification of highly radioactive contaminants arising from domestic hot cells in IMEF and PIEF, and the other is on-site decontamination process equipment aimed at repair or refurbishment of domestic hot cells in IMEF and PIEF. In the concept of installation of the equipments, it was adopted that movable decontamination process equipment is arranged in the hot cell after modifying a hot cell used as the solidified waste form examination facility in KAERI and on-site decontamination process equipment is installed in hot cells of IMEF and PIEF.

5. TRIGA soil unit decontamination technology development

A. Soil washing

- Distribution coefficient of soil on Co^{2+} ion obtained from the plot of the amount of adsorbed Co^{2+} ion against the equilibrium

concentration of Co^{2+} ion was 0.48 l/mg.

- 91 % of adsorbed Co^{2+} ion was removed after the five applications of 0.01 M citric acid solution. But, the reuse of 0.01 M citric acid to the other contaminated soils was inefficient.

- Variation of the amount of desorbed Sr^{2+} ions as the solution pH changes from 1 to 5 was negligible. The amount of desorbed Sr^{2+} ions above the solution pH of 6 becomes to decrease significantly.

- The amount of adsorbed Sr^{2+} ions on soil which contains organic matters was 1.0×10^{-5} mole/g but the amount of adsorbed Sr^{2+} ions on pretreated soils which do not contain organic matters was 9.01×10^{-6} mole/g after 6 hours' reaction, respectively. The desorbed portion of Sr^{2+} ions from TRIGA soil was increased from 12.6 to 73.2 % as the increase of the citric acid concentration from 0.005 to 0.1 M.

B. Soil flushing

- Soil flushing test was performed with distilled water as a solvent. When the hadraulic conductivity of soil was 2.31×10^{-3} cm/min, Co^{2+} ion concentration of the effluent after flowing 5 pore volumes decreased to 1/20 of the initial effluent concentration of Co^{2+} ion. When the hadraulic conductivity of soil was 8.46×10^{-4} cm/min, Co^{2+} ion concentration of the effluent after flowing 5 pore volumes decreased to 1/10 of the initial effluent concentration of Co^{2+} ion. Soil flushing effect is increased with the increase of the hydraulic conductivity of soil.

- From the decontamination result of soil which has 8.46×10^{-4} cm/min of the hydraulic conductivity, it was found that the initial effluent concentration of Co^{2+} ion in the citric acid was higher than that of the distilled water. This means that the decontamination efficiency of citric acid is better than that of distilled water. 96 % of the Co^{2+} ion on soil surface was removed by

citric acid after flowing 20 pore volumes.

- Comparing nonequilibrium sorption model and equilibrium sorption model, nonequilibrium sorption model was better in accord with the experimental values.

C. Electrokinetic soil decontamination

- During the decontamination of kaolin clay contaminated with metal ion, the solution pH near cathode region increased as a result of the formation of hydroxide ion at the cathode. As a result, decontamination performance was decreased.

- To suppress the elevation of the pH near the cathode region, acetic acid buffer solution was added to the cathode region. By the successive addition of acetic acid buffer solution to the cathode reservoir, pH near the cathode region was maintained at 6.5 after 43.6 hours' experiment.

- By the addition of acetic acid buffer solution, 94.6 % of the contaminated Co^{2+} ion was removed after 43.6 hours' experiment.

- The calculated values by the developed prediction model was well in accord with the experimental values.

D. Applicability of decontamination technology on soils gathered from the TRIGA site

- Soil washing experiment was performed on radwaste TRIGA soil which contains the high radioactivity. It was found that 84 % of the total soil mass could be returned to the environment.

V. Application Plan for the Research Results

1. Dry Decontamination Technologies Applicable to Highly Radioactive Contaminants

Dry Decontamination can be used as the basic technologies in design and operation of demonstration facilities for technology

development of DUPIC, advanced spent fuel management, and transmutation of long-lived radionuclides.

PFC dry decontamination and CO₂ snow blasting decontamination technology would be effectively applicable to the decontamination of detection/measuring instruments or high cost and sensitive optical equipments in the DUPIC hot cell. And this technology is useful for the cleaning operation in the semi-conductors and painting industry. Removal of uranium particle contamination in uranium conversion facility and decontamination of inner surface area in TRIGA hot cell can be effectively achieved by the use of PFC decontamination and CO₂ pellet blasting decontamination technology.

New technology for the dry decontamination of the contaminated nuclear facilities was successfully introduced and the feasibility of its application for on-site decontamination was verified. Plasma torch design report can be directly utilized for the manufacturing by equipment supplier and for the commercial scale decontamination project, if steady and intensive further study is continued.

2. Development of Residual Radiation Assessment Methodology for High Radioactive Facility Decontamination

This result is presumed to be used as a basic bottom to assess the hazardous degree on decontaminating and dismantling nuclear facilities and highly radioactive facilities. The results to predict the residual concentration distribution in the structure of facilities can be used to obtain the maximum allowable radiation dose limit and can be used as a basic data for assessment of worker's radiation exposure dose.

3. Establishment of the Design Concept of Dry Decontamination Process Equipment Applicable to Highly Radioactive Contaminants

The design concept can be used as the reference of basic design of dry decontamination process equipment in future.

4. TRIGA soil unit decontamination technology development

- Radioactive soil generated during the decommissioning of TRIGA will be changed into the non-radwaste soil by decontamination.

- TRIGA radwaste soil stored in KAERI and soils generated from the experiment in KAERI will be changed into the non-radwaste soil by decontamination.

여 백

CONTENTS

Chapter 1	Introduction	1
Chapter 2	Technology Development Status	9
Section 1	Dry Decontamination Technologies Applicable to Highly Radioactive Contaminants	9
1.	Introduction	9
2.	Overseas Research and Development Status	10
3.	Domestic Research and Development Status	37
4.	Assessments on the Survey Results	39
Section 2	Soil Decontamination Technology	42
1.	Introduction	42
2.	Overseas Research and Development Status	42
3.	Domestic Research and Development Status	61
4.	Assessments on the Survey Results	63
Chapter 3	Contents and Results of the R&D	65
Section 1	Dry Decontamination Technologies Applicable to Highly Radioactive Contaminants	65
1.	Introduction	65
2.	Research Result	65
3.	Summary	105
Section 2	Performance Evaluation of Unit Dry Decontamination Technique	107
1.	PFC Decontamination Technique	107
2.	CO ₂ Decontamination Technique	151

3. Plasma Decontamination Technique	171
Section 3 Development of Residual Radiation Assessment Methodology for High Radioactive Facility Decontamination	190
1. Introduction	190
2. Basic regulation concept for reuse	193
3. Assessment of residual radioactivity	197
4. Summary	221
Section 4 Establishment of the Design Concept of Dry Decontamination Process Equipment Applicable to Highly Radioactive Contaminants	222
1. Introduction	222
2. Classification of Contaminated Equipments and Design Requirement	223
3. Summary	247
Section 5 TRIGA Soil Unit Decontamination Technology Development	247
1. Introduction	247
2. Research Result	249
3. Summary	295
Chapter 4 Degree of Attainment for R&D Goals and External Contribution	297
Section 1 Dry Decontamination Technology for Highly Radioactive Contaminants	297
1. Degree of Attainment for R&D Goals	297
2. Degree of External Contribution	299

Section 2 TRIGA Soil Unit Decontamination Technology	300
1. Degree of Attainment for R&D Goals	300
2. Degree of External Contribution	300
Chapter 5 Application Plan for R&D Results	303
Section 1 Dry Decontamination Technology for Highly Radioactive Contaminants	303
Section 2 TRIGA Soil Unit Decontamination Technology	304
Chapter 6 References	307

여 백

목 차

제 1 장 서 론	1
제 1 절 연구배경	1
1. 고방사능 건식제염 기술	1
2. 토양제염 기술	3
제 2 절 추진현황 및 연구내용	5
제 2 장 국내·외 기술 개발 현황	9
제 1 절 건식제염 기술	9
1. 서 문	9
2. 해외의 연구개발 현황	10
3. 국내의 연구개발 현황	37
4. 기술개발 조사사례에 대한 평가	39
제 2 절 토양제염 기술	42
1. 서문	42
2. 해외의 연구개발 현황	42
3. 국내의 연구개발 현황	61
4. 기술개발 사례조사에 대한 평가	63
제 3 장 연구개발 수행내용 및 결과	65
제 1 절 제염대상 설비별 오염특성 및 건식제염 단위기술 적용성 평가	65
1. 개 요	65
2. 연구결과	65
3. 결과 요약	105
제 2 절 건식제염 단위기술 성능 평가	107
1. PFC 제염기술	107

2. CO ₂ 제염기술	151
3. 플라즈마 제염기술	171
제 3 절 잔류방사능 평가 방법론 개발	190
1. 개요	190
2. 고방사능 설비 재활용에 대한 기본 규제 개념	193
3. 잔류방사능 피폭 평가	197
4. 결론 요약	221
제 4 절 고방사능 건식제염 공정장치 설계방향 설정 연구	222
1. 개요	222
2. 고방사능건식제염 설비 개념 및 설계 요건	223
3. 결론	247
제 5 절 TRIGA 토양제염 단위기술 개발	247
1. 개요	247
2. 연구 결과	249
3. 결과 요약	295
제 4 장 연구개발 목표달성도 및 대외 기여도	297
제 1 절 고방사능 건식제염 기술	297
1. 목표달성도	297
2. 대외기여도	299
제 2 절 TRIGA 토양제염 단위기술 개발	300
1. 목표달성도	300
2. 대외 기여도	300
제 5 장 연구개발 결과의 활용계획	303
제 1 절 고방사능 건식제염 기술	303
제 2 절 TRIGA 토양제염 단위기술 개발	304
제 6 장 참고문헌	307

표 목 차

Table 2.1.1.	Classification of dry decontamination technologies on characteristics of radioactive contaminants.	10
Table 2.1.2.	Decontamination results in Surry PWRs.	19
Table 2.1.3.	Recent CO ₂ blasting projects-nuclear applications. .	21
Table 2.1.4.	Critical point of supercritical fluids.	29
Table 3.1.1.	Major equipments of DUPIC fuel fabrication process.	68
Table 3.1.2.	Specifications of hot cell in advanced spent fuel management process.	72
Table 3.1.3.	Classification of reusable contaminants.	76
Table 3.1.4.	Contaminants for non-reusable equipments.	77
Table 3.1.5.	Waste source of DUPIC fuel fabrication process.	79
Table 3.1.6.	Contamination migration mechanisms.	80
Table 3.1.7.	Classification of radionuclides according to relative hazard potential.	88
Table 3.1.8.	Contamination levels and decontamination requirements.	89
Table 3.1.9.	Selection of decontamination technologies on contaminated facility and equipments.	101
Table 3.2.1.1.	Physical and environmental properties of fluorocarbons	111
Table 3.2.1.2.	Classification of contaminants.	119
Table 3.2.2.1.	Design specification of CO ₂ pellet decontamination system.	170
Table 3.3.1.	작업자 및 일반공중에 대해 권고되는 선량한계	194

Table 3.3.2. 세계 각국의 폐기물 재활용을 위한 방출 형태	196
Table 3.3.3. 각 국의 최대 허용 표면오염도 및 최대 허용 비방사능(β , γ)	196
Table 3.3.4. 잔류방사능 평가를 위한 기준 핵종	197
Table 3.3.5. 파라미터의 민감도 분석을 위한 각각의 샘플링 값	209
Table 3.3.6. Summary of the Limiting Exempt Quantities for the Recycle and Reuse of Contaminated Materials Derived by IAEA	215
Table 3.3.7. 고방사능 시설에서 발생하는 주요 핵종 다섯 가지	216
Table 3.3.8. 콘크리트의 깊이에 따른 핵종의 표면오염 농도	218
Table 3.3.9. 콘크리트의 깊이에 따른 핵종의 표면오염 농도	218
Table 3.4.1 Classification of reusable contaminated wastes	225
Table 3.4.2 Classification of non-reusable contaminated wastes ...	226
Table 3.4.3. Decontamination requirements in accordance with the co- ntamination level of highly contaminated materials ...	231
Table 3.5.1. Distribution of sizes of soil particle.	250
Table 3.5.2. Component content of soil.	251
Table 3.5.3. Density, porosity, water content, and pH of soil.	252
Table 3.5.4. Desorption ratio of Sr ²⁺ ion at various concentration of citric acid.	255
Table 3.5.5. Initial concentration of Co ²⁺ and residual concentration after 20 pore volume flushing.	273
Table 3.5.6. Parameters for Simulation.	280
Table 3.5.7. Radioactivity of soil.	292
Table 3.5.8. Radioactivity of soil after 3 times of decontamination	293

그 립 목 차

Fig. 2.1.1.	Carbon dioxide pressure-temperature diagram,	28
Fig. 2.1.2.	Removal of oxide-layer by supercritical CO ₂ ,	30
Fig. 3.2.1.1.	Influence of various factors on ultrasonic cleaning efficiency,	120
Fig. 3.2.1.2.	Geometry of high pressure spraying decontamination system,	121
Fig. 3.2.1.3.	Induced drag on small particles attached to solid surfaces,	122
Fig. 3.2.1.4.	Schematic of PFC decontamination process,	125
Fig. 3.2.1.5.	Photoluminescence spectrum of n-type 0.4~0.9 $\Omega \cdot \text{cm}$ samples etched under various amount of PFC (A: 0 mmol, B: 2 mmol, C: 5 mmol, D: 10 mmol, E: 25 mmol, F: 50 mmol) and an ethanolic solution of 25% hydrofluoric acid. (UV lamp 365nm),	128
Fig. 3.2.1.6.	(a) Plot of peak intensity versus various concentration of surfactants, and (b) Plot of peak wavelength versus various concentration of surfactants,	129
Fig. 3.2.1.7.	1 μm x 1 μm AFM image of Si(100) in the air,	130
Fig. 3.2.1.8.	Force-Distance curve in bare Si(100),	131
Fig. 3.2.1.9.	Force-Distance curve measured on Si(100) wetted with PF-5070,	132
Fig. 3.2.1.10.	Force-Distance curve, measured on Si(100) wetted with	

PF-5070 solution containing 0.1 wt% Krytox as a PFC surfactant.	132
Fig. 3.2.1.11. Comparison of Adhesive Force, measured on Si wafer in the several PFC fluids.	134
Fig. 3.2.1.12. Photo of test specimen. (a) carbon steel, (b) stainless steel(2B), (c) stainless steel(polishing), (d) paint coated specimen, (e) electronic circuit board, and (e) polypropylene laboratory gown.	135
Fig. 3.2.1.13. Result of erosion test for aluminum foil in ultrasonic cleaner used in this experiments.	137
Fig. 3.2.1.14. Decontamination factor (DF) for various specimen contaminated with 'Particle A' in pure PFC fluid.	138
Fig. 3.2.1.15. Distribution behavior of TiO ₂ particles in PFC solution and PFC solution containing PFC surfactant. ...	139
Fig. 3.2.1.16. Comparison of DF for various specimen contaminated with 'Particle A' in pure PFC fluid and 'Decontamination solution F'.	140
Fig. 3.2.1.17. Decontamination performances for various specimen contaminated with 'Particle U' in the solution of 'Decontamination solution K' according to the concentration of PFC surfactant, Krytox K157FS(M).	142
Fig. 3.2.1.18. Decontamination Performances for various specimen contaminated with 'Particle A' in the solution of 'Decontamination solution F' according to applied ultrasonic time.	143
Fig. 3.2.1.19. Decontamination Performances for various specimen contaminated with 'Particle U' in the solution of	

	'Decontamination solution K (1 wt% Krytox)' according to applied ultrasonic time,	144
Fig. 3.2.1.20.	Decontamination performances for various specimen contaminated with 'Particle A' in the solution of 'Decontamination solution F' according to applied number of ultrasonic cycle,	145
Fig. 3.2.1.21.	Comparison of DF for various specimen contaminated with 'Particle A' according to applied pattern of ultrasonic decontamination in 'Decontamination solution F',	146
Fig. 3.2.1.22.	Decontamination performances for various specimen contaminated with 'Particle A' in the solution of 'Decontamination solution F' according to applied number of ultrasonic cycle,	147
Fig. 3.2.1.23.	FT-IR spectrum of pure PFC and recovered PFC from the solution of 'Decontamination solution F',	149
Fig. 3.2.1.24.	Filtration performances for particles,	150
Fig. 3.2.2.1.	Experimental equipment for CO ₂ snow decontamination,	158
Fig. 3.2.2.2.	Residual amount for simulated specimens,	162
Fig. 3.2.2.3.	Advanced CO ₂ snow decontamination system equipped	163
Fig. 3.2.2.4.	Decontamination results for alumina particles,	165
Fig. 3.2.2.5.	Decontamination results for cobalt particles,	166
Fig. 3.2.2.6.	Schmatics of CO ₂ pelletizing equipment,	168
Fig. 3.2.2.7.	Equipment system for blasting of CO ₂ pellet,	169
Fig. 3.2.2.8.	Advanced equipment system for blasting of CO ₂ pellet,	169

Fig. 3.2.3.1.	UO ₂ etching reaction rate vs. O ₂ mole fraction at 150W	176
Fig. 3.2.3.2.	F atom density with RF power	176
Fig. 3.2.3.3.	Co etching reaction rate vs. O ₂ mole fraction at 380°C	178
Fig. 3.2.3.4.	Mn etching reaction rate vs. O ₂ mole fraction at 380°C	178
Fig. 3.2.3.5.	Mo etching reaction rate vs. O ₂ mole fraction at 380°C	180
Fig. 3.2.3.6.	N ₂ flow rate vs. etching rate at 100W	180
Fig. 3.2.3.7.	RF power vs. etching rate at various power	181
Fig. 3.2.3.8.	Substrate temperature vs. etching rate at various temperature(Flow rate: CF ₄ +O ₂ 50sccm, N ₂ 5sccm , reaction time: 60 min).	181
Fig. 3.2.3.9.	Co etching rate vs. substrate temperature	182
Fig. 3.2.3.10.	Co surface morphology by SEM	182
Fig. 3.2.3.11.	Mo etching rate vs. substrate temperature	184
Fig. 3.2.3.12.	Mo surface morphology by SEM	184
Fig. 3.2.3.13.	Reaction products of UO ₂ in CF ₄ /O ₂ plasma.	185
Fig. 3.2.3.14.	Emission intensity vs. oxygen percentage.	185
Fig. 3.2.3.15.	F atom emission intensity vs. N ₂ flow rate	187
Fig. 3.2.3.16.	Schematic of microwave plasma torch system.	187
Fig. 3.2.3.17.	Schematic of microwave torch	188
Fig. 3.3.1.	한국원자력 연구소내의 Hotcell 공정	198
Fig. 3.3.2.	Approximated Bazant's expression	203
Fig. 3.3.3.	콘크리트에 함유된 수분의 분포곡선[3.3.9]	204
Fig. 3.3.4.	건조시간에 따른 콘크리트내의 수분 분포	204

Fig. 3.3.5.	핵종침투 모델링 개략도	206
Fig. 3.3.6.	5년후 각 경우에 대한 상대 방사능량	209
Fig. 3.3.7.	10년후 각 경우에 대한 상대 방사능량	210
Fig. 3.3.8.	반감기는 같고 확산계수가 다른 경우	210
Fig. 3.3.9.	확산계수는 같고 반감기가 다른 경우	211
Fig. 3.3.10.	시간에 따른 콘크리트에 누적된 방사능량	211
Fig. 3.3.11.	콘크리트 내의 수분 변화량을 고려하지 않은 경우	219
Fig. 3.3.12.	콘크리트 내의 수분 변화량을 고려한 경우	219
Fig. 3.3.13.	Co-60의 실험치에 의한 확산 분포결과	220
Fig. 3.3.14.	시간에 따른 핵종 확산분포(확산계수가 일정한 경우)	220
Fig. 3.3.15.	콘크리트에 누적된 총 방사능량	221
Fig. 3.4.1.	Functional flowsheet of movable decontamination,	237
Fig. 3.4.2.	Process flowsheet of movable decontamination,	238
Fig. 3.4.3.	Flowsheet for application of examination facility of solidified waste form to movable decontamination of highly contaminated components,	239
Fig. 3.4.4.	A plain figure for the 1st floor of solidified waste form examination facility,	242
Fig. 3.4.5.	A cross sectional view of the solidified waste form examination facility,	242
Fig. 3.4.6.	Process flowsheet of in-situ decontamination,	244
Fig. 3.5.1.	Equilibrium sorption coefficients of Co^{2+} with TRIGA soil,	252
Fig. 3.5.2.	Desorption of Sr^{2+} ion according to the 0.01 M citric acid at various solution pH,	253
Fig. 3.5.3.	Amount of sorbed Sr^{2+} ion as a function of reaction time,	254

Fig. 3.5.4.	Desorption of Sr ²⁺ ion according to the concentration of citric acid.	255
Fig. 3.5.5.	Decontamination efficiency versus washing number with fresh citric acid solution.	257
Fig. 3.5.6.	Decontamination efficiency versus reuse number of C.A. solution.	259
Fig. 3.5.7.	Flow chart of STNES model.	263
Fig. 3.5.8.	Equilibrium sorption coefficient of Co solution with the soil.	265
Fig. 3.5.9.	Co Sorption ratio in the soil versus time.	265
Fig. 3.5.10.	Apparatus for soil flushing.	266
Fig. 3.5.11.	Experimental results remediating the soil of high hydraulic conductivity by water.	268
Fig. 3.5.12.	Experimental and model prediction results remediating the soil of low hydraulic conductivity by water.	269
Fig. 3.5.13.	Experimental results remediating the soil of low hydraulic conductivity by Citric Acid solution.	270
Fig. 3.5.14.	Residual solution concentration ratio of Co ²⁺ in pore after 20 pore volumes flushing.	271
Fig. 3.5.15.	Residual sorbed concentration ratio of Co ²⁺ in soil after 20 pore volumes flushing.	272
Fig. 3.5.16.	Equilibrium sorption coefficients of Co ²⁺ with kaolin clay.	278
Fig. 3.5.17.	Schematic of cylindrical column.	279
Fig. 3.5.18.	pH measured at 0, 0.8, and 6.7 days.	281
Fig. 3.5.19.	Measured concentration of strontium ion in the effluent.	281

Fig. 3.5.20. Distribution of dissolved strontium concentration in soil column versus time.	282
Fig. 3.5.21. Distribution of total strontium concentration in soil column versus time.	284
Fig. 3.5.22. Cobalt precipitation percentage versus pH.	286
Fig. 3.5.23. pH measured at 0.0, and 3.8 days.	287
Fig. 3.5.24. Cobalt concentration in effluent.	288
Fig. 3.5.25. Effluent pore volume versus time.	289
Fig. 3.5.26. Distribution of total cobalt concentration in soil column versus time.	290
Fig. 3.5.27. TRIGA soil washing flow chart.	291
Fig. 3.5.28. A portion of residual radioactivity against the application time[(L) and (S) represent the large soil and small soil particles, respectively].	294

제 1 장 서 론

제 1 절 연구배경

1. 고방사능 건식제염 기술

국내에서 독창적으로 개발하고 있는 경중수로 연계 핵연료주기(DUPIC), SF차세대관리, 핵종변환 등의 처리공정은 고방사능 건식 Hot Cell에서 원격조작에 의해서 처리되는 공정으로 연구개발 및 운영시 시설 및 장비는 초우라늄(TRU) 및 핵분열 생성물에 의해서 대부분이 고방사능 알파핵종으로 오염된다. 단위공정별 연구는 1 단계에서는 파이롯트 규모의 실증시험에 의해서 이루어지며, 실증시험후 사용된 Hot Cell 장비는 해체하게 된다. 따라서 일련의 연구개발 과정에서도 시설의 유지를 위해서는 주기적으로 제염하여 작업환경을 개선하여야 하며, 시험장비의 보수 및 교체시에도 제염하여 방사능 준위를 낮추어야 한다. 또한 해체시에는 많은 량의 고방사능 알파 폐기물이 발생하게 되어, 이에 대한 관리가 필요하다. 고방사능 알파오염물로 발생하는 시험 및 분석장비 등 고가장비는 제염하여 재활용되어야 하며 대부분의 장비도 가능한 제염을 통하여 발생폐기물의 량을 최소화하여야 한다.

고방사능 시설에서 오염될 수 있는 설비 및 시설은 취급하는 사용후 핵연료나 시설물의 운전 이력에 따라 그 양 및 특성이 달라진다. 방사성 핵종들은 시설물 내에 있는 여러 기계설비나 계측설비 혹은 차폐용으로 사용되는 콘크리트나 납차폐창 등에 오염이 된다. 이러한 오염물질들은 입자상 혹은 기체상으로 존재하며, 고방사능 시설내에 있는 작업공간에 누적된다. 기체상의 핵종은 환기 계통에 의해서 대부분 제거되어 방출하게 되지만 입자상 핵종들은 기체상 핵종과는 달리 공기중 확산계수가 작기 때문에 방출되지 못하고 시설내에 있는 여러 설비나 구조물에 부착된다. 이러한 부착된 방사성 핵종들은 구조물들의 특성에 따라 물리적, 화학적 현상이 일어난다. 금속성 구조물에서는 주로 표면의 산화현상에 의해 방사성 핵종들이 금속 표면의 산화물질과 같이 고착되어 장비의 내부

또는 외부 표면에 쌓인다. 그러나 콘크리트와 같은 다공성 매질에 부착된 오염물질들은 콘크리트와 핵종들의 물리적 특성에 따른 고유의 확산계수를 가지고 구조물 내로 확산되어 오염된다. 확산계수는 제염시 설비에 남아있는 오염물질의 양에 따라 결정된다.

국내 핵연료주기 연구개발 단위공정의 조업조건에 따라 오염물의 물리·화학적 조성, 오염물의 침투 및 부착 특성이 다르다. 제염대상 설비의 종류 및 소요기술은 1999년부터 수행중인 경증수로 연계 핵연료주기 기술개발, 사용후 핵연료 관리이용 기술개발, 핵종변환 기술개발 등 관련 연구과제에서 기술개발 요건을 받아 분석하였으며, 이를 토대로 기술 수요 및 제염기술을 도출하였다.

제염대상 설비의 종류는 분석/전자설비, Hot cell 장비를 포함한 기계적 설비, 파이프와 탱크류와 같은 시스템 계통설비, Hot cell 벽 및 바닥 그리고 운전폐기물로 분류할 수 있다. 또한 제염 대상과 제염요건에 따라 외부표면제염, 내부표면제염 및 고착성 오염물 제거 기술로 대별되며 오염설비의 특성에 따라 기계적 또는 물리·화학적 제염법을 적용한다.

외부표면제염은 핫셀내부의 벽과 바닥, 핫셀내 고정설비 등이 주요 대상이 되며, 내부표면제염은 복잡한 구조의 전자 및 분석 장비 등이 주 대상이며, 방사성 입자가 약하게 부착된 경우이다. 고착성 오염물 제염은 방사성 입자 및 액적이 강하게 부착되거나 흡착, 이온교환에 의해 핵종이 결합된 표면성 오염물 그리고 확산이나 산화피막의 형성에 의한 침투성 오염물들이 포함된다.

건식제염 공정의 기술적 요건은 제염매질과 제거된 방사성 오염물을 분리하여 오염물은 농축 제거하며 제염매질은 회수하여 재사용하므로써 2차 폐기물의 발생을 최소화하여야 한다.

건식제염기술은 제염폐액의 발생측면에서 습식제염과 구분되는 기술로서 대부분의 물리적 제염기술이 이 분류에 속하며, 방사성 오염금속을 제염하는 기술로 여러 가지 단위공정들이 활용되고 있다. 이 기술은 제염계수가 낮다는 단점이 있지만 원리가 간단하고 활용성이 다양하며, 특히 오염물의 표면 부착성이 약한 경우에는 물리제염 방법이 유용하게 적용될 수 있다. 이러한 기술적 특성 때문에 최근에는 금속폐기물 재활용 및 고

방사성 폐기물의 저준위화 기술로서 물리적 제염방법의 적용성이 확대되는 경향이 있다.

고방사능 알파 오염물의 건식제염기술은 기존의 물리적 제염기술이외에 최근 제염효율이 우수하고, 감용처리가 어려운 오염물을 대상으로 하여 새로운 기술이 연구개발되고 있는 추세이다. 최근에 연구 개발되고 있는 건식제염 기술로는 PFC제염 기술, 가스화 및 가스화/초임계 유체/플라즈마기술의 단일 또는 복합공정에 대한 기술 등을 들 수 있다. 제염대상 오염물은 모재의 표면 특성 및 대상핵종에 따라 제염기술의 적용은 다르며, 대부분의 경우 단일 공정보다는 복합제염 공정으로 구성되어 진다. 해외 선진국들은 대부분 습식처리 기술을 이용하고 있기 때문에 고방사능 건식제염 기술은 해외에서 아직 기술개발 초기 단계이며, 사용후핵연료 건식처리기술을 추진하고 있는 우리나라에 독자적 기술개발이 요구된다. 지금까지 건식제염기술 이용은 저방사능 제염이나 비방사성 오염물 제거에 국한하여 이용되어 왔다.

2. 토양제염 기술

급격한 산업의 발달과 함께 발생하는 부산물에 의해 토양은 다양한 오염물로 오염된다. 전통적인 토양오염원 이었던 휴-폐광산 지역 외에 공장, 산업지역, 폐기물 매립지, 지하 저장시설 등 토양오염지역이 점차 확산되어 가고 있다. 우리나라 보다 앞서 토양 오염으로 인한 피해를 경험한 선진국의 경우, 폐기물의 매립이나 광산 배출물의 부적절한 관리로 야기된 토양부지 복원을 위해 막대한 예산을 투자하고 있다. 우리나라도 1995년 토양환경보전법이 제정되면서 토양오염의 복원에 대한 규제가 강화되어 가는 중에 있다. 그러나, 방사성 오염토양은 원자력 발전소 혹은 방사능 취급시설의 노후화 및 해체 계획에 따라 최근어야 제염에 대한 중요성이 대두되고 있다.

토양은 물, 공기와 함께 가장 기본적인 환경의 구성 요소이다. 이러한 토양은 생물존재의 기반으로서 그리고 물질순환의 매체로서 매우 중요하고 다양한 역할을 수행하고 있다. 토양이 물이나 공기와 크게 다른 점은 유동성이 거의 없다는 것이다. 토양 속으로 유입된 오염물질은 스스로 유

동성을 가지지 않는 한 토양 공극 내에 존재하는 토양 수나 토양 공기에 의하지 않고는 거의 움직일 수 없는 특징을 가진다. 그 결과 폐기물 등과 같은 오염물질이 토양 내에 묻히게 되면 쉽게 드러나지 않고 마치 청정한 환경인 것 같이 보이게 된다. 그러나, 토양이 일단 유해물질에 의해 오염되면 생물 존재 기반으로서의 본래 기능이 훼손되고, 물질의 이동성이 나빠 장기간에 걸쳐 작물 오염 및 지하수 등의 환경 오염을 유발시켜 생태계는 물론 사람의 건강 및 생활환경에 악영향을 끼치게 된다. 또한 한번 오염된 토양은 그 특성상 자정작용이 어렵고 정화에 많은 시간과 비용이 수반된다.

오염토양 제염기술은 크게 방사성 핵종 혹은 중금속으로 오염된 토양에 적용시키는 제염기술과, 유기물로 오염된 토양에 적용시키는 제염기술로 분류할 수 있다. 유기물로 오염된 토양에 대해서는 다양한 제염 기술이 개발되어 있다. 중금속으로 오염된 부지 자체를 제염하는 방법은 상용화되어 있으나 방사성 핵종으로 오염된 부지를 현장에서 직접 정화하는 제염 기술은 개발 중에 있다. 가열에 의한 현장 토양 고정화기술은 고정화(vitrification) 중 발생한 폭발사고로 미국에서도 개발이 주춤한 상태이다. 가장 안전하고 근본적인 방법은 토양을 수거하여 안전하게 제염하는 것인데 단위 제염기술을 따로 적용하거나 두 가지 이상의 기술을 병행하여 적용한다.

TRIGA 연구로는 1988년도 일부 부지오염으로 4500드럼 상당의 방사성 오염토양 폐기물을 발생하여 원자력연구소에 보관 중이며, 또한 현재 TRIGA 연구로에 대한 해체 사업이 중이므로 연구로 부지 전체를 제염하여 제한 없이 사용할 수 있도록 해야 한다. Site specific한 토양오염 특성 평가자료 및 기술이 부족하며, 특히 RESRAD, MARSSIM 등 부지 잔류방사능 평가코드와 표준화된 방사성 지역에 대한 무제한/제한 해제절차의 국내 적용기술이 필요하다.

제 2 절 추진현황 및 연구내용

본 연구는 1999년 4월부터 2001년 3월까지 2년동안 1단계 연구로서 추진되었다.

- 1 단계 목표

- 1) 고방사능 건식제염 수요/사양 파악과 고방사능 제염 단위공정 선정 및 설계방향 정립
- 2) TRIGA 토양제염 공정개발

- 세부연구내용 및 추진현황은 다음과 같다.

1차년도('99년)	2차년도('00년)	연구기간(년)	비 고
<p>◆ 목표</p> <ul style="list-style-type: none"> - 제염대상 설비별 오염특성 및 건식제염 단위기술 적용성 평가 - 잔류방사능 평가 방법론 개발 - TRIGA 토양제염 단위기술 개발 	<p>◆ 목표</p> <ul style="list-style-type: none"> - PFC, CO₂, Plasma 건식제염 단위기술 성능평가 실험 - 제염대상 시설의 건식제염 공정장치 설계방향 설정 	'99.4 - '01.3 (2년)	
<p>◆연구내용</p> <ul style="list-style-type: none"> ○ 고방사능 건식제염기술 개발 <ul style="list-style-type: none"> - 사용후핵연료시설별 오염대상 연구설비 특성분석 - 건식제염 단위기술 시험, 단위기술 적용성 분석 및 건식제염기술 선정 - 잔류방사능 평가법 개발 및 오염특성 시험 ○ 토양제염기술개발 <ul style="list-style-type: none"> - 토양제염기술 특성 시험 및 TRIGA 부지적용성 실험 	<p>◆ 연구내용</p> <ul style="list-style-type: none"> ○ 고방사능 건식제염기술 개발 <ul style="list-style-type: none"> - 건식제염 단위기술 성능평가 실험(PFC, CO₂, Plasma 제염기술) - 제염대상 시설 건식제염 공정장치 설계방향 설정 중단 중단 	'99.4 - '01.3 (2년)	
		99.4 - '00.3 (1년)	
		'99.4 - '00.3 (1년)	

본 연구기간 동안 수행된 연구는 고방사능 건식제염 기술과 토양제염 기술 개발로 구분하여 수행하였으며, 각각의 세부연구 내용은 다음과 같다.

(1) 고방사능 건식제염기술 개발

- 제염대상 설비별 오염특성 및 건식제염 단위기술 적용성 평가
 - 고방사성 오염물 건식제염 기술현황분석
 - DUPIC, SF차세대관리, 장수명핵종전환 시험실증 시설(IMEF, PIEF 등 Hot Cell포함) 별 오염대상 연구설비 특성 분석
 - 대상설비별 건식제염 단위기술적용성 분석 및 건식제염기술 선정
- 건식제염 단위기술 성능평가
 - PFC 제염기술
 - PFC/초음파 결합공정에 의한 제염 대상별 성능평가 및 조건도출
 - PFC회수 및 오염입자 제거기술확립
 - PFC계면활성제 합성/물리화학적 특성 평가(용해도 및 표면거동규명)
 - CO₂ 분사제염기술
 - CO₂ Snow/Pellet분사제염장치 설계· 제작을 통한 장치설계인자 파악
 - 오염입자 제거 특성실험을 통한 최적제염 조업조건 도출
 - Plasma제염기술
 - 제염 대상 설비 특성에 따른 플라즈마 건식 제염 기술 적용 특성 분석
 - Plasma 제염진단/정량 분석
 - 특성 기초 실험용 토치 설계(2.45GHz, Microwave Plasma),
- 잔류방사능 평가 방법론 개발
 - 오염원 종류 및 오염특성 분석
 - 고 방사능 설비 구조물에 관한 방사성 핵종 확산모델 개발
 - 잔류 방사선량 평가절차 도출
- 제염대상 시설의 건식제염 공정 장치 설계 방향 설정 연구
 - 제염대상별 제염공정 설계 기준 도출
 - 단위/복합 제염설비 개념설계 방향 정립
 - 설비개념 및 설계요건 도출

- 이송제염 및 현장제염설비 개념도출

(2) TRIGA 토양제염 단위기술개발

- Solvent flushing 방법을 이용한 TRIGA 부지 토양 제염기술 개발
- 세슘 및 스트론튬 이온으로 오염된 kaolinite계에 대한 동전기적 토양제염기술 개발
- Citric acid 및 EDTA 계의 soil washing 제염기술 개발
- TRIGA 토양 특성 parameter 측정 및 분석
- KAERI 보유 TRIGA토양 오염농도별 분류 및 오염특성 분석
- KAERI 보유 TRIGA 토양에 대한 제염실증 실험

여 백

제 2 장 국내·외 기술 개발 현황

제 1 절 건식제염 기술

1. 서 문

건식제염기술은 제염폐액의 발생측면에서 습식제염과 구분되는 기술로서 대부분의 물리적 제염기술이 이 분류에 속하며, 방사성 오염금속을 제염하는 기술로 여러 가지 단위공정들이 활용되고 있다. 이 기술은 제염계수가 낮다는 단점이 있지만 원리가 간단하고 활용성이 다양하며, 특히 오염물의 표면 부착성이 약한 경우에는 물리제염방법이 간편하게 적용될 수 있다. 이러한 기술적 특성 때문에 최근에는 금속폐기물 재활용 및 고방사성 폐기물의 저준위화 기술로서 물리적 제염방법의 적용성이 확대되는 경향이 있다.

알파 오염물의 건식제염기술은 기존의 물리적 제염기술이외에 최근 제염효율이 우수하고, 감용처리가 어려운 오염물을 대상으로 하여 새로운 기술이 연구 개발되고 있는 추세이다. 최근에 연구 개발되고 있는 건식제염 기술로는 PFC제염기술, CO₂ 펠렛 제염기술, 가스화합물 제염기술, 초임계 유체제염기술, 플라즈마 제염기술 등을 들 수 있다.

사용후 핵연료 건식처리공정의 고방사능 시설이나 장비를 대상으로 한 건식제염기술은 제염 대상과 제염요건에 따라 외부표면오염, 내부표면오염 및 고착성 오염물에 대한 제거 기술로 대별되며(Table 2.1.1)[2.1.1] 제염대상에 따라 단위제염공정을 독립적으로 적용하거나 여러 가지 단위공정으로 구성된 복합공정을 적용한다.

건식제염 공정의 기술적 요건은 제염매질과 제거된 방사성 오염물을 분리하여 오염물은 농축 제거하며 제염매질은 회수하여 재사용하므로써 2차 폐기물의 발생을 최소화하여야 한다.

Table 2.1.1. Classification of dry decontamination technologies on characteristics of radioactive contaminants.

구분	제염대상	오염특성	건식제염법	비고
외부표면 오염	핫셀내부, 대형설비/장비 등 표면오염물	방사성 미세입자 loose부착	기계적/물리적 방법에 의한 부착력저감	
내부표면 오염	복잡한구조장비, 연장, 전자장비, 분석장비 등 오염물	방사성 미세입자의 loose부착	물리적/화학적 방법에 의한 부착력저감	
고착성 오염물	사용 후 핵연료처리 공정/장치 - 강한부착성오염물 - 표면성오염물 - 침투성오염물	방사성입자 및 액적부착 흡착, 이온교환 확산, 산화피막 형성, 부식	부착력 저감, 고온 고압세정 방사성물질의 용해, 이온교환, 콜로이드 및 착화물 형성,	

본 보고서는 외부 및 내부표면에 loose하게 부착된 입자성 오염물과 고착성 오염물로 구분하여 기존의 물리적 제염기술이외에 최근에 연구 개발되고 있는 PFC제염기술, CO₂ 펠렛 제염기술, 가스화합물 제염기술, 초임계 유체제염기술, 플라즈마 제염기술의 적용가능한 제염기술의 특성과 국내외 기술현황을 기술하였다[2.1.1-8].

2. 해외의 연구개발 현황

가. 미세입자 제거기술

(1) 프레온 제염

프레온 제염은 원자력 산업에서 발생하는 비고착성의 입자성 알파 오염 대상물을 제염하기 위하여 개발된 방법으로 프레온 (CFC-113)을 이용하여 감압 또는 고압으로 분사하여 오염물을 제거하는 건식 제염기술이다[2.1.9]. 이 기술은 초음파와 고압분사장치와 결합하여 제염 성능을 높일 수 있으며, 사용된 프레온은 대부분 회수하여 재사용하므로써 이차폐

기물의 발생을 감소시킬 수 있는 장점이 있다. 이 기술은 미국에서 1978년에 MOX 핵연료 제조공정이나 재처리 Pu 전환공정에서 알파 폐기물로 발생하는 의복류, 공구, 기계류 및 glove box를 대상으로 개발하였으며, 현재까지 적용대상 알파폐기물의 종류 및 형태에 따라 상압 또는 고압의 프레온 공정/장치가 다양하게 개발되어 방호복, 공구 및 장비, 방독면, 바닥 및 천장, 배관 및 전선, 핫셀 재료 등 적용범위를 다양화하고 있다.

미국의 HPSI (Health Physics Systems, Inc.)에서는 방호복, 공구 및 장비, 방독면, 바닥 및 천장, 배관 및 전선, 핫셀 재료 등을 대상으로 다양한 장비를 개발하였다. 방호복의 제염공정장치는 드라이 클리닝 기계의 배열로 형성되어 있으며, 기존의 수세척 공정이 가지고 있는 대량의 액체 폐기물 발생없이 방호복을 세정할 수 있으며, 이를 통해 3~5의 제염계수를 얻은바 있다. 고 방사선장 하에서 유지보수 시 사용하는 공구 및 장비의 제염공정장치는 방호복 제염시의 세정 드럼을 glove-box chamber 및 수동식 세정을 위하여 손으로 드는 고압 ($3.5 \times 10^5 \sim 1.5 \times 10^6 \text{ kg/m}^2$) 분사 gun으로 교체한 장비를 이용하였으며, 이 기술을 통해 25~75의 제염 계수를 얻었다. 또한 바닥, 벽, 천장 및 기타 대규모 평면의 세정에는 특수한 세정 헤드를 통해 세정 대상 표면에 고압으로 분사되는 장비를 사용하며, 이를 통해 20~2000의 제염계수를 얻었다.

미국의 PNL 에서는 glove box 및 대형 TRU 폐기물을 직접 저준위 폐기물로 현장에서 전환할 수 있는 기술의 하나로 프레온 분사제염을 선정하여 기술성 및 경제성을 분석하였으며, 기술적으로 이러한 종류의 폐기물은 비 TRU 폐기물화가 가능하였으나 틈새 오염물의 제거가 문제점으로 지적되었다.

E. I. du Pont de Nemours and Company에서는 Savannah River Plant H-Area Hot-Canyon Crane의 제염에 고압의 프레온 분사제염을 적용하였으며, crane bridge 및 monorail을 효과적으로 제염하여 제염계수 16~30을 얻었다. 특히 이 기술을 적용함으로써 grease 및 oil로 침적된 오염물을 제거하는데 효과적임을 입증하였다.

Westinghouse Hanford Company에서는 Hanford site 200 Area에 있는 원격 조작 장비, 즉 Manipulator wrist assembly, Impact wrench socket,

Vise grips, Impact wrench tool assembly 및 배관 절단기 등을 공구 제염 장치를 사용하여 제염하였으며, 평균 7.5분에 약 95 %의 비 고착성 오염물을 제거하였다고 보고하였다.

영국의 Harwell에서는 비가연성 폐기물로부터 플루토늄을 제거하기 위하여 플루토늄을 함유하는 산화물 또는 plutonium nitrate로 오염된 여러 가지 대상물로부터 대부분의 방사능을 제거하는 기초실험을 수행하여 제염의 가능성을 확인한 다음 glove box에서 절단된 시편 및 폐기물 드럼에서 인출한 소규모의 실제 폐기물을 대상으로 실증실험을 수행하였다. 최종적으로 제염에 사용된 폐 Arklone (혹은 Freon)을 재 사용하는 방법을 조사하였으며, 이를 통해 전체 제염공정의 총괄적인 평가를 수행한 바 있다. 실험에서 얻은 결과는 프레온 제염은 loose하게 오염된 비가연성 폐기물에 효과적이었으며, $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ 와 같은 액체 오염에는 6%의 물과 2.5%의 계면활성제가 포함된 Arklone W가 효과적이었으나 제염용액의 재활용은 물의 함유로 인해 간단치 않음을 시사하였다. 제염 용액과 제염 대상물을 효과적으로 접촉시키기 위한 방법으로 분사, 진동세정 및 초음파 등이 결합된 공정이 가장 성공적인 결과를 보였으며, 대표적으로 Arklone 내에서 초음파 세정 후에 PuO_2 잔여준위가 $1\sim 10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 으로 낮아졌음을 보고하였다.

Belgonuclear에서는 Pu로 오염된 대형 glove box의 해체를 위한 제염으로 프레온 분사 제염을 사용하여 표면, 구석, 가장자리 등으로부터 모든 먼지 및 자유 입자들을 빠르게 제거할 수 있었으나 고착성의 Pu 입자는 제거가 불가능하였고 다른 기계적 방법이 더 요구된다는 결론을 얻었다.

프레온 제염 공정의 효율을 증진시키기 위하여 프레온 내에 다양한 세척제, 계면활성제 및 기타의 화학제가 첨가되며, 기계장치 면에서 분사, 진동세정 및 초음파가 조합된 공정장치를 사용하고 있다.

이와 같이 프레온 제염공정은 다양한 폐기물 및 제염 대상물에 적용될 수 있을 정도로 기술 개발의 역사가 길며, 기본 장치로부터 원격으로 대형 면적을 제염할 수 있는 장치까지 개발되어 현재 기술이 상용화되어 있다. 그러나 기존의 CFC-113은 오존층을 파괴하는 주요 물질인 염소를 포함하고 있기 때문에 환경친화적인 건식 제염공정의 개발과 아울러 기존의

CFC-113 공정보다 고체 표면에서 작은 입자를 더욱 효과적으로 제거할 수 있는 프레온 대체 건식 제염공정으로 PFC(perfluorocarbon)를 사용하는 제염공정이 개발중에 있다.

(2) PFC (perfluorocarbon) 제염

PFC 제염기술은 기존의 프레온제염과 유사한 방법으로 프레온은 오존층을 파괴하는 주요 물질인 염소를 포함하고 있기 때문에 환경친화적인 건식 제염공정의 개발과 아울러 기존의 CFC-113 공정보다 고체 표면에서 작은 입자를 더욱 효과적으로 제거할 수 있는 프레온 대체 건식 제염공정으로 개발되고 있다[2.1.10-11].

PFC 제염공정은 DuPont 이나 3M사에서 개발한 PFC계 세정제 (예: Vertel 245, PF-5070)를 주된 세척제로 사용하고, 여기에 PFC계 계면활성제를 소량 첨가하여 공정의 제염성능을 증진시킨다. 또한 금속표면의 고착성 오염물을 처리하기 위하여 PFC 공정과 초음파를 복합한 공정의 개발이 진행되고 있다. 사용된 PFC 용매의 정화 및 재사용을 위한 여과 및 증류공정의 복합공정으로 구성되어 있다.

PFC (perfluorocarbon) 공정은 미국의 ESI (Entropic Systems, Inc.)에서 주도적으로 개발되고 있으며, 주로 금속장비 및 구조물 표면이나 전자장비표면에 오염된 입자성, 비고착성 오염물을 대상으로 그 처리성능이 평가되고 있는 단계에 있다 (ORNL/TM-12444, 1994).

ESI에서는 BECo (Boston Edison Company)의 PNPS (Pilgrim Nuclear Power Station)에서 인출한 방사성 오염물으로써 컴퓨터, 계측기 및 전자기기 등의 전자 장비, 토크 렌치 및 마이크로미터 등의 정밀 기계 공구류, 모터 및 전위계측기 등의 전기 장비뿐만 아니라 기타 공구 및 기계 부품류 등 31개 대상물의 재사용을 위한 잔존가치를 평가하기 위해 제염하였다. 제염 전 31개의 대상물 중 5개의 scaffolding knuckles를 제외하고 육안으로 어떤 loose한 오염물도 관찰되지 않았으며, 대상물의 부피($1\text{ cm}^3 \sim 1\text{ ft}^3$) 및 형상과 대상물의 재질 또한 금속류, 세라믹류, 플라스틱류, 고무류 등으로 매우 다양하였다. 제염 결과 31개 중에서 17개의 대상물을 무제한 방출기준 ($5000\text{ dpm}/1000\text{ cm}^2$) 이하로 제염 (25분을 한 사이클로 했을 때 8개는 한 사이클, 6개는 두 사이클, 그리고 3개는 세 사이

클 이상이 요구 됨)이 가능하였다. 방출된 대상물의 제염계수는 1.1 이상에서부터 12 이상의 범위이었으며, 무제한 방출기준까지 제염되지 않은 대상물의 제염계수도 역시 1.1에서 11.4 범위이었다. 본 연구를 통해 다음과 같은 물리적 요인에 의해 대상물의 제염 효과가 감소됨을 알 수 있었다.

- 오염된 대상물의 형상적인 제약 : 오염 입자를 운반하기 위해서는 내부 및 외부 표면을 지나가는 제염 용액의 흐름이 자유스러워야 한다. 표면에서 흐름이 없으면 초음파 교반에 의해서 표면으로부터 입자가 탈리된다 할지라도 공정의 적용이 끝날 때까지 그 자리에 머무르거나 이 표면에 다시 침적된다.
- 오염 입자의 기계적 혹은 화학적 결합 : 방사성 오염입자가 대상물 표면에 기계적 또는 화학적으로 결합되면 초음파 교반에 의해서 떼어내기 어렵다. 일반적으로 심하게 부식된 대상물은 비교적 깨끗한 대상물에 비해 제염하기가 더 힘이 든다.
- 고유 방사능 : 고유의 방사능을 띠고 있거나 유도된 방사능이나 자연 방사능은 거의 제거할 수 없다.
- Grease 및 검댕 : 제염 대상물의 표면에 상당한 그리스 및 검댕이 존재하면 제염 공정을 저해한다. Perfluorocarbon 용매는 탄화수소와는 섞이지 않기 때문에 그리스 및 검댕에는 매우 빈약한 용매이다. 따라서 혼성 폐기물의 발생은 최소화할 수 있다. 만약 연속적으로 그리스 및 기름이 방사성 입자와 동시에 제거되면 혼성폐기물이 다량으로 발생할 가능성이 있다.

ESI는 상기 제염 시험을 위해 다음과 같은 성능을 만족하는 SNDS (Sonatol Nuclear Decontamination Systems)라는 제염 계통을 설계/제작하였다.

- 다양한 복잡한 대상물, 특히 전기 및 전자 부품으로부터 효과적으로 방사성 입자를 제거할 것
- 다양한 종류의 불화 유기 액체를 공정 매체로 하여 조업할 수 있을 것
- 공정 용액을 최소한의 손실로 내부에서 회수하고 재 사용할 수 있을 것

- 인력을 최소화하기 위해서 자동화된 공정 제어 조건하에서 또는 다른 방법으로 처리할 대상물의 설치 및 제거를 할 수 있을 것
- 잔류 방사능을 on-line으로 측정할 수 있는 기능이 제공될 것
- 교환이 가능한 여과기를 사용하여 공정 매체로부터 방사성 입자를 실시간으로 포집/제거할 수 있을 것

ESI가 제작한 SNDS 제염 계통의 사양 및 제염 운전 조건은 다음과 같다.

- 세정조 크기 : $W = 50 \text{ cm} \times D = 35 \text{ cm} \times H = 30 \text{ cm}$
- 초음파 출력 = 1000 Watts
- 주요 공정 매체 = Perfluorocarbons
- 주요 계면활성제 = Perfluorinated organic acid
- 계통 온도 = 50~65°C
- 가열 및 냉각을 포함한 200 GPH 용량의 용액 회수 계통
- 상압 운전
- 유체 유속 = 5~6 GPM
- 두개의 공정 순환 loop : 세정 및 세척 loop
- 탈리된 방사성 입자의 on-line 포집

SNDS는 다음과 같은 기능을 갖는 두 개의 독립된 공정 loop인 세정 및 세척 loop로 구성된다.

- 세정 loop : 세정 용액 저장 tank로부터 세정 펌프를 이용하여 세정 용액을 세정 pre-filter를 거쳐 침수조에 공급하면 침수조 내에서 오염물과 용액이 접촉하게 되고 세정이 진행된다. 침수조에 용액이 가득 채워지면 세정 펌프가 멈추게 되고 세정 용액은 주 순환펌프에 의해 세정 여과기 및 침수조를 통과하면서 재 순환된다. 용액의 순환 및 초음파 교반의 두 가지 복합된 작용 하에서 오염물은 세정액에 의해 대상물로부터 제거된다. 제거 (또는 세정) 기구는 오염물의 용해 및 기계적 부유화를 포함한다. 세정 공정의 종료 후에 오염된 세정액은 침수조에서 세정 여과기를 통해 비등조로 배출되고 비등조에서 세정액은 증류되어 오염물이 분리되면서 세정액은 재사용 된다.
- 세척 loop : 세척 용액 저장 tank로부터 세척 펌프를 이용하여 세척 용액을 pre-filter를 거쳐 침수조에 공급하면 침수조 내에서 오염물

과 용액이 접촉하게 된다. 침수조에 용액이 가득 채워지면 세정 펌프가 멈추게 되고 세정용액은 주 순환펌프에 의해 세척 여과기 및 침수조를 통과하면서 재 순환된다. 용액의 순환 및 초음파 교반의 두 가지 복합된 작용에 의한 증강된 기계적 상승효과로 오염물이 부가적으로 제거된다.

- 건조 : 용액 침수에 의한 조업에 부가적으로 SNDS에서 세정된 대상물은 증기로 건조된다. 이 현상은 침수조 상부의 증기영역을 비등조의 상부보다 더 높은 온도로 과열함에 의해 이루어짐. 용매로 젖어있는 대상물이 침수조를 떠나 이와 같이 과열된 지역에 머물게 되면 대상물의 온도가 용매의 비등점보다 높아지게 될 것이며, 이로 인해 대상물로부터 용액이 증발함으로써 대상물이 계통에서 인출될 때 용매의 손실이 최소화된다. 과열된 지역에서 증발된 용액은 증기 영역의 최상부에 설치된 차가운 응축 코일에 의해 회수된다.

MIT Nuclear Reactor Lab.에서 실시한 예비실험에서 Sonatol 공정은 1시간 이내에 전자장비에 오염된 방사성 물질을 효과적으로 제염할 수 있었고 0.22 μm 정밀여과막을 사용하여 용액중의 방사능을 99.5% 까지 제거할 수 있었다. 1997년 4월 까지 27개의 사용 폐필터를 처리하였다. 입자들을 효과적으로 제거한 필터들은 압력차가 현저히 감소하여 재사용이 가능하였다.

Bartlett Services, Inc.와 Entropic Systems, Inc.는 공동으로 DOE의 소각시설에 설치되었던 대형의 가스필터 (24" * 24" * 6")를 상용규모의 초음파 세척장치와 PFC공정을 합한 물리적 처리기술을 사용하여 1997년 4월까지 27개의 필터를 처리하였으며, 오염 입자들이 효과적으로 제거된 필터들은 압력차가 현저히 감소함으로써 재사용이 가능한 수준으로 전환되었다. 이때 초음파 세척에 사용한 계면활성제는 고분자량을 갖는 fluorocarbon 이고 운반체로는 perfluorinated carrier 액체였다. 이러한 물리적 처리공정을 적용하여 필터 매질로부터 제거된 입자들은 0.22 μm polypropylene 필터로 걸러서 소각하였다고 보고하였다 ('98 Waste Management, Tucson, Arizona, 1998).

이상과 같이 최근 입자성 오염물을 제거하기 위한 PFC 공정에는 DuPont 이나 3M 사에서 개발한 PFC계 세정제 (예 : Vertrel 245, PF-5070)를 주된 세척제로 사용하고 있으며, 여기에 PFC계 계면활성제를 첨가하여 처리공정의 효과를 증진시키는 연구가 진행되고 있으며, 프레온 공정보다 제염효과가 매우 좋은 결과를 보여주고 있다. ('98 Waste Management, Tucson, Arizona, 1998). 또한 금속표면 등에 형성된 고착성 오염물을 물리적/화학적으로 처리하기 위하여 PFC 공정과 초음파를 복합한 공정의 개발이 진행되고 있으며, 사용된 PFC 용매의 정화 및 재사용을 위한 여과 및 증류공정에 관한 연구가 복합적으로 수행되고 있다.

(3) CO₂ 분사제염

CO₂ 분사제염기술은 현재 개발중에 있는 공정으로 고체 CO₂를 생성시켜, 50~250 psig로 가압된 공기나 CO₂를 이용하여 3 mm 크기의 고체 CO₂ 펠렛을 노즐을 이용하여 분사시켜 제염하는 기술이다. 이산화탄소가 승화된 이후에는 단지 남게 되는 폐기물은 연마에 의해 제염대상물 표면으로 부터 떨어져 나온 입자들 뿐이므로 제염에 의해 발생하는 폐기물처분은 문제가 되지 않는다. 이 때 연마되어 떨어져 나온 입자들이 분산되지 않도록 입자들을 계속하여 흡입시켜 모아주는 공정이 필요하다. 그러나 기존 오염문제는 다른 연마제염과 같다.

CO₂ 분사제염 장치는 크게 두 부분으로 구성된다. 액체인 CO₂를 드라이아이스 눈으로 바꾸어 주는 펠렛 생성장치와 이 펠렛을 분사시켜 제염하는 장치로 나뉜다. 제염장치는 이동식과 고정식으로 사용할 수 있다. CO₂ 분사제염은 플라스틱, 세라믹, 복합재료, 및 스테인레스강 등의 제염에 효과적인 것으로 알려져 있다.

1981년이래 Savannah River 연구소에서는 생성 폐기물량과 작업자 피폭을 최소화하고, 작업의 생산성과 안전성을 증진시킬 뿐만 아니라 방사성 물질의 방출 및 인체흡입 가능성을 최소화 할 수 있는 제염 해체 조작에 사용할 제염기술을 제공하기 위한 연구 프로그램을 수행해 왔다[2.1.12]. 이 프로그램에서는 기존 개발된 제염기술을 평가하고, 새로운 기술을 개발하여 현장에서 이 기술을 사용하도록 지원하고자 하였다. 이 결과 다양한 물리화학적 제염법이 시험, 운영되었으며 CO₂ 분사제염 기술 역시 주

요 제염기술의 하나로 장치의 시험 및 개선에 대한 연구가 이루어 졌다.

미국의 NDC사(Non Destructive Cleaning Inc.)와 TTI Eng.사는 1990년 10월 surry PWR(Virginia Electric Power)의 핵연료교체기간 중에 CO₂ 분사제염법을 사용하여 tool을 처음 제염하였다[2.1.13]. 제염결과 Table 2.1.2에서 알 수 있듯이 hard tool의 100%가 1000dpm/100cm²이하까지 제염되어 무구속 방출되었다. 이와 함께 chain falls, power hand tool 및 전에 제염된 적이 없는 일차냉각계통 순환펌프의 부품, 밸브 그리고 증기 발생기 manway 볼트 등이 효과적으로 제염되었다. 이를 통해 10만\$가치의 장비가 제염에 의해 복구되어 재사용되었으며, 유일한 폐기물은 선량률이 3~5mrem/h를 초과하면 교체하게 되어 있는 HEPA 필터 만이 발생하였다.

Winco ICPP(Idaho Chemical Processing plant)의 핵연료저장지역(fuel storage area, FSA)으로부터 제거된 RSM stainless steel에 대한 제염법을 확인, 평가 하기 위해 조사한 결과 FSA stainless steel을 제염하여 재활용하는 것이 기술적으로 타당하며, RWMC에 처분하는 것에 비해 더 경제적이라고 결론지었다[2.1.14]. 유기산과 유기산 함유 상용제염제가 FSA stainless steel의 제염에 사용될 수 있으나 CO₂ 분사제염법과 고압수 분사법 또한 ICPP 폐기물처리설비에 적합한 제염기술이라고 보고하였다. 특히 화학제를 사용한 제염법(chemical dipping) 이나 전해제염법 등이 이 시설의 제염에 타당한 화학적 제염법이지만, 이에 준하게 오염이 soft crud일 경우 CO₂ 분사제염이 효과적으로 적용될 수 있다고 보고하였다.

Table 2.1.2. Decontamination results in Surry PWRs

종 류	제염시간(min)	제염결과(per 100cm ²)
Hand tools	1	• loose 오염 ≥ 1000dpm • 구리스, oil, 부식 및 paint
	2-3	• fixed 오염 ≥ 100cpm
Power tool	2-3	• loose 오염 ≥ 1000dpm
Chain falls	10-20	• loose 오염 ≥ 1000dpm
Special calibrated equipment	1-3	• loose 오염 ≥ 1000dpm
	2-6	• fixed 오염 ≥ 100cpm
Valves/Pumps parts	varies	• loose 오염 ≥ 1000dpm • fixed 오염 ≥ 100cpm
Instrument/gauges	1	• loose 오염 ≥ 1000dpm • 구리스, oil, 부식 및 paint
	2-3	• fixed 오염 ≥ 100cpm
Monitors	1-3	• loose 오염 ≥ 1000dpm
Cables & hoses	10-20 ft/min	• loose 오염 ≥ 1000dpm
Respirators	2-3	• loose 오염 ≥ 1000dpm

ORNL에서는 개선된 turbine/CO₂ pellet가속기를 사용한 제염기술을 개발하고 있다. 이 프로그램에서는 dry ice pellet을 고속회전 wheel로 가속시키는 로봇을 사용한 자동화가 가능한 장치를 개발하는 것이다. 기존의 가압공기에 의한 가속에 비해 pellet의 속도, 정교한 속도 제어가 가능하고 에너지 이용면에서 10배 이상 효율적이다[2.1.15]. 또한 적외선 lamp나 환경 친화적 용매를 병행해서 쓰는 제염방법에 대한 연구도 진행되고 있다.

Winco(Westinghouse Idaho Nuclear Company Inc.)에서는 화학제를 사용한 제염을 대체할 수 있는 제염법으로 수세척 제염법, 도막제염법, CO₂ 분사제염법 등 여러 제염법을 비교조사한 결과, loose 오염제거에는 수세척, 도막제염법 및 CO₂ 분사제염법 등이 매우 효과적이라고 하였다. 또한 fixed & loose 오염의 제거에는 초음파 제염법과 초저온 제염법이 효과적

이라고 실험결과를 보고하였다[2.1.16].

Winco에서는 이러한 타당성 연구결과를 근거로 하여, 모의시편과 방사성 오염 실시편을 사용하여 좀더 상세한 연구를 수행하였다. 첫번째 비방사성 모의시편을 사용한 실험결과, CO₂ pellet 분사 장치가 쉽게 오염되고 제염빈도가 큰 부위의 제염(everyday type cleaning)에 효과적임이 조사되었다. 두 번째 방사성 오염 실시편을 사용한 실험결과, 이 제염법은 방사성 오염 tool이나 재료의 제염에 매우 효과적임이 밝혀졌다. 이러한 실증시험을 통해 이 제염법은 fixed 오염보다는 loose 오염의 제거에 보다 효과적이라고 결론지었다. 그러나 실험 동안 CO₂ 분사제염법으로 많은 양의 fixed 오염도 제거됨이 관찰되었으며, 비파괴적인 방법임이 확인되었다. Cs, Zr 등으로 오염된 SUS 304L tool이나 재료에 대해 최대 제염결과를 얻기 위해서는 0.125" 및 0.080"의 pellet die를 사용해서 125~150psi의 압력이 적당함을 보여주었다[2.1.15]. 그러나 보다 좋은 제염 효율을 얻기 위해서는 제염대상의 재료종류와 오염종류에 따라 압력과 die size가 결정되어야 한다. 이 제염법은 ICCP에서 현재 사용하고 있는 습식제염법의 대체 제염법으로 이 실증을 통해 CO₂ pellet 분사제염법에 의한 성공적인 제염 작업 결과를 얻을 수 있었으며, filters 및 enclosure 이외에는 어떠한 2차 폐기물도 발생시키지 않음이 확인되었다. NWCF에서는 기존 화학제염법의 사용을 줄이고 CO₂ pellet 분사제염 장치를 설치하여 기존 제염법으로 생성되는 sodium waste의 양을 감소시키고자 하고 있다.

Oceaneering International Co.는 ROVCO₂(The Remote Operated Vehicle with CO₂ Blasting) 프로그램을 통해 콘크리트 바닥면을 효과적으로 제염할 수 있는 장비를 개발하였다. ROVCO₂ 프로그램 2단계 종료 후에 ROVCO₂ 장치가 콘크리트 바닥의 오염과 coating을 효과적으로 신속하게 제염할 수 있음이 확인되었다. 즉, 문질러 없애 수 있는 loose 오염의 98% 그리고 fixed 오염의 75%를 제거할 수 있으며, 에폭시 도료와 콘크리트 발포제에 대해 52.5 ft²/hr의 제염속도를 나타내었으며, 시험대상의 85% 이상에 대해 적용이 가능하였고 폐기물 처분을 포함한 운전비용이 \$ 0.72 /ft²으로 평가되었다[2.1.17].

유럽의 Tecnubel 사는 '91년 이래 CO₂ blasting 제염법을 사용하기 시작한 이래 사용실적을 계속 넓혀가고 있다. 즉, 폐기물 압축기(supercompactor), 시설의 벽면 및 바닥, Metrology table, Hot cells, Fertilizer production

plant 및 JET (The Joint European Tours) vacuum vessels 등에 대해 제염을 경험하였으며, 제염결과는 Table 2.1.3와 같다[2.1.18].

Table 2.1.3. Recent CO₂ blasting projects-nuclear applications

Facility	Material supporting the contamination	contaminant	DF	Measurement
Nuclear service centre	Painted carbon steel	All fission products	3 to 158	Wipe reading
Fuel plant	Concrete/epoxy	UO ₂ enriched	12 to 35	Direct reading
Fuel plant	Brick/painted	UO ₂ enriched	53	Direct reading
JET Culham	Inconel/Inox	H ₃		Wipe reading
Research centre	Painted carbon steel	Co-60	0 to 14	Direct reading
Research centre	Painted carbon steel	Co-60	1.8 to 73	Wipe reading
Isotope production, Cell 27-28	Stainless steel	Various fission products	2 to 5	Direct reading
Isotope production, Cell 28	Lead/epoxy	Various fission products	1.3 to 3.6	Direct reading
Fertilizer plant	Stainless steel polypropylene	Ra-226	10 to 100	Direct reading

(4) 연마세척 제염(Swabbing, washing, scrubbing 및 brushing)

이 제염방법은 고전적인 방법으로 작업자가 솔이나 주걱 등과 같은 도구를 이용하여 직접 제염대상물에 접근하여 닦아내는 방법이다. 제염효과는 제염시간, 도구의 형태, 제염용액 및 제염대상물의 표면상태 등에 따라서 다양하게 된다. 대상물의 부식이나 손상 없이 제염할 수 있으나 작업자가 대상물에 접근해야 하므로 방사선피폭의 위험이 큰 것이 단점이다. 이 제염방법을 사용할 경우 연마도구의 주기적인 교체나 세척에 의해 오염의 분산을 방지해야 한다.

(5) 유동연마(블라스팅) 제염

유동연마 제염방법은 블라스팅 제염이라 부르기도 하는데 대형 구성품을 제염하여 금속성 폐기물을 재활용하기 위해 사용하는 제염기술 가운데 하나이다. 고압분사 유체의 흐름에 미립자 상태의 연마제(Grit)를 붙여 넣어 입자의 충돌에너지를 이용하여 제염효과를 향상시키는 제염방법이다. 사용되는 연마제로는 알루미늄, 카보렌덤 및 마그네타이트 등이 있다. 입자들의 성질에 따라 블라스팅 제염방법은 매우 효과적인 기술이 될 수 있으나, 상당량의 2차 폐기물을 발생시킨다. 다량의 연마제를 사용하기 때문에 2차폐기물 발생이 문제가 되므로 제염후 제염에 사용된 연마제들은 선별분리하여 회수한 뒤 재사용할 수 있다. 연마제로는 아주 부드러운 입자(예, 나무톱밥)를 사용할 경우 제염된 재료표면의 질감을 향상시킬 수 있다. 이 제염방법은 금속이나 콘크리트의 표면오염물의 외부층을 제거하는데 효과적이다.

이 제염방법은 사용하는 유체의 종류에 따라 건식과 습식 두가지로 구분된다. 건식 연마제염은 약 5 MPa 정도의 기압이 주로 사용되며 분사속도는 약 350 m/sec가 적당한 것으로 알려져 있다. 이 제염방법에 의해 얻게 되는 제염계수는 200~300 정도가 된다. 습식 연마제염은 500~1,000 MPa의 수압이 필요하며 분사속도는 역시 350 m/sec가 적당하다. 연마제의 크기가 연마를 제어하는 변수인데 15~20 mesh의 연마제를 사용하면 제염 및 연마속도가 큰 반면, 표면마모가 크고 100 mesh 이하의 작은 연마제를 사용하면 연마속도는 느리지만 표면손상은 현저히 감소한다.

블라스팅 제염방법의 장점은 효율이 크고, 표면 연마가 빠르며, 금속성

재료 뿐만 아니라 여러종류의 재료에 적용이 가능하며, 제염대상물이 빨리 건조하여 부식이 발생하지 않으며, 연마제의 회수가 가능하여 일반 산업에서도 사용되는 기술이다.

이 제염방법의 단점으로는 재료에 대한 micro-hammering 로 인한 오염물의 고착 위험성, 오염된 연마제에 의한 표면의 재오염성, 다량의 2차 폐기물이 발생될 가능성 등이 있다.

(6) grit 분사제염

grit 분사제염기술은 미도장 혹은 도장 콘크리트표면이나 금속 표면 그리고 납벽돌 표면에 형성된 유해 방사성 오염을 제거할 수 있다. 물이나 가압 공기 medium 에 부유된 sand, alumina, metal shot 등의 연마재를 고압으로 분사하는 원리를 이용하며 표면오염의 균일한 제거효과를 얻을 수 있다.

현재 이 기술은 상용으로 이용이 가능하며, 오염 ft^2 당 1-3 \$ 의 비용이 소요된다. grit 분사제염기술은 비교적 적용시간이 짧은 신속한 공정으로 제염대상표면이 단순하거나 복잡한 모든 표면에 적용이 가능하고 저렴한 방법이다. 특히 평평한 오염표면에 매우 효과적이다. 그러나 glass, transite 혹은 plexiglass와 같은 연마제에 의해 파괴될 수 있는 재질에는 적합치 않다.

(7) shot 분사제염

shot 분사제염기술은 콘크리트 표면이나 금속재질의 제염에 적합한 기술로서 페인트, 도막 및 녹 등의 유해 방사성오염의 제거에 사용될 수 있다. 표면을 동시에 탈거, 세척 및 식각시키는 공기가 필요없는 방법으로, 연마제가 완전 밀봉된 원심분사 휠중앙으로 공급되면서 이동가능한 제염장비가 처리하고자 하는 오염 표면을 따라 이동하게 된다. 휠이 돌면서 연마제가 날로부터 표면으로 분사되어진다. 연마제와 표면 debris는 연마제의 재활용과 분진제어를 위해 분리장치로 수거되어진다. shot 분사제염기술은 상용으로 이용이 가능하며 오염 ft^2 당 약 8 \$ 의 비용이 소요되어 다른 분사제염에 비해 비교적 많은 비용이 든다. 그러나 원격으로 적용이 용이하며, 분진발생이 없으며 제염후 표면은 깨끗이 건조된 상태로 남겨진다.

(8) 얼음 연마제염

얼음(wet ice) 연마제염 방법은 연마제로 얼음을 사용하여 저압의 공기에 불어 넣어 제염을 실시한다. 공기에 대한 대표적인 요건은 280 scfm으로 압력범위 60~250 psig를 사용한다. 이 제염방법은 매질로 얼음 형태의 물을 사용하기 때문에 다른 소모품이 요구되지 않는다. 제염에 의해 최대 약 24 gal/hr의 물이 발생된다. 제염효율은 분사노즐의 이동속도, 노즐과 대상물 표면과의 거리, 조업압력 및 대상물의 구조적인 형태에 따라 다르게 된다.

발생되는 폐액은 오염된 물이다. 폐액량은 연마속도에 의존한다. 최근 ORNL에서 실증한 장치는 11 gal/hr의 물이 발생하였다.

(9) Strippable Coating

오염표면에 고분자막으로 입힌후 오염물질을 고분자와 함께 제거하는 기술이다. 일반적으로 제거된 고분자막은 용기에 넣어 처분한다. 코팅막이 건조된 후 저절로 적용표면으로부터 분리되는 비독성 수용성 공중합체도 사용된다. 이 경우에는 고분자 성분이 중합되면서 갈라질 때 느슨하게 부착되어 있는 표면오염 물질을 함께 제거하게 된다. Vinyl chloride 와 같이 해로운 물질을 원료로 사용하는 경우에는 코팅시 별도의 호흡보호기구가 요구되기도 하고, Pu-238 과 같이 열생성 물질을 제거할 때는 적은 양으로 구분하여 열이 지나치게 발생하지 않도록 주의가 요망된다.

이 기술은 모든 형태의 오염 및 재질에 적용이 가능하다. Self strippable coating 은 다공성이 아닌 표면에만 적용이 가능하며 금속표면의 산화막을 제거하는 데도 적용될 수 있다. 특히 원자력시설의 해체시에 광범위하게 적용되어 왔고 고분자 성분의 독성을 없애주는 화학성분을 첨가하여 2차 폐기물 처리의 필요성을 크게 완화시킬 수 있는 연구결과도 있다.

(10) 습식 연마제염

습식 연마제염 장치는 폐쇄 회로로 구성되며 액체(물), 연마제 및 압축 공기를 혼합하여 사용한다. 장치의 폐쇄회로내에 부압이 유지되는 내장된 HEPA 배기체 처리계통을 사용하기 때문에 제염시 기중 오염의 위

형성이 없다. 이 제염방법은 터어빈 블레이드나 밸브와 같이 제거하지 않고 시스템에 설치된 상태에서 내부를 제염할 수 있다.

방사성 폐기물은 연마제와 물리적으로 분리시킬 수 있으므로 폐기물 발생량이 매우 적다. 물은 회수하여 재사용한다. 이 제염방법은 어떠한 용해성이나 유해성의 화학약품을 사용하지 않고 단지 연마제(예, 유리입자, 알루미늄 산화물, 실리콘 카바이드 및 세라믹)와 물을 사용한다.

일본에서는 JPDR의 해체시 배관 내부제염을 목적으로 습식 연마제염을 이용하였다. 제염기술 개발 과정에서 저유속 조건에서 수명이 길고 높은 연마 효율성을 갖는 연마제를 찾기 위하여 여러 가지 유기 무기재료의 연마제를 시험하였다. 그 결과 보론 카바이드(B_4C)가 선정되었다. 습식 연마제염 조건은 유속 5.0 m/sec, 연마제 크기 0.5 mm, 연마제 농도 20 wt% 이고 액체는 물을 사용한다. JPDR에서 채취한 오염시편의 제염실험 결과 12시간 후에 제염계수 100을 얻었다. 그러나 304 스테인레스강으로 된 JPDR 정수배관(오염준위, 1×10^3 Bq/cm², 내부면적 2.0 m²)의 제염을 실증시험하였다. 그 결과 12시간 후에 제염계수 30을 얻었다. 그 후 연마제를 교체하고, 유량을 증가시켜 24시간 동안 제염한 결과 약 1,110 까지 제염계수를 얻었다.

(11) 진동 연마제염

진동연마 제염방법은 진동하는 제염조내에 연마제와 제염대상물을 넣고 제염제를 분사시켜 주는 방법이다. 기계적 연마작용과 제염제의 화학작용이 조합되어 효과적인 제염효과를 얻을 수 있다. 이 제염방법은 평면, 배관, 구멍 및 복잡한 부품의 내부 표면제염이 가능하고 발생하는 폐기물양이 적고 비용이 저렴한 장점이 있다. 미국에서는 N-Reactor 및 해체된 Plutonium 시설의 부품에 대한 실증시험을 수행하였는데, 작업시간 1시간에 20 이상의 제염계수를 얻었다. 사용되는 연마제로는 0.25~2.5 mm 크기의 탄소강, 스테인레스강 및 기타 금속구슬 등이 있다.

(12) dry 진공제염

dry 진공제염기술은 미도장 혹은 도장 콘크리트 표면에 형성된 오염입자를 물리적으로 제거하는데 사용될 수 있다. lead-based paint chips, PCB오염입자, asbestos 및 미세한 유해 방사성 물질의 제거에 사

용될 수 있다. 보통 HEPA filter 가 구비된 상용 진공 장치가 사용된다. 제염 후 폐기물은 진공세정용기에 담겨져 후처리 후 처분될 수 있다. 이 기술은 상용으로 이용이 가능하며, 오염 ft^2 당 약 2 \$ 의 비용이 소요되어 매우 경제적이지만 작고 loose입자의 오염에만 적용할 수 있다.

나. 고착성 오염물 제거기술

원자력 시설에서 발생하는 제염·감용화 처리가 곤란한 오염장비 및 금속계 방사성 폐기물을 대상으로 하여 새로운 원리에 근거한 건식제염법이 일본, 미국 등 원자력 선진국에서 연구 개발하고 있다. 이들 제염법은 대상 핵종군별로 대별하여 제염제의 종류 및 물리화학적 특성에 따라 구분되며, 대표적인 기술로는 가스화합물 핵종 제거기술, 반응성 초임계 CO_2 제염기술, 플라즈마 제염기술이 있다.

(1) 가스화합물 제염기술

금속재료 표면에 흡착된 방사성 Co, Mn, Fe, Cr, Ni, Mo, Tc, Ru, Rh 등의 방사화 생성물 및 핵분열 생성물 핵종 일부를 일산화탄소 가스와 반응시켜 휘발성 carbonyl 화합물로 만들어서 오염물로부터 휘발 분리 제거한다[2.1.1]. 한편 핵분열 생성물 핵종의 일부와 U, Np, Pu 등 악티늄족 원소류의 경우는 HF, F_2 , ClF_3 , O_2F_2 등의 불소계 가스와 반응시켜 휘발성 불소 화합물로 하여 오염물로부터 휘발 분리 제거한다. 핵종이 혼합된 복합적인 오염물의 경우는 각각의 처리를 단계적으로 하든지 아니면 CO 가스와 불소 가스의 혼합가스 또는 불화 carbonyl COF_2 등의 기체를 이용하여 처리한다.

이 제염법에 의하면 반응성 가스의 주입과 휘발한 오염원소의 회수 및 농축을 일관한 완전한 건식법이다.

일본의 KAKEN 사에서는 이 기술의 적용성을 평가하기 위해서 Co-60, Ni-63 및 Ru-103을 이용한 모의 실험을 하였다. 시료는 glass, SUS를 이용하였으며, carbonyl화 반응의 압력, 온도, 처리시간, 전처리 등을 검토 하였다.

평가결과 Co-60의 경우는 CO 가스 압력을 1~200 atm으로 변화시킨 결

과(반응온도 350℃, 반응시간 30분), 1~15 atm에서 Co는 거의 휘발하지 않았지만 50 atm에서 40~52%, 200 atm에서 61~69%의 제염율을 얻었다. carbonyl화의 반응온도(CO 200기압, 30분간의 반응)는 250℃ 이상에서 현저하며, 350~400℃에서 60~70%제거되었다. 고온(400~500℃ 이상)에서는 Co carbonyl의 열분해 반응이 동시에 진행되기 때문에 제염율은 다소 낮아진다. 동일 시료를 상온에서 400℃까지 단계적으로 처리한 결과 88~93%의 제염율을 얻었다. Ru-103의 경우는 Co-60에 비해 저온에서 carbonyl화 반응이 진행되어 제염이 용이해져 반응은 비교적 단시간(30분 이내)에 진행되는 것으로 나타났다. Ni-63의 경우 50℃ 에서 제염율은 낮지만 CO 가스 압력 및 온도를 상승시키면 제거율은 향상되어, 350℃, CO 50 atm에서, 98%을 넘는 제거율을 얻을 수 있음을 보였다.

(2) 초임계 CO₂ 제염기술

방사성 핵종의 흡착에 의한 금속 오염물의 경우 오염부위는 금속의 표면 산화층에 의한 경우가 있다. 초임계 CO₂ 제염법은 금속계 방사성 폐기물의 건식처리를 목적으로 금속 표면 산화층을 제거하거나 대상물의 표면을 etching하는 방법에 의해서 제염하는 기술이다[2.1.19].

일반적으로 물질은 고유의 임계온도(Tc)와 임계압력(Pc)을 있으며 그보다 낮은 온도, 압력에서는 기상, 액상, 고상의 상태가 된다. 그러나 온도, 압력을 높여 임계점을 넘으면 한가지 상의 유체가 되어 아무리 가압 압축하여도 액체가 되지 않으며 또한 온도를 상승하여도 기체로 되지 않는다. 이 상태를 초임계 상태라 하며 이 상태의 유체를 초임 유체라 한다. 초임계 유체는 기체와 액체의 중간 성질을 갖고 기체에 유사한 점성과 액체와 비슷한 용해력을 가지며, 확산계수는 기체와 액체의 중간 정도이다

용질의 용해도는 초임계 유체의 밀도에 의존하며 밀도는 온도, 압력에 의해 변화하기 때문에 용질의 용해도는 조절 가능하다. Fig. 2.1.1에 이산화탄소의 압력-온도 그림을 Table 2.1.4에 초임계 유체추출에 이용하는 물질의 임계점을 나타냈다.

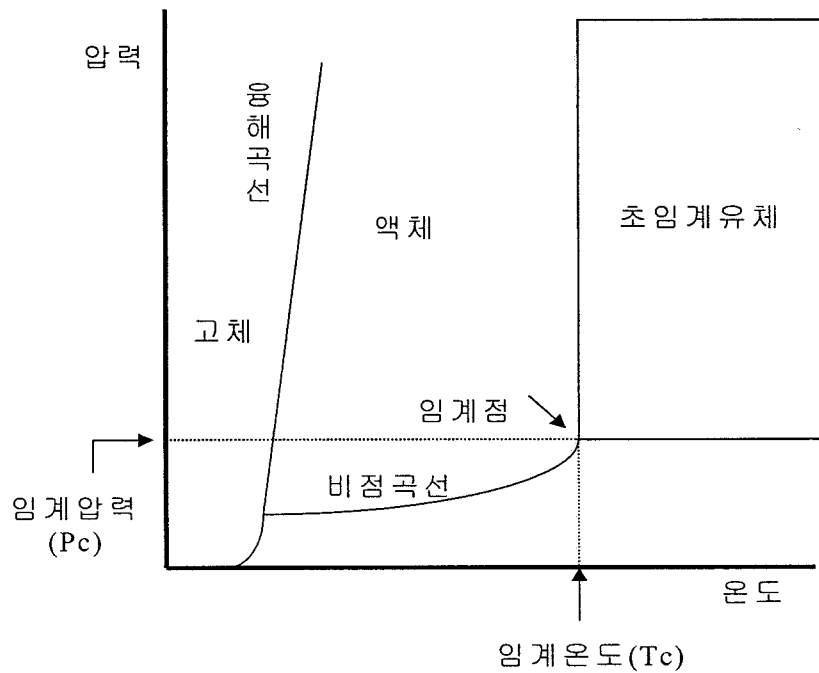


Fig. 2.1.1. Carbon dioxide pressure-temperature diagram.

초임계 유체는 가격이 저렴하고 독성이 없으며 불활성이며, 임계점이 비교적 온화한 조건이라는 등의 이유 때문에 CO₂가 자주 이용되고 있다. 식품공업에서는 CO₂에 의한 곡물에서 식물유의 초임계 유체 추출 등이 이미 실용화 되고 있고, 또한 식품 이외에서의 응용 연구로는 고분자화합물에서의 첨가제 추출, 토양 등의 환경시료 속에서 살충제, 그 이외의 유기계 유해물질의 제거, 수용액에서 금속 이온의 선택적 추출 등이 이루어지고 있다.

Table 2.1.4. Critical point of supercritical fluids.

물 질	T _c /°C	P _c /bar
CH ₄	-82.7	46.0
C ₂ H ₄	9.2	50.4
CO ₂	31.0	73.8
N ₂ O	36.5	72.4
CHClF ₂	96.2	49.7
CH ₃ OH	239.5	80.9
H ₂ O	374.2	221.2

CO₂ 이외의 초임계 유체를 함유하면 추출 분리만이 아니라 초임계 유체의 급속 팽창법에 의한 입자 coating, 촉매 반응용 용매로의 이용, 초임계수에 의한 유기물의 산화분해 등이 이루어지고 그 응용분야는 대단히 넓다.

초임계 유체의 특수한 물성(액체와 같은 용해력, 기체와 같은 침투력)과 화학반응력을 이용하여 방사성 오염물의 제염 기술로 이용된다. 반응성 초임계 CO₂에 의한 금속표면 산화층을 제거하는 원리를 Fig. 2.1.2에 나타낸다. 이 경우 초임계 CO₂는 금속 표면층(산화층/모재 표면)의 용해 반응을 촉진시키는 간단한 매체로, 표면층을 용해시키는 반응성 원소는 물과 공존하는 할로젠(Br₂, I₂ 등의 할로젠 화합물 등)이다. 온도 및 압력을 조절하는 초임계 조건을 변화하는 것에 의해 산화층의 용해 및 모재 표면의 etching 정도를 조절하는 것이 가능하다. 또한 etching하여 반응·용해된 물질은 초임계 유체의 극성을 바꾼 다른 초임계 유체로 세정하여 외부에 배출한다.

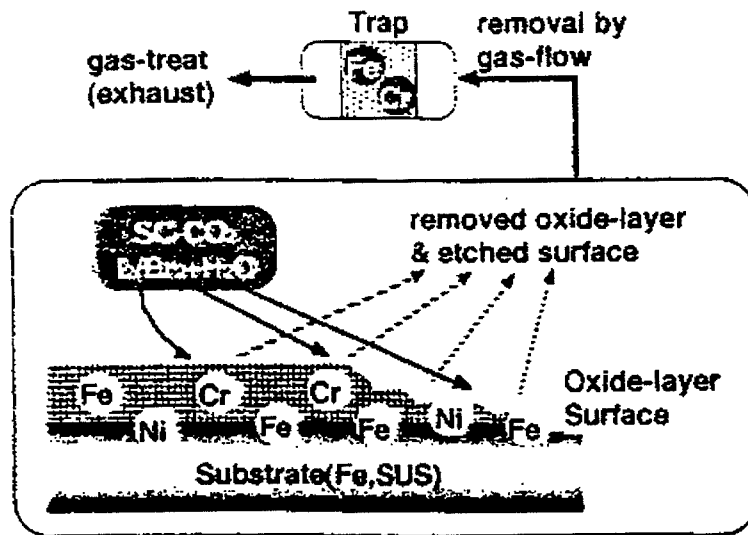


Fig. 2.1.2. Removal of oxide-layer by supercritical CO₂.

일본의 KAKEN 사에서는 초임계 CO₂ 제염법의 적용성을 평가하기 위한 기초실험을 수행하였다. 산화층을 용해시킬 시약은 할로겐(Br₂/ I₂)을 선택하였고, 시료는 대체로 원자력 시설에서 이용되고 있는 SUS 304를 공기 중에서 500도, 700도, 900도로 1시간 가열하여 강제로 산화시킨 것을 이용했다. 산화층 제거에 대한 할로겐의 영향은 Br₂, I₂ 를 비교하면 I₂가 균일하게 산화층을 제거할 수 있었다. Br₂는 반응성이 강하지 않아 국소적으로만 산화층을 제거할 수 밖에 없었다. 또한 초임계 유체의 조건에 대해서는 고온, 고압에서 할수록 산화층을 완전히 제거할 수 있었다. 이들의 연구 결과로부터 초임계유체에 의한 금속 표면에 생성된 표면산화층 뿐만 아니라 Grease나 Oil 등 유기오염물 제염에 매우 유용한 공정으로 평가된다.

(3) 플라즈마 제염기술

플라즈마 처리 공정의 기본 원리는 플라즈마를 이용해 이들 표면 오염 핵종과 휘발성 화합물 생성 반응성이 매우 높은 원소/원자들을 발생시켜 오염원인 방사성 핵종 만을 선택적으로 기화시켜 제거하는 방식이다 [2.1.20]. Co, Fe, Ni, Cr, Mn, Mo, Tc, Ru, Rh와 같은 방사성 부식 생성

물(CP)이나 핵분열 생성물(FP)의 1차측 방사성 오염 제거에는 대개 탄소 화합물(carbonyl compounds)을 형성할 수 있는 혼합 기체 플라즈마를 사용하고 U, Pu와 같은 TRU들의 경우는 불소화합물(fluoric compounds)을 생성하는 기체 플라즈마를 이용한다. 이처럼 플라즈마를 이용한 건식 제염에서는 플라즈마 장치의 설계 및 제작과 함께 어떤 혼합 기체를 어떤 조건, 즉 어떤 공정을 채택하는가 하는 것이 플라즈마 건식 처리 연구의 핵심이다.

이 기술은 아직 연구단계에 있는 기술로서 관련연구 실적에 의하면 오염 금속 시료(SUS)를 불소화 가스(1 torr)로 플라즈마 처리하면 U의 60%가 또는 무독한 CF_4 와 O_2 의 혼합가스(1 torr)로 플라즈마 처리하면 Co-60, U이 각각 30% 및 65%이상이 단시간에 휘발하여 오염금속으로부터 제거되었다. 강고한 금속표면 산화층 내부의 오염의 경우에도 같은 정도의 제염이 가능함을 보였으며, 이 결과 반응성 플라즈마 처리에 의한 안전하고, 실용성 있는 건식제염 기술로의 가능성을 보였다.

또한 플라즈마를 이용하지 않은 상온·상압/감압하에서 건식 제염하는 방법이 연구되었다. 불소화 처리를 위해서는 상온에서 발생기 불소 원자를 방출하는 O_2F_2 , ClF_3 등의 고효율 반응 가스를 제염용 가스로 하여 이용한다. 그러나 이와 같은 고효율 반응 가스는 화학적으로 불안정하고 독성이 높으며 표면 산화층 내부의 심부 오염의 경우 제염효율이 낮다는 문제점이 있어 적용에 제한성이 있으나 고도로 산화된 일반적인 오염물에 적용하는 것은 가능함을 보고하고 있다.

이상의 초임계 CO_2 제염법이나 플라즈마 제염법은 핵연료주기시설 현장을 대상으로 하기보다는 이동이 가능한 폐기물을 대상으로 한 초기의 연구개발 단계에 국한하고 있다. 외국의 연구개발 현황은 다음과 같다.

① 미국의 개발 현황[2.1.21-26]

○ MIT PSFC(Plasma Science & Fusion Center)

- 상압이나 상압근처에서 Electroless Plasma Torch를 이용하여 다양한 폐기물의 Thermal Destruction에 사용하고 있으며, 또한 2.45GHz Micro-wave(4kW) Plasma Torch를 이용하여 Thermal Treatment에 응용하고 있다.

- UCLA/LANL(Los Alamos National Lab.)
 - 상업에서 Plasma jet(APPJ, 13.56MHz)을 이용하여 주로 TRU 핵종과 저준위 방사성 폐기물(LLW)의 제염을 수행하였으며 이때 feed gas로는 CF₄/O₂/He을 사용하였다. 또한 보다 더 적은 비용으로 방사성 폐기물의 제염이나 weapon-site에의 응용을 위해 고출력의 APPJ를 설계 중에 있다.
- Westinghouse
 - Marc-3 system으로 명명된 Plasma torch(50~300kW)를 이용하여 주로 commercial ash vitrification과 LLW 처리에 이용하고 있으며, 상업용으로서의 보다 큰 내구력이 있는 600~2,500kW 급을 판매하고 있다.
- SAIC(Science Application International Corp.)/Retech
 - Plasma Arc Torch를 이용하여 pilot-scale(3~4 barrels of waste/hr)의 Plasma Hearth Process(PHP) 장비를 제작하여 mixed waste와 토양제염을 시연/실증하였다. 또한 장치를 보완하여 MWIP(Mixed Waste Integrated Program)에 의해 FY94를 지을 계획이다.

시연은 성공적이었으며 mixed metal(ductile iron, cast iron, steel, aluminum, copper, and brass), metal oxide sludge, combustible solids와 sludge에 대해 130~550 lbs/hr 정도를 처리하였으며 유기물의 경우 99.99%의 effective destruction을 보였다.
- ORNL(Oak Ridge National Lab.)
 - Micro-wave Plasma Torch(2.45GHz)를 100 Torr 정도에서 oil surface cleaning과 작업장의 제염에 사용하였으며, Closed-loop Plasma cleaning system을 이용하여 U, Pu, 그리고 Hg등을 함유한 유해물의 제염에 응용하고 있다. 또한 reactive oxygen plasma를 이용할 경우 표면제염에 아주 효과적이었다.
- Phoenix Solutions Co.
 - 100~1,500kW의 Plasma Arc Torch를 이용하여 중저준위 방사성 폐기물(LLW)의 감축(reduction), 도시쓰레기의 비산재(fly-ash)의 유리

화, 그리고 금속폐기물(metal scrap)의 용융에 이용하고 있다. 또한 300kW급의 plasma torch를 설계 제작하여 일본의 Kobe Steel/Kansai Electric에 Waste Processing System으로 공급하였다.

○ Retech Inc.

- Plasma Centrifugal Furnace(1 MW)에 의한 유해 폐기물의 처리 및 오염 토양의 제염에 이용하고 있으며, 처리용량이 시간당 1톤 정도의 Plasma Furnace(500~750kW)를 MGC plasma, Muttenez 및 스위스에 공급하여 고체 및 액체 유해 폐기물의 처리에 이용되고 있다.

○ PEC(Plasma Energy Corp.)

- 1 MW 수냉각 이송형 플라즈마 토치를 이용한 혼합 폐기물(mixed waste)의 유리화 및 열분해(pyrolysis) 공정에 응용하고 있다. 이 장비는 폐기물의 처리용량이 대략 시간당 1톤 정도이며, 또한 Plasma를 이용하여 매립장의 부지를 정화하기 위한 PRISM(Plasma Remediation of In-Situ Materials) 공정을 개발 진행중이며, 실험결과 매립지 폐기물의 체적이 약 25%정도 감소한다고 밝혔다.

○ PEAT(Plasma Energy Applied Technologies)

- 150 kW의 비이송식 Plasma Torch를 이용하여 유기 및 무기 폐기물의 처리를 하고있으며, TDR(Thermal Destruction and Recovery) 체계를 개발하여 운용 중에 있다. 또한 플라즈마 토치를 이용한 병원고체폐기물 및 slag 처리는 물론 운송이 가능한 플라즈마 열분해 시스템(Transportable Plasma Energy Pyrolysis System)인 TDR500 system의 설계 및 제작을 하였다.

○ SCE&G(A SCANA. COMPANY)

- DC Plasma Arc Torch를 이용하여 고체 폐기물과 비산재에 대해 열분해 및 유리화 처리를 하고 있다.

○ LLNL(Lawrence Livermore National Lab.)

- 20kW의 RF Plasma Torch를 제작해서 연구를 수행중이며, Plasma Torch를 이용하여 방사성 폐기물, 고체폐기물, 그리고 혼합폐기물의 유리화하는 처리공정을 개발하고 있다. 또한 50kW의 새로운 design의 RF Plasma Torch를 계획중이다.

- GTRI(Georgia Tech Research Institute)
 - 100 kW와 240 kW의 2개의 Plasma Torch를 이용한 폐기물의 처리에 연구를 수행하고 있으며, 현재는 폐기물의 유리화, PRISM(Plasma Remediation of In-Situ Materials), 그리고 ISLR(In-Situ Landfill Remediation)의 연구를 추진중이다.
- ANL(Argonne National Lab.)
 - Bench-scale 정도의 PHP(Plasma Hearth Processes)를 이용하여 LLW와 TRU 폐기물의 유리화를 통한 제염을 개발하였으며, 좀 더 큰 규모의 Field-scale Unit(55 gallon drums/hr)를 계획하고 있다.
- ② 캐나다의 개발 현황[2.1.27-28]
 - McGill 대학
 - 40 kW transferred 아크 용융로를 이용하여 유리화를 수행중이다.
 - Sherbroke 대학 (CRTP)
 - RF inductive coupled plasma torch와 transferred arc 용융로를 이용한 유해 화학 폐기물 처리하고 있다.
 - RCL(Resorption Canada Ltd.)
 - 플라즈마 가스화(gasification)는 플라즈마 발생열을 이용해 폐기물을 안전하게 처리함과 동시에 유용한 자원을 회수하고자 하는 방법이다. 이공정의 부산물로는 가연성 기체(CO, H)와 슬래그가 배출되는데 가연성 기체는 연료가스로 이용되고 슬래그는 잡석이나 건축재료로 사용이 가능하다. 또한 이 회사에서는 150kW의 비이송식 PEC사의 플라즈마 토치를 사용하고 있다.
- ③ 프랑스의 개발 현황[2.1.29]
 - EDF(Electricite de France)/CNIM
 - EDF와 CNIM은 600kg/h의 병원고체 폐기물(HSW)을 처리하기 위해 2MW 용량의 Plasma Torch를 이용하고 있다. 또한 연간 20,000톤의 병원고체 폐기물(HSW)을 처리하기 위해 plasma 시설을 포함한 사용 가능한 설비를 만들고 있다.
 - Limoges 대학 + COGEMA
 - 열분해 가스의 산소 플라즈마에 의한 연소와 소각재를 유리화하고 있다.

○ Europlasma

- Plasma Torch를 이용하여 MSW 처리를 유리화하는 공정을 이용하고 있으며, BORDEAUX-FRANCE 설비는 기존 소각 설비에 유리화 설비를 추가시킨 통합설비이다. 이 장치를 통해 도시고체폐기물은 일일 400톤, 하수슬러지(Sewage Sludge)는 60톤, 그리고 비산재(Fly Ash)는 10톤정도를 처리하고있으며, 이 설비를 통해 인근 12,000여 가구에 전기와 열을 공급하고 있다. 또한 BORDEAUX Metropolitan Community와 함께 VIVALDI(Vitrification and Various Valorisation of the end-product)라는 과제를 수행하고 있다.

④ 일본의 개발 현황[2.1.20, 30]

○ Kobe Steel

- PEC사의 플라즈마 용융설비(PT-200: 비이송식 토치)를 이용한 저준위 방사성 폐기물(LLRW) 드럼 처리를 위한 실증실험을 수행한 바 있다.

○ 전력중앙연구소

- 100 kW급 플라즈마 토치를 이용하여 저준위 방사성 폐기물 처리 응용 기술을 개발 중에 있다.

○ Diado 발전소

- 300 kW transferred arc 용융로를 이용하여 용융 고화 처리를 수행 중이다.

○ 동경공업대학 (Tokyo Institute of Technology)

- Plasma Torch(2.1kW)를 이용한 방사성 제염 연구를 수행하고 있다.

○ Kaken Co.

- micro-wave heated plasma torch 이용 표면성 제염 처리를 수행하고 있다.

○ TEC(Toyo Engineering Corp.)

- 이 회사는 미국의 Retech사에 의해 개발된 Plasma Centrifugal Furnace 장비를 이용하여 방사성 폐기물의 처리에 사용하고 있다.

⑤ 독일의 개발 현황

○ Mannesmann Demag/Krupp Mak

- Krupp사의 교류 플라즈마 토치 이용하여 도시폐기물의 처리 및 비산재의 처리를 하고 있다. 처리 결과로는 1톤의 비산재를 처리할 경우 700kg의 용융 슬래그, 250kg의 응축 휘발성 중금속과 염, 그리고 50kg의 미세분진이 나왔다. 현재 Mannesmann Demag+MGC Plasma AG사와 함께 방사성 폐기물 처리를 위한 PLASMOX 시스템 개발 중에 있다.

⑥ 스웨덴의 개발 현황

○ ScanArc(Plasma Technologies AB)

- 이회사는 100kW~10MW에 이르는 Plasma Torch System을 이용해 도시고체 폐기물의 가스화를 통해 연료가스를 생산하거나 다양한 폐기물로부터 회수되는 연료(Refuse Derived Fuels, RDF)를 생산하기 위해 플라즈마 폐기물 처리 공정을 개발하고 있다.

다. 잔류방사능 평가 기술

잔류방사능 평가기술에 관하여 미국의 NRC나 EPA에서는 자국의 고방사능 설비 및 주변부지 제염 시에 필요한 잔류방사능 평가 모델과 그에 따른 여러 가지 인자들을 도출하고 자국의 실정에 맞는 방사선 피폭 평가 방법론을 발전시켜 왔다. 또한 여러 가지 방사선 방어에 관련해서 ICRP에서는 1995년 새로운 방사선 방어 개념인 ICRP Publication 68을 발표했다. 그러므로 이전에 사용되어져 왔던 여러 가지 평가모델들이나 피폭평가를 위해 필요한 선량환산 인자계수들의 개정 작업이 진행되어졌다. 또한 고방사능 시설에 대한 방사선헌종 허용오염 잔류농도 기준에 대해 ICRP에서는 재활용기준, 즉 방사성물질을 환경으로 방출할 때 규제제외 및 규제면제에 관한 사고방식 및 원칙 등을 권고하고 구체적인 수치를 제시하지 않았지만 미국, 캐나다, 스웨덴, 프랑스 등은 단위표면면적당 혹은 단위그램당 최대 허용오염 잔류농도를 규정하고 있다. 또한 잔류방사선헌종 농도를 평가하기 위해 지금까지는 주로 Deterministic 모델을 개발하여 왔으나 최근 미국의 버클리 대학을 중심으로 현재 Stochastic 모

델을 개발하고 있다. 방사능 오염부지 및 고방사능 설비를 위한 잔류 최대 허용농도를 계산을 위해 사용할 수 있는 Code는 US DOE에서 개발한 RESRAD와 US NRC에서 개발한 D&D이다. 완성도나 코드운영 시 발생하는 문제에 대한 지원 등이 RESRAD가 유리하다.

3. 국내의 연구개발 현황

국내의 제염기술 개발은 1982년 과기처 특정과제로 중앙집중 원격제염 기술 개발연구를 시작하면서부터 비롯되었으며, 기초연구와 현장 제염장비 개발을 병행하여 수행되었다. 기초 제염연구로 초음파제염, 고압수제염, 고농도 화학제염 등에 대한 기초실험을 통해 제염에 영향을 주는 인자들에 대한 정량적 특성을 파악하는데 주력하였다.

1984년부터 원전 일차계통을 대상으로 저농도 화학제염기술 개발을 착수하였다. 이때 고리 1호기는 일차계통의 방사선준위가 매우 높아 유지보수의 어려움을 겪고 있었으므로 제염의 필요성이 대두되어 1984년 해외의 기술로 증기발생기 수실의 제염이 수행되었다. 그러나 이 기술은 당시 세계적으로도 기술실증 초기단계에 있었고 불충분한 사전준비 등으로 제염은 성공적이지 못하였다. 이에 따라 국내 기술개발의 필요성이 커지게 되었으며, 당시 해외의 제염기술로는 캐나다의 AECL이 개발한 CAN DECON 제염법이 호평을 받고 있었고, 영국의 CEGB에서 LOMI 제염법이 개발된 상태였다.

이러한 해외의 기술정보를 토대로 원자력연구소에서는 제염기술 확보에 주력하여 1987년 KAERI 제염공정을 개발하였고, 1988년에 파일럿규모 증기발생기 수실 화학제염장치를 제작하여 cold 기술 실증을 완료하였다. 또한 1989년부터는 원자력발전소에서 인출한 방사성 오염시편 (PZR notch ball 및 Inconel 600 증기발생기 세관) 및 사용후핵연료봉을 대상으로 hot 실증시험을 완료함으로써 원전에 기술을 실용화시키는데 한 발 다가서게 되었다.

1992년부터 1995년까지는 제염성능이 우수하고 이차폐기물 발생량을 크게 감축시킬 수 있는 재생성 LOMI 제염기술에 대한 연구개발이 진행되었

으며, 파일럿규모 장치개발 및 2개의 사용후핵연료 수송용기 (KSC-4)를 대상으로 발전소 현장에서 hot 실증을 완료하였다. 이 기술의 개발로 기존의 화학 제염기술이 안고 있었던 제염 후 이차 폐액 발생 문제를 한층 완화시킴으로서 기술의 활용성을 크게 증대시킨 것으로 평가되고 있다.

1997년부터 1998년까지는 국내 핵주기시설의 제염, 보수 및 해체와 관련된 기술을 확보하기 위한 일환으로 이미 운전을 종료하여 폐로 계획이 진행되고 있는 연구로 1호기 (250 kW, TRIGA Mark-II) 및 연구로 2호기 (2 MW, TRIGA Mark-III)를 이용하여 제염과 해체에 관련한 기술개발 및 기술실증을 목적으로 TRIGA 연구로 냉각계통 및 콘크리트 제염기술 개발 연구가 수행되었다. 이와 함께 동 기간 동안에 TRIGA 등 국내 원자력시설의 해체 및 유지보수 시에 발생하는 방사성 금속폐기물의 처분 부피의 감축과 빈약한 국내 부존자원의 활용을 극대화 할 목적으로 금속폐기물을 재활용하는 핵심 기술의 현황분석 및 재활용 공정으로 전기화학적 표면제염 기술개발 연구가 수행되었다. 금속폐기물을 재활용하는 기술은 원자력시설의 해체가 시작되면서 발생하는 방대한 양의 방사성 금속폐기물의 관리 문제가 중요한 현안으로 대두되고 있어서 OECD/NEA을 구성하는 원자력 선진국에서도 공동으로 개발하고 있는 중요 기술 중 하나이다.

1999년부터 2000년까지는 사용후핵연료 건식처리(DUPIC, 사용후핵연료 차세대관리, 장수명핵종전환, 사용후핵연료시험/검사)시설로부터 발생하는 고방사능 사용후핵연료 분진으로 오염되는 장치 및 설비의 고방사능 건식제염기술을 개발하기 위한 연구를 수행하였다. 주요 연구내용은 다음과 같다.

- 제염대상 설비별 오염특성 및 건식제염 단위기술 적용성 평가
 - 고방사능 건식 제염기술의 선정과 기술개발 방향을 설정하기 위해 제염 연구 대상인 국내 후행핵연료주기 연구개발 공정(DUPIC, 사용후핵연료 차세대관리 공정, 장수명 핵종변환, 조사후 시험시설)의 특성을 조사하고, 발생 오염물을 예측하여, 오염설비의 분류 및 특성을 분석하였음.
 - 고방사능 연구시설에서 발생하는 제염대상 오염물을 오염정도, 형상 및 제염의 난이도를 고려하여 분류하고, 분류된 각각의 제염대상물에 대하여 제염기술의 요건을 파악한 후 적용 가능한 건식 제염기술

- 을 비교 평가하여 최적 기술을 선정하였음.
- 잔류방사능 평가 방법론 개발
 - 연구소내 고방사능시설물에 오염된 방사성 핵종 종류 및 오염특성을 분석하고, 고방사능설비 구조물내로 방사성핵종의 확산을 해석할 수 있는 수학적모델을 개발했으며, 또한 고방사능설비 표면에 남아 있는 잔류방사능 표면방사선량 평가기술을 파악함.
- 건식제염 단위기술 성능평가
 - PFC/초음파 결합공정에 의한 제염 대상별 성능평가 및 조건을 도출하고 PFC회수 및 오염입자 제거기술을 확립함.
 - 실증 시험규모의 건식 CO₂ Pellet 분사제염장치 설계 제작하여 공정 매개변수와 장치설계인자 변화에 의한 제염특성 파악하였음.
 - QMS/QES를 이용한 플라즈마 제염을 진단 및 정량 분석하였으며, 특성 기초 실험용 토치를 설계(2.45GHz, Microwave Plasma)하였음.
- 제염대상 시설의 건식제염 공정 장치 설계 방향 설정 연구
 - 국내 Hot Cell에서 발생하는 고방사성 오염물(폐기물 포함)의 재사용 및 폐기물저준위화 목적의 이송제염과 Hot Cell의 보수 또는 내부설비 개조를 위한 현장제염으로 구성되는 제염공정 장치의 개념설계 방향을 정립하였음.

4. 기술개발 조사사례에 대한 평가

본 연구에서 수행한 고방사능 건식제염기술은 국내에서 독창적으로 개발하고 있는 사용후핵연료 건식처리공정에서 Hot Particulate로 오염되어 다량으로 발생하는 고방사능 오염 시설/장비의 재활용 및 폐기물의 저준위화를 위한 기술개발로 해외 선진국에서도 보유하지 않은 기술이다.

국내의 DUPIC/SF 차세대관리 공정개발 등 사용후핵연료 건식처리공정에서부터 발생하는 알파폐기물은 해외의 TRU 폐기물과는 매우 상이하며, 이에 따라 건식처리취급 오염설비의 특성과 오염설비에 따른 제염기술 및 제염요건을 파악하고, 이에 근거한 적용가능한 고방사능 건식제염 단위기술으로써 PFC제염, CO₂ 제염, 플라즈마 제염기술을 선정하여 이기술의 적용성을 평가하였다.

해외에서의 건식 제염기술은 이차폐기물 발생문제를 획기적으로 개선할 수 있는 공정으로 현재 프레온을 사용하는 제염공정은 상용화되어 방사성 폐기물 뿐만 아니라 오염시설의 제염에도 널리 사용되고 있다. 그러나 프레온 제염 공정은 프레온 자체에 포함된 염소의 환경파괴 문제로 인하여 최근 사용에 제한을 받게 되었으며, 대체 공정으로 환경친화적인 PFC 공정이 개발되어 실험실적 실증 단계에 있다. 이들의 연구는 주로 저준위 방사성 핵종으로 오염된 전자장비 표면 및 그 부품이 적용대상이었으나, 국내 특유의 건식 재활용 폐기물의 제염 처리에 PFC 공정의 적용시에는 적용대상 폐기물의 특성이 차이가 있기 때문에 이를 고려한 기술개발이 수행되었다.

본 PFC제염공정 연구에서는 6가지 다른 종류의 제염설비를 대상으로 하여 제염성능을 평가하였으며, 이로부터 제염성능 목표치(재활용, 피폭저감화, 저준위폐기물화)에 달성할 수 있음을 확인하였고 이 조건을 만족할 수 있는 기본설계 데이터와 조업조건을 도출하였다.

CO₂ snow 분사제염기술 연구를 통해서는 제염대상 표면 전체에 걸쳐 제염효과를 균일하게 하고 제염대상 표면에 CO₂가 응결되는 것을 방지하여 외국의 연구결과와 비교하면 제염효과를 2 - 2.5배 증진시킬 수 있는 장치를 개발하였으며 비고착성 오염입자의 제거조건을 확립하였다. CO₂ pellet 분사제염기술 연구를 통해서는 CO₂ pellet extruder와 분사장치를 자체 설계제작하여 장치설계 시 필요한 설계인자를 파악하였다.

국내 실정에 적합한 플라즈마 제염 방식으로는 이미 선진국에서도 연구수행 중인, 넓은 시설의 제염이 가능하고 작업자 피폭 시간을 줄이기 위해 빠르고 매우 높은 제염 효율을 가지면서도 원격제염이 가능한 상압에서 사용이 가능한 플라즈마 제염 방식인 플라즈마 토치 방식을 선정하였다. 이 제염 방식은 높은 온도에 의한 오염 핵종의 vaporization에 따른 직접적인 제염 효과뿐만 아니라 화학 반응율의 증가로 인해 표면에 얇게 형성될 것으로 예상되는 산화막의 제거는 물론 표면 일부의 식각 효과까지 갖는 장점이 있어 적용성이 우수한 기술로 평가되었다. 본 연구에서 수행된 플라즈마 제염기술 개발에서는 오염 핵종별(CP, FP, TRU)로 조업 조건변화에 대한 제염실험으로 최적 제염 공정을 도출하였으며, 현장에의

활용 가능한 기술 및 공정을 확보하기 위한 공정 장치의 개념 개발을 위해 공정 확보 및 기초 실험용 토치의 설계를 완료하므로서, 이에 대한 기초 기반 기술을 확보하였다.

방사선 방어와 관련해서 1995년 새로운 방사선 방어 개념인 ICRP 68을 발표했다. 미국, 캐나다, 스웨덴, 프랑스 등에서의 단위표면적당 혹은 단위그램당 최대 허용오염 잔류농도 기준은 1990년에 발표된 ICRP 60에 근거하고 있다. 그러나 본 연구에서는 ICRP 68과 같이 ICRP 60 권고 이후에 새롭게 개정된 환산인자를 사용하여 새로운 최대허용 잔류농도를 도출하였다. 재활용 시나리오는 국내의 고방사능 시설 특성 따라 기존에 외국에서 사용한 여러 가지 가정을 도입하여 시나리오를 결정하였으며, 피폭경로에 따른 평가 모델링을 위해 외국에서 개발된 방사선피폭선량을 계산하기 위한 많은 모델을 비교 분석하여 고방사능 시설 방사능 방출 특성에 적합한 피폭경로를 파악하여 좀더 정확한 피폭선량을 예측할 수 있는 모델을 개발하였다. 또한, 잔류방사성핵종 농도를 평가하기 위해 국내의 고방사능 시설 특성에 적합한 Stochastic 모델을 개발하고, 국내 고방사능 시설 주변부지를 해석할 수 있는 비포화대 해석기술을 개발하였다. 그리고 고방사능 시설 주변부지를 제염한 후의 잔류방사성 핵종농도를 평가하기 위해 비 평형흡착반응 모델을 개발하였다.

고방사능 오염물의 건식제염을 위한 제염요건과 설비개념, 단위공정의 적용성 평가 결과를 토대로 고방사성오염물(폐기물 포함)의 재사용 및 폐기물 저준위화 목적의 이송제염과 IMEF(DUPIC, SF차세대관리 포함)와 PIEF 핫셀의 보수 또는 내부설비 개조를 위한 현장제염을 위한 공정장치 개념설계 방향을 정립하하므으로써 사용후 핵연료 건식처리 연구개발에 공통적으로 필요한 고방사능 건식제염의 기본기술을 자체적으로 확보한 상태이다.

제 2 절 토양제염 기술

1. 서문

급격한 산업의 발달과 함께 발생하는 부산물에 의해 토양은 다양한 오염물로 오염된다. 전통적인 토양오염원 이었던 휴-폐광산 지역 외에 공장, 산업지역, 폐기물 매립지, 지하 저장시설 등 토양오염지역이 점차 확산되어 가고 있다. 우리나라 보다 앞서 토양 오염으로 인한 피해를 경험한 선진국의 경우, 폐기물의 매립이나 광산 배출물의 부적절한 관리로 야기된 토양부지 복원을 위해 막대한 예산을 투자하고 있다. 우리나라도 1995년 토양환경보전법이 제정되면서 토양오염의 복원에 대한 규제가 강화되어 가는 중에 있다. 그러나, 방사성 오염토양은 원자력 발전소 혹은 방사능 취급시설의 노후화 및 해체 계획에 따라 최근에야 제염에 대한 중요성이 대두되고 있다.

토양은 물, 공기와 함께 가장 기본적인 환경의 구성 요소이다. 이러한 토양은 생물존재의 기반으로서 그리고 물질순환의 매체로서 매우 중요하고 다양한 역할을 수행하고 있다. 토양이 물이나 공기와 크게 다른 점은 유동성이 거의 없다는 것이다. 토양 속으로 유입된 오염물질은 스스로 유동성을 가지지 않는 한 토양 공극 내에 존재하는 토양 수나 토양 공기에 의하지 않고는 거의 움직일 수 없는 특징을 가진다. 그 결과 폐기물 등과 같은 오염물질이 토양 내에 묻히게 되면 쉽게 드러나지 않고 마치 청정한 환경인 것 같이 보이게 된다. 그러나, 토양이 일단 유해물질에 의해 오염되면 생물 존재 기반으로서의 본래 기능이 훼손되고, 물질의 이동성이 나빠 장기간에 걸쳐 작물 오염 및 지하수 등의 환경 오염을 유발시켜 생태계는 물론 사람의 건강 및 생활환경에 악영향을 끼치게 된다. 또한 한번 오염된 토양은 그 특성상 자정작용이 어렵고 정화에 많은 시간과 비용이 수반된다.

2. 해외의 연구개발 현황

오염토양 제염기술은 크게 방사성 핵종 혹은 중금속으로 오염된 토양에 적용시키는 제염기술과, 유기물로 오염된 토양에 적용시키는 제염기술로

분류할 수 있다. 유기물로 오염된 토양에 대해서는 다양한 제염 기술이 개발되어 있다. 중금속으로 오염된 부지 자체를 제염하는 방법은 상용화 되어있으나 방사성 핵종으로 오염된 부지를 현장에서 직접 정화하는 제염 기술은 개발 중에 있다. 가열에 의한 현장 토양 고정화기술은 고정화(vitrification) 중 발생한 폭발사고로 미국에서도 개발이 주춤한 상태이다. 가장 안전하고 근본적인 방법은 토양을 수거하여 안전하게 제염하는 것인데 단위 제염기술을 따로 적용하거나 두 가지 이상의 기술을 병행하여 적용한다.

네덜란드의 경우, 토양 오염의 심각성을 처음 깨달은 것은 1980년으로 화학폐기물로 오염된 지역에 Lekkerkerk라는 작은 도시를 건설하면서 시작되었다. 그 후 전국적인 조사를 실시한 결과 350지역이 심각하게 오염된 것으로 나타났다. 20년이 지난 오늘날, 전국적으로 350개가 아닌 100,000개 지역 이상이 오염된 것으로 추산되고 있으며, 이제 토양오염은 거대한 환경문제의 하나로 인식하는 계기가 되었다. 따라서, 네덜란드에서는 동 전기적 방법을 사용하여 오염 토양을 현장에서 제염하는 기술이 개발·상용화되었다.

영국에서는 UKAEA, BNFL 등을 중심으로 방사능에 오염된 토양을 제염하는 기술을 개발하고 있다. 방사성 핵종과 착화물을 형성하여 침출시키는 미생물을 개발하는 단계이며 동전기적 방법으로 토양을 제염시키는 방법에 대한 연구를 수행하였다.

일본의 경우, 오야바야시조와 마쓰모토 도쿄대학 교수는 1997년 유해한 중금속으로 오염된 토양을 동전기적 방법으로 정화하는 기술을 개발하였다고 보고하였다. 제염 방법은 토양에 전극을 꽂아 전류를 흘려 토양 속의 중금속 이온을 끌어서 회수, 제거하는 것이다. 고농도의 6가 크롬으로 오염된 토양을 대상으로 2년 동안 계속 전류를 흘린 결과 유효성을 실증하였는데 정화시스템은 토양 중에 양극으로서 탄소봉을 음극으로서 철봉을 꽂아 넣고 양극 사이에 60 V의 전압을 걸어 주었다. 양극은 음전하를 띄고 있는 중금속 이온을 전극으로 전위차를 이용하여, 전극 주위에 설치한 회수 용기 내로 용출시킨다. 그러나, 해결되어야 할 문제점 때문에 비교적 간단한 시스템에 적용할 계획으로 알려져 있다.

미국에서는 일반 산업 폐기물에 의해 오염되었을 경우, 토양오염의 정밀 조사, 오염부지 평가 및 복원은 EPA가 인가한 전문업체에서 수행하고 있다. 그리고, 석유, 화학원료 물질, 지하저장탱크의 과세로부터 1994년 약 140억 달러의 superfund 기금을 확보하여 정화의 시급성이나 오염원인자 규명이 지연될 경우 superfund로 지출하고 책임자에게 복원기금을 징수하고 있는 상황은 잘 알려져 있다.

또한, 제 2 차 세계 대전(1940년대) 및 냉전 기간중(1950 - 1980년대 말)의 50 년간 핵무기를 개발, 제조(폭탄 수만개) 하였다. 핵무기 제조를 위해 광산으로부터 우라늄 채취, 분쇄, 농축, 핵연료 제조, 원자로로 핵연료 조사하여 플루토늄으로 변환, 변환 시 생성된 핵분열 생성물 분리, 핵탄두에 플루토늄 장착, 핵 폭탄 조립 및 유지, 핵무기 성능실험과 같은 일련의 과정과 이를 위한 시설들(nuclear weapons complex)이 필요하며 각 단계마다 고/중, 저 준위 방사성 폐기물 혹은 유해 폐액이 발생되었다. 1989 년 기준, 30개 이상 주에서 130 여개 site 들이 오염되었다. 주요 오염지역으로는 Hanford Site(원자로, Purex 및 건물, 오염지역, 지하수), Savannah River site(협곡, 원자로, 지하수), Idaho National Laboratory(폐기물 저장소, 폐기물 저장지역, 화학처리 공장) 및 Rocky flats plants(hillside, pond) 등이 있다. 핵무기 제조 시 발생하는 핵심 물질로서 고 농축 우라늄, 플루토늄, 삼중수소가 있으며, 우라늄 농축 시 발생하는 물질은 polychlorinated bipheyls(PCBs)와 중금속외 독성물질이다. 또한, 핵연료 제조 시 발생된 오염 물질로 방사능을 함유한 우라늄 분진, 화학제, 오염 건물이 있다. 그리고, 원자로 조사시 발생하는 오염 물질로 우라늄, 플루토늄, 사용 후 핵연료(원자로 용), 오염 건물이 있으며 화학적 분리 시 발생하는 물질로 고 준위 방사능을 함유한 유해 화합물(이들 중 일부는 땅에 그대로 투기하였음)이 있는데 방사성 핵종들 중 일부는 수 만년동안 방사능을 함유한다. 핵무기 부속품 제조 시 발생된 물질로 플루토늄 및 초 우라늄 족 원소들을 함유한 방사성 폐기물이 있으며, 핵무기 조립 및 유지 시 발생하는 물질로 폭발성이 강한 폐기물, 핵연료, 기름, 용매의 누출로 인한 토양 오염이 있다. 연구 개발 및 핵폭발 실험 시 발생된 물질은 지하에 심하게 오염된 분화구 및 토양, 저 준위

방사능으로 오염된 파편들, 폭발성이 강한 성분 및 화학제들이 있다.

비키니 산호섬 등과 같이 소규모로 오염된 지역에 대한 cleanup은 완료 상태에 있으나 네바다 site, Hanford site 등에 대해서는 cleanup 초기 단계라고 판단된다. 특히, 프랑스 SGN 은 1996년 8월 미국의 Flour Daniel 사 등과 향후 5년간 Hanford site를 cleanup 할 계약을 체결하였으며 cleanup 비용은 50억 US\$로 추정하고 있다. 미국 전체 오염지역의 cleanup 및 감시를 위한 소요 비용과 활동은 1995년을 기준으로 할 때 75년 동안이므로 환경복구 기간이 완료되는 시점은 2070년으로 예측된다.

오염지역 cleanup 비용은 복구 후 부지를 어떠한 목적으로 사용(오염 준위를 자연 방사능 이하로 할 것인지 혹은 자연 방사능 이상으로 할 것인지에 따라 방사성 폐기물량의 부피, 처리, 처분 비용에 차이가 발생)할 것인지에 따라 크게 변화될 수 있으며, 연간 허용피폭량을 75 - 100 밀리렘으로 가정할 경우, 75년 동안 소요되는 환경 복구 비용은 인플레이션을 감안하여 1700 억 - 3300 억 US \$ 사이로 보고되고 있다. 미국법은 오염지역 발생자가 오염지역을 cleanup 하도록 되어있다.

미국 핵 시설 site cleanup 비용은 DOE 가 의회의 승인을 얻음으로 예산을 확보하고 cleanup 기술을 개발, 실증 중에 있는 국립연구소와 계약 형식으로 예산을 집행하는 것으로 판단된다. 국립연구소는 일반회사에 개발된 cleanup 기술을 팔거나 위탁용역 형식으로 오염된 부지를 cleanup 시킨다. 그리고, ANL, Oak Ridge National Lab., Sandia National Lab., PNNL, Los Alamos 등의 국립연구소에서 방사능 오염 토양 제염기술을 개발 중에 있으며 Oak Ridge National Lab.은 1996년 테네시주의 오염부지 (K-25 site)에서 파일럿 규모의 제염기술 실증을 러시아와 공동으로 수행하였으며, 1997년에는 현장 제염실증을 수행하였다.

미국 DOE 에서 토양 제염과 관련하여 단위 기술별 기술개발 현황, 유용성, 발생폐기물의 양, 처리 장치, 휘발성 유기물 및 반 휘발성 유기물에 대한 제염 성능, 무기물에 대한 제염 성능, 소요되는 재료의 양, 폭발성, 시스템 효율 및 유지성, 제염 시간, 전체 비용들에 대한 가중치를 적용하여 비교한 데이터를 제시하였는데 제시된 기술 토양 및 부지 제염과 관련한 내용을 아래에 기술하고자 한다.

가. 토양 세척(soil washing)

1) 정의 및 개요[2.2.1]

토양 세척법은 오염된 토양을 현장에서부터 분리하여 입도 별로 분류한 후 미세 토양에 흡착된 오염물들을 수용액 내에서 제거하는 방법이다. 세척수에는 침출제, 표면활성제, pH 조절용액 및 착화제가 오염물의 제거를 위해 첨가된다.

본 공정에서는 오염물을 토양으로부터 다음 방법으로 제거한다.

- 세척액 내에 오염물을 용해시키거나 부유 시킨다
- 입도 분리, 중력 분리 및 마모성 닦아냄(attrition scrubbing, 모래나 자갈류에 적용하는 방법과 유사) 과 같은 일련의 공정을 적용시켜 오염 물질을 보다 작은 부피의 토양에 농축시킨다.

토양 세척법은 다양한 종류의 중금속, 방사성 핵종, 유기화합물로 오염된 토양에 적용시킬 수 있는 확실한 방법중 하나이지만 미국에서 본 공정을 상용화한 회사는 아직 많지 않다.

입도 분리에 의한 토양 제염의 개념은 대부분의 유기/무기 오염물들이 물리화학적으로 점토, 실트 및 유기 토양 입자와 결합한다는 사실에 근거한다. 바꾸어 말하면, 실트나 점토가 모래 혹은 자갈 입자 표면에 물리적 인력에 의해 붙어있다는 것이다. 중력 분리법은 납, 라듐산화물 등과 같이 중금속을 함유한 화합물들 비중 차에 의해 분리하는데 효과적이다. 마모성 닦아냄 법은 굵은 입자에 막의 형태로 접착된 오염물을 제거한다. 그러나, 이 방법은 토양 내 미세 입자의 양을 증가시킨다. 제염된 큰 입자들은 오염되었던 부지에로 다시 방출될 수 있다.

복잡한 형태로 오염된 토양(금속, 비휘발성 유기물 및 반 휘발성 무기물이 혼합된 상태이면서 비 균일한 오염물 조성) 에 대해서는 한 차례의 적용으로는 제염하기에 어려우므로 세척액의 화학적 조성을 변화시켜 가며 여러번 적용시켜야 한다.

토양 세척법은 일반적으로 매질 이동 제염기술로 분류된다. 즉, 토양 세척법으로부터 발생한 오염수는 오염원에 알맞은 처리기술을 적용시켜야 한다.

2) 적용성

토양 세척법에서 목표로 하고 있는 오염물은 반 휘발성 유기화합물, 연료 및 중금속이다. 이 기술은 일부 VOCs (휘발성 유기물) 및 살충제로 오염된 토양에도 적용 가능하며 굵은 토양 입자로 부터 다양한 유기/ 무기 오염물을 제거하는 능력이 있다.

3) 제한성

토양 세척법의 적용성과 효능을 제한하는 인자는 다음과 같다.

- 복잡한 형태의 오염물(유기물을 함유한 금속들) 의 경우 적절한 세척액 조성을 만들기 어렵다.

- 토양 내 부식토 함량(humic content) 이 매우 높으면 전처리가 필요하다.

- 제염 후 세척액에 대한 처리가 요구된다.

- 제염된 토양에 남아있는 세척액에 대한 위험도를 줄이기 위한 부가적 처리 단계가 필요하다.

- 점토 크기의 토양에 흡착된 유기물을 제거하기가 어렵다.

4) 수행 실적

현재 토양 세척법은 유럽에서는 광범위 하게 사용되지만 미국에서는 제한적으로 사용된다. 1986 ~ 1999 년 동안, 본 기술은 미국 DOE 산하 오염지역의 복원을 위해 선정된 기술 중 하나였다. 토양 세척법은 비용이 저렴하며 환경을 개선하는 방법중의 하나이다. 1996 연도에는 미국 루지애나주에서 파일롯 규모의 실증이 두 번 시행되었다. 침출제로 초산 혹은 염산이 사용되었다. 토양은 3.5 g/kg 농도의 납으로 오염되었는데 염산계가 보다 효과적이었다. 처리된 토양중 납의 농도는 0.2 g/kg이었으며 한 시간당 6 톤의 토양이 처리되었다.

5) 제염 비용

토양 세척법의 평균 비용은 부지 조건, 처리량 및 농도에 따라 약간씩 변하지만 땅파는 비용을 포함하여 1톤당 170 \$ 내외이다.

나. Soil flushing

1) 정의 및 개요[2.2.2]

Soil flushing은 현장 제염기술이다. 물 혹은 오염물의 용해도를 증가시키는 첨가제가 포함된 물이 토양에 적용되거나 지하수위를 높여 오염지역으로 지하수가 유입될 수 있도록 물을 주입한다. 오염물은 지하수에 침출되며 그 후 추출 처리된다. 추출액은 지하수로부터 재생되거나 가능하다면 재사용 되어야 한다. 재생된 지하수와 flushing액은 오염물이 포함되어 있으며 재활용 및 방출 전에 방출기준을 만족시키기 위하여 처리된다. 공정효율을 극대화시키기 위해 재생액을 flushing 공정에서 다시 사용하여야 한다. 재생된 flushing액으로부터 계면활성제를 분리하는 것은 본 공정의 가격을 결정하는 주요 인자이다. 재생액을 처리하게 되면 사용후 탄소 및 이온교환 수지와 같은 슬러지 및 기타 고체물질이 발생되며 이들은 처분 전에 적절히 처리되어야 한다. 재생된 flushing 액으로부터 발생하는 휘발성 오염물의 대기 방출물 들은 수집, 처리되어야 한다.

2) 적용성

Soil flushing 은 방사성 핵종을 포함한 무기물들의 제염에 사용된다. 본 기술은 VOCs, SVOCs, 연료, 살충제 등을 처리하는데 이용될 수 있으나 다른 기술에 비해 비용이 고가이다. 유기화합물의 유효 용해도를 증대시키기 위하여 계면활성제가 사용되기도 한다. 그러나, flushing 액은 토양 자체의 물리화학적 성질을 변화시킬 수 있다. 본 기술은 굵은 토양으로부터 다양한 범위의 유기 및 무기 오염물들을 이동하기 쉽도록 할 뿐만 아니라 금속류를 재생할 수 있다는 가능성이 있다.

3) 제한성

Soil flushing의 적용성과 효능을 제한하는 인자는 다음과 같다.

- 투과성이 낮은 토양은 처리하기가 어렵다.
- 계면활성제는 토양에 붙을 수 있으므로 토양의 유효 공극을 감소시킨다.
- 토양과 flushing 액의 반응에 의해 오염물의 이동도가 감소된다.
- 본 기술은 환경기준에 맞추기 위해 단지 오염물과 flushing 액이 다시 회수될 수 있는 지역에 사용되어 져야 한다.

4) 수행실적

Soil flushing은 미국에서만 한정되어 사용되는 개발중인 기술이

다. 전형적으로, soil flushing 이 적절한 제염법으로 선정되기 위해서는 부지 특성에 맞는 조건 하에서 실험실적 및 야외처리성에 관한 연구가 수행되어 져야 한다. EPA 에서는 이동 가능한 soil flushing 장치를 제작하였다. 이 장치는 조절하기 어려운 유해폐기물 저장지역에 사용되도록 설계되었다. 지금까지 상업적으로 성공된 예는 거의 없다.

다. Air sparging

1) 정의 및 개요

Air sparging 은 물리화학적 현장 제염기술 방법이다. 오염물이 휘발된 뒤 제거되도록 물로 포화된 매질에 공기를 주입한다. 발생된 공기 방울은 토양 탑을 통해 수평 혹은 수직 방향으로 이동한다. 이러한 공기방울 들은 오염물을 증기추출계(vapor extraction system) 에로 운반한다. 발생된 증기상 오염물을 제거하기 위해 air sparging 과 증기추출법을 함께 사용한다. 이 기술은 지하수와 토양 사이의 접촉면이 증가된 상태를 유지하고 지하수 오염을 보다 많이 제거하기 위해 유속이 크도록 설계되었다.

2) 적용성

Air sparging 은 VOCs 및 연료(fuel)를 제염하는데 사용된다. 본 공정에 대한 정보는 제한되어 있다.

3) 제한성

본 기술의 적용성과 효능을 제한하는 인자는 다음과 같다.

- 오염물의 깊이 및 특정부지에 대한 지질학적 특성이 고려되어야 한다.
- 공기주입 관정은 특정 부지의 조건에 적합하도록 설계되어야 한다.
- 포화지역을 통과하는 공기의 흐름이 꼭 일정하지 않을 수 있다.

4) 수행실적

Air sparging 은 향후 2 ~ 3 년 동안 미국 DOE Hanford site의 건조지역에서 실증될 계획이다.

5) 제염 비용

처리될 지하수 지역 1 ha 당 371,000 ~ 865,000 \$ 이 소요된다고 추정된다.

라. 진공 증기 추출법(vacuum vapor extraction)

1) 정의 및 개요

관정을 통해 공기가 주입되면 관정내로 지하수가 유입되며 관정을 통해 여분의 지하수가 흐르게 된다. 오염된 지하수에 존재하는 VOCs 가 공기방울에 의해 일단 관정내에로 이동되어 들어오면 이들은 상승하여 증기 추출에 의해 관정의 상단부에 모여진다. 본 기술은 well air stripping 이라고도 알려져 있다. 부분적으로 처리된 지하수는 결코 지표면으로 나오지 않고 비 포화지역으로 들어가도록 강요되면 이러한 공정은 반복된다. 지하수가 현장에서 처리계통을 통해 순환되므로 오염물 농도는 서서히 감소된다. 본 기술은 파일럿 규모의 개발 중인 기술이다.

2) 적용성

본 기술에서 취급하는 오염물은 할로겐화된 VOCs, SVOCs 및 연료이다. 본 기술을 변형시키면 비할로겐화된 VOCs, SVOCs, 살충제 및 무기물에 대해서도 제염 효과가 발생한다.

3) 제한성

본 기술의 적용성과 효능을 제한하는 인자는 다음과 같다.

- 지하수의 산화성 물질에 의해 계가 파괴될 가능성이 있다.
- 얇은 대수 층(aquifer)에 대해서는 효율이 떨어진다.

4) 수행실적

독일의 여러 지역에서 사용되어 왔으며 최근 미국에 소개되었다. Stanford 대학에서 본 기술을 변형(in-well sparging system)하여 개발 중이며 차후 DOE 의 오염지역에 적용될 예정으로 있다. Stanford에서 개발된 기술의 특징은 vapor stripping 기술과 air-lift pumping 기술을 혼용하여 사용하는 것이다.

마. 미생물 반응기(bioreactors)

1) 정의 및 개요[2.2.3]

본 기술은 현장에서 적용하는 방법이 아니다. 추출된 지하수에 존재하는 오염물은 두 종류의 미생물 반응기와 접촉되어 진다. 첫째, 활성화된 슬러지와 같은 부유 계통의 사용에 있어서 오염된 지하수는 공기가

풍부한 영양이 내에서 순환된다. 둘째, 회전 미생물 장치(rotating biological contractor)와 여과기를 사용하는 접촉계에 있어서 미생물들은 불활성 지지대(inert support matrix)에 위치하게 된다.

2) 적용성

본 기술에서 취급하는 오염물은 SVOCs, 연료 및 미생물에 의해 분해 가능한 모든 유기물질이다. 본 기술은 살충제에 대해서는 덜 효과적이다. PCP, chlorobenzene 및 dichlorobenzene 이성질체(isomer)와 같은 할로겐화 화합물에 대해 파일럿 규모의 야외 실험이 성공적으로 수행되었다.

3) 제한성

본 기술의 적용성과 효능을 제한하는 인자는 다음과 같다.

- 슬러지 공정으로부터 발생하는 잔여물들은 처리 혹은 처분되어야 한다.
- 오염물의 농도가 매우 높으면 미생물에 나쁜 영향(toxic)을 미친다.
- 활성화된 슬러지 공정으로부터 휘발성 물질이 발생되면 공기 오염을 야기시킬 가능성이 있다.
- 주위 온도가 낮으면 미생물 분해 속도가 급격히 떨어지며 그 결과 제염시간이 오래 소요되고 가열 비용을 증대시킨다.
- 해로운 미생물이 생체반응기 전체에 우선적으로 퍼지며 이들은 제염 효과를 감소시킨다.

4) 수행실적

본 기술은 지난 수 십년 동안 도시 폐수의 처리에 사용되어온 잘 개발된 기술이다. 또한 설비와 재료도 쉽게 구할 수 있다. 다른 기술들과 마찬가지로 청정화 하는데 걸리는 시간은 지하 표면의 조건과 지하물질로부터 오염물의 탈착 속도에 의해 크게 영향을 받으나 현장 미생물 이용 제염기술에 비해 반응속도가 빠르다.

5) 제염 비용

제염 비용은 유입액에 존재하는 오염물의 종류 및 농도에 크게 의존한다. 생물학적 처리기술은 탄소 흡착법에 비해 보다 경제적이다. 9,300 ~ 13,900 m^2 의 표면적에 보호 덮개를 가진 장치를 한 대 설치하는데 소요되는 비용은 80,000 ~ 85,000 \$ 이다.

바. Bioventing

1) 정의 및 개요[2.2.4]

공기를 주입함에 의해 비 포화된 토양 내으로 산소가 전달되어 토양 내 산소 농도가 증가한다. 산소 증가에 따라 토양 내 미생물은 활성화되어 유기물 분해속도를 증가시키는 현장 제염기술이다. 단지 미생물의 활동도를 유지하기에 충분하면 되므로 본 기술에서 사용되는 공기의 주입 속도는 다른 기술에 비해 느리다. 흡착된 연료 부산물들의 생 분해와 함께, 휘발성 화합물은 생분해되어 생물학적으로 활성화된 토양을 통해 서서히 이동한다.

2) 적용성

본 기술은 연료, 할로겐화 되지 않은 용매, 살충제, 나무 보존제 및 다른 유기화합물로 오염된 토양의 치료에 성공적으로 사용되어 왔다. 비록 본 방법은 무기물을 분해시키지 못하지만, 미생물 치료 방법은 무기물의 원자가 상태를 변화시키는데 사용될 수가 있으므로 미생물 혹은 좀더 큰 미생물에 무기물이 흡착, 농축될 수 있는 장점이 있다. 본 기술은 아직 실증 단계에 있지만 토양으로부터 무기물을 제거하거나 토양을 안정화시키는데 유효한 기술이 될 것이다.

3) 제한성

본 기술의 적용성과 효능을 제한하는 인자는 다음과 같다.

- 토양 기체의 투과도를 결정하기 위해 파일럿 규모의 현장 실험이 수행되어야 한다.
- 본 기술의 성능에 영향을 주는 인자는 포화된 토양 세척도, 투과도가 낮은 토양 혹은 지표로부터 1 m 이내에 지하수가 존재하는 경우이다.
- 공기주입 관정 하단 부근에 증기가 모여진다. 이 문제는 근처에 있는 공기를 추출함에 의해 해결될 수 있다.
- 토양 습도가 낮으면 미생물 분해 성능이 제한되며 토양이 건조되는 방향으로 반응이 진행된다.
- 토양 표면에서 배기체에 대한 감시가 필요하다.
- 만약 보조 신진 대사계나 혐기성 순환계가 존재하지 않는다면 염소 화합물의 호기성 미생물 분해는 효과적이 될 수 없다.
- 온도가 낮으면 제염시간이 길어진다.

4) 수행실적

본 기술은 최근 범용화 단계에 있으며 장비도 쉽게 구할 수 있다. 특히 본 기술은 soil vapor extraction 법과 함께 사용되도록 추천되어진다. 미생물을 사용하는 다른 기술과 함께 본 기술을 사용하여 부지를 복원하는 데에 소요되는 시간은 오염된 매질의 화학적 특성과 토양의 특성에 크게 의존한다.

5) 제염 비용

1 m³ 의 토양을 제염하는데 소요되는 가동 경비는 10 ~ 20 \$ 이다. 제염비용에 영향을 미치는 인자로서는 오염물 형태 및 농도, 토양 투과도, 관정 사이의 거리와 관정 수, 공기주입 속 및 배기체 처리 비용이다. 본 기술은 특별히 고가의 장비가 필요하지 않으며 장기간 동안 방치할 수 있으므로 가동 및 유지비가 적게 들지만 시스템의 유지를 위해 주기적인 감시가 필요하다.

사. 백색부패 진균법(white rot fungus)

1) 정의 및 개요[2.2.5]

백색 부패진균은 이들의 리그닌 분해 성질과 나무 부패효소계를 사용함에 의해 다양한 종류의 유기 오염물을 분해시킨다고 보고되어 왔다. 두 종류의 처리기술이 있는데 현장(in situ) 및 미생물 반응기(bioreactor) 이다.

생물학적 분해를 위해 반응기 내에서 사용되는 물질은 나무 조각이며 나무 조각에 습한 공기를 접촉시키는 호기성 계이다. 공정에 대한 반복 실험을 위한 반응기는 bench 규모로 사용된다. 파일럿 규모 실험의 경우, 열려진 계에서 나무 조각을 만드는데 조절 가능한 서류 쉐더(shredder)가 사용되었다. 열려진 계는 퇴비와 유사하며 내부 표면에는 나무 조각들로 덮여 있다. 이런 형태의 계에 대해서 온도를 조절할 필요는 없다. 리그닌을 파괴하는 진균을 사용한 생물학적 분해 온도는 30 ~ 38 °C 의 범위이다. 생물학적 분해에 의해 발생된 열은 계를 최적 조건으로 유지시켜 주도록 한다.

진균과 박테리아를 혼합 사용한 bench 규모의 연구에 대해, 원래 존재

하던 박테리아가 TNT 를 분해시킨다고 보고되고 있다. 토양 내에 TNT 나 PNP 농도가 높게되면 백색 부패진균의 성장이 방해된다. TNT 의 농도가 20 ppm 이상으로 오염된 토양에서 백색부패균의 어떤 종류는 성장할 수 없다고 보고되었다.

2) 적용성

본 기술은 폭발물인 TNT, RDX, HMX 에 우선적으로 활용되며 다양한 종류의 유기오염물을 분해시키는 데에 사용된다. 또한, 백색 부패균은 DDT, PAH, PCB 및 PCP 와 같이 분해시키기 어려운 물질에 대해서도 적용이 가능하다.

3) 제한성

본 기술의 적용성과 효능을 제한하는 인자는 다음과 같다.

- 토양, 침적물 및 슬러지 내에 TNT 농도가 높으면 효율이 감소된다.
- 오염물을 분해시켜도 청정화 기준을 만족시키지 못한다.
- 원래 존재하던 박테리아와의 경쟁 반응, 독성에 의한 반응 억제 및 화학흡착에 의해 효율이 감소된다.

4) 필요 데이터

본 기술의 적용에 필요한 데이터는 다음과 같다.

- 오염된 토양, 침적물 및 슬러지 내 폭발물의 농도
- 처리 후 요구되어 지는 최종 폭발물에 대한 오염 준위
- 존재하는 다른 오염물
- 토양 특성에 대한 정확한 분석

5) 수행실적

본 기술은 20년 이상 알려져 왔으나 상용화된 예는 거의 없다. 미국 워싱턴주의 해군 잠수함 기지에서 파일롯 규모의 실증시험이 수행되었다. 초기 TNT 농도가 1,844 ppm 이었는데 30 일간 적용시킨 후 1,267 ppm 으로, 120 일간 적용시킨 후 1,087 ppm 으로 감소되었다. 전체 분해율은 41 % 이며 최종 TNT 오염도는 설정치인 30 ppm을 만족시키지 못하였으므로 부가적인 연구가 현재 수행되고 있다.

6) 제염 비용

1 m³ 의 토양을 제염하는데 소요되는 가동 경비는 98 \$ 이다.

아. Biofiltration

1) 정의 및 개요

펌프에 의해 증기상 유기 오염물질은 토양으로 채워진 탑을 통과하게 되며 이 오염물은 토양표면에 흡착된다. 흡착된 오염물은 토양에 존재하는 미생물에 의해 분해된다. 특히, 특별한 종류의 박테리아를 여과기 내으로 주입시킨 후 최적 성장조건을 유지시키면 특정 화합물만 우선적으로 분해된다. Biofilter 는 범용의 활성탄 흡수체와 비교할 때 몇가지 장점을 가지고 있다. 즉, 미생물이 재생되므로 최대 흡착능이 일정하게 유지된다. 그리고, 질량 이동지역(mass transfer zone)은 움직이지 않고(stationary) 상대적으로 짧기 때문에 탑의 길이를 크게 줄일 수 있다. 이러한 특징에 기인하여 투자설비비와 가동비를 크게 줄일 수 있다. 또한, 오염물이 단지 분리되는 것이 아니라 파괴되는 기술이다.

2) 적용성

다른 생물학적 방법과 마찬가지로 biofiltration 은 오염물의 미생물 분해도에 크게 의존한다. 적절한 조건이 유지되면, biofilter는 실제로 모든 선정된 오염물들을 무해물질로 변화시켜 제거한다. Biofiltration에서 목표로 하는 오염물은 비 할로겐화 VOCs 와 연료물질이다. 할로겐화 VOCs 도 처리될 수 있지만 덜 효과적이다.

3) 제한성

본 기술의 적용성과 효능을 제한하는 인자는 다음과 같다.

- 유입되는 공기의 속도는 biofilter 의 크기에 의존한다.
- 진균류가 발생한다.
- 온도가 낮으면 유기물이 분해되지 않거나 분해 속도가 매우 느려지게 된다.

4) 수행 실적

Biofilter 는 지난 20년 동안 유기물의 분해에 성공적으로 사용되어 왔다. 현재 유럽과 일본에서 광범위하게 사용되고 있으나 미국 내에서는 최근에야 관심을 보이고 있다. 최대의 제거 효율을 유지하기 위해 습도, pH, 온도 및 그 외의 여과기 조건들이 감시되어야 한다. 미생물이 과량 존재하게 되면 filter 에 물이 넘쳐 흐르거나 막히는 경우가 있으므로

로 filter를 물리적인 방법으로 세척하여야 한다.

5) 제염 비용

오염물 1 kg 당 5 ~10 \$ 범위이다.

자. 토양 증기 추출(soil vapor extraction)

1) 정의 및 개요[2.2.6]

기체상 휘발성 물질이 토양을 통해 추출 관정으로 확산되어 나올 수 있도록 추출 관정에 진공을 걸어준다. 본 공정에는 배기체 처리계통도 포함된다. 본 기술은 in-situ soil venting, in situ soil volatilization, enhanced volatilization 및 soil vacuum extraction 으로도 알려져 있다. SVE 는 비 포화지역 토양에 적용되는 현장 제염기술이다. 토양으로부터 발생하는 기체는 오염물의 재생 혹은 제거를 위해 처리되어 진다. 1.5 m 깊이의 토양에 대해 수직 방향의 통풍구가 주로 사용되지만 91 m 깊이의 토양에 대해서도 성공적으로 적용되었다. 오염지역의 지질학적 형태, 굴착기의 접근성 및 부지특성 인자가 보증되면 수평방향의 통풍구도 사용되어질 수 있다.

진공을 걸어줌에 따라 지하수가 위로 넘쳐나는 것을 방지하고 비 포화 지역의 깊이를 증대시키기 위해 지하수 침하 펌프를 사용해야 한다. 깊은 곳의 오염물을, 투과도가 낮은 토양 오염물 및 포화지역 오염물의 추출을 용이하게 하기 위해 공기를 주입하는 것이 효과적이다.

2) 적용성

본 기술에서 목표로 하는 오염물은 VOCs 와 연료물질이다. 본 기술은 Henry 상수가 0.01 보다 크거나 증기압이 0.5 mm Hg 이상의 휘발성 화합물에 적용된다. 습도, 유기물 함량 및 토양의 공기 투과도에 의해 SVE 의 효능이 영향을 받는다. SVE 법은 중유(heavy oil), PCB 류 혹은 dioxin 류 및 금속을 제거하지 못한다.

3) 제한성

본 기술의 적용성과 효능을 제한하는 인자는 다음과 같다.

- 토양이 딱딱하거나 습도함량이 높게 되면 (>50%) 공기에 대한 투과도가 감소되므로 고 진공(제염비용 상승)을 걸어주어야 하며 SVE

의 가동에 나쁜 영향을 미친다.

- 투과도가 심하게 변하는 토양에 대해 추출관정 사이의 거리가 멀어야 한다. 그렇지 않으면 오염 지역으로부터 발생하는 기체 흐름이 불균등하게 된다.

- 유기물 함량이 높거나 바삭 건조된 토양은 VOCs 에 대해 흡착능이 커지게 되며 제거속도의 감소를 초래한다.

- 배출된 공기는 공공과 환경에 해를 끼치므로 처리되어야 한다.

- 배기체 처리 결과 발생하는 여분의 액체와 사용 후 활성탄은 처리/처분되어야 한다.

- SVE 는 포화지역에 대해서는 비효과적이다.

4) 성능 데이터

본 계를 설계하는데 필요한 정보를 얻을 뿐만 아니라 본 방법의 타당성을 수립하기 위해 파일럿 규모의 실험이 필요하다. 실제 규모의 가동 중, 일단 추출된 물질의 제거 속도가 포화상태에 이르면 SVE 간헐적으로 가동되어질 수 있다. SVE 에 의해 오염물이 제거된 후, 만약 원래의 제염 설정치를 만족시키지 못한다면 생분해와 같은 다른 복원기술을 적용하는 방안을 고려하여야 한다.

5) 제염 비용

SVE 의 비용은 부지특성, 부지 크기, 오염물의 양과 성질 및 수지 질학적 특성에 따라 차이가 발생한다. 이러한 인자들은 관정의 수에 영향을 미치며 송풍기 용량과 진공도 및 부지 복원에 소요되는 시간이 제염비용에 영향을 미친다. 배기체 처리 또한 비용에 상당한 영향을 미친다. 공정이 진행되는 동안 물 역시 자주 추출되며 처분 전 처리가 요구되므로 제염비용의 상승 요소가 된다. 1 m³ 의 토양을 제염하는데 소요되는 비용은 10 ~ 50 \$ 의 범위이며 파일럿 규모의 실험에는 전형적으로 10,000 ~ 100,000 \$ 이 소요된다.

차. Landfarming

1) 정의 및 개요[2.2.7]

Landfarming은 오염된 토양을 토양 표면에 올려놓은 후 주기적으로 뒤엎고 폐기물에 공기가 충분히 유입되도록 가는 방법으로 완전히 개

발된 생물학적 복원기술 이다. 오염물의 분해속도를 최적화시키기 위해 다음의 토양 조건이 조절되어야 한다.

- 습기함량(관개 혹은 물 분사로 조절)
- 산소 준위(가는 방법을 사용하여 토양을 혼합하거나 공기를 불어 넣어줌에 의해 조절)
- 질소와 인과 같은 영양분(비료에 의해 조절)
- 토양 부풀림(토양 개선제를 첨가하거나 토양을 혼합함에 의해 조절)

2) 적용성

본 기술을 적용시킴에 의해 성공적으로 처리된 물질은 디젤유, PCP, coke waste 및 살충제 이다.

3) 제한성

본 기술의 적용성과 효능을 제한하는 인자는 다음과 같다.

- 대규모 공간이 필요하다.
- 오염된 토양을 파야할 문제가 발생하면 오염물을 취급함에 따른 부가적 비용이 소요된다.
- VOCs 오염농도가 감소하는 원인은 미생물 분해에 의한 것이 보다는 자연 휘발에 의해서 이다.
- 용제와 같은 휘발성 오염물은 이들이 대기에도 증발되어 공기 오염을 발생시키므로 전처리 되어야 한다.
- 먼지를 발생시키는 물질에 대해서는 특별한 주의가 요구된다.
- 금속이온이 존재하게 되면 미생물에 나쁜 영향을 미치고 오염된 토양으로부터 지하에도 금속이온이 침출되어 들어간다.

4) 성능 데이터

특히, 석유산업에 의해 발생된 슬러지에 대해 본 계는 수없이 사용되어 왔다. 다른 생물학적 처리와 유사하게, 적절한 조건이 주어지면 오염물들은 유해하지 않은 물질로 변화된다. 그러나, 제거효율은 오염물 형태와 농도, 토양 형태, 온도, 습도, 오염물의 휘발등에 의해 영향을 받는다.

5) 제염 비용

1 m³ 의 토양을 현장에서 제염하는데 소요되는 비용은 30 ~ 70 \$ 의 범위이며 파내어 제염하는 경우 135 ~ 270 \$ 이 소요된다.

카. 공기 벗김법(air stripping)

1) 정의 및 개요[2.2.8]

본 기술은 현장 제염방법이 아니며 완전히 개발되었다. 오염된 물이 공기와 접촉하는 표면적을 증가시킴에 의해 지하수로부터 휘발성 유기물들이 분리된다. 공기를 불어넣는 방법(aeration)으로 packed tower, diffuse aeration, tray aeration 및 spray aeration 이 있다.

Air stripping 에서는 휘발성 오염물질로부터 물에로의 질량이동이 발생한다. 본 방법에서는 packed tower 나 aeration 탱크 내에서 지하수 정화가 수행된다. 전형적인 packed tower 에는 칼럼내 충전제 위로 오염수를 살포할 수 있도록 탑 상단부에 spray nozzle 이 위치하며, 물의 흐름에 역행하여 공기를 통과시킬 수 있도록 선풍기가 부착되어 있으며 탑 하단에는 제염된 물을 수집할 수 있는 웅덩이가 있다. 여기에 부착되는 보조 설비로는 제거 효율을 증대시키기 위한 공기가열기와 수위 자동 조절기, 폭발 방지 장치, 공기방출 조절기, 활성탄에 의한 폐기물 처리 계통, 미세 압력 감시기 및 촉매성 산화장치 혹은 열 산화 장치가 있다. Packed tower 는 영구 고정장치 혹은 이동식으로 제작된다.

Aeration tank 는 오염수가 흐르는 탱크에 공기를 넣어줌에 따라 휘발성 화합물을 제거한다. 가압 송풍기와 분기관 (manifold) 에 의해 별도의 충전제 없이 공기와 물이 접촉할 수 있도록 설계되었다. 휘발성 물질의 제거에 적절한 머물음 시간을 보증할 수 있도록 차폐장치 (baffle) 가 장착된다. 상용화된 aeration tank 의 잇점은 packed tower (5 ~ 12 m) 에 비해 크기가 작다 (2 m 이하) 는 것이다. Aeration tank 로부터 배출되는 공기는 packed tower 로부터 배출된 공기의 처리법과 동일한 방법을 사용한다.

Air stripper 는 연속식 혹은 공기방울이 간헐적으로 수집 탱크로부터 공급되는 batch 식으로 가동될 수 있다. 저장탱크 내에서 혼합시키면 공

급수 조성이 일정하게 되므로 연속식에 비해 batch 식의 성능이 우수하고 에너지 효율도 높다.

2) 적용성

본 기술은 물로부터 VOCs를 분리하는 데에 이용된다. 그러므로, 무기 오염물의 제거에는 비효율적이다. Air stripping 법을 사용하는 것이 효과적인지 아닌지를 결정하는 인자는 Henry 상수이다. 일반적으로 $0.01 \text{ atm}\cdot\text{m}^3/\text{mol}$ 보다 큰 값을 가질 경우 본 기술을 적용할 만 하다. 본 기술을 사용하여 물로부터 성공적으로 분리되는 화합물들은 BTEX, chloroethane, TCE, DCE 및 PCE 이다.

3) 제한성

본 기술의 적용성과 효능을 제한하는 인자는 다음과 같다.

- 무기물과 미생물에 의해 장비가 오염될 가능성이 있으므로 전처리를 하거나 주기적으로 탑을 세척하여야 한다.

- 물이 흐를 때 VOCs 의 Henry 상수, 탑에 사용된 충전제의 양 및 종류를 고려하여야 한다.

- 실온에서 휘발성이 낮은 화합물들의 처리를 위해서는 지하수를 예열 시켜야 한다.

- 배기체를 처리하여야 한다.

4) 성능 데이터

높이 4.6 ~ 6 m 의 전형적인 packing tower을 사용하면 제거 효율이 99 % 에 이른다. 두 번째 air stripper를 첫 번째에 직렬로 연결하거나, 오염수를 가열, 공기/액체비를 증가시키거나 공기를 가열시킴에 의해 제거 효율이 높아졌다. 배기체를 처리하는데 사용되는 가열 장치를 열원으로 사용할 수 있다. Aeration tank 의 성능은 chamber 나 tray를 첨가함에 의해 혹은 공기를 많이 공급함에 의해 높아질 수 있으며 tank 에 대한 설계특성도 성능에 영향을 미치는 주요 인자이다.

Packed tower 형태의 air stripper 의 가동 시 발생하는 주요 문제점은 충전제가 오염(fouling) 되어 공기 유속이 감소되는 현상이다. 오염은 철 및 마그네슘과 같이 공급수에 함유된 광물 성분의 산화, 칼슘성분의 침전 및 충전제 표면에서 미생물이 성장함에 따라 발생된다.

5) 제염 비용

본 기술에 소요되는 주요 비용은 지하수 펌프, 웅덩이 배수펌프 및 송풍기 가동을 위한 전기료이다. 그러므로, 탐에 걸리는 압력에 근거한 지하수 펌프 및 배수 펌프의 효율을 결정하여야 한다. 일반적으로, 분당 4 ~ 80 L 범위의 용량을 가지는 펌프의 마력은 0.33 ~ 2 HP, 80 ~ 290 L 범위의 용량을 가지는 펌프의 마력은 1 ~ 5 HP, 380 ~ 2270 L 범위의 용량을 가지는 펌프의 마력은 5 ~ 30 HP 이다. 송풍기 모터의 마력은 air stripper 직경 0.3 m 당 1.5 HP 로 가정한다.

3. 국내의 연구개발 현황

토양환경보전법이 1995 년 1월 5일 입법되었다. 입법취지는 토양오염의 요인이 계속 증가하고 있고 금속광산지역 등의 토양오염이 심화되고 있어 토양오염의 사전예방 및 오염된 토양의 개선 등에 관한 종합적인 관리체제를 마련함으로써 토양보전을 보다 체계적이고 적극적으로 추진하기 위한 것이다.

주요내용으로, 1) 환경부장관은 토양보전에 관한 기본계획을 수립하고, 토양 측정망을 상시 운영하며, 토양오염정밀조사를 실시하며 측정결과를 공개토록 하는 것, 2) 토양오염유발시설 설치자는 시장 혹은 도지사에게 신고하고 토양오염방지조치를 하여야 하며 정기적으로 토양오염검사를 실시, 그 결과를 비치토록 하는 것, 3) 시장 혹은 도지사는 토양오염유발시설의 설치자가 토양오염방지조치를 하지 아니하거나 토양오염검사 결과 토양오염우려기준을 초과하는 경우에는 시정명령을 하고, 시정명령을 이행치 않거나 이행하더라도 토양오염의 정도가 개선될 가능성이 없다고 인정되는 경우에는 당해 토양오염유발시설의 폐쇄, 철거 및 사용을 중지하는 등의 명령을 할 수 있도록 하는 것, 4) 토양오염의 정도와 그 영향에 따라 토양오염우려기준과 토양오염대책기준을 정하고 환경부장관 및 시장 혹은 도지사는 토양오염도가 이 기준을 초과하는 경우 토양오염방지조치를 명하거나 토양보전대책지역으로 정하고, 토지의 이용 등을 제한할 수 있도록 하는 것이다.

토양환경보전법시행령은 1995년 12월 29일 대통령령 제14848호로 제정,

1998년 12월 31일 대통령령 제16058호로 개정되었고 2001년 3월에는 토양 환경보존법을 개정하여 토양오염 원인자책임을 대폭 강화하고, 토양환경 평가제도를 도입하는 등 토양환경관리의 기틀을 획기적으로 개선하였다. 시행령 2조에 토양오염물질이 정의되어 있는데, 토양오염물질은 1) 카드뮴 및 그 화합물, 2) 구리 및 그 화합물, 3) 비소 및 그 화합물, 4) 수은 및 그 화합물, 5) 납 및 그 화합물, 6) 6가 크롬화합물, 7) 유기인화합물, 8) 폴리클로리네이티드 비페닐, 9) 시안화합물, 10) 페놀류, 11) 유류(동·식물성 제외), 12) 기타 위 물질과 유사한 물질로서 토양오염의 방지를 위하여 특별히 관리할 필요가 있다고 인정되어 환경부장관이 정하는 물질로 규정되어 있다. 이로부터, 방사성 오염토양이 환경부에서 지정한 오염물 제 12조에 포함되는지가 애매하다. 방사성 오염토양의 처리는 과학기술부의 방사성물질과 관련된 규정을 적용하여야할 것으로 판단된다.

일반 환경산업에서, 오염토양 정화와 관련된 기술은 대학교의 경우 광운대학교, 경희대, 한국과학기술원, 연세대, 서울대, 충남대 및 부경대, 중부, 울산대 등에서 연구를 수행하고 있다.

대조 바이오텍, 한국건설기술 연구소, 대우기술연구소, 한국자원연구소, 선경연구소, 대한 토양환경 연구소, 식품의약품 안전청, 독성연구소, 삼성연구소, 선경연구소, KIST 등의 연구소가 오염토양 제염관련 연구를 수행중인 것으로 알려져 있다.

제일 분석센터(주), 엔비자인(주), 동진분석기술 연구소에서는 토양, 비료, 퇴비에 존재하는 환경오염 물질 측정, 음용수 및 분석 등 민간화학 분석을 전문으로 수행하는 용역업체들이다. 환경클리닉 센터, 에코솔루션, 한국환경 컨설팅, 엔비자인, 지오그린 21, 강원 e & C, 서울 환경컨설팅 등에서는 외국의 환경관련 회사와 계약을 맺어 토양복원을 위한 자문을 수행하거나 오염 토양을 직접 복원하는 사업을 하고 있다.

원자력발전소에서 발생한 토양폐기물 제염과 관련된 연구를 원자력 환경기술원에서 2001년 4월부터 시작하였으며, 방사능 오염토양 제염기술을 포함한 환경복원 기술 개발 연구는 1996년 초반부터 한국원자력연구소에서 수행되어 왔다. 현재까지의 연구 결과로부터, KAERI가 보관중인 Co

오염토양 제염에 대한 타당성이 입증(부피를 1/8 이하 수준으로 감소)되었으므로 pilot 및 실제 규모의 제염공정을 개발하는 것이 과제로 남아있다. KAERI 임시 저장고의 저장용량이 포화되고 있는 문제점 해결 및 2008년까지 방사성폐기물을 저장하기 위해서는 토양폐기물을 제염으로 감용할 필요가 있다. 제염에 의해 처분비 절감이 가능한데 처리 대상은 약 3,000 드럼이다, 토양제염에는 약 16 억원이 소요, 직접 처분하는 데에는 약 26 억원이 소요되므로 제염에 따른 절감 예상액은 약 10 억원이 될 것으로 판단된다.

4. 기술개발 사례조사에 대한 평가

일반 산업에서 기술의 개발과 이용에 의해 토양이 중금속 및 유기물로 오염되는 것과 유사하게 원자력 산업의 개발과 이용에 의해 방사능으로 오염된 토양은 점차 많아질 것으로 예견된다. 선진국을 중심으로 환경에 대한 관심이 증가하고 있으며, 중금속으로 오염된 토양을 청정화 하는 연구가 지속적으로 수행되고 있다.

미국에서는 맨하탄 과제로 수행한 핵무기 개발 연구에 의해 많은 지역과 시설이 심각하게 오염되어 있어서 막대한 규모의 예산을 투자하여 이 지역들을 청정화하는 작업을 수행하고 있다. 한편, 우크라이나 체르노빌 원자력 발전소의 사고 처리에서 나타난 가장 심각한 문제 중 하나는 방사성 핵종의 인체에 미치는 영향을 파악하는 것과 방사능으로 오염된 토양을 처리하는 것이었다.

방사성 오염토양 제염이 중금속 오염 토양의 복원에 비해 어려운 이유는 중금속 오염 토양에 비해 오염도가 극히 미량이면서 방사성을 함유하고 있다는 점이다. 방사성 오염토양을 제염하기 위해서는 제염 전 토양 내에 존재하는 방사성 핵종의 농도를 정확히 측정하여야 하며, 제염 후 잔류 방사능의 정확한 측정과 함께 제한 방출 혹은 무제한 방출을 위한 면제 준위에 부합되는 지를 평가하여야 한다. 그리고, 발생하는 2차 폐기물의 양을 최소화하기 위해 방사성 핵종만 효과적으로 제거함과 동시에 제염제를 재활용해야 하는 기술적 과제가 남아있다.

토양을 완전히 청정화 시키는 문제는 21세기에 들어선 현재까지도 풀어

야 할 과제로 남아 있으며 분자 혹은 원자 규모에서 재접근하는 방안이 시도되고 있다. 미국은 향후 70년에 걸쳐 방사능 오염지역을 청정화 시키기 위해 막대한 예산을 투자하고 있으며 방사능 오염환경을 청정화 시키는 산업 자체가 3D 업종이기 때문에 외국의 기술뿐만 아니라 노동력을 요구하고 있다.

우리나라는 산업의 역사가 짧고 환경 산업을 활성화시킬 만큼 산업의 규모가 크지 않기 때문에 토양 제염기술 개발에 따른 경제성은 아직 미약하다고 본다. 그러나, 국내에 존재하는 방사성 오염 토양 폐기물의 제염과 TRIGA 해체 사업에 맞추어 토양 제염기술 개발을 꾸준히 수행한다면 얻어진 경험과 기술을 토대로 방사능 오염토양 제염과 원자력 시설 해체 후 부지 제염 및 청정화에 대비할 수 있으며 해외에 기술 수출이 가능할 것으로 생각된다.

제 3 장 연구개발 수행내용 및 결과

제 1 절 제염대상 설비별 오염특성 및 건식제염 단위기술 적용성 평가

1. 개요

고방사능 시설에서 발생하는 오염물의 제염 목적은 시설의 유지 및 보수시에 제염작업을 통해 방사능 준위를 낮추어 작업자 피폭을 감소시키고, 장비의 재활용 및 발생폐기물의 저준위화에 의한 고준위 폐기물의 저감화를 위한 것이다. 제염대상은 시설제염(현장제염)과 부품제염(이송제염)으로 대별될 수 있으며, 오염물은 오염물의 형상(외부표면, 내부표면), 오염특성(loose 오염, 고착성오염), 제염의 난이도 등을 고려하여 분류되어야 한다.

본 연구에서는 사용후 핵연료 건식처리 공정별(DUPIC, SF차세대 관리, 핵종변환, PIEF/IMEF) 단위공정에 소요되는 시설 및 장비들에 대한 특성을 조사·분석하여 제염대상물을 분류하였다.

고방사능 시설에서 오염될 수 있는 설비 및 시설은 취급하는 사용후 핵연료나 시설물의 운전 이력에 따라 그 양 및 특성이 달라진다. 따라서 각각의 공정 및 시설별 제염대상물에 대한 오염특성을 파악하고 제염 요건을 분석하였다. 이에 근거한 이에 근거한 적용 가능한 건식 제염기술을 제염성능, 이차폐기물의 발생정도, 기술 적용의 제한성, 원격조작 가능성 등 여러 인자들을 고려한 기술의 장단점 측면에서 고찰하고 비교 평가하여 기술을 선정하였다.

2. 연구결과

가. 오염대상물 분석

1) Dupic 핵연료 제조시험 공정

DUPIC 핵연료 기술개발에 필수적인 검증시험을 하기 위해서는 각종 실험시설이 필요하며, 특히 이 실험은 고방사능 물질인 사용후 PWR 핵연

료를 초기물질로 사용하기 때문에 hot cell과 같은 고방사능 차폐시설내에서 원격으로 조작되어야 하는 기술적 특성 때문에 적절한 공학적 요건을 갖추어야 한다[3.1.1]. 한국원자력연구소내에는 근래 완공된 다목적 연구로인 하나로와 조사재시험시설(IMEF)을 비롯하여 이미 운영되고 있는 조사후시험시설(PIEF : Post Irradiation Examination Facility), 화학분석실 및 방사성 폐기물 관리시설(RWTF) 등 기본적인 가용시설이 갖추어져 있어 DUPIC 핵연료 제조시험은 이러한 시설을 활용하여 수행할 수 있다.

DUPIC 핵연료 제조시험은 조사후시험시설의 수조에 저장되어 있는 사용후 핵연료중 일부를 수조 내에서 해체하여 인접 핫셀로 이송하여 절단하고, 이를 수송용기에 담아 조사재시험시설로 운반한다. 조사재시험시설에서는 인수된 절단 연료봉을 탈피복하여 DUPIC 핵연료 분말, 소결체, 연료봉 및 연료다발 등을 제조하는 실험을 수행한다. 이렇게 제조된 핵연료봉 및 핵연료다발은 최종적으로 하나로에서 노내시험을 수행할 예정이다. 핵연료 제조시험중 필요한 품질검사 및 핵물질계량은 가능한 한 IMEF M6 핫셀에서 수행하되, 이곳에서 수행이 불가능한 조직 및 구조검사, 화학성분 분석 등은 이러한 시험이 가능한 PIEF 핫셀, IMEF 핫셀 및 화학분석실에서 수행된다. DUPIC 핵연료 제조과정중 핫셀내에서 발생하는 폐기물은 적절한 절차에 따라 해당 핫셀내에 수집·보관하다가 핵물질량을 계량한 후 밀봉하여 방사성폐기물 관리시설내에 monolith 혹은 중·저준위 폐기물저장시설로 옮겨 저장할 예정이다. DUPIC 핵연료 제조시험이 종료된 후 DUPIC 핵연료 및 분말 등은 특수용기에 밀봉하여 하나로 혹은 PIEF 저장수조로 옮겨 저장할 예정이다.

DUPIC 핵연료 제조공정은 5가지 작업 분야 즉, 탈피복(decladding), 분말준비(powder preparation), pelletizing, 핵연료봉 제조(fuel rods manufacturing), 핵연료 다발 조립(bundle assembling)으로 구분할 수 있다. 또한 이러한 공정을 지원하는 품질검사, 계량관리 및 유지보수 장비도 필요하다. M6 핫셀 내 설치되고 운용되어야 할 제조장비는 부속기기를 포함하여 Table 3.1.1에 나타낸 바와 같은 여러가지 공정장비가 필요하다. M6 셀내 장비 배치의 기본적인 개념은 작업창 사이는 manipulator가 접근하기 어려우므로 공정간의 이송을 겸한 저장 rack 역할을 하도록 배

치되었으며, 전체적으로는 대별하여 청정구역(M6b)과 오염구역(M6a)을 구분하여 장비를 배치하였다. 오염구역은 소결체 제조공정까지의 구역으로 분말 등이 비산될 우려가 있어 청정구역과 분리하기 위해 분리 벽을 설치하였다. 각 구역은 1개의 작업창을 보수 및 기타 용도로 사용하도록 배치하였다.

제조 시험 공정의 구성 및 특성은 다음과 같다.

- 집합체 해체 및 연료봉 절단
핵연료 다발을 해체하여 핵연료봉을 인출하고 일정 크기로 연료봉을 절단함.
- 탈 피복, 분말처리 및 소결체 제조 공정
절단된 연료봉을 450 °C에서 산화시켜 hull과 분말을 분리함. 분리된 분말은 다시 600 ~ 700 °C에서 환원시킨 후 성형하고 1700 °C에서 소결함.
- 연료봉 및 집합체 제조공정
핵연료 pellet을 핵연료 봉에 넣고 집합체를 만들며 밀봉은 Laser를 이용함.

2) SF 차세대관리공정

사용후핵연료 차세대관리공정의 오염대상물은 공정 흐름도에 포함되는 단위공정에 소요되는 시설, 장비 및 운전폐기물 등이다. 이들 오염된 시설, 장비 및 운전폐기물 등을 대상으로 유지 보수 및 처리를 위해 제염이 필요하게 된다[3.1.2].

제염 대상 오염물은 크게 사용후핵연료 차세대 관리시설의 현장에서 Hot cell, 부대 시설 및 장비 등의 현장제염 대상 오염물과 시설 및 장비의 유지 보수 시에 발생하는 기계, 전자 부품 및 발생 폐기물 등과 같이 특별히 준비된 제염 시설로 이송하여 제염이 가능한 이송제염 대상 오염물로 분류할 수 있다.

현장제염 대상 오염물은 사용후핵연료 차세대관리기술 실증 시설에 포함되는 단위시설의 표면 및 단위 시설의 기능에 따라 단위 시설 내에 설치되어 있는 장비 등이 포함된다.

Table 3.1.1. Major equipments of DUPIC fuel fabrication process.

장 비	주요 기능	주요 사양	비 고
PWR Rod Cutter	• 사용후 PWR 핵연료봉을 25cm로 절단		• capsule 용량 : 8 rod-cuts • basket 용량 : 8 capsule
PWR Rod Slitter	• Rod-cut 피복관 slitting		
OREOX Furnace	• Slitted rod-cut 산화 • 분말 산화/환원 • 분말 dewaxing		
Powder Mill	• 분말 미분쇄 및 혼합 • 분말특성향상 및 균질화		
Powder QC	• 분말크기 분포 측정		
Roll Compactor	• 분말 예비성형 및 과립화	• 처리용량: 5kg/h • 과립분말크기: 최대 1mm	
Mixer	• 분말 미분쇄 및 혼합 • Fresh UO ₂ 첨가 • zinc stearate 첨가		
Press	• 압분체 제조		
Sintering Furnace	• 소결체 제조	• 온도: 1750 ± 50 °C (최대 2000 °C) • 전력: 25kW	
Grinder	• 소결체 건식무심연삭		• 소결체단위로 feeding • container
Pellet QC	• 소결체/압분체의 길이, 총깊이, 직경, 무게, 밀도, 표면조도 및 상태 측정		
Pellet Cleaner	• 건식세척 및 건조		
Pellet Dryer			• 1개의 tray에 40펠릿, 3층

사용후핵연료 차세대 관리공정 개발을 위한 실증시설 건물은 사무실, 일반 실험실 및 utility 설비를 포함하는 관리구역, 주요 단위 공정을 수행하는 핫셀 구역, 사용후핵연료 수송 및 저장 용기 취급을 위한 용기 취급 구역으로 구성되며, 철근 콘크리트 구조물로서, 다음과 같은 주요 기능을 갖는다.

- 사용후핵연료 수송용기의 수납 및 반출
- 사용후핵연료 집합체의 하역, 검사 및 임시저장
- 사용후핵연료 집합체의 해체
- 사용후핵연료 봉의 절단 및 탈피복
- 사용후핵연료 차세대 관리공정
- 집합체 구조물 및 운전폐기물의 감용 포장

따라서 이와 같은 기능들을 수행하기 위한 일련의 시설 및 장비, 즉 각각의 기능을 담당하는 시설의 표면 및 시설에 설치되는 크레인 등의 장비 등이 현장제염 대상 오염물로 분류될 수 있다. 특히 시설 내에서 방사성 물질을 취급하는 주요 공정에 대한 차폐 및 격납 기능을 제공하기 위해 설치되는 핫셀 내부 표면 및 부대 설비들은 가장 오염이 심하게 되고 주요 건식제염 대상이 된다. 이때 모든 핫셀의 벽과 바닥은 제염이 용이하도록 stainless steel로 라이닝 되어있다고 본다.

사용후핵연료 차세대관리공정에 있어서 주요 기능을 갖는 핫셀은 핵연료봉 집합체의 하역, 검사 및 해체를 위한 핵연료봉 밀집 셀, 해체된 사용후핵연료봉의 절단, 탈피복 및 분말화를 위한 전처리 셀, 사용후핵연료 분말의 금속 핵연료로 환원 및 용융염의 재생/정화를 위한 금속핵연료 전환 셀 및 금속핵연료의 용융, 구조 및 canister 밀봉을 위한 셀과 부대적으로 유지/보수를 위한 셀 및 폐기물의 압축 및 포장을 위한 셀 등이 있으며, 이들의 주요 사양은 Table 3.1.2와 같다.

시설 및 장비의 유지 보수는 방사성폐기물의 주요한 발생원이라고 알려져 있다. 이때에는 기계 및 전기/전자류 등 다양한 형태의 폐기 또는 재사용 가능한 오염 대상물뿐만 아니라 및 유지 보수시의 작업 중에 발생하는 휴지, 의복 및 신발 덮개 등의 기타 폐기물이 발생한다. 이들 발생 오염 대상물 중 폐기 대상물은 폐기물 처리 시설로 곧바로 보내져 압축 및

포장을 거쳐 처리되거나 전처리 단계의 제염 후 동일한 방법으로 처리될 수 있다. 그러나 펌프, 밸브, 기계 부품, 전자 부품류 등 재이용 가능한 오염 대상물 등은 특별히 준비된 제염 시설로 이송하여 제한적 재사용 또는 완전 방출 수준까지 제염하여 재사용 한다.

또한 연구개발 용도의 연구시설의 경우 이 목적이 종료된 후에는 해체가 수행되며, 이때에는 한꺼번에 대량의 폐기물이 발생된다. 이 경우 해체를 위해 대부분 현장에서 오염된 핫셀 표면 및 장비와 기타 시설의 표면을 제염하게 되지만 활용이 가능한 기계 및 전자 장비 등은 인출하여 제염시설로 이송한 다음 제염을 수행하고 잔류방사능의 정도에 따라 제한적 또는 무제한으로 재사용 한다.

3) 군분리 및 핵종변환 공정[3.1.3]

(1) 현장제염 대상 오염물

(가) 장수명핵종 군분리 공정

- Hot Cell 내 장치 및 Tube line
 - 스테인레스 스틸 재질의 혼합 정치조(Mixer-Settler)
 - 용액 저장 탱크
 - 여과 장치
 - 용액이송 펌프
 - 배관
- Hot Cell 벽면

(나) 화학전환 공정

- Hot Cell 벽면
- Hot Cell내 반응조 및 배관
 - 불화물 제조 장치
 - 전해제련 장치
 - 환원추출장치

(2) 이송제염 대상 오염물

- 재활용 대상
 - 군분리 공정의 모든 장치 및 배관재

- 용액 이송 펌프 등의 장비
- 용매 함유 액체폐기물
- 산폐액
- 화학전환 공정의 장비 및 도구
- 폐기처분 대상
 - 화학전환 공정의 반응장치 및 배관
 - 폐필터

4) PIEF/IMEF

조사후시험시설은 1985년 말에 준공되어 1987년부터 고리1호기 사용 후핵연료를 대상으로 핵연료의 연소특성시험을 시작하여 매년 1개정도의 사용후핵연료 집합체에 대한 시험과 연구개발 관련시험을 하고 있다 [3.1.4]. 핵연료의 시험은 집합체수중시험, 연료봉 핫셀 비파괴 및 파괴 시험, 핵연료 화학성분 분석시험 등으로 이루어진다.

사용후핵연료는 고준위방사선을 방출하기 때문에 이것을 다루고 시험할 때에는 방사선 안전관리에 특별히 유의하여야 하며 관련시설의 운영도 방사선 작업자를 방사선 피폭으로부터 보호하고 방사성물질로 인하여 주변 환경이 오염되지 않도록 시설을 안전하게 운전하고 유지보수를 철저히 하여야 한다.

최근 시설의 가동년한이 길어짐에 따라 노후화 설비의 교체 및 보수가 많이 요구되며, 이로 인하여 오염된 시설, 장비 및 운전폐기물 등을 대상으로 유지 보수 및 처리를 위해 제염이 필요하게 된다.

제염 대상 오염물은 크게 관리시설의 현장에서 Hot cell, 부대 시설 및 장비 등의 현장제염 대상 오염물과 시설 및 장비의 유지 보수 시에 발생하는 기계, 전자 부품 및 발생 폐기물 등과 같이 특별히 준비된 제염 시설로 이송하여 제염이 가능한 이송제염 대상 오염물로 분류할 수 있다.

현장제염 대상 오염물은 핫셀내부 표면과 핫셀내에 설치되어 있는 장비 등이 포함된다.

Table 3.1.2. Specifications of hot cell in advanced spent fuel management process.

Item	Dimension (L×W×H m) Atmosphere	Major Functions	Major Handling Equipments	Major Process Equipment
Consolidation Cell	21×8×10 (β , γ -tight)	<ul style="list-style-type: none"> • S/F assembly unloading • S/F assembly inspection • S/F disassembly • Fuel skeleton cutting 	<ul style="list-style-type: none"> • 5 ton O/H crane • 3 ton robotic bridge transporter • Servo-manipulator • M/S manipulator 	<ul style="list-style-type: none"> • Down-ender • Fuel clamping table • Rod extraction system • Rod basket system • Rod transfer system • Fuel skeleton cutting system
Pretreatment Cell	20×6×8 (α , γ -tight)	<ul style="list-style-type: none"> • S/F rod cutting • S/F rod decladding • Air voloxidation 	<ul style="list-style-type: none"> • 5 ton O/H crane • 1 ton robotic bridge transporter • Servo-manipulator • M/S manipulator 	<ul style="list-style-type: none"> • Rod cutting machine • Punching machine • Screening machine • Oxidation furnace
Metallization Cell	9×6×8 (α , γ -tight)	<ul style="list-style-type: none"> • Reduction of S/F powder • Salt recovery • Salt purification 	<ul style="list-style-type: none"> • 3 ton O/H crane • 1 ton robotic bridge transporter • Servo-manipulator • M/S manipulator 	<ul style="list-style-type: none"> • Reduction reactor • Electrolyzer • Adsorption column • Vacuum pump • Scrubbers
Smelting & Casting Cell	9×6×8 (β , γ -tight)	<ul style="list-style-type: none"> • Smelting of metallized S/F • Casting into storage form • Canister sealing 	<ul style="list-style-type: none"> • 3 ton O/H crane • 1 ton robotic bridge transporter • Servo-manipulator • M/S manipulator 	<ul style="list-style-type: none"> • Smelter • Casting machine & tools • Canister sealing machine & tools
Radiochemical Analytical Lab.	12×3×8 (β , γ -tight)	<ul style="list-style-type: none"> • Sample preparation • Destructive analysis 	<ul style="list-style-type: none"> • 1 ton O/H crane • M/S manipulator 	<ul style="list-style-type: none"> • Sampler • Analyzers
Decontamination & Maintenance Cell	23×13×7/9 (β , γ -tight)	<ul style="list-style-type: none"> • Equipment decon. • Remote maintenance and repair of equipment and crane 	<ul style="list-style-type: none"> • 10 ton O/H crane • 3 ton robotic bridge transporter • Servo-manipulator • M/S manipulator • Transport cart 	<ul style="list-style-type: none"> • Decon. equipment (Ultrasonic, Hydro-jet, etc.) • Remotely handling tool (cutter, wrench, etc.)
Intervention Area	13×11×7	<ul style="list-style-type: none"> • Equipment decon. • Contact maintenance and repair 	<ul style="list-style-type: none"> • 10 ton O/H crane • Transport cart 	<ul style="list-style-type: none"> • Decon. equipment • Repairing tools • Contamination control system
Waste compaction and packaging Cell	9×16×8 (α , γ -tight)	<ul style="list-style-type: none"> • HEPA filter, fuel skeleton, solid waste compaction • Technical solid waste compaction • Packaging & shipment 	<ul style="list-style-type: none"> • 3 ton O/H crane • E/M manipulator • M/S manipulator • Transport cart 	<ul style="list-style-type: none"> • Compactor • Drum sealing machine & tools

(1) 조사후시험시설

(가) 핫셀(6EA), (바닥면 : STAINLESS LINING, 벽면 : PAINTING)

- 콘크리트 핫셀(4EA), 차폐두께 : 85 cm

9404 : 6.5L X 1.5W X 3.5H, (m)

9405 : 4.0L X 1.5W X 3.5H, (m)

9406 : 2.0L X 1.5W X 3.5H, (m)

9407 : 3.0L X 1.5W X 3.5H, (m)

- 납셀 (2EA), 차폐두께 : 15 cm

9408 : 1.2L X 1.0W X 2.5H, (m)

9409 : 1.2L x 1.8W x 1.5H, (m)

(나) 핫셀 내부 장비

- 9404 : 제원측정장비(직경 및 길이), 와전류측정기, 감마 스케닝, X-RAY측정기, 산화층 측정기

- 9405 : 핵분열 기체 포집기, 핵연료봉 절단(거시 절단, 습식), RESIN 주입기, 핵연료봉 절편 저장기

- 9406 : 시료 저장(MOUNTING 시료 및 핵연료봉 절편 저장)

- 9407 : 핵연료봉 미세절단기(습식), 시료 MOUNTING, GRINDING, POLISHING, 핫셀 고준위 폐기물 인출

- 9408 : 핵연료 조직 사진촬영기, 피복관 사진촬영기, 피복관 산화층 사진촬영, 피복관 경도 시험

- 9409 : 핵연료 밀도시험 측정기, 핵연료봉 단면감마스케닝 시험장비

(2) 조사재시험시설

(가) 핫셀(8EA), (바닥면 : STAINLESS LINING, 벽면 : PAINTING)

- 콘크리트 핫셀(7EA)

M1 : 7.08L X 3.0W X 6.0H, (m)

M2 : 7.03L X 3.0W X 6.0H, (m)

M3 : 4.72L X 3.0W X 6.0H, (m)

M4 : 2.32L X 3.0W X 6.0H, (m)

M5a : 7.14L X 2.0W X 4.0H, (m)

M5b : 4.76L X 2.0W X 4.0H, (m)

M6 : 23.70L X 2.0W X 4.0H, (m)

- 납셀 (1EA)

M7 : 1.45L X 2.5W X 2.65H, (m)

(나) 핫셀 내부 장비

- M1 : 외관검사장치, 치수측정장치, 와전류탐사장치, 감마스캐닝장치, X-선 검사장치, 연료봉 천공장치
- M2 : 캡슐 절단기, 밀링기기, 방전가공기
- M3 : 미세절단기, 마운팅프레스, 연마기(1), 연마기(2), 레진주입기, 연료채취장치
- M4 : 하이스코프
- M5a : 충격시험기, 변형측정기, 하이스코프, 가스열처리로, 진공열 처리, 열전도도측정기, 열팽창율측정기
- M5b : 동적인장시험기, 하이스코프, 정적인장시험기
- M6 : 핵연료 제조기기(DUPIC 핵연료 제조)
- M7 : 금속현미경, 미소경도기, 밀도측정기

상기 일련의 시설 및 장비, 즉 각각의 기능을 담당하는 시설의 표면 및 시설에 설치되는 크레인 등의 장비 등이 현장제염 대상 오염물로 분류될 수 있다. 특히 시설 내에서 방사성 물질을 취급하는 주요 공정에 대한 차폐 및 격납 기능을 제공하기 위해 설치되는 핫셀 내부 표면 및 부대 설비들은 가장 오염이 심하게 되고 주요 건식제염 대상이 된다. 이때 핫셀내 장비의 유지 보수시에는 1차적으로 작업자의 접근이 가능할 정도로 현장에서 제염한 후 제염시설로 이송하여 작업자의 보수가 가능할 수준으로 제염한다.

시설 및 장비의 유지 보수시에는 다량의 방사성폐기물이 발생된다. 이때에는 기계 및 전기/전자류 등 다양한 형태의 폐기 또는 재사용 가능한 오염 대상물뿐만 아니라 및 유지 보수시의 작업 중에 발생하는 휴지, 의복 및 신발 덮개 등의 기타 폐기물이 발생한다. 이들 발생 오염 대상물 중 폐기 대상물은 폐기물 처리 시설로 곧바로 보내져 압축 및 포장을 거쳐 처리되거나 전처리 단계의 제염 후 동일한 방법으로 처리될 수 있다.

그러나 펌프, 밸브, 기계 부품, 전자 부품류 등 재이용 가능한 오염 대상물 등은 특별히 준비된 제염 시설로 이송하여 제한적 재사용 또는 완전 방출 수준까지 제염하여 재사용 한다.

또한 연구개발 용도의 연구시설의 경우 이 목적이 종료된 후에는 해체가 수행되며, 이때에는 한꺼번에 대량의 폐기물이 발생된다. 이 경우 해체를 위해 대부분 현장에서 오염된 핫셀 표면 및 장비와 기타 시설의 표면을 제염하게 되지만 활용이 가능한 기계 및 전자 장비 등은 인출하여 제염시설로 이송한 다음 제염을 수행하고 잔류방사능의 정도에 따라 제한적 또는 무제한으로 재사용 한다.

나. 제염 대상물 분류

상기 기술한 바와같이 사용후 핵연료 처리공정별 오염대상물은 대부분 고온에서 산화환원에 의한 분말을 취급하는 시설로 유사한 특성을 갖고 있어 제염 대상물의 구조나 재료에 따라 분석/전자 설비류, 기계장치류, 시스템 파이프 및 탱크류, 벽면 및 바닥, Hot Cell 운전폐기물로 분류할 수 있다. 또한 오염물의 제염후 재사용하거나, 재료를 재활용할 수 있는 경우 재사용 대상으로 분류하였고, 건식 제염에 의해 방사능을 제거하기가 곤란한 경우 불용 대상으로 구분하였다. 재사용 대상 및 불용 대상 오염물을 요약하여 Table 3.1.3과 Table 3.1.4에 요약하여 나타내었다.

분석/전자 설비류는 DUPIC이나 차세대 관리공정에서 핵연료 분말 크기 분포 측정장치, 소결체/압분체 길이와 직경 측정 장치, Pellet 무게/밀도/표면 조도 측정장치, 방사화학 분석 장비 등의 측정 및 분석장비이며, 대부분 재사용 대상 오염물로 분류된다. 기계적 설비(Hot Cell 장비 포함) 오염물은 핫셀내 고정설비와 각공정의 제조장비류가 주가 된다. 시스템 파이프 및 탱크류의 재활용 대상은 저온에서 운전된 탱크 및 파이프가 대상이 되며 주로 균분리 공정에서 발생하는 용액 혼합 정치조, 용액 저장 탱크 및 배관재가 이에 속한다. 불용 대상 오염물은 주로 고온에서 운전되는 금속 재질의 경우 핵종이 고착성으로 깊게 오염되기 때문에 재활용하기가 곤란할 것으로 판단되며 이러한 경우는 감용처분 대상이 된다.

바닥 및 벽에 대한 제염대상은 Hot cell stainless steel liners와 콘크리트 오염 표면으로 대별된다. Hot cell 운전폐기물은 대부분 불용 대상이며 불용전에 감용을 위한 제염기술이 요구된다. DUPIC 핵연료 제조 공정에서는 Scrap 폐기물, Cladding hulls, 사용한 필터 및 흡착제, 구조

Table 3.1.3. Classification of reusable contaminants.

고방사능 연구개발 공정 및 시설	제염대상 분류			
	분석/전자 설비	기계적 설비	시스템 파이프 및 탱크류	Floor 및 Wall 표면
DUPIC 핵연료 제조공정	핵연료분말 크기분포 측정장치, 소결체/ 압분체제원 측정 장치, 펠렛무게, 밀도, 표면조도 측정 장치	Rod cutter, Rod slitter, Powder mill, Roll compactor, Mixer, Press, Grinder, Pellet cleaner, Pellet drier		DUPIC Hot cell stainless steel liners
SF차세대 관리공정	방사화학 분석 장비	Consolidation Cell 설비, Pretreatment Cell 설비, Metallization Cell 설비, Smelting & Casting Cell 설비, Radioanalytical lab 설비, Decontamination & Maintenance Cell 설비, Intervention Area 설비		Hot cell stainless steel liners
군분리/ 화학전환 공정		용액이송펌프, M/S manipulator, O/H crane, M/S manipulator, Hot cell handling tool	용액혼합 정치조, 용액저장 탱크 및 배관재	Hot cell stainless steel liners
PIEF/ IMEF	제원측정장비, 와전류 측정기, 감마스캐닝, X-선및산화층측정기, 충격 및 변형측정기, 하이스코프, 열전도도 측정기, 열팽창율 측정기, 동적/정적 인장시험기, 금속현미 경, 미소경도기, 밀도 측정기	핵연료봉절단기, RESIN 주입기, 시편제조장비, 캡슐절단기, 미세 절단기 밀링기기, 방전가공기, 마운팅프레스, 연마기, 레진주입기, 연료채취장치		PIF/IMEF Hot cell stainless steel liners

Table 3.1.4. Contaminants for non-reusable equipments.

고방사능 연구개발 공정 및 시설	제염대상 분류		
	시험 설비	Hot Cell 운전폐기물	비고
DUPIC 핵연료제조 공정	<ul style="list-style-type: none"> . 핵연료봉 절편 저장기 . OREOX furnace . Sintering furnace . 콘크리트 폐기물 	<ul style="list-style-type: none"> . Scrap 폐기물 . Cladding hulls . 사용한 필터 및 흡착제 . 구조물 폐기물 (상하 end plate, 격자, 안내봉 등) . 기타(오염 종이 및 patches 등) 	
SF차세대 관리공정	<ul style="list-style-type: none"> . Oxidation furnace . Reduction reactor . Electrolyzer . Adsorption column . Smelter . Casting machine & tools . 콘크리트 폐기물 	<ul style="list-style-type: none"> . 폐 흡착제 및 필터류 . 의류, 장갑, 플라스틱, paper 	
군분리/ 화학전환 공정	<ul style="list-style-type: none"> . 불화물 제조 장치 . 전해제련 장치 . 환원추출장치 . 콘크리트 폐기물 	<ul style="list-style-type: none"> . 폐 용매 . 폐 흡착제 및 필터 . 의류, 고무, 종이류 	
PIEF/IMEF		<ul style="list-style-type: none"> . Cladding hull 및 구조물 폐기물 (상하 end plate, 격자, 안내봉 등) . 폐 필터류 . 의류, 고무, 종이류 	

폐기물(상하 end-plate, 격자, 안내봉 등), 기타 폐기물(오염 종이 및 patches 등) 등이 있고, SF 차세대관리공정에서는 폐 흡착제 및 필터류, 의류, 장갑, 플라스틱, 휴지 등의 폐기물 등이 포함된다.

다. 시설 및 장비의 오염특성

1) DUPIC 핵연료 제조시험

DUPIC 핵연료 제조시험은 사용후 PWR핵연료를 초기물질로 사용하는 건식공정으로서 사용하는 핵연료물질의 양은 사용후 PWR 핵연료를 기준으로 200kg-U과 농축도 조절을 위해 혼합하는 비조사 UO₂분말 80kg-U으로 구성된다. 취급하는 핵물질의 형태는 절단 연료봉, 분말, 압분체, 소결체, 가공부스러기, 미니 연료봉, 미니연료 다발, 연료봉, 연료다발, 시료 및 기타 시험을 통해 발생하는 폐기물 등이 있다.

DUPIC 핵연료 제조시험은 PIEF저장수조에 저장중인 사용후 PWR 핵연료를 사용한 PIEF 핫셀에서 연료봉의 절단, IMEF M6 핫셀에서의 핵연료 분말제조, 소결체 제조, 연료봉 및 다발제조 등의 작업으로 구성되어, 대부분의 주요 작업은 핫셀내에서 이루어지므로 핵연료 제조시험에 관련한 오염은 핫셀 시설과 핫셀내의 구비장비 등에 국한된다 할 수 있다.

PWR 핵연료를 초기물질로 사용하는 경우, 과거 제염실증시험에 사용한 고리 1호기 핵연료봉(G23M2) 과 사용후핵연료 피복관 시편(A17-D5)의 핵종 분석결과로부터 핵연료봉을 절단하지 않은 상태의 외부표면에 집적된 오염핵종으로는 Co-60, Cs-137, Mn-54, Sb-125 등을 들 수 있으며 외부 표면 오염의 95% 이상은 Co-60로 구성된다. 이에 반해 핵연료봉을 절단하는 경우 Cs-134, Cs-137, Co-60, 및 Eu-154 등의 오염핵종이 주요 오염을 구성하며 특히 Cs 핵종이 전체 오염의 90%이상을 차지하는 것으로 나타났다.

DUPIC 핵연료 제조공정에서 발생하는 방사성폐기물은 Table 3.1.5와 같이 분류할 수 있다.

기체폐기물은 Cs₂O, RuO₂, Xe, Particulate (base:U₃O₈) 등이 주 발생 핵종이며, 이러한 폐기물은 공정단계로부터 배기체 처리공정에 의해 포집된다.

Table 3.1.5. Waste source of DUPIC fuel fabrication process.

폐기물 상태	폐기물 종류
기체 폐기물	휘발성 핵종(T, Kr, I, C 등) 반휘발성 핵종 (Ru, Cs 등) 분말입자
고체 폐기물	Scrap 폐기물 Cladding hulls 사용한 필터 및 흡착제 구조물 폐기물(상하 end-plate, 격자, 안내봉 등) 기타 폐기물(오염 종이 및 patches 등)
액체 폐기물	시험용 소결체의 연마제, 장비 제염용액, 화학폐기물 등

DUPIC 핵연료 제조과정중 핫셀내에서 발생하는 고체폐기물은 cladding hulls 및 구조폐기물, dirty scrap waste, 사용 필터 및 흡수체 등이 있으며 발생량의 대부분을 차지한다.

Cladding hull, dirty scrap 및 폐기체 라인의 폐필터는 핫셀내의 지정 장소에 보관하다가 capsule에 넣어 포함된 핵물질량을 측정한 후 폐기물 드럼에 넣어 RWTF의 monolith로 운반하여 저장한다. 이러한 폐기물은 폐기물 수송용기인 intervention cask를 핫셀 상부의 door에 접속시켜 적재한다. 운반 빈도는 1년에 약 4회 정도로 추정된다.

핫셀 외부에서 발생하는 고체폐기물은 기존시설 즉, PIEF 및 IMEF의 취급절차에 따라 취급한다.

DUPIC 핵연료 제조과정은 건식공정이므로 원칙적으로 핫셀내에서 고준위 액체폐기물은 발생하지 않는다. 따라서 핫셀내외에서 발생하는 폐시편의 세척액, 장비 제염액, 화학분석을 위한 용액등과 같은 액체는 기존의 IMEF 또는 PIEF의 취급절차에 따라 액체 폐기물 저장을 위한 저장탱크에 저장한 후 이를 RWTF로 이송한다.

PWR핵연료를 초기물질로 사용하는 경우, 과거 제염실증시험에 사용한 고리 1호기 핵연료봉(G23M2) 과 사용후핵연료 피복관 시편(A17-D5)의 핵종분석결과로부터 핵연료봉을 절단하지 않은 상태의 외부표면에 집적된 오염핵종으로는 Co-60, Cs-137, Mn-54, Sb-125 등을 들 수 있으며 외부 표면 오염의 95% 이상은 Co-60로 구성된다. 이에 반해 핵연료봉을 절단하는 경우 Cs-134, Cs-137, Co-60, 및 Eu-154 등의 오염핵종이 주요 오염을 구성하며 특히 Cs핵종이 전체 오염의 90%이상을 차지하는 것으로 나타났다.

2) SF 차세대관리공정

입자 및 미세 입자의 층으로 이루어진 막은 Van der Waals 힘 및 정전기력에 의해 표면에 달라붙는다. 이들 힘은 입자들을 표면에 부착시키는 데 충분히 크고 효과적인 것이다. 예로써, 중력 침강에 의해 유리 표면에 침적된 20 μm 크기의 입자를 원심분리기를 사용하여 떼어내기 위해서는 10,000 g 이상이 필요하다. 부착력의 절대적인 크기는 1 dyne 이하로 작지만 입자의 질량과 비교해서는 매우 크다고 할 수 있다. 부착력은 일반적으로 입자의 크기가 감소할수록 더욱 커지게 된다.

입자는 기 중 또는 액 중에서 현탁 상으로 존재하여 이쪽 저쪽으로 이동하게 되며 움직이는 표면에 존재하는 입자들도 움직이는 표면 자체가 다른 표면과 직접적으로 접촉함에 의해 이동하게 된다. 이들 세 가지 이동 기구를 요약하여 Table 3.1.6에 수록하였다.

Table 3.1.6. Contamination migration mechanisms.

이동 매체	이동 방법
기체	오염물은 부유되어 있거나 용해되어 있는 상태로 존재한다. 입자 혹은 방울들은 중력 침강 또는 응축으로 인하여 침적된다.
액체	오염물은 부유되어 있거나 용해되어 있는 상태로 존재한다. 입자 혹은 방울들은 중력 침강 또는 증발로 인하여 침적된다.
고체	포유, 흡착 및 흡수되어있는 오염물은 고체와 함께 이동하게 되고 직접적인 접촉에 의해 전달된다.

1979년 미국 TMI(Three Mile Island)발전소의 사고 시 상당한 양의 오염된 물이 원자로 건물과 보조 및 핵연료 취급 빌딩으로 방출되었으며, 이로 인하여 건물 콘크리트 바닥이나 벽면 등이 방사성 물질로 오염되었고, 각 부위의 방사성 오염정도는 다양하게 나타났다. 대부분의 바닥과 벽면은 특수한 에폭시 코팅으로 보호되어 있으나 시험 결과 방사성물질이 에폭시 코팅 내부로 침투하였고 콘크리트 표면부근에 상당량의 방사성 물질이 잔류한 것으로 나타났다. 특히 페인트칠이 안된 콘크리트 부분이나 코팅 보호막이 벗겨진 부분은 콘크리트 내부로 방사성 물질이 상당량 침투한 것으로 나타났다. 건물 내로 방출된 방사성 물질은 주로 Cs-137과 Sr-90이었으며, 일단 콘크리트 바닥으로 오염물질이 침투한 경우에는 작업자가 연속으로 회수작업을 수행하여도 방사선 준위가 상당히 높아서 사람이 접근하기가 곤란하였다. 그리고 원자로 건물 내에서 작업자에게 미치는 총 방사선 피폭 량의 1/3정도는 콘크리트 바닥으로부터 발생하는 것으로 확인되었다. 아울러 다른 빌딩에서도 비슷한 결과를 나타내었다.

PNL에서는 1990년 DOE의 지원하에 Hanford에 있는 Hot cell중 324와 325 빌딩의 제염해체 프로그램을 수행하였다. 표면에 고정된 방사성물질을 제거하기 위하여 콘크리트 표면으로부터 내부깊이로 적어도 2.5 cm 만큼 절단하였으며, 이 깊이에서 잔존하는 방사능은 2.5 cm의 시멘트를 덮음으로서 차폐하였다. 분쇄된 콘크리트 시편을 취하여 방사화학 분석을 수행하여 고강도 콘크리트 내로 Cs-137 및 Sr-90의 침투깊이를 측정하였다. 분쇄된 콘크리트 시편을 다이아몬드 절단기를 이용하여 일정두께로 절단한 후 레진에 지지시켜 분석하였는데, 측정 결과 시료내의 Cs-137의 경우 전체양 중 50%, Sr-90의 경우 30%가 페인트 층에 존재하는 것으로 나타났고, 오염깊이는 1.0 ~ 1.5 mm로 나타났으며 스트론튬이 세슘보다 콘크리트 내로 침투가 더 많이 된 것으로 나타났다. 결론적으로 페인트칠이 된 콘크리트는 페인트를 제거하고 밑부분 콘크리트를 약 1mm만 제거하면 제염이 가능하며 이러한 침투 깊이는 다른 원자력시설에서도 비슷한 결과를 보여주었다고 보고하였다.

독일에서는 Gundremmingen 원자력발전소 노심내의 콘크리트 샘플을 채취하여 감마스펙트로미터로 분석한 결과, Cs-137과 Co-60 그리고 미량의

Cs-134가 콘크리트 내부로 침투되는 것을 확인하였으며 Cs-137이 총 방사능량의 90%를 차지하였다. 내부로의 침투깊이를 보면 Cs-137이 Co-60보다 침투깊이가 광범위하며 표면에서는 약 250 Bq/g이고 약 5mm깊이에서는 약 100 Bq/g을 보였다. 방사성핵종의 침투깊이는 콘크리트의 특성 즉 다공도, 노출기간 및 오염물질의 조성에 의해 결정되며, Cs-137의 침투깊이가 큰 이유는 세슘은 보통 응축수나 세척수내에서 용해된 염 형태로 존재하지만 코발트의 경우는 용해되지 않은 형태로 존재하기 때문이며 또한 세슘이온은 칼륨이나 나트륨 이온보다도 알칼리성이므로 콘크리트내의 칼륨이나 나트륨과 이온교환되는 것으로 가정할 수 있다. 침투깊이는 방사능의 세기에 영향을 받지 않는 것으로 나타났다.

이상의 결과를 요약하여 보면, 원자력시설내 콘크리트 내부로 침투되는 방사성핵종은 주로 Cs-137, Sr-90 및 Co-60으로 나타났으며 침투깊이는 $Cs \geq Sr > Co$ 의 순이며 방사성핵종의 침투깊이는 콘크리트의 종류 및 시설 사용기간에 따라 다르겠지만 최대 약 5mm정도로 추정할 수 있다.

3) 장수명 핵종 균분리/화학전환 시설의 건식 제염기술

장수명핵종 균분리 공정은 SF를 습식 재처리한 폐액을 대상으로 하기 때문에 기체 오염핵종을 제외한 모든 핵종이 포함되어 있고 고준위로 발생하는 것으로 추정된다. 핵종은 습식 공정으로 대부분 이온 형태로 존재하며, 100 °C 이하에서 운전되므로 국부적 오염이 많으며 재질과는 정전기적 결합을 한다. 화학전환 공정은 500 °C 이상의 고온에서 운전되므로 견고한 고착성 오염 형태이고, SF의 모든 핵종이 포함되며, 불화물 형태와 금속 형태가 공존하는 고준위 오염 시설이다. 주요발생 핵종은 다음과 같다.

- 핵분열 생성물

• Volatile FP : Xe, Kr, Br, I

• Noble & Semi noble Metal : Nb, Mo, Tc, Ru, Rh, Zr, Cd, In, Sn

• Lanthanides : La ~ Lu (원자번호 : 57 ~ 71)

• Stable fluorides : Rh, Sr, Cs, Ba

- TRU, U,

- 배기체의 발생이 많아 국부적 오염보다는 설비 전체로 분산될 가능성이 높음.

상기와 같이 국내 후행핵연료주기 연구개발 공정 및 설비의 분석으로부터 제염 대상 오염설비의 특성은 다음과 같이 추정할 수 있다.

- 대부분 사용후핵연료를 고온에서 산화환원에 의한 분말을 취급하거나 증성자 조사된 재료들을 취급하는 시설들이므로, 오염원은 사용후핵연료 취급 과정 중에 누출되는 TRU 원소와 fission products에 의한 미세 입자성 오염과 큰 에너지 방사선에 의해 방사화된 오염 핵종으로 나눌 수 있음.
- 오염 상태별로는 시설 내부가 화학적으로 안정화된 상태로 유지되어 어느 정도 느슨하게 물리적으로 부착된 알파 입자이며, 일부는 오랜 기간 동안 사용된 점을 감안하면 누출된 오염 핵종이 시설면 표면에서 단순한 물리적 부착 단계를 넘어서 간단한 물리적 제염 기술만으로는 제염되기 어려운 화학적 결합을 하고 있을 것으로 판단됨.
- 오염 형태별로는 대부분 제염 대상이 상대적으로 넓은 면적의 표면 오염(방사화 오염의 경우도 표면에 집중됨)이며, 기기나 부품의 경우 제염 시 문제가 될 수 있는 깊은 홈이나 crevice 등은 많이 존재할 것으로 판단되며 이들 오염면의 기저 물질(base material)이 대개 화학적 attack에 강한 stainless steel 계통의 물질임.

사용후 핵연료처리 공정별 오염특성을 요약하면 다음과 같다.

- DUPIC 핵연료 제조시험 공정
 - SF 절단시 : Tc, I, Kr 등의 배기체 발생
 - 산화 환원 공정 : U_3O_8 , PuO_2 , Cs, Cs_2O , CsI, CsOH, RuO_2 , RuO_4 등의 고온 배기체 및 Hot particulate
 - 탈 피복 및 성형 공정 : U_3O_8 , PuO_2 등의 Hot particulate
- SF 차세대관리 공정
 - SF 분말화 공정 : U_3O_8 , PuO_2 , CsO, RuO_2 등 Hot 입자의 집적오염 형태.

- 사용후핵연료 금속전환 공정 : 공정에서 누출된 사용후핵연료 분말의 집적오염과 U, Pu 등의 용융 금속, CsCl, SrCl₂ 등의 용융염, LiI, Li₂Te 등 핵분열 생성물의 Li화합물이 고착성 오염 형태 또는 배기체 집적 오염물로 존재함.
- 균분리/화학전환 공정
 - 균분리 공정
 - . 습식공정이며 질산 및 용매와 혼재하는 액상폐액에 의한 오염입.
 - . SF내에 존재하는 모든 핵종, 즉 Mo, Tc, Ru, Pd, Rh, Ag, Cd, In, Te, Sn, Sb, Actinide, Rare earth, Sr, Zr, Nb
 - 화학전환 공정
 - . Xe, Kr, I₂, T₃ 등의 배기체오염과 용융염 불화물의 고착성오염
 - . TRU(Am, Pu...)와 Cs, Sr 등의 FP금속과 불화물염의 Slag Phase에 의한 고착성 오염형태
- PIEF/IMEF
 - 조사후 시험시설은 4개의 콘크리트 핫셀과 2개의 납셀로 구성되어 있는 시설로 콘크리트셀에서는 플에서 인수한 핵연료봉의 비파괴시험을 수행하고 화학성분분석용 핵분열생성기체를 채취한 후 절단하여 여러 가지 시험시편을 준비하며, 화학분석 시험을 한다. 납셀에서는 핵연료 시편에 대한 현미경조직시험과 밀도 측정, 반경방향 연소분포 등을 측정한다.
 - 조사재 시험시설은 6개의 콘크리트 핫셀과 1개의 납 핫셀로 구성되어 있으며 핵연료나 원자로 재료의 개발과 관련된 건식 시설로 두 시설은 모두 사용후핵연료 취급 과정 중에 누출되는 TRU 원소와 fission products에 의한 미세 입자성 오염과 큰 에너지 방사선에 의해 방사화된 핵종으로 오염되는 것으로 추정된다.

라. 고방사능 제염 요건

1) 방사성 오염 및 제염표면 특성

가) 오염종류

방사성오염은 고체상태나 용액중에 혹은 가스나 증기상으로 발생된다. 오염은 소량의 방사성 물질에 기인할 수 있으며, 각 원소는 적어도 하나의 방사성 동위원소를 가지고 있으므로 100가지 이상의 원소가 오염을 일으킬 수 있다. 이 많은 수의 오염 가능성때문에 제염문제는 복잡해진다. 그리고, 다음 두 가지 인자가 제염영향인자로서 관여한다 [2.1.4-5].

(1) 오염의 화학적, 물리적 및 방사 화학적 성질

(2) 오염모재(substrate)의 재질 및 표면처리

나) 오염성질

방사성물질이 표면에 붙는 주요 반응기구는 비방사성 물질의 반응기구와 크게 다르지 않지만 방사성 오염과 다른 오염을 구분 짓는 특징은, 방사성 오염의 경우 매우 소량이 관계한다는 점과(즉, $1\text{mCi } ^{32}\text{P}$ 의 무게는 단지 $3.5 \times 10^{-9}\text{g}$) 방사능은 파괴되지 않는다는 점이다. 대부분의 경우에 제거하기 어려운 오염은 크게 세 가지 즉, 용해성(및 이온성), 입자성 그리고 콜로이드성으로 구분된다. 용해성(이온성)오염은, 대부분의 비금속 물질표면에 존재하는 항상 산성의 반응성 그룹과 이온교환이나 물리흡착에 의해 오염모재 표면에 생성된다.

음이온성 오염은 음하전 화학종들 간의 상호반발에 의해 이들 표면으로부터 반발하므로 흡착은 거의 이루어지지 않는다. 그러나 양이온은 산성 표면에 잘 이끌려 부착하기에 좋은 조건이 되며 특히 저농도이고 다가 양이온은 거의 대부분 흡착되어진다. 대부분의 핵분열생성물과 모든 중성 방사성원소는 이 범주에 속한다.

콜로이드 및 입자오염은 부유상으로 부터 흡착되어 오염모재에 침적될 수 있다. 이 오염을 제거하기 위해서는 오염을 용해시키는 특별한 화학제의 사용이 필요하다.

다) 오염에 대한 표면특성의 영향

방사성 오염에 노출되는 재질과 표면처리방법을 선정하기 위해서는 표면오염의 반응기구와 제염에 사용될 수 있는 화학제와 공정을 고려하는 것이 중요하다. 표면은 제염제의 공격에 저항성을 가져야 하며 그렇지 않으면 오염이 더욱 용이해 지므로 제염이 어려워지게 된다. 그러나 실제로는 제염제에 대한 완전한 저항성을 갖추기는 어렵다.

일반적으로 모재로는, 금속성, 유기성 및 유리로 된 세 종류의 표면만이 존재한다. 금속성표면의 경우 양이온성 오염과 모재 사이에 화학적으로 유사하여 오염원자가 이 모재표면의 일부가 될 수 있다. 이러한 경우에 오염이온을 포함한 금속성 표면의 제거에 의해서만 제염이 이루어질 수 있다. 대부분의 금속은, 보호막으로 작용해서 대부분의 오염이 항상 trap되는 표면 산화막을 갖고 있다. 이러한 재질의 경우 막의 제거가 효과적인 제염법이다.

유기성 및 유리질 표면의 오염은 이온교환이 가장 중요하게 관계되는 여러가지 공정에 의해 발생한다. 유리와 포클레인과 같은 유리질 표면 뿐 아니라 페인트, 플라스틱 및 직물과 같은 유기재료는 반응성 산성기를 지니고 있어 이온교환능이 있다. 그러나 상용이온교환수지에 비해 이들 표면의 이온교환능은 실제 매우 낮지만 비교적 고준위의 방사성 이온을 흡착하기에는 충분하다. 이들 산성표면기는 원래부터 존재할 수도 있으며 산화에 의해 생성될 수도 있다. 그리고 hydroxyl, carboxyl 및 silicate 와 같은 매우 높은 극성기를 포함한다. 이러한 관능기는 음이온을 배척하지만 양이온성 오염에 대해서는 쉽게 흡착할 것이다.

라) 제염에 유리한 오염표면 기준

방사선 관리구역내에서 사용할 설비의 표면은 다음과 같은 조건을 만족해야 한다.

- 비흡착성 표면이어야 한다. 실제 다공성물질은 제대로 제염되어질 수 없다.
- 가능한 한 산성기가 포함되어서는 안된다.
- 가능한 한 수분 함유율이 적어야 한다.
- 중금속을 용해시키는 성질을 가진 가소제나 용매의 사용을 피해야 한다

다.

- 제염제에 견딜수 있는 충분한 내화확성을 가져야 한다.
- 어떠한 연마 작용에도 견딜 수 있어야 한다.
- 가능한 한 표면은 매끄럽게 하여 오염면적을 최소화하고, 입자를 함유할 수 있는 틈새등은 피해야 한다.
- 방사선과 열에 저항성이 있어야 한다.

2) 최대 허용표면오염

어떤 종류의 표면에 분포된 방사성 핵종은 외부 방사선장 혹은 핵종 특히 α 방사체의 흡입때문에 인간에게 유해하다. 최대 허용농도값은 선량 상당 제한치로부터 유도된다. 현재 실제 사용되고 있는 최대허용치는 α 방사체의 경우 $10^{-5} \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$, β 및 γ 방사체의 경우 $10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ 이다. 이 허용치는 방사선 관리구역으로부터 제거·이동되어질 수 있는 오염물에 대한 것이다. 그러나 방사선 관리구역내의 물질에 대한 표면오염 최대허용치는 작업조건에 따라 결정되어야 한다.

방사선 관리구역 내에서 고정오염(fixed contamination)의 최대허용치는 제거할 수 있는 오염(grossly removable contamination)의 그것보다 더 높다. 일반 공공구역으로 방출되어질 오염물의 경우 고정오염 준위는 위에 언급한 최대허용치 미만이어야 한다.

최대허용 오염준위는 항상 국제규제기구나 각 국가의 규제기관에 의하여 결정되어진다. 방사성 위해도는 반감기, 방사선 에너지 및 특성, 신체 내에서의 선택 잠복도 및 소멸속도 등과 같은 인자를 고려하여 Table 3.1.7과 같이 정리할 수 있다.

또한 다양한 핵종으로 인한 오염준위에 따른 제염요구사항은 Table 3.1.8과 같다.

3) 대상별 제염요구 고려사항

전 절에서 살펴 본 바와 같이 고방사능 제염기술 적용대상인 후행 핵연료주기의 연구시설 및 장비는 제염조작의 적용위치에 따라, 현장제염과

이송제염으로 구별된다. 현장제염의 경우 핵주기 연구시설과 고방사능 취급 hot cell의 구조물이나 쉽게 이송이 불가능한 규모가 큰 장비가 주로 대상이 된다. 이 경우 주기적 혹은 비정기적 오염에 따른 제염수요에 대비하여 시설건물의 초기 설계·건설단계에서 오염의 억제와 제염설비의 구축이 요구된다. 이에 반해 이송제염의 경우 현장에서의 제염이 용이하지 않고 분해와 이송이 비교적 손쉬운 소규모 장비나 도구 등에 국한되며 주로 오염특성에 따른 다양한 제염기술을 적용할 수 있는 제염장비를 구축한 전용 제염실내에서 제염이 이루어진다. 이 이송제염 대상으로는 관리구역내에서 제염후 재사용할 장비나 도구외에, 최종 처분을 위해 방사

Table 3.1.7. Classification of radionuclides according to relative hazard potential.

Hazard class	Radionuclides
I(very high hazard potential)	Sr-90, Pb-210, Po-210, At-211, Ra-226, Ac-227, Th-228, Th-229, Th-230, Th-231, U-233, Pu-238, Pu-239, Am-241, Cm-242, Cf-252, other transuranic nuclides
II(high hazard potential)	Ca-47, Fe-59, Co-60, Sr-85, Sr-89, Y-91, Ru-106, Cd-109, Cd-115, I-125, I-131, Ba-140, Ce-144, Sm-151, Eu-152, Eu-154, Tm-170, Hg-203, Bi-207, Th-232, natural thorium, natural uranium
III(moderate hazard potential)	Na-22, Na-24, P-32, P-33, S-35, Cl-36, K-42, Ca-45, Sc-46, Sc-47, Sc-48, V-48, Mn-56, Fe-55, Co-57, Co-58, Ni-59, Ni-63, Cu-64, Cu-67, Zn-65, Ga-67, Ga-68, Ga-72, As-74, As-76, Br-82, Kr-85, Rb-84, Rb-86, Y-90, Zr-95, Nb-95, Mo-99, Tc-99, Rh-105, Pd-103, Ag-105, Ag-111, Sn-113, Te-127, Te-129, I-132, Xe-133, Cs-137, La-140, Pr-143, Pm-147, Ho-166, Lu-177, Ta-182, W-181, Re-183, Ir-190, Ir-192, Pt-191, Pt-193, Au-196, Au-198, Au-199, Tl-200, Tl-202, Tl-204, Pb-203, Hg-197
IV(low hazard potential)	H-3, Be-7, C-14, F-18, Cr-51, Ge-68, Ge-71, Sr-87m, Tc-99m, In-111, Tl-201

Table 3.1.8. Contamination levels and decontamination requirements.

Type of Contamination	Contamination Levels(pCi/100cm ²)*		
	Low	Mid	High
Alpha	5-10	10-100	>100
Gamma or High Energy Beta	100-250	250-1000	>1000
Low/Intermediate Energy Beta	1000-2500	2500-10000	>10000
Decontamination Requirements	Should be decontaminated promptly, but may be tolerated in a particular work situation (Must be in a clearly marked radioactive work area)	Must be decontaminated promptly. <i>A Notice of Unsatisfactory Condition</i> will be sent to the Principal Investigator(PI) if decontamination is not completed within one week	Requires immediate action. <i>A Notice of Unsatisfactory Condition</i> will be sent to the PI. Depending on the extent of the contamination, further use may be suspended until decontamination is completed. The PI may be required to report to the Radiation Safety Committee stating the reason for the incident and actions taken to minimize the risk of a repeat

성 폐기물 처분장까지의 이송에 적합한 방사선 준위 수준으로 제염해야 할 장치나 도구 그리고 운전폐기물 등이 포함된다[2.1.4-6].

제염조작 특히 큰 규모의 장비를 대상으로 한 제염의 경우 비용과 시간이 많이 소요되며 더욱이 공정의 부적절한 선택으로 장비의 망실을 초래할 수 있다. 항상 제염기술의 적용은 안전성과 경제성의 두가지 측면에서 타당성을 갖추어야 한다. 안전성 측면에서 보면, 개인의 안전을 보호하기 위해서는 방사선 준위가 충분히 낮아 외부 피폭이나 접촉에 의한 피폭 위

험을 발생시켜서는 안된다. 최대 표면오염의 허용준위는 앞절에서 살펴본 바와 같다. 경제성 측면에서 보면, 제염에 의한 경제적 이득의 평가는, 장비구입 비용, 제염소요 비용, 장비의 물리적 상태, 및 작업절차의 개선 등과 같은 여러 인자가 관계되므로 단순하지는 않다. 제염경비는 주로 초기 오염준위, 원하는 제염수준 및 관련 작업인력 등에 의존한다. 어떤 장비의 경우 너무 오염정도가 심해 장비의 가치에 비해 재사용하기에 필요한 제염에 너무 많은 경비가 소요될 수 있다. 반면에 취급, 검사 혹은 처분이 용이하게 하기 위해 적어도 부분적으로 이러한 장비를 제염하는 것이 필요할 수 있다. 필요없이 매우 낮은 수준까지 제염하는 것은 경제적으로 타당성이 없다. 예를 들면, 방사성 관리구역내 오염지역에서 사용할 도구나 장비는 background levels까지 제염할 필요가 없다. 제염이 간단할수록 필요한 제염 요구사항도 덜 복잡해진다. 예를 들면, 약성 세제에서의 세척이나 침수에 의한 장비의 제염은 일정주기로 규칙적인 제염이 효율적이다. 그러나 취급 시 주의를 요하는 강산이나 다른 강성 화학제를 사용하는 것이 필요한 경우 그리고 여러 단계의 시간이 소요된다면, 고방사선 준위로 인한 과중한 운전비용이 소요될 때까지 제염을 연기하는 것이 바람직하다. 만약 장비가 비교적 새것이라면, 장비를 폐기하는 것보다 제염하는 것이 유리하다. 그러나 그 장비의 유효수명의 마지막에 도달했다면, 새로운 장비로의 대체가 효과적이다. 오염된 장비의 처분은 비교적 고가이며, 제염비용은 새로운 장비로의 대체비용과 오염장비의 처분비용에 대해 평가되어야 한다.

구조가 복잡하고 고가이며 심하게 오염된 장비가 고장났을 경우 필요한 수리가 가능하도록 장비를 제염하는 것이 효과적이다. 제염된 장비에 대한 수리는 훨씬 신속하고 작업이 용이하다. 또한 제염비용은 수리비용의 저감에 의해 보다 크게 상쇄된다. 만약 장비를 현장에서 제염하는 것이 가능하다면 장비의 분해·제거 및 재설치 비용을 절감할 수 있고 미가동 시간을 줄일 수 있는 만큼 이득을 얻을 수 있다.

때때로 방사선 준위가 너무 높아 수리되기 위해서 필히 수리되어야 할 장비가 있을 수 있다. 개선된 작업공정이나 환경으로 인한 이득이 적지 않다. 즉 크게 오염된 장비를 사용한 작업은 특별한 작업공정과 작업복,

제한된 작업시간 등이 요구된다.

제염은 처분 공정을 단순화하는 잇점을 제공하는데 이용될 수 있다. 오염된 장비 특히 고정된 오염이 아닌 경우에 있어서, 처분은 크게 복잡하고 경비가 많이 소요될 수 있다. 현재, 방사선 준위를 낮추기 위해 부분적으로 장비가 제염되며, 잔류방사능을 고정시키기 위해 spray-coating되어진다. 그후 환경이나 작업자에게 오염의 위험성없이 이송되어 처분되어진다.

거의 모든 제염작업은 현장에서 혹은 이러한 종류의 제염작업이 이루어질 수 있는 장비가 갖추어진 제염실이나 제염센터와 같은 특수한 건물에서 이루어진다. 제염비용은 소요된 인력과 특수 장비 소요경비의 합에 의존한다.

고방사능 취급시설 중 방사능 준위가 높고 엄격히 관리되는 관계로 가장 중요한 시설로 여겨지는 hot cell을 중심으로 제염요구사항을 살펴본다.

주기적으로 제염이 요구되는 특수한 형태의 실험실로 정의되는 hot cell은 cell내 방사선준위가 10^3Gy/h 정도인 고방사선장의 유해영향으로부터 효율적인 차폐와 방호가 이루어져야 하며, 방사성물질로 부터 작업자를 완전 격리할 수 있어야 한다. 또한 주기적 제염에 필요한 제염 요구사항을 만족할 수 있게 설계되어야 한다.

hot cell내 vessel의 내부표면은 때때로 vessel내 용액의 방사선 준위보다 더 높은 방사선 준위를 나타낸다. vessel 내면에는 자연현상으로 가장 안정하고 강력한 화합물이 축적되어 단단히 고착된 오염물의 양이 점차 증가하게 된다. 이러한 강력하게 고착된 오염막은 제염 시 많은 어려움을 야기한다. 이 부착 오염물에는 제한된 용해도값을 갖는 염, 수산화물, silicates, chromates, plumbates 및 niobates 등을 함유한다. 특히, 쉽게 가수분해 및 중합되어 콜로이드나 유사콜로이드를 형성하는 Si와 Zr 화합물이 중요하다. 이 결과 Si, Mg, Mn 및 알칼리 금속의 비용해성 수산화물 뿐 아니라 핵종과 결합된 aluminosilicates, ferrosilicates 및 zirconates 등을 생성시킨다. 이러한 고착물은 cell m^2 당 1.5kg 이상의 무게를 나타내며 방사능 농도가 10^{11}Bq/kg 이상이다.

열화되면 이러한 고착물은 탈수반응, 중합, 비결정콜로이드의 결정질로 전화, 결정구조변화 및 확산공정등이 일어나서 더욱 두께가 두꺼워지고 열역학적으로 더 안정하게 된다. 이러한 고착막은 물리, 화학적으로 안정해서 제염시 제염제가 고착막을 용해시키지 못하거나, 적어도 화학적 변형에 의해 고착막을 약하게 하거나 부분적으로 용해시키지 못한다면 효과적인 제염결과를 기대할 수 없다.

hot cell은 극히 높은 방사선 준위에도 불구하고 원격조작 장비를 사용하여 용이하고 효과적으로 그리고 안전하게 제염될 수 있어야 한다. 원격 제어장비는 hot cell의 중요 구성성분이다. cell 에는 제염을 용이하게 하는 보조장치 뿐만 아니라 배기, 분사 및 세척장비 등이 구비된다. 접촉 테이프, wad, 여과지, 신문지 및 다른 여러 가지 흡착제, 스폰지, 래브 plastics 등이 이 단계에서 오염물의 수거에 사용된다. 이 단계후반에 rust spots, 증발염 잔류물, 얼룩지고 기름으로 더럽혀진 spots과 같은 제거가 어려운 모든 visible deposit 및 spots은 별도 처리에 의해 벽 및 장치표면으로 부터 제거된다. 이를 위해 brush, wire brush, steel wool, floor cleaners, rags, maps, sponges, 세척분말, bentonite, 분말 tuff(응회암) 및 다른 흡착제가 사용될 수 있다.

천정, 바다, 벽면과 같은 평평한 표면은 floor scrubber를 사용해서 매우 쉽게 닦여진다. 기름으로 얼룩진 표면은 trichroethylene과 같은 유기 용매에 의해 효과적으로 제염된다.

일반적으로 스테인레스강 표면은 저농도 질산과 증기로 사전 제염된다. 이러한 제염조작을 통해 U, Pu 및 Np은 용해되어 제거된 후 배출용액으로 부터 회수될 수 있다.

그 후의 제염은 AP용액에 이온 옥살산과 혼합물을 사용해서 산화-환원 공정(reduction-oxidation process, Redox)에 의해 수행될 수 있다. 이 경우에 AP용액은 수화되어 산화물을 산화시켜 silicates와 niobates를 깨고 Ru, Ce 등의 핵종을 산화시켜 용매성이 강한 음이온 형태로 전환시킨다. ^{90}Sr 과 같은 2가 원소는 용해성 permanganate 를 형성한다. 또 다른 중요한 방법은 oxalate 공정으로, 이 공정은 옥살산과 hydrofluoric acid의 혼합물에 이어 질산을 적용하는 방법이다. HF는 Zr, Nb 및 Pu과 착물

을 형성해서 silicates를 용해시키는데 동시에 HCl에 비해 금속재질에 대한 부식성이 약하고 더욱 균일한 장점이 있다. 수세척 대신에 운반체로 증기를 사용한 분사제염법도 가능하다.

hot cell내 Pu과 핵분열생성물을 제거하는 데에는 다음과 같은 제염용액을 연속적으로 사용해서 이루어진다: 0.15wt% 세제 -2.2wt% 탈지분말 (0.22% NaOH + 0.45% Na₃PO₄ + 0.6% Na₂CO₃ + 0.1% 세제) -0.22wt% oxalic acid -1wt% NH₂CO₃H -10vol% HNO₃ -0.08wt% NaF -36wt% AP용액 -2.7wt% sulfaminic acid -10wt% oxalic acid -0.1wt% NaOH -0.6% NaOH -oxalic acid - H₂O₂ -물. 그러나 산과 알칼리는 핵분열생성물을 함유한 비용해성 침전물을 제거하는데 비효과적이다. 고압수, 증기 및 세제를 사용하거나 브러쉬, 접착테이프, 바닥세척장치 및 연마분말을 사용한 기계적 제염법이 더 효과적인 결과를 나타낼 수 있다. 탄소강은 ammonium oxalate, ammonium citrate 및 H₂O₂ (OPC) 용액에 의해 효과적으로 제염된다. 알루미늄은 OPC용액, 희석 NaOH 및 oxalic acid-세제 혼합물에 의해 효과적으로 제염된다. 구리와 황동재질의 제염에는 저농도 질산용액이 사용된다. 유리도구의 경우 세제용액과 초음파를 혼합하여 사용하면 효과적으로 제염된다. 페인트 표면은 상용세제, 페인트제거용 용매혼합물 및 물과 증기 혼합물을 분사하여 제염되어 질 수 있다. 이와 함께 제염후 발생 고체폐기물의 취급이 용이한 용융염 제염법 등을 사용할 수 있다.

만약 오염물이 표면에 단단히 부착되어 있지 않다면 분사기에 의한 물과 증기혼합물을 사용한 방법이 효과적이다. air-borne이 되거나 에어로졸을 발생시키는 오염물은 polyurethane foam, glycerin, strippable paint 및 adhesive foil을 사용해서 표면에 고정화되어진다.

만약 cell의 전 내부표면이 스테인레스강으로 lining되어 있다면 제염이 용이할 것이다. 또한 노출표면을 strippable paint로 도장하는 것도 제염효과 면에서 유리한 한가지 방법이다.

마. 제염기술 비교 및 평가

국내의 독창적인 DUPIC, 사용후핵연료 차세대관리 등의 건식재활용 및 처리공정의 개발을 위해서는 고방사능 시설 및 취급장비가 요구되며, 연구개발 활동으로부터 운영되는 시설 및 장비는 초우라늄 및 핵분열 생성물로 이루어진 입자성의 고방사능 알파핵종에 의해서 오염된다. 시설의 유지 및 보수시에는 제염작업을 통해 방사능 준위를 낮추어 작업자 피폭을 감소시켜야하며, 장비의 재활용 및 발생폐기물의 저준위화에 의한 고준위 폐기물의 저감을 위해서도 제염작업이 필수적이다. 제염대상 시설 자체가 건식 처리공정을 채택하는 시설이므로 건식 제염 기술의 적용이 요구된다.

이미 앞절에서 언급한바와 같이 고방사능 시설에서 발생하는 제염대상 오염물은 오염정도, 형상 및 제염의 난이도를 고려하여 계측 및 전자 기기류, 기계 장치류, 계통 배관 및 탱크류, 벽면/바닥 구조물 및 hot cell 운전폐기물로 분류되었다. 따라서 본 절에서는 분류된 제염대상물에 대하여 제염기술의 요건을 파악하고, 이에 근거한 적용 가능한 건식 제염기술을 제염성능, 이차폐기물의 발생정도, 기술 적용의 제한성, 원격조작 가능성 등 여러 인자들을 고려한 기술의 장단점 측면에서 고찰하고 비교 평가하여 기술을 선정하였다.

□ 계측 및 전자 기기류 제염기술

계측 및 전자 장비 등은 비교적 고가이며, 재활용 대상 오염물로서 재활용이 가능하기 위해서는 제염에 의한 장비의 손상이 없어야 하고 장비의 기능이 그대로 유지되어야 한다.

적용 가능한 제염기술로 탄소는 연마제염, dry 진공 제염, 프레온 제염 및 PFC 제염이 선택될 수 있다. 이들 제염기술은 이차폐기물의 발생이 거의 없다는 장점이 있다. 액상으로 적용되는 프레온 제염이나 PFC 제염에 비해 탄소는 연마제염 및 dry 진공제염은 배기체 처리를 위한 장치가 요구되지만 제염비용은 상당히 저렴하다고 알려져 있다. PFC는 가격이 비교적 고가인 단점이 있으나 제염 후 여과 및 증류공정에 의해 PFC 자체를 회수할 수 있으므로 비용 면에서는 거의 대등하다고 할 수 있다.

계측 및 전자장비의 외부 표면의 제염에는 이들 제염기술이 공통적으로 적용 가능하다. 그러나 분석 장비의 대부분은 작은 틈새나 내부 전자부품 등에서 발생하는 열의 방출을 위한 비교적 넓은 통로가 존재하고 있어 내부로의 오염 가능성도 배제할 수 없다. 구조가 복잡한 전자장비의 내부 오염을 제거하기 위해서는 일부는 분리하여 제염하여야 한다. 특히 탄소는 연마제염 및 dry 진공제염은 제염장비의 노즐 또는 head 부분이 접근 가능한 오염물에 사용이 가능하므로 제염대상물로의 접근성에 다소 제약을 받는다. 이에 반하여 프레온 및 PFC 제염은 고압분사 및 초음파 장치를 사용하여 액상에서 제염을 수행하므로 형태가 복잡하고 다양한 종류의 계측 및 전자장비를 비교적 원래의 상태를 유지하면서 작은 틈새까지 효과적으로 제염이 가능하다. 프레온은 오존층 파괴를 유발시키는 물질로써 현재 환경친화적인 PFC 물질로 대체되고 있으며, PFC는 프레온 제염에 비해 훨씬 미세한 입자를 더욱 효과적으로 제거할 수 있다고 보고되고 있다.

이상의 결과를 종합하여 비교 평가한 결과를 아래에 정리하여 수록하였다.

평가항목 제염기술	제염성능 ^A	이차폐기물 발생/처리 ^B	경제성 ^C	기술적용 제한성 ^D	원격조작 가능성 ^E
탄소연 연마제염	○	○	●	○	●
Dry 진공제염	○	○	○	○	●
프레온 제염	○	○	○	●	●
PFC 제염	●	●	○	●	●

A) ● : 매우 우수 ; ○ : 우수

B) ● : 발생 거의 없음, 처리가 용이 ;

○ : 발생 거의 없음, 기체처리 필요

C) ● : 매우 경제적 ; ○ : 경제적

D) ● : 제염매체의 대상물로의 접근성 우수 ; ○ : 접근성에 제약

E) ● : 가능 ; ○ : 불가능

F) 분사체는 PFC 사용

□ 기계 장치류 제염기술

기계 장치류는 크기 및 용도에 따라 크게 세 가지 정도로 분류할 수 있다. 즉, 비교적 소형의 공구류 및 기계 부품류, 중형의 공작기계, 공정 장치류 및 원격조작 설비와 대형의 이송설비인 O/H 크레인 등이다. 따라서 기계 장치류의 제염기술로는 세 가지로 분류한 오염 대상물에 따라 여기에 적합한 제염기술의 요건을 제시하고, 이에 근거한 제염기술을 고찰하였다.

소형의 공구류와 기계 부품류는 공정 및 기계장치의 유지 보수 시 발생하는 오염물로써 공구류는 대부분 재활용이 가능한 반면에 기계 부품류는 저준위화 또는 감용을 위한 폐기물로써 처리된다. 이러한 목적을 달성하기 위한 제염기술로는 이산화탄소 연마제염, grit 연마제염, 진동연마제염, PFC 제염 및 초임계 이산화탄소 제염 등이 적용될 수 있다. 이산화탄소 연마제염 및 PFC 제염기술이 loose한 오염물의 제거에 효과적인데 반하여 grit 연마제염 및 진동연마제염은 비교적 고착성의 오염물에 더욱 효과적이다. 이 방법은 단시간에 높은 제염계수를 얻을 수 있고 비교적 복잡한 형상의 부품에도 적용 가능하다는 장점이 있으나 연마제 자체가 이차폐기물로 발생된다는 단점이 있다. 한편 공구 및 기계 부품류는 grease나 oil로 혼합된 오염물로 발생될 여지가 많으며, 이때에는 이산화탄소 연마제염, PFC 제염 및 초임계 이산화탄소 제염이 사용될 수 있으나, 초임계 이산화탄소 제염이 매우 효과적인 것으로 알려지고 있다.

중형의 공작기계, 공정 장치류 및 원격조작 설비는 대체적으로 유지보수 시 제염이 필요하게 되며 이때 교체가 필요한 구성품은 현장에서 외부 표면만을 제염한 후 이송하여 저준위화 및 감용을 위한 제염작업을 실시하게 된다. 대부분의 공작기계, 공정 장치 및 원격조작 설비의 제염은 hot cell 내의 현장에서 이루어지게 된다. 따라서 현장에서의 제염기술로는 이산화탄소 연마제염 및 고압으로 분사되는 PFC 제염이 적용 가능하다.

마찬가지로 대형의 O/H 크레인 등의 표면 또한 이산화탄소 연마제염 및 고압으로 분사되는 PFC 제염이 적용 가능하며, 이때에는 분사되는 PFC의 회수 및 재사용을 위한 장치가 설치되어야 할 필요가 있다.

이상의 결과를 종합하여 비교 평가한 결과를 아래에 정리하여 수록하였다.

평가항목 제염기술	제염성능 ^A		이차폐기물 발생/처리 ^B		경제성 ^C		기술적용 제한성 ^D		원격조작 가능성 ^E	
	S	ML	S	ML	S	ML	S	ML	S	ML
이산화탄소 연마제염	○	○	○	●	●	●	●	○	●	●
유동 연마제염	●		×		○		○		○	
Grit 연마제염	●		×		○		○		○	
진동연마제염	●		×		○		○		○	
PFC 제염	○	●	●	○	○	○	●	●	●	●
초임계 CO ₂ 제염	○		○		○		●		○	

A) ● : 매우 우수 ; ○ : 우수

B) ● : 처리 용이 ; ○ : 특별 처리장치 필요 ; × : 폐기물 발생과다

C) ● : 매우 경제적 ; ○ : 경제적

D) ● : Grease 및 oil 오염물에도 효과적 ;

○ : Grease 및 oil 오염물에 제약

E) ● : 가능 ; ○ : 불가능

S : 소형 공구류 및 기계 부품류 ; ML : 중·대형 공작기계, 공정장치 원
격조작 설비 등

□ 계통 배관 및 탱크류 제염기술

계통배관 및 탱크류는 재활용 대상 및 불용 대상으로 분류하여 각각의 목적에 적합한 제염기술을 고찰하였다. 재활용 대상은 저온에서 운전된 배관 및 탱크류 등이고 불용 대상은 고온에서 운전되는 반응조 및 관련 장치 등이다.

이들 배관 및 탱크류는 주로 내부 표면이 오염되어 있고, 주로 습식 분위기 및 고온 하에서 운전되는 공정으로부터 발생되기 때문에 비교적 고착성의 오염물이 존재한다. 따라서 내부표면에 적용 가능한 제염기술을 선정하였다. 이 목적에 적합한 제염기술로는 회전 솔질 연마 (rotating brushes/ honing)제염, grit 연마제염 및 회전 캐비테이션 물분사(rotating cavitation water jet)제염 등이 사용될 수 있다.

회전 솔질 연마제염은 적용이 간단하지만 배관을 연결하는 조인트 및 L 자형의 굽은 관을 제염하기 어렵고, 작업자의 피폭을 초래하는 단점이 있다. 또한 grit 연마제염은 맨홀 등과 같은 구멍을 통해서 내부 표면으로 접근해야 하는 제한적인 측면이 있어 주로 탱크류 내부표면의 제염에만 국한되고 배관의 제염에는 경제적이지 못할 뿐만 아니라 바로 근접한 표면 이외의 오염물 제거가 용이하지 않다. 회전 물 분사 제염에는 물이 사용되어 습식방법이긴 하지만 물 대신 PFC 등으로 대체하면 적용이 가능하고, 특히 배관의 제염에 적절하도록 설계가 가능한 장점이 있다. DOE의 조사 분석에 따르면 원자로 계통의 스테인레스 강 및 탄소강 표면에 존재하는 고착성 crud/산화막, 핵연료 재처리 공정의 스테인레스 강 표면에 U/TRU/FP가 포함되어 오염된 유기성 침적물 및 우라늄 농축 공정의 우라늄 오염물은 상기 열거한 제염방법에 의해서 효과적으로 제거가 가능하다고 보고되고 있다.

이상의 결과를 종합하여 비교 평가한 결과를 아래에 정리하여 수록하였다.

평가항목 제염기술	제염성능 ^A		이차폐기물 발생/처리 ^B		경제성 ^C		기술적용 제한성 ^D		원격조작 가능성 ^E	
	P	T	P	T	P	T	P	T	P	T
	회전 솔질 연마제염	●	●	○	○	●	●	○	○	●
Grit 연마제염	●	●	×	×	○	○	○	○	○	○
회전캐비테이션 분사제염 ^F	●	●	●	●	○	○	○	○	●	●

A) ● : 매우 우수 ; ○ : 우수

B) ● : 처리 용이 ; ○ : 기체처리/포집장치 필요 ; × : 폐기물량 과다

C) ● : 매우 경제적 ; ○ : 경제적

D) ● : 배관에 최적 ; ○ : 배관 형태에 제한적

E) ● : 가능 ; ○ : 불가능

F) 분사체는 물 대신 PFC 사용 가능, P : 계통 배관류 ; T : 탱크류

□ 벽면, 바닥 및 천장 구조물 제염기술

벽면, 바닥 및 천장 구조물은 주로 hot cell 내·외부를 대상으로 재활용 대상 및 불용 대상을 구분하였다. 재활용 대상은 stainless steel liner이고 불용 대상은 콘크리트 오염표면으로써 제염 면적의 대소 및 위치에 따른 제염기술의 적용성 측면에서 제염기술을 선정하였다.

바닥, 벽 및 천장에 관계없이 현재 상용화되어 적용되고 있는 기술로는 이산화탄소 연마제염 기술과 자동화된 연삭 (automated grinding) 제염이며, 그 외에도 grit 연마제염, shot 연마제염 및 고압 분사제염이 적용 가능한 제염기술로 선택될 수 있다. 이산화탄소 연마제염은 원격조작이 가능하며, 부가적인 이차폐기물 발생 문제가 없다는 장점이 있으나, 근접한 표면상의 오염물 이외에는 제거가 어렵고 소음을 차단할 수 있으면서 입자를 가뒀을 수 있는 밀폐된 공간에서 적용하여야 하며, 배기체처리 및 공조가 반드시 요구된다. 자동화된 연삭 제염은 작업자의 피폭을 최소화할 수 있으나, 기중 오염을 방지하기 위한 폐기물을 포집 장치가 요구된다. Shot 연마제염은 원격조작이 가능하고 분진 발생이 없다는 장점이 있으나 사용된 shot를 깨끗하게 유지하여야 한다.

이상의 결과를 종합하여 비교 평가한 결과를 아래에 정리하여 수록하였다.

평가항목 제염기술	제염성능 ^A	이차폐기물 발생/처리 ^B	경제성 ^C	기술적용 제한성 ^D	원격조작 가능성 ^E
이산화탄소 연마제염	●	○	●	●	●
자동화된 연삭제염	●	○	●	●	●
Grit 연마제염	○	○	○	○	○
Shot 연마제염	○	○	○	○	●
고압 분사제염 ^F	●	○	○	○	●

- A) ● : 매우 우수 ; ○ : 우수
- B) ● : 발생 거의 없음, 처리용이 ; ○ : 발생 거의 없음, 기체처리 필요
- C) ● : 매우 경제적 ; ○ : 경제적
- D) ● : 바닥, 벽, 천장에 적용 ; ○ : 바닥에 주로 적용
- E) ● : 가능 ; ○ : 불가능
- F) 분사체는 PFC 사용

□ Hot cell 운전폐기물

Hot cell 운전폐기물은 대부분 불용 대상으로써 저준위화 또는 감용을 위한 전처리 제염 기술이 요구된다. 상기 분류된 각각의 제염대상물별, 오염형태별 제염요건 및 적용 가능한 건식제염기술을 고찰한 결과를 종합적으로 요약하여 Table 3.1.9에 나타내었다.

Table 3.1.9에 수록된 제염기술중 PFC 제염에 사용되는 PFC는 비활성 유체로써 화학적으로 안정하고 전기절연성이 우수하다. 밀도가 커서(물의 약 1.6배) 표면에 부착된 오염입자에 대하여 큰 에너지를 가할 수 있고, 점도 및 표면장력이 낮아(물 : 72 dyne/cm, PFC : 약 20dyne/cm) 표면의 적음성이 우수하고 틈새 접근이 용이하여 노출성 뿐만 아니라 비노출성 표면에 대한 제염 적용이 가능하다. 이와같은 기술적 특성에 의해서 PFC 제염은 전자 및 계측설비, 비노출성 기계장치류, 배관류, 바닥 및 시설 벽면에 대한 제염공정으로 적용성이 좋은 기술이다.

CO₂ 분사제염 기술은 sand blasting, plastic bead blasting 및 soda blasting과 마찬가지로 가압공기나 혹은 다른 inert 가스로 분사되어 표면을 제염하거나 전처리 하게 된다. 이 경우, 표면에 충격을 주는 매체는 고상의 CO₂ 입자이다. 분사 매체로 dry ice 입자를 사용하는 특징은, 표면과 충돌 시 이들 입자가 곧바로 승화된다는 것이다. 표면-pellet간 충돌 에너지와 매우 신속한 열전달이 고상의 CO₂를 순간적으로 가스로 승화시킨다. CO₂가 승화되기 때문에, dry ice 분사제염법은 2차 폐기물을 생성시키지 않는다. 남아서 수거되는 것은 제거된 오염물 뿐이다.

이 기술은 원격조작이 용이하고 다양한 오염 모재의 제염에 적용성이 우수하며, 비교적 장치 및 운영비가 적다는 장점이 있다. 이와같은 기술적 특성에 의해서 CO₂ 분사제염법은 시설벽면과 바닥, 노출성의 기계장치류 그리고 부분적으로 전자 및 계측류의 제염기술로서 선정될 수 있다.

Table 3.1.9. Selection of decontamination technologies on contaminated facility and equipments.

Decontamination Technique	AE ¹⁾	ME ²⁾		PT ³⁾		FW ⁴⁾	TW ⁵⁾
		L ^{a)}	H ^{b)}	L ^{a)}	H ^{c)}		
PFC (Cleaning, Ultrasonic, High pressure, Rotating cavitation jet)	●	●	○	●	○		○
CO ₂ snow/pellet blasting	●	●	○			●	
Grit blasting		●		○	○	○	
Shot blasting		○				○	
Dry vacuum cleaning	○						
High pressure freon	○		○			○	
Vibratory finishing		●					
Rotating brushing/honing				●	●		
Automated grinding						●	
Plasma			○		●		
Strippable coating						○	
Supercritical CO ₂			●				

- 1) Analytical and electronic instruments
- 2) Machine tool and machinery
- 3) System piping and tanks
- 4) Floors, walls and ceilings
- 5) Technological wastes generated from hot cell

- a) Smearable loose contamination
- b) Contaminated with grease or oils
- c) Fixed contamination or oxide incorporated

● Preferred/Probable

○ Potential/Possible

플라즈마 처리 공정은 플라즈마를 이용해 이들 표면 오염 핵종과 휘발성 화합물 생성 반응성이 매우 높은 원소/원자들을 발생시켜 오염원인 방사성 핵종 만을 선택적으로 기화시켜 제거하는 방식이다. Co, Fe, Ni, Cr, Mn, Mo, Tc, Ru, Rh와 같은 방사성 부식 생성물(CP)이나 핵분열 생성물(FP)의 1차측 방사성 오염 제거에는 대개 탄소화합물(carbonyl compounds)을 형성할 수 있는 혼합 기체 플라즈마를 사용하고 U, Pu와 같은 TRU들의 경우는 불소화합물(fluoric compounds)을 생성하는 기체 플라즈마를 이용한다. 이처럼 플라즈마를 이용한 건식 제염에서는 플라즈마 장치의 설계 및 제작과 함께 어떤 혼합 기체를 어떤 조건, 즉 어떤 공정을 채택하는가 하는 것이 플라즈마 건식 처리 연구의 핵심이다. 플라즈마 공정은 단시간에 휘발하여 오염물을 제거하며, 견고히 고착된 금속표면 산화층 오염의 경우에 적용성이 우수한 특성을 보이므로서 기계장치류나 계통/배관류의 고착성 오염물의 제염 기술로 선정되었다.

바. 제염공정 구성

국내에서 독창적으로 개발하고 있는 경중수로 연계 핵연료주기(DUPIC), SF차세대관리, 핵종변환 등의 처리공정은 고방사능 건식 Hot Cell에서 원격조작에 의해서 처리되는 공정으로 시설의 연구개발 및 운영 시 시설 및 장비는 초우라늄(TRU) 및 핵분열 생성물에 의해서 대부분이 고방사능 알파핵종으로 오염된다. 이러한 시설의 유지를 위해서는 주기적으로 제염하여 작업환경을 개선하여야 하며, 시험장비의 보수 및 교체에도 제염하여 방사능 준위를 낮추어야 한다.

제염대상 설비는 크게 이송제염 설비와 현장제염 설비로 대별된다. 이송제염설비는 소형의 운전장비(기기, 부품 등), 시험장비 및 운전폐기물들이 주가 되며, 현장제염설비는 Hot cell 내부와 Hot cell 내에 고정 설치된 대형 장비들로 분류된다.

대부분의 오염설비는 장비표면이나 내부에 미세 분말형태로 부착되어 있으며 오염 설비의 재질에 따라 적합한 제염법을 선정하여 방사성 준위를 기준치 이하로 낮추어야 한다. 현장제염은 1단계로 원격조작에 의해서 작업자가 접근하여 조작성이 가능하도록 제염하며, 필요에 따라 2단계의

제염을 할 수 있다. 1단계 제염공정은 앞에서 기술한 바와 같이 CO₂ 고압 분사제염법이 유용하고, 표면 비노출성 오염물에 대해서는 PFC유체 제염, 견고히 부착된 오염물에 대해서는 플라즈마 또는 초임계 유체 제염기술의 복합공정으로 구성된다.

대상 제염설비의 주가 되는 이송제염 설비인 경우에는 오염 설비/장비 등을 제염 전용 Hot cell로 이송하여 제염하여 재사용 또는 저준위 폐기 기물화 한다.

이송제염에서 고려되는 주요 기술은 다음과 같다.

- 오염설비의 확인과 분리를 위한 측정과 분류
- 오염설비의 이송
- 대상설비에 적합한 제염공정
- 후처리 기술

대부분의 알파함유 폐기물의 관리전략에 있어서 필수적인 요소는 시설 물내의 핵종 함량을 측정하는 것이다. 측정은 대부분의 폐기물이 비균질 성이고, 표본시료와 일치하지 않기 때문에 비파괴분석 기술을 이용한다. 측정의 목적은 책임계제어, 물질계량, 방사선 방어 및 일련의 처리과정에 대한 정보를 얻기 위함이다. 이송제염 대상 설비는 재활용설비, 불용설비 및 운전폐기물로 구성되어 제염목적에 따라 분류하여야 한다. 오염설비는 발생장소에서 사전에 분류하거나 제염전용 Hot cell에서 분류할 수 있다. 분류기술은 수동접촉 방법, 수동 원격 취급방법 및 원격 자동시스템을 고려할 수 있다. 이와 같은 분류방법은 제염목적과 포장 및 이송에 관련되는 인자를 고려하여야 한다.

제염전용 Hot cell에 이송된 오염설비는 설비 및 오염 특성에 따라 적절한 제염공정을 선정하여 제염하게 된다. 제염설비의 최종처리 단계로서 후처리기술에 의해서 세척 및 건조 또는 추가제염기술 등이 포함된다.

고방사능 건식제염기술은 오염설비별로 현장제염설비와 이송제염 설비로 구분되며, 노출표면 제염에는 CO₂분사제염기술이 가장 값싸고 고방사능 적용을 위한 원격장치화도 용이하여 노출표면 주 제염기술로 선정하였으며, 이 기술은 전처리 건식제염기술로도 활용될 수 있다. 표면 비노출성 오염물의 제염과 미세분진 오염물 제염에는 PFC제염기술이 가장 값싸

고 원격장치화 및 제염폐기물처리가 용이하여 주 제염기술로 선정하였으며, 오일이나 글리이스 등 유기오염물 제염을 위해서는 초임계CO₂ 유체 제염기술이 효과적이다. 또한 견고히 고착된 오염물 제염을 위해 Plasma 제염기술을 선정하였고 재사용을 위한 후처리 제염기술로도 사용될 수 있다.

후처리 기술은 제염설비의 최종처리 단계로서 세척 및 건조, 제염후 탈리된 고방사능 핵종 및 분진의 포집, 재활용을 위하여 무구속 기준치이하의 방사능 준위로 낮추기 위한 추가제염기술 등이 포함된다. 세척기술은 일방적으로 적용되고 있는 증류수나 세제의 세척에 의해서 잔존하는 핵종이나 불순물을 제거하고, 건조는 hot air를 분사한다.

PFC 건식 제염공정은 비활성의 Perfluorocarbon (PFC) 용액에 저농도의 고분자량 fluorocarbon 유기 계면활성제를 첨가한 용액을 순환시킴으로써 오염부를 세척하는 공정으로 제염 공정에 의해서 오염 표면에서 용액 중으로 입자가 떨어져 나와 분산된 현탁 입자들은 정밀여과막이나 한외여과막과 같은 분리 공정을 통하여 세척 용액으로부터 분리한다. 여과를 하면 주기적으로 여과된 입자를 처리할 수 있거나 역류 여과가 가능하여야 한다. PFC는 비교적 고가이기 때문에 경제적 비용을 고려하고, 2차 폐기물의 발생을 억제하기 위해서 회수 및 재활용한다. 사용된 세척액은 부유 입자를 제거한 후 회수하고 세척액의 조성비를 유지하기 위하여 부가적으로 계면활성제와 매개액을 첨가한다.

CO₂를 사용한 제염은 dry ice pellets이나 오리피스를 통한 단열팽창에 의해 생성되는 dry ice snow 등의 고상 매체를 이용하는 방법으로 CO₂의 용매로서의 성질과 고정상으로 충격을 가함으로써 발생하는 모멘텀이나 에너지 전달효과에 의존한다. pellet계의 경우 오염제거를 위한 macroscopic pellets의 높은 충돌속도에 관계된 열 및 기계적 에너지에 의존하며, dry ice snow의 경우 노즐형태와 단열팽창 공정에 좌우되는 snow 입자의 모멘텀 전달효과에 의존하다. 제염시 표면-pellet간 충돌에너지에 의해서 고상의 CO₂를 순간적으로 가스로 승화시키기 때문에 CO₂ 분사제염법은 2차 폐기물을 생성시키지 않는다. 표면으로부터 분리된 미세 오염입자는 기상여과에 의해서 포집하여 수거하게 된다.

3. 결과 요약

가. 오염설비별 제염기술개발 요건 및 기술수요

DUPIC, 사용후핵연료차세대관리, 장수명핵종 전환 및 핵주기시험시설의 오염특성 및 시설폐기물 발생특성은 공통적으로 사용후 핵연료 건식처리 연구개발시에 발생하는 오염시설로 대부분이 고방사능 알파 오염폐기물이며, 사용후핵연료처리 단위공정의 조업조건에 따라 오염물의 물리화학적 조성과 오염물의 침투 및 부착 특성이 다르다.

제염대상 오염물은 오염정도, 형상 및 제염의 난이도를 고려하여 분석 및 전자 설비류, 기계 장치류, 계통 배관 및 탱크류, 벽면 및 바닥 구조물 및 hot cell 운전폐기물로 분류하였다. 분류된 제염대상물에 대하여 제염기술의 요건을 파악하고, 이에 근거한 적용 가능한 건식 제염기술을 제염성능, 이차폐기물의 발생정도, 기술 적용의 제한성, 원격조작 가능성 등 여러 인자들을 고려한 기술의 장단점 측면에서 고찰하고 비교 평가하였다.

오염특성은 대부분 사용후핵연료를 고온에서 산화환원에 의한 분말을 취급하거나 증성자 조사된 재료들을 취급하는 시설들이므로, 사용후핵연료 취급 과정 중에 누출되는 TRU 원소와 fission products에 의한 미세 입자성 오염과 큰 에너지 방사선에 의해 방사화된 오염 핵종으로 나눌 수 있다. 오염 상태별로는 시설 내부가 화학적으로 안정화된 상태로 유지되어 어느 정도 느슨하게 물리적으로 부착된 알파 입자이며, 일부는 오랜 기간 동안 사용된 점을 감안하면 누출된 오염 핵종이 시설면 표면에서 단순한 물리적 부착 단계를 넘어서 간단한 물리적 제염 기술만으로는 제염되기 어려운 화학적 결합을 하고 있을 것으로 판단된다.

오염 형태별로는 대부분 제염 대상이 상대적으로 넓은 면적의 표면 오염이며, 기기나 부품의 경우 제염 시 문제가 될 수 있는 깊은 홈이나 crevice 등이 많이 존재할 것으로 판단되며 이들 오염면의 기저 물질(base material)이 대개 화학적 물질에 내성이 강한 stainless steel 계통의 물질이다.

제염기술 수요는 현장제염 기술수요 보다는 오염설비 및 장비 등을 이송하여 제염전용 Hot Cell에서 제염하여 재사용 또는 저준위 방사성 폐기

물화하는 이송제염기술 수요가 더 많을 것으로 판단된다.

나. 건식제염기술 선정 및 공정흐름도 도출

TRU(Pu 등), 알파 분진 등으로 오염된 폐기물(Hot Cell, 대형 Blowe Box, Hot Cell재료, 방독면 등)의 건식제염 기술은 미국(PNL, W.H., HPSI 등), 영국(Harwell), 일본 등 선진국에서 주로 TRU/알파 폐기물의 재사용 또는 저준위폐기물화를 목적으로 기술개발 중에 있으며, 대부분 사용후핵연료 습식재처리에서 나오는 오염물이기 때문에 중준위 TRU/알파 오염물의 제염에 대한 연구이었다. 그러나, 사용후핵연료 건식처리에서는 고방사능 오염물이 발생하며 고방사능 오염물에 대한 제염기술개발은 초기 연구단계에 있다.

고방사능 알파 오염물의 건식제염기술은 기존의 물리적 제염기술이외에 최근 제염효율이 우수하고, 감용처리가 어려운 오염물을 대상으로 하여 새로운 기술이 연구개발되고 있는 추세이다. 최근에 연구 개발되고 있는 건식제염 기술로는 PFC제염 기술, 가스화 및 가스화/초임계 유체/플라즈마기술에 단일 또는 복합공정에 대한 기술 등을 들 수 있다. 제염대상 오염물의 모재의 표면 특성 및 대상핵종에 따라 제염기술의 적용은 다르며, 대부분의 경우 단일 공정보다는 복합제염 공정으로 구성되어 진다.

고방사능 건식제염기술은 오염설비별로 현장제염설비와 이송제염 설비로 구분되며, 노출표면 제염에는 CO₂분사제염기술이 원격조작이 용이하고 다양한 오염 모재의 제염에 적용성이 우수하며, 비교적 장치 및 운영비가 적다는 장점이 있어 노출표면 주 제염기술로 선정하였다. 이와같은 기술적 특성에 의해서 CO₂ 분사제염법은 시설벽면과 바닥, 노출성의 기계장치류 그리고 부분적으로 전자 및 계측류의 제염기술로서 적용될 수 있다. 표면 비노출성 오염물의 제염과 미세분진 오염물 제염에는 PFC제염기술이 원격장치화 및 제염폐기물처리가 용이하여 주 제염기술로 선정하였다. PFC는 비활성 유체로써 화학적으로 안정하고 전기절연성이 우수하며, 밀도가 크고 점도 및 표면장력이 낮아 표면의 젖음성이 우수하고 틈새 접근이 용이하여 노출성 뿐만 아니라 비노출성 표면에 대한 제염 적용이 가능하다. 이와같은 기술적 특성에 의해서 PFC 제염은 전자 및 계측설비, 비

노출성 기계장치류, 배관류, 바닥 및 시설 벽면에 대한 제염공정으로 적용성이 좋은 기술이다. 플라즈마 공정은 단시간에 휘발하여 오염물을 제거하며, 견고히 고착된 금속표면 산화층 오염의 경우에 적용성이 우수한 특성을 보이므로써 기계장치류나 계통/배관류의 고착성 오염물의 제염 기술로 선정되었다.

제염대상 오염물의 특성에 따라 선정된 제염기술을 바탕으로 하여 고방사능 건식제염 복합공정 개념도를 도출하였다.

후처리 기술은 제염설비의 최종처리 단계로서 세척 및 건조, 제염후 탈리된 고방사능 핵종 및 분진의 포집, 재활용을 위하여 무구속 기준치이하의 방사능 준위로 낮추기 위한 추가제염기술 등이 포함된다. 세척기술은 일반적으로 적용되고 있는 중류수나 세제의 세척에 의해서 잔존하는 핵종이나 불순물을 제거하고, 건조는 hot air를 분사한다.

제 2 절 건식제염 단위기술 성능 평가

1. PFC 제염기술

가. 서 문

국내의 독창적인 경중수로연계 핵연료주기 (DUPIC), 사용후핵연료 차세대관리 등의 건식재활용 및 처리공정의 개발을 위해서는 고방사능 시설 및 취급장비가 요구되며, 연구개발 활동으로부터 운영되는 시설 및 장비는 초우라늄 및 핵분열 생성물로 이루어진 입자성의 고방사능 알파핵종에 의해서 오염된다. 고방사능 물질 취급시설의 유지 및 보수 시에는 제염작업을 통해 방사능 준위를 낮추어 작업자 피폭을 감소시켜야하며, 시험장비의 보수 및 교체 시에도 제염하여 방사능 준위를 낮추어야 한다. 또한 시설 및 장비의 해체 시에는 많은 량의 고방사능 알파 폐기물이 발생하게 되어 장비의 재활용 및 발생폐기물의 저준위화에 의한 고준위 폐기물의 저감을 위해서도 제염작업이 필수적이다. 또한 제염대상 시설 자체가 건식 처리공정을 채택하는 시설이므로 건식 제염 기술의 적용이 요구된다.

고방사능 시설에서 오염될 수 있는 설비 및 구조물은 취급하는 사용후 핵연료나 시설물의 운전 이력에 따라 그 양 및 특성이 달라질 수 있다. 방사성 핵종들은 시설물 내에 있는 여러 기계설비나 계측설비 혹은 차폐 용으로 사용되는 콘크리트나 납 차폐 창 등에 오염이 된다. 이러한 대부분의 설비는 장비표면이나 내부에 미세 분말형태의 입자성 오염물이 부착되어 있으며 오염 설비의 재질에 따라 적합한 제염법을 선정하여 방사성 준위를 기준치 이하로 낮추어야 한다.

사용후핵연료 건식처리공정에서 발생하는 오염시설이나 장비의 종류는 분석/전자설비, Hot cell 장비를 포함한 기계적 설비, 파이프와 탱크류와 같은 시스템 계통설비, Hot cell 벽 및 바닥 그리고 운전폐기물로 분류할 수 있으며, 제염 대상과 제염요건에 따라 외부표면제염, 내부표면제염 및 고착성 오염물 제거 기술로써 기계적 또는 물리·화학적 제염법을 적용한다. 외부표면제염의 주요 대상은 핫셀내부의 벽과 바닥, 핫셀내 고정설비 등이고, 내부표면제염은 복잡한 구조의 전자 및 분석 장비 등으로써 방사성 입자가 약하게 부착된 경우이다. 이와는 달리 고착성 오염물 제염은 방사성 입자 및 액적이 강하게 부착되거나 흡착, 이온교환에 의해 핵종이 결합된 표면성 오염물 그리고 확산이나 산화피막의 형성에 의한 침투성 오염물들이 포함된다.

건식제염기술은 제염폐액의 발생측면에서 습식제염과 구분되는 기술로서 대부분의 물리적 제염기술이 이 분류에 속하며, 방사성 오염금속을 제염하는 기술로 여러 가지 단위공정들이 활용되고 있다. 이 기술은 제염계수가 낮다는 단점이 있지만 원리가 간단하고 활용성이 다양하며, 특히 오염물의 표면 부착성이 약한 경우에는 물리제염 방법이 유용하게 적용될 수 있다. 이러한 기술적 특성 때문에 최근에는 금속폐기물 재활용 및 고방사성 폐기물의 저준위화 기술로서 물리적 제염방법의 적용성이 확대되는 경향이 있다.

고방사능 알파 오염물의 건식제염기술은 기존의 물리적 제염기술이외에 최근 제염효율이 우수하고, 감용처리가 어려운 오염물을 대상으로 하여 새로운 기술이 연구개발되고 있는 추세이다. 최근에 연구 개발되고 있는 건식제염 기술로는 PFC제염 기술[3.2.1.1, 3.2.1.2], 가스화[3.2.1.3] 및

가스화/초임계 유체[3.2.1.4]/플라즈마기술[3.2.1.5]의 단일 또는 복합공정에 대한 기술 등을 들 수 있다. 제염대상 오염물은 모재의 표면 특성 및 대상핵종에 따라 제염기술의 적용은 다르며, 대부분의 경우 단일 공정보다는 복합제염 공정으로 구성되어 진다. 고방사능 건식제염 기술은 해외에서 아직 연구 초기 단계이며, 지금까지 건식제염기술 이용은 저준위 방사능 제염이나 비방사성 오염물 제거에 국한하여 폭넓게 이용되어 왔다.

일반적으로 포화불소화합물(Perfluorochemicals: PFC)은 비중이 크고, 표면장력이 작으며, 전기절연성이 우수한 물리적 특성이 있을 뿐 아니라 화학적으로 반응성이 낮아 열에 안정하며 독성이 작다. 이러한 물리적, 화학적 특성으로 인하여 PFC는 방수, 방오, 청정, 계면활성, 윤활, 냉동, 세척, 농약, 의약 등에 많이 사용되고 있다.

탄소체인 길이가 충분히 긴 PFC계 화합물에 $-SO_3H$, $-COOH$, $-NH_2$, $-CONH_2$ 등의 친수성 작용기를 화학적으로 결합시키면 PFC계 계면활성제가 된다. 친수성 작용기중 산소에 붙은 수소는 금속으로, 질소에 붙은 수소는 알킬기로 치환이 가능하다. PFC계 계면활성제는 PFC계 화합물의 물리화학적 특성과 화학적으로 결합된 작용기의 친수성 특성이 복합되어 있으므로 우수한 계면활성력을 갖는 것으로 알려져 있다. 즉 포화 탄화수소계 계면활성제와 비교하면, 같은 탄소수의 포화탄화수소 계면활성제 보다 계면활성도가 훨씬 커서 물의 표면장력을 더 크게 감소시킬 수 있을 뿐만 아니라 유기용매의 표면장력도 감소시키는 효과가 있다. 이러한 PFC계 계면활성제는 환경문제와 관련한 최근의 CFC 113등의 오존관련 화합물에 관한 규제 조치 이후 (순수 PFC화합물 + PFC계 계면활성제) 용액이 건식 제염 공정 (dry decontamination process)에 유효하게 사용될 수 있음이 알려져 본 연구를 시작할 당시 큰 관심거리로 대두되고 있었다.

이에 본 연구에서는 우선적으로 PFC계 음이온 계면활성제, PFC계 양이온 계면활성제를 합성하고, PFC계 계면활성제 자체의 물성을 밝히며, 상업적으로 알려진 PFC계 계면활성제 및 본 연구를 통해 합성한 화합물들의 용액을 제조하여 용액의 전기화학적 특성을 포함한 물리화학적 특성을 측정함과 아울러 용액과 고체표면과의 상호 작용을 조사하여 PFC유체가 고방사능 입자성 오염물의 건식제염 공정을 이해하는데 기여하고자 하였다.

또한, 본 연구에서는 사용후핵연료 건식처리 공정에서 발생하는 고방사능 알파 오염물의 제염을 위하여 입자성 물질로 오염되는 모의 오염시편을 대상으로 PFC 유체를 사용하는 건식제염기술을 적용하여 제염공정의 성능을 평가하였다.

나. 이론적 배경

(1) PFC 및 PFC계 계면활성제[3.2.1.6~3.2.1.8]

C-F는 대단히 안정한 공유 결합을 이루고 있고 공유결합 되어있는 F의 원자반경은 0.72Å에 지나지 않아 전체적으로 F원자들 사이의 steric repulsion 없이 F원자들이 탄소 원자를 안전하게 감싸고 있다. 이러한 구조로 이루어진 PFC는 같은 탄소수의 포화탄화수소에 비하여 비중이 크고 표면장력이 작으며 전기 절연성이 우수한 물리적 특성이 있을 뿐만 아니라 화학적으로 반응성이 낮아 열에 안정하며 독성이 작다. 또한 비극성 물질로 용해 작용이 없으며, 대체로 다른 고불소 물질에 친화성이 있고, 방향족 탄화수소만큼 이온화 방사선에 안정하다. 제염하고자 하는 대상 물체에 영향을 주지 않고 제염 용액의 제거가 용이하도록 하기 위해서는 대기압에서 제염용액의 끓는점이 35~150°C가 알맞은 것으로 알려지고 있으며, PFC는 100°C 이하의 물질이 많은 것으로 나타나 있다.

Table 3.2.1.1에, 전기적 장치 등에도 아무런 손상을 주지 않으면서 탁월한 제염 효과를 나타낸 CFC(chlorofluorocarbons)를 함께 실어 PFC와 비교하였다.

CFC는 그 탁월한 제염 효과에도 불구하고 대기중의 오존을 파괴하는 물질로 알려져, 1990년 Clean Air Act 조항에 의거 대기 중 염소원으로 알려진 모든 화합물이 1995년 12월 31일부로 생산이 금지됨에 따라 사용이 제한되고 있다. 그 CFC의 특성을 갖는 대체 물질로 HCFC(hydrochlorofluorocarbons)이나 HFC(hydrofluorocarbons) 등이 연구되고 있으며, ODP(ozone depletion potentials)와 GDP(global warming potentials)가 CFC에 비해 훨씬 낮다. 이는 화합물 구조상 수소가 존재함으로써 해서 CFC에 비해 반응성이 높아서 자연 분해가 빠르게 진행된다. 이에 비하여 PFC는 자연계에서 자연 분해하는 데 상당한 시간이 소요된다. 특정 화합물에

따라서는 일생이 대략 2600-50000 년이나 될 정도의 극히 안정한 물질이다. 이와 같은 여러 특성으로 해서 방수, 방오, 청정, 계면활성, 윤활, 냉동, 세척, 농약, 의약 등에 주로 이용되고 있으나 PFC 자체가 지구 온난화의 잠재적 물질이라는 단점도 지니고 있다.

Table 3.2.1.1 Physical and environmental properties of fluorocarbons

Class	HFC	CFC	PFC	
Property ^a	Vertrel ^U XF	CFC-113	PF-5052	PF-5060
Formula	C ₅ H ₂ F ₁₀	C ₂ Cl ₃ F ₃	C ₅ F ₁₁ NO	C ₆ F ₁₄
Molecular Weight	252	187	299	338
Boiling Point, °C	55	47.6		56
Vapor Pressure, mmHg	226	334		232
Freezing Point, °C	-80	-35		-90
Liquid Density, g/cc	1.58	1.56		1.68
Surface Tension, dyn/cm	14.1	17.3		12
Viscosity, cPs	0.67	0.68		0.67
Heat of Vaporization (at boiling point), cal/g	31.0	35.1		21
Specific Heat at 20°C, cal/g°C	0.27	0.21		0.25
Dielectric Constant, 1 kHz		2.41		1.76
Flash Point Closed Cup ^b	None	None	None	None
Flash Point Open Cup ^c	None	None	None	None
Flammable Range in Air	None	None	None	None
Atmospheric Lifetime, yr	17.1	100	1,600	1,600
Ozone Depletion Potential (ODP)	0.0	0.8	0.0	0.0
Global Warming Potential (HGWP) ^d	0.25	1.13	27	27

탄소수가 충분히 긴 PFC계 화합물에 $-SO_3H$, $-COOH$, $-NH_2$, $CONH_2$ 등의 친수성 작용기를 화학적으로 첨가하면 PFC계 계면활성제가 되는데 이의 물리화학적 안정도는 첨부한 작용기의 화학적 안정도에 따라 감소한다. 현재까지 알려진 PFC계 계면활성제 중에서는 perfluoroalkancarboxylic acids 와 perfluoroalkanesulfonic acids가 화학적 안정도면에서 우수한 것으로 알려져 있다.

계면활성제의 특성은 계면상에서의 선택적 흡착에 의해 매질의 표면장력을 낮춘다는 점이다. 계면활성제는 친수부와 소수부로 이루어져 있으며, 소수부는 대개 탄화수소로 구성되어 있으나 산소, 질소, 황, 실리콘 또는 할로젠을 포함한 계면활성제도 사용된다.

불화 계면활성제에서 소수부는 불소를 포함하며 최소한 하나의 수소원자가 불소원자로 치환되어 있다. 불화 계면활성제는 과불화 (perfluorinated) 계면활성제 또는 부분적 불화 (partially fluorinated) 계면활성제로 분류한다. 과불화 계면활성제에서는 소수부의 모든 수소가 불소로 치환되어 있으나 부분적 불화 계면활성제에서 소수부는 불소와 수소 원자로 구성되어 있고 불소원자의 위치와 수가 계면활성제의 특성에 영향을 준다. 부분적 불화 계면활성제는 서로 양립하지 않는 두 개의 소수부로 이루어져 있으며 임계 미셀농도 (critical micelle concentration, CMC)와 같은 거시적 특성에서 뿐 아니라 미시적인 면에서 특이성을 나타낸다. 또한 탄화수소 부위는 일반적으로 용매의 용해도를 증가시키며, 계면활성제의 녹는점을 낮추고, 휘발성을 감소시키며 불화산의 산도를 감소시킨다.

불화 계면활성제의 소수부는 물뿐만 아니라 기름과 지방도 배척한다. 탄화수소계 계면활성제에 비해 불화 계면활성제가 표면을 훨씬 더 활성화시킨다. 불화 계면활성제는 수화계의 표면 장력을 20 mN/m 이하까지 낮출 수 있으며 매우 낮은 농도에서도 효과적이다. 불화 계면활성제는 유기계에서 표면 활성을 나타내며 열, 산과 염기뿐만 아니라 산화 환원제에도 안정하다. 단점으로는 가격이 비싸다는 점이다.

PFC계 계면활성제는 탄소수가 같은 포화탄화수소계 계면활성제보다 계면활성 능력이 상대적으로 우월하여 같은 농도를 사용할 경우 물의 표면장력을 더 크게 감소시키는 물론 순수 유기물질의 표면장력도 감소시키는

우수한 계면활성이 있다. 따라서 저분자 PFC와 함께 사용할 경우 휘발도의 증가와 함께 고방사능 입자성 오염물의 제염 및 제염제 회수가 용이한 건식제염 공정에 유효하게 쓰일 수 있을 것으로 분석된다.

(2) PFC 제염공정

(가) 미세입자의 결합 특성 및 제거 원리

① 미세입자의 결합 특성

미세 입자들은 고체 표면에 강하게 부착되어 있기 때문에 단순한 기계적 방법으로는 쉽게 제거하기 어렵다. 이들의 흡착은 미세 입자와 고체 표면간의 비교적 약한 이차 공유결합과 Van der Waals 결합에 의한 흡착으로 알려지고 있다[3.2.1.9, 3.2.1.10]. 이들에 의한 결합력은 입자의 크기가 $1\mu\text{m}$ (10^{-4}cm) 이하인 경우 훨씬 증가한다. 작은 구형의 입자와 평면의 고체 표면에서 Van der Waals에 의한 인력은 입경과 표면 상태의 함수로 나타나며, 입자의 무게에 대한 인력의 비 ($F \cdot S/W$)가 입경이 작을수록 증가하기 때문에 미세 입자의 입경이 작을수록 고체표면에서 제거하기가 어려워진다.

대기 상에서 자연적으로 흡착된 입자와 표면 사이의 이격은 입자와 고체 표면의 거칠기에 의해서 주로 결정되며, 표면의 거칠기에 따라 3Å에서 1000Å까지의 이격 거리를 나타낸다. 입자가 μm 수준이면 이격 거리는 3Å에서 100Å 정도로서, 100Å은 $1\mu\text{m}$ 인 입자 직경의 1%에 해당한다. 입경이 $1\mu\text{m}$ 인 입자에 있어서 이차 공유결합력은 입자 무게에 비해 10~10000배 정도 크며, 일반적으로 이러한 입자들은 관성력에 의해 제거가 가능하다. 그러나 $0.1\mu\text{m}$ 인 입자에 있어서 이차 공유결합력은 입자 무게에 비해 100,000배 이상 크며, 실제 적용 가능한 관성력으로는 이러한 입자들을 표면에서 제거하기 어렵다. 따라서 이러한 입자를 제거하기 위해서는 미세 입자와 고체 표면간에 작용하는 인력을 훨씬 완화시켜야만 한다.

② 미세입자의 제거 원리[3.2.1.11~3.2.1.16]

대기 중에서는 표면의 거칠기뿐만 아니라 표면에 흡착된 기체 막의 두께가 제염 효율성에 큰 영향을 미친다. 기상에서 미세 입자의 표면과 인

접한 고체 표면간의 상호작용에 변화를 주어 제어하는 것은 극히 어렵지만, 어떤 특성을 갖는 액상에서는 대단히 용이하게 제어가 가능하다. 즉, 액상에서는 인접 표면간의 이차 공유결합력보다는 반발력이 더 크게 작용할 수 있도록 하는 것이 용이해진다. 이는 입경이 $1\mu\text{m}$ 이하인 콜로이드 입자의 안정된 분산체를 통해 확인 가능하다. 액상에서 콜로이드 분산체의 안정은 입자들 사이의 반발력과 부유 입자의 열에너지에 기인한다. 수용성·비수용성 콜로이드 분산의 이차적 안정화 메카니즘은 입자 표면에 흡착된 수화 분자들의 엔트로픽 반발력에 기인하며, 흡착된 분자들은 막을 형성한다. 막이 형성된 두 입자가 충돌하면 막 두께의 두 배 정도까지 이격된다. 따라서 막 두께가 충분히 크다면, 입자들 사이의 이차 공유결합에 의한 상호작용은 열 에너지에 비해 무시할 수 있게 된다. 분산체가 안정화되기 위해서는 입자 반경에 대한 막 두께의 비가 0.15 이상은 되어야 한다. 이와 같은 엔트로픽 반발력의 메카니즘은 비수용성 매질에서 보다 우세하다.

고체 표면으로부터 이물질 제거 공정에 있어서 기본적인 내용은 기상에서보다 계면활성 용액에서 미세 입자들이 안정되게 분산된다는 원리를 이용하는 것으로, 불활성 매질 용액에 고분자 계면활성제를 용해시켜 사용함으로써 효율적으로 입자를 제거할 수 있다. 고분자 계면활성제의 독특한 특성은 입자 주위에 비교적 두껍게 용매화 막을 형성하여 고체 표면에서 입자 분리를 촉진시킨다는 점과 고체 표면에 가역적으로 흡착되며 흡착은 액상에서의 농도 변화에 의해 조절될 수 있다는데 있다. 또한 초음파나 고압분사와 같은 기계적 교반을 병행하여 사용함으로써 이격된 입자의 분산을 촉진시킬 수 있다. 일단 부유 상태로 된 용매화 입자는 고체 표면에 다시 부착되지는 않으나 용매화 막이 없다면 재 흡착에 의한 재오염이 일어날 수도 있다.

(나) PFC 유체에 의한 제염공정

전통적인 오염입자의 제거 방법으로 프레온 (CFC-113)이 주로 사용되어 왔다. 프레온 제염공정[3.2.1.17, 3.2.1.18]은 다양한 폐기물 및 제염 대상물에 적용될 수 있을 정도로 기술 개발의 역사가 길며, 기본 장치로부

터 원격으로 대형 면적을 제염할 수 있는 장치까지 개발되어 현재 기술이 상용화되어 있고, 기계장치 면에서 분사, 진동세정 및 초음파가 조합된 공정장치를 사용하고 있다. 그러나 프레온은 오존층을 파괴하는 주요 물질인 염소를 포함하여 환경친화적이 아닌 단점이 있어 대체물질로 PFC가 개발되었다. PFC는 프레온과 마찬가지로 액체 상태이므로 이러한 용액을 어떻게 제염대상물에 접촉시키느냐에 따라 제염공정이 달라질 수 있다.

프레온 제염은 상압이나 고압 하에서 입자성 오염물을 제염하는데 효과적으로 적용되었다. 고압의 프레온 분사제염은 고압수 분사제염보다 더욱 효과적인 것으로 알려져 있다. 그 이유로 프레온의 밀도는 1.565 g/cm^3 로써 물보다 더 높은 반면에 점도는 0.694 cP 이고 표면장력은 17.3 dynes/cm 으로써 각각 물의 69 % 및 23 %로 더 낮기 때문이다. 밀도가 큰 세정 용액은 밀도가 작은 용액에 비해서 제염 표면에 더욱 큰 에너지를 가해줄 수 있으며, 점도가 높은 용액에 비해 점도가 낮은 용액에서 세정 효과가 더욱 크다. 또한 낮은 표면장력을 갖는 세정 용액은 높은 표면장력을 갖는 용액에 비해 작은 틈새를 훨씬 쉽게 침투할 수 있다. 전기 및 전자 기기를 빠르게 세척하는데 프레온이 사용되었던 큰 이유로는 높은 유전성, 전기적인 전류의 흐름에 대한 높은 저항성 및 전기 재료와의 호환성 때문이었다. 또한 프레온의 낮은 증발잠열 (35.07 cal/g) 및 저 비점 ($47.6 \text{ }^\circ\text{C}$)은 여과 및 증류에 의해서 더 높은 비점을 갖는 입자성 오염물과 빠르게 분리될 수 있으며, 연속적인 증류와 응축을 통해 용매는 무한정으로 재 사용할 수 있도록 회수됨으로써 방사성폐기물의 발생량은 최소가 될 수 있다.

포화탄화불소(perfluorocarbons: PFC) 또한 대단히 불활성 물질로 화학적으로 안정하고 프레온과 마찬가지로 전기절연성이 우수하다. 또한 불연성이며 독성이 매우 낮다. 비극성 물질로 용해 작용이 없으며, 비중이 크고 표면장력이 작다. 대체로 다른 고불소 물질에 친화성이 있으며, 불화탄소는 적어도 방향족 탄화수소만큼 이온화 방사선에 안정하다.

PFC 제염기술은 기존의 프레온제염보다 고체 표면에서 작은 입자를 더욱 효과적으로 제거할 수 있는 프레온 대체 건식 제염공정으로 개발되고 있으며, 주로 금속장비 및 구조물 표면이나 전자 장비표면에 오염된 입자

성, 비고착성 오염물의 제거에 적용성이 우수한 공정으로 평가되고 있다.

PFC 건식 제염공정은 비활성의 PFC 용액에 저농도의 고분자량 fluorocarbon 유기 계면활성제를 첨가한 용액을 순환시킴으로써 오염부를 세척하는 공정으로 제염 공정에 의해서 오염 표면에서 용액 증으로 입자가 떨어져 나와 분산된 현탁 입자들은 정밀여과막이나 한외여과막과 같은 분리 공정을 통하여 세척 용액으로부터 분리하고, 최종으로 발생된 PFC 용매는 증발 및 응축 공정으로 회수함으로써 재사용한다.

이미 언급한 바와 같이 PFC 용액을 제염 대상물에 어떻게 접촉시키느냐에 따라 제염공정은 달라지게 되며, 초음파를 이용하는 제염공정과 고압 분사를 이용하는 두 가지 방법이 일반적으로 사용된다. 이들 기술의 개요 및 원리 등을 다음과 같이 기술하였다.

① 초음파 제염공정[3.2.1.19]

초음파 기술은 세정 공정 분야에서 가장 심도 있게 연구되어 왔고 광범위하게 사용되어왔다. 오염물을 제거하는 잘 알려진 방법들과 비교해서 초음파 세정의 가장 주된 이점은 고품질 세정이 가능하고 수동 작업을 대체할 수 있으며 가연성, 유해 용매의 제거가 가능하다는 점이다. 이 공정의 간단하면서도 명확한 기술적 효율로 인해 러시아, 미국, 영국, 독일 및 일본 등 많은 나라에서 초음파 세정 장치의 제작이 활발하게 이루어지고 있다.

초음파 제염공정에 있어서 표면 오염막의 파괴에는 cavitation이 중요한 역할을 하는 것으로 알려지고 있다. 침식(erosion) 시험 방법으로 예측된 초음파 cavitation의 강도, 음향 영역의 주파수 및 강도는 세정제와 화학적으로 작용하지 않는 오염막의 파괴에 영향을 미치는 것으로 알려져 있다. 또한 초음파 cavitation 공정의 이면에 있는 원리에 관한 연구를 통해 초음파를 광범위한 응용 영역에 적용할 수 있도록 하기 위하여 세정 장비가 갖추어야 할 기본적 조건이 공식화되었다. 이들 요건 중에 가장 중요한 사항은 저 주파수 (18~44 kHz)이면서 증가된 비 음향 출력 (2.5~10 W/cm²)에서 장비가 가동되어야 한다는 것이다. 그러나 현재까지 초음파 세정의 원리가 완전히 확립되었다고는 말할 수 없다. 음장(sound

field) 내에서 세정 공정 효율의 증진에 가장 영향을 주는 인자는 액체 자체 내에서와 고체와의 계면에서 발생하는 cavitation 및 acoustic streaming으로 알려져 있지만 세정 공정에 이들 인자가 어떻게 작용을 하는지는 확실하게 연구되어지지 않고 있다.

표면 오염막의 cavitation 파괴에 대한 기초적인 원리는 비교적 자세하게 확립되어왔다. 막의 제거는 cavitation 기포의 파괴로 유도되는 미세 충격 작용 하에서의 침식뿐만 아니라 장기간 동안 음장에서 안정하게 남은 맥동하는 기포로 인하여 발생한다. 음장의 요소들뿐만 아니라 음장에서 고체의 cavitation 파괴 강도와 액체의 물리적 성질 사이의 상호관계가 확립되고 있다. 직접적인 실험을 통해서 경계층의 두께는 초음파의 작용 하에서 감소되고 이로 인해 경계층에서 확산 및 물질전달 공정을 가속시키게 되어 오염 막의 용해를 용이하게 함과 아울러 오염물과 세정제 사이의 화학적 상호작용 조건을 상승시킴을 보였다.

초음파 세정 장비 및 세정 매체의 선정은 근본적으로 오염물의 형태에 의존한다. Cavitation의 작용 하에서 오염막의 기계적 파괴와 음향 흐름의 작용 하에서 세정액과 오염물과의 화학적 상호작용의 증진이 음장에서 동시에 발생하기 때문에 다음과 같이 세 가지 기본적인 기준에 따라 모든 오염물을 분리하면 편리하다.

- 미세 충격 하중의 작용에 대한 저항력
- 세정될 표면과의 결합력
- 세정제와의 화학적 상호작용에 대한 성질

첫 번째 기준에 근거하여 오염물은 cavitation-resistance 인가 noncavitation-resistance 인가로 분류되고, 두 번째 기준에 근거하여서는 강하게 또는 약하게 결합하고 있는 것인 가로 분류되며, 세 번째 기준에 의해서는 세정제와 화학적으로 작용하는가 작용하지 않는 가로 분류된다.

어떤 오염물은 상기에서 정의한 한가지 기준만에 의해서 분류되지 않고 몇 가지로 조합하여 그 특성을 나타낼 수 있다. 예로써, 금속표면에 형성된 얇은 grease 막의 세정이 물 속에서 수행된다면 이 오염은 cavitation-resistant 이면서 세정 표면과 약하게 결합되어 있으며 세정제와는 화학적으로 작용하지 않는 것으로 분류된다. 이들 기준의 단순한

열거는 얇은 grease 막을 물속에서 초음파 세정하는 것은 비효과적임을 나타내며, 효과적인 세정을 위해서는 세정액을 화학적으로 활성이 있는 매체로 대체하고, 강한 음향 흐름을 보장할 수 있는 음장 인자의 선택이 필요할 것임을 나타내고 있다.

앞서 언급한 분류는 또한 초음파 세정의 적용 영역의 결정을 가능하게 해준다. 세정될 표면에 오염물이 강하게 달라붙어 있으면서 세정제와 화학적 작용이 없고 세정 대상 물질의 cavitation resistance와 같거나 더 큰 cavitation resistance를 갖는다면 이 오염물은 초음파 세정으로 제거될 수 없다.

가장 흔하게 볼 수 있는 오염물을 상기 특정 기준에 따라 정리하여 다음 Table 3.2.1.2에 수록하였다. 이와 같이 열거된 오염물의 분류는 전체의 오염물을 완전하게 정의할 수는 없지만 대체적으로 비슷하게 특성을 규명하는데 사용될 수 있다. 오염물이 이와 같은 분류 기준에 의해 분류되면 초음파 세정의 필요성을 결정할 수 있고 세정제 및 음장 인자를 선정할 수 있다.

용액 내에서 표면 오염막은 cavitation과 acoustic streaming을 일으키는 초음파 작용 하에서 깨어진다. 최대 크기가 5 μm 인 연마 입자를 용액 내에 첨가할 경우 어떤 조건하의 음장에서 고체 물질의 깨어짐을 가속시킨다. 이런 경우 cavitation 및 acoustic streaming 외에 acoustic radiation pressure가 이들 입자의 움직임을 가속시키는데 일부 역할을 할 수 있다.

Table 3.2.1.2 Classification of contaminants.

Contaminant	Classification
Dust or slurry after etching	Noncavitation-resistant, weakly bound with cleaned surface, chemically noninteracting with detergent
Grease films	Cavitation-resistant, weakly bound with cleaned surface, chemically interacting with detergent
Lacquer films, dyes	Cavitation-resistant, strongly bound with cleaned surface, chemically interacting with detergent
Polishing compounds	Noncavitation-resistant, strongly bound with cleaned surface, chemically interacting with detergent
Scale, oxide films	Cavitation-resistant, strongly bound with cleaned surface, chemically interacting with aggressive liquids
Corrosion products	Noncavitation-resistant, strongly bound with cleaned surface, chemically interacting with aggressive liquids
Pickup, resin deposits, rubber	Cavitation-resistant, strongly bound with cleaned surface, chemically noninteracting with detergent

초음파 세정 기구에 영향을 미치는 여러 가지 인자들을 일반적 형태로 도식화해서 Fig. 3.2.1.1에 수록하였다. 그림에서 화살표의 방향은 각각의 인자들이 표면 오염막의 파괴 공정에 어떻게 영향을 미치는가를 나타낸다.

Cavitation 강도, acoustic streaming 속도 및 성질, 방사 압력의 크기 세정 대상 물체의 진동폭은 음장의 주기 및 강도, 세정제의 물리적 성질 및 외부 정지 압력에 의존한다. 일반적으로 초음파 세정은 화학적으로 활성인 매체 내에서 수행되고 매체의 화학적 활성도는 용액의 물리적 특성,

특히 용액의 온도에 가장 의존한다. 초음파 세정에 있어서 오염막의 파괴, 분리 및 용해는 화학적으로 활성인 매체와 가해진 음장의 영향에 의해서 용액에 유도되는 인자들의 조합된 작용의 결과로 발생한다.

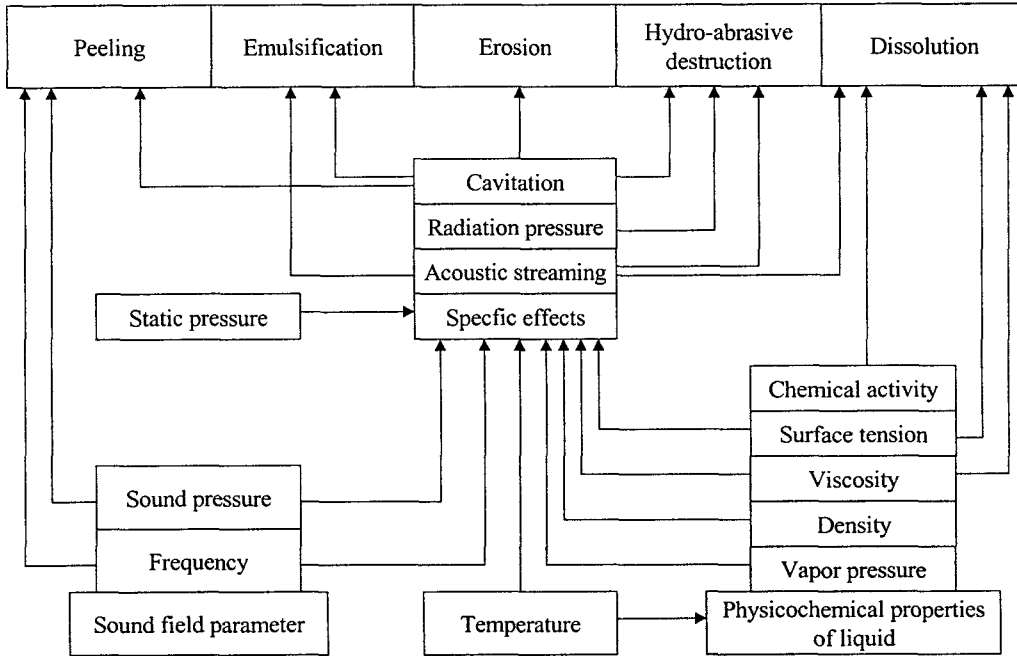


Fig. 3.2.1.1. Influence of various factors on ultrasonic cleaning efficiency.

② 고압 분사 제염공정[3.2.1.20]

고압분사제염은 이동하는 유체를 입자에 가하여 높은 전단력 (shear force)을 가함으로써 표면으로부터 작은 불용성 오염 입자를 제거하는데 매우 효과적이다.

고압의 유체는 노즐을 통과할 때 고속으로 가속되어 분사되며, 이동유체가 표면의 turbulent 경계층을 통과하고 얇은 laminar sub-layer에 도달된다. 만약 이동유체의 속도가 laminar sub-layer에서 매우 낮게 되고, 표면입자에 낮은 전단력으로 도입되어 전단력이 입자의 부착력을 초과하

지 못하면 입자는 제거되지 못한다.

노즐을 통해 분사된 유체가 제염 대상 표면에서 나타내는 전단력은 이미 확립되어 있는 수학적 모델식을 사용하여 계산될 수 있다. 전단력은 모델 PFC 용액을 대상으로 다음과 같은 조건하에서 계산하였으며, 입자의 부착력과 비교하였다.

- 분사 압력 : 7 MPa (1000 psi)
- 분사 노즐의 직경 : 0.7 mm
- PFC 용액 : PF-5070 (C_7F_{16} , 비중=1.7, 동점도=0.7cP, B.P=80°C)

전단력을 계산하기 위한 PFC 고압분사 제염 개념도 및 움직이는 유체 내에서 입자에 미치는 항력 (drag force)을 각각 Fig. 3.2.1.2 및 Fig. 3.2.1.3에 도식적으로 나타내었다.

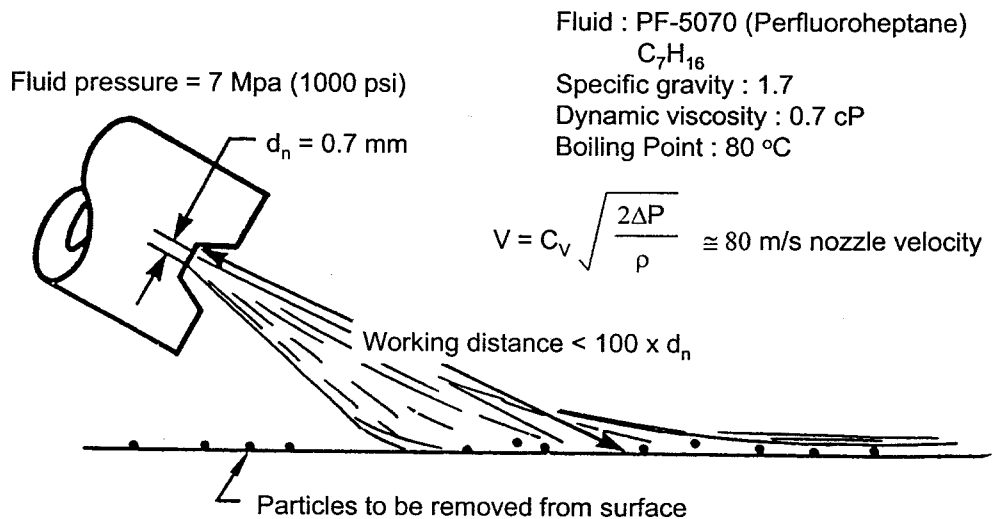


Fig. 3.2.1.2. Geometry of high pressure spraying decontamination system.

비압축성유체가 노즐을 통과할 때 유체속도 V 는 노즐사이의 압력차 ΔP , 유체의 밀도 ρ 및 속도상수 C_v 에 의존한다.

$$V = C_v \sqrt{\frac{2\Delta P}{\rho}} \quad (3.2.1.1)$$

$$\approx 80 \text{ m/s}$$

For 5 μm particles

$$F_d = C_d \frac{\pi}{4} d_p^2 \rho V_y^2 \approx 2 \text{ dyne}$$

F_d Drag force
 C_d Coefficient of drag
 d_p Particle diameter
 ρ Fluid density

V Free stream velocity
 V_y Velocity at position y
 d_t Turbulent boundary layer thickness
 t_l Laminar sublayer thickness
 ν Kinematic viscosity
 f Friction factor

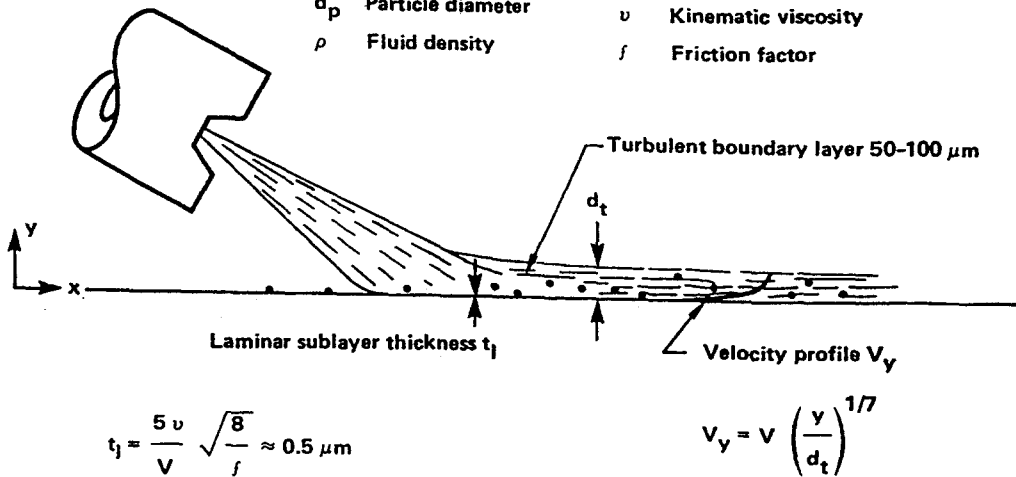


Fig. 3.2.1.3. Induced drag on small particles attached to solid surfaces.

부피유속 (volumetric flow rate), Q 는 다음과 같이 계산할 수 있다.

$$Q = C_c V \frac{\pi d_n^2}{4} \quad (3.2.1.2a)$$

$$Q = C \frac{\pi d_n^2}{4} \sqrt{\frac{2\Delta P}{\rho}} \quad (3.2.1.2b)$$

$$\approx 0.024 \text{ L/s}$$

여기서 d_n 은 노즐 직경, C_c 는 수축(contraction)상수, C 는 $C_v C_c$ 로 배출(discharge)상수이다. 유체의 Reynold Number가 4000을 초과하면 유체는 완전히 난류 경계층으로 평판의 표면에 분사된다. 즉,

$$R = \frac{dV\rho}{\mu} \quad (3.2.1.3)$$

$$\approx 2 * 10^5$$

여기서 d = 유체 깊이이고 μ = 점도이다.

난류 경계층과 표면 사이에 얇은 층류 sub-layer 두께, t_ℓ 은 다음과 같이 계산할 수 있다.

$$t_\ell = 5\nu \sqrt{\frac{\rho}{\tau_o}} \quad (3.2.1.4)$$

$$\approx 0.5 \mu\text{m}$$

$$\tau_o = \frac{f \rho V^2}{8} \quad (3.2.1.5)$$

여기서 τ_o 는 경계에서 shear stress, ν 는 동점도(kinematic viscosity), f 는 Moody diagram에서의 마찰인자(friction factor)이다.

만약 층류 sub-layer 두께가 직경 $5 \mu\text{m}$ 입자와 비교하여 작다면, 입자가 완전히 난류 경계층에 있게되고 속도 구배는 다음과 같이 주어진다.

$$\frac{V_y}{V} = \left(\frac{y}{d}\right)^{1/7} \quad (3.2.1.6)$$

여기서 V_y 는 표면으로부터 y 거리의 속도이다. V 는 자유흐름 속도 또는 노즐 속도이다. 표면에서 직경이 $5 \mu\text{m}$ 입자의 중앙, 즉 $3.25 \mu\text{m}$ 의 거리에서 V_y 는 34 m/s 이다.

흐름 유체 내의 평판 표면에 위치한 구형 입자의 항력은 입자의 직경 d_p , 입자에 인접한 유체밀도, ρ 와 속도, V_y 에 비례한다. 따라서 항력은 다음과 같이 계산할 수 있다.

$$F_d = C_d \frac{\pi}{4} d_p^2 \rho V_y^2 \quad (3.2.1.7)$$

$$\approx 2 \times 10^{-5} \text{ N} = 2 \text{ dyne}$$

여기서 C_d 는 국소적인 Reynolds number와 관계된 drag coefficient로 약 1이다.

작은 입자의 부착력은 일반적으로 1 dyne 이하이다. 유체의 항력은 입자의 부착력을 초과하므로 입자는 이동하는 유체 내로 떨어져 나와 제거된다.

(다) PFC 제염공정에서 제염제 회수 및 입자제거기술

PFC 건식제염과 비교적 유사한 Freon 제염공정은 세정 매체로 CFC-113을 사용하여 다양한 표면 재료나 형상으로부터 기계적 및 화학적으로 방사성 오염물을 제거하는 것이다. 이 공정은 연속적으로 오염대상물을 깨끗한 용매를 사용하여 세정함으로써 오염물을 물리적으로 떨어뜨리거나 화학적으로 용해시켜 오염대상물로부터 오염물을 제거하게 되는 원리를 이용하고 있다. 제염 후 폐 용매는 미세(micro 또는 sub-micro) 여과 카트리지로 여과하여 입자성 오염물을 용이하게 분리하여 제거하고 처분한다. 용해성 오염물이 축적되기 시작하면 용매는 증류기에서 증류하여 오염 잔류물은 처분하고 프레온 증기는 응축하여 재 사용한다. 응축은 기계적인 냉동계통에 의해 가동되는 냉각 코일에 의해 이루어진다. 적용대상 및 방법에 따라 프레온 제염공정은 보통 과량의 프레온 증기의 손실이 없이 자동적 혹은 수동적으로 제염을 수행할 수 있도록 밀봉된 용기 내에서 수행된다.

PFC 건식 제염공정은 비활성의 Perfluorocarbon (PFC) 용액에 저농도의 고분자량 fluorocarbon 유기 계면활성제를 첨가한 용액을 순환시킴으로써 오염부를 세척하는 공정으로 세척 후에는 잔여 계면활성제를 제거하기 위해 순수한 carrier liquid를 사용하여 세정하고 이어서 건조시키는 일련의 공정으로 구성된다 (Fig. 3.2.1.4).

제염 공정에 의해서 오염 표면에서 용액 증으로 입자가 떨어져 나와 분산된 현탁 입자들은 여과나 원심분리와 같은 분리 공정을 통하여 세척 용액으로부터 분리한다. 여과를 하면 주기적으로 여과된 입자를 처리할 수 있거나 역류 여과가 가능하여야 한다.

고체 표면에 흡착된 계면활성제를 제거하기 위하여 계면활성제와 친화

력이 있는 액체를 사용하여 세정한다. 세정액은 제염할 대상 물체의 재질과 상호작용을 하지 않아야 하고, 될 수 있으면 계면활성용액을 만들기 위해 사용한 용액과 같은 성질을 가져야 한다. 세정에 의해서 제거되지 않고 여전히 대상 물체에 부착된 잔류 세정액은 원심분리와 같은 기계적 또는 기류에 의한 증발로 제거될 수 있으며, 차후에 응축, 흡착 또는 과증발 (pervaporation)과 같은 표준화 된 방법에 의해 회수한다[3.2.1.1-2].

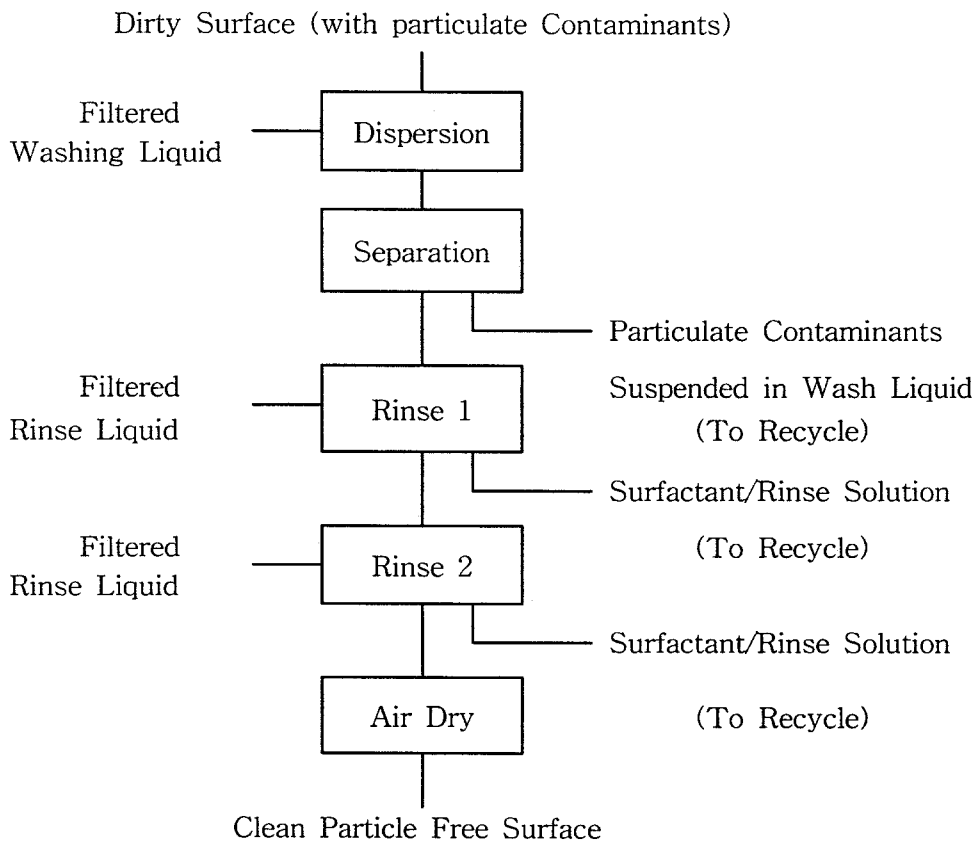


Fig. 3.2.1.4. Schematic of PFC decontamination process.

PFC는 비교적 고가이기 때문에 경제적 비용을 고려하여 회수 및 재활용 하는 것이 바람직하다. 사용된 세척액은 부유 입자를 제거한 후 회수하고 세척액의 조성비를 유지하기 위하여 부가적으로 계면활성제와 매개액을

첨가한다. 휘발성 세정액과 비휘발성 계면활성제를 사용함으로써, 미량의 계면활성제가 들어있는 폐 세정액을 증류에 의해 아주 쉽게 회수할 수 있다. 증류된 용액은 순수 세정액이고, 남아 있는 액은 세척액으로 재활용할 수 있는 계면활성 용액이다.

다. 연구 결과

(1) PFC 제염제 합성 및 물리화학적 특성평가

(가) PFC계 계면활성제의 합성

아세톤, 물, 에탄올 등의 용매를 사용하여 화학 치환법으로 화학적으로 안정한 대표적인 음이온성 PFC계 계면활성제인 metal pentadecafluorooctanoate (metal : Li, Na, K, Cs)와 양이온성 PFC계 계면활성제인 N-perfluorooctyl-N'-methyl viologen를 합성하였다.

즉, N-methyl-4,4'-bipyridinium iodide 1.19 g을 n-BuOH 50ml에 녹이고 perfluorooctyl bromide 1.55 ml를 넣는다. 이 용액을 7일 동안 환류 상태로 교반시킨 후 상온으로 떨어뜨린다. 침전물을 거른다. 이 침전물을 n-BuOH 15ml에 넣고 끓인 뒤 냉각시켜서 침전물(생성물)을 거른다.



1 (R: CH₃ R': C₈H₁₇)

2 (R: CH₃ R': C₁₆H₃₃)

3 (R: CH₃ R': C₈F₁₇)

또한 비교를 위하여 hydrocarbon계 계면활성제 N-methyl-N'-octyl-4,4'-bipyridinium dibromide를 다음과 같이 합성하였다. 즉, N-methyl-N'-octyl-

4,4'-bipyridinium dihalide를 포화된 NaBr수용액에 넣고 용액의 색깔이 노란색으로 완전히 바뀔 때까지 3일 이상 교반을 계속한다. 잔류하는 NaBr과 바뀐 NaI를 제거하기 위해 먼저 거르고, 걸러진 용액에 MgSO₄ 무수물을 넣어 남아있는 물을 제거한다. 여기에 CH₃CN을 넣어서 N-methyl-N'-octyl-4,4'-bipyridinium dibromide를 용해시킨다. 이것을 거른 뒤 용매를 제거하면 N-methyl-N'-octyl-4,4'-bipyridinium dibromide가 생긴다. 이는 합성 물질의 녹는점 및 NMR 스펙트럼을 통하여 확인하였다.

(나) PFC계 계면활성제의 물리화학적 특성데이터 생산 및 분석

본 연구를 통해 합성한 계면활성제의 물리화학적 특성을 용해도 및 계면활성도 측면에서 측정하고 분석하였다.

먼저 metal pentadecafluorooctanoate의 용해도를 조사하였으며, 이 물질의 수용액에 대한 용해도는 5g/L 이하로 비교적 작았으며, 에탄올에 대한 용해도는 150g/L, 그리고 수용액/물 혼합용액에 대한 용해도는 100g/L 정도로 비교적 큼을 알 수 있었다.

또한 metal pentadecafluorooctanoate의 계면활성작용을 조사하였으며, 이는 발광성 다공질 실리콘의 전기화학적 처리과정에 pentadecafluorooctanoate가 계면활성작용을 하는지를 살펴봄으로써 확인하였다. Fig. 3.2.1.5 및 Fig. 3.2.1.6에 수록한 바와 같이 발광성 실리콘 제조 시 계면활성제가 전류전압곡선에 영향을 줬을 물론 이 과정으로 제조한 발광성 실리콘의 최대 발광파장이 pentadecafluorooctanoate를 사용하지 않았을 때와 비교한 결과 50nm 단파장쪽으로 이동함을 알 수 있었다.

(다) 고체 표면에서의 PFC계 계면활성작용 조사

고체표면과 PFC 및 PFC 계면활성제의 상호작용을 평가하기 위하여 모델 고체표면으로 깨끗한 실리콘 웨이퍼 표면을 선택하였고, 이 표면에서의 PFC계 계면활성제의 계면 활성도를 AFM (Atomic Force Measurement)법을 사용하여 Si₃N₄ cantilever와 실리콘 웨이퍼 사이에 작용하는 힘을 측정 분석하였다.

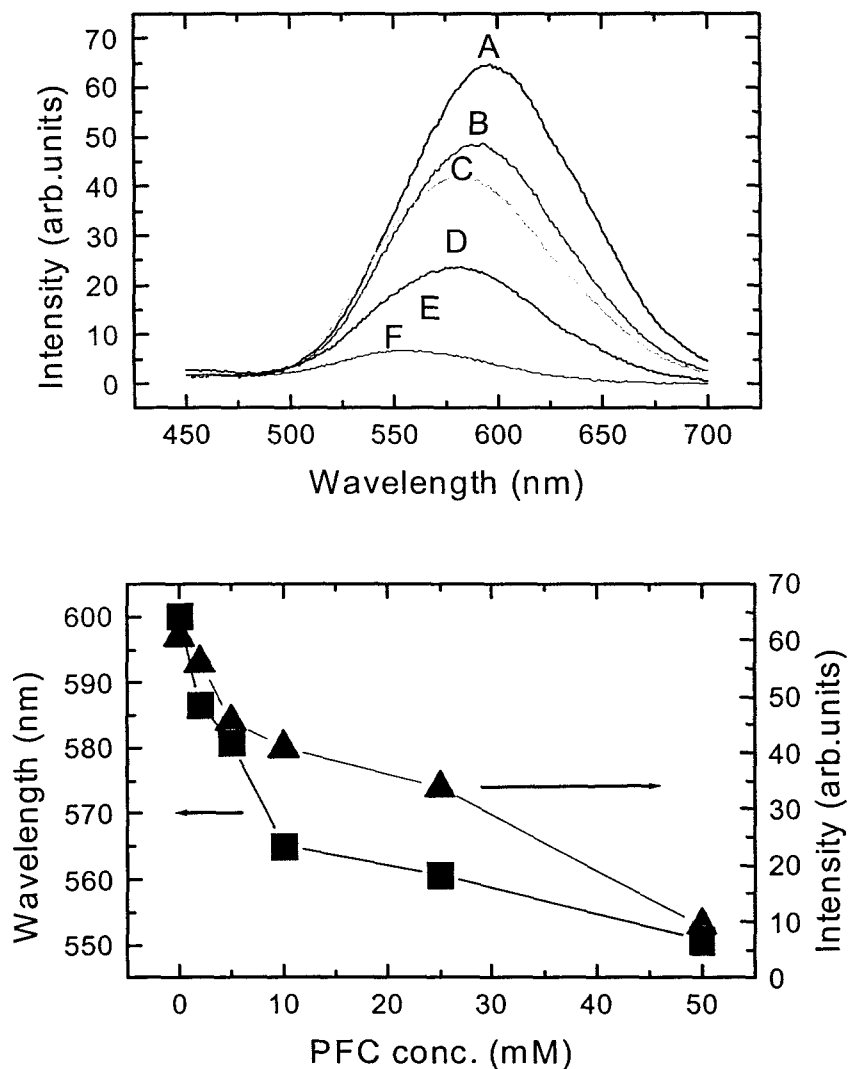


Fig. 3.2.1.5. Photoluminescence spectrum of n-type $0.4\sim 0.9 \Omega \cdot \text{cm}$ samples etched under various amount of PFC (A: 0 mmol, B: 2 mmol, C: 5 mmol, D: 10 mmol, E: 25 mmol, F: 50 mmol) and an ethanolic solution of 25% hydrofluoric acid. (UV lamp 365nm).

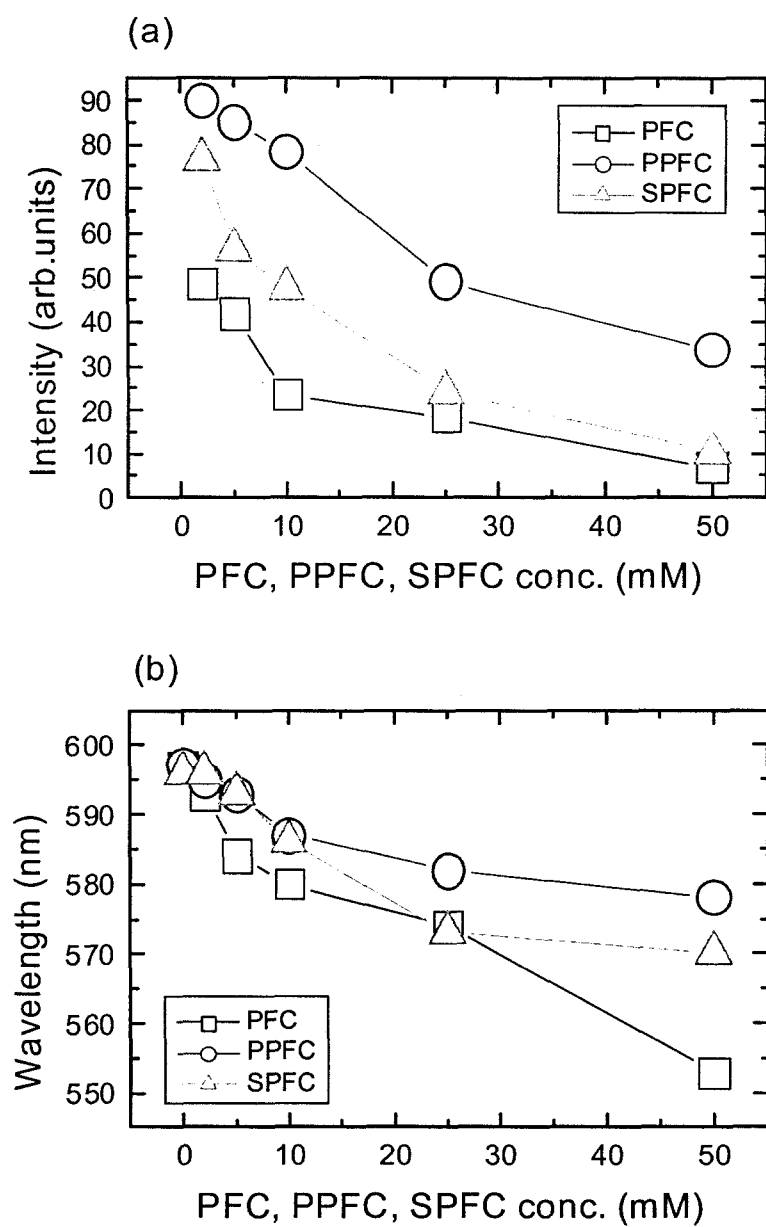


Fig. 3.2.1.6. (a) Plot of peak intensity versus various concentration of surfactants, and (b) Plot of peak wavelength versus various concentration of surfactants.

AFM 장비의 Si_3N_4 cantilever를 고체 표면에 접근시키면 초기에는 cantilever와 실리콘 웨이퍼 표면 사이에 인력이 작용하고 조금 더 접근시키면 척력이 작용하는 완전한 접촉(contact) 상태가 된다. 접촉 상태에 있는 cantilever를 후퇴시키면 척력, 인력이 차례로 작용하다가 서로 떨어지는 비 접촉(non-contact) 상태가 된다. 이 과정에서 나타나는 인력은 일반적으로 부착력(adhesive force)를 나타낸다. 이 부착력은 cantilever와 고체 표면 사이에 존재하는 것으로 주로 electrostatic forces, magnetic forces, Van der Waals forces, capillary forces 등에 의해 기인한다고 알려져 있다.

고체표면에서 PFC 및 PFC 계면활성제의 영향을 조사하기 위하여 모델 고체 표면으로 선택한 실리콘 웨이퍼의 극소 부분 ($1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$ 범위)의 AFM 화상을 Fig. 3.2.1.7에 수록하였다.

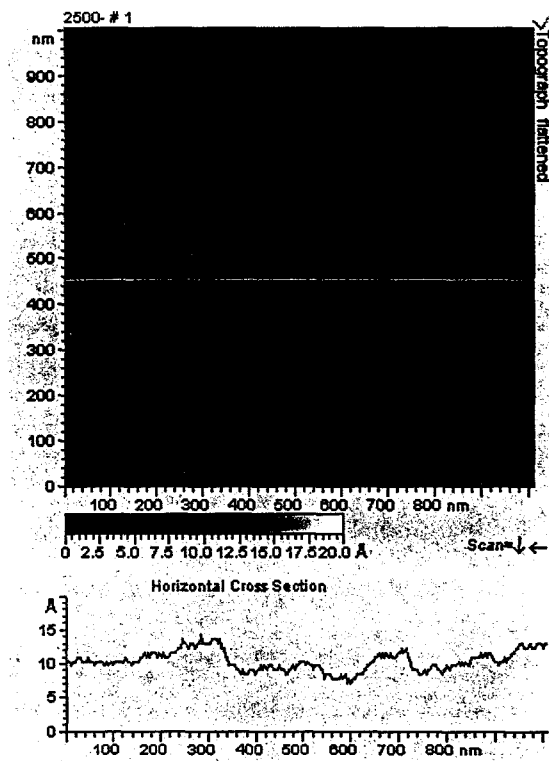


Fig. 3.2.1.7. $1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$ AFM image of Si(100) in the air.

Fig. 3.2.1.7의 AFM 화상 범위 내에서 위치를 바꾸어가며 실리콘 웨이퍼 표면에 아무 것도 놓여지지 않은 상태로 공기 중에서 측정된 Si_3N_4 cantilever와 실리콘 웨이퍼 사이의 force vs. distance curve를 Fig. 3.2.1.8에 수록하였다.

또한 실리콘 웨이퍼 표면에 PF-5070 PFC 용액만을 올린 경우와 PF-5070 용액에 0.1 wt% Perfluoro-1-butanesulfonyl fluoride (Krytox)를 혼합한 용액을 올린 후 측정된 force vs. distance curve를 각각 Fig. 3.2.1.9 및 Fig. 3.2.1.10에 수록하였다.

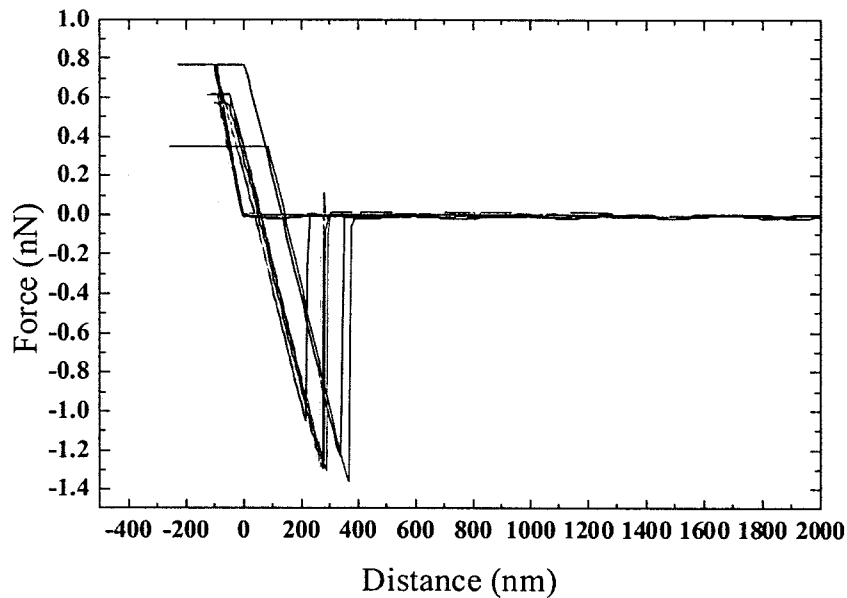


Fig.3.2.1.8. Force-Distance curve in bare Si(100).

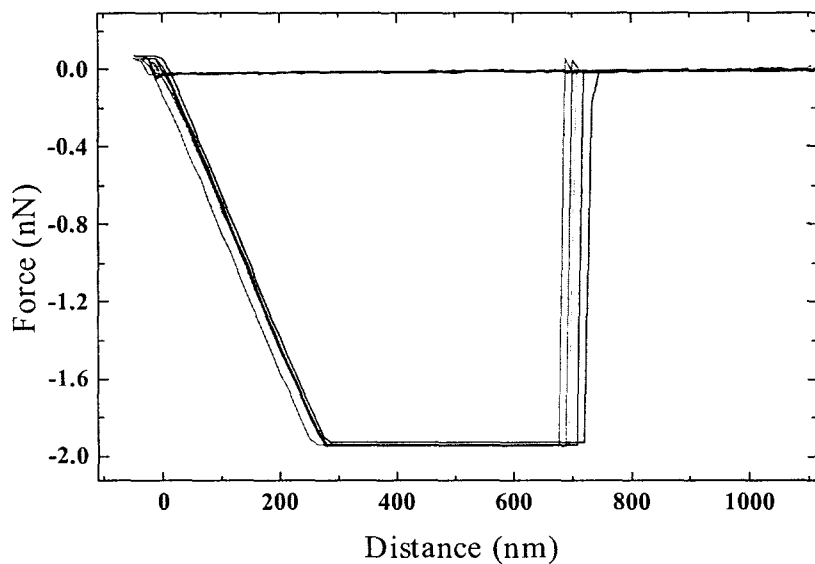


Fig. 3.2.1.9. Force-Distance curve measured on Si(100) wetted with PF-5070.

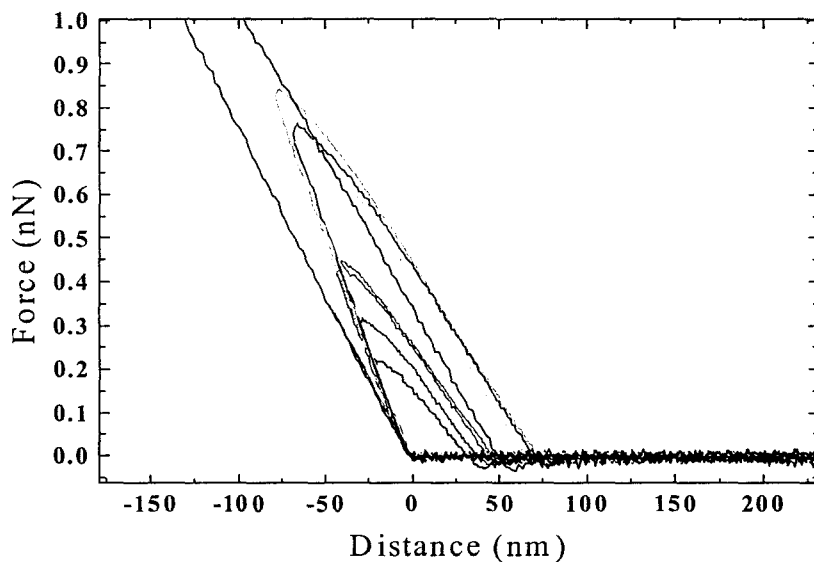


Fig. 3.2.1.10. Force-Distance curve, measured on Si(100) wetted with PF-5070 solution containing 0.1 wt% Krytox as a PFC surfactant.

Fig. 3.2.1.8의 결과로부터 Si_3N_4 cantilever와 아무 것도 올려져 있지 않은 공기중의 실리콘 웨이퍼 표면사이에는 아주 큰 부착력 (adhesive force)이 존재함을 알 수 있다. 또한 실리콘 웨이퍼 표면에 3M사에서 개발한 PFC계 세정제인 PF-5070 (perfluoroheptane)을 올려놓을 경우의 측정 결과 (Fig. 3.2.1.9)로부터 부착력은 오히려 아무 것도 올려져 있지 않은 공기중의 실리콘 웨이퍼 표면에서 측정한 값보다 훨씬 큼을 알 수 있다.

이와는 달리 실리콘 웨이퍼 표면에 계면활성제로 0.1 wt% Krytox가 포함된 PF-5070 용액을 올림으로써 부착력이 완전히 제거되었음을 알 수 있다(Fig. 3.2.1.10).

Fig. 3.2.1.11에는 아무 것도 올려져 있지 않은 실리콘 웨이퍼 표면에서와 PF-5070, Perfluoro-1,3-dimethyl cyclohexane (pfdmch), Perfluoro-1-butanesulfonyl fluoride(pfbsf), Perfluoro-1-octanesulfonyl fluoride (pfosf), Perfluoro-1-octyl bromide (pfob) 및 PF 5070 용매에 Perfluoro-1,3-dimethyl cyclohexane (pfdmch), Perfluoro-1-butanesulfonyl fluoride (pfbsf), Perfluoro-1-octanesulfonyl fluoride (pfosf), Perfluoro-1-octyl bromide (pfob), Krytox를 각각 0.1 wt%를 혼합한 용액을 실리콘 웨이퍼 표면에 올려놓고 측정한 adhesive force를 비교 정리하여 수록하였다.

이 결과로부터 Perfluoro-1-octanesulfonyl fluoride와 Perfluoro-1-octyl bromide가 우수한 계면 활성 성능을 가진 PFC계 계면활성제이고, PF-5070 PFC 용액 내에 0.1% 정도만 포함되어더라도 우수한 계면활성 성능을 나타낼 수 있다.

(2) PFC/초음파 건식 세정공정 성능 평가

(가) 세정실험

① 오염시편의 준비

PFC유체를 매개체로 하는 초음파 세정공정의 성능 평가 실험을 위한 입자성 모의 오염시편을 제조하기 위해서 우선적으로 시편에 오염시킬 오염 입자를 제조하였다.

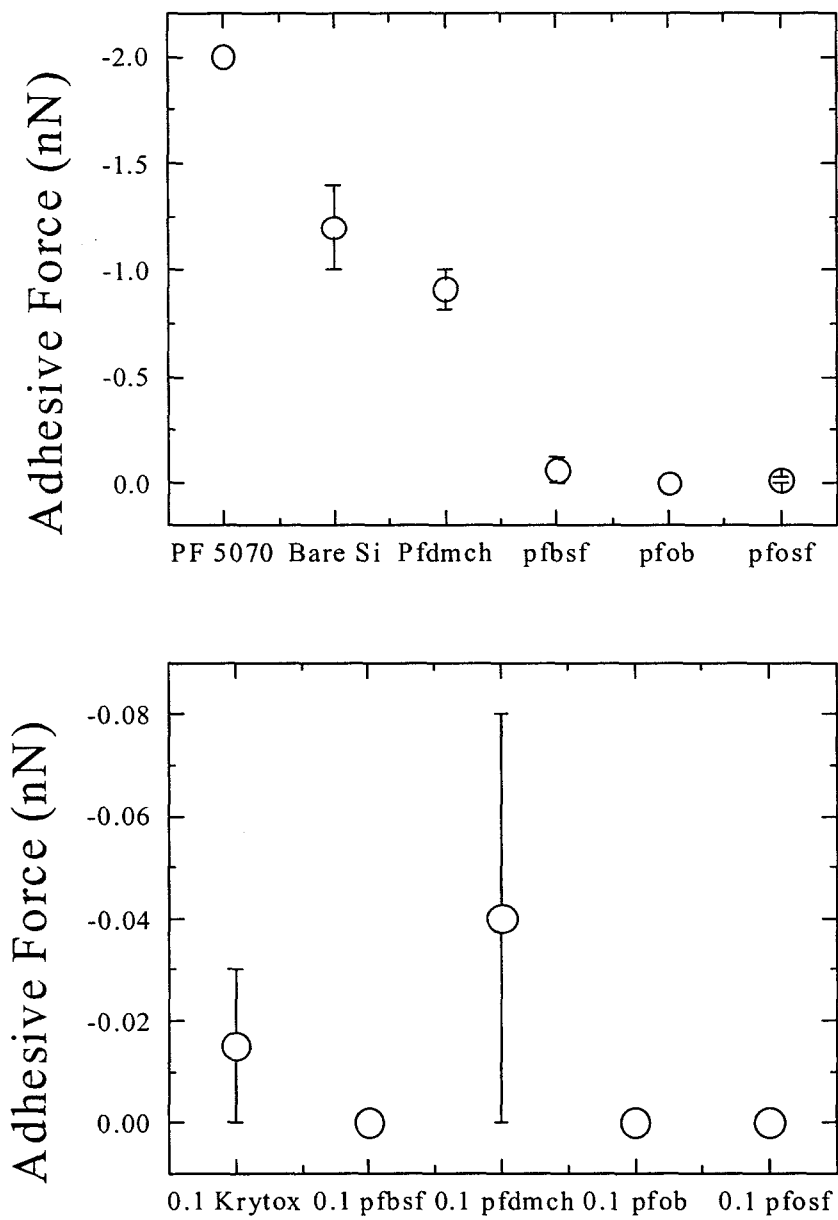


Fig. 3.2.1.11. Comparison of Adhesive Force, measured on Si wafer in the several PFC fluids.

오염입자로는 평균 입경이 $1\mu\text{m}$ 인 Al_2O_3 및 $2.4\mu\text{m}$ 인 UO_2 의 en 종류를 선정하였으며, 각각의 입자 5 g에 대하여 에탄올 20 cc와 $5\mu\text{Ci}/\text{cc}$ 의 Cs-137 용액 5 cc를 넣고 잘 혼합한 후 알코올을 완전히 증발시킨 건조 상태의 입자를 제조하였다.

오염시편으로는 표면상태가 서로 다른 스테인레스강 (2B 및 polishing), 탄소강, 에폭시 도포 시편, 전자기판, 일회용 PP 가운 등을 선정하였고, 이중 스테인레스강 및 탄소강 시편은 입자로 오염시키기 전에 아세톤으로 세척하였다. 본 연구에 사용한 시편을 Fig. 3.2.1.12에 수록하였다.

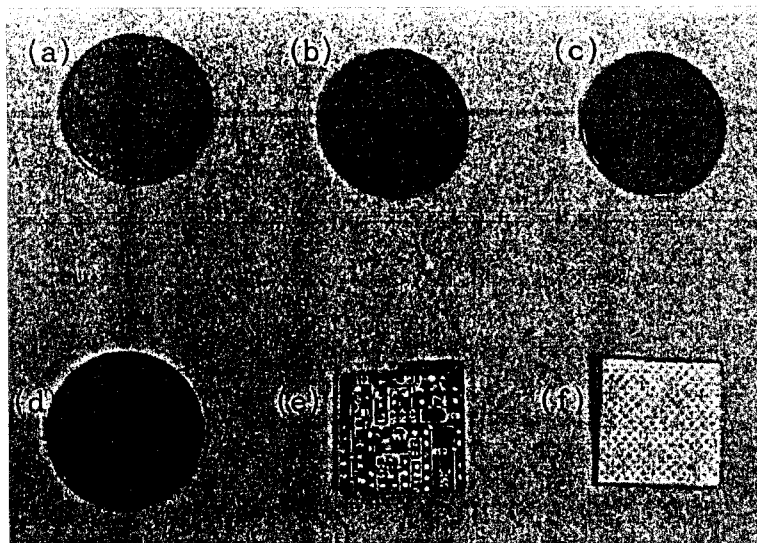


Fig. 3.2.1.12. Photo of test specimen, (a) carbon steel, (b) stainless steel(2B), (c) stainless steel(polishing), (d) paint coated specimen, (e) electronic circuit board, and (e) polypropylene laboratory gown.

기초적인 실험을 위해서 Cs-137로 오염된 Al_2O_3 입자 ('입자 A')를 사용하여 오염시편을 제조 한 경우에는 준비한 시편에 건조된 오염입자를 브러시를 사용하여 충분히 도포한 후 입자는 털어 내는 방법을 사용하였고, UO_2 입자 ('입자 U')를 사용한 경우에는 건조된 입자가 담겨있는 용기 속

에 동일한 종류의 시편을 전부 집어넣은 후 약 30초간 손으로 흔들어서 오염시킨 다음 표면에 붙어있는 과잉의 입자는 브러시로 털어 내는 방법으로 오염시편을 제조하였다.

② 제염 용액

본 연구에서 사용한 PFC 제염 용액으로는 3M사에서 개발한 PFC계 세정제인 PF-5070 (perfluoroheptane)이며, 여기에 PFC계 계면활성제의 영향을 조사하기 위하여 ZONYL[®] FS-62 (DuPont)를 0.1 vol%가 되도록 첨가한 용액 ('제염용액 F'로 명명) 또는 Krytox K157FS(M) (DuPont)를 일정 농도가 되도록 첨가한 용액 ('제염용액 K'로 명명)을 제조하였다.

③ 실험장치 및 조건

두 가지 종류의 제염 용액 내에서 입자성 오염 시편에 대한 초음파 제염 실험을 수행하였다. 첫 번째 종류의 제염실험은 순수한 PF-5070 용액 내에서 수행하였으며, 다른 하나는 계면활성제로 FS-62가 0.1 vol% 포함된 '제염용액 F' 또는 Krytox K157FS(M)가 포함된 '제염용액 K' 내에서 수행하였다. 본 실험에서는 주파수가 40 kHz이고 출력이 180 W인 초음파 제염장비 (Cole Parmer Ultrasonic Cleaner Model 8845-44)를 사용하였다.

본 초음파 제염장비의 초음파 교반 성능은 순수 내에 알루미늄 포일 시험편을 넣고 1분 동안 초음파를 가해 시험편의 상태를 육안으로 관찰함으로써 파악하였다. 1분 동안의 초음파 교반을 통해 알루미늄 포일 시험편은 매우 심하게 침식되었으며, 다양한 크기의 많은 구멍이 생성되었고, 이 결과는 Fig. 3.2.1.13에 수록하였다. 이 현상으로부터 본 초음파 장비를 사용함으로써 입자성 오염물의 제염이 가능한 것으로 판단하였다.

④ 실험절차

아무런 용액도 채워져 있지 않은 100 cc 용량의 유리 비이커 내부 바닥에 네 종류의 오염 시편을 수직으로 세울 수 있는 폴리프로필렌 락을 설치한 후 방사능이 계측된 오염 시편을 설치하였다. 오염 시편 상단에서 최소 1 cm 이상의 액위가 되도록 시편이 설치된 용기 내로 제염용액 F 또는 제염용액 K를 채우고 실험 조건에 따라 일정시간 동안 정치해 놓은 다음 초음파를 가해 제염을 수행하였다.



Fig. 3.2.1.13. Result of erosion test for aluminum foil in ultrasonic cleaner used in this experiments

제염용액 F의 경우는 거기에 포함된 계면활성제의 용해도를 고려하여 용액을 60 °C로 예열한 후 비이커에 가한 다음 초음파 제염을 수행하였다. 초음파 제염 후 핀셋을 사용하여 시편을 꺼내되 시편에 묻은 용액이 비이커로 다시 흘러 내려가도록 하였다. 꺼낸 시편은 순수한 PF-5070 용액 내에서 세척한 후 꺼내어 건조시킨 다음 비닐백에 넣어 방사능을 측정하였다.

⑤ 분석

제염 전 및 제염 후 오염 시편의 방사능을 측정할 때 측정기가 오염되지 않도록 시편을 비닐백에 넣어 단채널 방사능 분석기 (Scaler Rate Meter, SR-7, Nuclear Enterprise, Ltd.)를 사용하여 60초 동안 감마 방사선을 측정하였고, 그 결과로부터 시편의 오염상태를 파악하고 제염공정의 성능평가를 위한 제염계수를 산정하였다.

(나) 결과 및 고찰

모의 오염 입자가 부착된 금속표면, 도막 표면, 전자기판 및 일회용 PP gown에 대하여 초음파 제염장치를 이용하여 여러 가지 실험 조건하에서 PFC 건식제염 실험을 수행하여 그 결과를 기술하였다.

순수한 PFC 용액 내에서 '입자 A'로 오염시킨 오염 시편의 제염 거동을 초음파 적용시간을 달리해가며 조사하였으며, 그 결과는 Fig. 3.2.1.14에 수록하였다.

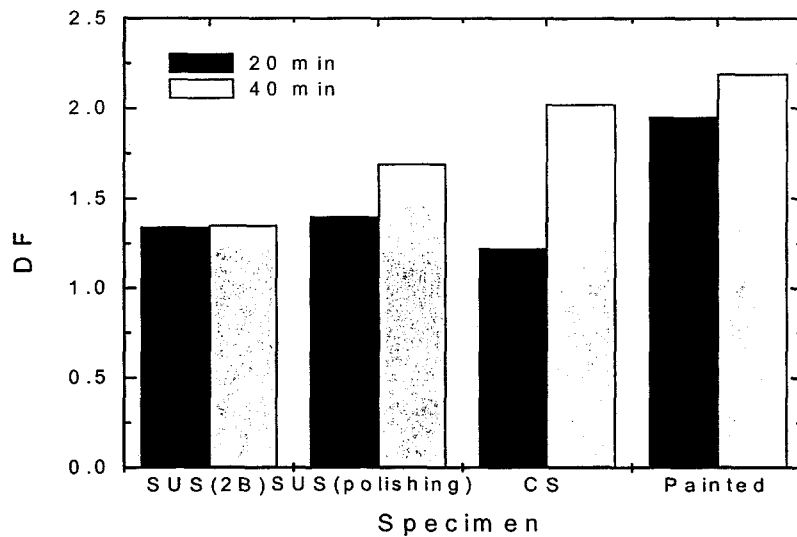


Fig. 3.2.1.14. Decontamination factor (DF) for various specimen contaminated with 'Particle A' in pure PFC fluid.

Fig. 3.2.1.14의 결과로부터 시편의 종류에 따라 약간의 차이는 있으나 제염계수는 약 1.3에서 2.3으로 오염 제거율은 약 25%에서 55%까지 얻을 수 있었다.

'입자 A'로 오염된 시편을 PFC 용액 내에 설치하고 초음파를 가했을 때 곧바로 시편표면으로부터 용액 증으로 입자가 떨어져 나오면서 용액이 혼탁해지는 현상을 보였다. 육안으로 관찰 시에는 상당량의 입자가 떨어져 나옴으로써 비교적 제염이 잘 되는 것으로 보였으나 제염 초기에 떨어져

나오는 입자는 비교적 입경이 커서 느슨하게 표면에 부착된 것으로 이것만의 제염에 의해서는 매우 작은 제염계수가 얻어지는 결과를 보였다.

또한 본 그림은 순수한 PFC 용액 내에서 초음파 적용시간의 증가에 따라 제염계수는 약간 증진됨을 보여주고 있다.

PFC 만에 의해서는 매우 작은 제염계수가 얻어짐으로 말미암아 본 연구에서 목표하는 재활용 또는 저준위화를 달성할 수 없었으며, 따라서 본 연구의 목표를 달성할 수 있는 새로운 방법으로 PFC 용액 내에 기질 표면과 입자사이의 부착력에 영향을 미칠 수 있는 계면활성제를 첨가하여, 계면활성제가 제염에 미치는 영향을 조사하였다.

PFC 계면활성제가 PFC 용액 내에서 입자에 미치는 영향을 조사하기 위해서 먼저 PFC 자체만의 용액과 PFC 계면활성제가 포함되어 있는 PFC 용액 내에 TiO_2 입자를 분산시켜 그 현상을 관찰하였다. 그 결과는 Fig. 3.2.1.15에 수록하였다.

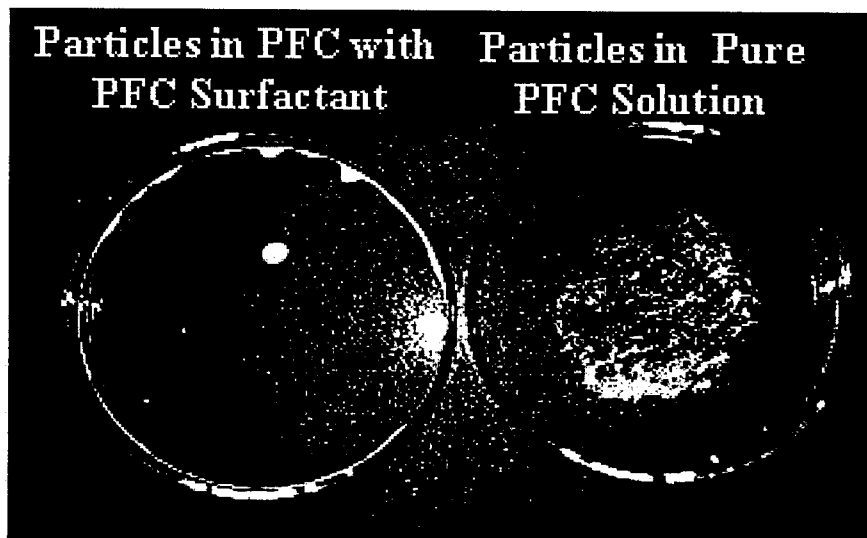


Fig. 3.2.1.15. Distribution behavior of TiO_2 particles in PFC solution and PFC solution containing PFC surfactant.

이 결과로부터 단지 PFC 용액에서 TiO₂ 입자는 용액에 분산되지 않고 침전되어 존재한 반면에 PFC계 계면활성제가 포함된 PFC 용액 내에서는 PFC 계면활성제에 입자가 끌고루 분산되는 현상을 보임을 알 수 있었다. 따라서 PFC계 계면활성제가 첨가됨에 의해 오염 시편의 제염성능이 PFC만의 용액 내에서도보다는 훨씬 증가할 수 있음을 알 수 있었다.

또한 앞서서도 이미 언급하였지만 고체표면과 입자와의 상호작용력을 AFM 방법으로 측정한 결과로부터 계면활성제가 올려진 고체표면의 부착력이 거의 없어지고 있으며, 이는 계면활성제를 포함하는 PFC 용액에 의한 제염이 PFC 용액에서의 제염에 비해 월등히 우수하리라는 예측을 가능하게 한다.

PFC계 계면활성제가 제염 효과에 미치는 영향을 살펴보기 위해서 순수한 PFC 용액 내에 0.1 vol%가 되도록 FS-62 계면활성제를 혼합한 60°C의 '제염 용액 F' 내에서 '입자 A'로 오염된 여러 가지 시편을 대상으로 20분간 초음파 제염을 수행하였으며, 그 결과를 순수한 PFC 용액 내에서의 제염 결과와 비교하여 Fig. 3.2.1.16에 수록하였다.

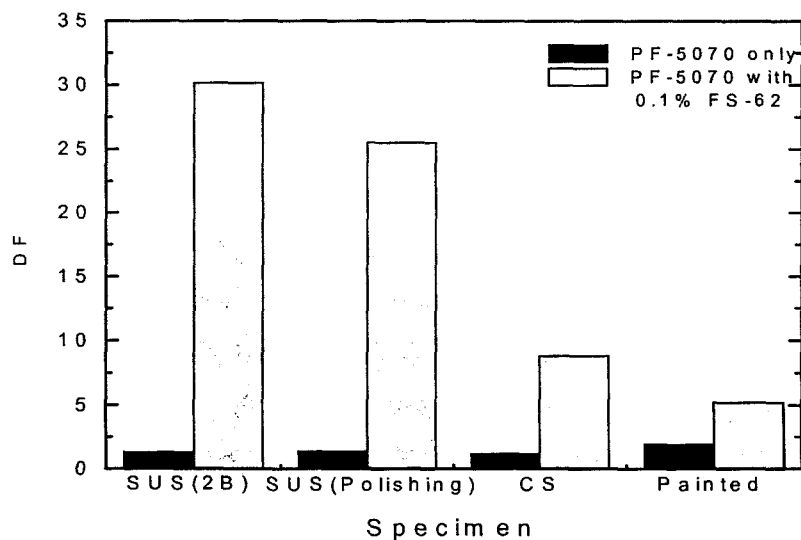


Fig. 3.2.1.16. Comparison of DF for various specimen contaminated with 'Particle A' in pure PFC fluid and 'Decontamination solution F'.

PFC 계면활성제가 함유된 '제염용액 F' 내에서 제염계수는 페인트 도장 시편에 있어서는 약 5, 탄소강의 경우 약 10, 그리고 스테인레스강 시편에서는 약 25~30의 범위로 오염 제거율은 시편에 따라 80~97%에 해당된다. 이 결과를 통해 순수한 PFC 용액 내에서의 제염에 비해 PFC 계면활성제가 포함된 '제염용액 F' 내에서의 제염효과가 매우 우수하다는 것을 알 수 있으며, 시편의 표면 상태에 따른 제염 효과를 고찰하면 비교적 표면이 매끈하고 표면 거칠기가 작은 스테인레스강 시편이 그렇지 못한 탄소강 시편이나 페인트 도장 시편에 비해 훨씬 우수함을 알 수 있었다.

PFC계 계면활성제의 제염 효과와 관련하여 PFC 계면활성제의 농도가 제염효과에 미치는 영향을 조사하였다. 이때 오염시편으로는 Cs-137 함유 UO_2 입자인 'Particle U'로 오염시킨 시편을 사용하였고, 제염용액으로는 PFC 계면활성제로 Krytox K157FS(M)가 포함된 PFC 용액인 '제염용액 K'를 사용하였다. 이때 제염용액의 초기 온도는 약 32°C가 되도록 조절하였다.

'제염용액 K'에서 Krytox K157FS(M)의 농도를 0.5 wt%에서 2 wt%까지 변화시켜가며 PFC 계면활성제의 농도변화에 따른 제염 효과를 Fig. 3.2.1.17에 수록하였다.

각각의 시편에 대한 제염 효과는 계면활성제의 농도에는 별로 영향을 받지 않는 것으로 나타났으며, 이는 미량의 입자를 분산시킬 수 있는 충분한 량의 계면활성제가 PFC 용액 내에 존재하기만 하면 효과적으로 제염을 할 수 있음을 의미하는 것으로 해석될 수 있다.

한편, 본 실험 결과는 'Particle A'로 오염시킨 시편의 제염결과인 Fig. 3.2.1.16과는 사뭇 다름을 알 수 있다. 즉, Fig. 3.2.1.16에서 보면 표면이 매끄러운 시편일수록 동일한 제염조건에서 제염계수가 큰 것으로 나타나 있으나, 'Particle U'로 오염시킨 시편을 사용한 본 실험 결과는 오히려 그 반대의 경향을 보여주는 것처럼 나타나고 있다. 이와 같이 실험결과가 서로 차이가 나고 있는 것은 시편의 제조 방법에 크게 기인하는 것으로 생각된다. 그러나 궁극적으로는 PFC 용액 내에 PFC 계면활성제를 첨가함으로써 입자성 오염물의 제염 성능이 크게 향상될 수 있음은 공통적으로 나타나고 있다.

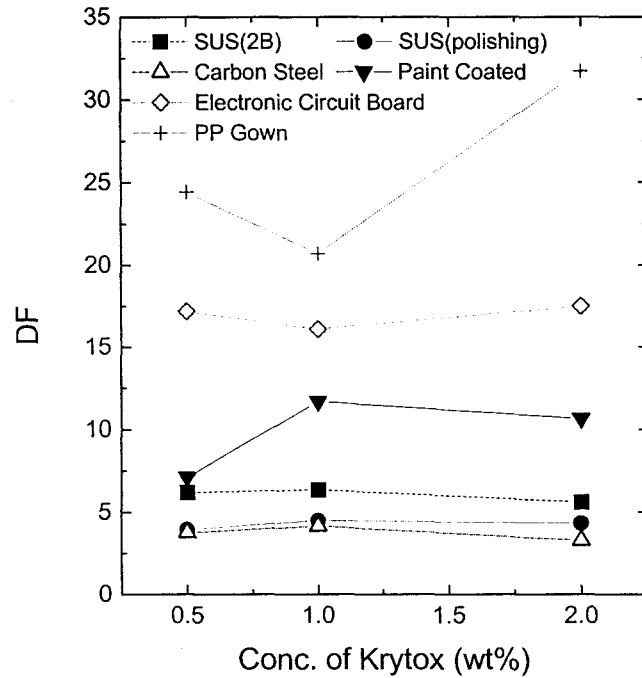


Fig. 3.2.1.17. Decontamination performances for various specimen contaminated with 'Particle U' in the solution of 'Decontamination solution K' according to the concentration of PFC surfactant, Krytox K157FS(M).

초음파 제염 시간이 제염 효과에 미치는 영향을 살펴보기 위하여 초음파 적용 시간을 변화시켜가며 '제염용액 F' 내에서 '입자 A'로 오염된 시편을 사용하여 제염 실험을 수행하였으며, 그 결과는 Fig. 3.2.1.18에 수록하였다. 스테인레스강 시편의 경우에 있어서는 약 20분간의 초음파 적용시간 까지 제염시간이 증가함에 따라 제염 효과가 증가하는 경향을 보여주었으며, 그 이상의 시간을 적용하더라도 제염 효과에는 별로 영향이 없음을 알 수 있었다. 한편 탄소강 시편과 페인트 도장 시편의 경우에는 약 10분 정도의 초음파 적용 이후에는 적용 시간을 증가시키더라도 제염 효과는 거의 변화가 없었다.

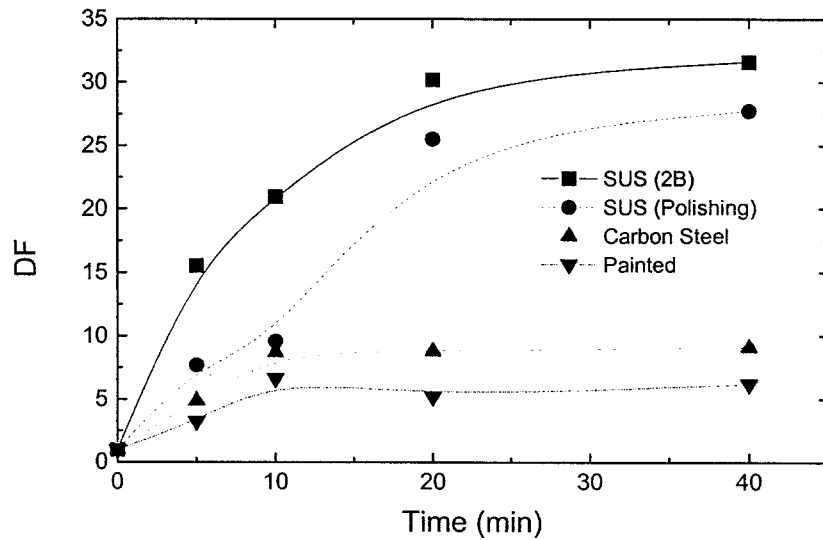


Fig. 3.2.1.18. Decontamination Performances for various specimen contaminated with 'Particle A' in the solution of 'Decontamination solution F' according to applied ultrasonic time.

동일하게 '제염용액 K'내에서 '입자 U'로 오염된 시편을 사용하여 초음파 제염 시간이 제염 효과에 미치는 영향을 조사하였으며, 그 결과는 Fig. 3.2.1.19에 수록하였다. 모든 시편의 경우 대부분 10분 정도의 초음파 적용 이후에는 적용 시간을 증가시키더라도 제염효과는 크게 변화가 없음을 알 수 있었다.

따라서 본 실험 결과들로부터 대부분의 입자성 오염 시편에 대해에서 약 20분간의 초음파 적용으로 비교적 제거가 어려운 미세한 분말까지 효과적으로 제거할 수 있음을 알 수 있었다.

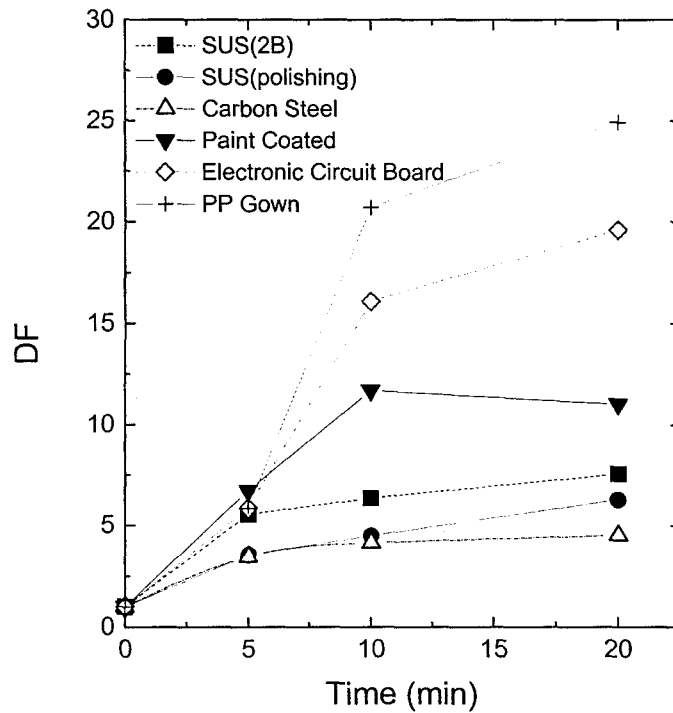


Fig. 3.2.1.19. Decontamination Performances for various specimen contaminated with 'Particle U' in the solution of 'Decontamination solution K (1 wt% Krytox)' according to applied ultrasonic time.

Fig. 3.2.1.18 및 Fig. 3.2.1.19의 결과를 통해서 20분간의 초음파 제염을 한번 적용시킴으로써 얻어진 최대 제염계수는 스테인레스강 시편의 경우 7~30, 탄소강 시편의 경우 5~8, 페인트 도장 시편의 경우 6~10, 전자기판 20, 그리고 PP 가운에 대해서는 약 25 정도로 저준위폐기물화를 대상으로 하였던 일회용 PP 가운의 제염 목표치 5이상을 달성하였을 뿐 재활용 대상이었던 스테인레스 강 및 전자기판의 제염 목표치 200과 피폭 저감화 대상이었던 페인트 도막시편의 제염 목표치 20 이상을 달성할 수 없었다. 이러한 목표를 달성하기 위해서 제염시간을 더욱 길게 하거나 초

음파 강도를 크게 하는 방법, 또는 제염 횟수를 늘리는 방법이 대두되었고, 제염 시 용액 증으로 탈리 된 입자의 재 침적에 의한 재 오염 문제 등을 고려하여 제염 횟수를 여러 번 적용하면서 제염용액을 교체하는 방법으로 제염을 수행하였다.

이를 위해서 일회의 제염 시간을 10분으로 단축하고 3회까지의 초음파 제염을 적용하는 실험을 '입자 A'로 오염된 시편을 대상으로 '제염용액 F' 내에서 수행하였으며, 그 결과는 Fig. 3.2.1.20에 수록하였다.

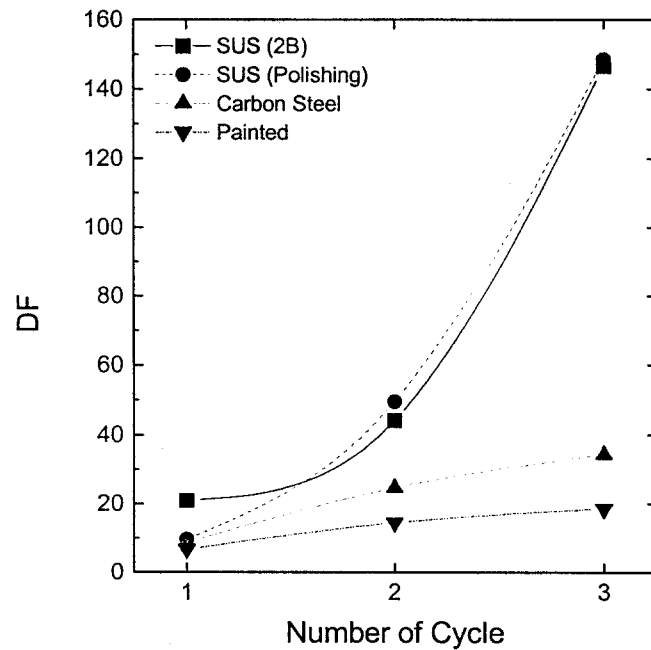


Fig. 3.2.1.20. Decontamination performances for various specimen contaminated with 'Particle A' in the solution of 'Decontamination solution F' according to applied number of ultrasonic cycle.

단 한차례 20분간의 초음파 제염과 10분씩 두 차례에 걸쳐 수행한 초음파 제염 결과를 알아보기 쉽도록 도시하여 Fig. 3.2.1.21에 수록하였다.

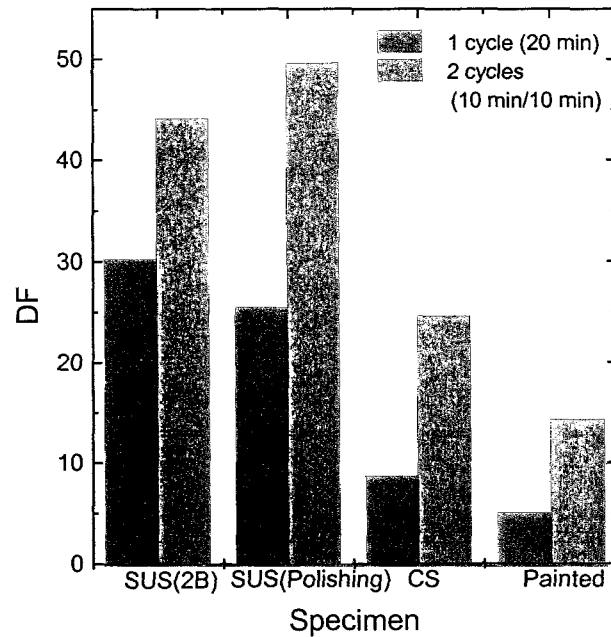


Fig. 3.2.1.21. Comparison of DF for various specimen contaminated with 'Particle A' according to applied pattern of ultrasonic decontamination in 'Decontamination solution F'.

이들 결과는 장시간의 제염을 적용하는 것보다 단시간의 제염을 반복적으로 적용하는 것이 훨씬 효과적임을 보여주고 있다. 특히 재활용 대상으로 선정된 스테인레스강 시편의 경우 반복 제염에 의해 거의 재활용 목표치까지 제염이 가능함을 보여주고 있으며, 이 외에도 피폭 저감화 대상인 페인트 도막 시편의 경우에서도 제염 목표치에 도달 할 수 있음을 보여주었다.

마찬가지로 '입자 U'로 오염된 시편을 대상으로 '제염용액 K' 내에서 일회의 제염 시간을 10분으로 해서 4회까지의 초음파 제염을 적용하는 실험을 수행하였으며, 그 결과는 Fig. 3.2.1.22에 수록하였다.

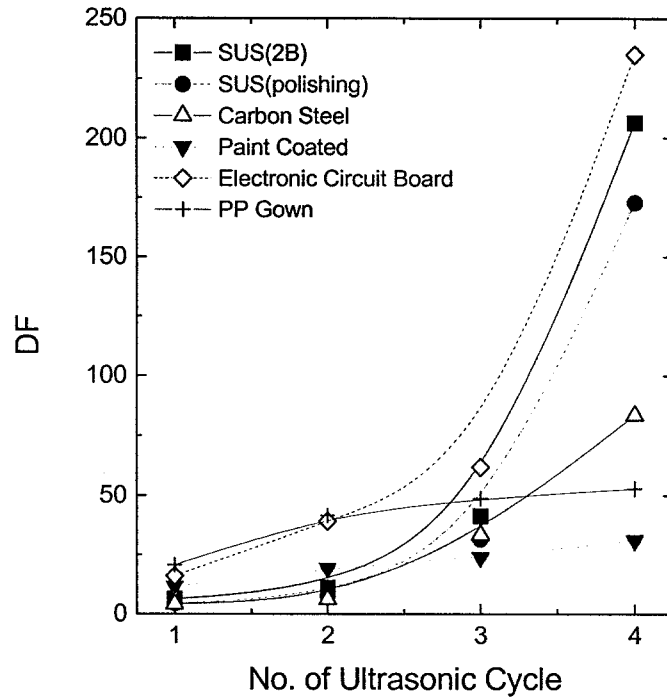


Fig. 3.2.1.22. Decontamination performances for various specimen contaminated with 'Particle A' in the solution of 'Decontamination solution F' according to applied number of ultrasonic cycle.

이 결과 또한 한차례의 장시간의 제염만을 적용한 제염결과에 비해 몇 번의 단시간 적용으로 제염 계수는 크게 증가됨을 보여주고 있으며, 4회의 적용을 통해 재활용 대상 시편인 스테인레스강 및 전자기판의 제염계수를 200 이상, 피폭저감화 대상 시편인 페인트 도막 시편의 제염계수를 20 이상으로 증가시킬 수 있었다.

본 실험 결과들을 통하여 일회의 제염에 있어서는 적용시간을 아무리 길게 하더라도 제염 표면으로 오염입자가 재 오염됨으로 인해 원하는 제염 성능을 얻을 수 없지만 비교적 짧은 시간의 초음파 적용 횟수를 새로 교체되는 용액 중에서 수행하면 탈리 입자의 재 오염 문제를 해결함으로

써 매우 좋은 제염성능 결과를 얻을 수 있음을 알 수 있었다. 또한 6 종류의 모의 오염 시편 (스테인레스강 2종, 탄소강, 에폭시 도포시편, 전자기판, 일회용 PP 가운)에 대한 제염실험을 PFC 계면활성제 (FS-62 또는 Krytox)가 포함된 PFC (PF-5070, Perfluoroheptane) 용액 내에서 수행한 결과, 결론적으로 본 연구의 제염성능 목표치 (①재활용 : DF>200, ②피폭저감화 : DF>20, ③저준위폐기물화 : DF>5)를 달성할 수 있었다.

(다) 결론

입자성 오염시편에 대한 건식 제염방법으로 PFC에 의한 초음파 제염실험 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 순수한 PFC 용액 내에서의 제염에 비해 PFC 계면활성제가 포함된 PFC 용액에서의 제염효과가 훨씬 우수하였으며, 이 PFC 건식 제염으로 입자성 오염을 효과적으로 제거할 수 있다.
- 장시간의 단 한차례 초음파 제염을 적용하는 것보다 초음파 적용시간을 짧게 해서 새로 교체된 제염 용액 내에서 반복적으로 제염을 수행함으로써 입자성 오염을 더욱 효과적으로 제거할 수 있다.
- PFC계 계면활성제가 포함된 PFC 용액 내에서 초음파 제염에 의해 본 연구의 제염성능 목표치를 다음과 같이 달성할 수 있었다.

제염 목적	대상 오염물	제염 성능 목표치 (DF)
재활용	스테인레스강 전자기판	>200
피폭저감화	페인트 도막표면	>20
저준위폐기물화	실험 가운 등 피복류	>5

(3) PFC 제염제 회수 및 오염입자 제거

(가) PFC 제염제 회수

PFC는 자체가 고가이며, 제염 종료 후에 이차폐기물의 발생이 최소화 되도록 PFC를 회수하여 재사용할 목적으로 증발 응축에 의한 회수 실험을

수행하였다. PFC 용액 자체의 FT-IR 스펙트럼과 PFC 계면활성제가 포함된 용액에서 증발 응축에 의해 회수된 PFC 용액의 FT-IR 스펙트럼을 비교한 결과는 Fig. 3.2.1.23에 수록하였으며, 계면활성제가 혼합된 폐 제염용액으로부터 비교적 고가의 PFC를 회수할 수 있었다.

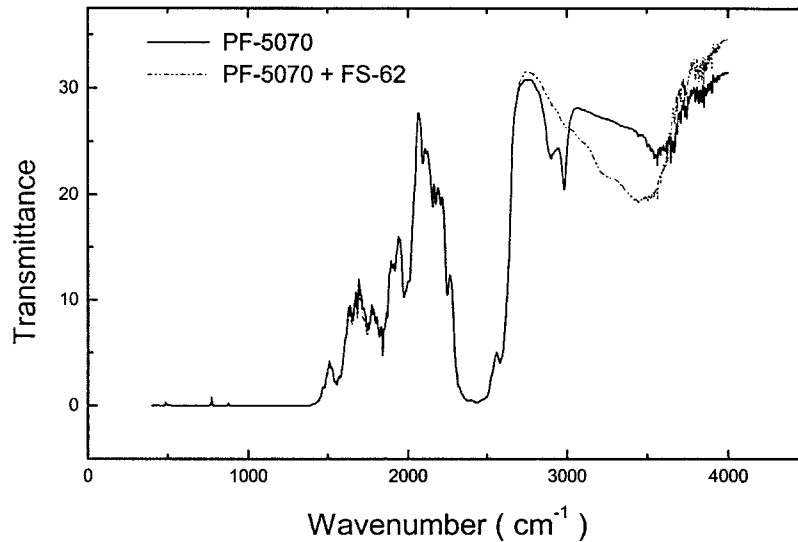


Fig. 3.2.1.23. FT-IR spectrum of pure PFC and recovered PFC from the solution of 'Decontamination solution F'.

(나) PFC 제염용액 내 오염입자 제거

폐쇄공정(closed system)으로 운영되는 PFC 제염공정은 PFC 매체를 연속 순환하여 사용하게 되며, 제염과정에서 제거된 오염입자가 PFC 매질 내에 존재하여 재 오염의 원인이 된다. 따라서 본 연구에서는 PFC매질 (PFC 및 PFC 계면활성제 혼합액)내 현탁성 방사성 입자를 제거하기 위한 여과공정을 선정하기 위해서 여과막의 표면특성에 따른 분리성능을 비교 실험하였다.

제염용액은 PFC와 PFC 계면활성제 혼합액에 모의 오염입자(Al_2O_3)를 첨가하여 제조하였으며, 여과막은 본래의 $0.1 \mu m$ PP(폴리프로필렌) 정밀여

과막과 PFC 계면활성제인 FS-62와 양이온계면활성제 CPC(cetylpyridium chloride)를 24시간 함침하여 흡착시킨 PP막 및 UF막을 사용하였다. 여과 실험은 회분식 stirred cell(용량 : 50 ml)을 이용하여 투과속도 및 입자의 투과정도를 측정하였다.

각 여과막의 표면특성을 비교하기 위해서 streaming potential을 측정한 결과 본래의 PP막은 약간의 음의 전하를 나타내었으나, 음이온계면활성제인 FS-62로 표면처리한 막의 제타전위는 -20 ~ -23 mV, 양이온 계면활성제인 CPC로 표면처리한 막은 10 ~ 20 mV를 나타내었다.

표면처리한 막의 세공크기나 표면특성의 변화에 의한 분리성능(투과속도, 제거율)을 비교한 결과 PFC 및 PFC 계면활성제 혼합액에 대한 투과속도는 UF막에 비해 PP 막과 PP 개질막이 높은 투과 속도를 보였고, 표면처리한 UF 막에 대해서는 Krytox보다 CPC에 의해 표면 처리한 막이 높은 투과속도를 나타내었다.

방사성 오염입자의 제거효율은 다음 Fig. 3.2.1.24에 수록하였으며, PP 막은 거의 제거가 불가능하였으나 표면 처리한 UF 막은 90 % 이상의 제거율을 보였다.

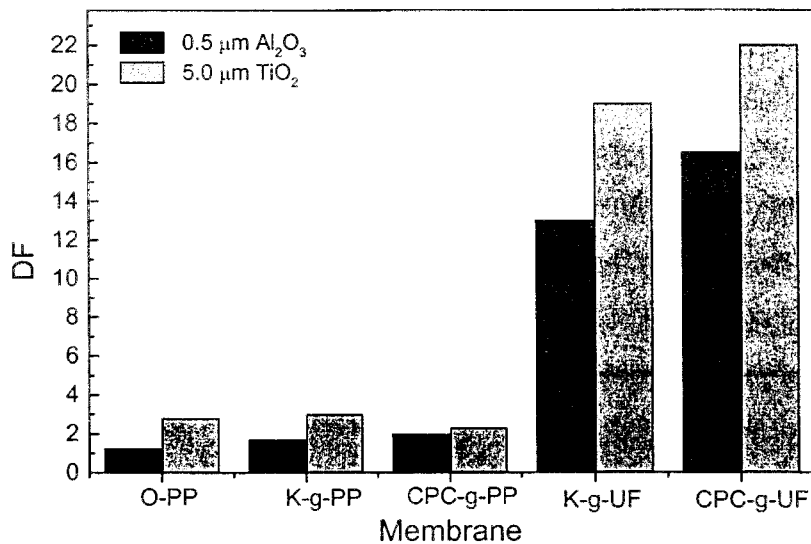


Fig. 3.2.1.24. Filtration performances for particles.

2. CO₂ 제염기술

가. 서 문

방사성 물질을 취급하는 핵연료주기시설의 수명기간 동안 다양한 유지보수 작업이 필요하며, 이 유지보수 작업중 작업자의 피폭저감을 위해 제염은 필수적이다. 이러한 제염의 필요성은 시설의 수명이 증가할수록 점차 증대된다. 핵주기 시설을 대상으로 한 기존에 입증되어 사용중인 제염공정으로는 크게 화학적 제염공정과 물리적 제염공정을 들 수 있다. 화학적 제염공정은 침적 방사능을 화학제를 사용하여 화학적으로 용해하는 원리를 이용하며, 물리적 제염공정은 제염대상에 기계적 혹은 물리적 힘을 가하여 오염을 제거하는 방법으로 분사제염방법이 가장 널리 사용되며, 사용하는 분사체의 종류에 따라 고압의 물이나 액체를 사용한 고압 액체분사 제염공정과 모래, 알루미나 등의 고체를 사용한 고체분사 제염공정으로 나눌 수 있다.

그러나 이러한 기존에 사용되는 기계적 혹은 화학적 제염법은 처분이 필요한 액상이나 고상의 부생성물을 발생시킨다.

CO₂ 분사제염법은 이러한 문제를 해결할 수 있는 제염방법으로, 90년대 들어 원자력계에 이용하기 위한 다양한 연구와 적용이 독일 등을 비롯한 유럽과 미국 등의 원자력 선진국에서 시작되었다. 국내의 경우 현재 건설 운영중인 Hot cell과 같은 방사성물질 취급시설 혹은 향후 건설운영 예정인 사용후 핵연료 재활용 시설 내 작업자의 피폭저감과 설치장비 및 기기를 포함한 시설의 효율적 사용 등 시설의 원활한 운영을 위해서는 오염대상과 오염특성에 맞는 적합한 건식제염기술의 확보가 필요하다.

이를 위해 고방사능 취급시설에 적합한 건식제염기술의 단위 제염기술로 최근에 연구와 적용기술에 관해 관심이 집중되고 있는 CO₂ 분사제염기술에 대한 기술개발 및 이용현황 등을 조사하였으며, 제염성능 평가를 위해 CO₂ 분사제염장치를 사용하여 제염특성실험을 수행하였다. CO₂ 분사제염기술은 CO₂ 분사체의 종류에 따라 CO₂ snow와 CO₂ pellet 분사제염기술로 나눌 수 있으며, 오염이 무르고 약하게 형성된 입자성 오염의 경우 CO₂ snow 분사제염기술에 의해 효과적인 반면, 비교적 단단히 고착된 오염경력이 오래된 오염의 경우 CO₂ snow 분사제염기술보다는 CO₂ pellet 분

사제염 기술이 효과적인 것으로 알려져 있다. 따라서 본 연구에서는 두 종류의 실험을 통해 이에 대한 특성을 살펴보았다.

나. CO₂ 분사제염 방법 및 원리

산업계 활동에 관련하여 미국을 비롯한 선진국의 최근 규제 방향이나 관심은 보다 안전하고 환경 친화적인 점을 강조하고 있으며, 이러한 상황에 대처하기 위한 중요한 고려사항은 용액을 사용한 제염방법의 배제 혹은 억제, 작업시간의 단축, 장비 비가동시간의 단축, 폐기물의 저감 등이다. 이러한 관점에서 CO₂를 제염제로 사용하는 것은 매우 효과적이다.

1930년대 초반 고상 CO₂의 제조가 가능하게 되어 냉장에 이용되기 시작한 이래 여러 종류의 grease 제거, 육류의 골육분리에 이어, 70년대에 dry ice의 고속분사를 이용한 불순물 제거방법이나 pellet형태의 승화성 물질에 의한 분사제거법으로 특허가 나오기에 이르렀다. 그후 1980년대 후반 OSHA, EPA 법시행에 따라 제염기술로서 dry ice를 이용하는 새로운 단계의 연구조사가 활발해져 이 시기를 전후해서 dry ice 분사기술 개발을 추구하는 여러 회사가 설립되었으며, dry ice pelletizer와 분사 장치가 산업 시장에 등장하였다[3.2.2.1]. 이 당시 분사장치는 장치규모가 크고 고가였으며, 200psi 이상의 고압조작이 요구되었으나 그 후 CO₂ 분사기술이 발전됨에 따라, 고밀도 dry ice pellets이 개발되어 기존에 사용되던 저밀도 shaved block dry ice 보다 더욱 제염효과가 우수함이 입증되는 큰 발전이 이루어졌으며, 장치 규모와 장치비용이 낮아지고, 최근의 노즐 설계기술은 80psi의 압력에서도 비교적 효율적인 분사효과를 얻을 수 있게 되었다[3.2.2.2]. pellets을 사용하는 장치는 현재 시장에서 사용되고 있으며 일반 산업계 사용에 적합한 저비용 다용도 제염장치로 인정되고 있다.

1) CO₂ 제염방법

CO₂를 사용한 제염법으로는, dry ice pellets이나 오리피스를 통한 단열팽창에 의해 생성되는 dry ice snow 등의 고상 media를 이용하는 방법, 액상 CO₂를 이용한 제염법 그리고 초임계 상태의 CO₂를 이용한 제염법

등의 세 가지 방법으로 행해질 수 있다. 어떠한 방법이 사용되던지 제염은 CO₂의 용매로서의 성질과 고정상으로 충격을 가함으로써 발생하는 모멘텀이나 에너지 전달효과에 의존한다.

pellet 제염법의 경우 오염제거를 위한 CO₂ pellets의 높은 충돌속도에 관계된 열 및 기계적 에너지에 의존하며, dry ice snow의 경우 노즐형태와 단열팽창 공정에 좌우되는 snow 입자의 모멘텀 전달효과에 의존하다. 이에 반해 액상 CO₂를 이용한 제염법은 액상에서 CO₂의 용매성질에 의존하며, 초임계 CO₂ 제염법은 CO₂의 독특한 초임계 유체성질에 의존한다.

① pellets

pellets계의 경우 오염제거를 위해 macroscopic dry ice pellets을 가속한다. 제염은, 열 및 기계적 충격에 의해 이루어진다.

pellet 계에서의 주요 구성요소와 단계는,

- 원하는 크기의 pellet 제조(생성)
- 적절한 조건에서 pellets의 유지
- pellet의 공급
- 기계적 방법이나 압축가스에 의한 가속
- 제염대상물에 pellet 분사

② Snow

snow장치계는 기상 혹은 액상 CO₂의 팽창에 의존한다. 모멘텀 전달효과와 CO₂의 용매성질에 의해 제염이 이루어진다. snow 제염의 실행에 있어 주요 관건은 노즐설계이다. 분사내용물은 CO₂ 기체와 함께 운반되는 고속 혹은 저속의 snow 흐름이다. 고속의 microscopic snow 흐름의 생성에 관계된 기술과 저속의 large snow flakes 흐름을 사용하는 두 가지의 상용 snow 제염기술이 있다. 고속의 크기가 작은 snow spray 흐름은 입자와 잔류유기물 모두를 제거할 수 있는 반면, 저속의 크기가 큰 snow flake 흐름은 입자성 물질만을 제거할 수 있다. 큰 크기의 snow flakes 생성을 위해서는 액상의 CO₂가 필요한 반면, microscopic snow 흐름은 액상이나 기상의 CO₂로 생성된다. 이 두 방법 사이에는 제염능 및 제염메카니즘에 있어 기본적인 차이가 있다.

③ 액체 CO₂

액체 CO₂ 제염장치는 초임계 장치의 보다 단순화된 형태로 생각할 수 있다. 저압을 사용함으로써 장치설계가 쉽고 큰 용량이 가능하다. 물론, 초임계 공정장치보다 낮은 압력 및 온도에서 운전함으로써, CO₂의 용해능은 초임계 보다 낮고 초임계 유체가 갖는 독특한 침투력은 없어진다.

④ 초임계 CO₂

초임계 CO₂ 제염법은 CO₂의 용매적 성질과 초임계 유체가 갖는 다른 독특한 성질에 의존한다. 이는 31℃, 72.8atm 이상의 초임계 영역내에 온도, 압력을 유지하는 것이 필요하다.

일반적으로, 초임계 CO₂ 장치는 임계점보다 훨씬 높은 온도, 압력에서 운전된다. 초임계 유체는 액상보다 낮은 점도 및 낮은 표면장력 그리고 우수한 용매능을 갖고 있다. 초임계 CO₂ 장치계에 있어, 제염대상물을 용기내에 장비, 밀봉한 후 온도, 압력을 조절하게 된다. 이 방법은 주 제거 대상이 유기오염물인 소규모이거나 섬세하고 복잡한 기기, 공구의 회분식 제염에 적합하다. 초임계 CO₂ 장치계의 단점은, 회분식 공정인 점과 무기 혹은 입자성 오염을 제거할 수 없다는 점이다.

2) Media의 제조

Dry ice 분사 media를 제조하는데 사용되는 여러 가지 방법이 있는데 그 중 한가지 기술은, 분사장치에서 고상의 dry ice block으로부터 dry ice granules을 얇은 조각으로 깎아내는 방법이다. 이러한 방법으로는, 일반적으로 sugar - crystal 크기의 dry ice granules이 제조되는데, 이는 체적에 대한 비표면적의 비가 커서 급속히 승화되기 때문에 제조 후 곧바로 사용해야 한다.

또 다른 방법은, pelletizer에서 단단한 dry ice pellet을 제조한 후 곧바로 pellet을 분사하거나 필요 시까지 보온용기에 pellet을 보관하는 것이다. 이들 pellets은 보통 0.08~0.12“(2.03~3.05mm)의 직경과 0.1~0.4“(2.54~ 10.16mm)의 길이를 갖는다. 이 방법에 있어서, dry ice는 가압된 액상 CO₂를 snow로 flashing한 후 snow를 고상으로 압축하여 제조된다. snow는 pellet으로 직접 nugget화 즉 기계적 압축을 하거나, 혹은 프레스로 die를 통해 고상 pellet 형태로 압출(extrusion)된다. 후자의 공

정이, 액상에서 고상으로의 상변화가 더 효율적이다. 일반적으로, media의 최종품질에 영향을 줄 수 있는 기상 CO₂의 동반을 최소화하기 위해서는 조밀한 구조의 pellet을 생성시키는 것이 바람직하다.

액상CO₂의 snow로의 전환률은, 액상 CO₂의 온도감소에 따라 증가한다. 따라서 열교환기를 통해 배출 CO₂ vapor로 들어 온 액상 CO₂를 사전 냉각하는 것이 중요하다.

3) 분사 원리

Dry ice 분사제염법은, sand blasting, plastic bead blasting 및 soda blasting과 마찬가지로 가압공기나 혹은 다른 inert 가스로 분사되어 표면을 제염하거나 전처리 하게된다. 이 경우, 표면에 충격을 주는 media는 고상의 CO₂ 입자이다. 분사 media로 dry ice입자를 사용하는 특징은, 표면과 충돌 시 이들 입자가 곧바로 승화된다는 것이다.

표면-pellet간 충돌에너지와 매우 신속한 열전달이 고상의 CO₂를 가스로 순간적으로 승화시켜 버린다. gas는 3-4 mili초 사이에 pellet 체적의 약 800배 까지 팽창되어 충돌지점을 미세 폭발시킨다. CO₂가 승화되기 때문에, dry ice 분사제염법은 2차 폐기물을 생성시키지 않는다. 남아서 수거되는 것은 제거된 오염물 뿐이다.

다른 분사 media 사용 시와 마찬가지로, dry ice 분사제염에 관계된 운동에너지는 입자의 질량과 충돌 속도의 함수이다. CO₂ 입자는 비교적 강도가 낮으므로, 이 공정은 요구되는 충돌에너지를 얻는데 입자의 높은 속도에 의존하며 입자의 빠른 속도는 air stream 속도나 초음속의 추진제의 결과이다.

다른 분사 media와는 달리, CO₂ 입자는 -109°F(-78°C)의 매우 낮은 온도를 가지므로 coating type에 의존하면서 다소간 coating에 영향을 주거나 오염시키는 독특한 열역학적 유발 표면 메카니즘을 갖게 한다. dry ice입자와 제염하고자 하는 표면사이의 온도차 때문에 깨짐이나 열충격이 일어날 수 있다. 물질의 온도가 낮아질수록 더 물러져 입자 충격이 코팅을 깨게 할 수 있다. 또한 열팽창계수가 다른 두 물질사이의 온도구배나 차이는 두 물질사이의 결합을 깰 수 있다. 이 열충격은 금속모재에 결합

된 비금속 코팅이나 오염물을 분사제염 시 가장 뚜렷하다.

다. 연구개발 수행 내용 및 결과

1) CO₂ 분사제염특성 실험방법

가) CO₂ snow 분사제염

모의오염 시편의 제조

CO₂ snow 분사제염 특성조사를 위한 모의 오염시편 제조를 위해 현장의 제염대상 재질을 모사할 수 있는 대표적인 구성 재질로 SUS 304를 선택하였다. 이 재질에 대표적인 오염핵종으로 선택된 Co를 사용하여 다양한 방법으로 오염모사를 하였다. 사전 조사된 금속표면오염 측정방법인 XRF에 의한 측정이 가능하도록 금속시편을 직경 39mm, 두께 6mm로 가공하여 grinding 및 polishing한 후 알코올로 표면을 세척 건조한 상태에 4000 ppm의 농도로 제조된 Co 용액 2.5ml를 가하여 모의 오염시편을 제조하였다. Co 용액을 가한 후 여러 온도와 접촉시간을 변화시켜 오염형성이 잘 되는 조건을 사전조사에 의해 구하였다.

CO₂ 분사제염 특성실험 내용

사전 오염제조특성 실험을 통해 가장 오염이 잘되는 조건에서 SUS 304 재질을 Co로 오염시켜 노즐의 직경과 같은 CO₂ 분사제염 노즐 설계변수와 노즐 분사압력, 분사시간, 분사거리 및 각도 등의 공정조작변수를 변화시켜 CO₂ 분사 제염특성을 조사하였다. 각 변수의 실험범위는 다음과 같다.

- 분사압력 변화실험: 10, 25, 45 Kg/cm²
- 분사시간 변화실험: 0.5, 1.0, 2.0, 3.5, 5.0 min
- 접촉거리 변화실험: 5, 10, 15 mm
- 분사각도 변화실험: 45, 90도
- 노즐 직경 변화실험: 0.85, 2.9 mm

CO₂ 분사제염 실험장치

CO₂ snow system을 설계·제작하여 실험에 사용하였다. CO₂ snow 생성 및 분사장치는 Fig. 3.2.2.1과 같이 노즐 assembly와 CO₂ cylinder로 구

성된다. 노즐 assembly는 0.80mm의 orifice와 PTFE노즐 및 연결 fitting으로 되어있으며, 내부의 유체 접촉부위는 전해연마 처리한 스테인레스강으로 제작되었다.

조작동안 노즐 assembly내에서 이단계의 Joule-Thomson 단열팽창이 발생하도록 이중노즐로 제작하였다. 즉, 저장된 CO₂ 유체의 일부를 1차 노즐을 통해 기상 CO₂와 미세 CO₂ 액적을 함유한 혼합물로 팽창시키고 이어서 합체 chamber를 통해 이들 1차 혼합물을 기상 CO₂와 보다 큰 CO₂ 액적을 함유한 2차 혼합물로 합체시킨 후 2차 노즐을 통해 2차 혼합물을 고상 CO₂ 입자와 기상 CO₂가 함유된 3차 혼합물로 팽창시켜 이를 오염대상물을 향해 분사시키게 된다. 사용된 CO₂는 추가 오염 가능성을 최소화하기 위해 99.9%이상의 고순도 CO₂가 요구된다.

실험분석

모사 오염시편의 CO₂ 분사제염 전·후의 오염농도에 대한 분석이 필요하며, 비용이 높지 않으면서 비교적 신속하고 정확한 방법으로 재현성있는 결과를 얻을 수 있어야 한다. 조사결과 관심 핵종인 Co에 대해 X-ray Fluorescence(XRF)법이 신속하고 비교적 정확한 표면 분석기술임이 확인되었다. 이 방법의 최대 측정 가능 농도범위는 1000 μg이고 감도는 1 μg으로 약 1000까지의 제염계수값을 측정할 수 있다. 핵종의 표면농도 분석에 사용된 XRF장치는 Siemens산 SRS-303 model로서 Rh target을 사용하고 출력 3kw의 파장분산형이다.

나) CO₂ pellet 분사제염

모의오염 시편의 제조

- 오염 입자의 제조 : Iso-propyl alcohol 20 cc에 평균 입경이 다른 (1 μm, 5-10 μm) Al₂O₃ 입자 5 g을 넣고 잘 혼합하여 현탁액 상태의 오염 입자를 제조하였다.
- 오염 시편의 제조 : 시편으로는 스테인레스강 304를 grinding한 후 polishing한 이 시편 표면에 현탁액 상태의 입자에 의한 습식제조

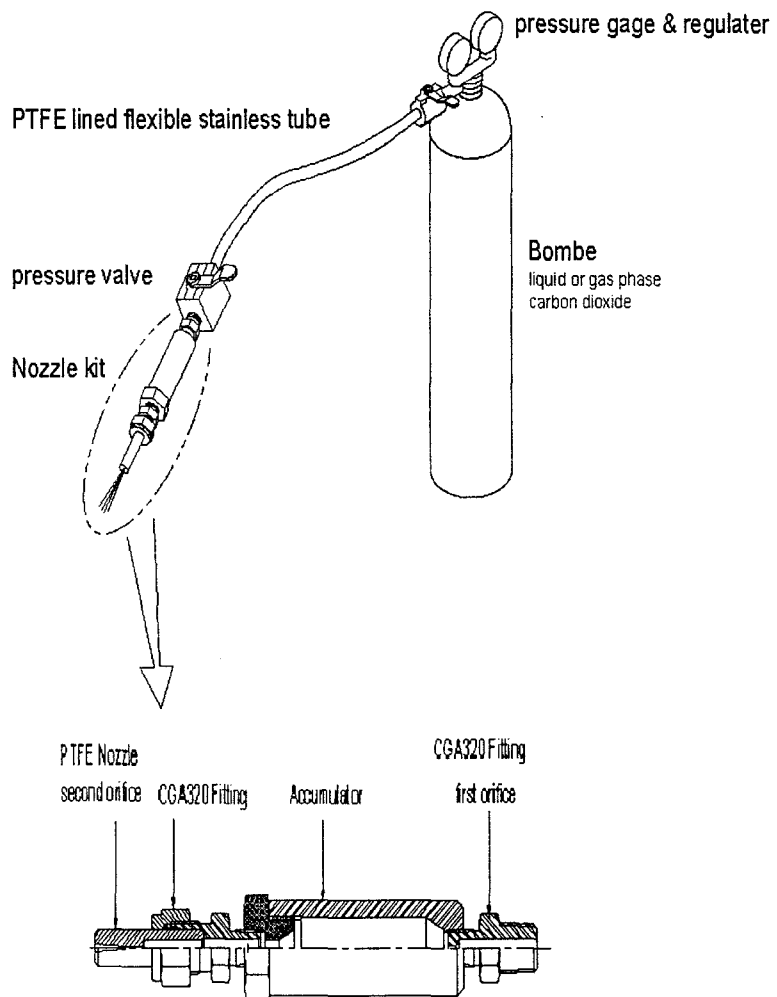


Fig. 3.2.2.1. Experimental equipment for CO₂ snow decontamination.

및 건조 상태의 입자에 의한 건식제조의 두 가지 방법으로 오염시편을 제조하였다. 습식제조의 경우 현탁액 내에 시편을 넣어 충분히 적신 후 꺼내어 건조하였으며, 건식제조의 경우 준비한 시편에 건조된 오염입자를 brush를 사용하여 오염시킨 후 과잉의 입자는 털어내는 방법을 사용하였다. 또한 비교를 위해 4000 ppm의 Co 용액 2.5ml를 금속시편 표면에 가한 후 진공오븐에서 50C로 48시간 동안 단순 건조시켜 오염시편을 제조하였다. 이 두 가지 습식 오염시험시편을 실험목적에 맞게 제조하였다. 이들 시편은 순수한 loose 오염시편으로 생각할 수 있다.

특성실험 내용

제염 목적에 따라 선정된 오염대상물 중 현장적용 시 피폭저감화나 재활용을 위한 금속 표면에 대하여 CO₂ pellet 분사제염 장치를 이용하여 CO₂ pellet 건식제염 성능 평가 실험을 수행하였다. 오염 알루미늄 분말의 크기 (1 μm, 5-10 μm), CO₂ pellet 분사압력 (4-6Kg/cm²), CO₂ pellet의 크기 (3-5 mm), 접촉시간(5-30 sec) 등의 변화에 따른 CO₂ Pellet 건식분사 제염의 공정매개변수와 장치설계인자 변화에 의한 제염특성을 파악하였다.

분사제염 장치

실증시험규모의 건식 CO₂ Pellet 분사제염장치를 자체 설계·제작하여 CO₂ Pellet 건식분사 제염특성 파악에 사용하였다. CO₂ Pellet 분사 제염 장치는 Pellet 생성용량이 15-20 kg/hr인 CO₂ Pellet Extruder system과 분사압력이 5-8 bar 범위인 CO₂ Pellet 분사장치로 구성하였다.

실험분석

제염전 후의 모의 오염 시편상 오염 알루미늄 분말이나 Co 입자의 specific density를 microscope(Nikon Epiphot Model MEA 212CA)로 측정 후 image analyser(Image Pro Plus)로 제거분율을 분석하였다.

2). 실험결과 및 고찰

가) CO₂ snow 분사제염

CO₂ 분사제염특성

사전 오염제조특성 실험을 통해 비교적 오염형성이 잘되는 조건으로 선정된 400C의 온도에서 24시간 기중 접촉을 통해 SUS 304 재질을 오염시켜 노즐 설계변수와 CO₂ 분사제염의 공정조작변수를 변화시켜, CO₂ 분사제염 기술의 오염제거 타당성을 확인하고자 하였다.

노즐설계변수 중 제염효과에 가장 중요한 요소인 노즐직경을 0.85mm에서 2.9mm범위로 변화시킨 결과, 본 실험범위 내에서는 노즐직경이 제염효과에 큰 영향을 미치지 않음이 관찰되었다. 또한 CO₂ 분사제염의 공정조작변수인 분사시간, 압력 및 분사거리 등을 변화시켜 실험을 수행하여 얻은 결과를 Fig. 3.2.2.2에 나타내었다. 0.5분에서 10분에 걸쳐 분사시간 변화에 따른 실험결과, 0.5분과 1분 범위에서는 제염효과의 차이가 나타나지 않았으나, 그후 2분까지는 제염계수값이 약 61까지 크게 증가하였다. 초기 1분의 접촉시간과 0.5분의 결과가 큰 제염효과 차이를 보이지 않은 것은 고상의 CO₂ 제염의 원동력인 충돌에너지가 초기 1분 동안에서는 충분하지 않고 최소 2분 정도의 접촉시간이 필요한 때문으로 생각된다. 그러나 2분 이상의 분사시간 증가에 따라 제염효과가 급격히 감소함을 알 수 있다. 이러한 결과는 고상 CO₂ 제염의 또 다른 원동력인 열충격이 계속 유지되는 것이 효과적인 제염결과를 얻는 조건임을 의미한다. 즉 CO₂ snow가 제염표면에 접촉 후 곧바로 승화되지 못하고 표면에 계속 응결된 상태로 남을 경우 후속제염을 방해하여 제염효과를 크게 감소시키므로 제염표면을 일정온도로 유지시키는 방법의 강구가 필요하다. 3.5분 이상의 접촉시간에서 제염효과가 2분의 접촉시간에 비해 크게 감소된 결과는 제염표면의 재오염 가능성과 실험 오차로 생각된다. 따라서 제염표면 온도를 일정하게 유지시키는 방법이 강구되지 않을 경우 2분의 분사접촉시간이 제염효과 면에서 유리하며, 표면온도 유지방법을 강구할 경우 접촉시간 증가에 따라 제염효과는 계속 증가할 것으로 예상할 수 있다. 또한 CO₂ 분사압력 증가에 따라 충격에너지의 증가로 인한 제염효과가 증가할 것으로 예상하였다. 실험결과 예상한 대로 25 kg/cm²에서 45 kg/cm²로

분사압력의 증가에 따라 제염계수값은 16에서 61로 증가하였다. 원격조작의 적용가능성을 확인하는 데에는 분사거리에 따른 제염효과의 변화결과가 중요하게 된다. 실험결과 10mm이상의 분사거리에서는 제염효과가 급격히 감소함을 알 수 있었으며 5mm의 짧은 분사거리에서는 제염효과가 예상과 달리 오히려 감소하였다. 이러한 결과는 분사 CO₂가 효과적으로 제염표면에 접촉하기 위한 최소한의 거리가 필요함을 의미한다.

이러한 제한된 재질에 인위적으로 생성시켜 제조한 모의오염시편을 사용한 분사제염시험결과 제염표면의 온도를 일정하게 유지하고 분사압력과 접촉시간을 증가시키면서 분사거리를 10 mm정도로 유지할 경우 효과적인 분사제염결과를 얻을 수 있으며, 원래 예측하였던 제염효과보다 높은 제염계수값 약 60까지 얻어져 제염기술의 적용 타당성을 확인할 수 있었다.

본 실험을 통해 제염표면 전체에 걸쳐 불균일한 제염효과와 분사된 CO₂ snow의 일부가 응결되는 문제점이 발견되었다.

즉, 기존 CO₂ snow 분사제염장치를 사용하여 제염할 경우 노즐단면적의 제한으로(노즐기공이 커지면 제염표면적은 넓어지는 반면 제염 효과가 감소되며, 노즐기공이 작아지면 제염 효과는 증가되는 반면 제염부위가 좁아지게 됨) 제염대상 표면의 제염효과가 불균일한 점이 문제가 되어 왔으며, CO₂의 단열팽창으로 생성된 CO₂ snow의 일부는 제염대상 표면에 분사 시 온도차에 의해 제염대상 표면에 응결되어 후속 분사제염을 방해함에 따라 제염효과를 감소시키는 결과를 초래하는 문제가 제기되었다. 이러한 문제점을 해결하기 위해 제염대상 표면 전체에 걸쳐 제염효과를 균일하게 하고, CO₂ snow의 제염대상 표면에 분사 시 표면에 CO₂가 응결되는 것을 방지하여 제염효과를 증진시킬 수 있는 장치를 고안하여(Fig. 3.2.2.3) 제염특성 실험에 사용하였다. 직경 50 mm 두께 5 mm의 원형 스테인레스 스틸 304시편을 사용하여 구동 메카니즘 구비여부에 따른 동일한 조건 (분사제염시간 : 2분, 분사거리 : 10mm, 분사각도 : 45 도, 분사압력 : 40Kg/cm²)에서의 비교실험결과, 구동메카니즘을 구비한 경우의 제염계수값이 구동메카니즘을 구비하지 않은 경우에 비해 40-55% 높아 구동메카니즘의 장착이 균일한 제염효과에 크게 기여함을 알 수 있었다. 또한 열풍 히터에 의한 제염대상 표면의 응결방지 효과를 직경 50mm 두께 5mm의 원형 스테인레스 스틸 304 시

편을 사용하여 시험한 결과, 열풍 히터에 의한 응결방지를 육안으로 확인할 수 있었으며, 제염효과는 열풍 히터 미설치 시에 비해 제염계수값이 2-2.5배 높아 응결방지에 의한 제염효과 증진을 확인할 수 있었다.

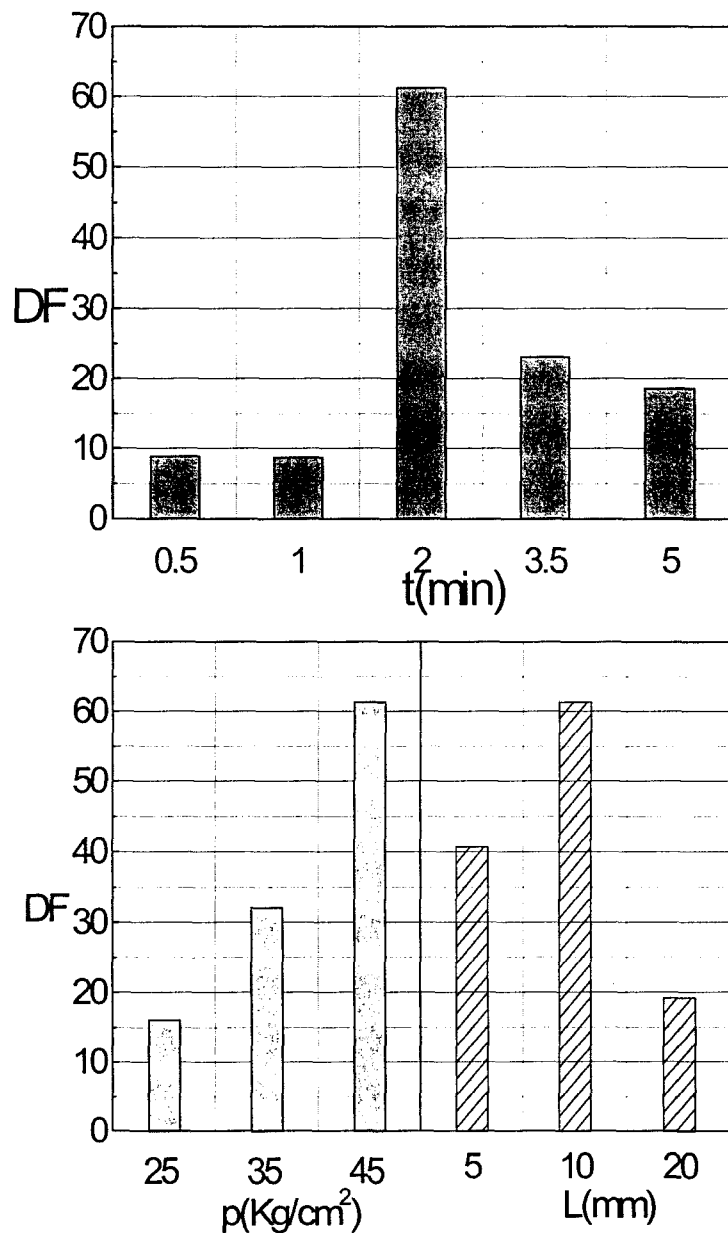


Fig. 3.2.2.2. Residual amount for simulated specimens.

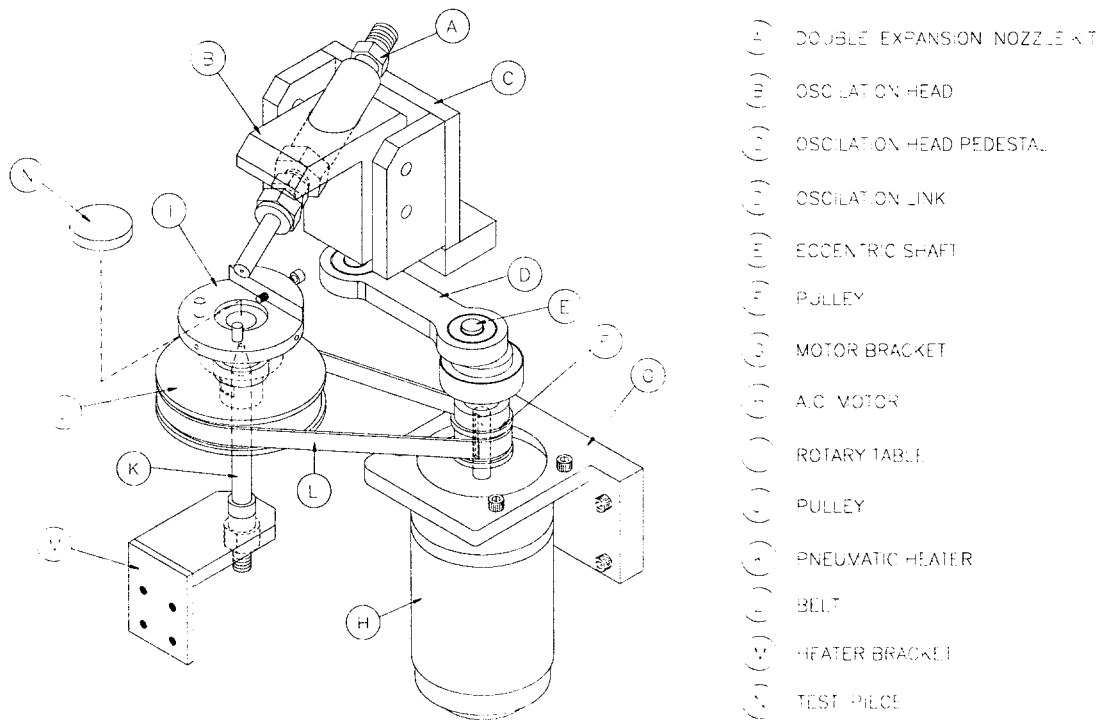


Fig. 3.2.2.3. Advanced CO₂ snow decontamination system equipped with rotating wheel and pneumatic heater.

나) CO₂ pellet 분사제염

제염 목적에 따라 선정된 오염대상물 중 현장적용시 피폭저감화나 재활용을 위한 금속 표면에 대하여 CO₂ pellet 분사제염 장치를 이용하여 CO₂ pellet 건식제염 성능 평가 실험을 수행. 오염 알루미늄 분말의 크기 (1 μ m, 5-10 μ m), CO₂ pellet 분사압력 (4-6Kg/cm²), CO₂ pellet의 크기(3-5mm), 접촉시간(5-30 sec) 등의 변화에 따른 specific density를 microscope 로 측정 후 image analyser로 제거분율을 분석하였다. Fig. 3.2.2.4와 Fig. 3.2.2.5에 나타내었다. 실험 결과 알루미늄 분말의 오염 입자로 건식으로 제조한 오염시편의 경우 상기 operation & design parameter 변화 범위 이내에서 완벽하게 제거되어 최적 조업 및 설계조건 등의 도출이 불필요하였다. 반면, 알루미늄 분말의 오염입자로 습식으로 제조한 오염시편의 경우 상기 분사압력 범위에서는 거의 압력에 무관하게 일정한 제염효과를 나타내었으며, 분사시간의 경과에 따라 제염효과는 증가하여 15초에 비해 30초의 접촉시간에서 약 2배의 제염효과를 나타내었다. 또한 사전 예상한 바와 같이 CO₂ pellet의 크기의 증가에 따라 운동 에너지 증가에 비례하여 제염효과가 증가함을 알 수 있었다. 반면 알루미늄 오염입자 크기변화에 대해서는 충분한 실험량을 갖지 못하였지만 5-10 μ m의 크기로 오염된 경우가 1 μ m 오염입자에 비해 약간 제염계수가 높음을 알 수 있다. 이러한 사실은 오염입자의 오염표면에서의 결합력은 오염입자 크기에 반비례하기 때문으로 사료된다. 4000 pm의 고농도 Co 용액을 시편 표면에 가하여 단순 건조시켜 loose한 오염을 형성시킨 경우, 알루미늄 오염입자의 제염효과에 비해 제염계수 값은 낮지만, CO₂ pellet의 크기, 분사압력, 접촉시간 증가에 따라 유사하게 제염효과가 증가함을 알 수 있었다. 따라서 본 CO₂ pellet 분사제염 실험에서는 본 실험 범위의 조건에서 loose한 건식 입자 및 습식 입자오염을 거의 완벽하게 제염할 수 있음을 확인할 수 있었다. CO₂ pellet 분사제염장치를 사용하여 모의 오염 시편에 대한 제염실험을 수행한 결과, 본 연구의 제염 성능 목표치인 ①재활용 목적의 경우 DF>200, ②피폭 저감화 목적인 경우 DF>20, 그리고 ③저준위 폐기물화 목적의 경우 DF>5 를 달성할 수 있다고 판단되어 진다.

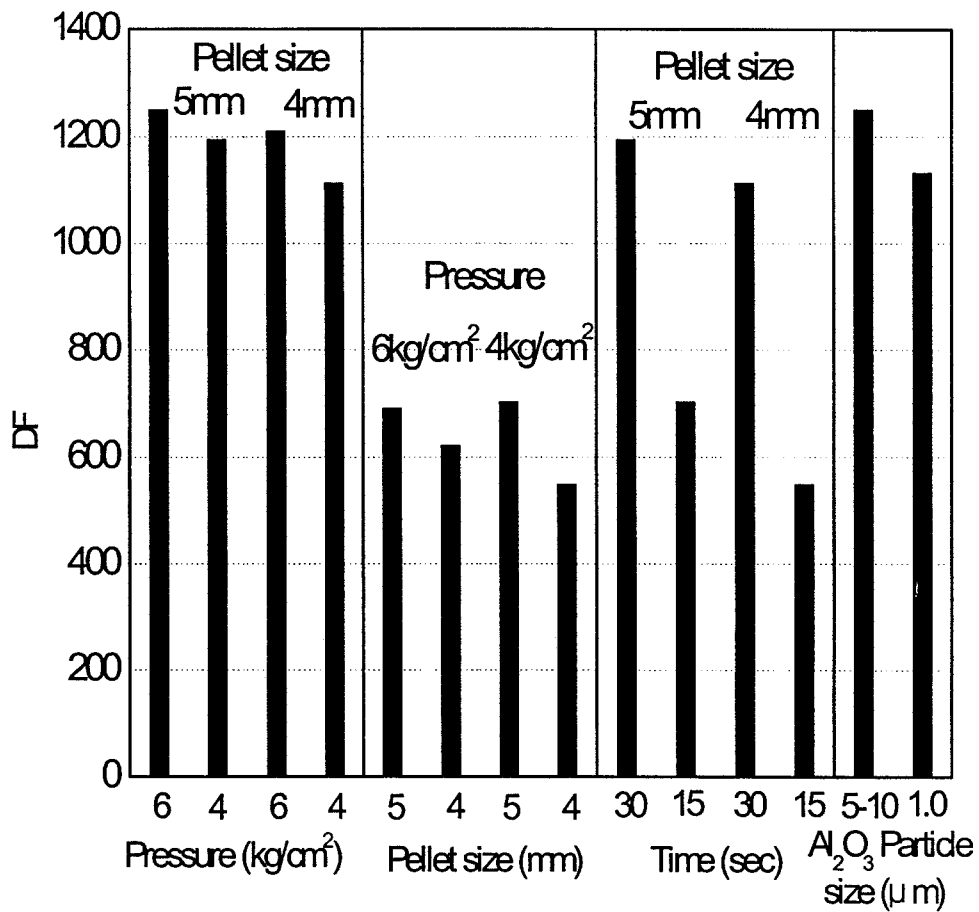


Fig. 3.2.2.4. Decontamination results for alumina particles.

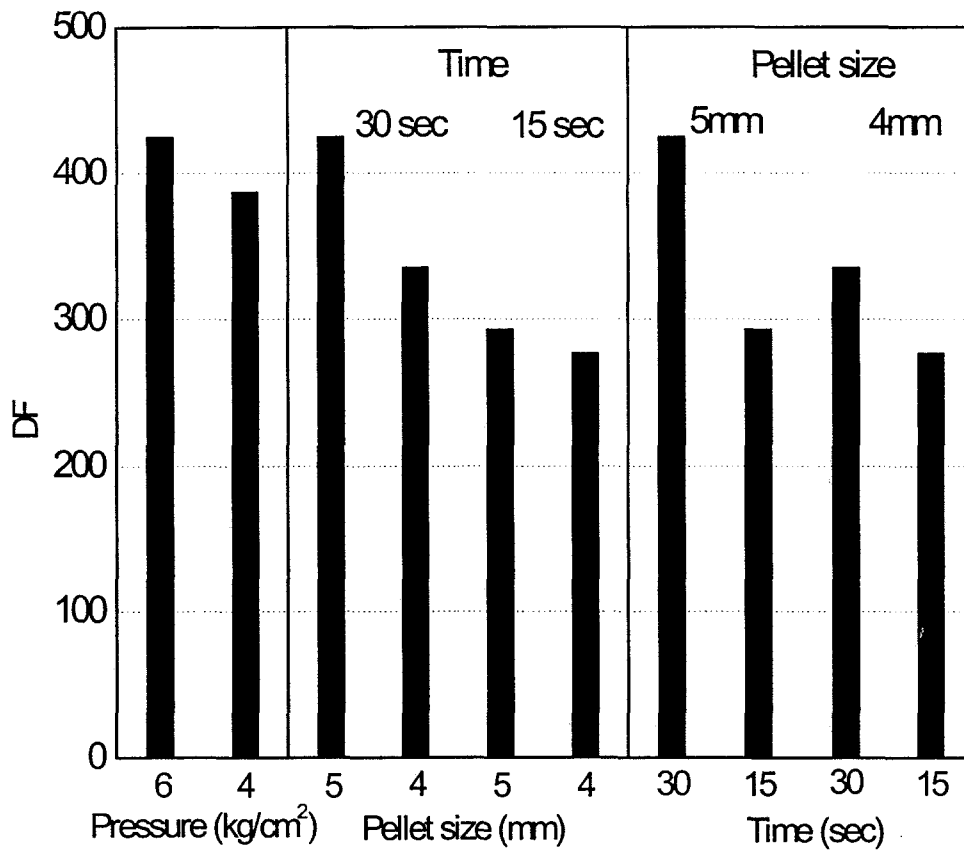
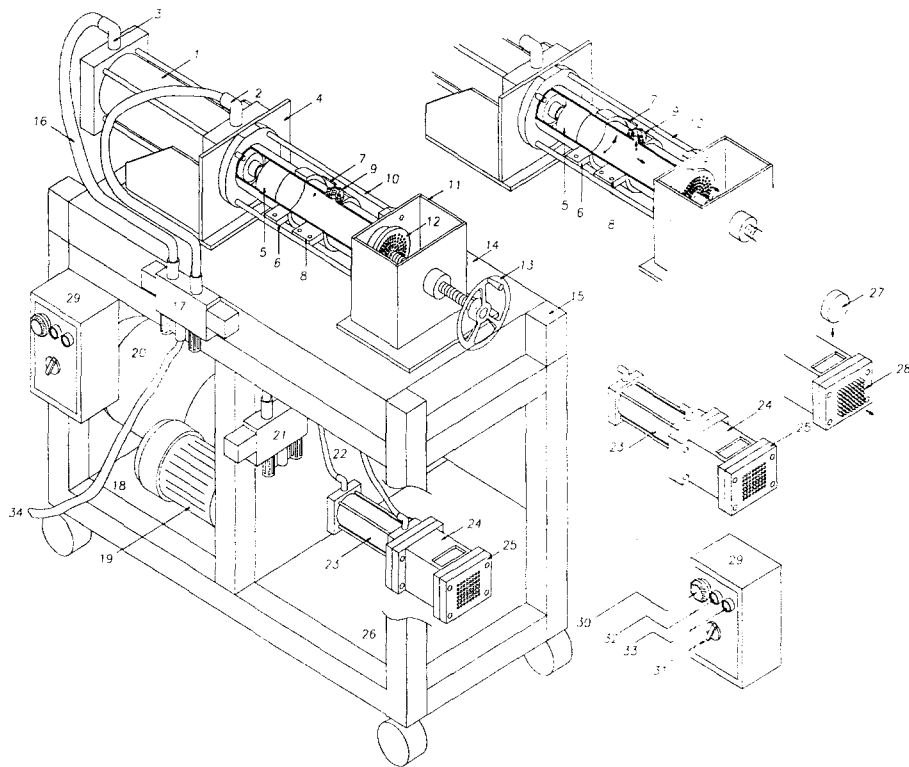


Fig. 3.2.2.5. Decontamination results for cobalt particles.

3) CO₂ pellet 분사제염 장치특성

실증시험규모의 건식 CO₂ Pellet 분사제염장치 설계제작하여 장치 설계특성 조사와 CO₂ Pellet 건식분사제염 특성실험에 사용하였다. 분사제염 장치는 pellet 생성용량이 15-20 kg/hr인 CO₂ Pellet Extruder system(Fig. 3.2.2.6)과 분사압력이 5-8 bar 범위인 CO₂ Pellet 분사장치(Fig. 3.2.2.7)로 구성된다. 또한 각 구성장치의 설계 사양과 기능을 Table 3.2.2.1에 정리하였다.

장치 설계특성 조사 및 성능시험 결과, CO₂ cartridge 생성하기 위한 상단의 공압 실린더는 현재의 stroke를 1/2정도로 줄여 제작하여도 성능에 지장이 없으며 또한 정해진 cycle time 동안 좀 더 많은 pellet cartridge를 얻기 위해서는 실린더 내부의 CO₂ formation을 위한 vent filter의 용량을 지금보다 크게 증대시킬 필요가 있다. 이와 연계된 하단부의 extruder는 지금보다 전진추력은 3배, stroke는 2배 확장하여 제작하면 pellet의 생산 속도 및 양을 2배 정도 증가시킬 수 있다고 판단된다. 또한 CO₂ pellet 분사장치는 분사 CO₂의 동결을 방지하고 분사공기의 압력을 증폭하기 위해 장치 modification을 수행하였다(Fig. 3.2.2.8). 즉, hopper에서 혼합 도관으로 이어지는 도관의 재질을 동결방지를 위해 teflon 계열로 대체 제작하였으며, 원활한 적재를 위해 도관의 치수를 확장하였다. 혼합 도관을 없애고 shoot acceleration nozzle을 연결 도관에 직접 장착하였으며, shoot acceleration nozzle의 orifice직경을 50% 이상 줄여 압축공기의 압력을 증폭시켰다. 또한 solenoid v/v로부터의 단일 라인(shooter)을 복열로 acceleration nozzle로 연장하여 설치하여, 입자의 분사 압력을 증폭시킬 수 있었다.



- | | |
|--|--------------------------------------|
| 1 : PNEUMATIC CYLINDER | 18 : LOWER PANEL PEDESTAL-LH |
| 2 : SPEED CONTROL V/V (INLET) | 19 : HYDRAULIC DRIVING MOTOR |
| 3 : SPEED CONTROL V/V (OUTLET) | 20 : HYDRAULIC TANK |
| 4 : PNEUMATIC CYLINDER BRACKET | 21 : HYDRAULIC SOLENOID V/V |
| 5 : PISTON ROD | 22 : HYDRAULIC LINE |
| 6 : INLET PORT TRAP RING | 23 : HYDRAULIC CYLINDER |
| 7 : INLET PORT | 24 : SQUARE CYLINDER (EXTRUDER) |
| 8 : FILTER PORT TRAP RING | 25 : DIE PLATE |
| 9 : VENTILATION FILTER | 26 : LOWER PANEL PEDESTAL-RH |
| 10 : EXTENDED TIE ROD | 27 : Co ₂ SOLID CARTRIDGE |
| 11 : EXTEND TUBE BRACKET | 28 : Co ₂ PELLET |
| 12 : THRUST PUSHER | 29 : OPERATING PANEL |
| 13 : PUSHER HANDLE | 30 : EMERGENCY S/W |
| 14 : UPPER PANEL PEDESTAL | 31 : PNEUMATIC SOL. V/V SELECT S/W |
| 15 : ALUMINUM FRAME | 32 : HYD. CYLINDER FORWARD S/W |
| 16 : AIR LINE (FROM SOL V/V TO CYLINDER) | 33 : HYD. CYLINDER BACKWARD S/W |
| 17 : PNEUMATIC SOLENOID V/V | |

Fig. 3.2.2.6. Schematics of CO₂ pelletizing equipment.

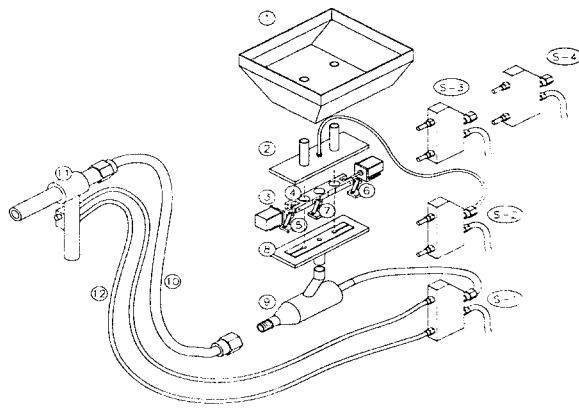


Fig. 3.2.2.7. Equipment system for blasting of CO₂ pellet.

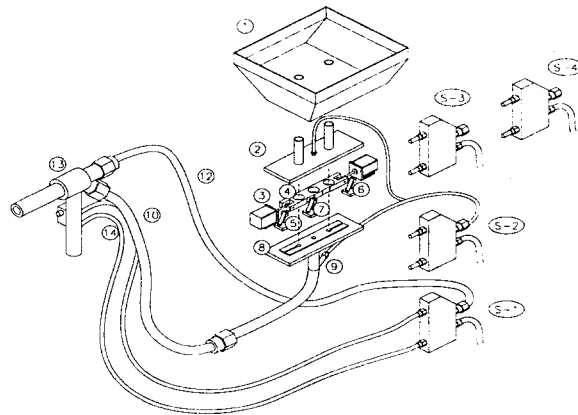


Fig. 3.2.2.8. Advanced equipment system for blasting of CO₂ pellet.

Table. 3.2.2.1. Design specification of CO₂ pellet decontamination system.

구성성분	설계 사양 및 성능
CO ₂ pellet extruder	<ul style="list-style-type: none"> ● 기능 : Liquid CO₂를 일정 형상의 dry ice 결정체로 변환 ● 압출시스템의 구성 및 조건 <ul style="list-style-type: none"> - pellet production rate : 15 - 20 kg/ hr - pellet size : dia. 3-6 X 6L mm - pneumatic cylinder : <ul style="list-style-type: none"> · 압력범위: 5-7 bar, Dia. 140mm, 250 stroke - speed control v/v : 30 - 500mm/sec - filter : <ul style="list-style-type: none"> · Cylindrical filter : 원통형 섬유필터 (5micron, type 316 L SUS) · Thrust filter : teflon 소결필터와 60 mesh의 후면 필터로 구성 - die plate : <ul style="list-style-type: none"> · Hole size : 3 or 6mm · No. of hole : 199(5도 구배)
CO ₂ pellet blasting system	<ul style="list-style-type: none"> ● 기능 : dry ice CO₂ pellet을 오염표면에 고속으로 분사/제염 ● 압출시스템의 구성 및 조건 <ul style="list-style-type: none"> - pellet 분사압력 : 5-8 bar - 유효분사거리 : 120 mm - pellet 저장용량: 10L - pellet 혼합 cycle: 30-120 strokes

3. 플라즈마 제염기술

가. 개요

1) 서론

현재 원자력 발전소나 제반 시설로부터 발생하는 폐기물의 제염 처리 방법은 매우 다양하며 실제의 제염 수행에서는 오염 시설의 특성과 함께 오염 핵종, 방사선 준위 및 형태를 고려한 복합공정이 요구된다.

이러한 관점에서 현재 국내에서 수행되고 있는 경·중수로 연계 핵연료 주기 기술개발, 사용후 핵연료 관리 및 이용 기술개발, 균분리 공정 개발 및 장수명 핵종 전환공정 등의 연구를 통해 원자로 운전 중에 방사화한 부식 생성물(CP)이나 냉각수와 함께 운반되어 부착 또는 침착되어 1차 냉각계의 배관, 기기류를 오염시키는 핵분열 생성물(FP) 폐기물, 그리고 시설내 오염을 유발할 수 있는 U, Pu 같은 TRU 핵종등의 오염 제거는 매우 중요하다.

이러한 오염 핵종의 제염처리 시 제염설비, 제염공정, 2차 폐기물 등을 고려해볼 때 습식처리의 경우 선택적 제염이 불가능하고 해체~제염~폐액처리 후 다량의 2차 폐기물이 발생하기 때문에 그 적용에 한계가 있어 일본과 미국 등 주요 원자력 선진국에서는 고효성 반응을 이용한 처리와 플라즈마 처리 등과 같은 건식 제염에 관한 연구를 꾸준히 진행하여 왔으며 최근에는 선택적 제염성이 뛰어난 기체 플라즈마를 이용한 건식 처리 방식의 연구가 경쟁적으로 이루어지고 있다.

그러므로 우리도 국제 경쟁력을 갖기 위해 DUPIC, SF차세대관리, 장수명핵종 전환공정 등의 시설에 적용할 수 있는 건식 제염 기술 개발 연구가 시급히 필요하다고 사료된다.

또한 경제·산업적 측면을 고려할 때 방사성 폐기물 처리 방법에서 가장 중요한 기준 중의 하나는 어떤 공정이 최대 제염 효과와 이에 따른 부피 감용효과를 낼 수 있는 가하는 것인데 이러한 관점에서 볼 때 방사성 부식 생성물(CP)이나 핵분열 생성물(FP), 그리고 U, Pu와 같은 TRU 핵종에 의해 발생하는 오염 폐기물의 경우 오염 핵종만을 선택적으로 제거할 수 있다면 모재(base or substrate material)의 제염 처리가

불필요해지고 오염시설의 해체 없는 부분제염이 가능해져 엄청난 폐기물 감용 효과와 함께 공정의 축소에 따른 지대한 경제적 효과를 거둘 수 있다. 이는 일본을 포함한 원자력 선진국들의 최근의 큰 흐름인 폐기물의 재사용을 고려한 산업적 처리 방법과도 잘 부합된다.

또한 최근 들어 국제적으로는 물론 국내에서도 방사성 폐기물의 처리 문제에 있어 환경 단체는 물론 일반 국민들의 깊은 관심을 고려해볼 때 건식 제염을 통해 총 폐기물량도 획기적으로 줄일 수 있고 모재를 재활용 할 수 있는 기술이 개발된다면 사회적인 정서와도 잘 부합된다고 사료된다.

2) 연구내용 및 범위

플라즈마 처리 공정의 기본 원리는 플라즈마를 이용해 이들 표면 오염 핵종과 휘발성 화합물 생성 반응성이 매우 높은 원소/원자들을 발생시켜 오염원인 방사성 핵종 만을 선택적으로 기화시켜 제거하는 방식이다. Co, Fe, Ni, Cr, Mn, Mo, Tc, Ru, Rh와 같은 방사성 부식 생성물(CP)이나 핵분열 생성물(FP)의 제거에는 대개 carbonyl compound를 형성할 수 있는 혼합 기체 플라즈마를 사용하고 U, Pu와 같은 TRU들의 경우는 fluorine compound를 생성하는 기체 플라즈마를 이용하나 까다로운 플라즈마 장치의 설계 및 제작과 함께 어떤 혼합 기체를 어떤 조건, 즉 어떤 공정을 채택하는가 하는 것이 플라즈마 건식 처리 연구의 핵심이다[3.2.3.1].

따라서 본 연구에서는 다양한 예비실험을 통해 F₂ 기체는 우라늄(TRU핵종)과의 반응성이 뛰어난 점에 착안하여 반응도가 높은 CF₄ 가스를 선택하였으며, 여기에 적당한 비의 O₂ 가스를 주입하면 이 혼합기체가 플라즈마를 발생하면서 부식 생성물·핵분열 생성물과 결합하여 carbonyl compound를 형성할 수 있는 CO도 생성한다는 점에 착안하여 CF₄+O₂ 혼합기체를 사용하였다[3.2.3.2~3.2.3.14]. 이 혼합기체에 대해 r. f. power를 이용해 부식 생성물(CP)과 핵분열 생성물(FP) 그리고 TRU 핵종의 제거를 위해 최적의 플라즈마 제염 조건을 확보하는 것을 최종적인 목표로 연구를 수행하였다.

본 연구에서 수행한 주요 연구내용은 다음과 같다.

① 플라즈마 기술의 적용성 분석 및 기초 실험

DUPIC, SF 차세대 관리, 장수명 핵종 전환 공정 등의 대상 시설에 대한 오염 특성을 정확히 파악한 후에 이 시설들에 대한 적합한 단위 공정 기술을 어떻게 적용할 것인지를 결정하고 이 단위 공정에 대해 본 연구진의 r.f. 플라즈마 발생장치를 이용해 기초 실험을 수행한다.

② 방사성 오염 핵종별 건식 제염 공정 연구

RF 기체 플라즈마를 이용하여 제염율을 측정하고, 오염 핵종별(CP, FP, TRU)로 단위 공정 parameter, 온도, 압력, 혼합기체비의 변화에 따른 최적 제염율을 측정 분석하여 최적 제염 공정을 도출한다. 따라서 최적 제염 공정을 도출하기 위해, 먼저 온도는 상온에서부터 600°C까지, 압력은 대략 0.3~0.5 Torr 까지 그리고 출력은 50~300 W 까지 실험을 수행한다. 그리고 이러한 플라즈마 반응을 위해 선택적으로 사용될 주요 사용 반응 기체는 CH₄, CO₂, CO, H₂, NH₃, CF₄, O₂ 등이며, 이들의 가능한 한 혼합비를 0%~100% 까지 조절하여 최적 제염 공정을 도출한다.

③ QMS/OES를 이용한 플라즈마 건식 제염 진단 및 정량 분석

오염 핵종별로 단위공정 기술을 확보한 후에는 플라즈마의 경우 공인된 공정 parameter의 확보를 위해 핵종별 추가 기체 혼합영향, substrate 온도 영향, plasma configuration 등을 집중적으로 검토하고 반응공정의 규명을 위해 QMS와 OES, 그리고 ESP를 이용하여 플라즈마의 밀도, 온도, 그리고 에너지 등을 진단한다.

최적화 공정하에서 플라즈마 진단은 사중극자 질량분석기 (Quadrupole Mass Spectrometer, QMS)를 활용하여 이온화한 플라즈마 생성 기체를 mass/charge ratio (m/e)에 따라 정량적으로 분석함과 [3.2.3.2-6] 동시에 플라즈마내의 원자 혹은 분자 등을 여기된 상태에서 기저 상태로 천이 되는 과정에서 방사하는 빛을 광학적 진단 (Optical Emission Spectroscopy, OES)을 통해 진단 분석한다 [3.2.3.4-5, 3.2.3.14-15, 3.2.3.16~3.2.3.24] 그리고 필요시 플라

즈마 속에 직접 넣는 정전 탐침(Electrostatic Probe, ESP)을 이용하여 전류-전압 특성곡선을 얻어 이온 및 전자밀도, 그리고 온도 등을 측정하여 진단을 수행한다.

④ 특성 기초 실험용 토치 설계(2.45GHz, Microwave Plasma)

본 연구진의 선행 연구를 통해 확보된 저진공 공정 parameter를 기준으로 특성 기초 실험용 플라즈마 토치(2.45 GHz, micro-wave plasma torch)를 설계한다. 이러한 플라즈마 토치를 이용한 건식제염 기술 연구는 좀 더 실용적이고 응용성이 뛰어난 상압에서의 공정 parameter 가 확보되어야한다. 이를 위해 본 연구진과 연구 교류 협력 관계에 있는 일본 동경 공업 대학 (Tokyo Institute of Technology) Suzuki 교수팀으로부터 상압에서의 공정 변수들을 확보할 수 있도록 한다.

또한 1차년도에서는 토치 시스템의 개념도 구성, 마이크로파 발진기, 아이솔레이터, wave guide, 그리고 플라즈마 발생로 등에 대해 주 기기 선정 및 사양을 그리고 Quartz나 Copper Electrode를 이용한 Down-Stream Microwave Torch라는 torch type을 결정하도록 하고 2차년도에서는 이를 바탕으로 하여 발진기, 아이솔레이터, wave guide, 그리고 정합기 등의 주요 기기 사양 중 최적의 사양을 설정하도록 한다. 또한 설정된 사양들에 대해 기기 및 부품의 기본설계를 완성하고, 나아가 기기 제작업체가 곧바로 제작 가능한 지침을 제공하고자 본 연구진과 torch system 설계업체와 협의하여 토치 시스템의 상세 제작 사양서와 상세 설계를 완성하도록 한다.

나. 연구결과

1) 플라즈마 기술의 적용성 분석 및 기초실험

가) 적용성 분석

시설이나 부품의 제염 대상에 대해 플라즈마를 이용한 적용성을 분석한 결과 기계장치류(Tool and machinery)의 경우 저준위의 느슨한 오염(loose contamination)과 고준위의 그리스/오일은 제염 성능이 우수한 것으로 판단되었다. 또한 계통 및 배관류(system piping and tanks)의 경우

저준위의 느슨한 오염의 제염도 가능하며, 일부는 고준위의 고착성오염(부식/산화)도 제염 가능한 것으로 판단된다.

벽면 및 바닥류(floors, walls, and ceilings)의 제염도 적용성이 우수하며, 핫셀 운전폐기물의 제염에도 적용 가능한 것으로 판단되며, 일반적으로 넓은면적의 제염도 가능하며 정밀한 국부제염의 경우 적용이 용이하다 할 수 있다.

따라서 먼저 이들 시설에서 주요 오염원으로 판단되는 핵종들에 대한 플라즈마 제염 기술의 적용성 검토를 위해 기초 실험을 수행하였다.

나) 기초실험

기초실험은 선행 연구를 통해 F_2 기체는 우라늄(TRU핵종)과의 반응성이 뛰어난 점에 착안하여[3.2.3.25-26] 반응도가 높은 CF_4 가스를 선택하였으며, 여기에 적당한 비의 O_2 가스를 주입하면 이 혼합기체가 플라즈마를 발생하면서 부식 생성물·핵분열 생성물과 결합하여 carbonyl compound를 형성할 수 있는 CO도 생성한다는 점에 착안하여 CF_4+O_2 혼합기체를 사용하였다. 이 혼합기체에 대해 r. f. power를 이용해 부식 생성물(CP)과 핵분열 생성물(FP) 그리고 TRU 핵종의 건식 제염 단위 공정을 도출하기 위해 기초실험을 다음과 같이 수행하였다.

① TRU 핵종(Uranium compound)

원자로 1차계통 내 기기 및 배관 등은 핵연료 제작 시 부착돼 있는 소결체나 핵연료 손상으로 누출된 tramp uranium과 핵분열로 인해 생성된 TRU, 그리고 actinide 원소들에 의해 오염될 수 있다. 이러한 오염 가능 핵종들 중에서 대표적인 것이 우라늄인데, 이 우라늄은 대부분이 원자로 내에서 산화 분위기에 처해 있으므로 이산화우라늄의 형태로 존재한다. 따라서 TRU 핵종을 대표하는 이산화우라늄에 대해서 기초실험을 수행하였다. 또한 제3의 기체로 N_2 를 선택하여 실험을 수행하였다.

r. f. 출력이 100W일 때, O_2 의 몰분율을 10~40%까지 5%씩 증가시키면서, 총 흐름량을 50sccm, 반응시간은 100분씩, 그리고 동일한 조건에서 시편 표면의 온도를 210°C, 290°C, 370°C로 변화시켰을때의 반응식각율을 Fig. 3.2.3.1에 나타내었다. 또한 CF_4/O_2 기체의 조성비를 4:1로 고정시키

고 N_2 기체의 양을 5%로 하여 RF power 를 50, 100, 150W 로 변화시키면서 실험을 수행한 결과를 Fig. 3.2.3.2에 나타내었다.

실험결과에서 알 수 있듯이 이산화 우라늄의 CF_4/O_2 기체 플라즈마에서 20% O_2 의 몰비에서 가장 식각률이 높았으며, 온도가 증가할수록 식각률이 증가(최대 0.4 $\mu\text{m}/\text{min}.$)하였다. 또한 여기에 5% 정도의 N_2 를 첨가했을 경우 전반적으로 출력이 높을수록 F원자의 농도와 식각율은 더욱 더 증가하였다.

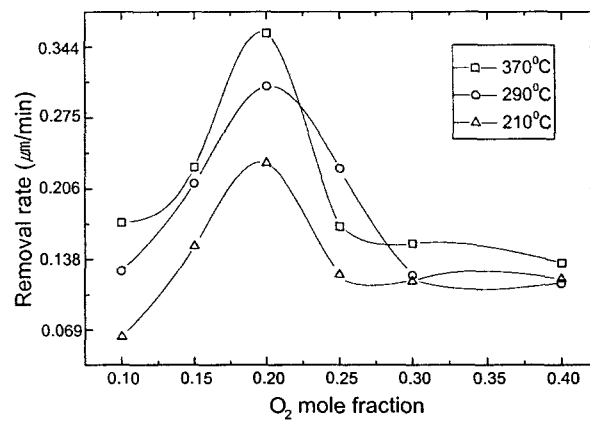


Fig. 3.2.3.1 UO_2 etching reaction rate vs. O_2 mole fraction at 150W
(total flow rate: 50sccm, reaction time: 100min.)

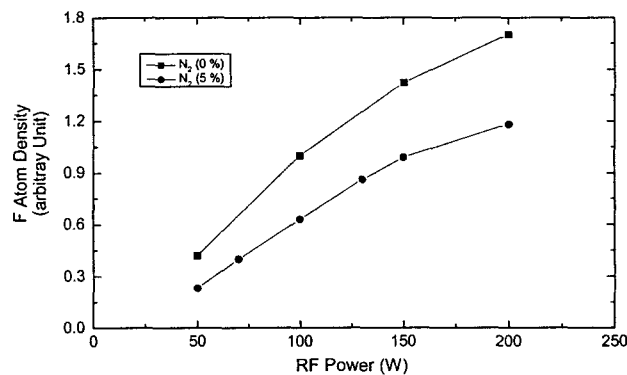


Fig. 3.2.3.2 F atom density with RF power
(total flow rate: 55sccm, temp.: 300°C, reaction time: 60min.)

따라서 이들 시설에서의 TRU 핵종 제어에 플라즈마 기술을 충분히 적용할 수 있는 것으로 나타났다.

② 부식 생성물 (CP) 핵종(Co, Ni, Cr, Mn, Fe, etc.) 및 핵분열 생성물 (FP) 핵종(Mo, Tc, Ru, Rh, etc.)

고리 1호기에서 교체된 증기 발생기 인출 전열관의 γ -spectroscopy를 이용한 성분 분석 결과 Co-58, 60, I-131, Mn-54, 그리고 Ag-110m 등이 검출되었다. 이들 중 Co-58, 60이 전체의 83% 정도를 차지하였다. 따라서 주요 부식 생성물(CP)인 코발트(Co) 핵종과 망간(Mn)을 선택하였고, 또한 성분 분석에는 나타나 있지 않지만 핵분열 생성물(FP)인 몰리브데늄(Mo)을 선택하여 기초실험을 수행하였다.

Co, Mn, Mo의 혼합기체 조성 변화에 따른 반응을 변화 실험은 RF 출력이 220W, 온도가 380℃, CF₄/O₂ 혼합기체의 총 흐름량을 100sccm, 반응시간은 120분씩 일 때의 O₂의 물분율을 13, 15, 17, 20, 23, 25% 등으로 변화시켰을 때의 실험 결과를 Co는 Fig. 3.2.3.3에, Mo는 Fig. 3.2.3.4에 그리고 Mn은 Fig. 3.2.3.5에 각각 나타내었다. 그림에서 보듯이 20% O₂ 물분율에서 가장 높은 반응을 나타내며 이때의 O₂ 물분율이 CF₄/O₂ 혼합기체 플라즈마와 코발트 반응에 있어 최적치가 됨을 알 수 있다.

부식 생성물(CP) 및 핵분열 생성물(FP)의 CF₄/O₂ 혼합기체를 이용한 기초실험 결과 Co, Mn 그리고 Mo의 결과도 TRU와 같이 O₂의 물비가 20%일 때 최대로 높은 식각율을 나타내었다. 따라서 이들 시설에서의 CP/FP 핵종 오염 제거에 플라즈마 기술을 충분히 적용할 수 있는 것으로 나타났다.

2) 방사성 오염 핵종별 건식 제어 공정 연구

상기 시설별 제어에 플라즈마 분해 제어 기술을 적용할 수 있는 것으로 판단되어 최적 공정을 확보하기 위한 공정 연구를 아래와 같이 수행하였다.

가) TRU 핵종 (Uranium compound)

1차 계통 내의 기기 및 배관등의 주요 오염 핵종인 우라늄에 대한 제어

공정 연구를 수행하였다. 기초 실험에서 밝혀진 바와 같이 CF_4+O_2 혼합기체에 N_2 기체를 첨가하여 최적의 제염 공정을 도출하였다.

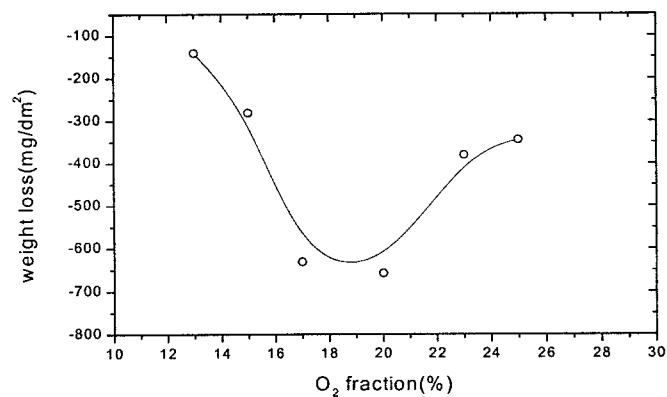


Fig. 3.2.3.3 Co etching reaction rate vs. O_2 mole fraction at $380^\circ C$
(total flow rate: 100sccm, reaction time: 120min.)

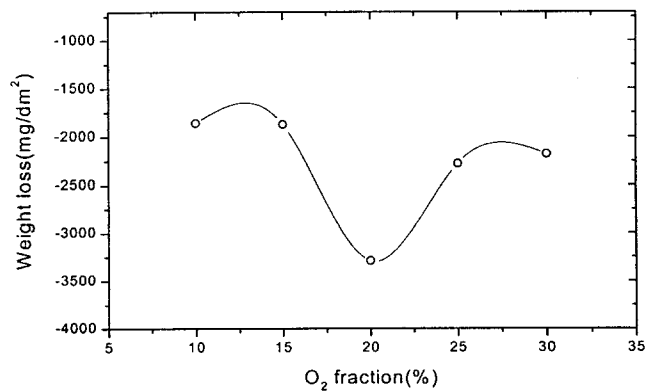


Fig. 3.2.3.4 Mn etching reaction rate vs. O_2 mole fraction at $380^\circ C$
(total flow rate: 100sccm, reaction time: 120min.)

기초 실험에서 수행한 CF_4+O_2 기체 플라즈마 제염 공정에서 O_2 의 몰비가 20%일 때 가장 높은 제염율을 나타내었는데, N_2 기체를 약 5% 첨가했을 때의 실험결과를 Fig. 3.2.3.6에 나타내었다. 실험결과에서 알 수 있듯이 제염율이 최대 2배 증가하였다.

또한 사용기체의 혼합비에 따른 공정 연구에서 도출된 최적의 제염 조건에서 RF Plasma의 출력에 따른 제염 실험을 수행하였으며, 이러한 실험 결과를 Fig. 3.2.3.7에 나타내었다. 실험결과에서 알 수 있듯이 제염율은 RF plasma power에 비례하여 증가하였다. 그리고 Power에 관계없이 기초 실험에서 수행한 CF_4+O_2 플라즈마에 의한 제염율보다 N_2 를 5% 첨가하였을 때 약 2배 가량 제염율이 증가하는 결과를 보이고 있다. 그리고 CF_4/O_2 와 $CF_4/O_2/N_2$ 의 온도에 따른 Arrhenius 도식을 Fig. 3.2.3.8에 나타내었다.

결국 실험결과 TRU 핵종의 최적 제염 공정은 이산화 우라늄의 경우 CF_4/O_2 기체 플라즈마에서 20% O_2 의 몰비에서 최적 제염 공정임을 도출하였으며, 여기에 5% 정도의 N_2 를 첨가했을 경우 식각율은 더욱 더 증가하는 것을 확보하였다. 그러므로 식각율은 온도와 플라즈마 출력에 따라 선형적으로 증가하므로 좀 더 높은 온도와 플라즈마 출력을 증가시키면 짧은 시간 내에 충분히 제염이 가능하다고 판단된다.

나) CP/FP 핵종 (Cobalt, Molybdenum)

① Co 실험 결과

기초 실험에서 수행한 CF_4+O_2 혼합기체를 이용한 제염 실험에서 밝혀진 최적의 혼합 조건인 20% O_2 몰비를 유지하면서 온도 변화에 따른 실험 결과를 Fig. 3.2.3.9에 나타내었다. 실험결과 Co 핵종의 경우 350℃ 부근에서 식각 반응이 일어나기 시작하여 온도에 따라 반응율이 증가하여 380℃에서는 0.06 $\mu\text{m}/\text{min}$ 의 식각율을 보였다.

또한 식각 반응이 일어난 전후의 Co 표면의 미세 조직을 SEM으로 관찰한 결과를 Fig. 3.2.3.10에 나타내었다. 미세조직 분석 결과, 표면 전체에서 고르게 식각 반응이 일어난 것을 알 수 있었다.

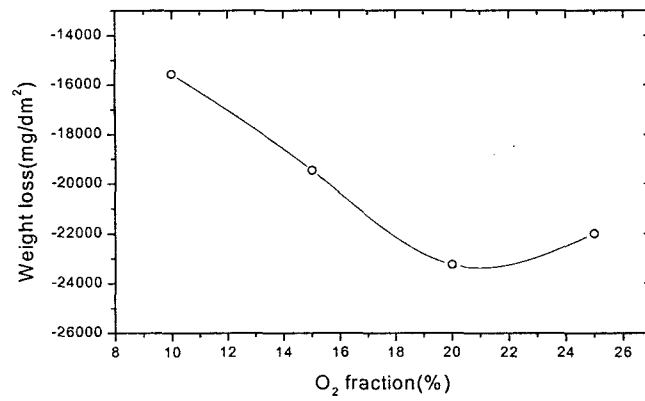


Fig. 3.2.3.5 Mo etching reaction rate vs. O₂ mole fraction at 380°C
(total flow rate: 100sccm, reaction time: 120min.)

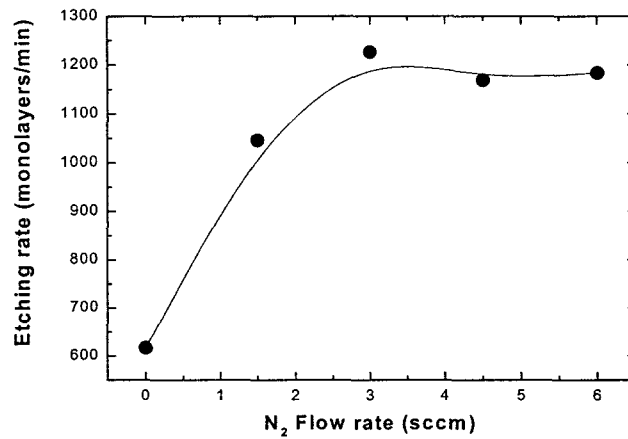


Fig. 3.2.3.6 N₂ flow rate vs. etching rate at 100W
(CF₄+O₂ flow rate 50sccm, reaction time: 60 min)

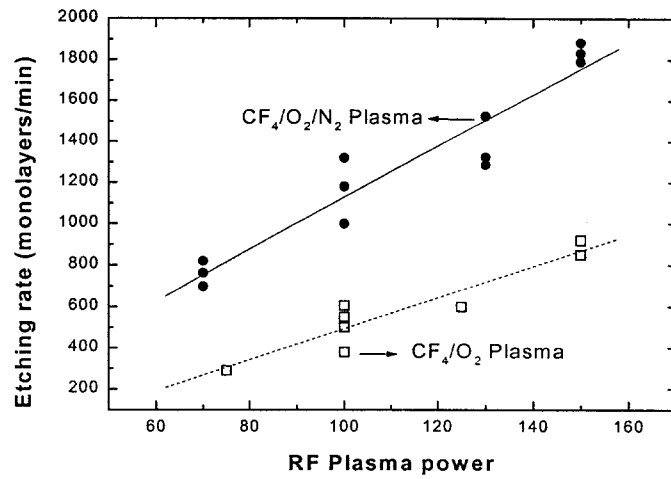


Fig. 3.2.3.7 RF power vs. etching rate at various power
(Flow rate: CF₄+O₂ 50sccm, N₂ 5sccm , reaction time: 60 min)

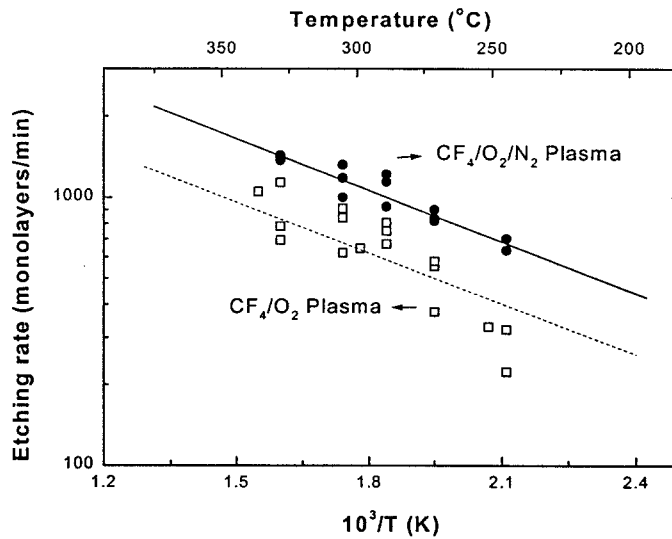


Fig. 3.2.3.8 Substrate temperature vs. etching rate at various temperature (Flow rate: CF₄+O₂ 50sccm, N₂ 5sccm , reaction time: 60 min).

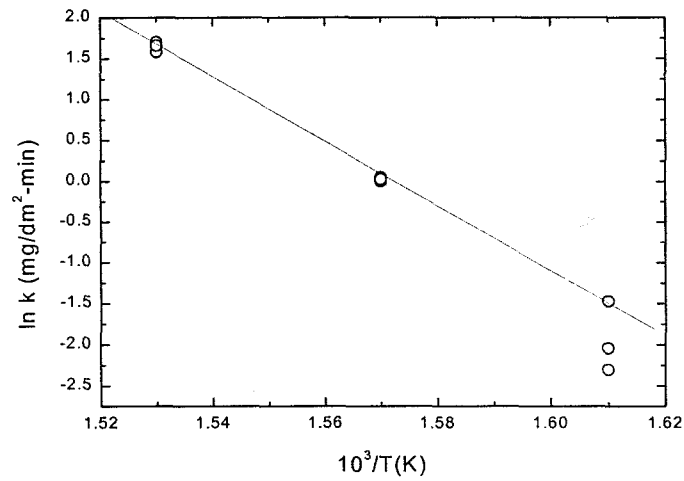


Fig.3.2.3.9 Co etching rate vs. substrate temperature under 220 W r.f. power.
 (total flow rate: 100 sccm, reaction time: 120 min., 20 % O₂ mole fraction)

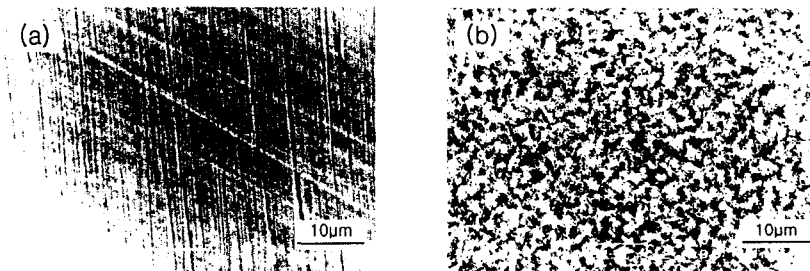


Fig. 3.2.3.10 Co surface morphology by SEM
 (a) before reaction, (b) after reaction with CF₄/O₂(20 %) gas plasma.

② Mo 실험결과

Co 실험에서와 마찬가지로 Mo 핵종의 식각에 대한 온도 의존성 실험을 수행하였다. 실험 결과를 Fig. 3.2.3.11에 나타내었으며, 실험결과 금속 몰리브데늄의 반응율은 매우 높으며 온도가 증가함에 따라 식각율이 선형적으로 증가함을 알 수 있다. 380℃ 에서는 식각율이 1.9 $\mu\text{m}/\text{min}$ 에 이르는 것으로 나타났다.

Mo 역시 반응 표면의 미세 조직을 관찰한 결과 표면에서 전체적으로 균일하게 식각 반응이 일어난 결과를 보이고 있으며, 이를 Fig. 3.2.3.12에 나타내었다.

부식 생성물(CP) 및 핵분열 생성물(FP)의 건식 제염 공정 확보를 위해 Co, Mn 그리고 Mo의 기체 플라즈마 반응 실험 결과 TRU와 같이 CF_4/O_2 혼합기체가 반응기체로 가장 우수하며 O_2 의 몰비 역시 20%일 때 최대로 높은 식각율을 가지고 있다. 반응율은 Mo이 가장 높고 Co가 가장 낮았으며 Co의 경우 290℃에서는 반응이 일어나지 않지만 350~380℃ 사이에서의 식각율은 온도에 따라 거의 선형적인 증가를 보였다.

따라서 부식 생성물(CP) 및 핵분열 생성물(FP)인 Co, Mn 그리고 Mo의 최적 제염 공정은 CF_4/O_2 기체 플라즈마에서 20% O_2 의 몰비, 380℃이상의 온도에서, 그리고 출력은 220W이상 일때가 최적 제염 공정임을 도출하였다. 그러므로 부식 생성물(CP) 및 핵분열 생성물(FP)의 제염은 TRU와 마찬가지로 좀 더 높은 온도와 플라즈마 출력을 증가시키면 짧은 시간내에 충분히 제염이 가능하다고 판단된다.

3) QMS/OES를 이용한 플라즈마 건식 제염 진단 및 정량 분석

가) QMS 진단

CF_4+O_2 플라즈마와 이산화우라늄의 반응 생성물을 분석한 결과 나타난 질량 스펙트럼상의 질량 수는 다음과 같은데 이를 UF_6 의 분해 패턴과 비교한 결과 주요 반응 생성물은 UF_6 라는 사실을 밝혔다. 이를 Fig. 3.2.3.13에 나타내었다.

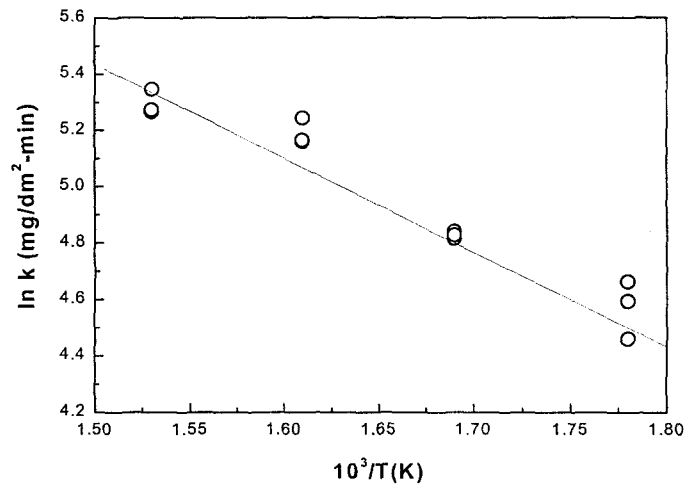


Fig. 3.2.3.11 Mo etching rate vs. substrate temperature under 220 W r.f. power.
 (total flow rate: 100 sccm, reaction time: 120 min.,
 20 % O₂ mole fraction)

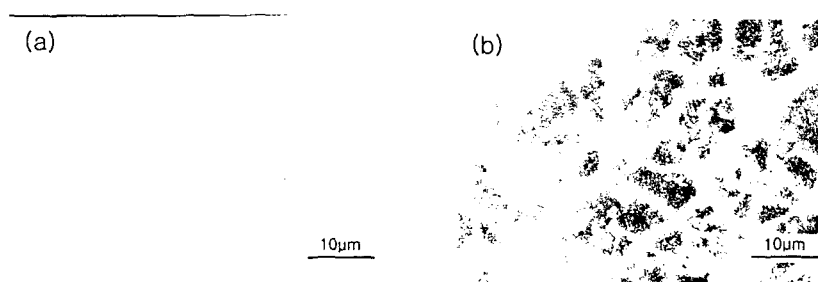


Fig. 3.2.3.12 Mo surface morphology by SEM
 (a) before reaction (b) after reaction with CF₄/O₂(20 %) gas plasma.

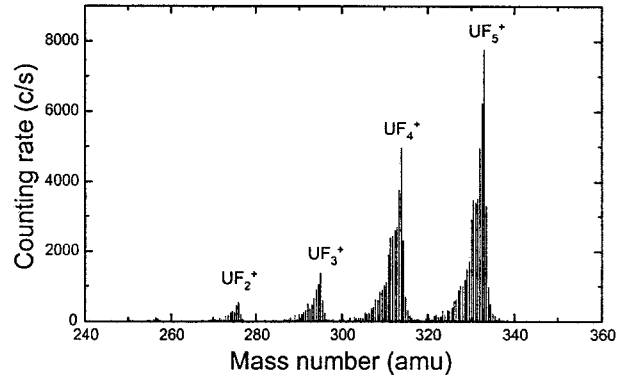


Fig. 3.2.3.13 Reaction products of UO_2 in CF_4/O_2 plasma.

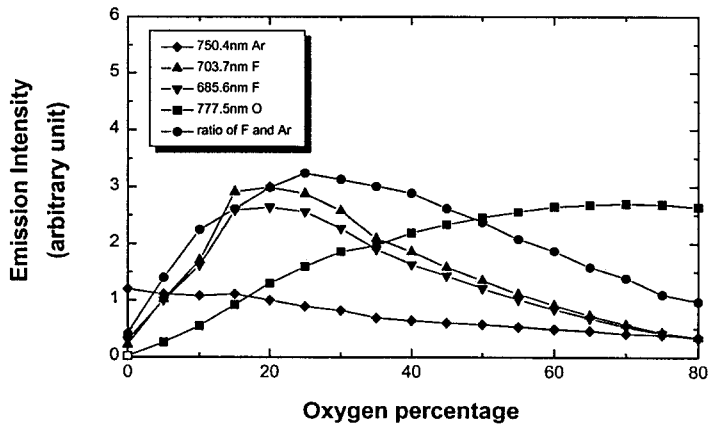


Fig. 3.2.3.14 Emission intensity vs. oxygen percentage.

나) OES 진단

CF₄/O₂ 플라즈마에 대해서 O₂ 몰분율을 0~80%까지의 OES 결과를 Fig. 3.2.3.14에 나타내었다. 그림에서 알 수 있듯이 CF₄+O₂ 플라즈마를 OES로 진단한 결과 제염 공정에 있어 반응을 일으키는 지배적인 원자인 Fluorine이 20% O₂에서 가장 많이 검출되었는데 이는 앞서 수행한 식각 실험 결과와 잘 일치하고 있다.

식각 실험 결과에서와 마찬가지로 N₂ 첨가에 따른 CF₄+O₂ 플라즈마의 OES진단 결과 이산화우라늄의 식각 실험에서와 마찬가지로 N₂ 기체를 5% 첨가하였을 때 혼합 기체 플라즈마로의 F원자로부터 방출되는 광량이 2배 가량 증가하고 있다. 이를 Fig. 3.2.3.15에 나타내었다.

4) 특성 기초 실험용 토치 설계(2.45GHz, Microwave Plasma)

본 연구진의 선행 연구를 통해 확보된 저진공 공정 parameter를 기준으로 특성 기초 실험용 플라즈마 토치(2.45 GHz, micro-wave plasma torch)를 설계하였다. 또한 좀 더 실용적이고 응용성이 뛰어난 플라즈마 토치의 설계를 위해 상압에서의 공정 변수들도 확보하였다.

또한 1차년도에서는 토치 시스템의 개념도 구성, 마이크로파 발진기, 아이솔레이터, wave guide, 그리고 플라즈마 발생로 등에 대해 주 기기 선정 및 사양을 그리고 Quartz나 Copper Electrode를 이용한 Down-Stream Microwave Torch라는 torch type을 결정하였으며 2차년도에서는 이를 바탕으로 하여 발진기, 아이솔레이터, wave guide, 그리고 정합기 등의 주요 기기 사양 중 최적의 사양을 설정하였으며, 설정된 사양들에 대해 기기 및 부품의 기본설계를 완성하였다. 또한 기기 제작업체가 곧바로 제작 가능한 지침을 제공하고자 본 연구진과 torch system 설계업체와 협의하여 토치 시스템의 상세 제작 사양서와 상세 설계를 완성하였다.

이에 따른 torch system 과 torch를 Fig. 3.2.3.16과 3.2.3.17에 각각 나타내었다.

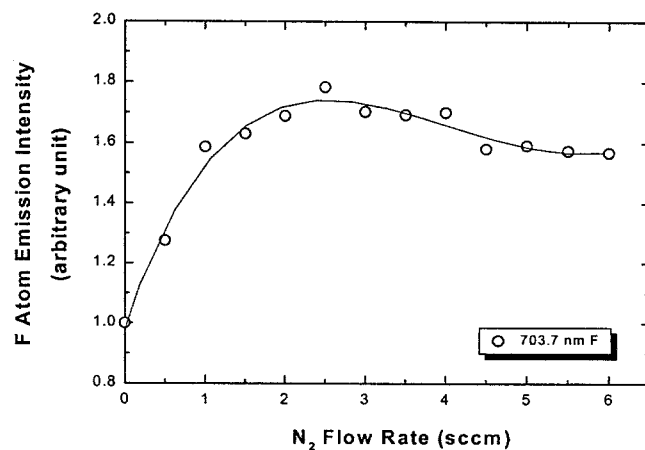


Fig. 3.2.3.15 F atom emission intensity vs. N₂ flow rate

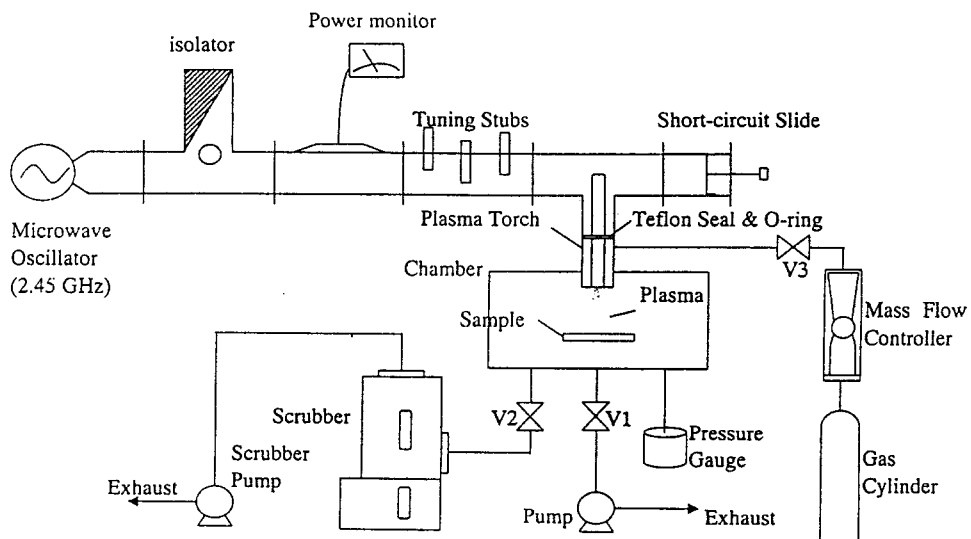


Fig. 3.2.3.16 Schematic of microwave plasma torch system.

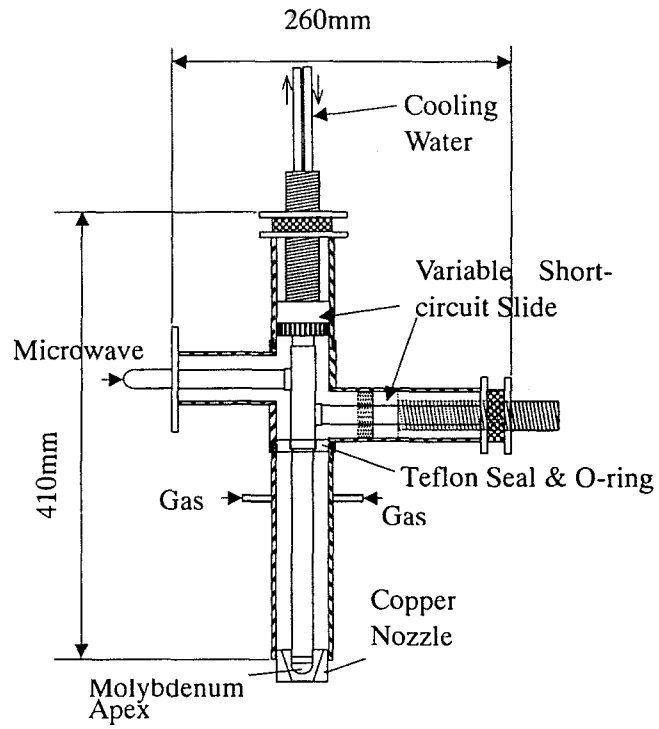


Fig. 3.2.3.17 Schematic of microwave torch

다. 결과요약

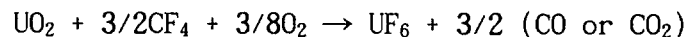
고방사능 건식 제염에 대한 국제적 연구 현황 조사 결과 여러 선진국에서는 각종 방사성 오염의 제거에 플라즈마 제염 기술을 적용하기 위해 활발히 연구를 진행하고 있으며 일부 기술은 실제 현장에서 적용하고 있는 것으로 드러났다. 이와 병행하여 국내의 각종 핵물질 취급 시설의 오염 특성을 분석하고 플라즈마 제염 기술의 적용성을 실험을 통해 확인한 바 충분히 적용이 가능한 것으로 밝혀졌다. 따라서 이들 시설의 주요 오염원 핵종을 대상으로 본격적인 제염 공정 확보 연구를 수행하였다.

TRU 핵종(uranium compound) 제염 공정 확보

TRU 핵종의 건식 제염 공정 확보 연구로서 수행한 이산화우라늄의 CF_4/O_2 혼합기체 플라즈마에 의한 식각 반응률의 연구결과 반응 시편 표면 온도와 RF 플라즈마 출력에 관계없이 O_2 의 몰비가 20%에서 최대로 높은 식각률을 갖는다는 것으로 밝혀졌다.

최적의 식각 조건인 20% O_2 의 몰비에서 QMS를 이용한 반응 생성물 분석을 수행한 결과 질량 스펙트럼 상에서 질량수를 UF_6 의 fragmentation pattern과[3.2.3.27] 비교한 결과 주요 생성물은 UF_6 로 판단되며, UF_4 , UF_5 의 분해패턴도 포함된 것으로 여겨진다. 그러므로 UO_2 와 CF_4/O_2 플라즈마 반응에서 주요 생성물은 육불화우라늄 (UF_6)이며 더불어 UF_4 와 UF_5 와 같은 중간 생성물도 생성되고 있다고 결론지을 수 있다.

따라서 CF_4/O_2 혼합기체 플라즈마와 이산화우라늄의 전체 식각 반응은



으로 진행된다고 결론지을 수 있다.

또한 소량의 N_2 기체를 첨가하여 이산화우라늄의 CF_4/O_2 플라즈마 식각 실험을 수행한 결과 N_2 기체를 5% 가량 첨가 시에 기존의 CF_4/O_2 결과에 비해 2배 이상 증가함을 알아내었다.

따라서 이산화 우라늄의 CF_4/O_2 기체 플라즈마에서 20% O_2 의 몰비에서 최적 제염 공정임을 도출하였으며, 여기에 5% 정도의 N_2 를 첨가했을 경우 식각율은 더욱 더 증가하였다. 그러므로 온도와 플라즈마 출력에 따라 식각율은 선형적으로 증가하므로 좀 더 높은 온도와 플라즈마 출력을 증가

시키면 짧은 시간 내에 충분히 제염이 가능하다고 판단된다.

부식 생성물(CP) 및 핵분열 생성물(FP) 제염 공정 확보

부식 생성물(CP) 및 핵분열 생성물(FP)의 건식 제염 공정 확보를 위해 Co, Mn 그리고 Mo의 CF_4/O_2 혼합기체의 플라즈마 반응 실험 결과 TRU와 같이 CF_4/O_2 혼합기체가 반응기체로 가장 우수하며 O_2 의 몰비 역시 온도에 상관없이 20% 일 때 최대로 높은 식각율을 가지고 있다. 반응율은 Mo가 가장 높고 Co가 가장 낮았으며 Co의 경우 290℃에서는 반응이 일어나지 않지만 350~380℃ 사이에서의 식각율은 온도에 따라 거의 선형적인 증가를 보였다.

따라서 부식 생성물(CP) 및 핵분열 생성물(FP)인 Co, Mn 그리고 Mo의 최적 제염 공정은 CF_4/O_2 기체 플라즈마에서 20% O_2 의 몰비, 380℃이상의 온도에서, 그리고 출력은 220W이상 일때가 최적 제염 공정임을 도출하였다. 그러므로 부식 생성물(CP) 및 핵분열 생성물(FP)의 제염은 TRU와 마찬가지로 좀 더 높은 온도와 플라즈마 출력을 증가시키면 짧은 시간내에 충분히 제염이 가능하다고 판단된다.

이와 같이 확보된 최적 제염 공정을 활용해 직접 시설 오염 제거에 활용할 수 있는 플라즈마 토치의 설계도 성공적으로 이루어졌다.

제 3 절 잔류방사능 평가 방법론 개발

1. 개요

가. 연구개발의 목적 및 필요성

원자력 시설의 해체시에 발생하는 많은 양의 방사성 폐기물의 재활용은 방사성 폐기물의 처분 부피를 줄이고 자원 재활용에 따른 경제적 이익과 더불어 환경에 미치는 영향을 최소화할 수 있는 최선의 방안으로 대두되고 있다. 이러한 원자력 시설의 제염 및 해체에 대한 국내 연구가 아직 본격화하지 못하고 있으며 우리 나라의 원자력 산업에 구축해야 하는 시

급한 기술이라고 할 수 있다.

특히 원자력 시설에서 관련 시설이나 주요 기기 및 장치는 방사성 물질로부터의 오염으로 인해 설비나 장치의 노화현상을 초래하여 수명을 단축시킬 수 있으며 또한 이렇게 누적된 방사능 물질로 인해 작업자들의 작업환경을 악화시키게 한다. 따라서 원자력 시설의 원활한 운영을 위해서는 방사능으로 오염된 설비 및 기기를 재사용하고 작업환경을 개선하며, 작업종사자의 방사선 피폭 감소를 위한 제염을 수행할 필요가 있으며, 설비 및 장비에 대한 오염정도에 대한 예측 및 평가가 필요 되어진다고 본다. 그리고 이러한 방사능 구조물 내부 잔류방사능의 오염정도를 예측하여 구조물의 정기적인 보수작업 시기를 결정해 줌으로써 장기적 사용에 많은 도움을 줄 것으로 기대된다.

현재 우리나라에서 운영되어지고 있는 고방사능 시설에는 DUPIC, 사용후핵연료차세대관리, 장수명핵종전환과 같은 시설이 있으며 이곳에서는 고방사능 제염 기술과 제염전용 Hotcell 및 제염공정장치를 필요로 한다. 이렇게 Hotcell에서 사용되고 있는 고방사능 시설물들은 다른 산업 시설물들과는 달리 사용후 핵연료를 취급하기 때문에 고방사능 물질에 오염될 가능성에 의해서 단순 보수 작업과 대대적인 제염 작업시 방사성 물질을 제거해야하는 필요성이 있다. 특히 여러 가지 연구시설의 고방사능 설비는 주로 사용후 핵연료를 취급함에 있어 건식 처리를 하는 공정이기 때문에 이때의 방사성 물질 제거방식으로는 건식제염 방식이 요구되고 있다. 이러한 고방사능 설비의 건식제염을 위해서는 우선 제염후 재사용시 설비의 작업자나 운전자에 미치는 잔류방사능에 의한 영향을 평가하는 작업이 필요하다. 잔류방사능에 의한 영향을 평가하기 위해서는 먼저 고방사능 설비의 특성을 파악하고 이때 사용되는 구조재에서의 핵종들의 특성을 파악해야 한다. 금속성 시설물들의 경우는 방사성 핵종들의 표면 흡착률에 따라 표면오염이 결정되므로 각 핵종들이 금속 표면에서 어떠한 성질을 갖고 부착되는지를 파악하는 것이 중요하며 이를 위해서는 각 방사성 핵종들의 금속 표면에 대한 물리적, 화학적 특성을 파악해야 할 필요성이 있다. 또한 콘크리트와 같은 구조물들은 방사성 핵종들이 내부로 침투해

들어감으로써 표면에 오염된 방사성 핵종들을 제거한다 해도 잔류방사능은 존재하게 된다.

표면오염 제거후 잔류방사능을 파악하기 위해서는 구조재내에서의 핵종들의 분포 특성과 메커니즘을 파악할 필요가 있으며 이러한 특성을 파악함으로써 구조물에서의 잔류방사능에 의한 피폭을 분석할 수 있다. 고방사능 취급 시설물들을 제염후 다른 산업 용도로 재활용하기 위해서는 작업자들에 대한 피폭 영향 평가가 필요하며 구조물 내부 잔류방사능의 오염정도를 예측하여 구조물의 정기적인 보수작업 시기를 결정해 줌으로써 장기적 사용에 많은 도움을 줄 것으로 기대된다.

나. 연구 내용

고방사능 시설에서 오염되는 대상은 기계설비나 계측설비와 같은 금속류와 차폐용 혹은 건물 지지용으로 사용되는 콘크리트와 같은 구조물들이 주가 된다. 금속류는 방사능 물질이 표면에 오염이 되면 금속 표면과 산화반응을 일으켜 대부분 표면에서 고착되어지고 그 내부로의 침투는 일어나지 않는다고 볼 수 있다. 콘크리트와 같은 다공성 매질은 이와 달리 표면 오염이 발생한 후 그 오염 물질들이 매질 내부로 침투하는 현상이 발생한다.

고방사능 시설은 취급물질이 주로 핵연료와 같은 고방사능 물질이며 이러한 오염원에 대한 종류 및 특성파악을 파악함으로써 오염 특성을 평가할 수 있다. 본 연구에서의 선원항 평가는 외국의 연구용 Hotcell 제염시 측정된 데이터를 이용하여 분석하였으며, 그 결과 대표적인 16가지 핵종이 선정되었고 이들 핵종들 중에서 본 연구에 맞지 않은 몇 가지 핵종들을 제외하고 모델링에 적합한 핵종 다섯 가지를 선정하였다. 이러한 선원항 특성을 파악한 결과를 이용하여 구조물 내로의 표면오염 특성과 표면오염의 확산 결과로 발생하는 내부오염에 대한 특성을 파악하였다. 특히 내부오염 특성 파악시 콘크리트와 같은 다공성 매질에 함유된 수분의 특징에 대한 연구를 수행하였다. 이러한 내부오염 특성 파악을 통하여 제염시 잔류방사능의 양을 예측하였다.

2. 고방사능 설비 재활용에 대한 기본 규제 개념

가. 여러 국제 기구의 폐기물 재활용 기준 현황

1) ICRP 권고

ICRP는 1977년에 방사선 방호에 관한 권고 26을 발표한 이래 1990년에 권고 60을 발표하였다. 여기서는 방사선 피폭을 사건(events)과 상황(situations)에 의한 그물망 형태의 과정으로 간주한다. 피폭 가능성이 발생하면 어느 정도의 정확도 내에서 피폭량의 크기를 예측할 수 있는 방사선 피폭을 개인들이 받을 수 있다. ICRP는 이것을 잠재선원(Potential source)이라고 명명하였다. ICRP의 권고에 나타난 방사선 방호의 기본 틀로써 방사선 방호의 목표는 다음과 같다.

- 편익을 가져오는 방사선 피폭을 수반하는 행위를 부당하게 제한하지 않고 사람의 안전을 확보하는 것
- 개인의 결정적 영향(deterministic effects)의 발생을 방지하는 것
- 확률적 영향(stochastic effects)의 발생을 감소시키는 것

ICRP 권고 60에서 제안된 종사자 및 일반공중의 선량한도는 Table 3.3.1과 같다. ICRP는 이와 같은 기본 틀을 바탕으로 방사선원에 대한 규제제외(exclusion) 및 규제면제(exemption)에 관하여 권고하였는데 이 둘에 대해서는 각국의 인, 허가 사항이라는 기본적인 입장을 취하고 구체적인 수치 등은 제시하지 않았다. 규제면제에 대한 ICRP의 사고방식은 다음과 같다. 규제면제란 법 규제가 불필요한 대상에까지 과잉으로 규제가 이루어지는 것을 피하기 위하여 정당화된 행위이지만 규제가 필요하지 않는 대상에 적용된다.

Table 3.3.1. 작업자 및 일반공중에 대해 권고되는 선량한계 (ICRP 60)[3.1.1].

Application	선량한계(Dose limit)	
	작업자(Occupational)	공중(Public)
Effective Dose	20 <i>mSv/y</i> (averaged over defined periods of 5 years)	1 <i>mSv/y</i>
연간등가선량 (Annual equivalent dose)		
눈	150 <i>mSv</i>	15 <i>mSv</i>
피부	500 <i>mSv</i>	50 <i>mSv</i>
손과 발	500 <i>mSv</i>	-

규제면제는 법규체계의 중요한 일환이다. 규제면제의 대상이 되는 선원 또는 환경상황 및 그 기준은 규제당국이 결정하는 것이다. 대상이 되는 선원 또는 환경상황은 다음 두 가지의 근거로 결정된다. 첫째 근거는 방사선 영향의 크기에 주목한 것으로 면제대상이 되는 선원으로부터 받는 개인 및 집단의 피폭선량이 평상시나 사고 시에도 매우 낮다는 것이다. 둘째 근거는 규제의 합리성에 관련된 것으로 합리적인 규제수단을 이용하여도 그 이상 개인 및 집단의 피폭선량을 유의하게 저감시킬 수 없다는 것이다.

2) IAEA와 OECD/NEA 기준

1979년 이후 규제면제에 대하여 IAEA에서 폐기물의 해양투기에 관련한 검토가 개시되었고, 1985년에는 모든 방사성 물질을 대상으로 한 '방사선 방호의 규제면제에 관한 일반원칙에 대한 안전지침'이 작성되었다

[3.3.2]. 1988년에는 IAEA와 OECD/NEA[3.3.3]의 합동자문위원회의 검토결과에 근거하여 IAEA safety series 89 ‘방사선원과 행위의 규제면제원칙’이 간행되었다. IAEA safety series 89에서는 일반적으로 개인이 어떤 행위를 선택할 때에 전혀 고려하지 않는 (무시할 수 있는) 낮은 리스크 수준이며 그 수준은 다음의 두 가지 방법으로 추정할 수 있다.

- 일반사회에서 용인되고 있는 리스크 준위가 낮은 행위와 비교하면 연간 사망률이 $10^{-6} \sim 10^{-7}$ 이하이다. 방사선에 의한 치사확률을 이용하여 이 리스크준위에 대응하는 선량준위를 구할 수 있다.

- 자연방사선의 변동범위는 사람이 이어나 여행 등을 하는 경우에 고려를 하지 않을 정도로 낮은 리스크준위이므로 자연방사선(실효선량)의 1~수% 정도의 연간 선량은 무시할 수 있는 것이라고 생각된다. 이상의 두 가지 사고방식에 따라 무시할 수 있는 개인의 선량 준위는 수십 $\mu\text{Sv/y} \sim$ 백 $\mu\text{Sv/y}$ 이다.

IAEA나 OECD/NEA에서는 보다 세부적인 개념으로써 규제제외(Exclusion), 규제면제(Exemption) 및 규제제거(Clearance)라는 개념을 도입하였다. 이것에 대한 개념은 다음과 같다.

- 규제제외(Exclusion) : 우주선, 자연방사능 등과 같이 규제범위에 포함되지 않는 경우
- 규제면제(Exemption) : 규제가 부과되지 않는 방사능 선원
- 규제제거(Clearance) : 원자로 및 원자력 시설 부품 등 규제영역에 속한 물질이었으나 방사능 준위가 충분히 낮아 규제를 제거시키는 것

3) 세계 각국에서의 방출기준

세계 각국에서 적용하고 있는 폐기물 재활용을 위한 방출형태는 다음의 Table 3.3.2와 같다. 나라별 무제한 방출기준은 최대 표면오염도 및 최대 비방사능으로 구분되며 선원별로 구분되어지고 있다. 이와 관련하여 Table 3.3.3에 각각 그 규정 한도가 나와 있다. 예외적으로 스웨덴과 영국의 경우는 선원의 종류에 관계없이 최대 허용 비방사능을 규정하고 있으며, 일반적으로 α 선원에 대한 최대 허용 표면오염도 및 최대 허용 비방사능은 각 값의 1/10 정도이다.

Table 3.3.2. 세계 각국의 폐기물 재활용을 위한 방출 형태

방출형태	국가
무제한적 재활용	벨기에(금속, 콘크리트), 캐나다, 프랑스(건물, 자갈), 독일, 영국, 이태리, 스웨덴, 체코, 미국(금속편)
무제한적 처분	벨기에(콘크리트), 캐나다, 프랑스, 독일, 영국, 이태리, 스웨덴, 미국
원자력 분야에 제한적 재활용	독일, 스웨덴
원자력 분야에 제한적 재활용을 위한 방출	캐나다, 프랑스, 독일(용융), 미국(납벽돌, 콘크리트 벽돌, 금속벽돌)
제한적 처분	프랑스(토양, 자갈), 독일(금속, 콘크리트), 영국(석면, 화학제)

Table 3.3.3. 각 국의 최대허용 표면오염도 및 최대허용 비방사능(β, γ)

β, γ 선원에 대한 최대 허용 표면오염도(Bq/cm^2)		β, γ 선원에 대한 최대 허용 비방사능(Bq/g)	
0.37	체코	0.10	독일 및 체코
0.40	벨기에	0.37	프랑스 및 독일
0.50	독일	0.50	독일
0.83	미국	1.00	벨기에, 이태리 및 독일
1.00	캐나다	2.00	독일
3.70	프랑스	4.00	스웨덴(인조방사능)
4.00	스웨덴		

3. 잔류방사능 피폭 평가

가. 잔류방사능 선원항[3.3.4]

고방사능 시설의 제염후 시설물들의 재사용을 위해서는 잔류방사능에 의한 영향을 평가 및 예측해야 하며, 이러한 잔류방사능 평가를 하기 위한 대표적인 기준 핵종이 제시되어야 한다. 고방사능 시설에서 취급하는 방사성 물질의 종류에 따라 시설물에의 오염원이 달라지며, M6 Hotcell과 같이 사용후 핵연료를 취급하는 곳에서의 방사성 물질들은 다양하게 발생하지만 그 중에서도 양이 많고 인체에 위해도가 있다고 보여지는 핵종 16가지를 다음의 Table 3.3.4에 제시되어 있으며 또한 한국원자력 연구소에 있는 고방사능 시설인 Hotcell의 공정에 대해 대략적인 그림이 Fig. 3.3.1에 나와 있다.

Table 3.3.4. 잔류방사능 평가를 위한 기준 핵종

방사성 핵종	반감기(년)	방사성 핵종	반감기(년)
Cl-36	3.0×10^5	Nb-94	2.0×10^4
Ca-41	1.3×10^5	Tc-99	2.1×10^5
Mn-54	8.5×10^{-1}	Cs-137	3.0×10^1
Fe-55	2.7×10^0	Ra-226	1.6×10^3
Co-60	5.3×10^0	U-238	4.5×10^9
Ni-63	1.0×10^2	Pu-239	2.4×10^4
Zn-65	6.7×10^{-1}	Pu-241	1.5×10^1
Sr-90	2.9×10^1	Am-241	4.3×10^2

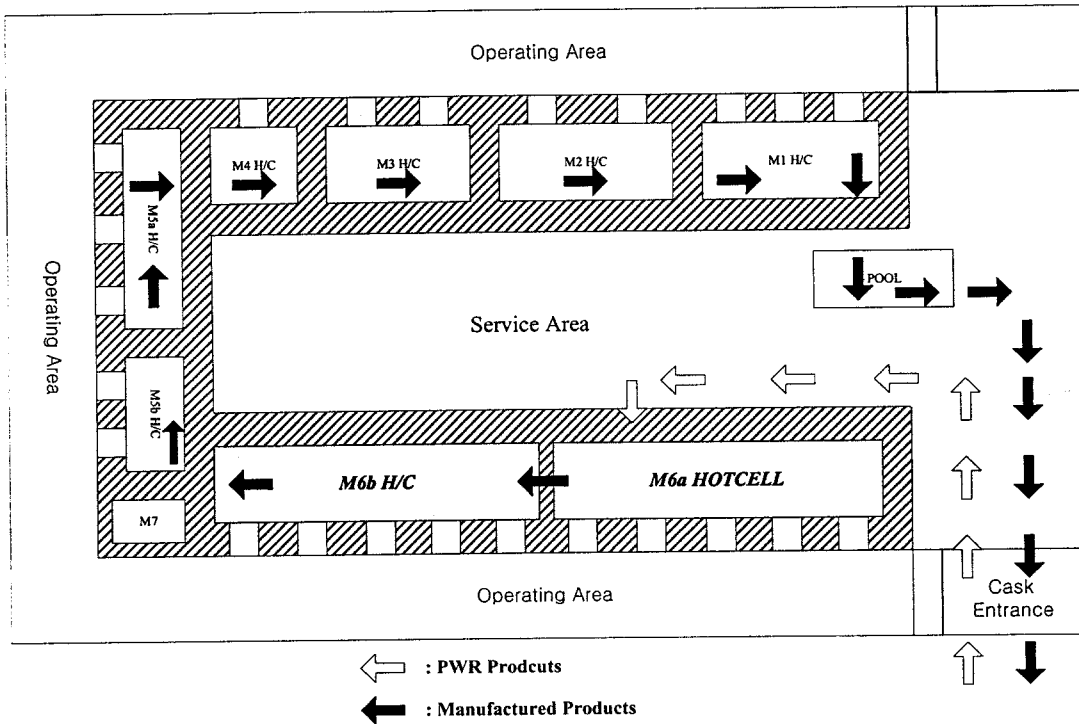


Fig. 3.3.1. 한국원자력 연구소내의 Hotcell 공정

선정된 핵종들 중에서 표면오염에 고착정도에 따라 세 가지로 분류할 수가 있다. 첫 째 단기간 부착되는 핵종들로는 Fe-55, Zn-65, Co-60이며, 장기간 부착되는 핵종은 Ni-63, Cs-137, Ra-226이고, 마지막으로 초장기간 부착되는 핵종은 U-238, Pu-239, Nb-94, Tc-99로 나눌 수 있다. 또한 분류 기준으로 방사성 핵종의 붕괴 형태 및 체내 피폭 선량환산인자(DCF)에 따라 다음의 네 가지로 나눌 수 있다.

- DCF의 값이 크며 α 를 방출하는 핵종
U-238, Pu-239, Am-241, Ra-226
- DCF의 값이 크며 γ 를 방출하는 핵종
Mn-54, Co-60, Zn-65, Nb-94, Cs-137

- DCF의 값이 중간정도이며 γ 를 방출하지 않는 핵종
Sr-90, Pu-241
- 가장 낮은 DCF의 값을 갖는 방사성 핵종
Cl-36, Ca-41, Fe-55, Ni-63, Tc-99

이러한 16가지 방사성 핵종들은 고방사능 설비를 오염시키며 이 오염물질들은 기체상 혹은 입자상으로 존재하게 된다. 고방사능 시설내에 있는 작업공간에 이러한 방사능 물질들이 누적되는 것을 방지하기 위해 환기시스템을 가동시키며 일반적으로 환기량은 3600 m³/h 정도 된다[3.3.5]. 기체상 및 입자상 핵종들은 이러한 환기시스템에 의해 환기계통으로 방출된다. 하지만 입자상 핵종들(0.01 cm³/s)은 기체상 핵종(0.1 cm³/s)과는 달리 공기중 확산계수가 매우 작기 때문에 상당량이 환기계통으로 방출되지 못하고 시설내에 있는 여러 설비나 콘크리트에 부착된다. 이러한 방사성 핵종들은 부착된 구조물들의 특성에 따라 물리적, 화학적 현상을 일으키며, 금속성 구조물에서는 주로 표면과의 산화반응을 일으켜 방사성 핵종들이 금속 표면의 산화물질과 같이 고착되어 더 이상 구조물 안으로 침투하지 않고 계속 표면에만 쌓인다. 이와 달리 콘크리트와 같은 다공성 매질에 부착된 오염물질들은 콘크리트와 핵종들의 물리적 특성에 따른 고유의 확산계수를 가지고 구조물 내로 확산된다.

나. 방사성 핵종의 오염 특성

고방사능 시설의 모든 설비 및 기기들은 표면 오염의 대상이 될 수 있으며 특히 금속류와 같은 경우에는 표면의 산화반응에 의해 방사성 핵종들을 좀 더 고착시키는 경향이 생긴다. 이렇게 고착된 방사성 핵종들은 제염하기가 어려우며 특히 표면이 매끄럽지 않고 굴곡이 있는 설비들의 경우 제염 작업이 더욱 어려워진다. 이러한 표면오염의 경우에는 일반 화학제염이 아닌 프레온이나 플라즈마와 같은 방식의 제염이 요구된다. 이러한 방식으로 오염이 된 핵종들은 더 이상 구조물 내로 확산을 하지 않고 표면에 머물러 있기 때문에 제염에 대한 대상이 항상 표면에만 국한이

된다. 다만 간혹 발생하는 증성자에 의한 방사화에 의해 표면이 아닌 금속 설비의 내부에 방사화 물질이 생길 수 있다. 이러한 종류의 오염은 제염후 잔류방사능으로 남게 되며 오염 정도를 예측하기는 어렵기 때문에 일반적으로 직접 방사능을 측정하면서 제염을 한다.

이와 달리 콘크리트와 같은 다공성 매질에 부착된 오염물질들은 콘크리트와 핵종들의 물리적 특성에 따른 고유의 확산계수를 가지고 구조물 내로 확산된다. 확산계수는 제염시 콘크리트에 남아있는 오염물질의 양에 가장 민감한 반응을 보이며, 콘크리트내에 함유하고 있는 수분의 양에 따라 그 값이 크게 변한다. 따라서 완전히 콘크리트가 건조상태이거나 물에 의해 포화된 상태가 아니면 확산계수의 값은 수분의 양에 따라 변화한다. 고방사능 시설내에서는 항상 상대습도를 유지하고 있으므로 콘크리트 표면에서의 상대적인 수분함량은 최소한 이 값을 가지고 있으며 내부는 항상 이 값보다는 큰 값을 갖고 있다. Fig. 3.3.3은 이러한 현상에 대해서도 식적으로 설명해 주고 있다. 이러한 현상을 정확하게 모델링에 반영하기에는 어려움이 많이 따르므로 몇 가지 가정을 하여 해석을 한다. 즉 다공성 매질인 콘크리트구조물에서의 확산계수를 두 가지 영역으로 나누어 표면에서는 건조인 상태로, 내부에서는 어느 정도의 포화상태로 가정하고 확산방정식을 풀어준다. 이러한 가정을 바탕으로 다음 절에서 핵종 확산에 대한 모델링을 하였다.

다. 방사성 핵종의 구조물내에서의 확산 현상

1) 공극 확산 모델

공극 확산 모델이란 다공성 매질내에서 확산하는 핵종들에 대한 물리적 현상을 설명하는 하나의 이론 모델이다[3.3.6-7]. 이 모델에서는 다음과 같은 가정을 하게 되는데 첫째는, 확산현상이 발생하는 대상인 다공성 매질은 고체로 이루어진 구성물질(solid framework)과 수분으로 채워져 있는 공극(pore water)으로 나누며, 둘째로는 핵종의 확산은 오직 공극에서만 발생한다는 것이다. 공극에서 확산되는 핵종들의 diffusive flux는 확산계수와 공극률 그리고 pore water에서의 농도 그레디언트의 곱으로

정의되며 다음과 같은 식으로 나타낼 수 있다.

$$J_p = -\varepsilon D_p \nabla C_p \quad (3.3.1)$$

여기서, J_p : 공극을 통해 확산하는 핵종 농도확산속 (diffusive flux, [Bq · mm/day])

ε : 다공성 매질에서의 공극률

D_p : 공극에서의 확산계수, [mm²/day]

C_p : 확산되는 핵종의 농도 [Bq/mm³]

$$\varepsilon \frac{\partial C_p}{\partial t} + (1-\varepsilon)\rho_b \frac{\partial q}{\partial t} = \varepsilon D_p \nabla^2 C_p \quad (3.3.2)$$

여기서, ρ_b : 매질의 고체부분에서의 실제 밀도(true density, [g/mm³])

q : 고체부분에서의 농도, [Bq/mm³]

흡착반응이 가역적이고 linear isotherm인 조건하에서 식 3.3.2와 같이 쓸 수 있으며, 결과적으로 확산 방정식은 식 3.3.4와 같은 간단한 식으로 표현되어질 수 있다.

$$q = K_d C_p \quad (3.3.3)$$

여기서, K_d : 핵종이온들의 분포 계수(distribution coefficient)

$$\frac{\partial C_p}{\partial t} = D_a \nabla^2 C_p \quad (3.3.4)$$

$$D_a = \frac{\varepsilon D_p}{\varepsilon + (1-\varepsilon)\rho_b K_d} \quad (3.3.5)$$

여기서 D_a 는 apparent diffusion coefficient로 정의한다.

2) 다공성 매질 내에서 수분 분포 변화

콘크리트에 존재하는 수분의 분포는 대기중의 상대습도에 의해서 그 값이 변한다. 일반적으로 등온조건에서 콘크리트에 함유된 수분의 양은 궁극적으로 대기의 상대습도에 도달하게 되며 이러한 반응을 등온수착 (sorption isotherm)이라고 한다.

콘크리트의 등온수착 곡선은 물과 시멘트의 비, 시멘트 타입, 시멘트 양생 시간(curing time), 양생 방법(curing method) 등 다양한 조건에 대한 함수로 표현된다. Bazant는 등온 흡착(desorption isotherm)에 대한 대략적인 콘크리트 습분함유량을 다음과 같이 표현하고 있다.

$$w(h) \approx 1 - 0.75 \left[1 - \left(\frac{h}{0.98} \right)^3 \right] \quad \text{for } 0.25 \leq h \leq 0.98 \quad (3.3.6)$$

여기서 $w(h)$ 는 콘크리트 내에 있는 수분의 양이 대기중의 상대습도에 도달했을 경우의 상대적인 습분함유량을 나타내며, h 는 대기중의 상대습도를 나타내고 있다. 위 식에서 $h \approx 0.98$ 대해서는 수분손실이 없다는 가정이 들어 있으며, 침수상태 즉 $h \approx 1.0$ 에서는 수분을 얻게 된다. 또한 $h < 0.25$ 에 대해서는 적용할 수 없지만, 일반적으로 대기중의 상대습도가 25%이하의 경우는 드물다.

그밖에 대기중의 습도뿐만 아니라 위에서 언급했던 여러 조건들에 대한 영향과 신간을 고려한 연구가 Parrott에 의해 수행된 바 있다[3.3.8]. 본 연구에서는 일반적인 조건에서 사용되고 있는 Bazant식을 사용하였다.

Fig. 3.3.2는 Bazant식을 나타내는 그래프이며, Fig. 3.3.3은 콘크리트에 남아있는 수분의 양의 초기 값에 대한 비의 값이 공기중의 상대습도와 의 관계를 보여주고 있다. 그림에서 보는바와 같이 궁극적으로 시간이 많이 흐르면 콘크리트 내부적으로 결합된 수분(Bound water)을 제외하고는 평형상태에 도달하게 된다. 또한 콘크리트 깊이에 따라 남아있는 수분의 양도 변화하게 되는데 그것에 대한 실험은 Parrott이 수행한 데이터 값을 인용하였다. Parrott은 두께가 100mm인 콘크리트를 18개월 동안 건조시켰으며 그 깊이에 따른 수분의 양은 Fig. 3.3.4와 같이 나왔다. 결과를 분

석해보면 초기에 만들어진 콘크리트는 수개월 이내에 표면(일반적으로 10mm이내)의 건조속도가 급속히 빨라서 대기중의 상대습도와 비슷해지지만 콘크리트 내부는 아직 수분을 많이 함유하고 있음을 알 수 있다. 이와 같은 결과에 의해서 콘크리트 내부의 확산 속도는 두 가지 영역으로 나눌 수 있다. 하나는 확산속도가 느린 표면영역이고 또 하나는 확산속도가 훨씬 빠른 내부영역이다.

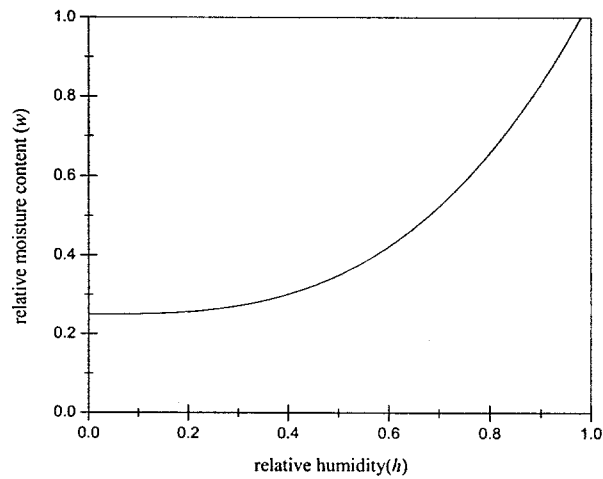


Fig. 3.3.2. Approximated Bazant's expression

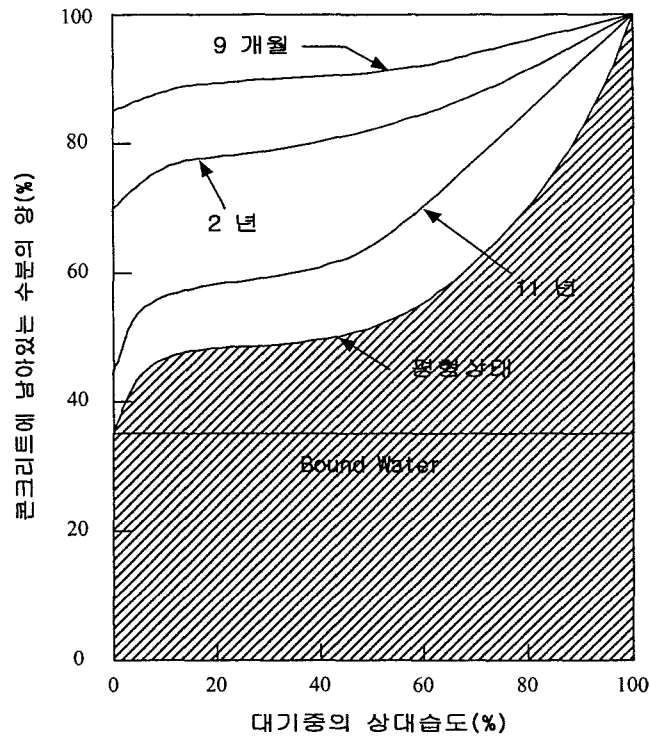


Fig. 3.3.3. 콘크리트에 함유된 수분의 분포곡선[3.3.9]

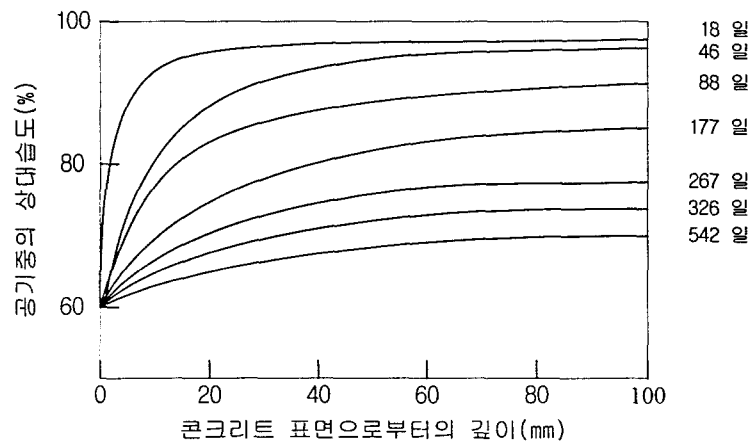


Fig. 3.3.4. 건조시간에 따른 콘크리트내의 수분 분포

3) 구조물 내의 핵종 확산 모델링

가) 핵종 확산의 물리적 현상 및 가정

방사성 핵종이 콘크리트 구조물내로 확산이 일어나는 현상을 모델링하기에 앞서 실제 고방사능 시설(Hotcell)에 사용되는 콘크리트 구조물에 대한 자료를 바탕으로 여러 가지 기본 가정을 하였다. 고방사능 시설에 있는 콘크리트는 일반적으로 차폐용을 겸해서 사용되고 있으며, 따라서 작업자에게 허용되는 피폭만을 주도록 설계하도록 되어있고 그 두께가 일반적으로 약 1m 정도에 이른다. 콘크리트의 종류는 일반 혹은 고밀도 포틀랜드 시멘트(Portland cement)가 사용되고 있고 형태는 벽과 같은 모양을 하고 있다. 따라서 콘크리트를 평면형태의 다공성 매질(semi-finite planar porous medium)로 모델링을 하였으며 콘크리트를 오염시키는 오염원은 고방사능 시설에서 작업하는 내용에 따라 다양하게 변하지만 표면에 오염되는 양의 증가량은 실제 계측한 값을 경계치로 두어 모델링 하였다. 본 연구에서 설정한 모델링은 Fig. 3.3.5에 나타내었다.

또한 고방사능 시설내의 실제 작업환경은 약 60%의 상대습도 조건하에서 작업이 이루어지고 있으며 이 습도는 습도조절 장치에 의해서 유지되고 있다. 이러한 조건에서는 수년 후 콘크리트 표면으로부터 약 20mm정도 깊이까지는 수분의 함유량이 상대습도와 거의 비슷해지는 반면 그 이상의 깊이에서는 수분의 양이 표면과는 달리 좀 더 많은 양을 함유하고 있다. 이로 인해 표면(약 20mm이내)과 내부(약 20mm이후)의 핵종 확산계수의 차이가 약 10^{-1} order 정도 차이가 생긴다. 일반적으로 확산계수를 매질 전반적으로 일정하다고 보고 계산을 수행해왔지만 좀 더 정확한 계산을 하기 위해서는 이러한 이중 확산계수를 고려해야만 한다.

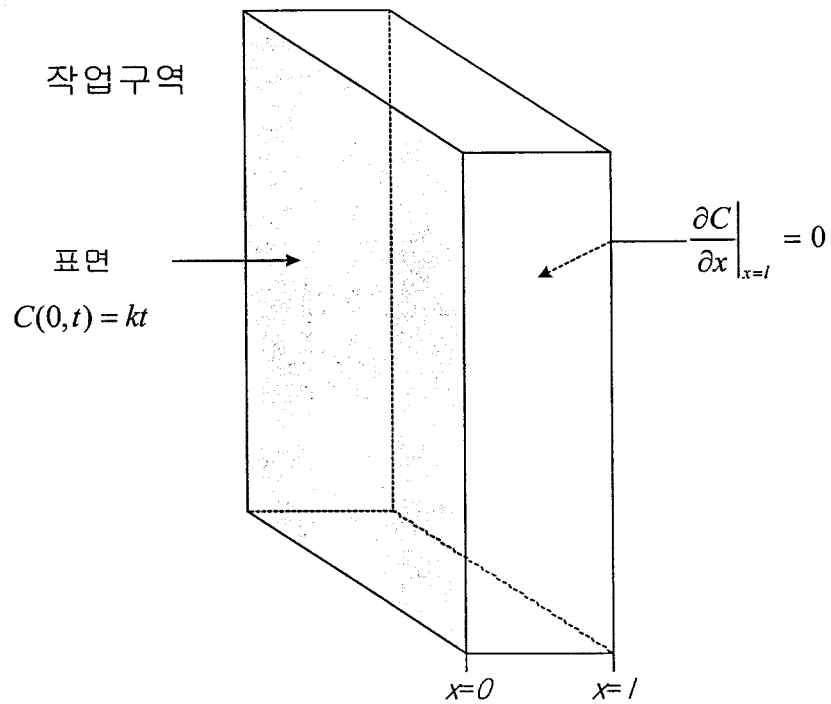


Fig. 3.3.5. 핵종침투 모델링 개략도

나) 핵종 확산 모델링

핵종확산 모델링에 대한 개략도는 Fig. 3.3.5와 같고 실험값으로 결정되는 k 값에 의해 표면의 오염증가율($C(0, t)=kt$)이 결정된다. 또한 $x=l$ 에서 핵종농도의 속(flux)값을 0으로 놓았다. 모델링의 지배방정식을 설정하기에 앞서 초기조건과 경계조건을 정리해보면 다음과 같다.

- 초기조건 : $C(x>0, 0) = 0$
- 경계조건 : $C(0, t) = kt$

$$\frac{\partial C}{\partial x} \Big|_{x=l} = 0$$

- 지배방정식

$$\frac{\partial C(x, t)}{\partial t} = D_a \frac{\partial^2 C(x, t)}{\partial x^2} - \lambda C(x, t) \quad (3.3.7)$$

위 식에서는 공극에 있는 수분과 공극 표면과의 국부적인 평형 (instantaneous local equilibrium)을 가정하였으며 또한 선형적 등온수축 과정을 가정(식 3.3.3)하였다. 식 3.3.7은 경계조건이 시간 의존적인 이원 이차 편미분방정식으로 해를 구하기 위해서 두 가지 방법이 가능하다. 하나는 수치 해석적 방법인 Crank-Nicolson Method를 사용하는 것이 있으며 다른 하나는 Laplace Transformation Theory를 이용하여 직접 해를 구하는 방법이 있다. 여기서는 Analytic solution을 구하기 위해서 Laplace Transformation Theory를 이용하여 직접 해를 구하였다.

식 3.3.7에 Laplace를 취하기에 앞서 먼저 식을 간략화하기 위해 $C(x, t)$ 를 $e^{-\lambda t}u(x, t)$ 로 치환해줌으로써 식 3.3.8과 같이 간략한 형태로 전환되며, 다시 이 식을 Laplace Transform을 해주면 식 3.3.9가 된다.

$$\frac{\partial u(x, t)}{\partial t} = D_a \frac{\partial^2 u(x, t)}{\partial x^2} \quad (3.3.8)$$

$$\frac{\partial^2 \mathcal{U}(x, s)}{\partial x^2} - \frac{s}{D_a} \mathcal{U}(x, s) = 0 \quad (3.3.9)$$

여기서 $\mathcal{U} = \mathcal{L}\{u(x, t)\}$ 를 의미하며 s 는 Laplace variable을 의미한다. 마찬가지로 초기조건 및 경계조건도 Laplace Transform을 해주면 식 3.3.10과 식 3.3.11으로 도출된다.

- 초기조건

$$\mathcal{U}(0, s) = \frac{k}{(s - \lambda)^2} \quad (3.3.10)$$

- 경계조건

$$\left. \frac{\partial \mathcal{U}(x, s)}{\partial x} \right|_{x=l} = 0 \quad (3.3.11)$$

Laplace 변환된 지배방정식을 초기조건과 경계조건을 적용하여 풀면 그 해는 식 3.3.12와 같이 나오며 식 3.3.12를 다시 Inverse Laplace Transform을 하고 다시 역치환을 하면 식 3.3.13같이 나온다. 따라서 식 3.3.13은 콘크리트 내에 잔류하고 있는 핵종들의 시간과 공간에 대한 농도분포라고 할 수 있다.

$$u(\bar{x}, s) = \frac{k}{(s-\lambda)^2} \frac{\cosh(l-x)\sqrt{s/D_a}}{\cosh l\sqrt{s/D_a}} \quad (3.3.12)$$

$$C(x,t) = \frac{kt \cosh p(l-x)}{\cosh pl} - \frac{kl \sinh px}{2D_a p (\cosh pl)^2} - \frac{kx \sinh p(l-x)}{2D_a p \cosh pl} + \sum_{n=0}^{\infty} A \sin\left((n+1/2)\frac{\pi x}{l}\right) e^{-D_a q t} \quad (3.3.13)$$

여기서 p , q , A 가 의미하는 바는 다음과 같다.

$$p = \sqrt{\lambda/D_a}, \quad q = p^2 + \frac{(n+1/2)^2 \pi^2}{l^2}, \quad A = \frac{2(n+1/2)\pi k}{D_a l^2 q^2}$$

또한 표면으로부터 거리 l 까지 단위 면적당 누적된 방사능(the accumulated radioactivity per unit area)은 β 로 표기하며 다음과 같은 식으로 나타낼 수 있다.

$$\beta = k \left[\frac{t \sinh pl}{p \cosh pl} - \frac{l(\cosh pl - 1)}{2D_a (p \cosh pl)^2} - \frac{\sinh pl - pl}{2D_a p^3 \cosh pl} + \sum_{n=0}^{\infty} \frac{2e^{-D_a q t}}{D_a l q^2} \right] \quad (3.3.14)$$

위 식으로부터 오염된 콘크리트의 누적된 방사능의 양을 예측할 수 있으며 제염시 발생하는 방사능 또한 예측할 수가 있다.

다) 확산 모델링의 각 파라미터에 대한 민감도 분석

식 3.3.13에서 중요시 여겨지는 파라미터는 핵종의 반감기와 확산계수로 볼 수 있다. 이 두 가지의 파라미터에 대한 민감도 분석을 위해서 Table 3.3.5에 나타내었다. 콘크리트의 두께는 1000mm로 설정하였고, 제염시점은 5년과 10년 두 가지의 경우로 나누어 계산하였다. Fig. 3.3.6은

5년의 시간이 지났을 경우, Fig. 3.3.7은 10년의 시간이 지났을 경우 콘크리트의 깊이에 따른 상대 방사능을 나타내주고 있다. Fig. 3.3.8과 3.3.9는 시간에 대해서 비교를 하였다.

Table 3.3.5. 파라미터의 민감도 분석을 위한 각각의 샘플링 값

	$T_{1/2}$ (year)	λ (day ⁻¹)	D_a (mm ² /day)
CASE 1	1	1.9×10^{-3}	0.1
CASE 2	1	1.9×10^{-3}	0.01
CASE 3	10	1.9×10^{-4}	0.1
CASE 4	10	1.9×10^{-4}	0.01

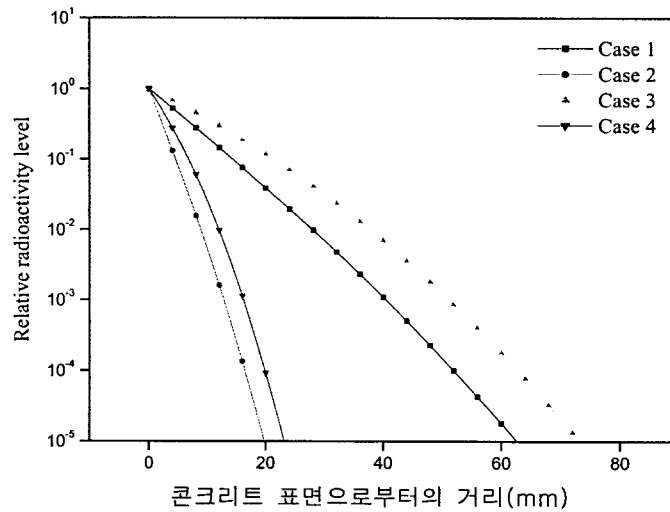


Fig. 3.3.6. 5년후 각 경우에 대한 상대 방사능량

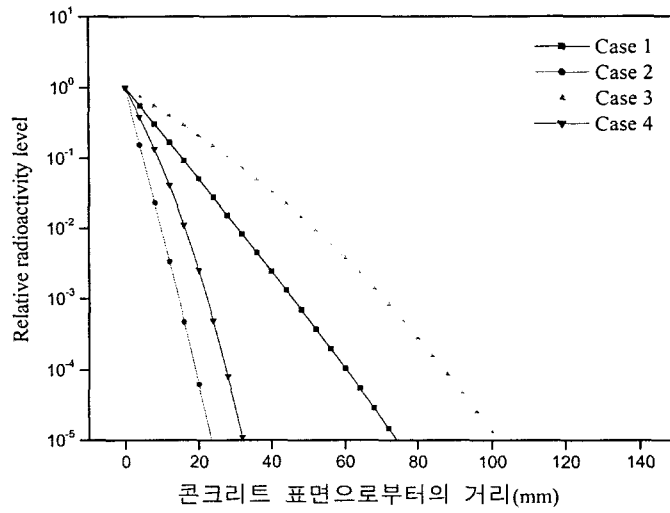


Fig. 3.3.7. 10년후 각 경우에 대한 상대 방사능량

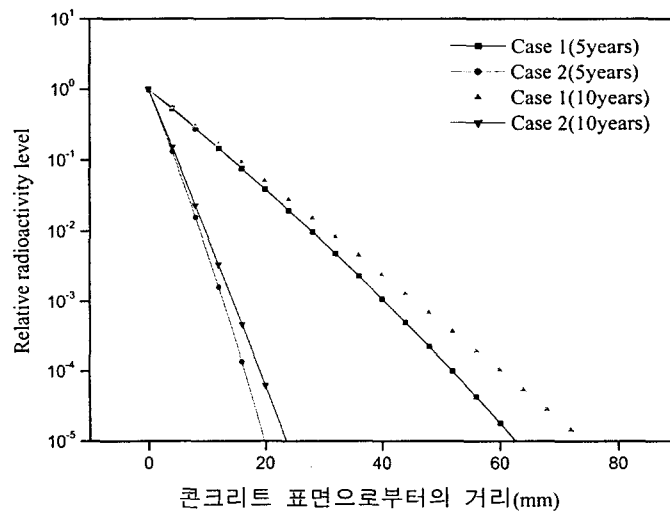


Fig. 3.3.8. 반감기는 같고 확산계수가 다른 경우

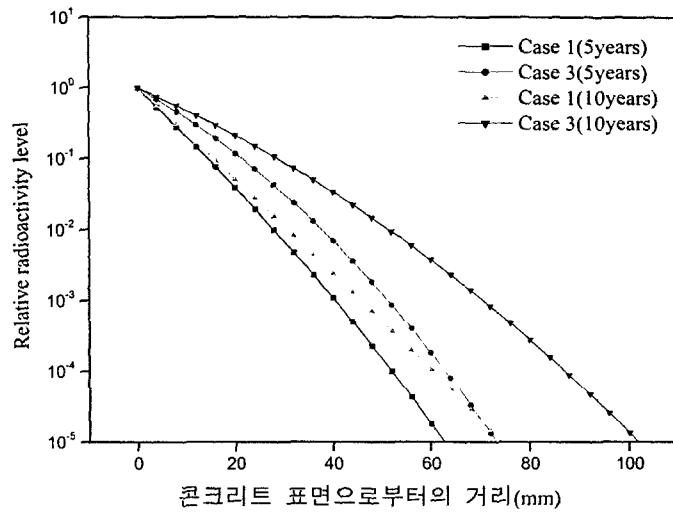


Fig. 3.3.9. 확산계수는 같고 반감기가 다른 경우

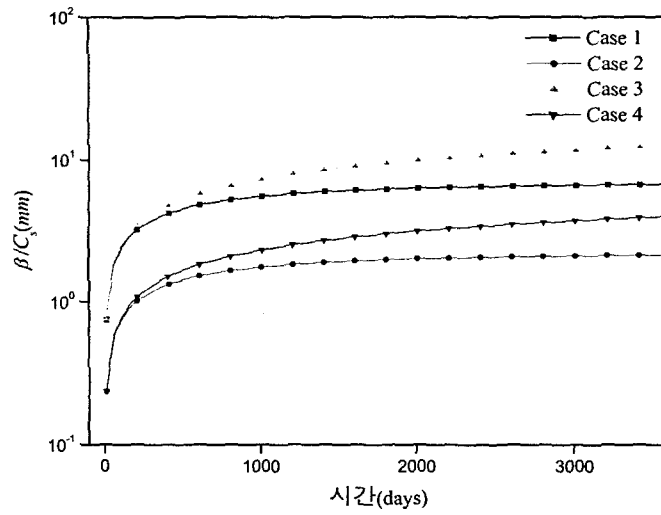


Fig. 3.3.10. 시간에 따른 콘크리트에 누적된 방사능량

라. 잔류방사능에 의한 피폭 선량 평가

1) 피폭 선량 평가를 위한 기본 개념

가) 피폭 선량 평가 대상 선정

고방사능 시설에서 나온 방사능으로 오염된 설비들을 재활용하기 위한 일반적인 대상과 형태는 다음과 같다.

• 피폭대상

- 재활용 시설 내의 작업자
- 재활용 제품 이용자
- 재활용시설 주변의 주민

• 피폭형태

- 고체선원으로부터 발생하는 방사선에 의한 외부피폭
- 방사성물질을 포함한 분말 및 가스등의 호흡에 의한 내부피폭
- 방사성물질이 포함된 음식물의 경구섭취에 의한 내부피폭

각 피폭대상에 따른 주요 피폭형태가 서로 다르기 때문에 상기의 모든 조합을 고려할 필요가 없으며 특히 고방사능 시설에서 사용된 설비들은 주로 그 대상이 작업자에 국한되므로 여기서는 작업자에 대한 피폭형태만을 알아보았다.

고방사능 시설에서의 설비의 제염후 잔류방사능의 방사선원은 주로 고체형태이므로 작업자의 경구섭취에 의한 내부피폭은 극히 작기 때문에 무시할 수가 있으며, 따라서 작업자의 피폭은 주로 외부피폭에 의해 발생한다고 할 수 있다.

나) IAEA의 선량 평가

IAEA는 16개의 기준핵종을 선정하여 방사능 물질의 재활용을 위한 선량 평가를 수행하였으며 작업자의 외부피폭시 개인의 유효선량당량을 계산하는 식은 다음과 같다.

$$H_{EXT,i,s} = tC_iDF_{EXT,i,s}WP \quad (3.3.14)$$

여기서 $H_{EXT,i,s} = s$ 카테고리에 속하는 i 핵종에 의해 1년간 외부피폭된 경우의 유효선량당량 (Sv/a)

t = 개인별 피폭시간(h/a)

C_i = 재활용을 위해 방출하는 i 핵종의 초기농도(Bq/g)

$DF_{EXT,i,s} = s$ 카테고리에 속하는 i 핵종에 의한 외부피폭시 선량환산인자 (Sv/h per Bq/g)

IAEA는 다섯 가지의 재활용 시나리오를 선정하여 원통, 반원통 혹은 디스크형의 대상 물체에 의한 외부피폭을 계산하여 16가지 핵종에 대한 선량을 환산인자를 (Sv/h)/(Bq/g)의 단위로 나타내었다. 또한 스틸, 알루미늄 등에 대한 에너지 의존성 선량률 환산인자도 도출하였다.

방사성 물질이 포함된 분말 및 가스 등의 호흡에 의한 내부 피폭시 개인 및 집단의 선량률을 계산하는 방법은 다음과 같다.

$$H_{INH,i} = VtDF_{INH,i}W(C_dC_w + C_{s,i}RFTF_{INH}) \quad (3.3.15)$$

여기서 $H_{INH,i} =$ 호흡에 의해 i 핵종이 흡입되어 1년간 내부피폭된 경우의 예탁유효선량당량 (Sv)

V = 작업장의 배기 속도 (m^3/h)

t = 개인별 피폭시간 (h)

$DF_{INH,i} = i$ 핵종 1Bq이 흡입되었을 때 예탁유효선량환산인자 (Sv/Bq)

C_d = 공기중 흡입 가능한 분진의 농도 (g/m^3)

$C_{w,i} =$ 재활용될 물질내의 희석되지 않은 i 핵종의 농도 (Bq/g)

$RF =$ 표면방사능에 대한 재침적 상수 (m^{-1})

$TF_{INH} =$ 표면방사능의 호흡으로의 전이계수 (m^{-1})

이 계산에서 가장 중요한 변수는 각 작업장에서 호흡가능한 방사성 물질의 농도인데 취급하는 물질의 물리적 상태, 물질의 양 그리고 건물의 배기 상태에 영향을 받으며 $10^{-5} \sim 10^{-3} g/m^3$ 가 보통이다. 선량을 환산인자가 Sv/Bq이 단위로 평가되었고, 호흡에 의한 내부피폭시의 선량을 ICRP 권고 23에 명시된 대로 성인을 기준으로 수록하였다.

IAEA safety series No. 111-P-1.1에는 위와 같은 계산방법으로 고체 폐기물 재활용시 각 피폭경로 및 피폭조건에 따라 다섯 가지 시나리오, 즉 스틸 재활용을 위한 시나리오, 알루미늄 재활용을 위한 시나리오, 콘크리트 재활용을 위한 시나리오, 콘크리트 건물 재활용을 위한 시나리오 그리고 장비 및 공구 재활용을 위한 시나리오 등을 설정하였다. IAEA의 결과를 다음 Table 3.3.6에 나타내었다.

Table 3.3.6. Summary of the Limiting Exempt Quantities for the Recycle and Reuse of Contaminated Materials Derived by IAEA

Radio-nuclide group	Recycle or reuse category	Derived exemption level	Acceptable amount for recycle(t/a)
Alpha emitters: U-238, Pu-239, Am-241	Steel recycle	0.3 - 1 Bq/g	2x10 ⁴ - 6x10 ⁴
	Aluminium recycle	1 - 5 Bq/g	1x10 ³ - 4x10 ³
	Concrete recycle	0.9 - 3 Bq/g	5x10 ⁵ - 1x10 ⁶
	Room reuse(surface)	0.2 - 1 Bq/cm ²	-
	Room reuse(vol.)	0.3 - 1 Bq/g	-
	Tool/equipment reuse	0.7 - 4 Bq/cm ²	-
Photon emitters: Co-60, Nb-94, Eu-152, Mn-54, Zn-65, Cs-137	Steel recycle	0.3 - 1 Bq/g	5x10 ³ - 6x10 ⁴
	Aluminium recycle	1 - 5 Bq/g	3x10 ³ - 2x10 ⁴
	Concrete recycle	0.9 - 3 Bq/g	1x10 ⁶ - 2x10 ⁶
	Room reuse(surface)	0.2 - 1 Bq/cm ²	-
	Room reuse(vol.)	0.3 - 1 Bq/g	-
	Tool/equipment reuse	0.7 - 4 Bq/cm ²	-
No photon emitters: Sr-90, Pu-241	Steel recycle	0.1 - 0.6 Bq/g	3x10 ³ - 2x10 ⁴
	Aluminium recycle	0.3 - 2 Bq/g	3x10 ² - 1x10 ³
	Concrete recycle	0.3 - 2 Bq/g	5x10 ⁵ - 1x10 ⁶
	Room reuse(surface)	0.1 - 0.6 Bq/cm ²	-
	Room reuse(vol.)	1 - 6 Bq/g	-
	Tool/equipment reuse	10 - 50 Bq/cm ²	-
other low dose : Cl-31, Ca-41, Fe-55, Ni-64, Tc-99	Steel recycle	10 - 50 Bq/g	2x10 ³ - 9x10 ³
	Aluminium recycle	70 - 200 Bq/g	2x10 ² - 5x10 ³
	Concrete recycle	50 - 300 Bq/g	5x10 ⁵ - 1x10 ⁶
	Room reuse(surface)	10 - 100 Bq/cm ²	-
	Room reuse(vol.)	20 - 70 Bq/g	-
	Tool/equipment reuse	40 - 100 Bq/cm ²	-

2) 피폭 선량 평가를 위한 표면오염 및 내부오염 예측

고방사능 시설내 오염정도는 Hotcell시설 가동 후 몇 번의 표면오염의 측정을 바탕으로 예측할 수가 있다. 표면 오염 측정은 HpGe 계측기가 주로 이용되어지고 있으며 다양한 포인트를 측정하여 평균값을 이용하여 내부오염 정도를 예측하게 된다. 이러한 실측된 표면오염 증가율(k 값)은 본 연구에서 구한 모델링의 경계값으로 주어지게 된다. 3.1절에서 언급된 기준핵종 16가지 중에서 일반적으로 제염시기를 가동 후 5년으로 보았을 때 1년 미만의 반감기를 가진 핵종들은 표면오염을 제외하고는 내부오염을 무시할 수가 있으며, 기체상태의 핵종들도 환기계통을 통해 방출되므로 무시 가능하다. 또한 외국의 Hotcell 제염시 나오는 핵종의 데이터를 바탕으로 여기서는 다섯 가지 핵종으로 모델링을 하였다. 이 다섯 가지 핵종의 데이터를 요약해보면 Table 3.3.7과 같다.

Table 3.3.7. 고방사능 시설에서 발생하는 주요 핵종 다섯 가지

핵종	$T_{1/2}$ (years)	λ (day ⁻¹)	$D_{a,slow}$ (mm ² /day)	$D_{a,fast}$ (mm ² /day)	C_s (Bq/mm ²)	k (Bq/mm ² day)
Fe-55	2.6	7.3×10^{-4}	2.0×10^{-2}	3.5×10^{-1}	1.2	3.3×10^{-4}
Co-60	5.26	3.6×10^{-4}	2.0×10^{-2}	3.0×10^{-1}	2.3×10^{-1}	6.3×10^{-5}
Sr-90	28.1	6.8×10^{-5}	1.5×10^{-2}	2.0×10^{-1}	8.3×10^{-1}	2.3×10^{-4}
Cs-137	30.2	6.3×10^{-5}	1.4×10^{-2}	1.4×10^{-1}	8.5×10^{-1}	2.3×10^{-4}
Ra-226	1622	1.2×10^{-6}	1.0×10^{-2}	1.0×10^{-1}	1.0×10^{-1}	2.7×10^{-5}

Table 3.3.7에서 $T_{1/2}$ 는 핵종의 반감기를 의미하며, λ 는 핵종의 붕괴상수, $D_{a,slow}$ 는 콘크리트 표면($0 \leq x \leq 20mm$)에서의 확산계수이며 $D_{a,fast}$ 는 내부($x > 20mm$)에서의 확산계수를 의미한다. 또한 C_s 는 제염시 콘크리트의 표면오염농도를 의미하고, k 는 콘크리트 표면에서의 표면오염농도증가율을 의미한다.

확산계수를 결정하는 방법에는 몇 가지 실험을 통해서 구해질 수 있다. 많이 사용되는 방법으로는 through-diffusion, in-diffusion, back-to-back diffusion and reservoir-depletion (Lever, 1986, 1989) 방법 등이 있으며 각각의 실험 방법에 대한 설명은 생략하였다. Table 3.3.7에 있는 확산계수는 다른 보고서나 논문에 의한 데이터를 인용하였다[3.3.10]. 또한 Fig. 3.3.3에서와 같이 콘크리트의 건조기간이 매우 길어서 평형상태에 도달했을 경우에는 핵종의 확산계수가 전 매질에 걸쳐 일정하다고 볼 수 있다. 따라서 본 연구에서는 10년을 기준으로 핵종의 확산계수가 콘크리트 전반에 걸쳐 일정한 경우와 두 가지의 확산영역으로 나누어 계산한 결과를 비교하였다. 첫 번째의 결과를 바탕으로 제염계획을 세우면 기대치보다 더 많은 양의 표면오염이 측정될 것이며 그와 반대로 두 번째의 결과를 바탕으로 제염계획을 세우게 되면 매우 보수적인 결과가 나올 것으로 예상된다.

Fig. 3.3.11은 콘크리트 매질 전반에 걸쳐 확산계수가 일정하다고 가정된 계산 결과이며 Fig. 3.3.12는 두 가지 영역으로 나누어 확산된다고 가정해서 계산된 결과이다. 위에서 예측했듯이 확산계수가 일정하다고 보았을 때의 결과는 콘크리트의 약 30mm 이상만 제염을 하여도 권고되는 허용 표면오염농도 ($4 \times 10^{-4} Bq/mm^2$)에 어느 정도 도달하게 되는 반면 확산영역을 두 가지로 나누어서 계산한 결과는 약 100mm 이상을 제염하여야 허용 표면오염농도 한도에 도달하는 것이 가능하게 된다. 즉 콘크리트 전체 두께 중에서 표면으로부터 약 1/10 이상을 제염해야 한다는 것으로 해석이 된다. 또한 Fig. 3.3.13에서는 Co-60에 대해서 직접 실험적으로 구한 확산 분포를 나타내었다. 이 실험에서는 확산분포를 살펴보기 위해 콘크리트 표면에 일정한 양의 Co-60을 오염시켰으며 6개월 후 각 시편을 잘라 오염을

측정한 결과이다.

방사성 핵종 침투현상을 시간에 따른 분포를 살펴보기 위해 제염 시점을 1년, 5년 그리고 10년으로 나누어 계산한 결과가 Fig. 3.3.14이다. Fig. 3.3.14는 대표적으로 Cs-137에 대한 경우만 나타내었고 다른 방사성 핵종들도 유사한 결과를 보여준다. 다음의 Table 3.5와 3.6은 이러한 핵종 다섯 가지에 대한 확산 분포에 대한 결과를 요약 정리한 것이다.

Table 3.3.8. 콘크리트의 깊이에 따른 핵종의 표면오염 농도
(확산계수가 일정한 경우)(Bq/mm^2)

방사성 핵종 표면으로부터의 거리(mm)	Fe-55	Co-60	Sr-90	Cs-137	Ra-226
20	9.0×10^{-3}	3.4×10^{-3}	1.1×10^{-2}	8.7×10^{-3}	4.0×10^{-4}
30	5.1×10^{-4}	2.3×10^{-4}	4.6×10^{-4}	3.1×10^{-4}	5.2×10^{-6}

Table 3.3.9. 콘크리트의 깊이에 따른 핵종의 표면오염 농도
(확산영역이 두 가지로 나누어지는 경우)(Bq/mm^2)

방사성 핵종 표면으로부터의 거리(mm)	Fe-55	Co-60	Sr-90	Cs-137	Ra-226
20	5.3×10^{-2}	2.2×10^{-2}	8.3×10^{-2}	7.4×10^{-2}	6.4×10^{-3}
30	2.9×10^{-2}	1.5×10^{-2}	4.9×10^{-2}	3.7×10^{-2}	2.9×10^{-3}

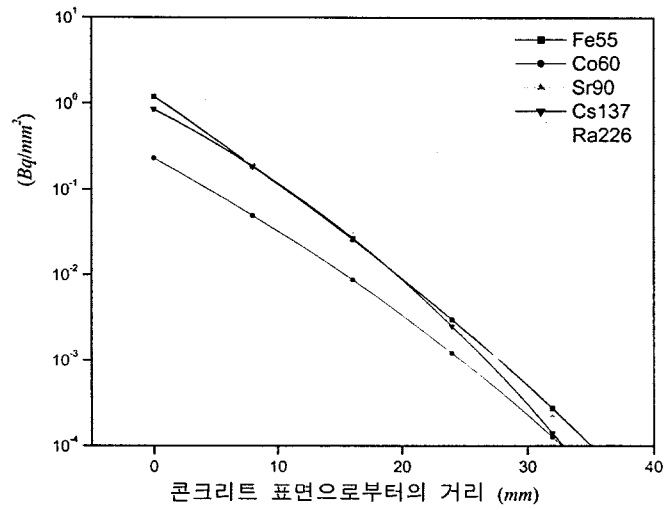


Fig. 3.3.11. 콘크리트 내의 수분 변화량을 고려하지 않은 경우

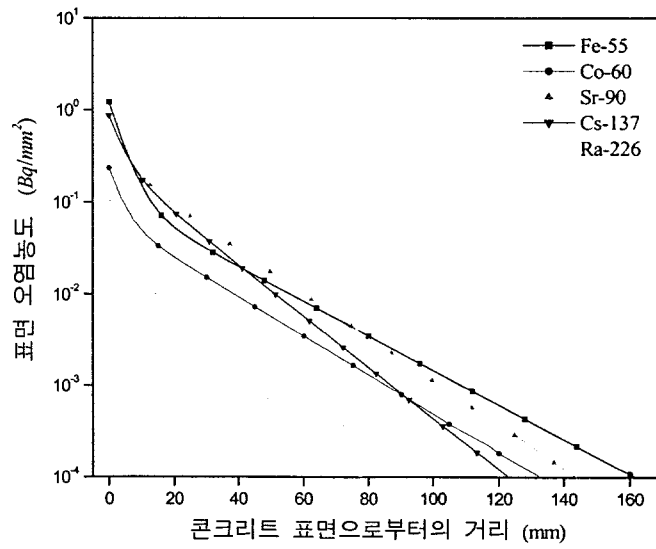


Fig. 3.3.12. 콘크리트 내의 수분 변화량을 고려한 경우

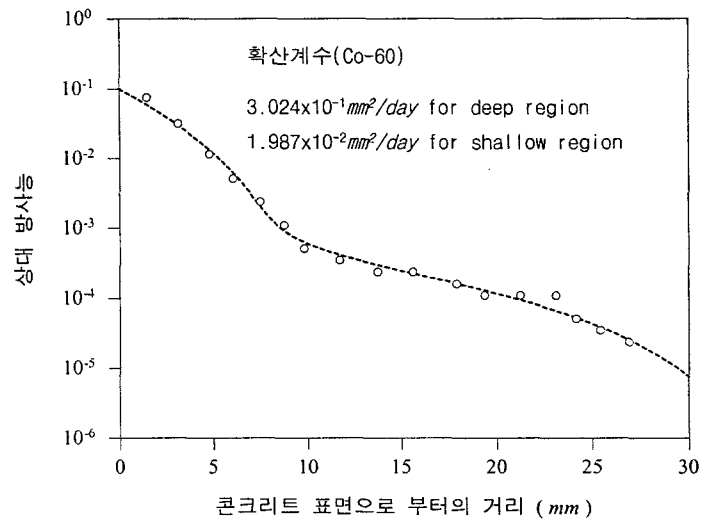


Fig. 3.3.13. Co-60의 실험치에 의한 확산 분포결과

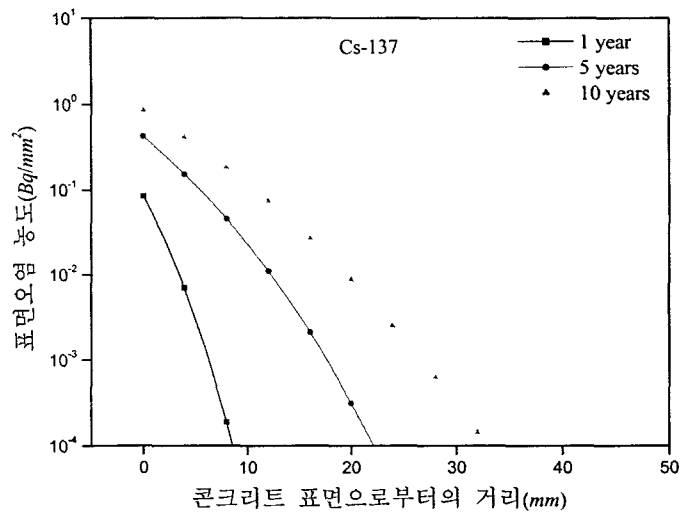


Fig. 3.3.14. 시간에 따른 핵종 확산 분포 (확산계수가 일정한 경우)

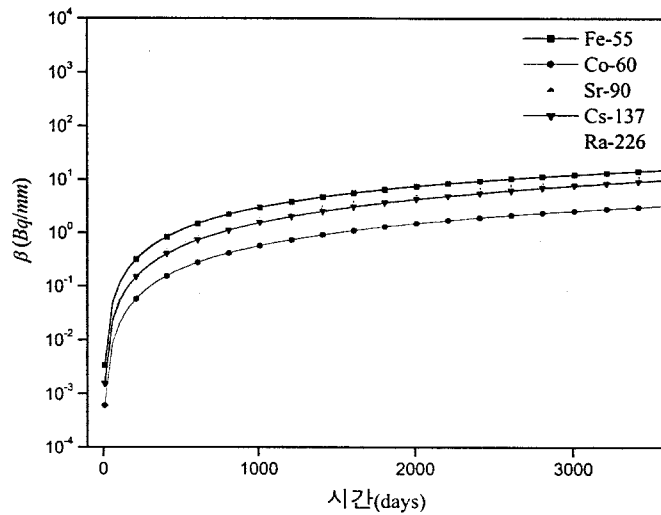


Fig. 3.3.15. 콘크리트에 누적된 총 방사능량

4. 결론 요약

고방사능시설에서 취급하는 방사성물질들은 핵연료와 같은 고방사능 물질이 주가 되며 여기에서는 수십 가지의 방사성 핵종들이 발생되고 이러한 핵종들이 고방사능 시설 내에 있는 금속류나 콘크리트와 같은 구조물들의 주된 오염원이 되고 있다. 이러한 방사성 핵종들은 방사성 선량평가를 하기 위해서 몇 가지 기준 핵종(16가지)으로 나뉘어지며 본 연구에서는 이들 기준핵종을 고착정도와 반감기, 그리고 방출량을 고려하여 다섯 가지 기준 핵종으로 나누었다.

금속류로 되어있는 계측설비나 기계설비는 방사성핵종이 표면에 오염이 되면 표면의 산화현상에 의해 방사성 핵종들이 금속 표면의 산화물질과 같이 고착되어 더 이상 구조물 안으로 침투하지 못하고 계속 표면에 누적된다. 반면에 시설물의 지지용과 차폐용으로 사용되는 콘크리트와 같은 다공성 매질에 부착된 오염물질들은 콘크리트와 핵종들의 물리적 특성에 따른 고유의 확산계수를 가지고 구조물 내로 확산하게 된다. 따라서 내

부오염에 대한 고려는 콘크리트에 대해서만 수행하였으며 콘크리트의 내부 수분분포에 따른 핵종확산계수의 변화에 따라 일반적인 확산계수와는 달리 내부에서는 값이 더 큰 확산계수를 갖는다. 이러한 현상을 고려하지 않고 제염시점을 10년으로 하고 계산한 결과 약 30mm에서 허용표면오염농도($4 \times 10^{-4} \text{Bq/mm}^2$)에 도달하며, 수분변화를 고려한 계산 결과는 허용표면오염농도에 도달하기 위해서는 약 100mm이상이 되어야하는 결과가 나오게 된다. 따라서 제염깊이는 30mm에서 100mm사이까지가 되며 보수적으로 제염을 수행하기 위해서는 100mm정도를 제염해야한다.

제 4 절 고방사능 건식제염 공정장치 설계방향 설정 연구

1. 개요

가. 연구의 필요성

DUPIC, 사용후핵연료차세대관리, 장수명핵종소멸처리 같은 국내 사용후핵연료건식처리 기술개발 과정에서 고방사능 Hot Particle로 오염된 시설, 장비 및 운전폐기물이 발생하며 국내에 제염 및 처리 기술과 설비가 없어 사용후핵연료건식처리 기술 시험, 실증 후 고가의 Hot Cell을 재사용 할 수 없고, 또한 대부분의 오염물을 고방사성 폐기물로 단순 보관할 수밖에 없다.

따라서 본 연구에서는 Hot Cell 개·보수에 필요한 고방사능 건식제염 기술을 개발하고자 하며 그 1단계 연구로 실험실 규모 고방사능건식제염 설비의 공정장치 개념설계 방향정립을 하고자 하였다.

나. 개념설계 범위

본 연구에서 개념설계의 범위는 다음과 같이 두 가지 경우에 대하여 고려되는 고방사능 건식제염에 필요한 제염설비의 공정장치 개념설계 방향정립에 있다.

첫 번째 제염설비 공정장치의 개념설계 방향은 IMEF (DUPIC, SF차세대 관리 포함), PIEF 등 국내 Hot Cell에서 발생하는 고방사성 오염물(폐기

물 포함)의 재사용 및 폐기물 저준위화 목적의 이송제염에 두고 있다. 이송제염은 사용후핵연료 건식처리 시험, 실증 장치 등이 설치된 Hot Cell의 운전 및 개·보수시 발생하는 고방사성 오염물을 Cask에 담아 제염 전용 Hot Cell로 이송하여 오염물의 처리 목적에 따라 재활용(제한적 재활용 포함) 및 저준위 폐기물화 하는 것을 의미한다. 본 연구에서 이송제염 설비는 기존 고화체검사 Hot Cell을 개조하여 설치하는 것으로 하였다.

두 번째 제염설비 공정장치의 개념설계 방향은 IMEF (DUPIC, SF차세대 관리 포함), PIEF 등 국내 Hot Cell의 보수 또는 내부설비 개조를 위한 현장제염에 두고 있다. 현장제염은 사용후핵연료건식처리 시험, 실증 장치 등이 설치된 Hot Cell의 개·보수에 필요한 Hot Cell 내부 제염을 의미한다. 따라서 현장제염설비는 기존 IMEF 및 PIEF Hot Cell 개·보수를 위해 설치하는 것으로 하였다.

2. 고방사능건식제염 설비 개념 및 설계 요건

가. 국내 고방사능건식제염 수요

국내 핵연료주기 연구개발 단위공정의 조업조건에 따라 오염물의 물리 화학적 조성 및 오염물의 침투 및 부착 특성이 다름. 제염대상 설비의 종류 및 제염 수요는 1999년부터 수행중인 DUPIC, 사용후 핵연료차세대관리 기술개발, 핵종변환기술개발, 후행핵연료주기시설 운영 등 관련 연구과제에서 기술개발 요건을 받아 분석 (국내 핵연료주기개발에 필요한 고방사능건식제염 기술수요 및 기술현황, KAERI/AR-581/2000 참조 [3.4.1])하였으며, 이를 토대로 제염대상을 재활용성과 비 재활용성으로 구분하여 Table 3.4.1 및 Table 3.4.2에 요약하여 수록하였다.

제염대상 설비의 종류는 오염정도, 형상 및 제염의 난이도를 고려하여 분석/전자설비, Hot cell 장비를 포함한 기계적 설비, 파이프와 탱크류와 같은 시스템 계통설비, Hot cell 벽 및 바닥 그리고 운전폐기물로 분류된다. 또한 제염 대상과 제염요건에 따라서는 외부/내부 표면제염 및 고착성/비고착성 제염으로 대별되며, 제염방법에 따라 기계적 또는 물리·화학적 제염법으로 대별된다.

외부표면제염은 핫셀내부의 벽과 바닥, 핫셀내 고정설비 등이 주요 대상이 되며, 내부표면제염은 복잡한 구조의 전자 및 분석 장비, 시스템 파이프 및 탱크 등이 주 대상이다.

고방사능 건식 제염 대상물의 오염특성은 대부분 사용후핵연료를 고온에서 산화환원에 의한 분말을 취급하거나 증성자 조사된 재료들을 취급하는 시설들이므로, 사용후핵연료 취급 과정 중에 누출되는 TRU 원소와 fission products에 의한 미세 입자성 오염과 큰 에너지 방사선에 의해 방사화된 오염 핵종으로 나눌 수 있다. 오염 상태별로는 시설 내부가 화학적으로 안정화된 상태로 유지되어 어느 정도 느슨하게 물리적으로 부착된 알파 입자이며, 일부는 오랜 기간 동안 사용된 점을 감안하면 누출된 오염 핵종이 시설면 표면에서 단순한 물리적 부착 단계를 넘어서 간단한 물리적 제염 기술만으로는 제염되기 어려운 화학적 결합을 하고 있을 것으로 판단된다. 이를 종합하여 보면, 대부분의 오염물은 비고착성 오염물로 존재하지만 일부 오염물은 열, 습도, 경년 현상 등에 의하여 방사성 입자가 흡착, 이온교환 결합, 확산 및 산화피막 등을 형성하는 고착성 오염물로 존재하기도 한다. 일반적으로 초음파제염으로 제거되지 않는 오염물이 고착성 오염물이다.

Table 3.4.1 Classification of reusable contaminated wastes

고방사능 연구개발 공정 및 시설	제염대상 분류			
	분석/전자 설비	기계적 설비	시스템 파이프 및 탱크류	Floor 및 Wall 표면
DUPIC 핵연료 제조공정	핵연료분말 크기분포 측정장치, 소결체/압 분체 제원 측정장치, Pellet 무게, 밀도, 표면조도 측정장치	Rod cutter, Rod slitter, Powder mill, Roll compactor, Mixer, Press, Grinder, Pellet cleaner, Pellet drier		DUPIC Hot cell stainless steel liners
SF차세대 관리공정	방사화학 분석 장비	Consolidation Cell 설비, Pretreatment Cell 설비, Metallization Cell 설비, Smelting & Casting Cell 설비, Radioanalytical lab 설비, 제염 및 유지보수 cell 설비 Intervention Area 설비		Hot cell stainless steel liners
군분리/ 화학전환 공정		용액이송펌프, M/S manipulator, O/H crane, Hot cell handling tool	용액혼합 정치조, 용액 저장 탱크 및 배관재	Hot cell stainless steel liners
PIEF/IMEF	제원측정장비, 외전류 측정기, 감마 스캐닝, X-ray 측정기, 산화층 측정기, 충격시험기, 변형측정기, 하이스코프, 열전도도 측정기, 열 팽창율 측정기, 동적/ 정적 인장시험기, 밀도 측정기, 금속현 미경, 미소경도 측정기	핵연료봉절단기, RESIN 주입기, 시편제조장비, 캡슐절단기, 미세 절단기, 밀링기기, 방전가공기, 마운팅프레스, 연마기, 연료채취장치		Hot cell stainless steel liners

Table 3.4.2 Classification of non-reusable contaminated wastes

고방사능 연구개발 공정 및 시설	제염대상 분류	
	시험 설비	Hot Cell 운전폐기물
DUPIC 핵연료제조 공정	<ul style="list-style-type: none"> . 핵연료봉 절편 저장기 . OREOX furnace . Sintering furnace . 콘크리트 폐기물 	<ul style="list-style-type: none"> . Scrap 폐기물, Cladding hulls . 사용한 필터 및 흡착제 . 구조물 폐기물 (상하 end plate, 격자, 안내봉 등) . 기타(오염 종이 및 patches 등)
SF차세대 관리공정	<ul style="list-style-type: none"> . Oxidation furnace . Reduction reactor . Electrolyzer . Adsorption column . Smelter . Casting machine & tools . 콘크리트 폐기물 	<ul style="list-style-type: none"> . 폐 흡착제 및 필터류 . 의류, 장갑, 플라스틱, paper
군분리/ 화학전환 공정	<ul style="list-style-type: none"> . 불화물 제조 장치 . 전해제련 장치 . 환원추출장치 . 콘크리트 폐기물 	<ul style="list-style-type: none"> . 폐 용매 . 폐 흡착제 및 필터 . 의류, 고무, 종이류
PIEF/IMEF		<ul style="list-style-type: none"> . Cladding hull 및 구조물 폐기물 (상하 end plate, 격자, 안내봉 등) . 폐 필터류, 의류, 고무, 종이류

나. 고방사능건식제염설비 기본 개념 및 특성

(1) 기본개념

고방사능 현장제염은 다음의 경우 핫셀에 작업자 투입이나, 일부 오염 장비/설비의 반출을 위해 하는 것으로 가정하였다.

- 고방사능 취급 핫셀의 정기/비정기적 개보수,
- 사용후핵연료 처리기술개발 시험/실증의 종료, 또는 다른 목적의 시험/실증을 위한 시험/실증 설비의 제거나 설치

이에 반해 이송제염은 핫셀에서 반출된 오염 장비/설비 또는 운전폐기물을 제한이나 무제한 재사용을 하거나 저준위 폐기물화를 목적으로 제염하는 것으로 가정하였다. 따라서 이송제염을 위해서는 고방사능 오염물

운반장비와 이송제염 핫셀이 필요하다. 특히 현장에서 제염이 용이하지 않고 분해와 이송이 비교적 손쉬운 소규모 장비나 도구 등은 오염특성에 따른 다양한 제염기술을 적용할 수 있는 제염장비를 구축한 전용 제염실 내에서 제염이 이루어질 수 있다.

본 설비의 기술적 요건은 제염매질과 제거된 방사성 오염물을 분리하여 오염물은 농축제거하며 제염매질은 회수하여 재사용 함으로써 2차 폐기물의 발생을 최소화하여야 하는데 있다.

사용후핵연료건식처리 시험실증 장치 등이 설치된 Hot Cell의 개·보수에 필요한 현장제염설비는 기존 IMEF 및 PIEF Hot Cell 내에 설치된다. 대상 제염설비의 주가 되는 이송제염은 사용후핵연료건식처리 시험실증 장치 등이 설치된 Hot Cell의 운전 및 개·보수시 발생하는 고방사성 오염물을 수송 용기에 담아 제염전용 Hot Cell로 이송하여 오염물의 처리 목적에 따라 재활용(제한적 재활용 포함) 및 저준위 폐기물화 할 수 있는 설비 기능을 갖추어야 한다. 본 연구에서 이송제염 설비는 현재 연구소에서 고화체 검사시설로 활용되고 있는 차폐시설의 핫셀을 개조하여 본 연구개발의 목적에 맞추어 이용할 수 있도록 하고자 하였다. 설비 설계 시에는 연구 시설로서의 특성 및 중장기적인 연구개발 수요에 맞춰 핫셀 내의 공정설비 설치 및 해체가 용이하도록 설계하고 제염뿐만 아니라 오염설비의 확인과 분리를 위한 측정과 분류, 오염설비의 이송, 폐기물 관리 등의 부대설비가 갖추어져야 한다.

(2) 설비 특성

DUPIC, 사용후핵연료차세대관리, 장수명핵종소멸처리 같은 사용후핵연료건식처리 기술개발 과정에서 발생하는 고방사능 알파 입자로 오염된 시설, 장비 및 운전폐기물을 건식 제염하는 설비로써, 해외 선진국들은 대부분 습식처리 기술을 이용하고 있기 때문에 고방사능 건식제염 기술은 해외에서 아직 기술개발이 안되었으며 사용후 핵연료 건식처리 기술을 추진하고 있는 우리나라에만 필요한 기술로 국내에서 독창적으로 개발하는 설비이다.

본 설비는 고방사능 건식제염 기술을 종합적으로 실증할 수 있는 설비

로서 다음의 기능을 갖도록 설계해야 한다.

- 현장제염설비는 IMEF 및 PIEF 핫셀내에 기 설치된 고정설비와 통합하여 공간활용을 극대화할 수 있도록 하여야 하며 이송제염 설비는 기존의 고화체 검사시설 핫셀(14.2 x 6.2 x 6.5 m)내부에 별도로 설치한다.
- 이송제염설비는 방사성 시험을 수행하면서도 핫셀 오염을 최소화할 수 있도록 알파 밀폐형 모듈설계개념을 적용하여 모듈단위의 교체가 가능하도록 한다.
- 작업자의 방사선 피폭을 최소화할 수 있도록 기존설비를 활용하여 가능하면 원격 운전/유지 보수개념을 도입함을 원칙으로 한다.

다. 설비 성능기준

(1) 설비 주요기능

본 설비는 사용후핵연료 건식처리 기술개발 과정에서 발생하는 고방사능 알파입자로 오염된 장비 및 운전폐기물을 제염하는 기술을 종합적으로 시험실증 할 수 있는 고방사능건식제염 시험설비로서 건식제염기술을 중점적으로 다루면서 세계적인 기술추세가 되고 있는 제염·해체에 대하여 포괄적으로 기술을 실증할 수 있는 기능을 수행할 수 있도록 설계한다.

본 설비의 주 기능은 다음과 같이 크게 두 가지로 대별된다.

- 사용후핵연료 건식처리 시험장치가 설치된 IMEF 및 PIEF 핫셀의 개·보수에 필요한 현장제염
- 사용후핵연료 건식처리 시설의 운전 및 개보수시 발생하는 설비 및 폐기물의 재활용 및 저준위 폐기물화하는 이송제염

상기 주 기능외에 오염설비의 취급 및 이송, 오염설비의 측정과 분류, 잔류방사능 분석 및 평가기술, 폐기물 관리 등의 부대설비가 갖추어져야 한다. 이러한 기능은 핫셀을 중심으로 필요한 장치와 계측/제어 계통을 설치하여 요구되는 기능을 안전하게 수행할 수 있도록 설계하여야 한다.

(2) 설비 용량기준

기존의 고화체 검사시설을 개·보수하여 설치되는 이송제염 설비는 고방사능 오염물을 Cask에 넣어 제염 전용 핫셀로 이송하여 오염물을 측정

및 분류, 원격제염, 잔류방사능 분석, 폐기물 관리 등 일련의 필요한 설비 및 장비를 갖춘 실험실규모의 실증설비이다.

(3) 제염대상 고방사성 오염물 특성

대부분 사용후핵연료를 고온에서 산화환원에 의한 분말을 취급하거나 증성자 조사된 재료들을 취급하는 시설들이므로, 오염원은 사용후핵연료 취급 과정 중에 누출되는 TRU 원소와 fission products에 의한 미세 입자성 오염과 큰 에너지 방사선에 의해 방사화된 고방사성 오염 핵종으로 이루어져 있다.

사용후핵연료 처리 공정인 DUPIC 핵연료 제조시험 공정, 사용후핵연료 차세대관리 공정, 균분리/화학전환 공정 및 기존 보유하고있는 PIEF/IMEF를 사용한 사용후핵연료 검사 및 관리 시설의 오염특성은 다음과 같다.

● DUPIC 핵연료 제조시험 공정

- SF 절단시 : Tc, I, Kr 등의 배기체 발생
- 산화 환원 공정 : U_3O_8 , PuO_2 , Cs, Cs_2O , CsI, CsOH, RuO_2 , RuO_4 등의 고온 배기체 및 Hot particulate
- 탈 피복 및 성형 공정 : U_3O_8 , PuO_2 등의 Hot particulate

● SF 차세대관리 공정

- SF 분말화 공정 : U_3O_8 , PuO_2 , CsO, RuO_2 등 Hot 입자의 집적오염 형태
- 사용후핵연료 금속전환 공정 : 공정에서 누출된 사용후핵연료 분말의 집적오염과 U, Pu 등의 용융 금속, CsCl, $SrCl_2$ 등의 용융염, LiI, Li_2Te 등 핵분열 생성물의 Li화합물이 고착성 오염형태 또는 배기체 집적 오염물로 존재함.

● 균분리/화학전환 공정

◇ 균분리 공정

- 습식 공정이며 질산 및 용매와 혼재하는 액상폐액에 의한 오염임.
- SF내에 존재하는 모든 핵종, 즉 Mo, Tc, Ru, Pd, Rh, Ag, Cd, In, Te, Sn, Sb, Actinide, Rare earth, Sr, Zr, Nb

◇ 화학전환 공정

- Xe, Kr, I₂, T₃ 등의 배기체 오염과 용융염 불화물의 고착성 오염
- TRU(Am, Pu...)와 Cs, Sr 등의 FP금속과 불화물염의 Slag Phase에 의한 고착성 오염형태.

● PIEF/IMEF

- 조사후 시험시설은 4개의 콘크리트핫셀과 2개의 납셀로 구성되어 있는 시설로 콘크리트셀에서는 풀에서 인수한 핵연료봉의 비파괴 시험을 수행하고 화학성분분석용 핵분열생성기체를 채취한 후 절단하여 여러 가지 시험시편을 준비하며, 화학분석 시험을 함. 납셀에서는 핵연료 시편에 대한 현미경조직시험과 밀도측정, 반경방향 연소분포등을 측정함.
- 조사재 시험시설은 6개의 콘크리트 핫셀과 1개의 납 핫셀로 구성되어 있으며 핵연료나 원자로 재료의 개발과 관련된 건식 시설로 두 시설은 모두 사용후핵연료 취급 과정 중에 누출되는 TRU 원소와 fission products에 의한 미세 입자성 오염과 큰 에너지 방사선에 의해 방사화된 핵종으로 오염됨.

(4) 오염준위에 따른 제염 요건

고방사성 오염물의 오염준위에 따른 제염 요건을 정리하여 Table 3.4.3에 수록하였다.

Table 3.4.3. Decontamination requirements in accordance with the contamination level of highly contaminated materials

오염원 및 제염		오염준위 [pCi/cm ²]		
		Low	Mid	High
오염원	Alpha	0.05-0.1	0.1-1	>1
	Gamma or High Energy Beta	1-2.5	2.5-10	>10
	Low/Intermediate Energy Beta	10-2.5	25-100	>100
제염 요구사항		즉시 제염을 요하나, 명백히 방사선 작업구역으로 설정된 곳이라면 제염없이 보관도 가능하다	즉시 제염을 요하며, 제염을 바로 행하지 못할 경우에는 작업자 진입 금지구역 표기를 하여야 한다	즉시 제염이 반드시 필요하며, 작업자 진입 금지구역 표기를 하여야 한다 오염 정도에 따라 제염을 충분히 하기 전에는 오염시설 활용을 중지 시켜야 한다. 그리고 오염보고를 방사선 관리부서에 하여야 한다

다. 설계/건설 관련 인허가 및 기술기준

원자력법 제2조의 용어정의에 의하면 “사용후핵연료 처리”라 함은 “원자로의 연료로서 사용된 핵연료물질 또는 기타의 방법으로 원자핵분열을 시킨 핵연료물질을 연구 또는 시험을 목적으로 취급하거나 물리적·화학적 방법으로 처리하여 핵연료물질과 기타의 물질로 분리하는 것을 말한다.”로 명기되어 있다. 따라서 고방사능 알파오염물의 건식제염 설비는 핵연료물질의 시험과정에서 발생하는 알파오염물의 제염을 연구 또는 시험을 목적으로 하는 설비이기 때문에 “사용후핵연료처리시설”의 인허가 절차를 따라야 한다. 인허가에 관련된 국내 법령은 다음과 같다.

- 원자력법 ('99. 2. 8 법령 제 5820호)
- 원자력법 시행령('99. 8. 31. 개정 대통령령 제 16542호)
- 원자력법 시행규칙('00. 5. 27. 과학기술부령 제 18호)
- 방사선관리등에 관한 규칙('00. 4. 18. 과학기술령 제 17호)
- 방사선량등을 정하는 기준('98. 8. 11. 과학기술처 고시 1998-12호)
- 방사선 방호등에 관한 기준('01.1.31 과학기술부 고시 2001-2호)

- 방사선 동위원소에서 제외되는 물질에 관한 고시('01.1.31 과학기술부 고시 2001-3호)
- 사용허가 대상에서 제외되는 핵연료물질의 종류 및 수량등에 관한 고시 ('01.1.31 과학기술부 고시 2001-5호)
- 방사성 물질 등의 포장 및 운반에 관한 규정('96. 10.17. 과학기술처 고시 제 96-38호)
- 방사성폐기물 자체처분에 관한 규정('97.12.23 과학기술처 고시 1997-19호)
- 핵연료주기시설의 설계 및 공사방법의 승인 신청에 관한 규정('86. 2. 5. 과학기술처 고시 제 86-15호)
- 사용후핵연료 처리시설의 정기검사에 관한 규정('85. 7. 20. 과학기술처 고시 제 85-6호)

또한 본 설비에 적용될 기본 요구조건 및 국내외 기술기준을 다음과 같이 기술하였다.

● Nuclear Criticality and Safety

고화체 검사시설 핫셀 내에 설치되는 각종 설비 및 소형 모듈은 어떠한 핵임계 사건이 일어나지 않도록 설계되어야 하며, 핵 임계 및 안전에 대한 설계 요건은 다음과 같은 code & standard를 준용한다.

① Korean Codes

- 과기부 고시 제 2001-2호

② Standards

- American National Standards Institute (ANSI)
 - ANS 8.1, Nuclear Criticality Safety in Operations with Fissionable materials Outside Reactors
 - ANS 8.3, Criticality Accident Alarm System
 - ANS 8.7, Guide for Nuclear Criticality Safety in the Storage of Fissile Materials
 - ANS 8.10, Criteria for Nuclear Criticality Safety Controls in Operations with Shielding and Confinement

- ANS 8.17, Criticality Safety Criteria for the Handling, Storage, and Transportation of LWR Fuel Outside Reactors
- ANS 8.19, Administrative Practices for Nuclear Criticality Safety

③ U.S. NRC Regulatory Guides

- 3.4, Nuclear Criticality Safety in Operations with Fissionable Materials Outside Reactors
- 3.43, Nuclear Criticality Safety in the Storage of Fissile Materials

● Radiation Protection & Shielding

고화체 검사시설 핫셀 내에 설치되는 각종 설비 및 소형모듈은 유지보수가 용이하고, 작업자 피폭이 최소화되며, ALARA 요구조건에 만족하도록 설계되어야 한다. 이에 대한 설계 요건은 다음과 같은 code & standard를 준용한다.

① Korean Codes

- 과기부 고시 제 2001-2호

② U.S. Federal Regulations

- 10 CFR 20, Standards for Protection Against Radiation

③ U.S. NRC Regulatory Guides

- 1.69, Concrete Radiation Shields for Nuclear Power Plants
- 8.8, Information Relevant to Ensuring That Occupational Radiation Exposures Will Be ALARA
- 8.10, Operational Philosophy for Maintaining Radiation Exposures ALARA

④ American National Standards Institute (ANSI)

- ANS 6.1.1, Neutron and Gamma-Ray Flux-to Dose Rate Factors
- ANS 6.1.2, Neutron and Gamma-Ray Cross Sections for Nuclear Radiation Protection Calculations for Nuclear Power Plants
- ANS 6.4, Guidelines on the Nuclear Analysis and Design of

Concrete Radiation Shielding for Nuclear Power Plants

- ANS 6.4.2, Specification for Radiation Shielding Materials
- ANS-HPSSC-6.8.1, Location and Design Criteria for Area Radiation Monitoring Systems for Nuclear Power Generating Stations

● Contamination Control

고화체 검사시설 핫셀 내에 설치되는 각종 설비 및 소형모듈의 오염 제어에 대한 설계 요건은 다음과 같은 code & standard를 준용한다.

① Korean Codes

- 과기부 고시 제 2001-2호

② U.S. Federal Regulations

- 10 CFR 20, Standards for Protection Against Radiation

③ U.S. Standards

- American National Standards Institute (ANSI)
- American Society of Heating, Refrigeration and Air Conditioning Engineers (ASHRAE), Standards for Heating, Ventilating and Air Conditioning
- ASTM 04256, Test Method for Determination of the Decontamination ability of Coatings Used in Light-Water Nuclear Power Plants

● Security & Safeguards

고화체 검사시설 핫셀 내에 설치되는 각종 설비 및 소형모듈의 보안 및 안전에 대한 설계 요건은 다음과 같은 code & standard를 준용한다.

① Korean Codes

- 과기부 고시 제 2001-2호
- 과기부 고시 제 96-28호
- 과기부 고시 제 96-29호

② U.S. Codes

- NFPA 101, Life Safety Code
 - NFPA 101-5, Means of Egress
 - NFPA 101-5-7, Discharge from Exits

③ U.S. Federal Regulations

- 10 CFR 73, Physical Protection of Plants and Materials
- 10 CFR 74, Material Control and Accounting of Special Nuclear Material

④ U.S. NRC Regulatory Guides

- 5.7, Control of Personnel Access to Protected Areas, Vital Areas, and Material Access Areas
- 5.12, General Use of Locks in the Protections and Control of Facilities and Special Nuclear Materials
- 5.13, Conduct of Nuclear Material Physical Inventories
- 5.15, Security Seals for the Protection and Control of Special Nuclear Material

● Decontamination & Decommissioning

고화체 검사시설 핫셀 내에 설치되는 각종 설비 및 소형모듈은 해체를 고려하여 설계하여야 한다. 구조물 및 기기는 제염이 용이하고 방사성폐기물 및 해체 후 오염된 장비가 최소화되도록 준비되어야 하며, 영구적인 해체 시 방사성폐기물 및 오염물의 제거가 용이하도록 설계되어야 한다. 이를 위한 설계 요건은 다음과 같은 code & standard를 준용한다.

① Korean Codes

- 과기부 고시 제 2001-2호

② U.S. Codes

- 10 CFR 20, Standards for Protection Against Radiation
- 10 CFR 71, Packaging of Radioactive Materials for Transport

라. 고방사능 건식 이송제염설비 개념설계 방향

(1) 공정 흐름

(가) 기능 흐름도

이송제염 대상은 소형의 운전장비(기기, 부품 등), 시험장비 및 운전폐기물 등이 있으며, 이들 소형 장비표면이나 내부에 미세 분말형태로 오염물이 부착되어 있기 때문에 제염 대상물의 재질 및 오염물의 부착 특성에

따라 적합한 제염법을 선정하여 방사성 준위를 기준치 이하로 낮추어야 한다. 이송제염은 제염 대상물을 제염 전용 hot cell로 이송하여 제염함으로써 재사용 또는 저준위 폐기물화를 목적으로 수행하며, 이를 위해 다음과 같은 주요 기능을 포함하여야 한다.

- 오염설비의 확인과 분리를 위한 측정과 분류기능
- 오염설비의 이송기능
- 대상설비에 적합한 제염기능
- 후처리 기능

대부분의 알파함유 폐기물의 관리전략에 있어서 필수적인 요소는 시설물내의 핵종 함량을 측정하는 것이다. 측정은 대부분의 폐기물이 비균질성이고, 표본시료와 일치하지 않기 때문에 비파괴 분석기술을 이용한다. 시설물내의 핵종 함량 측정의 목적은 책임계 제어, 물질계량, 방사선 방어 및 일련의 처리과정에 대한 정보를 얻기 위함이다.

이송제염 대상 기기/설비 및 기타 폐기물은 재활용 기기/설비, 불용 기기/설비 및 운전폐기물로 제염목적에 따라 분류하여야 하며, 오염 기기/설비는 발생장소에서 사전에 분류하거나 제염전용 hot cell에서 분류할 수 있다. 이때 분류기술은 수동접촉 방법, 수동 원격 취급방법 및 원격 자동시스템을 고려할 수 있으며, 이와 같은 분류방법은 제염목적과 포장 및 이송에 관련되는 인자를 고려하여야 한다.

제염전용 hot cell에 이송된 오염기기/설비는 설비 및 오염 특성에 따라 적절한 제염공정을 선정하여 제염하게 되며, 제염설비의 최종처리 단계로서 후처리기술에 의해서 세척 및 건조 또는 추가적인 제염기술 등이 포함된다.

상기와 같은 일련의 주요 기능을 포함한 이송제염의 기능 흐름도를 Fig. 3.4.1에 수록하였다.

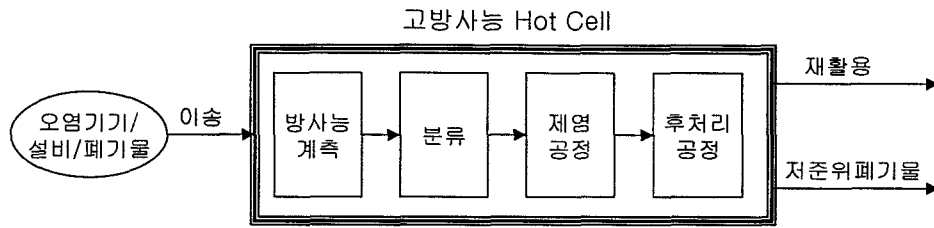


Fig. 3.4.1. Functional flowsheet of movable decontamination.

(나) 공정 흐름도

국내 고방사능 건식제염 수요, 기술현황 분석[3.4.1] 및 본 연구 내용 중에 포함되는 단위공정 연구를 통해서 도출된 제염공정은 세 가지 공정을 단독 혹은 복합하여 사용하는 공정으로써 제염 대상물의 특성에 따라 다음과 같은 제염 공정이 적용될 수 있다.

- CO₂ 분사제염법 : 표면에 노출된 비고착성 오염물
- PFC유체 제염 : 표면 비노출성 비고착성 오염물
- 플라즈마 제염 : 고착성 오염물

이와 같이 제염대상 오염물의 특성에 따라 선정된 제염기술을 바탕으로 하여 고방사능 건식제염 복합공정 흐름도를 Fig. 3.4.2에 수록하였다.

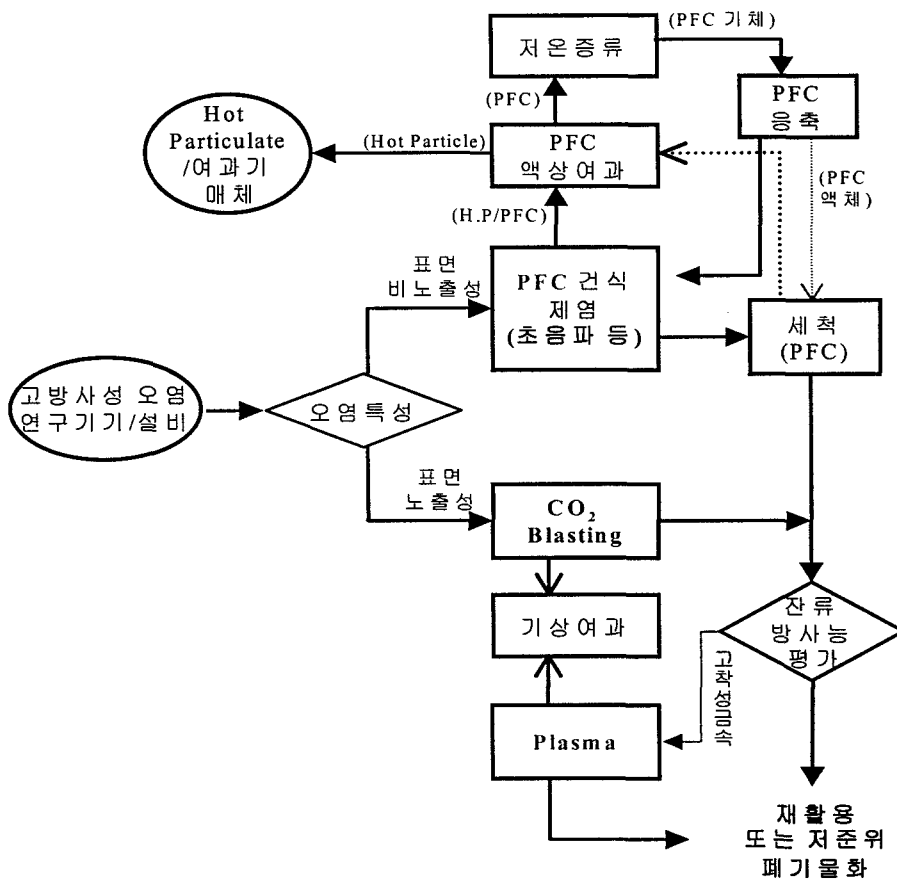


Fig. 3.4.2. Process flowsheet of movable decontamination.

(다) 기존 고화체검사시설과의 연계활용 흐름도

사용후핵연료 건식처리 기술개발 과정에서 발생하는 고방사성 오염물의 건식제염기술의 개발과 관련하여 실험실적 기초 자료 생산을 위한 실험실적 연구개발 단계 이후에는 고방사성 건식제염 실증 실험이 필수적으로 수행되어야 한다. 이에 대한 구체적인 대안으로 현재 연구소에서 고화체 검사 시설로 활용되고 있는 차폐 시설의 핫셀을 개조하여 본 연구개발의 목적에 맞추어 이용할 수 있는 방안을 모색하고 있으며, 본 연구의 고화체검사시설과의 연계활용 흐름도를 Fig. 3.4.3에 수록하였다.

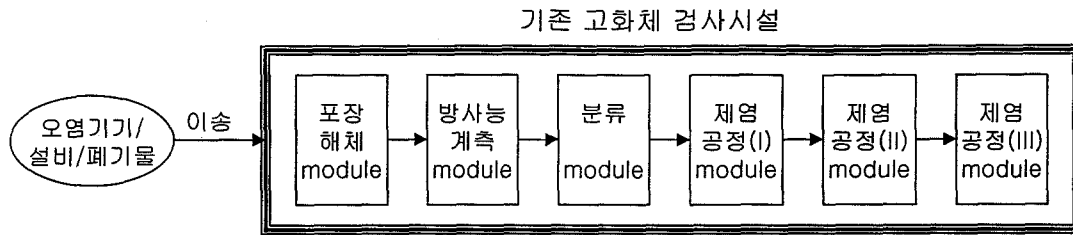


Fig. 3.4.3. Flowsheet for application of examination facility of solidified waste form to movable decontamination of highly contaminated components.

(2) 핫셀라인 및 주요장치 설계방향

시설에서 핫셀라인은 방사성 물질을 취급하는 주 공정에 대한 차폐 및 격납 기능을 제공하는 역할을 한다. 본 고방사능 건식제염기술 개발을 위한 핫셀 라인에 기존의 고화체 검사시설을 보완하여 사용하며, 기본적으로 상기에서 언급한 바와 같이 각각의 기능 및 공정에 따라 분류된 소형 모듈의 배치를 원칙으로 하는 설계방향을 설정하고자 하였다.

(가) 오염물 반입/해체, 특성평가 및 제염준비

우선적으로 핫셀 라인에는 사용후핵연료 건식처리 기술개발 시설에서 발생하는 고방사성 오염물 중에서 이송이 가능한 기기/설비 및 소형 부품의 반입, 반입된 오염물의 물리적/방사화학적 특성평가와 오염물의 분류 및 sizing 등 제염준비를 위한 제반 설비 및 계측기기 등이 배치된다. 오염물의 반입은 Padirac 시스템을 갖추어 수행되도록 하는 반입 및 포장해체 모듈, 알파 및 감마 방사능 계측을 위한 계측기가 배치되는 방사능 계측 모듈, 오염물의 분류 및 sizing을 위한 작업대 및 소형 절단기가 설치된 분류 모듈이 각각 배치되도록 설계한다.

(나) 제염 및 제염제 재 순환

반입된 오염물은 오염특성 및 제염 목적에 따라 앞에서 서술한 바와 같이 서로 다른 제염공정을 적용함으로써 그 목적을 달성할 수 있도록 한

다. 이를 위해서 본 연구에서는 세 가지 공정을 주요 고방사능 건식제염 공정으로 이미 선정할 바 있으며, 이 공정을 단독 혹은 복합적으로 적용한다. 따라서 본 제염을 위한 모듈은 세 개가 배치되는 것으로 설계한다.

먼저 표면 노출성 비 고착성 입자로 오염된 제염 대상물은 CO₂ 펠릿분사제염을 수행한다. 이 CO₂ 분사제염 시에는 분사 노즐을 포함한 gun 부분만이 모듈 내에 설치되고 펠릿 제조 공정 부분은 핫셀 밖에 설치되도록 한다. 한편 제염 과정 중에 발생하는 배기체 및 분진 등을 처리하기 위하여 모듈에는 여과기 및 환기 시스템을 갖추도록 설계하여야 한다.

노출성 뿐만 아니라 비 노출성/비고착성 오염물에 적용하는 PFC 제염공정 장치가 설치되는 모듈 내에는 초음파 제염조, 1차 세척조, 2차 세척조 및 제염 시편의 건조를 위한 열풍 시스템과 기화되는 PFC 및 제염 종료 후 PFC 폐액을 증발/응축 시켜 회수하는 재생시스템을 설치함으로써 폐기물 발생량을 최소화한다. 또한 제염 중 용액 증으로 탈리된 오염입자의 회수를 위한 PFC 여과 시스템과 배기체 처리 시스템을 갖추도록 설계하여야 한다.

고착성 오염물의 제염에는 플라즈마 제염이 적용되며, 이를 위한 모듈 내에는 플라즈마 제염 공정장치가 설치되도록 배치하고, 특히 기화되는 방사성 기체의 포집 및 처리시스템을 갖추도록 설계하여야 한다.

(다) 폐기물처리

본 고방사능 건식제염의 적용으로 발생하는 폐기물로는 각 모듈에서 배기체 및 분진 처리를 위한 여과기 매체 및 PFC 제염폐액 여과기 매체와 공구, 기기 및 사용후핵연료 cladding hull까지를 포함하는 제염 후 고체 폐기물 등이다. 이러한 폐기물 중 여과기 매체와 cladding hull 등은 압축하여 재 포장하여 반출하도록 설계한다.

(라) 설비 제염보수

고화체 검사시설 핫셀 내에 설치되는 소형 모듈 및 모듈 내의 공정 장치의 유지 보수를 위하여 핫셀 상부에 있는 유지 보수실을 이용한다. 따라서 유지 보수실에는 핫셀에서의 유지보수 필요 설비를 이송하여 원격 또는 접촉방식으로 제염 및 보수하기 위한 제염보수장비 및 이송장비 등

이 포함되어야 한다.

(마) 기존 고화체 검사시설 보완

연구단계에서의 소규모 방사성 실험 및 고방사능 건식제염 실증 시험을 위해 기존 고화체 검사시설과 같은 대형 hot cell을 현재의 상태로 그대로 사용함으로써 전체적으로 오염시키는 것은 시설 운전 및 유지보수 등 사후 관리의 측면에서 바람직하지 않다. 따라서 방사성 시험을 수행하더라도 hot cell 오염을 최소화시킬 수 있는 방안으로 실증 시험용 공정 장치를 장착할 수 있는 소형의 알파 밀폐형 모듈을 설계/제작하여 대형의 고화체 검사시설 hot cell에 설치하는 것이 제안되어졌다. 이 모듈의 설치 및 인출 등 관련 작업은 intervention room을 통하여 수행되도록 한다. 또한 각 모듈 및 모듈 내에 설치될 공정장치 등의 제염보수를 위해서는 기존에 hot cell 상부에 배치된 유지보수 실을 이용하도록 한다.

(3) 설비 배치 (고화체 검사시설)

(가) 부지

고방사능 건식제염 공정장치의 실증시험을 위한 고화체 검사시설은 한국원자력연구소 부지 내에 위치하고 있다.

(나) 건물 Layout

고화체 검사시설의 1층 평면도 및 단면도를 다음 Fig. 3.4.4 및 Fig. 3.4.5에 수록하였다. 그림에서 보는 것처럼 핫셀은 내부 크기가 14.2 m (길이) x 6.2 m(너비) x 6.5 m(높이)로 intervention room의 1.8 m(폭) x 2.5 m (높이)의 여닫이식 문을 통하여 B 시설과 연결되어 있다.

이 규모로 볼 때 본 핫셀은 현재 고화체 검사 업무 및 신규로 설치되는 고방사능 건식제염 공정장치의 실증시험을 위한 충분한 공간을 갖추고 있다. 현재 핫셀 내에 기본적으로 각종 유틸리티들을 제공할 수 있도록 설계된 유틸리티 설비들도 고화 공정 장치 및 건식제염 공정장치를 운용하는데 있어 그 종류 및 용량이 충분할 것으로 판단된다.

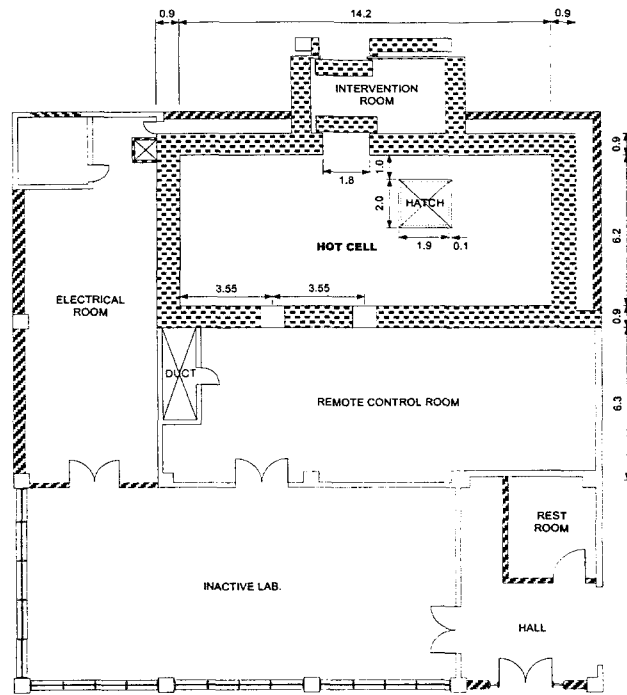


Fig. 3.4.4. A plain figure for the 1st floor of solidified waste form examination facility.

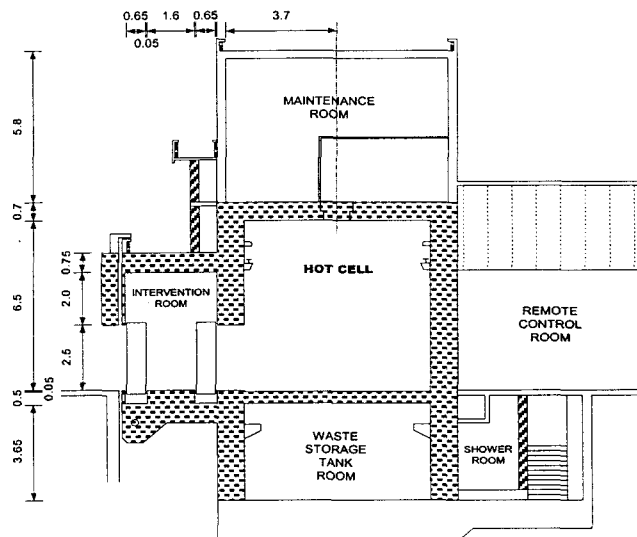


Fig. 3.4.5. A cross sectional view of the solidified waste form examination facility.

다. 고방사능 건식 현장제염설비 개념설계 방향

사용후핵연료 건식처리 연구에 관련하여 현재 운영중인 IMEF 및 PIEF Hot Cell은 고준위 방사선을 방출하는 사용후핵연료를 취급하므로 방사선 안전관리에 유의하여야 하며, 시설의 운영도 작업자의 방사선 피폭으로부터 보호하고 방사성 물질로 인해 주변 환경이 오염되지 않도록 시설을 안전하게 유지하고 유지보수를 철저히 하여야 한다. 시설의 가동 연한이 길어짐에 따라 노후화 설비의 교체 및 보수 빈도가 증가하고 이로 인해 오염된 시설, 장비 및 운전폐기물 등을 대상으로 유지·보수 및 처리를 위해 제염이 필수 불가결하다.

(1) 공정흐름

(가) 기능 및 공정 흐름도

고방사능 현장제염은 고방사능 취급 핫셀의 정기/비정기적 개보수 또는 사용후핵연료 처리기술개발 시험/실증의 종료, 또는 다른 목적의 시험/실증을 위한 시험/실증 설비의 제거나 설치를 위해 핫셀에 작업자 투입이나, 일부 규모가 큰 오염 장비/설비의 반출을 위해 수행하게 된다.

사용후핵연료 건식처리 시험실증 장치 등이 설치된 Hot Cell의 개·보수에 필요한 현장제염설비는 기존 IMEF 및 PIEF Hot Cell 내에 설치된다. 이들 Hot Cell 내에는 미세 분말형태로 오염물이 부착되어 있기 때문에 제염 대상물의 재질 및 오염물의 부착 특성에 따라 적합한 제염법을 선정하여 방사능 준위를 기준치 이하로 낮추어야 한다. 이에 따라 Hot cell 내 오염 설비의 확인과 계측, 오염설비에 적합한 제염공정 그리고 제염후의 방사능 계측 및 처리 등의 기능을 갖추어야 한다.

이미 수행한바 있는 고방사능 건식제염기술 수요연구를 통해, 다양한 제염공정 중 CO₂ 분사제염, PFC유체 제염 및 플라즈마 제염공정을 단독 혹은 복합적으로 사용하는 것이 바람직하다는 결론을 얻은 바 있다. 이러한 제염공정 중 Hot cell 내부는 표면에 노출된 비 고착성 오염입자가 많은 부분을 차지하므로 현장제염의 경우 CO₂ 분사제염공정을 기준으로 하였다. 이 공정 흐름도를 Fig. 3.4.6에 수록하였다.

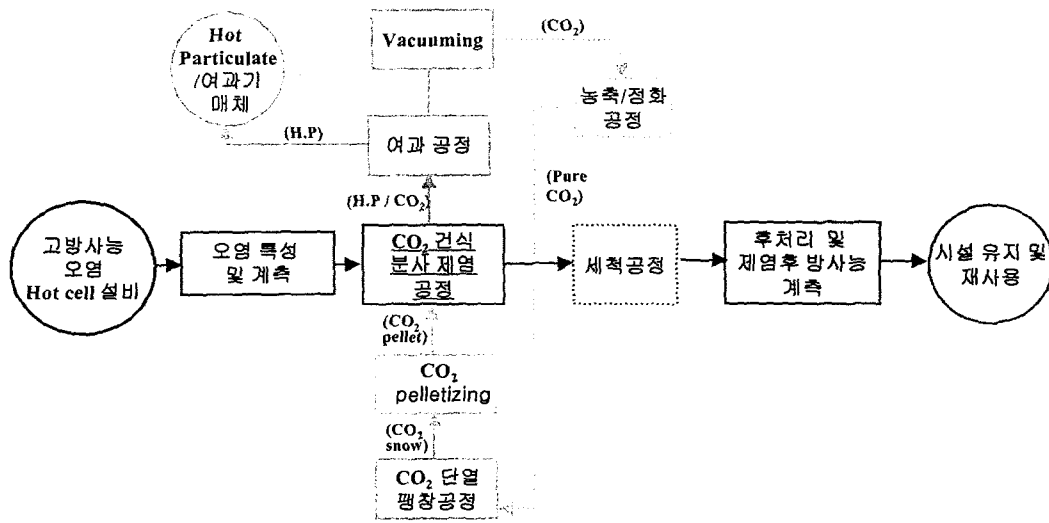


Fig. 3.4.6. Process flowsheet of in-situ decontamination.

(나) 기존 Hot cell과의 연계활용

현장제염은 사용후핵연료건식처리 시험, 실증 장치 등이 설치된 Hot Cell의 개보수에 필요한 Hot Cell 내부 제염으로, 현장제염설비는 기존 IMEF 및 PIEF Hot Cell 개보수를 위해 설치하는 개념으로 하였다. 이 제염설비는 IMEF 및 PIEF 핫셀내에 기 설치된 고정설비와 통합하여 공간활용을 극대화할 수 있고 작업자의 방사선 피폭을 최소화할 수 있도록 기존 설비를 활용하여 가능하면 원격 운전 및 유지 보수개념을 도입하도록 한다. CO₂ pellet 분사제염 설비를 설치할 경우 CO₂ pellet hose와 압축공기 hose을 연결할 수 있는 Hot cell 벽의 penetration이나 제거된 방사성 오염입자를 포집하는 HEPA필터에 연결되는 시설 배기 계통 및 분사 medium 으로 이용할 수 있는 압축공기 유틸리티 등의 기존설비를 효과적으로 이용할 수 있다.

그러나 새로운 Hot cell의 설계 시에는 시설건물의 초기 설계·건설단계에서 오염 억제를 위한 제염설비를 구축하여야 하며, 제염성을 고려한 시설의 건설이 이루어져야 한다.

(2) Hot cell라인 및 주요장치

(가) 장비 Hot cell 반출입

제염보수가 필요한 Hot cell 내의 공정 및 취급장비는 우선 자체 cell에 설치된 유지보수 장비를 이용하여 보수하고 이것이 불가능한 경우 hot cell 상부에 위치한 hatch를 통해 제염·보수 cell로 이송하여 원격으로 보수하거나 제염실에서 제염 후 직접 보수실로 이송하여 접촉 유지보수를 수행할 수 있다. Cell 내부의 오염확산을 방지하고 기존설비의 운전에 영향을 배제하기 위해 cell내부에 제염을 위한 제염 모듈을 단독 설치하는 방안도 고려할 수 있다.

(나) 장치 운전 및 조작

Hot cell현장에 설치되는 대표적인 건식제염장치인 CO₂를 이용한 건식 분사 제염장치는 제조된 CO₂ pellet을 압축공기를 이용하여 Hot cell 내 오염장치나 기기를 향해 분사하는 CO₂ 분사장치와 이 장치의 끝단에 부착된 CO₂ 분사노즐로 이루어진다. 오염입자의 cell내 확산을 억제하기 위해 제거된 오염입자를 흡입·포획할 수 있는 오염입자의 흡입장치가 CO₂ 분사노즐에 장착될 수 있다. 흡입된 오염입자는 HEPA 필터를 거쳐 시설 배기 계통을 통해 처리된다.

(다) 제염 폐기물 관리

Hot cell에서 발생하는 공정폐기물 뿐만 아니라 제염폐기물은 각각 방사선 준위와 특성에 따라 폐기물 cell이나 폐기물 취급구역으로 이송하여 압축 및 고정화 등 적절한 처리공정을 거친다. 고준위 폐기물과 TRU 폐기물 외의 중·저준위 고·액 방사성 폐기물의 처리는 기존 방사성 폐기물 처리시설(RWTF)에서 수행한다.

현장에 설치되는 건식제염장치를 이용할 경우(CO₂ 분사제염장치 등) 제거된 방사성 오염입자는 여과매체에 의해 포집되므로 발생하는 폐기물은 주로 방사성 오염입자가 포함된 여과매체뿐이다. 따라서 이 제염폐기물 역시 방사선 준위의 측정 후 적절한 처리공정을 거쳐 RWTF나 그 외의 적당한 처리시설로 이송된다.

(3) 설비배치

Hot cell현장에 설치되는 CO₂를 이용한 건식분사 제염장치는 CO₂ pellet을 포함한 CO₂ 분사장치와 CO₂ 분사 노즐부로 구성되며 CO₂ 분사 노즐부에는 오염입자의 흡입장치가 부착되어 분사와 동시에 제거된 오염입자를 흡입·포획함으로써 오염입자의 cell내 확산을 억제할 수 있는 구조로 되어 있다.

이 장치 구성품 중 CO₂ 분사장치는 cell 외부 service area나 operating area에 설치되며, CO₂ 분사노즐부 만 cell 내부에 설치되어 제염에 이용된다. cell 구조에 따라 cell 내부에 제염을 위한 제염 모듈을 별도 설치하여 오염확산을 방지할 수 있도록 한다.

(4) 방사선 방어 및 책임계안전

Hot cell 시설은 작업자 및 일반 시민의 방사선 장해 방어와 책임계 안전을 위하여 국내 원자력 법령 및 ICRP-60의 ALARA 원칙에 따라 가능한 낮은 피폭 선량률이 유지되도록 하여야 하며, 이를 위해 방사선 구역 설정 및 환기설비 설치로 인한 오염확산 최소화, 차폐물 설치에 의한 방사선 방호 및 책임계 사고방지 등의 안전대책이 필요하다.

오염확산 방지를 위한 환기설비는 각 구역에 적합한 부압을 유지하여 공기흐름이 청정구역으로부터 오염가능성이 높은 구역으로 향하도록 하고 역 방향으로의 흐름이 없도록 설계되어야 한다. 각 방사선 구역별 부압 및 환기 횟수는 각 구역의 열원과 공기오염도를 기준으로 결정한다. 방사선 방호 및 차폐물의 설치는 ICRP-60의 권고 방사선 피폭선량 제한치를 만족토록 설계되어야 한다. 단일 unit 임계사고 방지를 위해서는 기하학적 인자, 질량, 농도, 중성자 독성물질사용, 혼합 등의 책임계 인자를 안전 제한치 이하로 설계해야 하며, 복수 unit의 경우 중성자 상호간섭을 고려한 임계관리가 이루어져야 한다.

3. 결론

사용후핵연료 건식처리기술개발 과정에서 발생하는 고방사능 오염물의 건식제염을 위한 설비 개념 및 설계 요건을 도출하였으며, 이를 토대로 고방사능 건식제염 공정장치의 개념설계 방향을 정립하였다.

본 설비는 IMEF(DUPIC, SF차세대관리 포함), PIEF 등 국내 Hot Cell에서 발생하는 고방사성 오염물(폐기물 포함)의 재사용 및 폐기물 저준위화 목적의 이송제염설비와 IMEF(DUPIC, SF차세대관리 포함), PIEF 등 국내 Hot Cell의 보수 또는 내부설비 개조를 위한 현장제염 설비로 대별된다. 이러한 제염 설비 중 이송제염설비는 현재 연구소에서 고화체 검사시설로 활용되고 있는 핫셀을 개조하여 설치하는 개념을 채택하였으며, 현장제염 설비는 기존의 IMEF와 PIEF 핫셀의 개·보수를 위한 것으로 각 설비의 목적에 부합되도록 설계 방향을 제시하였다.

본 설비의 개념설계 방향은 향후 시설 개념 최적화 작업을 거쳐 기본설계요건을 확정하고, 기본설계 자료로 활용될 예정이다.

제 5 절 TRIGA 토양제염 단위기술 개발

1. 개요

가. 필요성

방사능에 의한 환경오염은 대 국민 민감 사안으로 원자력산업의 정책 결정에 큰 영향을 미칠 수 있다. 핵 사고로 인해 핵 물질로 오염된 환경을 조속히 복원시킬 수 있는 기술을 자체 확보함으로써 원자력산업의 안전성 향상에 기여한다. 국토가 협소한 국내 실정을 감안할 때 청정 환경을 유지하는 것뿐만 아니라 방사능 오염을 효과적으로 복원하기 위한 기술 확보가 절대적으로 필요하다.

방사능 오염환경 복원 사업은 오염 지역의 면적과 깊이, 오염 이력에 따라 그 규모가 기하 급수적으로 커질 수 있으므로 대비기술로서 확보가 필요하다. 국내 매립지, LPG 가스 저장고, 공장 주변 오염토양 복원에 자체 개발된 기술을 적용함으로써 국내 환경복원 산업 발전에 기여한다. 미

국, 러시아 등에서는 원자력 산업과 핵무기 개발 결과로 국토의 많은 부분이 방사능으로 오염되어 있다. 현재, 러시아는 경제적 문제로 방사능 오염환경을 방치하는 상황이지만 차 후 경제가 회복되어 복원 산업이 추진되면 국내 기술의 적용 여지가 있다. 미국에서는 막대한 예산을 투자하여 오염 환경을 향후 수십년 간 복원하는 사업이 추진 중이다.

국내에는 12개의 원자력발전소가 가동중이며, 6개의 원자력발전소를 새로이 건설하고 있고 동위원소를 생산하기 위한 1개의 시험용 원자로가 가동 중이다. 이러한 원자로의 가동, 해체, 또는 사고 시, 방사능이 누출될 수 있으며, 주변의 토양이 방사능 핵종인 코발트, 스트론튬, 세슘 등으로 오염될 수 있다. 최근 불의의 방사능 누출사고를 대비하기 위해 원자력시설 주변 방사성 핵종으로 오염된 토양을 제염하기 위한 여러 가지 오염 토양 제염 기술이 제시되고 있다.

방사능에 의한 오염이 중금속 혹은 유기물에 의한 일반 토양 오염과 크게 다른 이유는 오염농도가 극 미량이라는 것이다. 오염의 정확한 characterization과 효과적 제염기술의 개발이 필요하다. 오염 특성과 규모에 따라 적용 기술이 다양하므로 필수적 요소기술을 확보하여야 한다.

나. 연구 내용

TRIGA 연구로 해체 사업이 현재 추진 중에 있다. 사업이 완료되는 시점에서 시설 부지를 원래의 상태로 복원할 계획으로 있다. TRIGA 연구로는 원자력에 대한 규제 기준이 아직 확실히 정비되지 않았던 시기부터 30년 간 이상 가동되었던 노후 시설이므로 부지 토양이 오염되었을 가능성을 전혀 배제할 수 없다.

1988년에 발생하였던 TRIGA 부지 오염사건(폐기물처리시설 부근)의 복원 시 단순히 토양을 drum 에 수거한 결과로 토양 폐기물이 과량 발생하였다. 현재 원자력 연구소 내에 보관 중인 오염 토양 폐기물은 13년의 기간이 경과하여 제염의 필요성이 요구되고 있다. KAERI 내 4628 드럼의 토양 폐기물 중 '88년 수거한 TRIGA 토양 폐기물은 4482 드럼으로 추정된다.

1999년도의 연구에서는 TRIGA 토양을 대상으로 한 단위 제염기술을 개발하는 것으로서 Soil washing법 및 제염폐액 정화실험, 동전기적 방법,

Soil flushing에 대한 같은 단위 제염 기술 특성 파악하였다. 그리고, 제염 후 잔류 방사성 핵종 농도를 평가하는 이론 및 모델을 개발하였고 TRIGA 오염토양 폐기물에 대한 단위 제염기술의 적용성을 평가하였다.

2. 연구 결과

가. Soil Washing 단위기술개발

1) TRIGA 주변 토양 물리화학적 특성 분석

중금속으로 오염된 토양을 착화제를 사용하여 중금속을 추출하는 방법은 좀더 효과적인 토양제염 방법 중의 하나로 널리 이용되고 있다. 현재 상업적으로 이용할 수 있는 착화제중 Ethylene diaminetetraacetic acid(EDTA) 가장 효과적으로 보여지지만, EDTA는 비용이 높고, 제염시 토양에 오랫동안 잔류하며 상당한 악영향을 미치므로 중금속 오염토양 제염을 위한 광범위한 사용에 제동을 건다. 그러므로 본 연구에서는 착화제로 EDTA 대신에 토양내에서 생물학적으로 분해 가능한 Citric acid를 사용하였다. 중금속으로 오염된 토양을 착화제를 사용하여 제염할 때, 수 회 이상 세척해야 90%이상의 제염효율을 얻을 수 있기 때문에 많은 양의 착화제가 소요된다. 그러므로 소요되는 제염 용액의 부피를 감소시키기 위해 세척 폐액을 반복해서 재사용하거나 또는 재생시켜 사용하는 방법이 필요하다. 세척폐수를 재생시키는 방법으로는 화학침전법과 이온교환법 등이 있다.

원자력시설 주변 토양내의 주 오염물인 코발트를 제염하기 위해 citric acid를 사용할 때, 다량의 토양폐수가 발생되어 폐수처리에 상당한 비용이 요구될 것이다. 원자력 시설 주변 오염토양에 존재하는 방사성코발트는 대부분 극 저준위이므로 citric acid의 일부만이 착화제로 사용된다. 그러므로 이 citric acid 용액의 제염효율이 충분히 저하될 때까지 몇 번 재사용이 가능한 지를 실험하는 것이 필요하다. 또한, 수 차례 재 사용하여 제염효율이 극히 감소된 citric acid 용액을 화학 침전법을 사용하여 용액내의 코발트를 침전시켜 citric acid를 재생하는 실험이 요구된다. 이때 제염폐수를 여러 번 재생시켜주면, 폐수량을 더욱 감소시킬 수 있다. 이 후, 최종 세척폐수에 존재하는 이온들은 침전시켜 고화, 처리하는

것이 바람직하다고 사료된다.

본 연구에서는 먼저 토양 내의 코발트를 90 % 이상 제염시키기 위해 새로운 citric acid 용액으로 몇 번 반복 세척해야하는 지를 실험하였다. 다음으로 오염토양 세척 시에 발생된 세척 폐수의 부피를 감소시키기 위해 세척 폐수에 대한 재사용 실험을 수행했다. 본 연구를 위해 토양을 TRIGA 주변 부지에서 채취하여 물리화학적 특성을 분석한 결과는 다음과 같다.

가) 토양입도 분석

채취한 토양를 체 분석한 결과는 Table 3.5.1과 같고 TRIGA 주변 토양의 평균 입도는 약 1mm로 분석됐다.

나) 토양성분 분석

원자력시설 주변부지에서 채취한 토양을 X-ray fluorescence 분석법(XRF) 를 통해 분석한 결과 토양의 원소성분은 Table 3.5.2와 같이 68.1%의 SiO₂와 16.7%의 Al₂O₃ 성분을 포함하고 있다.

Table 3.5.1. Distribution of sizes of soil particle.

Particle Size(mm)	Soil Mass(g)
≥ 2.0	173.9
1.0~2.0	100.7
0.5~1.0	91.7
0.25~0.5	73.6
≤0.25	60.0

Table 3.5.2. Component content of soil.

Component	Content(%)
SiO ₂	68.1
Al ₂ O ₃	16.7
K ₂ O	8.27
Fe ₂ O ₃	2.2
P ₂ O ₅	1.63
CaO	1.51

다) 밀도, 공극율, 함수율, pH

110 °C의 oven에서 약 12시간 건조한 상태의 토양을 사용하여 물리적 특성 계수를 측정하였다. 채취한 토양을 건조시킨 후 체로 쳐서 지름 1.00mm (NO.18)이하의 것을 사용하였다. 각각의 계수들은 아래의 식들에 의하여 측정하였으며, 얻어진 값들은 아래의 Table 3.5.3에 정리하였고, 측정방법은 다음과 같다.

건조 토양의 bulk 밀도(g/cm³)

$$= \text{단위부피 내 토양의 질량(g)} / \text{단위부피(cm}^3\text{)}$$

공극율(%)

$$= [\text{단위부피의 토양에서 공극의 부피(cm}^3\text{)} / \text{단위부피의 토양(cm}^3\text{)}] \times 100$$

함수율(%)

$$= [\text{토양내 수분의 질량(g)} / \text{토양의 질량(g)}] \times 100$$

Table 3.5.3. Density, porosity, water content, and pH of soil.

Dry bulk density (g/ cm ³)	1.55
Porosity (%)	36.27
Water Content (%)	12.00
pH	4.30

2) 토양 평형흡착계수 측정

평형계수의 측정을 위하여 상이한 농도의 Co용액을 제조하고, 이를 사용하여 단위 질량의 토양에 대한 흡착평형계수를 측정하였다. 실험 절차로는, 먼저 CoCl₂를 사용하여 각각 농도가 다른 Co수용액을 제조하고, 10g의 토양에 대하여 이들 용액을 200 ml 씩 첨가하고 약 24시간 경과 후, 평형상태에서 토양에 흡착된 Co 양을 AA(Atomic Absorption)분석을 통하여 얻도록 하였다. 측정 결과, Co수용액에 대한 토양의 흡착평형계수는 0.48 l/mg로 측정됐다. 용액 농도에 대한 단위 질량의 토양에 흡착된 Co의 질량은 Fig. 3.5.1과 같으며, 기울기는 평형계수가 된다.

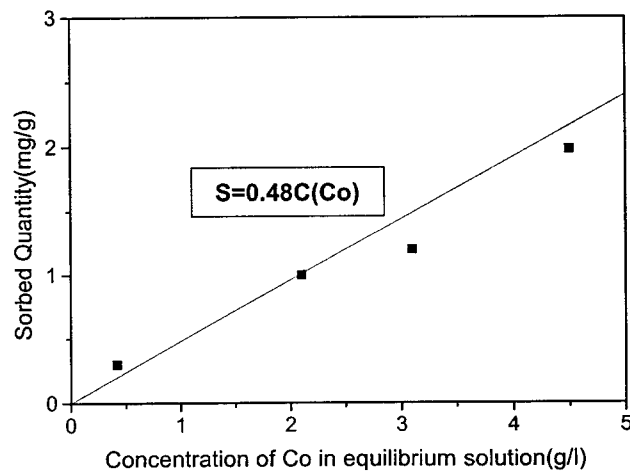


Fig. 3.5.1 Equilibrium sorption coefficients of Co²⁺ with TRIGA soil.

3) pH 변화에 따른 토양으로부터 Sr^{2+} 이온 제거량 변화

오염된 토양을 제염하고자 할 때, 착화제로 사용된 citric acid 는 pH 변화에 따라 오염물과의 반응하여 흡착 및 탈착에 영향을 끼치게 된다. Sr^{2+} 이온의 제거에 미치는 pH 영향을 파악하기 위하여 citric acid 수용액을 pH 2 ~ 8 의 범위에서 TRIGA 토양에 대한 탈착실험을 수행하였다. pH 1 ~ 5 영역에서는 pH 변화에 따른 탈착량의 변화가 미세하지만, pH 6 이상에서 급격히 탈착량이 감소한다. 이는 수용액 내에 존재하는 citric acid가 pH의 변화에 따라 다양한 해리종을 형성하며 pH 6 이상에서 Sr^{2+} 이온과 반응하여 $\text{Sr}(\text{OH})_2$ 의 형태로 침전물을 형성하기 때문으로 판단된다.

Fig. 3.5.2로 부터 pH 1에서 5까지는 pH의 변화에 비해 탈착량의 변화가 미세하고, 0.01M citric acid와 오염된 토양의 혼합물 자체의 pH 가 4 ~ 5 부근이므로 적정 pH를 4.5로 정하였다.

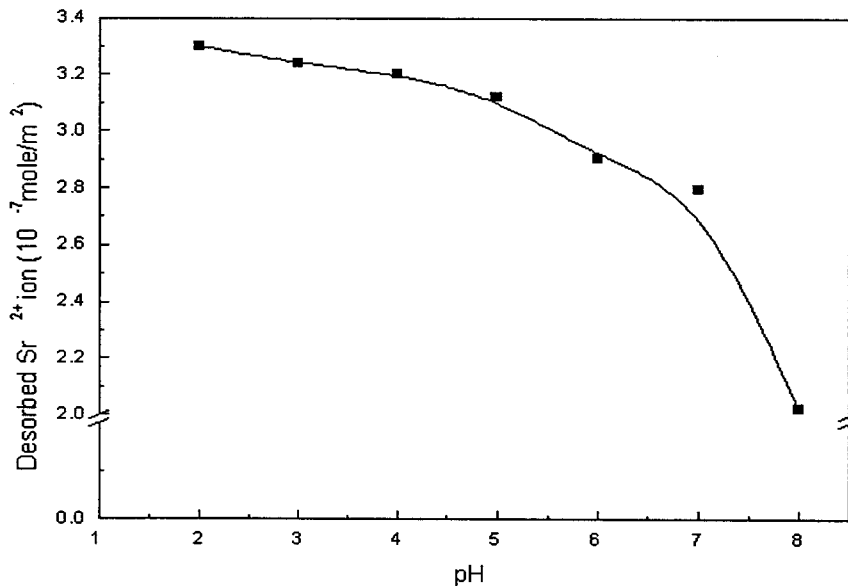


Fig. 3.5.2. Desorption of Sr^{2+} ion according to the 0.01 M citric acid at various solution pH.

4) 유기물의 영향

Fig. 3.5.2 는 25°C 에서 24 시간 동안 시간경과에 따른 Sr^{2+} 이온의 토양에 대한 흡착량 변화를 보여준다.

TRIGA 토양을 임의로 Sr^{2+} 이온으로 오염시켰다. Fig. 3.5.3. 에서 A 는 자연상태의 토양에 대한 시간별 흡착 그래프이고 B는 H_2O_2 와 sodium acetate를 이용하여 유기물과 토양 내 carbonate를 제거한 후 Sr^{2+} 이온을 흡착시킨 그래프이다. 두 토양에 대한 흡착량 변화는 초기 30분 동안 토양표면의 흡착면에 빠르게 흡착되는 부분과 그 후 시간이 경과할수록 평형으로 진행되어지는 두 부분으로 구분할 수 있다. 토양 A 의 흡착량은 360 분 경과 후 1.0×10^{-5} mole/g 이었고, 토양 B 의 흡착량은 9.01×10^{-6} mole/g 이었으며, 이 두 토양의 24시간 변화도 같은 값을 보였다. 토양 A 가 토양 B 보다 흡착량이 증가한 것은 토양 중에 존재하는 유기물의 영향으로 판단된다. Sr^{2+} 이온의 TRIGA 토양에 대한 흡착반응은 유기물이 존재할 때와 존재하지 않을 때 동일한 경향을 나타내며, 유기물에 의한 흡착량의 차이만 나타났다. 따라서 모델링을 통해 토양 내 오염물의 거동을 분석할 때에도 유기물의 유무는 흡착량의 차이만을 보이며, 전체적인 경향에는 영향이 없을 것으로 판단된다.

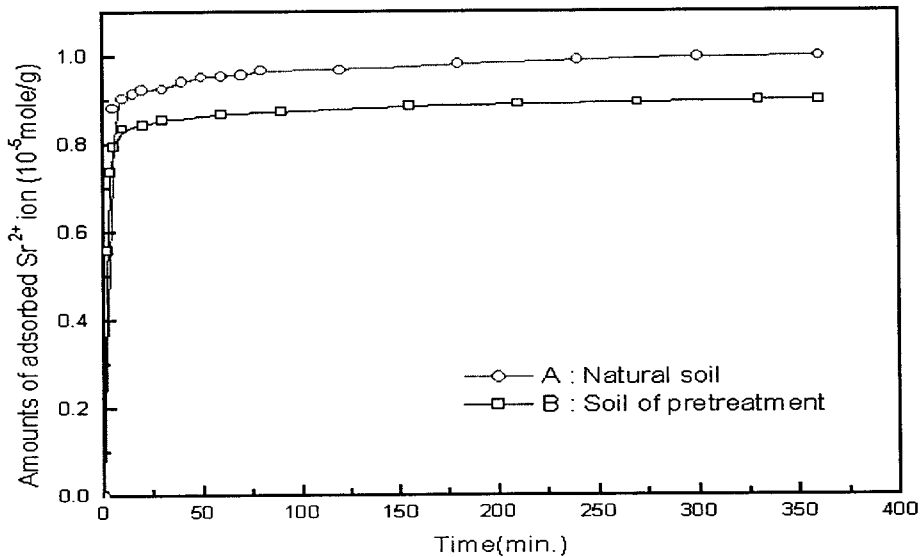


Fig. 3.5.3. Amount of sorbed Sr^{2+} ion as a function of reaction time.

5) Citric acid 의 농도변화에 따른 제거율 변화

전 처리한 TRIGA 토양에 Sr^{2+} 이온을 임의로 오염시켜 0.005~0.1M 로 Citric acid 의 농도를 변화시켰다. Fig. 3.5.4 는 24 시간 반응후의 Sr^{2+} 이온 제거량의 변화를 나타낸 것이다. Table 3.5.4. 에 각 농도에서의 제거율 변화를 수록하였다.

Table 3.5.4. Desorption ratio of Sr^{2+} ion at various concentration of citric acid.

Citrate Srn.	0.005 M	0.01M	0.05M	0.1M
Desorption ratio	12.6 %	22.4%	56.4%	73.2%

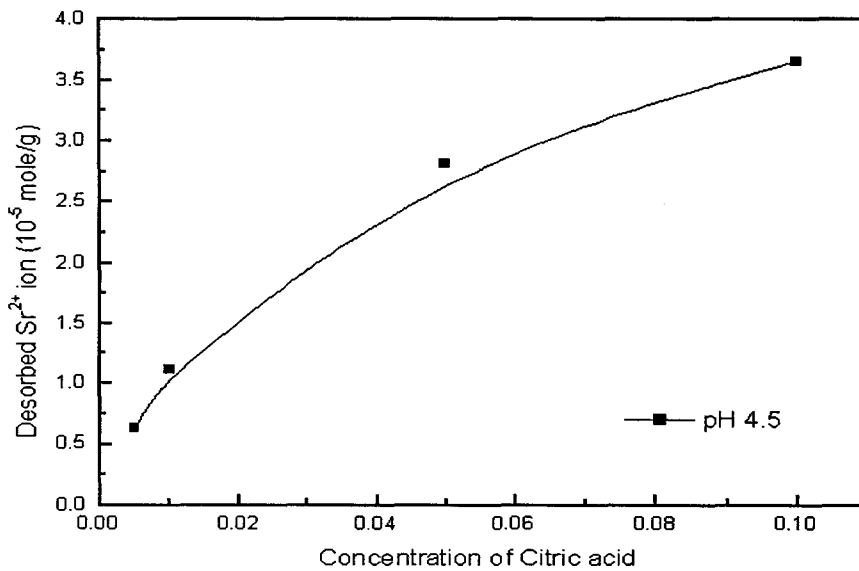


Fig. 3.5.4. Desorption of Sr^{2+} ion according to the concentration of citric acid.

실험결과에서 농도가 증가할수록 제거율의 변화가 크게 나타났다. 그러나 Citric acid를 고농도로 하였을 경우 과잉의 Citric acid가 석출되어 토양과 분리하여야 하는 문제가 발생하기 때문에 제거 효율과 과잉 Citric acid의 석출을 고려하여 0.01M과 0.05M의 Citric acid를 최적 농도로 나타났다.

6) 토양 반복세척 실험

TRIGA 주변 토양을 채취하여 Cobalt(II)-chloride (CoCl_2)를 증류수에 녹여 제조한 0.01M의 코발트용액으로 임의로 오염시키고, 한 달 동안 건조시킨 코발트 오염토양을 10g 채취하여, 비이커에 넣은 후 이 비이커에 50ml의 0.01 M Citric acid 용액을 넣어 토양과 교반기를 사용하여 7시간 동안 세척시켰다. 세척폐수의 코발트 농도를 측정하기 위해 2ml를 채취하여 20ml 튜브에 보관했다. 다음으로 비이커 내에 토양만을 남기고 세척폐수를 모두 제거한 후 다시 새로운 0.01 M Citric acid 용액을 비이커에 다시 넣어 남겨진 토양을 7시간 동안 세척시키고 세척폐수의 코발트농도를 측정하기 위해 2ml를 채취했다. 이 과정을 연속적으로 반복하며 채취한 토양을 새로운 Citric acid 용액으로 5차례 세척하며 세척폐수를 샘플링하여 농도를 분석했다.

토양 반복세척 실험 결과는 다음과 같다. 비이커에 넣기 전의 신선한 0.01M 코발트용액과 비이커 내에서 토양과 7시간 교반하여 평형흡착시킨 후의 용액의 일부를 각각 샘플링하여 코발트농도를 원자흡광광도법으로 측정하여 분석한 결과에 의하면, 용기 내에 50ml의 0.01M의 코발트용액과 10g의 TRIGA 토양을 넣었을 때, 용기내의 총 코발트 질량은 29.47 mg이고, 토양내에 흡착된 총 코발트량은 2.63 mg이다. 실험결과 Fig. 3.5.5와 같이 1차 세척시 43% 2차 세척시 68% 3차 세척시 81% 4차 세척시 87% 5차 세척시 91%가 세척되었다.

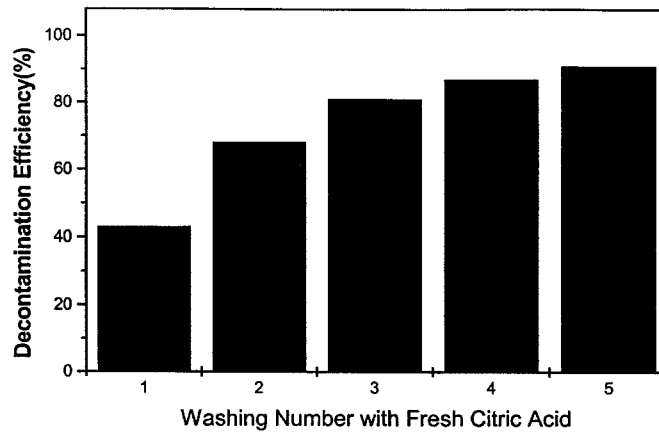


Fig. 3.5.5. Decontamination efficiency versus washing number with fresh citric acid solution.

7) 세척폐수 재사용 실험

채취해 온 토양을 0.01 M의 코발트용액과 충분히 흡착시킨 후 1개월 이상 건조시켜 만든 오염토양을 사용하여 회분식 실험을 수행했다. 먼저 0.01 M의 Citric acid 용액을 만들어 이 용액을 사용하여 코발트 오염토양에 대한 Soil Washing 실험을 수행했다. 1차 Soil Washing 실험은 100 ml 폴리프로필렌 용기에 10g의 코발트 오염토양과 50ml의 0.01M Citric acid 용액을 넣고, 이 용기를 교반기에 넣고 코발트 Soil Washing 실험을 수행했다. 7 시간 후 교반기로부터 용기를 꺼내서 2시간 동안 용기내의 토양을 가라앉힌 후 0.45- μ m Membrane filter paper를 사용하여 여과시켰다. 이 1차 세척수 내의 코발트농도를 원자흡광광도법으로 측정하기 위해 약 2 ml를 실험관에 넣어 보관했다. 2차 Soil Washing 실험을 수행하기 위해 1차 세척수 30 ml를 100 ml 폴리프로필렌 용기에 넣고, 앞에서와 같이 세척수와 토양이 같은 비율이 되도록 코발트오염토양 6g을 용기에 넣었다.

2차 Soil Washing 실험을 수행하기 위해 교반기를 사용하여 7시간 동안 코발트 추출실험을 수행했다. 교반기로부터 용기를 꺼내서 2시간 동안

용기내의 토양을 가라앉힌 후 0.45 μ m membrane filter paper를 사용하여 2차 세척수를 여과시켰다. 이 용액내의 코발트농도를 원자흡광광도법으로 측정하기 위해 약 2ml를 시험관에 넣어 보관했다.

3차 Soil Washing 실험을 수행하기 위해 2차 세척수의 15 ml와 코발트 오염토양 3g을 100 ml 폴리프로필렌 용기에 넣었다. 2차 세척수 사용하여 3차 Soil Washing 실험을 수행하기 위해 교반기를 사용하여 7시간 동안 코발트 추출실험을 수행했다. 교반기로부터 용기를 꺼내서 2시간 동안 용기내의 토양을 가라앉힌 후 3차 세척수를 여과시켰다. 이 용액 내의 코발트농도를 원자흡광광도법으로 측정하기 위해 약 2ml를 시험관에 넣어 보관했다. 4차 Soil Washing 실험을 수행하기 위해 이 용액의 12 ml과 코발트오염토양 2.4g을 100 ml 용기에 넣었다. 3차 세척수 사용하여 4차 Soil Washing 실험을 수행하기 위해 교반기를 사용하여 7시간 동안 코발트 추출실험을 수행했다. 교반기로부터 용기를 꺼내서 2시간 동안 용기내의 토양을 가라앉힌 후 4차 세척수를 여과시켰다. 이 용액내의 코발트농도를 원자 흡광 광도법으로 측정하기 위해 약 2ml를 시험관에 넣어 보관했다. 5차 Soil Washing 실험을 수행하기 위해 이 용액의 10 ml와 코발트오염토양 2g을 100 ml 폴리프로필렌 용기에 넣었다. 4차 세척수 사용하여 5차 Soil Washing 실험을 수행하기 위해 교반기를 사용하여 7시간 동안 코발트 추출실험을 수행했다. 교반기로부터 용기를 꺼내서 2시간 동안 용기내의 토양을 가라앉힌 후 Membrane filter paper를 사용하여 5차 세척수를 여과시켰다. 이 용액내의 코발트농도를 약 2ml를 시험관에 넣어 보관했고 시험관에 보관된 1차로부터 5차까지의 세척수를 원자흡광광도법을 이용하여 농도를 측정했다.

세척폐수 재 사용 실험결과는 다음과 같다. 교반후 용액을 2ml 채취하여 원자흡광 광도법을 사용하여 용액내의 코발트농도를 분석했다. 재사용 실험 결과는 Fig. 3.5.6과 같다. 즉, 1차 Soil Washing 실험 후 용액내의 코발트제염효율을 100%로 가정했다. 2차 Soil Washing 실험 후 용액내의 코발트농도는 60%의 제염효율을 나타내었다. 3차 Soil Washing 실험 후 용액내의 코발트농도는 25%의 제염효율을 나타내었다. 4차 Soil Washing 실험 후 용액내의 코발트농도는 14%의 제염효율을 나타내었다. 5

차 Soil Washing 실험 후 용액내의 코발트농도는 3%의 제염효율을 나타내었다. 그러므로 0.01 M Citric acid 용액으로 코발트 오염 토양 세척 시 발생된 세척폐수를 1회 이상 재 사용하는 것은 비 효율적임을 알 수 있다.

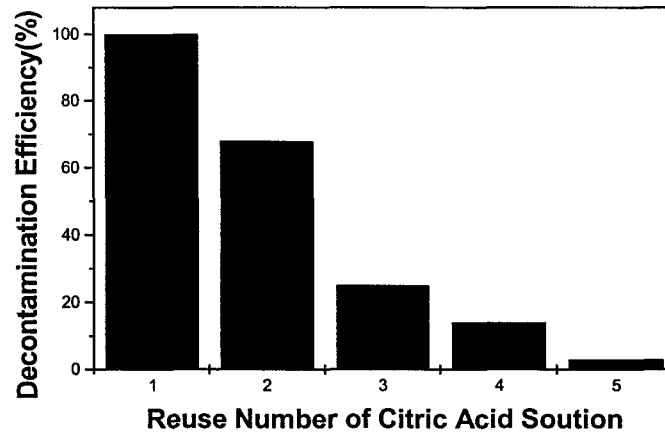


Fig. 3.5.6. Decontamination efficiency versus reuse number of C.A. solution.

나. Soil Flushing 단위기술개발

1) 이론 정립

수리전도도가 큰 지역의 오염토양에 대해서는 soil flushing(혹은 solvent flushing) 방법을 이용하여 현장이나 지상에서 제염할 수 있으며, 또한 토양굴착 비용이 매우 비쌀 때, 오염지역이 매우 넓을 때, 그리고 오염토양 위에 영구준속 건물 등이 위치할 때 soil flushing 방법을 사용하여 현장 제염한다. [3.5.1]

펌프를 사용하여 오염토양을 Soil flushing할 때 오염물질이 좀더 빠르게 이동하기 때문에 용액내의 오염물질이 토양과 평형흡착을 이루기 전 즉 비 평형상태에서 오염물질이 이동하게 되므로 기존의 평형흡착모델로는 정확히 오염물질 농도분포를 계산할 수 없다. Brusseau과 Rao 등은 소

수성 유기화합물의 토양에서의 비 평형 흡착에 대해 연구하였고 비 평형 흡착 모델을 사용하였다[3.5.2]. 이들은 소수성 유기화합물이 토양 내에서 빠르게 이동할 때 비 평형흡착이 발생하며, 비 평형 흡착의 원인은 내부집합물질확산(intraaggregate matter diffusion)과 유기물질 내 확산(intraorganic matter diffusion)이라고 주장했다[3.5.3-4]. 본 보고서에서는 soil flushing 방법을 사용하여, 코발트로 오염된 토양을 solvent로 제염했을 때, 컬럼으로부터 유출수의 코발트 농도를 시간별로 측정하여 제염특성을 분석하고, 또한, 비 평형상태에서 이동하는 오염물질의 농도 분포를 해석할 수 있는 “일차원 비 평형흡착 용질이동” 코드를 개발하고, 이 코드를 이용하여 토양제염 후의 시간별 유출수내의 코발트농도를 모델링했다. 본 연구에서 사용한 토양은 원자력시설 주변에서 채취하였고, 원자력시설 가동 및 해체 기간 중 또는 다양한 종류의 방사능 누출사고에 의해 방사성 핵종으로 오염된 토양을 제염하기 위한 방안을 제시하기 위해 본 토양을 사용하였다.

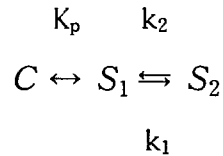
2) 모델링

토양제염실험을 모델링하는 목적은 실제 크기의 제염장치를 설계할 때, 개발된 코드와 모델링 방법을 이용하여 제염 후 토양내의 잔류 오염물질 농도를 예측 및 계산할 수 있으므로, 실제 개발 장치의 규모, 용량, 크기를 결정하고, 개발된 토양제염 장치의 효율을 최적화하기 위함이다.

가) 일차원 비평형흡착 용질 이동 코드 개발

펌프를 이용하면 지하수 및 오염물질의 이동속도를 증가시키므로 토양제염시간을 단축시킬 수 있다. 그러나 오염물질의 이동시간이 빨라지므로 오염토양에서 방출된 오염물질은 주변의 solvent와 평형을 이루기 전에 이동하게 되어 토양 겉 부분에 흡착된 오염물질만을 제염하고, 토양내부의 오염물질은 서서히 제염되므로 초기의 제염농도는 작고, 나중에는 제염농도가 높아지는 경향을 나타낸다. 그러므로, Solvent 내의 오염물질과 토양내의 오염물질이 완전한 평형상태를 이룬 후 오염물질이 Solvent와 함께 이동한다고 가정하여 만든 종래의 평형모델로는 위와 같

이 비 평형상태로 이동하는 토양내의 오염물질의 농도분포를 해석할 수 없기 때문에 비 평형모델의 개발이 필요하다. 물이나 다른 용매로 채워진 오염토양 내에서 오염물질 이동하는 경우의 반응체계는 다음과 같다.



여기서, C 는 액체상태 내의 오염물질 농도이며(M/L^3), S_1 은 Instantaneous 영역의 오염물질농도(M/M)이다. S_2 는 rate-limiting 영역의 오염물질농도이다. K_p 는 평형흡착상수이다. k_1 과 k_2 는 각각 정반응과 역반응의 1차 속도상수($1/T$)이다. 비평형 흡착을 모델링하기 위하여 1차원 비평형모델을 사용할 때, 흡착은 두가지 영역에서 발생한다.

$$S_1 = F K_p C$$

$$dS_2/dt = k_1 S_1 - k_2 S_2$$

여기서, F는 즉시흡착비율이고, t는 시간이다. 평형상태라고 가정하면, 위 식은 아래와 같이 된다.

$$k_1 S_1 = k_2 S_2, \quad S_2 = F K_p C$$

여기서, 반응계수의 비는 다음과 같다.

$$k_1/k_2 = (1-F)/F$$

비평형 흡착반응하는 오염물질의 토양내에서의 농도분포를 해석하기 위한 1차원 비평형흡착 용질 이동 모델의 지배방정식은 아래와 같이 유도된다.

$$\begin{aligned} \theta \frac{\partial C}{\partial t} + F \frac{\rho}{\theta} \frac{\partial S_1}{\partial t} + \frac{\rho}{\theta} \frac{\partial S_2}{\partial t} &= D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - v \frac{\partial C}{\partial x} - \lambda \left(C + \frac{\rho}{\theta} S_2 \right) \\ S_1 &= K_p C \\ \frac{\partial S_2}{\partial t} &= k_2 \left((1-F) K_p C - S_2 \right) \end{aligned}$$

위의 식을 대입하여 정리하면 다음과 같은 식이 유도된다.

$$\begin{aligned} \frac{\partial R\theta C}{\partial t} &= \theta D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - v \frac{\partial C}{\partial x} - \theta VC + W \\ R &= 1 + \frac{\rho}{\theta} K_p F \\ V &= \frac{\rho}{\theta} K_p (1-F) k_2 + \lambda \\ W &= \rho (k_2 - \lambda) S_2 \end{aligned}$$

F : fraction of instantaneous sorption domains

R : retardation factor

S₂ : sorbed concentration in rate-limited domain(M/M)

k₂ : reverse first-order sorption rate coefficient(T⁻¹)

C : concentration in solution(M/L³)

t : time(T)

v : pore water velocity(L/T)

D : hydrodynamic dispersion coefficient(L²/T)

λ : radioactive decay constant(T⁻¹)

x : distance in column(L)

K_p : equilibrium sorption coefficient(L³/M)

ρ : dry bulk density

θ : volumetric water content

위의 지배방정식에 대한 일차원 비 평형흡착 용질 이동 코드는 FORTRAN 77 언어로 작성하였고, Linear Basis Function을 이용한 Galerkin 유한요소법을 사용했으며, 시간미분을 위해 Implicit Difference Scheme을 사용했고, Matrix를 계산하기 위해 Thomas Algorithm을 사용했다.

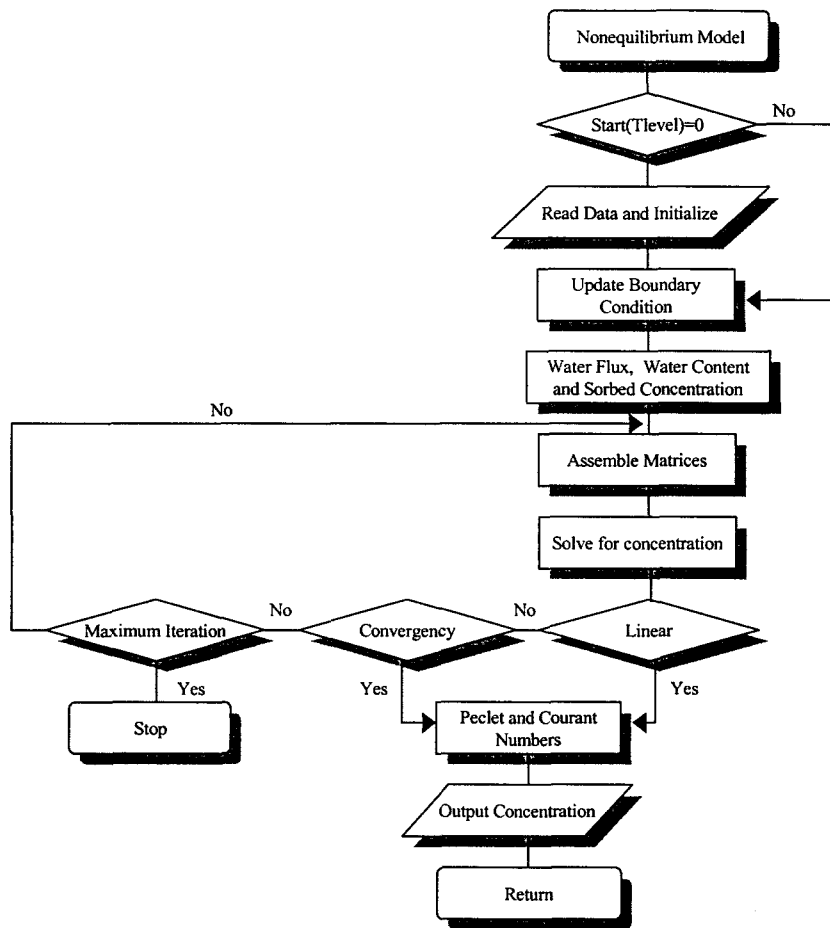


Fig. 3.5.7. Flow chart of STNES model.

나) 모델 입력파라미터 측정

(1) 토양성분 분석

원자력시설 주변 부지에서 채취한 토양을 XRF(X-ray fluorescence)를 통해 분석한 결과 토양의 원소성분은 68.1%의 SiO₂와 16.7%의 Al₂O₃ 를포함하고 있다.

(2) 수리전도도와 공극속도

토양제염장치를 사용하여 1 기압하에서 1시간 30분 동안 유출된 용액의 부피를 측정하여 수리전도도와 공극속도를 구하였다. 2.00mm 체(NO.10)를 통과한 토양의 수리전도도는 8.46×10^{-4} cm/min이고, 공극속도는 0.133 cm/min 이다. 1.18mm 체(NO.16)를 통과한 토양의 수리전도도는 2.31×10^{-3} cm/min이고, 공극속도는 0.327 cm/min 이었다.

(3) 수리분산계수

비 반응물질인 Uranyl(U_2O)용액을 앞에서 언급한 장치를 이용하여 컬럼시험을 수행하고 이결과를 아래와 같은 Ogata(1970)의 해석해 [3.5.5]를 사용하여, 일차원 수리분산계수를 Mathematica 프로그램을 사용하여 구한 결과 $1.5 \text{ m}^2/\text{min}$ 이다.

(4) 평형흡착계수

평형계수의 측정을 위하여 상이한 농도의 Co용액을 제조하고, 이를 사용하여 단위 질량의 토양에 대한 흡착평형계수를 측정하였다. 실험 절차로는, 먼저 $CoCl_2$ 를 사용하여 각각 농도가 다른 Co수용액을 제조하고, 10g의 토양에 대하여 이들 용액을 200ml 씩 첨가하고 약 24시간 경과 후, 평형상태에서 토양에 흡착된 Co의 양을 AA(Atomic Absorption) 분석을 통하여 얻도록 하였다. 측정 결과, Co수용액에 대한 토양의 흡착 평형계수는 0.30 l/mg로 측정됐다. 용액 농도에 대한 단위 질량의 토양에 흡착된 Co의 질량은 Fig. 3.5.8과 같으며, 기울기가 평형계수가 된다.

(5) 즉시흡착비율(instantaneous sorption ratio)

시간에 따른 Co의 흡착비율은 fig. 3.5.9와 같다. 오염물질이 칼럼을 통과하는 시간은 130~150분으로 평균이동시간은 약 70분이다. 70분 경과 후 Co 흡착비율은 약 0.5이므로 즉시 흡착비율(F)을 0.5로 정했다.

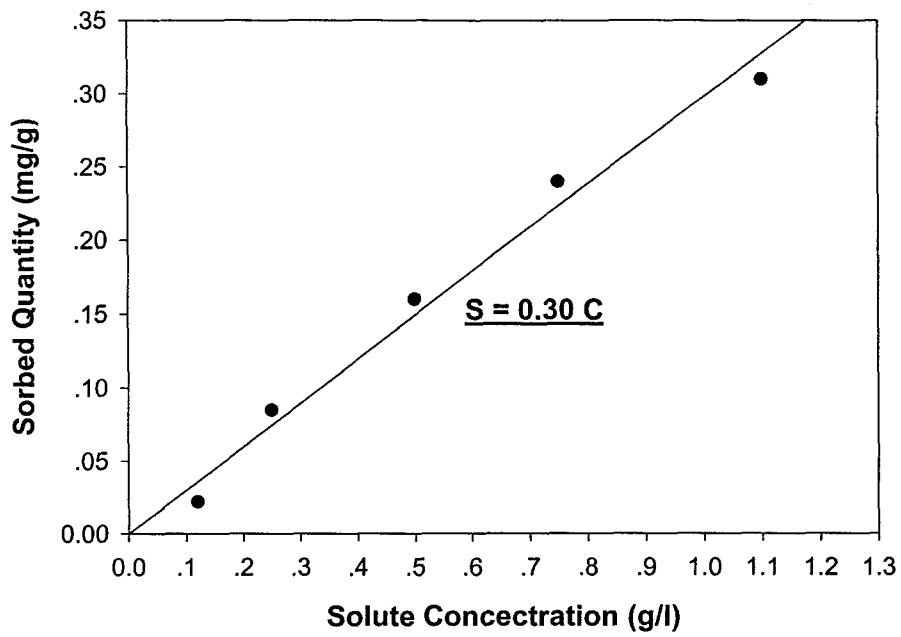


Fig. 3.5.8. Equilibrium sorption coefficient of Co solution with the soil.

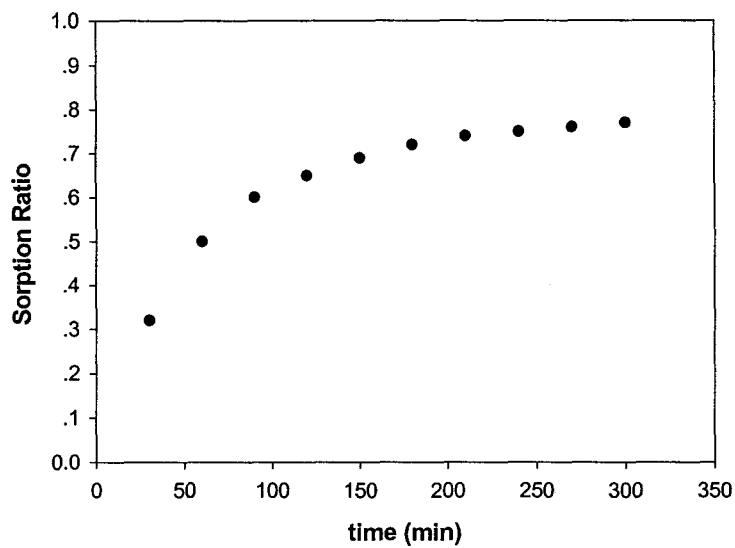


Fig. 3.5.9. Co Sorption ratio in the soil versus time.

3) 토양제염장치 개발 및 제염실험

가) 토양제염장치 제작

코발트로 오염된 토양을 soil flushing 방법으로 제염하기 위해 Fig. 3.5.10과 같이 실험실 크기의 토양 제염장치를 제작했다. 필요량의 Solvent를 저장용기에 넣고 압력펌프를 통과시켜 높은 압력으로 가압시킨다. 압력 게이지는 토양 컬럼에 가해지는 solvent의 압력을 측정한다. 펌프로 가압된 solvent는 토양 컬럼을 좀더 빠르게 통과하며 토양내의 코발트를 녹여낸다. 토양 컬럼은 직경 6cm 길이 18cm이며, 미세 토양 입자가 빠져나가는 것을 방지하기 위하여, 컬럼 위쪽과 아래쪽에 유리섬유로 제조된 필터를 설치했다. 주입된 solvent는 컬럼토양 내의 코발트를 제염한 후 effluent 저장용기에 수집된다. 이 effluent는 Atomic Absorption Spectroscopy에 의해 코발트농도가 분석된다.

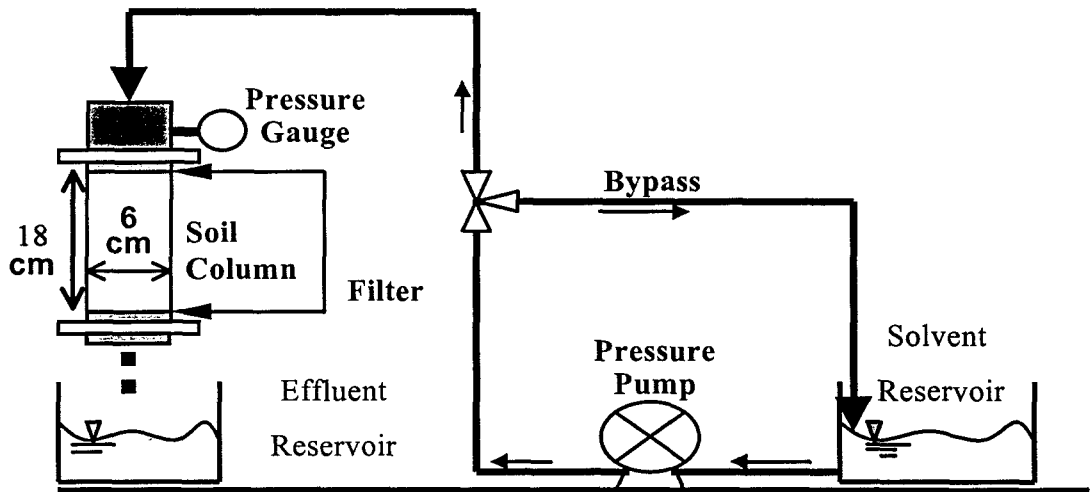


Fig. 3.5.10. Apparatus for soil flushing.

나) 물을 사용한 토양제염 실험 방법

칼럼 내의 토양을 Co로 오염시키기 위하여 0.01 M Co 수용액을 3L 제조하여, Solvent 저장용기에 넣고 펌프를 이용하여 가압시켜 Co 수용액을 컬럼 내에 주입하여 흡착시킨다. 1 공극부피(Pore Volume)를 주입시키기 위해 134분이 지체되므로 약 12 시간 동안 주입 흡착시킨 후, 12시간동안 Co 수용액 주입을 정지하여 Co 수용액이 토양에 충분히 흡착되게 한다. 다음으로 다시 134분 이상 Co 수용액을 주입시킨다. Solvent로 물을 사용한 경우에는 위와 같이 펌프로 물을 가압시켜 컬럼에 주입한다. 주입된 물은 칼럼토양 내의 코발트를 제염한 후 effluent 저장용기에 수집된다. 이 effluent는 용기에 받아 원자 흡수 분광법으로 Co 이온의 농도를 분석한다.

다) Citric Acid를 사용한 토양제염 실험 방법

칼럼 내의 토양을 코발트로 오염시키기 위해 0.01M Co 수용액을 3L 제조하여, Solvent저장용기에 넣고 펌프를 이용하여 가압시켜 Sr 수용액을 컬럼 내에 주입하여 흡착시킨다. 1 공극 부피를 주입시키기 위해 약 134분이 지체되므로 약 12 시간 동안 주입 흡착시킨 후, 12시간동안 Co 수용액 주입을 정지하여 Co 수용액이 토양에 충분히 흡착되도록 한다. 다음으로 다시 134분 이상 Co 수용액을 주입시킨다. Solvent로 citric acid용액을 사용했을 때, 위와 같이 펌프로 citric acid용액을 가압시켜 컬럼에 주입한다. 주입된 citric acid용액은 컬럼 토양 내의 코발트를 제염한 후 effluent 저장용기에 수집된다. 이 effluent은 용기에 받아 원자 흡수 분광법으로 Co 이온의 농도를 분석한다.

4) 실험 결과 및 고찰

가) 물을 사용한 토양제염 실험 결과

물을 solvent로 하여 수리전도도가 $2.31 \times 10^{-3} \text{cm/min}$ 인 토양을 제염한 결과 Fig. 3.5.11과 같이 pore volume 이 5일 때 초기농도의 1/20로 감소되는 것으로 나타났다.

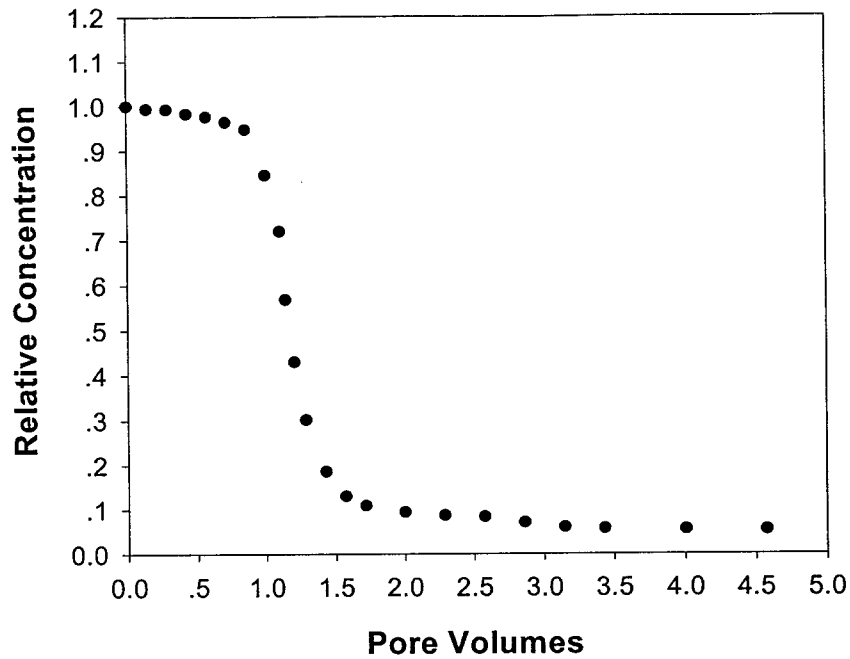


Fig. 3.5.11. Experimental results remediating the soil of high hydraulic conductivity by water.

다음으로, 물을 solvent로 사용하여, 수리전도도가 $8.46 \times 10^{-4} \text{cm/min}$ 인 토양을 제염한 결과 Fig. 3.5.12와 같이 공극부피(pore volume)이 5일 때 초기 농도의 1/10로 감소하였다. 그러므로, 토양의 수리전도도가 클수록 물에 의한 토양 제염효과가 크다는 것을 알 수 있다. 또한, 새로 개발한 비 평형흡착모델을 사용하여, 토양을 물로 제염시킨 후의 effluent의 Co 농도를 계산하여, 평형 흡착모델로 계산한 값과 비교하였다. 비 평형흡착 모델과 평형흡착모델의 입력파라미터는 앞에서 기술한 공극 속도, 공극 유효, 밀도, 수리 분산계수, 평형 흡착계수, 컬럼 내 양 용액의 Co농도 등이다. 그러나 비평형흡착모델은 이외에도 즉시흡착비율(F), 역반응속도계수(k_2) 등이 필요하다. k_2 의 범위는 Brusseau와 Rao의 실험자료를 참조했다[3.5.6]. 이때 Fig. 3.5.12와 같이 비평형흡착모델 계산값이 평형흡착 모델 계산값보다 좀더 실험값에 일치했다. 또한 물을 사용하여 20 공극부

피 만큼 오염토양 컬럼에 주입시 컬럼 내의 총 코발트양의 약 43%의 제거율을 보였다.

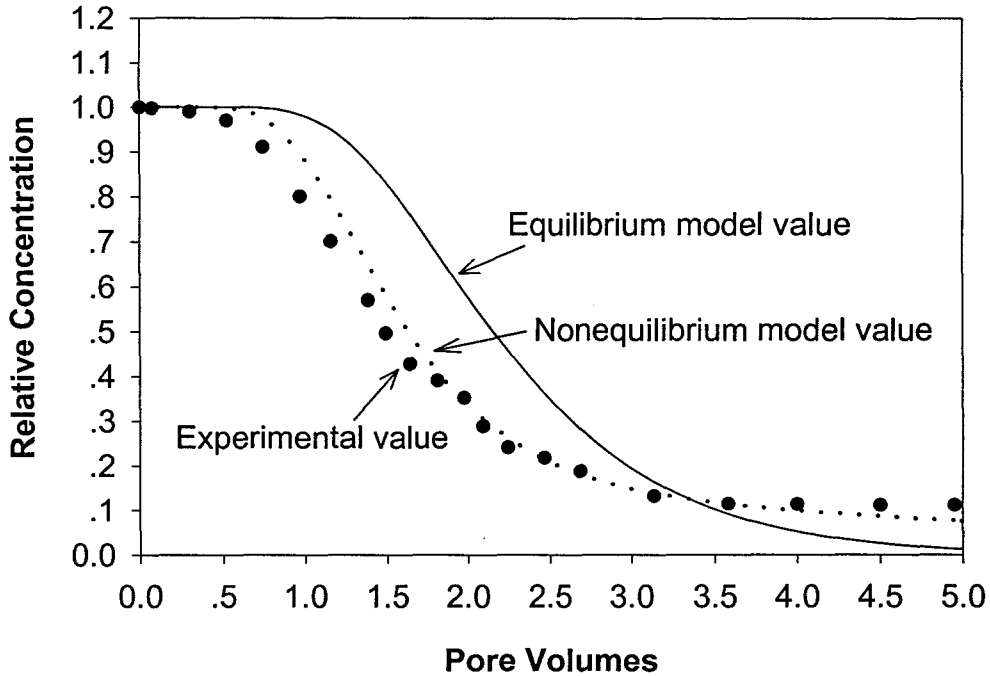


Fig. 3.5.12. Experimental and model prediction results remediating the soil of low hydraulic conductivity by water.

나) Citric acid을 사용한 토양제염 실험결과

Citric acid을 사용하여 수리전도도가 $8.46 \times 10^{-4} \text{cm/min}$ 인 토양을 제염한 결과 citric acid에 의한 초기의 토양제염효과는 물 보다 높아, 공극 부피 1~10 에서 토양 내의 Co를 많이 제거하므로 제염 후 effluent 농도는 높게 나타났다(Fig. 3.5.13). 그리고, citric acid를 코발트 오염 토양 컬럼에 20 공극 부피만큼 주입했을 때 컬럼 내의 총 코발트양의 약 96%의 제거율을 보였다.

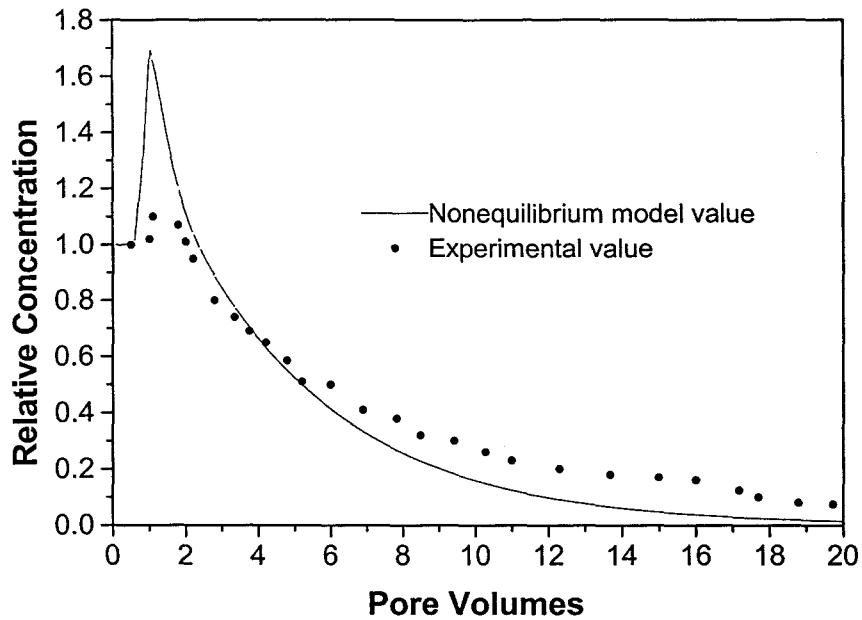


Fig. 3.5.13. Experimental results remediating the soil of low hydraulic conductivity by Citric Acid solution.

다) 토양 컬럼 내의 코발트 잔류농도 분석

Fig. 3.5.14는 공극 부피가 20일 때 토양 컬럼의 거리에 따른 공극 내 Co^{+2} 의 잔류농도를 나타낸 것이며 Fig. 3.5.15는 공극 부피가 20일 때 토양 컬럼의 거리 별 토양에 흡착되어 있는 Co^{+2} 의 잔류농도를 나타낸 것이다. 물과 citric acid로 각각 제염했을 때 공극 내에 남아있는 Co^{+2} 의 농도는 차이가 없으나, solvent로써 물을 사용했을 경우, 토양 내에 흡착된 초기 Co^{+2} 농도의 약 65%가 잔류되어 있으며 citric acid로 제염했을 경우는 약 4 % 만이 남아있었다(Fig. 3.5.15). 그러므로 물을 사용하여 제염했을 경우, 공극 부피가 20일 때 토양 내 총 Co^{+2} 량의 43 %의 제염효과를 보였다. 반면에 citric acid를 사용하여 제염하였을 경우, 공극 부피가 20일 때 토양 내 총 Co^{+2} 량의 96 %의 제염효과를 보였다.

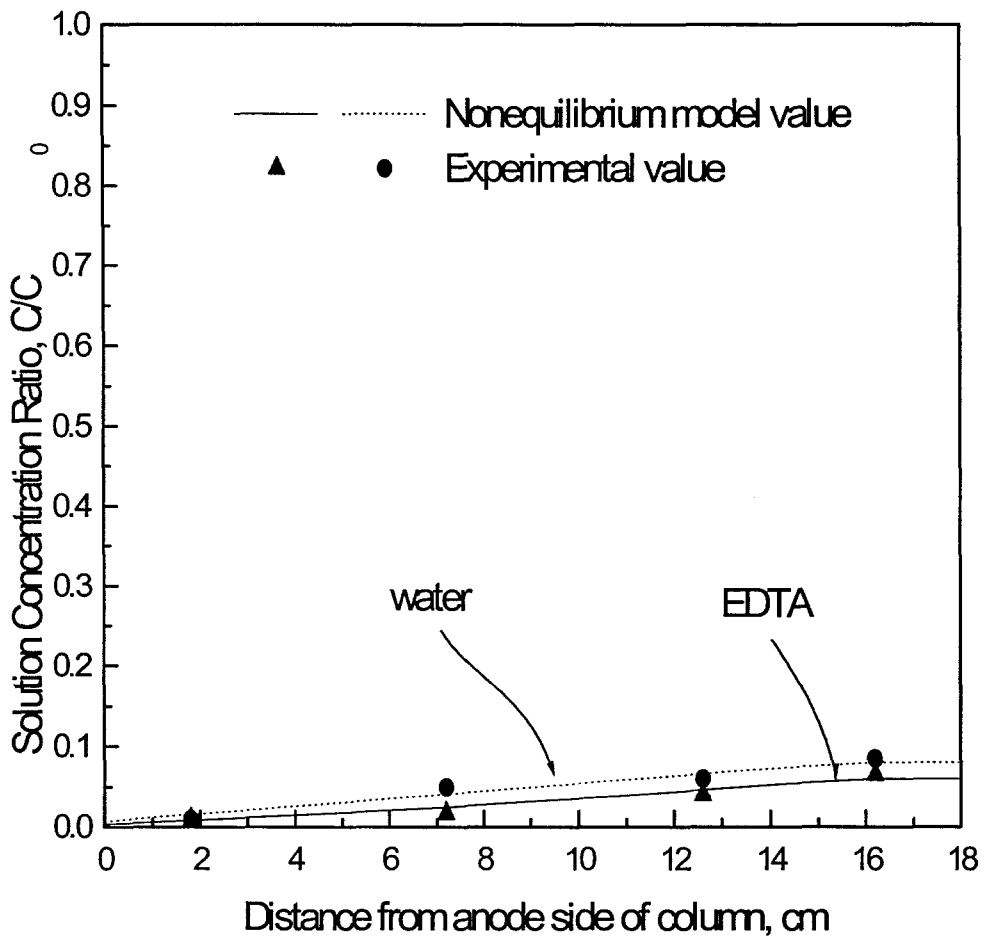


Fig. 3.5.14. Residual solution concentration ratio of Co^{2+} in pore after 20 pore volumes flushing

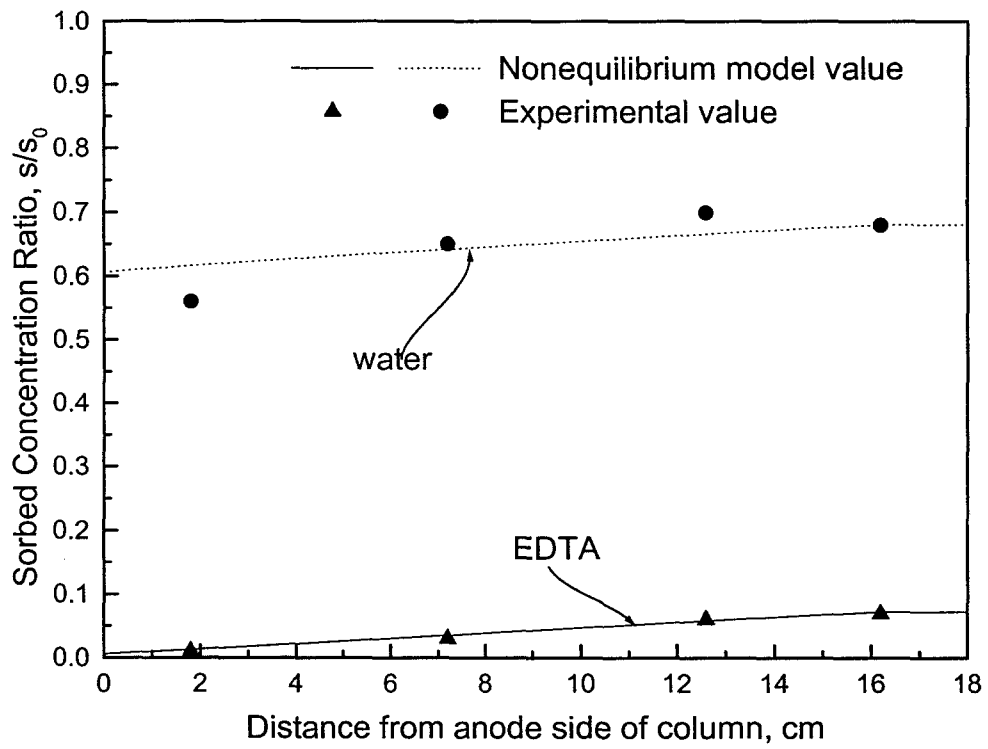


Fig. 3.5.15. Residual sorbed concentration ratio of Co^{2+} in soil after 20 pore volumes flushing

Table 3.5.5. Initial concentration of Co^{2+} and residual concentration after 20 pore volume flushing.

Sol-vent		Dis. 0.0 (cm)	1.8	3.6	5.4	7.2	9.0	10.8	12.6	14.4	16.2	18.0	Ave.	Res. Conc	Ini. Conc
														x 10 ^{-2M}	x 10 ^{-2M}
Water	Soil	0.61	0.62	0.63	0.63	0.63	0.64	0.65	0.66	0.67	0.68	0.68	0.65	0.56	0.865
	Pore	0.01	0.02	0.02	0.03	0.04	0.05	0.06	0.07	0.07	0.08	0.08	0.05	0.01	0.135
	Sum													0.57	1.0
citric acid	Soil	0.01	0.01	0.02	0.03	0.04	0.05	0.05	0.06	0.07	0.07	0.07	0.04	0.04	0.865
	Pore	0.00	0.01	0.01	0.02	0.02	0.03	0.04	0.05	0.05	0.06	0.06	0.03	0.00	0.135
	Sum													0.04	1.0

다. 동전기적 토양 제염기술 개발

1) 이론 정립

동전기적 방법에 의한 복원에 있어서, 한 쌍의 전극을 오염된 토양 양쪽에 위치시키고 직류전위를 통과시킨다. 토양 내의 방사성핵종은 주로 세 가지 현상에 의해 이동된다. 첫째는 전기삼투로 포화된 유체와 오염물질이 전극 쪽으로 흐르는 전기동력학적 현상이며, 두번째는 컬럼내의 수압차에 의한 유체와 오염물질의 이동이며, 세번째는 하전된 이온이 전기장내에서 움직이는 전기이동이다. 동전기적방법에 의한 스트론튬이나 코발트 제염 시 토양 컬럼 내의 pH가 상승하여 침전물을 형성하므로 제염 효율이 매우 낮았다. 따라서 본 논문에서는 초산을 이용하여 컬럼 내 pH 상승을 억제시켜 높은 제염효율을 얻기 위한 실험을 시도했다. 본 논문에서는 동전기적 제염 장치를 제작하고 Kaolin Clay토양을 Co^{2+} 로 오염시켜 컬럼에 주입하고 컬럼 양 쪽 전극에 전압을 가하여 수십 시간 제염시험을 하였다. 컬럼 내의 pH상승을 억제하기 위해 초산 완충액을 사용하였다. 제염기간 동안 음극에서의 흘러나오는 유체량, 농도, pH등을 측정하였고,

본 연구를 통해 전기적 방법에 의해 코발트로 오염된 토양을 제염할 때, 시간에 따른 제염효율을 분석했다. 또한, 이 동전기적 토양제염을 모델링하기 위해 새로운 수치모델을 개발하고 모델값과 제염실험값을 비교하여 개발한 수치모델을 검증했다.

동전기적 방법에 의한 토양 제염시 화학종은 전기이동, 압력이동, 전기삼투(Electro-osmosis), 그리고 전기영동에 의해 이동된다. 전기이동은 전기장내의 토양 공극수 내에 존재하는 이온들의 이동이며, 양이온은 음극으로 이동하고, 반면에, 음이온은 양극으로 이동한다. 압력이동은 컬럼 양쪽 끝에 있는 전극들의 수압차에 의해 유체와 화학종이 낮은 수압쪽으로 이동하는 것이다. 전기삼투는 공극 내의 유체에 가해진 전기장과 토양 이중층에서의 제타전위 사이의 상호작용 때문에 일어난다. 전기삼투는 낮은 수리 전도도를 가진 토양 내에서 유체의 이동을 빠르게 하며 점토 내의 제염작용에 상당히 기여한다. 전기영동(Electrophoresis)은 토양-액체 혼합물 내의 전하를 띤 콜로이드의 이동이다. 고체상태는 이동에 제한을 받기 때문에, 치밀한 매질 내에서 전기 영동에 의한 이동에는 한계가 있다. 동전기적 제염공정에 대해 좀더 자세히 설명하면 다음과 같다.

화학종의 이동식은 유사실험을 통해 도출할 수 있으며, 모세관 모델을 사용하는 등방성 매질에서는 다음과 같이 정의된다. 유체속도 u_c 는 전기삼투속도 u_{eo} 와 압력속도 u_h 의 합으로 표시된다. 전기삼투속도는 Helmholtz-Smoluchowski 의 관계식으로 계산된다.

$$u_{eo} = \frac{\epsilon \zeta}{\tau^2 \mu} \nabla \phi \equiv k_e \nabla \phi \quad (3.5.1)$$

여기서 u_{eo} 는 전기삼투에 의한 속도(cm/min)이고, ϵ 는 공극수의 유전율이며, ζ 는 토양의 제타전위(V) 이고, γ 는 모세통로에 대해 설명하는 1 보다 큰 값을 가진 무 차원의 비틀림 계수 이고, τ 는 공극용액의 점성 계수이며, ϕ 는 정전기 전위(V)이고, 그리고 $K_e(m^2/(V \cdot min))$ 는 모델의 수치공식의 편익을 위해 사용한 유효 전기삼투 투수능계수이다. 또한 압력속도는 Darcy의 법칙으로부터 계산된다.

$$u_h = \frac{k_t}{n\mu} \nabla p \equiv k'_h \nabla p \quad (3.5.2)$$

여기서, u_h 는 압력경사에 의한 속도(cm/min)이고, k_h 는 매질의 수리투수능(cm^2) 이며, n 는 공극률이고, 그리고 p 는 압력(Pa)이다. 또한, 유효투수능계수 k'_h ($\text{cm}^2 / (\text{Pamin})$)는 편의를 위해 정의했다. 화학종 i 에 대한 전기이동속도 u_{ei} (cm/min)는 다음과 같다.

$$u_e = -v_i z_i F \frac{\nabla \phi}{\tau^2} \equiv k_{ei} \nabla \phi \quad (3.5.3)$$

여기서, 이동속도는 공극용액과 관련되며, v_i 는 몰 당 단위 힘으로 인한 속도로 정의되는 이동도(mobility)이고, z_i 는 전하수이고, F 는 Faraday's 상수이고, 그리고 k_{ei} 은 유효 이동도계수($\text{cm}^2 / (\text{V} \cdot \text{min})$)이다.

다음으로, 묶은 용액의 화학종 유동률에 대한 확산은 아래의 Fick의 법칙으로 표시된다.

$$j_i^d = -\frac{D_i}{\tau^2} \nabla C_i \quad (3.5.4)$$

여기서, j_i^d 는 확산으로 인한 몰 유동률($\text{mol} / (\text{cm}^2 \cdot \text{min})$)이고, C_i 는 공극수 내의 화학종의 몰농도(mol / l)이며, D_i 확산계수(cm^2 / min)이다. 다른 질량이동 식들을 총합하면, 각 화학종에 대한 총 유동률은 아래와 같다.

$$j_i = (u_{eo} + u_h + u_{ei}) C_i - \frac{D_i}{\tau^2} \nabla C_i \quad (3.5.5)$$

또한 압력, 정전기전위, 그리고 농도의 개념으로 표시하면,

$$j_i = [(k_e + k_{ei}) \nabla \phi + k_h \nabla p] C_i - \frac{D_i}{\tau^2} \nabla C_i \quad (3.5.6)$$

여기서 j_i 는 단위면적 마다 화학종 i 의 몰 유동률 ($\text{mol} / (\text{cm}^2 \cdot \text{min})$) 이다. k_e, k_{ei}, k_h 그리고 D_i / τ^2 은 시간과 공간에 따라 변하는 계수이다. 이온의 이동량은 이온농도와 이온전위경사도에 비례한다.

2) 모델링

가) 전하방정식

전하방정식은 액체와 고체상태 모두를 포함한 다공성 매질의 한정된 부피에 대해 질량보존식을 적용하여 유도된다. 흡착된 화학종의 이동은 무시하고, Gauss의 분산이론을 한정된 부피에 대해 적용하면,

$$\frac{\partial(C_i + C_i^a)}{\partial t} + \nabla \cdot j_i = R_i \quad (3.5.7)$$

C_i^a (mol/l)는 흡착상태 내에서 화학종 i 의 몰농도이고, R_i 는 화학 반응으로 인한 화학종 i 의 생성률이다. 수치적으로 이동식을 적분하는 것은 매우 어렵다. 왜냐하면, 화학반응은 이동작용 보다 훨씬 빠르기 때문이다. 수치적 개념에서의 차분방정식의 문제점은 화학반응을 통해 보존된 양의 개념으로 이동방정식을 다시 정리함으로 해결된다. 질량보존 원리에 근거하면, 보존총량 T_k 는 여러 방법으로 정의된다. T_k 중의 하나가 총전 하이다. 또한, 적합한 보존총량 식들은 화학방정식의 화학량론을 고려함으로 정의되며[3.5.7], 보존 총량식은 다음과 같다.

$$T_k = \sum_{i=1}^N \alpha_{ik} (C_i + C_i^a), \quad \forall k = 1, \dots, M \quad (3.5.8)$$

여기서, α_{ik} 는 보존총량 k 에 대한 각 화학종의 비율이며, N 은 화학종의 수이고, 그리고 M 은 시스템 내의 원소의 수 즉 보존총량의 수이다. 이 방법은 원소질량보존 개념으로 설명된다. 이동방정식(식 (3.5.7))에 α_{ik} 를 곱하고 i 로 총합을 표시하면,

$$\sum_{i=1}^N \alpha_{ik} \left(\frac{\partial(C_i + C_i^a)}{\partial t} + \nabla \cdot j_i = R_i \right), \quad \forall k = 1, \dots, M \quad (3.5.9)$$

그러나, 각 원소의 총 질량은 보존되므로,

$$\sum_{i=1}^N \alpha_{ik} R_i = 0 \quad (3.5.10)$$

그리고, 식(3.5.8)을 사용하여 위식을 다시 쓰면,

$$\frac{\partial T_k}{\partial t} + \sum_{i=1}^N \alpha_{ik} \nabla \cdot j_i = 0, \quad \forall k = 1, \dots, M \quad (3.5.11)$$

화학종 보존총량과 총 유동률을 대입하면,

$$\frac{\partial(C_i + C_i^a)}{\partial t} + \sum_{i=1}^N \alpha_{ik} \nabla \cdot ((u_{eo} + u_h + u_{ei})C_i - \frac{D_i}{\tau^2} \nabla C_i) = 0, \quad \forall k = 1, \dots, M \quad (3.5.12)$$

토양에 흡착된 화학종은 식 (3.5.13)과 같고, 식 (3.5.12)를 다시 쓰면 식 (3.5.14)와 같다[3.5.8].

$$C_i^a = \frac{\rho}{n} K_{di} C_i \quad (3.5.13)$$

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} \left(1 + \frac{\rho}{n} K_{di}\right) = - \sum_{i=1}^N \alpha_{ik} \left(\frac{\varepsilon \zeta}{\tau^2 \mu} \nabla \phi - \frac{k_h}{n \mu} \nabla p - v_{i,z} F \frac{\nabla \phi}{\tau^2} \right) \frac{\partial C_i}{\partial x} + \sum_{i=1}^N \alpha_{ik} \frac{D_i}{\tau^2} \frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} \quad \forall k=1, \dots, M \quad (3.5.14)$$

여기서 K_{di} 는 분배계수이다.

나) 초기 및 경계조건

위에서 주어진 식 (3.5.14)를 풀기 위해, 적당한 경계 및 초기 조건이 필요하며, 염화코발트 ($CoCl_2$)가 원통형 컬럼에 균등하게 오염되었기 때문에 컬럼 실험의 초기 및 경계조건은 다음과 같다.

$$C(0, x) = C_0 \quad 0 < x < 20$$

$$C(t, 0) = 0$$

$$\frac{\partial C}{\partial x}(t, 20) = 0$$

$$\phi(t, 0) = 40(V)$$

다) 코드 개발

동전기적 토양제염 후 토양컬럼 내의 잔류 오염농도를 예측하기 위한 수치코드를 개발했다. 위 식 (3.5.14)의 지배방정식에 근거한 일차원 코드는 FORTRAN 77 언어로 작성하였고, Linear Basis Function을 이용한 Galerkin 유한요소법을 사용했으며, 시간미분을 위해 Implicit Difference Scheme을 사용했고, Tridiagonal Matrix를 계산하기 위해 Thomas Algorithm을 사용했다.

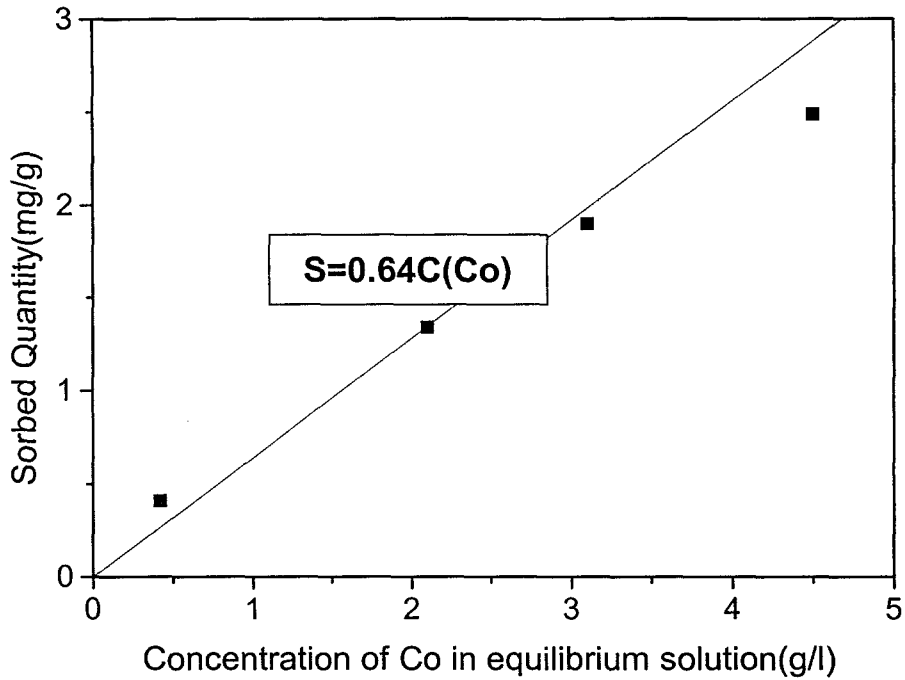


Fig. 3.5.16. Equilibrium sorption coefficients of Co^{2+} with kaolin clay.

3) 토양제염장치 개발 및 파라미터 측정

동전기적 제염을 위해 Fig. 3.5.17과 같은 실험실크기의 제염장치를 제작했다. 이 토양제염실험을 모델링했고 이때 사용된 입력 파라미터는 Table 3.5.6과 같다. Kaolin Clay의 Bulk Density (ρ_b)는 시료의 건조 질량을 현장부피로 나누어 준 값이다. 공극률은 식 $1 - (\rho_b / \rho_s)$ 로 구했다. 여기서 ρ_s 는 샘플의 건조 질량을 토양입자 부피로 나누어 준 값이다. 함수비(θ)는 샘플의 물부피(ν_w)를 전체부피(ν_T)로 나누어 구했다. 분배계수(K_d)는 Kaolin Clay를 여러 농도의 Co^{2+} 용액으로 포화시켜 3일 동안 교반기에 넣어 평형에 도달하도록 교반시킨 후 포화 Kaolin Clay를 10g 취하여 원심분리기에 넣고 약 15분간 가동시켜 공극용액을 Kaolin Clay와 분리시키고 상등액을 취하여 원자흡광광도법으로 농도를 측정하였

다. 측정된 각 이온의 평형농도에 대한 등온흡착량은 Fig. 3.5.16과 같고, 분배계수는 Table 3.5.6에 나타내었다.

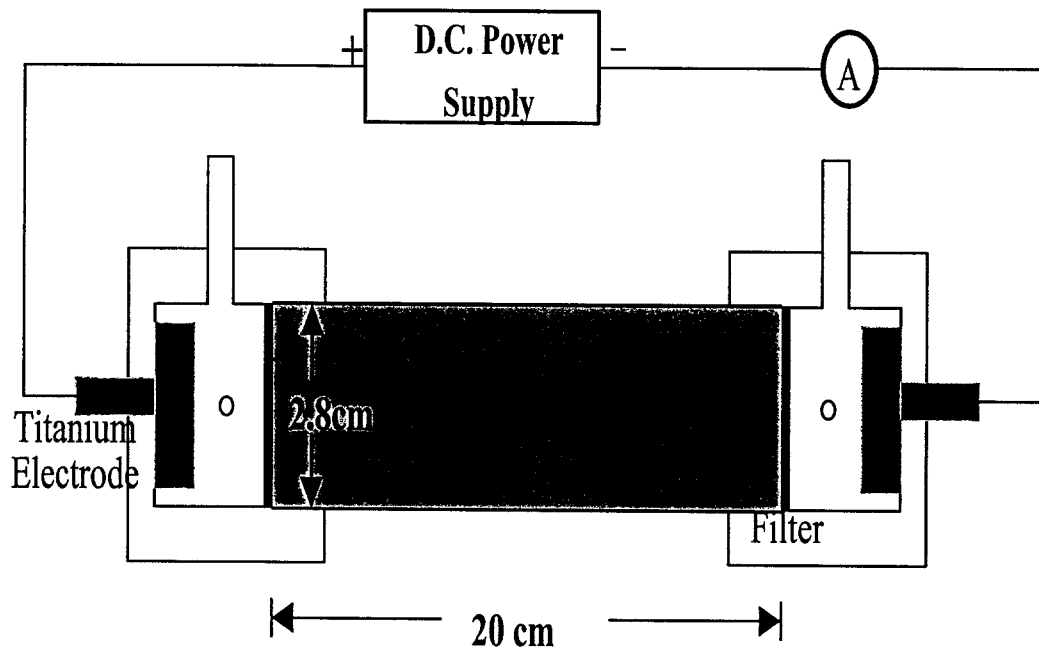


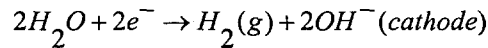
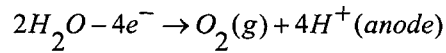
Fig. 3.5.17. Schematic of cylindrical column.

Table 3.5.6. Parameters for Simulation.

Parameter	Values
Cell dimensions, L	$\varnothing 2.8\text{cm} \times 20\text{ cm}$
Bulk density, ρ_b	0.77 g/cm^3
Faradays constant, F	96487 C/ mol
Electroosmosis velocity, $\frac{\epsilon\zeta}{\mu} \frac{\partial\phi}{\partial x}$	$1.85 \times 10^{-3}\text{ cm/min}$ (10.0 hours), $3.41 \times 10^{-3}\text{ cm/min}$ (20.8 hours), $1.45 \times 10^{-2}\text{ cm/min}$ (31.1 hours), $3.02 \times 10^{-2}\text{ cm/min}$ (43.6 hours),
Potential at the anode well, ϕ_1	0.0 V
Potential at the cathode well, ϕ_2	40 V
Porosity, n	0.615
Tortuosity, τ	1.2
Distribution coefficient (ml/g), K_d	0.64

4) pH 가 동적기적 제염에 미치는 영향

제염 실험 전 측정된 토양 컬럼 내의 Kaolin Clay + NaCl + SrCl₂의 pH는 4.0이었고 양쪽 저수조 내의 NaCl 전해액의 pH는 6.5이었다. 그러나 양극에서 산소의 방출과 음극에서 수소의 방출로 인해 양극 저수조에서의 pH는 1.6, 음극 저수조에서의 pH는 12.9로 변화하였다.



0.8일 경과 후 컬럼의 14cm 뒤쪽 부분의 pH는 Fig. 3.5.18과 같이 초기의 4.0으로부터 약 11.7로 상승하면서 Sr(OH)₂가 형성되기 시작했다. 6.7일 경과 후 컬럼의 음극쪽 pH는 약 12.6으로 증가했다. 0.006 M Sr²⁺용액을 NaCl을 가하여 pH를 12.7로 올렸을 때 약 73%의 침전이 생기고 27%만이 용액 내에 남는 것으로 나타났다. 즉 침전 후 Sr²⁺용액의 농도는 0.0016 M로 감소되는 것으로 나타났다.

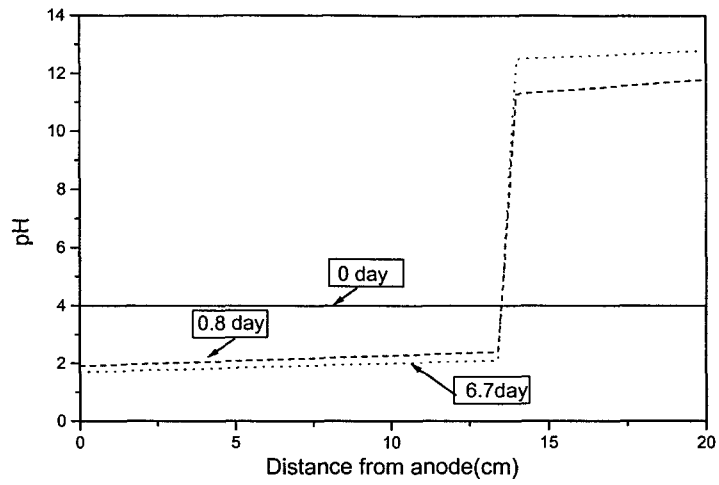


Fig. 3.5.18. pH measured at 0, 0.8, and 6.7 days.

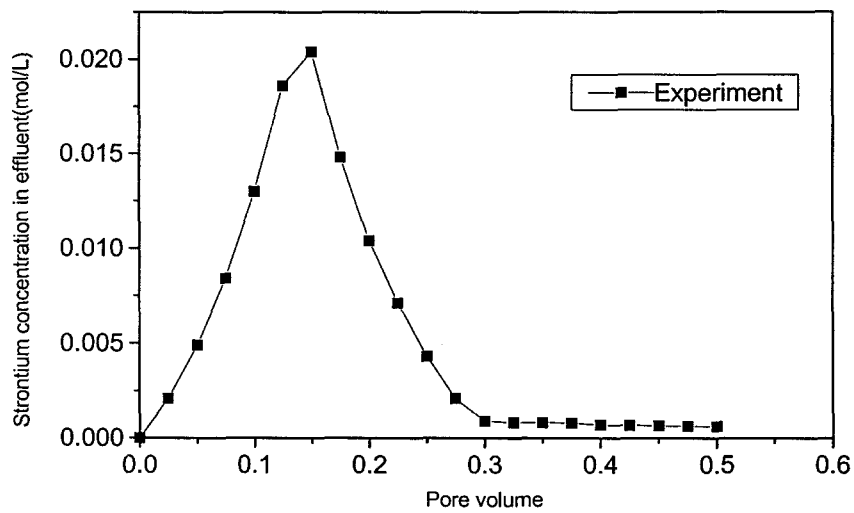


Fig. 3.5.19. Measured concentration of strontium ion in the effluent.

토양 컬럼 음극쪽 끝에서 나오는 유출수를 채취하여 농도를 측정한 결과는 Fig. 3.5.19와 같다. 초기로부터 Pore Volume 0.15 에 도달했을 때까지 유출수의 농도는 0.02M로 증가되었지만 Pore Volume 0.15부터 0.3까지는 다시 서서히 농도가 감소되어 0.0007M에 도달했고, Pore Volume 0.45부터 0.5까지는 0.0006 M로 좀더 감소되었다. 또한, 제염실험 결과 전기삼투에 의한 공극용액의 유동속도는 Fig. 3.5.19.에서와 같이 0.3 일까지는 약 1.7×10^{-3} cm/min이 0.8일까지는 2.7×10^{-3} cm/min 이었으며, 0.8일부터 6.7 일까지는 4.7×10^{-4} cm/min로 나타났다. 토양 컬럼 오른쪽부분에 pH의 상승으로 0.8일부터 침전이 형성되기 시작했다.

Fig. 3.5.20은 제염시간 경과에 따른 컬럼 공극용액 내의 Sr^{2+} 농도를 나타낸다. 0.01M Sr^{2+} 용액으로 Kaolin Clay용액을 포화시켜 3일간 교반한 후 컬럼에 주입했을 때, 컬럼 공극용액의 초기농도는 0.006 M이었다. 0.3일 경과 후 토양컬럼의 앞부분이 제염되었고, 0.8 일 후에는 공극용액 내에 포함된 Sr^{2+} 의 약 25 %가 제염되었다. 6.7일 후에는 컬럼 14cm 뒤의 pH가 높아 침전을 형성하므로 공극 내의 Sr^{2+} 농도는 낮아졌다.

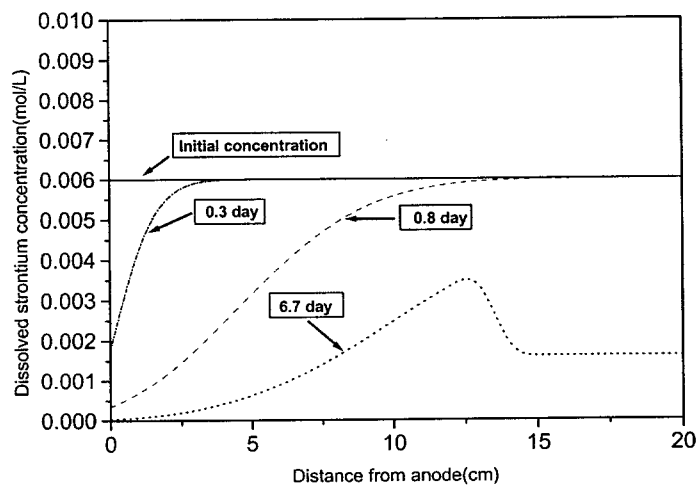


Fig. 3.5.20. Distribution of dissolved strontium concentration in soil column versus time.

Fig. 3.5.21은 제염시간 경과에 따른 컬럼 공극 용액 내에 포함된 그리고 Kaolin Clay에 Sr^{2+} 농도를 나타낸다. 0.8 일 후에는 토양 컬럼 내 초기 총 농도의 25%가 제염되었고, 6.7일 후에는 32%가 제염되었다. 즉 초기에 토양 컬럼에 주입한 Sr^{2+} 총량은 66.4 mg이었고, 제염실험 0.8일 후 토양 컬럼 밖으로 유출된 Sr^{2+} 총량은 16.52 mg이며, 6.7일 후 토양 컬럼 밖으로 유출된 Sr^{2+} 총량은 21.02 mg이었다. 6.7일 후의 모델과 실험에 의한 잔류농도 분포는 그림에서 보듯이 pH가 높아지기 시작한, 토양 컬럼의 음극 쪽 끝에서 14 cm 지점에서는 약 0.055 M로 매우 높게 나타났다. 그 이유는 앞에서 제염되어 이동된 Sr^{2+} 이온이 pH가 높은 14cm 지점에서 침전을 형성하여 계속 쌓였기 때문이다. 6.7 일 이후는 유출수의 유량 및 농도가 낮아 제염효율은 극히 저하되었다. 개발된 모델로 계산한 컬럼 내의 잔류농도에 대한 예측 값과 제염 실험 후 토양 컬럼에 남은 잔류농도를 XRF로 직접 측정된 실험 값과 서로 상당히 일치하는 것으로 나타났다

이상과 같이, Kaolin Clay에 흡착된 Sr^{2+} 이온을 동전기적방법을 사용하여 제염시 음극 쪽에 수산이온이 발생되어 음극 쪽 컬럼 내의 Kaolin Clay의 pH가 상승되어 $Sr(OH)_2$ 를 형성하여 32%의 제염효율을 얻었다. 그러므로 음극쪽 토양 내의 pH 상승을 억제하기 위해 컬럼 토양 내에 pH상승억제 완충 용액을 주입하거나 음극 쪽 저수조에 산을 주입하여 음극 쪽의 pH를 저하하는 방안을 강구하는 연구가 필요하다.

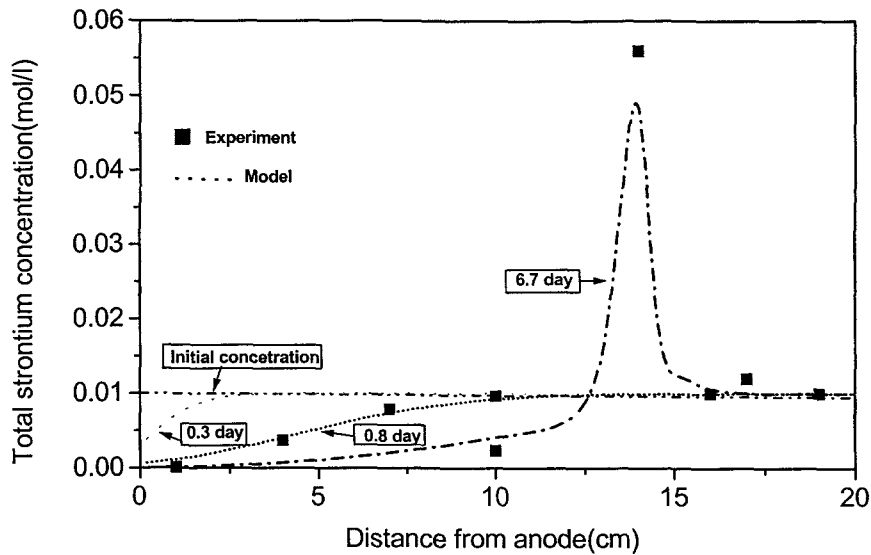


Fig. 3.5.21. Distribution of total strontium concentration in soil column versus time.

5) 초산 완충용액을 이용한 pH 저감 방안

토양 컬럼 내의 pH를 저감하기 위해 토양제염 실험은 다음과 같이 수행했다. 큰 용기에 포화 혼합된 Kaolin Clay (Kaolinite + 초산 완충액과 Cobalt ion 용액) 샘플 150cm³을 만든다. 이것을 용기에 넣어 토양과 혼합한 후 Co²⁺이 kaolin clay에 흡착 평형에 이르도록 용기를 밀폐하여 교반기에 넣고 3일간 교반시킨다. 교반 후 이 포화 토양을 토양제염 장치 column에 조금씩 다져 주입했다. 이때, 컬럼토양 내부에 틈새가 발생하지 않도록 충분히 다져주면서 서서히 Kaolin Clay를 주입했다. Fig. 3.5.17은 실험장치이다. 실린더 형태의 토양 컬럼은 길이가 20.0 cm 이고, 직경은 2.8 cm이다. 토양 컬럼 양쪽 끝에는 여과지가 있고, 컬럼 양쪽의 저수조 내에는 티타늄 전극이 위치한다. 토양 컬럼의 부피가 123cm³ 이고 컬럼을 채운 Kaolin Clay의 무게는 94.8g 이며, 또한, kaolin clay를 포화시키기 위해 필요한 0.01 M Co²⁺용액 용량을 kaolin clay의 밀도 및 공극률에 근거하여 계산한 결과 75.7ml 이었다. 이 토양 컬럼의 한쪽

은 양극에 다른 한쪽은 음극에 연결되어 있다. 컬럼토양에 전압경사를 주기 위해 양쪽전극에 40V의 전압을 가해주었고, 이때 전류는 약 0.1 mA를 나타냈다.

토양제염 실험 전 측정된 토양컬럼 내의 초산 완충액+ kaolin clay + CoCl_2 의 pH는 4.0이었다. 그러나 토양제염실험 직후 아래 식과 같이 양극에서는 수소이온 방출로 인해 pH가 낮아지고, 음극에서는 수산이온 방출로 인해 pH가 높아지므로 음극 저수조에 0.1M CH_3COOH 용액을 계속 주입해서 pH의 상승을 억제했다. 초산 완충액과 CH_3COOH 용액의 주입없이 토양제염을 수행했을 때, 실험직후 공극 용액의 유동속도가 매우 작아졌으며, 컬럼으로 부터의 유출수의 Co^{2+} 농도도 매우 감소되었다. 그 이유는 컬럼 양극으로부터 약 14cm되는 지점과 컬럼 끝 사이의 구간에 있는 Kaolin Clay의 pH가 12 이상으로 높아지면서 $\text{Co}(\text{OH})_2$ 의 침전이 형성되기 시작했고[3.5.9], 이 침전으로 인해 컬럼 내의 토양은 딱딱해지면서 수리전도도가 작아졌기 때문인 것으로 사료된다. 한편, 컬럼 토양에 주입된 0.01 M Co^{2+} 용액은 코발트가 토양에 평형 흡착된 후 공극용액의 농도는 0.0056 M Co^{2+} 이었다. 이 용액과 같은 농도의 코발트 용액에 NaOH를 가하여 fig. 22와 같이 침전실험을 했다. 즉 pH가 12.0일때 100% 침전되었고, 10일때 99%, 8일때 65%, 7.3일때 0%로 나타났다. 그러므로 토양제염 효율을 높이기 위해 컬럼 내의 kaolin clay혼합물의 pH를 7.0 이하로 유지시켜야 했다.

pH를 낮추기 위한 방법으로 양극 저수조에 0.1M의 CH_3COOK 용액을 음극 저수조에 0.1M의 CH_3COOH 용액을 주입하였다. 토양 컬럼 내에는 초산완충액으로써 0.1M CH_3COOK 와 0.1M CH_3COOH 의 혼합물을 주입하였다[3.5.10]. 토양제염 실험 수행중 전기삼투에 의해 컬럼 내의 용액이 양극에서 음극으로 계속 유동하므로 양극 저수조의 위쪽에 구멍을 내어 CH_3COOK 용액을 연속적으로 주입하여 항상 저수조가 가득 차도록 했다. 음극 저수조 위쪽 옆으로 구멍을 내어, 주기적으로 유출수의 유량을 측정하고, 원자흡수분광법을 사용하여 유출수 내의 Co^{2+} 농도를 측정했다. 컬럼토양 내의 Co^{2+} 제염실험은 43.6시간 수행했다.

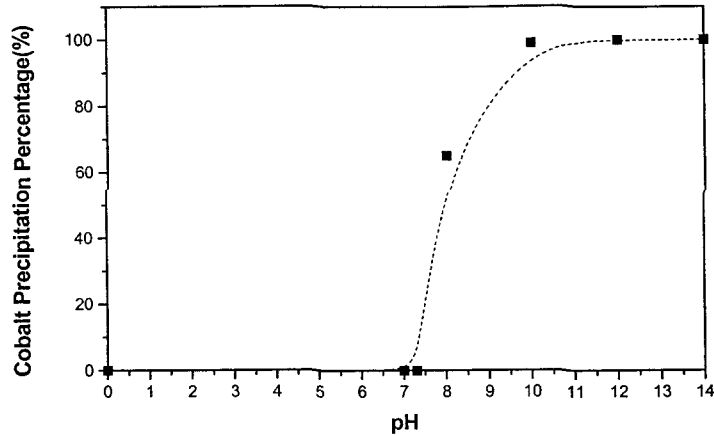


Fig. 3.5.22. Cobalt precipitation percentage versus pH.

제염실험 완료 후, 컬럼 내의 토양을 균등하게 나누어 잔류농도를 측정하고, pH를 측정하였다. 음극과 양극 저수조의 부피는 약 20ml 이다. 실험을 시작할 때 양극 저수조에 0.1M CH_3COOK 를 19 ml 채우고 음극 저수조에는 0.1M CH_3COOH 를 13ml 채운다. 실험개시 후 컬럼 내의 공극 용액은 전기삼투현상에 의해 음극 저수조 쪽으로 유출된다. 음극 저수조가 컬럼에서의 유출수에 의해 약 19ml 정도 채워지면, 실험을 중지한 후 음극저수조 내의 용액부피를 정확히 측정하고, 저수조 용액 중 약 2ml를 채취하여 보관했다. 다시 양극 저수조를 CH_3COOH 로 채우고 음극 저수조는 13ml의 새로운 CH_3COOH 용액을 채워 제염실험을 수행했고 이와 같은 작업을 29번 반복했다. 이 채취된 용액들은 모든 실험을 완료한 다음 한꺼번에 원자흡수 분광법을 사용하여 용액 내의 코발트 농도를 측정했다. 토양제염 실험을 마친 후 컬럼 내의 Kaolin Clay 를 5조각으로 세분한 후 각 조각에서 10ml를 채취하여, 약15분 동안 원심분리기를 사용하여 상등액을 분리시키고 이 상등액 내에 남아 있는 코발트농도를 측정했다. 이 실험은 컬럼음극에서의 유출량이 많기 때문에 제염실험은 43.6시간만 수행했다.

초산 완충액을 컬럼에 주입하고, 0.1 M 초산용액을 음극 저수조에 계속적으로 주입하면서 토양제염실험을 수행한 결과 컬럼의 14cm 뒤쪽 부분의 pH는 Fig. 3.5.22와 같이 초기에는 4.0이었으나 실험이 끝나는 43.6 시간 후에는 단지 약 6.5으로 상승하였다. 이와 같이 컬럼 내의 pH가 낮기 때문에 $\text{Co}(\text{OH})_2$ 는 형성되지 않았다.

토양 컬럼 음극쪽 끝에서 나오는 유출수를 채취하여 농도를 측정한 결과는 Fig. 3.5.24와 같았다. 초기부터 pore volume 0.1(13시간 경과)까지 유출수의 Co^{2+} 농도는 약 0.03M로 증가했다. 이것은 컬럼 내 공극 용액의

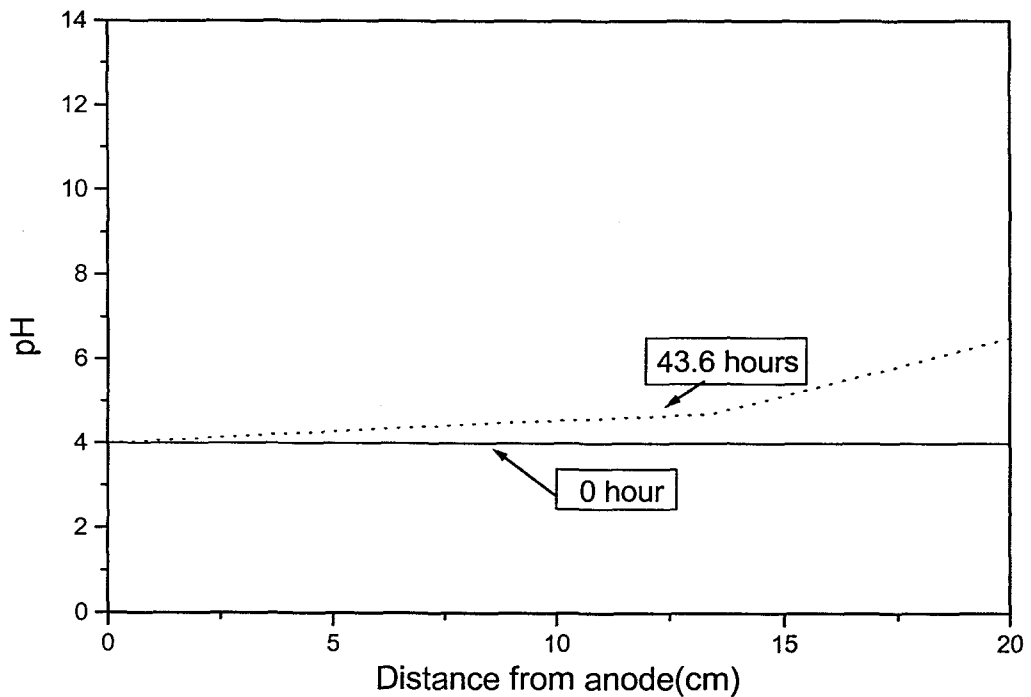


Fig. 3.5.23. pH measured at 0.0, and 3.8 days.

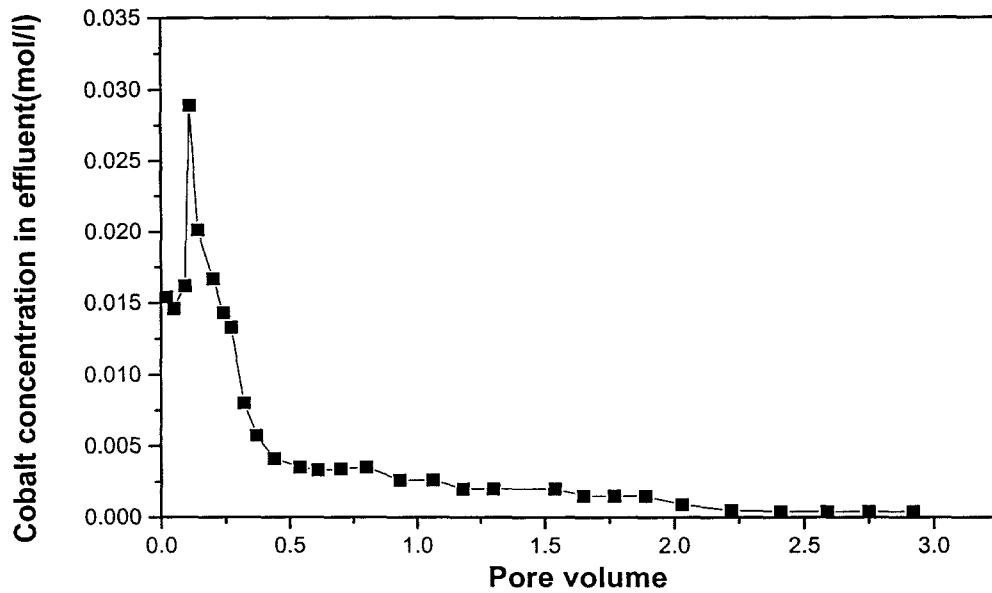


Fig. 3.5.24. Cobalt concentration in effluent.

초기 Co^{2+} 이온 농도 0.0056M 보다 약 5배 높으므로 이온 이동에 의해 상당량의 Co^{2+} 가 이동됨을 알 수 있다. Pore volume 0.1부터 0.5(28시간 경과)까지는 다시 농도가 감소하여 약 0.004 M로 대체로 초기 공극용액 농도 보다 높은 것으로 나타났다. 그러나 유출농도는 다시 감소하여 pore volume 2.0(37시간 경과)까지는 약 0.001 M로 낮아졌고, Pore volume 2.9(44시간 경과)까지는 유출농도가 좀더 감소되어 약 0.0004 M이었다.

또한, 제염실험 결과 전기삼투에 의한 공극 용액의 유출속도는 Fig. 3.5.25와 같다. 제염실험 결과 전기삼투에 의한 공극 용액의 유동속도는 10.0시간까지 1.85×10^{-3} cm/min, 20.8시간까지 3.41×10^{-3} cm/min, 31.1시간까지 1.45×10^{-2} cm/min, 43.6시간까지 3.20×10^{-2} cm/min로 제염시간이 경과함에 따라 유동속도 및 유출량이 증가하는 것으로 나타났다.

Fig. 3.5.26은 토양제염 시간 경과에 따른 토양 컬럼 내에 잔류한 총 Co^{2+} 농도를 나타낸다. 제염 실험 중에 토양 컬럼 내의 pH 값이 억제되어 침전이 발생하지 않으므로 제염효율이 높게 나타났다. 즉, 10.0시간 후에

는 토양 컬럼 내의 초기 Co^{2+} 총량의 13.1%가 제염되었고, 20.8 시간 후에는 46.8%가 제염되었다. 또한 30.1 시간 경과 후에는 71.7%가 제염되었고, 43.6시간 후에는 94.6%가 제염되었다. 다시 말하면, 초기에 토양컬럼에 주입한 Co^{2+} 총량은 44.6 mg이었고, 제염실험 10.0시간 후 토양컬럼 밖으로 유출된 Co^{2+} 총량은 5.8 mg이며, 20.8 시간 후 토양컬럼 밖으로 유출된 Co^{2+} 총량은 20.9 mg이었다. 또한, 제염실험 30.1 시간 후 토양컬럼 밖으로 유출된 Co^{2+} 총량은 32.0 mg, 43.6 시간 후 토양컬럼 밖으로 유출된 Co^{2+} 총량은 42.2 mg이었다. 토양제염 실험을 마친 후 토양 컬럼 내의 kaolin clay를 꺼내서 5등분하여 kaolin clay의 공극 용액 내의 Co^{2+} 농도를 측정된 결과는 Fig. 3.5.27과 같고 모델로 계산한 값과 상당히 일치했다. 그러므로, pH 상승 억제용 완충액을 사용한 토양제염 실험결과 43.6 시간 경과 후 토양컬럼 내의 Co^{2+} 총량의 94.6%가 제염되는 것으로 나타났다.

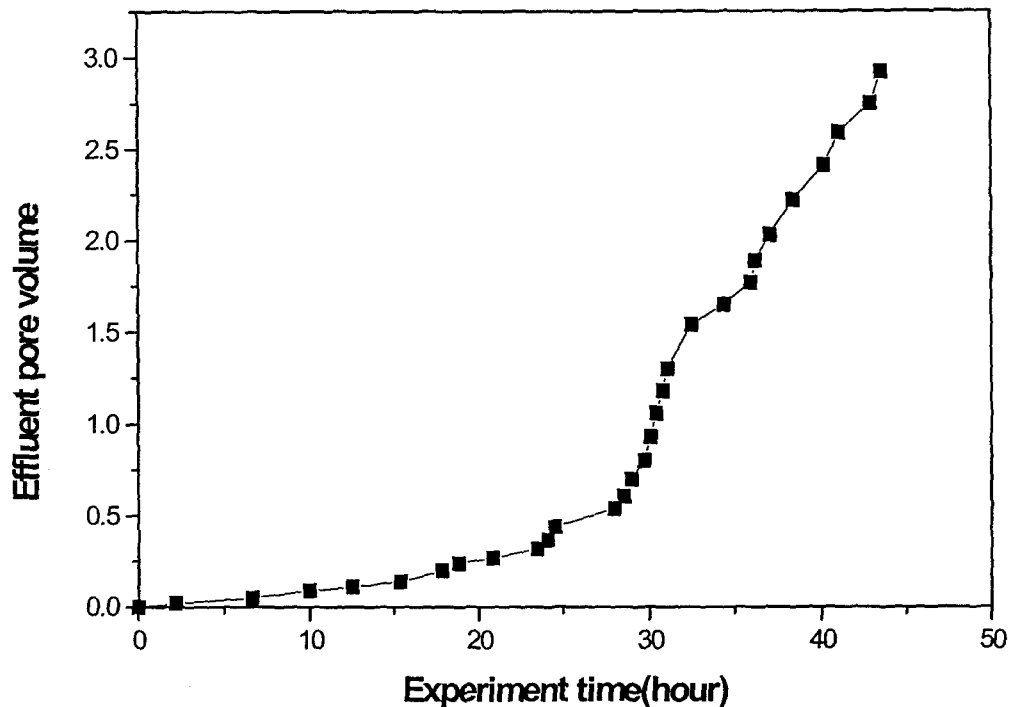


Fig. 3.5.25. Effluent pore volume versus time.

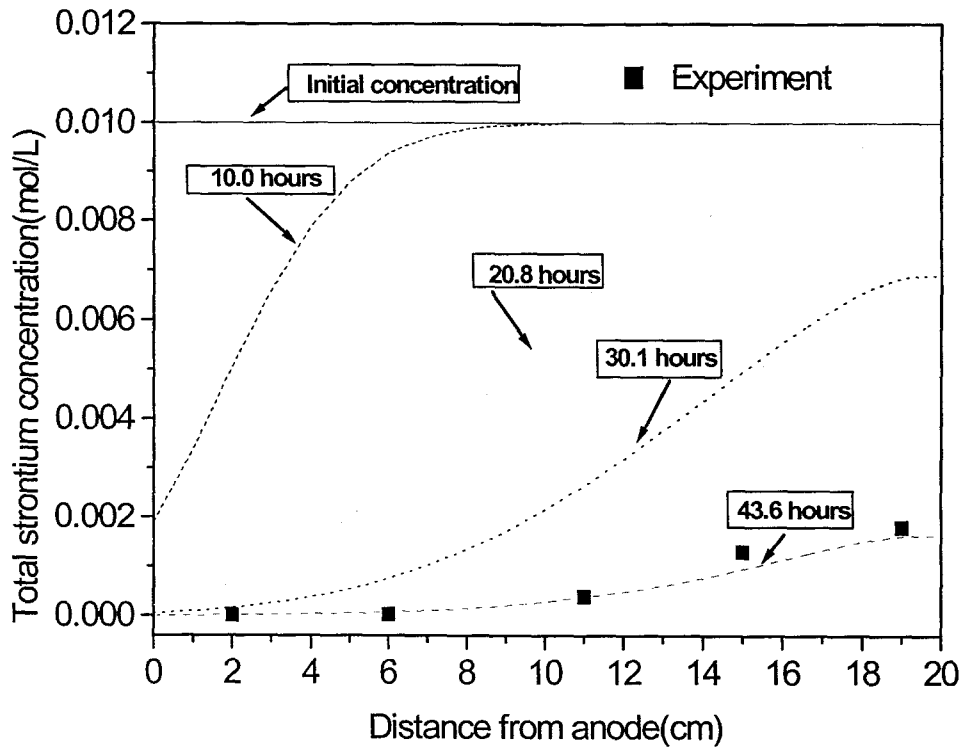


Fig. 3.5.26. Distribution of total cobalt concentration in soil column versus time.

라. TRIGA 부지 토양폐기물 제염 적용성 실험

1) 토양폐기물 분류

건물 하단에 존재하는 수거하기 어려운 오염된 토양이나 투수성이 좋은 부지에 대해서는 soil flushing(solvent flushing) 혹은 현장 고정화 방법이 효과적일 것으로 생각된다.

Drum 내에 존재하는 방사성 폐기물 토양에 대해서는 soil washing 법으로 부피를 크게 감소시키는 것이 가능하다. KAERI 보유 TRIGA 오염토양 폐기물(4482드럼)을 표면 접촉 선량률로 분류한 결과, 0.05 mR/hr 이상인 드럼이 전체의 7%, 0.02 ~ 0.05 mR/hr 사이의 드럼은 60%, 0.02 mR/hr 이하인 드럼은 전체의 33% 존재하였다. 1988년의 데이터와 예비 실험 결

과로부터 토양은 주로 방사성 코발트로 오염되어 있으며 최대 접촉 선량 당량 률은 주로 0.05 mR/hr 이하임을 파악하였다. Soil washing을 사용하여 방사성 폐기물의 부피를 감소시키는 제염 작업의 흐름도를 Fig. 3.5.27에 도시하였다.

2) 토양 폐기물 오염특성 분석

1988년 수거당시 오염준위가 가장 높은 토양(~ 0.05mR/hr)을 채취한 후 건조하였다. 토양 385g을 0.3 mm, 2mm 의 체로 30분간 sieving 한 후 입도별로 분리하였다. 0.3mm 과 2 mm 사이의 토양은 323g, 0.3mm 이하의 토양은 62 g이었다. 입도별 γ -방사능 분석을 EG & G사 MCA를 사용하여 분석하였고, 분석에는 건당 평균 100,000 초가 소요되었다. Table 3.5.7에 분석결과를 수록하였다.

3) 토양폐기물 제염 실험

입도가 큰 토양 385 g을 아홉 부분으로 나누고 토양 10g에 대해 0.01 M 제염용액 100ml를 가하여 상온에서 각 단계별 16시간씩 제염을 수행하였다. 제염제는 EDTA, Citric acid, Bio-surfactant를 사용하였으며 제염 후 여액을 0.2 μ m polyethersulfone 여과지를 이용하여 분리 후 토양에 제염제를 3회 반복 적용하였고 방사능의 평균치를 구하였다.

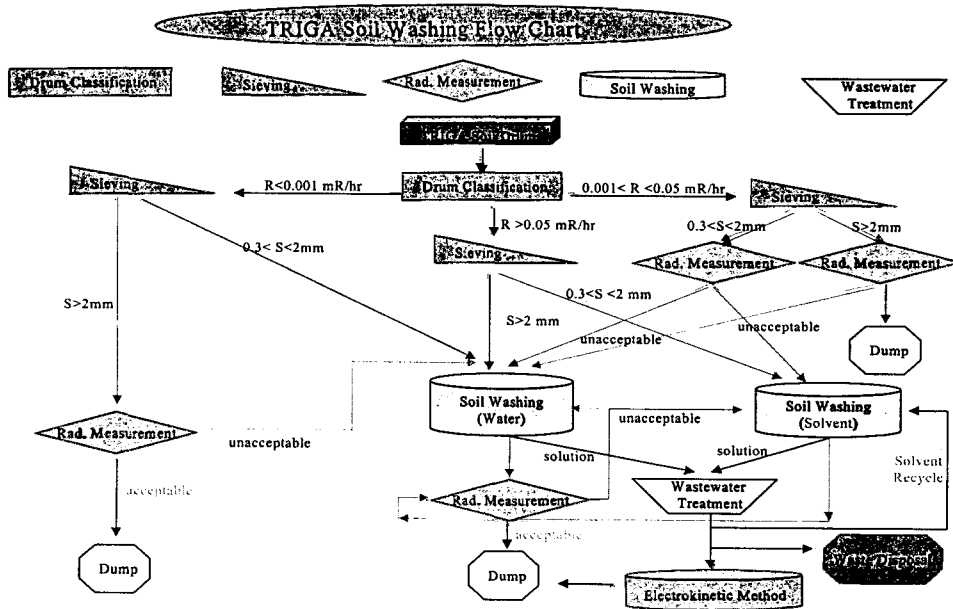


Fig. 3. 5. 27. TRIGA soil washing flow chart.

Table 3.5.7. Radioactivity of soil.

물리적 분리	시료량	방사성핵종	방사능농도, (Bq/Kg)
토양시료, 0.3mm 이상	385g	Cs-134,137	618±1.5
		Co-60	386.8±4.7
		Cr-51	< 5.2
		Fe-59	< 3.1
토양시료, 0.3mm 이하	62g	Cs-134,137	142.6 ± 9.0
		Co-60	1159.5 ± 72.8
		Cr-51	< 6.2
		Fe-59	< 4.7

4) 실험 결과 및 고찰

RESRAD를 사용한 계산결과, Co-60 및 Cs-137로 오염된 부지의 비 방사능화 기준을 15 mRem/yr 로 적용시 Co는 토양 내 70 Bq/Kg 이하, Cs 은 300 Bq/kg 이하의 농도로 존재하여야 함을 파악하였다. 1988년 수거 당시 오염준위 비교적 높은 토양 폐기물(0.05mR/hr 이상: 전체의 약 7%) 에 대한 제염결과 토양제염 효과는 EDTA ≒ Citric Acid > Biosurfactant의 순으로 나타났으며 biosurfactant 에 의한 제염효과는 미미하였다. 방사성 Cs에 대해서는 제염 전에도 큰 토양시료, 작은 토양시료 모두에 대해 비 방사성 폐기물화 조건이 만족된다. 그러나, Co 에 대해 제염 전에는 비 방사능 화 조건이 만족되지 않는다. 0.3mm 이상의 토양시료에 대해 3회 제염 후, EDTA 와 citric acid 제염 용액 모두 비 방사능 화 조건을 만족시키는 것으로 나타난다.

Table 3.5.8. Radioactivity of soil after 3 times of decontamination

물리적분리	방사성 핵종	제염 전 방사능 농도	3회 제염 후 방사능 농도(Bq/Kg)		비고
			Citric acid 제염	EDTA제염	
토양시료, 0.3mm이상 (84%)	Cs-134,137	61.8 ± 1.5	59.0 ± 3.1	55.3 ± 4.4	환경방출 (84%)
	Co-60	386.8 ± 1.7	53.5 ± 2.0	66.9 ± 4.5	
	Cr-51	< 5.2	< 19.4	< 27.9	
	Fe-59	< 3.1	< 8.0	< 8.0	
토양시료 0.3mm이하 (16%)	Cs-134,137	142.6 ± 9.0	130.6 ± 12.6	138.6 ± 5.9	방사성 폐기물 (16%)
	Co-60	1159.5 ± 2.8	726.6 ± 15.1	538.5 ± 15.1	
	Cr-51	< 6.2	< 16.1	< 19.4	
	Fe-59	< 4.7	< 6.6	< 8.1	

Fig. 3.5.28은 제염을 적용횟수에 따라 토양 중에 잔존하는 방사성 핵종의 백분율을 도시한 것으로 EDTA 및 citric acid 용액의 제염 효과를 보여준다. 여기서, S 및 L 은 각각 토양 입자와 큰 토양 입자를 나타낸다. 방사성 Cs은 EDTA 및 citric acid 모두에 대해 제염효과가 작은 것으로 나타났다. 큰 입자의 토양을 EDTA로 제염할 경우, 3회 적용에 의해서도 초기의 20 % 가 제거되었다. Co 의 경우, 제거되는 방사능의 많은 부분이 첫 회 제염 시 제거되며 EDTA, citric acid 모두에 대해 3회 적용에 의해 초기 방사능의 80 % 까지 제거하는 것이 가능하였다.

방사능을 100 % 수준까지 제거하기 위해서는 토양의 morphology, 토양 표면에서 물, 방사성 핵종, 제염제 사이의 흡,탈착 현상을 파악하는 것이 중요할 것으로 생각된다.

5) 결어

방사능 오염준위가 제일 높은 토양폐기물을 사용한 제염실험에 의해 전체 질량의 84% 의 토양을 환경 방출 조건으로 제염이 가능함을 파악하였다. 방사능 오염준위가 보다 낮은 토양 폐기물에 대해 제염을 적용한다면 이 보다 많은 양의 토양을 환경으로 방출할 수 있을 것으로 판단

된다.

그러나, 다량의 토양을 제염함에 따라 발생하는 2차 폐기물을 최소화하는 연구가 미비하였다. 2차 폐기물을 최소화하기 위해서는 제염제를 재 사용하는 방안이 확보되어야 한다. 또한, 제염 후 토양이 환경에 방출되었을 때 토양 중에 잔존하는 제염제는 쉽게 분해되어지는 물질을 사용하여야 한다. 이와 함께, 보다 큰 규모의 제염장치를 설계·제작 시에는 이러한 일련의 공정을 부드럽게 수행할 뿐만 아니라 수용액 중에 존재하는 점토 성분의 오염물을 물로부터 용이하게 분리하는 방안을 고려하여야 할 것이다.

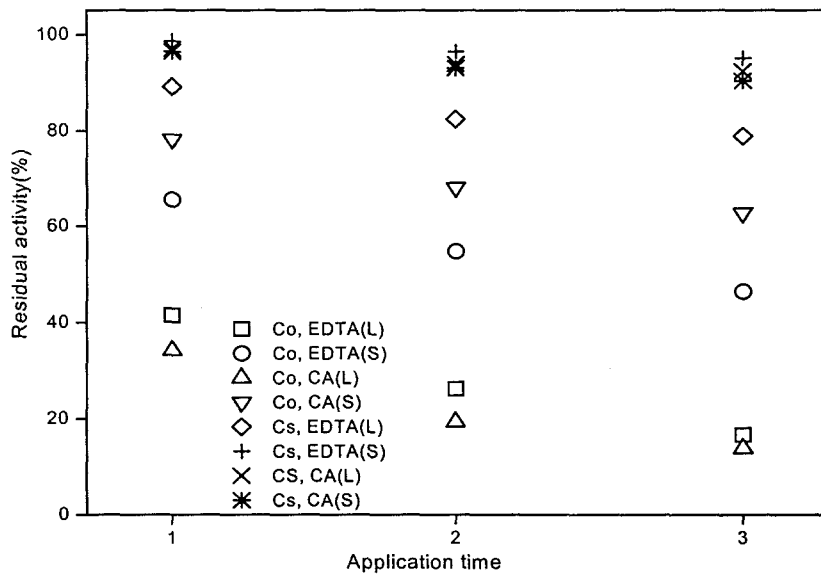


Fig. 3.5.28. A portion of residual radioactivity against the application time[(L) and (S) represent the large soil and small soil particles, respectively].

3. 결과 요약

- 용기 내에 50ml의 0.01M의 코발트용액과 10g의 TRIGA 토양을 넣었을 때, 용기내의 총 코발트 질량은 29.47 mg이고, 토양 내에 흡착된 총 코발트 량은 2.63mg이었다. 토양세척 실험결과 0.01M citric acid 용액으로 토양 내 코발트를 5차례 세척한 결과 1차 세척 시 43%, 2차 세척 시 68% 3차 세척 시 81%, 4차 세척 시 87%, 5차 세척 시 91%를 제거할 수 있었다. 반복 세척으로 발생된 세척 폐수의 부피를 감소시키기 위해 세척폐수 재사용 실험을 수행한 결과 1차 soil washing 실험의 제염효율을 100 %로 한다면, 1차 세척폐수를 다시 사용하여 2차 soil washing 실험시 의 제염효율은 60 %로 나타났다. 3차 soil washing 실험시의 제염효율은 25 %, 4차 soil washing 실험 시의 제염효율은 14 % 이었으며, 5차 soil washing 실험시의 제염효율은 3%로 나타났다. 한편, 화학 침전법으로 세척 폐액을 재생 시킨 1차 재생수를 사용하여 soil washing을 수행한 결과 97 %의 제염효율을 나타냈다. 또한 이 세척폐수를 다시 재생시킨 2차 재생수를 사용하여 soil washing을 수행한 결과 94%의 제염효율을 나타냈다. 그러므로 세척 폐수의 1회 이상 재사용은 비효율적인 반면, 재생수의 제염효과는 상당히 우수한 것으로 판단된다.
- 원자력시설 인근토양을 채취하여 토양분석을 수행한 결과 이 토양은 silt loam에 속하며, 수리 전도도는 8.46×10^{-4} cm/min 이상, 수리분산계수는 $1.5 \text{ cm}^2/\text{min}$, 코발트의 평형흡착계수는 0.3 mg/l로 나타났다. Soil flushing 법에 있어서, solvent로 물을 사용했을 때의 실험 결과 수리전도도가 2.31×10^{-3} cm/min인 토양의 제염효과가 수리전도도가 8.46×10^{-4} cm/min 인 토양에 비해 큰 것으로 나타났다. 또한 평형모델보다 토양제염 실험값에 좀 더 일치하는 비 평형 모델을 개발했다. 한편, 물을 solvent로 사용하여 수리전도도가 8.46×10^{-4} cm/min 인 토양을 제염한 결과 20 공극부피 만큼 제염 시 약 43%의 제염효과를 보였다. 그러나 citric Acid용액을 사용하였을 때에는 초기 유출액의 농도가 높고 96 % 의 제거율을 나타내었다.

- 동전기적 토양제염에 있어서, pH의 상승을 억제시키기 위해 토양컬럼 내에서 초산 완충 용액을 혼합하고 제염 실험 동안 음극 저수조에 0.1M 의 CH_3COOH 용액을 계속적으로 주입했다. 컬럼의 pH는 초기에는 4.0이었으나 실험이 끝나는 43.6 시간 후에는 단지 약 6.5로 상승하여 $\text{Co}(\text{OH})_2$ 가 형성되지 않았다. 토양 컬럼으로부터 유출량은 시간이 경과함에 따라 증가했고, 토양제염 초기 컬럼 내의 코발트는 주로 이온 이동에 의해 제거되었다. 토양제염 시험 결과, 10.0시간 후에는 토양 컬럼 내의 초기 Co^{2+} 총량의 13.1%가 제염되었고, 20.8 시간 후에는 46.8%가 제염되었다. 또한 30.1 시간 경과 후에는 71.7%가 제염되었고, 43.6시간 후에는 94.6%가 제염되었다. 또한 개발된 잔류농도 예측 모델에 의한 계산 값과 토양제염 실험에 의한 실험값은 상당히 일치했다.
- 방사능 오염준위가 가장 높은 토양폐기물을 사용한 soil washing 실험에 의해 전체 질량의 84% 의 토양을 환경 방출 조건으로 제염이 가능함을 파악하였다. 보다 방사능 오염준위가 낮은 토양 폐기물에 대해 제염을 적용한다면 이 보다 많은 양의 토양을 환경으로 방출할 수 있을 것으로 판단된다. 그러나, 다량의 토양을 제염함에 따라 발생하는 2차 폐기물을 최소화하는 연구가 미비하였다. 2차 폐기물을 최소화하기 위해서는 제염제를 재 사용하는 방안이 확보되어야 한다. 또한, 제염 후 토양이 환경에 방출되었을 때 토양 중에 잔존하는 제염제는 쉽게 분해되어지는 물질을 사용하여야 할 것으로 본다.

제 4 장 연구개발 목표달성도 및 대외 기여도

제 1 절 고방사능 건식제염 기술

1. 목표달성도

사용후핵연료 건식처리공정의 오염설비 특성과 오염설비에 따른 제염기술 및 제염요건을 파악하고, 이에 근거한 적용가능한 제염기술을 제염성능, 이차폐기물의 발생정도, 기술적용의 제한성, 원격조작 가능성 등을 고려하여 사용후핵연료 건식처리 연구개발에 공통적으로 필요한 고방사능 건식제염 단위기술로써 PFC제염, CO₂ 제염, 플라즈마 제염기술을 선정하였다. 노출표면 제염에는 CO₂분사제염기술을 주 제염기술로 선정하였으며, 표면 비노출성 오염물의 제염과 미세분진 오염물 제염에는 PFC제염 그리고 견고히 고착된 오염물 제염을 위해 Plasma제염기술을 선정하였고 이 기술은 재사용을 위한 후처리 제염기술로도 사용한다. 이러한 기술은 오염 특성에 따라 단위공정의 결합으로 혹은 단독으로 적용될 수 있다.

상기 선정된 단위기술에 대한 성능을 평가하였다. PFC제염공정에서는 6가지 다른 종류의 제염설비를 대상으로 하여 모의오염시편(UO₂+Cs-137)을 제조하여 오염입자 제거실험을 수행하여 평가한 결과, 본 연구의 제염성능 목표치(재활용, 피폭저감화, 저준위폐기물화)에 달성할 수 있음을 확인하였고, 이 조건을 만족할 수 있는 기본설계 데이터와 조업조건을 도출하였다. CO₂ 제염기술은 CO₂ snow와 CO₂ pellet 분사제염에 대한 기술개발을 수행하였다. CO₂ snow 분사제염기술 연구를 통해서는 제염대상 표면 전체에 걸쳐 제염효과를 균일하게 하고 제염대상 표면에 CO₂가 응결되는 것을 방지하여 제염효과를 2-2.5배 증진시킬 수 있는 장치를 고안하여 특허화하였으며 비고착성 오염입자의 제거조건을 확립하였다. CO₂ pellet 분사제염기술 연구를 통해서는 CO₂ pellet extruder와 분사장치를 자체 설계 제작하여 CO₂ pellet 분사제염기술 특성실험에 직접 이용하였으며, 실제 규모나 중간 규모의 장치설계 시 필요한 설계인자를 파악하였다. 플라즈마 제염기술 개발에서는 오염 핵종별(CP, FP, TRU)로 조업조건변화에 대

한 제염실험으로 최적 제염 공정을 도출하였으며, 현장에의 활용 가능한 기술 및 공정을 확보하기 위한 공정 장치의 개념 개발을 위해 공정 확보 및 기초 실험용 토치의 설계를 완료하였다. 단위공정의 성능 평가를 통하여 선정된 기술의 적용성을 확인하므로써 고방사능 오염설비에 대하여 제염하여 재활용 또는 저준위 폐기물화할 수 있는 건식제염 기술에 대한 기반을 구축하였다.

또한 고방사능 설비의 제염을 위한 잔류방사능 피폭 평가 방법론을 개발하기 위해서 먼저 고방사능 설비의 오염원 종류 및 오염특성을 분석했다. 고방사능 설비구조물에 관한 방사성핵종 확산 모델을 개발하고 이 개발된 모델을 사용하여 모델링을 수행하였다. 모델링에 의한 민감도분석결과 확산계수가 반감기 보다 오염분포에 미치는 영향이 컸다. 수분변화량을 고려하여 모델링한 결과 고려하지 않은 결과 보다 구조물 내부로 좀더 깊이 침투했다. 그리고 결론적으로 다음과 같이 잔류방사선량 평가절차를 도출하여 연구목표의 대부분을 달성했다. 먼저 오염된 구조물내의 방사성 핵종 종류 및 오염특성을 분석하고, 다음으로 개발된 모델에 의한 핵종농도 분포를 예측하고, 다음으로 작업자 및 일반공중에 대해 권고되는 선량한계(ICRP 60)에 근거한 잔류핵종의 최대허용농도를 산정하고 마지막으로 제염후의 표면오염정도가 최대허용농도기준과 부합되는 지를 판단하는 것이다. 이 방법을 이용하여 잔류방사능 피폭으로부터 안전한 고방사능 설비의 제염범위를 결정할 수 있다.

고방사능 오염물의 건식제염을 위한 제염요건과 설비개념, 단위공정의 적용성 평가 결과를 토대로 고방사성오염물(폐기물 포함)의 재사용 및 폐기물 저준위화 목적의 이송제염과 IMEF(DUPIC, SF차세대관리 포함)와 PIEF 핫셀의 보수 또는 내부설비 개조를 위한 현장제염을 위한 공정장치 개념설계 방향을 정립하였다. 이와같은 결과는 차기단계의 목표인 실증규모 공정장치 개발을 위한 연구결과를 도출해 내므로써 계획된 연구목표를 충분히 달성하였다고 사료된다.

2. 대외기여도

고방사능 건식제염기술은 해외 선진국에서도 보유하지 않은 기술로서 국내의 독창적인 사용후핵연료 건식처리 시 Hot Particulate로 오염되어 다량으로 발생하는 고방사능 오염 시설/장비의 재활용 및 폐기물의 저준위화를 위한 건식제염공정의 독자개발을 통해 후행핵연료주기 안전성 제고와 원자력 산업의 기술 파급효과에 본 연구결과의 의의가 있다.

최근 미국은 60억US\$의 제염해체 시장이 형성되었고, 영국, 프랑스 등도 대규모 제염해체 사업을 추진하고 있으며, 이 제염해체 사업은 대부분 후행핵주기시설 제염해체 및 환경복원 사업으로 추진되고 있다. 본 고방사능 건식제염기술은 후행핵연료주기 제염기술이고 또한 독창적 기술이기 때문에 해외 제염해체 사업 진출을 위한 선도기술 역할을 할 것이다.

습식 제염기술은 지난 10여년간 연구개발을 통해 상당한 기술 능력을 확보하였고, 이번에 CO₂, PFC 및 플라즈마 제염 같은 건식제염기술을 개발하게 됨으로 국내 제염해체 기술자립에 크게 기여하며, 향후 국내 제염해체 시장개방에 따른 국제 경쟁력 제고에도 기여할 것이다. 특히 PFC 제염제 합성 및 물리화학적 특성 연구를 바탕으로 사용후핵연료 분말 분진의 오염대상 재질(금속, 콘크리트, 플라스틱, 페인트 등)별, 오염특성(고착성, 비고착성, 입자크기 및 경년현상)별 건식제염 특성을 규명하므로 건식제염 기초/기반 기술 발전에 크게 기여하였다. 또한 CO₂, PFC 제염기술은 반도체 산업 등의 청정 기술로도 이용도가 많아 일반 산업에도 파급효과가 크다.

본 연구는 제염기술 자체가 열악한 방사성 환경에서의 작업자 피폭저감과 폐기물 저감에 의한 자원 재활용 목적을 위해 수행하는 것이므로 원자력 시설의 가동을 증진 및 안전성 향상뿐만 아니라 원자력 산업 전반에 걸쳐 대 국민 신뢰도 제고에 기여할 수 있다.

제 2 절 TRIGA 토양제염 단위기술 개발

1. 목표달성도

본 연구를 통해 soil washing, soil flushing, 동전기적 제염기술 등의 단위 제염기술의 적용 타당성을 확보하였다. 이 기술을 TRIGA 지역에서 채취한 토양에 실증하여 좋은 제염효율을 얻었다. 그리고, 동전기적 방법에 의한 제염 시 음극 근처의 pH 상승으로 코발트 혹은 스트론튬 수산화물의 침전이 발생하여 제염효율이 저하되었는데 초산 완충 용액과 초산을 사용하여 pH 상승을 억제시킴으로써 제염효율을 상승시켰다. KAERI 보유 TRIGA 토양폐기물을 soil washing 방법으로 제염시켰을 때 폐기물 감용율은 84 %를 나타내었다.

Soil flushing 방법에 의한 토양 제염 시, 기존의 평형모델은 공극 용액의 이동속도가 커서 실험치를 잘 모사할 수 없었다. Soil flushing 후 잔류농도를 계산할 수 있는 비 평형흡착 모델을 개발하였다.

국내 오염토양 제염기술은 부재 상태지만 본 연구를 통해 동전기적 제염, Soil Washing, Solvent Flushing 법을 선정하여 각각의 제염효율과 문제점을 파악하였고, 1988년 오염되었던 토양시료를 대상으로 제염실험을 수행하여 방사능 오염토양을 비 방사성 폐기물화 가능성을 실증하므로써 계획된 연구목표를 충분히 달성하였다고 사료된다.

2. 대외 기여도

개발된 TRIGA 토양제염 단위기술을 사용하여 KAERI 보유 TRIGA 토양폐기물에 적용 가능한 기반을 확보하였다. 이는, 국내 원자력발전소 가동 중 발생하여 폐기물 저장고에 보관 중인 토양폐기물, 의외의 방사능 누출 사고로 인해 발생될 오염토양에 적용하여 방출기준 이하의 농도로 제염하여 환경에 방출함으로써 토양폐기물 부피를 감소시키는데 이용될 수 있다. 그러나 지금까지 개발된 기술은 실험실 규모의 실험을 통한 결과이므로 앞으로 파일럿 규모 또는 실제규모의 토양에 대한 제염효율의 실증이 필요하다.

본 과제에서 개발된 기술은 원자력시설 주변의 방사성오염토양 뿐만 아

나라 김포 매립지, 난지도 등 국내 200여 개의 폐기물처리장 주변 오염토양 제염기술 개발에 기여할 수 있고, 공장지대와 LPG 지하 저장시설 또는 주유소 주변지역의 오염토양 제염기술 개발에도 기여할 수 있을 것이다.

여 백

제 5 장 연구개발 결과의 활용계획

제 1 절 고방사능 건식제염 기술

CO₂ 및 PFC 건식 제염 공정기술은 사용후핵연료 건식처리시 발생하는 고방사능 입자오염물의 제염에 가장 이용도가 큰 건식제염기술로서 1단계 연구를 통해 제염기술확보 및 기초 system의 설계 등을 수행함으로써 다음단계에서의 실증규모 내지는 실규모 공정장치 설계 및 제작, 그리고 적용기술개발을 통해 상용화 및 실용화가 가능하다.

본 기술은 DUPIC, 사용후핵연료 관리이용 기술개발, 군분리 공정개발 및 장수명핵종 전환 기술개발 실증 시설의 설계 및 운전에 기초기술로 활용할 수 있을 것이다. 또한 기타 핵물질 취급시설 및 원자력 발전시설 등의 유지·보수 및 해체 시 측정용 광학기기 및 파손되기 쉬운 고가기기에 loose 하게 오염된 방사성 입자의 제거에 활용될 수 있으며, 비원자력분야의 반도체 나 도장분야 등의 청정작업에 세척기술로 활용될 수 있다.

또한 플라즈마를 이용한 방사성 폐기물의 건식 제염 공정기술은 원자력 산업에 활용성이 큰 첨단기술로 제염공정확보 및 기초실험용 torch system의 설계를 성공적으로 수행함으로써 실증규모 공정장치 설계 및 제작에 기술 활용이 가능 함.

플라즈마 건식 제염기술은 원자력 방사성 폐기물의 제염에 적용성이 매우 큰 신기술로 외국에서도 대학이나 산업체에서 활발히 연구를 수행하고 있다. 또한 현재 추진/진행 중인 제염공정확보 및 기초실험용 torch system의 설계 연구는 곧바로 실증규모 공정장치 설계 및 제작에 곧바로 적용될 수 있을 것이다. 한편 계속적인 추가 연구를 통해 한층 강화된 방사성 폐기물 건식 처리 분야에도 적용이 가능할 것이며 산업현장에서의 적용을 목적으로 설계된 도면과 시방은 적합한 기기 판매회사와 제작 회사의 참여를 통해 곧 바로 현장 투입용 장치의 제작에 활용될 수 있고 나아가 방사성 폐기물의 제염에 직접 활용될 수 있다.

상기 건식제염기술은 기존의 습식 제염기술의 단점인 이차폐기물의 발

생이 거의 없기 때문에, 미국, 프랑스, 영국 등 세계적으로 대규모로 형성되어 있는 제염 해체 시장에 참여하거나 기술 수출을 선도할 수 있는 것으로 사료된다.

잔류방사능 평가 방법론 개발에서 설정된 기준 방사성 핵종의 구조물에서의 특성에 대한 결과는 다른 방사성 취급 시설물에서의 위해도 평가 프로그램 개발 시에 기본적인 핵종 데이터와 물리적 현상 및 기본 방법론으로 활용이 가능하게 된다. 또한 원자력 시설 내부의 고방사능 시설물의 건식 및 습식제염후의 잔류방사능의 양을 예측한 방법론 및 결과자료를 이용하여 설비나 구조물들의 제염 후 재사용시 작업자에 대한 선량한도 도출을 위한 기본자료로의 사용이 가능하다.

제 2 절 TRIGA 토양제염 단위기술 개발

본 연구를 통해 개발된 토양제염 기술은 TRIGA 해체 사업 시 발생 가능한 오염토양, 원자력연구소에 고체 방사성폐기물 형태로 drum에 보관중인 토양, 방사능 누출사고 시 발생 가능한 오염토양에 적용하여 방사성 폐기물량 저감과 환경복원에 사용될 수 있을 것이다. 특히 원자력연구소에 보관중인 오염토양에 대한 soil washing 방법의 실증실험을 통해 높은 제염효율을 얻었기 때문에 규모를 확대시키면 차후 이 토양폐기물을 비 방사성 폐기물화 하는데 직접 활용되어질 수 있다.

연구개발 결과의 활용계획은 다음과 같다

1. TRIGA 해체 사업 추진 시 발생하는 토양폐기물 제염으로 비 방사성 폐기물화
2. KAERI 내 보관중인 4628 드럼 토양 폐기물중 '88년 발생된 TRIGA 토양 폐기물은 4482 드럼이고 원연에서 발생된 토양 폐기물은 146드럼

인데 이를 제염함으로써 비 방사성폐기물화

3. 방사능 누출 및 핵사고 등 국내 환경오염 대비 토양 제염에 적용
4. TRIGA 연구로 외에 원자력연구소 내에서 발생될 토양폐기물 제염시 활용
 - 가. 연료주기시설(정련/전환시설 및 액체폐기물 저장 Lagoon) 해체
 - 나. 원자력연구소에서는 매년 약 30드럼의 토양폐기물 발생
5. 원전 및 RI 시설 부지 및 인근지역에서 발생된 토양폐기물 제염으로 비 방사성폐기물화

여 백

제 6 장 참 고 문 헌

- 2.1.1. T. Katsuoshi, "방사성폐기물의 건식제염기술(I) - Gaseous decontamination technology for radioactive waste", KAKEN Tech-News, No.55(1994).
- 2.1.2. "Decommissioning handbook", DOE (1994).
- 2.1.3. "Decontamination techniques used in decommissioning activities", NEA Task Group on Decontamination, OECD/NEA(1999).
- 2.1.4. "Decontamination and decommissioning technology assessment", DOE/OR-1051 (1993).
- 2.1.5. "Decontamination of nuclear facilities to permit operation, inspection, maintenanc, modification or plant decommissioning", IAEA Technical Reports Series No. 249 (1985).
- 2.1.6. "Decontamination of nuclear facilities other than reactors", IAEA Technical Reports Series No. 386 (1998).
- 2.1.7. "State of the art technology for deontamination and dismantling of of nuclear facilities", IAEA Technical Reports Series No.395(1998).
- 2.1.8. "Decommissioning techniques for research reactors", IAEA Technical Reports Series 373 (1994).
- 2.1.9. D.E. Fowler, P.E., "Decontamination application with freon 113", CONF- 820973, Vol.1,2 (1982).
- 2.1.10. R.Kaiser, O.K.Harling, "Enhanced removal of radioactive particles by fluorocarbon surfactant solutions", NUREG/CR-6081 (1993).
- 2.1.11. R.Kaiser, C.E.Benson, "Decontamination by cleaning with by fluorocarbon surfactant solutions", ORNL/TM-12444 (1994).
- 2.1.12. W. N. Rankin, " Savannah River Laboratory Decontamination Technology Program", (1992).
- 2.1.13. "CO₂-pellet cleaning process cuts costs", Nuclear Engineering International Feb. 1992 (1992).

- 2.1.14. K.E. Archibald, "CO₂ pellet Blasting literature Search and Decontamination Scoping Tests Report, " WINCO-1180 (1993).
- 2.1.15. C. A. Foster and P. W. Fisher, " A Centrifuge CO₂ Pellet Cleaning System", (1994).
- 2.1.16. R. L. Demmer, " Development of Simulated Contamination and Evaluation of Three Decontamination Techniques", WINCO-1188 (1994).
- 2.1.17. A. M. Rensick, "Remote Operated Vehicle Carbon Dioxide Blasting(ROVCO₂)", (1995).
- 2.1.18. "CO₂2 blasting in Europe", Nuclear Engineering International March 1995 (1995).
- 2.1.19. 望月俊介, "건식제염기술의 개발-초임계 CO₂제염기술", KAKEN Tech-News, Vol. 84 (1994).
- 2.1.20. K. Tatenuma, Y. Hishinuma, and S. Tomatsuri, "Newly developed decontamination technology based on gaseous reactions converting to carbonyl and fluoric compounds", *Nucl. Tech.*, Vol. 124, 147 (1998).
- 2.1.21. www.psfc.mit.edu
- 2.1.22. www.cerr.ucla.edu
- 2.1.23. www.lanl.gov/orgs/cipto/DTIN/open/UsrFac/plasmajetuser.html
- 2.1.24. www.ornl.gov/orcmt/capabilities/dtin023.html
- 2.1.25. www.phoenixsolution.thomasregister.com
- 2.1.26. www.anl.gov/LabDB/Current/Ext/H611-text.003.html
- 2.1.27. www.gcm.usherb.ca/crtp
- 2.1.28. www.rcl-plasma.com
- 2.1.29. www.europlasma.com
- 2.1.30. www.kobelco.co.jp
- 2.2.1. Battelle, Physical Separation and Acid Leaching: A Demonstration of Small-Arms Range Remediation at Fort Polk, Louisiana. Final report prepared for Naval Facilities Engineering Service Center(NFESC) and U.S. Army Environmental Center under contract with NFESC, Port Hueneme, CA(1997).

- 2.2.2. EPA, In-situ Soil Flushing, Engineering Bulletin, EPA/540/2-91/021 (1991).
- 2.2.3. DOE-ID, Technology Name: Biological Destruction of Tank Wastes, Technology Information Profile(Rev.2) for Pro Tech Database, TTP Reference No.: ID-121204(1993).
- 2.2.4. Hinchee, R. E., S.K. Ong, R.N. Miller. and D. C. Downey, Report to AFCEE, Brooks AFB, TX(1992).
- 2.2.5. Alleman, B., Degradation of Pentachlorophenol by Selected Species of White Rot Fungi, Ph.D. Thesis, University of Arizona(1991).
- 2.2.6. EPA, Terra Vac, In Situ Vacuum Extraction System, EPA RREL, Applications Analysis Report, Cincinnati, OH, EPA Report EPA/540/A5-89/003(1989).
- 2.2.7. EPA, Bioremediation in the Field, EPA/540/2-90-004(1990).
- 2.2.8. Dietrich, C., D. Treicher, and J. Armstrong, An Evaluation of Rotary Air Stripping for Removal of Volatile Organics from Groundwater, USAF Environmental and Service Center ESL-TR-86-46(1987).
- 3.1.1. 박현수 외, "경중수로 연계 핵연료주기 기술 개발", KAERI/RR-1325/93 (1994).
- 3.1.2. 노성기 외, "사용후핵연료 차세대관리 공정 개발", KAERI/TR-994/98(1998).
- 3.1.3. 유재형 외, "장수명핵종 소멸처리기술 개발", KAERI/RR-1717/96(1997).
- 3.1.4. 김은가 외, "PIEF조사후 시험시설(II)", KAERI/MR-313/97(1997).
- 3.2.1.1. R. Kaiser and O. K. Harling, "Enhanced removal of radioactive particles by fluorocarbon surfactant solutions", NUREG/CR-6081 (1993).
- 3.2.1.2. R. Kaiser and C. E. Benson, "Decontamination by cleaning with by fluorocarbon surfactant solutions", ORNL/TM-12444 (1994).
- 3.2.1.3. T. Katsuoshi, "방사성폐기물의 건식제염기술(I) - Gaseous decontamination technology for radioactive waste", KAKEN Tech-News, No.55(1994).

- 3.2.1.4. 望月俊介, "건식제염기술의 개발-초임계 CO₂제염기술", KAKEN Tech-News, Vol. 84 (1994).
- 3.2.1.5. K. Tatenuma, Y. Hishinuma, and S. Tomatsuri, "Newly developed decontamination technology based on gaseous reactions converting to carbonyl and fluoric compounds", *Nucl. Tech.*, Vol. 124, 147 (1998).
- 3.2.1.6. E. Kissa, "Fluorinated surfactants synthesis, properties, applications", Marcel Dekker, Inc., New York (1994).
- 3.2.1.7. Porter, et al, "Handbook of surfactants", Blackie & Son Ltd., New York (1991).
- 3.2.1.8. M.J. Rosen, "Surfactants and interfacial phenomena", John Wiley & Sons (1989).
- 3.2.1.9. K.L.Mittal, "Particles on surfaces : Detection, adhesion, and removal", Plenum Press, Vol. 1, 2, 3 (1991).
- 3.2.1.10. X. Wu, E. Sacher, and M. Meunier, "The effects of hydrogen bonds on the adhesion of inorganic oxide particles on hydrophilic silicon surfaces", *J. of Applied Physics*, 86, 1744-1748 (1999).
- 3.2.1.11. Marina Ruths and Steve Granick, "Rate-dependent adhesion between polymer and surfactant monolayers on elastic substrates, "Langmuir, 14, 1804-1814 (1998).
- 3.2.1.12. F. Zhang, A. A. Busnaina, M. A. Fury, and Shi-Qing Wang, "The removal of deformed submicron particles from silicon wafers by spin rinse and megasonics", *J. of Electronic Materials*, 29, 199-204 (2000).
- 3.2.1.13. F. Zhang, A. A. Busnaina, and G. Ahmadi, "Particle adhesion and removal in chemical mechanical polishing and post-cmp cleaning", *J. of the Electrochemical Society*, 146, 2665-2669 (1999).
- 3.2.1.14. P. R. Rennie, X. D. Chen, A. R. Mackereth, "Adhesion characteristics of whole milk powder to a stainless steel surface", *powder technology*, 97, 191-199 (1998).

- 3.2.1.15. M. Heyns, P. W. Mertens, J. Ruzyllo, M. Y. M. Lee, "Advanced wet and dry cleaning coming together for next generation", Solid State Technology, 37-47 (1999).
- 3.2.1.16. R. Sokoll and Hans-Jürgen Tiller, "Adsorption and reaction behavior of perfluoro-n-alkanes on Al₂O₃", J. of Colloid and Interface Science, 205, 489-495 (1998).
- 3.2.1.17. D.E. Fowler, P.E., "Decontamination application with freon 113", CONF- 820973, Vol.1,2 (1982).
- 3.2.1.18. C. E. Wilson, "High Pressure Freon Decontamination of Remote Equipment", HEDL-SA-3543-FP (1987).
- 3.2.1.19. L. D. Rozenberg, "Physical principles of ultrasonic technology", Vol. 1, Plenum Press (1973).
- 3.2.1.20. I. F. Stowers, "Design and performance of a high pressure spray cleaning system", CONF-800978-1 (1980).
- 3.2.2.1. D.R. Linger, "Fundamental of Dry Ice Blast Cleaning Technology", 1997 Precision Cleaning Conference (1996).
- 3.2.2.2. R. Sherman et al., " Surface Cleaning with the Carbon Dioxide Snow Jet", J. Vac. Sci. Technol. A12(4), Jul/Aug 1994 (1994).
- 3.2.2.3. W. N. Rankin, "Savannah River Laboratory Decontamination Technology Program", (1992).
- 3.2.2.4. "CO₂-pellet cleaning process cuts costs", Nuclear Engineering International Feb. 1992 (1992).
- 3.2.2.5. K.E. Archibald, "CO₂ pellet Blasting literature Search and Decontamination Scoping Tests Report", WINCO-1180 (1993).
- 3.2.2.6. C. A. Foster and P. W. Fisher, "A Centrifuge CO₂ Pellet Cleaning System", (1994).
- 3.2.2.7. R. L. Demmer", Development of Simulated Contamination and Evaluation of Three Decontamination Techniques", WINCO-1188 (1994).
- 3.2.2.8. A. M. Rensick, " Remote Operated Vehicle Carbon Dioxide Blasting(ROVCO₂)", (1995).

- 3.2.2.9. "CO₂ blasting in Europe, " Nuclear Engineering International March 1995 (1995).
- 3.2.3.1. T.J. Cotler and M.E. Elta, *IEEE Circuits and Devices*, 638(1990).
- 3.2.3.2. G. Smolinsky and D.L. Flamm, *The Plasma Oxidation of CF₄ in a Tubular-Alumina Fast-Flow Reactor*, *J. Appl. Phys.*, **50**, 7 (1979).
- 3.2.3.3. D.L. Flamm, *Measurements and Mechanisms of Etchant Production during the Plasma Oxidation of CF₄ and C₂F₆*, *Solid State Technology*, April, 109(1979).
- 3.2.3.4. E.D. Egitto, F. Emmi, and R.S. Horwath, *Plasma Etching of Organic Materials. I. Polyimide in O₂-CF₄*, *J. Vac. Sci. Technol.*, **B3**, 3 (1985).
- 3.2.3.5. M.A. Hartney, D.W. Hess, and D.S. Soane, *Oxygen Plasma Etching for Resist Stripping and Multilayer Lithography*, *J. Vac. Sci. Technol.*, **87**, 1 (1989).
- 3.2.3.6. J.C. Martz, D.W. Hess, and W.E. Anderson, *A Mass Spectrometric analysis of CF₄/O₂ plasma (Effect of Oxygen Concentration & Plasma Power)*, LA-UR 88-2751, LANL internal Report, (1988).
- 3.2.3.7. A. Jacob, *The Versatile Technique of RF Plasma Etching, Part II*, *Solid State Technol.*, June, 31(1977).
- 3.2.3.8. T. Shirafuji, W.W. Stoffels, H. Moriguchi, and K. Tachibana, *Silicon Surfaces Treated by CF₄, CF₄/O₂, and CF₄/H₂ RF Plasma Study by in situ Fourier Transformation Infrared Ellipsometry*, *J. Vac. Sci. Technol.*, **A 15**, 2, 209(1997).
- 3.2.3.9. C. J. Mogab, A.C. Adams, and D.L. Flamm, *Plasma Etching of Si and SiO₂ The Effect of Oxygen Additions to CF₄ Plasmas*, *J. Appl. Phys.*, **49**, 7, 3796(1978).
- 3.2.3.10. C.I.M. Beenakker, J.H.J. van Dommelen, and R.D.J. van de poll, *Decomposition and Product Formation in CF₄-O₂ Plasma Etching Silicon in the Afterglow*, *J. Appl. Phys.*, **52**, 1, 480(1981).
- 3.2.3.11. C. Plumb and K.R. Ryan, *A Model of the Chemical Processes*

- Occuring in CF₄/O₂ Discharges Used in Plasma Etching*, *Plasm. Chem. Plasm. Proc.*, **6**, 205(1986).
- 3.2.3.12. B.K. McMillin and M.R. Zachariah, *Two-Dimension a Imaging of CF₂ Densityby Layer-Induced Fluorescence in CF₄ Etching Plasmas in the Gaseous Electronics Conference Reference Cell*, *Vac. Sci. Technol.*, **A15**, 2 (1997) 230.
- 3.2.3.13. H. Nishino, N. Hayasaka, K. Horioka, J. Shiozawa, S. Nadahara, N. Shooda, Y. Akana, A. Sakai, and H. Okano, *Smoothing of the Si Surface Using CF₄/O₂ Down-Flow Etching*, *J. Appl. Phys.*, **74**, 1349 (1993).
- 3.2.3.14. G.S. Oehrloin, S.W. Robey, and L. Lindstrom, *Surface Processes in CF₄/O₂ Reactive Etching of Silicon*, *Appl. Phys. Lett.*, **52**, 1170 (1988).
- 3.2.3.15. W.J. Yoo, B.Y. Nam, W.S. Kim, K.S. Shin, C.O. Jung, Y.B. Koh, and M.Y. Lee, *Heterogeneous Particle Formation during Low Pressure Etching of Silicon Dioxide*, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **36**, 4971 (1997).
- 3.2.3.16. A. Jacob, *The Versatile Technique of RF Plasma Etching, Part III*, *Solid State Technol.*, April, 95 (1978).
- 3.2.3.17. W.R. Harshbarger and R.A. Porter, *Spectroscopic Analysis of R.F. Plasmas*, *Solid State Technol.*, April, 99 (1978).
- 3.2.3.18. J.W. Coburn and M. Chen, *Optical emission Spectroscopy of Reactive Plasmas: A Method for Correlating Emission Intensities to Reactive Particle Density*, *J. Appl. Phys.*, **51**, 6, 3134 (1980).
- 3.2.3.19. R. dAgostino, F. Cramarossa, S. De Benedictis, and G. Ferraro, *Spetroscopic Diagnostics of CF₄ - O₂ Plasmas during Si and SiO₂ Etching Process*, *J. Appl. Phys.*, **52**, 3, 1259 (1981).
- 3.2.3.20. J. Nakano, *Thermal Properties of a Solid-State Laser Crystal LiNdP₄O₁₂*, *J. Appl. Phys.*, **52**, 3, 1239 (1981).
- 3.2.3.21. V.M. Donnolly, *Anisotropic Etching of SiO₂ in Low-Frequency CF₄/O₂ and NF₃/Ar Plasmas*, *J. Appl. Phys.*, **55**, 1, 242(1984).

- 3.2.3.22. Y.H. Lee and M.M. Chen, *Silicon Doping Effects in Reactive Plasma Etching*, J. Vac. Sci. Technol., **B4**, 2, 468 (1986).
- 3.2.3.23. R.E. Walkup, K.L. Saenger, and G.S. Selwn, *Studies of Atomic Oxygen in O₂+CF₄ RF Discharges by Two-Photon Laser-Induced Fluorescence and Optical Emission Spectroscopy*, J. chem. Phys., **84**, 5, 2668(1986).
- 3.2.3.24. H. Kawata, Y. Takao, K. Murata, and K. Nagami, *Optical Emission Spectrometry of CF₄+O₂ Plasmas Using a New Technique*, Plasm. Chem. Plasm. Proc., **8**, 2, 189 (1988).
- 3.2.3.25. M. Iwasaki, *Kinetic Studies of the Fluorination of Uranium Oxides by Fluorine-I*, J. Inorg. Nucl. Chem., **26**, 1853 (1964).
- 3.2.3.26. G. Vandenbussche, CEA-R 2859, (1966).
- 3.2.3.27. W. C. Roman, UF₆ Plasma Chemistry Reconstitution Experiments Using High-Temperature Fluorine, Plasm. Chem. Proc., **1**, 83(1981).
- 3.3.1. ICRP, "1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection", ICRP Publication 60, Pergamon Press, Oxford, UK (1990).
- 3.3.2. IAEA, "Principles for the Exemption of Radiation Sources and Practices from Regulatory Control", Safety Series No. 89, Vienna, Austria (1998).
- 3.3.3. OECD/NEA, "Comprehensive Report of the Task Group on the Recycling, Reuse and Release of Materials from Nuclear Facilities", OECD/NEA (1996).
- 3.3.4. IAEA, "Application of Exemption Principles to the Recycle and Reuse of Materials from Nuclear Facilities", IAEA Draft Safety Guide, Safety Series No. 111-P-1.1, Vienna, Austria, (1992).
- 3.3.5. 전용범, 백상열, 박대규, "조사재시험시설 M6셀에서의 DUPIC 핵연료 공정작업 수행시 작업공간으로의 방사성물질 확산에 따른 작업자 피폭 영향 평가", KAERI/TR-870/97 (1997).
- 3.3.6. Larry L. Wetzel, "Amount and effect of moisture retention in concrete", ANST, vol. 63, pp.217-218 (1991).

- 3.3.7. J.M.Terrill, M.Richardson and A.R.Selby, "Non-linear moisture profiles and shrinkage in concrete members", Magazine of Concrete Research, vol. 38, No. 137, 220-225(1987).
- 3.3.8. L.J.Parrott, "Factors influencing relative humidity in concrete", Magazine of Concrete Research, 43, No.154, 45-52(1991)
- 3.3.9. Kenji Sakata, "A study on moisture diffusion in drying and drying shrinkage of concrete", Cement and Concrete Research, vol. 13, pp.216-224(1983).
- 3.3.10. A.Deguchi, H.Fujihara, M.Makiguchi, "*Study on migration behavior of radioactive nuclide in concrete*", Tokyo Electric Power Company, (1992).
- 3.4.1. 오원진 외, "국내 핵연료주기개발에 필요한 고방사능건식제염 기술수요 및 기술현황", KAERI/AR-581/2000 (2000).
- 3.5.1. EPA: In Situ Soil Flushing, Engineering Bulletin, EPA/540/ 2-91/021 (1991).
- 3.5.2. Brusseau, M L., and Rao, P. S. C. : The Influence of Sorbate-Organic Matter Interactions on Sorption Nonequilibrium, Chemosphere, Vol. 18, No.9/10, pp.1691-1706 (1989).
- 3.5.3. Augustijn, D. C. M., Jessup, R. E., Rao, P. S. C., and Wood A. L. : Remediation of Contaminated Soils by Solvent Flushing, Journal of Environmental Engineering, Vol. 120, No.1, pp. 42-56 (1994).
- 3.5.4. Brusseau, M. L., Jessup, R. E., and Rao, P. S. C. : Non-equilibrium Sorption of Organic Chemicals, Elucidation of Rate-Limiting Processes, Environ. Sci. Technol., Vol.25. No.1, pp.134-142 (1991).
- 3.5.5. 한정상, "환경수리지질학", 신우문화사, pp.29.(1988).
- 3.5.6. Nkedi-Kizza P., Brusseau M. L., Rao S. P. C., and Hornsby A. G. :Nonequilibrium Sorption during Displacement of Hydrophobic Organic Chemicals and ⁴⁵Ca through Soil Column with Aqueous and Mixed Solvents, Environ. Sci. Technol. Vol.23, No.7, pp.814-820(1989).

- 3.5.7. Morel, F. M. M., and Hering, J. G.: Principles and Applications of Aquatic Chemistry, Wiley, New York(1993).
- 3.5.8. Fetter, C.W., Contaminant Hydrology, Willey, New York(1993).
- 3.5.9. Pourbaix M., Atlas of Electrochemical Equilibria in Aqueous Solutions, 2nd Edition, National Association of Corrosion Engineers, Houston, Texas(1974).
- 3.5.10. Snoeyink, V. L., and Jenkins D., Water Chemistry, John Wiley & Sons Inc., New York, pp.108-114 (1980).

서 지 정 보 양 식					
수행기관보고서번호	위탁기관보고서번호	표준보고서번호	INIS 주제코드		
KAERI/RR-2131/2000					
제목 / 부제	고준위 폐기물 처리 전환 기술 개발 “고방사능 건식제염 기술 개발”				
연구책임자 및 부서명	오 원 진 핵화공연구팀				
연구자 및 부서명	연구자 : 이근우, 원취준, 정종헌, 최왕규, 김계남, 문제권 부서명 : 핵화공연구팀				
출판지	대전	발행기관	한국원자력연구소	발행년	2001
페이지	313 p.	도표	있음(○), 없음()	크기	210×297 cm
참고사항					
비밀여부	공개(○), 대외비(), __ 급비밀	보고서종류	연구보고서		
연구위탁기관	과학기술부		계약번호		
초록(15-20줄내외)	고방사능 건식제염 기술개발 연구와 관련하여 본 연구에서는 다음의 내용이 다루어졌다.				
	<ol style="list-style-type: none"> 1. 사용후 핵연료 건식처리공정으로부터 발생하는 제염대상 설비의 오염특성 및 건식제염 단위기술 적용성 평가 <ol style="list-style-type: none"> 가. 오염설비의 특성 분석 및 분류 나. 건식제염 기술 현황분석 및 고방사능 제염 적용성 분석 2. 건식제염 단위기술 성능 평가 <ol style="list-style-type: none"> 가. PFC 제염기술 나. CO₂ 제염기술 다. 플라즈마 제염기술 3. 잔류방사능 평가 방법론 개발 <ol style="list-style-type: none"> 가. 고방사능 설비 구조물에 관한 방사성 핵종 확산모델 개발 나. 잔류방사선량 평가절차 도출 4. 고방사능 건식제염 공정장치 설계방향 설정 연구 <ol style="list-style-type: none"> 가. 제염대상별 제염공정 설계기준 도출 나. 단위/복합 제염설비 개념설계 방향 정립 5. TRIGA 토양제염 단위기술 개발 <ol style="list-style-type: none"> 가. Soil washing 단위 기술 개발 나. Soil flushing 단위기술 개발 다. 동전기적 토양제염기술 개발 라. TRIGA 부지 토양폐기물 제염 적용성 평가 				
주제명 키워드	고방사능오염설비, 건식제염, PFC제염, CO ₂ 분사제염, 플라즈마제염, 잔류방사능, 제염공정설계기준, 토양제염, 동전기적 토양제염				

BIBLIOGRAPHIC INFORMATION SHEET					
Performing Org. Report No.		Sponsoring Org. Report No.		Standard Report No.	INIS Subject Code
KAERI/RR-2131/2000					
Title / Subtitle		Development of High-Level Radioactive Waste Treatment and Conversion Technologies "Dry Decontamination Technology Development for Highly Radioactive Contaminants"			
Project Manager and Department		Won Zin OH/Nuclear Chemical Engineering R&D Team			
Researcher and Department		K. W. LEE, H. J. WON, C. J. JUNG, W. K. CHOI, G. N. KIM, J. K. MOON Nuclear Chemical Engineering R&D Team			
Publication Place	Taejon	Publisher	Korea Atomic Energy Research Institute	Publication Date	April 1999
Page	313 p.	Ill. & Tab.	Yes(○), No ()	Size	210×297 cm
Note					
Classified	Open(○), Restricted(), ___ Class Document		Report Type	Research Report	
Sponsoring Org.		MOST		Contract No.	
Abstract(15-20 Lines)		The followings were studied through the project entitled "Dry Decontamination Technology Development for Highly Radioactive Contaminants".			
<ol style="list-style-type: none"> 1. Contaminant Characteristics Analysis of Domestic Nuclear Fuel Cycle Projects(NFCP) and Applicability Study of the Unit Dry-Decontamination Techniques <ol style="list-style-type: none"> A. Classification of contaminated equipments and characteristics analysis of contaminants B. Applicability study of the unit dry-decontamination techniques 2. Performance Evaluation of Unit Dry Decontamination Technique <ol style="list-style-type: none"> A. PFC decontamination technique B. CO₂ decontamination technique C. Plasma decontamination technique 3. Development of Residual Radiation Assessment Methodology for High Radioactive Facility Decontamination <ol style="list-style-type: none"> A. Development of radioactive nuclide diffusion model on highly radioactive facility structure B. Obtainment of the procedure for assessment of residual radiation dose 4. Establishment of the Design Concept of Dry Decontamination Process Equipment Applicable to Highly Radioactive Contaminants 5. TRIGA soil unit decontamination technology development <ol style="list-style-type: none"> A. Development of soil washing and flushing technologies B. Development of electrokinetic soil decontamination technology 					
Subject Keywords (About 10 words)		nuclear fuel cycle waste, contaminants characteristics, dry-decontamination, PFC decontamination, CO ₂ decontamination, plasma decontamination, residual radiation assessment, soil decontamination, soil washing, soil flushing, electrokinetic soil decontamination			