

원자력연구시설 제염해체기술 개발

**Decontamination and Decommissioning Technology
Development for Nuclear Research Facilities**

원자력연구시설 제염기술 개발

**Decontamination Technology Development for Nuclear Research
Facilities**

한국원자력연구원

과 학 기 술 부

제 출 문

과 학 기 술 부 장 관 귀 하

본 보고서를 “원자력연구시설 제염해체기술 개발”과제(세부과제 “원자력연구시설 제염기술 개발”)의 보고서로 제출합니다.

2007. 6.

연구기관명	: 한국원자력연구원
연구책임자	: 최 왕 규
연구원	: 정 종 현 오 원 진 박 현 수 원 휘 준 김 계 남 송 평 섭 문 제 권 박 진 호 황 성 태 최 윤 동 황 두 성 김 기 홍 윤 두 병

최종연구보고서 초록

과제관리 번호	D-5-1	해당단계 연구기관	한국원자력연구원	단계구분	1/1
연구사업명	중 사업명	원자력연구개발사업			
	세부 사업명	원자력 중장기 계획사업			
연구과제명	대과제명	원자력연구시설 제염해체기술개발			
	세부과제명	원자력연구시설 제염기술개발			
연구기관명 (연구책임자)	한국 원자력연구원 (최왕규)	해당단계 연구인력	내부 : 19.15 M·Y	연구 구 비	정부 : 3,016,000 천원
			외부 : 23.50 M·Y		민간 : 천원
			계 : 42.65 M·Y	계 : 3,016,000 천원	
위탁연구	연구기관: 한양대학교		연구책임자: 김용수		
	연구기관: 충남대학교		연구책임자: 강 용		
국제공동연구	상대국명:		상대국연구기관명:		참여기업
색 인 어 (각5개이상)	한글: 건식제염, CO ₂ 펠렛, PFC 분사, 플라즈마, 용융, 감용, 재활용				
	영어: dry decontamination, CO ₂ pellet, PFC spray, plasma, melting, volume reduction, recycling				
요약(연구결과를 중심으로 개조식 500자 이내)				면수	416 p.
<p>1. 연구개발목표 및 내용</p> <ul style="list-style-type: none"> • 고방사능 오염시설 현장 건식제염 기술개발 및 실증 <ul style="list-style-type: none"> - 고방사능 건식제염 기본 공정 개발 - 고방사능 건식제염 장치 개발 및 기술 실증 • 베타/감마/우라늄 오염 해체폐기물 용융제염기술 개발 <ul style="list-style-type: none"> - 금속성 해체폐기물 용융제염 요소기술 평가 - 실험실 규모 베타/감마/우라늄 오염 해체폐기물 용융제염 성능 평가 - 베타/감마 해체폐기물 용융제염 파일럿규모 기술실증 <p>2. 연구결과</p> <ul style="list-style-type: none"> - 고방사능 오염시설 현장건식제염기술(CO₂ 펠렛 분사제염 및 PFC 분사제염) 개발 및 실증을 위한 독창적 건식제염 공정장치 개발 - IMEF M4 hot cell 내에서의 실증시험을 통한 현장 건식제염기술 성능 및 적용성 입증 - 금속성 해체폐기물 용융 시 오염핵종의 분배특성 파악 - 파일럿 규모 용융제염 기술실증을 통한 기술의 안전성, 경제성 및 적용성 확보 - 금속성 해체폐기물 용융제염 사업 적용에 필요한 시설 인허가 자료 확보 <p>3. 기대효과 및 활용방안</p> <ul style="list-style-type: none"> - DUPIC, 사용후핵연료 관리이용 기술개발, 방사학분리 공정개발 등 고방사능 실증 시설의 설계, 유지보수 및 해체 시 제염기술로 활용 - 원자력 발전시설 및 핵물질 취급시설의 유지·보수, 해체 및 해체 폐기물 처리/처분사업에 기술 활용 - TRIGA 연구로 및 우라늄 변화시설 해체 발생 금속성 폐기물 및 기타 핵연료주기 기술 개발 과정에서 발생하는 금속폐기물 감용 및 재활용에 기술 활용 					

요 약 문

I. 제 목

원자력연구시설 제염기술 개발

II. 연구개발의 목적 및 필요성

1. 고방사능 건식제염기술 개발

DUPIC, 사용후핵연료 관리·이용 기술개발, 고준위처리·전환기술 개발 등 사용후 핵연료처리 공정개발은 고방사성 핵물질의 건식처리기술로서 고방사성 건식 핫셀에서 원격조작으로 처리되는 공정이기 때문에 고방사능 건식 제염기술을 적용하는 것이 매우 중요하며, 해외 선진국들은 대부분 습식처리 기술을 이용하고 있기 때문에 고방사능 건식제염 기술은 해외에서 조차 아직 기술이 미비하고, 사용후핵연료 건식처리기술을 추진하고 있는 우리나라에 필요한 기술로 독자적 기술개발이 요구된다. 또한 국내 고방사성 핵물질 건식처리기술 개발에 있어서 공통 애로기술인 고방사능 제염기술의 확보, 고방사성 시험실증예의 직접 활용 및 제염이 용이한 고방사성 핵물질처리 공정장치 개발의 실현을 통해 국제 경쟁력 있는 국내고유 후행핵연료주기 기술자립에 기여하며, 국내 취약한 고방사성 핵물질 취급기술, 원격조작기술 및 핫셀 유지보수기술의 선진화에도 기여할 수 있는 고방사능 건식제염기술의 확보가 필요하다.

2. 금속성 해체폐기물 용융제염기술 개발

미국, 영국 프랑스 등 해외 원자력 선진국들은 역할이 끝난 원자력시설의 제염·해체를 대규모로 추진하고 있어 제염·해체사업이 가장 중요한 원자력 산업의 하나가 되고 있다. 현재 우리나라도 국내 최초의 원자로인 TRIGA 연구로 및 우라늄변환시설의 퇴역으로 제염·해체 사업이 진행되고 있다. 이러한 원자력 시설의 해체 시에는 방대한 양의 해체 폐기물이 발생하므로 효과적인 폐기물의 처리 대책이 시급한 실정이다. 해체폐기물 중 금속성 폐기물의 자체처분 및 재활용 방안이 해체폐기물 관리방안의 하나로 고려될 수 있다. 금속성 해체폐기물은 적절한 처리를 통해 자체처분 하거나 재활용한다면 처분 대상 폐기물량의 감소로 인한 처분 비용의 절감

및 처분 안전성의 증대뿐만 아니라 자원의 재활용성을 증대시킨다는 점에서 매우 긍정적인 측면을 가지고 있으므로 금속성 폐기물의 감용 및 재활용을 위한 기술로써 가장 효율적이라고 알려지고 있는 용융제염기술 개발이 절실히 요구된다.

III. 연구개발의 내용 및 범위

1. 고방사능 건식제염기술 개발

국내 후행핵연료주기개발에 필요한 고방사능 원자력연구시설 건식제염기술로서 고방사능 시설 제염대상 오염물의 특성을 고려하여 CO₂ pellet 분사제염, PFC 건식제염 및 플라즈마 제염기술을 선정하였다. CO₂ pellet 분사제염 및 PFC 건식제염 공정특성을 파악하기 위하여 기존 제염공정의 문제점을 분석하였으며, 이를 고려하여 개선한 장치를 설계/제작하였다. 이들 제염공정을 개발할 목적으로 물리적으로 오염시킨 다양한 형태의 모사 시편 및 연구로 및 우라늄변환시설에서 직접 인출한 오염 시편의 제염실험을 통해 제염 성능을 평가하였다. 이를 기초로 고화체 검사시설의 hot cell 및 IMEF hot cell 현장에서 CO₂ pellet 분사제염 및 PFC 분사제염 실증시험을 수행하여 제염공정의 핫셀 현장 적용성 및 제염 성능을 평가하였다. 플라즈마 건식제염기술 개발을 위하여 오염 핵종의 플라즈마 건식 제염 실험 및 QMS/AES/OES 진단 기구를 이용한 플라즈마 진단을 통해 제염공정 성능 및 적용성을 평가하였다.

본 연구의 내용 및 범위는 다음과 같다.

- 고방사능 건식제염 기본 공정 개발
 - CO₂ 제염장치 특성 연구
 - PFC 건식제염 적용 공정장치 및 플라즈마 제염 단위제염공정 도출 연구
- 고방사능 건식제염 장치 개발
 - CO₂ 제염 현장제염 단위 성능실험
 - PFC 건식제염 현장제염 적용 성능실험 및 플라즈마 건식제염기술 안정화 연구
- 고방사능 건식제염 기술 실증
 - CO₂ 제염 현장제염 실증시험
 - PFC 건식제염 현장제염 실증실험 및 제염 대상 시설/기기별 플라즈마 제염 최적 공정 확보

2. 금속성 해체폐기물 용융제염기술 개발

방사성 금속 해체폐기물 감용 및 재활용기술 개발을 위하여 우선적으로 금속성 해체폐기물의 특성을 조사하고 이에 대한 용융제염 공정 개념을 확립하였다. 금속성 해체폐기물의 용융제염 특성을 파악하기 위해 용융 대상 금속과 방사성 핵종간의 반응 특성 및 슬래그와 방사성 핵종간의 반응 특성 등에 대한 열역학적 고찰을 수행하였다. 이를 기초로 실험실적 규모의 아크 용융로를 설계/제작하였으며, 이를 사용하여 금속폐기물의 용융 특성과 핵종의 분배 특성에 대한 실험을 용융 대상 금속의 종류, 슬래그의 종류 및 조성의 변화에 따라 수행하여 최적 용융제염 조건을 확립하였다. 또한 고온 용융시설을 활용한 파일럿 규모(200 kg/batch)의 용융제염 기술 실증을 수행하여 금속성 해체폐기물의 감용을 위한 용융제염 성능 및 경제성을 평가하였다.

본 연구의 내용 및 범위는 다음과 같다.

- 금속성 해체폐기물 용융제염 요소기술 평가
 - 금속성 해체폐기물 특성 및 해체폐기물 재활용 시나리오 조사
 - 금속성 해체폐기물 용융제염 요소기술 평가 및 용융제염 설비개념 확립
- 베타/감마/우라늄 오염 해체폐기물 용융제염 실험장치(10kg/batch) 설계/제작/시운전 및 성능 시험
 - 실험실 규모 용융제염 실증장치 설계/제작/시운전
 - 베타/감마/우라늄 오염 해체폐기물 용융특성 및 핵종 분배특성 파악
- 베타/감마 해체폐기물 용융제염 파일럿규모 기술실증
 - KAERI 고온 용융 고화시설을 활용한 베타/감마 해체폐기물 파일럿규모 (200kg/batch) 실증
 - 우라늄 오염 해체폐기물 용융제염을 위한 고온 용융시설 보완방안 도출

IV. 연구개발결과

1. 고방사능 건식제염기술 개발

사용후핵연료 건식처리 연구개발에 공통적으로 필요한 고방사능 건식제염기술의 목표인 ‘고방사능 오염시설 현장건식제염기술 개발 및 실증’을 위하여 독창적인 건식제염 공정장치를 개발하였고, 고방사능 IMEF M4 hot cell 내에서의 실증시험을 통해 제염성능 및 현장 적용성을 입증하였다.

- CO₂ 분사제염장치를 고방사성 Hot Cell에서 사용 시 문제인 동결 및 불연속 분

사 등을 feed screw, idle roller, air-lock feeder 등의 부가 설비를 개발하여 창의적으로 해결하였으며, 유압구동식 진공흡입헤드 및 vacuum cup 개발로 제염과 동시에 오염입자를 회수함으로써 재오염을 방지할 수 있는 독창적 CO₂ 분사제염 장치를 개발하였다. 또한 고방사성 건식 Hot Cell의 다양한 오염재질(금속, 콘크리트, 플라스틱 등)과 오염형태(분진, 화합물, 오일형 등)에 따른 최적 제염공정을 도출하였고, 방사성 Hot시편 시험과 IMEF hot cell 실증시험을 통해 우수한 제염성능을 확인하였다.

- 고 방사능 입자로 오염된 표면에 효과적으로 적용 가능하며, 제염, 회수, 여과 공정 및 건식 hot cell 내에서 적용이 가능하도록 독창적으로 고안한 건식 증류 공정이 복합된 PFC 제염장치를 개발하였으며, 고방사능 IMEF M4 hot cell 내에서 Hot 실증시험을 통해 제염공정의 고방사능 현장 적용성 및 제염 성능(제염 효율 90% 이상)을 확보하였다. 또한 고방사성 연구시설 Hot cell 내부 및 장치 표면에 오염된 Hot particulate의 오염특성을 파악하고, 3 μm 입자에 대하여 85% 이상의 포집율을 갖는 고효율 싸이클론 및 hot particulate 제거장치를 개발하였다.
- 오염 핵종의 플라즈마 건식 제염 실험 및 QMS/AES/OES 진단 기구를 이용한 플라즈마 진단을 통해 플라즈마 건식 제염의 최적 공정과 식각율을 도출해 낼 수 있었으며 플라즈마 제염 메커니즘이 불화반응에 의한 것이라는 것을 밝혀내었다. 또한 오염이 산화막 형태로 모재 표면에 고착되어 있을 때를 모사한 시편을 이용한 제염을 통하여 강하게 고착되어 있는 경우의 식각율을 도출할 수 있었고 최적 공정 또한 도출해 낼 수 있었다. 시설의 벽면 혹은 대면적 기기류의 경우 기존의 진공플라즈마가 아닌 상압플라즈마를 적용하였을 때 반응활성종(radical)의 농도가 100~1000배 이상 높으며 저온에서 방전이 가능하므로 모재에 손상을 주지 않고 공정이 가능한 것으로 평가되었다.

2. 금속성 해체폐기물 용융제염기술 개발

전기아크방식의 용융제염 시험을 통해 금속성폐기물 용융특성 및 주괴와 슬래그로의 핵종(Co, Cs, U) 분배특성을 파악하였다. 방사성 핵종들은 슬래그의 조성에 따라 철강재의 주괴 내에 잔류하거나 슬래그나 분진 쪽으로 이동하였다. 우라늄은 용융 시 철보다 용이하게 산소와 결합하여 매우 안정한 산화물을 형성하였다. 따라서 슬래그의 조성에 따라 약간의 차이는 있으나 철강재의 주괴에서 이탈하여 슬래그

층으로 이동함이 확인되었다. 이와는 반대로 Co는 철보다 쉽게 산화되지 않으므로, 선택적 산화에 의해 합금으로 존재하는 금속으로부터 방사성 Co가 제거될 가능성은 매우 희박하다. 한편으로 Cs은 열역학적 자유에너지, 증발 압력 및 금속과의 용해성을 고려할 때 용융체로부터 휘발되어 대부분이 슬래그와 분진에 존재하였다. 그러나 이러한 핵종의 분배 특성은 용융시키고자하는 금속의 종류, 슬래그의 종류 및 조성과 밀접한 관계를 갖고 있음을 확인하였다.

방사성 물질로 오염된 금속성 폐기물의 용융처리 시 슬래그 층 내에서는 휘발성 핵종(Cs)이나 금속과 반응하지 않는 핵종(U)들이 슬래그의 구성성분과 화학적 결합을 통하여 보다 안정화되고, 슬래그 층으로의 이동이 어려운 방사성 핵종(Co)은 금속 모재 상에 균일하게 희석되어, 금속 모재(주괴)의 비방사능을 감소시킴으로써 제염이 이루어짐을 알 수 있었다. 결과적으로, Cs에 대해서는 약 100이상, U에 대해서는 10~100의 제염계수를 얻을 수 있었다. 또한 고온 용융시설을 활용한 파일럿 규모(200kg/batch)의 용융제염 기술실증을 성공적으로 수행하여 금속성 해체폐기물의 감용을 위한 용융제염 성능(감용율 1/7) 및 경제성(연간 2,500 드럼 처리 시 직접처분에 비해 약 90억원 절감)을 확인하였다.

V. 연구개발결과의 활용계획

1. 고방사능 건식제염기술 개발

고방사능 건식제염기술은 방사능 시설 오염 및 보수대비 현장 건식 제염 기술로 활용이 가능하다. 특히, 입자성 오염 부품, 전자제품 및 시설에 대해 오염부위를 선택적으로 제염하는데 활용할 수 있다. 따라서 사용후핵연료 관리이용기술 개발 등과 관련된 실증 시설의 설계 및 운전 시, 그리고 기타 핵물질 취급시설 및 원자력 발전 시설 등의 유지보수 및 해체 시에 건식제염기술을 활용할 수 있을 뿐만 아니라 반도체나 도장 산업 등 일반 청정산업에 세척기술로 활용이 가능하다.

2. 금속성 해체폐기물 용융제염기술 개발

용융제염기술은 원자력 시설의 해체 (TRIGA 연구로 및 우라늄 변환시설) 사업에서 발생한 약 350 ton의 금속성 해체폐기물 및 핵연료주기 이용과 관련한 연구개발 과정에서 발생하는 다량의 금속성폐기물 감용 및 재활용 기술로 활용할 계획이다.

여백

S U M M A R Y

I. Project Title

Decontamination Technology Development for Nuclear Research Facilities

II. Objective and Importance of the Project

1. High Radioactive Dry Decontamination Technology Development

The spent fuel treatment processes such as DUPIC, a technology development for management and utilization of spent fuel and transmutation, etc. are the process operated remotely in a hot cell as the dry treatment technologies of high radioactive nuclear material so that it is important to apply the dry decontamination technologies to the inside of these hot cells contaminated with high radioactive materials. In the advanced countries, the development of dry decontamination technologies are insufficient enough to be applied because the wet treatment technologies are generally used. Therefore, the development of the dry decontamination technologies indigenous to Korea is required because our country goes ahead with dry treatment technologies of the spent fuel.

The dry decontamination technologies for the high radioactive material are required for contributing to the technological independence of the back end nuclear fuel cycle indigenous to Korea and advancing the technology for the treatment of high radioactive nuclear materials, for the remote control and for the maintenance and repair of a hot cell through the security of high radioactive decontamination technology as the common bottleneck technology in the development of dry treatment of high radioactive materials, the direct application of the technology by demonstration and the development of the decontamination process equipment for the treatment of high radioactive nuclear materials.

2. Metal Waste Melting Decontamination Technology Development

Decontamination and decommissioning(D&D) becomes one of the most important nuclear industries in the developed countries including USA, UK and France where the D&D for the retired nuclear facilities have been carried out on a large scale. D&D of

the retired TRIGA MARK II and III research reactors and uranium conversion plant at Korea Atomic Energy Research Institute(KAERI) has already been under way. Prompt countermeasure should be taken to deal with a lots of wastes generated by dismantling the retired nuclear facilities.

The recycle or self disposal of metallic wastes can be considered as one of the waste management options under the circumstances of the absence of a waste disposal site in Korea and the capacity limitation of the temporary waste storage facility in KAERI. The recycle or self disposal of the metallic wastes through an appropriate treatment have the merit from the positive view point of the increase in resource recyclability as well as the decrease in the amount of wastes to be disposed resulting the reduction of disposal cost and the enhancement of disposal safety. Therefore, the development of melting decontamination technology, which has been known as the most effective technology for the volume reduction and recycling of the metallic wastes, is required.

III. Scope and Contents of the Projects

1. High Radioactive Dry Decontamination Technology Development

Considering the contaminant characteristics of the objects to be decontaminated in high radioactive facility, the technologies of CO₂ pellet blasting, PFC dry decontamination and plasma decontamination have been selected as the dry decontamination technologies for high radioactive nuclear research facilities to be required in the development of domestic back end nuclear fuel cycle. In order to grasp process characteristics for CO₂ pellet blasting and PFC dry decontamination, the frailty of existing decontamination processes was analysed and the revised process equipments were designed and fabricated. For the purpose of developing the decontamination processes, the decontamination efficiencies were evaluated by means of the decontamination tests using various surrogate specimen contaminated physically and the real specimen taken from the research reactor and a uranium conversion plant. On the basis of the test results, on-site applicability and the decontamination performance were evaluated by carrying out the demonstration of CO₂ pellet blasting and PFC spray

decontamination in a hot cell of the Solid Waste Examination Facility(SWEF) and the Irradiated Material Examination Facility(IMEF). In order to develop plasma dry decontamination technology, the decontamination process efficiency and the applicability were evaluated by means of plasma diagnosis using plasma dry decontamination experiment for contamination nuclide and QMS/AES/OES diagnosis apparatus.

The contents and the scope of this study are as follows:

- Basic process development for high radioactive dry decontamination
 - Characteristic study on the CO₂ blasting decontamination equipment
 - Study on the PFC dry decontamination process equipment
 - Study on the security of unit plasma decontamination process
- Development of high radioactive dry decontamination equipments
 - Performance tests for the CO₂ blasting decontamination
 - On-site applicability and performance tests for the PFC dry decontamination
 - Study on the stabilization of plasma decontamination process
- Demonstration of high radioactive dry decontamination technology
 - On-site demonstration of the CO₂ blasting decontamination
 - On-site demonstration of the PFC dry decontamination
 - Security of the optimum plasma decontamination process for each facility and component to be decontaminated

2. Metal Waste Melting Decontamination Technology Development

In order to develop the volume reduction and the recycling technology for radioactive dismantled metal wastes, the characteristics of dismantled metal waste was investigated and the process concept for melting decontamination of the metal waste was established. The thermodynamic considerations were performed on the reaction characteristics between metal to be melted and radionuclide and between slag and radionuclide to understand the characteristics of melting decontamination of metal wastes. The melting tests were performed according to a kind of metal and a slag and the variation of slag concentration to investigate the melting characteristics of metal wastes and the distribution of radionuclide and establish the optimum condition of melting decontamination using lab-scale arc melting system. The pilot scale(200kg/batch) demonstration of melting decontamination was carried out using high temperature melting

facility at KAERI and the performance and the economical aspects were evaluated for the volume reduction of dismantled metal wastes by melting decontamination

The contents and the scope of this study are as follows:

- Evaluation of key technology for melting decontamination of dismantled metal wastes
 - Investigation of the characteristics of dismantled metal wastes and the scenarios for recycling of dismantled wastes
 - Evaluation of key technology for melting decontamination of dismantled metal wastes and the establishment of concept of melting decontamination facility
- Design, fabrication and trial operation of test equipment for the melting decontamination of dismantled wastes contaminated with beta-gamma radionuclide and uranium and the performance test
 - Design, fabrication and trial operation of lab-scale melting decontamination test equipment
 - Investigation of melting and radionuclide distribution characteristics for melting of dismantled wastes contaminated with beta-gamma radionuclide and uranium
- Pilot scale demonstration for melting decontamination of dismantled wastes contaminated with beta-gamma radionuclide
 - Pilot scale demonstration for melting decontamination of dismantled wastes contaminated with beta-gamma radionuclide using high temperature melting facility at KAERI
 - Suggestion of complementary scheme for high temperature melting facility for melting decontamination of dismantled wastes contaminated with uranium

IV. Results and Proposal for Application

1. High Radioactive Dry Decontamination Technology Development

The originative dry decontamination process equipments have been developed for the development and demonstration of in-situ dry decontamination technology applicable to the nuclear facility contaminated with high radioactive material, which is a goal of high radioactive dry decontamination technology required in common in the R&D on dry treatment of spent fuel. The performance and on-site applicability for dry decontamination

was verified by means of technology demonstration in high radioactive IMEF M4 hot cell.

- The originative CO₂ pellet blasting equipment was developed by improving additional components such as feed screw, idle roller and air-lock feeder to clear up the problems of freezing and discontinuity of blasting and by adopting pneumatically operated vacuum suction head and vacuum cup to prevent recontamination by collecting contaminant particulates simultaneously with the decontamination. The optimum decontamination process was established according to the kind of materials such as metal, concrete and plastic and the type of contaminants such as particulate, fixed chemical compound and oil. An excellent decontamination performances were verified by means of the lab-scale hot test with radioactive specimen and the technology demonstration in IMEF hot cell.
- The PFC dry decontamination equipment applicable to the surface contaminated with high radioactive particulate was developed. This equipment consists of the unit processes such as spray, collection, filtration and dry distillation designed originatively applicable to inside of dry hot cell. Through the demonstration of PFC spray decontamination process in IMEF hot cell, we secured on-site applicability and the decontamination efficiency more than 90 %. And also, we grasped the characteristics of hot particulate contaminated with the inside of high radioactive hot cell and developed the cyclone with the collection efficiency more than 85% for 3 μm particles and hot particulate removal equipment.
- Through the plasma dry decontamination experiment for contamination nuclide and QMS/AES/OES diagnosis apparatus, the optimum decontamination process and etching rate were established and it could be found that the plasma decontamination mechanism is caused by fluoridation reaction. We could obtain the etching rate of fixed contamination adhered strongly to the substrate surface using the specimen simulated substrate surface in the form of oxide film. It was evaluated that an atmospheric pressure plasma can be applied for a broad surface of the facility due to the concentration of reaction radical by 100 to 1, 000 times higher than that in the low vacuum plasma and operation without process chamber in low temperature effectively.

2. Metal Waste Melting Decontamination Technology Development

We investigated the characteristics of dismantled metal waste melting and the radionuclide(Co, Cs, U) distribution into ingot and slag by melting decontamination experiments using electric arc melter. The radionuclide was remained in the ingot or transferred to the slag and the dust according to the composition of slag. Uranium was formed so stable oxide by binding with the oxygen easily compared to iron that it moves to the slag phase from the ingot phase even though there is a little difference in the degree of transfer. On the contrary, the possibility to remove Co by selective oxidation from the ingot phase hardly exists because the Co does not oxidize easier than iron. On the other hand, the Cs was almost remained in the slag and the dust phases by volatilization from the melt with the consideration of thermodynamic free energy, vapor pressure and solubility. It could be known that the decontamination is accomplished through volatilization of the radionuclide(e.g. Cs), transportation of the radionuclide(e.g. U) as an oxide to the slag, and homogeneous distribution of the radionuclide(e.g. Co) in the ingot resulting the reduction of specific radioactivity during the course of melting of the metallic wastes contaminated with radioactive materials. Consequently, we obtained the decontamination factors greater than 100 for Cs and of 10~100 for uranium. The pilot scale(200kg/batch) demonstration for melting decontamination was carried out successfully using high temperature melting facility at KAERI. The volume reduction factor of 1/7 and the economical feasibility of the melting decontamination were verified.

V. Application Plan for the Research Results

1. High Radioactive Dry Decontamination Technology Development

High radioactive dry decontamination technology can be used as an in-situ dry decontamination technology which prepares for the contamination and the maintenance and repair of radioactive facilities. Especially, the process can be utilized to decontaminate selectively the components, facilities and the electronic devices contaminated with particulate materials. The dry decontamination technologies can be

applied in the design and operations of demonstration facility related to the technology for spent fuel management, maintenance and repair, and decommissioning of the nuclear material treatment facility and nuclear power plant.

2. Metal Waste Melting Decontamination Technology Development

The melting decontamination technology will be utilized on the volume reduction and recycling of large quantity of metal wastes produced in the course of R&D activities related to the nuclear fuel cycle as well as the 350 tons of radioactive metal waste generated from the retired TRIGA research reactors and a uranium conversion plant.

여백

CONTENTS

Chapter 1	Introduction	1
Chapter 2	Technology Development Status	3
Section 1	High Radioactive Dry Decontamination Technology Development	3
1.	CO ₂ Decontamination Technology	3
2.	PFC Decontamination Technology	19
3.	Plasma Decontamination Technology	22
4.	High Radioactive Particulate Removal Technology	35
Section 2	Metal Waste Melting Decontamination Technology Development	38
1.	Technology Overview	38
2.	Overseas Research and Development Status	39
3.	Domestic Research and Development Status	48
4.	Assessments on the Survey Results	48
Chapter 3	Contents and Results of R&D	51
Section 1	High Radioactive Dry Decontamination Technology Development	51
1.	CO ₂ Decontamination Technology	51
2.	PFC Decontamination Technology	121
3.	Plasma Decontamination Technology	160
4.	High Radioactive Particulate Removal Technology	213
Section 2	Metal Waste Melting Decontamination Technology Development	299
1.	Introduction	299
2.	Evaluation of Key Technology for Metal Waste Melting Decontamination	300
3.	Lab-scale Melting Decontamination Technology Development	336
4.	Pilot-scale Demonstration of Melting Decontamination Technology	381
5.	Complementary scheme for high temperature melting facility for melting decontamination of uranium contaminated with metal waste	396
6.	Summary	399

Chapter 4	Degree of Attainment for R&D Goals and External Contribution	403
Section 1	Degree of Attainment for R&D Goals	403
1.	High Radioactive Dry Decontamination Technology Development	403
2.	Metal Waste Melting Decontamination Technology Development	403
Section 2	Degree of External Contribution	404
1.	High Radioactive Dry Decontamination Technology Development	404
2.	Metal Waste Melting Decontamination Technology Development	404
Chapter 5	Application Plan for R&D Results	405
Section 1	Technological Point of View	405
Section 2	Economical Point of View	405
Section 3	Social Point of View	406
Chapter 6	References	407

목 차

제 1 장 서 론	1
제 2 장 국내·외 기술 개발 현황	3
제 1 절 고방사능 건식제염기술 개발	3
1. CO ₂ 제염기술	3
2. PFC 제염기술	19
3. 플라즈마 제염 기술	22
4. 고방사능 분진 제거기술	35
제 2 절 금속성 해체폐기물 용융제염기술 개발	38
1. 기술개요	38
2. 해외의 연구개발 현황	39
3. 국내의 연구개발 현황	48
4. 기술개발 조사사례에 대한 평가	48
제 3 장 연구개발 수행 내용 및 결과	51
제 1 절 고방사능 건식제염기술 개발	51
1. CO ₂ 제염기술 개발	51
2. PFC 제염기술 개발	121
3. 플라즈마 제염 기술 개발	160
4. 고방사능분진처리 기술 개발	213
제 2 절 금속성 해체폐기물 용융제염기술 개발	299
1. 서문	299
2. 금속성 해체폐기물 용융제염 요소기술 평가	300
3. 실험실적 용융제염 단위기술 개발	336
4. 파일럿규모 용융제염 기술 실증	381
5. 우라늄 오염 폐기물 용융제염을 위한 고온 용융시설 보완 방안	396
6. 결론	399

제 4 장	연구개발목표 달성도 및 대외 기여도	403
제 1 절	연구개발 목표 달성도	403
1.	고방사능 건식제염기술 개발	403
2.	금속성 해체폐기물 용융제염기술 개발	403
제 2 절	대외 기여도	404
1.	고방사능 건식제염기술 개발	404
2.	금속성 해체폐기물 용융제염기술 개발	404
제 5 장	연구개발결과의 활용 계획	405
제 1 절	기술적 측면	405
제 2 절	경제적 측면	405
제 3 절	사회적 측면	406
제 6 장	참고문헌	407

표 목 차

Table 2.1.1.1 Property of CO ₂	3
Table 2.1.1.2 Solubility chemistry of common cleaning agents	12
Table 2.1.1.3 Hardness of cleaning media	14
Table 2.1.2.1 Principals of PFC decontamination	20
Table 2.1.2.2 Comparison of Physical and chemical properties of PFC solution	20
Table 2.1.3.1 Properties of the principal fluoride compound	23
Table 2.2.2.1 Summary of large scale ferrous melt consolidation /refining programs	40
Table 2.2.2.2 Nuclear power reactors in service in Germany	42
Table 2.2.2.3 Nuclear power and other reactors decommission or under decommissioning	43
Table 2.2.2.4 Steel scrap likely to be yielded through decommissioning of the old plants under the BMFT's responsibility	45
Table 3.1.1.1 Properties of CO ₂ pellet blasting decontamination equipment	58
Table 3.1.1.2 Chemical composition of the low-carbon steel surface	74
Table 3.1.1.3 Chemical composition of the low-carbon steel surfaces before and after decontamination	77
Table 3.1.1.4 Internal zone of IMEF Hot cell	98
Table 3.1.1.5 Results of the demonstration for CO ₂ pellet Cold decontamination	107
Table 3.1.1.6 Results of the demonstration for CO ₂ pellet Cold decontamination(continued)	108
Table 3.1.1.7 Results of the hot demonstration test for CO ₂ pellet blasting decontamination	117
Table 3.1.2.1 Turbidity of PFC solution	146
Table 3.1.2.2 Comparison of PFC distillation efficiency	147
Table 3.1.2.3 Decontamination factors(weight loss method)	149
Table 3.1.2.4 Decontamination factors of specimens	152
Table 3.1.3.1 UF ₆ fragmentation pattern	172
Table 3.1.3.2 Etching rate by the basic material and radionuclide	191
Table 3.1.3.3 Radioactive concentration of specimens before and after first decontamination test	200
Table 3.1.3.4 Second decontamination test : dose variation versus time	201
Table 3.1.3.5 Radioactive concentration of specimens before and after third	

decontamination test	201
Table 3.1.3.6 Surface etching by atmospheric plasma	210
Table 3.1.4.1 Component of hot particulate generated in hot cells of nuclear facilities	217
Table 3.1.4.2 Boiling point of radionuclide in hot cell	220
Table 3.1.4.3 Size of Hot particulate according to process	223
Table 3.1.4.4 Components of hot particulate according to process	223
Table 3.1.4.5. Dimensions of high-efficiency cyclone design	226
Table 3.1.4.6 Restriction condition for design of hot particulate treatment equipment	234
Table 3.1.4.7 Dimensions of high-efficiency cyclone design and actual cyclone design	237
Table 3.1.4.8 Restriction condition of equipment design	239
Table 3.1.4.9 Merits and demerits of membranes	273
Table 3.1.4.10 Restriction of condition of equipment design	276
Table 3.1.4.11 Comparative characteristic of tested membrane	278
Table 3.2.2.1 The recycling and reuse scenarios for waste materials from decommissioning of nuclear facilities	307
Table 3.2.2.2 Twelve of possible scenarios for further study	308
Table 3.2.2.3 Completed and ongoing projects	322
Table 3.2.2.4 New project initiatives	323
Table 3.2.2.5 Recycling balance in the CARLA	324
Table 3.2.2.6 Distribution of ¹³⁴ Cs following steel melting	333
Table 3.2.3.1 The composition of flux agent and experimental condition for aluminum melting	342
Table 3.2.3.2 Chemical forms of surrogate nuclide and experimental variables	352
Table 3.2.3.3 The composition of the slag former for the melting of stainless steel	353
Table 3.2.3.4 The composition of the slag former for the melting of carbon steel	354
Table 3.2.3.5 The composition of the flux agent and experimental variables	364
Table 3.2.3.6 The results of the activity for the duralumin and aluminum pipe	368
Table 3.2.3.7 Physical properties and experimental condition of the surrogate nuclide and natural uranium	369
Table 3.2.3.8 Composition and type of the slag former	370
Table 3.2.3.9 Results of the decontamination for the melting of stainless steel wastes from Uranium Conversion Plant in KAERI	380

Table 3.2.4.1	Total waste generated by dismantle the retired research reactor II	381
Table 3.2.4.2	Amount of radioactive metal waste generated by dismantle the retired research reactor II	382
Table 3.2.4.3	Facility operation cost in melting of radioactive metal wastes	384
Table 3.2.4.4	Supplementary cost for operation of high temperature melting facility	385
Table 3.2.4.5	Economic assessment per drum(operation rate 50%) [unit: 1,000 ₩]	387
Table 3.2.4.6	Test sequence of pilot plant	392
Table 3.2.4.7	Analysis item	392

그림 목 차

Fig. 2.1.1.1 Phase diagram of carbon dioxide	5
Fig. 2.1.1.2 Carbon dioxide pressure-enthalpy diagram	6
Fig. 2.1.1.3 Procedure for overall process of dry ice blasting	6
Fig. 2.1.1.4 Penetration depth of cleaning particles for viscous drag separation	7
Fig. 2.1.1.5 CO ₂ cleaning mechanism caused by an impact of dry-ice particles	8
Fig. 2.1.1.6 Cleaning mechanism of dry ice cleaning	9
Fig. 2.1.1.7 Cleaning mechanism caused by the instant presence of liquid CO ₂	11
Fig. 2.1.3.1 Basic principles of the plasma decontamination technology	24
Fig. 2.2.2.1 Release standards currently considered for metallic materials	44
Fig. 3.1.1.1 Schematic diagram of the CO ₂ pellet blasting equipment	54
Fig. 3.1.1.2 Schematic diagram of the CO ₂ pellet extruder	55
Fig. 3.1.1.3 Manufacturing steps of CO ₂ pellet extruder	55
Fig. 3.1.1.4 Head for trapping particles	56
Fig. 3.1.1.5 CO ₂ pellet blasting gun and nozzles	57
Fig. 3.1.1.6 Al ₂ O ₃ decontamination(non-polishing)	62
Fig. 3.1.1.7 Al ₂ O ₃ decontamination(polishing)	62
Fig. 3.1.1.8 Al ₂ O ₃ decontamination(5mm-5Kgf/cm ²)	62
Fig. 3.1.1.9 Al ₂ O ₃ decontamination(5mm-7Kgf/cm ²)	63
Fig. 3.1.1.10 Al ₂ O ₃ decontamination(7mm-5Kgf/cm ²)	63
Fig. 3.1.1.11 Al ₂ O ₃ decontamination(7mm-7Kgf/cm ²)	64
Fig. 3.1.1.12 Decontamination of sticking CsNO ₃ (non-polishing)	65
Fig. 3.1.1.13 Decontamination of sticking CsNO ₃ (non-polishing)	65
Fig. 3.1.1.14 Decontamination of non-sticking CsNO ₃ (polishing)	66
Fig. 3.1.1.15 Decontamination of sticking CsNO ₃ (polishing)	66
Fig. 3.1.1.16 Decontamination of non-sticking CsNO ₃ (3mm-5Kgf/cm ²)	66
Fig. 3.1.1.17 Decontamination of non-sticking CsNO ₃ (3mm-7Kgf/cm ²)	67
Fig. 3.1.1.18 Decontamination of non-sticking CsNO ₃ (7mm-5Kgf/cm ²)	67
Fig. 3.1.1.19 Decontamination of non-sticking CsNO ₃ (7mm-7Kgf/cm ²)	68
Fig. 3.1.1.20 Decontamination of sticking CsNO ₃ (3mm-5Kgf/cm ²)	68
Fig. 3.1.1.21 Decontamination of sticking CsNO ₃ (3mm-7Kgf/cm ²)	69
Fig. 3.1.1.22 Decontamination of sticking CsNO ₃ (7mm-5Kgf/cm ²)	69
Fig. 3.1.1.23 Decontamination of sticking CsNO ₃ (7mm-7Kgf/cm ²)	70

Fig. 3.1.1.24 Surface shape of the compressor before and after decontamination	71
Fig. 3.1.1.25 Grease oil decontamination	71
Fig. 3.1.1.26 Oil decontamination(5mm-5Kgf/cm ²)	72
Fig. 3.1.1.27. Oil decontamination(5mm-7Kgf/cm ²)	72
Fig. 3.1.1.28 Oil decontamination(7mm-5Kgf/cm ²)	73
Fig. 3.1.1.29 Oil decontamination(7mm-7Kgf/cm ²)	73
Fig. 3.1.1.28 SEM picture on the surface of low-carbon steel before contamination	74
Fig. 3.1.1.29 Microscope pictures before contamination for substrate surface of low-carbon steel	75
Fig. 3.1.1.30 Microscope pictures after contamination for substrate surface of low-carbon steel	75
Fig. 3.1.1.31 Microscope pictures after decontamination for substrate surface of low-carbon steel	76
Fig. 3.1.1.32 SEM pictures of the low-carbon steel surface contaminated by H ₂ O before and after decontamination : (A) before ; (B) after(136m/s, 60s)	77
Fig. 3.1.1.33 SEM pictures of the low-carbon steel surface contaminated by 3%NaCl before and after decontamination : (A) before ; (B) after(136m/s, 60s).	78
Fig. 3.1.1.34 SEM pictures of the low-carbon steel surface contaminated by H ₂ SO ₄ before and after decontamination : (A) before ; (B) after(136m/s, 60s)	79
Fig. 3.1.1.35 SEM pictures of the low-carbon steel surface contaminated by HNO ₃ before and after decontamination : (A) before ; (B) after(136m/s, 60s)	81
Fig. 3.1.1.36 Roughness(Ra) values of wear scars on the surface of low-carbon steel created at different blasting velocities during 10s	82
Fig. 3.1.1.37 Roughness(Ra) values of wear scars on the surface of low-carbon steel created at different blasting velocities during 30s	82
Fig. 3.1.1.38 Roughness(Ra) values of wear scars on the surface of low-carbon steel created at different blasting velocities during 120s	83
Fig. 3.1.1.39 Sublimation of dry-ice pellets exposed to ambient condition	84
Fig. 3.1.1.40 Effect of nozzle-to-substrate distance on impact force per unit area	85
Fig. 3.1.1.41 Effect of pellet mass flow rate on impact force per unit area	85
Fig. 3.1.1.42 Cooling of various substrate surfaces by dry-ice pellet blasting.	86
Fig. 3.1.1.43 Effect of blasting parameters on depainting rate	87
Fig. 3.1.1.44 Effect of blasting parameters on depainting rate	88
Fig. 3.1.1.45 Effect of blasting parameters on depainting rate	89
Fig. 3.1.1.46 Depainting rates for various substrates	90

Fig. 3.1.1.47 Removal rates of various coatings	91
Fig. 3.1.1.48 Removal of oil, rust, residues	91
Fig. 3.1.1.49 Variation of noise level with respect to blasting distance(background noise: 65dB)	92
Fig. 3.1.1.50 Effect of basting pressure on noise level (background noise: 65dB)	92
Fig. 3.1.1.51 30 ton Hoist for Cask Handling and 30 ton Transfer Cart	95
Fig. 3.1.1.52 Cask Lifting Yoke and Jib Crane for Fuel Handling	95
Fig. 3.1.1.53 In-cell Crane(capacity : 1 ton) and Inter-cell Transfer Cart	96
Fig. 3.1.1.54 Structural diagram of internal IMEF Hot cell	96
Fig. 3.1.1.55 Internal structure of IMEF Hot cell	97
Fig. 3.1.1.56 Internal zone of IMEF Hot cell	98
Fig. 3.1.1.57 Demonstration equipment of CO ₂ Pellet blasting decontamination	99
Fig. 3.1.1.58 Nozzle head for trapping particles	100
Fig. 3.1.1.59 Al ₂ O ₃ decontamination(non-polishing)	101
Fig. 3.1.1.60 Al ₂ O ₃ decontamination(polishing)	101
Fig. 3.1.1.61 Al ₂ O ₃ decontamination(5mm-7Kgf/cm ²)	102
Fig. 3.1.1.62 Al ₂ O ₃ decontamination(7mm-7Kgf/cm ²)	102
Fig. 3.1.1.63 Al ₂ O ₃ decontamination(pellet size : 5mm)	103
Fig. 3.1.1.64 Al ₂ O ₃ decontamination(pellet size : 7mm)	103
Fig. 3.1.1.65 Al ₂ O ₃ decontamination(pellet size : 5mm)	104
Fig. 3.1.1.66 Al ₂ O ₃ decontamination(pellet size : 7mm)	104
Fig. 3.1.1.67 Schematic diagram for the demonstration equipment of CO ₂ pellet parameter	105
Fig. 3.1.1.68 Demonstration equipment of CO ₂ pellet parameter(a) and blasting decontamination(b)	105
Fig. 3.1.1.69 The effect of pellet size on the static component of the impact force ...	106
Fig. 3.1.1.70 The effect of working distance on the static component of the impact force	106
Fig. 3.1.1.71 Result of the demonstration test of Cold decontamination(Non-polishing)	108
Fig. 3.1.1.72 Result of the demonstration test of Cold decontamination(polishing)	108
Fig. 3.1.1.73 Result of the demonstration test of Cold decontamination(scratch-0.1mm)	109
Fig. 3.1.1.74 Result of the demonstration test of Cold decontamination(scratch-0.2mm)	109
Fig. 3.1.1.75 Result of the demonstration test of Cold decontamination(variation of the decontamination versus blasting time)	109
Fig. 3.1.1.76 Result of the demonstration test of Cold decontamination(smooth and	

scratch specimens)	110
Fig. 3.1.1.77 Demonstration test of Cold decontamination	111
Fig. 3.1.1.78 Demonstration test of Hot cell decontamination(the inspection facility of the hardening material)	113
Fig. 3.1.1.79 Demonstration test of Hot cell decontamination(IMEF facility)	114
Fig. 3.1.1.80 Result of the demonstration test of decontamination(A: variation of blasting time B: variation of specimens)	116
Fig. 3.1.1.81 Result of the demonstration test in CO ₂ pellet blasting decontamination ·	118
Fig. 3.1.2.1 FT-IR spectra under various concentration of PFC solution	123
Fig. 3.1.2.2 The surface potential change of surrogate contaminants(Eu ₂ O ₃) at various solution pHs	124
Fig. 3.1.2.3 UV spectra of PFC solution under various surfactant concentration.	124
Fig. 3.1.2.4 Schematic diagram of PFC ultrasonic decontamination system	125
Fig. 3.1.2.5 Schematic diagram of PFC ultrasonic decontamination equipment	126
Fig. 3.1.2.6 Photographs of PFC ultrasonic decontamination equipment	126
Fig. 3.1.2.7 Experimental procedure of PFC ultrasonic decontamination method	127
Fig. 3.1.2.8 Schematic diagram of the PFC spray decontamination process	128
Fig. 3.1.2.9 Draft of PFC spray and distillation skid	128
Fig. 3.1.2.10 Photograph of PFC spray and distillation skid	129
Fig. 3.1.2.11 Draft of vacuum cup	129
Fig. 3.1.2.12 Vacuum cup	130
Fig. 3.1.2.13 Draft of the improved PFC spray and distillation skid	130
Fig. 3.1.2.14 Improved PFC spray and distillation skid	131
Fig. 3.1.2.15 Draft of the PFC spray, vacuum cup and collection equipment used for the demonstration of PFC spray decontamination in a hot cell of IMEF	131
Fig. 3.1.2.16 PFC spray, vacuum cup and collection equipment used for the demonstration of PFC spray decontamination in a hot cell of IMEF	132
Fig. 3.1.2.17 Photograph of a vacuum cup support	133
Fig. 3.1.2.18 Photograph of a decontamination unit used for the demonstration of PFC spray method in a hot cell of IMEF	133
Fig. 3.1.2.19 Photograph of a smear kit(before assembly)	134
Fig. 3.1.2.20 Photograph of a smear kit(after assembly)	134
Fig. 3.1.2.21 Remained portion of contaminants according to the application time for 3 kinds of decontamination solution	135
Fig. 3.1.2.22 Photographs of surrogate specimens, (1) no scratch, (2) linear scratch and	

Fig. 3.1.2.42 Photographs showing (a) the overview of the decontamination demonstration system, decontamination of (b) disk specimen and (c) the screw type specimen	154
Fig. 3.1.2.43 Photographs showing (a) the connection between a vacuum cup and the flexible hose, (b) the suction of PFC solution and (c) the movement of vacuum cup	155
Fig. 3.1.2.44 Photographs showing (a) the connection between a filtration and the distillation unit and, (b) the purification of spent PFC solution by the filtration and the distillation unit	156
Fig. 3.1.2.45 Smear test by the manipulator, (a) connection between the smear paper supporter and manipulator holder, (b) fixing of smear paper supporter and (c) smear before and after decontamination	157
Fig. 3.1.2.46 Decontamination of M4 hot cell, (a) connection between the spent PFC collection equipment and power supply,(b) decontamination preparation, (C) decontamination scene, where the white letters represent the smearing points and (d) the collection of the spent PFC solution	158
Fig. 3.1.3.1 Etching rate of UO_2 in $80\%CF_4/20\%O_2$ plasma with $5\%N_2$ addition	163
Fig. 3.1.3.2 Co etching rate vs. substrate temperature under 220 W r.f. power. (CF_4/O_2 plasma gas 100 sccm, reaction time: 120 min.)	165
Fig. 3.1.3.3 Etching rate of metallic Co vs. temperature and gas	165
Fig. 3.1.3.4 Photograph of Co specimen before and after reaction	167
Fig. 3.1.3.5 Mo etching rate vs. substrate temperature under 220 W r.f. power. (CF_4/O_2 plasma gas 100 sccm, reaction time: 120 min.)	167
Fig. 3.1.3.6 Mo etching rate vs. plasma gas	168
Fig. 3.1.3.8 QMS results of the discharge products from CF_4/O_2 plasma.(total flow rate: 50sccm, O_2 mole fraction: 20%)	170
Fig. 3.1.3.9 QMS results of the discharge products from CF_4/O_2 plasma on UO_2 powder. (total flow rate: 50sccm, substrate temp.: $280^\circ C$, RF power: 300W)	171
Fig. 3.1.3.10 Differential AES spectrum of Co before and after etching reaction	173
Fig. 3.1.3.11 Differential AES spectrum of Mo before and after etching reaction	174
Fig. 3.1.3.12 Results of OES analysis	175
Fig. 3.1.3.13 Manufacture of reproduced specimens contaminated	177
Fig. 3.1.3.14 Reproduced specimens contaminated before and after reaction and OM photographs(SUS+Co)	178
Fig. 3.1.3.15 Etching rate of Co membrane oxidized versus time	179

Fig. 3.1.3.16 Results of XPS analysis(wide scan)	180
Fig. 3.1.3.17 Results of XPS analysis(narrow scan)	181
Fig. 3.1.3.18 Reproduced specimens contaminated before and after reaction and OM photographs (SUS+U)	183
Fig. 3.1.3.19 Etching rate of Co membrane oxidized versus time	184
Fig. 3.1.3.20 Results of XPS analysis(wide scan)	185
Fig. 3.1.3.21 Results of XPS analysis(narrow scan)	186
Fig. 3.1.3.22 Reproduced specimens contaminated before and after reaction and OM photographs (INCONEL + Co)	187
Fig. 3.1.3.23 Etching rate of Co membrane oxidized versus time	188
Fig. 3.1.3.24 Results of XPS analysis(wide scan)	189
Fig. 3.1.3.25 Results of XPS analysis(narrow scan)	190
Fig. 3.1.3.26 Reproduced specimens contaminated before and after reaction and OM photographs (INCONEL+U)	192
Fig. 3.1.3.27 Etching rate of Co membrane oxidized versus time	193
Fig. 3.1.3.28 Results of XPS analysis(wide scan)	194
Fig. 3.1.3.29 Results of XPS analysis(narrow scan)	195
Fig. 3.1.3.30 SUS pipe-1	198
Fig. 3.1.3.31 SUS plate-1	199
Fig. 3.1.3.32 Aluminium plate	199
Fig. 3.1.3.33 Steel pipe	199
Fig. 3.1.3.34 Variation of radioactive concentration versus reaction time	202
Fig. 3.1.3.35 Variation of radioactive concentration analyzed with γ -spectroscopy	202
Fig. 3.1.3.36 Principle of arc plasma torches (left: current-carrying arc, right: transferred arc)	204
Fig. 3.1.3.37 Principle of a corona discharge	205
Fig. 3.1.3.38 Principle of dielectric barrier discharge	206
Fig. 3.1.3.39 RF plasma torch (Teckna Plasma System Inc.)	207
Fig. 3.1.3.40 APPJ design	208
Fig. 3.1.3.41 Cold plasma torch design	208
Fig. 3.1.4.1 Shape of hot particulate contaminated in hot cell	221
Fig. 3.1.4.2 Size of hot particulate photographed by SEM and OM	222
Fig. 3.1.4.3 Schematic diagram of hot particulate treatment equipment	226
Fig. 3.1.4.4 Hot particulate treatment equipment	227
Fig. 3.1.4.5 Cyclone attaching sub cone above particulate collection box	229

Fig. 3.1.4.6 Collection efficiency of cyclone versus particulate size	230
Fig. 3.1.4.7 Collection efficiency of cyclone versus inflow rate of particulate	231
Fig. 3.1.4.8 Collection efficiency of cyclone versus vortex finder length	231
Fig. 3.1.4.9 Collection efficiency of cyclone with sub-cone versus particulate	232
Fig. 3.1.4.10 Outline of hot particulate treatment equipment	233
Fig. 3.1.4.11 Layout and inside structure of hot cell	235
Fig. 3.1.4.12 SEM pictures for size of hot particulate generated on each process in hot cell	236
Fig. 3.1.4.13 Hot particulate removal process outline	238
Fig. 3.1.4.14 Cyclone dimensions	238
Fig. 3.1.4.15 Structure of equipment for removal of hot particulate	239
Fig. 3.1.4.16 Collection box of hot particulate	240
Fig. 3.1.4.17 Bag/HEPA filter	240
Fig. 3.1.4.18 Manufactured equipment for removal of hot particulate	241
Fig. 3.1.4.19 Aerodynamic particle sizer model 3310	242
Fig. 3.1.4.20 Experiment outline for removal of particulate	242
Fig. 3.1.4.21 Collection efficiency of cyclone on vortex finder 28mm	244
Fig. 3.1.4.22 Collection efficiency of cyclone on vortex finder 49mm	244
Fig. 3.1.4.23 Collection efficiency of cyclone on vortex finder 75mm	245
Fig. 3.1.4.24 Cut size along S/D and flow rate	246
Fig. 3.1.4.25 Cut size along (h-S)/D and flow rate	246
Fig. 3.1.4.26 Collection efficiency of Bag/HEPA filters	247
Fig. 3.1.4.27 Collection efficiency on temperature ascent in cyclone	248
Fig. 3.1.4.28 Pressure drop along flow rate in cyclone	248
Fig. 3.1.4.29 The equipment covered with vinyl for cold demonstration	249
Fig. 3.1.4.30 Connection diagram of CO ₂ pellet decontamination equipment and equipment for removal of hot particulate	250
Fig. 3.1.4.31 The improved equipment for removal of hot particulate	251
Fig. 3.1.4.32 The improved equipment for removal of hot particulate with cover	252
Fig. 3.1.4.33 Collection efficiency as a function of the particle size for vortex finder 35 cm	254
Fig. 3.1.4.34 Collection efficiency as a function of the particle size for vortex finder 65 cm	254
Fig. 3.1.4.35 Collection efficiency as a function of the particle size for vortex finder 100cm	255

Fig. 3.1.4.36 Pressure drops of the cyclone at different inlet flow rates	255
Fig. 3.1.4.37 Effect of the temperature on the cyclone collection efficiency	256
Fig. 3.1.4.38 Collection efficiency as a function of the humidity with different inlet flow rates	256
Fig. 3.1.4.39 Cut size diameters versus the pressure drop at different vortex finder length	257
Fig. 3.1.4.40 Correlation between the Stokes number and the Reynolds number	257
Fig. 3.1.4.41 Demonstration experiment of the improved equipment for removal of hot particulate	258
Fig. 3.1.4.42 Stirred cell for basic experiment	261
Fig. 3.1.4.43 Process diagram for PFC filter experiment	261
Fig. 3.1.4.44 Removal efficiency of membrane for mimic particle	262
Fig. 3.1.4.45 Removal efficiency of PVDF according to pressure	263
Fig. 3.1.4.46 Removal efficiency of PVDF according to particle size	264
Fig. 3.1.4.47 Removal efficiency of PP according to pressure	265
Fig. 3.1.4.48 Removal efficiency of Ceramic membrane according to pressure	266
Fig. 3.1.4.49 Removal efficiency of ceramic membrane according to particulate size	266
Fig. 3.1.4.50 Flux of DVDF according to time and pressure	267
Fig. 3.1.4.51 Flux of PVDF according to time and particulate size	268
Fig. 3.1.4.52 Flux of PP according to time	269
Fig. 3.1.4.53 Flux of PP according to time and pressure	269
Fig. 3.1.4.54 Flux of PP according to time and pressure	270
Fig. 3.1.4.55 Flux of ceramic according to time and pressure	271
Fig. 3.1.4.56 Flux of ceramic according to time and particulate size	272
Fig. 3.1.4.57 Comparison of membrane price	273
Fig. 3.1.4.58 Process diagram of PFC filtration equipment	274
Fig. 3.1.4.59 Changes of filter pore structure after exposure in α -radioactivity environment	279
Fig. 3.1.4.60 Filtration equipment manufactured to purify PFC decontamination waste solution	280
Fig. 3.1.4.61 Particle concentration in PFC(PF-5070) vs Turbidity	280
Fig. 3.1.4.62 Flux of PFC solvent by (a) 1.4 μ m, (b) 0.2 μ m, (c) and (d) 1.4 μ m and 0.2 μ m filter	281
Fig. 3.1.4.63 Changes of the permeate flux as a function of time under different pressure and concentrations for primary filter(1.4 μ m filter)	282

Fig. 3.1.4.64 Changes of the permeate flux as a function of time under different pressure and concentrations for final filter(0.2 μ m filter)	283
Fig. 3.1.4.65 Changes of the permeate flux as a function of time under different pressure and concentrations for full path(1.4 and 0.2 μ m filter)	283
Fig. 3.1.4.66 Changes of the removal efficiency as a function of time under different pressure	284
Fig. 3.1.4.67 Variations of the removal efficiency as a function of time under different pressure and concentrations	285
Fig. 3.1.4.68 Connection diagram of PFC decontamination equipment and PFC filtration equipment	287
Fig. 3.1.4.69 The diagram of filter-system	288
Fig. 3.1.4.70 Filter separation by manipulator	288
Fig. 3.1.4.71 Design diagram of PFC filtration equipment	289
Fig. 3.1.4.72 Connection of PFC filtration equipment and vacuum cup	290
Fig. 3.1.4.73 Connection of PFC filtration equipment and PFC decontamination equipment	291
Fig. 3.1.4.74 The improved PFC filtration equipment	291
Fig. 3.1.4.76 Flux of PFC solvent ; (a) Previous and (b) Optimized equipment	292
Fig. 3.1.4.76 Permeate volume of PFC solvent as a function of pressure in PFC filtration equipment	292
Fig. 3.1.4.77 Flux of 0.3g/L PFC waste solution as a function of time	293
Fig. 3.1.4.78 Permeate volume of PFC waste solution	293
Fig. 3.1.4.79 Removal efficiency of mock particles by (a)previous and (b)optimized filtration equipment	294
Fig. 3.1.4.80 Permeate volume of PFC solvent at 200 kPa	294
Fig. 3.1.4.81 Demonstration experiment of the improved PFC filtration equipment	295
Fig. 3.2.2.1 EC stainless steel LLW arisings	303
Fig. 3.2.2.2 EC other steel LLW arisings	303
Fig. 3.2.2.3 EC aluminium LLW arisings	304
Fig. 3.2.2.4 EC copper LLW arisings	304
Fig 3.2.2.5 Stainless steel canister for a nitrified waste	312
Fig. 3.2.2.6 CIDBOX - cast iron box for disposal of wastes	314
Fig. 3.2.2.7 Various structure of 500 liter drum	315
Fig. 3.2.2.8 Schematic of ISO container	316
Fig. 3.2.2.9 The removal mechanism of radioactive nuclides by melting	325

Fig. 3.2.3.1 Photo of the bench-scale arc furnace (10kg/batch)	339
Fig. 3.2.3.2 Schematic of the electric arc furnace	341
Fig. 3.2.3.3 The melting sample of the aluminum with flux A or D(5wt%)	344
Fig. 3.2.3.4 The melting sample of the aluminum with flux B or C (5wt%)	344
Fig. 3.2.3.5 Typical XRD pattern for the slag	345
Fig 3.2.3.6 Effect of flux composition on the weight of the slag	346
Fig. 3.2.3.7 Effect of the flux concentration on the distribution of cobalt in the ingot & slag phases	347
Fig. 3.2.3.8 Effect of the flux concentration on the distribution of Cesium in the ingot & slag phases	349
Fig. 3.2.3.9 Effect of the flux concentration on the distribution of Strontium in the ingot & slag phases	350
Fig. 3.2.3.10 The distribution of surrogate nuclides (Flux A, 9wt%). (I : Ingot, S : Slag, D : Dust)	350
Fig. 3.2.3.11 Procedure of the stainless steel melting	355
Fig. 3.2.3.12 Results of XRD analysis for the slag generated by melting	355
Fig. 3.2.3.13 SEM photographs of the slags generated by stainless steel melting	356
Fig. 3.2.3.14 Effects of the concentration of the slag former on the slag formation ..	357
Fig. 3.2.3.15 Effects of the concentration of the slag former on the distribution of cobalt	357
Fig. 3.2.3.16 Effects of the kinds of slag former on the distribution of cobalt	358
Fig. 3.2.3.17 Effects of the concentration of the slag former on the distribution of strontium	359
Fig. 3.2.3.18 Effects of the kinds of slag former on the distribution of cesium	360
Fig. 3.2.3.19. Effects of the slag basicity on the slag formation.	361
Fig. 3.2.3.20. Effects of the slag basicity on the distribution of the surrogate nuclides in the carbon steel melting.	361
Fig. 3.2.3.21. The distribution of the nuclides in the melting with SF-C8(SF-C8, 10wt%).	362
Fig. 3.2.3.22. Effects of the kinds of slag former on the distribution of the nuclides.	363
Fig. 3.2.3.23 The example of the ingot and slag generated by the aluminum melting	365
Fig. 3.2.3.24 Effect of flux type on the distribution of cobalt in ingot, slag and dust phases	365

Fig. 3.2.3.25 Effect of flux type on the distribution of cesium in ingot, slag and dust phases	366
Fig. 3.2.3.26 Samples of the duralumin and aluminum pipe from TRIGA MARK- II , III	367
Fig. 3.2.3.27 Effects of the slag basicity on the distribution ratio of cerium in the slag and ingot	372
Fig. 3.2.3.38 Effects of the amount of the slag former on the distribution ratio of cerium in the slag and ingot phase	374
Fig. 3.2.3.39 Effects of the slag basicity on the distribution ratio of uranium oxide	374
Fig. 3.2.3.40 The relationship between the amount of the slag former and the distribution ratio of uranium oxide	375
Fig. 3.2.3.41 Effects of slag type on the distribution ratio of uranium oxide in the slag phase	378
Fig. 3.2.3.42 Amount of distributed natural uranium between ingot and slag	379
Fig. 3.2.3.43 Distribution ratio(mass in slag/mass in ingot) of natural uranium	379
Fig. 3.2.3.44 Photograph of ingot generated by melting	380
Fig. 3.2.4.1 Economic assessment per drum of pilot plant (operation rate : 50%)	388
Fig. 3.2.4.2 Economic assessment per drum of pilot plant (operation rate : 100%)	388
Fig. 3.2.4.3 An assumed generation of radioactive metal waste of dismantling 1100MWe PWR	391
Fig. 3.2.4.4 Melting photograph of pilot plant	393
Fig. 3.2.4.5 Test result of temperature profile during the demonstration	394
Fig. 3.2.4.6 Test result of CEM profile during the demonstration	395
Fig. 3.2.4.7 Test result of RMS profile during the demonstration	395

제 1 장 서 론

DUPIC, 사용후 핵연료 차세대관리, 장수명 핵종전환 등 사용후 핵연료처리 공정개발은 고방사성 핵물질의 건식처리기술로서 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 조차 아직 기술이 미비하고, 사용후 핵연료 건식처리기술을 추진하고 있는 우리나라에 필요한 기술로 독자적 기술개발이 요구된다. 이를 위하여 원자력 중장기 연구개발과제로 수행중인 DUPIC, 사용후 핵연료 차세대관리, 장수명 핵종전환, 핵연료주기시설운영 등의 과제에서 고방사능 제염기술개발 요건을 받아 국내 고방사성 핵물질 건식처리의 공통 애로기술인 고방사능 제염기술의 확보, 고방사성 시험실증에의 직접 활용 및 제염이 용이한 고방사성 핵물질처리 공정장치를 개발하는데 역점을 두었다.

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 조사되었으며, 이러한 제염대상물에 대하여 제염성능, 이차폐기물의 발생정도, 기술 적용의 제한성, 원격조작 가능성 등 여러 인자들을 고려한 기술의 장단점 측면에서 비교 평가함으로써 적용 가능한 건식 제염기술의 선정이 필요하다. 고방사능 시설에 적용 가능한 건식제염기술로 CO₂ 제염, PFC 제염 및 플라즈마 제염이 선정하였으며, 각각의 건식제염 공정의 성능평가 시험 및 고방사능 시설에 대한 건식제염 실증시험을 통해 제염기술의 현장 적용성 및 제염 성능을 조사하였다.

미국, 영국, 프랑스 등 해외 원자력 선진국들은 수명이 다한 원자력시설의 제염·해체를 대규모로 추진하고 있어 제염·해체 사업이 가장 중요한 원자력 산업의 하나가 되고 있으며 이러한 원자력 시설의 유지와 보수 그리고 해체 시 발생하는 폐기물들은 금속 조각, 콘크리트, 토양 등 종류도 다양할 뿐만 아니라 발생량 또한 매우 방대하다. 국내적으로도 TRIGA 연구로 1, 2호기와 한국원자력연구소 내에 있는 우라늄 변환시설의 해체 시 발생할 금속폐기물은 구조재, 배관재 등을 포함하여 수백 톤이 될 것으로 예상되는데, 발생될 금속 폐기물을 모두 수용하기에는 한계가 있을 뿐만 아니라, 관련 처분 비용이 계속적으로 증가하는 추세이므로, 이러한 문제를 해결하기 위해서 방사성 금속 폐기물의 효과적인 감용 기술이 요구된다. 현재 금속

성 폐기물의 대표적인 처리공정은 단순히 초고압으로 압축하여 처분하는 방법으로 이 방법은 부피 감용비가 낮고, 금속폐기물의 방사능 분포가 불균일하여 처리가 어려우며, 유용한 자원을 재활용 없이 폐기한다는 점에서 문제점을 지니고 있다. 원자력 연구시설의 해체 시 발생하는 금속성 폐기물은 대부분 방사능 오염도가 낮기 때문에 적절한 처리 공정을 통해 감용 및 재활용이 가능한데, 이러한 금속 폐기물의 감용 기술 중 가장 적절한 기술로서 금속 용융 기술이 대두되고 있다[1.1-1.3]. 금속 용융 기술은 폐기물량의 감소로 인한 처분 비용의 절감 및 처분 안전성의 증대뿐만 아니라 자원의 재활용성을 증대시킨다는 점에서 매우 긍정적인 측면을 가지고 있다. 이러한 금속 용융 기술은 유럽을 주축으로 미국과 일본에서 활발히 연구되어왔으며, 다른 처분 방법에 비해 부피 감용비가 가장 높고, Cs 및 Sr과 같은 휘발성 핵종이나 U과 같이 모재 금속과 반응성이 적은 핵종을 슬래그 상에 포집하여 제염하거나, Co와 같이 비휘발성인 방사성 핵종들을 주괴 내에 균일하게 분포시켜 방사능을 희석시킴으로써 비방사능을 낮출 뿐만 아니라 슬래그 결정격자 내에 방사성 핵종을 고정화시킬 수 있기 때문에 보다 안정화시킬 수 있다는 장점들을 가지고 있다[1.4-1.5].

따라서 본 연구에서는 용융제염 기술에 대한 이론적 고찰을 통해 용융제염의 기본 원리 등 요소기술을 평가한 후 금속성 해체폐기물에 포함되어 있는 베타/감마/우라늄 오염핵종에 대한 용융실험을 통해 금속과 방사성 핵종, 슬래그와 방사성 핵종 간의 반응 특성과 이들의 분배 특성을 조사하였다. 이를 토대로 파일럿 규모의 용융제염 기술 실증 시험을 수행하여 용융제염기술의 적용성 및 기술성능을 평가함과 동시에 용융제염에 의한 금속폐기물 감용 재활용 경제성을 제시하였다.

제 2 장 국내 · 외 기술 개발 현황

제 1 절 고풍사능 건식제염기술 개발

1. CO₂ 제염기술

가. 기술 개요

(1) CO₂ 드라이 아이스 제염의 열역학적 특성

이산화탄소는 정상적인 대기 온도 및 압력에서 무색, 무취의 가스로 존재하며, 공기보다 약 1.5배 가량 무겁다. Table 2.1.1.1은 이산화탄소의 물성치를 나타낸 것이다.

Table 2.1.1.1 Property of CO₂

구 분	물성치
화학식	CO ₂
분자량	44
비중	1.529
비점	-78℃
밀도	1.997g/ℓ
삼중점	-56.6℃
승화점	-78.5℃
점도(20℃)	14.7μPa · S
임계압력	72.75atm
임계온도	31.0℃
정압비열	0.9cal/g℃
정적비열	0.1523cal/cm · S℃
열전도율(20℃)	3.6×10 ⁻⁵ cal/cm · S℃
액체표면장력	16.54mN/m

Fig. 2.1.1.1 은 이산화탄소(CO₂)의 phase diagram이다. 그림에서 보는 바와 같이 3상

이 열역학적으로 동시에 존재할 수 있는 CO₂의 삼중점은 (-56.6°C, 5.11atm)이며, 임계점(31.1°C, 72.8atm)이상에서는 기상과 액상이 별도로 존재하지 않는다. 초임계유체 또는 초임계상이라고 부르는 이 상은 기상과 액상을 구별할 수 없는 성질을 갖는다. 이 점들을 지나는 선들은 각각 2상이 공존하는 상태를 가리킨다[2.1.1.1-2.1.1.2].

본 방법은 고압으로 액화된 탄산가스(CO₂)를 점 1(고압)에서 점 2(대기압)로 단열 팽창에 의해 상태를 변화시켜 1 기압, -78°C 하에서 드라이아이스 스노우를 생성한다. 이렇게 얻어진 드라이아이스 스노우는 서브 마이크론 또는 마이크론 내외 크기의 매우 작은 입자로 이를 유압식 pellet제조기의 실린더 안에 주입, 압착하고 다이를 통해서 사출, 고밀도의 드라이아이스 pellet을 제조하여 이를 압축공기의 고속 기류에 실어 표면 오염물질을 제거하는 기술이다. 드라이아이스는 표면을 제거한 후 주변의 대기압, 실온에서 안정한 기체 상태로 변화하고 제거한 오염물은 이로 이루어지는 기류에 실려 이동하게 된다. 드라이아이스가 만들어지는 과정은 Fig. 2.1.1.2의 CO₂의 압력-엔탈피 선도에서 보면 더욱 명확해진다. 즉 실온에서 800psi에 있는 CO₂ 실린더에서 고압의 증기(점 A)또는 액체(점 B)를 교축과정(등엔탈피 과정)에 의해 팽창시키면 수직방향의 화살표가 나타내는 방향으로 변화하면서 일부가 고화하고 일부는 기체로 변화하거나 남아있다. 이 때 드라이아이스의 전환율을 살펴보면 그림에서 inverse-lever arm rule을 적용하여 알 수 있는 것처럼 액체인 점 B에서 출발한 경우가 약 45%의 전환율을 나타내고, 기체인 점 A에서 출발하면 6%의 고화율을 나타낸다.

CO₂계의 물리적 성질은 많은 비극성유기화합물에 대해 우수한 용매성질을 갖는다는 것이다. 대부분의 용매처럼, CO₂의 용매성질은 온도, 압력증가에 따라 증진된다. 열역학적으로 액상CO₂는 상온 및 상압에서 불안정하다.

상평형도는 드라이아이스 생성이나 유기물 제거의 이해에 거의 정보를 제공하지 못하는 반면 CO₂ pressure-enthalpy diagram인 Mollier 선도는 고상 스노우 생성 중에 발생하는 상변화와 CO₂ feed 종류에 따른 CO₂의 상태 변화를 알 수 있다. CO₂ cylinder에 액체 CO₂가 채워지면, 액체상단의 gas 압력은 약 800psi의 압력을 나타낸다. cylinder내 조성에 따른 가능한 엔탈피 값은 약 800psi에서 기-액상의 2상 영역 범위에 있는 엔탈피 값들이다. 액상 CO₂(혹은 기상 CO₂)가 orifice로 들어가면 일정한 엔탈피 값을 유지하면서 압력이 B(혹은 A)로부터 기-액상의 2상 영역으로 압력이 강해진다[2.1.1.1].

액상 CO₂ source를 사용한 경우 점 B에서 시작하여 orifice를 통한 압력강하에 따라

가스기포가 생성되고, 기-고상의 경계인 약 80psi에 도달할 때까지의 기체의 %는 증가한다. 기-고상의 경계에서 남아있는 액상 CO₂는 고상으로 변환된다. 이때의 yield는 약 45% 정도가 된다. 기상 CO₂ source를 사용한 경우 점A에서 시작하여 orifice를 통한 압력강하에 따라 액적의 핵이 생성되고 액상 CO₂는 증가한다. 기-액상 영역과 기-고상 영역사이의 계면에서 (약 80psi) 모든 액상 CO₂는 고상으로 변환한다. 이때의 yield는 약 6%이다. 따라서 고상 CO₂ snow의 분율은 선택한 feed의 상태에 의존하며, source의 온도, 압력에 영향을 받는다. 이 선도로부터 초기 및 최종 CO₂ 상태 그리고 snow의 생성 및 제염 중 일어나는 상변화를 알 수 있다. 실제 드라이아이스 크기, 속도 및 생성된 분율, orifice 및 nozzle 설계 등은 상기사항을 기준으로 이루어진다[2.1.1.3].

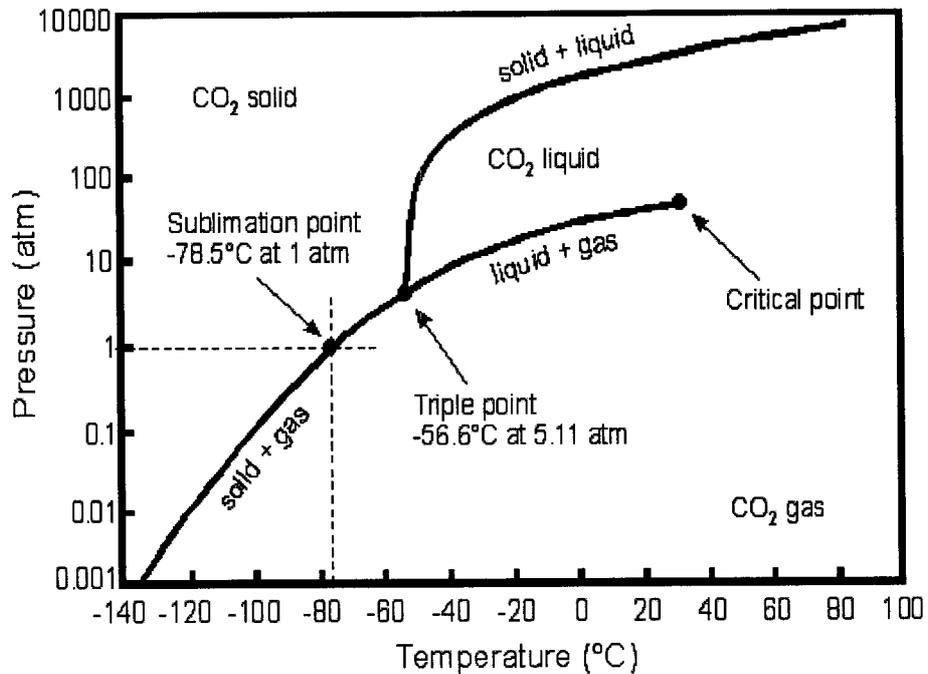


Fig. 2.1.1.1 Phase diagram of carbon dioxide

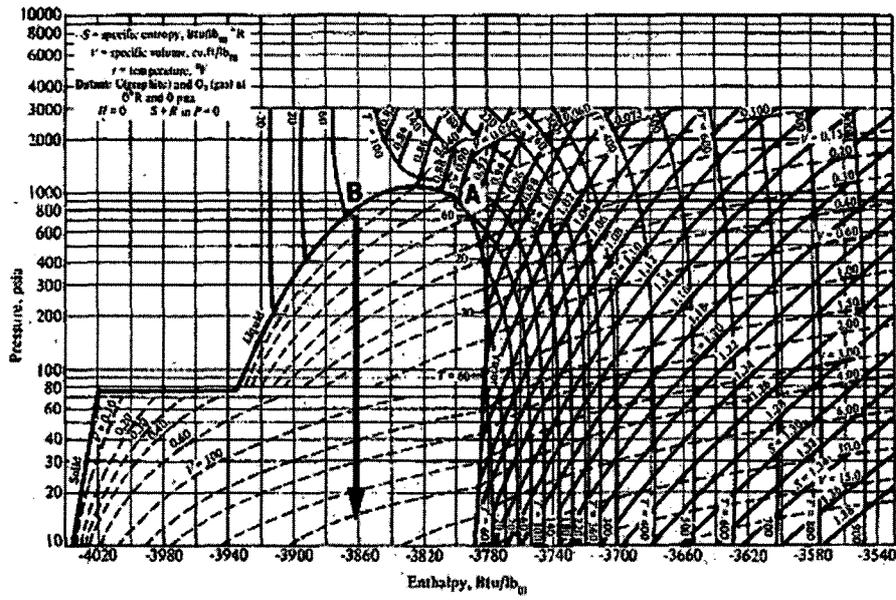


Fig. 2.1.1.2 Carbon dioxide pressure-enthalpy diagram

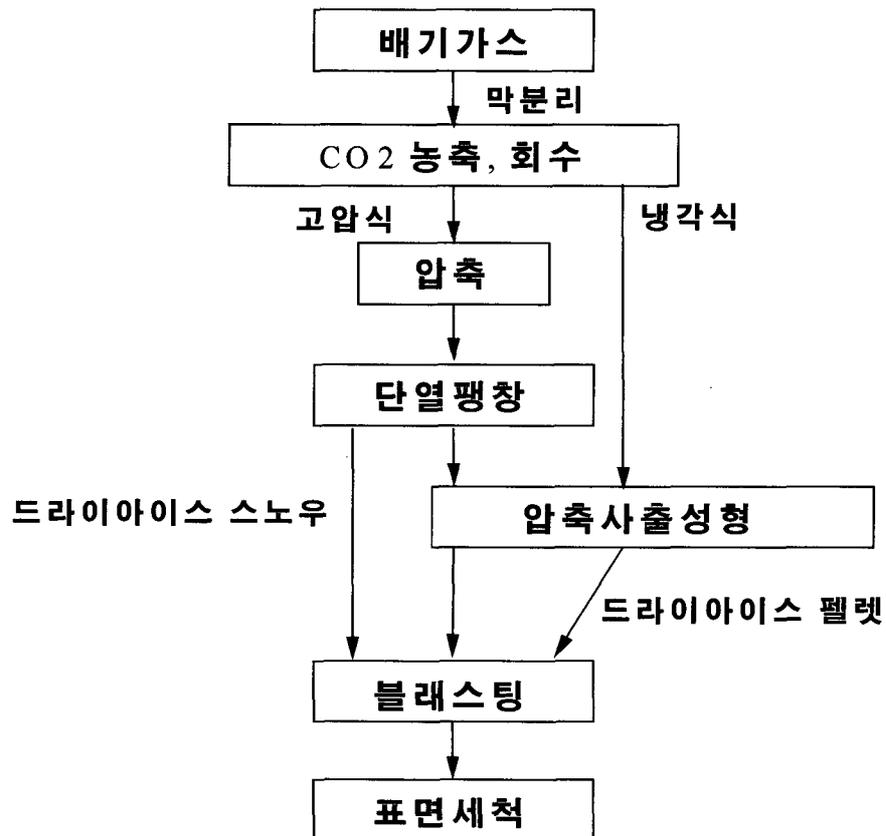


Fig. 2.1.1.3 Procedure for overall process of dry ice blasting

(2) CO₂ 드라이 아이스 세척 메커니즘과 원리

Dry ice pellet 분사에 의해, 입자상 물질과 유기물의 잔류물을 표면으로부터 제거하는 것은 각각 다른 메커니즘에 의해 설명될 수 있다. 즉 입자 제거에 대한 메커니즘은 움직이고 있는 고속 가스와 관련된 힘의 조합과 표면 오염물질과 드라이아이스 pellet 간의 운동량 전달에 관련이 있다. 한편 일반적으로 유기 오염물질 제거에 대한 메커니즘은 충돌을 하는 동안 드라이아이스 pellet의 존재를 필요로 한다 [2.1.1.4].

(가) 공기역학적 항력(Aerodynamic drag force)

일반적으로, 고속으로 흐르는 가스는 비교적 큰 입자상 물질을 표면으로부터 제거한다. 움직이고 있는 가스는 표면입자에 공기역학적 항력(drag force)을 발휘하고, 이 힘의 크기는 다음 식과 같이 입자의 면적(직경의 제곱)에 비례한다.

$$F_D = \frac{V_s^2}{2} \rho_g A_p C$$

여기서 V_s 는 드라이아이스 pellet의 속도, ρ_g 는 기체 밀도, A_p 는 표면오염입자의 투영면적, C 는 항력계수(drag coefficient)이다. 만일 항력이 표면 점착력을 능가한다면, 입자가 제거되고 움직이는 가스 흐름을 따라 떨어져 간다. 표면 점착력인 van der Waals 힘, 모세관 힘, 쌍극자 인력 등은 입자의 직경에 따라 변한다 [2.1.1.5-2.1.1.6].

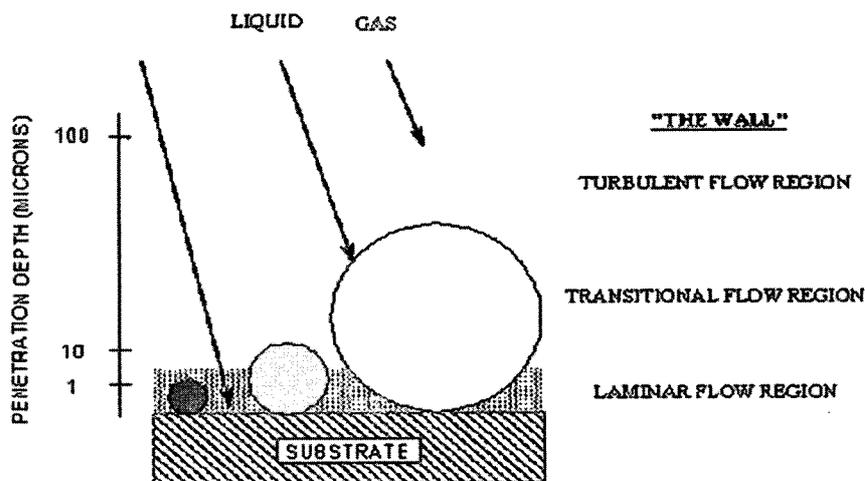


Fig. 2.1.1.4 Penetration depth of cleaning particles for viscous drag separation

Fig. 2.1.1.4에 나타난 것과 같이 공기역학적 항력은 비교적 큰 입자를 제거할 수 있으나, 오염물질의 직경이 감소함에 따라 공기역학적 항력은 표면 점착력보다 훨씬 빨리 감소한다. 그러므로 오염물질의 직경이 감소함에 따라, 표면 점착력이 우세한 경향을 가지게 되고 흐르는 가스는 이러한 점착력을 극복할 수 없게 된다. 그러나 이러한 현상은 그림에서와 같이 유동에 의해 형성되는 표면 경계층의 두께보다 큰 마이크론 크기 이상의 입자상 물질의 제거 메커니즘에 적용된다. 이는 표면 경계층 내에서 기체의 유속은 급격히 감소하여 표면에서 마침내 0이 되기 때문이다.

(나) 입자 충돌 운동량(Collision momentum transfer)

노즐로 분사된 2상(고체, 기체)난류유동에 드라이아이스 pellet들이 들어있는 경우에는, 표면의 오염입자 제거에 대해서 새로운 기구가 적용된다. 이러한 기구를 Fig. 2.1.1.5에서 보여준다.

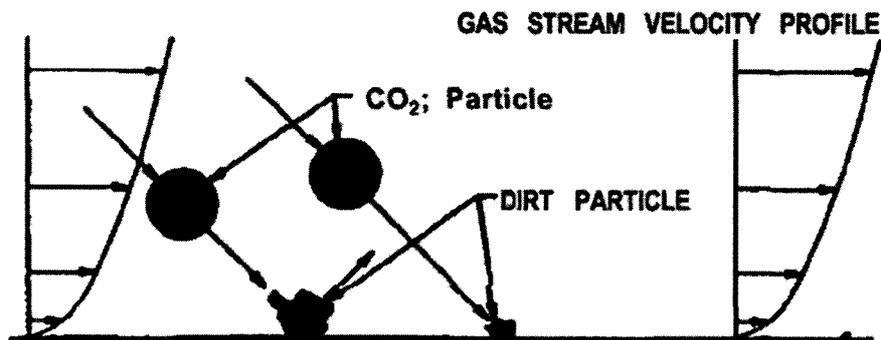


Fig. 2.1.1.5 CO₂ cleaning mechanism caused by an impact of dry-ice particles

표면의 입자는 드라이아이스 pellet의 충돌에 의해 충격을 받는다. 충돌은 드라이아이스 pellet과 표면 오염물질 사이에 운동량이 전달되며, 이러한 운동량 전달이 오염입자의 표면 점착력을 극복할 수 있다면, 오염입자는 표면에서 유리되어 고속의 가스 흐름과 함께 떨어져 간다. 오염입자의 유속은 이상적인 선형 운동량에 대해 다음 식에 의해 표시된다.

$$V_c = \frac{M_s}{M_c} V_s$$

여기서 V_c , V_s 는 오염입자의 탈출유속, 드라이아이스 pellet입자의 입사유속이고 M_c 와 M_s 는 그들의 질량을 나타낸다. 입자 제거 효율은 공기역학적 항력과 같은 경우와는 달리, 입자상 물질의 크기가 비교적 작은 경우에도 감소하지 않는다.

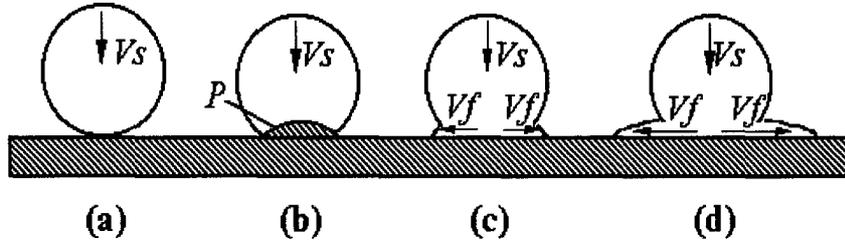


Fig. 2.1.1.6 Cleaning mechanism of dry ice cleaning

- (a) 드라이아이스 pellet의 기관에의 충돌(충돌속도)
- (b) 드라이아이스 pellet 입자 내의 압력 상승(충격압 : P)
- (c) 드라이아이스 입자의 변형, 수평 방향에의 운동(방사류 : V_f)
- (d) 오염물체에의 연속적 외력의 발생, 오염물의 이동 (제거)

Fig. 2.1.1.6과 같이, 드라이아이스 pellet이 기관 표면에 V_s 의 속도로 충돌하도록 한다. 그렇게 하면 그림에서와 같이 드라이아이스 pellet이 충돌될 때 드라이아이스 pellet의 하부에 충격압력이라고 불리는 압력 P 가 생긴다.

그림에서와 같이, 이 충격압력에 의해서 수평방향의 방사류라고 불리우는 흐름 V_f 이 생기고 드라이아이스 pellet은 그림에서와 같이 변형되어, 기관상의 오염물은 충격압력 P 또는 이 방사류 V_f 로부터 받는 힘에 의해서 제거된다.

$$P = \frac{1}{2} \alpha \rho_s C_s V_s$$

식 중에서 V_s 은 충돌속도, ρ_s 는 드라이아이스 pellet의 밀도, C_s 는 드라이아이스 pellet의 음속도, α 는 다음 식에서 나타나는 저감계수를 표시하고 있다.

$$\alpha = \frac{0.41}{1 + 0.59(\rho_s C_s / \rho_s C_s)}$$

식 중에서 ρ_s 는 기관의 밀도, C_s 는 기관 중의 음속도를 표시하고 있다.

방사류의 속도 V_f 는 다음 식으로 나타낸다.

$$V_f = (a C_s V_s)^{1/2}$$

기판 위의 오염물을 가령 구형의 입자로 하면, 이 입자가 받는 외력(제거력 또는 세정력) D 는 다음 식으로 나타낸다.

$$D = C_D \frac{\rho_s}{2} V_f \frac{2\pi}{4} d^2$$

$$D = C_D P \frac{\pi}{4} d^2$$

식 중에서, C_D 는 저항력 계수, d 는 입자의 직경이다. 또한 위 두식의 형태는 다르지만 결과적으로 같은 수치가 얻어진다. 이것으로 알 수 있는 바와 같이, 세정력 D 는 드라이아이스 pellet의 충돌속도 V_s 에 비례하고, 충돌속도 V_s 를 높이면 세정력 D 는 커진다.

세정력 D 는 드라이아이스 pellet 입자의 크기에 의존하지 않지만, 드라이아이스 pellet이 충돌하는 면적(이것은 오염물의 제거율에 영향을 미친다.)이 변화한다. 드라이아이스 pellet의 공급량을 일정하게 한 경우, 드라이아이스 pellet의 입자 크기를 작게 하면, 드라이아이스 pellet의 개수는 입자 크기의 3승에 반비례해서 증가하고, 한편 1개의 드라이아이스 pellet이 충돌하는 면적은 입자 크기의 2승에 비례해서 감소한다. 그 결과, 전체의 드라이아이스 pellet이 충돌하는 면적이 증가해서, 세정 효과는 높아진다.

드라이아이스 pellet을 분사하는 nozzle이 기판의 표면에 여러 각도를 가지게 하여 수직으로 충돌하는 경우를

$$D = C_D \frac{\rho_s}{2} V_f \frac{2\pi}{4} d^2 \sin(\theta)$$

$$D = C_D P \frac{\pi}{4} d^2 \sin(\theta)$$

식 중에서 θ 는 기판 표면 방향과의 드라이아이스 pellet의 충돌각도를 나타내고 있다. 드라이아이스 pellet의 충돌각도를 크게 하면, 사인 커브에 따라서 세정력은 커진다.

(다) CO₂ 입자의 순간 액화에 의한 용매적 작용

유기 잔류물을 제거하는 메커니즘은, 충돌이 일어나는 표면에 생성된 액체 CO₂와 관련이 있다. 액체 CO₂는 탄화수소들과 무극성 물질들에 대해 매우 뛰어난 용매이다. 액체 CO₂는 대기압과 실온 하에서 열역학적으로 불안정하지만, 드라이아이스

pellet blasting 세정 과정 중에 드라이아이스 pellet 입자의 표면에 잠시 존재한다. Fig. 2.1.1.7은 드라이아이스 pellet 입자의 표면 충돌을 도식적으로 보여준다. 충돌이 일어나는 짧은 시간동안, 드라이아이스 pellet과 표면의 경계면에서 압력이 증가하고, 이러한 압력은 완충응력(yield stress)과 드라이아이스 입자의 삼중점 압력을 쉽게 초과할 수 있다.

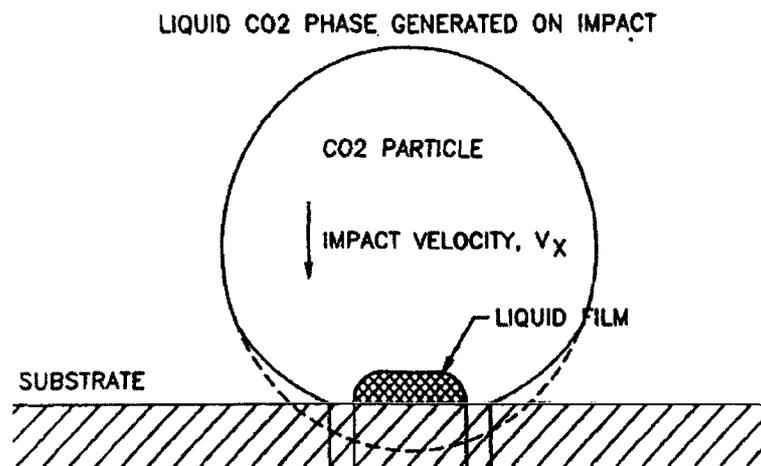


Fig. 2.1.1.7 Cleaning mechanism caused by the instant presence of liquid CO₂

이 때문에 드라이아이스 pellet 입자는 액화될 수 있으며, 표면과 접촉하는 동안 용매처럼 행동한다. 오염물질은 액체상에 의해 녹아 들어갈 것이고 액체 부분 안에 체류할 것이다. 입자가 표면으로부터 튀어나오기 시작할 때, 계면의 압력은 감소하고 드라이아이스 입자는 오염물질을 동반한다. 이러한 표면의 일부에 존재하는 액체상의 존재로 드라이아이스 pellet blasting 세정이 연마제 세정과는 달리 기판에 손상을 입히지 않는 유연한 세정공정임을 알 수 있다. 표면과 드라이아이스 pellet 입자의 경계면에서 드라이아이스 pellet 입자가 액화되기 시작할 때, 계속되는 완충(yielding)과 소성 흐름(plastic flow)은 접촉면적을 증가시킨다.

최근에, M. Hills(1995)는 드라이아이스 입자를 사용하여 다양한 유기화합물에 대한 제거를 연구하여 액체상 제거 메커니즘을 뒷받침할 만한 자료를 확립하였다[2.1.1.7]. 일반적으로, 액체 CO₂에 쉽게 흡수되는 유기물은 제거된다. 액체 이산화탄소에 쉽사리 녹지 않는, 착물이 있는 유기물 또는 비 탄화수소에 기반한 다른 작용기를 가진 유기물은 쉽게 제거되지 않는다. 참고로 Table 2.1.1.2는 액체 CO₂를 비롯한 몇몇 상

용 액체 세정제들의 용해도계수를 나타낸다. Table 2.1.1.2에서 액체 CO₂는 아세톤, 이소프로판올, 1,1,1-TCA 등의 가장 흔한 세정제들의 용해도 계수와 비슷하여 대체 세정제로서 좋은 효과가 있음을 보여준다.

Table 2.1.1.2 Solubility chemistry of common cleaning agents

CLEANING AGENTS	SOLVENT SOLUBILITY(MPa ^{1/2})
SOLID CO ₂	22-24
ACETONE	20.2
ISOPROPANOL	23.5
METHYLENE CHLORIDE	19.8
PERCHLOROETHYLENE	19.0
1,1,1 TCA	20.9
METHANOL	29.6
WATER	47.9

(라) 열충격 전단 응력(Thermal stress)

다른 분사 미디어와는 달리 CO₂입자의 온도는 -78.7°C(-109°F)로 매우 낮다. 이러한 낮은 온도 때문에 드라이아이스 분사 공정은 코팅이나 오염물질에 크건 작건 영향을 주는(코팅종류에 따라 다르지만) 독특한 열역학적 유도 표면메커니즘을 가지게 된다. 드라이아이스 입자와 처리 표면간의 온도차이 때문에 “fracking” 또는 열충격(thermal shock)으로 알려져 있는 현상이 일어난다. 물질의 온도가 감소할수록 깨지기 쉽게 되고, 입자충돌이 코팅을 파괴할 수 있게 된다.

또한 서로 다른 열팽창계수 값을 갖는 두 개의 상이한 물질들 사이의 열 구배(thermal gradient) 또는 열 차이(thermal difference)도 두 물질간의 결합을 깨뜨리게 할 수 있다[2.1.1.8].

이러한 열 충격은 비금속성 코팅이나 금속성 표면에 묻어있는 오염물질에 분사할 때 가장 잘 나타난다.

온도차이로 발생하는 열응력(thermal stress)은 공식 1을 이용하여 추정할 수 있다.

σ_y 는 stress(psi) 이고 ΔT 는 온도구배, α 는 팽창계수, γ 는 Poisson's Ratio 이다. 대응하는 파라미터 값은 다음과 같다.

$$\sigma_y = \frac{(\Delta T \times E \times \alpha)}{(1 - \gamma)} = \frac{[\Delta T \times (30 \times 10^6) \times (5 \times 10^{-6})]}{(1 - 0.33)}$$

따라서 thermal stress(psi)는

$$\sigma_y = 244 \Delta T$$

온도차이가 35°F인 곳에서는 30.24psi 정도의 낮은 tensile stress를 나타냈다. 예를 들어 mold의 온도가 350°F에서 -109°F로 낮아졌다 하더라도 그 온도 차이는 459°F로서 tensile stress는 102800psi 로서 이 계산된 값은 철이 열처리 동안 받는 stress보다 훨씬 적은 값이다(보통 열처리 때의 온도 차이는 500°F이상)[2.1.1.9].

드라이아이스 pellet은 표면의 오염물질 층을 초저온으로(-78.7°C, 628 kJ/kg) 급속 동결시키므로 오염 물질과 그 아래에 있는 기판 간에 심한 열적 차이가 생기는데 이런 열적 대응의 차이는 표면 사이에 높은 전단력(shear stress)를 일으킨다. 또한 직접 영향을 받는 오염 물질은 주변 온도차이로 수축하면서 부착에너지를 초과해 수많은 균열이 발생한다. 그 균열들은 동결된 것으로 부서지기 쉬운 상태여서 표면에서 쉽게 격리되어 제거될 수 있다.

실리콘 또는 플루오르 화합물과 같이 액체 CO₂에 불용성 또는 낮은 용해성을 갖는 유기물들도 드라이아이스 pellet blasting 세정을 사용하여 제거되는 것은 또 다른 제거 메커니즘, 즉 동결-파쇄 기구가 작용하기 때문이다. 즉 차가운 드라이아이스 흐름은 표면의 오염물질을 동결시키고, 결국 상대적으로 고온인 표면으로부터 오염물질만을 파쇄 시켜 제거한다.

고분자들은 액체 CO₂에 용해되지 않기 때문에 동결 파쇄 기구에 의해 제거될 수 있을 것이다. 그러나 에폭시와 용제(flux)를 사용하는 많은 경우에 있어서, 세정을 마친 후에도 고분자 층이 남을 수 있다. 즉, 기판에 붙어있는 표면, 기판의 성질, 그리고 퇴적물의 크기 등이 제거를 방해하는 결정적인 요소들이 될 것이다[2.1.1.10].

(마) 승화 팽창 폭발력

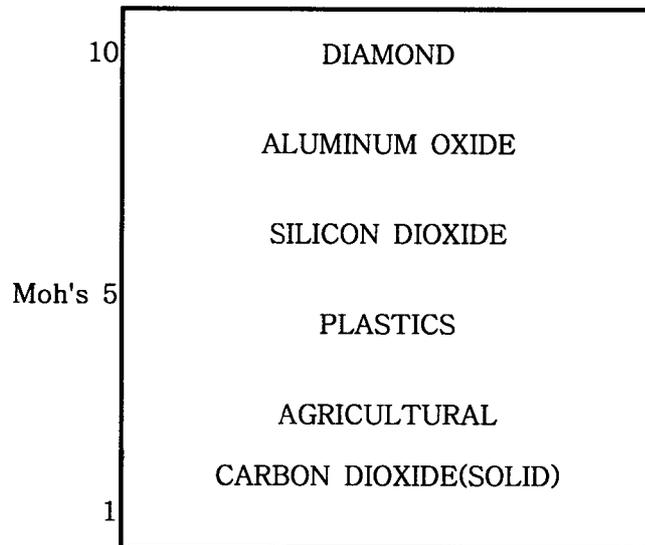
드라이아이스 pellet blasting은 낮은 경도 때문에 다른 마모성 입자의 blasting 세정 방식과는 다르게 표면에 손상을 거의 주지 않고 오염물질을 제거한다.

실제로 Table 2.1.1.3에 나타나 있듯이 드라이아이스 pellet의 경도는 Mohs 경도 2-3

사이이다. 이는 calcium sulfate $\text{CaSO}_4 \cdot 2(\text{H}_2\text{O})$ (2 Mohs) 혹은 calcium carbonate CaCO_3 (3 Mohs)와 비슷하다[2.1.1.11]. 그러나 pellet이 공기 중에 수분을 함유할수록 순도가 떨어지면서 경도가 높아져 오염대상의 표면에 충돌한 이후 승화가 제대로 이루어지지 않아 표면에 아주 적은 손상을 입힐 수 있다. 그만큼 pellet의 순도는 중요하다.

이와 같이 드라이아이스 pellet blasting의 작동하는 메커니즘은 운동에너지와 열적 에너지 그리고 승화에 의한 800배의 부피팽창 에너지의 조합에 기초한다. 드라이아이스 pellet이 오염물질층의 밑으로 침투하여 부피가 800배로 팽창되어 승화하면서 오염물질을 세정대상물의 표면 위로 들어올린다. 마지막으로 고속의 기류에 의해 표면 오염물질은 비산, 제거된다.

Table 2.1.1.3 Hardness of cleaning media



(3) Blaster의 종류 및 노즐 기술

Blaster는 pellet을 nozzle로 이송하는 방법에 따라 크게 두 종류로 대별되는데, two-hose 시스템과 single-hose 시스템이 있다. 두 가지 형태 중, 입자가 호스를 통과할 때에 낮은 온도 및 입자들이 본래의 상태대로 유지되는 것이 필요하기 때문에 적당한 분사 hose를 선택하는 것이 중요하다. 두 호스 시스템에서 드라이아이스 입자는 호스의 입구 끝으로 여러 가지 기계적 방법에 의해서 운반된다. 그리고 ejector-type nozzle에 의해 생겨나는 진공에 의해 호스를 통하여 이동된다. 압축공기가 두 번째 호스로 이동하여 nozzle을 통하여 빠른 속도로 나가면서 mixing tube에서 진공을 형성시키고 이때 진공의 힘에 의해서 CO_2 입자들이 딸려오는 원리를 이용하

였다. 이러한 시스템의 장점은 상대적으로 시스템이 간단하고, 재료비가 적게 소요되며, 공급시스템이 전체적으로 소형인 점이다. 한 가지 주요한 단점은 관련 nozzle 기술이 폭넓은 상황에 일반적으로 적용되지 않는다는 점이다(빈 공간에서 방향변경의 까다로움, 얇고 넓은 분사 자국 등). 또한 two-hose 시스템의 분사강도와 strip rate는 single-hose blaster에 비하여 낮다[2.1.1.12-2.1.1.13].

원 호스 시스템에서 입자들은 airlock 메카니즘의 몇 가지 형태 중에 한 가지에 의해서 압축 공기선으로 공급된다. 왕복과 회전 airlock 모두 현재 산업에서 사용되고 있다. Pellet의 흐름과 압축공기가 직접 한 개의 호스로 들어가고 nozzle에서 공기와 pellet이 높은 속도로 가속된다. 이 시스템의 장점은 nozzle의 적용성과 분사 분사력이 가장 높다는 점이다. 단점은 복잡한 에어락 메카니즘 때문에 재료비가 상대적으로 높다는 것이다.

Blaster는 dry ice block shaver blaster와 dry ice pellet blaster로 구분된다. block shaver blaster는 60lb 드라이아이스 덩어리(block)을 표준으로 취하고 아이스 블락에서 얇은 판을 갈아내기 위하여 회전 블레이드(rotating blade)를 사용한다. 이 얇은 드라이아이스 한 장은 자체의 무게에 의하여 부서져 설탕가루 크기의 입자가 된다. two-hose 전달 시스템은 깔때기(funnel) 바닥의 입자를 제염대상 표면으로 전달한다. 비효율적인 two-hose 시스템과 결합된 이들 입자의 저 질량으로 인하여 block shaver가 경미한 세정만 수행하도록 제한을 준다. Shaved ice 기계는 고 유량밀도(flux density:초당 단위 면적에 부딪치는 입자의 수)의 입자 분사를 전달하기 때문에 이 blaster는 얇은 면서 경도가 중간인 코팅에 대하여 효과적이다. Ice shaver의 단점은 입자크기와 유량밀도 뿐 아니라 입자 속도가 고정되어 있다는 점이다[2.1.1.15].

반면에, pellet blaster는 사전 제조된 CO₂ pellet으로 채워진 호퍼를 가지고 있다. 호퍼는 기계적 교반으로 pellet을 호퍼의 바닥과 공급시스템으로 이동시킨다. sing-hose 시스템에서 nozzle을 빠져나가는 pellet의 크기와 분사유량밀도는 분사호스(호스 지름과 내벽 거칠기)와 nozzle형태에 의해 결정된다. 실리콘, foam, 왁스, 방출약품, 식품 성분 등의 소프트 코팅의 경우 최대 strip rate와 효율을 얻기 위해서는 낮은 유량밀도와 큰 pellet을 필요로 한다. 대조적으로 페인트, varnish, baked on sugars, carbon build-up 등의 하드 코팅은 더 작은 입자크기와 높은 유량밀도, 높은 입자속도가 필요하다[2.1.1.16-2.1.1.17].

Nozzle은 효과적인 분사 기류를 만들기 위하여 드라이아이스 입자가 가능한 한 최고속도로 가속화 되는 곳이다. 모래나 유사한 매개체를 사용하여 분사할 때 nozzle의

목크기는 분사 매개체와 비교할 때 매우 크다. 반면에 고체CO₂ blasting에서의 노즐의 목의 크기는 가속화되는 드라이아이스 입자보다 약간 크다.

높은 압력에서 CO₂ 입자의 크기는 작은 목크기에 일치하기 위하여 더 작아야 할 필요성이 있다. 높은 압력의 분사 흐름은 작은 입자들이 높은 유량밀도를 가지고 높은 속도로 이동된다. 이런 입자들은 페인트와 같은 hard coating을 제거하는데 가장 적합하다. CO₂ blasting nozzle은 가능한 한 높은 속도로서 입자를 가속화시킬 필요성이 있기 때문에 길 필요가 있다. 그러므로 작은 목을 가진 매우 긴 nozzle은 단위흐름 당 접촉하는 면적이 커지게 되고 이것은 낮은 압력의 nozzle이 높은 압력의 nozzle보다 더 큰 효율을 가진다는 것을 의미한다. 산업에서 사용하는 최소 비용의 blasting system은 plant air system에서 사용되는 전형적인 압력인 80psi로 작동하도록 고안되었다[2.1.1.18].

드라이아이스 입자의 크기는 세정성능에 영향을 주기 때문에 분사 시스템은 적당한 입자크기를 조정할 수 있는 유연성을 갖추어야 한다. 먼저, pelletizer에서 만들어지는 pellet의 크기를 다르게 할 수 있고, blaster의 호퍼에서 세정대상 표면에 닿는 pellet의 크기를 여러 가지 방법으로 달리 할 수 있다. 사용하는 분사호스의 직경과 종류에 따라서 pellet은 접촉이 없는 상태로 있거나 더 작은 입자로 분해될 것이다. 또한 nozzle의 목을 의도적으로 확대시켜 nozzle에서 부분적으로 파괴적인 충격파를 만들어 낼 수도 있다. 두 가지 기술을 각각 사용하거나 또는 혼합하여 사용하면서 세정작업에 따라 알맞은 입자크기, 분사흐름속도, 유량밀도 등을 최적화한다.

분사에서 모래 또는 직경이 매우 작은 유사한 미디어를 사용할 때, nozzle목부(nozzle throat)의 크기는 분사 미디어에 비하여 매우 크다. 반면에 드라이아이스 분사에서의 nozzle목부는 가속화 되는 드라이아이스 입자보다 약간 크다. 높은 압력에서 드라이아이스 입자는 더 작은 nozzle 목부 크기에 상응하기 위해 더 작아져야 할 필요가 있다. 고압 분사흐름은 높은 유량밀도를 갖는 고속의 작은 입자로 묘사된다. 다시 말해 이러한 입자의 분사는 페인트 같은 하드 코팅 제거에 알맞고 낮은 유량밀도로 표면에 충돌하는 큰 pellet은 소프트 코팅에 적합하다. 드라이아이스 분사 nozzle은 입자를 가능한한 고속으로 가속시켜야 할 필요성이 있기 때문에 길어지는 경향이 있다.

나. 해외 연구개발 현황

고체 Dry Ice 제조는 1930년대 초반에야 가능해진 것으로 이 기간의 “드라이아이

스” 제조는 실험실에서의 실험정도에 불과하였다. 그러나 드라이아이스 제조가 수월해짐에 따라 이 혁신적인 물질의 응용이 확대되었다. 오늘날 드라이아이스는 식품산업에서 식품보장, 부패하기 쉬운 음식물 보관방법 등에 폭넓게 이용되고 있다. 1945년에는 미 해군이 여러 가지 오일 제거기술의 분사매질로 이용하여 실험을 수행한 바 있다.

본격적인 분사기술은 1970년대에 Lockheed 사의 coating 기술자인 CalVin Fong이 항공기의 페인트를 벗기는 방법을 연구할 때부터 시작하였다. 1977년, 8월, CalVin Fong은 “Sandblasting with pellets of materials capable of sublimation”으로 특허를 받았다. 이 기술은 미국 Alphnus사가 Lockheed사로부터 특허권들을 양도 받을 때까지는 상용화되지 않았다. 이 기술은 1987년 시장에 소개되었다. 1980년대에는 여러 회사의 드라이아이스 blasting 기술을 개발하게 되었다.

드라이아이스 펠릿제조기(pelletizer)와 블래스트 장치(blast machine)는 1980년대 후반에야 상용화 되었다. 이때의 장치는 몸체가 크고 값이 고가인데다가 가동하기 위해서는 높은 공기압(200Psi)을 필요로 하였다. 드라이아이스 blast 기술이 발전함에 따라 블래스트 장치의 크기는 작아지고 가격도 낮아졌다. 최근이 노즐기술은 작업장 공기압(80Psi)으로도 효과적인 blasting을 할 수 있도록 발전하였다.

1990년 초 미국 WINSKO(Westinghouse Idaho Nuclear Company)에서는 CO₂ Pellet 분사제염에 대한 특성조사연구를 수행하였으며 비고착성 오염에 효과 있다고 하였다. 1995년 미국 ORNL은 H₂O와 CO₂ ice blasting에 대한 비교 시험을 하였으며 작업자 기 직접 접촉 제염에는 H₂O ice blasting 더 우수하다고 하였다. 또 ORNO에서는 Turbine/CO₂ pellet 가속 분사에 의한 페인트 코팅제염을 평가하였으며 압축 공기에 의한 제염 보다 효과적임을 보였다.

반도체 세정기술로서 CO₂ 제염에 대한 연구는 주로 미국에서 많이 수행되었다. 입자의 충돌과 이에 따른 열전달에 대한 이론은 1988년 J Sun 과 M.M. Chen의 연구를 CO₂ 제염에 적용할 수 있으며 본격적인 CO₂ 제염에 대한 이론적 연구는 1990년대 후반에 시작되었다[2.1.1.19]. G Spur et al은 CO₂ pellet 분사제염 공정과 최적화에 대한 연구를 하였으며 분사압력과 pellet 입자 크기에 대한 제염효과를 실험을 통해 제시하였다[2.1.1.20]. F. Elbing et al은 알루미늄 표면의 예비처리방법으로 건식분사제염에 대한 특성을 실험을 통해 제시하였다[2.1.1.21]. T. Toscano et al은 CO₂ 분사제염의 입자 제거 메카니즘을 이론과 실험을 통해 밝혔다[2.1.1.22]. D.P. Weston et al은 CO₂ pellet 분사제염이 코팅제거에 효과가 있음을 보였다[2.1.1.23].

반도체 세정을 위한 CO₂제염장비의 산업적 이용은 미국 Eco-Snow System에서 많이 하였으며 CO₂ 분사제염의 특성에 대한 많은 연구결과를 발표하였고 장비의 자동화도 하였다.

다. 국내 연구개발 현황

국내의 CO₂ 제염 연구도 반도체 분야 적용을 위한 연구와 원자력분야의 적용 연구로 나누어 졌다.

원자력분야 적용을 위한 연구는 경희대학교 류정동, 박광현(한국원자력학회, 1999 춘계학술대회 논문집,1999)은 주로 원자력발전소 오염 금속표면 제염목적으로 연구를 수행하였다. 본 연구는 CO₂ 분사제염의 실험적 특성과악에 주력하였으며 CO₂분사제염 기술은 산화물 c같은 단단히 고착된 오염에는 적용한계가 있어 만족할 만한 성과를 내놓지 못하였다.

국내 CO₂분사제염의 원자력 분야의 최초 이용은 2000년대 초반에 원자력연구소의 DUPIC 기술실증 Hot Cell에서 사용한 것이다. DUPIC 핵연료 제조공정은 고방사성 사용후 핵연료 물질을 분말형태로 취급하므로 핵연료 제조장비, 검사장비, hot cell 바닥 및 벽면, 공구 등의 표면이 미세분진 및 방사화된 오염핵종 등으로 오염되었으며, 2차폐기물 발생이 적고 원격제염이 용이한 기술로 CO₂ 분사제염장비를 도입하였다. 그러나 제염 후 분진형태로 발생하는 제염폐기물의 포집이 어렵고 고착성 오염의 제염 효율이 낮아 실제 적용에는 한계를 보였다.

CO₂ 분사제염에 대한 기초 연구는 본 연구팀에서 2000년 대 초에 수행하였으며 CO₂ 제염의 원자력분야 적용 특성을 제시하였다.

라. 기술개발 조사사례에 대한 평가

CO₂ 제염기술은 주로 반도체 건식 청정기술 분야에서 많은 연구와 이용을 하고 있으며 원자력분야의 이용과 연구는 많지 않았다.

CO₂ 분사제염 기술은 90년대 초반부터 극히 일부에 적용이 시작된 원자력분야 기술적용 초보단계의 기술로서 기술개발 내지는 기술개선의 여지가 많으나, 비교적 fixed 오염보다는 loose한 오염 제거에 효과적이므로 초기단계의 제염법이나 복합제염법의 일부로서 사용할 수 있으나, 제염효과측면에서 다양한 오염에 적용할 수 있는 제염공정이나 장치에 대한 연구가 필요성이 대두되었다. 이 기술은 기술적용 초보단계의 기술로 기술개발 내지는 기술개선의 여지가 많은 만큼 해외 이 기술의 도

입은 기술효과에 대한 불확실성이 많으므로 자체연구개발에 의한 불확실한 기술요소 배제와 기술주도 혹은 선도할 수 있는 기술 분야라고 할 수 있다.

CO₂ 분사제염기술의 핵심 기술요소는 다양한 오염에 적합한 공정의 선택과 이 공정을 적용할 수 있는 장치로서, 원자력분야와 일반산업분야에서 사용하던 기존장치를 사용함으로써 제염 효능면에서 개선의 여지가 많다고 본다.

CO₂분사제염 기술의 특성은 비고착성 오염에 주로 효과가 있으나 대부분의 원자력발전소 금속성 설비의 오염은 부식 산화막을 포함한 고착성 오염이므로 원자력분야의 이용은 활발하지 못하였다.

국내에서 개발을 추진하고 있는 건식 핵연료주기 Hot Cell 및 설비는 사용후핵연료 분진 등에 의한 비고착성 오염이 특징이므로 CO₂ 제염기술의 활용이 효과적이라고 본다. 그러나 분사 제염 후 오염입자 분진 등이 주변을 재 오염 시키는 문제와 원격으로 다양한 오염 표면과 오염특성에 따른 제염기술이 아직 미비하여 이 분야의 연구 개발이 요구된다.

2. PFC 제염기술

가. 기술 개요

PFC 제염기술은 액체 상태의 PFC(perfluorocarbon, C₇F₁₆) 가 가지는 물리화학적 성질을 이용하여 입자성 형태로 느슨하게 오염된 금속이나 시설표면을 제염하는 방법이며 크게 초음파 제염기술과 분사 제염기술로 구분되어 진다. PFC 의 제염원리를 Table 2.1.2.1에 PFC 용액의 물리화학적 특성을 물과 비교하여 Table 2.1.2.2에 수록하였다.

PFC 용액은 인체에 무해하지만 고가이기 때문에 제염 후 이를 재생 후 다시 사용하여야 하는데 일반적으로 폐 제염용액을 재생하는 방법은 PFC 용액의 잠열과 비열이 물에 비해 낮고 비등점이 낮은 것을 이용한 증류법 과 미세 입자만 제거하여 다시 사용하는 여과법이 있다.

현재 원자력 선진국들이 경쟁적으로 도입 개발하고 있는 여러 핵연료 주기 관련 기술은 핵 확산 저항성을 지니고 있으면서 2차 폐기물이 거의 발생되지 않는 건식 신공정 기술로써 특히 제염 분야에서의 응용성이 높게 평가 되고 있다. 일부 국가에서는 이미 상용화를 추진하고 있으며 제염 수요 증대에 따라 활발한 연구 개발이

이루어지고 있다.

Table 2.1.2.1 Principals of PFC decontamination

항목	내용	관 련 사 항	비 고
PFC 제염원리	<ul style="list-style-type: none"> • PFC/PFC 계면 활성제 혼합액이 입자와 기질 표면에 젖게 되어 용매 막을 형성함에 의해 입자와 기질 사이의 흡착력을 약화시켜 입자를 이격 시킴 • 초음파로 발생한 기포파괴 시 충격력과 항력에 의해 오염 표면으로 부터 입자를 이탈시킴 		<ul style="list-style-type: none"> • 초음파 법 • Spray법
PFC 제염공정의 장점	<ul style="list-style-type: none"> • 비활성 유체로서 화학적으로 안정하고 전기 절연성우수 • 상온, 대기압 하에서 제염이 가능하며 원격 제염 용이 • 이차 제염폐기물 발생이 거의 없음 (여과/저온중류로 PFC 제염제 순환 재사용) • 비 노출성 표면 침투(틈새)제염우수(물의 3배) • 내 방사성이 매우 큼(10 Mrad 하에서도 안정) • 초음파 제염 적용 가능(프레온 매체는 불가) • 전자/계측 장비도 제염 후 재사용(전기부도체) 		
미 해결 사항	<ul style="list-style-type: none"> • 미세오염입자 특성(크기, 표면상태 등)에 따른 제염원리 • 제염 대상물의 형태 및 표면 특성에 따른 제염 조건 • 새로운 PFC 계면활성제 선정 및 이들의 물리 화학적 특성 		

Table 2.1.2.2 Comparison of Physical and chemical properties of PFC solution

	물	PF5070	PF 5080
분자식	H ₂ O	C ₇ F ₁₆	C ₈ F ₁₈
분자량	18	388	438
비등점, °C	100	80	101
동점도, 10 ⁻⁶ m ² /s	1.06	0.55	0.8
표면장력, dyne/cm	73	13	15
잠 열, kJ/kg	539	80	92
비 열, kJ/kg.k	4.2	1.1	1.1
밀 도, g/ cm ³	1.0	1.7	1.8

나. 해외의 연구개발 현황

주로 MOX 핵연료 제조공정이나 재처리 Pu 전환공정에서 오염된 공구 및 기계류와 바닥, 벽 및 천장 등과 같이 대형 오염 대상물을 제염하는 건식제염기술로 오염 대상물 및 오염물의 특성에 따라 상압 또는 고압을 사용하는 프레온 제염공정이 개

발되었다[2.1.2.1-2.1.2.2]. 최근 환경보호에 대한 관심이 고조되면서 오존층을 파괴하는 프레온 공정을 대체하기 위해 염소를 포함하지 않으면서 이차 폐기물의 발생이 거의 없는 PFC (perfluorocarbon) 제염공정의 개발이 미국의 Entropic Systems, Inc. 주도로 시도되고 있으며, 주로 금속장비 및 구조물 표면이나 전자 장비표면에 오염된 입자성, 비고착성 오염물을 대상으로 그 처리성능이 평가되고 있다[2.1.2.3]. 최근 입자성 오염물을 제거하기 위한 PFC 공정에는 DuPont 이나 3M에서 개발한 PFC계 세정제 (Vertrel 245, PF-5070)를 주된 세척제로 사용하고 있으며, 여기에 계면활성제를 첨가하여 처리공정의 효과를 증진시키는 연구가 진행되고 있고, 프레온 공정보다 제염효과가 매우 좋은 결과를 얻었다. 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. Bartlett Services, Inc.와 Entropic Systems, Inc.는 공동으로 DOE의 소각시설에 설치되었던 대형의 가스필터 (24" * 24" * 6")를 상용규모의 초음파 세척장치와 PFC공정을 합한 물리적 제염기술을 사용하여 1997년 4월까지 27개의 필터를 처리한 결과, 오염 입자들이 효과적으로 제거된 필터들은 압력차가 현저히 감소하여 재사용이 가능한 수준까지 제염되었다. 이때 초음파 세척에 사용한 계면활성제로는 고분자량의 fluorocarbon 이고 운반체로는 perfluorinated carrier liquid를 사용하였다. 이러한 물리적 처리공정을 적용하여 필터 매질로부터 제거된 입자들은 0.22 μm polypropylene 필터로 걸러서 소각하였다('98 Waste Management, Tucson, Arizona, 1998).

다. 국내의 연구개발 현황

제염기술 개발과 관련해서 KAERI에서 과기처 특정과제(원격 제염기술개발, TRIGA연구로 제염해체 방안연구)와 방사성폐기물 기본 과제 등을 통하여 기반기술을 개발하여 왔으며, 미국, 일본, 프랑스, 영국, IAEA 등과의 국제협력 프로그램을 통하여 기술 인력을 지속적으로 양성해오고 있다. 지금까지 KAERI를 통하여 개발된 제염기술은 원격 드럼 제염장비, 초음파 제염장비 등의 제염장비 개발과 원전 일차 계통 및 사용후 핵연료 저장용기의 제염 등에 효과적인 KAERI 화학제염, LOMI 제염공정 등 습식제염기술 등이 있고, 1997년도부터 전기화학적 산화에 의한 분해 및 용출 연구를 수행하여 알파폐기물 제염의 기본기술을 파악한 바 있다.

또한 고방사능 시설 및 장비에 대한 건식제염기술의 중요성이 인식되어 국내

KAERI에서 '99~'00년에 걸쳐 원자력증장기연구로 단위제염기술 (PFC, CO₂, 플라즈마) 시험/평가를 통해 고가 장비 및 설비의 제염 후 Hot Cell 장비로 재활용하거나 저준위 폐기물화가 가능한 수준까지 제염 가능성을 실험실적으로 입증하였으며, 이송제염 공정개념 설계방향을 수립(KAERI 고화체 검사 대형 Hot Cell 활용 방향)하였다. 그러나 후속 단계의 연구가 이루어지지 않아 연속적인 연구 성과의 제고가 어렵게 된 바 있다.

라. 기술개발 조사사례에 대한 평가

우리나라의 경우, 비록 정확한 조사가 이루어지지 않았지만, 이미 각종 원자력 시설에서 발생하는 폐기물의 양이 상당한 양에 이르고 있을 뿐만 아니라 현재 고리 1호기의 증기발생기가 1998년 해체되어 제염을 기다리고 있고, TRIGA Mark-II, III 역시 해체 사업이 완결 단계에 있다. 앞으로 다양한 형태의 핵연료 주기 산업이 본격적으로 자리 잡게 되면, 다량의 고준위 방사성 폐기물이 포함될, 지금 보다도 훨씬 다양한 형태의 방사성 폐기물이 방출되어 축적될 것이다. 단기적으로도 작게는 SF₆ 차세대관리, 장수명 핵종 전환공정 시설 등의 다양한 설비에 대해 기기의 망실이나 노후화로 인한 교체로 이들 고가의 시설에 대한 제염 수요도 크게 증가할 것이며, 따라서 이에 따른 국내에서의 오염 제염 사업화/기업화는 조만간 활성화될 것으로 보인다.

3. 플라즈마 제염 기술

가. 기술 개요

플라즈마 제염 공정은 오염 핵종과 반응하여 휘발성 화합물을 생성시키는 원소 혹은 원자들을 함유하는 플라즈마 기체를 발생시켜 오염원인 방사성 핵종과 선택적으로 반응시켜 기화 제거하는 것이 기본 원리 이다. 원자력 발전소에서 발생하는 오염의 주요 핵종들은 크게 세 가지로 분류될 수 있는데 불연성 천이 금속 원소군에 속하는 Co, Ni, Cr, Mn, Fe 등의 방사성 부식 생성물(CP)과 Mo, Tc, Ru, Rh와 같은 핵분열 생성물(FP), 그리고 U, Pu 등의 초우라늄원소(TRU) 등을 들 수 있다. 이들 오염원은 플라즈마와 반응하여 불소화합물(fluoric compound)을 생성하게 된다. Table 2.1.3.1에서 보는 바와 같이 이 불소화합물은 상온 부근에서 매우 강한 휘발성, 승화

성을 가지고 있어 쉽게 기화된다. 따라서 플라즈마 제염에서는 이러한 화합물을 형성시킬 수 있는 혼합기체 플라즈마를 발생시켜 화학적으로 반응성이 뛰어난 입자를 생성시키고 기화 온도/압력의 차이를 이용해 오염원인 방사성 핵종만을 선택적으로 기화시켜 제거하는 방식이다. (Fig. 2.1.3.1) 이때 플라즈마에서 조성된 고온 분위기는 이 반응을 더욱 활발히 한다. 따라서 이 기술의 핵심은 적절한 반응 기체의 선정과 최적 온도/압력 등 최적 공정의 확보 여부이며 출력 장치로는 microwave, r.f., DC, AC, ECR 플라즈마 source 등 다양한 방식을 이용할 수 있다. 이렇게 생성 기화된 화합물들은 trap이나 filter를 통해 쉽게 제거 될 수 있고, 방사성 원소가 쉽게 탈착 될 수 있다면 혼합기체는 다시 플라즈마 발생에 재사용 될 수도 있다. 이러한 화학 반응 외에도 고온 열처리 방식이나 이온 주사 방식을 보조적으로 사용하여 제염율을 높일 수 있다.

Table 2.1.3.1 Properties of the principal fluoride compound

Compound	mp (°C)	bp (°C)
UF ₆	64	(승화: 56.5 °C)
PuF ₆	51	62
NpF ₆	51	62
MoF ₆	17.5	35
WF ₆	2.3	17.5
ReF ₆	18.7	33.8
RuF ₅	85.6	227
RuF ₆	50.4	(분해: 200 °C)

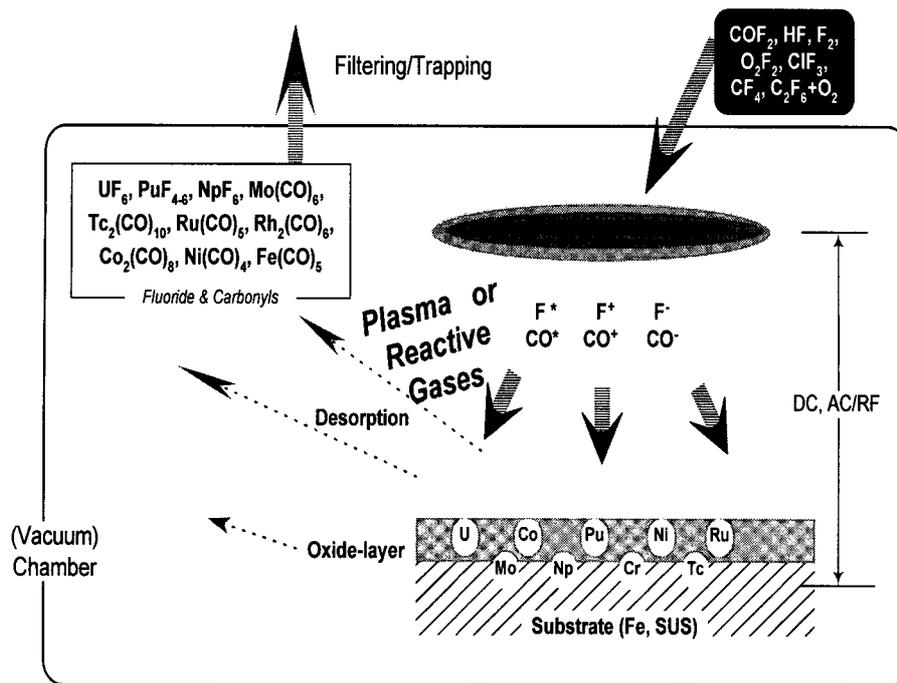


Fig. 2.1.3.1 Basic principles of the plasma decontamination technology

나. 해외의 연구개발 현황

선진국의 경우 각 국의 다양한 기술 수요에 따라 이미 적절한 플라즈마 기술에 대한 연구 개발이 활발히 진행 중인데 최근에는 원자력 분야에 플라즈마 공정 기술 응용에 대한 관심과 연구 개발이 한창 진행 중이다. 특히 핵융합 플라즈마 연구 지원 감소 추세에 따라 핵융합 연구 과정 중 습득 확보한 기술을 원자력 산업을 포함한 산업 응용에 적용하기 위해 각국의 국·공립 연구소와 대학 연구소/연구진들을 포함한 많은 연구 기관들이 활발한 기술 개발 활동을 벌이고 있다.

(1) 미국의 개발 현황

미국은 이 플라즈마 공정의 폐기물 처리 기술에 매우 큰 관심과 투자를 하고 있는 나라이다. 국립연구소인 INEL(Idaho National Engineering Lab.)의 경우 여러 D&D (Decommissioning and Decontamination) 관련 기술 중 플라즈마 제염기술을 ‘thermal substrate removal’ 기술 분야로 분류하고 이를 다시 세 개의 세부 기술 분야 (Plasma torch, Plasma surface cleaning, Plasma etching/fluorination)로 분류하여 집중 연구 중이다.

또한 타 기관들에서 수행되고 있는 플라즈마 응용 연구로는 plasma torch를 사용하

여 저준위 방사성 폐기물, TRU핵종, 토양을 제염하는 연구와 plasma arc torch를 이용하여 중저준위 방사성 폐기물의 부피를 감용하는 연구 등이 있다.

그 외의 분야에서 연구되고 있거나 혹은 실제 현장에서 사용되고 있는 기술로는 plasma torch를 사용한 다양한 폐기물의 thermal destruction과 플라즈마에서 발생하는 고온 분위기를 이용하는 thermal treatment가 있으며 (MIT PSFC), micro-wave plasma torch를 이용하여 oil surface cleaning 과 작업장의 제염에 사용하고 closed-loop plasma cleaning system을 이용하여 U, Pu, Hg 등을 함유한 유해물의 제염에 응용하고 있다 (ORNL). 또한 UCLA와 LANL은 공동 연구를 통해 방사선 표면오염 제거 기술을 개발 실용화 하고 있으며 PEC(Plasma Energy Corp.)은 plasma를 이용하여 매립지를 정화하기 위한 PRISM (Plasma Remediation of In-Situ Materials) 공정을 개발하는 연구와 plasma centrifugal furnace를 이용하여 유해 폐기물을 처리하고 있고, plasma torch를 이용한 병원고체 폐기물 및 slag의 처리와 운송이 가능한 TDR 500 system (Transportable Plasma Energy Pyrolysis System)을 설계 및 제작하는 연구 (PEAT) 등이 행하여지고 있다.

대표적인 연구기관의 대표적 원자력 응용 연구현황을 살펴보면 다음과 같다.

○ M. Okumoto et al.

- 플라즈마의 화학적으로 매우 활성인 매체를 이용하여 다양한 기체의 합성에 응용(ozone, Hydrocarbons, etc.). (M. Okumoto, A. Mizuno, Conversion of methane for higher hydrocarbon fuel synthesis using pulsed discharge plasma method, Catal. Today 71(2001) 211~217)

○ Tech Sales Company

- 코로나방전을 이용하여 물질 표면의 Wet-ability을 증가 시켜 프린트 혹은 다른 물질과의 접착력을 향상시키는 장치 개발.
(http://www.tech-sales.com/Bottledyne_Corona_Treating_System.htm)

○ Surfstechnologies company

- 저온의 상압플라즈마 기술을 이용하여 물질 표면의 세정, 코팅, 표면 활성화, 표면개질 장치 개발 (<http://www.surfstechnologies.com/>).

○ MIT PSFC (Plasma Science & Fusion Center)

- 상압이나 상압근처에서 electrodeless plasma torch를 이용하여 다양한 폐기물의 thermal destruction에 사용하고 있으며, 또한 2.45 GHz micro-wave(4kW) plasma torch를 이용하여 thermal treatment에 응용하고 있다. 또한 고준위 폐기물(HLW)과 저 방사능 폐기물(LAW)을 용해한 물질의 특성을 평가하기 위한 실시간 센서개발(Millimeter-Wave Glass Meter-Process) 연구가 수행중이다. (www.psfc.mit.edu)

○ UCLA/LANL (Los Alamos National Lab.)

- 상압에서 plasma jet(APPJ, 13.56 MHz)을 이용하여 주로 TRU 핵종과 저준위 방사성 폐기물(LLW)의 제염을 수행하였으며 이때 feed gas로는 $CF_4/O_2/He$ 을 사용하였다. 또한 보다 더 적은 비용으로 방사성 폐기물의 제염이나 weapon-site에의 응용을 위해 고출력의 APPJ를 개발하였다. RF 전원을 이용하여 낮은 온도조건($\sim 75\text{ }^\circ\text{C}$)에서 물질의 세정, 에칭, 증착에 관한 연구 수행하였다. (UCLA: www.cerr.ucla.edu, LANL:www.lanl.gov/orgs/cipto/DTIN/open/UsrFac/plasmajetuser.html)

○ Westinghouse

- Marc-3 system으로 명명된 plasma torch(50~300 kW)를 이용하여 주로 commercial ash vitrification과 LLW 처리에 이용하고 있으며, 상업용으로서의 보다 큰 내구력이 있는 600~2,500 kW 급을 판매하고 있다. (www.westinghouse-plasma.com)

○ 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. (www.pnl.gov/WEBTECH/bwid/plashrth.html)

○ ORNL (Oak Ridge National Lab.)

- Micro-wave plasma torch(2.45 GHz)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 매우 효과적이었다. (www.ornl.gov/orcmt/capabilities/dtin023.html)

○ Phoenix Solutions Co.

- 100~1,500 kW의 plasma arc torch를 이용하여 중저준위 방사성 폐기물(LLW)의 감축(reduction), 도시쓰레기의 비산재(fly-ash)의 유리화, 그리고 금속폐기물(metal scrap)의 용융에 이용하고 있다. 또한 300 kW 급의 plasma torch를 설계 제작하여 일본의 Kobe Steel/Kansai Electric에 waste processing system으로 공급하였다. (www.phoenixsolution.thomasregister.com)

○ Retech Inc.

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

○ 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 1 톤 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. (eco-web.com/register/01224.html)

- PEAT (Plasma Energy Applied Technologies)
 - 150 kW의 비 이송식 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. (www.peat.com)

- SCE&G (A SCANA. COMPANY)
 - DC plasma arc torch를 이용하여 고체 폐기물과 비산재에 대해 열분해 및 유리화 처리를 하고 있다. (www.scana.com)

- LLNL (Lawrence Livermore National Lab.)
 - 20 kW의 RF plasma torch를 제작해서 연구를 수행중이며, plasma torch를 이용하여 방사성 폐기물, 고체폐기물, 그리고 혼합폐기물의 유리화 하는 처리공정을 개발하고 있다. 또한 50 kW의 새로운 design의 RF plasma torch를 계획중이다. "Pulsed Streamer Coronas"를 개발하여 일반적인 상압 플라즈마보다 더 낮은 전력을 사용하여 플라스틱 표면 처리 분야 분야에 응용한 기술을 개발하였다. (<http://www.llnl.gov>)
(www-dsed.llnl.gov/documents/plasma/raapctta93.html)

- 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 추진 중이다.
(eoeml-www.gtri.gatech.edu/lab/nemeth)

- 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.

(www.anl.gov/LabDB/Current/Ext/H611-text.003.html)

(2) 일본의 개발 현황

현재 plasma torch를 이용하여 저준위 방사성 폐기물을 제염, 처리, 용융하는 연구가 이루어지고 있다.

그리고 플라즈마 용융설비(PT-200)를 이용하여 저준위 방사성 폐기물 드럼 처리를 위한 실증 실험이 이루어지고 있고 (Kobe Steel), transferred arc 용융로를 이용한 고화처리가 이루어지고 있다 (Diado Plant). 또한 미국의 Retech사에 의해 개발된 plasma centrifugal furnace 장비를 이용하여 방사성 폐기물의 처리에 사용하고 있다 (TEC).

특히 일본 전력중앙연구소 (CRIEPI, Central Research Institute of Electric Power Institute) 경우 원자력응용을 위한 플라즈마 연구실팀을 별도로 가동하고 10여명의 연구원들이 다양한 연구를 수행하고 있으며 일본의 3개 전력회사의 경우 이들의 연구 결과를 현장에 적용할 계획으로 알려져 있다. 대표적인 예를 들면 다음과 같다.

○ Kogoma et al.

- 플라즈마 전극으로서 금속망(metal mesh)을 사용하여 오존을 발생시키는 실험을 수행하였음. (M.Kogoma and S.Okazaki, J. Phys. D : Appl. Phys. 27(1994) 1985-1987)

○ 전력중앙연구소(CRIEPI)

- 100 kW급 플라즈마 토치를 이용한 저준위 방사성 폐기물 처리 용융 기술 개발 중
- DC 플라즈마 arc heating 이용 방사성 오염물질 분리
- Corona 방전이용 표면 순간 용융기화처리 연구

○ Kobe Steel

- PEC사의 플라즈마 용융설비 (PT-200:비이송식 토치)를 이용한 저준위 방사성 폐기물(LLRW) 드럼 처리를 위한 실증실험 (www.kobelco.co.jp)

○ Daido 발전소

- 300 kW transferred arc 용융로를 이용한 용융 고화 처리
(www.jnc.go.jp)

○ 동경공업대학 (Tokyo Institute of Technology)

- Micro-wave Plasma Torch(2.1 kW)를 이용한 방사성 제염 연구
(www.ryu.titech.ac.jp)

○ Kaken Co.

- micro-wave heated plasma torch 이용 표면성 제염 처리
(www.kaken.co.jp)

○ TEC (Toyo Engineering Corp.)

- 이 회사는 미국의 Retech사에 의해 개발된 plasma centrifugal furnace 장비를 이용하여 방사성 폐기물의 처리에 사용하고 있다.
(www.toyo-eng.co.jp)

(3) 캐나다의 개발 현황

현재 캐나다에서 실행되고 있는 플라즈마 응용 연구로는 플라즈마 가스화(Plasma Gasification), RF inductive coupled plasma torch와 transferred arc 용융로를 이용하여 폐기물을 처리하는 연구가 수행되고 있으며 일부 대학은 핵연료 주기 응용 핵연료 물질 변환 연구도 수행하고 있다. 대표적인 연구기관의 연구 활동은 다음과 같다.

○ McGill 대학

- 40 kW transferred 아크 용융로 이용 유리화 (www.mcgill.ca)

○ Sherbrooke 대학 (CRTP)

- RF inductive coupled plasma torch와 transferred arc 용융로를 이용해 화학 폐기물 처리 (www.gcm.usherb.ca/crtp)

○ RCL (Resorption Canada Ltd.)

- 플라즈마 가스화(gasification)는 플라즈마 발생열을 이용해 폐기물을 안전

하게 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 150 kW의 비이송식 PEC사의 플라즈마 토치를 사용하고 있다. (www.rcl-plasma.com)

(4) 유럽지역의 개발 현황 (프랑스, 독일, 스웨덴)

현재 유럽지역에서 실행되고 있는 플라즈마 응용 연구로는 Plasma Torch를 사용하여 HSW, MSW을 처리, 유리화하는 연구가 주로 행하여지고 있다.

또한 열분해 가스의 산소 플라즈마에 의한 연소 및 소각재 유리화 연구하고 있으며 (Limoges Univ. + COGEMA/France), BORDEAUX-FRANCE 설비를 이용하여 도시고체폐기물을 유리화하고 있다(Europlasma). 그리고 방사성 폐기물 처리를 위한 PLASMOX system을 개발하고 있고 (Mannesmann Demag + MGC Plasma AG/German), plasma torch system을 이용하여 도시고체 폐기물의 가스화를 통해 연료가스를 생산하거나 다양한 폐기물로부터 회수되는 연료를 생산하기 위한 플라즈마 폐기물 처리 공정을 개발하고 있다 (ScanArc/Sweden). 영국의 BNFL은 러시아 전문가와 함께 핵연료 물질 변환/처리 기술을 실용화 하고 있는 것으로 알려졌다. 각국의 연구기관의 연구사례를 살펴보면,

(가) 프랑스의 개발 현황

○ EDF(Electricite de France)/CNIM

- EDF와 CNIM은 600 kg/h의 병원고체 폐기물(HSW)을 처리하기 위해 2 MW 용량의 plasma torch를 이용하고 있다. 또한 연간 20,000 톤의 병원고체 폐기물(HSW)을 처리하기 위해 plasma 시설을 포함한 사용 가능한 설비를 만들고 있다. (www.edf.fr)

○ Limoges 대학 + COGEMA

- 열분해 가스의 산소 플라즈마에 의한 연소 및 소각재 유리화 (www.cogema.com)

○ 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 400 톤, 하수슬러지(Sewage Sludge)는 60 톤, 그리고 비산재(Fly Ash)는 10 톤 정도를 처리하고 있으며, 이 설비를 통해 인근 12,000 여 가구에 전기와 열을 공급하고 있다. (www.europlasma.com)

(나) 독일의 개발 현황

○ Mannesmann Demag/Krupp Mak

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

(다) 스웨덴의 개발 현황

○ ScanArc (Plasma Technologies AB)

- 이 회사는 100 kW~10 MW에 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(www.scanarc.se).

(5) 국제기구(IAEA와 OECD/NEA) 제염 기술 개발 관련 현황

IAEA의 경우 전세계적으로 중요성이 드러나고 있는 decommissioning/decontamination 기술에 관한 최근 정보자료들을 잘 추적 요약 분석 평가하고 있는데 최근의 연구 현황 분석 보고서에서는 이 플라즈마 공정기술을 신기술(emerging technology)로 분류하고 주목하고 있으며 그 적용 사례를 일부 소개하고 있다.

OECD/NEA의 경우도 이 신기술에 상당한 관심을 갖고 있는 것으로 밝혀졌는데 특히 원자력 시설 운영 시 혹은 해체 시 발생하는 scrap metal의 표면 오염제염에 그 적용의 가능성을 주목하고 있다.

(6) 기타 국가의 개발 현황

대만의 경우는 INER(Institute of Nuclear Energy Research)를 중심으로 방사성 폐기물의 처리용 플라즈마 공정 시스템 pilot plant를 건설 운영 중이다. 이외의 주요 국가로 헝가리에서는 플라즈마 산화에 의한 염화 유기화학 폐기물 및 독성 중금속 함유폐기물의 처리를 연구하고 있으며, 오스트리아에서는 플라즈마 산화에 의한 cholrophenolic 폐기물의 처리를 연구하고 있다(PLASCON).

다. 국내의 연구개발 현황

실제 플라즈마 공정 기술의 산업적 응용은 반도체 칩 제조, 자동차 엔진 내마모성 향상에서부터 인공 장기 제조, 렌즈의 코팅까지 실로 다양하며 원자력 산업의 경우 핵주기 관련 핵연료 재료 변환/처리, 방사성 폐기물 처리, 핵재료 표면 처리, 원자로 해체, 동위원소 분리 및 방사성 핵종 분석 등에 활용될 수 있다. 그러나 늘 보수적이며 안정적 접근을 시도하는 국내 원자력계의 특성상 원자력 산업에의 응용은 매우 미진하며 초보적인 상태에 머물러 있다.

일부의 대학 등에서는 다양한 플라즈마 공정 연구가 진행되고 있으며 조사 결과 원자력분야 응용 연구는 전반적으로는 초보적인 단계이나 일부 기술은 실용화 단계까지 도달해 있는 것으로 파악되었다. 산업체의 경우 반도체 공정기술을 중심으로 어느 정도 플라즈마 공정 관련 산업기반이 갖춰있는 것으로 드러났으며 일부 산업체의 경우 자체 기술을 원자력 기술개발에 적용할 계획을 갖고 있는 등 플라즈마 공정 응용연구의 잠재적 가능성이 예상보다 큰 것으로 파악되었다.

라. 기술개발 조사사례에 대한 평가

(1) 플라즈마 토치 기술

플라즈마 토치 기술은 플라즈마 상태의 높은 반응성과 고온 분위기를 이용하여 제염 대상물질이 부착되어 있는 표면에서 모재와 오염원을 함께 녹여 분리해 낸다. 이 공정에서는 높은 온도에서 오염 핵종들이 기화될 뿐만 아니라, 화학 식각율을 증가시킬 수 있어서 표면에 형성되는 산화막의 제거는 물론 오염 핵종과 함께 모재의 표면 일부까지 제거하는 효과를 낼 수 있다.

현재 용점이 높거나, 산화를 막기 위해 불활성 분위기를 요구하는 재료의 용접/절단에 상용화되어 있으며, 일부 유해 폐기물의 처분 공정에 도입되어 운영 중에 있다. 현재까지는 제염 분야에 플라즈마 토치 기술이 상용화되어 있지는 않지만 제염

대상물질을 용융이나 기화를 통해 효율적으로 제거할 수 있을 것으로 기대되어 많은 국가에서 이에 관련된 연구가 활발히 진행되고 있다.

다양한 유/무기 오염원들의 제염 효율성에 대한 실증이 필요한 상태이며 제거된 모재와 오염원들에 대한 포집/여과 기술 개발이 필요하다. 또한 이를 제염에 적용하기 위해서는 로봇을 이용한 원격 조정 기술 개발이 병행되어야 한다.

이 기술을 실제 사업화에 적용하기 위해서는 적합한 해체 공정을 포함한 오염 기기에 대한 전처리 공정/기술이 충분히 검토되어야 한다. 또한 상압에서 작동되는 높은 불꽃 분사로 인한 분진상/기체상 오염 물질의 비산 방지 및 적절한 포집/여과 계통에 대한 기술도 확보되어야 한다. 다양한 조건에도 적용이 가능한, 예를 들면 다양한 주파수와 출력, 그리고 출력변화에 따른 안정성 등이 개선된 플라즈마 발생 출력기의 개발을 기대한다.

(2) 플라즈마 표면 제염 기술

이 기술은 표면에 형성된 고착성 오염원의 제염에 효과적으로 적용될 수 있다. 이러한 고착성 오염에는 금속 등의 표면에 산화막과 함께 흡착되었거나 화학적으로 강하게 결합되어 있는 오염 등을 들 수 있다. 재료의 특성에 따라 환원기체를 이용하여 산화막을 제거한 후 다시 휘발성 화합물을 생성시킬 수 있는 반응성이 높은 원소/원자를 발생시켜 제염하거나 혹은 이를 동시에 수행 할 수 있는 반응 기체 화합물을 발생시켜 제염을 수행한다. 이 기술을 이용하면 모재의 회수가 필요한 경우 모재 손상 없이 방사성 핵종만을 선택적으로 기화시켜 제거할 수 있다.

이 기술은 현재 핵융합 장비의 표면에 강한 결합력으로 부착되어있는 오염 물질을 제거하는데 이용되고 있다. 제염에 있어서는 모재에 부착된 오염 핵종을 매우 효율적으로 제거 할 수 있을 것으로 기대되나 불규칙한 표면 제염에도 적용할 수 있는지는 연구 과제로 남아 있다. 처리후 발생하는 폐기물로는 기화된 오염 물질과 수집계통에서 배출되는 filter와 HEPA filter 등이 있다.

표면 오염 핵종들의 제염율에 대한 보다 많은 데이터 축적이 필요하다. 이 기술은 선택적 제염의 장점이 있는 반면, 제염 대상 핵종과 모재 등에 따라 사용 기체를 달리해야 할 필요가 있으므로 각 핵종별로 반응 특성에 대한 연구가 필요하다. 또한 고출력 플라즈마 발생 장치 등에 대한 기술 개발과 오염 시설 제염 시 대두 될 수 있는 넓은 면적 제염 기술 개발도 필요하다.

기화/승화된 제염 물질의 포집/여과 장치에 대한 다양하고 철저한 기술 개발이 이

루어져야 할 것이다. 이 기술은 대개 중·저진공의 밀폐된 공간에서 이루어지므로 오염물질의 비산 등의 가능성은 없으나 복합적인 핵종에 의해 오염된 경우에 대한 연구 개발이 필요할 것으로 판단된다. 대상 물질이 원자력 발전소의 복수기 등과 같이 표면이 균일하지 않은 경우에도 적용할 수 있는 방안이 모색되어야 하며, 모재 회수가 필요한 경우 모재에 대한 영향 평가도 필요하다. 또한 여러 조건에서 적용이 가능한 다양한 출력기의 개발이 요구된다. 예를 들면 플라즈마 출력방식에 따라 정해지는 중·저진공도의 한계를 넓힐 수 있고 고출력에도 안정성이 한층 개선된 광대역 중·저진공 사용 가능 출력기의 개발 등이 수반되어야 한다.

(3) 플라즈마 에칭 제염 기술

일반적으로 불화 반응 등을 이용하여 U, Pu 등의 TRU 물질을 에칭하여 제거하는 방법으로 이 플라즈마 기체를 이용하면 일반 기체상 공정에서보다 식각율을 월등히 향상시킬 수 있으므로 효율적인 제염이 가능하다. 표면 제염 기술과 마찬가지로 대상 물질을 휘발성이 강한 화합물 형태로 만들어 분리한다.

반도체 제조의 에칭 공정에 널리 쓰이는 이 기술은 제염에 있어 일반 기체상 보다 효율이 월등히 좋으며 우라늄산화물 등의 제염 대상물질을 환원시키거나, 불화반응 등의 화학적 반응을 이용하여 기화시켜서 제거하는데 응용할 수 있을 것으로 기대된다. 처리 후 발생하는 폐기물로는 기화된 오염 물질과 수집 계통에서 배출되는 filter와 HEPA filter 등이 있다.

좀 더 다양하고 풍부한 제염 공정 데이터가 필요하며 제염 대상물질에 대해 효율적이고 경제적인 제염 공정을 찾기 위한 연구가 수행되기를 기대한다. 또한 면적이 넓고 복잡한 기기에도 적용할 수 있는 기술의 개발과 고출력 플라즈마 발생 장치에 대한 기술 개발도 필요하다.

이 기술은 우라늄을 포함한 초우라늄 원소 화합물을 주 대상으로 하기 때문에 불화물 형태의 기체상 오염 물질을 대상으로 하는 다양한 포집재, 여과재 및 포집/여과 계통/장치 개발이 상용화에 수반되어야 한다. 또한 표면 제염 기술의 경우와 같이 여러 조건에서 적용이 가능한 다양한 출력기의 개발이 요구된다.

4. 고방사능 분진 제거기술

가. 기술 개요

한국원자력연구소 내 핫셀에서는 사용후 핵연료의 산화환원 및 분쇄공정, 사용후 핵연료의 절단 및 분말화 공정, 균분리 공정, 사용후 핵연료 금속전환 공정 등을 수행하고 있다. 이들 공정 수행 중 핫셀 바닥면과 벽면 그리고 핫셀 내부에 있는 여러 장치표면들이 연구실험 과정에서 발생한 고방사능 분진과 고방사능 핵연료의 조사 등에 의해 오염되어 핫셀내의 방사능 준위가 높아지고 있다. 그러므로 핫셀내에서 핵연료 조사 실험을 원활히 수행하기 위해서는 주기적으로 핫셀 내부 표면과 장치표면에 오염된 고방사능 분진을 제거하여 핫셀 내의 방사능 준위를 낮추어야 하므로 핫셀의 내부 표면과 핫셀 내의 장치표면에 부착된 고방사능 분진을 제거하기 위한 장치들을 개발하였다. 개발된 고방사능분진 제거장치는 핫셀 바닥 및 벽면에 부착된 고방사능분진을 제거하고, CO₂ pellet 분사장치와 연결하여 CO₂ pellet 분사장치 사용 시 발생하는 고방사능분진을 제거한다. 또한, 개발된 PFC폐액 여과장치는 PFC제염장치와 연결하여 PFC제염장치 사용 시 발생하는 고방사능분진을 제거한다. 고방사능분진 제거 장치는 미국 DOE에서도 유사한 장치를 개발했으며, 다른 원자력 선진 국가에서도 개발 중이다. 본 연구에서는 핫 셀 내의 비 고착성 고방사능분진을 제거하기위해서는 먼저 핫 셀 오염특성을 조사했다. 즉 고방사능 분진의 종류, 크기, 방사선량 등이 분석하고, 핫 셀 내부에 오염된 고방사능분진 제염에 적합한 사이클론과 필터로 구성된 고방사능 분진 제거장치 및 PFC 제염폐액 여과장치를 개발하고, 개발한 장치의 분진제거 성능평가지험을 수행했다.

나. 해외의 연구개발 현황

미국, 유럽, 일본, 중국 등 원자력시설에서는 핫셀 내부에 부착된 고방사능 분진들을 효과적으로 제거하고 장기간 사용할 수 있는 고방사능분진 제거장치의 개발의 필요성을 인식하고 관련 장치를 개발해왔다. 고방사능분진 제거 장치는 미국 DOE에서도 효율적인 사이클론-필터 장치를 개발 및 특허화 했으며, 다른 원자력 선진 국가에서도 효과적인 고방사능분진 제거장치를 개발 중에 있다. 미국의 Stairmand은 미세분진제거를 위해 개발된 상용의 대형 사이클론에 관해 사이클론 직경(DC)에 대한 다른 부문 길이에 대한 표준비율을 제시했고, Yifang Zhu등은 최근 미세분진 제거효율이 높은 소형 사이클론의 비율을 제시했다. PFC (PerFluoroCarbon) 제염기술은 기존의 프레온제염과 유사한 방법으로 고체표면에서 작은 입자를 더욱 효과적으로 제거할 수 있는 건식제염공정의 하나이다. PFC 공정은 미국의 ESI(Entropic System, Inc.)에서 주도적으로 개발되고 있으며, 미국 DOE Savannah River Site에서 보관 중인

^{238}Pu 으로 오염된 TRU Waste를 제염하기위한 Sonatol 공정에 적용되었다. 여과 막에는 여러 종류가 있으며, 여과 막 오염을 방지하고 높은 플럭스를 유지하며, 여과 막의 미립자 제거효율을 증가시키기 위하여 최근 새로운 막의 재질과 모듈의 디자인 개발 그리고 유동 패턴의 변화 등의 많은 연구가 진행 중에 있다. PFC 제염공정은 DuPont 이나 3M사에서 개발한 PFC계 세정제(Vertel 2454, PF-5070)를 주된 세척제로 사용하고 여기에 PFC계 계면활성제를 소량 첨가하여 공정의 제염성능을 증진시켰다. 또한 금속표면의 고착성 오염물을 처리하기 위하여 PFC 공정과 초음파를 복합한 공정개발이 진행되고 있다.

다. 국내의 연구개발 현황

핫셀 내에서 공정시험 또는 건식제염 시 발생하는 비고착성 고방사능 분진은 지금까지는 알코올을 묻힌 휴지로 닦아 내거나 진공청소기로 흡수 제거하는 방법을 사용해왔다. 알코올을 묻힌 휴지를 사용할 때, 많은 폐기물이 발생한다. 진공청소기를 사용할 때, 진공청소기 내에 설치된 필터가 단시간 내에 포화되며, 이 포화된 필터는 핫셀 내에서 Manipulator에 의한 교환이 어렵고, 고방사능 분진이 플라스틱으로 만든 진공청소기 몸체에 많은 방사능 부하를 주어 진공청소기의 수명이 짧다. 그러므로 장기적으로 사용가능한 고방사능분진 제거장치의 개발이 필요하다.

라. 기술개발 조사사례에 대한 평가

원자력연구소 핫셀내의 비고착성 고방사능분진을 제거하기 위해서는 먼저 핫셀내의 오염특성을 조사해야한다. 즉 고방사능 분진의 종류, 크기, 방사선량 등이 분석되어야 한다. 또한, 개발된 장치를 원자력연구소 핫셀 내에 넣기 위해 핫셀 출입구와 핫셀 연결문의 크기를 조사했다. 핫셀에 투입된 장치의 작동은 Manipulator에 의해 수행되어야 하므로 Manipulator의 작업범위도 조사했다. 핫셀에 투입된 장치의 작동은 머니플레이터에 의해 수행되어야 하므로 머니플레이터의 작업범위도 조사했다. 개발된 장치의 성능을 평가하기 위하여 모의 오염폐액을 이용하여 장치의 Flux 및 입자 제거효율을 측정하였다.

제 2 절 금속성 해체폐기물 용융제염기술 개발

1. 기술개요

원자력 에너지는 현재 우리가 당면하고 있는 고유가 시대에 높은 에너지 효율과 청정에너지를 얻을 수 있는 중요한 자원으로서 현재까지 매우 큰 역할을 담당해오고 있다. 특히, 전체 에너지의 해외의존도가 98%에 이르고 있는 우리나라의 실정에서 원자력 에너지는 경제발전을 위한 원동력의 측면이나 자원의 효율적인 사용의 측면에서 없어서는 안 될 중요한 에너지의 자원이다. 이렇게 중요한 에너지원임에도 불구하고 원자력이 환경에 미치는 영향과 원자력에 대한 국민 인식의 부족으로 인해 그 활용성을 극대화시키지 못하는 실정이다. 원자력에 대한 이러한 부정적인 측면은 원자력 시설에서 발생하는 각종 폐기물 처리에 대한 신뢰성에 의문을 갖기 때문이다. 그렇기 때문에 핵 시설에서 발생하는 폐기물을 쉽고 안전하게 처리 및 처분하는 것은 매우 중요한 사항이다.

전 세계적으로 산재해 있는 수많은 원자력시설은 향후 10 ~ 20년 안에 한계수명에 도달하게 되고 궁극적으로 해체될 실정이다. 원자력 시설의 해체 시 발생하는 폐기물은 금속 조각, 콘크리트, 토양 등 종류도 다양할 뿐만 아니라 발생량 또한 방대하다. EC(European commission)의 자료에 의하면 앞으로 60년 동안 유럽 국가들에 있는 원자력시설의 해체 시 발생하는 금속폐기물의 양이 스테인레스강은 약 30만 톤, 연강이나 탄소강은 약 100만 톤, 알루미늄과 구리는 약 2 ~ 3만 톤 정도가 될 것으로 예상하였다[2.2.1.1-2.2.1.2]. 해체 시 발생하는 금속 조각은 대부분 방사능에 아주 미미하게 오염되어 있기 때문에 이중에서 대부분은 무구속 방출이나 약간의 제염 처리 후 일정한 공정을 거쳐 핵 시설내의 폐기물 저장 용기나 처분 상자, 폐기물 드럼, ISO 컨테이너 등으로 재활용되고 있거나, 앞으로 재활용할 수 있다고 보고되고 있다.

국내적으로도 연구로 1, 2호기 및 원자력 연구소내 우라늄변환시설의 경우 해체 시 발생할 금속폐기물은 구조재, 배관재 등을 포함하여 수십 톤 이상이 될 것으로 예상된다. 현재 이러한 금속 폐기물의 처리방법은 단순히 고압 압축하여 처분용기에 처분하는 방법으로 이 방법은 감용비가 낮고 유용한 자원을 재활용없이 폐기한다는 점에서 문제점을 나타내고 있다. 그러나 이러한 금속 폐기물의 대부분은 적절한 제염 처리만 한다면 다시 사용해도 무방할 것으로 예측하고 있다. 원자력시설 해체 시 다량으로 발생될 것으로 예상되는 금속 조각을 수용하기에는 폐기물 처리장이 매우

부족할 뿐만 아니라, 이에 따른 관련 처분 비용이 계속적으로 증가하는 추세에 있다. 따라서 이러한 문제를 해결하기 위해서 방사성 금속 폐기물의 효과적인 감용 및 재활용 기술이 요구된다.

금속 폐기물의 감용 및 재활용 기술 중 현재까지 가장 적절한 기술로서 용융 기술이 있다[2.2.1.3]. 유럽을 주축으로 미국과 일본에서 활발히 연구되어져 온 용융 기술은 다른 처분 방법에 비해 부피 감용비가 가장 높다. 또한, 이 기술은 휘발성 핵종이나 금속과 반응성이 적은 핵종을 slag 속에 포집하여 제염하거나, 방사성 핵종들이 주피에 균일하게 분포하고 금속의 결정 격자속에 고정화시킬 수 있기 때문에 보다 안정화시킬 수 있다는 장점들을 가지고 있다.

따라서, 본 연구에서는 연구로 1, 2호기와 원자력 연구소에 있는 핵 연료 변환 시설의 해체 시 발생하는 금속폐기물의 효율적인 감용 및 재활용을 위한 용융기술의 현황을 검토하고자 한다. 또한, 용융 공정에 의해 생성되는 금속 주피의 재활용 및 재이용에 관한 시나리오와 적용 사례를 검토하여 보다 체계적이며 효율적인 폐기물 처리 방안을 도출하고자한다. 이러한 금속 폐기물의 용융 처리 기술 분석과 재활용 기술의 검토가 앞으로 우리에게 도래할 원자력 시설의 해체나 보수 시 발생하는 금속 폐기물의 신뢰성있고 효과적인 처리와 처분 방안의 수립을 위해 중요한 자료가 될 것으로 사료된다.

2. 해외의 연구개발 현황[2.2.2.1]

가. 미국

미국에서는 1950년대에 플루토늄 및 우라늄의 분리방법으로 용융제염기술이 개발되어 α 핵종 분리의 중요한 기술로 발전시켰고 이러한 기술을 바탕으로 1983년 Idaho National Engineering Lab.(INEL)에서 원자력시설로부터 발생된 금속폐기물을 재사용하기 위한 연구를 시작하여 현재는 하루에 680 kg의 금속폐기물을 용융제염할 수 있는 시설을 갖추고 있다.

미국에서 금속 조각을 가지고 여러 가지 크기의 용융 고화/정제 실험이 행해졌는데, 이를 Table 2.2.2.1에 요약하였다. Mautz(1975)에 의해 언급된 용융실험은 1940년 초부터 1960년 초까지 Y-12 공장에 축적된 27,000 ton의 우라늄으로 오염된 일반 금속 조각에 대한 것이다. Y-12 사람들에게 의해 시행된 용융은 20 ton의 전기로에서 수행되었다. Mautz는 슬래그로 이동하는 우라늄의 경향을 나타내는 슬래그와 주피에서

의 화학적 특성에 대한 광범위한 자료를 보고하였다.

Table 2.2.2.1 Summary of large scale ferrous melt consolidation /refining programs

Reference/Country/ Location	Type/Size of furnace	Total weight melted(ton)	Material melted	Ingot contaminant level
Mauts(1975)/USA	Arc/ 10ton	27,000 (2037heats)	CS	0.4ppm U avg. 3.5ppm max
Large, SEG(1993)/ USA	Induction/ 20ton	2,200	CS (to be rolled into plate)	< 10 mR/hr
Echols, SEG(1993)/ USA	Induction/ 20ton	2,735	CS (cast to shield blocks)	<10 mR/hr
Larsen(1985)/USA/ INEL	Induction/ 1500lb	278 (123heats)	CS, SS	21 pCi/g avg. 27 pCi/g max. ⁶⁰ Co

대표적인 자료 중에 하나는 주괴에서의 우라늄 값은 0.1~2.1 ppm인 반면에 슬래그에서는 707~8,406 ppm의 우라늄 값을 나타내었다. 2,037 ton의 금속 용융물에 대한 해석의 결과 46%의 주괴에는 0.2 ppm 이하의 우라늄이 포함되어 있으며, 1.0 ppm 이하는 94%, 2.0 ppm 이상은 1%에 포함되어 있다. 20 ton의 arc furnace에서 2,200 ton의 stainless 금속의 용융 실험에서도 유사한 결과를 얻었다. Sanders 자료는 단일 최고치가 3.2 ppm이었고, 평균 우라늄 함량이 0.6 ppm을 나타내었다. 전체 주괴중에서 주괴의 32.1%는 0.2 ppm 이하의 우라늄을 포함하고 있는 반면 79.8%는 1.0 ppm이하의 우라늄을 포함하고 있다.

Larsen(1985)은 해체된 실험 원자로(SPERT III)로부터 얻어진 78 ton의 RSM(radioactive scrap metal) 용융에 대해 보고하였다. 크기 분쇄장치와 소각장치가 포함되어 있는 폐기물 실험 감소 장치(Waste Experimental Reduction Facility)는 INEL SPERT III 건물 안에 위치해 있다. 용융로는 국부적인 후드와 필터배기 장치가 장착된 1,500 lb 용량으로 경사 유출기가 있는 coreless 유도로이다. Larsen은 내부에 소결 알루미늄 내화재를 사용하였다. 5개의 내화재 라인은 123번 실험을 실행했으며, 최고의 내화재 수명이 44번이었다. 주형물에 앞서 슬래그 응고제는 슬래그를 제거하기 위해 용융물의 상부에 첨가한다.

금속은 로 전체의 용융물을 충분히 포함할 수 있는 사각형의 몰드에서 주형되었

고, 용융된 금속 시료는 ^{60}Co 에 대해 11~27 pCi/g의 방사능을 나타내었다. ^{137}Cs 에 대해서는 1~2 pCi/g의 방사능을 나타내었다. RSM에서는 비록 검출되지는 않았지만, ^{137}Cs , ^{152}Eu , ^{154}Eu , ^{155}Eu 는 용융되는 동안 농축의 결과로서 슬래그에서 검출되었다. 같은 성분들이 baghouse의 분진에서도 분석되었다. Scientific Ecology Group, Inc(SEG, 1993)은 50,000 ft²의 금속 공정 시설의 일부분으로서 20 ton 용량의 7,200 kW 유도 용융로를 운전하고 있다. 이 반응로는 국부 후드장치와 HEPA 필터가 장착되어 있다. 운전의 세부사항은 기술되어 있지 않지만, 시설은 폐기물이 저장조에서 용융로에 이동하는 동안 1000 °F까지 올려 휘발시키고 HEPA 시스템에 의해 배기할 수 있는 예열기가 장착되어 있다. 이 시설에서 한곳의 campaign 실험에 의해 2,735 ton의 탄소강의 차폐 블록(Echols, 1993), 다른 campaign에서는 plate를 생산하기 위해 2,200 ton의 rolling 탄소강을 생산하였다(Large, 1993). 생산품의 세부 조성은 나타나 있지 않지만, 생산되는 차폐 블록의 밀도는 440 lb/ft²이고 최대의 표면 선량은 10 mR/hr이었다.

나. 독일

독일에서는 Siempelkamp와 KWU를 중심으로 저준위 금속폐기물의 용융제염 기술에 관한 연구를 1984년부터 착수하였으며, 1989년 제 1단계의 연구개발 및 실험 실증을 완료하고 1989년부터는 2단계 연구에 착수하였다. 제 1단계의 연구에서는 상용 용광로에 저준위 금속폐기물을 용융할 수 있는 특별한 장치를 개발하여 실험실증을 수행하였으며, 74 Bq/g 이하의 저준위 금속폐기물을 1,500 ton 이상 용융제염하여 재사용하였다. 여기에 사용한 주요 시설로는 20 ton급 coreless induction furnace이며, 폐기물 취급 장비, 필터 시스템 및 방출가스 포집장치 등을 설치하여 연구하였다.

1989년에는 제 2단계의 연구로써 금속폐기물 전용의 용융제염시설을 건설하여 1990년 이후 약 2,000 ton 이상의 금속폐기물을 용융제염하여 재사용하고 있다. 3.2 ton급 중간 주파수(300~500 Hz)의 coreless induction furnace를 사용하였고, 용융용량은 2 ton/hr이다. 이 시설은 저압에서 가동될 수 있기 때문에 필터 시스템, 방출가스 포집장치 및 안전장치 등을 증강시켜 200 Bq/g까지 오염된 금속폐기물을 용융제염할 수 있도록 설계되었다. 또한, Niederaichbach 원전 해체 시 발생하는 저준위 금속폐기물을 용융제염하기 위한 EIRAM 시설을 부지 내에 건설하여 운영하고 있으며 1989년 8월까지 약 150 ton의 금속폐기물을 용융 제염하였다.

독일의 해체 전략은 안전하게 통제 운송하는 것이며, 폐기물관리는 두 가지 측면

에서 논의되는데, 잔재물의 이용과 생태학적으로 유익한 처분 및 폐기물 기피에 초점을 맞춘 규제와 면제이다. 방사성 시설의 연구원자로(대개 β , γ 방사능)와 핵연료 주기(대개 α 방사능) 시설로부터 조업을 중단해 나오는 폐기물들을 평가·비교하며, 다양한 방사성 시설들(HDR, AUR, KKN, KNK, MZER, WAK)로부터 증가하는 금속 폐기물 양의 추정치는 최종처분, 용융 및 규제 면제 등에 의해 달라진다. 22.3 GW의 전기를 생산하는 원자력의 부지수를 Table 2.2.2.2에 나타내었다.

Table 2.2.2.2 Nuclear power reactors in service in Germany

In Betrieb befindliche Leistungsreaktoren in Deutschland (Schnellstatistik der Atomwirtschaft, atw 3/93)		
Anlage/Plant	MWe	seit/since
14 Druckwasserreaktoren (PWRS) :		
Obrigheim KWO	357	1968
Stade KKS	672	1972
Biblis KWB-A	1204	1974
Biblis KWB-A	1300	1976
Neckar GKN-1	855	1976
Unterweser KKW	1300	1978
Grafenrheinfeld KKG	1300	1981
Grohnde KWG	1365	1984
Philippsburg KKP-2	1349	1984
Brokdorf KBR	1383	1986
Mülheim-Kärlich KMK11	1302	1986
Emsland KKE	1341	1988
Isar KKI-2	1400	1988
Neckar GKN-2	1365	1989
7 Siedewasserreaktoren (BWRS) :		
Würgasen KWW	670	1971
Brunsbüttel KKB	806	1976
Isar KKI-1	907	1977
Philippsburg KKP-1	900	1979
Krümmel KKK	1316	1983
Gundremmingen KRB-B	1310	1984
Gundremmingen KRB-C	1310	1984

그러나 독일은 운전중에 있는 핵시설 이외에 영구적으로 운전을 중지한 많은 핵 발전소를 가지고 있는데, 이들 중 일부는 이미 해체되고 있거나 방사능이 감소한 후

처분하기 위해 안전하게 보관되어지는 단계에 있다(Table. 2.2.2.3).

Table 2.2.2.3 Nuclear power and other reactors decommission or under decommissioning

Stillgelegte bzw. in Stillelegung befindliche Leistungs- und andere Reaktoren zur Stromerzeugung in Deutschland (einschl. Demonstrations- und Prototypanlagen)		
Anlage/Plant	MWe	Betrieb/Service
4 Siedewasserreaktoren (BWRS) :		
KRB-A Gundremmingen	250	1966-1977
KWLLingen	252	1968-1977
HDR Kahl	25	1969-1971
VAK Kahl	16	1960-1985
7 Druckwasserreaktoren (PWRS) :		
MZFR Karlsruhe	58	1965-1984
KKR Rheinsberg	70	1966-1990
KGR Greifswald 1	440	1973-1990
KGR Greifswald 2	440	1974-1990
KGR Greifswald 3	440	1977-1990
KGR Greifswald 4	440	1979-1990
KGR Greifswald 5	440	1989-1990
1 gasgekühlter Schwerwasserreaktor (GCRS) :		
KKN Niederaichbach	106	1972-1974
2 Hochtemperaturreaktoren (HTRS) :		
THTR 300 Uentrop	307	1983-1988
AVR Jülich	15	1966-1988
1 schneller Brutreaktor (FBR) :		
KNK II Karlsruhe	20	1977-1990

독일 핵 시설의 크기는 작은 실험실 원자로로부터 몇 백 MWs를 생산할 수 있는 용량의 발전소용 원자로까지 다양하다. 이들 중 대부분은 상업적인 전력생산을 위해 사용되고 있으며 전력 회사에 의해 운전, 관리되고 있다. 법과 규정과 기술적 규제를 구성하는 규정의 틀은 핵 발전소의 건설을 관리하기 위해서 만들어졌다. 그러나 방사성 시설의 해체, 분해를 다루기 위한 개별적이며 명확한 규정의 틀이 존재하지

않는다. 이 같은 이유로 핵 시설의 해체나 분해를 위한 규제가 이러한 시설의 건설과 운전을 위한 규제와 마찬가지로 유사하게 설립되어야 한다. 이런 해체 작업은 환경 즉, 자연보호와 방사성 안전을 위한 연구를 위해 기술 정부부서의 참여하에 수행되었으며, 현재 Bund/Länder 동의를 통한 승인뿐만 아니라 “오래된 핵 시설의 해체”란 제목의 가이드 준비에 집중하고 있다. Fig. 2.2.2.1은 Radiological Protection Commission의 권고에 기초하여 금속폐기물에 관련하여 현재 고려중인 방출 기준의 적용 단계를 보여주고 있다. 금속 조각의 처분 기준은 표면 방사능이 0.5 Bq/cm²이고, 부피 방사능이 0.1 Bq/g이다. 만약 금속 조각이 이 기준을 넘지 않는다면 이 금속 조각은 재이용이나 재활용을 위해 방출할 수 있다.

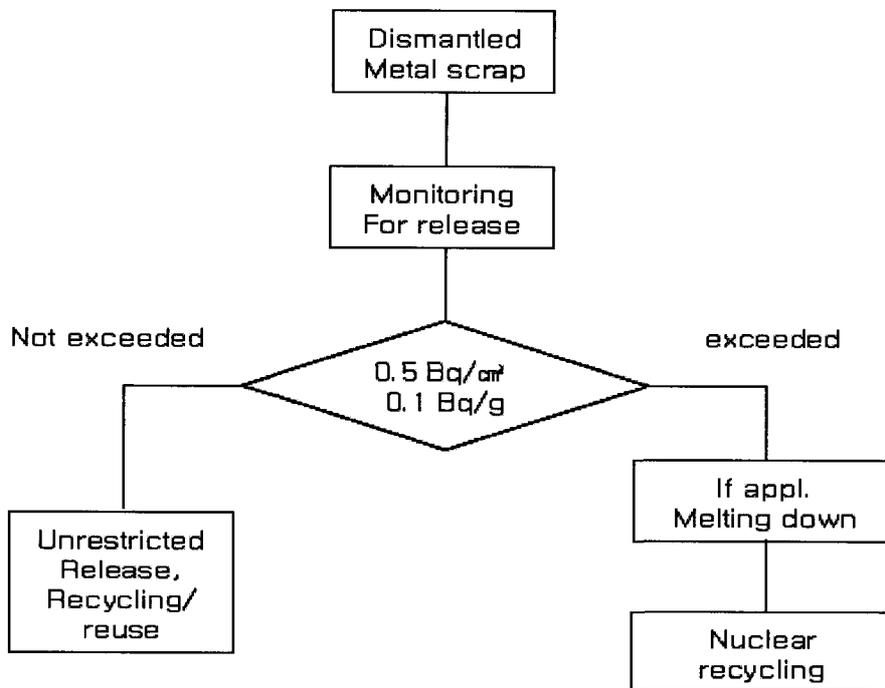


Fig. 2.2.2.1 Release standards currently considered for metallic materials

주목할 만한 예로서 Karlsruhe Nuclear Research Center에 아주 높은 에너지의 cosmic 방사선의 원소 분석을 위해 직렬 검출 시스템이 설치되었다. 이 장치에는 에너지 필터로 966개의 재활용된 금속 판이 사용되었는데, 이것의 총 무게는 4,000 Mg 이었다. 이 재료는 주로 ⁶⁰Co에 오염되었으며, 방사능 범위는 0에서 3.5 Bq/g으로 총 방사능은 5×10⁹ Bq 이었다. Karlsruhe(WAK)같은 큰 시설에서 해체되는 금속 폐기물의 양에 대한 예상은 가능하다. 800~1,300 MW의 출력을 가진 원자력 시설의 해체와 분리 시 폐기물의 양에 대한 정확한 수치를 알 수 없기 때문에 기준 시설에 대

한 정확한 연구와 추정에 기초하여 해체 폐기물의 양을 추산할 수 있다. 방사성 물질에 의해 영향 받는 설비 영역의 범위가 각각의 원자로에 따라 다르기 때문에, 가압경수로와 비등경수로에 대한 폐기물의 추정은 원자로에 따라 분리하여 계산하여야 한다. 비등경수로 시스템은 가압경수로에 비해 스팀이 방사능 1차 회로에서 직접 유입되기 때문에 터빈 hall 또한 통제된 영역으로 간주된다. 두 가지 원자로 형태에서 전체 관리 영역내에서 발생한 폐기물의 2%만 최종 처분되며, 92%는 재이용하고, 잔여 6%만 제염, 또는 용융(금속 잔재물)같은 특별 처리를 요한다. Bundesländer에 위치한 6기의 VVER 원자로 구역으로부터 발생될 폐기물의 양은 상당할 것으로 예상되며, 이 시설들에 대한 해체가 계획 중에 있다. KGR Greifswald 구역의 1~5기와 KKR Rheinsberg 구역의 1기에서 발생될 폐기물의 양은 2,000 Mg/block, 부피는 약 2,400 m³로 예상된다. BMFT의 책임 하에 남은 시설의 해체를 통해 배출되는 강제 조각의 양은 Table. 2.2.2.4에 나타내었다.

Table 2.2.2.4 Steel scrap likely to be yielded through decommissioning of the old plants under the BMFT's responsibility

for final storage		for melting down	for general use
HDR	0	150	750
AVR	450	60	810
KKN	520	1500	780
KNK	800	400	700
MZFR	1500	2400	700
WAK	2500	2500	700

- WAK의 수치는 불확실한 것이며, 오염된 경우에 제거해야 한다.

다. 스웨덴

스웨덴에서는 Studsvik에 용융제염시설을 건설하여 1987년부터 실험실증하기 시작하였으며, 1988년말 까지 400 ton이상의 저준위 금속폐기물을 용융 제염하였다. 용융 시설은 3 ton급 유도로를 갖춘 시설로 스웨덴 자국 및 독일의 원전에서 운반되어온 금속폐기물을 용융 제염하였다. 이 경험을 바탕으로 저준위 금속폐기물에 대한 용융 제염기술은 안전하고, 환경에도 무해하며 경제성이 있는 기술로 평가하였다.

1987년 10월과 1988년 5월 사이에 Studsvik AB(Menon, 1990)에서 190 ton의

RSM(radioactive scrap metal)을 소비하여 93번의 용융실험을 수행하였다. 1988년말까지 거의 400 ton의 저준위 금속 조각을 용융하였는데, 약 90%가 탄소강이었고, 나머지는 스테인레스강이었다. 예비 시설은 금속 조각의 분쇄, 1.5 ton/hr 용량의 유도로 및 냉각부분으로 구성되어 있다. 대기로의 방출은 전체 β 와 γ 가 640 kBq, α 방사능은 200 Bq이었다.

라. 영국

영국에서도 British Steel Corporation(BSC) 및 Atomic Energy Agency (AEA)를 중심으로 용융제염법에 관한 기술개발을 하였다. 초창기에는 BSC에서 상용의 4 ton급 arc furnace를 개조하여 연구하였으며, 750 kg의 오염된 금속폐기물을 용융 제염하였다. 최근에는 AEA에서 WAGR의 해체사업의 일환으로 대규모 용융제염시설의 건설을 서두르고 있다. 해체시 발생하는 금속폐기물에 대한 고감용율, 제염효과 및 금속의 재사용 가능성 등에 대한 재평가에서 용융 제염 기술의 타당성이 인정되어 1989년부터 용융제염시설의 설계 작업에 들어갔다.

Gomer(1985)는 BSC에서 3가지의 다른 반응 시스템에서 오염된 금속조각 물질을 오염되지 않은 금속 조각과 다양한 비율로 섞어 용융한 16-heat 프로그램의 결과를 보고하였다. 50 kg과 0.5 ton의 유도로에서는 0.5 ton까지 용융했으며, 5 ton의 전기 아크로에서는 전체 22 ton을 용융하였다. 세부적인 자료는 주괴와 슬래그 그리고 배기체에서의 ^{60}Co , ^{134}Cs , ^{137}Cs 의 분포에 관한 것이다. ^{60}Co 은 항상 주괴에서만 발견된 반면, Cs은 슬래그와 배기체 모두에서 발견되었다. 배기체로 이동한 Cs의 양은 용융 형태와 슬래그의 조성, 용융기술, 그리고 Cs이 위치한 물질에 따라 매우 다른 결과를 보였으며, 생성된 모든 주괴는 300 ton 기준의 산소 금속로에서 최소 측정 한계치($<10^{-5}$ $\mu\text{Ci/g}$)로 희석되었다. Harvey(1990)는 BSC에 의해 1988년부터 계속 추진해 온 연구로부터 비용과 이익의 측면을 고찰한 결과, 저준위 방사성 금속물질은 산업적인 제강업계에서 법인을 조직할 수 있으며, 금속의 재사용은 안전기준에 적합할 것으로 판단하였다.

마. 프랑스

프랑스에서는 해체중인 G2/G3 원자로 부지 내에 15 ton급 아크로를 사용한 용융제염시설을 건설하여 해체 시 발생하는 금속폐기물을 용융 제염하였다. 여러 가지 예비 실험을 거쳐 1992년부터는 hot 실증을 수행하였다. 또한 프랑스에서는 용융 제염

기술의 사용범위를 좀 더 높은 방사능 준위의 금속폐기물에 적용하기 위한 연구로써 PWR 압력용기 벽에서 채취한 금속시편을 가지고 ^{60}Co 성분을 효과적으로 제거하기 위한 연구를 수행하였다.

이 방법은 용융금속에 요오드 가스를 통과시켜 Co 성분을 MI2 상태인 기체로 만들어 포집하는 제염 방법으로써 Co 성분의 분리는 가능하나 경제성 측면을 고려할 때 용융된 폐기물을 주괴로 만들어 처분하는 것이 더 경제적이라고 보고하였다. 그러므로 용융금속에 존재하여 분리가 어려운 ^{60}Co 등을 효과적으로 분리시킬 수 있는 기술에 대한 연구가 요망된다.

프랑스에서는 1980년 이후 여러 기관에서 원자력 사업으로부터 나오는 금속폐기물의 재활용 및 용융에 관해 다양한 연구를 수행하였다.

- 1982년 Saclay Research Center
- 1984년 Société des Techniques en Milieu Ionisant (STMI)
- 1984과 1987년 EDF
- 1988년 알루미늄을 위한 UDIN과 AHL
- 1991년 tritiated 스테인레스강을 위한 CEA/EDF joint project team
- Marcoule에 CEA-Infante 시설

(1) SACLAY 연구센터의 유도로를 사용한 용융 연구

1982년 SACLAY 연구센터에 있는 Radiation Protection Service (RPS)에서 연간 100 ton 정도 발생하는 오염된 금속 폐기물의 문제를 해결하기 위해 유도로를 사용한 금속폐기물 용융연구를 시작하였으며, 다음과 같은 사항을 평가하였다.

(2) STMI 및 EDF의 전기 아크로에 의한 용융 연구

1984년부터 1985년까지 2년에 걸쳐 CEA와 EDF의 자회사인 SOCIETE DES TECHNIQUES EN MILIEU IONISANT에서 FEURS에 있는 제철소의 전기 아크로를 이용하여 매우 적게 오염된 방사성 금속 조각의 용융 실험을 수행하였다. 그러나 좋은 결과에도 불구하고 이들 실험은 계속 수행되지 못했다. 최초 산업용 원자로의 최종 정지와 80년대 PWR의 유지로부터 발생하는 금속 폐기물을 처리하기 위해서 EDF는 방사성 철 금속 처리 공정의 가능성에 대한 연구를 시도하였다. 그들은 전기로에서 용융 후 가공하지 않은 물질 또는 원자력 시설에서 재이용할 수 있음을 발

견하였다. 전체 공정의 작업자 및 환경에 미치는 영향을 최소화하는 방법을 연구하였으며, 첫 번째 용융은 1984년 4월에 4~5 ton 용량의 아크로에서 시험하였다. 오염된 열교환기로부터 발생한 3~6 ton의 탄소강이 CHINON A2에 운반되었다. 이것은 1 m 단위로 절단되었으며, 방사능은 370 Bq/g으로 측정되었다.

두 번째 용융실험은 1985년 11월에 같은 전기 아크로에서 수행되었다. CHINON 시설로부터 발생한 오스테나이트계 스테인레스강을 용융하였으며, 1 회분 양으로 무게는 약 3.3 ton 이었으며, 이때 방사능은 87 Bq/g이었다. 두 가지 용융 실험 결과를 통해 다음과 같은 결론을 제시하였다.

(3) UDIN의 AHL 주조 공장에서의 알루미늄 용융

UDIN은 우라늄 변환 시설의 해체시 매우 경미하게 오염된 물질의 막대한 양을 취급하기 위해 건설되었다. 폐기물들은 대부분 알루미늄(AG3)이지만, 금속과 파이프의 잠금장치(볼트, 너트)와 구리의 측정 장치, 밸브, 펌프 등의 매우 다양한 금속재료의 구성품으로 이루어져 있다. 예를 들어 PIERRELATTE에 있는 저급, 중급의 우라늄 농축 시설의 해체는 AG3의 약 6,000 ton과 거의 비슷한 양의 철 금속이 발생되었다. 이러한 이유 때문에 UDIN은 1987년 이후 해체된 물질의 처리 공정을 위한 기술을 완성하기 위해 노력해왔으며, 다음과 같은 사항이 필요함을 알 수 있었다.

3. 국내의 연구개발 현황

국내의 경우 방사성물질로 오염된 금속성폐기물의 용융제염에 대한 경험이 아주 없고 이와 관련된 연구는 추적단계에 있었으므로 선진국과 비교해서 매우 초보적인 수준에 머물러 있다.

4. 기술개발 조사사례에 대한 평가

미국, 영국, 프랑스, 독일 등의 해외 원자력 선진국들은 노후화에 따른 원자력시설의 제염 및 해체를 대규모로 추진하고 있으며, 이에 따라 제염 및 해체에 관련된 산업이 현재 가장 중요한 원자력 산업중의 하나로 대두되고 있다. 원자력 시설의 해체시 막대한 양의 금속 폐기물이 발생하게 되는데, 이러한 금속 폐기물은 비압축성이기 때문에 부피 감용이 어렵고 오염의 정도가 매우 다양하기 때문에 처리가 매우 곤란하다. 따라서 이러한 점을 해결하기 위해 금속 용융 처리 기술이 개발되기 시작하였는데, 이 기술에는 크게 유도전류, 플라즈마, 그리고 전기 아크를 이용하는 방법

이 있다. 방사성 물질로 오염된 금속성 폐기물의 용융처리 시 휘발성 핵종(Cs)이나 금속과 반응하지 않는 핵종들(U)은 슬래그 층에서 슬래그의 구성성분과 화학적 결합을 통하여 슬래그 층에 안정화되며, 슬래그 층으로의 이동이 어려운 방사성 핵종(Co)은 금속 모재 상에 균일하게 희석되어 결과적으로 금속 모재(주괴)의 비방사능이 감소됨으로써 제염된다. 용융 처리에 의해 방사성 핵종이 농축된 슬래그는 폐기물로 처분하고, 방사성 핵종이 상당부분 제거되었거나 금속 내에 균일하게 분포되어 비방사능이 낮아진 금속 주괴는 방출시키거나 재활용할 수 있다.

금속 폐기물에 대한 용융 처리 시 가장 중요한 요소 기술 중의 하나는 운전조건과 슬래그 조성에 따른 방사성 핵종들의 분배 거동을 제어하는 것이다. 방사성 핵종들은 핵종 자체의 열역학적 특성이나 슬래그의 조성에 따라 철강재의 주괴 내에 잔류하거나, 슬래그나 분진 쪽으로 이동하게 된다. 일반적으로 우라늄은 철보다 산소에 대한 친화력이 크기 때문에 용이하게 산소와 결합하여 열역학적으로 매우 안정한 산화물을 형성한다. 따라서 슬래그의 조성에 따라 약간의 차이는 있으나 우라늄 화합물은 철강재의 주괴에서 이탈하여 슬래그 층으로 이동한다. 이와는 반대로 Co는 철보다 쉽게 산화되지 않으므로, 선택적 산화에 의해 금속 용융체로부터 방사성 Co가 제거될 가능성은 매우 희박하다. 한편으로 Cs은 열역학적 자유에너지, 증발 압력 및 금속과의 용해성을 고려할 때 용융체로부터 휘발되어 대부분이 슬래그와 분진에 존재하는 형태로 나타난다. 그러나 이러한 핵종들의 분배 특성은 용융시키고자하는 금속의 종류, 슬래그의 종류 및 조성과 밀접한 관계를 갖고 있다.

이러한 금속 용융 처리기술은 현재 제염 및 해체가 진행되고 있는 우리나라에도 절실히 필요한 기술이라 하겠다. 현재 우리나라도 국내 최초의 원자로인 TRIGA 연구로 및 우라늄 변환시설의 제염·해체 사업이 진행되고 있으며, 이에 따라 우라늄 변환시설에서는 α 로 오염된 금속 폐기물이 그리고 TRIGA 연구 시설에서는 β , γ 로 오염된 금속 폐기물이 발생될 예정이다. 금속 폐기물은 주로 스테인레스강과 인코넬로 구성된 원자로, 스테인레스강 배관류, 납 차폐체, 기기, 공구류, 펌프 및 구조재로 구성되어 있으며 발생량은 약 170m^3 정도로 추산하고 있다. 특히 원자력연구소 내 임시 폐기물 저장고의 수용 한계 및 국내 영구 처분장의 부재 하에서 처분 비용의 감소, 처분에 필요한 장소의 절감, 안정성 확보, 자원의 재활용 측면에서 금속 용융 처리기술은 반드시 필요한 기술이다. 따라서 이러한 금속 용융 처리기술을 확보하기 위해 용융 대상 금속과 방사성 핵종간의 반응 특성, 슬래그와 방사성 핵종간의 반응 특성 등에 대한 열역학적 이론을 고찰하고, 이를 바탕으로 금속과 비철금속에서 방

사능에 오염된 금속의 실증 실험을 통해 최적의 용융 및 제염조건을 파악하는 것이 필요하다.

제 3 장 연구개발 수행 내용 및 결과

제 1 절 고방사능 건식제염기술 개발

1. CO₂ 제염기술 개발

가. 서 문

사용후핵연료를 재활용하는 후행핵연료주기공정은 고방사능 Hot Cell 공정으로 현재 해외에서 상용화된 재처리 공정은 수중에서 처리하는 습식공정이다. 그러나 국내에서 독자적으로 개발하고 있는 경중수로 연계 핵연료주기(DUPIC) 공정이나 최근 핵비확산성 후행핵연료주기 공정으로 GEN-4 국제공동연구로 추진하고 있는 Pyroprocessing은 사용후 핵연료를 건식으로 처리하는 공정이다. 따라서 습식 재처리와는 달리 사용후핵연료의 분말 가공을 포함한 건식처리 공정이기 때문에 hot cell 이나 공정장치 설비가 고방사능 분진으로 오염되게 된다.

습식 재처리를 위한 습식제염기술은 많이 연구개발이 되어 상용화 되었으나 건식 Hot Cell 공정에 대한 건식제염기술은 전 세계적으로 기술개발 초기 단계이다.

우리나라에서는 실험실 규모 DUPIC Hot Cell에서 CO₂ 분사 제염장비를 2000년대 초 도입하여 사용한 바 있다. 비교적 fixed 오염보다는 loose한 오염 제거에 효과적이었으나 제염분진 포집 및 회수의 어려움을 경험하였고 다양한 오염 형태와 오염 표면에 따른 효과적인 제염공정이나 장치에 대한 연구의 필요성이 대두되었다.

CO₂ 분사제염기술의 핵심 기술요소는 다양한 오염에 적합한 공정의 선택과 이 공정을 적용할 수 있는 장치로서, 원자력분야와 일반산업분야에서 사용하던 기존장치를 사용함으로써 제염 효능면에서 개선의 여지가 많음을 인식하게 되었다.

미국, 일본 등과 같은 원자력 선진국에서는 2차폐기물 발생량 저감과 제염비용이 절감될 수 있는 건식제염기술들이 개발되어 일부 적용되고 있을 뿐 아니라 꾸준히 기존기술의 개선연구가 진행되고 있다. 최근에 건식 제염기술의 하나인 CO₂ 분사 제염법은 오염된 전자 장비나 측정장치의 유지보수 제염으로도 주목을 받고 있다. 핫셀내 고방사성 물질로 오염된 핵물질 취급장비에 대한 유지보수를 위하여 CO₂ pellet 의 입자들의 충격을 이용한 건식 오염제거장치가 개발되기도 하였다.[3.1.1.1] 또한 폐기물처리 관점에서 습식제염법에 비해 유리한 건식제염법 특히 CO₂ 분사제염기술

은 고방사능 핫셀을 포함한 고방사능 오염대상일 경우 보다 유리하다.

나. 본 문

(1) CO₂ 제염장치 특성 연구

(가) CO₂ 제염장치

장치설계특성 조사와 CO₂ pellet 건식 분사제염 특성 파악에 사용하기 위한 CO₂ pellet Extruder와 CO₂ pellet 분사장치로 구성된 실험실 규모의 건식 CO₂ pellet 건식 분사 제염장치를 설계제작하였다.

① CO₂ Pellet 분사 공정특성

기존 장치의 문제점으로는 드라이아이스 입자의 연속, 장시간 분사 시 드라이아이스의 공급 hopper 및 도관, nozzle 부분의 저온 동결현상으로 제염 효과의 저하, 제염에 있어 가장 중요한 요소인 드라이아이스 입자의 분사압력 증가를 위한 다량의 압축공기 소요, 압축공기(12℃)와 드라이아이스 입자(-78℃)의 합류과정에서 열적손실로 인한 펠릿의 강도 저하현상 발생이 있다.

드라이아이스 pellet을 분사하는 blasting 장치는 고압으로 액화된 탄산가스를 대기압으로 분출하여 눈(스노우)의 형태로 만들고 이를 pellet 제조기 안에 주입, 유압식 피스톤의 강한 힘으로 압출하여 드라이아이스 pellet을 만든다. 이렇게 만들어진 드라이아이스 pellet은 3mm~7mm의 고체 알갱이로 호퍼 내로 채워지고 호퍼 안의 드라이아이스 pellet은 드라이아이스 pellet blasting 장치 내부의 Air rock feeder 장치에 의해 혼합챔버로 투입되어 압축공기와 혼합된 후 분사호스를 지나 nozzle을 통해 가속화되어 분사되어진 2상 난류유동에 의해 표면에 부착된 먼지, 오일, 수산화물 및 산화물층을 건식으로 제거하고 비산된 오염입자들을 입자포집 드라이브를 통해 suction pump로 흡입하여 최종적으로 Pre filter와 HEPA filter로 이루어진 필터박스에서 모으게 되는 전반적인 pellet 분사공정이다

② 장치 설계제작 특성

㉠ CO₂ pellet 분사장치

분사제염 장치를 위해 특별히 고려한 사항들은 다음과 같다.

- hopper에 투입된 pellet들 간의 엉김과 동결로 생성된 아치형 bridge의 파괴로 인한 pellet의 원활한 공급을 유지하기 위한 Idle Roller의 설치
- hopper 내 pellet이 Feed Screw를 통해 공급되는 되는 과정에서 hopper내에 종종 펠렛의 아치형성으로 인한 폐색현상이 발생하여 원활한 공급이 이루어지지 않고, 분사부와 공급부의 실링문제 등으로 야기되는 펠렛의 부착, 역류, 파쇄 및 이에 따른 분사압력의 감소를 피하기 어려움. 특히 스크류 타입의 피딩으로 인해 펠렛의 분쇄화가 이루어지면 오염물질의 표면에 이르기도 전에 펠렛의 손실이 발생하여 세정력의 감소 결과를 초래하므로 이 때, Feed Screw에 의해 pellet을 공급해주면서 cutting 기능을 하고, Idle roller와 함께 pellet의 엉김방지와 아치형 동결 bridge를 해결하는 기능
- Feed screw를 지나 pellet의 분사 시 pellet이 원활하게 공급되도록 pellet의 입자 size(길이)를 조절하고, pellet의 엉김을 방지하기 위한 pellet mill의 설치
- pellet의 원활한 분사를 위해 분사장치에 유입되는 압축공기의 역류를 최소화하고 일정한 양의 pellet을 공급하는 기능을 수행하기 위한 Air lock feeder의 설치.

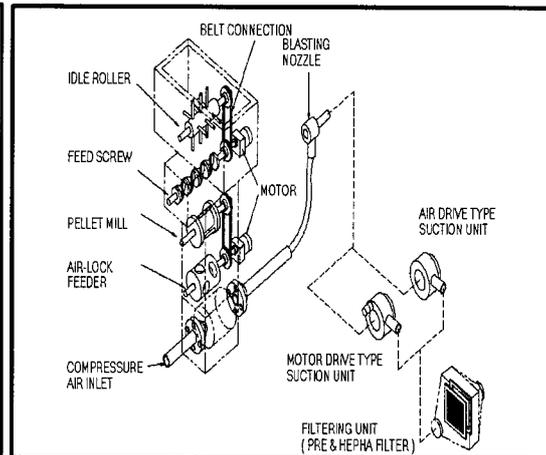
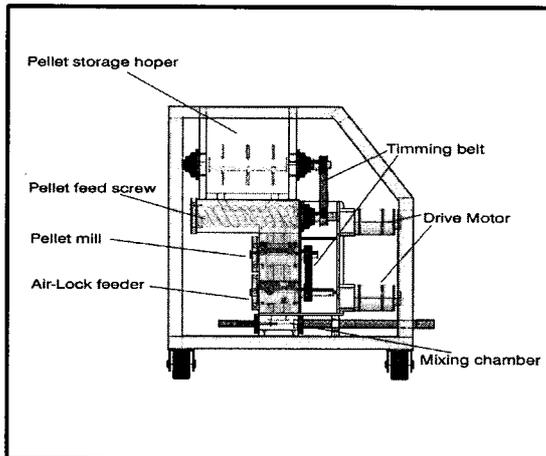
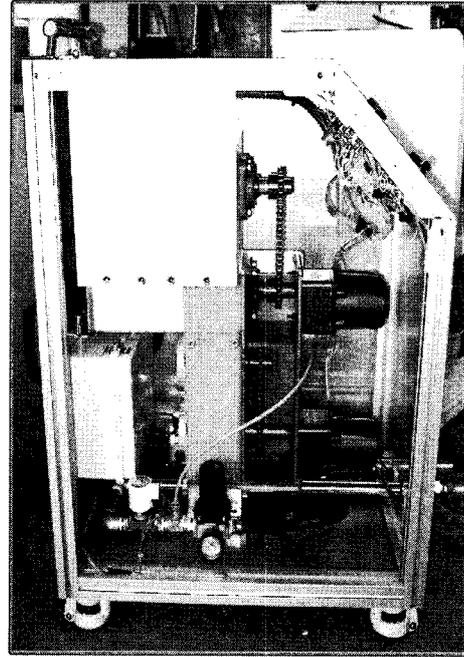


Fig. 3.1.1.1 Schematic diagram of the CO₂ pellet blasting equipment

㉔ CO₂ pellet extruder

본 연구에서는 다음과 같은 사항을 고려하였다.

- CO₂ pellet extruder 실린더 내에 액화 탄산가스를 단일 팽창시켜, CO₂ snow를 생성시키고 생성된 snow를 가압하여, Die plate에 통과시켜 원하는 크기의 pellet 입자를 성형하는 일반 상변환 pellet 제조공정과, CO₂ snow 생성을 CO₂ pellet extruder 실린더 내에서 생성시키지 않고 제조된 드라이아이스 block을 직접 실린더 내로 파쇄 투입하여 pellet 입자를 성형할 수 있는 직접 pellet 제조 공정을 병용하여 구현할 수 있도록 설계, 제작.

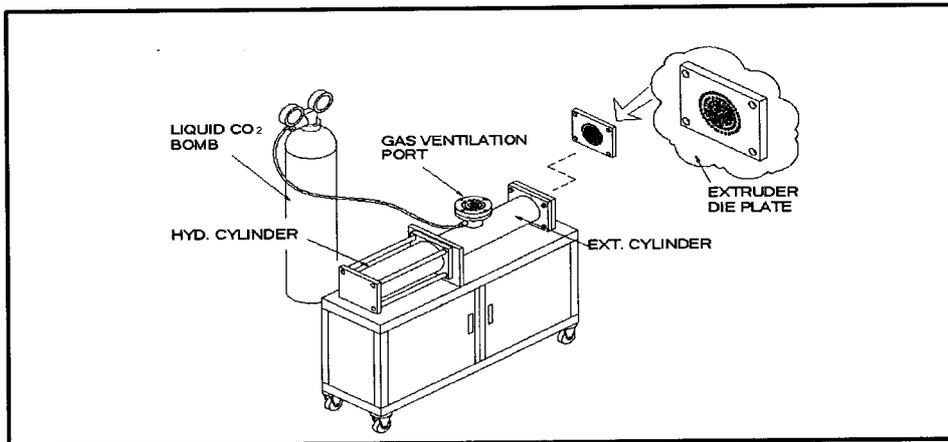
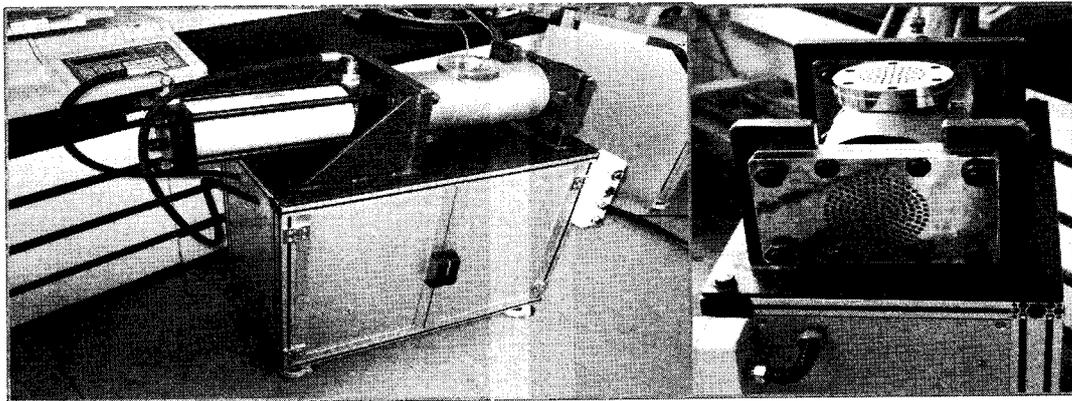
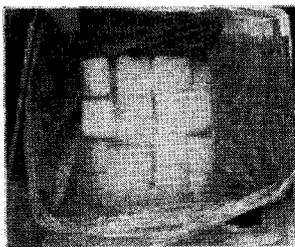
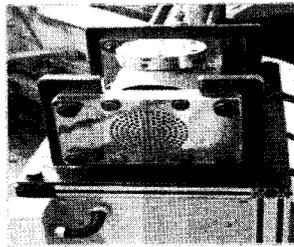


Fig. 3.1.1.2 Schematic diagram of the CO₂ pellet extruder

- CO₂ pellet 제조단계



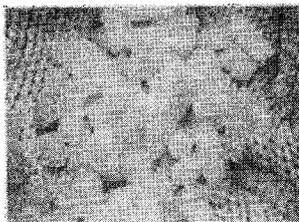
Dry ice blocks



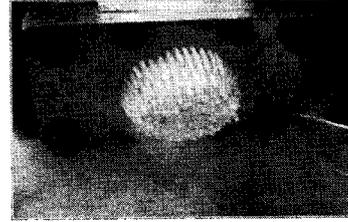
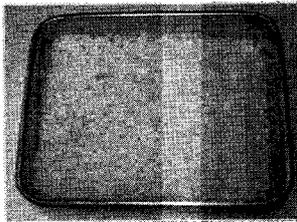
Pellet Extruding



CO₂ Venting



Dry ice Pellet

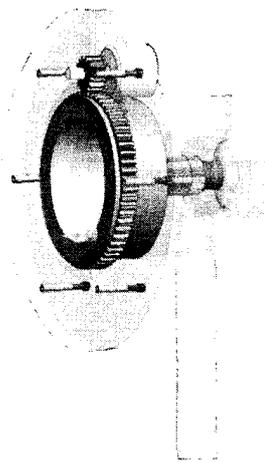


Dry ice Pelletizing

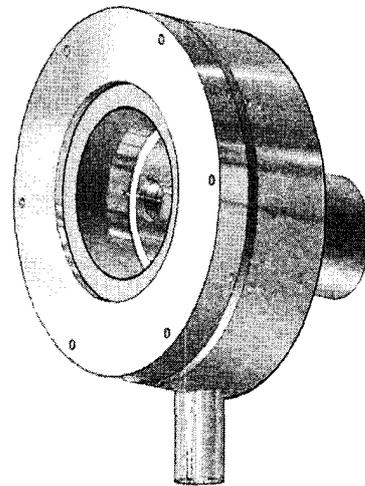
Fig. 3.1.1.3 Manufacturing steps of CO₂ pellet extruder

㉔ 입자포집 head 및 pellet 분사 gun

- 분사 제염을 통해 박리되어 나오는 오염 particle 들을 포집할 목적으로 설계된 입자 포집 head에는 이중의 고정형 brush와 회전형의 brush를 장착하여 분사 제염시 기계적 제염효과를 증진시킬 수 있도록 함.
- 입자포집 head는 적용대상에 따라 범용으로 사용할 수 있는 motor drive type과 분사 제염장치의 궁극적 적용대상인 hot cells과 같은 방폭지역에 적용할 수 있는 air drive type의 2가지로 제작함.
- pellet 분사 gun에 장착되는 nozzle은 오염대상의 특성에 따라 적합한 형태의 세종류 (벤츄리형, 직방형, 소구경형 nozzle) nozzle을 제작하였음. 벤츄리형 nozzle은 제염부위가 넓고 일반적 오염의 제거에 적합하고, 직방형 nozzle은 제염대상이 굴곡지거나 요철이 있는 경우에 효율적이며, 소구경형 nozzle은 제염대상이 부분적이고, 고착성 오염의 제거에 적합한 nozzle 형태임. 그리고, 제염시에 낮은 압력에서도 효율적인 제염을 위해 분사건 안쪽에 sprint(교축)노즐을 장착하였음.



(a) motor drive kit



(b) air drive kit

Fig. 3.1.1.4 Head for trapping particles

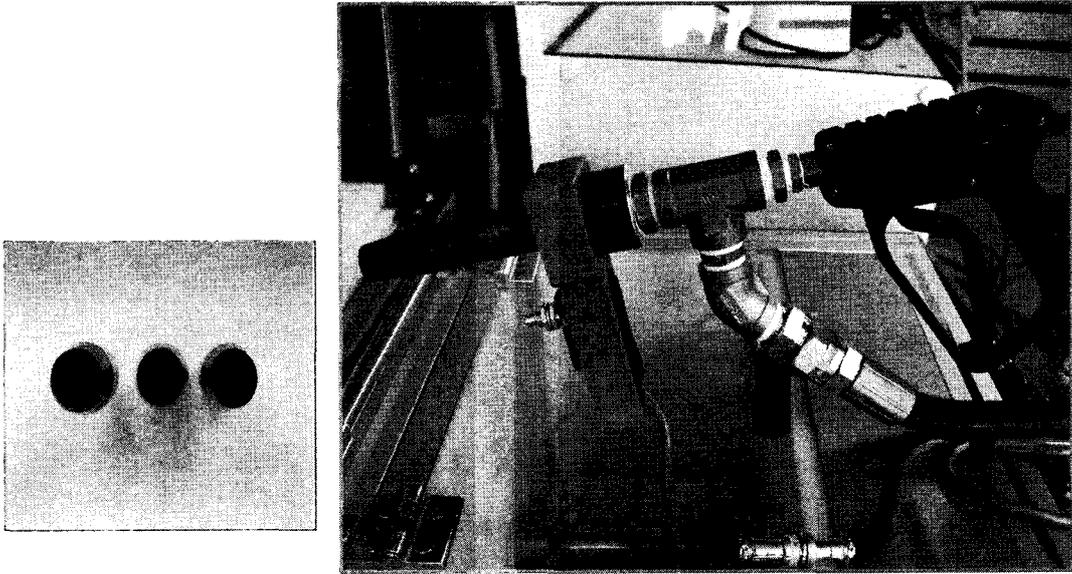


Fig. 3.1.1.5 CO₂ pellet blasting gun and nozzles

③ CO₂ pellet 분사제염장치 사양

㉠ CO₂ pellet 분사장치

- pellet 분사압력: 3-9Kg/cm²
- 공기 소모량: 3-11m³/min
- 호퍼용량: 15kg
- pellet 소비량: 0-1kg/min

㉡ CO₂ pellet extruder 장치 사양

- pellet 생성용량: 10-15 kg/hr
- pellet size : 3, 5, 7mm
- diameter : 125mm. 50 stroke
- speed control v/v : 8~300mm/sec
- cylinder process rate : 22sec
- cylinder impellent force : 10ton

④ CO₂ pellet 분사제염장치 장치특성비교

Table 3.1.1.1 Properties of CO₂ pellet blasting decontamination equipment

	종래의 일반적 장치	금번 고안한 장치	비고
기본구조	Fully pneumatic system	Pneumatic / motor hybrid system	
분사압력	6~8 Kgf/cm ²	3~9 Kgf/cm ²	
공기소모량	3~5 m ³ /min	3~11 m ³ /min	
호퍼 및 도관 동결방지구조	진동 발생 장치에 의한 펠릿 입자 탈락 방식	Feed screw 에 의한 연속 입자탈락	
호퍼 용량	8~10 kg	15 kg	
에어드라이어 필요 유,무	유	무	
펠릿 입자 공급속도 조절	부분적으로 가능하나 Pneumatic system에서는 공기 소비량에 따른 압력강하로 속도 조절이 원활치 못함	Feed screw와 Pellet mill, Air lock feeder에 각기 개별적 모터 채용, 속도 조절이 용이함	
Pellet 소비량	0~1 kg/min	0~1 kg/min	
Blasting 방식	One hose or Two hose system	One hose and Two hose system 병용	
오염포집장치	-	Pre filter + HEPA filter(2단계)	
오염포집 head	-	Motor drive + Air drive (2가지 병행)	

(나) 오염특성별 CO₂ 제염공정 특성실험

건식 CO₂ pellet 분사제염장치와 제조한 모의 오염시편을 사용하여 CO₂ pellet 건식 분사제염의 공정매개변수와 장치설계인자 변화에 따른 제염특성 실험을 통해 CO₂ pellet 건식분사 제염특성을 파악하였다.

① 특성 실험방법

㉠ 제염특성 실험방법

- 오염시편 소재로는 소내 IMEF 고방사성 핫셀의 제염대상 재질인

SUS304를 선택하였으며, 모재의 표면 조도에 따른 영향을 조사하기 위해 처리하지 않은 모재와 grinding 후 polishing한 SUS304 모재의 두 가지를 사용함.

- 방사성 오염시편을 사용한 hot test전에, 비방사성실험을 위해 핫셀내 오염을 모사할 수 있는 분진형 오염시편과 화합물형 오염시편 및 oil 오염시편의 세 종류 시편을 제조하였으며, 화합물형 오염의 경우 aging에 따른 거동을 모사하기 위해 비고 착성오염과 고착성 오염의 두 종류 오염을 제조함. 분진형 오염시편은 SUS 304 모재에 5-10 μ m 크기의 Al₂O₃ 입자를 도포하여 제조하였으며, 화합물 오염으로는 8000ppm의 CsNO₃용액을 오염시편인 SUS304 모재에 도포하여 50 $^{\circ}$ C의 oven에서 48hr동안 건조하는 단순 건조시켜 제조한 비고착성 오염과 전기로에서 400 $^{\circ}$ C 고온에서 24hr 동안 산화시켜 제조한 고착성 오염 등 두 가지 오염시편을 제조함. oil오염시편은 구리스 오일(Dow Corning corp.)을 SUS304 모재에 일정 두께로 도포하여 제조함.
- CO₂ pellet 건식분사제염의 공정매개변수 및 장치설계인자로는 오염종류, 오염 재질, 분사압력, 분사시간, 접촉거리 및 분사각도, pellet 크기 등의 변화에 따른 실험을 수행.
- 제염효과는 제염 전·후의 정밀 무게측정에 의한 방법과 XRF방법에 의해 오염물질 제거율을 산정하였으며, oil 오염물의 제염효과는 정밀 무게측정법만을 사용함.

㉠ 금속 전처리 제염 실험방법

a. 재료

산업에서 주로 사용하는 금속재료는 아연, 철, 동 등이 있다. 이러한 금속은 산화물 등의 금속과 다른 물질(산소, 유황 등)의 화합물을 광석으로부터 채취하고, 정련등의 처리에 큰 에너지를 소모하여 분리해서 결정화시킨 것이다. 순수 한 가지 원소로 이루어진 금속을 사용하기 보다는 여러 가지 원소를 함유시켜 품질을 개선시킨 합금을 사용한다. 이번 연구에 사용된 금속은 우리 주변에서 흔히 볼 수 있는 대표적인 금속인 Fe에 탄소가 0.4~0.8% 정도 함유된 저탄소강 또는 연강이라고 하는 금속을 사용하였는데, 그 이유는 일반적인 많은 부식환경에서 탄소강이 가장 널리 사용되고 있기 때

문이다. 저탄소강의 금속시편을 다음과 같이 제작 하였다. 먼지와 오일오염에 대한 시편은 지름이 35mm이고 두께가 5mm의 크기로 제작하였고 부식시편의 크기는 가로30mm×세로30mm×높이1mm 와 SEM을 찍기 위해서 가로20mm×세로10mm×높이1mm를 제작하였다. 먼지를 모사하기위해 Al₂O₃ 화합물을 사용하였고, 오일오염은 점도가 높은 그리스를 사용하였다.

b 분석방법

<오염물질의 제거율>

시편의 표면에 오염물질들이 얼마나 제거되었는지를 알아보기 위해 초정밀전자저울을 이용하였다. 제거율의 계산은 오염 전 시편의 무게를 측정하고 오염후 시편의 무게를 측정한후에 오염전 시편의 무게를 빼면 오염물질의 양이 계산된다. 그 이후 제염후의 무게를 측정하고 오염전의 시편무게를 빼면 오염물질의 남은 양이 계산된다. 오염물질의 양에서 오염물질의 남은 양을 빼면 제거되어진 양이 계산된다. 이러한 방법으로 제거율을 산출하였다.

<표면조도 측정>

금속표면의 거칠기 값(Ra)은 도료와 표면간의 부착력에 영향을 미치는 중요한 변수로 작용한다. 드라이아이스 pellet의 경우도 고체이기 때문에 모래 분사, 유리알 분사등과 같이 표면에 어느 정도의 손상을 주는지 알아보기 위해 Hommel Tester T8000의 표면조도 측정장비를 이용하여 분사전후의 거칠기 값(Ra)을 측정하였다. 이 장비는 10mm수준의 거칠기 값까지 측정할 수 있는 정밀분석장치이다. 표면의 거칠기 값을 읽어 들이는 바늘의 종류에 따라 측정할 수 있는 범위가 정해져 있다. 이번 연구에서 사용한 바늘은 TKL100인데 0~800 μ m까지의 범위에 대해 측정가능하다. 시편의 전체표면의 전반적인 표면조도 값을 측정할 수 없기 때문에 시편의 중앙 좌우에 표시를 해두고 분사전후의 거칠기 값의 변화를 측정하였다. 10s, 30s, 120s의 분사시간과 3~7atm의 압력범위에 따른 표면의 거칠기 값을 측정하였다.

<SEM 및 EDAX 측정>

제염전후 시편의 표면을 관찰하기 위해 SEM(Scanning Electron Microscope)

과 광학현미경인 microscope을 이용하였다. 특히 부식시편의 경우 어떤 산화물이 존재하고, 제염 후 잔여 산화물을 알아보려고 EDX(Energy Dispersive X-ray microanalysis) 및 XRD분석장비를 이용하여 구성 원소들의 비율을 측정하여 산화물의 형태와 원소를 분석하였다. EDX를 이용하기 위해서는 먼저 산을 제거해주어야 한다. 시편에 산이 존재하게 되면 detector가 민감하여 고장이 날 수가 있기 때문이다. 그래서 모든 시편은 진공오븐(Vacuum Oven)에 8시간 동안 넣어 두어 가스를 완전히 제거 하였다.

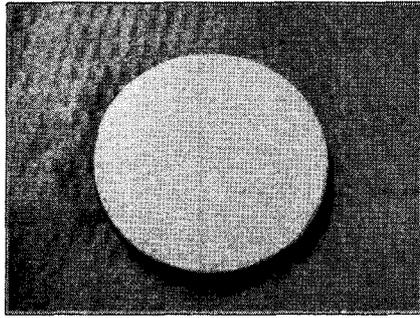
<Nozzle 출구에서의 속도측정>

이번 연구에 사용된 10마력(HP)의 Compressor는 최고 10atm까지의 압축공기를 생성 할 수 있지만 압축공기의 생성속도가 air 소비량을 따라오지 못하기 때문에 분사가 일정하게 나오지 않는다. 일정하게 분사가 이루어지기 위한 이상적인 최고 압력은 7atm이다. 그래서 3~7atm의 압력변화에 대한 nozzle출구에서의 air 속도를 Micromanometer(Furness control limmited, Samduk science)를 이용하여 측정하였다.

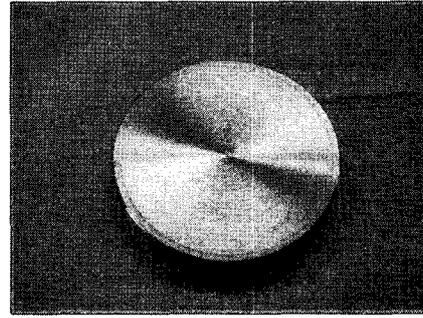
② 오염특성별 CO₂ 제염특성 실험결과

㉠ 분진형 오염(Al₂O₃) 제염특성

- polishing한 모재 오염이 미세척 모재 오염에 비해 약간 효과적인 제염 결과를 나타내었는데 이는 표면이 거친 미세척 오염의 경우 미세 분진 오염이 모재표면에 잔류한 때문으로 여겨짐.
- pellet 크기(5, 7mm)와 분사압력(5, 7Kg/cm²)에 상관없이 분사거리 5cm 이내에서 최소 20sec의 분사접촉에 의해 분진 오염의 99.8% (DF=500) 이상이 제거됨. 또한 10cm의 분사거리에서도 최소 5sec 이상의 접촉시간에 의해 DF 110 이상의 효과적인 결과를 보임.
- 분사압력과 pellet 크기의 증가에 따라 제염효과의 미세 증가가 관찰됨으로써 분진 오염의 경우 공정매개변수에 큰 영향 없이 매우 높은 제염효과를 나타냄.

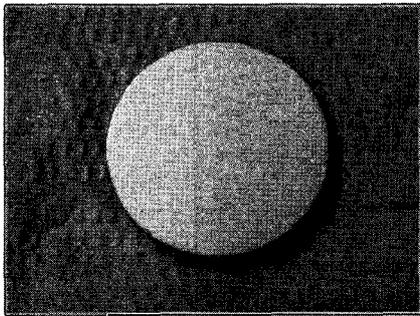


(a) 제염 전

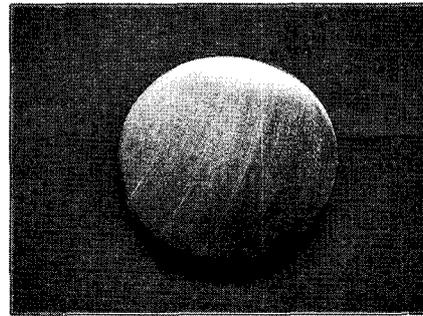


(b) 제염 후

Fig. 3.1.1.6 Al_2O_3 decontamination(non-polishing)



(a) 제염 전



(b) 제염 후

Fig. 3.1.1.7 Al_2O_3 decontamination(polishing)

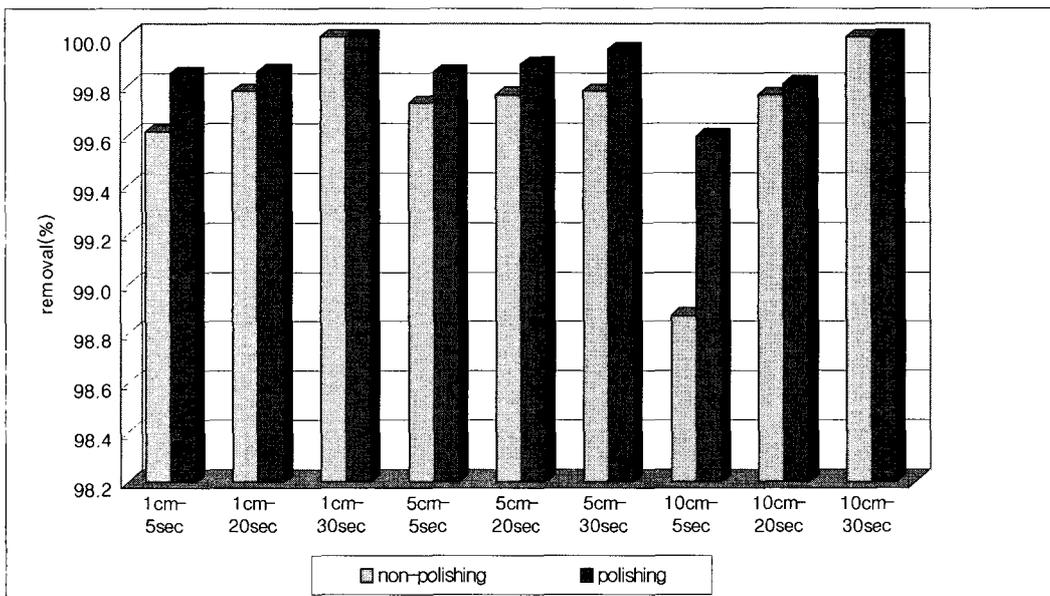


Fig. 3.1.1.8 Al_2O_3 decontamination(5mm-5Kgf/cm²)

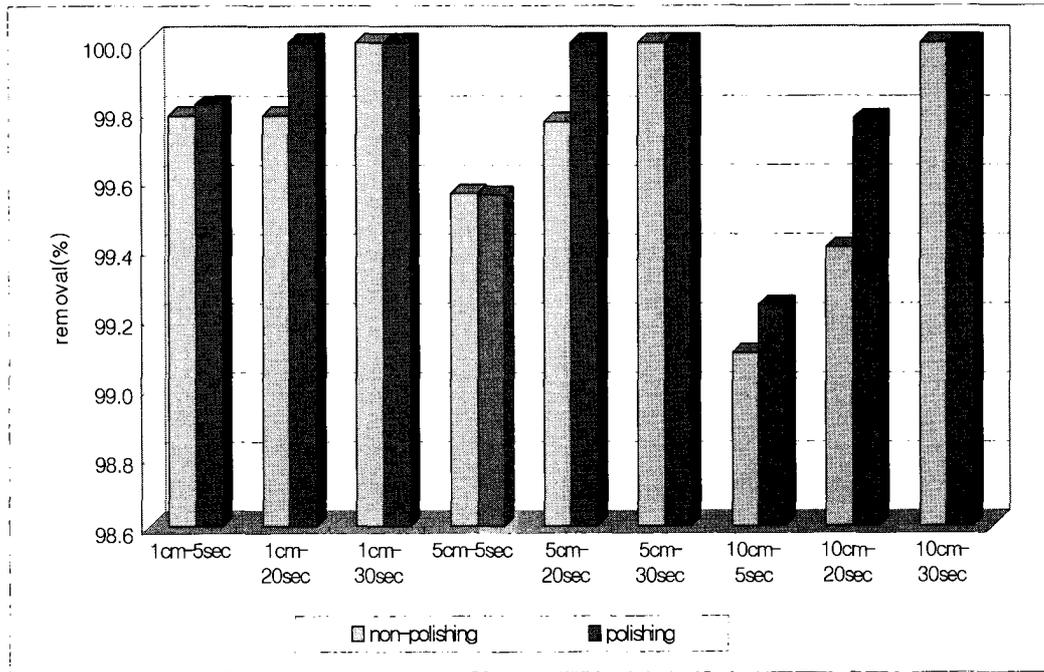


Fig. 3.1.1.9 Al₂O₃ decontamination(5mm-7Kgf/cm²)

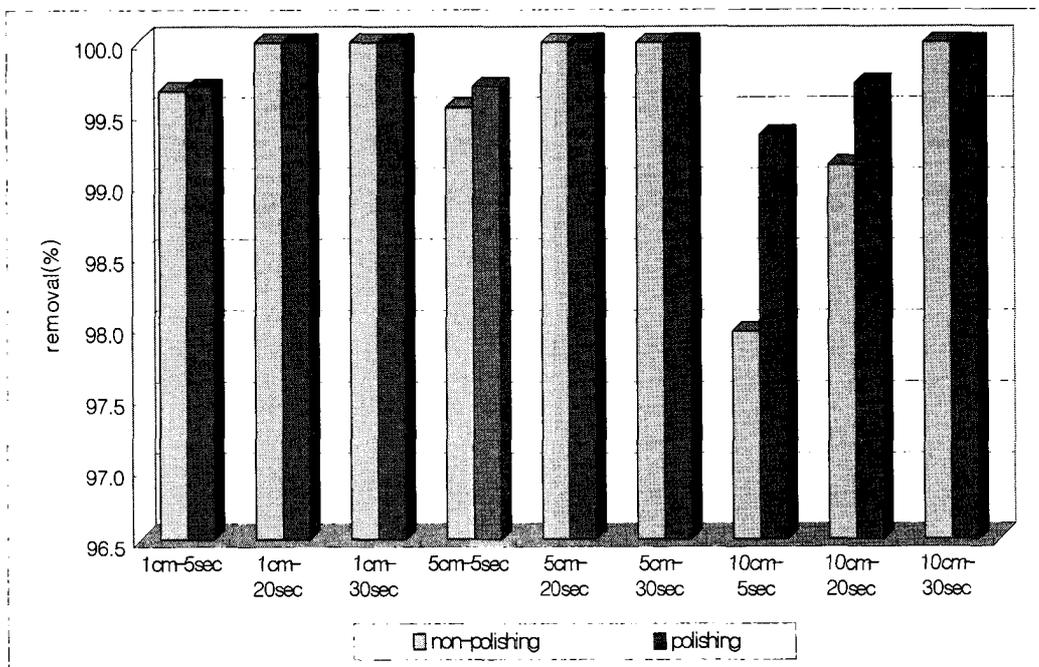


Fig. 3.1.1.10 Al₂O₃ decontamination(7mm-5Kgf/cm²)

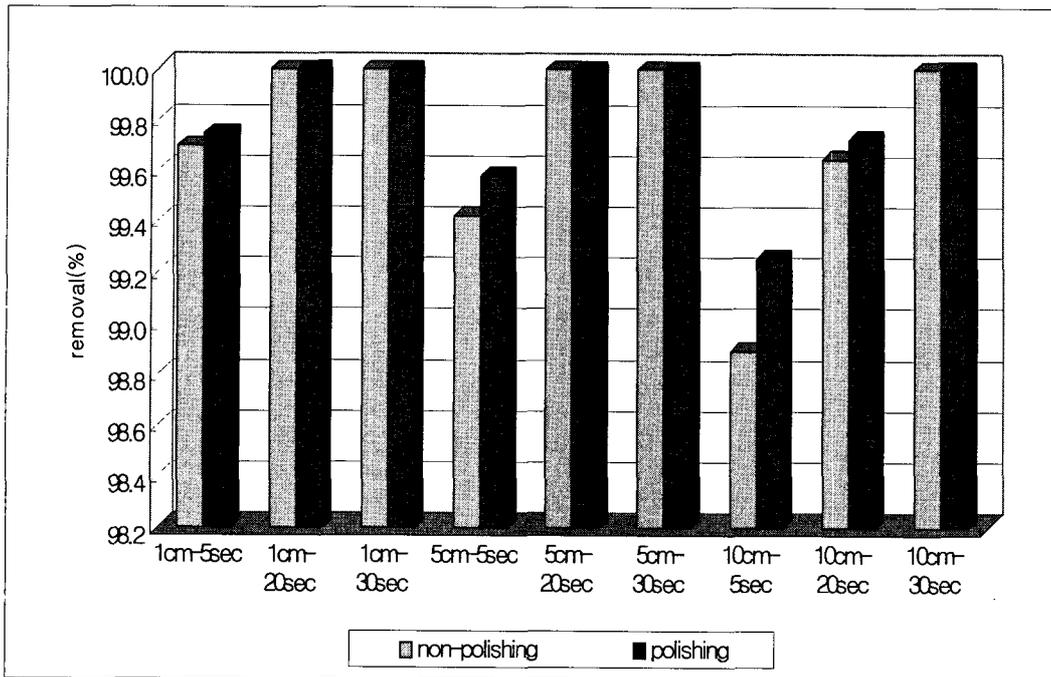


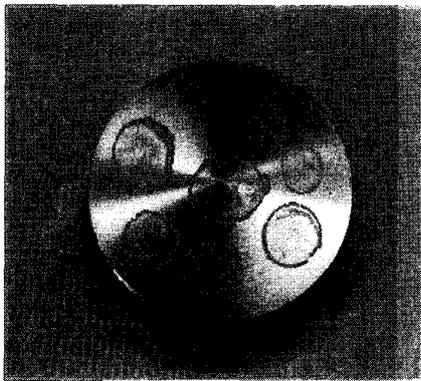
Fig. 3.1.1.11 Al₂O₃ decontamination(7mm-7Kgf/cm²)

㉠ 화합물 오염(CsNO₃) 제염특성

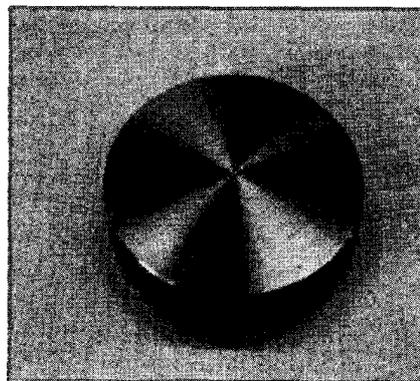
- 비고착성 오염의 경우 세척모재 오염이 미세척 모재 오염에 비해 화합물 오염에 대해 효과적인 제거능을 나타내었는데 이는 rough한 표면상에 오염이 침투되어 건조된 때문으로 여겨짐.
- pellet 크기의 증가에 따라 제염효과가 증가하여, 3mm에 비해 7mm pellet 크기에서의 제염효과가 2-3% 높음. 이는 동일 압력으로 분사될 때 pellet 크기의 증가에 따른 질량증가로 인한 운동에너지의 증가에 기인함.
- 분사압력 변화에 따른 제염효과는, 압력증가에 따라 제염효과가 증가하여 5Kg/cm² 비해 7Kg/cm²에서 1-3% 높은 제염효과를 나타냄.
- 분사시간의 증가와 분사거리의 감소에 따라 제염효과가 증가하며 특히 15cm의 분사거리에서는 20-30sec의 분사시간에서 크게 제염효과가 상승함.
- 10cm이내의 분사거리에서는 20sec의 접촉시간을 통해 99% 이상의 제거율이 얻어짐.
- 고착성 오염의 경우, 비고착성 오염과 마찬가지로 세척모재 오염이 미세척모재 오염에 비해 화합물 오염에 대해 효과적인 제거능을 나타내었

는데 이는 rough한 표면상에 오염이 침투되어 산화된 때문으로 여겨짐.

- 분사압력 변화에 따른 제염효과는, pellet 크기에 무관하게 압력증가에 따라 제염 효과가 증가하여 5Kg/cm^2 에 비해 7Kg/cm^2 에서 2-5% 높은 제염효과를 나타냄.
- 비고착성 오염에 비해 고착성 오염의 제거율이 약 2-5% 낮았지만, 20sec 이상의 분사시간에서 80% 이상, 그리고 30sec 이상에서는 90% 이상의 제거율을 나타내어 고착성 화합물의 제염에도 효과적 적용가능성을 확인할 수 있었음.

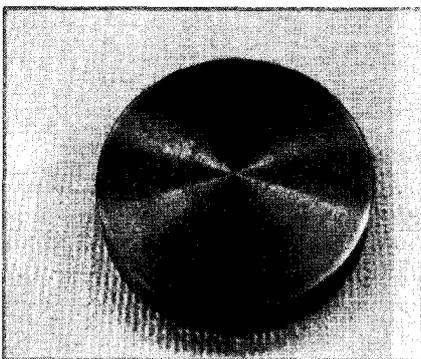


(a) 제염 전

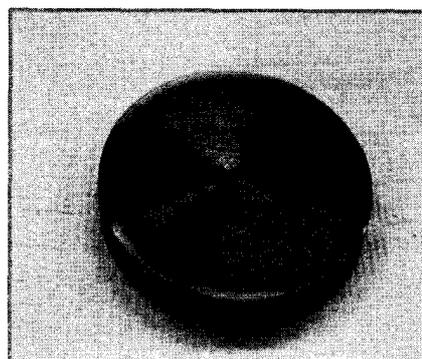


(b) 제염 후

Fig. 3.1.1.12 Decontamination of sticking CsNO_3 (non-polishing)

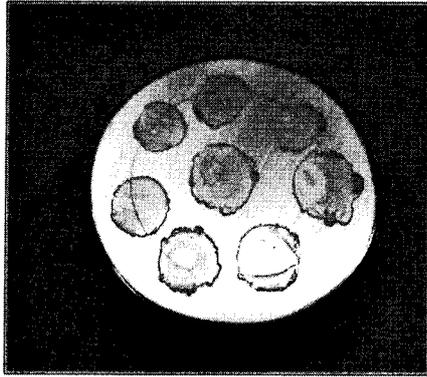


(a) 제염 전

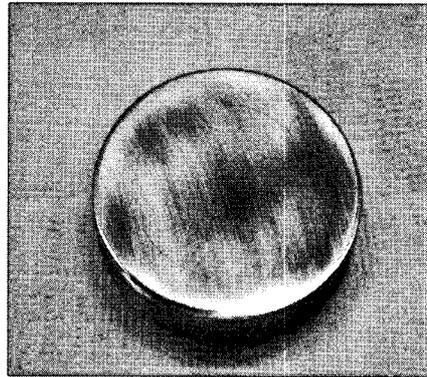


(b) 제염 후

Fig. 3.1.1.13 Decontamination of sticking CsNO_3 (non-polishing)

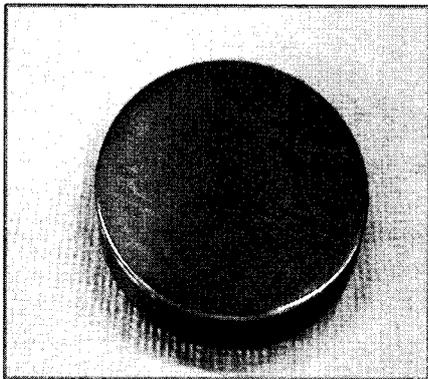


(a) 제염 전

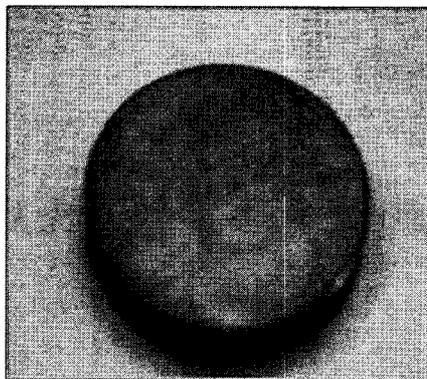


(b) 제염 후

Fig. 3.1.1.14 Decontamination of non-sticking CsNO₃(polishing)



(a) 제염 전



(b) 제염 후

Fig. 3.1.1.15 Decontamination of sticking CsNO₃(polishing)

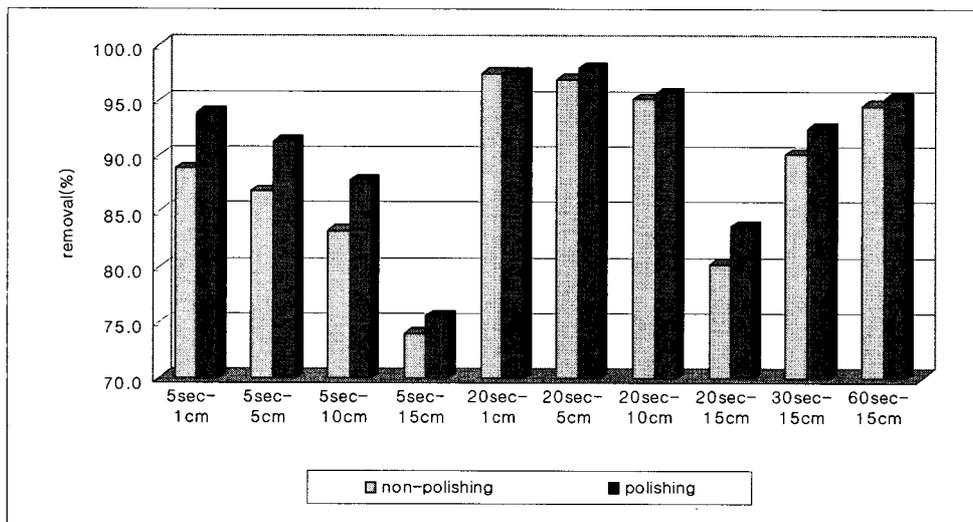


Fig. 3.1.1.16 Decontamination of non-sticking CsNO₃(3mm-5Kgf/cm²)

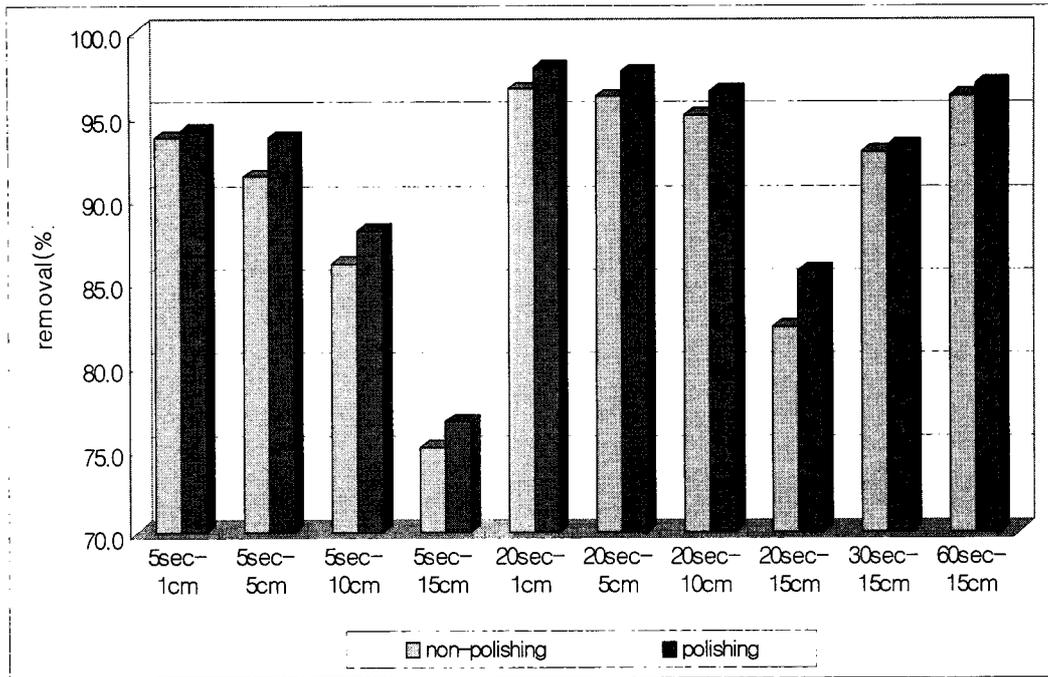


Fig. 3.1.1.17 Decontamination of non-sticking CsNO₃(3mm-7Kgf/cm²)

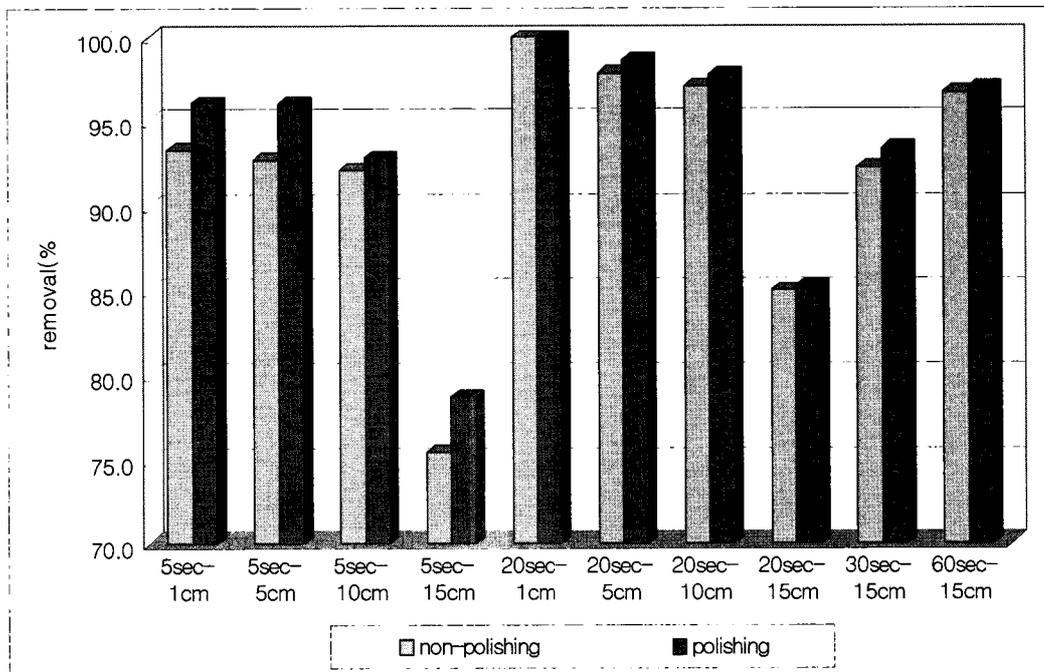


Fig. 3.1.1.18 Decontamination of non-sticking CsNO₃(7mm-5Kgf/cm²)

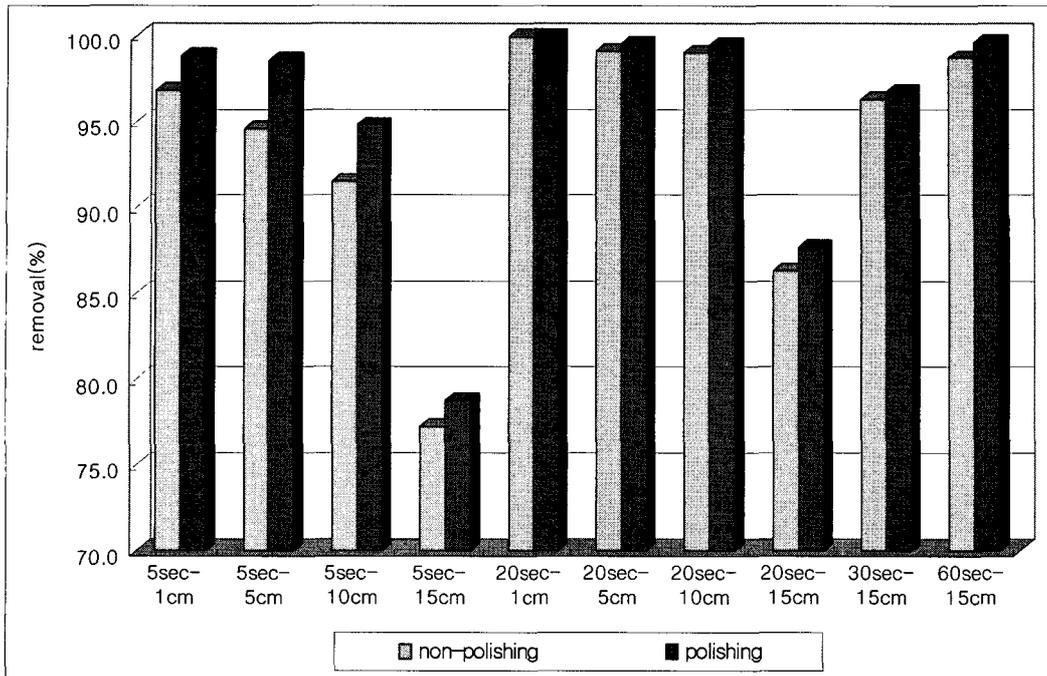


Fig. 3.1.1.19 Decontamination of non-sticking CsNO₃(7mm-7Kgf/cm²)

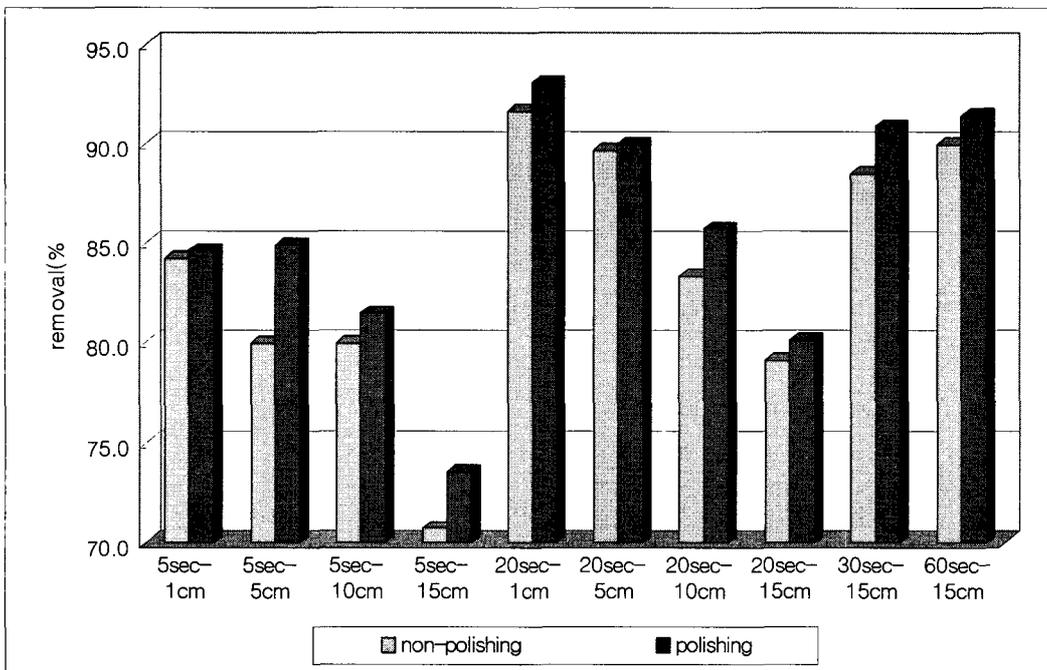


Fig. 3.1.1.20 Decontamination of sticking CsNO₃(3mm-5Kgf/cm²)

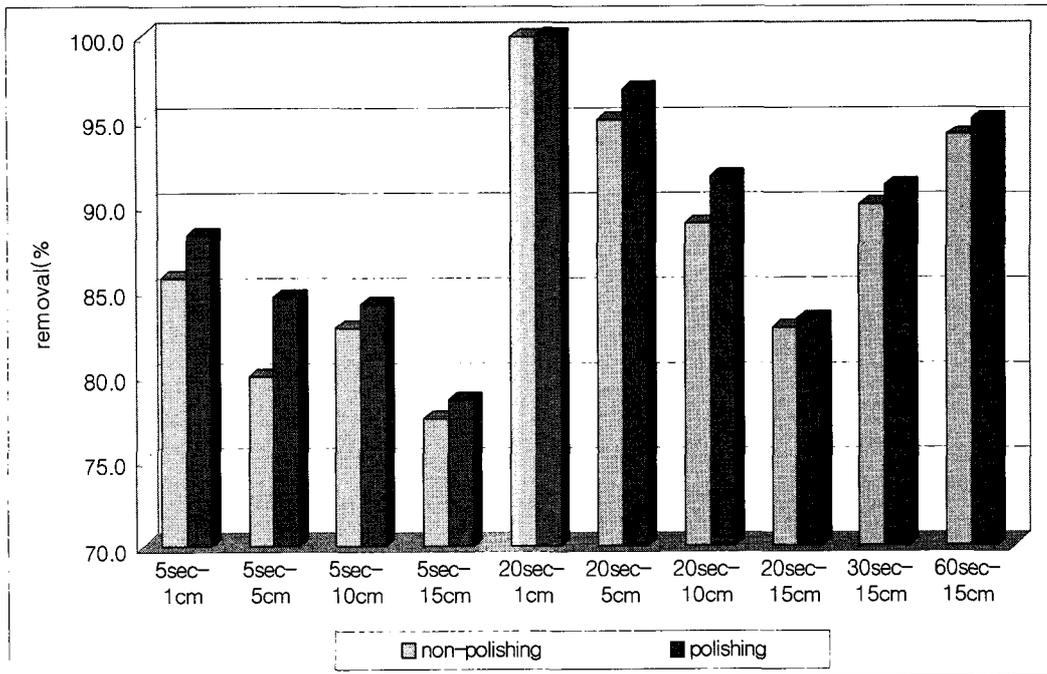


Fig. 3.1.1.21 Decontamination of sticking CsNO₃(3mm-7Kgf/cm²)

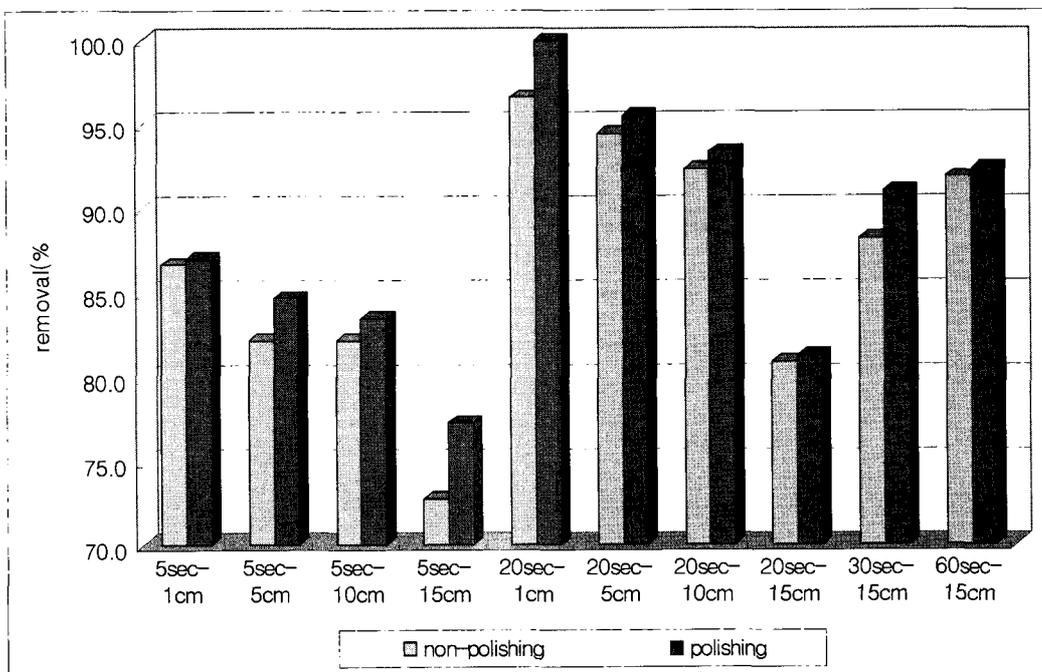


Fig. 3.1.1.22 Decontamination of sticking CsNO₃(7mm-5Kgf/cm²)

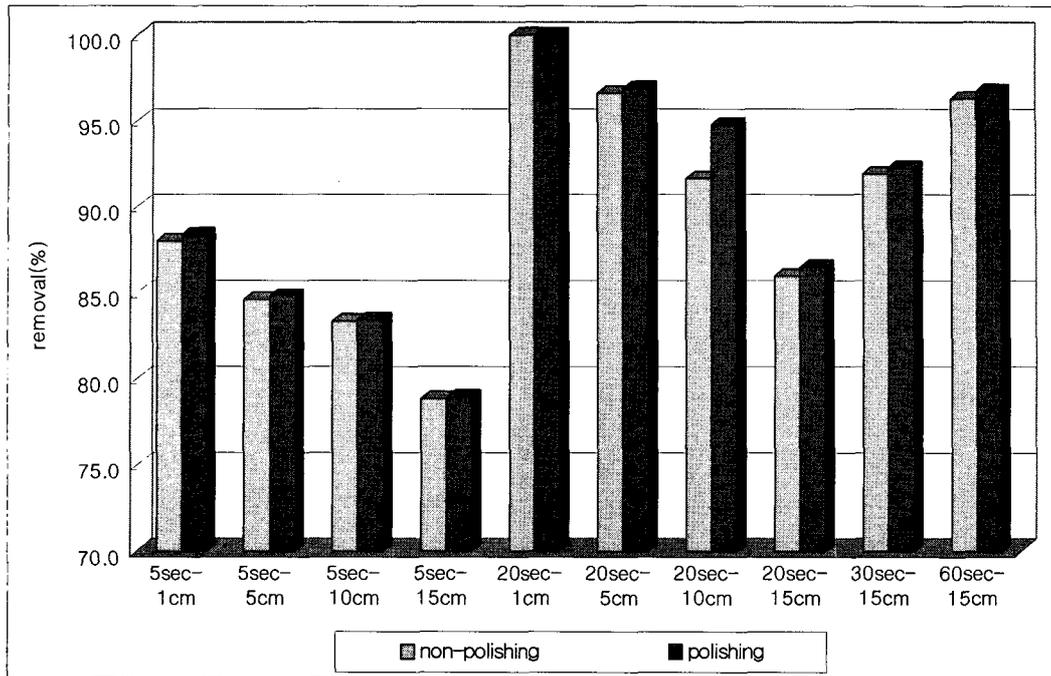
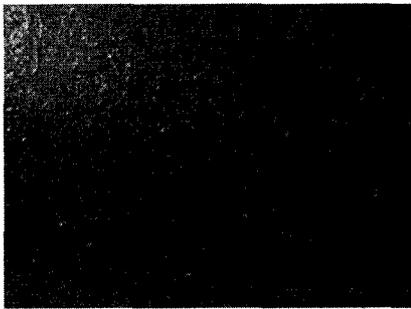
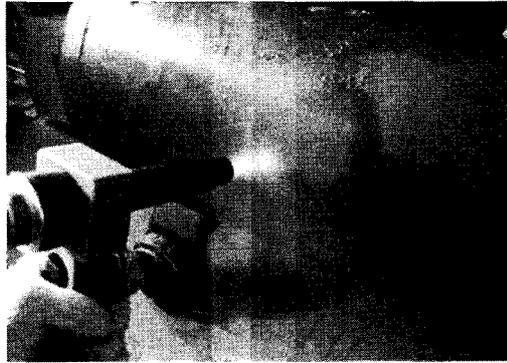


Fig. 3.1.1.23 Decontamination of sticking $CsNO_3(7mm-7Kgf/cm^2)$

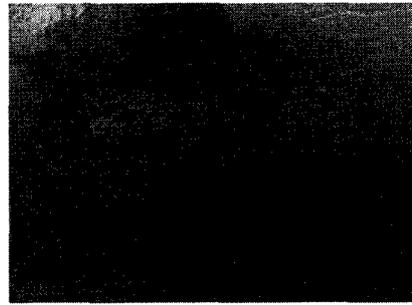
㉔ oil 오염 제염특성

- compressor 표면의 분사제염결과 고점도의 oil이 제거되었음을 육안상으로 확인.
- 점도가 높은 구리스 오일 오염에 대해 80% 이상의 제거효율을 얻기 위해서는 90sec의 분사시간이 필요하며, 95%의 제거효율을 얻기 위해서는 최소한 120sec 정도의 접촉시간이 필요함.
- 분진 및 화합물 오염과 마찬가지로 접촉시간 및 분사압력의 증가에 따라 제염효율이 증가함.
- pellet의 크기가 증가함에 따라 제염효과가 약간 증가하는데, pellet size 7mm가 비해 5mm에 비해 제염효과가 2~3% 높음. 역시 같은 압력으로 분사될 때 pellet 크기의 증가에 따라 질량증가로 운동에너지의 증가로 인한 것으로 사료됨.
- 분사거리변화에 따른 제염효과에 있어, 분사거리의 단축에 따른 제염효과가 예상 되었으나 분사거리 10cm□1cm□5cm의 순서로 제염효과가 증가하여 1cm보다 15cm의 거리에서 보다 높은 제염효율을 나타냄. 이는 1cm 정도의 매우 가까운 분사거리에서는 분사에 의한 제염 후 재오염이 동시에 발생하는데 기인함. 따라서 분사제염과 동시에 제거된 오염물을 포획

할 수 있는 장치의 구비가 필요함.



Before decontamination

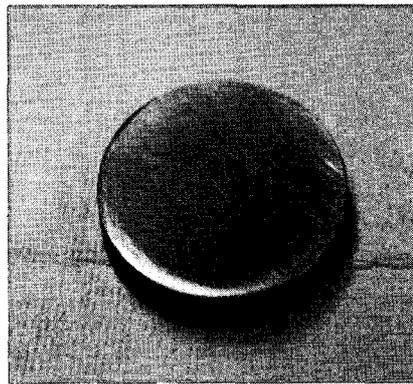


After decontamination

Fig. 3.1.1.24 Surface shape of the compressor before and after decontamination



(a) 제염 전



(b) 제염 후

Fig. 3.1.1.25 Grease oil decontamination

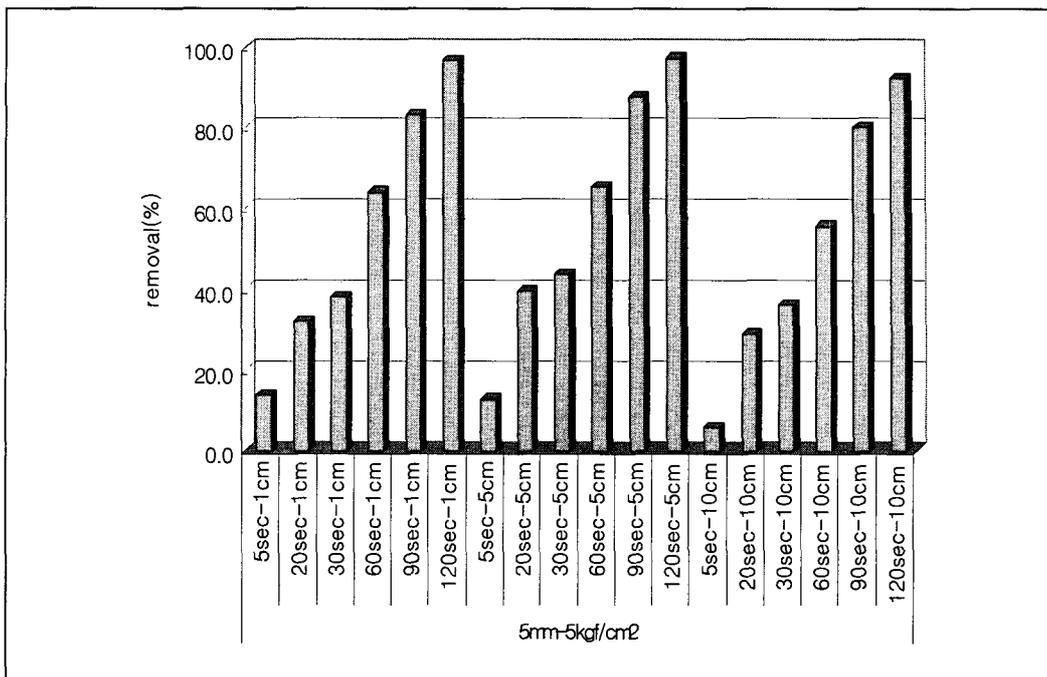


Fig. 3.1.1.26 Oil decontamination(5mm-5Kgf/cm²)

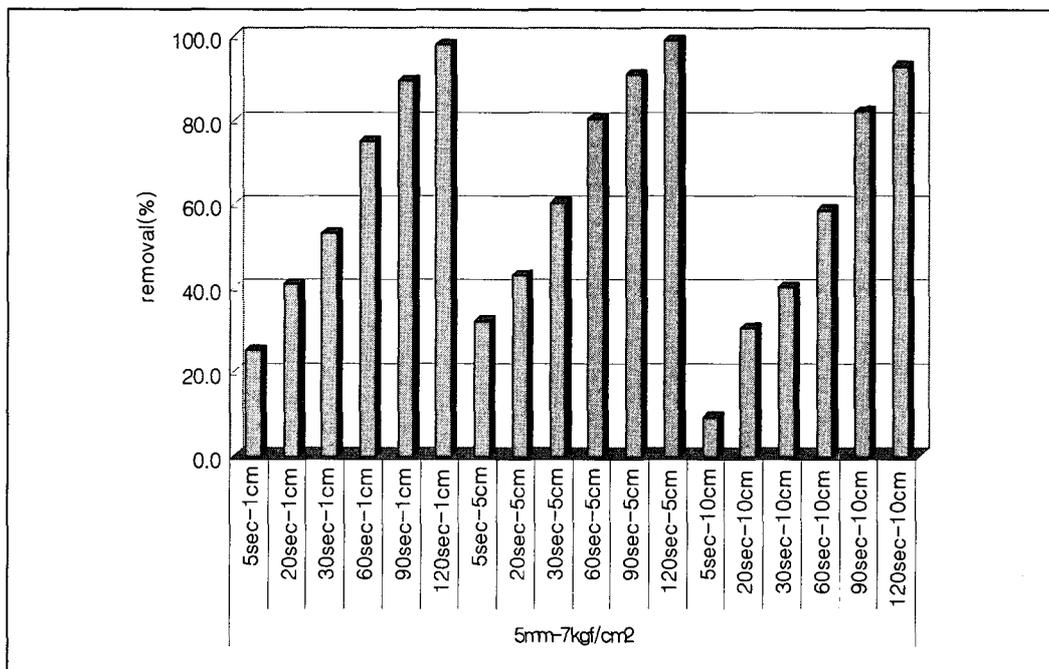


Fig. 3.1.1.27. Oil decontamination(5mm-7Kgf/cm²)

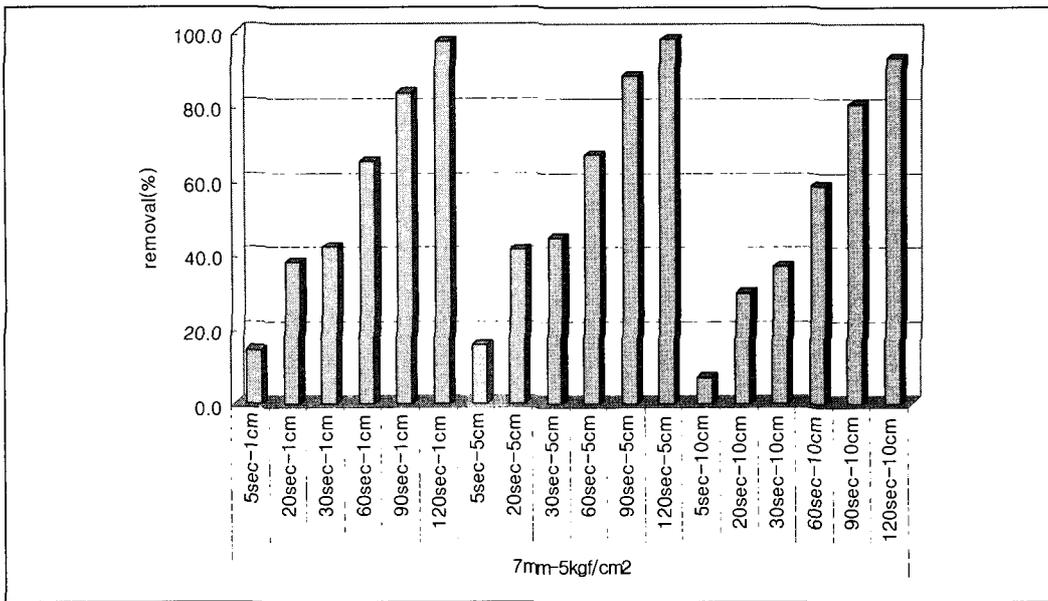


Fig. 3.1.1.28 Oil decontamination(7mm-5Kgf/cm²)

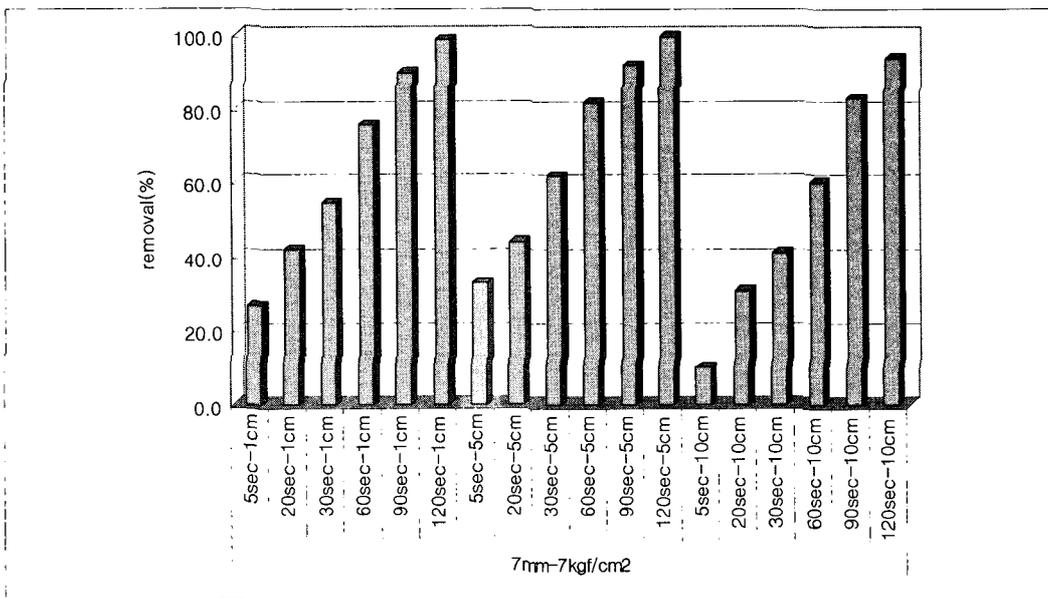


Fig. 3.1.1.29 Oil decontamination(7mm-7Kgf/cm²)

㉔ 산화물의 제염특성

자연적인 환경에서 저탄소강을 부식시켜 수산화물(Fe(OH)₂)인 녹과 산화물인 FeO, Fe₂O₃, Fe₃O₄ 등을 생성시키는 대표적인 요인은 물(H₂O), 바닷물, 산성비와 온도, pH 등을 통해 이루어진다. 다양한 부식생성물 중에 수산화물(Fe(OH)₂)인 녹(Rust)는 도장에 있어 좋지 못한 결과를 초래한다. 저탄소강을 부식시키기 위한 부식환경은 물과

3%NaCl수용액과 pH4.0의 황산수용액과 pH5.0의 황산수용액, pH4.0의 질산수용액과 pH5.0의 질산수용액을 만들어 시편에 떨어뜨려 대기 중에서 자연스럽게 부식이 발생할 수 있도록 하였다. 그 후에 80℃의 온도를 유지하는 전기오븐에 10시간 넣어 두었다. Fig. 3.1.1.28는 저탄소강의 부식 전 시편을 Microscope를 이용하여 찍은 사진이고 Fig. 3.1.1.30은 부식 후 시편을 나타내는 사진이며 Fig. 3.1.1.31은 제염 후 시편을 나타내는 사진이다. Fig. 3.1.1.28은 저탄소강의 표면을 SEM을 이용하여 관찰한 것이고 EDX를 이용하여 표면의 구성화합물의 원소비율을 분석한 결과가 Table 3.1.1.2에 나타나 있는데 주로 Fe, O, Cu, Ni 로 이루어져 있다.

Table 3.1.1.2 Chemical composition of the low-carbon steel surface

Elementary analysis(wt%)						
Element	O	Cr	Fe	Ni	Cu	Total
Composition	14.51	0.22	82.26	0.66	2.35	100.00

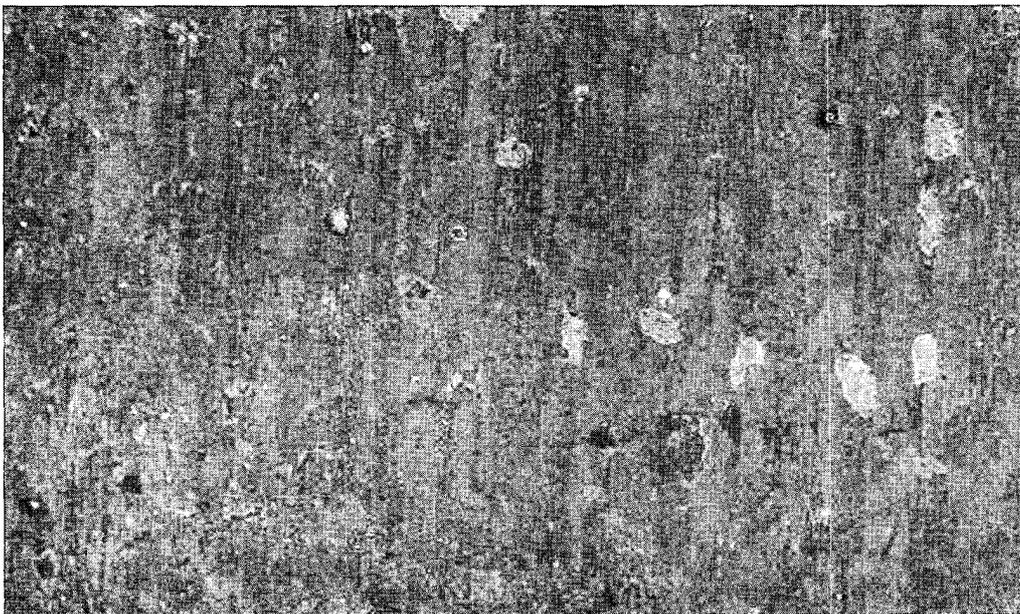


Fig. 3.1.1.28 SEM picture on the surface of low-carbon steel before contamination

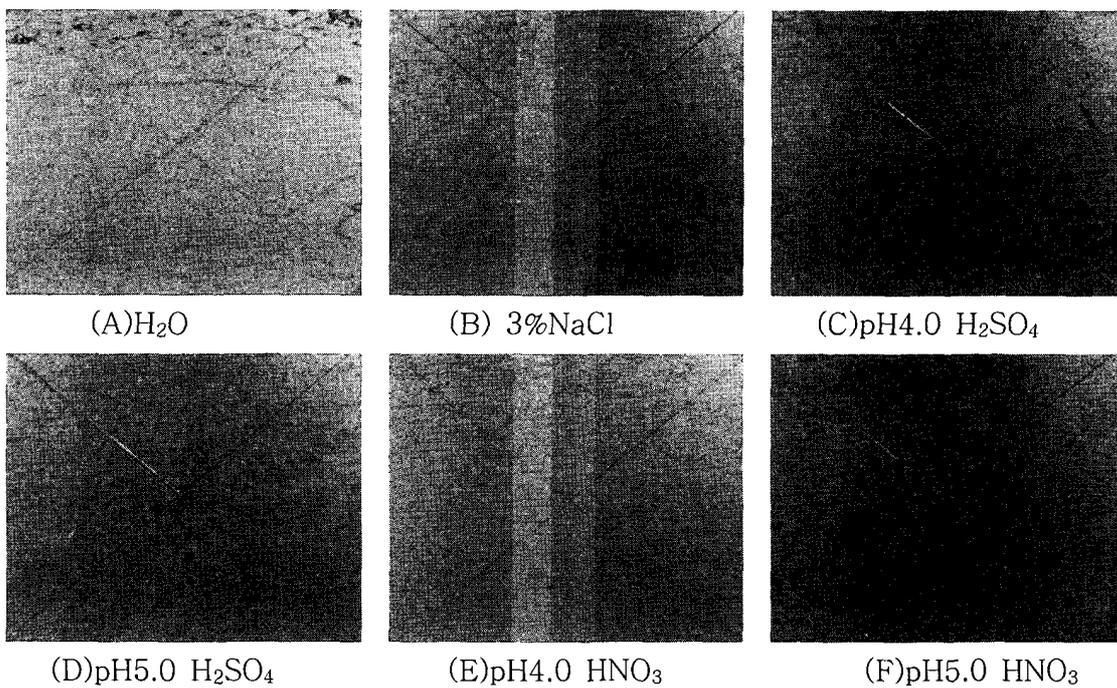


Fig. 3.1.1.29 Microscope pictures before contamination for substrate surface of low-carbon steel

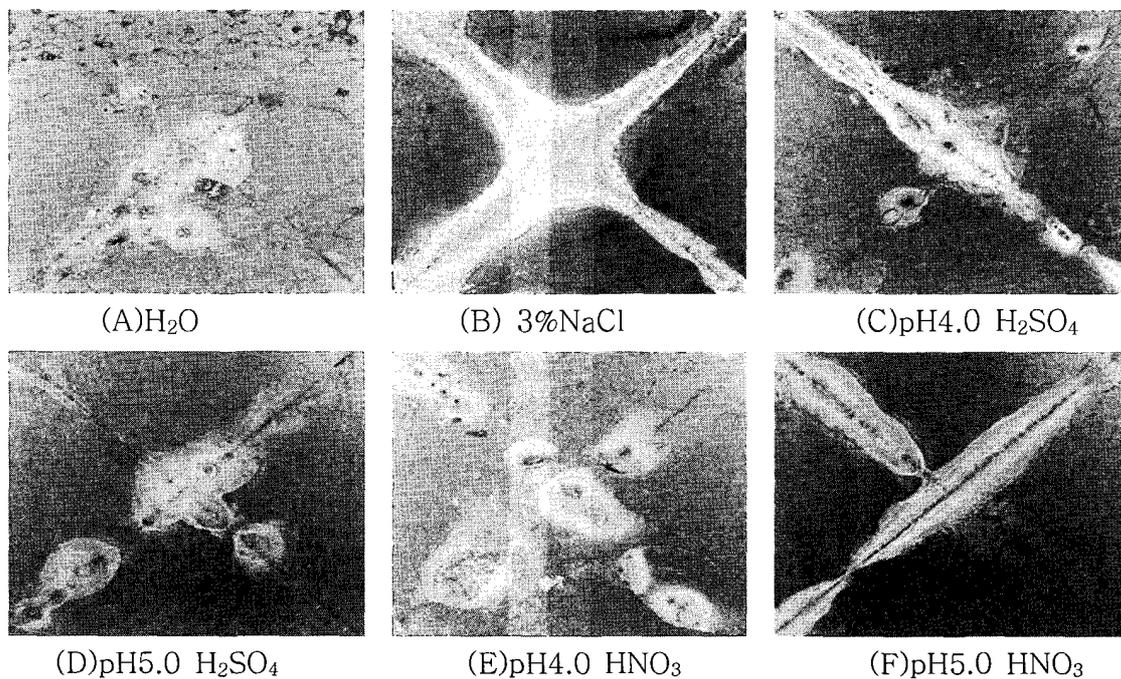


Fig. 3.1.1.30 Microscope pictures after contamination for substrate surface of low-carbon steel

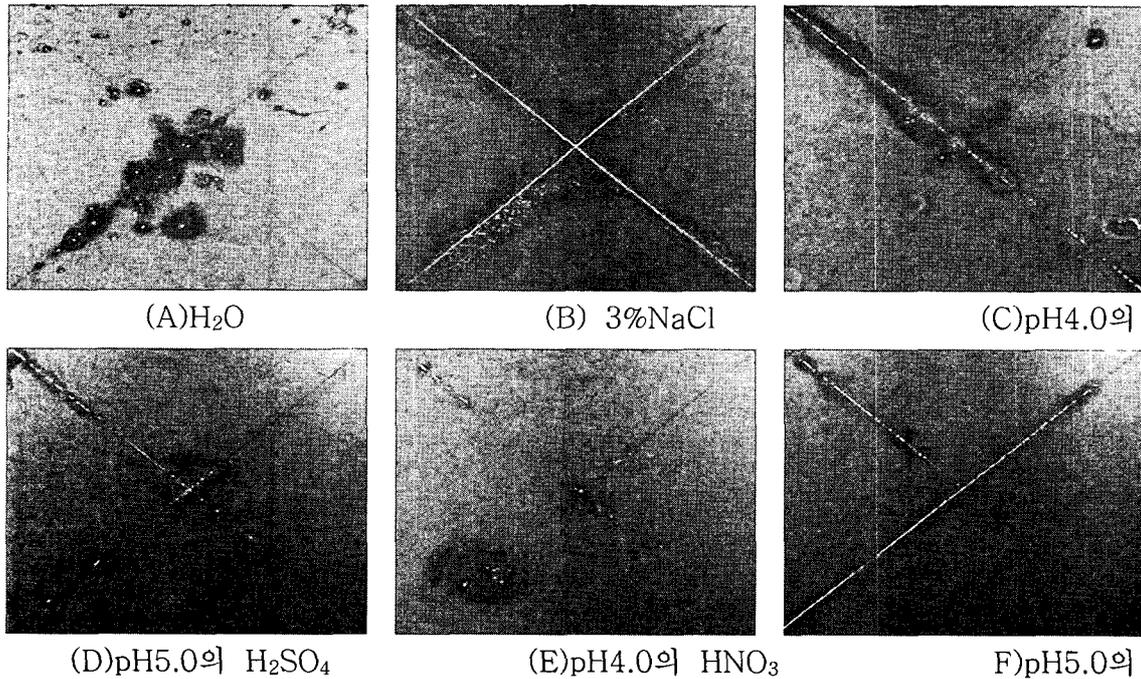


Fig. 3.1.1.31 Microscope pictures after decontamination for substrate surface of low-carbon steel

a. H₂O에 의해 생긴 부식생성물

저탄소강의 주성분은 철(Fe)이다. 철의 경우 공기 중의 산소와 물속의 용존산소 등과 반응하여 산화물을 형성하는데 주로 우리 주변에서 흔히 볼 수 있는 수산화물(Fe(OH)₂)인 녹과 적청이라고 불리는 산화물인 Fe₂O₃와 흑피라고 불리는 Fe₃O₄가 생성된다. EDX 분석장비를 이용하여 부식시킨 저탄소강시편의 표면 상태와 원소비율을 관찰한 결과가 Table 3.1.1.3과 같이 나왔는데 오염 전 시편에서보다 철의 함량이 줄고 산소 함량이 증가한 것으로 보아 산화가 이루어져 산화물이 형성된 것으로 보여진다. 또한 XRD를 통해 화합물을 분석한 결과, Fe₂O₃이나 Fe₃O₄의 산화물이 있는 것으로 예상할 수 있었다. 선행실험을 통해 얻은 최적의 공정변수를 가지고 부식생성물을 제염한 결과, Fig. 3.1.1.32에 나타나 있는 SEM사진은 제염전후의 시편표면을 찍은 결과로서 녹이 거의 제거가 된 것을 볼 수 있었고, Fe₂O₃이나 Fe₃O₄의 산화물은 부분적으로 제거가 되었다고 예상할 수 있었다. 산화물의 경우 표면과의 높은 결합력을 가지고 있는 고착성 오염이기 때문에 분진형 오염이나 오일형 오염과는 다르게 제거가 쉽지 않았다.

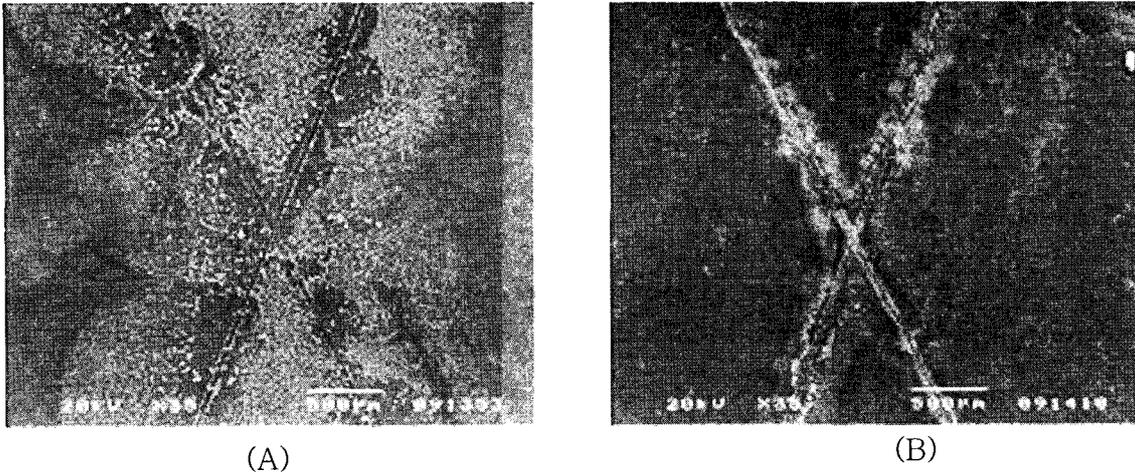


Fig. 3.1.1.32 SEM pictures of the low-carbon steel surface contaminated by H₂O before and after decontamination : (A) before ; (B) after(136m/s, 60s)

Table 3.1.1.3 Chemical composition of the low-carbon steel surfaces before and after decontamination

Elementary analysis(wt%)											
Element Composition		O	Mg	Si	Cl	Fe	Cu	S	Na	Cr	Total
		H ₂ O	Before	56.42	0.29	0.35	—	42.87	0.07	—	—
After	52.42		—	0.4	—	46.2	—	0.55	—	0.43	100
3%NaCl	Before	63.63	—	—	0.29	32.85	—	—	3.23	—	100
	After	46.00	—	—	0.11	52.05	—	—	1.45	0.39	100
H ₂ SO ₄	Before	73.26	—	0.41	—	25.42	—	0.91	—	—	100
	After	57.13	—	—	—	41.32	0.8	—	—	0.75	100
HNO ₃	Before	61.43	—	0.56	—	37.67	—	—	—	0.34	100
	After	55.89	0.56	0.43	—	43.12	—	—	—	—	100

b. 3% NaCl에 의해 생긴 부식생성물

염화나트륨수용액의 경우 염소는 물에 녹아서 HClO를 형성하고 HClO은 분해하여 O를 발생한다. 즉, $\text{Cl}_2 + \text{H}_2\text{O} = 2\text{HCl} + \text{O}$ 가 된다. 산소는 철과 반응하여 주로 생성되는 산화물은 Fe_2O_3 와 Fe_3O_4 이고 FeCl_2 는 틈이나 균열이 발생한 곳으로 침투하여 열화를 가속화 시키는 인자로서 작용을 한다. 따라서 염화나트륨수용액에 의해 발생한 부식은 다른 환경에 비해 심하게 일어난다. EDX 분석장비를 이용하여 저탄소강 시편의 표면 상태와 원소비율을 관찰한 결과가 Table 3.1.1.3과 같이 나왔는데 오염 전 시편에서보다 철의 함량이 줄고 산소 함량이 증가한 것으로 보아 산화가 이루어져 산화물이 형성된 것으로 보여 진다. 또한 XRD를 통해 화합물을 분석한 결과, Fe_2O_3 이나 Fe_3O_4 의 산화물이 있는 것으로 보여 진다. 제염 후 분석결과, Fig. 3.1.1.33에 나타나 있는 SEM 사진은 제염전후의 시편표면을 찍은 사진으로서 관찰한 결과 수산화물인 녹은 상당히 제거된 것을 볼 수 있었고, EDX 분석장비로 표면원소비율을 분석한 결과 산소의 함량이 줄고 철의 함량이 증가한 것을 보아 산화물인 Fe_3O_4 나 Fe_2O_3 가 부분적으로 제거된 것으로 보여 진다.

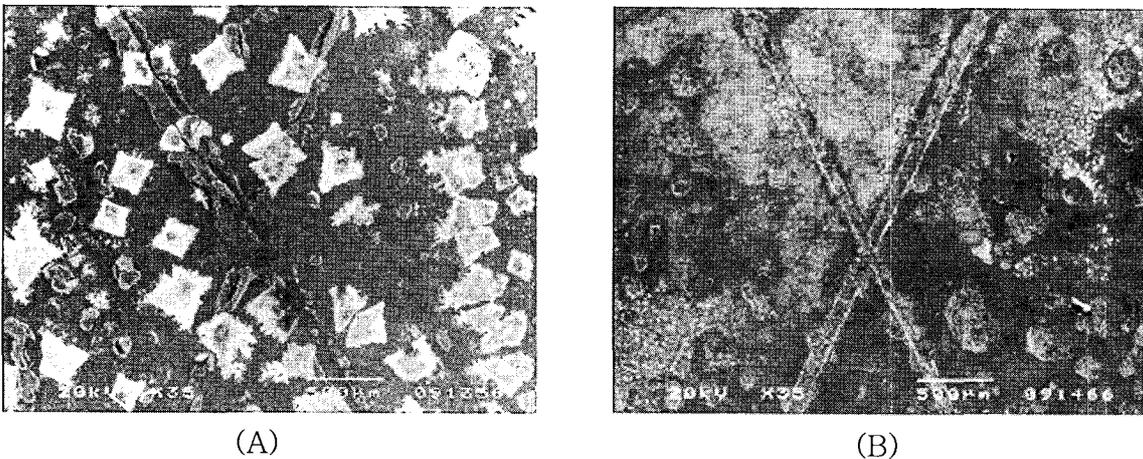


Fig. 3.1.1.33 SEM pictures of the low-carbon steel surface contaminated by 3%NaCl before and after decontamination : (A) before ; (B) after(136m/s, 60s).

c. pH4.0의 H_2SO_4 에 의해 생긴 부식생성물

pH가 낮아질수록 산화제인 H^+ 의 양이 많고 산화피막의 용해도가 높기 때문에 부식속도가 높아지고 금속이 이온으로 용해된 후의 수산화물(녹)로서 침전되는 경향에

영향을 미친다.

황산의 경우 저탄소강의 표면에서 수소가 발생하기 때문에 침식부식과 흠부식을 일으킬 수 있다. 지역마다 산성비의 pH값이 다른데 심한경우가 pH4.0인 경우이다. 산성비를 이루고 있는 것 중에 하나가 황산이다. 황산수용액에 의한 부식이 물보다는 많이 일어났다. 황산수용액에 의해 생긴 부식생성물을 EDX 분석장비를 이용하여 저탄소강시편의 표면의 상태와 원소비율을 관찰한 결과가 Table 3.1.1.3과 같이 나왔는데 오염 전 시편보다 철의 함량이 줄고 산소 함량이 증가한 것으로 보아 산화물이 있는 것으로 예상된다. 또한 XRD를 통해 화합물을 분석한 결과, Fe_2O_3 이나 Fe_3O_4 의 산화물이 생성된 것으로 보여 진다. 제염 후 분석결과, Fig. 3.1.1.34에 나타나 있는 SEM 사진은 제염전후의 시편표면을 찍은 사진으로서 관찰한 결과 표면의 수산화물인 녹은 거의 제거가 되었으며 EDX로 시편표면의 구성원소를 분석한 결과 산소의 함유량이 감소하고 철의 함량이 증가한 것으로 보아 산화물인 Fe_3O_4 나 Fe_2O_3 가 부분적으로 제거된 것으로 보여 진다.

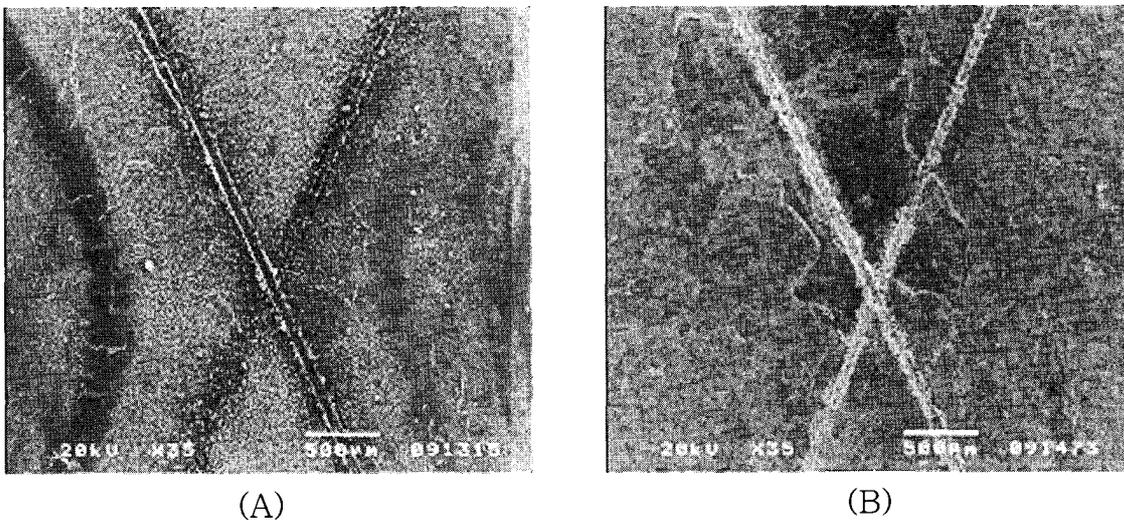


Fig. 3.1.1.34 SEM pictures of the low-carbon steel surface contaminated by H_2SO_4 before and after decontamination : (A) before ; (B) after(136m/s, 60s)

d. pH5.0의 H_2SO_4 에 의해 생긴 부식생성물

pH5.0의 H_2SO_4 수용액에 의해 생성된 수산화물인($Fe(OH)_2$) 녹은 pH4.0의 H_2SO_4 수용액에 의해 생성된 녹보다는 약간 적었다. 부식 후 EDX 분석장비를 이용하여 저탄소

강시편의 표면의 상태와 원소비율을 관찰한 결과가 Table 3.1.1.3과 같이 나와 있는데 부식 전 시편에서보다 철의 함량이 줄고 산소 함량이 증가한 것으로 보아 산화가 이루어져 산화물이 형성된 것으로 예상할 수 있었다. 또한 XRD를 통해 화합물을 분석한 결과, Fe_2O_3 이나 Fe_3O_4 의 산화물이 있는 것으로 예상 할 수 있었다. Fig. 3.1.1.30에 나타나 있는 Microscope사진은 제염후의 시편표면을 찍은 사진으로서 관찰한 결과 녹은 거의 제거가 되었으며, 산화물인 Fe_3O_4 나 Fe_2O_3 가 부분적으로 제거가 된 것으로 보여 진다.

e. pH4.0의 HNO_3 에 의해 생긴 부식생성물

질산은 산화성 산으로 알려져 있으며 염산, 황산 등과 같은 다른 강산(환원성 산)보다 더 큰 부식성을 가지고 있다. 오염 후 탄소강시편의 표면을 Microscope와 SEM을 통해 관찰한 결과 황산에 의한 녹의 생성보다 약간 더 많이 생성 된 것을 볼 수 있었다. 부식 후 시편의 표면을 EDX 분석장비를 이용하여 표면의 상태와 원소비율을 관찰한 결과가 Table 3.1.1.3과 같이 나왔는데 오염 전 시편보다 철의 함량이 줄고 산소 함량이 증가한 것으로 보아 산화가 이루어져 산화물이 형성된 것으로 보여 진다. 또한 XRD를 통해 화합물을 분석한 결과, Fe_2O_3 이나 Fe_3O_4 의 산화물이 있는 것으로 예상된다. 제염 후 분석결과, Fig. 3.1.1.35에 나타나 있는 SEM 사진은 제염전후의 시편표면을 찍은 사진으로서 관찰한 결과 수산화물인 녹은 거의 제거가 되었고, EDX로 시편표면의 구성원소를 분석한 결과 산소의 함유량이 감소하고 철의 함량이 증가한 것으로 보아 산화물인 Fe_3O_4 이나 Fe_2O_3 가 부분적으로 제거가 된 것으로 보여 진다.

f. pH5.0의 HNO_3 에 의해 생긴 부식생성물

부식 후 저탄소강시편의 표면을 Microscope와 SEM을 통해 관찰한 결과 pH5.0의 HNO_3 수용액에 의해 부식되어 생성된 수산화물인($Fe(OH)_2$) 녹이 pH4.0의 HNO_3 수용액에 의해 생성된 녹보다는 약간 적었다. EDX로 표면원소비율을 분석한 결과가 Table 3.1.1.3과 같이 나왔는데 Fe가 줄고 O가 증가하였다. XRD를 통해 화합물을 분석한 결과, Fe_2O_3 이나 Fe_3O_4 의 산화물이 있는 것을 알 수 있었다. 제염 후 분석결과 Fig.

3.1.1.30에 나타나 있는 Microscope사진은 제염후의 시편표면을 찍은 사진으로서 관찰한 결과 수산화물인 녹은 상당히 제거된 것을 볼 수 있었고, EDX로 표면원소비율을 분석한 결과 산소의 함량이 줄과 철의 함량이 증가한 것으로 보아 산화물인 Fe_3O_4 나 Fe_2O_3 가 부분적으로 제거되어진 것으로 보여 진다.

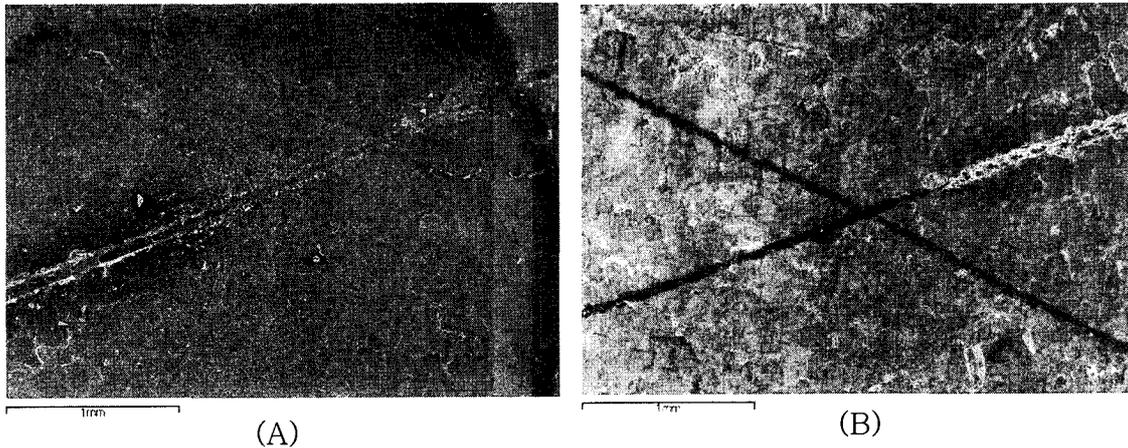


Fig. 3.1.1.35 SEM pictures of the low-carbon steel surface contaminated by HNO_3 before and after decontamination : (A) before ; (B) after(136m/s, 60s)

① 노출시간에 따른 표면특성

거칠기는 부착력에 영향을 미치는 중요한 인자이다. 금속표면의 거칠기가 높으면 도료와 금속표면사이의 부착력을 떨어뜨려 도장의 수명을 단축시키고 도장표면이 맵끄럽지 않아 미관상 좋지 않다. 모래나 유리구와 같은 고체분사매개체의 경우 금속표면에 손상을 많이 주는 것으로 알려져 있다. 모래나 유리구 같은 경우 고체 CO_2 pellet보다 경도가 높기 때문이다. 고체 CO_2 pellet의 경우 거칠기에 가장 영향을 미치는 공정변수는 nozzle출구에서의 분사속도와 분사시간이다. compressor의 setting 압력은 3atm~7atm의 범위까지 변화를 주었고, 분사시간은 10s, 30s, 120s 동안 분사하였다. Fig. 3.1.1.36은 분사거리가 5cm이고, 분사각도는 90° 일 때 분사시간 10s동안 분사속도에 따른 거칠기 값을 나타낸 결과로서 분사속도가 증가 할수록 거칠기 값이 증가하는 것을 알 수 있었다. Fig. 3.1.1.37은 동일한 조건에서 분사시간이 30s일 때의 결과로서 nozzle출구에서의 분사속도가 증가할수록 거칠기 값이 증가하는 것을 볼 수 있었다. Fig. 3.1.1.38은 분사시간이 120s 일 때의 결과로서 가장 높은 거칠기 값이 나왔는데 최대 거칠기 값은 $0.5\mu m$ 로 분사속도가 136m/s이고 분사시간 120s의 조건일

때였다. 전체적으로 보았을 때 거칠기 값은 $1\mu\text{m}$ 미만의 아주 적은 거칠기 값을 나타냈다.

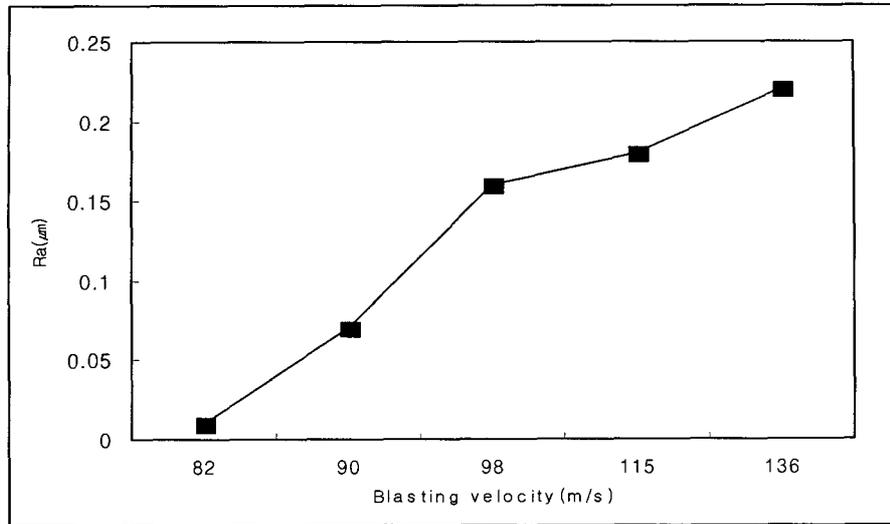


Fig. 3.1.1.36 Roughness(Ra) values of wear scars on the surface of low-carbon steel created at different blasting velocities during 10s

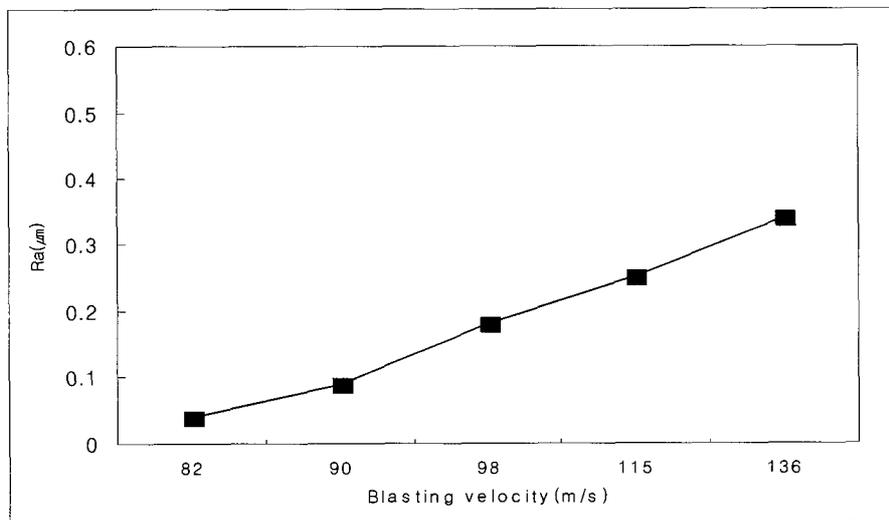


Fig. 3.1.1.37 Roughness(Ra) values of wear scars on the surface of low-carbon steel created at different blasting velocities during 30s

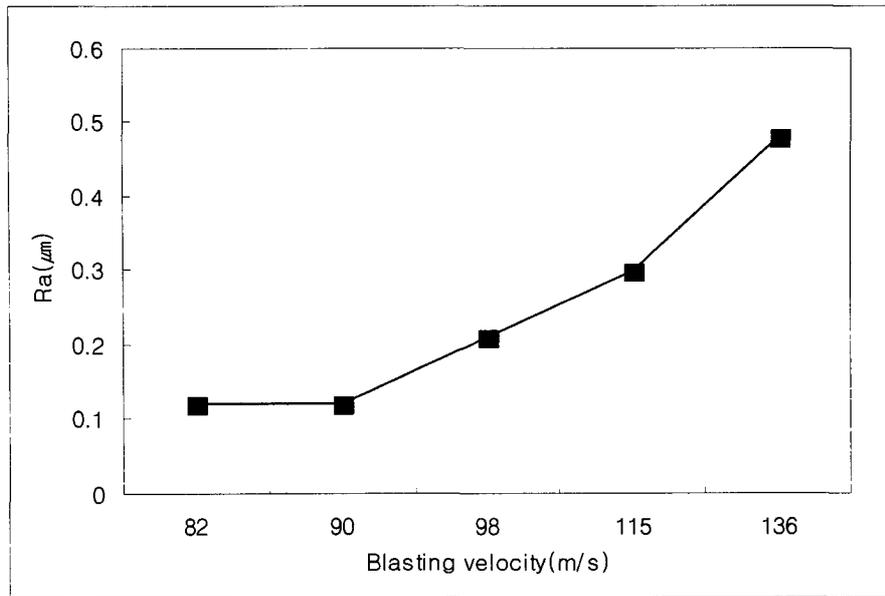


Fig. 3.1.1.38 Roughness(Ra) values of wear scars on the surface of low-carbon steel created at different blasting velocities during 120s

② 드라이아이스 펠렛의 승화 특성

드라이아이스 펠렛이 블래스팅 장치 내부의 호퍼 안에서 얼마나 보존되는가를 먼저 조사해 보기 위해 그들의 승화속도를 측정하였다. 일정량의 드라이 아이스펠렛을 저울에 얹고 블래스팅 장치와 같은 조건을 유지시켜 주면서 시간에 따른 무게 변화를 측정해 본 결과가 Fig. 3.1.1.39이다.

여기서 $m(t)$ 는 초기 질량에 대한 잔류 드라이아이스 펠렛의 질량비이다.

비교를 위해 노출된 공간(바람에 의한 convection이 있을 수 있는)에서의 승화량은

$$m(t) = 1.0262e^{0.4372t}$$

로 얻어졌다.

이는 모두 승화속도가

$$dm(t) = -km(t)$$

로 표시됨을 의미하는 것으로 승화속도 상수가 convection에 의해 0.316에서 0.4372로 증가함을 의미 하는 것이다. 즉 반감기는 폐쇄 호퍼 안에서 2.19 h, 오픈 상태에서 1.59 h 이다.

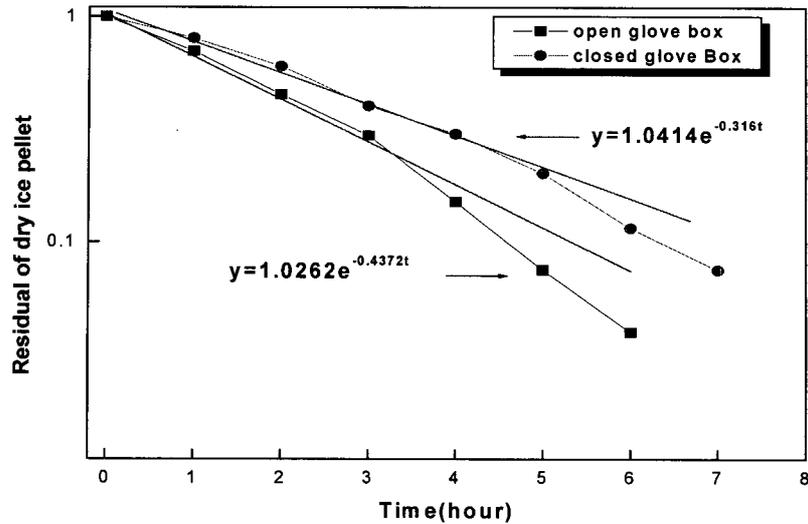


Fig. 3.1.1.39 Sublimation of dry-ice pellets exposed to ambient condition

③ 세정력

세정의 기구(mechanism)를 impact와 열적 효과로 나누어 각각 조사하였다.

㉠ 단위 면적 당 세정 impact

Piezodynamomer를 이용하여 단위 면적 당 블래스팅(free jet)의 힘을 기관-노즐간 거리에 따라 측정된 결과가 Fig. 3.1.1.40에 나타내었다. 여기서 분명한 사실은 드라이아이스 펠렛이 없는 공기 jet의 경우 거리가 5 cm에서 20 cm로 4배 멀어지면 그 힘이 1/5로 현저히 줄어드나 드라이아이스 펠렛이 실린 jet의 경우, 실험의 조건(5-20 cm)거리까지는 별 차이가 없는 것으로 나타났다.

이는 공기의 경우 기관 표면에 형성되는 경계층(boundary layer)의 존재로 속도가 현저히 떨어지며 분사면적이 늘어나지만, 드라이아이스 펠렛은 관성력 때문으로 속도가 거의 그대로 유지되고 분사각이 크게 벌어지지 않아 블래스팅 힘이 3% 미만 감소하는데 그치고 있음을 나타낸다.

한편 Fig. 3.1.1.41은 세정력이 드라이아이스 분사 질량속도에 비례하고 있음을 알려준다. 이는 드라이아이스 펠렛에 의한 충격력이 세정에 미치는 효과를 입증하는 것이다.

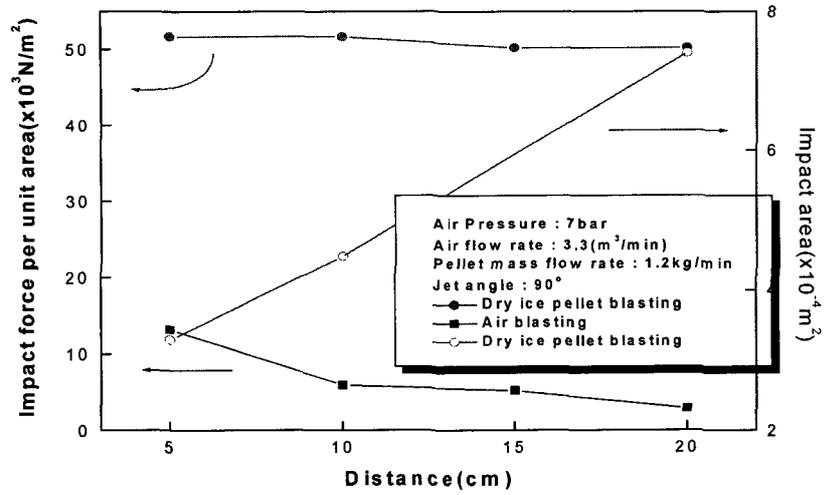


Fig. 3.1.1.40 Effect of nozzle-to-substrate distance on impact force per unit area

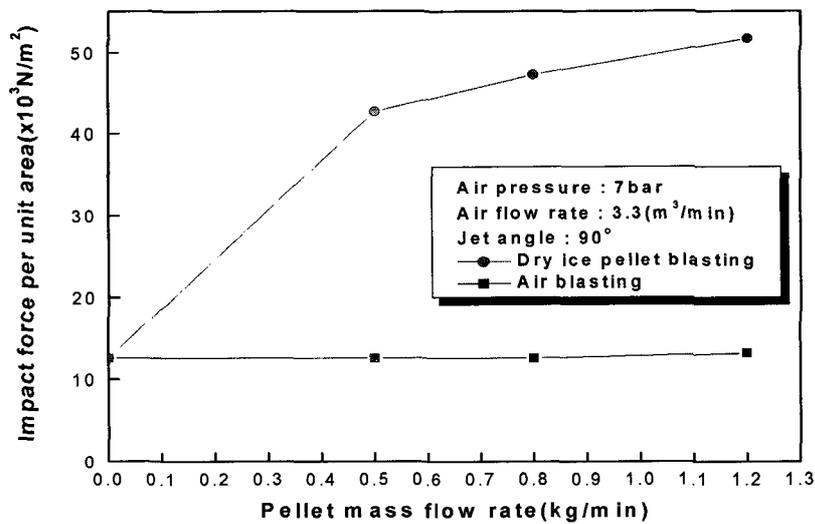


Fig. 3.1.1.41 Effect of pellet mass flow rate on impact force per unit area

㉞ 열적 효과

열적 효과는 드라이아이스 펠렛 세정에서 충격력 이상으로 영향이 있다는 보고가 있다. 충격력 : 열적 효과는 60 : 40의 영향이 있다고 알려진다. 따라서 분사시 (60초간: 대부분의 분사의 경우 한 지점에 머무는 최대시간 임.) 기관의 표면 온도 변화를

조사한 결과 Fig. 3.1.1.42에서 보는 바와 같이 구리-강철-황동-아크릴-유리의 순으로 온도가 내려 가고 있다. 이 순서는 재료의 열전도도와 관계있는 것으로 오염물의 경우 대체로 열전도도가 낮고 기관보다 먼저 온도가 강하하는 데 비해 기관의 열전도도가 높은 경우, 노출되어도 온도강하가 쉬 일어나지 않아 오염물과 열적 차이가 심하게 나타나는 데 비해 기관의 열전도도가 낮은 경우 노출되면 온도강하가 심하게 나타나 오염물과의 온도차가 적게 되고, 더욱이 주변 습기의 응결이 쉬 일어나게 되어 세정속도는 현저히 떨어진다.

결과적으로 블래스팅의 세정력은 물리적 impact와 온도차에 기인한 열적 효과에 함께 결정되는 것으로 결론 내릴 수 있다.

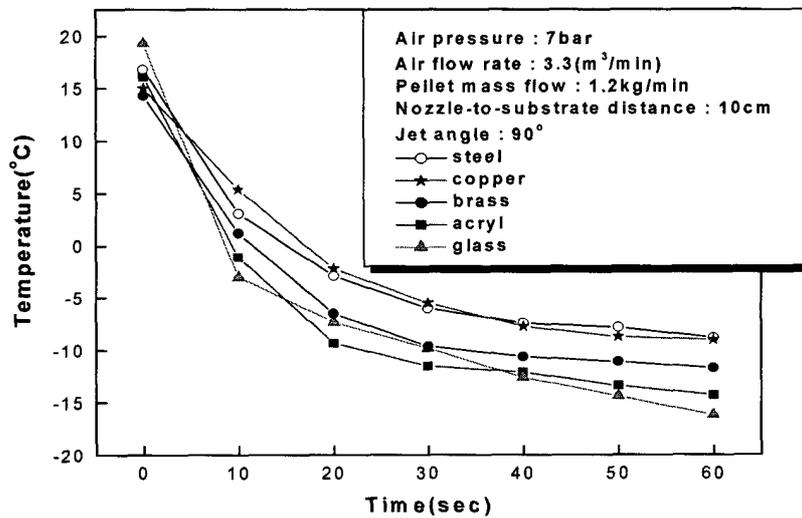


Fig. 3.1.1.42 Cooling of various substrate surfaces by dry-ice pellet blasting.

④ 세정 속도

세정속도에 미치는 변수를 조사해 보면 장치변수, 펠렛변수, 공정변수, 세정대상변수로 구분할 수 있다. 이 중 장치변수, 펠렛 변수, 공정변수는 블래스팅 변수라 할 수 있다. 이 중에서도 본 연구에서는 블래스팅 변수로서 중요 변수인 노즐-기관간 거리, 분사각도, 드라이아이스 분사질량속도를 변화하여 실험하였다. 세정 대상 변수는 먼저 기관별 변수로는 유리, 황동, 구리, 강철, 아크릴 등을, 그리고 오염물질 별로는 카 페인트, 그리스, 에폭시 등을 변수로 잡았다. 다음은 블래스팅 변수, 기관 변수, 오염물질 변수에 따른 세정력의 효율을 조사한 것이다.

㉠ 분사 거리의 영향

노즐의 목의 넓이, 분사 tip의 면적 등 조건이 비슷할 때, fan 노즐의 경우가 round 노즐에 비해 세정속도가 일반적으로 높다. 먼저 노즐-기판 간 거리에 대한 세정속도에 미치는 효과를 보면 fan 노즐의 경우 거리가 5배 늘어나면 세정속도는 1/5로 감소하였다. 이의 역수는 세정면적의 증가와 일치하게 된다. 즉 impinging jet의 경우 전체 면적에 미치는 impact force는 같음을 나타내는 것이다. round 노즐의 경우 세정면적은 분사거리에 덜 의존성이 상대적으로 낮으며, 따라서 세정속도의 차이도 거리에의 의존도가 fan 노즐에 비해 낮다. (Fig. 3.1.1.43) 이는 fan 노즐이 round 노즐에 비해 가까운 거리에서는 집중력이 강하여 세정력이 높기 때문이다. 그리고 구조상 round 노즐이 직진성이 강하며 fan 노즐에 비해 거리에 따른 퍼짐성이 덜함을 의미한다.

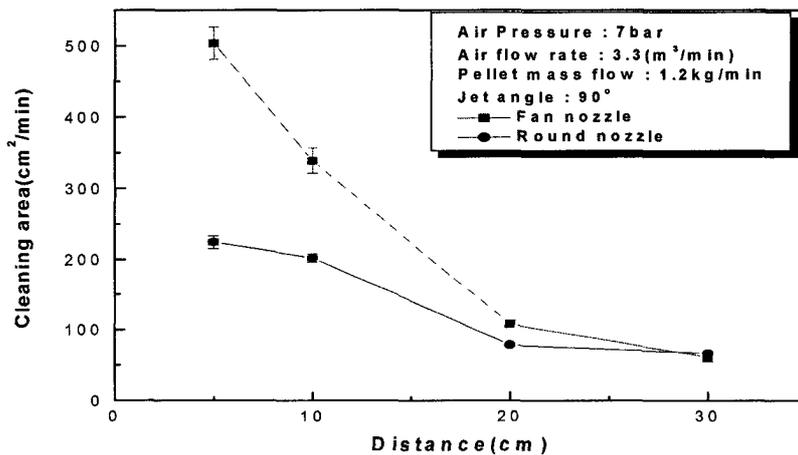


Fig. 3.1.1.43 Effect of blasting parameters on depainting rate

㉡ 분사각도의 영향

분사각도의 영향은 분사각을 줄이면 분사면적은 늘어나나 impact는 줄것으로 예상했다. 단순한 가정으로 $\sin\theta$ 에 비례하도록 세정력이 강해지고 반대로 이에 역비례하도록 세정면적이 결정될 것으로 생각되었으나, Fig. 3.1.1.44에 의하면 그렇지 않고 거의 분사각 θ 에 비례하는 것으로 보였다.

세정 기구가 힘에 단순 비례하지 않는 것은 세정과정이 부착된 페인트 기판의 변형과 항복점을 지난후 crack이 생기면서 벗겨지는 현상과 무관하지 않은 것으로 보인다. 이는 변형의 각도 의존성에 기인할 것으로 보이나 이와 같은 효과에 대해서

좀 더 심도 있는 연구가 필요할 것으로 사료된다.

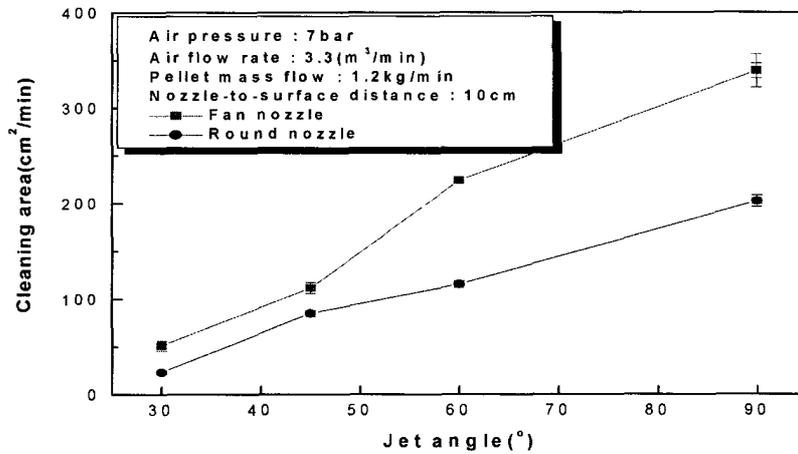


Fig. 3.1.1.44 Effect of blasting parameters on depainting rate

㊦ 분사 질량 속도의 영향

본 실험에 의하면 드라이아이스 펠렛 분사량에 따른 영향은 분사량을 늘이면 세정 속도는 증가했다. 이는 충돌하는 드라이아이스 펠렛의 개수가 많아 지기 때문이다. 그러나 이것은 적정한 노즐 목의 단면적 하에서 충분한 제거율을 얻기 위한 압축 공기의 유량이 갖추어졌을 때 어느 한계치까지는 적용된다. 예를들어 노즐 목의 단면적에 충분한 제거율을 얻지 못한 압축 공기의 유량에서는 드라이아이스 펠렛이 많을수록 세정력은 천천히 약해질 것이다. 이것은 공기의 유량에 대해 충분히 가속할 수 있는 드라이아이스 펠렛의 양은 한정되어 있기 때문에 드라이아이스 펠렛의 분사량이 너무 많아서 펠렛의 속도가 느려지기 때문일 것이다. 또한 충분한 압축 공기의 공급하에서는 노즐 목의 단면적이 너무 작으면 가속하는 공기 유량이 적어지기 때문에 충분히 가속할 수 있는 드라이아이스 펠렛의 분사량이 작아져 세정 속도가 작아질 것이다. 이에 비해 노즐 목의 단면적이 크면 공기 유량이 크기 때문에 충분히 가속할 수 있는 드라이아이스 펠렛의 분사량이 많아지면 세정 속도가 증가한다. 단 노즐 목의 단면적이 너무 크면 압축 공기의 유량이 많이 필요하게 되고 보다 큰 공기 유량의 컴프레서를 필요로 해 경제적으로 이점이 없다. 이런 것을 고려하면 압축 공기의 유량에 대한 노즐 목의 최적의 단면적이 있고 또한 실용적인 한계치 범위의 단면적이 존재하며 이에 맞는 최적의 한계치의 드라이아이스 펠렛

분사량이 존재한다. 본 실험의 노즐의 목 단면적(round 노즐 목: 70 mm^2 , fan 노즐 목: 60 mm^2)과 압축 공기의 유량($3.3 \text{ m}^3/\text{min}$)을 고려할 때 드라이아이스 펠렛 분사량이 $1.2 \text{ kg}/\text{min}$ 까지는 드라이아이스 펠렛 분사량이 증가할수록 세정력은 증가하였다. (Fig. 3.1.1.45)

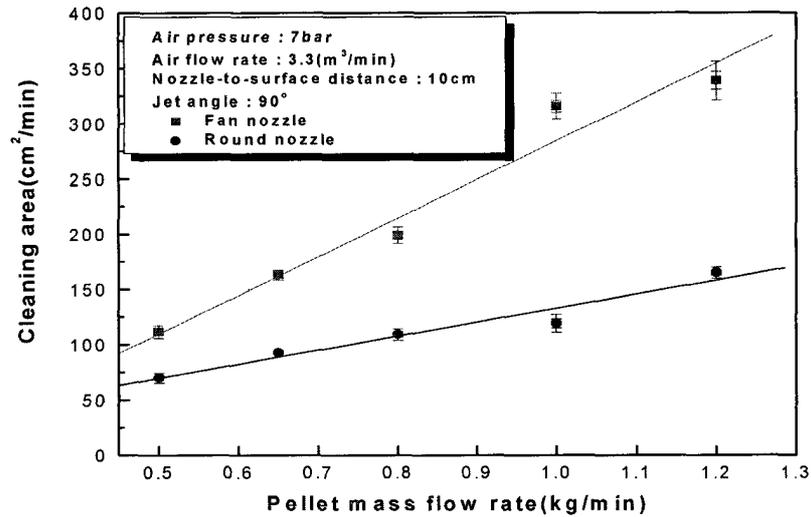


Fig. 3.1.1.45 Effect of blasting parameters on depainting rate

㉔ 세정 대상 기판의 효과

세정기판의 영향 중 중요한 인자는 기판-페인트의 부착력(adhesion), 표면의 조도(평활도), 그리고 앞서 기술한 바 있는 기판의 열전도도 등이 영향을 미칠 것으로 판단된다. 기판의 열전도도가 높을수록 기판 표면의 냉각이 가장 어려워 수분의 결빙이 방지되고, 오염물-기판간의 열적차이가 유지되기 때문으로 판단된다. Fig. 3.1.1.27는 기판으로 유리, 아크릴, 구리, 강철, 황동 판 등에 fan 노즐과 round 노즐을 각각 사용하여 세정하였을 때의 결과이다. 그림에서 보는 바와 같이 두 노즐에 공히 유리-구리-황동-강철-아크릴의 순서로 나타났다.

이는 대부분 앞서의 표면 온도 강하 순, 즉 열전도도 순으로 생각되나 유리의 세정속도가 제일 높은 것은 유리의 표면이 가장 평활하고 매끄러워 페인트에 대한 부착력이 가장 약하기 때문으로 판단된다. 실제 crack의 발생빈도가 가장 큰 것으로 나타났다. (Fig. 3.1.1.46)

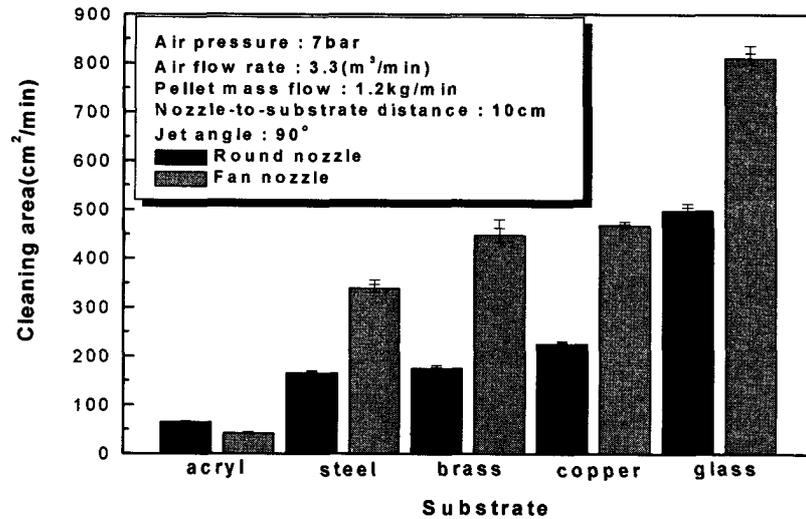


Fig. 3.1.1.46 Depainting rates for various substrates

㉔ 오염물질의 종류의 영향

본 연구에서는 오염물질의 종류, 즉 그리스, 페인트, 에폭시에 대해 같은 두께로 코팅하고 사흘을 기다렸다가 마른 뒤에 세정을 행하여 Fig. 3.1.1.47의 결과를 나타내었다. 페인트와 에폭시의 경우 300-500 m^2/min 의 범위에 속하나, 그리스의 경우, 3000 m^2/min 를 넘어섰다. 이는 에폭시의 경우가 가장 세정력이 낮은 경우이므로 앞서의 페인트 벗기기 실험이 가장 어려운 조건의 결과인 것으로 판단된다. 이는 오염물 자체의 표면 조도와 경도, 그리고 표면에서의 부착력 등이 복합적으로 세정력에 영향을 미치며 페인트가 매끄러워 표면조도가 낮으며, 경도도 강하고, 표면에서의 부착력도 뛰어난 때문으로 보이며, 그리스가 이 점에서 이와는 반대되는 성질을 가지기 때문으로 보인다.

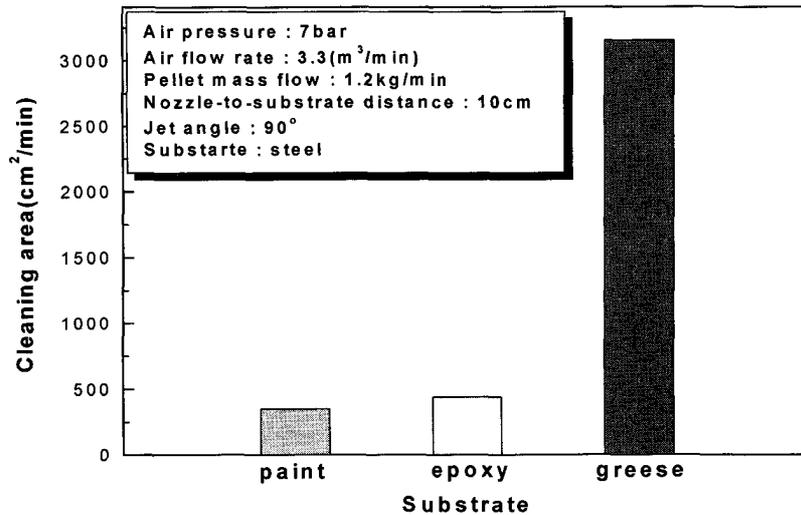


Fig. 3.1.1.47 Removal rates of various coatings

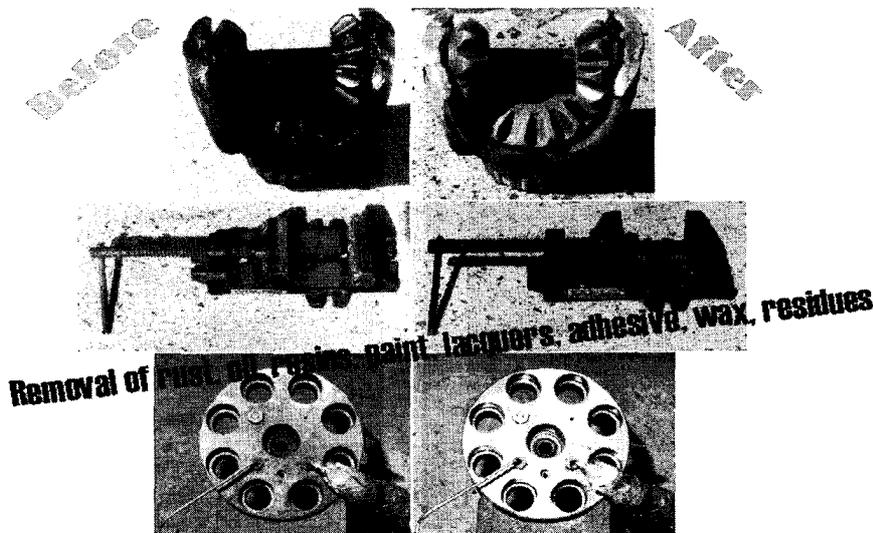


Fig. 3.1.1.48 Removal of oil, rust, residues

⑤ 소음 특성

드라이아이스 펠렛 블래스팅시에는 순간적으로 많은 양의 공기를 고압으로 분사하기 때문에 보통 100~120 dBA 정도의 소음이 발생한다. 이 소음 문제 역시 드라이아이스 펠렛 블래스팅의 보급화에 장애가 되기도 한다.

본 연구에서 고안한 드라이아이스 펠렛 블래스팅 장치는 분사시에 소음을 최소화하는 기술이 노즐에 포함되어 있다. 소음측정기(TES-1350A, TES Electrical Electronic

Corp.)로 측정한 결과 본 연구에서 상용한 드라이아이스 펠렛 블래스팅시 발생하는 소음은 85~100 dBA이다.

Fig. 3.1.1.49는 소음도(Sound Pressure Level)가 블래스팅 분사로부터 거리가 멀어짐에 따라 급격히 떨어짐을 보여주고 있다. 또한 Fig. 3.1.1.50은 블래스팅 압력에 따른 소음도 측정 결과를 보여주는 것이다.

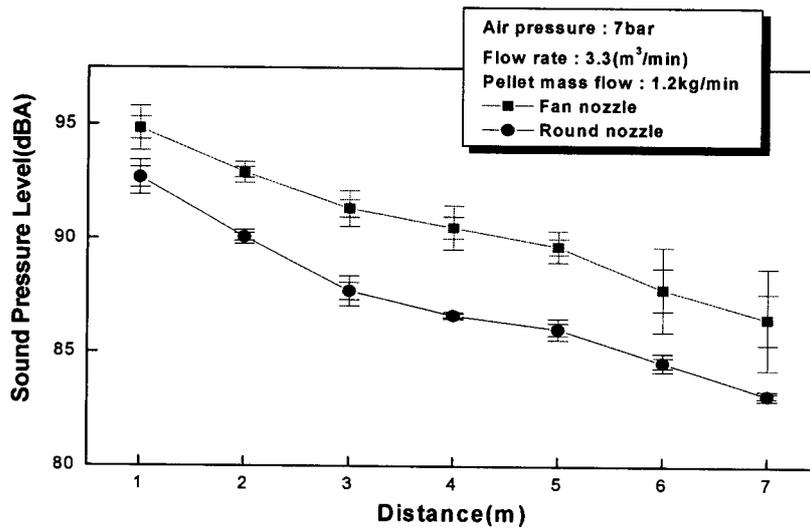


Fig. 3.1.1.49 Variation of noise level with respect to blasting distance(background noise: 65dB)

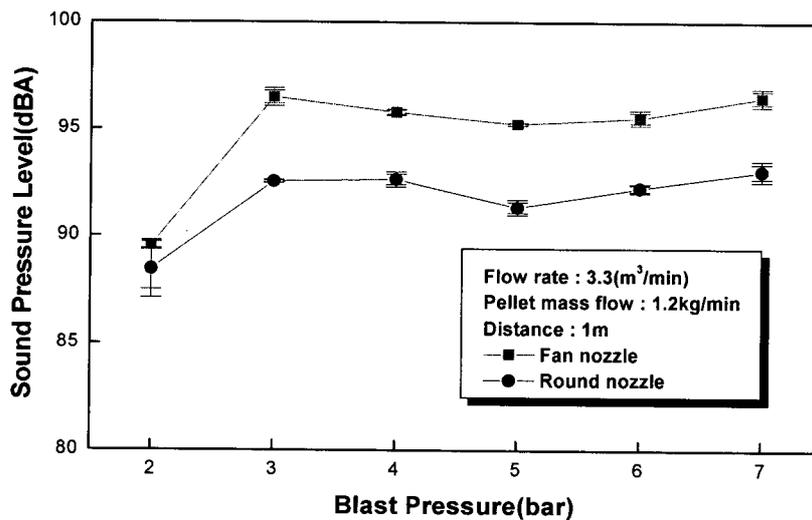


Fig. 3.1.1.50 Effect of blasting pressure on noise level (background noise: 65dB)

(2) CO₂ pellet 분사제염 단위 성능시험

(가) CO₂ pellet 현장제염 단위 성능시험

최종 Hot 제염기술 실증대상인 IMEF Hot cell의 구조적, 물리적 특성 및 사양을 파악하고 Hot cell 내에 설치 Master-slave manipulator, Crane, Toboggan Door 등 장비특성과 이송시스템, HVAC 시스템 및 폐기물 처리시스템 등을 조사하여, CO₂ pellet extruder와 CO₂ pellet 분사장치로 구성된 CO₂ pellet 건식분사 제염실증장치를 설계·제작하였다.

① 제염장치의 설계인자 도출의 위한 Hot Cell 구조특성 파악

고방사능 CO₂ 건식제염 현장 적용을 위한 hot cell의 구조특성에 대한 파악을 하였다.

㉠ IMEF Hot cell 개요

<기능>

핵연료와 핵물질의 시험을 위한 Hot-cell * Nuclear fuels irradiated in HANARO * PWR fuel rod-cuts * Power reactor structural materials * Irradiated capsule in HANARO
--

<IMEF Hot cell 1층 구조>

층수	시 설
1층	Receiving Area, Decon. room, Pool, Service area, Hot-cells (7 concrete cells, 1 lead cell) Operation Area, Microscope room, Work shop

㉡ IMEF Hot cell 구조

<M4 Hot cell 설계개요>

	Inner size (LxWxH, m)	Wall thick. (m)	Work Unit	Liner thick. (mm)	Ref. Activity (Ci)	Use
M4	2.3 x 3 x 6	1.2(H.conc)	1	3	1x10 ⁶ (1 MeV)	Storage

Density of H.conc(heavy concrete) is more than 3.5 g/cm³.

Each work unit has 1 window and a pair of manipulator.

<Hot cell 설비>

a. 쉴딩 윈도우(Shielding Window)

- Made in Germany (SCHOTT co.)
- All windows are alpha-tight type.

	Size (W×H×Th,mm)	Q'ty	Transm. Factor	Weight
M4	1100×1200×11 00	1	> 30 %	~ 5.65 ton

b. 마스터 슬래브 매니플레이터(Master-Slave Manipulator)

- Lifting capability : 20 kg (Max.)
- D.O.F. : 6 (x, y, z, lifting, rotating, azimuthal)
- Made in U.S.A (Sargent Co. CRL)

	Model	Q'ty(pairs)	Electric Movement	Remark
M4	EH-DE	1	x, y, z	

c. 쉴딩 스크류(Shielding Screws)

- Air pathway with radiation shielding (Quantity : 52 EA, Hor. 36, Ver. 16)
- Material : lead with SUS housing

d. 터보관(Toboggan)

- A slope cave through the hot-cell wall

- For small tool inserting into hot-cell

e. 패너트레이션(Penetrations)

- Power lines & Equipment plug

f. 라이트(Lighting)

- Sodium lamp and Halogen lamp

g. 문(Door)

- Rear Door for maintenance of hot-cell

- Roof Door for equipment transportation

- Inter-cell Door for specimen transportation

h. 크레인 문과 크레인 출입구(Crane Door and Crane Gate)

- For Crane movement

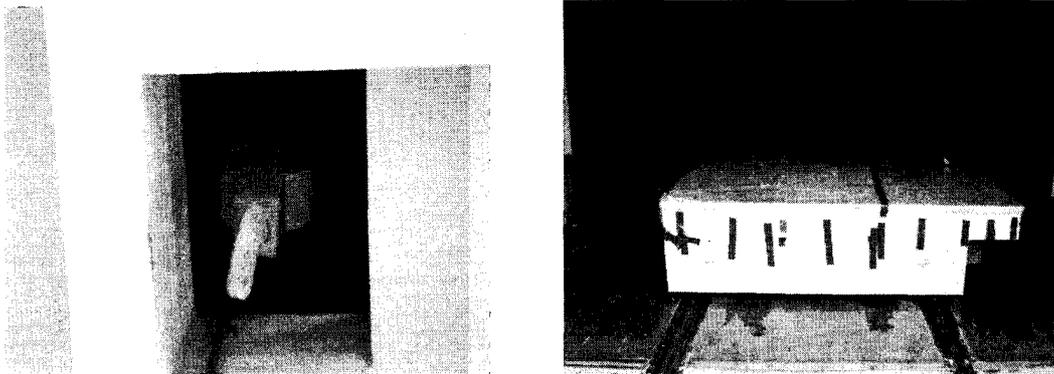


Fig. 3.1.151 30 ton Hoist for Cask Handling and 30 ton Transfer Cart

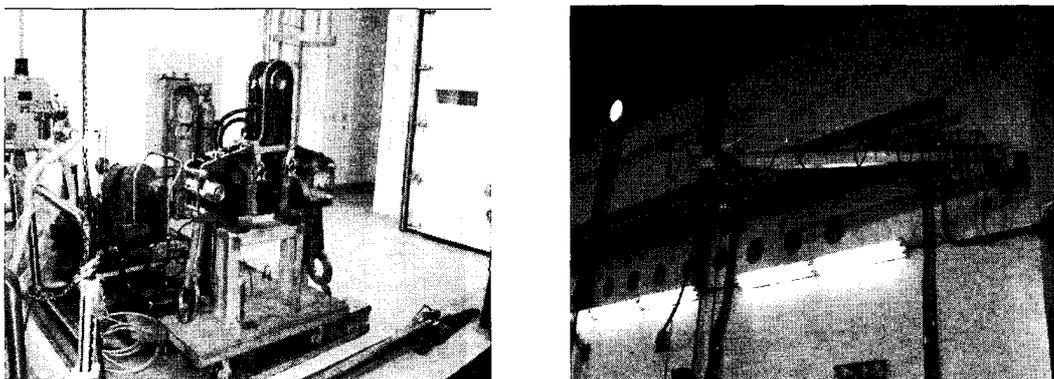


Fig. 3.1.152 Cask Lifting Yoke and Jib Crane for Fuel Handling

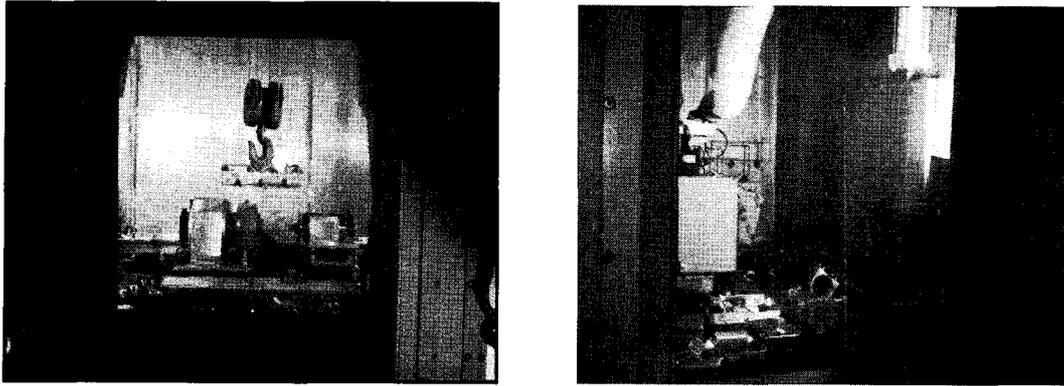


Fig. 3.1.1.53 In-cell Crane(capacity : 1 ton) and Inter-cell Transfer Cart

⊖ IMEF Hot cell 내부구조도

IMEF Hot cell 내부에는 7개의 콘크리트로 이루어진 cell과 납으로 이루어진 1개의 cell로 구성되어 있다.

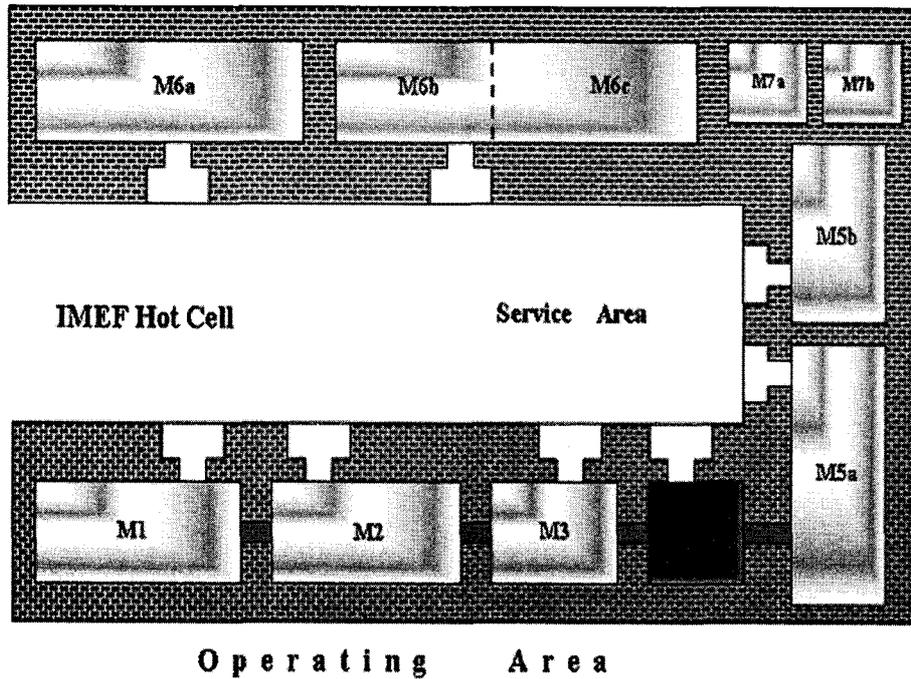
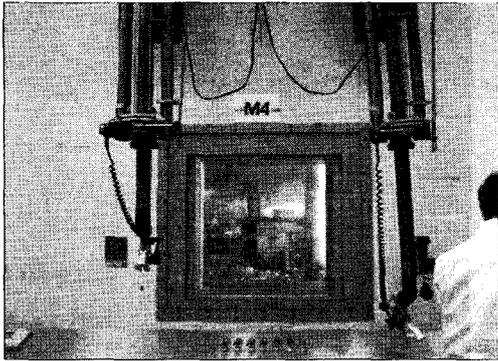


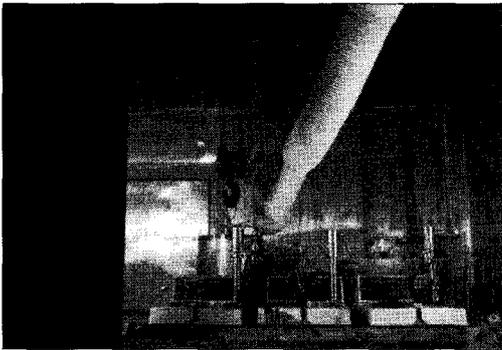
Fig. 3.1.1.54 Structural diagram of internal IMEF Hot cell



(a) M4 셀 밖의 manipulator



(b) M4 셀의 바닥부분



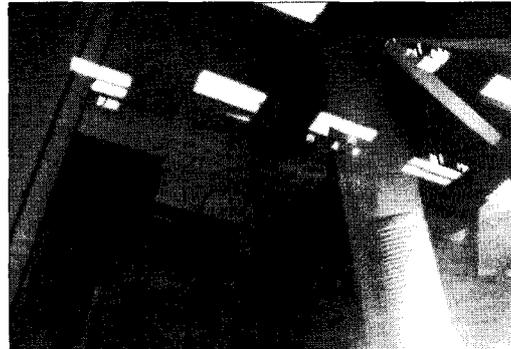
(c) M4 셀 뒤쪽의 출입구



(d) 크레인 고리와 manipulator



(e) cell 사이 벽면의 크레인 출입구



(f) 장치 운반용 크레인

Fig. 3.1.1.55 Internal structure of IMEF Hot cell

㉔ IMEF Hot cell 내부 zone

Hot cell 내부 zone은 일반적인 환경과 동일한 사무공간으로 사용되는 6000(White) 구역과, 일반적인 Operation이 이루어지는 7000(Green)구역, Hot cell 내에서 작업과 작업이 이루어지기 위한 서비스 구역인 8000(Yellow), Hot cell내에서 작업을 이루어지는 구역인 9000구역(Red)인 4개의 구역으로 이루어져 있다.

Table 3.1.1.4 Internal zone of IMEF Hot cell

Zone	6000	7000	8000	9000
Floor color	White	Green	Yellow	Red
Dose rate	< 0.625 mrem/h	< 1.25 mrem/h	< 50 mrem/h	< 50 mrem/h
Air pressure	0 ~ 3 mmAq.	-5 ~ -3 mmAq.	-8 ~ -5 mmAq.	-25 ~ -15 mmAq.
Ventilation	~ 3 turns/h	> 3 turns/h	> 5 turns/h	> 12 turns/h
Remark	Office	Operation	Service area	In-cell

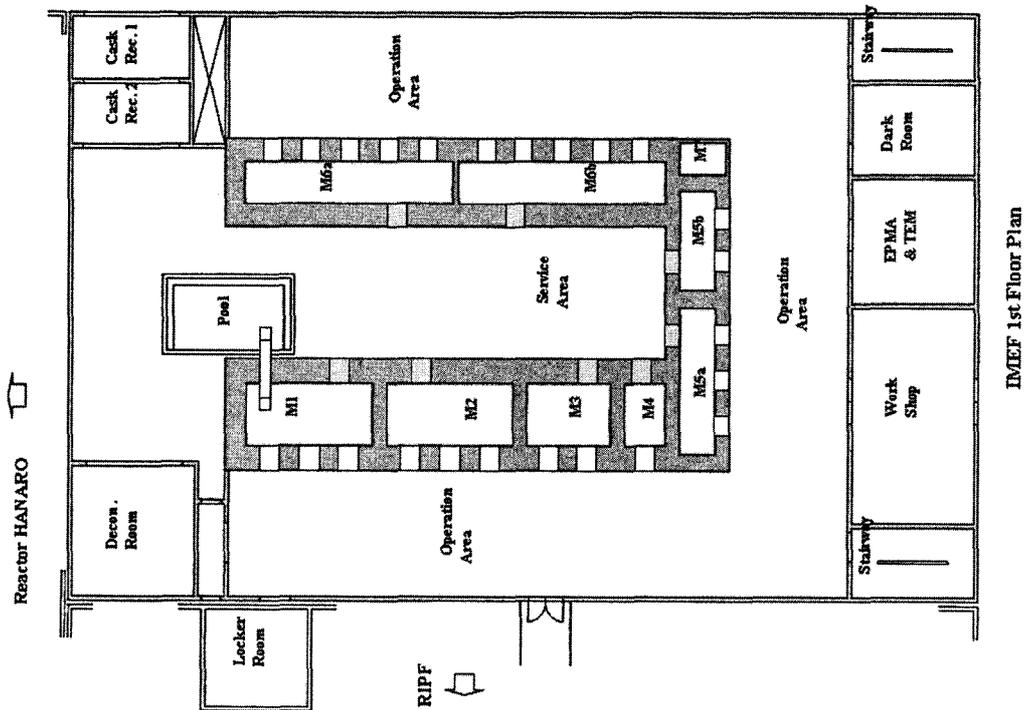


Fig. 3.1.1.56 Internal zone of IMEF Hot cell

② IMEF Hot cell 적용을 위한 제염실증장치 사양

- 제염대상 선정: IMEF시설의 9개 Hot cell 중 제염실증 용도로 적합한 저장용 cell인 M4 cell을 선정.
- 실증장치 규모: Hot cell내 설치장비(Manipulator, Toboggan 및 Door 등)의 용량을 고려하여, 장치의 크기는 1X0.8m, Manipulator 조작 무게는 20kg 이내로 함(Manipulator에 의한 분사 nozzle gun 조작 무게 : 8kg 이내).
- 장치설치 방안: CO₂ pellet extruder와 CO₂ pellet 분사장치는 cell 외부 조작실에 위치하고 분사 nozzle만 Toboggan을 통해 Hot cell 내부에 설치.
- Hot cell utility 활용: HVAC, 전원, 가압공기(5kg/cm²) 및 폐기물 처리설비.

③ 설계 · 제작 제염실증장치의 특징

㉠ CO₂ pellet 분사장치

- hopper에 투입된 pellet들 간의 엉김과 동결 방지를 위한 Idle roller의 설치.
- hopper내 pellet이 pellet 공급부를 통해 공급되는 과정에서 pellet의 부착, 역류, 파쇄에 따른 분사압력의 감소와 pellet의 손상 방지용 Feed screw의 설치.
- 분사장치에 유입되는 압축공기의 역류를 최소화하고 일정양의 pellet을 공급하여 pellet의 원활한 분사를 수행하기 위한 Air lock feeder의 설치

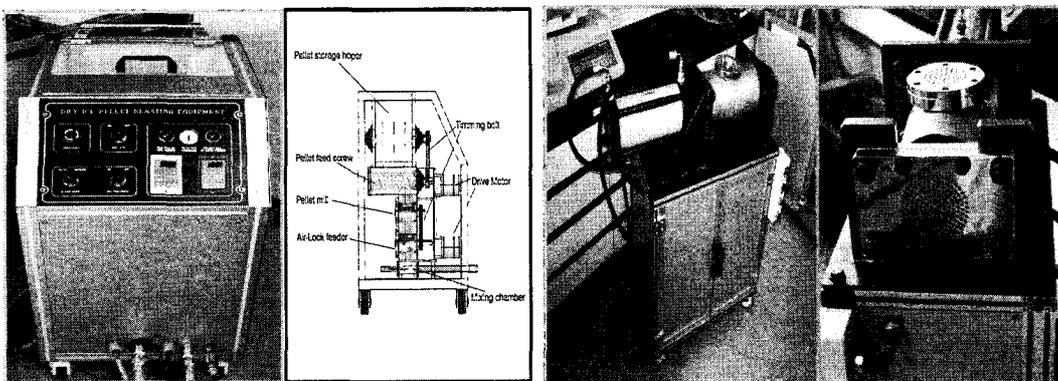


Fig. 3.1.157 Demonstration equipment of CO₂ Pellet blasting decontamination

- 분사제염 실증장치는 분사 nozzle gun 외에는 Hot cell 외부에 설치되므로, nozzle의 크기와 무게를 Toboggan을 통해 유입이 가능한 직경 100mm, 8kg 이내로 제작.

㉠ CO₂ pellet 분사 노즐 및 입자포집 head

- 분사 제염을 통해 박리되어 나오는 오염입자들을 제염과 동시에 포집이 이루어져 오염 확산을 억제와 제염효과를 증진시킬 목적으로, 입자포집 head에는 고정형 brush와 회전형의 brush를 이중으로 장착함.

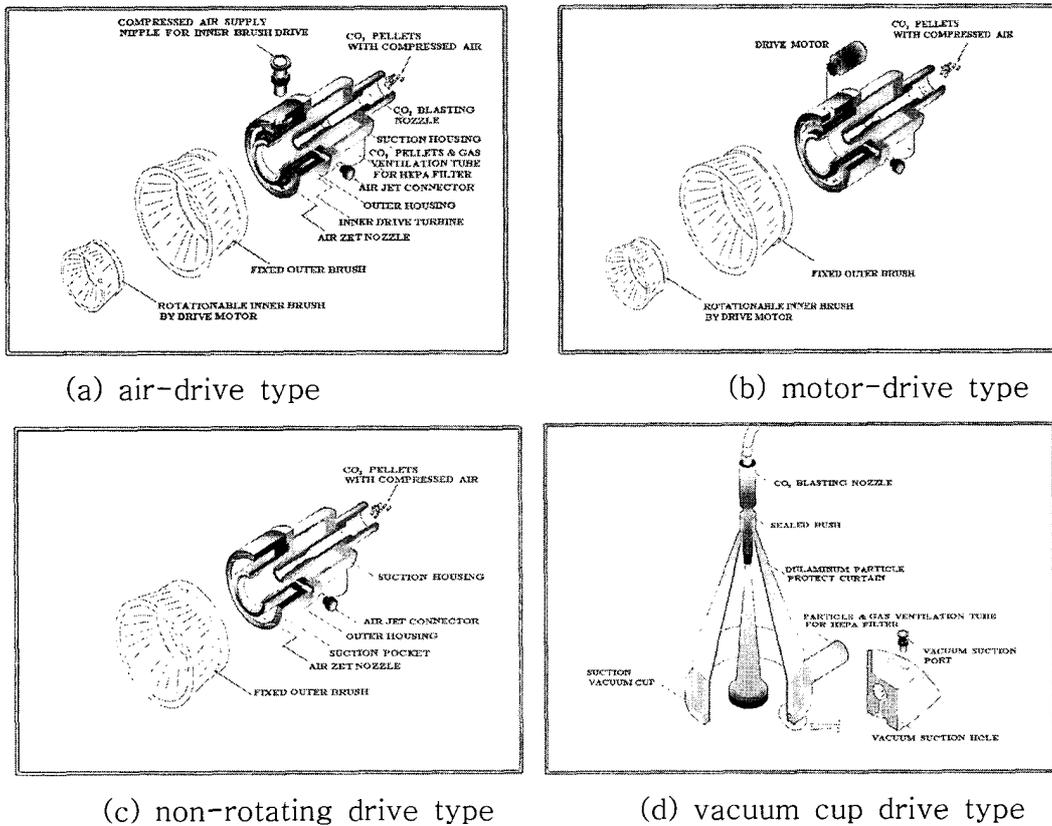


Fig. 3.1.1.58 Nozzle head for trapping particles

(나) CO₂ pellet 분사제염 단위 특성실험

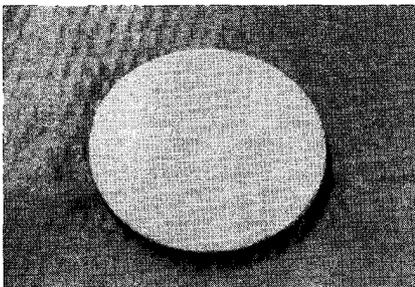
건식 CO₂ pellet 분사제염 실증장치와 분사제염 단위 특성실험을 위해 제조한 모의 오염시편을 사용하여 CO₂ pellet 건식 분사제염의 공정매개변수 변화에 따른 제염특성을 파악하였다.

① CO₂ pellet 분사제염 단위특성 실험방법

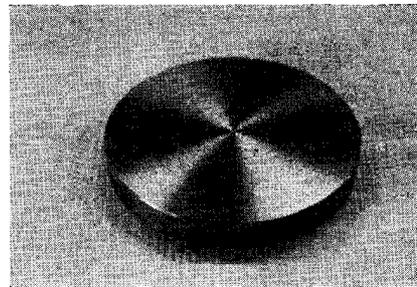
- Hot cell내의 오염을 모사할 수 있는 분진형 오염시편(SUS 304 모재에 1 μm 및 5-10 μm 크기의 Al_2O_3 입자를 도포)을 제조하였으며, 제염효과는 제염 전·후의 정밀 무게 측정과 XRF 방법에 의해 산정함.

② CO_2 pellet 분사제염 단위특성 실험결과

- 연마한 모재오염시편이 미연마 모재오염시편에 비해 효과적인 제염결과를 나타내었으며, 이는 표면이 거친 미연마 모재오염의 경우 미세한 분진오염이 표면에 잔류한 원인으로 사료됨.
- pellet 크기(5, 7mm)와 분사압력(5, 7 Kg/cm^2)에 크게 상관없이 분사거리 10cm이내에서 최소 20sec의 분사접촉에 의해 분진 오염의 99% (DF 100)이상이 제거됨.
- 오염입자 크기가 5-10 μm 오염시편이 1 μm 크기의 오염시편에 비해 제염효율이 높았고, 그 이유로는 오염입자의 오염표면에서의 결합력은 오염입자의 크기에 반비례하기 때문으로 사료됨.
- 분진오염의 경우 공정매개변수에 큰 영향 없이 높은 제염효과를 나타냄.

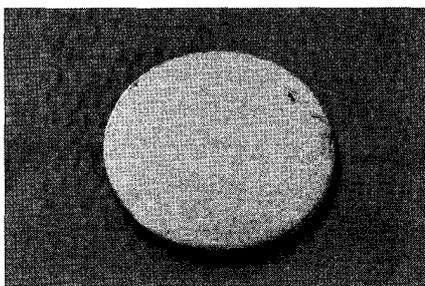


(a) 제염 전

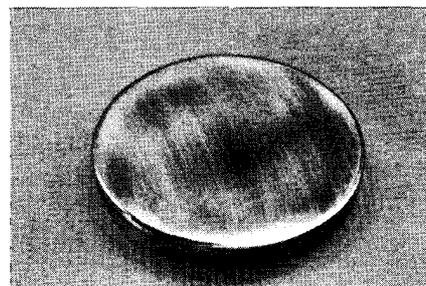


(b) 제염 후

Fig. 3.1.1.59 Al_2O_3 decontamination(non-polishing)



(a) 제염 전



(b) 제염 후

Fig. 3.1.1.60 Al_2O_3 decontamination(polishing)

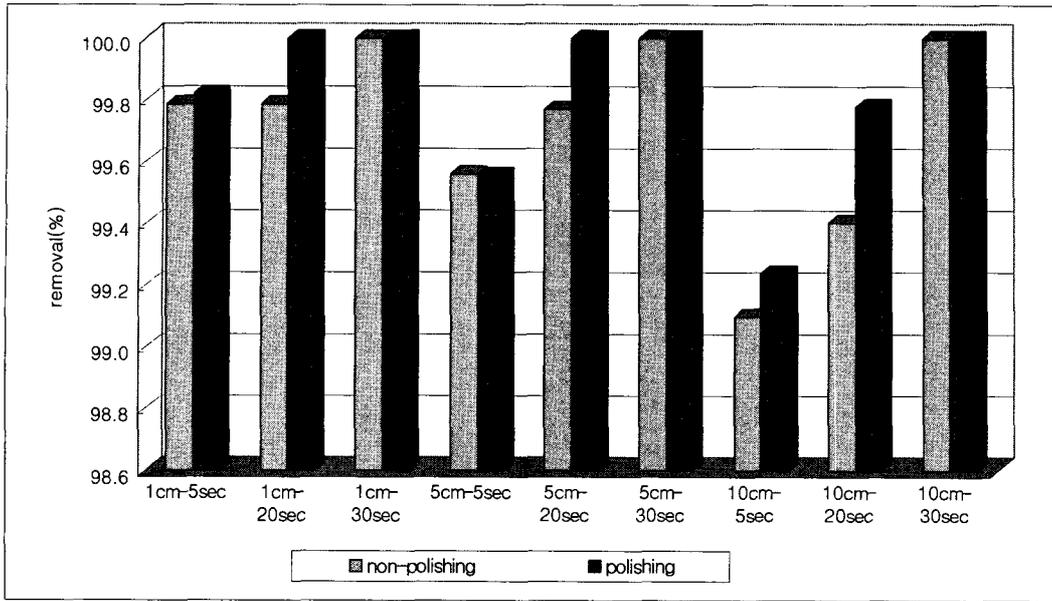


Fig. 3.1.1.61 Al₂O₃ decontamination(5mm-7Kgf/cm²)

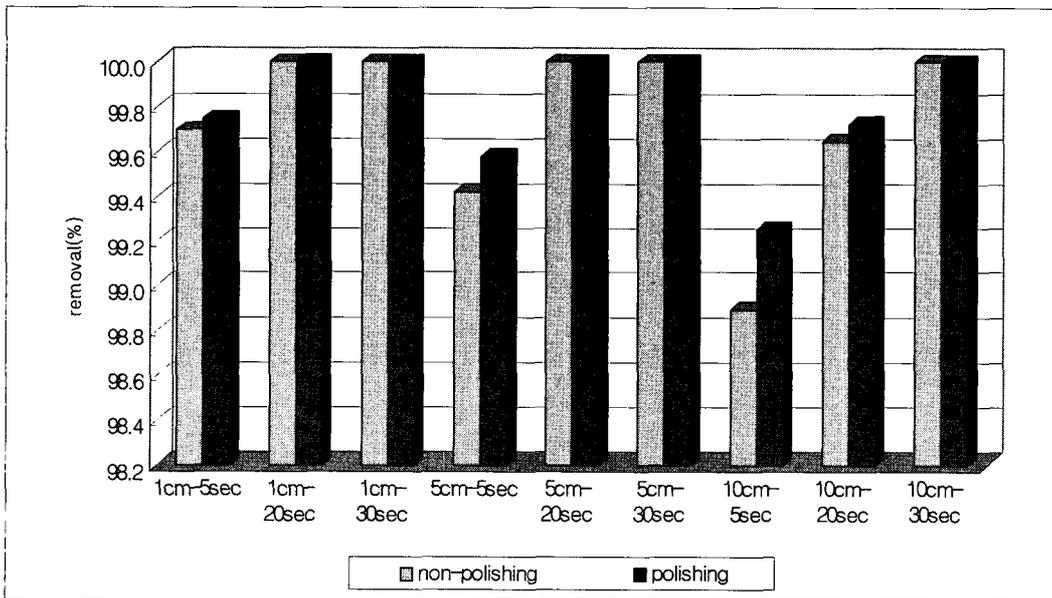


Fig. 3.1.1.62 Al₂O₃ decontamination(7mm-7Kgf/cm²)

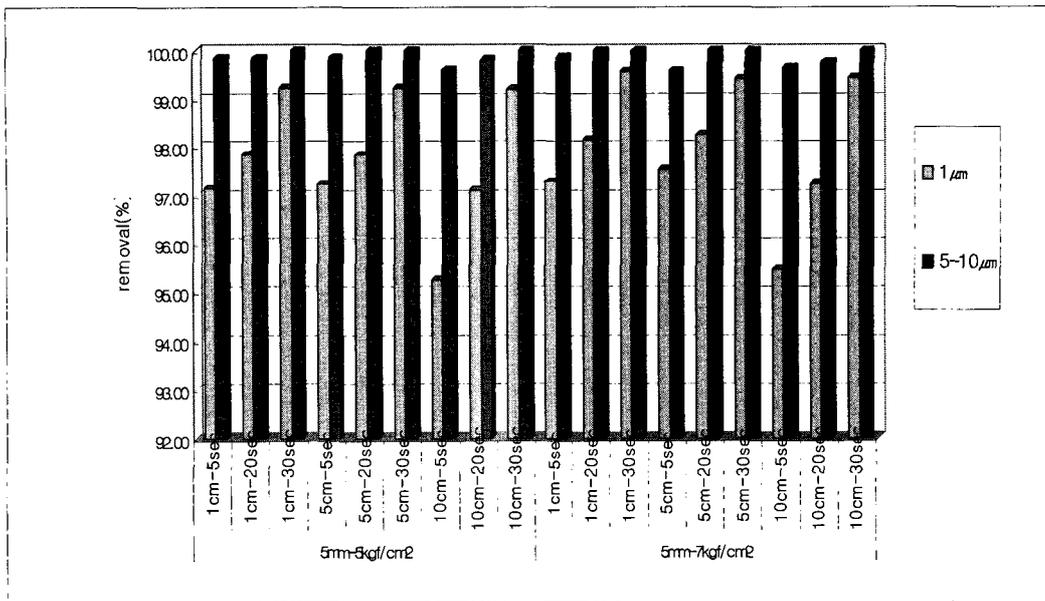


Fig. 3.1.1.63 Al₂O₃ decontamination (pellet size : 5mm)

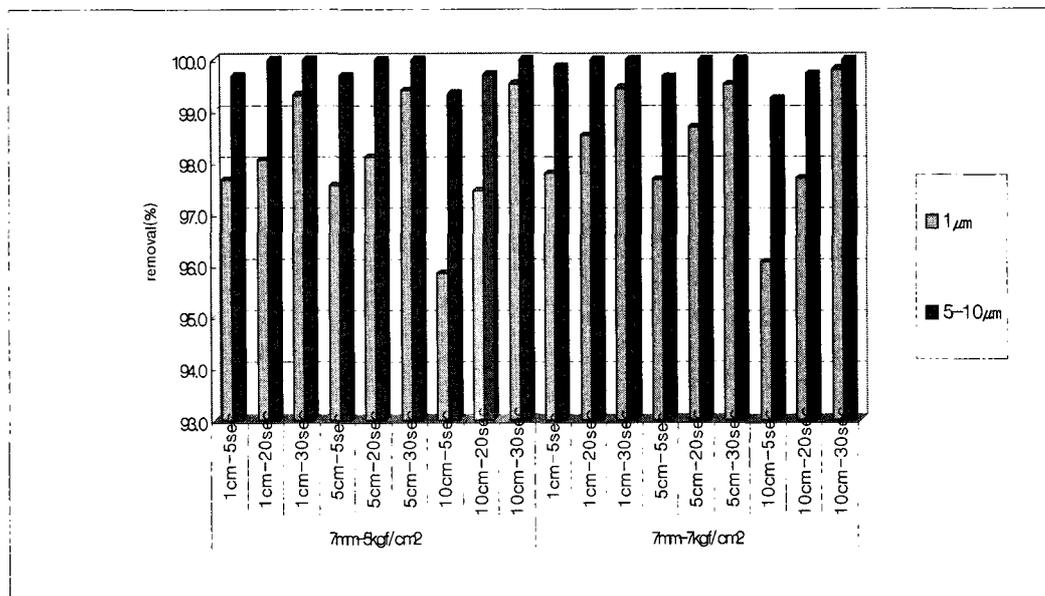


Fig. 3.1.1.64 Al₂O₃ decontamination (pellet size : 7mm)

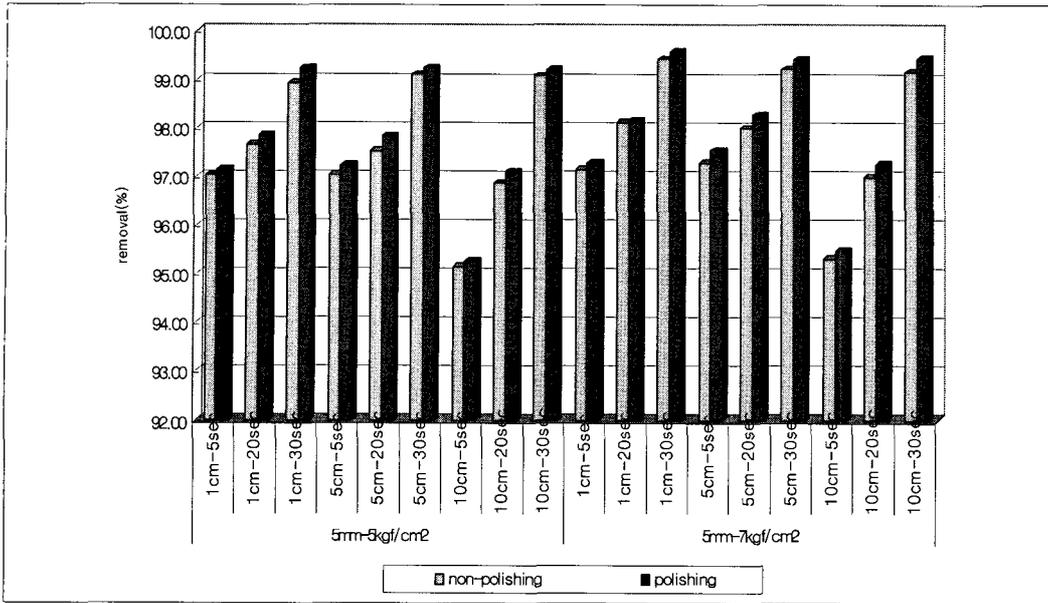


Fig. 3.1.1.65 Al₂O₃ decontamination(pellet size : 5mm)

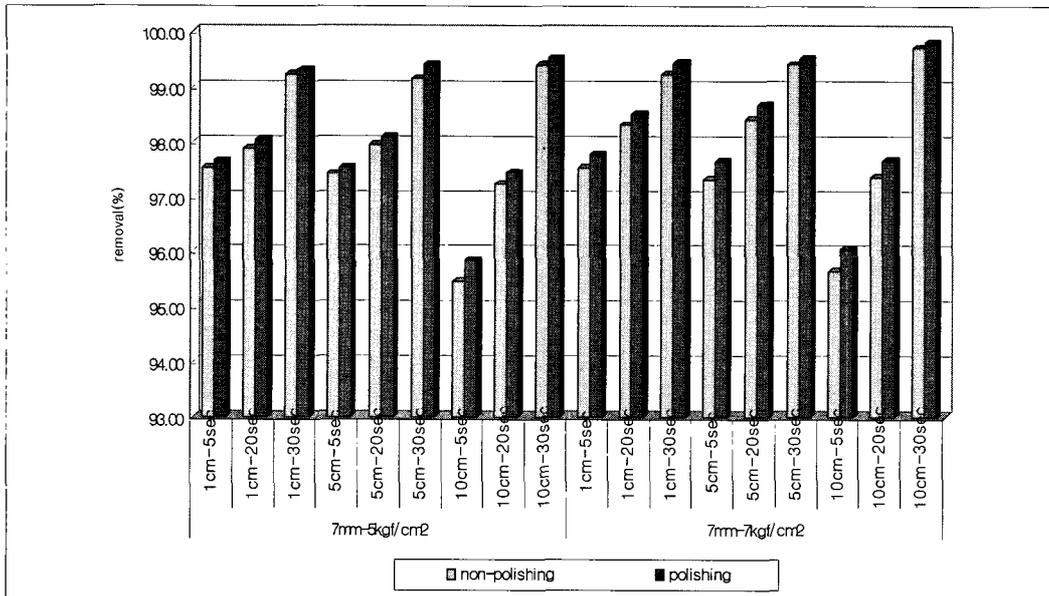


Fig. 3.1.1.66 Al₂O₃ decontamination(pellet size : 7mm)

③ CO₂ pellet parameter 변화실험 장치 제작 및 실험방법

- CO₂ Pellet 분사제염 실증장치의 제염효과 극대화 및 경제적인 장치의 설계인자를 도출하기 위해 CO₂ Pellet parameter 장치를 설계, 제작하여 변화 실험을 하였음.

- 실험방법으로는 제염성능에 영향을 미치는 물리량을 분석하였고, 실험변수로는 분사거리(1-15cm), 분사압력(3-7Kgf/cm²), CO₂ pellet의 크기(3, 5, 7mm)를 변화시키면서 제염성능을 분석하였음.
- 실험장치로는 Load Cell(시편에 작용하는 정하중 측정), Force Transducer(시편에 작용하는 동하중 측정), 프로그램으로는 National Instruments사의 Signal Express ver. 1.1로 구성되었음.

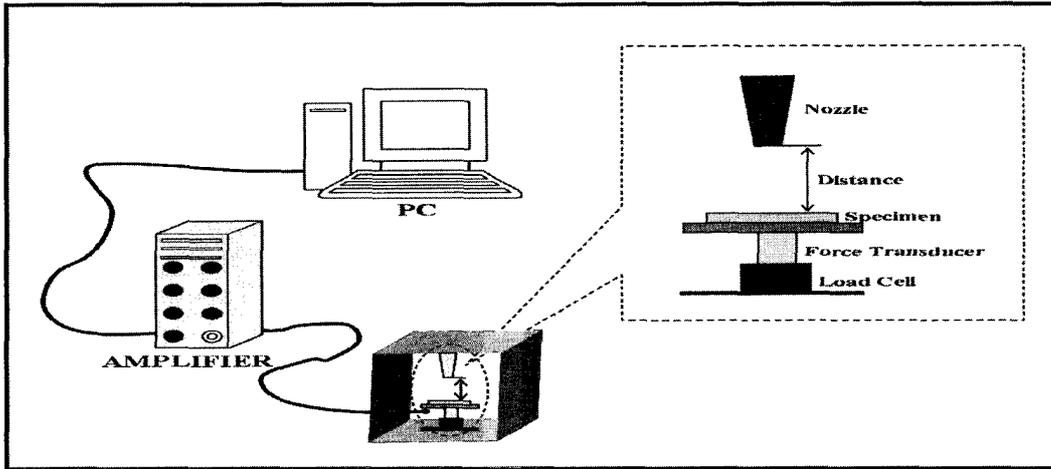


Fig. 3.1.1.67 Schematic diagram for the demonstration equipment of CO₂ pellet parameter

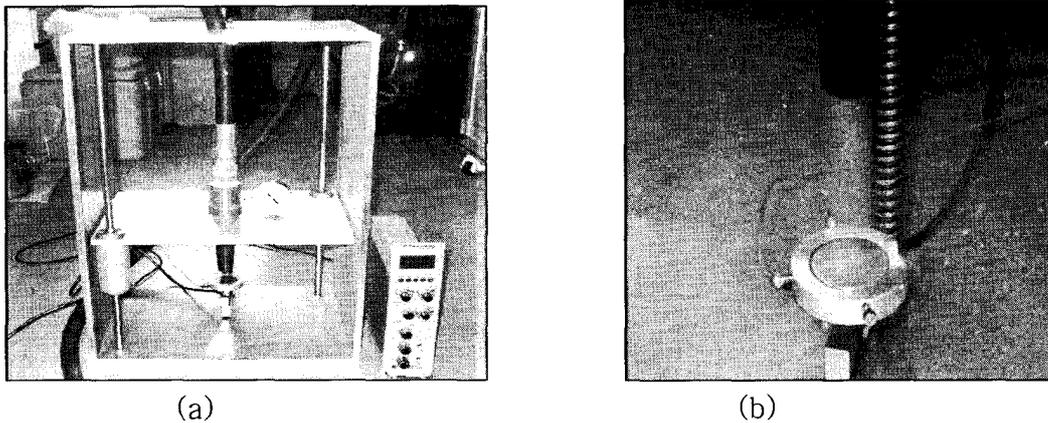


Fig. 3.1.1.68 Demonstration equipment of CO₂ pellet parameter(a) and blasting decontamination(b)

④ CO₂ pellet parameter 변화실험결과

- 분사압력이 증가하고, pellet의 크기가 커짐에 따라 Impact force는 비례하여 증가하였으며, 분사압력이 3-7Kgf/cm²에서 분사거리가 증가함에 따라

Impact force가 감소하는 경향을 나타냄

- 효과적인 분사제염을 위해서는 분사압력이 증가 할수록, 그리고 pellet의 크기는 3mm보다는 7mm가 효과적이며, 분사거리가 최소 10cm 이상의 분사거리에서 분사 거리가 가까울수록 제염효과는 증가함.

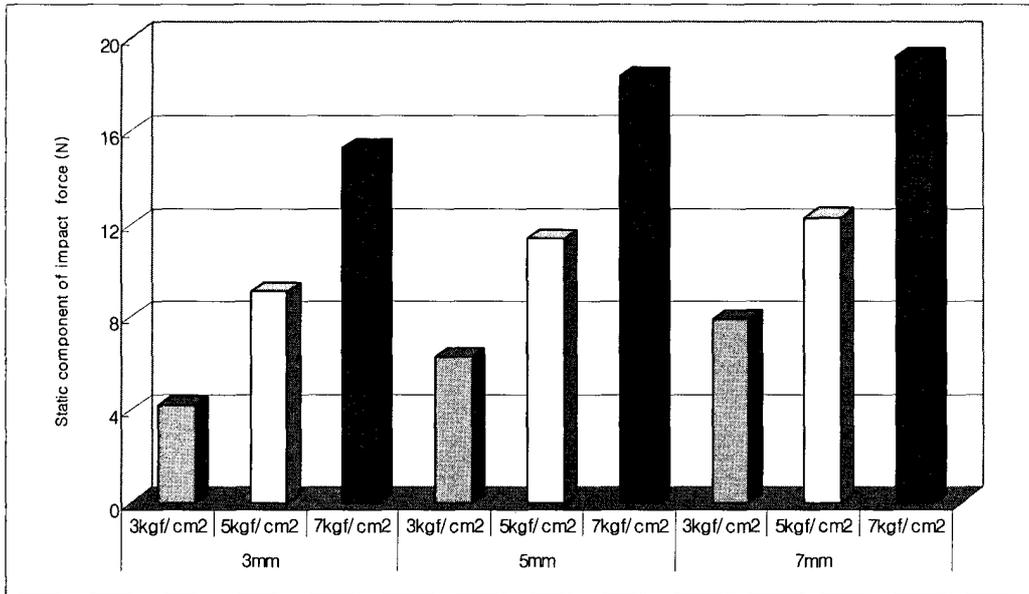


Fig. 3.1.1.69 The effect of pellet size on the static component of the impact force

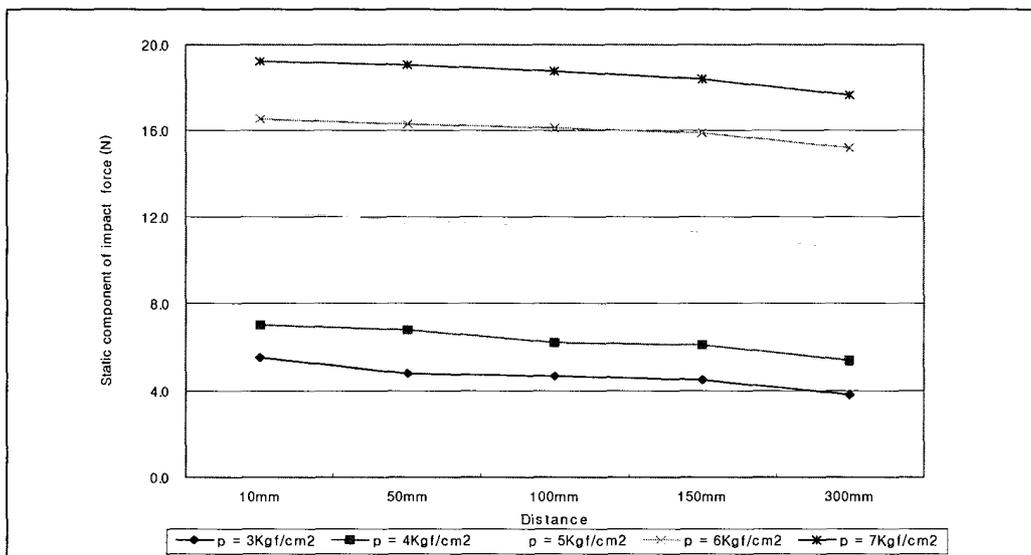


Fig. 3.1.1.70 The effect of working distance on the static component of the impact force

(다) CO₂ pellet 분사제염 cold 실증시험

IMEF Hot cell에서의 Hot 제염기술 실증 전에, Hot cell 현장 적용성과 제염성 및 제염장치의 개선점 등을 평가하기 위해 고화체 검사시험시설의 Hot cell에서 건식 CO₂ pellet 분사제염 실증장치와 Surrogate시편을 사용하여 CO₂ Pellet 건식분사제염 Cold 제염실증을 수행함.

① Cold 제염실증 시험방법

- 0.7ml Co-60 방사능 용액과 동량의 Cs-137 용액을 알코올 100ml에 혼합한 후, 이를 분진형 오염물로 거동특성이 유사한 Eu₂O₃ powder와 혼합하여 3일간 방치한 다음 고액 분리하여 침전액을 취하여 모의시편인 SUS 304 금속시편에 도포하여 실증 Surrogate시편으로 사용.
- 분사압력을 5Kg/cm²로 고정하고 분사시간(10sec-60sec)을 변화시켜, 시편의 연마여부에 따라 smooth 시편과 scratch 시편으로 나누어 제염실험을 행한 후, 제염전후의 시편 표면에 대한 광학적 관찰과 MCA에 분석에 의한 방사능 농도를 측정하여 제염계수를 산출함.

② Cold 제염실증 시험결과

- 평면오염시편의 경우, 분사시간에 따라 제염효과가 증가하여 60sec에서의 제염계수는 100이상(미연마오염 DF=110, 연마오염 DF=130)을 나타냄.
- 동일분사제염조건에서(5Kg/cm², 60sec) 제염계수의 크기 : 연마평면오염 (DF=130)> 연마 평면오염(DF=110)> 0.1mm 흠집오염(DF=60)> 0.2mm 흠집오염(DF=45)을 나타냄.

Table 3.1.1.5 Results of the demonstration for CO₂ pellet Cold decontamination

오염시편 종류	제염 전(Bq/1000cm ²)		제염 후(Bq/1000cm ²)		DF
	Cs-137	Co-60	Cs-137	Co-60	
A	425.9	684.3	6.8	12.7	56.9
B	305.8	554.0	3.8	8.1	72.3
C	227.4	456.2	2.3	5.6	86.5
D	292.5	679.7	2.4	6.2	113.0
E	175.2	447.8	2.2	7.5	64.2

Table 3.1.1.6 Results of the demonstration for CO₂ pellet Cold decontamination(continued)

오염시편 종류	제염 전(Bq/1000cm ²)		제염 후(Bq/1000cm ²)		DF
	Cs-137	Co-60	Cs-137	Co-60	
F	244.3	532.1	2.7	6.0	89.2
G	224.6	509.8	1.9	5.1	104.9
H	336.7	667.2	2.3	5.5	128.7
I	732.2	1064.7	10.6	18.1	62.6
J	530.0	607.8	10.8	14.3	45.3

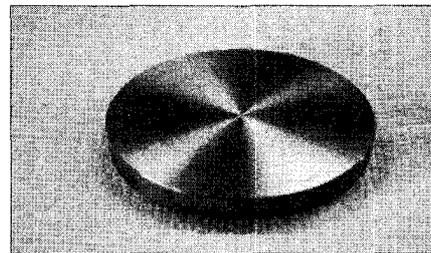
※ 오염시편

A : N-polishing 분사시간 10sec
 B : N-polishing 분사시간 20sec
 C : N-polishing 분사시간 30sec
 D : N-polishing 분사시간 60sec
 E : Polishing 분사시간 10sec

F : Polishing 분사시간 20sec
 G : Polishing 분사시간 30sec
 H : Polishing 분사시간 60sec
 I : 0.1mm 깊이의 스크래치 된 시편
 J : 0.2mm 깊이의 스크래치 된 시편

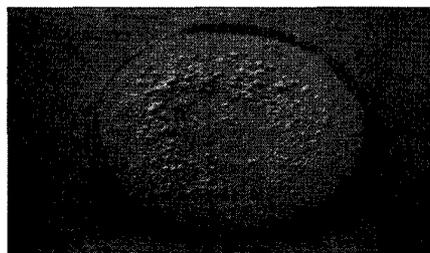


(a) 제염 전

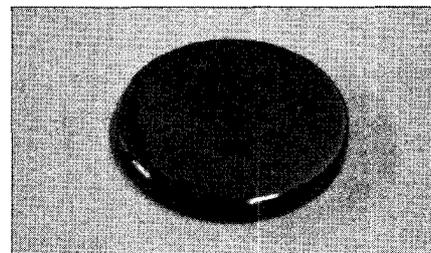


(b) 제염 후

Fig. 3.1.1.71 Result of the demonstration test of Cold decontamination(Non-polishing)

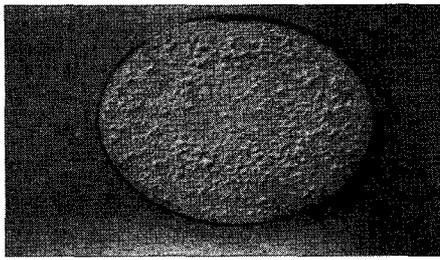


(a) 제염 전

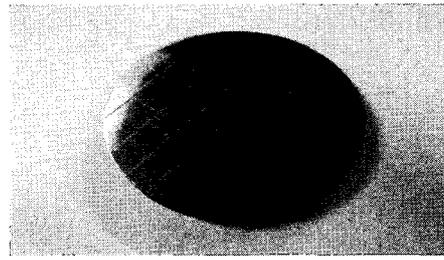


(b) 제염 후

Fig. 3.1.1.72 Result of the demonstration test of Cold decontamination(polishing)

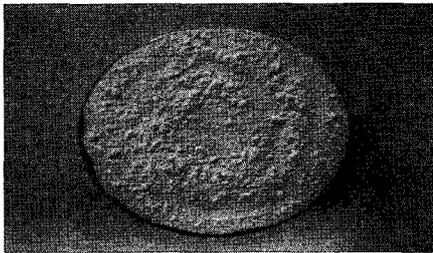


(a) 제염 전

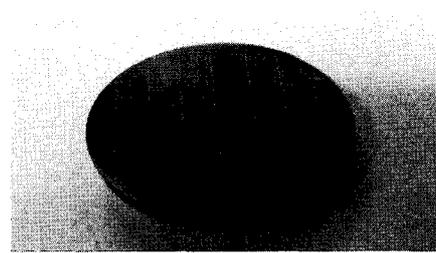


(b) 제염 후

Fig. 3.1.1.73 Result of the demonstration test of Cold decontamination (scratch-0.1mm)



(a) 제염 전



(b) 제염 후

Fig. 3.1.1.74 Result of the demonstration test of Cold decontamination (scratch-0.2mm)

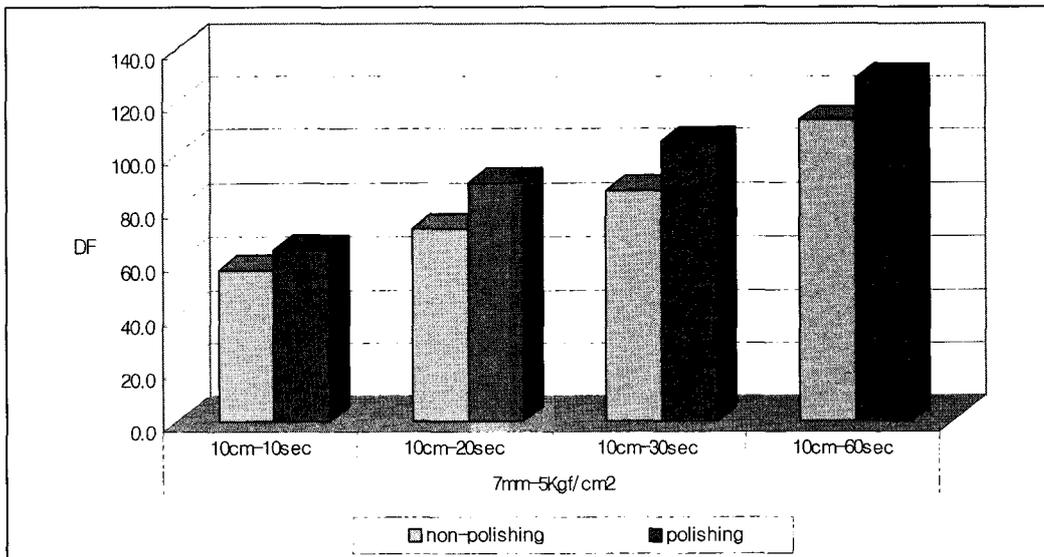


Fig. 3.1.1.75 Result of the demonstration test of Cold decontamination (change of the decontamination versus blasting time)

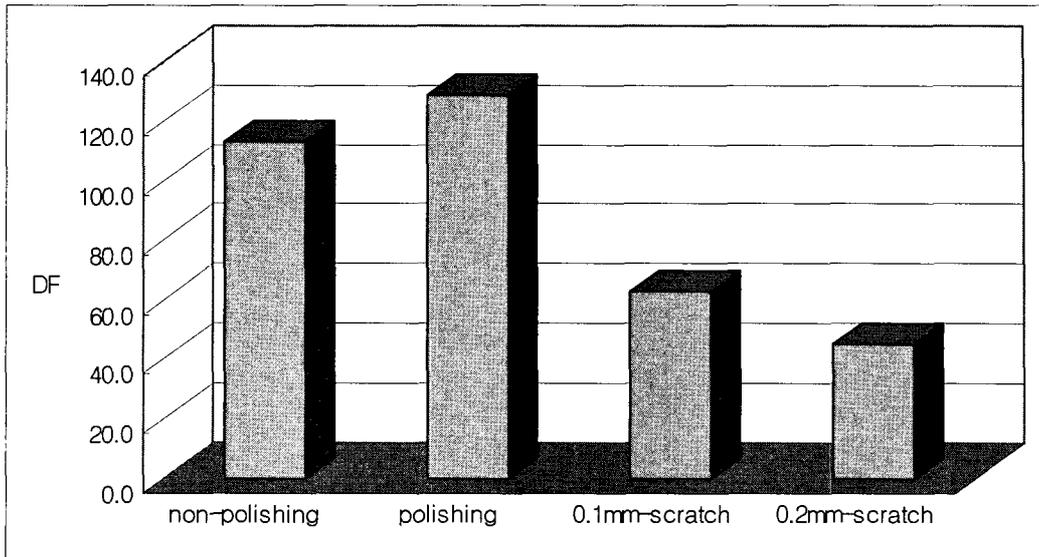
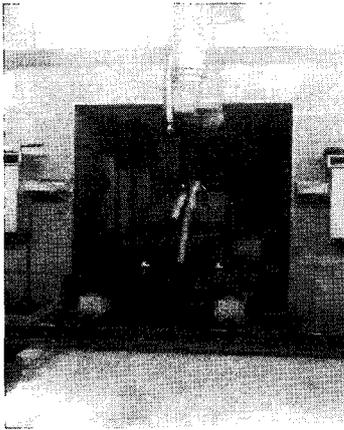
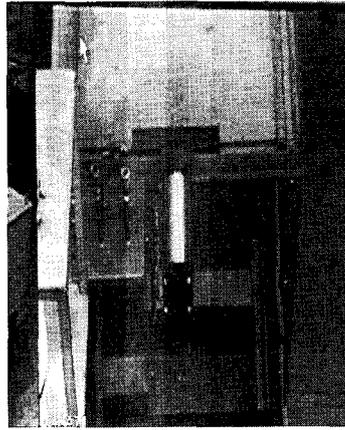


Fig. 3.1.1.76 Result of the demonstration test of Cold decontamination(smooth and scratch specimens)



(a) CO₂ pellet
분사제염 실증장치 투입



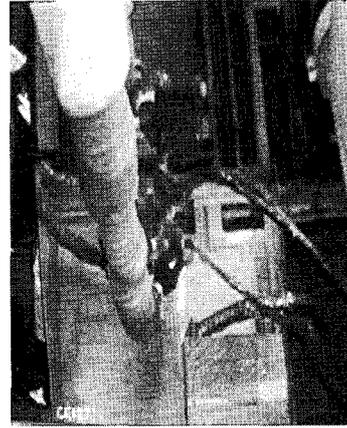
(b) 실증장치 가압공기
연결부



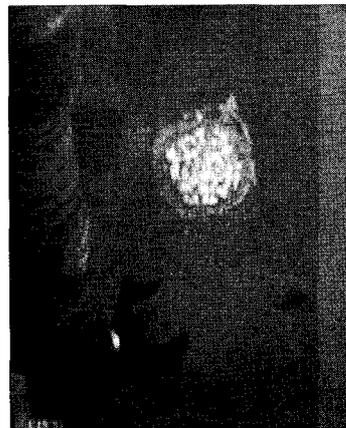
(c) CO₂ pellet
분사제염 실증장치와
가압공기 시설과 연결



(d) cold 실증시험



(e) cold 실증시험
(suction unit system)



(f) cold 실증시험(suction unit system) 제염전과 제염

Fig. 3.1.1.77 Demonstration test of Cold decontamination

③ 제염성, 현장 적용성 및 장치개선평가

- 오염표면 특성(모재의 표면 조도차: 연마여부, 평면 및 흠집표면)에 따른 제염결과, 평면오염의 경우 99% 이상의 제거율을 나타내었으며, 흠집표면 오염의 경우에도 약 98% 제거효과를 나타내어 효과적인 제염성능을 보임.
- 고화체 검사시설 Hot cell내 utility(전기, 가압공기 line)의 제염실증장치와의 연결, in-cell crane과 manipulator 등을 사용한 제염실증장치의 조작 등에 있어, 가압공기 누출 없이 체결부위의 건전성을 확인할 수 있었으며, manipulator의 작동범위를 고려한 제염실증장치의 설치위치 선택으로 nozzle head의 lifting조작과 nozzle gun switch 조작 등을 원활히 수행하는 등 현장 적용성을 확인할 수 있었음.
- 다만, CO₂ pellet 분사부위의 수두압을 고려한 CO₂ Pellet 분사제염 실증장치의 설치 고도의 선택과, CO₂ pellet 내 습분으로 인해 발생할 수 있는 CO₂ pellet의 합체에 의한 분사장해는 Feed screw 부위의 동결예방을 위한 제작재질의 교체 등이 필요하며, manipulator의 원활한 작업을 위해 체결부위의 quick connection 설치 등이 개선해야 할 점으로 평가됨.

(3) 고방사능 건식제염기술 실증시험

(가) Hot cell CO₂ pellet 건식제염 실증장치 보완 및 성능시험

① IMEF Hot cell 적용을 위한 분사제염 실증장치 시스템

㉠ 실증장치 시스템

- 구조 : Hopper + 분사 unit+오염 포집 unit
- 분사 압력 : 3~9Kg/cm²
- 공기 소모량 : 3~11m³/min
- 호퍼 용량 : 15kg(최대)
- pellet 소비량 : 1.2kg/min

㉡ 개선사항

- pellet 입자공급 속도조절 : Feed Screw와 pellet mill, air lock feeder 개별 motor 채용, 속도조절 용이
- 오염 포집 및 처리방법 : Vacuum type의 오염포집 head로 오염물질 포집

후 Hot particulate 장치와 연결하여 처리

- manipulator의 원활한 작업을 위해 체결부위의 quick connection 설치
- 분사호스 : 직경(2/1인치), 길이(현재4.5m →10m 연장), 재질(현재 내부 : 테프론, 외부 : robber → 고방사능용 재질로 교체)

② CO₂ 분사제염 Hot 실증시험 장치(고화체 검사시설 Hot cell 이용)



(a) CO₂ 분사제염장치



(b) 시설 내 장치 투입



(c) 분사노즐과 vacuum cup



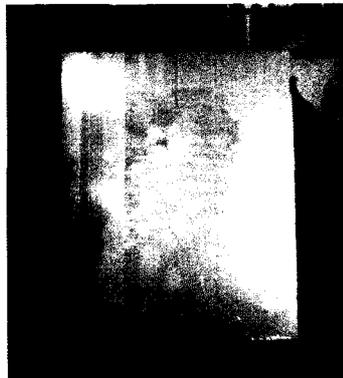
(d) 분사노즐과 vacuum cup 연결



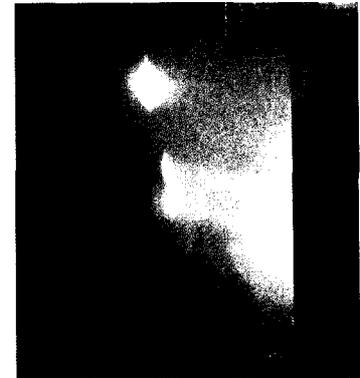
(e) 분사노즐과 vacuum cup 장착



(f) CO₂ 분사제염



(g) 분사 제염 전



(h) 분사제염 후

Fig. 3.1.1.78 Demonstration test of Hot cell decontamination(the inspection facility of the hardening material)

- 실증시험 결과, hot cell 내에서 분사장치와 vacuum cup의 manipulator에 의한 탈, 부착이 용이함을 확인
- CO₂ pellet이 지속적으로 분사가 이루어짐을 확인.
- 분사제염후 박리된 오염물질이 vacuum cup에 의한 진공의 우수성으로 오염 물질이 외부로 누출되지 않고 suction unit으로 포집됨.
- CO₂ pellet의 우수한 제염효과 확인.

③ CO₂ 분사제염 Hot 실증시험 장치(IMEF시설 Hot cell 이용)

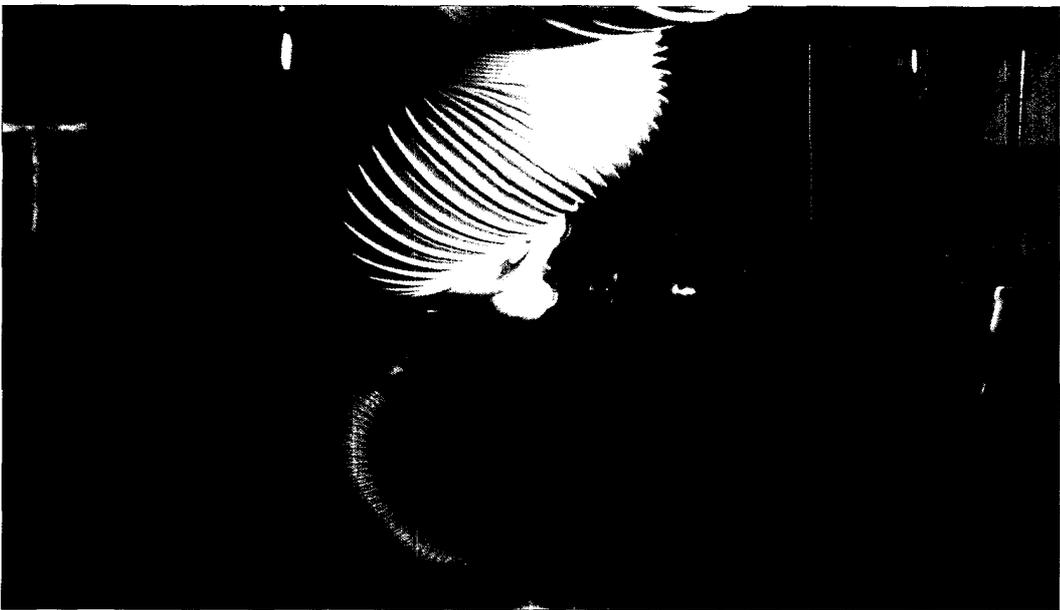


Fig. 3.1.1.79 Demonstration test of Hot cell decontamination(IMEF facility)

④ CO₂ 분사제염장치 제염 및 제염대상, 방사능 측정방법

㉠ 분사제염 방법

- Shielding Window를 통해 Master-Slave Manipulator를 이용하여 CO₂ pellet을 분사와 동시에 제염된 오염물질을 포집

㉡ 분사제염 설치 장소 및 필요한 utility

- In cell : 분사호스, Nozzle head부
- Out cell : CO₂ 분사장치, 분사호스

- 분사장치 가동을 위한 전기시설
- 분사장치에 air 공급하기 위한 air line

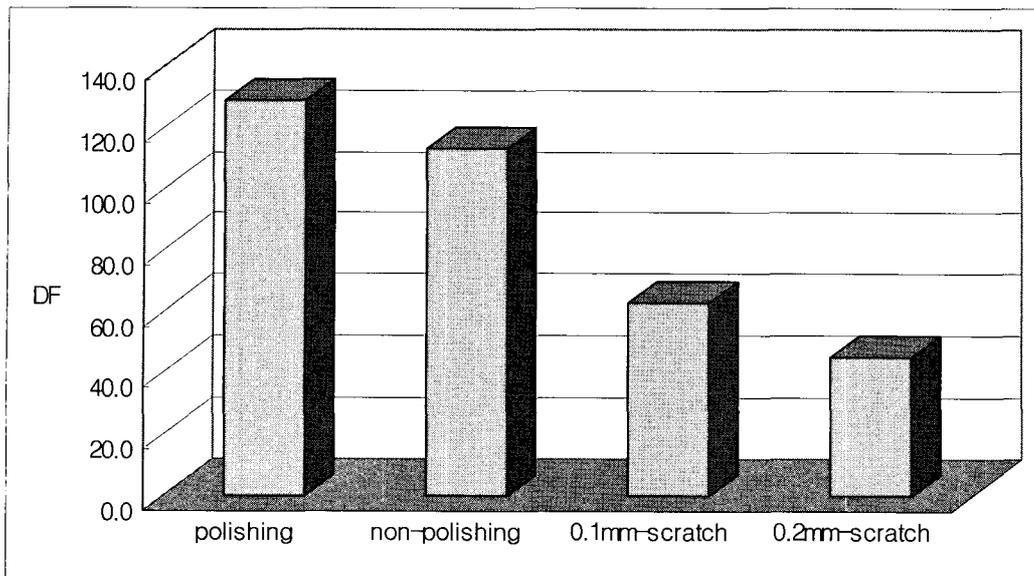
㉔ 제염대상 : IMEF 시설의 M4내 벽과 바닥을 중심으로 제염

㉕ 방사능 측정방법 : 제염결과를 측정하기 위해 방사능 측정방법으로 Smear법

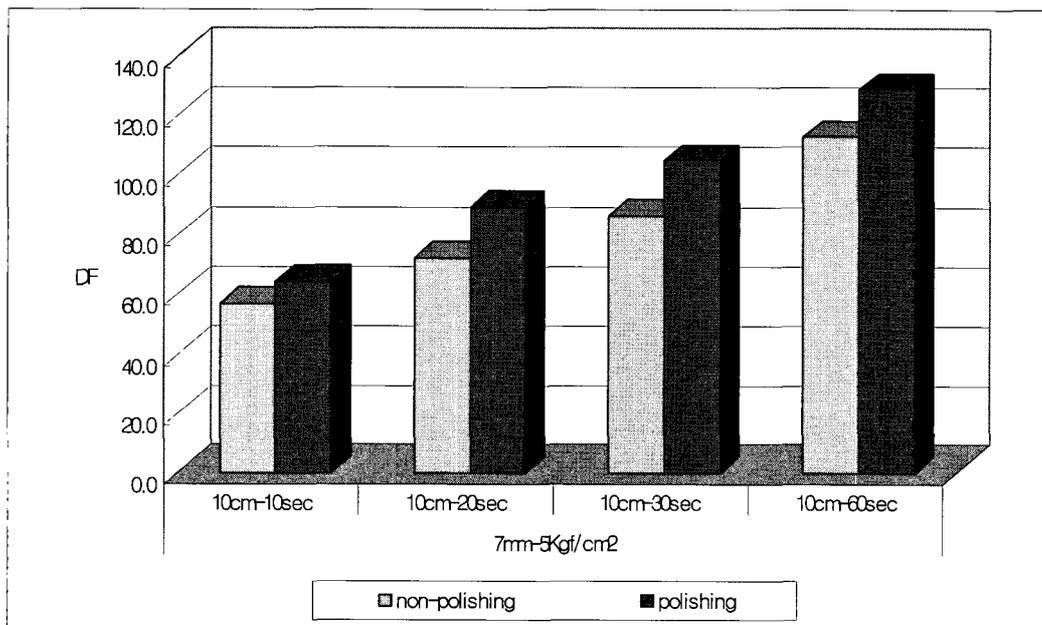
(나) CO₂ pellet 건식현장 제염 hot cell 기술실증 평가

① 분사제염 실증장치 성능시험

- 시험결과, 분사시간의 증가에 따라 제염효과가 증가하여 제염계수는 30이상(미연마오염 DF=35, 연마오염 DF=50)을 나타내었고, 동일 분사제염조건에서(5Kgf/cm², 60sec) 제염계수의 크기는 연마평면오염(DF=50)>미연마 평면오염(DF=35)>0.1mm 흡집오염(DF=32)>0.2mm 흡집오염(DF=30)을 나타냄으로서, 대체적으로 효과적인 제염결과를 나타냄.



A



B

Fig. 3.1.1.80 Result of the demonstration test of decontamination(A: change of blasting time B: change of specimens)

Table 3.1.1.7 Results of the hot demonstration test for CO₂ pellet blasting decontamination

오염종류	제염 전(Bq/1000cm ²)	제염 후(Bq/1000cm ²)	DF
A-1	79	1	79
A-2	110	2	55
A-3	100	1	100
A-4	128	2	64
B-1	77	1	77
B-2	106	2	53
B-3	99	1	99
B-4	126	2	63
C-1	89	1	89
C-2	118	2	59
C-3	108	1	108
C-4	140	2	70
D-1	67	1	67
D-2	96	2	48
D-3	87	1	87
D-4	119	2	59.5

※ 오염시편 종류

A-1 : CS 5sec-5cm

A-2 : CS 5sec-15cm

A-3 : CS 20sec-5cm

A-2 : CS 20sec-15cm

B-1 : SUS 5sec-5cm

B-2 : SUS 5sec-15cm

B-3: SUS 20sec-5cm

C-1 : Plastics 5sec-5c

C-2 : Plastics 5sec-15c

C-3 : Plastics 20sec-5c

C-4 : Plastics 20sec-15

D-1 : Woods 5sec-5c

D-2 : Woods 5sec-15cm

D-3 : Woods 20sec-5cm

B-4: SUS 20sec-15cm

D-4 : Woods 20sec-15cm

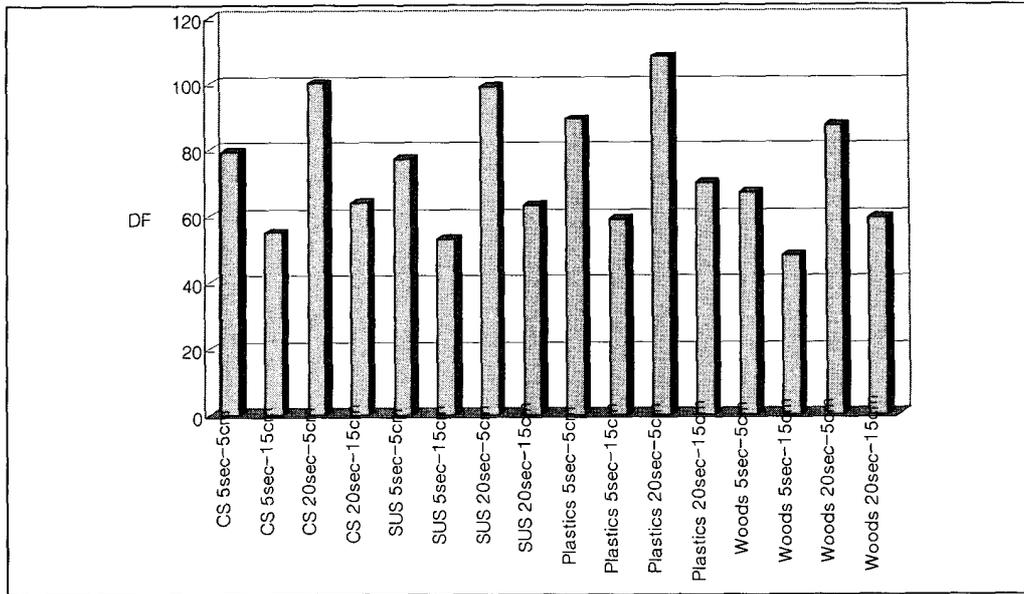


Fig. 3.1.1.81 Result of the demonstration test in CO₂ pellet blasting decontamination

- 또한, 우라늄 변환시설 내에서 발생한 방사성오염 시편을 이용하여 hot 실증시험 실험을 수행하였는데, 우라늄 변환시설 내에서 발생한 여러 가지 오염물질 중 가장 많이 발생하고 대표적인 물질에 해당되는 오염시편으로 금속시편(Carbon steel, SUS), 플라스틱류, 그리고 목재류를 이용하여 실험을 수행하였음.
- 실험조건으로는 분사압력 5Kgf/cm²이고, 분사시간은 5sec, 20sec이며, 분사거리는 작업거리를 고려하여 5cm, 15cm로 설정하여 실험을 수행하였음.
- 시험결과, 금속물질인 CS 오염시편의 경우 제염계수는 최소 55 이상(20sec-15cm 조건: DF-100)을 나타내었고, SUS 오염시편도 제염계수 최소 53 이상(20sec-15cm 조건: DF-99)을 나타내었으며, 금속시편의 경우 CS이나, SUS의 경우 큰 차이없이 비슷한 제염결과를 나타내었음. 플라스틱류인 경우 제염계수 최소 59이상(20sec-15cm 조건: DF-108)으로 다른 방사성 오염시편에 비해 제염효율이 약간 높게 나타났음. 그리고, 목재류의 경우 다른 오염시편에 비해 제염결과가 약간 낮았는데, 제염계수는 최소 48(20sec-15cm 조건 : DF- 87)이상을 나타내었음. 제염결과를 전체적으로 살펴보면, 제염시간은 증가할수록, 제염거리는 가까울수록 제염효율이 높았음을 알 수 있었고, DF가 약 50 이상으로 방사성으로 오염된 시편도 CO₂ 분사제염을 이용한 제염법의 제염효율이 우수함을 알 수 있

었으며, 추후 다른 원자력시설이나, 장비, 기타 시설 등을 제염하기 위한 방법으로 활용한 만한 가치가 있는 것으로 판단됨.

② 분사제염 실증결과 평가

- 실증시험 결과, 오염표면 특성(모재의 표면 조도차 : 연마여부, 평면 및 흡집표면)에 큰 영향없이 효과적인 제염 성능을 보임.
- Hot cell내 분사장치와 vacuum cup의 manipulator에 의한 탈, 장착이용
- manipulator의 작동범위를 고려한 제염실증장치의 설치위치 선택으로 nozzle head의 lifting조작과 nozzle gun switch 조작 등을 원활히 수행하는 등 현장 적용성을 확인할 수 있었음.
- 분사 제염후 제염에 의해 박리된 오염물질은 노즐헤드의 우수한 진공 성능에 의해 오염포집 unit으로 포집이 성공적으로 이루어졌고, 또한, hot cell내에서도 CO₂ pellet에 의한 우수한 제염효과를 확인할 수 있었음.
- 또한, 분사제염 실증시험결과를 토대로, 분사제염에 대한 운전변수 최적화 및 제염특성(제염성능, 잔류 오염도, 재오염 특성, 제염 폐기물 처리 방법 등)을 파악하였으며, 다른 제염방법과 적용대상, 적용범위, 제염효율 비교해 보았을 때, 경제성 평가면에서도 우수한 제염방법임을 확인할 수 있었음. 추후 보다 자세한 경제성 평가를 위해서는 제염기술 원단위 성능 및 비용 평가(성능(시간/m²) : 제염대상별(재질, 오염특성, DF, 여건), Cost(원/m²) : 인건비, 재료비(동력비 포함), 장치비(장치 사용료))등이 이루어져야 할 것으로 판단됨.

다. 결 문

(1) CO₂ 분사제염 단위공정 변수

환경 친화적인 고체 CO₂분사제염의 거리, 시간, 분사 속도 등 제염공정 변수에 대한 제염특성을 실험하였으며 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 분사거리는 nozzle의 설계에 따라 결정되어지며, 이번에 사용한 일반적으로 많이 이용하는 벤츄리형의 nozzle의 경우 효율적으로 오염물질을 제거하기 위한 최적의 분사거리는 금속표면으로부터 10cm이하라는 것을 알 수 있었다. nozzle 출구

에서 분사되어 금속표면에 영향을 미치는 jet core의 범위가 있는데 그 이상이 되면 제거가 잘 이루어지지 않는 것을 알 수 있었다. 비교적 오염물질의 결합력이 작은 분진형 오염의 경우는 10cm 이상에서 좋은 제거효율이 나왔지만 비교적 결합력이 있는 오일의 경우 분사거리가 증가함에 따라 제염효율이 감소하는 것을 알 수 있었다. 앞에 결과로 볼 때, 일반적인 먼지나, 분진에 의한 오염물질, oil형 오염물질에서도 효율적인 제염이 이루어지는 것을 알 수 있었다.

- 분사압력이 증가할수록 nozzle 출구에서의 분사속도가 증가하였다. 분사속도를 증가 시킬수록 오염물질의 제거율이 증가하였는데, 그 이유로 고체 CO₂를 이용한 제염의 원리 중의 하나인 kinetic energy가 증가하여 오염물질에 전달되는 에너지가 증가하여 제거율이 증가된 것이다.
- 금속 표면손상은 nozzle에서의 분사속도 82~136m/s의 전 범위에서 일어났으며, 전반적으로 분사시간과 분사속도가 증가할수록 거칠기 값(Ra)이 증가 하는 것을 알 수 있었다. 그러나 전체적으로 거칠기 값이 1 μ m이하로 아주 적은 거칠기 값을 나타내어 도장하는데 도료와 금속간의 부착력을 감소시키지 않는 수준임을 알 수 있었다.
- 분진형 오염의 경우 30s의 분사시간이면 충분한 제거가 이루어졌고, oil형의 경우 60s 이상의 분사시간이 주어지면, 오염물질에 대한 제염이 효율적으로 이루어지는 것을 알 수 있었다.
- 최적의 공정변수의 조건은 분사속도가 136m/s이고 분사거리는 5cm이고, 분사시간은 오염물질에 따라 달라지는 것을 알 수 있었으나, 대체로 분사시간이 증가함에 제염효율이 높아지는 경향을 나타내었다. 이러한 최적의 조건을 가지고 부식에 의해 오염된 저탄소강의 시편에 분사하였을 때 산화물인 FeO, Fe₃O₄, Fe₂O₃는 부분적으로 제거가 되었으며, 수산화물인 Fe(OH)₂ 즉, 녹은 거의 제거가 된 것을 알 수 있었다. 그러나 고착화된 오염물의 경우 제염의 한계가 있음을 알 수 있었다. 그 이유는 CO₂ Pellet 입자들이 가지고 있는 kinetic energy가 고착화 된 오염입자들이 표면과 붙어 있는 결합력보다 작거나 비슷해서 부분적으로 제거가 되거나 제거가 되지 않는 것이다.

2. PFC 제염기술 개발

가. 서문

국내 고 방사능 시설에 사용되는 설비나 장치는 취급하는 사용후 핵연료 및 시설 내 설비들의 운전 이력 등에 따라 그 오염 특성이 변화될 수 있다, 그러므로 이들에 맞는 제염공정을 개발하기 위해서는 각각의 공정 및 시설별 제염대상물에 대한 오염특성을 파악하여야 한다. 고 방사능 오염 대상물에 대한 분석에 따르면 DUPIC 핵연료 제조공정 실험을 위한 hot cell, 사용후 핵연료 차세대 관리공정의 흐름도에 포함되는 단위공정 시설과 장비, 운전폐기물 외에도 PIEF 및 IMEF 시설 내부가 가능한 오염대상물로 나타났다[3.1.2.1]. 이들은 대부분 사용후 핵연료를 고온에서 산화환원에 의한 분말을 취급하거나 중성자 조사된 재료들을 취급하는 시설들이므로 사용후 핵연료 취급과정 중에 발생하는 TRU 원소 및 핵분열 생성물에 의한 미세 입자가 시설표면에 느슨하게 물리적으로 부착되었으며, 일부 물리적으로 제거하기 어려운 화학적 결합형태도 존재할 것으로 판단된다.

고방사능 시설 및 설비를 제염하기 위해서는 제염제가 오염물을 잘 제거하여야 할 뿐만 아니라 제염 후 발생하는 2차 폐기물의 양이 적어야 하며 제염제가 인체에 무해하여야 한다. 특히, 프레온과 같이 오존층을 파괴하는 물질은 제염제로서 사용될 수 없으며 제염제 자체가 고준위 방사능에 안정하여야 한다. R. Kaiser[3.1.2.2-3.1.2.3] 등은 이러한 조건을 만족시킬 수 있는 제염제로서 10 Mrad의 조사선량에도 분해되지 않고, 계면활성제를 첨가함에 의해 제염효과를 높이며 분자량이 큰 PFC 계통의 물질을 제시하였다.

PFC는 일반산업의 알루미늄 생산에 사용되어져 왔으며 현재는 플라즈마 식각(plasma etching) 혹은 화학증기 증착공정(chemical vapor deposition process)과 같은 반도체 제조공정 및 의학 분야에 이용되고 있다[3.1.2.4-3.1.2.6].

초음파를 이용하여 오염물질을 제거하는 방법은 세정공정 분야에서 광범위 하게 연구되어져 왔다. 오염물을 제거하는 방법 중에서 초음파 제염공정의 주요 이점은 고품질 세정이 가능하고 수동 작업을 대체할 수 있으며 유해 용매의 제거가 가능하다는 것이다. 초음파 제염공정에 있어서 표면 오염막의 파괴에는 cavitation이 중요한 것으로 알려져 있다. Cavitation 기포가 매질을 때림에 의해 발생하는 충격파가 오염 표면의 막에 미세 충돌하게 되며 그 결과 오염막이 파괴된다[3.1.2.7]. 분사법에 의해 오염물질을 제염하는 공정에 있어서 표면 오염막 파괴에는 분사 에너지, 분사 각도

및 제염용액의 물리적 성질이 제염 성능에 영향을 미치는 것으로 알려져 있다. 또한, 미세입자들은 고체 표면에 약한 공유결합과 Van der Waals 힘으로 부착[3.1.2.8]되어 있기 때문에 단순한 기계적 방법으로 제거하기 어려우며 이를 제거하기 위해서는 인력을 약화시킬 수 있는 계면활성제가 필요하다.

PFC 용액을 제염제로 사용하고 초음파 법을 이용하여 오염된 물질을 제염하는 방법에 대한 연구가 최근 보고되고 있다. 그러나 분사법을 이용한 연구와 다양한 오염물 및 제염 대상물에 대한 연구결과는 아직 보고되지 않고 있다.

본 연구에서는 IMEF 시설의 hot cell 내부에 존재하는 다양한 형태의 시편을 제작, 모의 오염물질로 오염시킨 후 초음파 및 분사 공정을 적용하여 제염 특성을 살펴보고자 하였다.

또한, 제염공정을 수차례 적용하여 오염된 제염용액을 증류법으로 재생한 후 재생된 PFC 제염용액의 오염시편의 제염효과에 미치는 영향을 조사하였다.

연구 결과를 바탕으로 고화체 검사시설 내에서 PFC 전 분사 제염 공정의 타당성을 확인하는 실증연구와 IMEF 시설 내 M4 hot cell에서 PFC 분사제염 공정의 성능에 대한 실증 연구를 수행하였다.

나. 본문

(1) 실험 재료 및 방법

(가) 모의 금속 시편

모든 모의 오염시편의 재질은 Type 304 stainless steel 이다. 동일한 크기(2 X 4 X 0.1 cm³)의 금속판 형 시편 3 종류를 제작하였다. 첫 번째 시편은 흠이 없고, 두 번째 시편은 0.5 cm 간격으로 0.01 cm의 흠이 직선형으로 있는 형태, 세 번째는 0.5 cm 간격으로 바둑판 형태로 0.01 cm의 흠이 있도록 하였다. 디스크형 시편에 대해서도 흠이 없는 형태, 0.5 cm 간격으로 0.005cm 의 흠이 있는 직선형 및 바둑판 형태의 시편을 제작하였다.

파이프 형 시편의 경우, 직경은 2 cm, 두께는 0.1 cm 이다. 시편길이는 각 1, 2, 4, 6 cm 로 하였다.

Crevice 형 시편은 두 종류이다. 첫 번째 시편은, 금속판형 시편과 동일한 크기의 시편 2개의 양편에 구멍을 낸 후 이를 나사를 사용하여 접촉시켜 실험에 사용하였다. 두 번째 시편은 용접형으로서 직육면체의 모서리에 4개의 나사를 넣어 실험에 사용하였다. 이 시편의 경우, 원통형과 직육면체 금속시편을 서로 용접하여 실험에

사용하였다.

(나) 시약

모의 오염물질로 순도 99.95 % 인 Aldrich 사의 Eu_2O_3 분말을 사용하였고, 모의 오염물질에 함께 첨가된 형광물질로는 육성 화학 주식회사의 PANAX RED를 사용하였다. 입도별 증류를 위해 다양한 크기(0.05, 0.3, 1.0, 3.0, 10.0 μm)의 Al_2O_3 입자를 사용하였다. 사용된 PFC 는 3M 사의 PF 5070(C_7F_6)이며 첨가제로는 음 이온성 계면활성제를 사용하였다.

수차례 사용한 PFC 제염용액은 증류장치 내에서 재생하였으며 재생 전 후의 탁도를 turbidity meter(DRT 15-CE, HF Scientific, Inc.)를 사용하여 측정하였다. PFC와 계면활성제에 대한 FT-IR spectrum은 Bomem 사의 FR-IR spectrometer(MB-102)을 사용하여 얻었다.

Fig. 3.1.2.1은 순수한 PFC, 증류 후 제염용액 및 불소계 계면활성제와 계면활성제 농도를 변화시킴에 따른 FT-IR spectra를 보여준다. PFC와 계면활성제의 혼합용액에는 carboxyl 기, methylene 및 carbonyl 기가 존재함을 보여준다. Fig. 3.1.2.2는 모사 오염물질인 Eu_2O_3 의 수용액 내에서 산도변화에 따른 표면 전하의 변화를 보여준다. 제염조건인 양 산성에서 이 오염 물질의 표면은 양으로 하전 됨을 나타낸다.

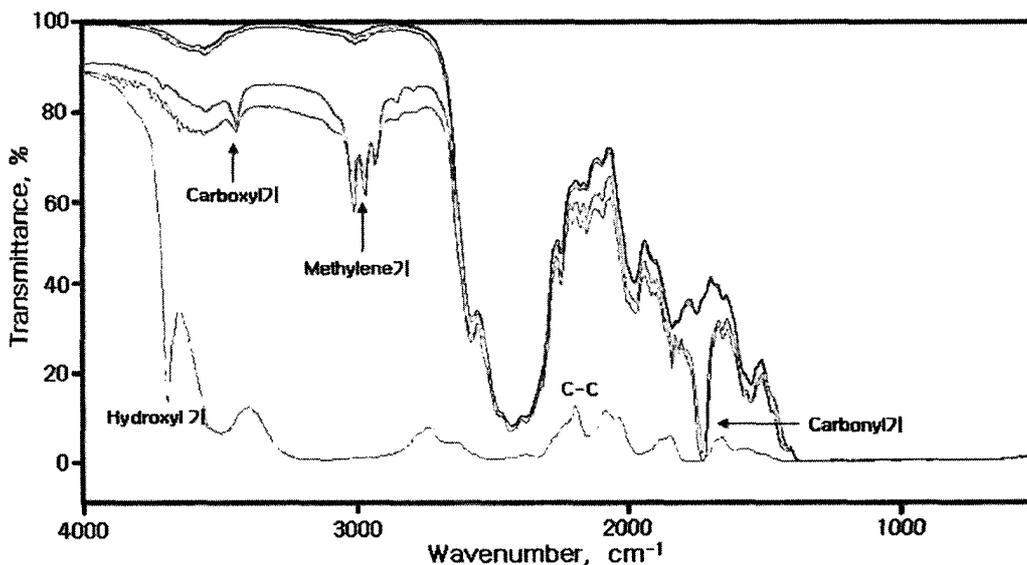


Fig. 3.1.2.1 FT-IR spectra under various concentration of PFC solution

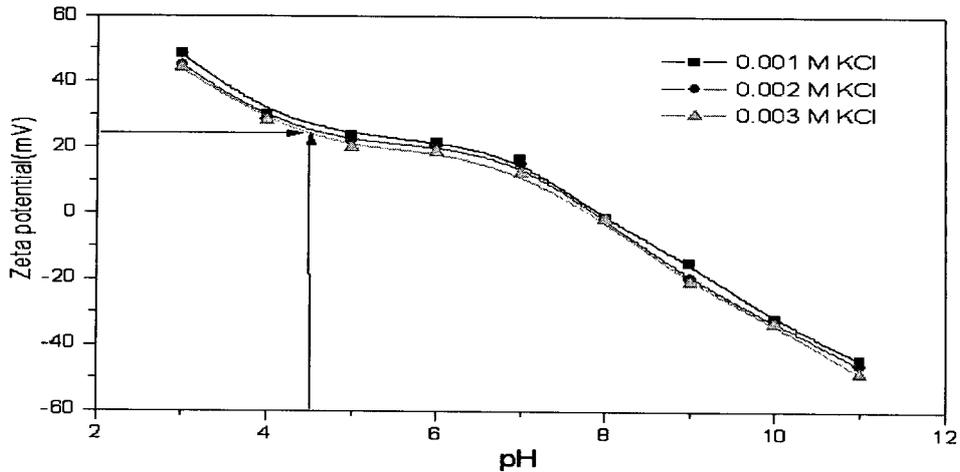


Fig. 3.1.2.2 The surface potential change of surrogate contaminants(Eu_2O_3) at various solution pHs

Fig. 3.1.2.3은 계면활성제 농도 변화에 따른 UV spectra의 변화를 보여준다. 본 실험 조건에서 200nm 근처에서 계면활성제 농도 변화에 따라 정량적으로 스펙트럼의 흡광도가 변화됨을 나타낸다.

방사성 물질로 오염된 모의 시편의 제조를 위해 주 핵종이 Co-60와 Cs-137로 이루어진 방사성 동위원소 용액을 구입하여 사용하였다. 동위원소 용액을 methyl alcohol로 묽힌 후 Eu_2O_3 입자를 첨가하여 모사 방사성입자 용액을 제조하였다. 이 용액을 금속시편 표면에 떨어뜨려 음지에서 건조하였다.

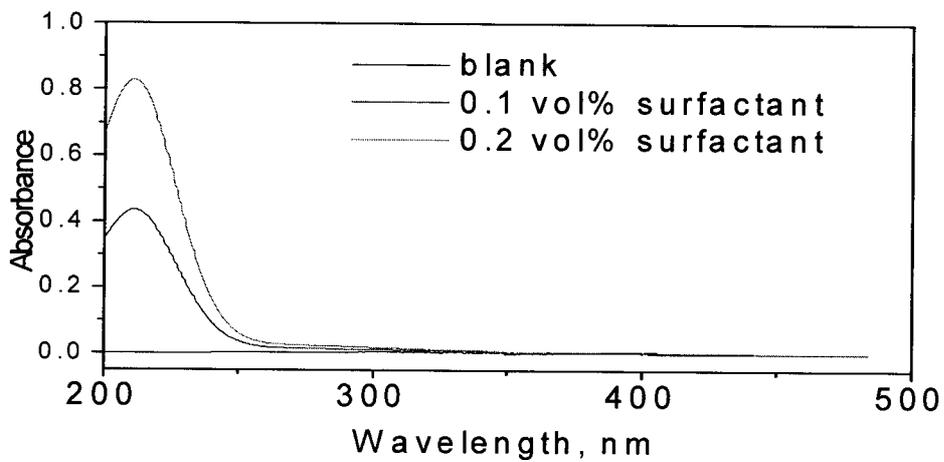


Fig. 3.1.2.3 UV spectra of PFC solution under various surfactant concentration.

(2) 실험 장치

(가) PFC 초음파 제염 실험 장치 및 제염 순서

시편의 무게를 측정 후 Eu_2O_3 분말과 형광물질이 혼합된 메틸알코올 용액으로 시편을 오염시켰다. 음지에서 시편을 건조시킨 후 사진을 촬영하였다. 촬영 후 시편 무게를 측정하고 시편을 초음파 제염조 내에 위치한 시편용기에 넣었다. 제염용액으로 PFC와 음이온계면활성제의 혼합물 2 L를 사용하였다. 초음파 발진 주파수는 28 KHz이며 출력은 300 W 이다. 제염조 내 시편용기는 정지 혹은 회전으로 두 모드로 운전된다. 일정 시간 동안 초음파를 적용시키고 음지에서 건조시킨 후 시편의 무게를 측정하였다. 무게를 측정한 시편에 대한 사진을 다시 촬영하였다. PFC 초음파 제염공정도를 Fig. 3.1.2.4에 도시하였으며 초음파 제염장치 설계도 및 사진을 Fig. 3.1.2.5 ~6에 나타내었다. 초음파 제염실험 절차를 Fig. 3.1.2.7에 도시하였다.

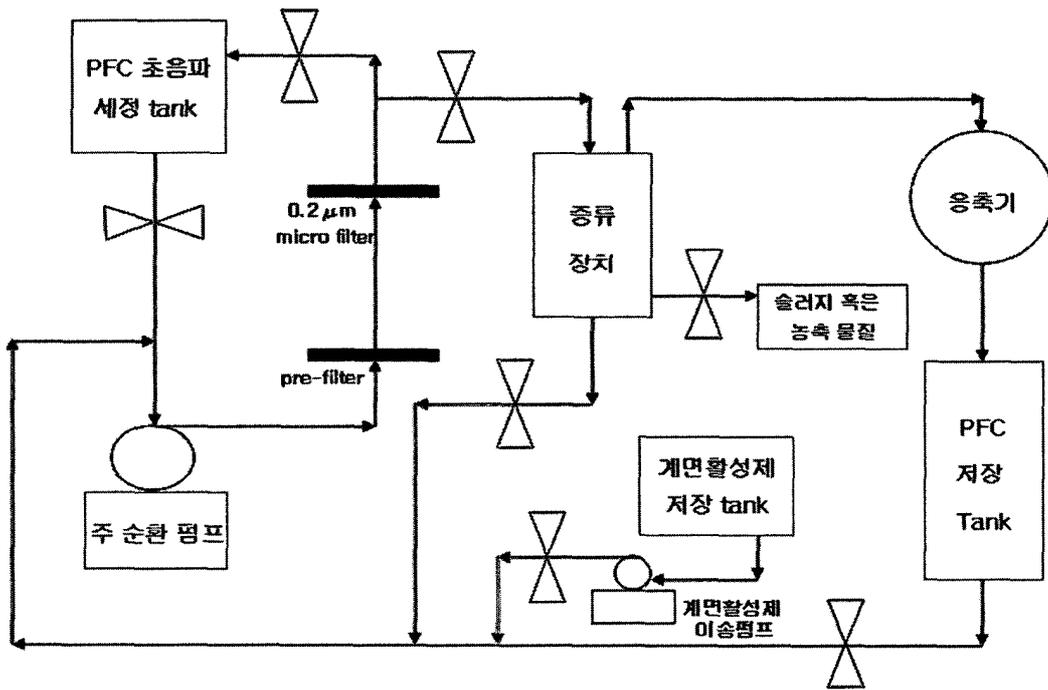


Fig. 3.1.2.4 Schematic diagram of PFC ultrasonic decontamination system

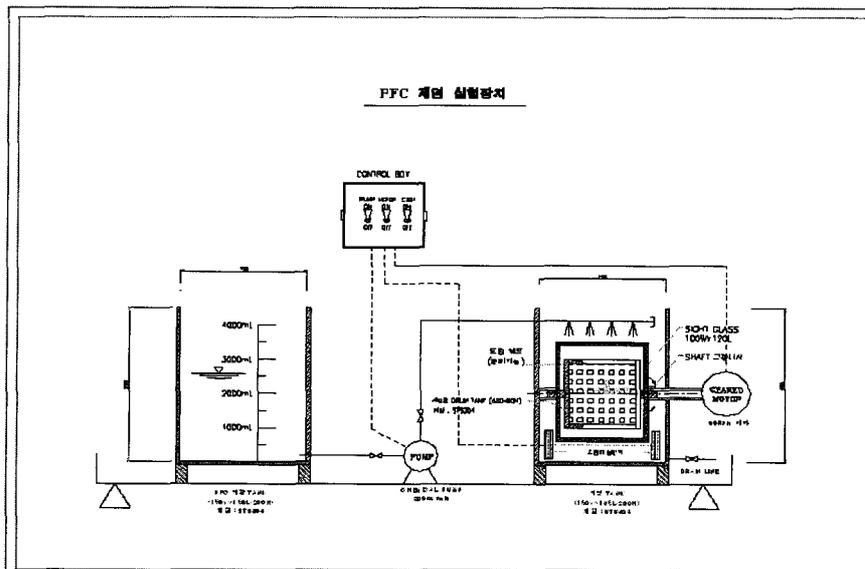
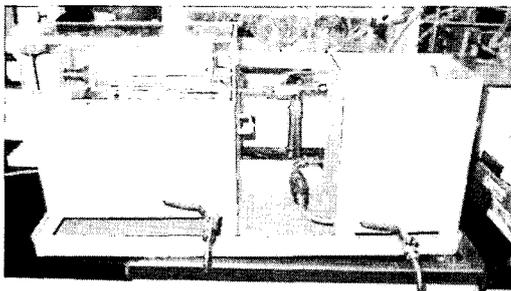
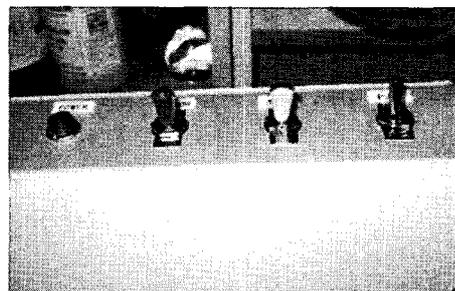


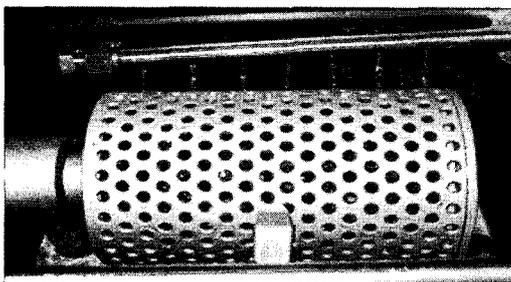
Fig. 3.1.2.5 Schematic diagram of PFC ultrasonic decontamination equipment



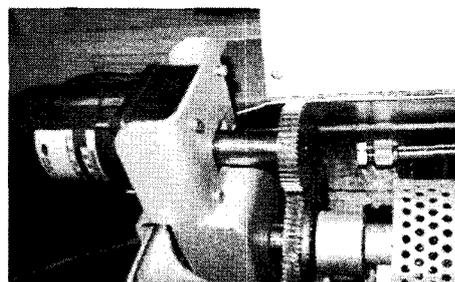
PFC 제염실험 장치



스위치



Rotating Chamber



Geared Motor

Fig. 3.1.2.6 Photographs of PFC ultrasonic decontamination equipment

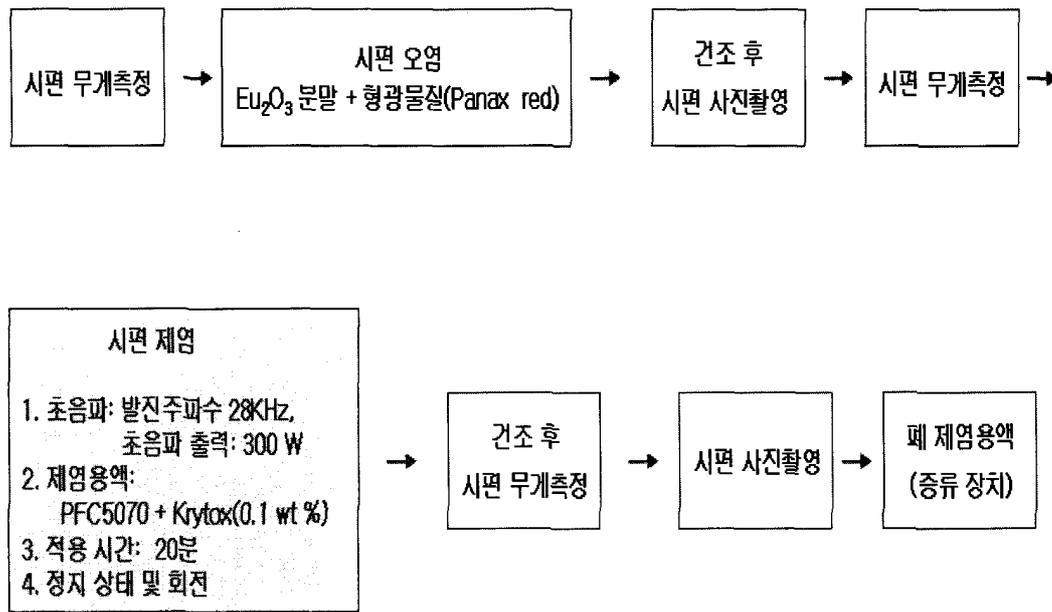


Fig. 3.1.2.7 Experimental procedure of PFC ultrasonic decontamination method

(나) PFC 분사 제염 실험 장치

PFC 초음파 제염공정의 연구결과를 바탕으로 PFC 분사제염 전체 공정을 수립하였으며 전체 제염공정도를 Fig. 3.1.2.8에 도시하였다. 전체 제염공정은 분사, 회수, 여과 및 증류 skid로 구성되어 있다. 전체 제염공정 중 분사 및 증류공정 실험을 위하여 장치를 제작하였으며 이에 대한 설계도와 사진을 Fig. 3.1.2.9~10에 나타내었다. 제작된 장치가 폐 제염용액을 회수하기가 용이하지 않은 상태였기 때문에 vacuum cup을 따로 제작하여 장착하였으며, 설계도와 모형을 Fig. 3.1.2.11~12에 나타내었다. 한편 Fig. 3.1.2.9의 증류장치가 manipulator에 의한 조작성이 까다롭고 냉각탑이 가열된 PFC 용액을 균등하게 냉각시키지 못하여 상부를 넓게 만들었으며 냉각관 자체가 충분히 드라이아이스와 접촉하도록 접촉 면적을 넓게 하였다. 이를 Fig. 3.1.2.13~14에 나타내었다.

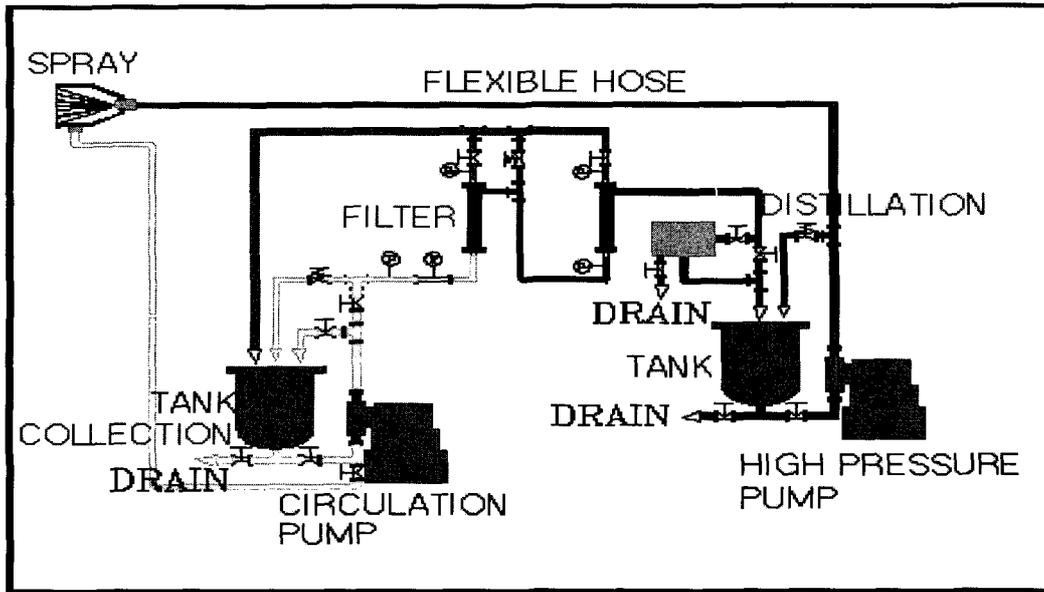


Fig. 3.1.2.8 Schematic diagram of the PFC spray decontamination process

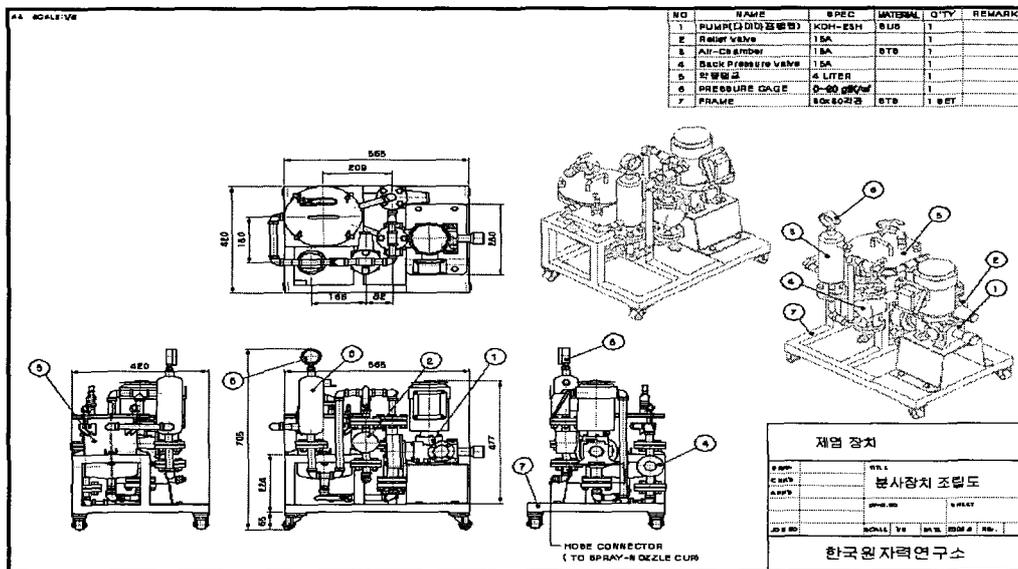


Fig. 3.1.2.9 Draft of PFC spray and distillation skid

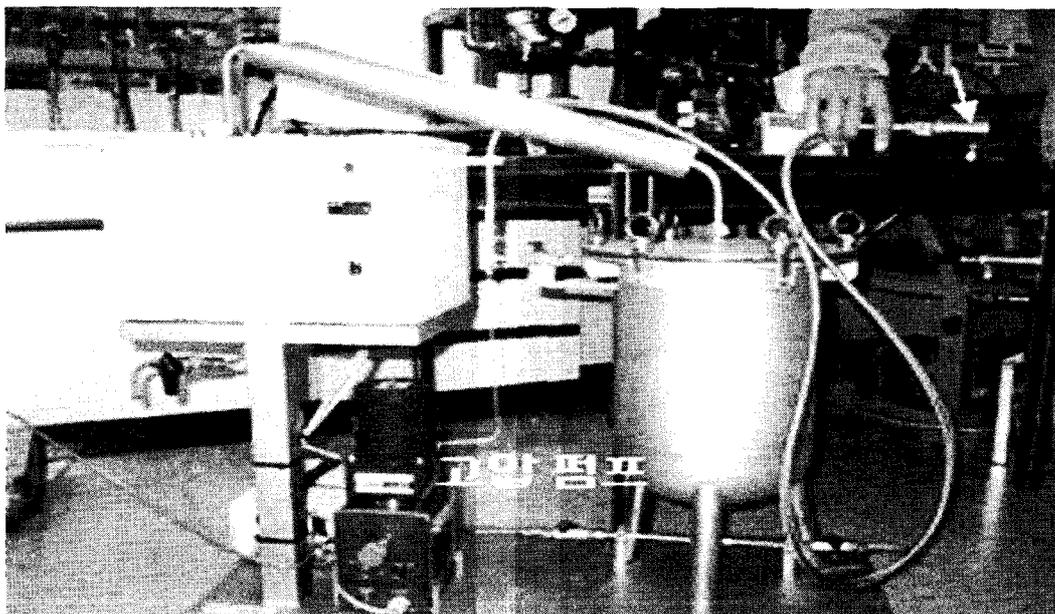


Fig. 3.1.2.10 Photograph of PFC spray and distillation skid

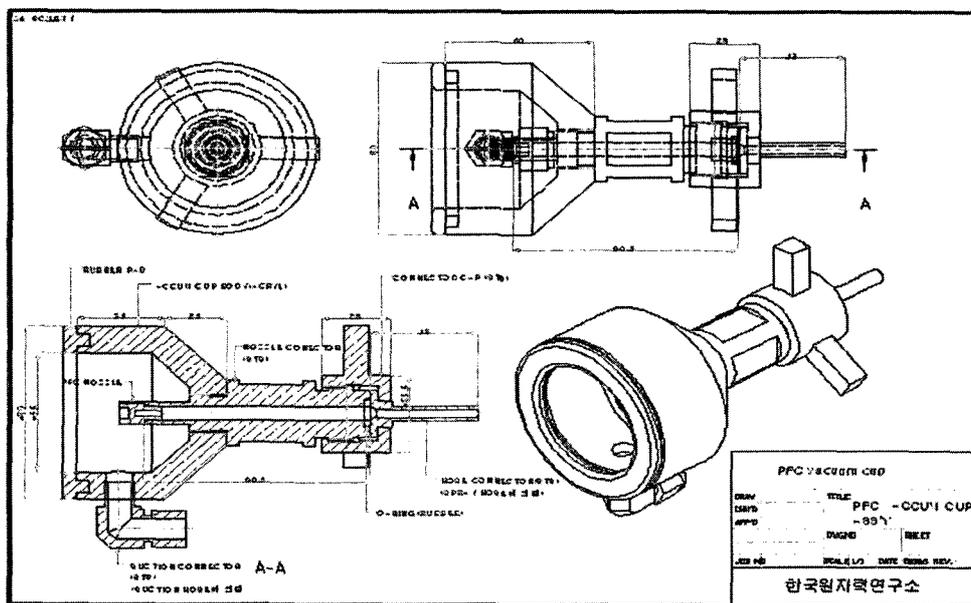


Fig. 3.1.2.11 Draft of vacuum cup

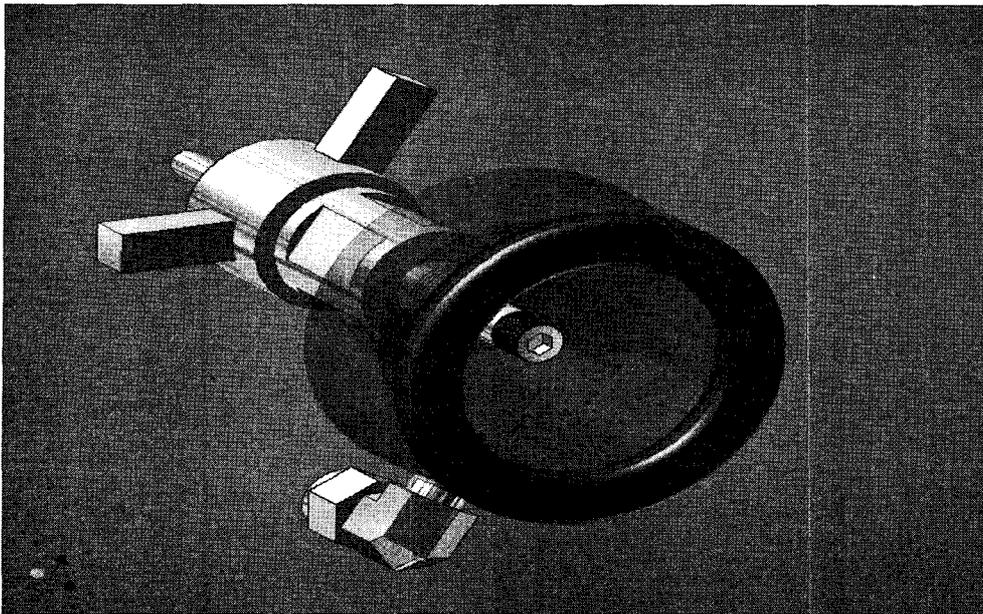


Fig. 3.1.2.12 Vacuum cup

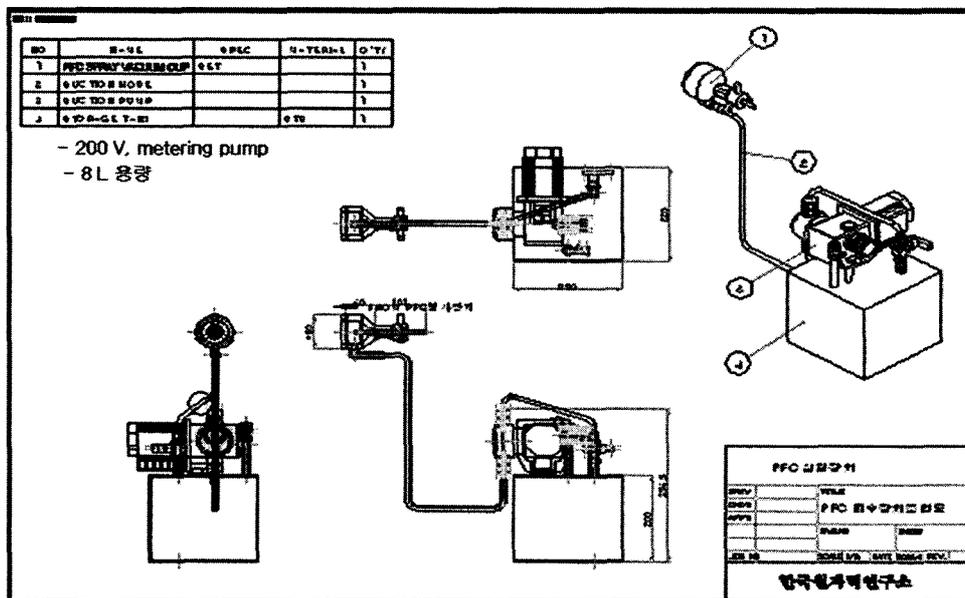


Fig. 3.1.2.13 Draft of the improved PFC spray and distillation skid

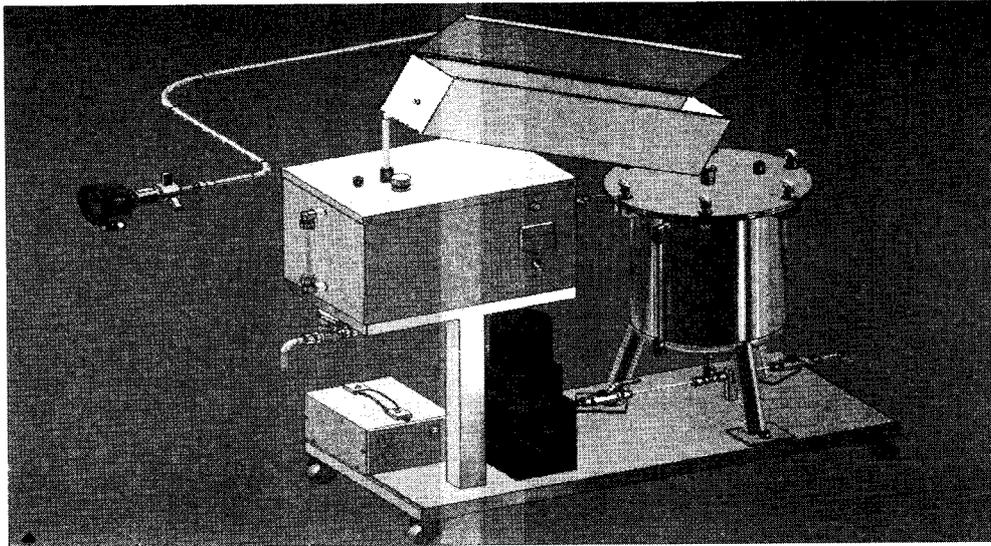


Fig. 3.1.2.14 Improved PFC spray and distillation skid

개선된 PFC 분사제염 장비를 사용하여 고화체 검사시설 내에서 전체 PFC 분사제염공정을 실증하는데 사용하였다. IMEF 의 M4 hot cell 내에서 제염기술을 실증하기 위한 장비는 안전성, 조작의 용이성, 2차폐기물 감축 등을 고려하여 분사부, 진공컵 및 회수부 만을 따로 제작하였으며 이를 Fig. 3.1.2.15~16에 나타내었다.

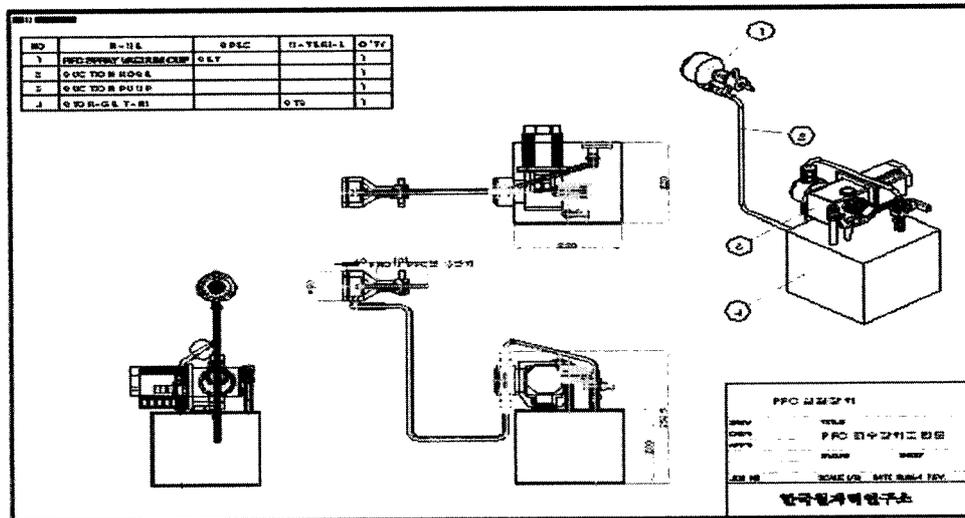


Fig. 3.1.2.15 Draft of the PFC spray, vacuum cup and collection equipment used for the demonstration of PFC spray decontamination in a hot cell of IMEF

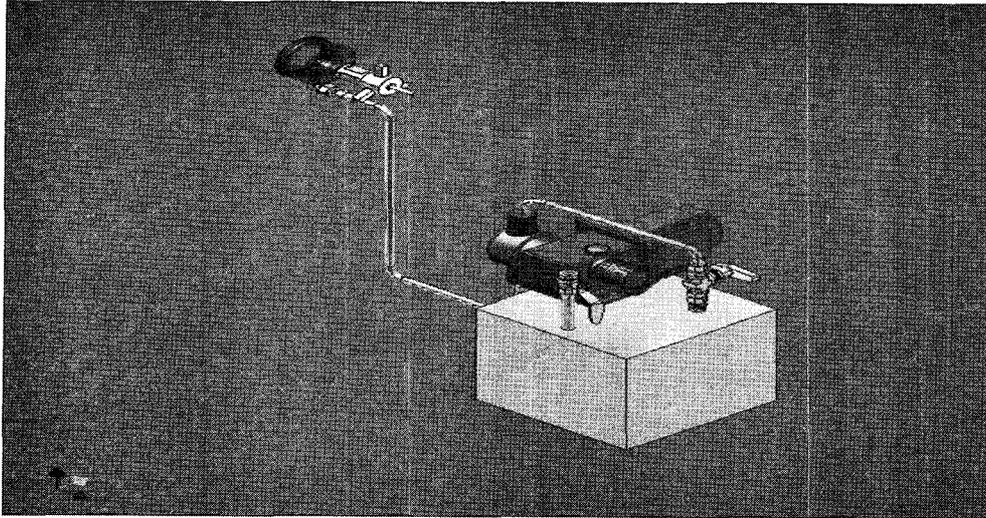


Fig. 3.1.2.16 PFC spray, vacuum cup and collection equipment used for the demonstration of PFC spray decontamination in a hot cell of IMEF

(다) 기타 부품

PFC 초음파 제염공정의 연구결과를 바탕으로 PFC 분사제염 전 고화체 검사시설 내에서의 실증실험 결과 hot cell 내에서 manipulator가 진공컵과 flexible hose를 잘 연결하지 못하는 문제점을 나타내었다. 이를 해결하기 위해 진공컵 자체를 수직으로 고정시키기 위한 지지대를 여분으로 제작하여 사용하였는데 사진을 Fig. 3.1.2.17에 수록하였다. IMEF Hot cell 내부를 대상으로 한 PFC 분사 제염기술 실증에 사용된 장치의 사진을 Fig. 3.1.2.18에 수록하였다.

IMEF 시설의 hot cell 내부에 대한 PFC 분사제염기술의 성능을 파악하기 위해 방사능 측정 실험을 수행하였다. 제염 전 후 hot cell 내부 표면을 smear 하기 위해 특수 제작한 도구를 사용하였다. 방사성 폐기물의 부피를 줄이기 위해 smear plate holder는 연속 사용하였고 smear paper를 접착. 지지하기 위한 smear plate는 1회용으로 제작하였다. 조립 전후의 smear kit 사진을 Fig. 3.1.2.19~20에 나타내었다.

(3) 결과 및 고찰

(가) PFC 초음파 제염 실험

① 금속판 시편에 대한 제염 성능

시간 경과에 따른 무게 변화를 측정함으로써 직사각형 형태의 금속판 시편에 존재하는 오염물의 세 종류 제염용액에 대한 초음파 제염공정의 성능을 비교하였으며 그 결과를 Fig. 3.1.2.21에 도시하였다. 세 종류 모든 용액에 대해 반응 초기에 오염물이 급속히 제거되지만 시간이 경과될수록 제거 속도는 느려지기 시작한다.

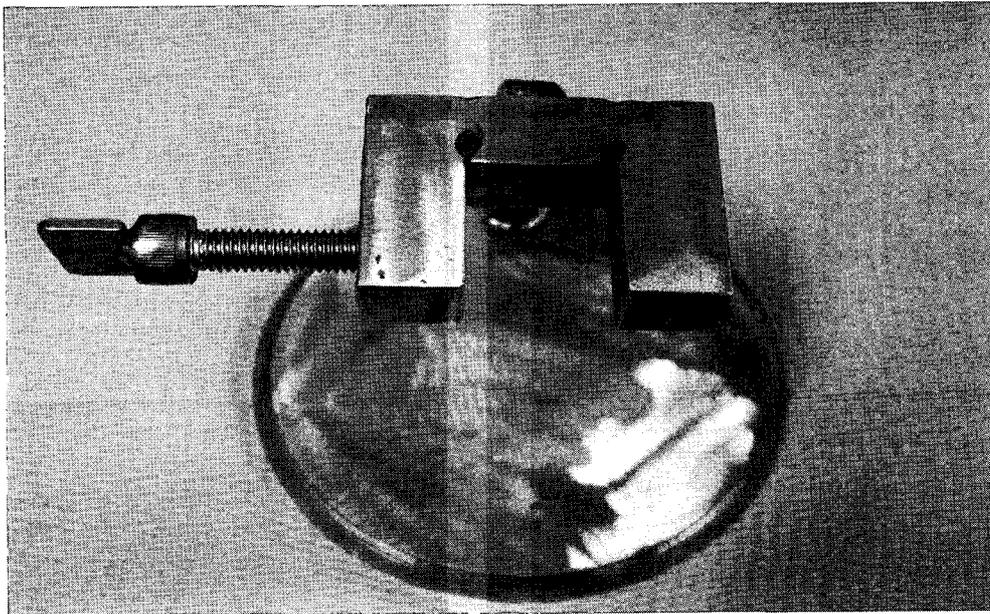


Fig. 3.1.2.17 Photograph of a vacuum cup support

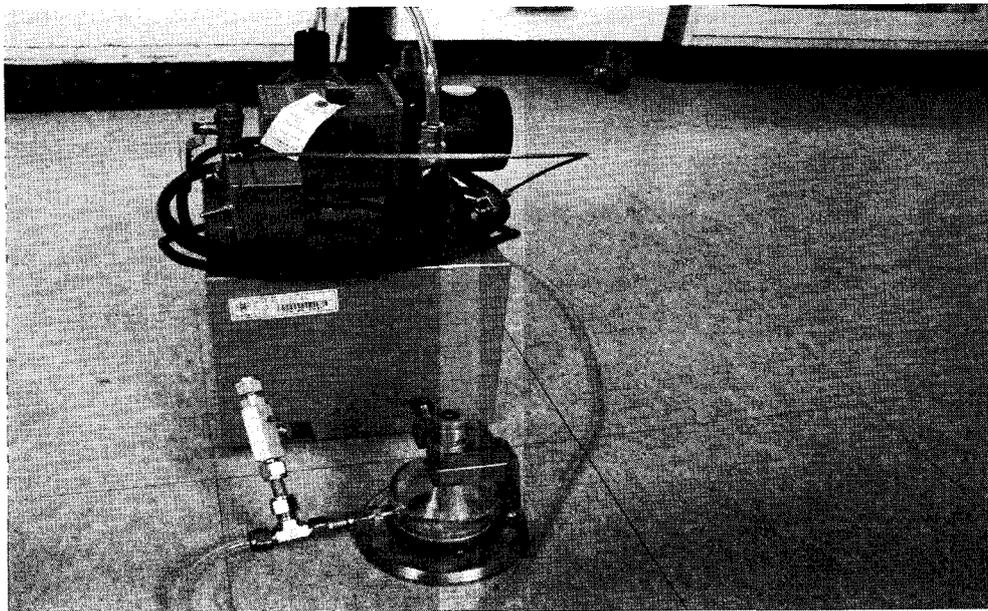


Fig. 3.1.2.18 Photograph of a decontamination unit used for the demonstration of PFC spray method in a hot cell of IMEF

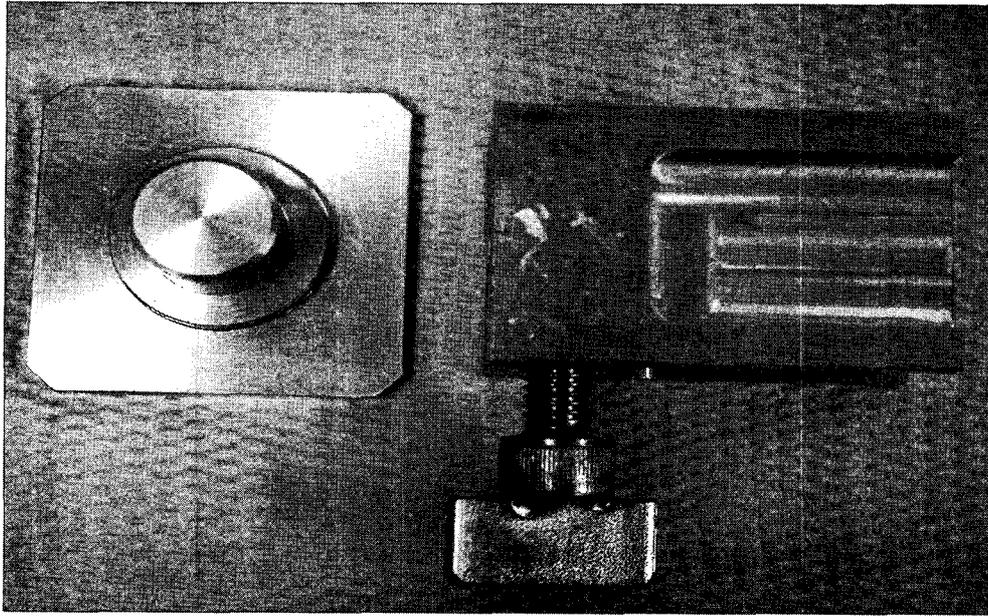


Fig. 3.1.2.19 Photograph of a smear kit(before assembly)

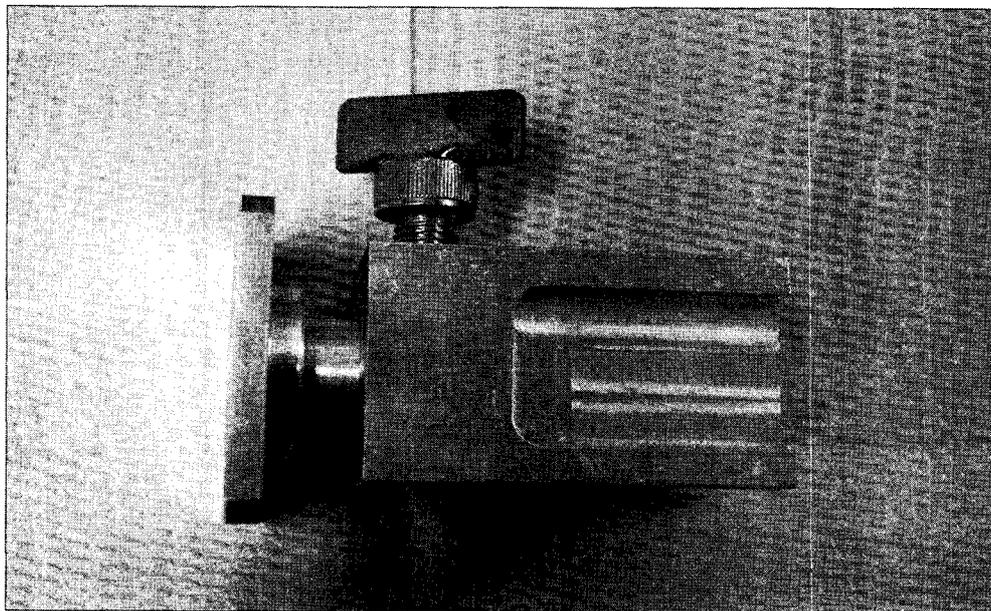


Fig. 3.1.2.20 Photograph of a smear kit(after assembly)

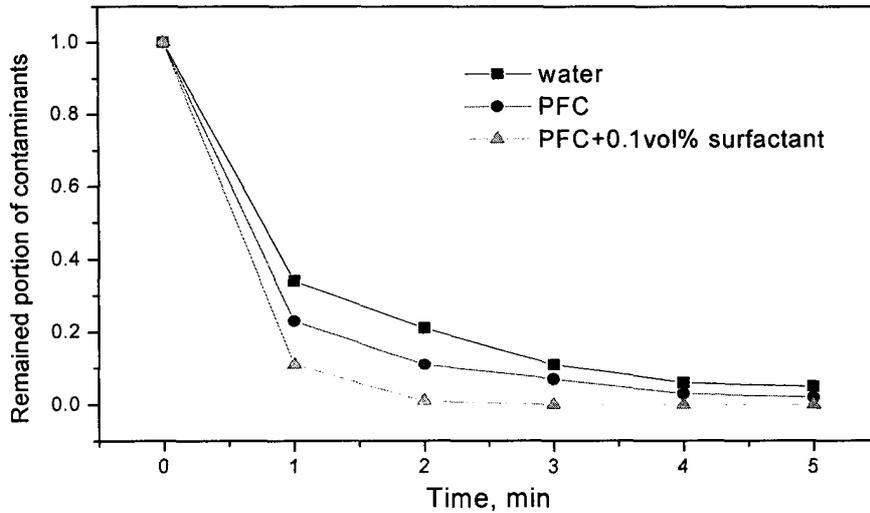


Fig. 3.1.2.21 Remained portion of contaminants according to the application time for 3 kinds of decontamination solution

PFC와 surfactant를 혼합한 용액의 경우 초음파를 적용시키고 3분이 경과되면 오염물이 완전히 제거되었다. 물과 순수 PFC의 경우, 5분 동안 초음파를 적용시킨 후에도 오염물이 남아있다. 초음파를 5분간 적용시킨 후의 제염계수는 물, 순수 PFC 및 PFC + surfactant 용액의 순서로 매질이 변함에 따라 20, 50, 200으로 증가하는데 이는 R. Kaiser 및 A. E. Desrosiers[3.1.2.2-3.1.2.3]의 연구 결과와 잘 일치하는 경향을 보여준다. 순수 PFC의 제염효율이 물에 비해 큰 이유는 (1) 각 분자의 표면장력과, (2) 시편 표면에 미량으로 존재하는 기름성분에 의한 것으로 설명이 가능하다. 물의 표면장력(73 dyne/cm)이 PFC의 표면장력(13 dyne/cm)에 비해 5배 이상 크다. 이는 물분자들 사이에 서로 작용하는 인력이 PFC분자 사이에 서로 작용하는 인력에 비해 훨씬 크므로 오염물질에 대해 PFC보다 덜 작용한다는 사실을 의미한다. 또한, 시편 무게를 정밀하게 측정하고 결과 금속표면에는 미량의 기름성분이 존재하는 것으로 나타났다. 물이 기름 성분을 용해시키지 못하는 반면, 제염 중 PFC가 기름 성분을 용해시킴에 따라 시편표면에 잔존하는 산화물도 함께 제거되었음을 추측할 수 있다.

용액 내의 금속산화물은 용액과 작용함에 의해 표면 전하를 가지며 형성된 양전하 혹은 음전하는 용액의 조건에 따라 변화된다[3.1.2.9]. 오염물인 Eu_2O_3 분말에 대한

zeta potential 측정 결과 제염조건에서 시료표면이 양전하를 띠고 있음을 확인하였는데, PFC와 계면활성제의 혼합용액 내에 존재하는 카르복실기 음이온은 정전기적 인력으로 양전하의 오염물과 작용함에 의해 PFC 만 사용할 때에 비해 제염효과가 높게 나타난 것으로 판단된다.

세 종류의 금속판 시편에 대한 제염 전후의 사진을 Fig. 3.1.2.22에 나타내었다. 왼쪽 부분에 위치한 사진은 시편을 오염시켜 건조시킨 후 가시광선 영역에서 촬영한 사진이며 가운데 시편 사진은 동일한 시편에 자외선을 조사한 상태에서 촬영한 사진이다. 또한, 오른쪽 부분의 세 사진은 제염공정을 적용시킨 후 촬영한 사진이다. 초음파 제염용액으로는 PFC와 계면활성제를 혼합한 용액을 사용하였다. 각 단계에서 무게를 측정한 결과, 시편 내에 존재하는 0.1 mm 의 흠의 존재 유무와 형태에 관계없이 완전히 제거되는 것을 확인할 수 있다. Hot cell 내부의 벽면이 Type 304 stainless steel로 구성되어 있고 대 부분 형태가 판 형태인 것을 감안한다면 느슨하게 붙어있는 오염물들은 초음파 혹은 고압분사와 같은 물리적인 충격에 의해 쉽게 제거될 것으로 기대된다. 특히, Hot cell 내부가 고준위 방사선 장이므로 이들 오염물이 완전히 제거된다는 것은 이 시설의 안전 관리 및 보수의 측면에서 매우 바람직함을 알 수 있다.

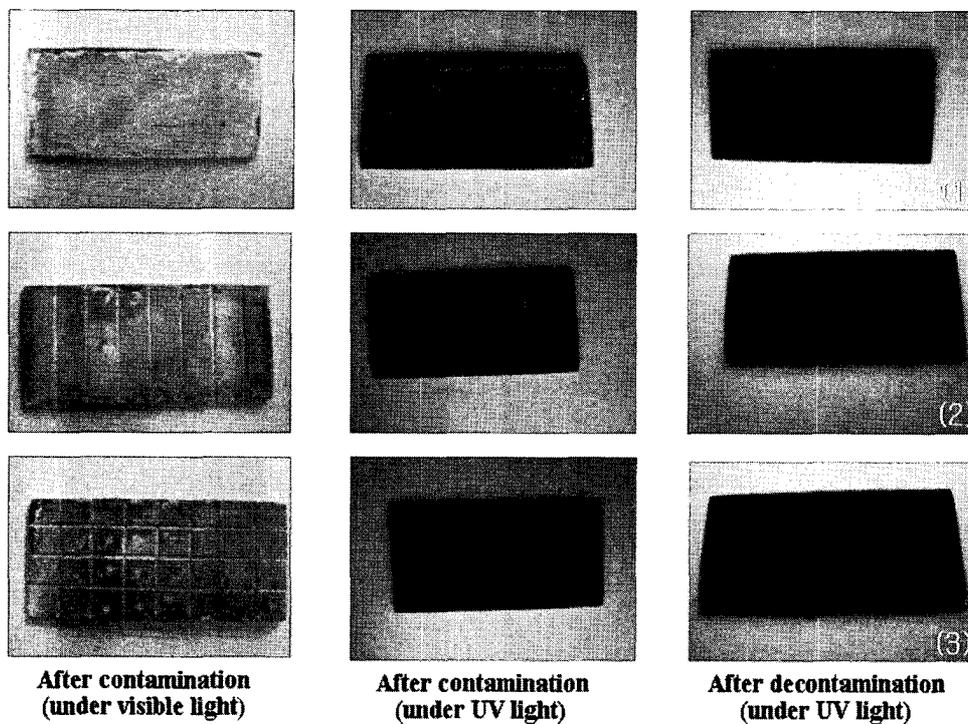


Fig. 3.1.2.22 Photographs of surrogate specimens, (1) no scratch, (2) linear scratch and (3) check scratch

② 파이프 형 시편 제염 및 PFC 재생횟수에 따른 초음파 제염효과

시편 내부에 존재하는 오염물에 대한 초음파의 제염 성능을 살펴보기 위하여 파이프 형 시편을 제작하였다. 시편을 반응조에 넣고 PFC + surfactant 혼합용액을 가한 후 초음파를 5 분간 적용시켰으며 제염 전후의 시편사진을 Fig. 3.1.2.23 에 나타내었다. 사진에 나타난 바와 같이 1, 2, 4 cm 길이의 시편 내부에 존재하는 오염물은 초음파를 적용시킴에 의해 완전히 제거되었다. 그러나, 길이 6 cm 인 파이프 형 시편에는 제염 후 오염물이 잔존하고 있음을 확인하였는데 이는 시편을 회전시켜가며 초음파를 적용시킴에 의해 완전히 제거할 수 있었다.

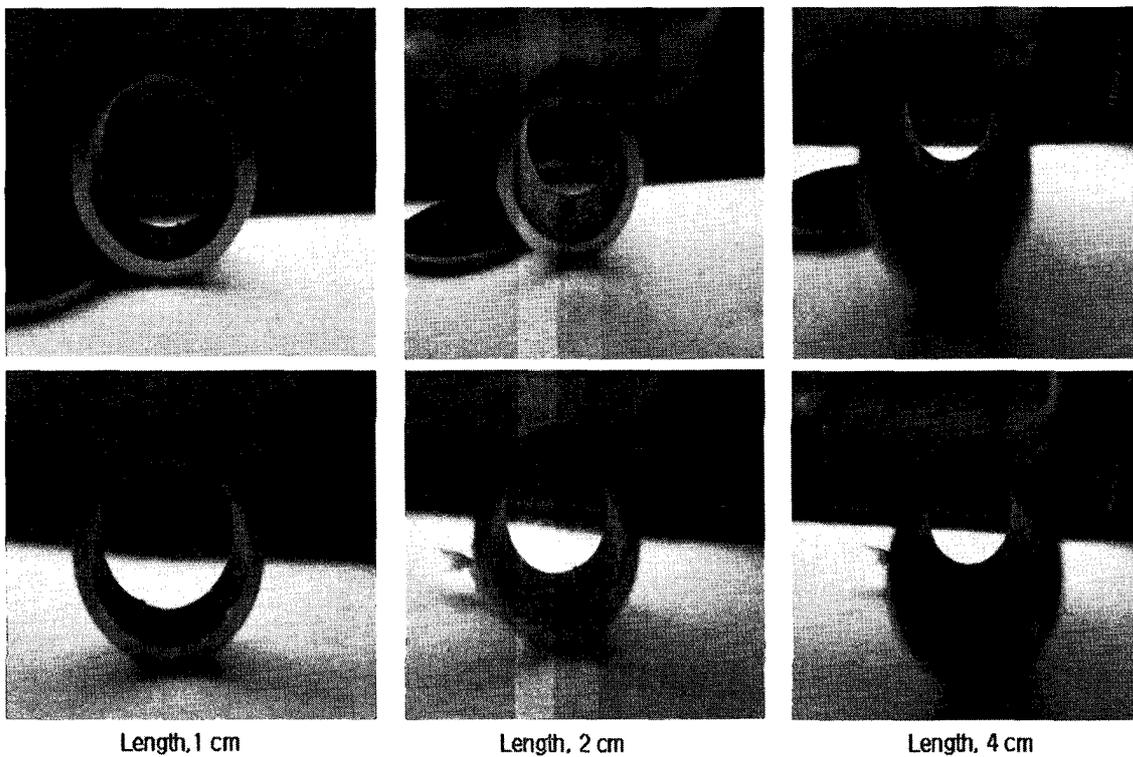


Fig. 3.1.2.23 Photographs of surrogate pipe specimen, (up) before decontamination, (down) after decontamination

초음파 제염공정을 반복 적용함에 따라 PFC + Surfactant 혼합용액은 Eu_2O_3 분말에 의해 오염되어 용액자체가 혼탁하게 될 뿐만 아니라 그 제염성능도 저하된다. PFC 용액 자체가 고가이므로 오염된 PFC 용액을 재생하여 반복 사용하는 방법이 강구되어야 한다. 재생방법은 크게 두 가지가 있는데 여과장치를 사용하여 용액내의 오염물질을 제거[3.1.2.10]하는 방법과 오염된 용액을 증류시켜 오염물을 제거한 후 다시 사용하는 방법이 있다. 오염된 용액에 대해 증류 전과 증류 후의 탁도를 측정하였으며 그 결과를 Fig. 3.1.2.24에 도시하였다. 냉각물질로는 물을 사용하였다. 2 L PFC

용액을 80 °C 까지 상승시키는데 12분, 80 °C에서 완전히 증류시키는데 20분이 소요 되었다. 회수된 PFC 용액의 부피가 1.96 ± 0.005 L 이었기 때문에 97.5 % 이상이 증류에 의해 재생됨을 확인하였다. 순수한 PFC 용액의 탁도는 0.48 ± 0.02 NTU 이었 으며 증류 후 탁도는 증류 횟수가 늘어남에 따라 증가하였지만 1.00 ± 0.1 NTU 의 범위에 있다. Fig. 3.1.2.24, 3.1.2.25 에 나타난 바와 같이 증류 전 탁도가 118 ± 10 NTU 이지만 증류에 의해 용액 내 오염물이 효과적으로 분리됨을 보여 준다.

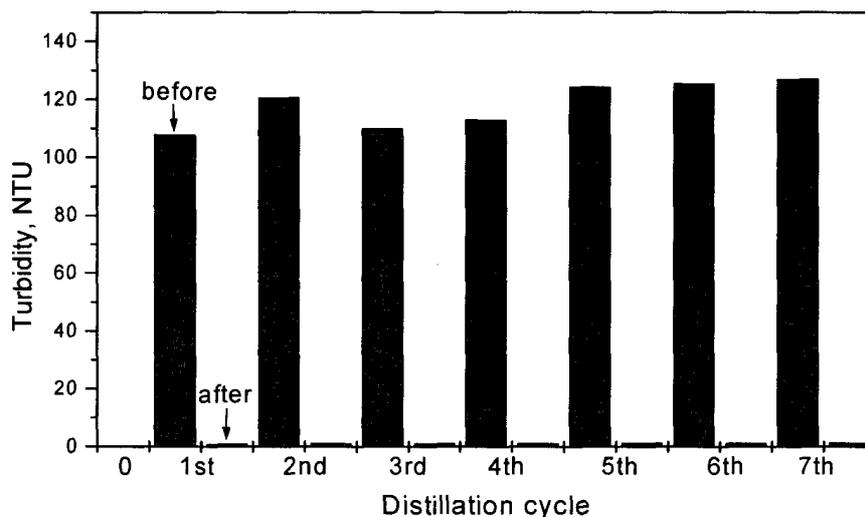


Fig. 3.1.2.24 Variation of turbidity of PFC solution according to the distillation cycle

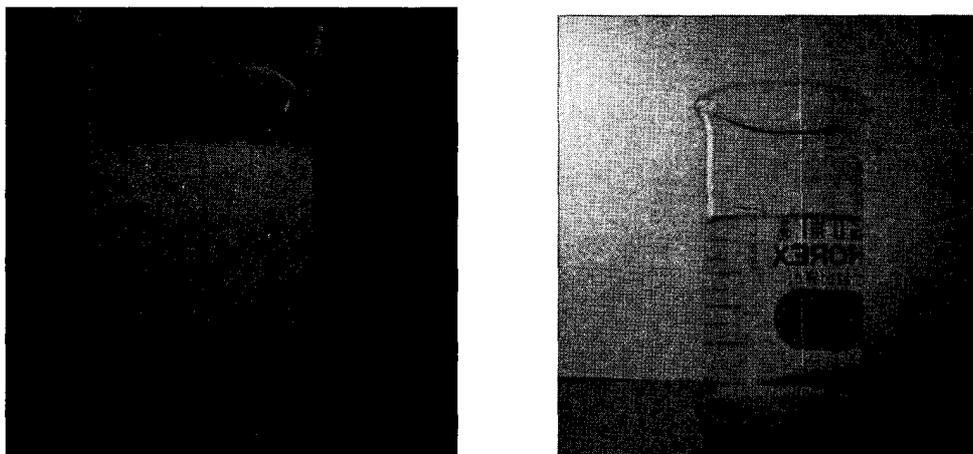


Fig. 3.1.2.25 Photographs of PFC solution, (left) before distillation, (right) after distillation

증류 횟수에 따른 PFC 초음파제염 성능의 변화를 Fig. 3.1.2.26에 도시하였다. 흡이 없는 직사각형 금속판을 시편으로 사용하였다. 모든 회수된 PFC 용액에 대해 반응 초기에 급격히 오염물이 제거되며 초음파 적용 후 3분이 경과되면 오염물의 제거가 완료된다. 무게 측정으로부터 사용된 시편의 오염물은 모두 제거되며 본 실험 영역에서는 재생 횟수에 관계없이 제염 성능이 원래상태로 유지됨을 확인하였다.

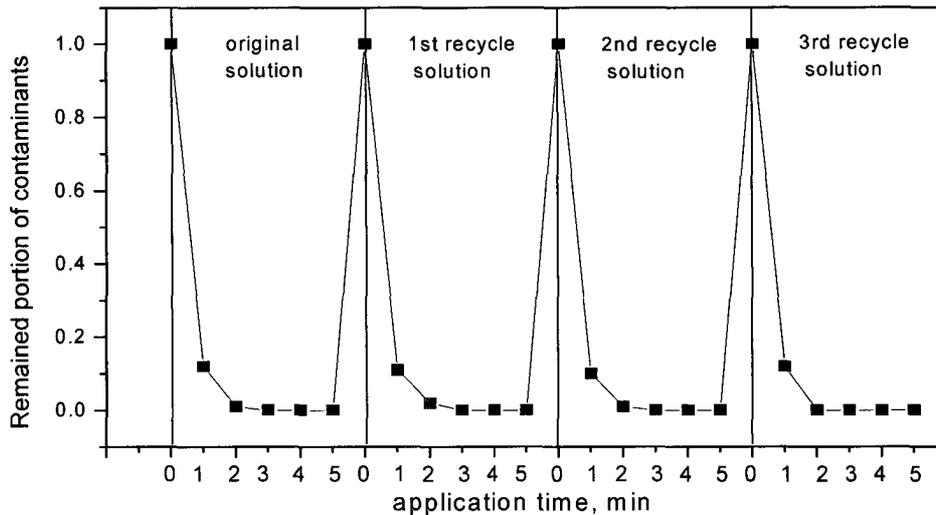


Fig. 3.1.2.26 Remained portion of contaminants according to the application time under various distillation cycle of PFC solution(plate specimen)

파이프 형태의 시편을 사용하여 증류 횟수에 따른 PFC 초음파제염법의 성능 변화를 조사하였으며 그 결과를 Fig. 3.1.2.27에 도시하였다. 재생 PFC 용액을 사용한 초음파 제염공정의 성능은 모든 파이프 형태 시편에 대해 원래 구입한 PFC 용액을 사용할 때와 그 차이가 없다. 직사각형 형태의 금속판 시편과 비교할 때, 금속판 시편은 초음파 적용 후 3분 내에 오염물 제거가 끝나는 반면 파이프 형 시편은 오염물 제거가 늦게 진행됨을 알 수 있다. 특히, 길이 6 cm 시편은 초음파를 적용하는 5분 동안 오염물이 계속 제거되는 것으로 나타났으며 초기 오염물의 98.5 % 가 제거되었다.

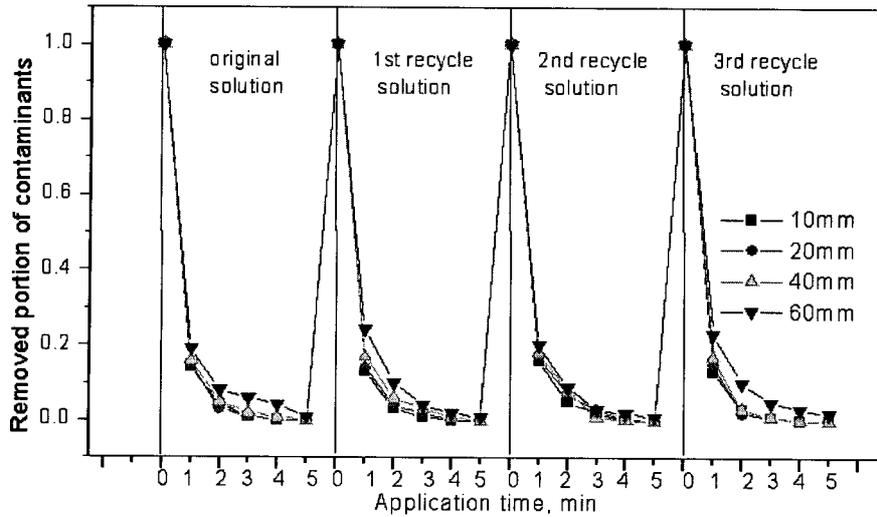


Fig. 3.1.2.27 Remained portion of contaminants according to the application time under various distillation cycle of PFC solution(pipe specimen)

③ 틈새 및 용접형 시편에 대한 PFC 초음파 제염

Hot cell 내부에 존재하는 금속 중, 용접 형 시편과 두 종류의 틈새 형 시편을 모사하여 제작하였다. 이들을 용기에 넣은 후 초음파 제염공정을 5분간 적용하였으며 제염 전 후의 사진을 Fig. 3.1.2.28에 나타내었다. Fig. 3.1.2.28의 상단 사진은 미세한 많은 흠과 나사의 틈새가 존재하는 시편에 관한 것으로 (a)는 제염 전, (b)는 제염 후를 나타낸다. 미세 흠에 존재하는 오염물이 깨끗이 제거된 반면에 나사에 오염된 물질이 제염 후에도 일부 존재함을 보여준다. 초음파 적용방향을 변경시킴에 의해 남아있는 오염물은 완전히 제거되었다. Fig. 3.1.2.28의 중간 부분은 용접된 부분에 대한 제염 전(a), 후 (b) 사진을 보여준다. 상단 시편과는 다르게 5분 동안 초음파 제염공정을 적용시킴에 의해 오염물이 완전히 제거되는 것으로 나타났다. Fig. 3.1.2.28의 아래 부분은 crevice 시편에 관한 초음파 공정의 제염효과를 보여주며 무게 측정 결과 95% 이상의 오염물이 제거된 것으로 나타났다. 나사를 사용하여 두 판형 시편 사이의 거리를 1mm 로 유지하였음에도 불구하고 내부 오염물은 깨끗이 제거되었다. 시편 외부에 오염물이 일부 남아있었으나 시편이 열린 상태로 초음파를 적용시킴에 의해 이들을 완전히 제거할 수 있었다.

(나) PFC 분사 제염 실험

① 분사제염 장치 제작을 위한 예비실험

Turbulence buffer 용기를 장착한 diaphragm pump의 물 분사특성을 파악하였다. 4.5 ~ 5.0 kgf/cm², 분사각도를 0° 로 고정시킨 상태에서 분사 속도를 측정하였는데 orifice diameter가 1 mm 일 때 1.4 L/min 이었다.

분사 압력을 높이기 위하여, 맥동 buffer 용기 및 compressor를 장착한 diaphragm pump에 의한 유체 분사 특성을 파악하였다. 8.0 ~ 9.0 kgf/cm², orifice diameter 0.8 mm에서 분사각도를 0, 15, 30o 로 변화 시 킴에 따라 분사거리는 0.9, 1.4 및 7.0 m 로 증가하였다. 분사속도는 0.7 ~ 0.8 L/min 이었다. 맥동 buffer 용기 및 compressor 를 장착한 diaphragm pump에 의한 분사 장치 제작은 분사 압력이 낮을 뿐 아니라 유 속이 커서 고압 펌프를 사용하는 방안을 모색하게 되었다.

PFC 분사제염에 있어서 PFC 의 사용량을 최소화하며 분사압력이 최대한으로 높은 고압 펌프를 선정하고 이 펌프를 가동시키기에 적절한 조건을 선정하였다.

PFC 분사제염 공정은 PFC 초음파 제염 공정연구결과를 바탕으로

- 분사, 회수, 여과, 증류 공정으로 구분
- 각 공정장치는 1/4“ flexible hose로 연결
- Hot cell 내 접근 조건을 고려하여 PFC 회수 cup의 직경을 10 cm 이내
- 분사압력은 41 kgf/cm², orifice diameter는 0.2 mm, 분사속도: 0.2 L/min
- PFC 회수효율 증대를 위해 증류 시 냉각 온도는 -70 °C로 결정하였는데 이는 hot cell 내 급수 및 배수시설이 없는 점을 고려하여 드라이아이스를 사용하기 때문이다.

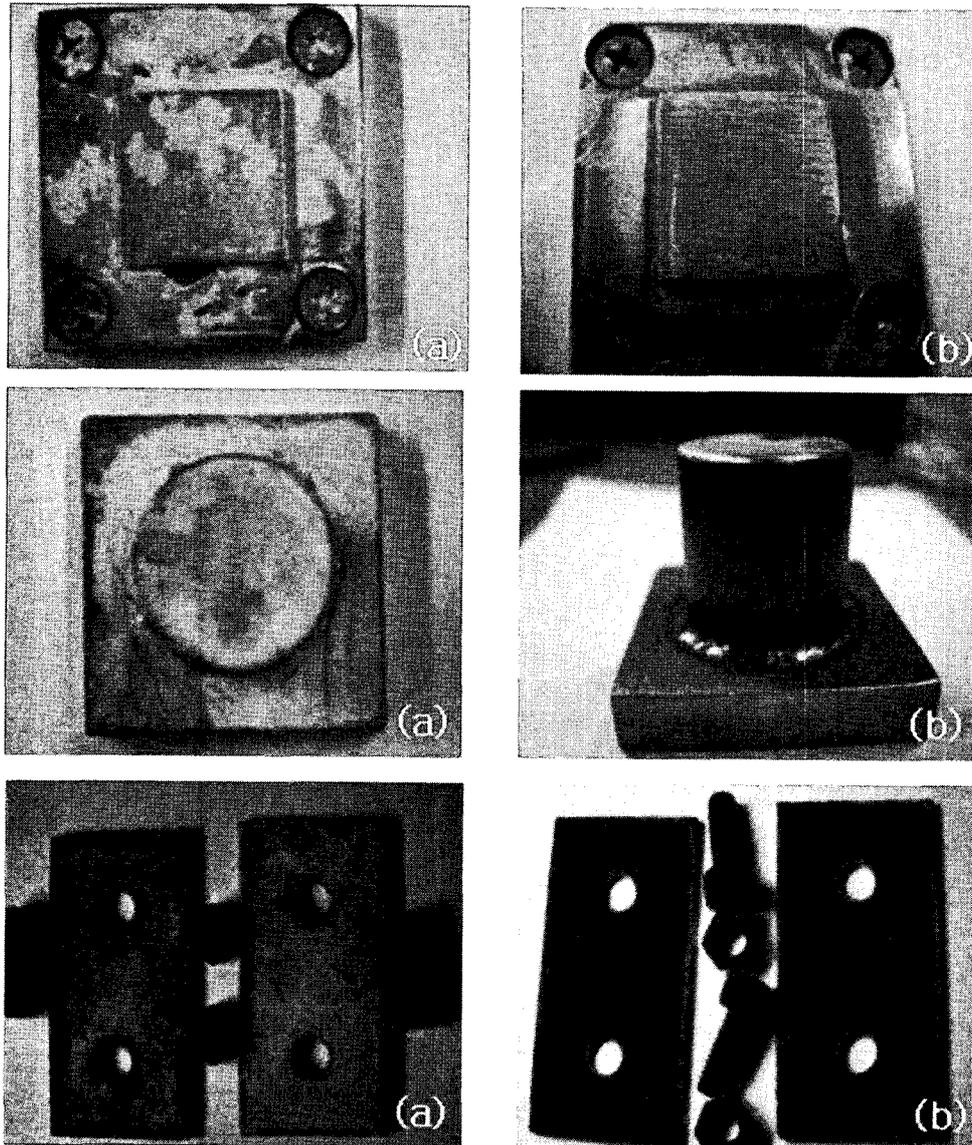


Fig. 3.1.2.28 3 types of surrogate specimens, application time 5 minutes, PFC + surfactant, (a) before and (b) after decontamination, respectively

② 분사제염 장치에 의한 기초실험

PFC 초음파 용액 제염 실험 시 사용된 평면형 직육면체 금속시편, 나사형 및 crevice 시편에 대한 PFC 분사제염연구를 수행하였다. Eu_2O_3 분말과 ethylalcohol을 혼합한 오염물질을 brush를 사용하여 제염시편 표면에 균일하게 도포 후 음지에서 건조하였으며 분사제염 압력을 견디기 위해 시편 지지대를 제작하였다. 나사형 시편에 대해 1분간 PFC 분사제염 공정을 적용하였으며 이에 대한 사진과 시편지지대를 Fig. 3.1.2.29 에 나타내었다.

직육면체 금속시편에 대해서도 1분간 PFC 분사 제염 공정을 적용하고 무게를 측정한 결과 시편 표면의 오염물이 완전 제거됨을 알 수 있었다.

Crevice 금속 시편에 대해 5분간 분사공정 적용하였고, 1 분 단위로 무게 변화를 측정하였다. 오염된 PFC 제염용액을 재생한 후 재생된 용액의 제염능을 확인하는 실험을 수행하였다. 제염 전 후 무게 측정 및 시편을 촬영하였다(Fig. 3.1.2.30). 초음파 제염공정을 적용하였을 때, 시편 외부에 약간의 오염물이 남아있었던 상황과는 다르게 오염물이 분사제염에 의해 완전 제거되었다. 무게 측정 결과 오염물의 $99.90 \pm 0.01 \%$ 가 제거됨을 확인하였다.

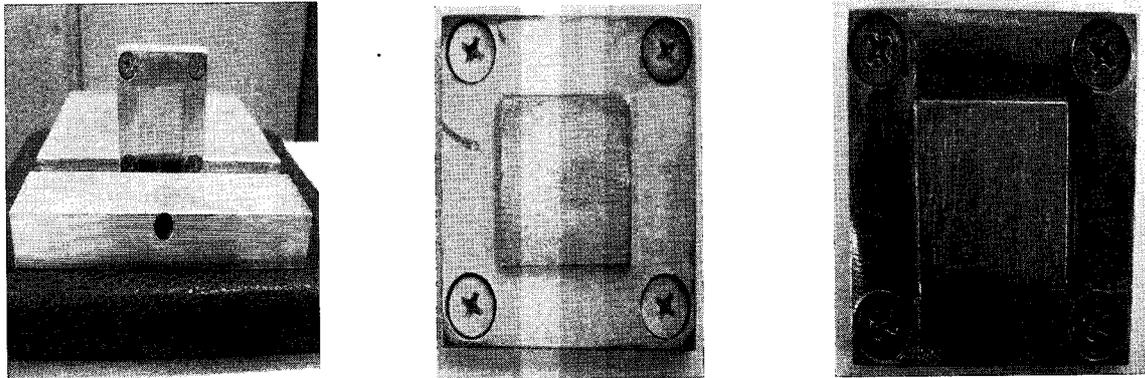


Fig. 3.1.2.29 Photographs of specimen holder, before and after PFC spray decontamination

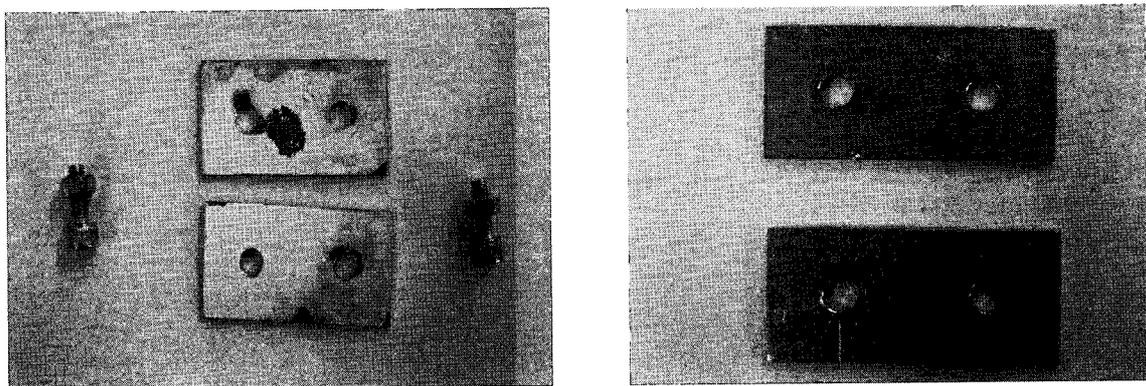


Fig. 3.1.2.30 Photographs of crevice specimen, application time 5 minutes, PFC + 0.1 % surfactant, (left) before and (right) after decontamination, respectively

Fig. 3.1.2.31에 증류에 의해 재생된 PFC 용액의 crevice 시편에 대한 제염성능을 도시하였다. 대부분의 오염물이 1분 내에 제거되며 그 후에는 제거 속도가 서서히 감소되는 경향을 보여준다. 증류장치에 의해 폐 제염용액을 3회 재생하였을 때에도 초기 용액과 변함없이 제염성능을 나타내고 있다. 이는 PFC 제염 용액이 거의 무한하게 재생되며 고가인 제염제의 손실 없이 경제적으로 사용할 수 있음을 의미한다.

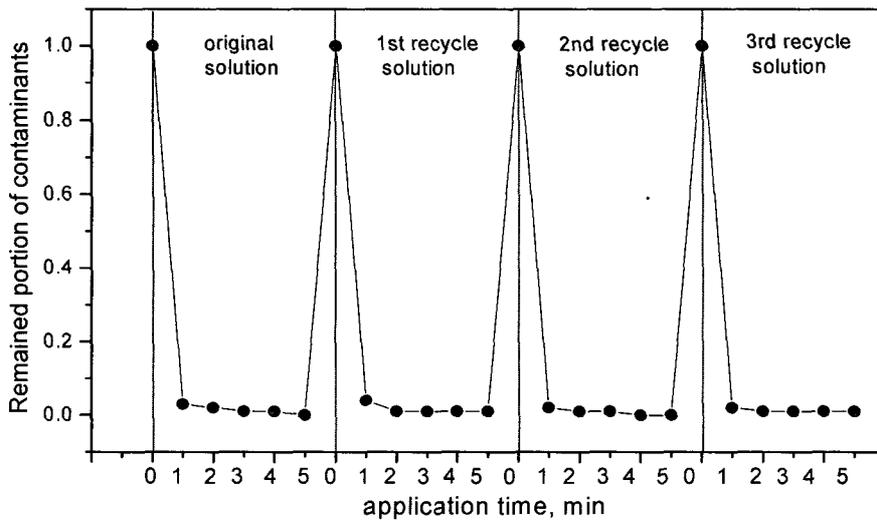


Fig. 3.1.2.31 Decontamination performance against time and recycle times

③ 증류에 의한 PFC 재생 실험

PFC 분사 제염실증 장치 내 증류기 가열 거동을 조사하였는데 초기 설정온도를 변화시켜가며 최고온도 도달 시간을 파악하였다. 냉매로는 드라이아이스를 사용하였고 증류대상으로는 액체가 없는 상태 및 PFC용액이며 그 결과를 Fig. 3.1.2.32 및 Fig. 3.1.2.33에 도시하였다.

제작된 장치를 사용하여 오염물 입도 변화에 따른 PFC의 증류거동을 살펴보았다. Al₂O₃ 분말을 사용하였고 입자 크기를 0.05, 0.3, 1.0, 3.0, 10.0 μm 변화시켰다. 그 결과를 Fig. 3.1.2.34에 도시하였고 데이터를 Table 3.1.2.1에 수록하였다. 여과 장치가 0.2 μm 이상의 입자를 제거하는 반면에 여과장치를 통과한 0.2 μm 이하 입자도 증류장치에 의해 효과적으로 제거됨을 파악하였다.

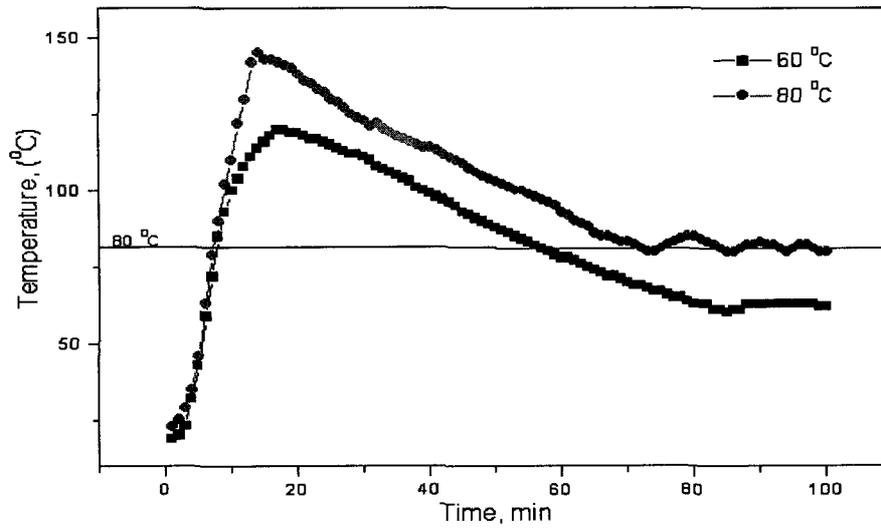


Fig. 3.1.2.32 Variation of temperature against time at two setting temperature conditions (no liquid)

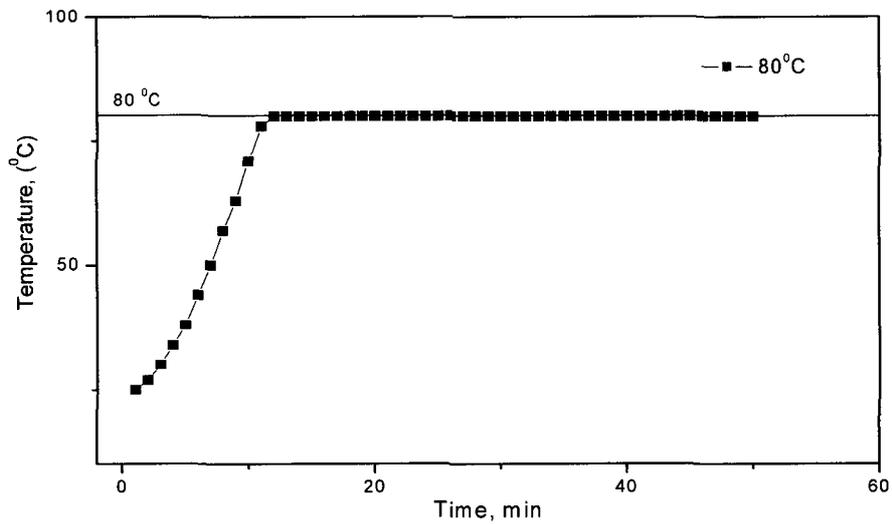


Fig. 3.1.2.33 Variation of temperature of PFC solution against time at 80 °C setting temperature

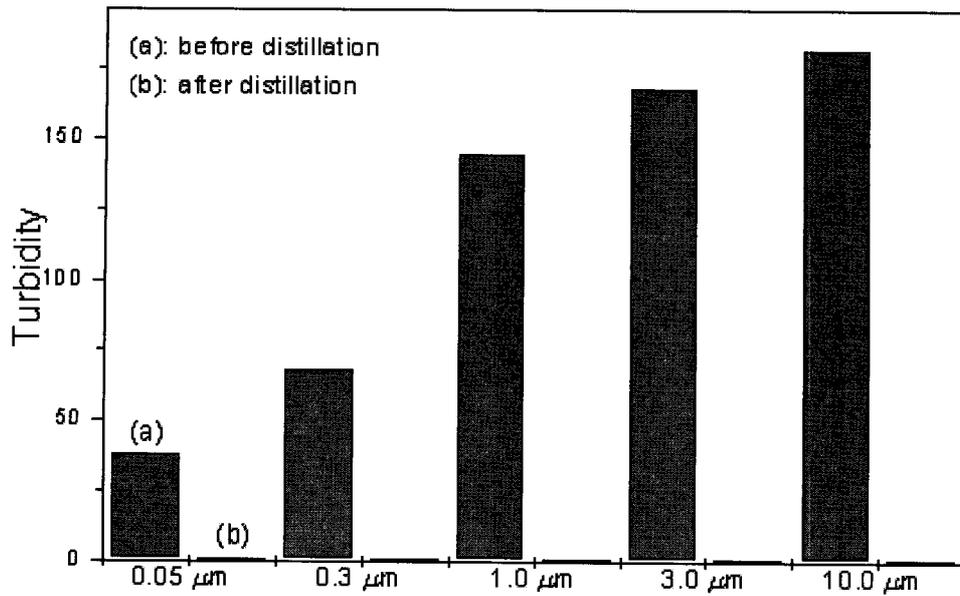


Fig. 3.1.2.34 Turbidity of PFC solution according to the particle size of Al₂O₃

Table 3.1.2.1 Turbidity of PFC solution

Particle size, μm	Turbidity, NTU		Remarks
	Before	After	
0.05	Before	38.1	Original PFC: 0.6 NTU 0.1g Al ₂ O ₃ /2L
	After	0.6	
0.3	Before	68.0	
	After	0.7	
1.0	Before	145.1	
	After	0.6	
3.0	Before	168.3	
	After	0.7	
10.0	Before	182.3	
	After	0.6	

PFC 증류장치 내 냉각관을 직선으로 제작한 결과 냉각재인 드라이아이스와 기체 PFC 가 접촉하는 면적이 작게 되었을 뿐만 아니라 냉각관 내 PFC 용액의 머무름

시간이 작아지는 현상이 나타내었다. 이를 극복하기 위해 냉각관을 구부려서 PFC와 접촉하는 면적을 넓게 개선하였으며 이를 Fig. 3.1.2.35에 도시하였다. 실험에 사용된 증류장치의 증류효율을 비교하여 Table 3.1.2.2에 수록하였다.

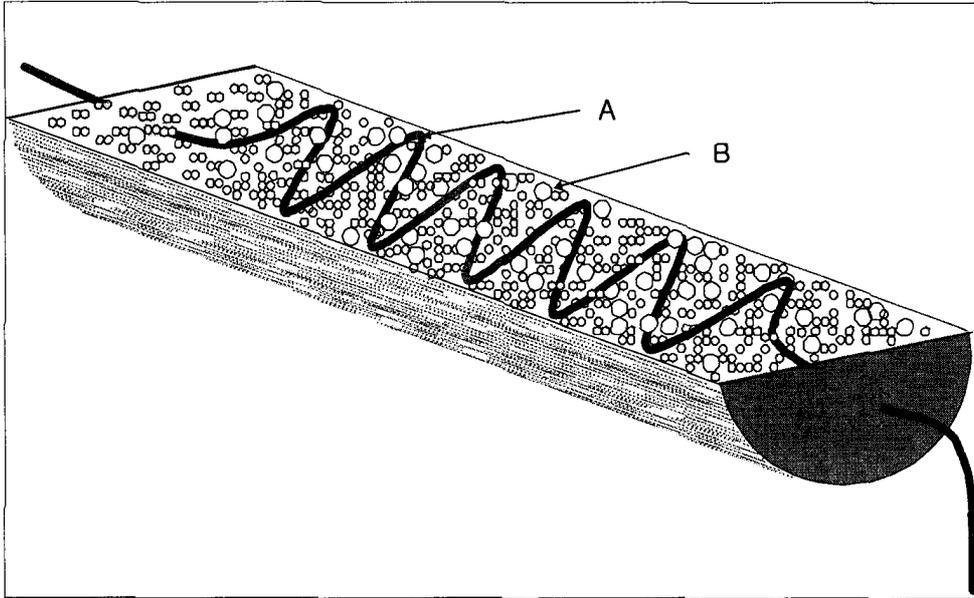


Fig. 3.1.2.35 Diagram of the PFC condensation tower (A: cooling tube, B: dry ice)

Table 3.1.2.2 Comparison of PFC distillation efficiency

	냉각 물질	가열 속도	가열 시간	증류 온도	증류시간	응축액 온도	회수율 (%)
초음파 제염 폐액	물	4 °C/분	15 분	80 °C	45 분	52 °C	97.5
개선 전 분사 제염폐액	드라이아이스	6 °C/분	12 분		30 분	46 °C	98.5
개선 후 분사 제염폐액						40 °C	99.1

(4) 고화체 검사시설 내 hot cell 에서의 PFC 분사제염 실증 실험

(가) 제염기술 실증

① 비 방사능 실험

PFC 분사 제염 공정의 제염성능을 살펴보기 위해 오염시편을 제조하여 실험에 사용하였다. 에틸알코올에 Eu_2O_3 분말을 첨가한 후 건조시킴으로써 모의 오염물질을 제조하였다. 나사형 및 원반형 시편(연마표면, 0.1 및 0.2 mm 직선형 scratch 표면

및 0.1mm 바둑판형 scratch 시편, 드라이아이스 분사제염시편과 형태 동일)과 튜브형 시편에 대해 모의 오염물질을 도포시킴에 의해 오염시편을 제조하였으며 건조 후 무게를 측정하고 제염 후 무게를 측정함에 의해 오염 물질의 제거량 으로부터 제염 계수를 환산하였다 제염 전후 시편에 대한 사진을 Fig. 3.1.2.36에 도시하였으며 제염 계수를 Table 3.1.2.3에 수록하였다.

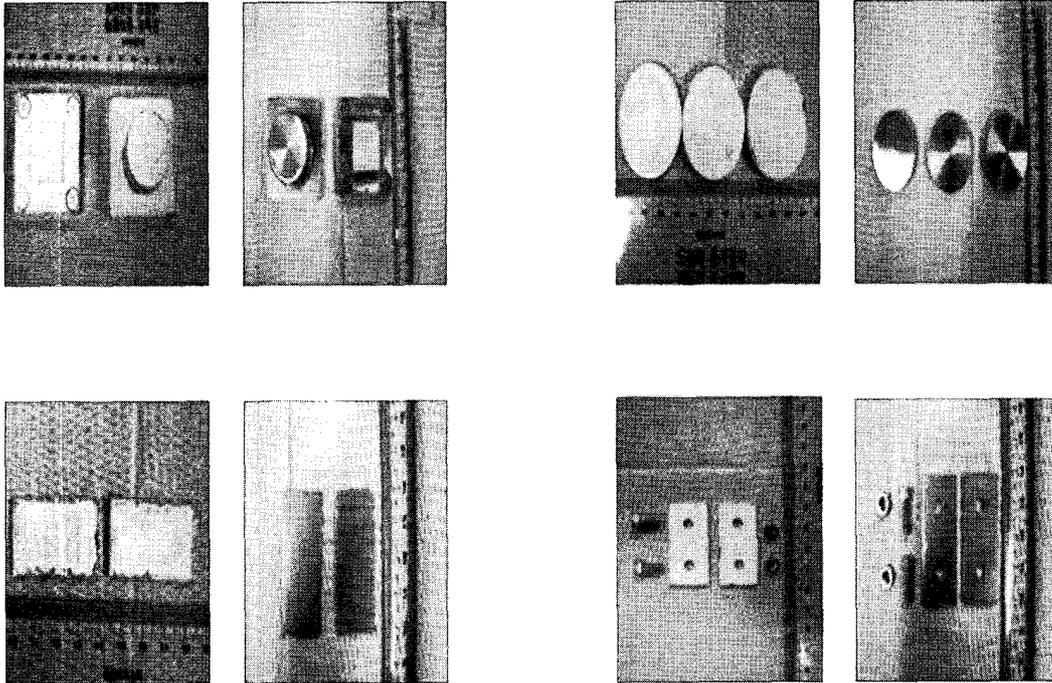
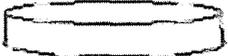
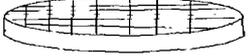
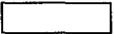


Fig. 3.1.2.36 Photographs of several shapes of metal specimens

Table 3.1.2.3 Decontamination factors(weight loss method)

Shape	Raw specimen(g)	After conta. (g)	After decont. (g)	D.F. (2min)	Remark
	161.2588	161.4321	161.2686	17.7	
	55.0556	55.0961	55.0555	405.0	Disc
	56.8647	56.8993	56.8648	346.0	Disc
	57.0508	57.0850	57.0512	85.5	Disc
	10.8080	10.8154	10.8082	37.0	Tube
	22.4140	22.4474	22.4151	33.1	Tube
	44.8003	44.8235	44.8014	21.1	Tube
	67.6170	67.6392	67.6185	20.2	Tube
	90.1290	90.1738	90.1412	15.8	Tube
	9.1364	9.1863	9.1365	229.0	Rectangular
	9.0334	9.0537	9.0336	101.5	Rectangular
	21.3995	21.9567	21.9004	63.5	Crevice

② 방사능 실험

PFC 분사 제염 공정의 방사성 핵종에 대한 제염성능을 살펴보기 위해 오염시편을 제조하여 실험에 사용하였다. Co-60과 Cs-137 핵종이 존재하는 수용액에 에틸알코올을 넣은 후 Eu_2O_3 분말을 첨가한 후 건조시킴으로써 모의 오염물질을 제조하였다. 나선형 및 원반형 시편(연마표면, 0.1 및 0.2 mm 직선형 scratch 표면 및 0.1mm 바둑판형 scratch 시편, 드라이아이스 분사제염시편과 형태 동일)에 모의 오염물질을 도포시킴에 의해 오염시편을 제조하였으며 건조 후 MCA로 방사능을 측정하였다.

분사제염기술의 실증은 한국원자력연구원 고화체 검사시설의 hot cell 내부에서 실증하였으며 manipulator의 작동 가능성 파악에 중점을 두었다.

분사제염 실증 장치를 비닐로 봉하여 장치가 오염되는 것을 방지하게 한 후 시설 내으로 이동하여 설치하였다.

방사능 오염 시편을 시편 holder 에 장착하고 120초 동안 PFC 분사제염 실시하였다. 제염 중 사진을 촬영하였으며 제염 후 건조시켜 시편표면에 잔존하는 방사능을 MCA 로 분석하였다.

제염성능을 평가하기 위해 시편별, 방사성 핵종별 제염계수를 도출하였으며 이를 통해 PFC 분사제염공정의 타당성을 증명하고자 하였다. 제염 전후 각 시편에 대한 표면 형상을 Fig. 3.1.2.37, Fig. 3.1.2.38, Fig. 3.1.2.39 및 Fig. 3.1.2.40 에 나타내었다.

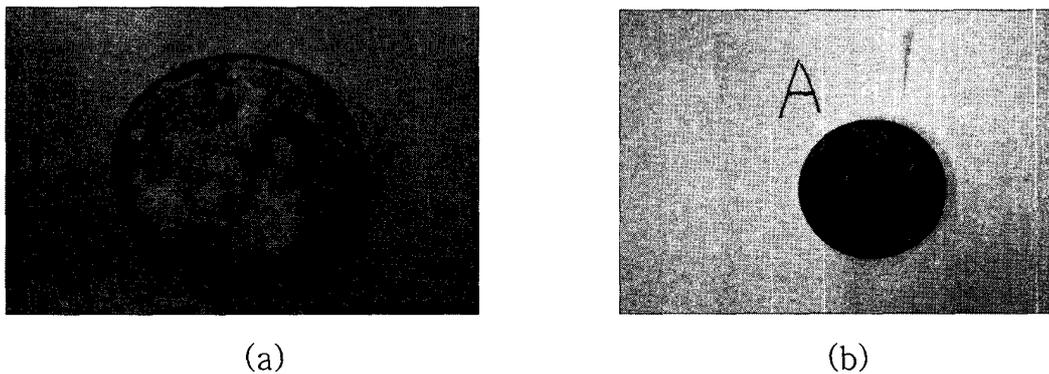
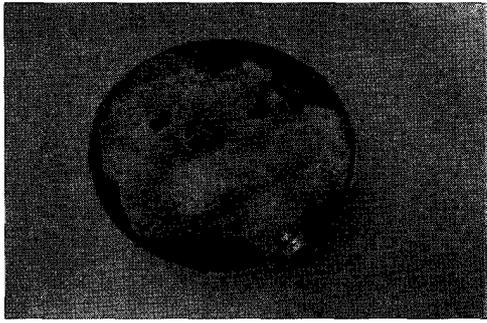
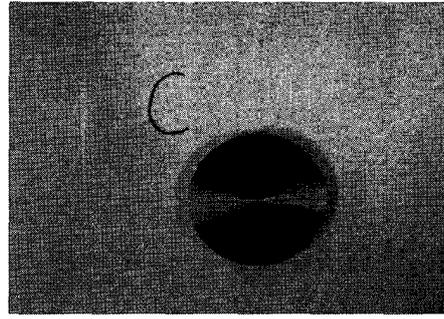


Fig. 3.1.2.37 Photographs of polished disc specimen (a) before and b) after decontamination

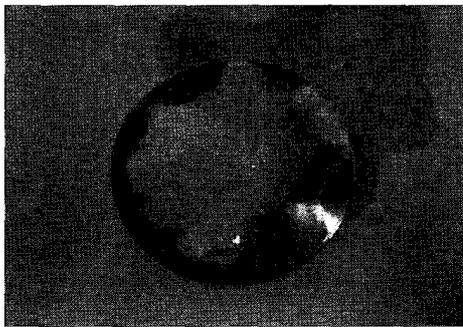


(a)

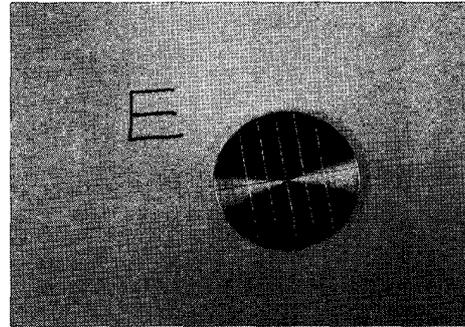


(b)

Fig. 3.1.2.38 Photographs of linear scratch disc specimen (a) before and b) after decontamination

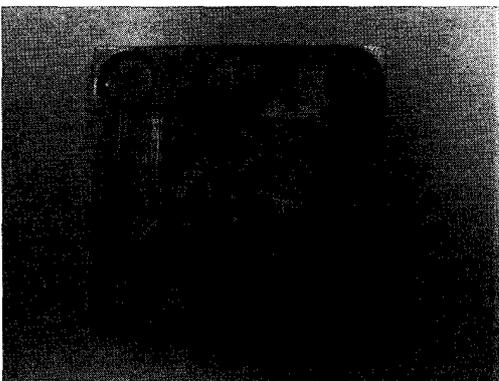


(a)

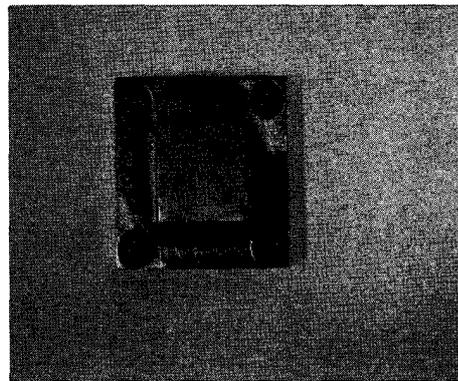


(b)

Fig. 3.1.2.39 Photographs of cross line scratch disc specimen (a) before and b) after decontamination



(a)



(b)

Fig. 3.1.2.40 Photographs of screw type specimen (a) before and b) after decontamination

원반형 및 나사가 있는 시편에 대한 제염계수를 Table 3.1.2.4에 수록 하였다. 데이터로부터, 원반형 시편에 있어서, 시편 표면에 흠이 없을수록 제염 계수가 높아지는 경향을 보이고 있다. 나사형 시편의 경우, 시편 표면에 깊은 흠이 있음에도 불구하고 Co-60 및 Cs-137 에 대해 90 % 이상의 오염물이 제거됨을 알 수 있다.

실험에 사용된 모든 시편에 대해 제염계수는 9.6으로부터 96.4 의 범위에 있으며 드라이아이스 펠렛 블라스팅법에 비해 제염 효과가 약함을 보여주고 있다. 그러나, PFC 자체가 쉽게 증발하고 orifice diameter가 0.2 mm 인 점을 감안한다면 물리적으로 오염된 지역뿐만 아니라 crevice 와 같은 지역에 효과적으로 적용할 수 있을 것으로 판단된다.

초음파 제염공정, 개선 전 분사 제염공정(orifice 끝과 제염면의 거리 1 cm) 및 개선 후 분사제염공정(orifice 끝과 제염면의 거리 0.5 cm) 의 제염성능을 비교하기 위해 직육면체 시편에 대해 각 제염 공정을 적용하였으며 그 결과를 Fig. 3.1.2.41에 도시하였다. 세 공정 중, 초음파 제염공정에서의 반응 초기 제거 속도가 가장 느리고 개선 전(spray 1) 및 개선 후의 순서로 초기 제거 속도가 증가한다.

Table 3.1.2.4 Decontamination factors of specimens

Specimen		Radioactivity, Bq/1000cm ²		D.F.
		before	after	
Disc, no scratch	Co-60	872.4	20.3	43.1
	Cs-137	832.5	10.1	62.4
Disc, linear scratch, Depth: 0.1 mm	Co-60	732.4	49.6	14.8
	Cs-137	942.2	53.4	17.6
Disc, linear scratch, Depth: 0.2 mm	Co-60	853.1	45.8	18.6
	Cs-137	627.4	34.5	18.2
Disc, cross line scratch, Depth: 0.1 mm	Co-60	931.5	69.6	15.4
	Cs-137	821.3	85.6	9.6
Screw type	Co-60	895.3	82.7	10.8
	Cs-137	386.2	26.9	14.4

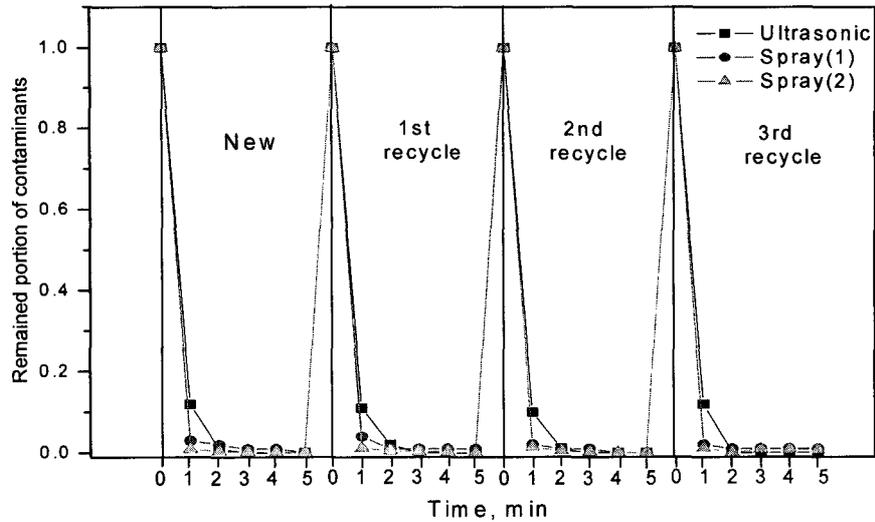


Fig. 3.1.2.41 Decontamination efficiency of three equipments against time on the rectangular type metal specimen

(나) 제염공정 실증

① 장치 개선 전 분사 제염 실증

작업자가 통행할 수 없는 상황 하에서 PFC 분사 제염 공정을 적용하는 것이 가능한지 확인하는 실험을 수행하였다.

검사된 항목은

- manipulator 가 분사부분을 적절히 잡을 수 있으며 요구되는 제염 지역에서 가동하는데 문제가 없는지
- 1/4" flexible hose를 통해 PFC 용액이 1 m 높고 5 m 거리에 위치한 분사부까지 잘 이동되는지
- 전원과 제염장치는 적절하게 배치되어 있으며 제염 시 효과적으로 전원을 끄고 켤 수 있는지
- 제염 작업 사항을 hot cell 밖에서 명확히 감시할 수 있는지
- Vacuum cup 제작을 위한 설계 인자 도출 및
- 제염 후 분사 제염 장치의 오염 여부 등 이었다.

고화체 검사시설 내 hot cell에서의 PFC 분사 제염 실증장면을 Fig. 3.1.2.42에

도시하였다. Fig.에 보여지는 바와 같이 제염 실증 작업은 다양한 시편에 대해 계획대로 수행되었다. 그러나, manipulator가 분사부를 정확히 잡기위해 분사부에 manipulator의 손잡이 필요, 직선운동에 의해 manipulator 가 이동함에 따른 운전의 어려움, 분사부에 진공이 걸리지 않는 관계로 제염용액이 바깥으로 노출, 분사부가 stainless steel 로 제작됨에 따른 제염작업 감시의 어려움이 문제점으로 도출되었으며 이를 해결하기 위해 PFC 분사제염 장치를 개선 제작 하였다. 개선된 장치를 이용하여 PFC 분사 전체제염공정을 실증하였다.

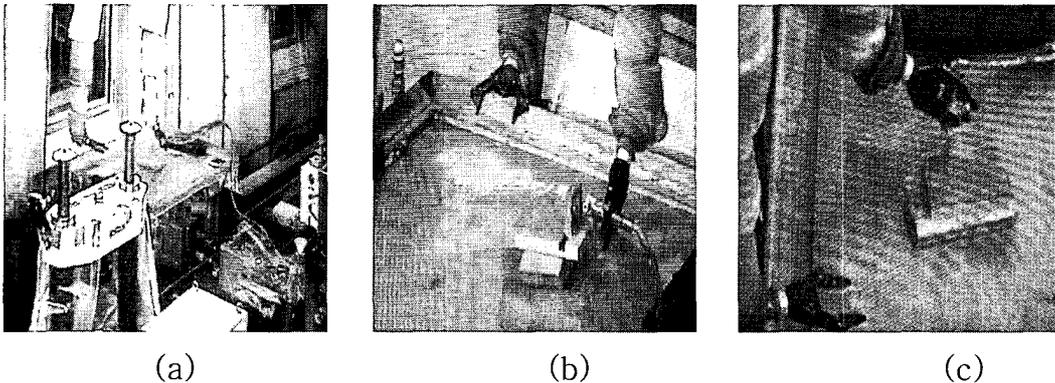


Fig. 3.1.2.42 Photographs showing (a) the overview of the decontamination demonstration system, decontamination of (b) disk specimen and (c) the screw type specimen

② 장치 개선 후 PFC 분사 제염 전체 공정 실증

PFC 분사제염 공정은 분사, 회수, 여과 및 증류의 단위 공정으로 이루어지며 제염 실증을 수행하는 중에 각 단위공정들이 서로 조화롭게 운전되는지를 확인하는 실험을 수행하였다.

개선된 부분은

- PFC 분사 및 회수용 vacuum cup 으로 분사되는 장면을 볼 수 있도록 재질을 아크릴로 제작하였고, 진공도를 높이기 위해 접촉부를 고무재질로 덮었으며, 분사 노즐부와 오염표면 사이의 거리를 0.5 cm로 접근시켰다. 또한, manipulator로 작동을 용이하게 할 수 있도록 프로펠러 모양의 부착물을 설치하였다

- PFC 회수용 증류장치를 개선하였는데 전에 언급된 바와 같이 증류에 의한 회수 효율을 높이기 위해 냉각관과 냉매의 접촉비율을 높였으며, Dry ice를 냉매로 사용함에 따라 저온에서 응축됨에 따른 회수 효율 증대를 도모하였다. 그리고 tap water를 사용할 수 없는 hot cell 내에서 사용 및 안전성을 증대시켰다.

고화체 검사시설 내 hot cell 에서의 PFC 분사 제염 전체 제염공정의 실증장면을 Fig. 3.1.2.43 및 Fig. 3.1.2.44 에 나타내었다. 개선 전 실증실험에 사용되었던 소규모 오염시편 대신에 고 방사성 시설의 hot cell 내부 벽면을 모사한 시편을 제작(1 m X 1 m)하여 거치대를 설치하였다. Fig. 3.1.2.43 에 보이는 바와 같이 manipulator는 vacuum cup과 flexible hose를 용이하게 연결할 수 있었다. 사용된 PFC 용액은 vacuum cup 에 의해 손실 없이 회수되었으며 한 구역의 제염 후 다른 구역으로 용이하게 이동할 수 있었다. Fig. 3.1.2.44 에 나타난 바와 같이 여과 unit와 증류 unit 를 사용하여 회수된 PFC 용액을 깨끗이 정화할 수 있었다.

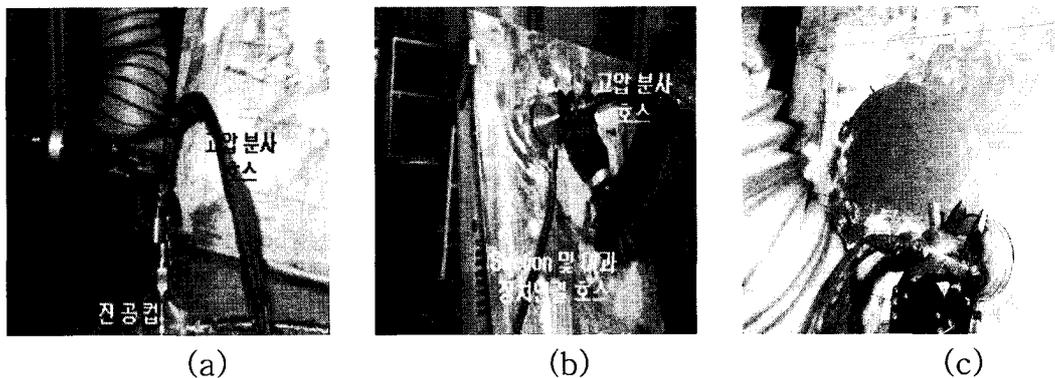
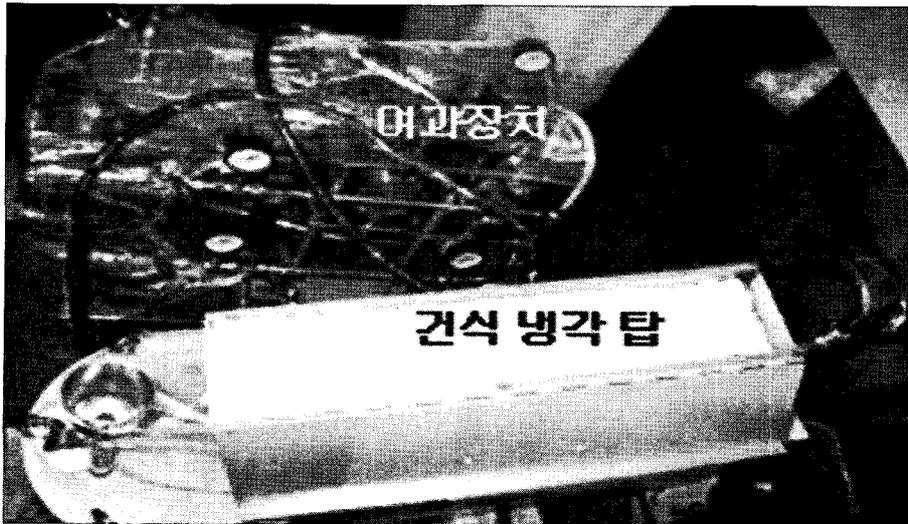
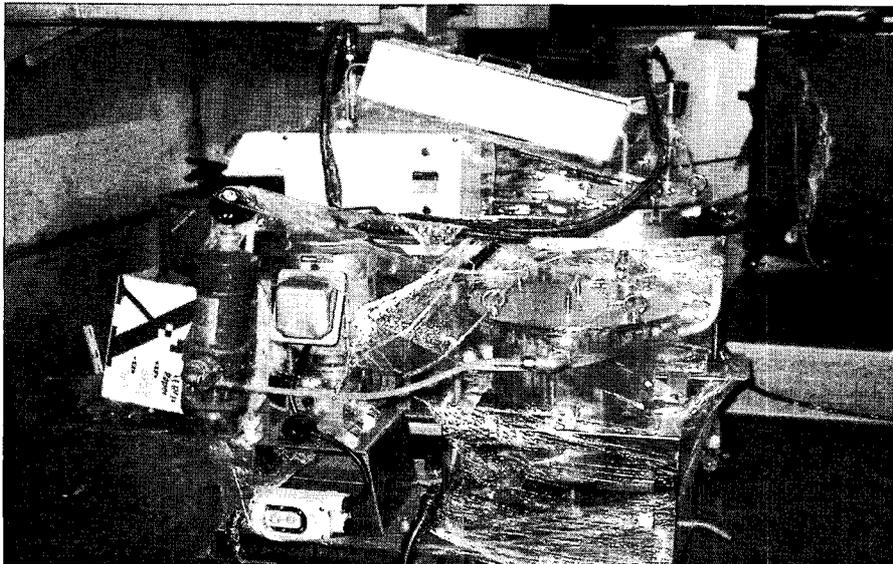


Fig. 3.1.2.43 Photographs showing (a) the connection between a vacuum cup and the flexible hose, (b) the suction of PFC solution and (c) the movement of vacuum cup



(a)



(b)

Fig. 3.1.2.44 Photographs showing (a) the connection between a filtration and the distillation unit and, (b) the purification of spent PFC solution by the filtration and the distillation unit

(5) IMEF hot cell 내에서의 PFC 분사제염 실증 실험

전술한 바와 같이, 분사제염 공정의 성능을 평가하기 위해 방사능 분석을 위한 smear test 용 filter paper 지지대 및 manipulator 손잡이를 제작하였다. 안전성 확보와 제염 실증 후 발생하는 방사성폐기물의 부피를 최소화하기 위해 따로 PFC 분사제염

폐액 회수장치를 설계, 제작하였다.

IMEF M4 hot cell 내 padirac door를 통해 PFC 분사/vacuum cup 및 회수 모듈, smear test 장치를 투입한 후 padirac door를 닫았다. Toboggan을 통해 고압 분사 호스만을 따로 투입하였다. PFC 분사를 위한 고압 펌프는 hot cell 외부에 위치시켰다.

Smear test를 실시하기 위해 manipulator holder와 smear paper supporter를 manipulator에 의해 연결한 후(Fig. 3.1.2.45.a). 이를 고정 시켰다(Fig. 3.1.2.46.b). 이 후, M4 cell 좌측 inter-cell door 표면에 대해 smear test(100 cm², paper 직경 2", Fig. 3.1.2.45.c)를 실시하였다.

제염기술의 실증을 위해, manipulator를 이용하여 PFC 분사/vacuum cup에 flexible hose를 연결하였다(Fig. 3.1.2.46.a). 제염을 위한 준비 작업(Fig. 3.1.2.46.b)을 마친 후 제염을 수행하였다(Fig. 3.1.2.46.c). 사진 상의 A, B는 smear test한 부분을 나타낸다. A, B를 평균한 제염계수는 14.4 로 90 % 이상의 방사성 오염물이 제거되었음을 증명하였다. Fig. 3.1.2.46.d 는 제염 중 PFC 폐 용액이 회수되는 장면을 보여 준다.

제염 실증 시험이 완료된 후 M4 cell 내에 놓여진 flexible hose는 외부의 flexible hose와 절단하여 수거되었고, vacuum cup 및 회수 장비는 방사성폐기물로 구분하였다.

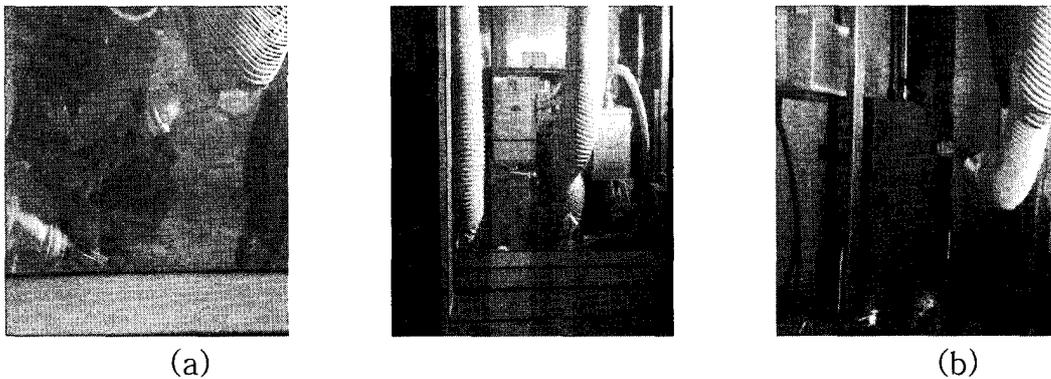
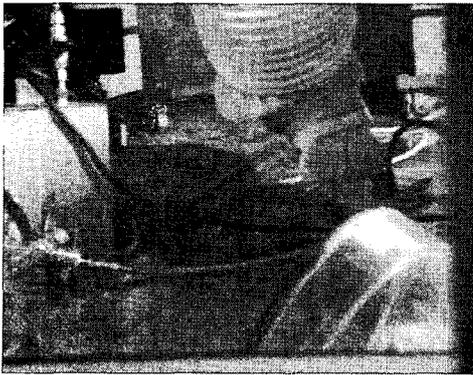
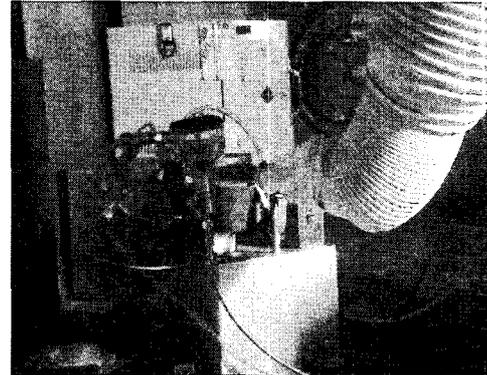


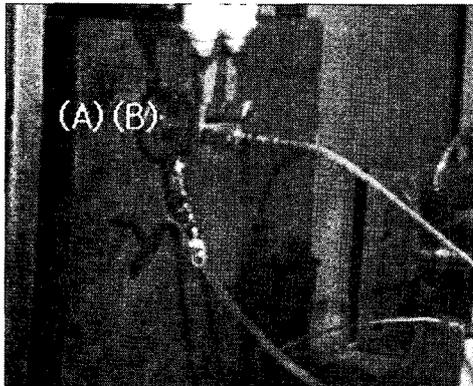
Fig. 3.1.2.45 Smear test by the manipulator, (a) connection between the smear paper supporter and manipulator holder, (b) fixing of smear paper supporter and (c) smear before and after decontamination



(a)



(b)



(c)



(d)

Fig. 3.1.2.46 Decontamination of M4 hot cell, (a) connection between the spent PFC collection equipment and power supply,(b) decontamination preparation, (C) decontamination scene, where the white letters represent the smearing points and (d) the collection of the spent PFC solution

다. 결 문

국내 고 방사능 시설에 사용되는 설비나 장치는 사용후 핵연료 및 시설 특성에 의존하므로, 이들 시설 및 설비들을 대상으로 PFC 건식 제염공정을 개발하였다. 개발된 제염 공정은 PFC 초음파 제염 공정 및 분사 제염공정이다.

PFC 초음파 제염 공정 개발을 통해 분사제염 장치 제작을 위한 설계 인자를 파악하였으며 초음파 제염공정이 시설로부터 방출되는 물리적으로 오염된 폐기물의 제염에 효과적임을 확인하였다.

고화체 검사 시설 hot cell 내 실증 실험을 통해 분사, 회수, 여과 및 증류의 전체

제염공정이 효과적으로 이루어짐을 증명하였다. 또한, 본 공정의 특징인 여과 및 증류공정을 혼합 사용함에 따른 2차 방사성폐기물의 양을 획기적(99 % 이상 저감)으로 감소시킬 수 있음을 입증하였다. 증류 공정에서 냉각재로 물 대신 드라이아이스를 사용함에 따라 제염 공정의 안전성을 높이고 tap water가 없는 고 방사성 지역에서 PFC 분사 제염공정을 성공적으로 적용할 수 있음을 확인하였다.

IMEF 시설의 M4 cell을 대상으로 한 PFC 분사제염 공정의 실증 결과, 제염 계수는 14.4 로서 PFC 분사제염 공정의 제염 성능을 증명(제거율 목표 90 % 이상 달성) 하였다.

본 연구를 통해, hot cell 내에 적용 가능한 PFC 분사 제염공정을 개발하여 실증하였다. 국내 원자력 연구 관련 시설이 노후화됨에 따라 차후 이들에 대한 보수작업 및 해체가 이루어질 것으로 예측된다. 본 기술을 적용함에 따라 보수 및 해체관련 작업자의 작업환경을 보호할 수 있을 뿐만 아니라 제염작업을 해외기술로 적용함에 따른 외화손실을 상당부분 감소할 수 있을 것으로 판단된다.

3. 플라즈마 제염 기술 개발

가. 서문

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 복합 공정이 요구된다.

이러한 관점에서 국내에서 계속해서 수행되고 있는 경·중수로 연계 핵연료 주기 기술개발, 사용 후 핵연료 관리 및 이용 기술 개발, 균분리 공정 개발 및 장수명 핵종 전환공정 등의 연구시설은 연구/기술개발 과정 중에 다양한 형태와 핵종에 의해 오염되었을 뿐만 아니라 오염된 기기/부품들을 시설 내에 보유하게 된다. 이러한 시설내의 주요 오염 핵종은 원자로 운전 중에 방사화한 부식 생성물(CP)이나 냉각수와 함께 운반되어 부착 또는 침착되어 1차 냉각계의 배관, 기기류를 오염시키는 핵분열 생성물(FP) 폐기물, 그리고 시설 내 오염을 유발할 수 있는 U, Pu 같은 TRU 핵종들로서 시설 내에서 이들의 오염 제거는 매우 중요하다.

이러한 오염 핵종의 제염처리 시 제염설비, 제염공정, 2차 폐기물 등을 고려해볼 때 습식처리의 경우 선택적 제염이 불가능하고 해체~제염~폐액 처리 후 다량의 2차 폐기물이 발생하기 때문에 그 적용에 한계가 있어 일본과 미국 등 주요 원자력 선진국에서는 고효율성 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.

실제 방사성 폐기물 처리 방법에서 가장 중요한 기준 중의 하나는 어떤 공정이 최대 제염 효과와 이에 따른 부피 감용효과를 낼 수 있는 가하는 것이다. 이러한 관점에서 볼 때 플라즈마 처리 공정은 표면 오염 핵종과 휘발성 화합물 생성 반응성이 매우 높은 원소/원자들을 플라즈마를 이용해 발생시켜 오염원인 방사성 핵종과의 선택적 반응을 통해 기화시켜 제거하는 방식이기 때문에 방사성 부식 생성물(CP)이나 핵분열 생성물(FP), 그리고 U, Pu와 같은 TRU 핵종에 의해 발생하는 오염 폐기물의 경우 오염 핵종만을 선택적으로 제거하는 것이 가능하다. 그에 따라 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.

그러므로 처리 방식이 최근 국제적으로 주목받고 있는 플라즈마 건식 제염 기술의 경우 우리도 국제 경쟁력을 갖기 위해 우선적으로 DUPIC, SF차세대관리, 장수명 핵종 전환공정 등의 시설에 적용할 수 있는 기술 개발을 서둘러야 할 것으로 사료된다. 또한 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.

나. 본문

(1) 오염 핵종별 제염 특성 평가

(가) TRU 핵종의 제염 특성 연구

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. U, Pu와 같은 TRU들의 경우는 fluoric compound를 생성하는 기체 플라즈마를 이용하는 것이 일반적이나 까다로운 플라즈마 장치의 설계 및 제작과 함께 어떤 혼합 기체를 어떤 조건, 즉 어떤 공정을 채택하는가 하는 것이 플라즈마 건식 처리 연구의 핵심이다.

따라서 본 연구에서는 F_2 기체가 우라늄 (TRU핵종) 과의 반응성이 뛰어나다는 점에 착안하여 반응도가 높은 CF_4/O_2 기체에 N_2 를 첨가하여 실험을 수행하였다. 이 혼합기체에 대해 r.f. power를 이용하여 TRU 핵종의 제거를 위해 최적의 플라즈마 제염 조건을 확보함과 아울러, 이 공정을 바탕으로 TRU 핵종의 제염 특성 연구를 수행하였다.

① 실험 절차

본 연구에서 시편은 이산화우라늄 펠렛을 가공하여 사용하였다. 시편 제조를 위해 이산화우라늄 펠렛을 저속 다이아몬드 절단기 (low speed diamond saw)를 이용하여 0.35 mm 가량의 원판 형태로 절단한 후 입도 수 600 의 연마지로 표면을 고르게 한 후 아세톤에 담가서 초음파 세척기를 이용하여 세척하였다. 세척을 한 다음 수분 제거를 위하여 플라즈마 용기 내에서 200 °C로 약 20분간 baking하였다. 이 때 이산화우라늄의 산화를 방지하기 위하여 플라즈마 용기 내부는 기체 확산 펌프를 이용하여 진공 상태를 유지하였다.

이산화우라늄의 식각 반응 실험에서 식각률은 시편을 반응 시켜서 반응 전후의 질량 차로 계산하였다. 실험을 진행하기 전에 반응 용기를 청결히 유지하고, 잔류 H₂O를 제거하기 위하여 적당히 baking을 하였다.

r.f. 출력을 100 W로 고정하고 시편 온도에 따른 식각률 변화를 관찰하였다. 이러한 기초 실험을 통해서 CF₄/O₂ 기체를 이용한 플라즈마의 최적 제염 공정을 도출하고자 하였다.

② 실험 결과 및 논의

r.f. 출력이 100 W일 때, 총 유량을 50 sccm, 반응시간은 100 분씩, 시편 표면의 온도를 210 °C, 290 °C, 370 °C로 변화시켰을 때의 반응식각율을 Fig. 3.1.3.1에 나타내었다. Arrhenius 도식을 통해서도 반응 온도가 증가하면 식각률도 따라 증가한다는 사실을 확인 할 수 있었다.

Fig. 3.1.3.1.에 나타나듯이 이산화우라늄의 표면 온도가 증가할 경우 식각률이 증가함을 알 수 있었다.

이 결과로부터 시편온도가 식각율에 있어 매우 중요한 영향을 미치고 있다는 사실을 알아내었다.

(나) CP, FP 핵종의 제염 특성 연구

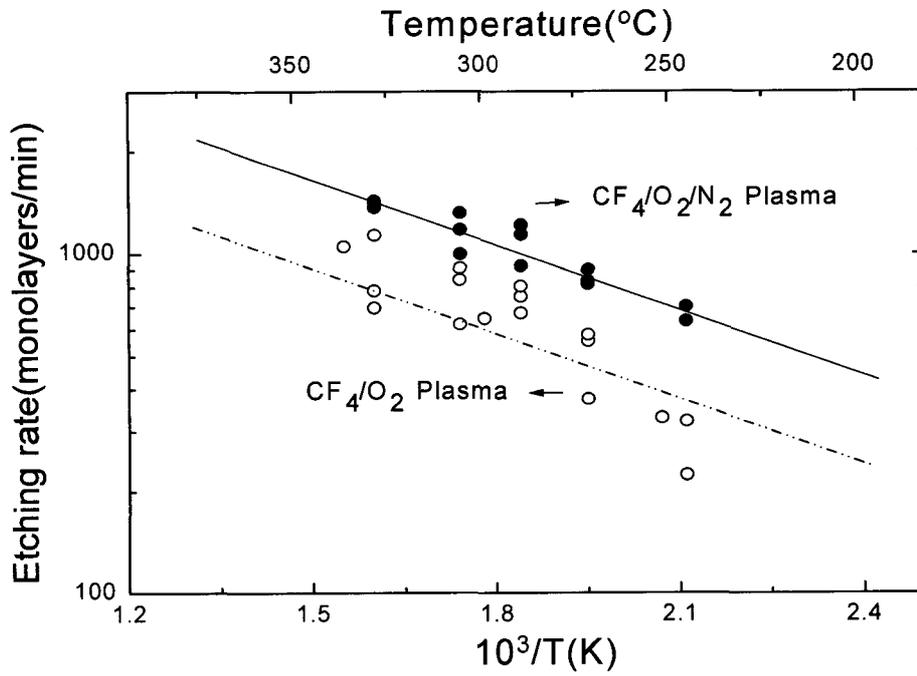
대표적인 금속성 오염물질을 파악하기 위하여 우선 고리 1호기 인출 전열관의 γ -spectroscopy를 이용한 성분분석을 수행하였다. 성분 분석 결과 Co-58, 60, I-131, Mn-54, 그리고 Ag-110m 등이 검출되었으며 이 중 83% 정도가 Co-58, 60이었다. 따라서 최적 제염공정 도출을 목표로 실질적인 연구 수행을 감안하여 부식생성물(CP) 핵종은 Co를 채택하였으며, 핵분열 생성물(FP) 핵종으로는 Mo를 선택하였다.

이렇게 선정된 금속원소들을 대상으로 플라즈마 최적 공정 조건을 도출하기 위한 다양한 변수의 제염 기초 실험을 수행하였다.

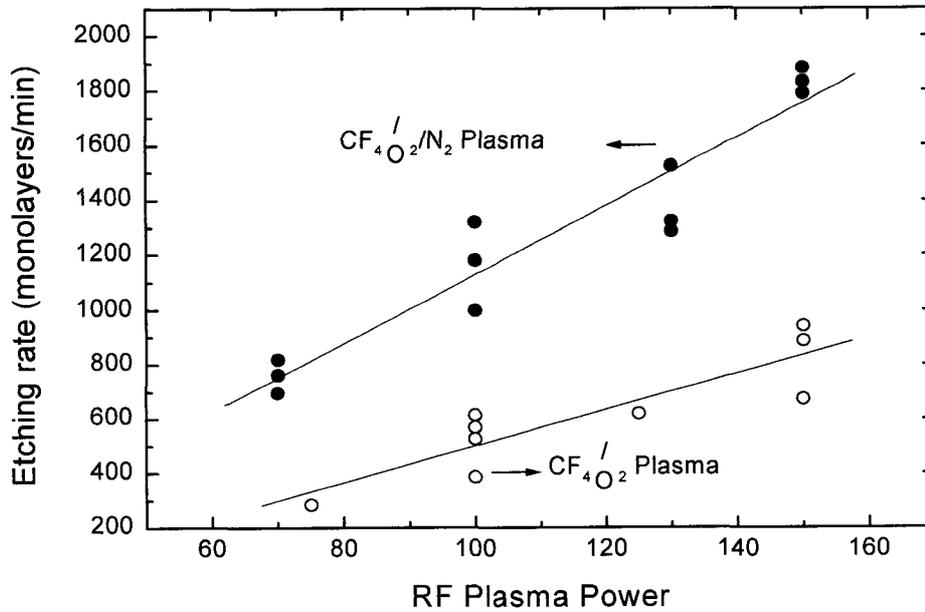
① 실험 절차

기초 실험 여건 상 방사성 동위원소를 직접 사용할 수 없기에 식각조건이 더 까다로운 bulk 형태의 순수 금속을 사용하였다. 각 시편에 대한 성분은 99.8 %이상의 시편을 사용하였다. 세 가지 시편 모두 low speed diamond cutter로 1mm 가량의 얇은 사각 형태나 디스크 형태로 절단한 후 grid #600의 sandpaper로 표면을 polishing하였

고, 아세톤을 넣은 초음파 세척기로 세척을 한 다음 수분제거를 위해 플라즈마 용기 내에서 200 °C로 약 10 분간 baking하였다.



(a) Etching rate vs. temperature



(b) Etching rate vs. r.f. power

Fig. 3.1.3.1 Etching rate of UO_2 in 80% CF_4 /20% O_2 plasma with 5% N_2 addition

이 실험에서는 시편을 플라즈마 반응 용기에 넣고 시편의 온도를 할로젠 히터를 이용하여 변화시켜 실험을 수행하였다. 위와 같은 방법으로 시편 표면의 온도에 따른 식각율을 도출하였다.

② 실험 결과 및 논의

금속 코발트와 몰리브데늄의 플라즈마 반응실험은 각각 시편표면의 온도변화에 따른 식각율 변화에 대하여 수행하였다.

식각실험은 플라즈마 반응 전후의 질량 차이를 측정하고 이 질량차를 mg/dm^2 로 나타내었고 이를 $\mu\text{m/min.}$ 으로 환산하였다.

㉠ 금속 코발트의 식각 실험 결과

온도에 따른 영향을 살펴보기 위해 RF 출력을 220 W로 고정하고 시편 표면의 온도를 290, 350, 380 $^{\circ}\text{C}$ 로 변화시켜주면서 각각 120 분씩 반응시켜 온도에 따른 식각율 도출 실험을 수행하였다.

- 금속 코발트의 CF_4/O_2 플라즈마 식각 실험 결과

Fig. 3.1.3.3의 실험결과를 보면 알 수 있듯이, 온도가 올라감에 따라 식각율이 증가함을 알 수 있다. 또한 290 $^{\circ}\text{C}$ 에서 350 $^{\circ}\text{C}$ 사이에는 식각율이 극히 미미하였으나 350 $^{\circ}\text{C}$ 에서는 약간의 식각율을 보이고 있으며 380 $^{\circ}\text{C}$ 에서 급격히 증가한 높은 식각율을 보이고 있다. 이때 최고 식각율은 0.06 $\mu\text{m/min.}$ 이었다.

여기에서 알 수 있듯이 코발트는 온도에 따라 의존성이 큰 것을 확인할 수 있다. 이것은 350 $^{\circ}\text{C}$ 를 넘어야 코발트와 F 간의 결합이 이루어져 제염이 진행 된다는 것을 알 수 있다.

플라즈마와 화학 반응만을 이용하는 경우 350 $^{\circ}\text{C}$ 부터 식각 반응이 일어나기 시작했으나 바이어스 전압을 코발트 시편에 인가한 경우의 식각율 변화를 비교해본 결과 바이어스 전압이 시편의 반응 초기 온도를 낮춘다는 사실을 알 수 있었다. -300 V DC 바이어스 전압을 인가하였을 때 290 $^{\circ}\text{C}$ 에서도 활발히 식각이 일어났으며 350 $^{\circ}\text{C}$ 에서는 식각율이 약 20 배 정도 증가하였다. 최고 식각율은 420 $^{\circ}\text{C}$ 에서 1.14 $\mu\text{m/min.}$ 이었다 (Fig. 3.1.3.2).

- 금속 코발트의 SF_6/O_2 플라즈마 식각 실험 결과

SF₆/O₂ 기체를 사용한 실험 결과 코발트 시편의 경우 CF₄/O₂ 기체를 사용한 경우보다 식각율이 약 2.5배 향상되었으며 최대 식각율은 420°C에서 2.56 μm/min이었다(Fig. 3.1.3.3).

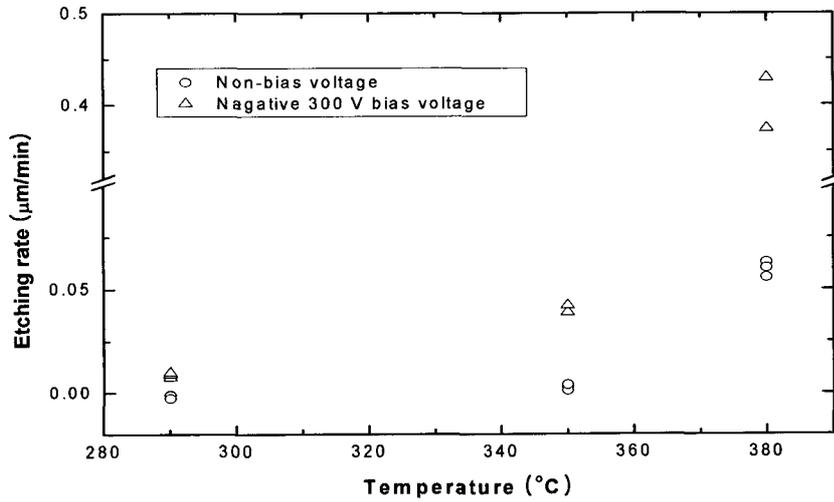


Fig. 3.1.3.2 Co etching rate vs. substrate temperature under 220 W r.f. power. (CF₄/O₂ plasma gas 100 sccm, reaction time: 120 min.)

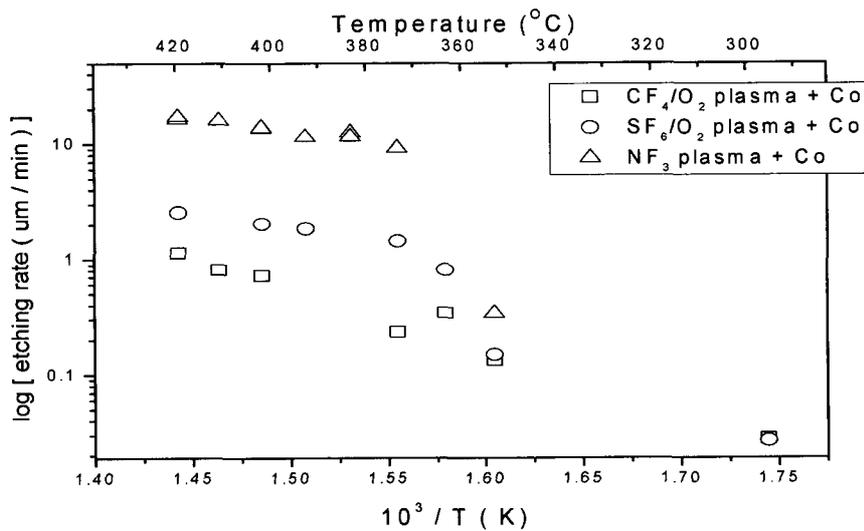


Fig. 3.1.3.3 Etching rate of metallic Co vs. temperature and gas

- 금속 코발트의 NF_3 플라즈마 식각 실험 결과

NF_3 기체를 사용한 실험 결과 코발트 시편의 경우 SF_6/O_2 기체를 사용했을 때보다 식각율이 약 6배 이상, CF_4/O_2 기체를 사용하였을 때보다 약 15배 향상되었다. 이때 최대 식각율은 420°C 에서 $17.12\ \mu\text{m}/\text{min}$ 이었다(Fig. 3.1.3.3).

실험 결과를 뒷받침하기 위해 SEM을 통해 표면 구조 분석을 하였다. Fig. 3.1.3.6은 반응 전후 플라즈마 기체별로 표면이 식각된 모습이다. Fig. 3.1.3.4 (b)~(d) 를 통하여 플라즈마 반응 기체의 종류에 따라 표면의 거칠기가 다르다는 것을 확인할 수 있다. 식각율 도출 결과와 마찬가지로 CF_4/O_2 기체를 사용했을 경우보다 SF_6/O_2 기체를 사용한 경우가 표면이 더욱 거칠었고, NF_3 기체를 사용한 경우가 가장 표면이 거칠게 나타난 것을 확인하였다.

㉔ 폴리브데늄의 식각 실험 결과

금속 폴리브데늄의 온도에 따른 영향을 보기 위해 RF 출력을 220W로 고정하고 반응시간을 각각 120 분씩으로 하여 시편 표면의 온도를 $290, 350, 380^\circ\text{C}$ 로 변화시키면서 실험을 수행하였다.

- 금속 폴리브데늄의 CF_4/O_2 식각 실험 결과

Fig. 3.1.3.6에서 나타나 있듯이 역시 온도가 증가함에 따라 식각율이 증가함을 알 수 있었다. 하지만 금속 폴리브데늄은 290°C 에서도 아주 높은 식각율을 보이고 있음을 알 수 있다.

폴리브데늄의 경우 식각율이 바이어스 전압의 영향을 덜 받는 것으로 나타났는데 동일조건으로 바이어스 전압을 인가하였을 때의 식각율은 $2.09\ \mu\text{m}/\text{min}$.이었다(Fig. 3.1.3.5).

- 금속 폴리브데늄의 SF_6/O_2 식각 실험 결과

각 플라즈마 기체에 따른 식각율 비교 실험을 수행하였다. 낮은 온도에서도 식각율이 매우 높게 나타났으며 온도를 증가시킴에 따라 식각율이 크게 증가한다는 것을 알 수 있었다 (Fig. 3.1.3.6). 폴리브덴의 경우 식각율이 바이어스 전압의 영향을 덜 받는 것으로 나타났고 SF_6/O_2 의 플라즈마 기체가 코발트 경우처럼 약 2.5배 정도 높은 식각율을 나타내었다. 최고 식각율은 SF_6/O_2 기체 일 때 $10.21\ \mu\text{m}/\text{min}$. 이다. 이와 같은 연구를 통해 폴리브덴은 어떠한 반응 조건이 되면 화학적으로 매우 쉽게

반응한다는 것을 알 수 있었다.

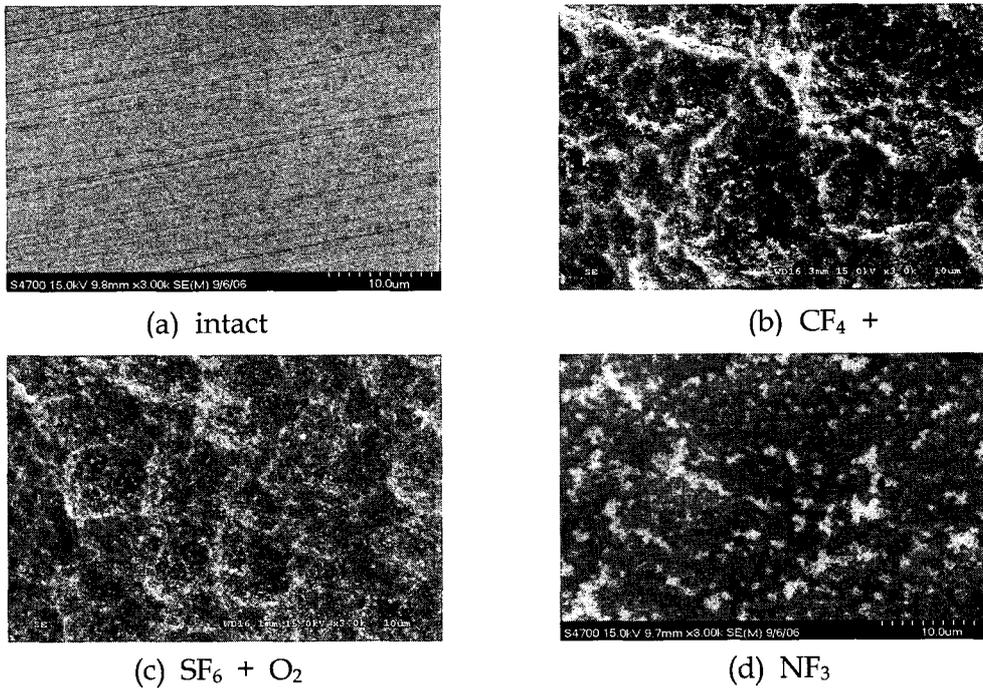


Fig. 3.1.3.4 Photograph of Co specimen before and after reaction

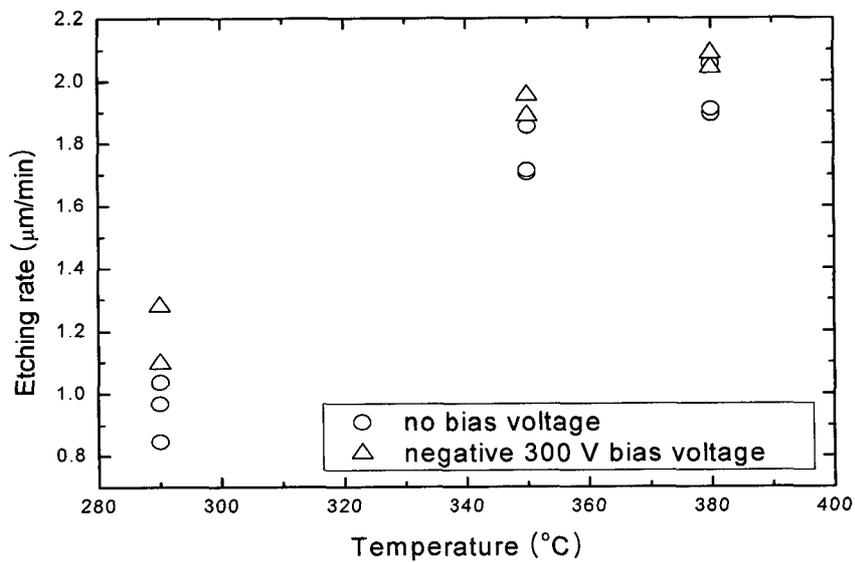


Fig. 3.1.3.5 Mo etching rate vs. substrate temperature under 220 W r.f. power. (CF_4/O_2 plasma gas 100 sccm, reaction time: 120 min.)

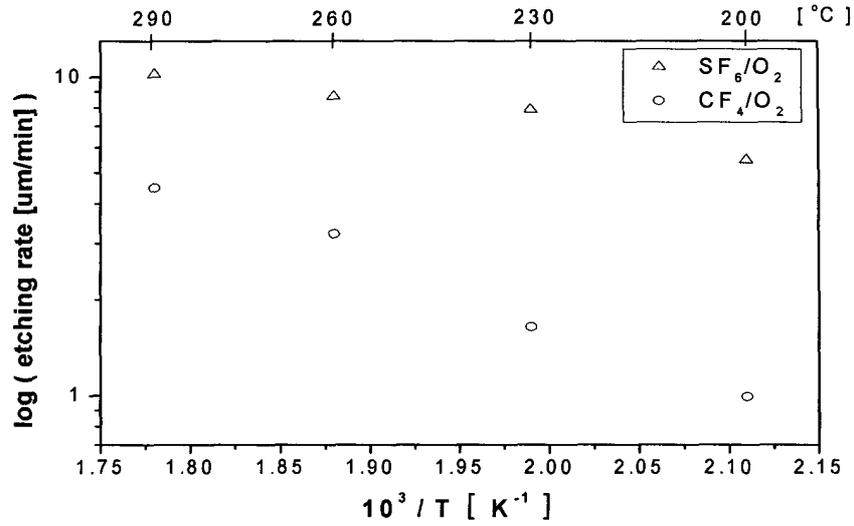
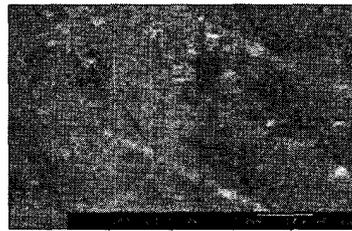
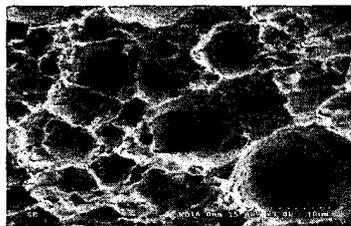


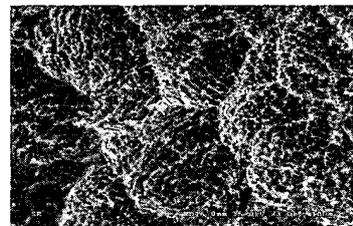
Fig. 3.1.3.6 Mo etching rate vs. plasma gas



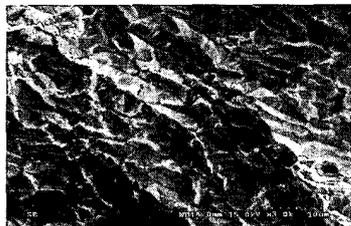
(a) intact (X 2000)



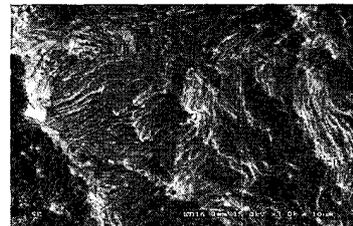
(b) 200 °C CF_4/O_2 (X 3000)



(d) 200 °C SF_6/O_2 (X 3000)



(c) 290 °C CF_4/O_2 (X 3000)



(e) 290 °C SF_6/O_2 (X 3000)

Fig. 3.1.3.7 SEM micrographs of Mo surface morphology changes before and after surface reaction as gas

몰리브데늄의 플라즈마 반응 후의 표면 분석을 위해 SEM 분석을 수행하였다. Fig.

3.1.3.7에 몰리브데늄의 반응 전후의 모습을 나타내었는데, 반응 후의 모습을 보면 표면 반응이 전체적으로 균일하게 나타나며 결정립계를 따라 반응이 일어났음을 알 수 있다. SEM 을 이용해서 반응 전후의 표면 구조 분석을 한 결과 시편 표면 전체에서 격렬한 반응이 일어났음을 확인했다.

(2) QMS/AES/OES를 이용한 플라즈마 진단

(가) QMS (Quadrupole Mass Spectrometer) 를 이용한 반응 생성물의 분석

① CF_4/O_2 플라즈마의 반응 기체 분포 분석

사중극자 질량분석기를 이용하여 UO_2 의 CF_4/O_2 혼합기체 플라즈마 반응 전 플라즈마에서 생성되는 입자들을 규명하고, 또한 반응 후 생성되는 반응 생성물들을 규명하였다.

먼저 반응 전 플라즈마 기체 내의 반응 기체 분포를 측정하기 위해 20% O_2 의 몰분율에서 CF_4/O_2 혼합기체로 분석을 한 다음 동일한 조건으로 RF 출력을 200 W로 하여 반응 전후를 비교하였다.

Fig. 3.1.3.8은 RF 출력이 인가되지 않았을 때와 RF 출력을 200 W 인가했을 때를 비교한 Fig.인데, 주요 피크는 m/e가 12, 16, 18, 19, 20, 28, 31, 32, 44, 47, 50, 66, 69 등에서 나타나며 이는 이전의 연구결과와 잘 일치한다. RF 출력에 따른 각 피크들의 intensity 분석 결과 대부분의 m/e에서 변동이 있음을 알 수 있었다. 그 중 모분자 (parent species)가 CF_4 와 O_2 인 m/e가 25, 32, 50, 69에서의 피크 intensity는 RF 출력에 따라 감소함을 알 수 있었는데, 이는 CF_4 와 O_2 의 플라즈마 분해 감소에 따르는 것임을 알 수 있다. 또한 m/e가 20, 38, 44, 47, 66등에서는 intensity가 증가함을 알 수 있었는데, 이는 CF_4 와 O_2 의 플라즈마 분해에 의해 생성된 F, HF, F_2 , CO_2 , COF_2 등의 모분자로서 RF 출력에 따라 피크 intensity는 증가함을 알 수 있다.

따라서 CF_4/O_2 기체를 흘려 플라즈마 상태로 전리시키면 CF_4 , O_2 는 F, HF, F_2 , CO_2 , COF_2 등으로 전리되며, RF 출력을 높게 하면 할수록 더 많은 CF_4 , O_2 의 분해가 일어난다.

② CF_4/O_2 플라즈마와 UO_2 와의 반응에서 생성되는 생성물의 분석

CF_4/O_2 혼합기체 플라즈마에 의한 이산화우라늄의 식각 생성물은 UF_x 의 형태의 휘발성 분자를 생성할 것으로 예상된다.

플라즈마 기체와 이산화우라늄 펠렛에 의해 생성되는 입자의 양은 CF_4/O_2 혼합기

체 플라즈마 기체에 의한 기체의 분압에 비해 아주 미량으로 생성되기 때문에, 다음 세가지 방법으로 반응 생성물의 양을 최대화하여 실험을 수행하였다.

- i) 이산화우라늄 시편의 형상을 펠렛에서 분말 형태로 대체한다.
- ii) 잔류기체 반응 용기의 압력을 높이기 위해 50 μm 의 orifice를 100 μm 로 대체하여 잔류기체 반응 용기의 압력을 $7\sim 8 \times 10^{-7}$ Torr로 올려 실험하였다. 이때 플라즈마 용기의 압력과 체류시간은 앞 절의 조건과 동일하게 유지한다.
- iii) RF 출력을 200, 250, 300 W로 비교적 높게 한다. 실험은 RF 출력과 시편 표면 온도의 변화에 따른 생성물의 비교, 그리고 O_2 분율의 영향에 대하여 생성물을 비교하였다.

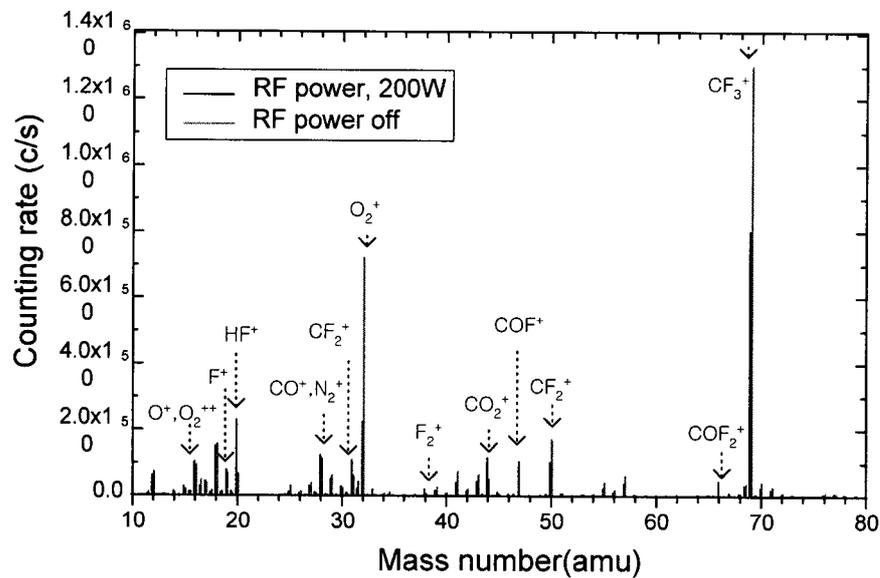


Fig. 3.1.3.8 QMS results of the discharge products from CF_4/O_2 plasma.(total flow rate: 50sccm, O_2 mole fraction: 20%)

Fig. 3.1.3.9는 r.f. 출력을 300 W, 시편 표면 온도는 280 $^\circ\text{C}$ 로 하여 반응 생성물을 O_2 의 분율이 10, 20, 30 % 일 때 불화우라늄 생성물을 검출한 결과를 나타낸 그림이다. 그림에도 나타나듯이 피크의 intensity는 m/e가 333, 314, 295, 276의 순으로 피크 intensity가 높게 나타났다. 보기에는 UF_5 가 주요 불화우라늄 생성물로 보여지지만 UF_5 의 열역학적인 불안정성과 Table 3.1.3.1의 UF_6 의 분해패턴 등으로 볼 때 주요 반응 생성물은 육불화우라늄(UF_6)으로 결론지을 수 있다.

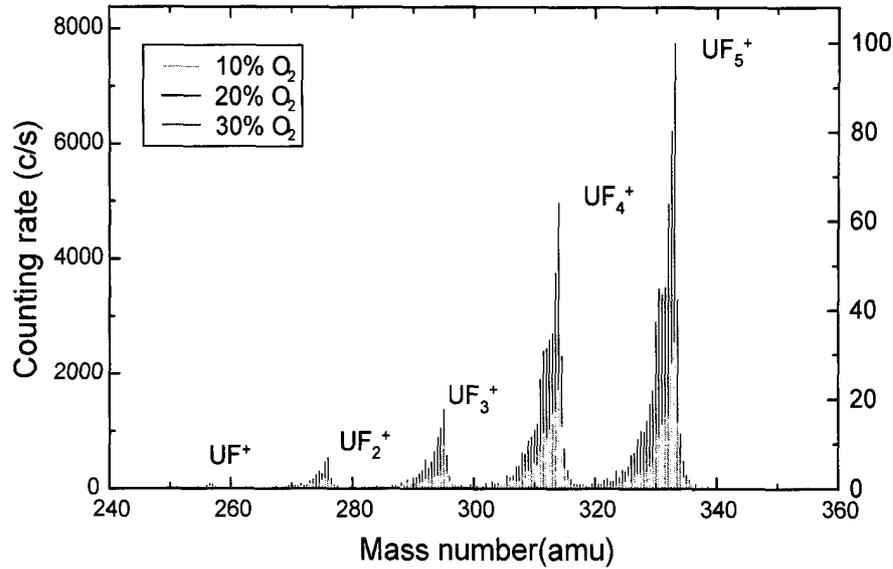


Fig. 3.1.3.9 QMS results of the discharge products from CF₄/O₂ plasma on UO₂ powder. (total flow rate: 50sccm, substrate temp.: 280°C, RF power: 300W)

한편, Table 3.1.3.1의 UF₆의 분해패턴을 살펴보면 질량수가 333에서 가장 높은 intensity를 나타내고, 질량수가 314, 395, 276, 255 등에서는 각각 피크가 전자에너지에 따라서 그 차이는 있지만, 대체로 질량수 333에 비해 30 %를 넘지 못하고 있다. 반면, 실험 결과는 질량수 314에서 50 % 이상의 피크 intensity를 보여주고 있는데, 이는 UF₄의 분해패턴은 알 수 없지만, 질량수 314, 395, 276, 255 등의 피크는 UF₄의 분해패턴도 포함된 것으로 여겨진다. 따라서 UO₂와 CF₄/O₂ 플라즈마 반응에서 주요 반응 생성물은 UF₆로 결론지을 수 있으며, UF₄와 UF₅는 불안정한 중간생성물로 발생되는 것으로 여겨진다.

(나) AES (Auger Electron Spectroscopy) 를 이용한 플라즈마 반응 분석 결과 AES를 이용한 표면 원소 분석을 통해 식각의 반응 역학을 조사하였다. Fig. 3.1.3.10 (a)는 표준 코발트 spectrum과 일치하는 코발트 시편의 AES spectrum 이다. Fig. 3.1.3.10 (b)는 658 eV Auger electron의 peak가 반응 후 증가했다는 것을 보여준다. 이는 불소 원자의 결합 에너지는 659 eV 인데, AES spectrum의 분해능이 1 eV보다 작기 때문에 코발트의 658 eV peak 와 불소 원자의 659 eV peak가 겹쳐서 발생

한 것으로 추정된다. 이것은 반응 후 물리브데늄의 표면 분석을 통해 더욱 확실히 알 수 있었다. 물리브데늄의 경우 코발트 시편의 분석 결과에서 겹쳐서 나왔던 659 eV의 peak가 뚜렷하게 구별되어 나타난다 (Fig. 3.1.3.11). 이와 같은 사실들은 불소 원자는 불화물 형태로 시편 표면에 존재하며, 표면의 주요한 반응은 불화 반응이라는 것을 실증한다.

Table 3.1.3.1 UF6 fragmentation pattern

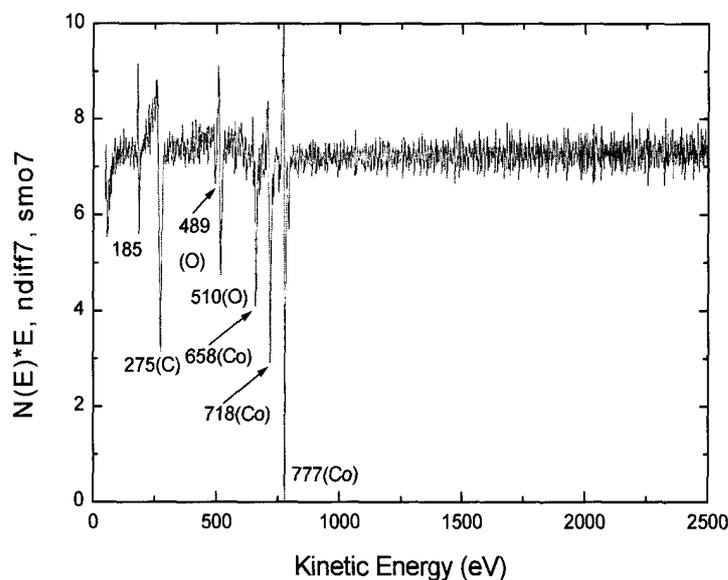
Mass number	Ion	Electron energy (eV)			
		75	70	75	75
		Abundance	Abundance	Abundance	Abundance
119	U ⁺⁺	0.0534	0.032	-	-
128.5	UF ⁺⁺	0.0550	0.063	-	-
138	UF ³⁺⁺	0.0534	0.057	-	-
147.5	UF ³⁺⁺	0.0568	0.052	-	-
157	UF ⁴⁺⁺	0.0542	0.046	-	-
238	U ⁺	0.0593	0.085	0.054	0.048
257	UF ⁺	0.1097	0.185	0.109	0.081
276	UF ²⁺	0.1964	0.332	0.203	0.169
295	UF ³⁺	0.1865	0.283	0.193	0.161
314	UF ⁴⁺	0.2425	0.262	0.277	0.226
333	UF ⁵⁺	1.0000	1.000	1.000	1.000
352	UF ⁶⁺	0.0160	0.004	-	-

(다) OES (Optical Emission Spectroscopy)를 이용한 플라즈마 분석

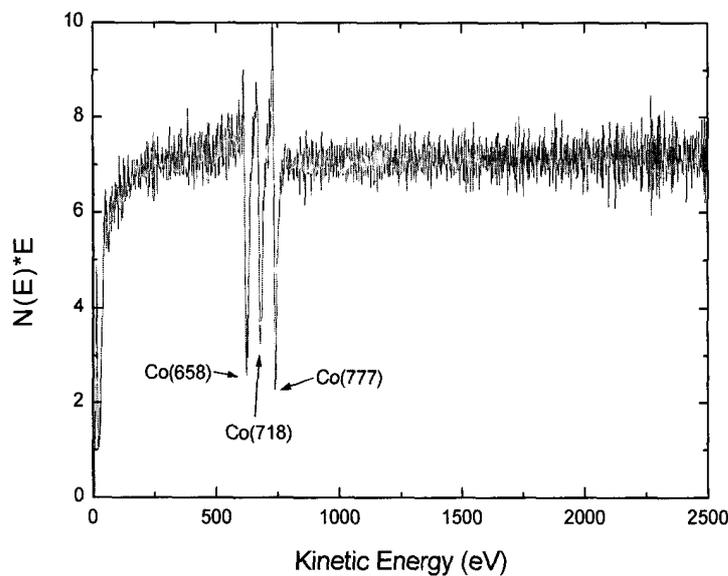
OES를 통해 CF₄와 O₂ 기체를 이용한 플라즈마에서 발생하는 불소 원자의 특성 파장을 기체의 혼합비에 따라 관찰하였다. CF₄와 O₂의 총 유량을 일정하게 유지하고, 혼합비를 변화 시키면서 이 때 방출되는 특성 파장의 피크를 관찰하였다. CF₄/O₂ 플라즈마에 대해서 O₂ 몰분율을 0~80 %까지의 OES 결과를 Fig. 3.1.3.12 (a)에 나타내었다. 이 결과에서 알 수 있듯이 O₂ 몰분율이 증가함에 따라서 O atom (777.75 nm)의 intensity는 계속 증가함을 알 수 있었으며, O₂ 몰분율이 증가함에 따라서 불화반응의 주 etchant인 F (685.6 nm, 703.7 nm) atom의 intensity는 20 % O₂ 몰분율에서 최대가 됨을 알 수 있다. 이러한 사실은 Co 식각 실험 결과에서 확인 할 수 있다 (Fig. 3.1.3.12 (b)). SF₆/O₂ 기체를 이용한 실험에서도 같은 결과를 도출 할 수 있었다 (Fig.

3.1.3.12 (c).

본 분석을 통하여 F radical을 발생시키는 공정기체와 O₂ 의 기체의 비를 4:1 로 고정시킬 때, 이 조건에서 가장 높은 식각율을 갖는다는 것을 확인하였다.

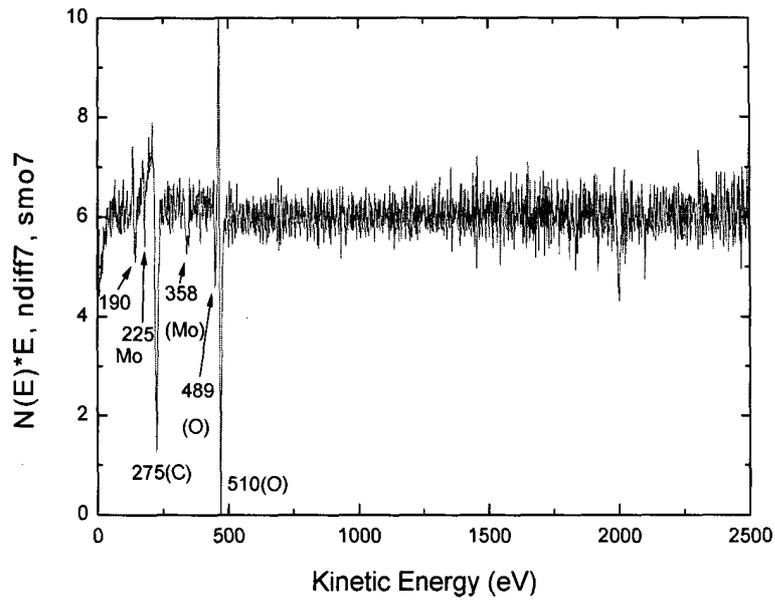


(a) Differential spectrum $E \cdot dN(E)/dE$ of Intact Co specimen

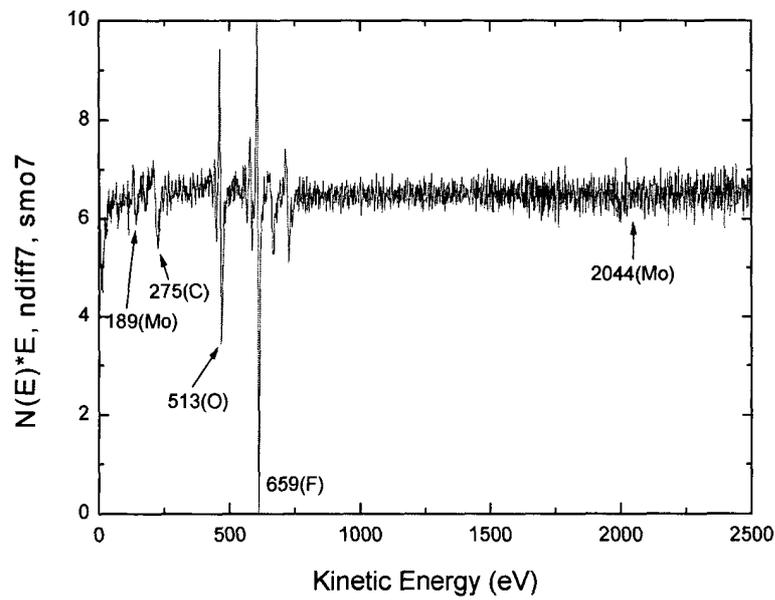


(b) Differential spectrum $E \cdot dN(E)/dE$ of etched Co specimen

Fig. 3.1.3.10 Differential AES spectrum of Co before and after etching reaction

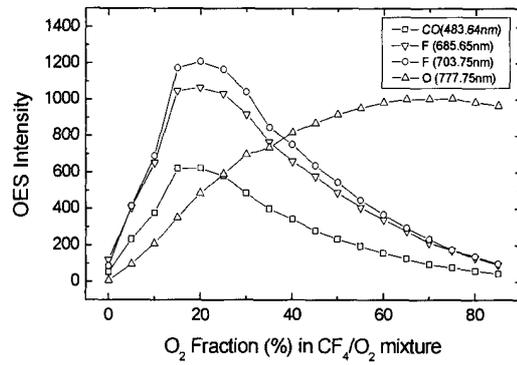


(a) Intact Mo specimen

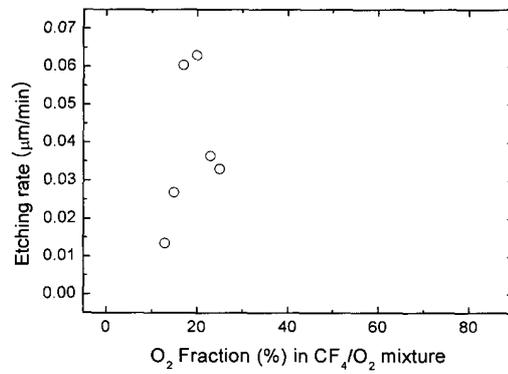


(b) Differential spectrum $E \cdot dN(E)/dE$ of etched Mo specimen

Fig. 3.1.3.11 Differential AES spectrum of Mo before and after etching reaction

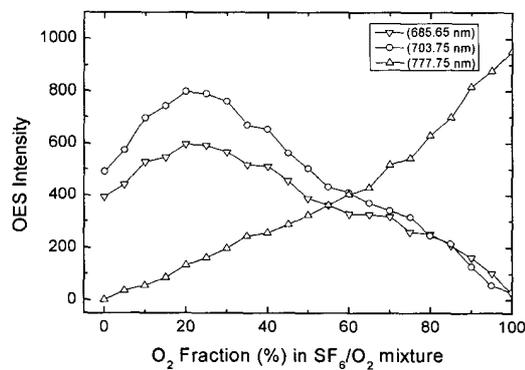


(a) F atom intensities in CF₄/O₂ plasma



(b) Co etching rate at 380 °C

(total flow rate: 100 sccm, plasma exposure time: 120 min, rf power: 220 W, no bias voltage, total pressure: 0.35 Torr)



(c) F atom intensities in SF₆/O₂ plasma

Fig. 3.1.3.12 Results of OES analysis

(3) 오염 대상별 제염 특성 평가

코발트와 우라늄 핵종이 모재에 고착되어 있는 상황을 모사하고 이를 제염하는 연구를 하기 위하여 오염모사시편을 제작하여 실험에 사용하였다. 시편의 제작은 다음과 같은 방법으로 이루어진다. 우선 코발트 오염모사시편의 경우 코발트질산염(cobalt nitrate) 수용액을 모재에 인가하고 상온에서 말린 후 시편을 고온에서 가열한다. 시편을 고온으로 가열하면 코발트질산염이 분해되어 질소와 물은 제거되고 코발트는 산화되어 고착화하게 된다. 우라늄 오염모사시편의 경우도 위와 같은 방법으로 제작한다. 이러한 과정을 통하여 코발트와 우라늄 및 세슘은 각각 모재 위에 산화막으로 형성된다. 오염모사시편의 모재로서는 원자력발전소에서 가장 많이 사용되는 스테인리스 스틸과 인코넬을 사용하였다.

오염모사시편을 식각하기 위한 반응 기체로서는 NF_3 와 Ar기체를 선택하였다. NF_3 기체는 준불활성의 화학적 성질을 가지는 질소 원자를 포함하고 있다. 질소는 플라즈마 반응 시 F radical의 식각 반응을 방해하지 않으므로 보다 효율적인 식각 반응을 기대할 수 있다. NF_3 가스의 농도가 많을수록 반응 용기와 시편에 fluorination 반응이 심하므로 Ar 기체를 사용하여 NF_3 가스의 농도를 줄이고 바이어스 전압의 효과를 증대시켰다. 그리고 NF_3 가스와 Ar의 혼합 비율은 1:4의 비율로 최적화하였다.

플라즈마 RF 출력은 150 W, NF_3 와 Ar 기체의 총유량은 50 sccm, 0.4 Torr의 실험 조건에서 실험을 수행하였고, 반응은 30 초 단위로 측정하였다.

(가) 실험 절차

① 시편 제작

실험 여건상 방사성 동위원소를 직접 사용할 수 없기 때문에 오염을 모사한 시편을 제작하였다. SUS 304 라는 대표적인 스테인리스 스틸(Fig. 3.1.3.13 (a))과 원자력 발전소 증기발생기 U튜브의 재료로 사용되는 INCONEL 600 (Fig. 3.1.3.13 (d)) 을 저속 다이아몬드 절단기(low speed diamond cutter)로 2 mm 두께의 원판 형태로 절단한 후 입도 수 1200의 연마지로 표면을 연마하여 아세톤과 에탄올로 표면을 세척하였다.

1 mg/ml 농도의 질산염 수용액 100 μl 를 시편에 인가하여 상온에서 충분히 말린다. 산화막이 시편 표면위에 고르게 형성시키기 위해 말리는 과정에서 최대한 수평을 유지할 수 있도록 한다.

말린 시편을 전기로에 넣은 후 상온에서 500 $^{\circ}\text{C}$ 까지 2시간에 걸쳐 천천히 온도를

올린 다음 1시간 동안 500 °C를 유지한다. 그리고 3~4 시간에 걸쳐 시편을 천천히 냉각한다. 이와 같은 과정을 거치면 오염모사시편이 완성된다. (Fig. 3.1.3.13)

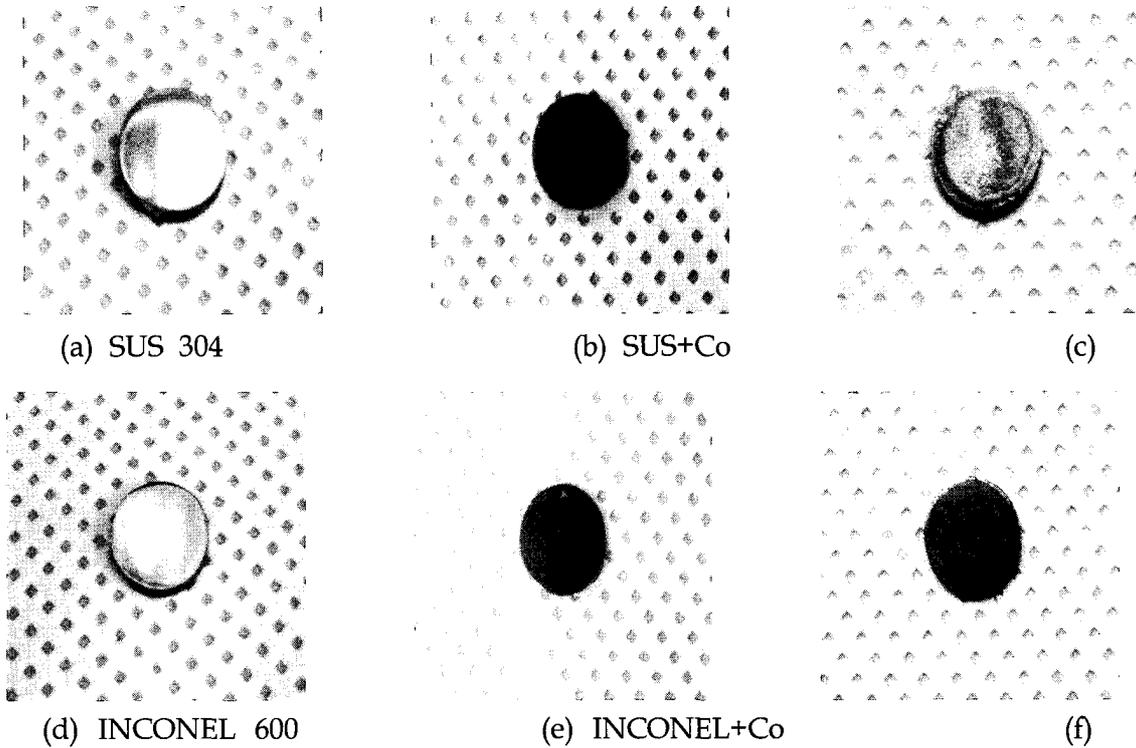


Fig. 3.1.3.13 Manufacture of reproduced specimens contaminated

② 식각 실험 수행

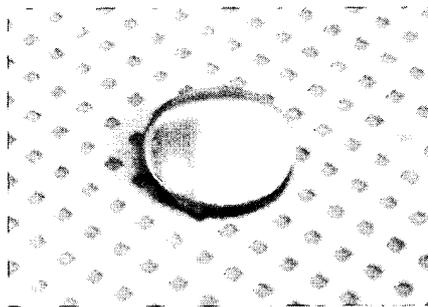
식각 반응 실험에서 식각액은 시편을 반응시켜 반응 전후의 질량차이를 이용하여 계산한다. 그렇기 때문에 10^{-5} g 까지 측정할 수 있는 micro balance를 이용하여 오염 모사시편의 질량을 측정한 뒤 용기 내 전극의 중앙 부분에 위치시킨다. 시편에 묻어 있는 수분을 제거하기 위해 50 mTorr 압력, 200 °C 온도 하에서 20분간 baking 한다.

플라즈마 기체의 최적 비율은 NF_3 와 Ar 기체를 1:4의 비율로 고정시킨다. 미세유량 조절기를 이용하여 총 기체 유량은 50 sccm으로 고정시킨 뒤 시편 표면의 온도를 할로젠 램프를 이용하여 실험 온도인 300 °C 까지 올린다. 앵글 밸브를 이용하여 용기 내 압력을 0.4 Torr로 조절한 뒤 matching box를 조정하여 RF 출력을 150 W 까지 올린다. DC power supply를 작동시켜 시편에 -300 V 의 전압을 인가한다.

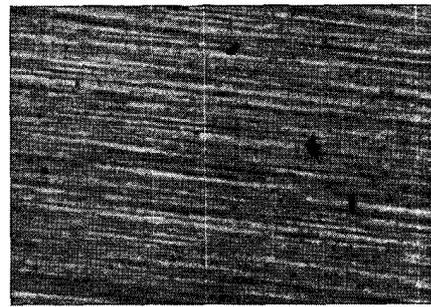
(나) 결과 및 논의

- ① 모재가 스테인리스 스틸인 경우
- ② 제염 대상 핵종이 코발트인 경우

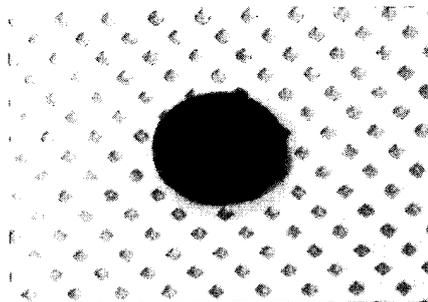
스테인리스 스틸을 모재로 한 오염모사시편을 NF_3/Ar 플라즈마에서 3~6분간 반응시켜 보았다. 그 결과 스테인리스 스틸 위에 형성되어 있던 흑갈색의 코발트 산화막의 색이 없어진 것을 확인할 수 있었다. 육안으로 관찰하여도 확실한 차이를 알 수 있으나 자세한 오염모사시편의 표면을 관찰하기 위하여 OM (Optical Microscope)을 이용하였다 (Fig. 3.1.3.14). 반응 전후의 OM 사진을 보면 코발트 산화막이 사라진 모습을 확인할 수 있다. 그러므로 스테인리스 스틸 표면위의 코발트 산화막이 NF_3/Ar 플라즈마에 의해 제거된 것을 쉽게 확인할 수 있었다.



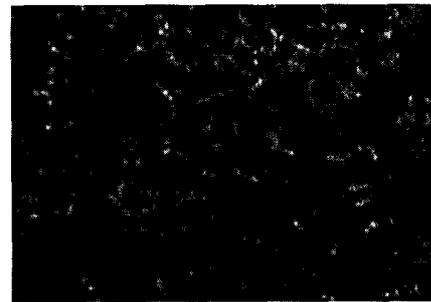
(a) SUS 304



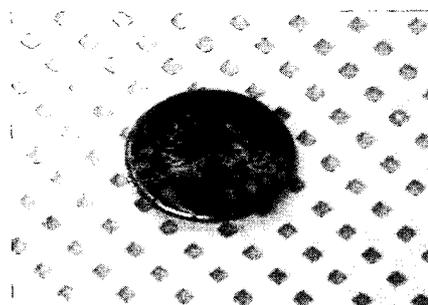
(d) SUS 304의 OM 촬영 사진



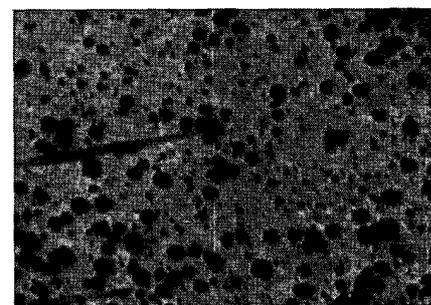
(b) 산화 시편 사진 (SUS+Co)



(e) 산화시편의 OM 촬영 사진



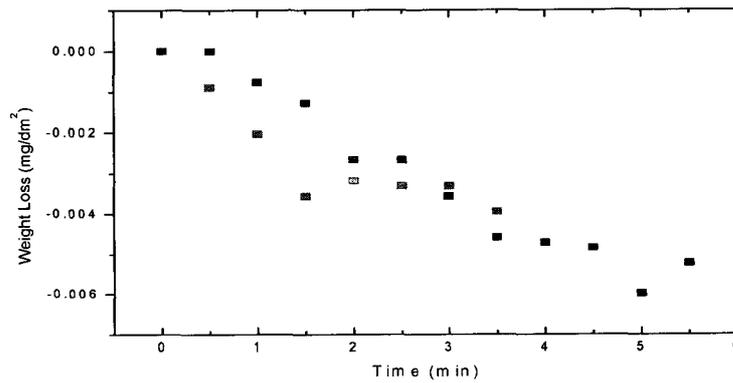
(c) 제염 후 시편사진 (SUS+Co)



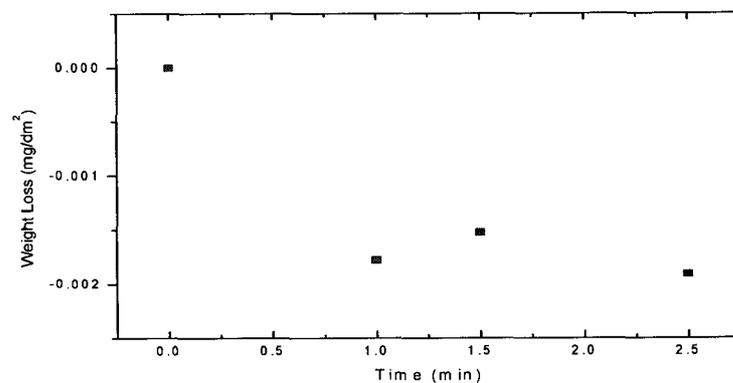
(f) 제염 후 시편의 OM 촬영 사진

Fig. 3.1.3.14 Reproduced specimens contaminated before and after reaction and OM photographs(SUS+Co)

NF₃/Ar 플라즈마의 코발트 산화막 제거 반응 정도를 평가하기 위하여 반응 전후의 질량 차이를 이용하여 식각율을 평가해 보았다 (Fig. 3.1.3.15). 실험 결과 코발트 산화막의 제거 식각율은 반응 시간에 따라서 포화되는 경향을 보였다. 식각 식각율은 선형적이라는 것이 일반적이지만 본 실험에서는 산화막의 제거가 빠른 속도로 이루어지기 때문에 처음 1~2 분간 대부분의 산화막이 제거된다. 그러므로 산화막 제거 식각율은 자연스럽게 시간에 따라서 낮아지는 것으로 생각된다. 그래프에서 선형적 구간을 취한 결과 약 18 $\mu\text{m}/\text{min}$ 의 식각율이 도출되었다. 그리고 XPS 분석 결과 코발트 산화막의 경우 코발트 화합물의 결합구조가 Oxide형태에서 Fluoride형태로 전환된 것을 확인할 수 있었는데 (Fig. 3.1.3.16, Fig. 3.1.3.17) 이는 각각의 산화막이 제거됨과 동시에 플라즈마에 의하여 새롭게 생성된 물질이 시편위에 증착되어 식각율을 낮추는 것이라고 생각된다.

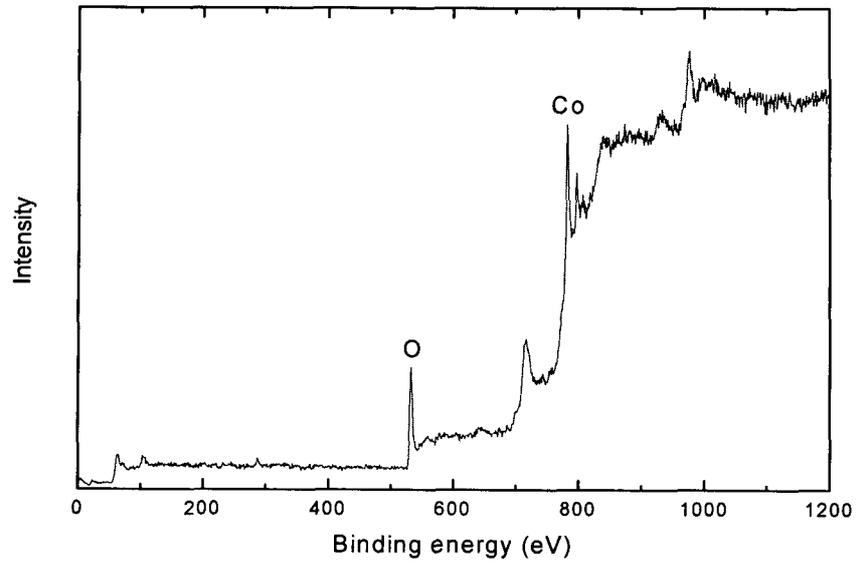


(a) SUS+Co, no bias

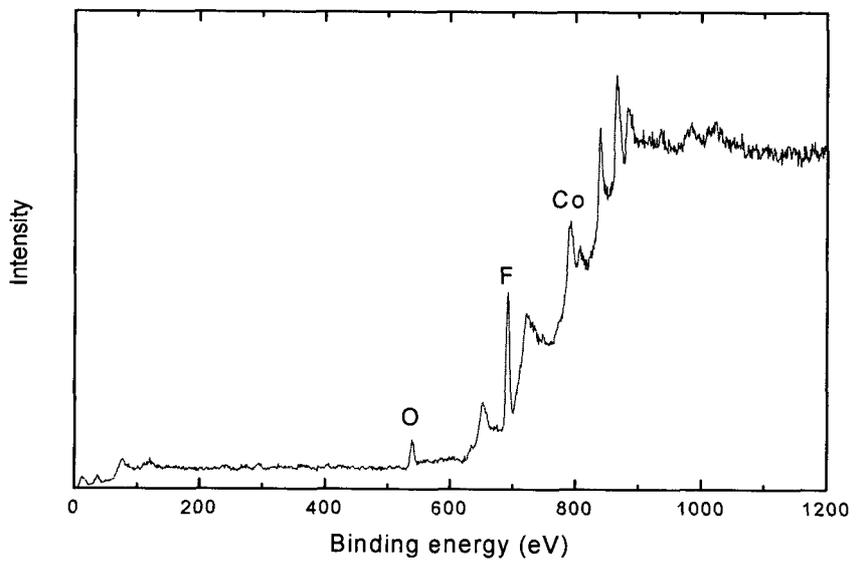


(b) SUS+Co, -300V bias

Fig. 3.1.3.15 Etching rate of Co membrane oxidized versus time

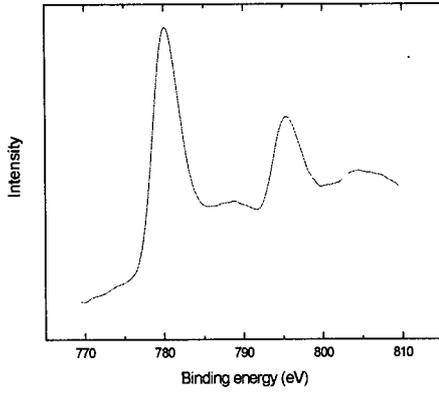


(a) 반응 전

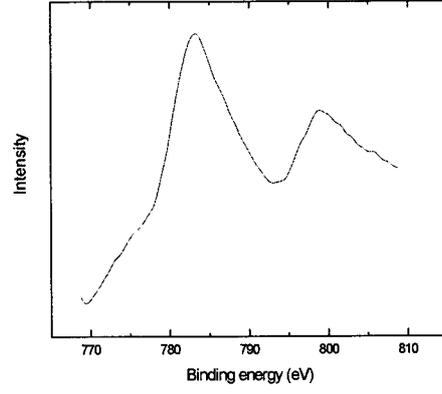


(b) 반응 후

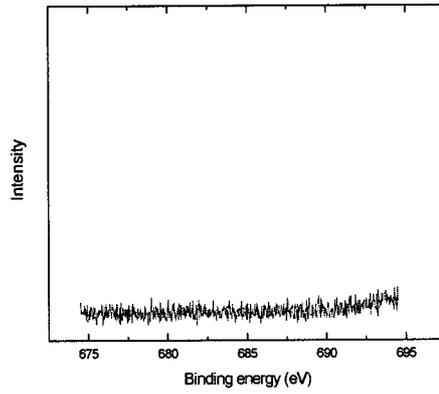
Fig. 3.1.3.16 Results of XPS analysis(wide scan)



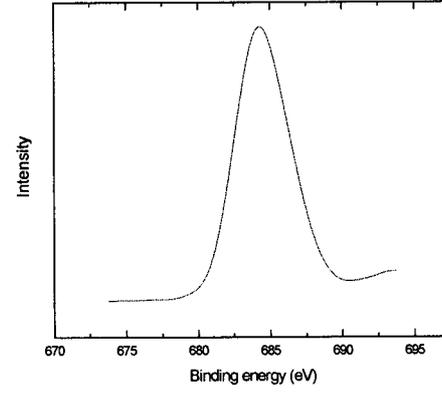
(a) 반응 전 (Co peak)



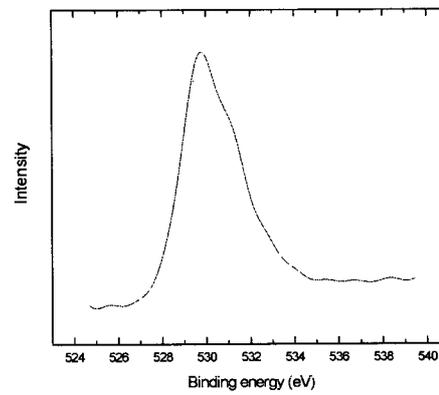
(b) 반응 후 (Co peak)



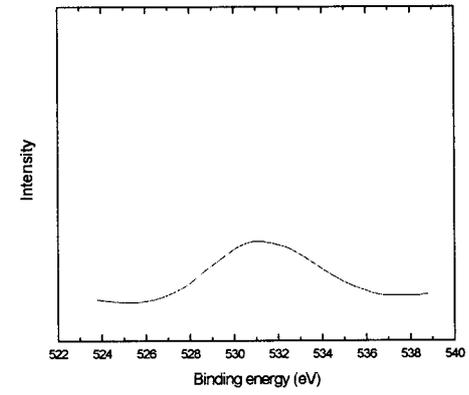
(c) 반응 전 (F peak)



(d) 반응 후 (F peak)



(e) 반응 전 (O peak)



(f) 반응 후 (O peak)

Fig. 3.1.3.17 Results of XPS analysis(narrow scan)

㉔ 제염 대상 핵종이 우라늄인 경우

우라늄 산화막의 제염의 경우도 코발트 산화막 제염의 경우와 유사한 반응 형태를 보였다. 육안으로도 산화막이 사라진 것을 확인 할 수 있었으며 (Fig. 3.1.3.18), OM 사진 또한 코발트 산화막의 경우와 마찬가지로 산화막이 사라진 것을 확인할 수 있었다.

우라늄 오염 모사시편을 NF_3/Ar 플라즈마에서 반응시켰을 경우 약 1분 동안 반응이 급속도로 일어난 후 포화되는 현상을 확인 할 수 있었다 (Fig. 3.1.3.19). 이는 플라즈마와 우라늄 간의 식각율이 뛰어나기 때문에 1분 이내에 대부분의 산화막이 제염되어 나타난 현상이라고 생각되며 이는 XPS 분석 결과와 일치한다. 식각율은 약 $28 \mu m/min$ 으로 계산되었다 (Fig. 3.1.3.20, Fig. 3.1.3.21).

1분 이후 반응이 포화되어 질량이 증가하는 현상이 나타나는데 이는 XPS 분석 결과 시편 표면의 산화막이 제거된 이후 남은 시편에 불소가 증착되면서 나타난 현상으로 보인다.

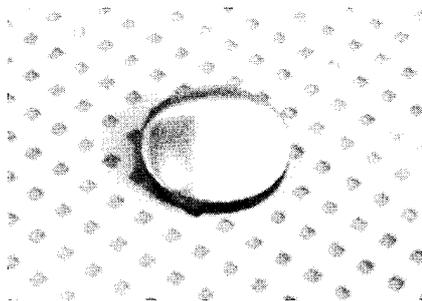
㉕ 모재가 인코넬인 경우

㉔ 제염 대상 핵종이 코발트인 경우

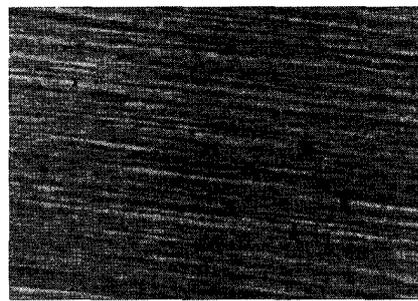
인코넬을 모재로 한 오염모사시편을 NF_3/Ar 플라즈마에서 3~6분간 반응시켜 보았다. 그 결과 인코넬 위에 형성되어 있던 흑갈색의 코발트 산화막의 색이 떨어진 것을 육안으로도 확인할 수 있었다. 위의 과정과 마찬가지로 자세한 오염모사시편의 표면을 관찰하기 위하여 OM(Optical Microscope)을 이용하였다 (Fig. 3.1.3.22). 반응 전후의 OM 사진을 비교해 보면 코발트 산화막이 사라진 모습을 쉽게 확인할 수 있다.

NF_3/Ar 플라즈마의 코발트 산화막 제거 반응 정도를 평가하기 위하여 반응 전후의 질량 차이를 이용하여 식각율을 평가해 보았다 (Fig. 3.1.3.23). 실험 결과 코발트 산화막의 제거 식각율은 반응 시간에 따라서 포화되는 경향을 보였다. 그리고 모재가 스테인리스 스틸인 경우와 비교하였을 때 인코넬이 모재인 경우가 좀 더 식각율이 높은 것으로 나타났다. 식각율도 약 $32 \mu m/min$ 로 더 높게 나왔는데 그 이유는 스테인리스 스틸은 철을 기본으로 한 합금이고 인코넬은 니켈을 기본으로 한 금속인 것에 비추어볼 때 모재의 특성에 기인하는 것으로 생각된다. NF_3/Ar 플라즈마가 인코넬에서는 어떠한 반응생성물도 만들지 못하기 때문에 모재가 인코넬의 경우에는 모재 위의 코발트 산화막 만이 반응하여 제거되기 때문인 것으로 보인다. 반면 스테인

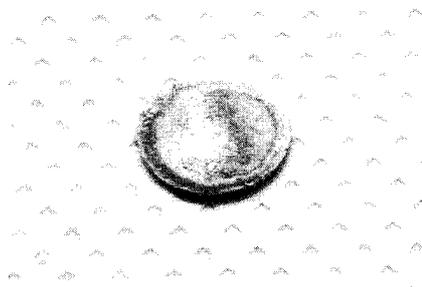
리스 스틸인 경우 NF_3/Ar 플라즈마가 스테인리스 스틸의 철과 반응하여 비휘발성의 반응생성물을 만들어 스테인리스 스틸위에 증착된다. 그러므로 반응 전후의 질량차를 비교한 식각율 평가방법을 통해서도 스테인리스 스틸이 모재인 경우 코발트 산화막 제거율이 낮게 평가되는 것으로 보인다. 그리고 XPS 분석 결과 코발트 산화막의 경우 코발트 화합물의 결합구조가 Oxide형태에서 Fluoride형태로 전환된 것을 확인할 수 있었는데 (Fig. 3.1.3.24, Fig. 3.1.3.25) 이는 각각의 산화막이 제거됨과 동시에 플라즈마에 의하여 새롭게 생성된 물질이 시편위에 증착되어 식각율을 낮추는 것이라고 생각된다.



(a) SUS 304



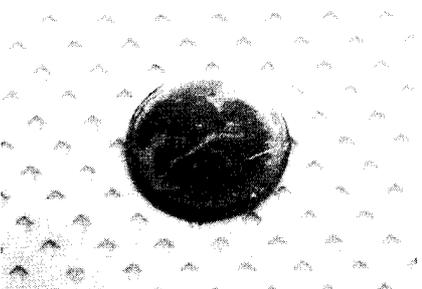
(d) SUS 304의 OM 촬영 사진



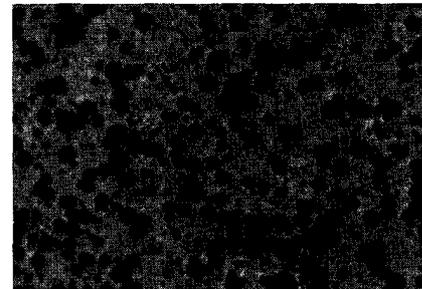
(b) 산화 시편 사진 (SUS+U)



(e) 산화시편의 OM 촬영 사진

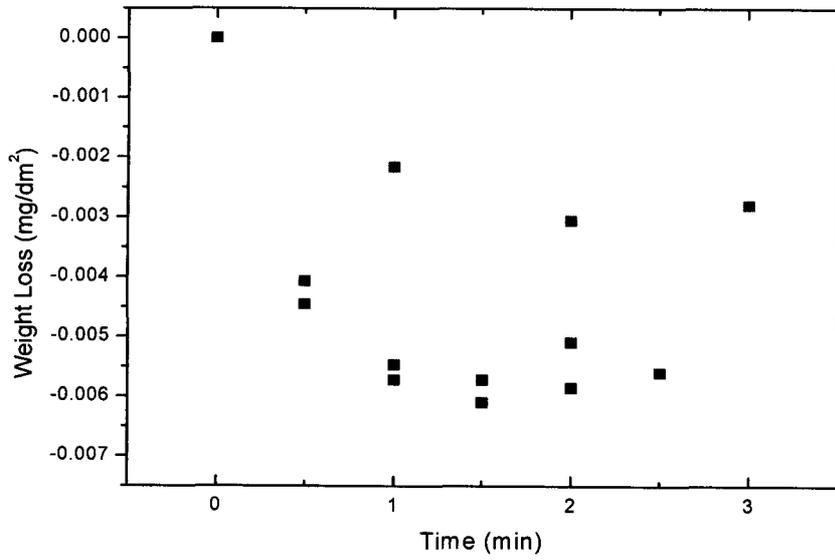


(c) 제염 후 시편사진

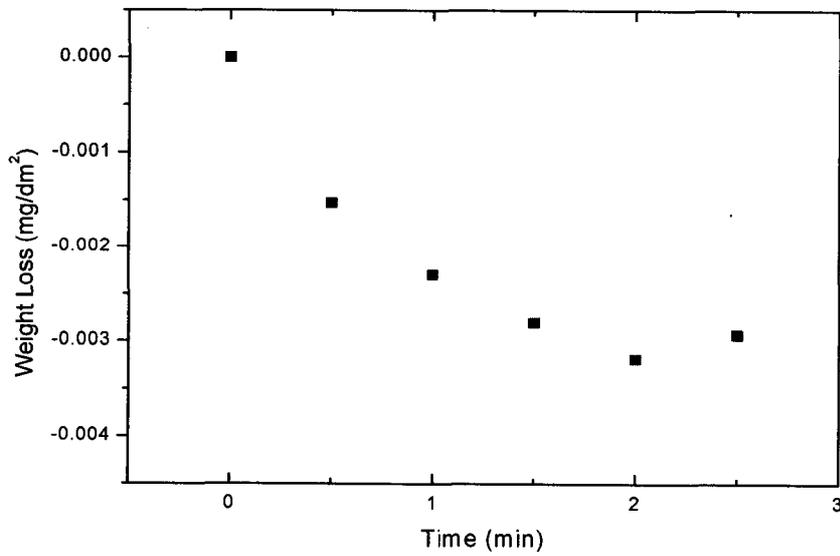


(f) 제염 후 시편의 OM 촬영 사진

Fig. 3.1.3.18 Reproduced specimens contaminated before and after reaction and OM photographs (SUS+U)

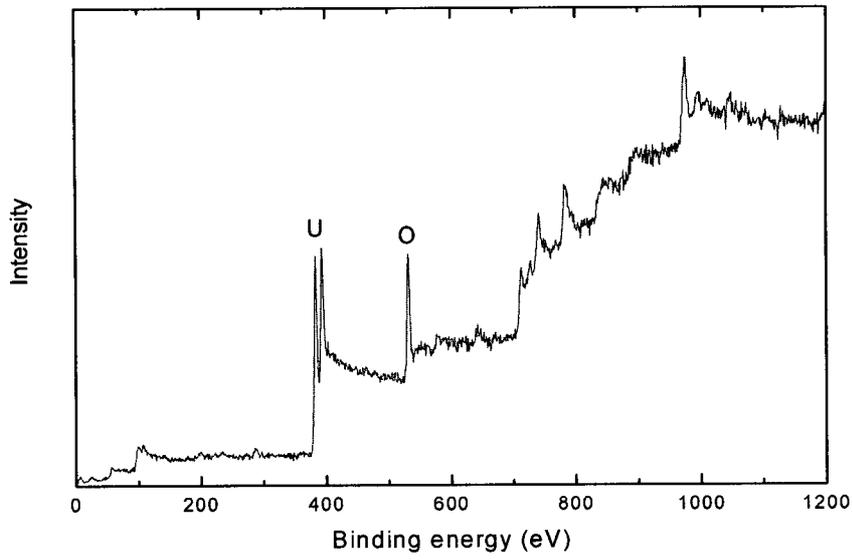


(a) SUS+U, no bias

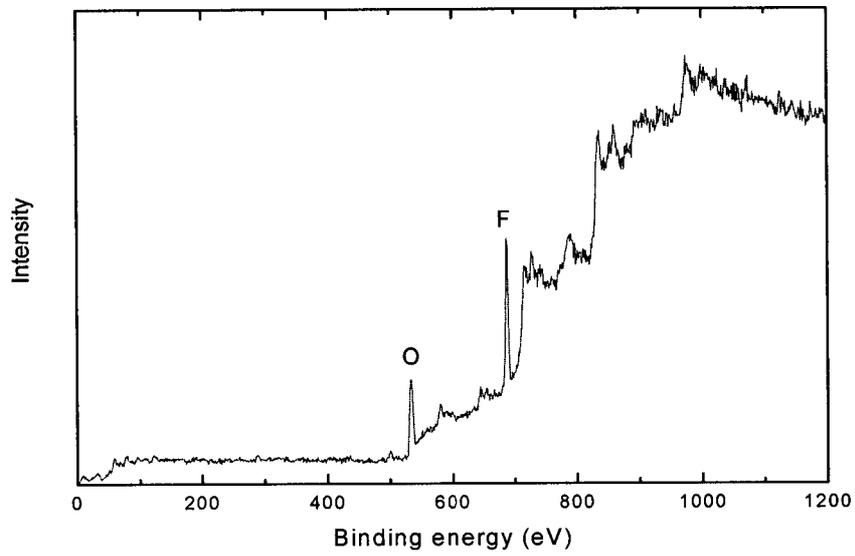


(b) SUS+U, -300V bias

Fig. 3.1.3.19 Etching rate of Co membrane oxidized versus time

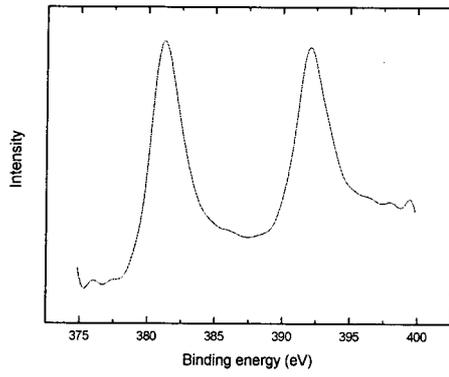


(a) 반응 전

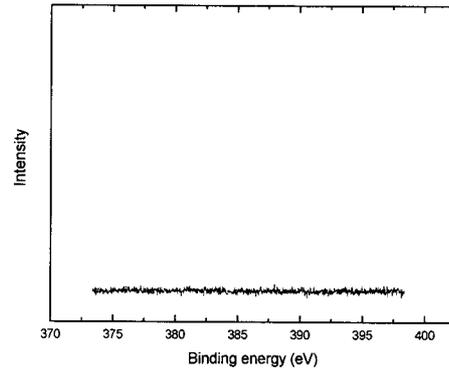


(b) 반응 후

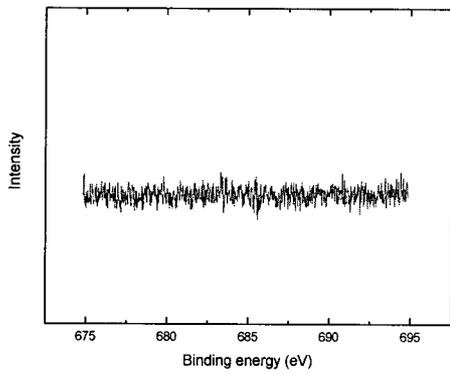
Fig. 3.1.3.20 Results of XPS analysis(wide scan)



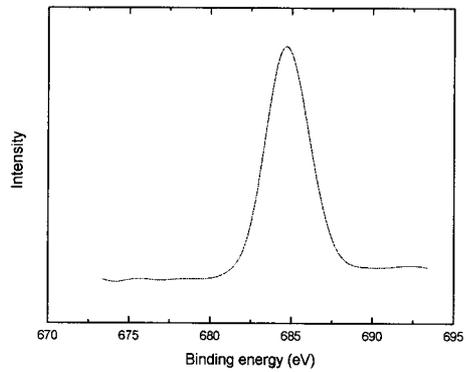
(a) 반응 전 (U peak)



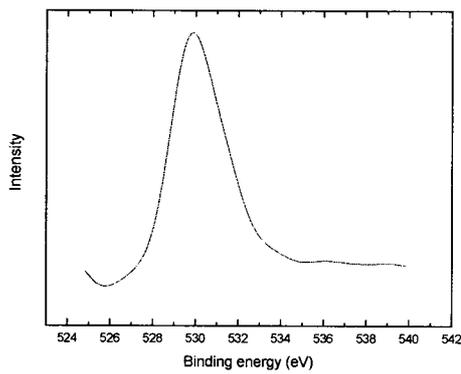
(b) 반응 후 (U peak)



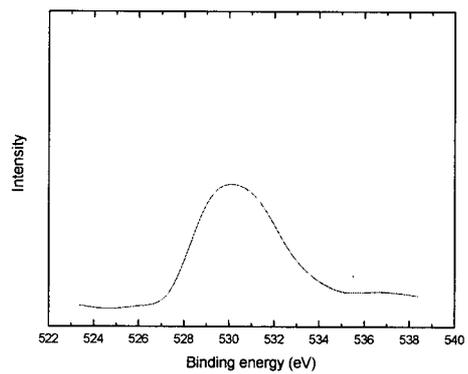
(c) 반응 전 (F peak)



(d) 반응 후 (F peak)

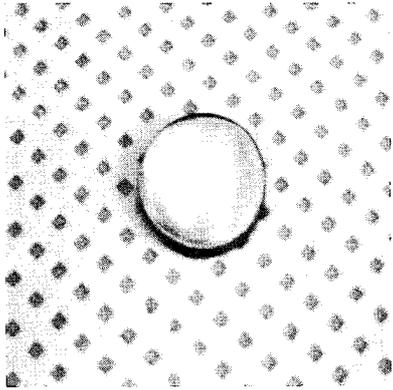


(e) 반응 전 (O peak)

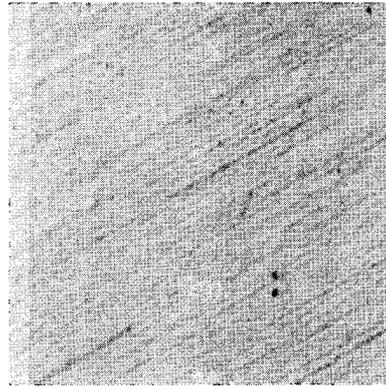


(f) 반응 후 (O peak)

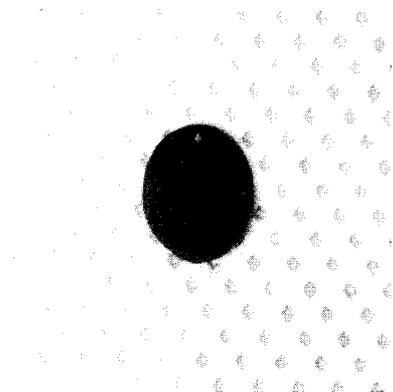
Fig. 3.1.3.21 Results of XPS analysis(narrow scan)



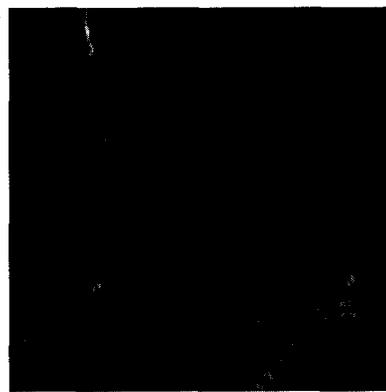
(a) INCONEL 600



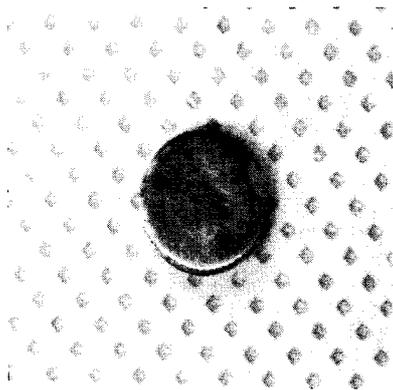
(d) INCONEL 600의 OM 사진



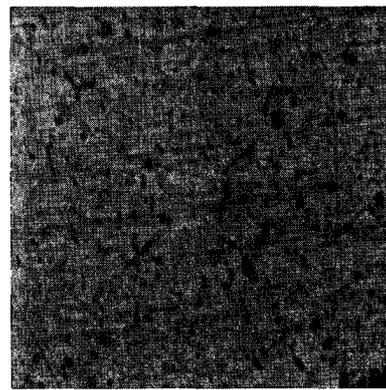
(b) 산화 시편의 사진



(e) 산화시편의 OM 촬영 사진

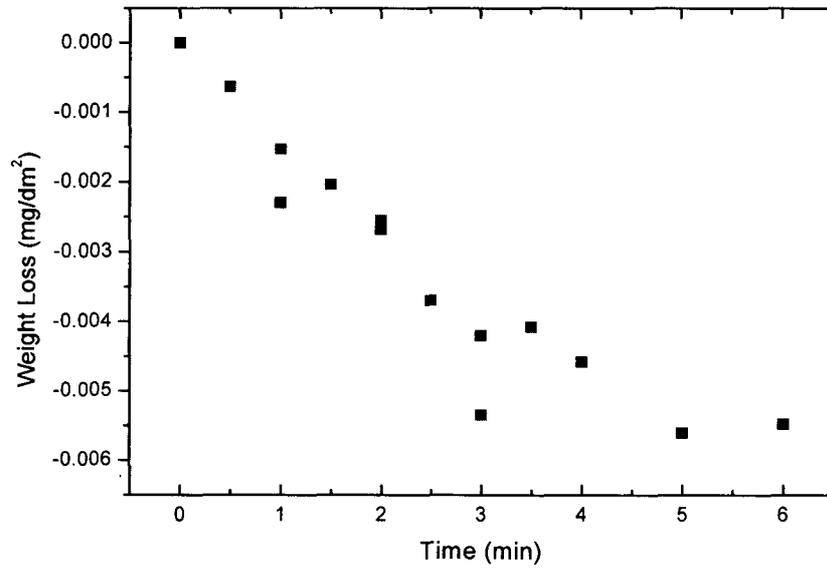


(c) 제염 후 시편의 사진
(INC+Co) (d)

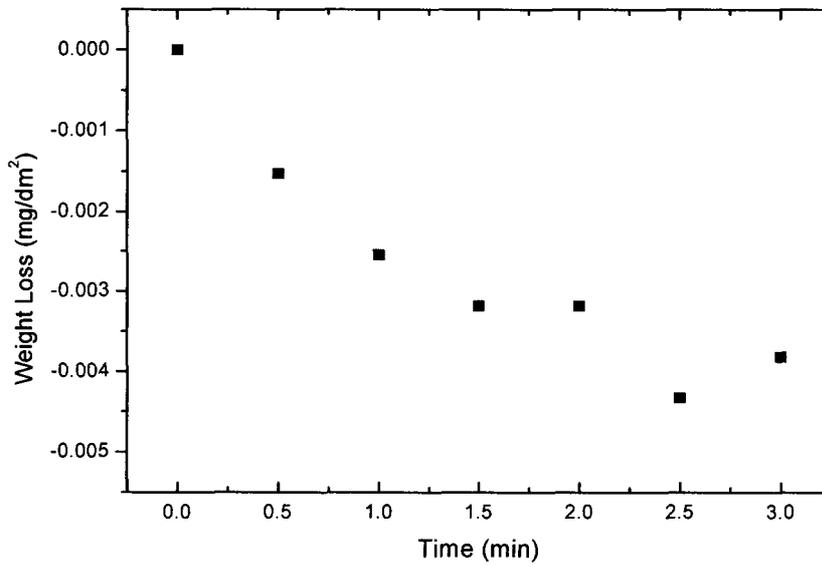


(f) 제염 후 시편의 OM 촬영
사진

Fig. 3.1.3.22 Reproduced specimens contaminated before and after reaction and OM photographs (INCONEL + Co)

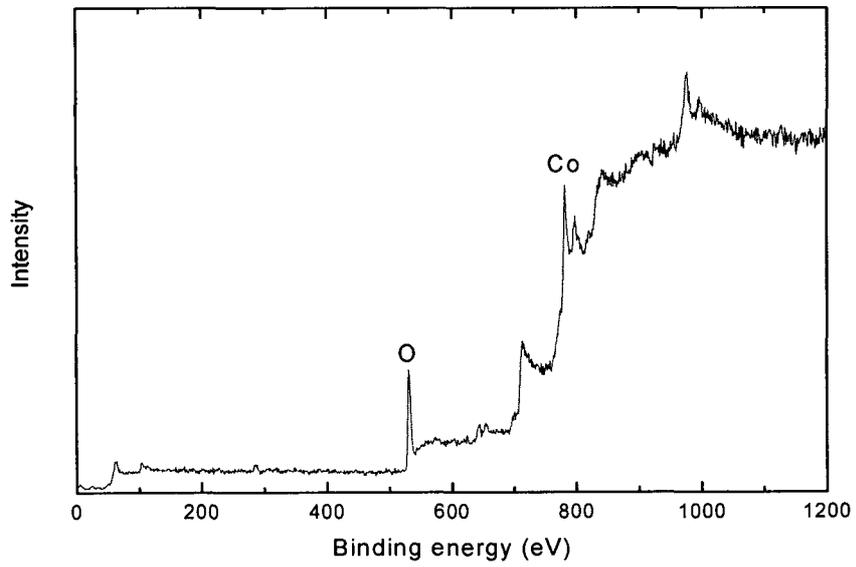


(a) Inconel+Co, no bias

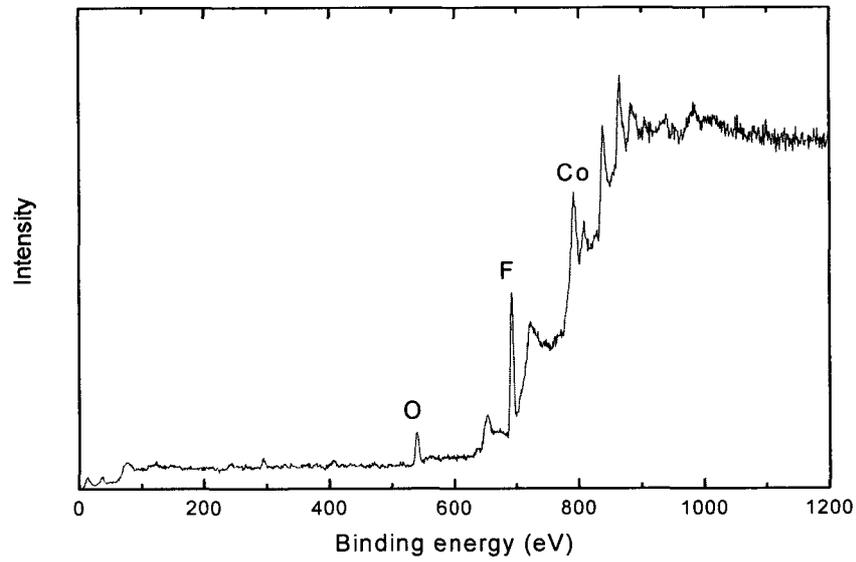


(b) Inconel+Co, -300V bias

Fig. 3.1.3.23 Etching rate of Co membrane oxidized versus time

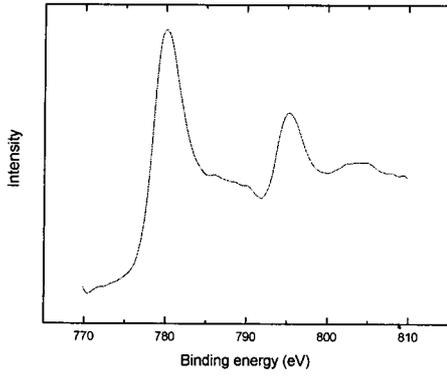


(a) 반응 전

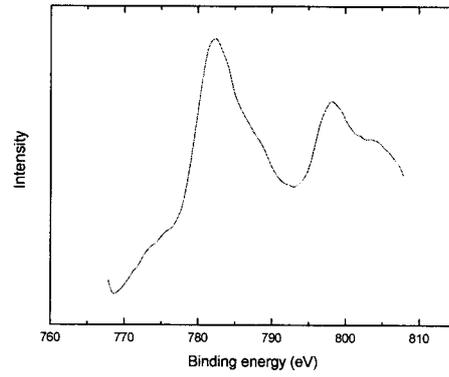


(b) 반응 후

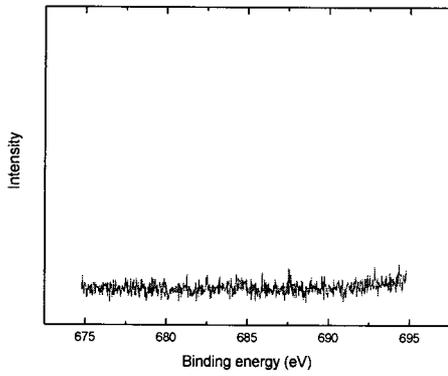
Fig. 3.1.3.24 Results of XPS analysis(wide scan)



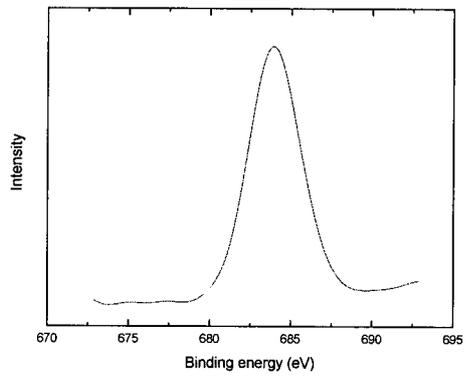
(a) 반응 전 (Co peak)



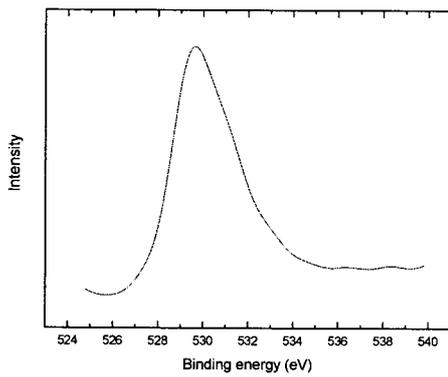
(b) 반응 후 (Co peak)



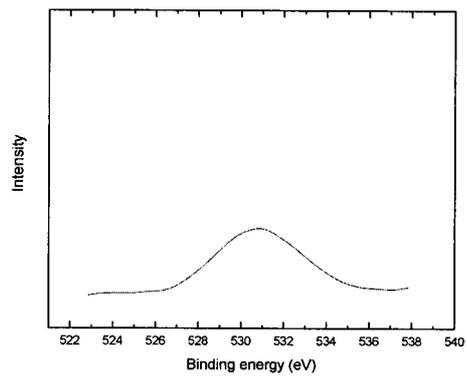
(c) 반응 전 (F peak)



(d) 반응 후 (F peak)



(e) 반응 전 (O peak)



(f) 반응 후 (O peak)

Fig. 3.1.3.25 Results of XPS analysis(narrow scan)

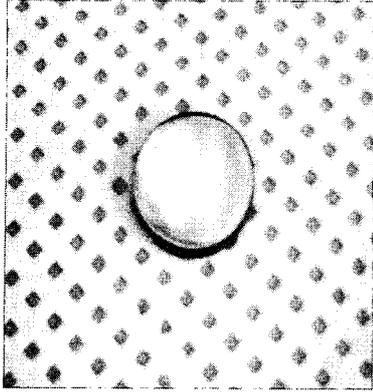
㉔ 제염대상 핵종이 우라늄인 경우

우라늄 산화막의 제염의 경우도 코발트 산화막 제염의 경우와 유사한 반응 형태를 보였다. 육안으로도 산화막이 사라진 것을 확인 할 수 있었으며, OM 사진 또한 코발트 산화막의 경우와 마찬가지로 산화막이 사라진 것을 확인할 수 있었다 (Fig. 3.1.3.26).

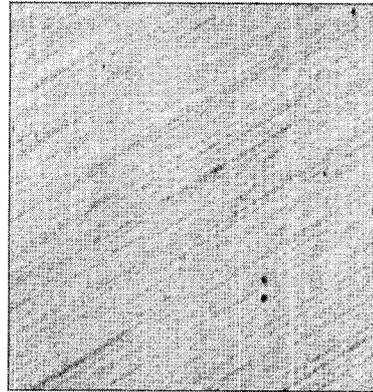
우라늄 오염 모사시편을 NF_3/Ar 플라즈마에서 반응시켰을 경우 앞의 경우와 같이 약 1분 동안 반응이 급속도로 일어난 후 포화되는 현상을 확인 할 수 있었다 (Fig. 3.1.3.27). 이는 플라즈마와 우라늄 간의 식각율이 뛰어나기 때문에 1분 이내에 대부분의 산화막이 제염되어 나타난 현상이라고 생각된다. 식각율도 실험 결과 중 가장 큰 약 $52 \mu m/min$ 가 나왔으며 이는 XPS 분석 결과와 일치하는 것으로 보인다 (Fig. 3.1.3.28, Fig. 3.1.3.29). 자세한 케이스 별 식각율은 Table 3.1.3.2에 나타내었다.

Table 3.1.3.2 Etching rate by the basic material and radionuclide

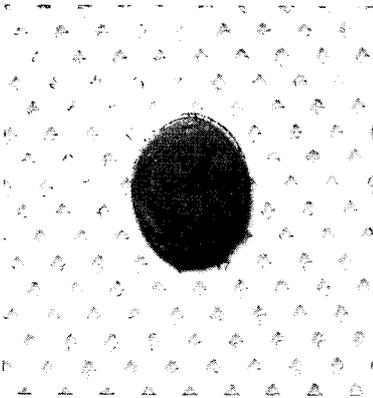
모 재	SUS 304				INCONEL 600			
	Co		U		Co		U	
오염핵종								
DC-bias	no bias	-300 V	no bias	-300 V	no bias	-300 V	no bias	-300 V
식 각 율	17.6	26.6	27.6	27.6	27.2	31.6	29.2	52.0



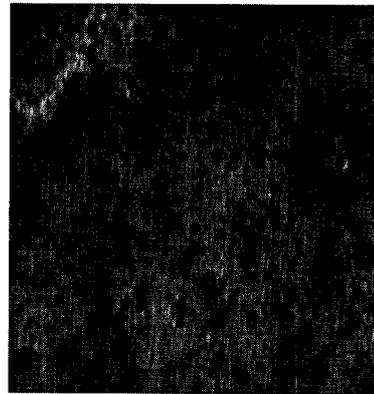
(a) INCONEL



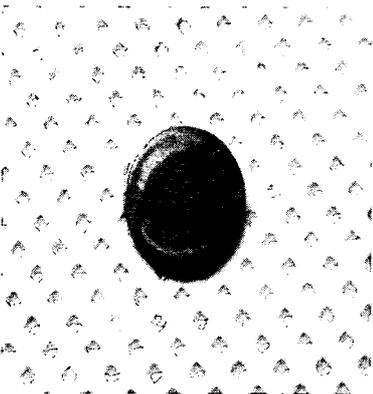
(d) INCONEL 600의 OM 사진



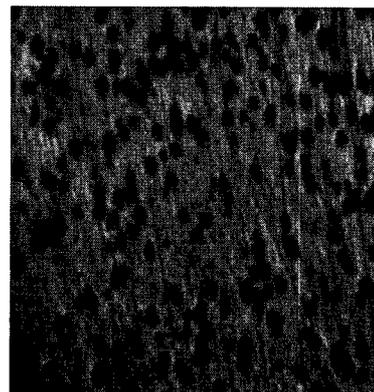
(b) 산화 시편의 사진



(e) 산화 시편의 OM 촬영사진

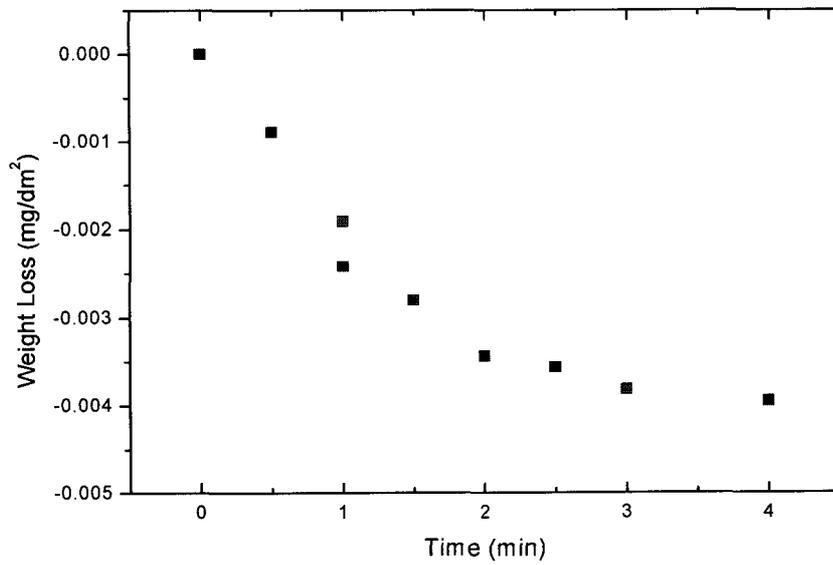


(c) 제염 후 시편의 사진 (INC+U)

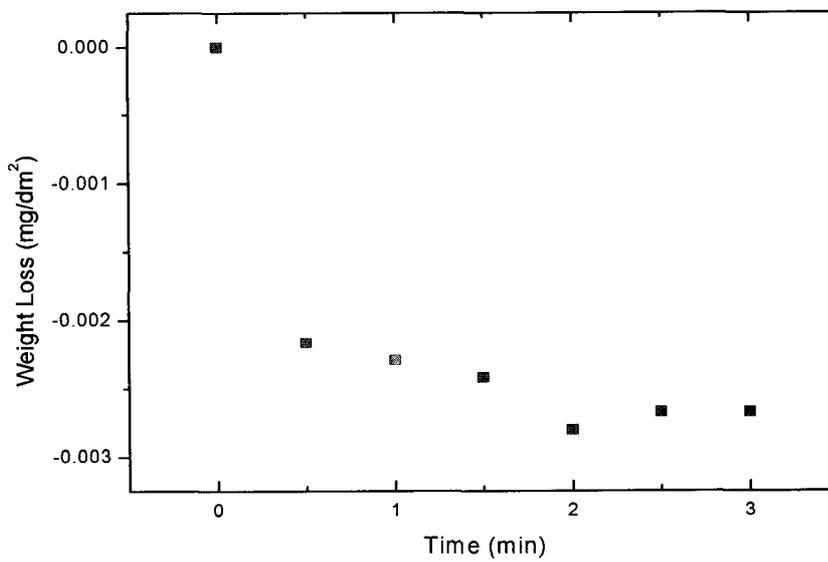


(f) 제염 후 시편의 OM 촬영사진

Fig. 3.1.3.26 Reproduced specimens contaminated before and after reaction and OM photographs (INCONEL+U)

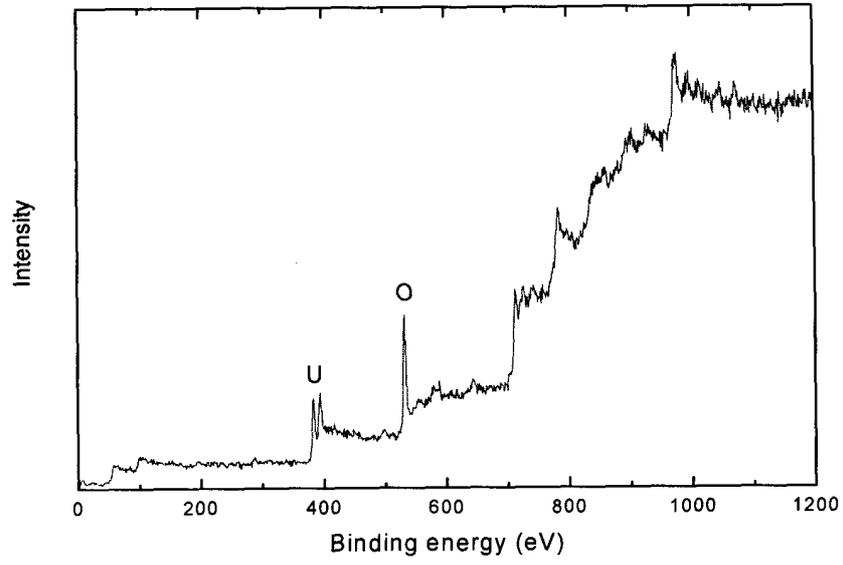


(a) Inconel+U, no

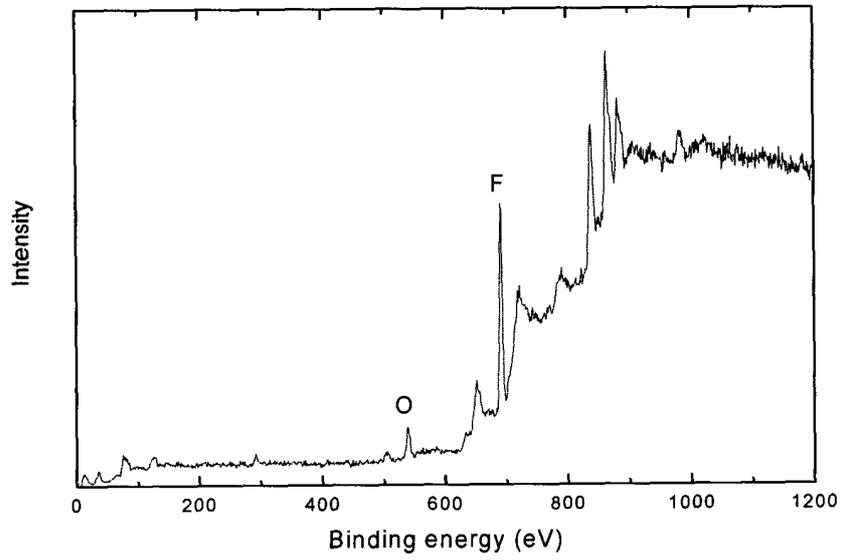


(b) Inconel+U, -300V bias

Fig. 3.1.3.27 Etching rate of Co membrane oxidized versus time

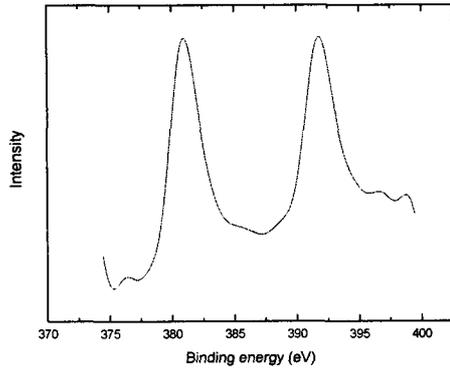


(a) 반응 전

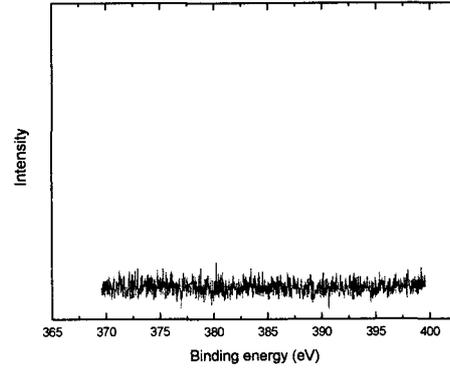


(b) 반응 후

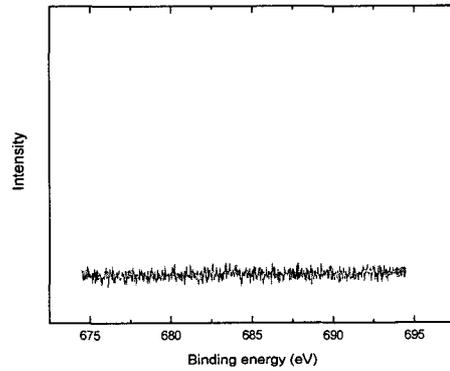
Fig. 3.1.3.28 Results of XPS analysis(wide scan)



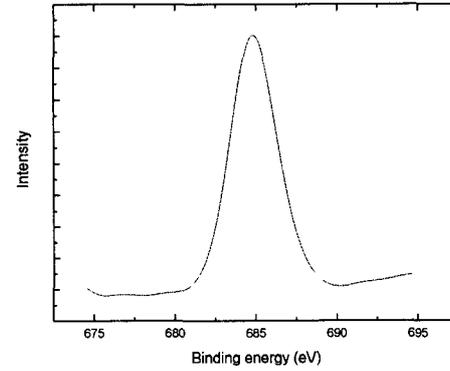
(a) 반응 전 (U peak)



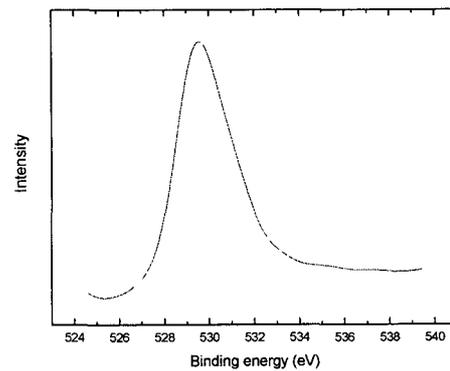
(b) 반응 후 (U peak)



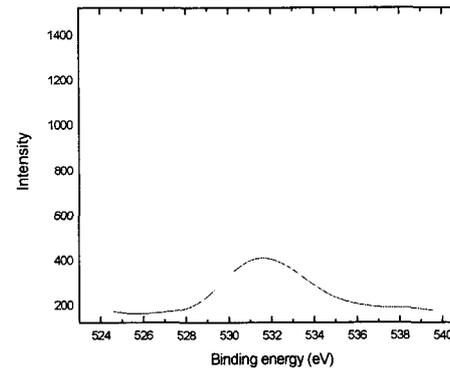
(c) 반응 전 (F peak)



(d) 반응 후 (F peak)



(e) 반응 전 (O peak)



(f) 반응 후 (O peak)

Fig. 3.1.3.29 Results of XPS analysis(narrow scan)

(4) 오염 형태별 제염 특성

실제 원자력 발전소에서 배출되는 금속폐기물을 이용한 제염실험을 수행하기 위한 기초실험으로써 저준위 방사성 금속 시편의 형태별 제염 실험을 수행하였다. 시편은 스테인리스 스틸, 알루미늄, 스틸의 3가지 재질의 plate, pipe, cup의 3가지 형태로 준비하였다. 각 시편의 표면은 모래 및 먼지 등의 이물질이 묻어있는 상태였으나 실험의 목적상 처리를 하지 않고 실험을 수행하였다.

플라즈마 반응 기체로서는 CF_4/O_2 기체를 선택하였고, 플라즈마는 10 kW의 DC power를 이용하여 발생시켰으며, 10분 단위로 반응시켜 제염도를 측정하였다.

(가) 실험 절차

① 시편 제작

방사성 금속 시편은 plate형태와 pipe형태 그리고 cup형태의 3가지 형태와 스테인리스 스틸과 알루미늄 그리고 스틸의 3가지 재질의 시편이 준비되어 세 차례의 실험이 수행되었다. 각각의 시편의 표면은 모래, 먼지 등의 이물질이 많이 쌓여 있는 상태였으나 실험의 목적상 시편에 대한 아무런 전처리를 하지 않고 플라즈마 건식 제염 설비의 프로세싱 챔버에 장입하여 실험을 수행하였다.

② 식각 실험 수행

실험 시편을 플라즈마 건식 제염 설비에 장입하기 전에 반응 챔버의 불순물을 제거하기 위하여 제염 설비의 진공 챔버의 진공도를 최대로 떨어뜨린 상태에서 할로젠 램프 히터로서 가열하여 제염 설비의 진공 챔버를 10분간 baking한다. 그 후 시편을 장입한 후 다시 제염 설비의 진공 챔버의 진공도를 최대로 떨어뜨려 진공 챔버 내의 기체 순도를 유지 할 수 있도록 한다. 다음 실험 목적에 맞게 온도를 올려 주고 MFC(mass flow controller)를 이용하여 CF_4/O_2 혼합기체를 흘려준다. 혼합기체의 혼합 비율은 4:1로 하였으며, 30 Pa의 압력에서 실험을 수행하였다. 제염 실험 시 DC 전원의 출력은 DC 플라즈마의 특성상 그 출력 조건이 시편의 모양에 따라 다르고 또한 아크의 발생으로 DC 전원의 출력을 마음대로 높일 수가 없다. 제염 실험 수행 시 DC 전원의 출력은 시편 장입 시 아크가 발생하지 않는 조건에서 DC 전원 공급 장치의 최대 출력을 결정하여 제염 실험을 수행하였다.

각각의 시편에 대한 제염도의 평가는 플라즈마 건식 제염 설비에서 제염 실험을 수행한 후 각각의 시편에 대하여 γ -spectroscopy 분석하여 제염 실험 전후의 Co-60과

Cs-137의 방사능 농도의 증감으로서 시편에 대한 제염도를 평가하였다.

(나) 결과 및 논의

저 방사능 금속 시편에 대한 제염 실험은 3차례 행해졌으며 각각의 제염 실험의 결과는 Table 3.1.3.3, Table 3.1.3.4, Table 3.1.3.5에 수록하였고 제염 전과 제염 후의 금속 시편의 사진을 수록하여 제염 후의 시편의 변화를 눈으로 쉽게 확인할 수 있도록 하였다.

① 형태별 1차 실험

플라즈마 건식 제염 설비로 SUS pipe, SUS plate, Aluminium plate, Steel pipe 시편에 대하여 각각 10분간 반응시켜 제염 전후 Co-60과 Cs-137에 대한 방사능농도 변화와 제염효율을 평가하였다. Table 3.1.3.3에 나타난 바와 같이 각각의 시편에 대해 제염 전보다 제염 후의 방사능농도가 대체적으로 낮아지는 경향을 나타내었으며, 이를 통하여 금속 폐기물에 대한 제염이 이루어지고 있음을 확인할 수 있었다. 한편, SUS plate-1의 경우 Cs-137의 방사능농도는 제염전이 0.075 Bq/g이고 제염 후에는 검출되지 않았으며, Steel pipe와 SUS pipe-2의 경우 제염 전 보다 제염 후 방사능농도가 오히려 높아졌는데 이는 시편의 분석 시 측정 오차가 발생한 것으로 판단된다.

제염정도를 나타내는 척도인 제염계수(DF, Decon Factor)는 10 이하를 나타내었는데 이는 금속 시편의 방사능농도가 매우 낮았기 때문에 제염계수 또한 낮게 나타난 것으로 판단된다. Fig. 3.1.3.30 ~ Fig. 3.1.3.33에 제염전과 제염후의 시편의 표면상태를 나타내었다. 그림에서 볼 수 있듯이 제염 후 시편의 표면상태가 제염 전 보다 깨끗해져 있음을 쉽게 확인할 수 있다.

제한적인 시편에 대해 수행한 실험이었지만 대체적으로 plate 형태 보다는 pipe 형태의 시편이 제염효율이 높게 나타났으며, Cs-137 보다는 Co-60의 제염효율이 높게 나타났다. 그리고 알루미늄 시편의 경우 스텔이나 스테인리스 스텔 시편에 비하여 제염효율이 떨어지는 것으로 나타났다.

pipe 형태의 시편이 plate 형태의 시편 보다 제염효율이 높게 나타나는 것은 플라즈마 건식 제염 설비의 프로세싱 챔버의 전극 구조에 기인하는 것으로 판단된다. 제염 설비의 전극 구조는 제염물을 올려놓을 수 있는 substrate에 음의 바이어스가 걸리고 챔버의 door와 반대편 챔버 벽에 양극판이 존재하므로 pipe의 경우 음의 바이어스가 전체적으로 걸리므로 pipe 내에서 플라즈마가 발생한다. 그러므로 pipe의 경

우 내부와 외부에 동시에 플라즈마와 반응하므로 제염효율이 높게 나타난 것으로 판단된다. plate 형태의 경우 substrate에 놓혀져 있어 한 쪽만이 플라즈마에 반응하므로 pipe에 비해 제염효율이 떨어지는 것으로 판단된다.

실험 결과 Co-60의 방사능농도가 Cs-137의 방사능농도 보다 잘 떨어지는 것으로 나타났다. 이는 Cs-137의 초기 방사능농도가 Co-60에 비하여 매우 낮고, 기초연구에서 bulk 시편에 대한 식각 실험 결과를 살펴보면 코발트의 경우 RF 플라즈마에서 DC bias를 걸었을 때 코발트가 식각되는 것을 알 수 있다. 플라즈마 건식 제염 설비에서는 플라즈마 파워 공급 장치로서 DC 전원 공급 장치를 사용하고 있으므로 제염 설비에서의 제염 공정시 이온이 음극판에서 가속되어 이온 보조 식각이 일어나고 있다. 금속 세척에 대하여서는 세척과 플라즈마와의 반응에 대하여 지속적인 연구가 필요한 것으로 판단된다.

알루미늄 시편의 경우 스틸이나 스테인리스 스틸 시편에 비하여 제염효율이 떨어지는 것은 알루미늄이 플루오르에 의한 반응 생성물을 만들지 않기 때문이며 알루미늄 재질의 금속 폐기물을 제염 시에는 염소를 함유한 Cl₂, CCl₄와 같은 가스를 사용하면 보다 높은 제염효율을 나타낼 것으로 기대된다.

위의 실험을 통하여 시편의 재질과 형태, 방사성핵종에 따라 제염공정이 달라짐을 알 수 있었고 플라즈마 건식 제염 설비에서 보다 높은 제염효율을 얻기 위해서는 추후의 연구를 통해서 시편의 재질과 형태, 방사성핵종에 따른 각각 최적의 제염공정 조건을 확보해야 할 것으로 판단된다.

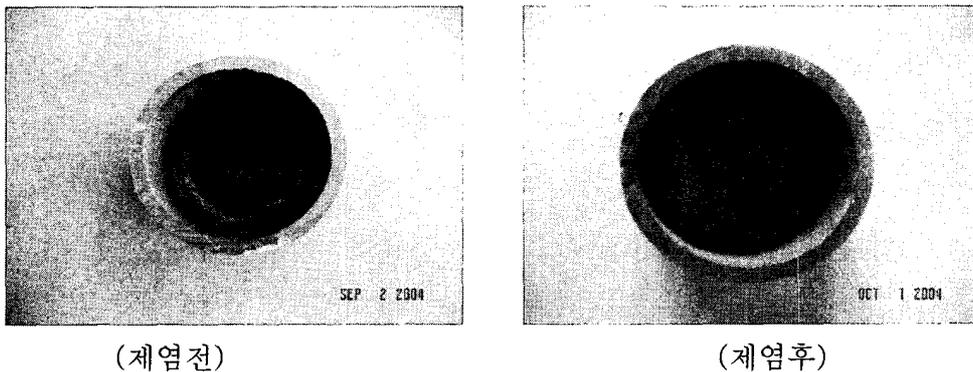
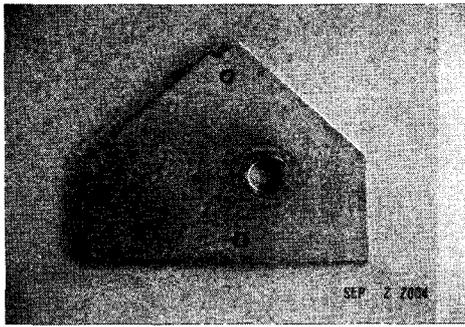
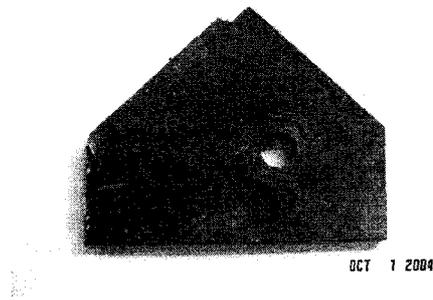


Fig. 3.1.3.30 SUS pipe-1

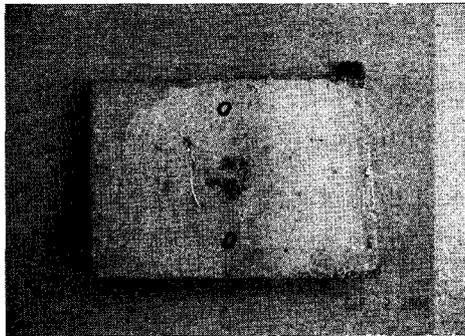


(제염전)

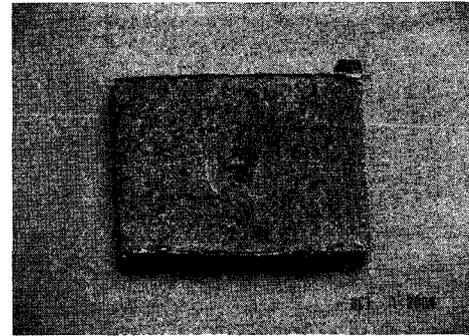


(제염후)

Fig. 3.1.3.31 SUS plate-1

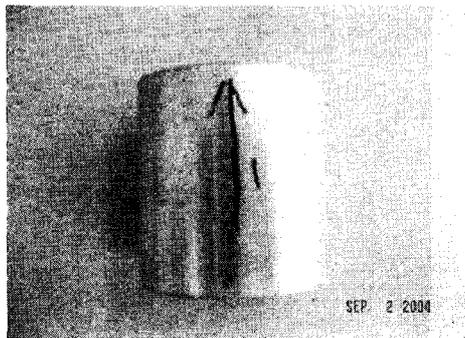


(제염전)

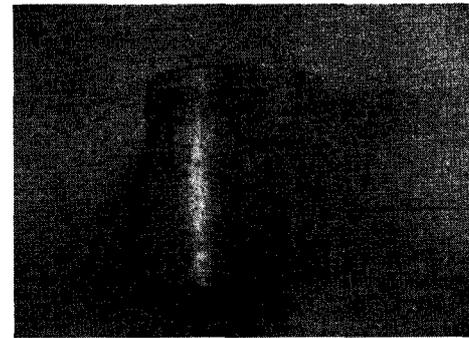


(제염후)

Fig. 3.1.3.32 Aluminium plate



(제염전)



(제염후)

Fig. 3.1.3.33 Steel pipe

② 형태별 2차 실험

SUS pipe, SUS plate 및 Steel pipe 등 5개 시편에 대하여 제염시간에 따른 오염도의 변화를 평가해 보았다. 평가방법은 서베이미터로 제염 전 오염도를 측정 한 후 플라즈마 건식 제염 설비에서 각각의 시편에 대하여 10분씩 반응시켜 다시 서베이미터로 오염도를 측정하였다. 이와 같은 절차를 3번 반복하여 제염공정 시간에 따른

오염도의 변화를 평가하였으며, 이에 대한 결과는 Table 3.1.3.4에 나타나 있다. 실험 결과 SUS pipe-2와 Cutting된 SUS pipe의 경우 자연 방사선준위인 5 cps로 떨어졌고, SUS plate-2와 Steel pipe는 10 cps로 떨어져 시편의 오염도가 제염시간에 따라 낮아지고 있는 것을 확인 할 수 있었다. 또한 Fig. 3.1.3.34에 나타나 바와 같이 오염도가 낮아지는 폭은 제염시간이 증가할 때마다 지수 함수적으로 감소하는 것을 알 수 있었다.

③ 형태별 3차 실험

서베이미터에 의한 오염도의 측정은 비교적 정확하지 않으므로 1 Bq/g 정도의 낮은 방사능농도를 가지는 SUS pipe-1,2 시편을 제염하여 어느 정도 방사능농도를 낮출 수 있는지를 실험해 보았다. 실험절차는 2개의 시편을 20분 동안 제염 설비에서 반응시키고 γ -spectroscopy 분석을 수행한 후 다시 20분 동안 제염 설비에서 반응시키고 다시 γ -spectroscopy 분석을 수행하였다. 이에 대한 실험결과는 Table 3.1.3.5과 Fig. 3.1.3.35에 나타내었다.

Table 3.1.3.5에 나타난 바와 같이 SUS pipe-1의 제염 전후 Co-60의 방사능농도는 각각 1.065 Bq/g 및 0.177 Bq/g, SUS pipe-2의 제염 전후 Co-60의 방사능농도는 각각 1.248 Bq/g 및 0.430 Bq/g으로 나타났다. 그리고 SUS pipe-1의 제염 전후 Cs-137의 방사능농도는 각각 0.351 Bq/g 및 0.177 Bq/g, SUS pipe-2의 제염 전후 Cs-137의 방사능농도는 각각 0.200 Bq/g 및 0.125 Bq/g으로 나타났다.

Table 3.1.3.3 Radioactive concentration of specimens before and afeter first decontamination test

시편명	검출핵종	방사능농도 (Bq/g)		DF	비 고
		제염전	제염후		
SUS pipe-1	Co-60	8.422	2.231	3.77	
	Cs-137	1.203	1.072	1.12	
SUS plate-1	Co-60	93.270	89.520	1.04	
	Cs-137	0.075	N/D	∞	
Aluminum plate	Co-60	14.100	5.484	2.57	
	Cs-137	0.557	0.465	1.20	
Steel pipe	Co-60	20.580	3.383	6.08	
	Cs-137	3.347	5.000	0.67	
SUS pipe-2	Co-60	12.170	1.452	8.38	
	Cs-137	0.354	0.376	0.94	

Table 3.1.3.4 Second decontamination test : dose changes versus time

시 편	형 태	선량(CPS)				비 고
		초기	1회	2회	3회	
1	SUS Plate-1	40	25	20	15	
2	SUS Plate-2	20	15	10	10	
3	SUS Pipe-2	30	10	5	5	
4	Steel Pipe	25	20	10	10	
5	SUS Pipe (Cuttet)	20	10	7	5	

주) 제염 시간은 각 10분임

Table 3.1.3.5 Radioactive concentration of specimens before and afeter third decontamination test

시편명	검출핵종	방사능농도 (Bq/g)			비고
		제염전	1회	2회	
SUS Pipe-1	Co-60	1.065	0.222	0.177	121.4g
	Cs-137	0.351	0.212	0.177	
SUS Pipe-2	Co-60	1.248	0.489	0.430	72.09g
	Cs-137	0.200	0.151	0.125	

주) 제염 시간은 각 20분임

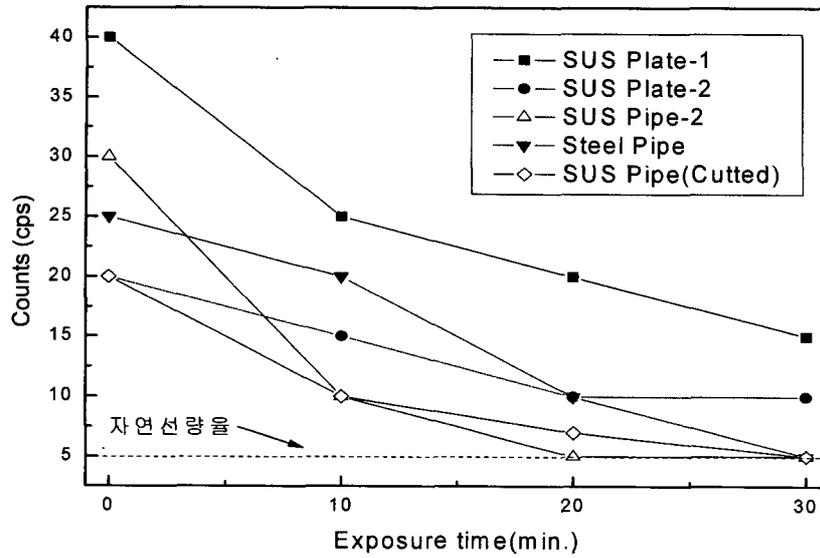


Fig. 3.1.3.34 Variation of radioactive concentration versus reaction time

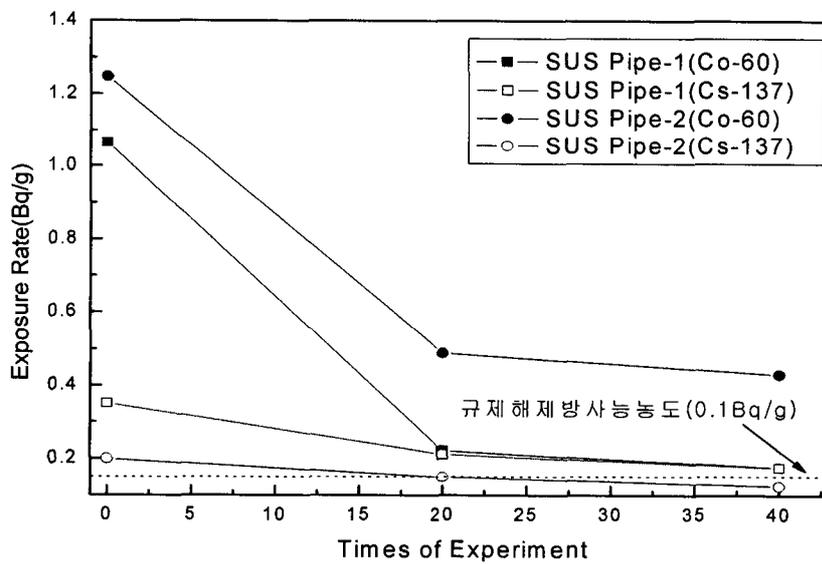


Fig. 3.1.3.35 Variation of radioactive concentration analyzed with γ -spectroscopy

(5) 플라즈마 제염기술의 현장 적용성 예비 평가

(가) 상압플라즈마의 개요

플라즈마는 전기가 통하는 중성전리가스 즉 대량의 전리가 일어나지 않는 기체중의 이온이나 전자가 희박하게 존재하는 거의 대부분 중성에 가까운 기체 상태로 그 온도에 따라 저온과 고온 플라즈마로 나누어진다. 그중 저온 플라즈마로 대표되는 글로우 방전 플라즈마는 진공중의 음극에서 발생된 2차 전자가 기체분자와 충돌하여 가속되어 전기장으로부터 에너지를 얻은 다음 충돌을 통해 눈사태와 같이 전리하여 형성된다.

그러나 기체의 압력이 점차 상승하는 경우 전자와 입자간의 충돌횟수가 많아지고 그것으로 인해 평균에너지가 낮아져 방전이 용이하게 유지되지 않는다. 따라서 압력이 높아질수록 방전을 유지하기 위한 에너지, 즉 전압을 더욱더 크게 가하여야 하며, 그 경우 고온의 아크 플라즈마가 형성된다.

이러한 플라즈마를 발생시키는 가장 간단한 방법은 방전으로 109 K이상의 초고온 아크플라즈마를 발생시켜 핵융합 장치 제작에 이용하는 한편, 450 K 이하의 낮은 온도를 유지하는 글로우 방전 플라즈마는 반도체 제조는 물론 금속, 세라믹 등의 박막 제조 및 물질합성에 활용되고 있다. 또한 코라나 방전을 통한 플라즈마는 공기청정기를 제작하는데 이용되는 등 아주 다양한 응용분야를 가진다.

한편 낮은 압력에서의 글로우방전의 경우 큰 체적의 균일한 확산 플라즈마를 얻을 수 있으며, 그 응용분야가 다양하고 활용가치가 매우 높다. 그러나 진공유지를 위한 장치가 필요하며 처리물의 제한이 수반됨과 동시에 처리공정의 연속화를 도모하기 어려움 등 공업화에 많은 문제점을 가지고 있다.

상압 하에서 저온 플라즈마 즉 글로우방전과 같은 플라즈마를 얻을 수 있다면 진공유지, 처리물 장입과 관련된 장치비용을 대폭 경감할 수 있다. 또한 증기압이 높은 시료가 탈가스 등의 문제가 발생함에도 불구하고 할 수 없이 저압의 플라즈마로 처리하는 고무, 생체재료 등의 새로운 분야에 응용될 수 있다.

(나) 상압플라즈마의 종류 및 특성

- ① 직류 및 저주파 방전
- ② 아크 플라즈마 토치

아크 플라즈마 토치는 직류 전원을 공급 받는다. 아크 플라즈마 토치는 전류보유(current-carrying)와 전류전달(transferred) 아크의 두 카테고리로 나눌 수 있다 (Fig. 3.1.3.36).

전류보유 아크 토치에서는 양으로 극성화 된 노즐이 양극이 된다. 전류전달 아크 토치의 경우에는 다루어지는 물질이 양극이 되고, 노즐은 유동 포텐셜(floating potential)에 있게 된다.

아크는 음극과 양극 사이에서 점화되고, 플라즈마 가스를 이온화 한다. 플라즈마 온도는 발달단계의 8000 K 에서부터 고온 응용을 가능하게 하는 중심부의 15000 K 까지 변화한다. 아크 플라즈마는 매우 전도성이 뛰어난 매체이며 ($I = 50 - 600 \text{ A}$), 가스는 이온화 정도가 매우 높고 전자밀도는 약 $3 \times 10^{23} \text{ m}^{-3}$ 이다.

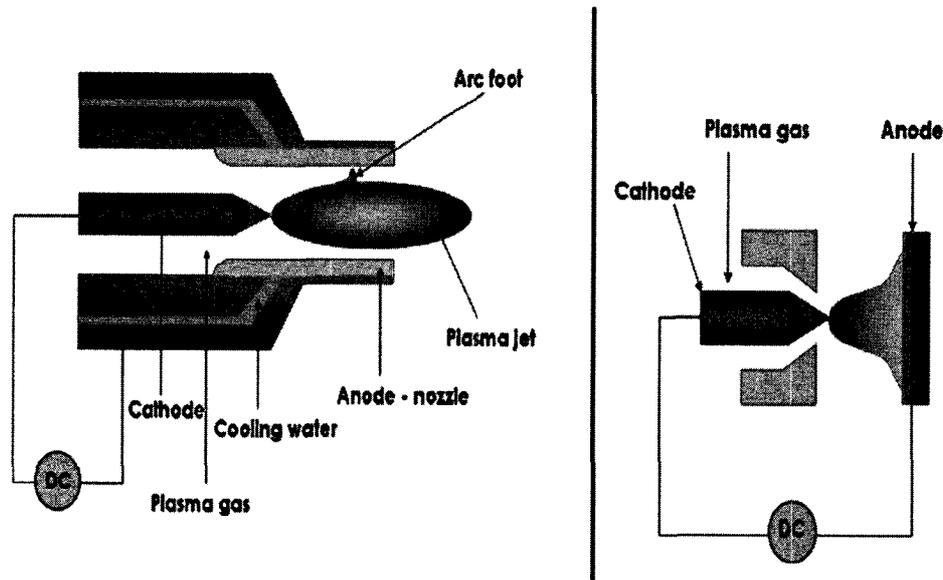


Fig. 3.1.3.36 Principle of arc plasma torches (left: current-carrying arc, right: transferred arc)

㉔ 코로나 방전

코로나 방전은 낮은 전류밀도를 갖는 비국소열평형 방전이다. 코로나 방전 장치 (Fig. 3.1.3.37) 는 음극선과 직류전원이 펄스로 들어오는 양극 (처리할 표면) 으로 구성되어 있다. 이 경우 플라즈마는 선 근처에 빛을 발산하는 등근 형상 (lighting crown) 을 형성하는데, 여기에서 "코로나"라는 말이 유래하였다. 선에 음의 고압이 인가되면 방전은 음의 코로나가 된다. 이차적인 전자들이 플라즈마 내로 방출되고 선으로 양의 이온들이 가속된다. 약 1 eV 의 상대적으로 낮은 에너지를 가지는 전자들이 후미를 따르는 10 eV 정도의 높은 에너지를 가지는 전자들의 이동선단부를 스트리머 (streamer) 라고 한다. 이러한 고 에너지 전자와 무거운 입자들 사이에서 비탄성 충돌이 발생하며, 화학적으로 반응성이 있는 화학종을 생성한다. 펄스 간격은 아

크를 생성하는데 필요한 시간보다 작다. 각각의 펄스가 끝날 때, 방전은 전도성이 너무 커지기 전에 소멸된다. 따라서 스파크로의 전이는 피하게 된다. 방전 전류는 10^{-10} A 에서 10^{-5} A 로 매우 낮다. 양의 코로나도 존재하며, 이 경우에는 양으로 극성을 가지는 선이 양극의 역할을 하게 된다.

플라즈마의 체적이 매우 작기 때문에, 표면 처리와 관련한 코로나 방전의 단점으로는 처리할 수 있는 면적의 크기가 작다는 것이다. 처리 표면을 늘리기 위하여 음극선은 평면형의 전극으로 대체될 수 있다. 이러한 시스템은 전극 사이의 간격에 수직한 스트리머인 마이크로 아크를 생성한다. 스트리머는 물질 표면에 비균질 처리를 야기하면서 항상 같은 장소인 표면에서 시작된다. 이러한 문제를 피하기 위하여 유전체 장애 방전 (dielectric barrier discharge) 이 발전되었다.

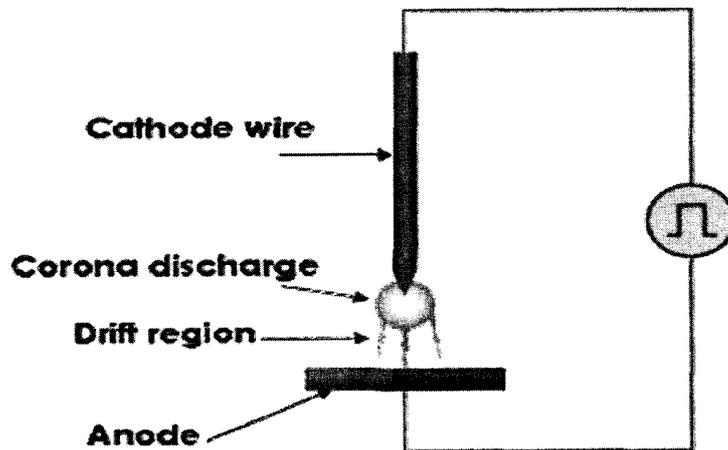


Fig. 3.1.3.37 Principle of a corona discharge

㉔ 유전체 장애 방전

Fig. 3.1.3.38 과 같이 DBD 장치는 두 개의 평행판 금속 전극으로 구성되어 있다. 최소한 전극 중 하나는 유전체 층으로 덮여있다. 안정적인 플라즈마 작동을 보장하기 위하여 전극을 분리하는 간격은 수 밀리미터로 제한되며 플라즈마 가스는 이 간격 사이로 흘러간다. 방전은 사인함수 혹은 펄스 형의 전원으로 점화된다. 작동 가스의 조성, 전압, 그리고 여기 주파수에 따라 방전은 필라멘트 형태 혹은 글로우 형태가 된다. 필라멘트 형태의 방전은 유전체 층의 표면에서 발달하는 마이크로 방전 또는 스트리머에 의해 만들어진다. 플라즈마 가스로 헬륨을 사용하면 고 에너지의 준안정성 헬륨 화학종으로 인해 글로우 방전으로 발전된다. 유전체 층은 다음에 의해서 중요한 역할을 하게 된다.

- 반전 전류를 차단하고 아크로의 전이를 피할 수 있게 하여 연속 또는 펄스 모드에서 작업이 가능하게 함
- 전극 표면에 무작위로 스트리머를 배분하고 균질한 표면처리를 보장한다.

스트리머의 생성은 유전체 표면에 전자의 축적으로 인해서 발생한다. 설명된 DBD는 가장 일반적인 경우이며, 그 밖의 여러 시스템이 개발되고 있다.

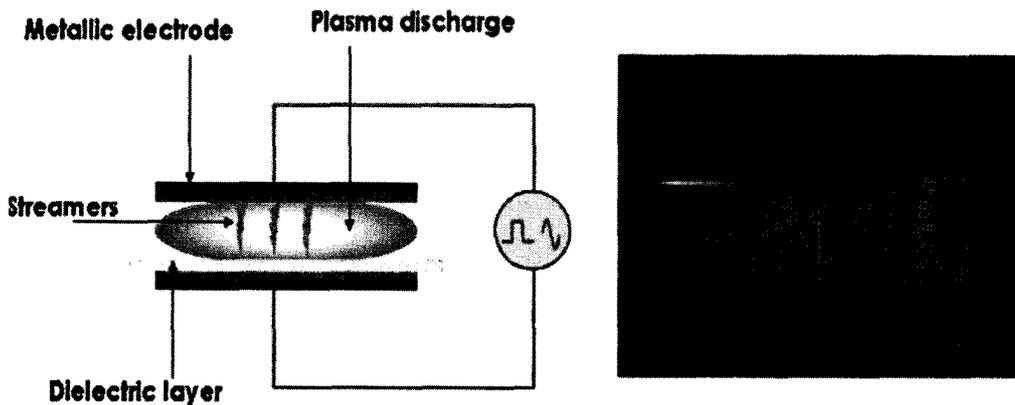


Fig. 3.1.3.38 Principle of dielectric barrier discharge

② RF 방전

구조를 고려할 때, RF 전원은 고 에너지 혹은 저 에너지 공급과 함께 작동 가능하다. 이는 플라즈마 물성치에 영향을 주며 응용 가능성에도 영향을 준다.

㉞ ICP 토치

유도 방전은 오랫동안 알려져 왔으며, RF 토치는 간단히 Fig. 3.1.3.39 와 같이 설계될 수 있다. 플라즈마는 RF 전원이 공급되는 나선형의 코일에 의해 시작되고 유지된다. RF 코일에 흐르는 전류가 플라즈마 영역 근처에서 시간에 따라 변화하는 자기장을 유도한다. 결과적으로 나타나는 전기장을 통해서 전자가 가속되고 방전을 유지하게 된다. 생성되는 플라즈마의 주파수는 1 MHz 보다 높다. 플라즈마의 주파수 레벨은 전자들이 전기장의 섭동(oscillation)을 따르며 이온이나 전자들이 토치의 벽면에 닿지 못함을 의미한다. 플라즈마와 벽면 사이의 접촉이 줄게 되면 플라즈마와 토치 벽의 오염을 줄일 수 있게 된다. 이러한 종류의 토치는 현재 매우 잘 발달되어 있으며, 분광 분석이나 독성 폐기물 처리 등에 사용될 수 있다.

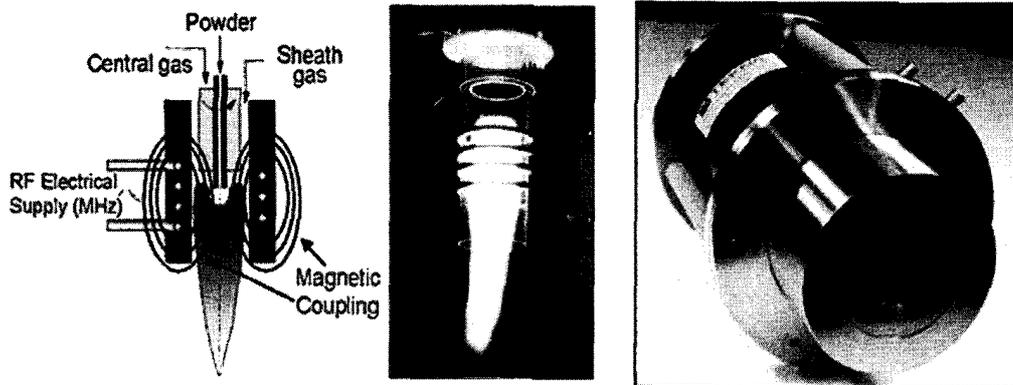


Fig. 3.1.3.39 RF plasma torch (Teckna Plasma System Inc.)

㉔ IST 시스템

지능적인 전극 설계를 통해서 복잡한 표면을 빠르고 효율적으로 처리할 수 있다. IST 학회는 플라스틱 병 내부의 오염물을 제거하기 위해서 RF 펄스를 사용하는 방안을 개발하였다. 이 공정은 복잡한 표면 처리에 DBD 를 도입한 것이다. 병 내부로 전극을 넣는 대신 주변과 상부의 전극을 통해서 플라즈마를 생성하고, 유전체 벽을 통해서 안정화 시키는 것이다. 방전 개시를 보다 쉽게 하기 위해서 아르곤을 중앙 전극 주변에 흘려보낼 수 있다. 이 시스템은 20 kW 의 고 에너지를 필요로 하지만 충격(impulsion)을 사용하여 저온 손상 재료(low temperature degradable materials)를 처리할 수 있다.

㉕ 상압 플라즈마 제트

APPJ(atmospheric pressure plasma jet)는 길이 20 cm 이하로서 저 에너지에서 작동하는 작은 RF 플라즈마이다. Fig. 3.1.3.40 의 이 시스템은 작동 가스 유동 내의 두 개의 동심원 전극으로 구성되어 있다. 100 에서 150 V의 전압을 내부 전극에 인가하여 가스 방전은 점화된다. 이온화 된 가스는 가스 속도가 12 m/s 이기 때문에 노즐을 통해서 배출된다. 낮은 분사 에너지는 토치가 안정적인 방전을 할 수 있도록 하며 아크로의 전이를 피하게 한다.

㉖ 저온 플라즈마 토치

H. Koinuma 등에 의해 개발된 저온 플라즈마 토치는 DBD 와 APPJ 구조 사이에 놓여있다 Fig. 3.1.3.41. RF 전극은 스테인리스 스틸 바늘(needle)이다. 플라즈마의 안

정성과 균질성을 위하여 석 영관 이 음극과 양극 사이에 설치되었다. 플라즈마 가스는 음극과 유전체 관 (dielectric tube) 사이의 간격으로 흐른다.

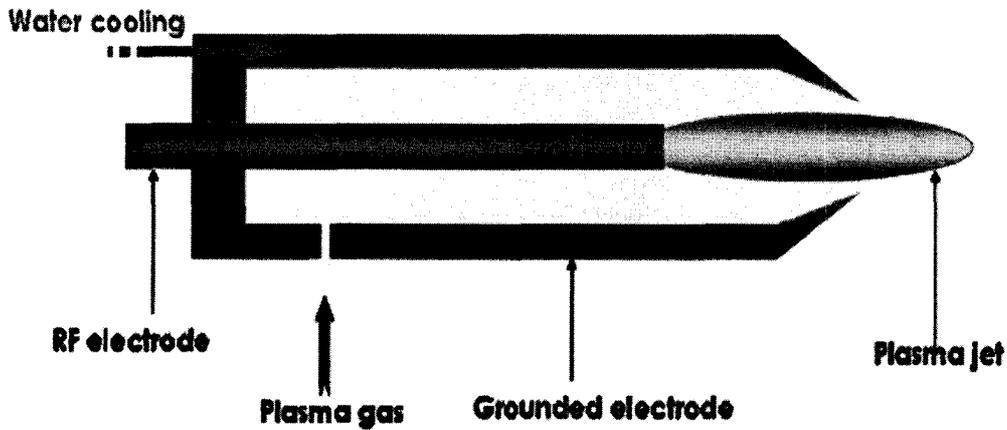


Fig. 3.1.3.40 APPJ design

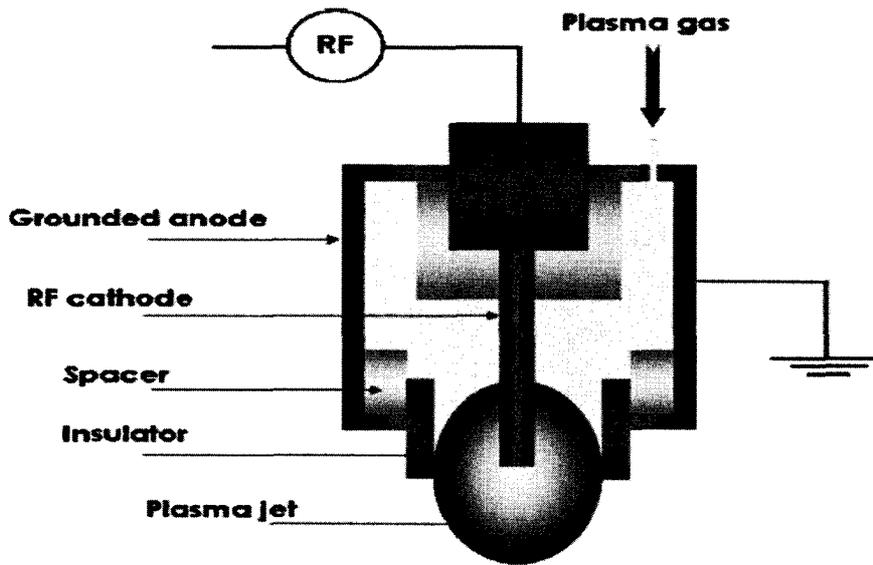


Fig. 3.1.3.41 Cold plasma torch design

③ 마이크로파 유도 플라즈마

전극이 없는 마이크로파 시스템도 같은 원리로 작동한다. 마이크로파는 시스템을 따라 인도되며(guided) 플라즈마 가스의 전자들에 에너지를 전달한다. 전자와 무거운 입자 간의 충돌이 발생하게 되며, 무거운 입자들의 큰 질량 때문에 충돌한 전자는 튕기게 되지만 반면 무거운 입자들은 정지 상태로 남게 된다. 이에 전자들은 운동에너지를 얻어 가속되며 무거운 입자들은 조금씩 가열된다. 여러 차례의 탄성충돌 후

에 전자들은 비탄성 여기나 이온화 충돌은 할 만큼 충분한 에너지를 가지게 된다. 마침내 가스는 부분적으로 이온화 되고 플라즈마가 되어 마이크로파의 전파를 지탱하게 된다. 상압의 마이크로파 유도 플라즈마는 다음의 카테고리로 구분된다.

- 공명 공동 플라즈마 (resonant cavity)
- 자유팽창 토치 (free expanding torch)
- 마이크로 플라즈마

(다) 상압플라즈마를 이용한 제염기술의 적용

상압 플라즈마의 가능한 응용을 플라즈마의 특성(특히 가스 온도), 즉 플라즈마의 여기에 따라 개괄해보면 폴리머 표면처리 등에는 500 K 이하의 저온이 필요한 반면, 금속의 용접에는 1500 K 이상의 고온이 필요하다. 저온은 수백 와트 이하의 낮은 작동 에너지나 마이크로파 플라즈마 등의 고 에너지 플라즈마의 플룸(Plume)에서 얻어질 수 있다.

높은 가스 온도는 높은 작동 에너지를 통해서 얻을 수 있으며, 유도 플라즈마 또는 마이크로파 플라즈마가 적당하다. 표면 코팅은 아직 시도되지 않았지만 마이크로파 플라즈마가 저온 혹은 고온 모두 가장 넓은 응용폭을 가진다. 아크와 유도 플라즈마는 높은 작동 에너지를 요하는 곳에서 필요하다. 반면, 저 에너지와 라디오주파수 플라즈마는 반응성이 활발한 화학종과 저온이 필요한 곳에 알맞다.

플라즈마를 이용한 제염기술의 적용은 다음과 같은 기본적인 조건을 가져야 한다..

- 낮은 온도 조건 : 모재 물질의 회수 가능성
- 현장 적용성 : 이동성 등이 용이
- 경제성 : 제작 및 유지비용이 저렴
- 효율성 : 대면적 적용이 가능

플라즈마를 이용한 제염 기술은 반도체 공정 등에서 이용되는 에칭 기술과 매우 흡사하며 Table 3.1.3.6 과 같이 제염기술의 적용을 위한 기본적인 조건을 만족하는 상압플라즈마의 종류는 상압플라즈마제트와 저온 플라즈마 토치 타입 등이 적용가능하다.

플라즈마를 이용한 제염기술은 오염대상물의 선택적 제염이 가능하므로 모재의 회

수가 가능하고 습식 공정과 달리 2차 폐기물의 양이 적으며 원격 제어 등을 통한 작업자의 안전성을 향상 시킬 수 있다. 하지만 저진공 플라즈마 기술은 진공시스템을 이용함으로써 오염 형태 등에 따라 현장 적용성이 일부 제한적이다. 이와 달리 상압플라즈마 기술은 진공시스템을 요구하지 않으므로 이러한 기술을 제염 공정에 적용할 수 있다면 저진공 플라즈마 기술이 가지고 있는 현장 적용성 문제를 해결할 수 있을 것이다. 하지만 상압플라즈마를 이용한 제염 기술은 저진공 플라즈마 기술에 비해 일반적으로 제염효율이 다소 떨어지며 더 많은 플라즈마 기체와 더 높은 파워를 필요로 하기 때문에 유지비용이 다소 많을 수 있다.

따라서 플라즈마를 이용한 제염기술은 저진공과 상압플라즈마 기술이 상호 보완적인 관계에 있다고 할 수 있다.

Table 3.1.3.6 Surface etching by atmospheric plasma

Excitation	Source	Plasma	Substrate	Etching rate	Observation
Low frequency	DBD	He/O ₂	Organic material	0.2 μm min ⁻¹	Not uniform etching
Radio frequency	APPJ	He/O ₂	KAPTON	8 μm min ⁻¹	Chemical process: influence of oxygen metastable species and atoms
		He/O ₂ /CF ₄	SiO ₂	1.2 μm min ⁻¹	
			W	1 μm min ⁻¹	
		Ta	2 μm min ⁻¹		
	Cold plasma torch	He/CF ₄	Si	0.3 μm min ⁻¹	Emission intensity (OES) of F [*] is related to the etching rate of Si

다. 결 문

현재 방사성 폐기물의 처리는 폐기물 상태나 형태에 따라 과정의 차이는 다소 있지만 중저준위 폐기물은 대개 부피를 최소화하여 드럼에 저장하는 방식을 쓰고 있다. 기체상 방사성 오염 물질의 경우 흡착필터로 포집하는 방법을 채택하고 있고 액체상의 경우 저장조에서 증발시키거나 이온교환수지로 걸러내어 시멘트 고화처리 후 드럼으로 저장된다. 고체 폐기물은 원자로 건물에서 나온 각종 기기류, 부품, 공구류 등의 금속 폐기물과 작업복, 장갑 등이 있는데 일정한 장소에 보관 후에 압축

하여 드럼으로 밀봉하여 저장하고 있다. 그런데 이들 폐기물 중 상당수는 그 자체가 방사성 오염 물질이라기보다는 오염 핵종을 표면에 부착하고 있는 경우가 많아 제염 공정을 거쳐 폐기한다면 드럼에 보관해야할 양을 획기적으로 줄일 수 있을 것이다.

플라즈마 처리 공정은 표면 오염 핵종과 휘발성 화합물 생성 반응성이 매우 높은 원소/원자들을 플라즈마를 이용해 발생시켜 오염원인 방사성 핵종과의 선택적 반응을 통해 기화시켜 제거하는 방식이기 때문에 방사성 부식 생성물(CP)이나 핵분열 생성물(FP), 그리고 U, Pu와 같은 TRU 핵종에 의해 발생하는 오염 폐기물의 경우 오염 핵종만을 선택적으로 제거하는 것이 가능하다. 그에 따라 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. 이러한 이유로 일본과 미국 등 주요 원자력 선진국에서는 플라즈마를 이용한 건식 제염에 관한 연구를 꾸준히 진행하여 왔으며 최근에는 실용화 연구가 활발히 진행되고 있다.

본 연구에서는 시설이나 부품의 제염 대상에 대해 플라즈마를 이용한 제염 성능을 평가하기 위하여 이들 시설에서 주요 오염원으로 판단되는 핵종들, TRU(Transuranic compound)를 대표하는 이산화우라늄과 부식 생성물(CP) 핵종 및 핵분열 생성물(FP)인 Co, Mo 핵종에 대한 플라즈마 제염 기술의 기초 실험 및 핵종별 최적 제염공정 확보를 위한 연구와 오염 대상별, 형태별 제염 특성 연구를 수행 하였고, 이를 바탕으로 현장 적용성을 예비 평가하였다.

TRU, CP, FP 핵종의 플라즈마 건식 제염 실험 및 QMS/AES/OES 진단 기구를 이용한 플라즈마 진단 결과 제염 메카니즘이 불화반응에 의한 것이라는 것을 밝혀내었으며, 최적 공정과 식각율을 도출해 낼 수 있었다. 또한 오염이 산화막 형태로 모재 표면에 고착되어 있을 때를 모사한 시편을 이용한 제염을 통하여 강하게 고착되어 있는 경우의 식각율을 도출할 수 있었고 최적 공정 또한 도출해 낼 수 있었다.

실제 적용에 앞서 기초 실험으로 저준위 방사선 금속 시편의 형태별 실험을 수행하였고 그 결과 오염도가 시간에 지남에 따라 현저하게 감소하는 것을 확인함으로써 실제 플라즈마를 이용한 제염이 가능함을 보였다.

그리고 저진공 플라즈마 기술은 진공시스템을 이용함으로써 오염 형태 등에 따라 현장 적용성이 일부 제한적이다. 그에 따라 현재 여러 기술 분야에서 적용되고 있는 상압 플라즈마를 이용한 건식 제염 공정에 대해 적용성을 평가하여 보았다.

상압 플라즈마 기술의 경우 대면적으로 제작하여 효율성을 높일 수 있고, 진공 시스템을 요구하지 않으므로 이동성을 갖고 있어 현장 적용이 용이하다. 반면에 저진공 플라즈마 기술에 비해 일반적으로 제염효율이 다소 떨어지며 더 많은 플라즈마 기체와 더 높은 파워를 필요로 하기 때문에 현장 적용에 있어 최적화된 공정 도출이 필요할 것으로 사료된다.

따라서 플라즈마를 이용한 건식 제염기술에서 저진공과 상압플라즈마 기술은 상호 보완적인 관계에 있다고 할 수 있으므로 저진공 플라즈마 기술과 상압 플라즈마를 복합적으로 적용할 경우 효율을 극대화 할 수 있다고 생각된다.

이 연구를 통해 도출된 플라즈마 제염 공정이 국내제염 산업에 성공적으로 정착된다면 원자력산업 규모 증가에 따라 발생하는 방사성 폐기물들을 국내 기술로 처리 가능 할 것이며 최종 처분량을 획기적으로 줄일 수 있고 나아가 설계 기술 및 장치의 수출이나 해외 제염 용역을 수행할 수도 있을 것이다.

4. 고방사능분진처리 기술 개발

가. 고방사능분진제거장치 개발

한국원자력연구원 조사재 시험시설(Irradiated Material Examination Facility)과 조사후 시험시설(Post-Irradiation Examination Facility)의 핫셀(Hot Cell)에서는 사용후 핵연료의 산화환원 및 분쇄공정, 사용후 핵연료의 절단 및 분말화 공정, 균분리 공정, 사용후 핵연료 금속전환 공정 등을 수행하고 있다. 이들 공정 수행 중 핫셀 바닥면과 벽면 그리고 핫셀 내부에 있는 여러 장치표면들이 연구실험 과정에서 발생한 고방사능 분진과 고방사능 핵연료의 조사 등에 의해 오염되어 핫셀내의 방사능 준위가 높아지고 있다. 그러므로 핫셀내에서 핵연료 조사 실험을 원활히 수행하기 위해서는 주기적으로 핫셀 내부 표면과 장치표면에 오염된 고방사능 분진을 제거하여 핫셀 내의 방사능 준위를 낮추어야 한다. 핫셀 표면에 단단히 고착성 고방사능 분진은 CO₂ Blasting, 초음파 PFC 제염, 플라즈마 제염 등과 같은 건식제염기술을 사용하여 제거 효율을 높일 수 있다[3.1.4.1-3.1.4.2]. 한편, 핫셀 내에서 공정시험 또는 건식제염 시 발생하는 비 고착성 고방사능 분진은 지금까지는 알코올을 묻힌 휴지로 제거하거나 진공청소기로 흡입하는 방법을 사용해왔다. 알코올을 묻힌 휴지를 사용할 때, 폐기물량이 증가하고, 진공청소기를 사용할 때 진공청소기 내의 필터가 단시간에 포화됨은 물론 핫 셀 내에서 포화된 필터의 교환이 어렵고 고방사능 분진이 진공청소기 몸체에 많은 방사능 부하를 주어 진공청소기의 수명이 단축되었다. 그러므로 핫 셀 내에 발생한 고방사능 분진들을 효과적으로 제거하고 장기간 사용할 수 있는 제거 장치의 개발이 필요하다. 고방사능분진 제거 장치는 미국 DOE에서도 유사한 장치를 개발했으며[3.1.4.3], 다른 원자력 선진 국가에서도 개발 중이다.

원자력연구원 핫 셀 내의 비 고착성 고방사능분진을 제거하기 위해서는 먼저 핫 셀 오염특성을 조사해야 한다. 즉 고방사능 분진의 종류, 크기, 방사선량 등이 분석되어야 한다. 또한, 개발된 장치를 원자력연구원 핫 셀 내에 넣어 고방사능 분진을 제거하기 위해 핫 셀 출입구와 핫 셀 연결문의 크기를 조사했다. 핫 셀에 투입된 장치의 작동은 Manipulator에 의해 수행되어야 하므로 Manipulator의 작업범위도 조사했다.

본 연구에서는 원자력연구소 핫 셀 내부에 오염된 고방사능분진 제염에 적합한 사이클론과 필터로 구성된 고방사능 분진 제거장치를 개발하고, 개발한 장치의 분진 제거 성능평가시험을 수행했다.

(1) 연구시설 고방사능오염특성 분석

(가) 고방사능오염 발생원 및 오염물질 종류 파악

국내 원자력시설 가동 중 원자력 시설 및 관련 장치들이 방사능으로 오염될 수 있으므로 주기적으로 오염된 부분을 제염할 필요가 있다. 특히 원자력시설 핫셀에서는 사용 후 핵연료의 산화환원 및 분쇄공정, 사용후 핵연료의 절단 및 분말화 공정, 균 분리 공정, 사용후 핵연료 금속전환 공정 등을 수행하고 있으므로 핫셀 바닥면과 벽면 그리고 핫셀 내부에 있는 여러 장치표면들이 연구실험 과정에서 발생한 고방사능 분진(Hot Particulate)과 고방사능 핵연료의 조사 등에 의해 오염되어 핫셀 방사능 준위가 높아지고 있다. 그러므로 핫 셀 내에서의 핵종실험을 원활히 수행하기 위해서는 주기적으로 핫셀 내부 표면과 장치표면에 오염된 Hot Particulate를 제거하여 핫셀 내의 방사능 준위를 낮추어야 한다. 한편, 표면에 단단히 고착된 Hot Particulate는 CO₂ Blasting, 초음파 PFC 제염, 플라즈마 제염 등과 같은 건식제염기술을 사용하여 제거효율을 높일 수 있다.

원자력연구원 고방사능 연구시설에서 발생하는 오염물에 대한 건식제염 목적은 시설의 유지 및 보수 시에 제염작업을 통해 방사능 준위를 낮추어 작업자의 피폭을 감소시키고, 장비의 재활용 및 발생폐기물의 저 준위화 의한 고준위 폐기물의 저감화에 있다. 제염종류는 시설제염(현장제염)과 부품제염(이송제염)으로 대별될 수 있으며 오염물은 오염물의 형상(외부표면, 내부표면), 오염특성(Loose 오염, 고착성오염), 제염의 난이도 등을 고려하여 분류되어야 함. 고방사능 시설에서 발생하는 제염 대상오염물은 오염정도, 형상 및 제염의 난이도를 고려하여 계측 및 전자기기류, 기계 장치류, 계통배관 및 탱크류, 벽면, 바닥 구조물 및 Hot Cell 운전폐기물로 분류할 수 있다.

① DUPIC 핵연료제조시험 시설 오염특성

DUPIC 핵연료 제조공정 중 배기체계통의 설계와 관련 있는 Furnace는 탈피복 산화로, 사용후 핵연료의 저온 및 고온 산화로, 분말 환원로, 소결로 등으로 이루어져 있다. 고온산화로의 운전조건은 1200℃이며 부유입자가 발생된다. 운전조건이 600℃인 분말 환원로에서 발생하는 부유입자는 조사재시험시설 내 OREOX 소형로에서 발생하는 분진, 핵연료 제조 시험 중 필요한 물품 검사 및 핵물질 계량은 IMEF M6 핫 셀서 수행하되 이곳에서 수행이 불가능한 조직 및 구조검사, 화학성분 분석 등은 이러한 시험이 가능한 PIEF 핫셀, IMEF 핫셀 및 화학분석실에서 수행했다.

DUPIC 핵연료 제조공정은 5가지 작업분야 즉, 탈 피복, 분말준비, Pelletizing, 핵연료봉 제조, 핵연료다발 조립으로 구분할 수 있다. M6 핫셀 내 설치되고 운용되어야 할 제조장비는 부속기기를 포함하여 PWR Rod Cutter, Slitter, OREOX Furnace, Powder Mill, Powder QC, Roll Compactor, Mixer 등 여러 가지 공정장비가 필요하다. 오염구역은 소결체 제조공정까지의 구역으로 분말들이 비산할 우려가 있다. UO_2 가 산화되면 U_3O_8 으로 변하는데, 여기서 수반되는 부피팽창 때문에 UO_2 소결체나 분말이 깨지거나 균열이 형성된다. 따라서 산화 그리고 환원을 반복하면 소결성이 있는 UO_2 분말을 얻을 수 있다. 가장 적합한 산화조건은 대기 중 $400\sim 500^\circ C$ 이고 UO_2 의 환원조건은 $550\sim 700^\circ C$ 이다. 핵연료 주기를 실현하기 위해서는 사용 후 소결체를 산화/환원 처리하여 소결성 있는 분말 (UO_2+FP)을 제조하는 기술을 개발하는 것이 필요하다.

② 사용 후 핵연료 차세대관리 시설 오염특성

사용 후 핵연료 차세대관리공정의 오염대상물은 공정 흐름도에 포함되는 단위공정에 소요되는 시설 장비 및 운전폐기물 등이다. 사용 후 차세대 관리공정 개발을 위한 실증시설 구조물의 주요기능은 사용후 핵연료 집합체의 하역 및 해체, 사용후 핵연료봉의 절단 및 탈 피복, 사용후 핵연료 차세대관리공정 등이다. 이들 기능을 수행하기 위한 크레인 등의 장비 및 시설표면이 현장제염대상 오염물로 분류된다. 특히 사용후 핵연료 차세대 관리 주요 단위 공정을 수행하는 핫셀 내부표면 및 부대 시설이 가장 오염이 심하게 되어 있어 주요 건식제염 대상이 된다. 사용후 핵연료 차세대관리공정은 주로 핫셀 내에서 이루어지며, 핵 연료봉 검사 및 해체, 해체된 사용후 핵연료봉의 절단, 탈 피복 및 분말화, 사용후 핵연료 분말의 금속핵연료의 환원 및 용융염의 재생/정화를 위한 금속핵연료 전환, 금속핵연료의 용융, 주조 및 Canister 밀봉, 폐기물의 압축 및 포장 등으로 이루어져 있다.

③ 균 분리 및 핵종변환공정 오염특성

장수명 핵종 균 분리공정은 사용후 핵연료를 습식 재처리한 폐액을 대상으로 하기 때문에 모든 핵종이 포함되어 있고 고준위로 발생하는 것으로 추정된다. 핵종은 습식공정으로 대부분 이온형태로 존재하며 국부적 오염이 많고 재질과는 정전기적 결합을 한다. 화학전환 공정은 $500^\circ C$ 이상의 고온에서 운전되므로 견고한 고착성 형태의 오염이다. 균 분리 공정 중 발생하는 오염대상물은 혼합 장치조, 용액저장탱

크, 여과장치, 용액이송펌프, 배관, 핫셀 벽면 등이며, 핵종 전환 공정 중 발생하는 오염대상물은 핫셀 벽면, 핫셀내 반응조(불화물제조장치, 전해제련 장치, 환원추출장치 등) 및 배관이다.

④ PIEF/IMEF 시험시설 오염특성

조사후 시험시설은 사용 후를 대상으로 핵연료의 연소특성시험을 시작하여 매년 1개정도의 사용후 핵연료 집합체에 대한 시험과 연구개발 관련시험을 하고 있다. 핵연료의 시험은 집합체 수중시험, 연료봉 핫셀 비파괴 및 파괴시험, 핵연료 화학성분 분석시험, 조사 후 결합 핵연료 실험, 핵연료 건전성 실험, 열팽창, 파괴인성실험, 저속도피로시험, 시료 미세절단, Mounting Press, 시편연마기, 시편건조기, 원자로 안전성/수명 평가, 핵연료 손상원인 규명, 핵연료 및 원자로 재료개량 개발, 조사재 미세조직실험, 핵 연료봉 내에 유출된 핵분열 생성 기체량 측정 등으로 이루어진다. 최근 시설의 가동 연한이 길어짐으로 노후화 설비의 교체 및 보수가 요구되며, 이로 인하여 오염된 시설, 장비 등을 대상으로 건식제염기술의 적용이 필요시 된다. 제염 대상 오염물은 크게 관리시설의 현장에서 핫셀 내부 표면과 핫셀내에 설치되어 있는 장비, 부대시설 등이다.

한국원자력연구원 내의 연구시설에는, DUPIC 핵연료제조시설, 사용후핵연료 차세대관리시설, 균 분리/화학 전환시설, PIEF/IMEF 시험시설 등이 있다. 각 원자력 연구시설이 운영하는 핫셀에서는 사용 후 핵연료의 산화환원 및 분쇄공정, 사용후 핵연료의 절단 및 분말화 공정, 균 분리 공정, 사용후 핵연료 금속전환 공정 등을 수행하고 있으므로 핫셀 바닥면과 벽면 그리고 핫셀 내부에 있는 여러 장치의 표면은 연구시험 과정에서 발생한 고방사능 분진과 고방사능 핵연료의 조사 등에 의해 오염되므로 주기적으로 핫셀 표면과 장치표면에 오염된 고방사능 분진을 제거해 주어야 한다. Table 3.1.4.1은 각 연구시설에서 사용하는 핫 셀 내에 오염된 고방사능 분진의 성분과 건식제염 시 발생하는 배기체내의 고방사능 분진의 성분이다.

Table 3.1.4.1 Component of hot particulate generated in hot cells of nuclear facilities

제염대상 연구시설명	Hot Particulate	배기체내의 Hot Particulate
DUPLIC 핵연료제조시설	산화환원 및 분쇄공정:U ₃ O ₈ , PuO ₂ , CsO, RuO ₂ , Tc, 질카로이 등	SF절단/산화시: Cs, Ru, I, C, Kr, Xe, T 등
SF 차세대관리시설	SF 분말화 공정: U ₃ O ₈ , PuO ₂ , CsO, RuO ₂ , CsCl Tc, 질카로이	사용 후 금속전환공정: I, Kr, Xe 등
군 분리/화학 전환시설	군 분리공정: Mo, Tc, Ru, Sr, Zr, TRU(Am,Pu) 등	SF연소특성실험 : Cs, Sr, Ru, I, Kr, Xe, 등
PIEF/IMEF 시험시설	사용 후 절단시: TRU (Am, Pu), UO ₂ , Cs, Sr, Tc, 질카로이	금속폐기물 용융시: Cs, Ru, I, Sr 등

⑤ 건식 및 용융제염시 오염특성

대부분의 오염설비는 장비표면이나 내부에 미세분말형태로 부착되어 있으며, Co, Fe, Ni, Cr, Mn, Mo, Tc, Ru, Rh와 같은 방사성 부식생성물(CP)이나 핵분열 생성물(FP)의 1차 오염특성은 대부분 사용후 핵연료를 고온에서 산화환원에 의한 분말을 취급하거나 중성자 조사된 재료들을 취급하는 시설이므로, 사용 후 핵연료 취급과정 중에 누출되는 TRU 원소와 핵분열 생성물에 의한 미세 입자성 오염과 큰 에너지 방사화된 오염핵종으로 나눌 수 있다. DOE의 조사 분석에 따르면 원자로계통의 스테인레스 강 및 탄소강 표면에 U/TRU/FP가 포함되어 오염된 유기성 침적물 및 우라늄 농축공정의 우라늄오염물 벽면, 바닥 및 천정 구조물은 주로 핫셀 내,외부를 대상으로 재활용 대상 및 불용 대상으로 구분하였다. 건식제염(CO₂, PFC, 플라즈마) 및 용융제염시 발생하는 오염물 종류는 아래와 같이 추정된다.

- Hot Particulate

- . CO₂ 제염 시: U₃O₈, PuO₂, CsO, CsI, RuO₂, UO₂,Tc, SrCl₂, Pu, U, Mo, Zr, TRU, 부식생성물(Co, Mn), 질카로이 등
- . PFC 제염 시: U₃O₈, PuO₂, CsO, CsI, RuO₂, UO₂,Tc, SrCl₂, Pu, U, Mo, Zr, TRU, 부식생성물(Co, Mn), 질카로이 등
- . 플라즈마 제염 시: U₃O₈, PuO₂, CsO, CsI, RuO₂, UO₂,Tc, SrCl₂, Pu, U, Mo, Zr,

- TRU, 부식생성물(Co, Mn), 질카로이 등
- . 용융제염시: Cs, Sr, U, 부식생성물(Co, Fe, Mn) 등
- 배기체내의 핵종
 - . 플라즈마 제염 시(200~400 C): Ru, I, Xe, Kr, C, T 등
 - . 용융제염 시(1300~1500 C): Cs, Ru, I, Sr 등
 - . CO₂/PFC 시(상온): Kr, Xe 등

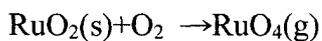
(나) 오염핵종의 휘발도 및 Boiling Point 조사

원자력시설에서의 오염물질 중 화학반응, 주변기체의 조성과 온도 등에 따라 기체, 액체, 고체의 각 형태로 존재가 가능한 것들을 준 휘발성 핵분열 생성물이라 한다. 이들은 온도상승 및 여러 가지 산화조건에 기인하여 금속형태 및 이들의 산화물 형태로 휘발하기도 한다. 특히 핵분열 생성물에는 Ru, Cs, Tc, Te, Sb 등의 산화물이 형성되고 이들 중 루테튬과 세슘이 가장 문제가 된다.

① 루테튬의 휘발특성

최근까지만 해도 루테튬은 원자력발전소 사고 시나리오에서 위험물질로 고려되지 않았는데 그 이유는 내화성 금속으로서 매우 높은 온도에 도달하지 않으면 누출하지 않을 것으로 생각되었기 때문이다. 그러나 체르노빌 사고 이후 스웨덴에서 채취된 시료로부터 핵분열생성물 중의 하나인 루테튬이 검출된다. 또한, 실험에 의하면 300℃ 정도의 온도에서 루테튬의 누출이 측정되고 있다. 금속산화물은 모체가 되는 금속보다 훨씬 높은 용융점을 갖는 것으로 알려져 있지만, 루테튬은 예외로서 여러 가지의 산화물 형태를 갖는데 그 중에 가장 많은 것이 RuO₄이며, 매우 낮은 용융점(25.4℃)을 갖고 있다.

상온에서 고려해야할 루테튬은 RuO₄ 뿐이며, 이것은 낮은 비등점을 갖기 때문에 휘발성이 강하여 상온에서 높은 증기압을 나타낸다. 산화온도 400~500℃ 범위에서 존재하는 주종은 RuO₄(g)인 것으로 알려졌다. Penman과 Hammer는 453~723℃의 온도범위에서 RuO₄(g)의 증기압을 연구하였으며 이 온도범위에서 RuO₄(g)의 존재량은 거의 무시할만한 양이라는 것을 확인하였다.



또한, 루테튬 금속의 산화속도를 확인하기 위하여 Ryumin과 Ivashentsev에 의하여 실험이 수행되었다. 이들 실험에 의하면, 루테튬금속은 약 400℃에서 산화가 시작되

어 약 800℃에서 최대산화속도를 보이다가 루테튬 금속의 산화도가 0.7이 되면서 산화속도가 크게 둔감함을 확인하였다. 한편, Jonston은 RuO₂(s) pellet를 사용하여 휘발 시험을 수행한 결과 1000~1200℃에서 RuO₂(s)의 상당량이 산화되어 무게손실이 발생하였다. 1200~1500℃에서는 RuO₃(g)가 주종을 이루고 있으며, RuO₄(g)는 800~1100℃에서 지배적으로 발견되었다. RuO₂(s)의 열 중량 분석 결과 1000℃까지는 5% 정도의 아주 낮은 휘발도를 나타냈으나, 1100℃이상에서는 다소 증가하여 1400℃까지 40% 정도가 휘발되었으며, 이온도를 유지할 경우 20분 내에 100% 휘발되었다.

② 세슘의 휘발특성

세슘동위원소들은 루테튬과 같이 우라늄의 핵분열에 의해 형성되며, 이중 Cs-137은 핵시설의 주 오염물질이다. 세슘은 은백색 금속으로 용융점(28.5℃)이 낮아 조금만 가열하여도 즉시 녹아 심적색의 액체 상태로 존재한다. 산소와 반응하게 되면 무색 또는 연한 분홍색으로 변화된다. 세슘금속을 산소 또는 공기 중에서 열역학적으로 가장 안정한 CsO₂를 형성한다. 세슘산화물중 주산화물은 Cs₂O, CsO₂, Cs₂O₂ 임. 세슘산화물은 600~920℃에서 100% 휘발된다. 또한, 740℃에서 940℃까지 높아짐에 따라 세슘포집효율이 39.9%에서 97.1%로 증가하였다.

③ 요오드의 휘발특성

사용후 핵연료를 이용하는 원자력시설에서 발생하는 방사성요오드는 반드시 제거되어야 할 핵종이다. 방사성요오드의 발생량 및 그 발생 형태를 보면, 노심에서 발생된 요오드의 50%가 방출되며, 그 양의 50%가 격납용기 벽에 부착되고 나머지가 휘발하는데 그중의 85%가 원소 요오드 형태이고, 5%는 분진상태이며, 10%는 유기요오드 형태가 된다. 현재까지 알려진 요오드 화합물로는 I₂, HOI, ICN, CH₃I 등이다. 공기중에 HOI의 존재는 1968년 Keller등에 의해서 최초로 가정되었는데 그 후로 많은 연구자들이 습윤 분위기하에서 요오드를 발견하였다. Keller 등의 실험에 의하면, HOI가 생성되는 최적조건은 액상에서의 요오드 농도가 10~6M. pH는 10, 그리고 90℃의 온도로 알려져 있다. 30~150℃에서 흡착 가능하다.



이 밖에, 열 중량분석 결과에 의하면 테루리움, 몰리브데늄 등의 산화물은 각각 800-1150, 700-900에서 모두 휘발된다고 알려져 있다.

④ 오염핵종의 끓는점

원자력 연구시설 Hot Cell 내에서 발생하는 방사성핵종의 끓는점을 조사한 결과는 Table 3.1.4.2와 같다.

Table 3.1.4.2 Boiling point of radionuclide in hot cell

핵종	Boiling Point(°C)	핵종	Boiling Point(°C)
Kr	-152.3	Cs	705
Xe	-107.1	Co	3100
Br	58.78	U	1132.3
I	184	Pu	3235
Tc	5030	Mo	4660
Ru	4050	Sr	1364

(다) 원자력연구시설 핫셀 내의 오염분포형태 파악

① 핫셀 내부 바닥면

각 연구시설 핫셀 내부 바닥면의 재질은 모두 SUS로 되어 있고, 오염원인은 사용 후 핵연료 산화환원, 분말화, 절단 및 파괴시험 도중 공기로 확산되거나 Manipulator의 조작 실수로 인해 고방사능 분진 포집박스 밖으로 떨어진 고방사능 분진으로 Fig. 3.1.4.1과 같이 핫셀 바닥에 쌓이게 된다.

② 핫셀의 벽면

각 연구시설 핫셀의 벽면을 구성하는 재질은 SUS와 콘크리트이다. 콘크리트표면은 에폭시가 칠해져 있지만 어떤 곳은 Fig. 3.1.4.1과 같이 에폭시가 벗겨지고 콘크리트면이 드러나 있다. 오염원인은 사용후 핵연료 시험 시 작은 입자가 공기에 확산되어 벽에 부착되는 것이다.

③ 실험장치 표면

각 연구시설 핫셀 내부에 있는 실험장치 표면은 대부분 SUS로 되어있고 오염원인은 사용 후 시험 도중 공기로 확산되거나 Manipulator의 조작 실수로 인해 핫셀 내부에 있는 실험장치표면에 부착된 고방사능 분진이 Fig. 3.1.4.1과 같이 장치표면에 부

착함에 기인한다.

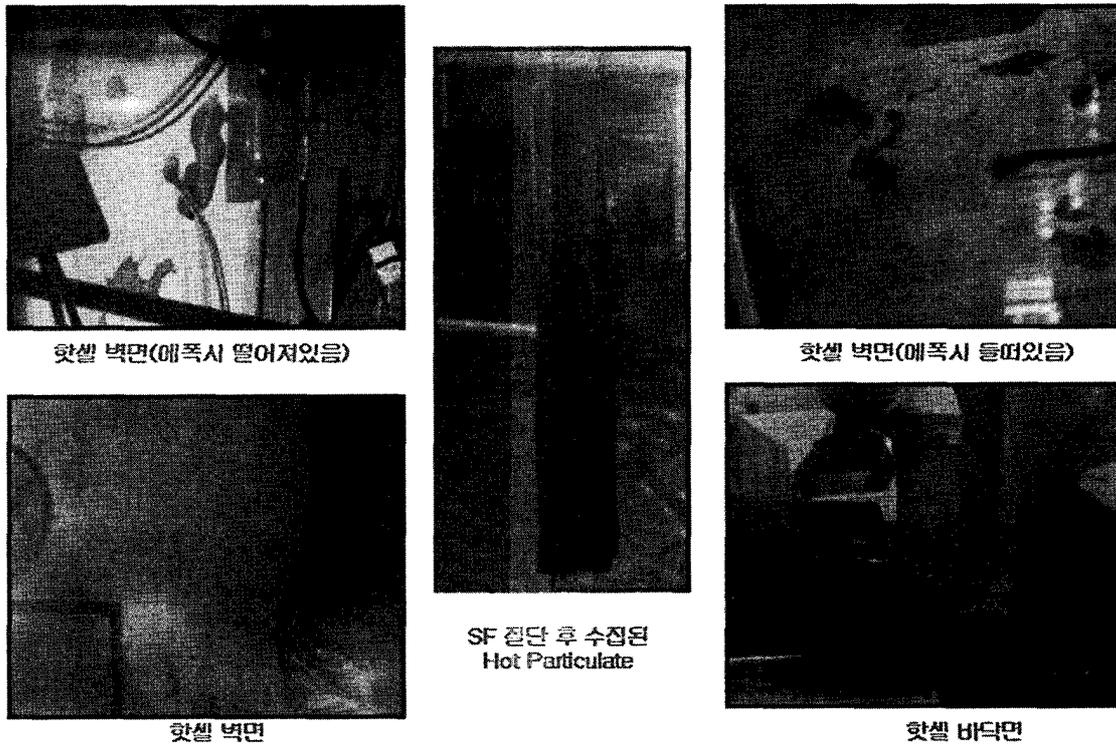


Fig. 3.1.4.1 Shape of hot particulate contaminated in hot cell

(2) 연구시설에서 발생된 고방사능 분진의 크기 및 성분 파악

(가) 발생된 고방사능 분진의 크기 조사

① 사용 후 핵연료 소결체 결정립

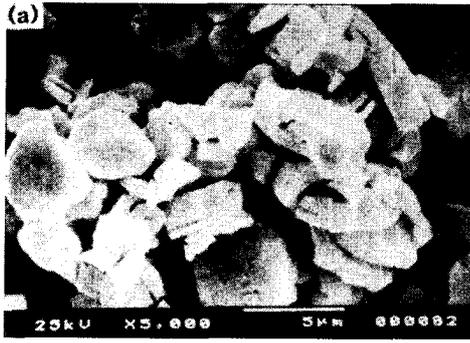
사용후 핵연료 소결체 결정립의 입자의 크기를 광학현미경(Optical Microscope)으로 측정된 결과 Fig. 3.1.4.2와 같이 5~15 μm 이었고 분말화 공정시 발생된 고방사능 분진의 크기를 측정된 결과 Table 3.1.4.3과 같이 0.5~2 μm 이었다.

② DUPIC 산화환원공정 시 발생된 고방사능 분진

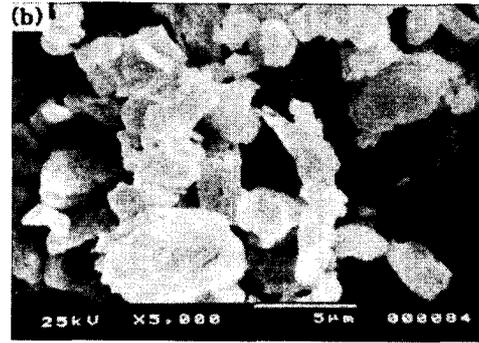
DUPIC 산화환원공정 시 발생하는 고방사능 분진의 크기를 SEM (Scanning Electron Microscopy)로 측정된 결과 Fig. 3.1.4.2와 같이 5~15 μm 이었다.

③ 사용후 핵연료 절단 및 파괴 공정 시 발생된 고방사능 분진

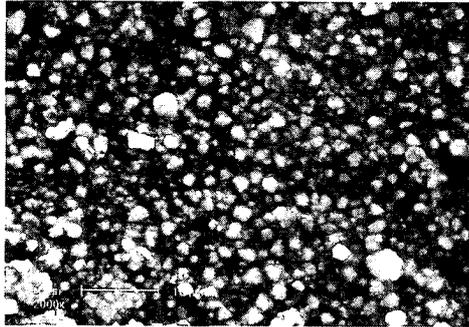
PIEF 핫셀내에서 사용후 핵연료 절단 및 파괴 공정 후 입자의 크기를 SEM으로 측정한 결과 Fig. 3.1.4.2와 같이 5~15 μm 이었다.



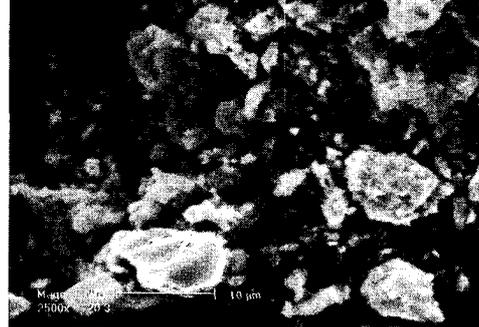
DUPIC 산화공정 후 Hot Particulate



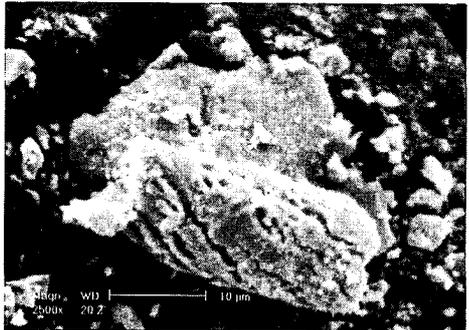
DUPIC 환원공정 후 Hot Particulate



핵연료피복관에 붙은 Hot Particulate



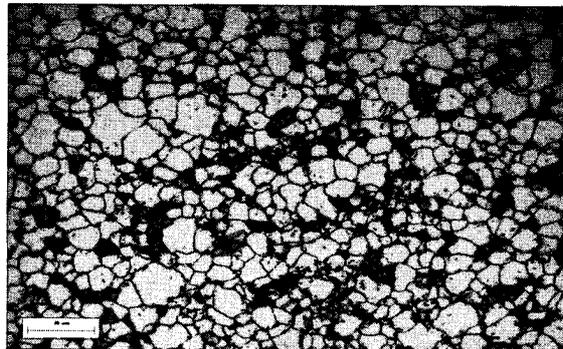
사용 후 절단 시험 후 Hot Particulate



사용 후 절단 시험 후 Hot Particulate



핵연료피복관에 붙은 Hot Particulate



사용 후 소결체결정립

Fig. 3.1.4.2 Size of hot particulate photographed by SEM and OM

Table 3.1.4.3 Size of Hot particulate according to process

핵연료시험 공정	Hot Particulate 크기
사용 후 핵연료	5~15 μm
산화환원공정	5~15 μm
분말화 공정	0.5~2 μm
절단/파괴 공정	1~30 μm
피복관주변 CRUD	0.5~2 μm

④ 사용 후 핵연료 피복관 주변 고방사능 분진

사용 후 핵연료 피복관 주변 CRUD(Chalk River Undesirable Deposition) 입자의 크기를 SEM으로 측정된 결과 Fig. 3.1.4.2와 같이 0.5~30 μm 이었다.

(나) 발생된 고방사능 분진 성분 분석

① 핫셀에서 발생한 고방사능 분진

연구시설 Hot Cell에서 발생하는 고방사능 분진의 성분을 분석한 결과 주성분은 Table 3.1.4.4와 같이 UO_2 , U_3O_8 , 질카로이 등이다.

Table 3.1.4.4 Components of hot particulate according to process

핵연료시험 공정	주 핵종
사용 후 핵연료	UO_2
산화환원공정	U_3O_8 , UO_2
분말화 공정	U_3O_8 , UO_2
절단/파괴 공정	UO_2 , 질카로이
피복관주변 CRUD	Fe, Ni, Cr

② 사용후 핵연료봉 절단 후 발생한 고방사능 분진

사용 후 핵연료 절단 및 파괴 실험 후 발생한 고방사능 분진의 성분을 분석하기 위해 PIEF 핫셀내 표면을 0.5x0.5cm 크기로 샘플링하여 SEM 촬영 시 30,000 cps 방

사선이 도출되었고 EDS로 성분 분석결과 Cs-137, Cs-134, Ru-106, Ce-144, Eu-154 의 방사성핵종으로 구성되어 있었다.

(3) 고방사능 분진 처리 단위공정도 개발 및 실험용 장치 제작

(가) 고착성 Hot Particulate 처리공정도 개발

지금까지는 Hot Cell 내부 표면과 장치표면에 오염된 Hot Particulate를 알코올을 묻힌 휴지로 제거하거나 진공청소기로 흡수하는 방법을 사용했다. 알코올을 묻힌 휴지를 사용할 때, 폐기물량이 증가하고 진공청소기를 사용할 때 진공청소기에 사이클론이 부착되어있지 않아 필터가 단시간에 포화되며 핫 셀 내에서 포화된 필터의 교환이 어렵다. 또한, 고방사능의 Hot Particulate 가 진공청소기 몸체 및 필터에 많은 부하를 주어 진공청소기의 수명이 단축된다. 그러므로 Hot Cell 내에 발생한 Hot Particulate들을 제거하기 위해 사이클론, Bag Filter, 그리고 HEPA Filter로 구성된 새로운 Hot Particulate 처리장치의 개발이 필요하다. 이 장치 중 사이클론으로는 주로 직경 약 $5\mu\text{m}$ 이상의 Hot Particulate들을 제거하고 BAG/HEPA Filter로는 $5\mu\text{m}$ 이하의 입자들을 제거하고자 한다.

사이클론은 1800년말 이래 발생된 산업가스로부터 먼지입자를 제거하기 위해 또는 대기 샘플링을 위한 미립자를 포집하기 위해 널리 사용되어 왔다. 이들은 입자를 모을 때 관성력을 의존하기 때문에 직경 $5\mu\text{m}$ 이하의 입자들에 대해서는 수집효율이 낮다. 접선모양의 입구를 가진 역류 사이클론이 산업가스의 청정을 위해 가장 많이 사용된다. 사이클론은 운반가스로부터 미립자를 분리하기 위해 Spinning Gas에 의해 발생된 원심력을 사용하는 고안물이다. 단순설계와 저렴한 유지비, 크기와 유속과 같은 광범위한 가동조건에의 적용성 등이 사이클론을 미립자 제거장치로 가장 널리 사용하는 이유이다. 작은 사이클론들은 대기샘플링을 위해 대기오염 제어분야에서 미립자를 수집하기위해 사용된다. 반면에 큰 사이클론은 산업가스로부터 미립자를 제거하기 위해 사용된다. 사이클론은 높은 온도와 압력에도 적합하다.

본 연구에서는 원자력시설 Hot Cell 내에서 발생된 Hot Particulate를 제거하기 적합한 사이클론이 부착된 처리장치를 개발하였고, 제작된 처리장치를 사용하여 사이클론에 의한 미립자 포집효율을 최대화할 수 있는 실험조건을 도출하고 사이클론의 포집효율을 높이기 위한 보조콘 부착시의 포집효율 증가율을 분석했다.

핫셀 내에서 사용후 핵연료 절단, 분쇄 파괴, 인장시험 시 발생된 비 고착성 고방사능 분진을 제거하기 위한 장치의 단위 공정도를 미국 DOE에서 개발한 Compact

Cyclone Filter Train을 참조하여 개발한다. Hot Cell 내부 표면과 장치표면에 분포한 0.5~30 μm 크기의 비 고착성 Hot Particulate를 제거하기 위한 단위공정도는 Fig. 3.1.4.3과 같이 투입장치, 사이클론, 백필터, 해파필터, 진공펌프로 구성된다.

투입장치는 실험용 모의입자를 투입하는 곳으로 두개의 모터와 미립자 케이스로 구성되며 재질은 SUS304이다. 사이클론은 핵심공정으로 가능한 한 모든 미립자를 이곳에서 제거되도록 실험을 통해 각 부분의 크기를 조정하였다. 백필터는 사이클론을 통과한 모의입자를 제거하기 위해 두개의 카트리지 필터를 사용하였다. 해파필터는 백필터를 통과한 0.3 μm 의 모의입자를 제거하는 기능을 갖는다. 진공펌프는 모의입자를 투입장치로부터 사이클론내부로 흡입시키기 위해 사용되며 펌프용량은 사이클론의 모의입자 제거효율을 최대화시킬 수 있도록 실험을 통해 결정하였다.

제작한 사이클론의 치수는 Stirmand 치수를 근거로 Table 3.1.4.5와 같이 결정하였다. 단지 Vortex Finder는 고정시키지 않고 상하로 움직이도록 하여 실험을 통해 최적의 길이를 결정하였다. 사이클론의 미립자 제거 성능을 실험하기위해 사이클론 앞부분에는 미립자를 투입할 수 있는 투입장치를 설치하였고, 사이클론 뒤쪽에는 진공팬을 설치하여 미립자가 사이클론으로 유입하며, 또한 유입속도가 변화될 수 있도록 하였다. 투입장치 앞에는 Anemometer를 설치하여 유입속도를 측정하였다.

Fig. 3.1.4.3은 Hot Particulate 처리장치의 설계도이며, 각 단위장치의 크기를 보여준다. 투입장치 안에 위치한 모의입자는 뒤쪽에 설치된 흡입펌프에 의해 사이클론 내로 유입된다. 유입된 모의입자는 사이클론을 통과하며 사이클론 밑에 위치한 모의입자 포집장치에 대부분의 굵은 입자들이 제거된다. 사이클론에서 유출된 모의입자는 Fig. 3.1.4.3에서 보듯이 Bag Filter 하우스 밑으로 들어가 원통형 Bag Filter 중앙으로 유입된 후 원통형 필터 밖으로 퍼져나가며 미세입자가 제거되었다. Bag Filter 하우스 위쪽 관으로 유출된 모의입자는 다시 HEPA Filter를 거치며 좀 더 작은 미세입자가 제거되었다.

Table 3.1.4.5. Dimensions of high-efficiency cyclone design

Cyclone Part Name	Dimension Ratio (Dimension/D)	Actual Length (cm)
Cyclone Diameter, D	1.0	14.5
Gas Outlet Diameter, D_e	0.5	7.2
Inlet Hight, a	0.5	7.2
Inlet Width, b	0.2	2.9
Vortex Finder length, S	0.5	-
Upper Cyclone Hight, H	1.5	21.7
Lower Cyclone Hight, h	2.5	36.2
Dust Outlet Diameter	0.375	5.1

(나) 실험용 비 고착성 Hot Particulate 처리 단위공정 장치 제작

Fig. 3.1.4.4는 제작된 Hot Particulate 처리장치이며, 재질은 SUS 304를 사용했고 단지 사이클론 앞 모의입자 유입부분은 투명 아크릴을 사용하여 모의입자의 유입상태를 관찰할 수 있게 하였고, 후미에는 진공펌프를 부착하여 모의입자를 흡입하였다. 이장치를 이용하여 사이클론에서 최대한으로 모의입자를 제거할 수 있는 최적실험조건을 아래의 실험을 통해 도출하였다.

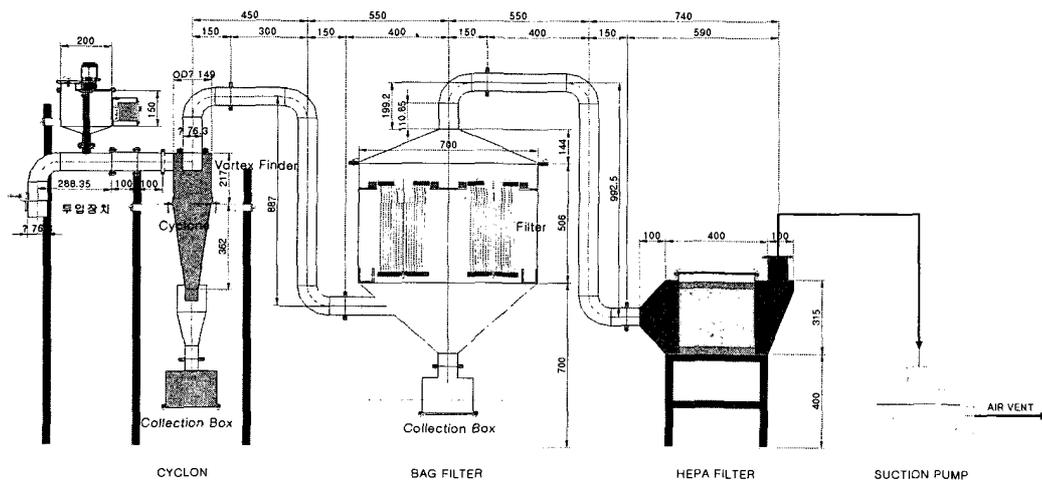


Fig. 3.1.4.3 Schematic diagram of hot particulate treatment equipment

Hot Particulate 처리 단위장치는 작성된 Hot Particulate 처리 단위공정과 단위장치 설계도에 준하여 제작하였다. 진공펌프를 장치는 연결파이프 틈을 통해 모의입자가 새어나오지 않도록 맨 뒤에 위치시켰다. Sub-Cone을 만들어 사이클론의 포집효율에 미치는 영향을 분석하고 사이클론의 Vortex Finder 길이는 실험을 통해 최적 길이를 결정하였다.

(4) 실험용 Hot Particulate 처리 단위공정 장치 성능 평가 및 문제점 개선

(가) 실험용 장치 성능평가실험 및 결과

① 실험용 장치 성능평가실험

- 제거 가능 최적 미립자 크기 도출 실험

사이클론으로 제거할 수 있는 미립자의 크기의 한계는 보통 1~10 μ m이다. 본 실험을 통해 제작된 사이클론이 최적으로 제거할 수 있는 미립자의 크기를 선정하였다. 모의입자 유입속도 15m/sec, Vortex Finder 길이 7.2cm로 고정시켰다. 1~10 μ m의 크기를 가진 Al₂O₃와 TiO₂ Shape Power를 사용하여 제거효율 측정 실험을 수행하였다. 1, 2.5, 5, 10 μ m 크기의 Al₂O₃와 TiO₂모의입자를 사용하여 포집효율을 측정하여 최적의 모의입자 크기를 선정하였다. 이때, 진공 팬은 Fig. 3.1.4.4와 같이 사이클론과 필터 후미에 설치하여 모의입자 투입장치로부터 투입되는 모의입자를 흡입하도록 하였다. 모의 입자의 속도는 Anemometer를 단위장치 사이의 연결 관에 Anemometer를 설치하여 측정하였다.

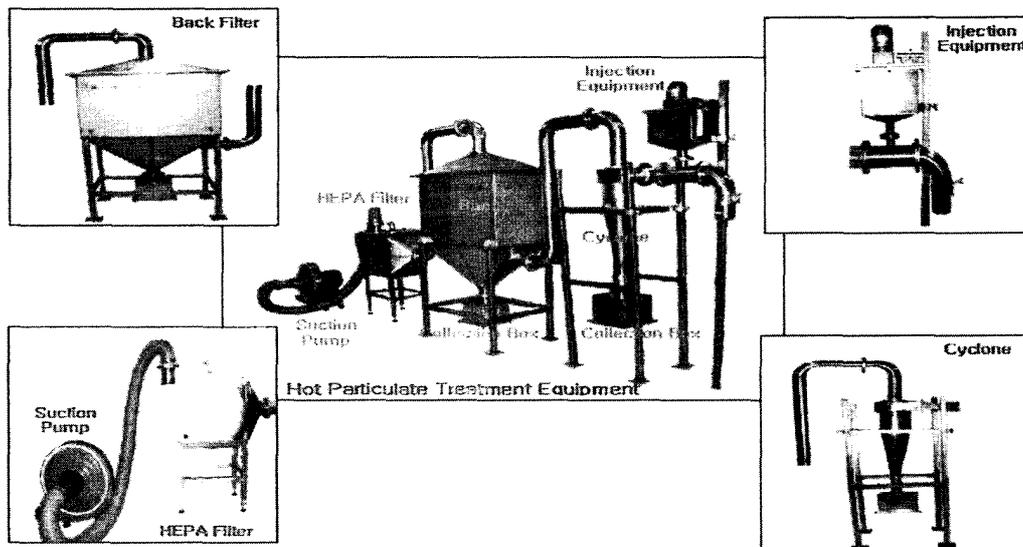


Fig. 3.1.4.4 Hot particulate treatment equipment

- 미립자 최적 유입속도 결정 실험

사이클론 실험 시 모의입자의 유입속도는 보통 10~20m/sec이다. 앞의 실험에서 선정된 크기의 모의입자를 사용하여 Vortex Finder 길이를 7.2cm로 조절한 후, 0.75Kw 진공펌프를 사용하여 투입장치로부터 모의 입자 유입속도를 10, 12, 15, 17, 20 m/sec로 변화시켰다. 사이클론을 통과시켰을 때 사이클론 미립자 포집박스에 포집된 모의 입자의 질량을 측정하여 유입속도별 포집효율을 측정하였다. 모의입자 유입속도에 따른 포집효율을 분석하고 최적의 모의입자 유입속도를 도출하였다.

- 최적 Vortex Finder 길이 결정 실험

사이클론 설계 시 권장되는 Vortex Finder의 길이는 보통 0.5D이며 본 사이클론에서는 7.2cm에 해당하였다. 앞의 실험에서 선정된 크기의 모의입자를 선정된 유입속도로 사이클론에 유입시켰다. Vortex Finder의 길이를 4, 6, 7.2, 10, 13cm로 변화시켜서 사이클론 미립자 포집박스에 포집된 모의입자의 질량을 측정하여 각 Vortex Finder의 길이에 대한 포집효율을 측정하였다. 측정결과를 분석하여 높은 포집효율을 보이는 Vortex Finder 길이를 선정하였다.

- 사이클론에 보조콘 부착 후 실험

사이클론의 포집효율을 증가시키기 위해 사이클론과 미립자 포집박스 사이에 제작한 보조콘을 Fig. 3.1.4.5와 같이 부착하여 사이클론에서 나온 모의입자가 다시 사이클론으로 유입되는 것을 방지하였다. 2.5 μm 크기의 모의입자를 사용하여 Vortex Finder 길이가 7.2cm일 때, 모의입자 유입속도를 5, 7, 10, 13, 15 m/sec로 변화시키며, 각 유입속도에 대한 모의입자 포집효율을 측정하였다. 이를 통해 보조콘이 포집 효율에 미치는 영향과 유입속도가 보조콘 부착 시의 포집효율에 미치는 영향을 분석하였다.

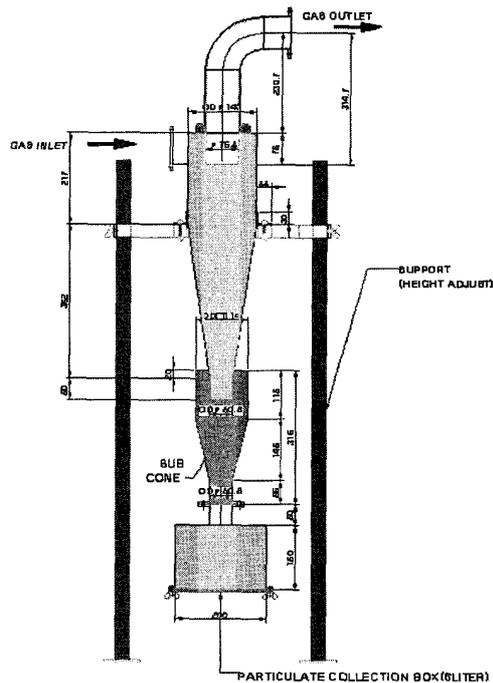


Fig. 3.1.4.5 Cyclone attaching sub cone above particulate collection box

② 미립자 제거효율실험 결과

- 포집 가능 최적 미립자크기 도출 실험

1 μ m로부터 10 μ m까지의 크기가 다른 미립자를 사이클론에 유입시켰을 때, 사이클론 포집기에서의 포집효율은 Fig. 3.1.4.6과 같다. 이때, Vortex Finder 길이는 7.2cm이고, 미립자의 유입속도는 15m/sec로 일정하게 하였다. 실험결과 Kim 등(2001)에 의한 실험 결과와 마찬가지로 미립자의 크기가 클수록 포집효율은 증가하였다. 즉, 모의입자의 크기가 5 μ m 이상일 때 포집효율은 80% 이상으로 나타났다. 또한, 모의입자의 크기가 2.5 μ m보다 작아질 때 포집효율은 좀 더 높은 비율로 감소하는 것으로 나타났다. 2.5 μ m의 모의입자를 사용했을 때, 포집효율은 77.5%로 나타났다. 아래의 실험에서는 매개변수에 대한 포집효율의 영향을 크게 하기 위해 2.5 μ m 모의입자를 사용하였다.

- 미립자 최적 유입속도 결정 실험

앞의 실험에서 선정된 2.5 μ m 크기의 모의입자를 사용하여 Vortex Finder 길이가 7.2cm이고, 모의 입자 유입속도를 10, 12, 15, 17, 20 m/sec로 변화시켰을 때, 모의

입자 포집효율을 측정하였고, 포집효율은 Fig. 3.1.4.7과 같다. Kessler과 Leith(1991), Zhu와 Lee(1999), Kim과 Lee(1990) 등이 제시한 것처럼 미립자의 유입속도는 포집효율에 상당한 영향을 미쳤다. 즉, 모의입자의 유입속도가 빨라질수록 포집효율은 증가하였다. 모의입자유입속도가 12m/sec 이상일 때, 포집효율은 70%이상이었다. 그러나 유입속도가 17m/sec 이상일 때, 포집효율의 증가가 둔화되는 것으로 나타났다. 그러므로 본 연구의 실험에서는 유입속도가 너무 빠르지 않고 포집효율도 적당한 15m/sec를 사용하였다.

- 최적 Vortex Finder 길이 결정 실험

모의입자의 크기가 2.5 μm 이며 유입속도가 15m/sec일 때, 최적의 Vortex Finder의 길이를 선정하는 실험을 수행하였다. Lim 등(2004)에 의하면 Vortex Finder의 모양과 직경에 따라 포집효율이 달랐다. 즉 직경이 작을 때 그리고 실린더 보다 큰 모양일 때 효율이 약간 증가하였다. 본 논문에서는 Vortex Finder의 길이를 4, 6, 7.2, 10, 13 cm로 변화시키며 포집효율을 측정하였다. 측정결과 포집효율은 Fig. 3.1.4.8과 같이 Vortex Finder의 길이를 사이클론 내부로 4, 6, 7.2 cm로 증가시키기에 따라 포집효율도 증가하였다. 그러나 7.2 cm를 넘어 10, 13cm로 Vortex Finder 길이를 증가시켰을 때, 포집효율은 점차 감소하는 것으로 나타났다. 따라서 Vortex Finder 길이가 7.2 cm일 때 최대의 포집효율을 나타내었다.

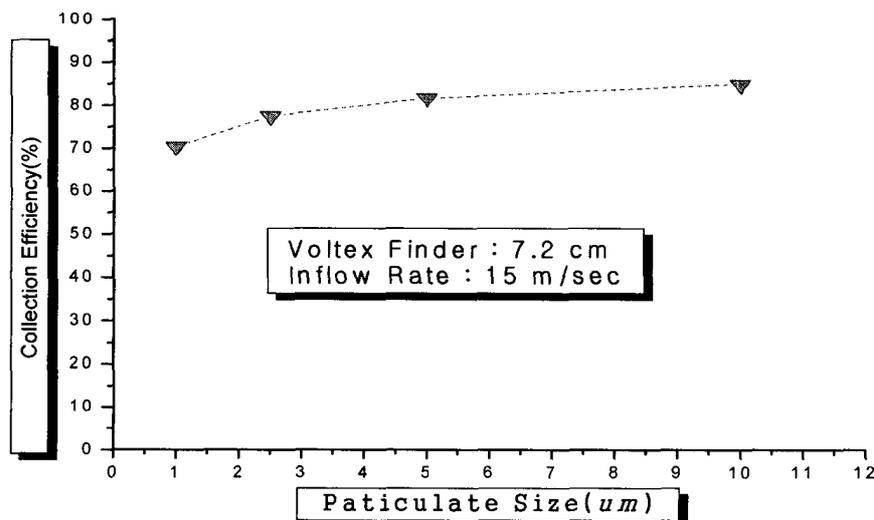


Fig. 3.1.4.6 Collection efficiency of cyclone versus particulate size

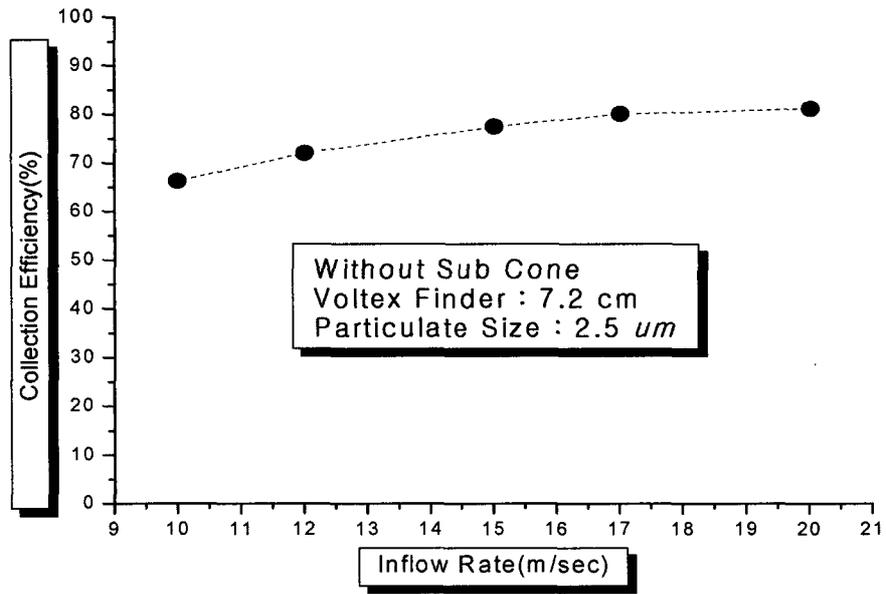


Fig. 3.1.4.7 Collection efficiency of cyclone versus inflow rate of particulate

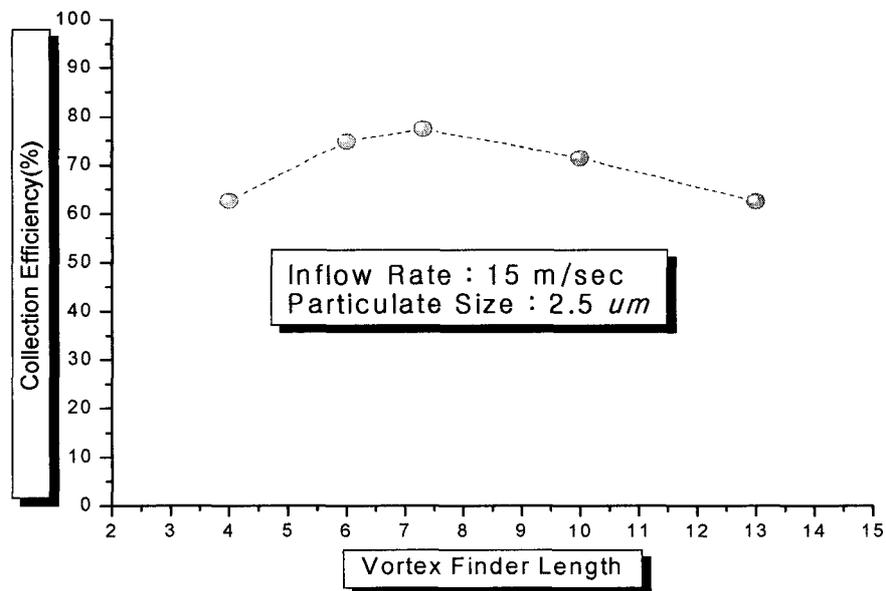


Fig. 3.1.4.8 Collection efficiency of cyclone versus vortex finder length

- 사이클론에 보조콘 부착 후 실험

사이클론과 미립자 수집기 사이에 보조콘을 설치했을 때, 보조콘에 의한 포집효율의 증가율을 측정하였다. Fig. 3.1.4.9와 같이 2.5 μm 크기의 모의입자를 사용하여 Vortex Finder 길이가 7.2cm일 때, 모의입자 유입속도를 5, 7, 10, 13, 15 m/sec로 변화시켰을 때, 보조콘 부착 시 모든 속도 범위에서 약 평균 2% 정도 포집효율이 증가하는 것으로 나타났다. 즉, 보조콘 부착 효과는 그리 크지 않은 것으로 나타났다.

본 연구에서는 원자력시설 Hot Cell 내에서 발생된 Hot Particulate의 오염특성을 조사하고 이 Hot Particulate를 제거하기 적합한 사이클론필터 처리장치를 고안하였다. 모의입자의 크기가 5 μm 이상일 때 포집효율은 80% 이상으로 나타났다. 또한, 모의입자의 크기가 2.5 μm 보다 작아질 때 포집효율은 좀 더 높은 비율로 감소하는 것으로 나타났다. 모의입자의 유입속도가 12m/sec 이상일 때, 포집효율은 70% 이상이 되었고 유입속도가 빨라질수록 포집효율은 증가하였다. 그러나 유입속도가 17m/sec 이상일 때, 포집효율의 증가가 둔화되는 것으로 나타났다. Vortex Finder의 길이를 증가시키기에 따라 포집효율도 증가했지만 Vortex Finder 길이를 7.2 cm 이상 증가시켰을 때, 포집효율은 점차 감소하는 것으로 나타났다. 포집효율은 Vortex Finder 길이가 7.2 cm일 때 최대임을 알 수 있었다. 사이클론 하부에 보조콘 부착 시 모든 속도 범위에서 약 평균 2% 정도 포집효율이 증가하여 보조콘 부착 효과는 그리 크지 않은 것으로 나타났다.

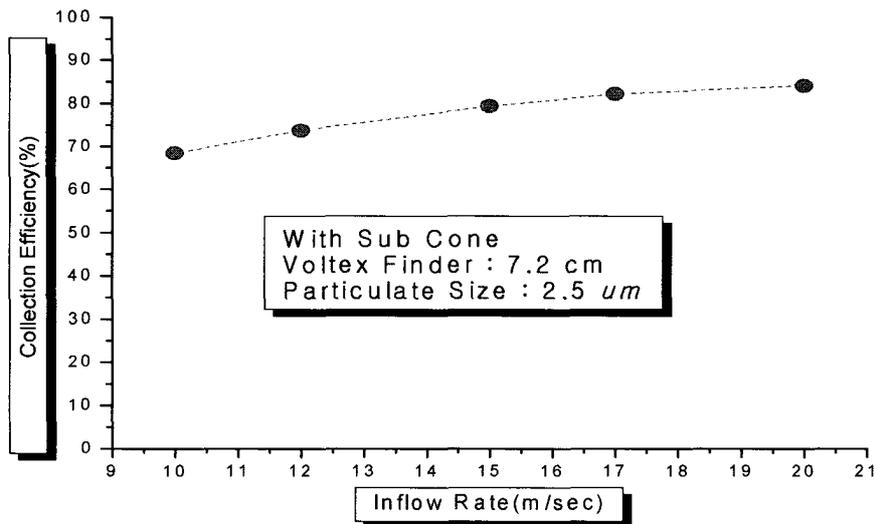


Fig. 3.1.4.9 Collection efficiency of cyclone with sub-cone versus particulate

(나) 실증규모장치제작 시 설계 제약 조건 도출

① 현재 Hot Cell내의 Hot Particulate 제염 문제점

지금까지 Hot Cell내에서 발생한 비 고착성 Hot Particulate 제염은 알코올을 문힌 휴지를 사용하거나 진공청소기를 사용한다. 알코올을 문힌 휴지를 사용하는 경우 작업자가 Hot Cell 내부로 들어가서 작업하므로 방사능 피폭을 받게 되며, 폐기물량이 증가하였다. 또한 상용 진공청소기를 사용하는 경우, 진공청소기의 사이클론 역할 불량으로 필터에 부담을 주어 필터를 자주 교체해야 하며, 포집된 Hot Particulate 제거가 용이 하지 않고, 필터교환도 어렵다. 진공청소기 재질은 보통 플라스틱으로 방사능에 약하여 쉽게 파괴되어 장기간 사용하지 못하고 Hot Particulate에 대한 흡입력이 약하다.

② 실증규모장치제작 시 설계제약 조건

실제로 연구시설 Hot Cell 내부에 넣어 비 고착성 Hot Particulate를 제거하기 위한 실증규모 Hot Particulate의 설계 제약조건은 Table 3.1.4.6과 같고 개략도는 Fig. 3.1.4.10과 같다. 실증규모장치 크기는 Hot Cell 내 투입을 위해 1x1x1m이하로 하며 이동하기 쉬워야 하고, Hot Particulate 최적 흡입속도는 10-20 m/sec이며, 이에 적합한 진공펌프를 사용해야 하고, 사이클론 Vortex Finder 길이는 0.5xD(사이클론직경)이 적합하였다. 장치는 고방사능에 견고한 SUS가 적합하며, 백필터와 해파필터는 부착 및 탈착이 용이하며 원격교체가 가능해야 한다. 사이클론은 0.5~30 μ m Hot Particulate의 포집효율을 극대화할 수 있어야하며, Hot Particulate 수집박스는 부착 및 탈착이 용이해야 한다.

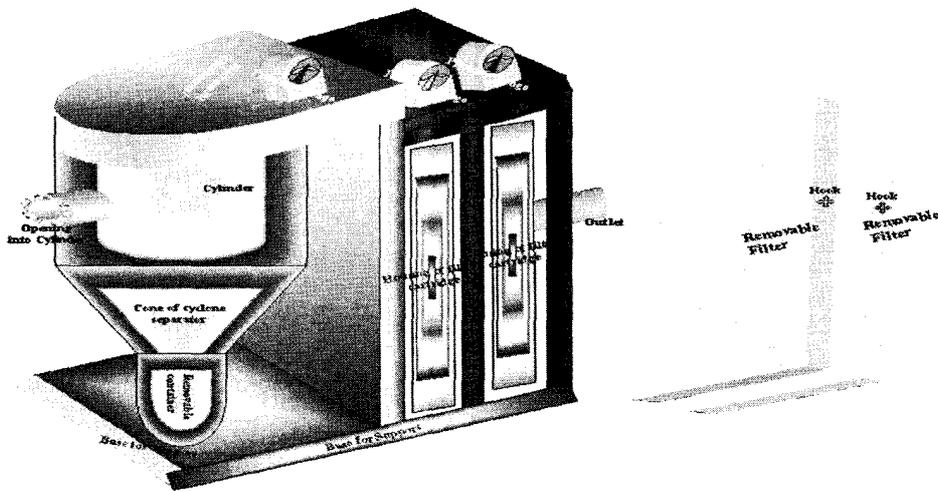


Fig. 3.1.4.10 Outline of hot particulate treatment equipment

Table 3.1.4.6 Restriction condition for design of hot particulate treatment equipment

장치설계요소	제약조건
제염대상 Particulate 크기	0.5~30 μ m
실증규모장치크기 및 운반	1x1x1이하, 이동용이
Particulate 흡입속도	10~20 m/sec
Hot Particulate 주성분	UO ₂ , U ₃ O ₈ , 질카로이
Cyclone 재질 및 성능	SUS, 포집효율최대
Particulate Collection Box	부착 및 탈착용이
Bag/HEPA Filter	원격교체 가능(카트리지 사용)
Cyclone Vortex Length	0.5 x D(사이클론 직경)
진공펌프	Particulate 최대흡입속도 확보
Particulate 흡입부	0.5~30 μ m Particulate 흡입가능
장치 재질	고방사능에 견고한 재질(SUS)

(5) 핫셀 적용을 위한 사이클론 제작 및 실험

(가) 핫셀 구조 및 Manipulator의 작업범위 조사

한국원자력연구원 조사재 시험시설에는 ㄷ자형으로 배치된 11개의 핫셀이 배치되어 있다(Fig. 3.1.4.11). 조사재시험시설은 핵연료 및 원자력 재료의 조사특성을 시험하는 시설이며, 1994년부터 정상운영에 들어가 조사된 핵연료 및 원자력 재료의 핫셀 시험을 수행하고 있다. 연료 시험용 핫셀 (M1, M2, M3, M4)에서는 조사장치(capsule)와 연료체 (fuel bundle)의 해체, 조사 시편의 가공 그리고 핵연료의 비파괴 및 파괴시험을 수행하고 있다. 재료시험용 핫셀 (M5a, M5b)에서는 조사재료(irradiated materials)의 기계적 특성시험과 물성 특성시험을 수행하며, 시험항목으로는 충격시험, 인장시험, 파괴인성시험, 피로시험, 열처리시험, 열팽창률 시험 등이다. 그리고 이 핫셀에 연이어 설치된 납 핫셀 (M7)에서는 조직시험과 경도시험 그리고 밀도측정 등을 수행하고 있다. 다용도 연구용 핫셀 (M6a, M6b)은 현재 DUPIC 핵연료

개발을 위한 실험시설로 활용하고 있으며, 사용 후 PWR 핵연료를 이용한 DUPIC 핵연료 제조연구를 수행하고 있다.

조사후시험시설은 가압 경수로형 핵연료 전장을 취급할 수 있으며, 외관검사, 재원 측정, 와전류시험에 의한 결함 탐상 및 산화층 분포 측정, X-선 측정, 감마선 분광분석 등의 비파괴검사와 금속조직시험, 밀도측정, 단면 감마 스캐닝 등의 파괴검사를 수행하고 있다. 이 시설의 주요 기능은 원자로 안전, 핵연료 설계, 핵연료 가공개선과 관련된 시료를 포함한 원자력발전소의 사용 후 핵연료에 대한 조사후시험 서비스를 제공하는 것이다.

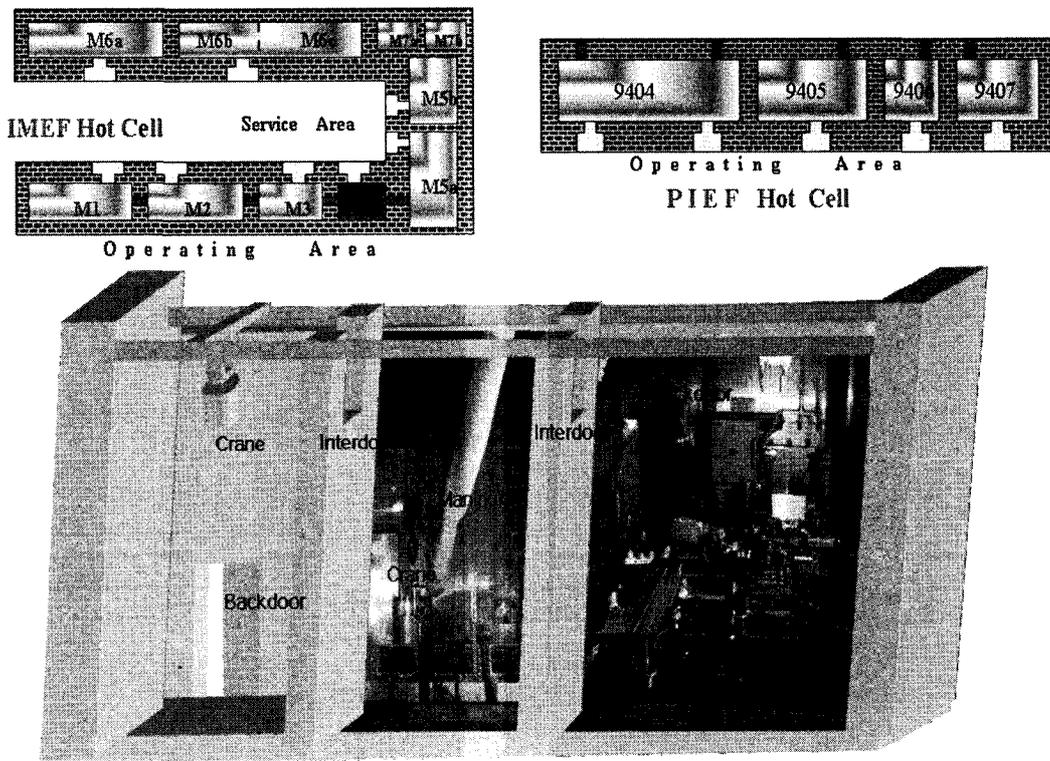


Fig. 3.1.4.11 Layout and inside structure of hot cell

조사재시험시설의 M4셀은 많은 핵연료시험장비가 보관되어 있어 방사능이 가장 높은 곳으로 고방사능분진을 제거해야할 지역 중의 하나이다. 고방사능 분진제거장치를 개발한 후 이 장치를 M4셀에 투입시키기 위해서는 먼저 M1셀의 뒷문(1m x 1m)을 통과한 후 Fig. 3.1.4.11처럼 크레인을 이용하여 셀과 셀의 연결문(1m x 0.8m)을 통과해야 하므로 장치의 크기가 1m x 0.8m 보다 작아야 한다. 또한 개발된 장치를 이용하여 핫셀 제염작업을 수행할 때 Manipulator만을 이용해야한다. Manipulator

의 드는 힘은 20kg이고, 잡아당길 수 있는 힘은 8 kg이며, robot 손은 두 손가락으로 구성되어 있기 때문에 장치의 세부부품의 설계는 이 작업조건에 적합해야 한다.

(나) 고방사능분진의 오염특성

원자력시설 핫 셀 내에서 사용 후 핵연료시험 시 발생하는 Hot Particulate의 크기를 SEM(Scanning Electron Microscope)으로 찍은 사진은 Fig. 3.1.4.12와 같이 주요 크기는 0.2~10 μ m이다. 즉, DUPIC 산화환원 공정 시 발생하는 Hot Particulate의 크기는 5~15 μ m이며, 분쇄공정 시는 0.2~2 μ m 이고, 사용 후 절단, 파괴, 인장 시험 시 발생하는 Hot Particulate의 크기는 주로 1~20 μ m이며, 피복관주변 CRUD의 크기는 0.2~2 μ m이다. 핫 셀의 내부표면 분진의 주 핵종은 UO₂ U₃O₈, 질카로이 등이다. 사용후 핵연료 절단 및 파괴 실험 후 발생된 Hot Particulate의 성분을 분석하기 위해 PIEF 핫 셀 내부 표면을 0.5x0.5cm 크기로 샘플링 하여 EDS로 성분 분석결과, Cs-137, Cs-134, Ru-106, Ce-144, Eu-154 의 방사성핵종으로 구성되어 있었으며, 핫셀의 표면 오염도는 베타감마인 경우 MCA로 측정된 결과 약 4x10⁵~4x10⁷ Bq/cm²이었고, 알파인 경우 Scintillator HP380A로 측정된 결과 2x10³~2x10⁵ Bq/cm²이었다.

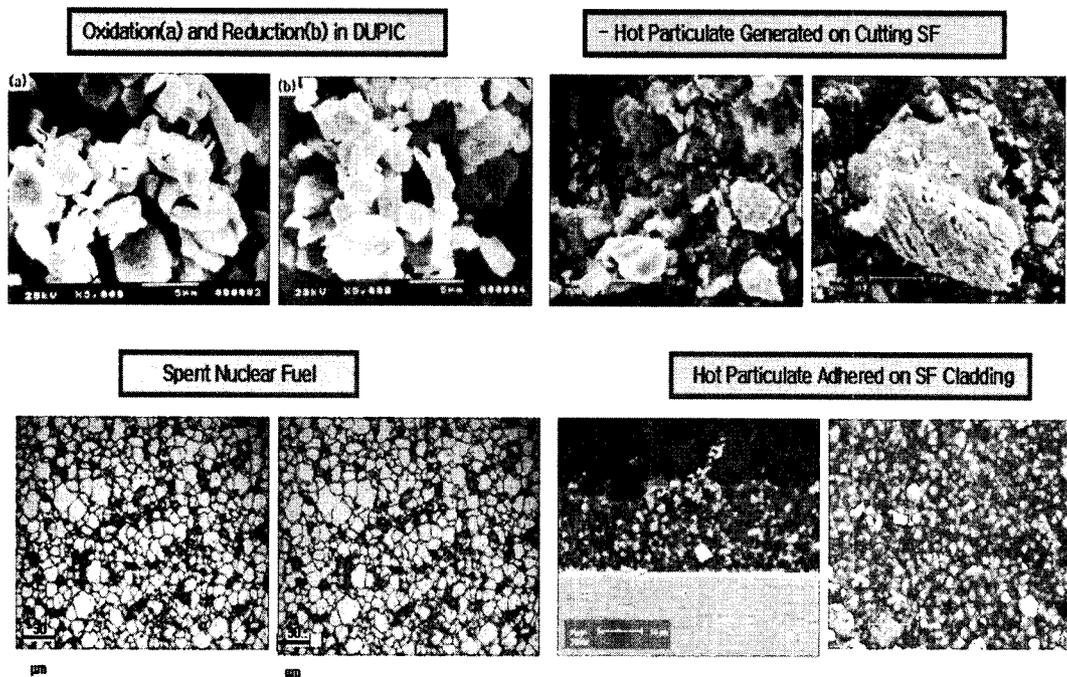


Fig. 3.1.4.12 SEM pictures for size of hot particulate generated on each process in hot cell

(6) 사이클론 설계 및 제작

앞에서 기술했듯이 핫셀 표면의 제염대상인 고방사능분진의 크기는 0.2~10 μ m이다. 사이클론은 보통 산업용으로 제작되어 분진 제거 시 사용되어 왔다. 작은 사이클론들은 대기샘플링을 위해 대기오염 제어분야에서 미립자를 포집하기 위해 사용된다. 반면에 큰 사이클론은 산업가스로부터 미립자를 제거하기 위해 사용된다 [3.1.4.3-3.1.4.5], 사이클론의 7개 부분에 대해 사이클론의 몸체 반경(D)의 비로 표시하여 사이클론을 설계한다. Table 3.1.4.7에서는 고효율 사이클론을 설계하기 위해 Stairmand가 제시한 각 부분에 대한 비율을 보여준다[3.1.4.6]. 이 Stairmand 설계는 표준 사이클론 설계의 한 예이며 시행오차 연구를 통해 개발되었다[3.1.4.7-3.1.4.9]. 산업용 사이클론은 5 μ m 이상의 분진을 제거대상으로 하였다.

Table 3.1.4.7 Dimensions of high-efficiency cyclone design and actual cyclone design

Cyclone Part Name	Stairmand (Dimension/D)	Yifang Zhu (Dimension/D)	Actual Length (Dimension/D)
Cyclone Diameter, D	1.0	1.0	1.0(7.6cm)
Gas Outlet Diameter, D _e	0.5	0.5	0.5
Inlet Hight, a	0.5	0.4	0.4
Inlet Width, b	0.2	0.2	0.2
Vortex Finder length, S	0.5	0.5-1	0.64
Upper Cyclone Hight, H	1.5	1.5	1.5
Lower Cyclone Hight, h	2.5	2.5	2.5

그러나 Table 3.1.4.7과같이 Yifang Zhu 등[3.1.4.10]은 소규모 사이클론으로 미세분진을 제거하기 위한 사이클론을 제작하였고, 1 μ m의 미세분진을 60%이상 제거 가능케 하였다. 본 연구에서는 제작한 사이클론은 Yifang Zhu 등이 제시한 치수를 근거로 결정하였다. 단지 Vortex Finder 는 고정시키지 않고 상하로 움직이도록 하여 1 μ m의 미세분진을 최대한 제거할 수 있을 때의 길이를 조사하였다. 고방사능분진 제거장치의 개략 도는 Fig. 3.1.4.13에 나타냈으며, 사이클론으로 유입된 고방사능분진은 포집박스에서 1 μ m 이상의 고방사능분진이 제거된 후 필터로 유입되고 필터에서 0.3 μ m 이상의 분진이 제거된다. 사이클론의 각 부분의 크기는 Fig. 3.1.4.14와 같다. 또한 앞에서 기술한 것처럼 고방사능분진 제거장치의 크기는 1x0.8 m 이하여야 하

며, 진공펌프는 분진을 10~20m/sec의 속도로 유입할 수 있는 용량을 사용해야 한다. 사이클론의 재질 및 성능은 $2 \times 10^5 \text{Bq/cm}^2$ 의 알파방사능을 견딜 수 있는 SUS 304를 사용했고, 핫 셀에 발생된 고방사능분진을 85%이상 제거할 수 있는 성능을 가져야 한다. 사이클론 포집박스는 Manipulator로 부착 및 탈착이 가능하도록 서랍식으로 제작하였다. BAG/HEPA 필터는 $0.3 \mu\text{m}$ 의 분진을 95%이상 제거할 수 있고 Manipulator로 교체 가능하도록 서랍형 카트리지로 제작하였다. 사이클론 Vortex Finder의 길이는 $1 \mu\text{m}$ 의 미세분진을 60%이상 제거할 수 있도록 실증시험을 통해 결정하였다. Manipulator는 22kg의 물건을 들 수 있고 8kg의 물건을 잡을 수 있으므로 이 한계 내에서 고방사능 분진 제거장치의 모든 작업이 가능토록 설계 제작하였다. 고방사능 분진 제거장치의 설계제약조건은 Table 3.1.4.8와 같다.

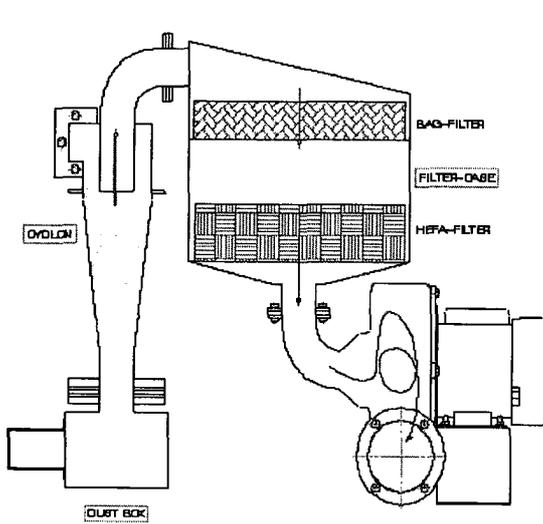


Fig. 3.1.4.13 Hot particulate removal process outline

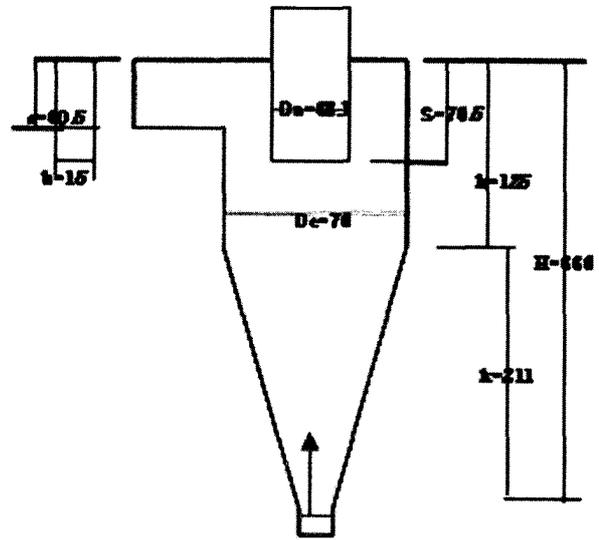


Fig. 3.1.4.14 Cyclone dimensions

위의 설계 제약 조건에 따라 설계된 고방사능 분진 제거장치의 구조는 Fig. 3.1.4.15와 같다. Fig. 3.1.4.16은 Manipulator로 작동할 수 있는 사이클론 포집박스를 보여준다. Fig. 3.1.4.17은 Manipulator로 작동 가능한 서랍식 Bag/HEPA 필터를 보여준다.

또한 Fig. 3.1.4.18은 원자력시설 핫셀 표면 위에 부착된 고방사능 분진 제거 시에 사용할 수 있도록 앞에서 기술한 설계도면에 따라 제작된 고방사능분진 제거장치이다.

Table 3.1.4.8 Restriction condition of equipment design

Design element	Restriction condition
Particulate size	0.2~10 μ m
Equipment size	1x0.8 m
Vacuum pump capacity	10~20m/sec
Particulate component	UO ₂ , U ₂ O ₈
Cyclone material	STS 304
Collection box	Operation by Manipulator
Bag/HEPA filter	Exchange by Manipulator
Cyclone vortex length	>60 % of 1 μ m
Manipulator operation	Lift:20kg, Catch:8kg
Equipment material	Stable in 2x10 ⁵ Bq/cm ²

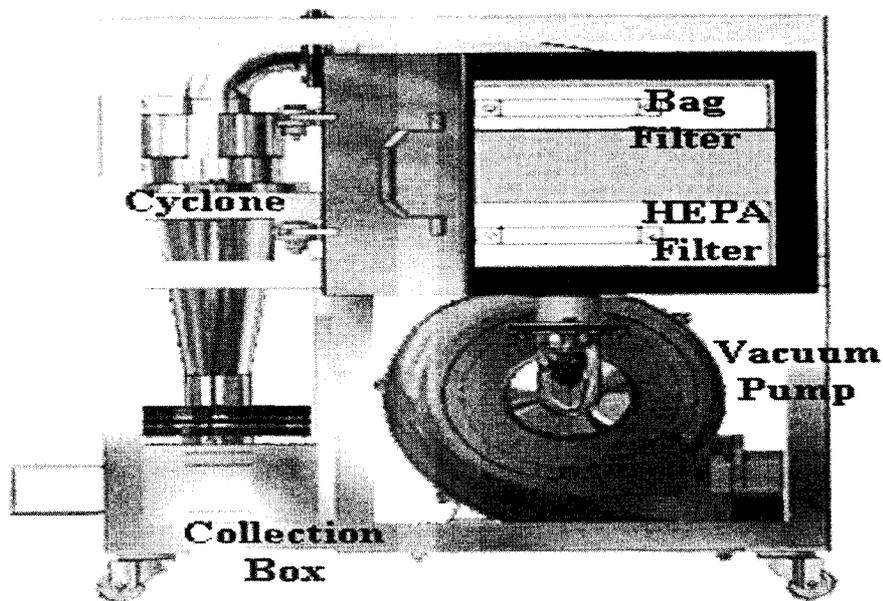


Fig. 3.1.4.15 Structure of equipment for removal of hot particulate

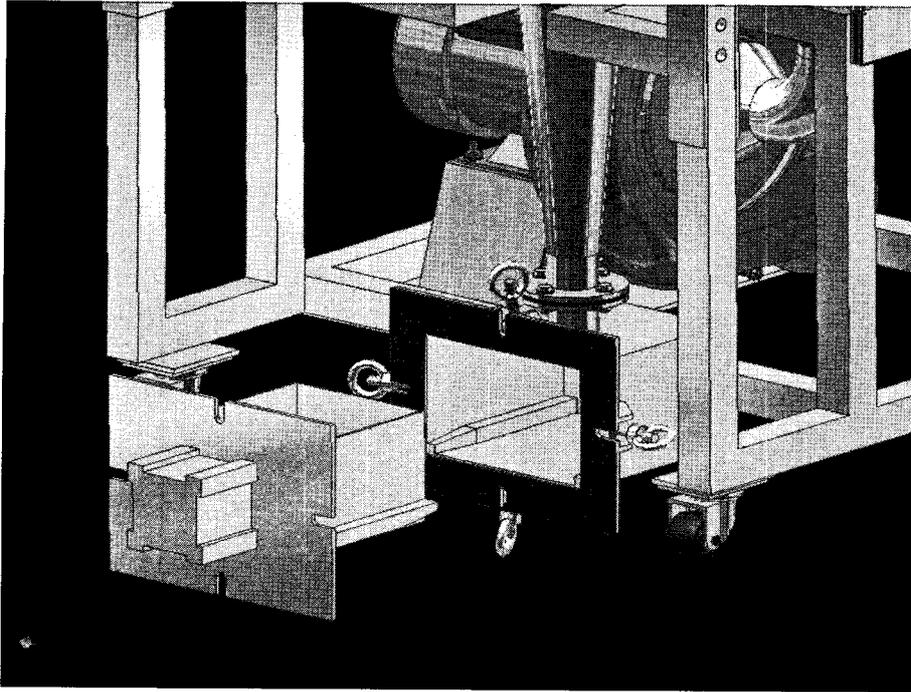


Fig. 3.1.4.16 Collection box of hot particulate

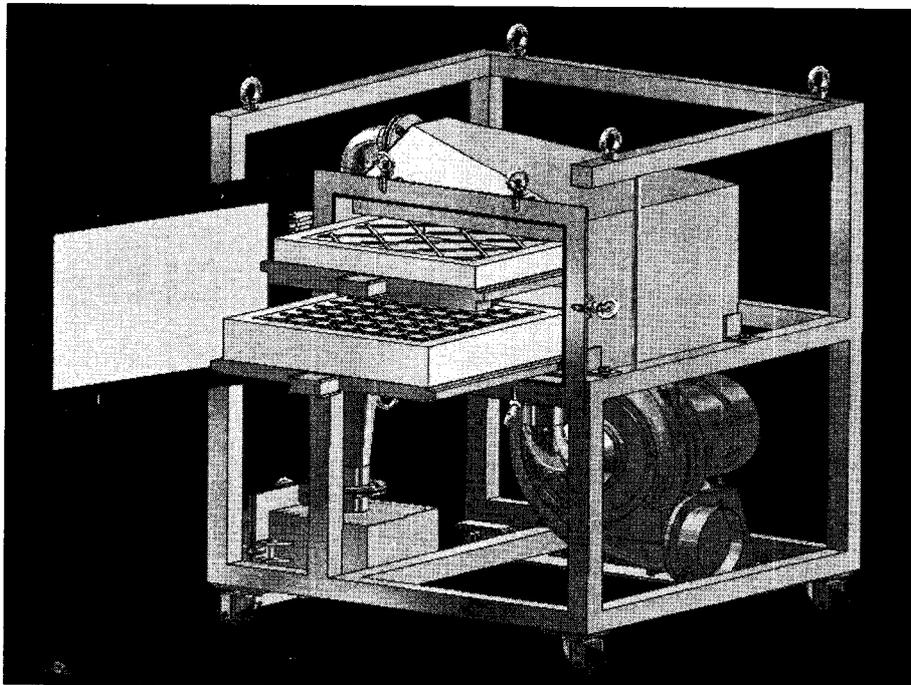


Fig. 3.1.4.17 Bag/HEPA filter

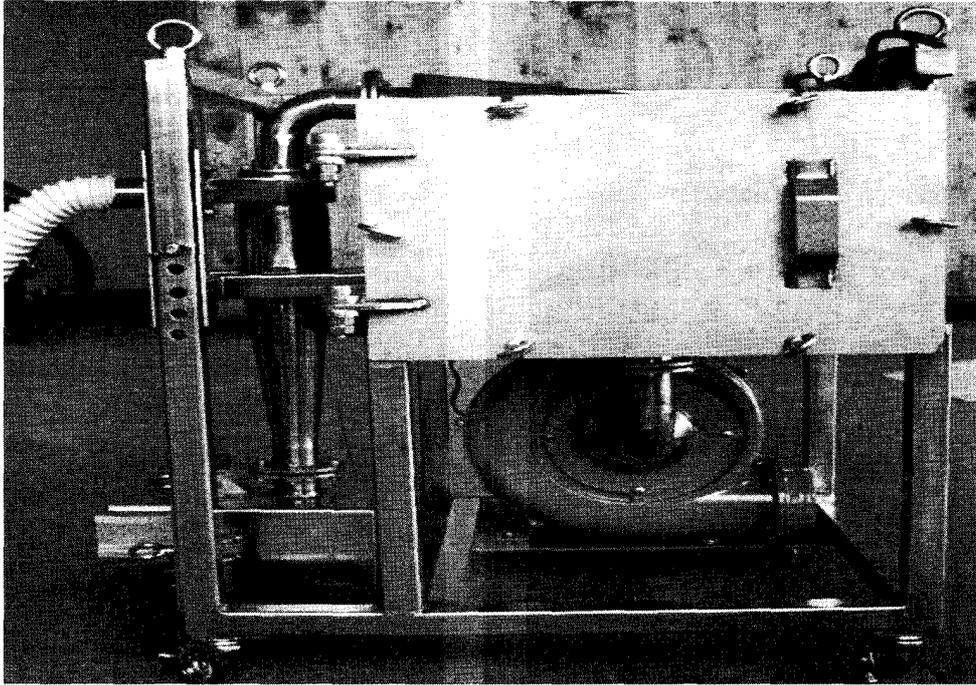


Fig. 3.1.4.18 Manufactured equipment for removal of hot particulate

(7) 사이클론 최적성능 평가 실험

앞에서 핫 셀 분포한 고방사능분진의 크기가 1~10 μm 이므로 1, 2.5, 5, 10 μm 크기의 Al_2O_3 와 TiO_2 모의입자를 사용하여 제작된 고방사능분진 제거장치의 효율을 분석했다. 즉 사이클론과 Bag/HEPA 필터의 미립자 제거성능을 측정했다. 사이클론과 필터의 제거효율을 측정하기 위해 Fig. 3.1.4.19와 같이 Aerodynamic Particle Sizer Model 3310을 사용하여 입도별 농도를 측정하였다. 1, 2.5, 5, 10 μm 크기의 모의입자 약150g을 10분 동안 Fig. 3.1.4.20과 같이 Particle Mixing Device Feeder을 사용하여 사이클론과 연결된 관내부로 투입했다. 사이클론과 연결된 앞쪽과 뒤쪽파이프 그리고 필터 뒤쪽파이프 내부에 시료 측정 관을 설치하여 시료를 채취하고 채취된 시료를 Aerodynamic Particle Sizer를 통과시켜 입도별 농도를 측정했다. 또한 모의입자의 유입속도는 Anemometer로 측정했다.

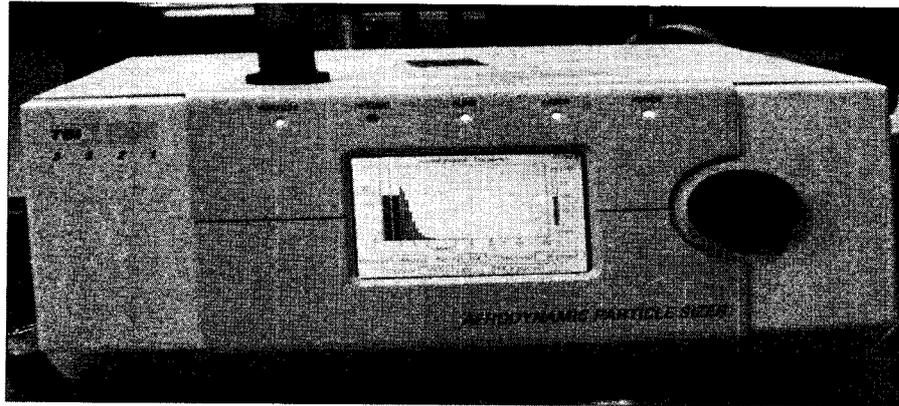


Fig. 3.1.4.19 Aerodynamic particle sizer model 3310

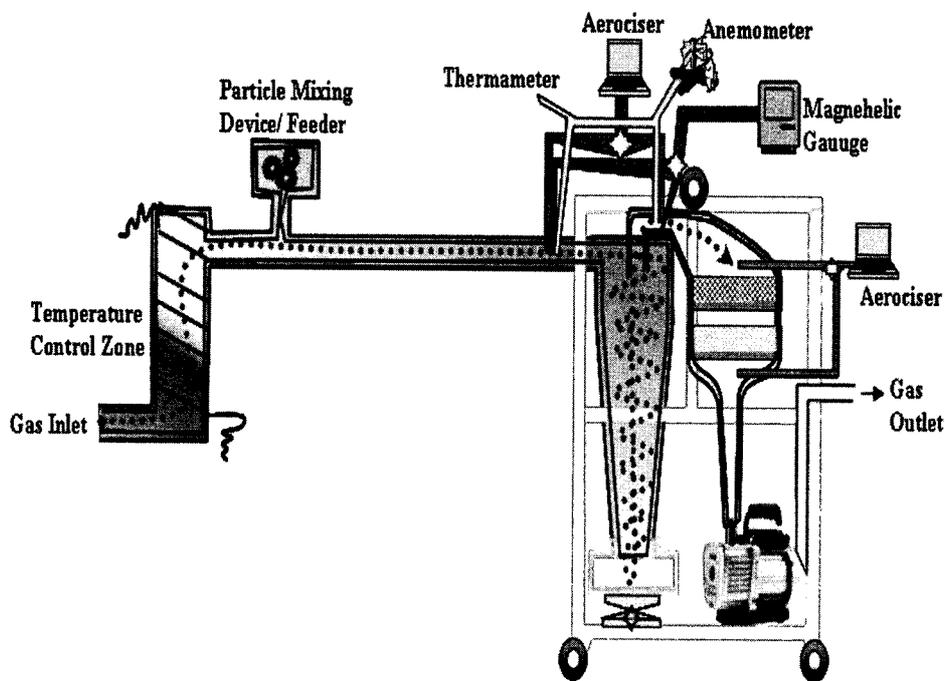


Fig. 3.1.4.20 Experiment outline for removal of particulate

(가) 최적 Vortex Finder 길이 도출 실험

Yifang Zhu 등은 소규모 사이클론의 경우 최적 Vortex Finder의 길이로 $(h-S)/D=1$ 을 제시하였고, 이 식에 대해 제작된 사이클론의 S는 4.9cm에 해당된다. 이 외에 모의 입자 제거효율을 비교하기 위해 다른 Vortex Finder 길이를 2.8cm와 7.5cm로 정하였다. 처음에 Vortex Finder 길이를 2.8cm로 고정하고, 진공펌프를 조절하여 모의입자 유입속도를 8, 12, 15, 18, 20 m/sec로 변화시켰다. 사이클론 전, 후에서 모의입자를 채취하여 입도별 농도를 분석하였다. 이 분석결과를 사용하여 사이클론의 입도별/유

입속도별 포집효율을 계산하였다. 다음으로 Vortex Finder 길이를 4.9cm와 7.5cm로 변화시켜 각각에 대한 포집효율을 측정하였다. 측정결과를 분석하여 높은 포집효율을 보이는 Vortex Finder 길이를 선정하였다. 한편, Vortex Finder 길이의 변화에 따른 Cut Size의 변화를 분석하였다.

(나) 필터 포집성능 평가실험

사이클론으로부터 나온 기체 내의 모의입자를 제거하도록 설치된 필터의 성능을 측정하기 위해 필터를 통과한 공기 내의 모의입자를 채취하여 Aerodynamic Particle Sizer를 통과시켜 필터 전후의 농도를 측정하여 속도별 필터의 포집성능을 분석하였다.

(다) 온도상승 및 사이클론 내부에서의 압력변화에 따른 포집효율 분석 실험

유입기체의 온도를 70℃로 상승시킨 후의 사이클론의 포집효율을 속도별로 측정했다. 압력계를 사용하여 사이클론 내부에서의 압력강하를 측정하였다.

(8) 실험결과에 대한 논의

(가) 최적 Vortex Finder 길이 도출 실험

1 μ m로부터 10 μ m까지의 크기가 다른 미립자를 사이클론에 유입시켰을 때, 사이클론 포집기에서의 포집효율은 Fig. 3.1.4.21- Fig. 3.1.4.23과 같았다. Fig. 3.1.4.21은 Vortex Finder 길이가 2.8cm일 때의 모의입자 유입속도별 포집효율을 보여준다. 모의입자 유입속도가 커질수록 포집효율이 높아진다. 그러나 15m/sec 이상일 때 포집효율의 증가속도는 둔화됨을 알 수 있다. 한편 15m/sec에서 1 μ m의 모의입자를 약 45%포집하는 것으로 나타났다. Fig. 3.1.4.22는 Vortex Finder 길이가 4.9cm일 때의 모의입자 유입속도별 포집효율을 보여준다. 모의입자 유입속도가 커질수록 포집효율이 높아지지만 15m/sec 이상일 때 포집효율의 증가속도는 매우 둔화됨을 알 수 있다. 한편 15m/sec에서 1 μ m의 모의입자를 약 65% 포집하는 것으로 나타났고, 5 μ m 이상의 모의입자는 90% 이상 포집하는 것으로 나타났다.

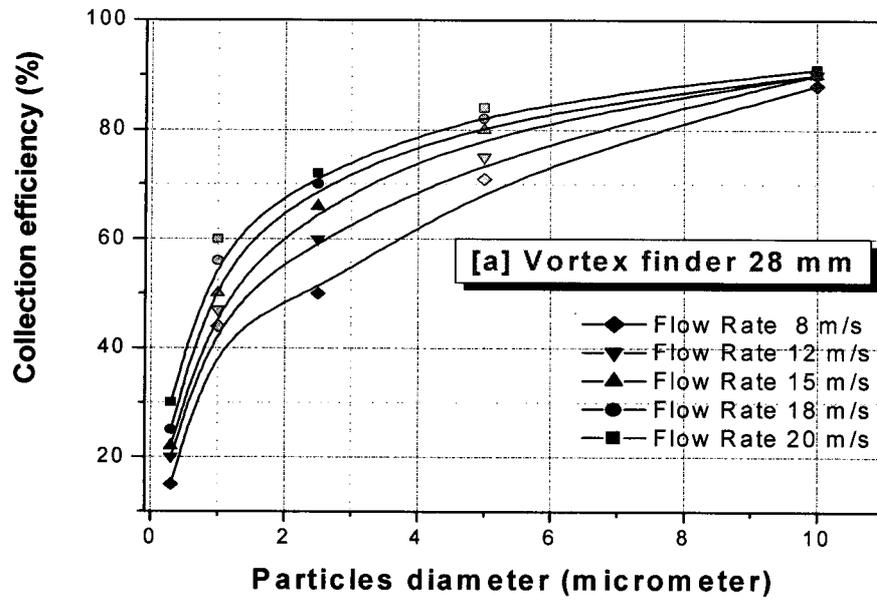


Fig. 3.1.4.21 Collection efficiency of cyclone on vortex finder 28mm

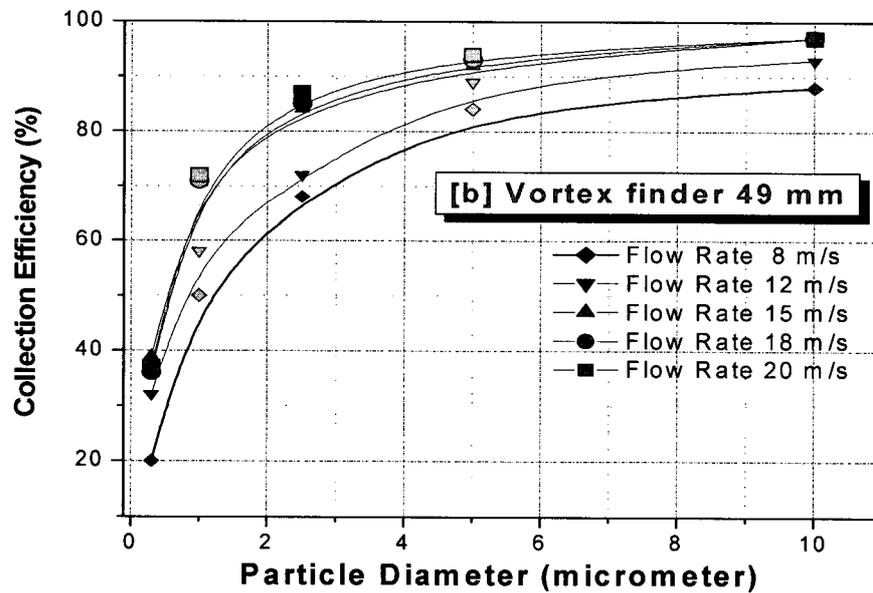


Fig. 3.1.4.22 Collection efficiency of cyclone on vortex finder 49mm

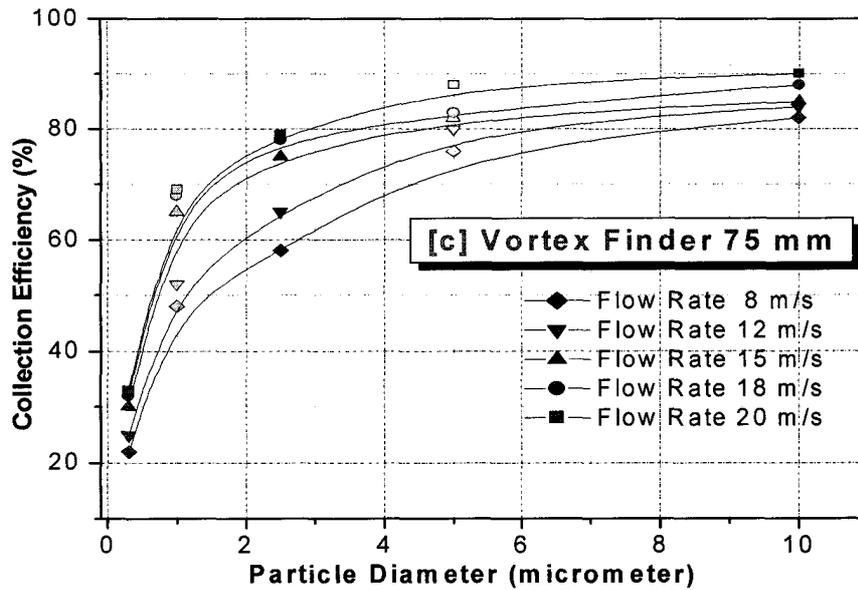


Fig. 3.1.4.23 Collection efficiency of cyclone on vortex finder 75mm

Fig. 3.1.4.23은 Vortex Finder 길이가 7.5cm일 때의 모의입자 유입속도별 포집효율을 보여준다. 모의입자 유입속도가 커질수록 포집효율이 높아지지만 15m/sec 이상일 때 포집효율의 증가속도는 둔화됨을 알 수 있다. 한편 15m/sec에서 1 μ m의 모의입자를 약 58% 포집하는 것으로 나타났다. 그러므로 Vortex Finder 길이가 4.9 cm일 때 포집효율이 가장 높음을 알 수 있었다. Fig. 3.1.4.24는 Vortex Finder 길이/사이클론 직경(S/D)에 대한 Cut Size의 변화에 대해 보여준다. 모든 유입속도에 대해 S/D가 0.64일 때 Cut Size의 값이 가장 작았고, 15m/sec일 때 약 0.6 μ m를 나타냈다. Fig. 3.1.4.25는 (사이클론 상부높이-Vortex Finder 길이)/사이클론 직경((h-S)/D)에 대한 Cut Size의 변화에 대해 보여준다. 모든 유입속도에 대해 (h-S)/D가 1일 때 Cut Size의 값이 가장 작았다[3.1.4.11].

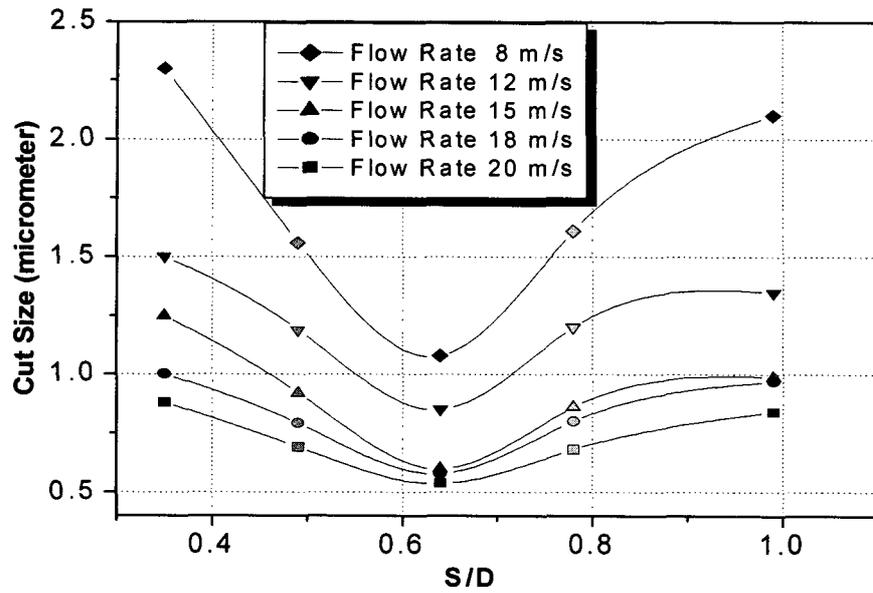


Fig. 3.1.4.24 Cut size along S/D and flow rate

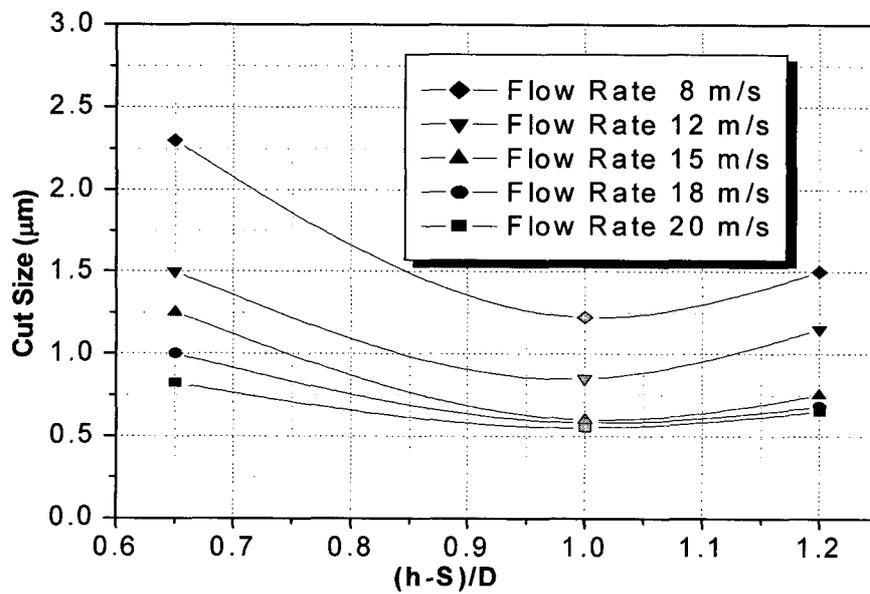


Fig. 3.1.4.25 Cut size along (h-S)/D and flow rate

(나) 필터 포집성능 평가 실험

고방사능분진 제거장치 내에 사이클론 뒷부분에 부착된 Bag/HEPA 필터의 성능을 평가하기 위해 필터 앞뒤의 기체를 샘플링 하여 Aerodynamic Particle Sizer로 모의입

자 농도를 측정하여 필터의 포집효율을 분석한 결과는 Fig. 3.1.4.26과 같다. 1 μm 에 대해 포집효율은 97% 이상이며, 모의입자의 유입속도가 빠를수록 포집효율은 작아진다. Bag/HEPA 필터박스의 봉인상태가 완벽하면 제거효율은 좀 더 높아지리라 사료된다.

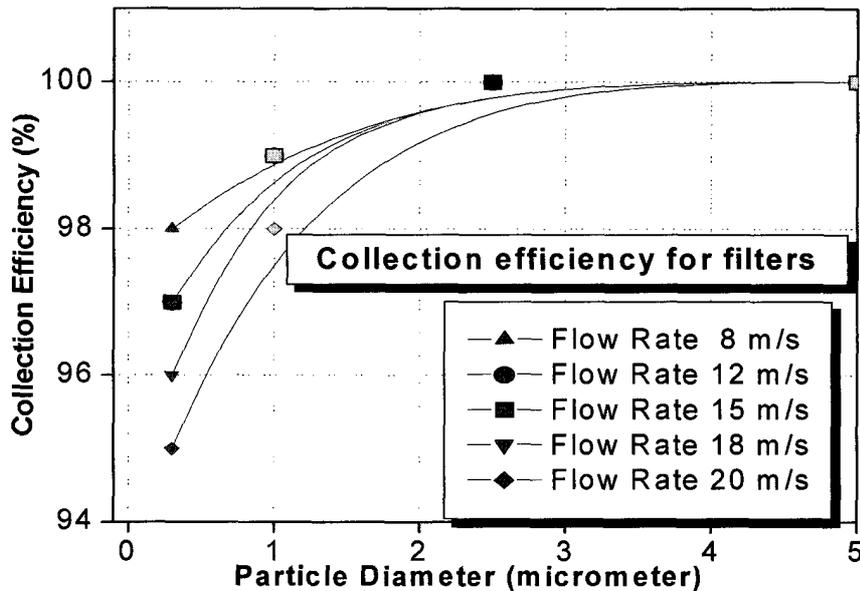


Fig. 3.1.4.26 Collection efficiency of Bag/HEPA filters

(다) 온도 및 압력 변화에 따른 포집효율 분석 실험

사이클론에 유입되는 기체의 온도를 70 $^{\circ}\text{C}$ 로 상승시켰을 때의 사이클론 포집효율을 측정한 결과는 Fig. 3.1.4.27과 같다. 모의입자 유입속도가 15m/sec일 때 1 μm 포집효율은 61%로 상온에서 보다 제거효율이 저감되는 것을 알 수 있었다.

Fig. 3.1.4.28은 사이클론내의 압력강하를 보여준다. 모의입자 유입속도의 증가에 따라 압력강하는 증가하며, Vortex Finder의 길이가 커질수록 압력강하는 증가한다. 사이클론에서 일반적으로 허락되는 압력강하 20-25cm[3.1.4.12]보다는 작은 것으로 나타났다. 차후에 사이클론 내부표면을 좀 더 매끄럽게 만들면 압력강하를 좀 더 줄일 수 있다고 사료된다.

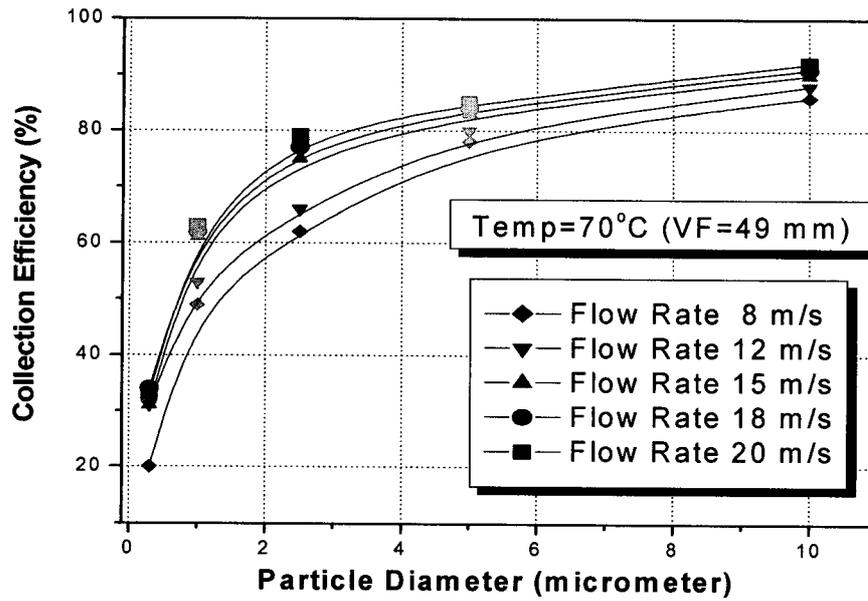


Fig. 3.1.4.27 Collection efficiency on temperature ascent in cyclone

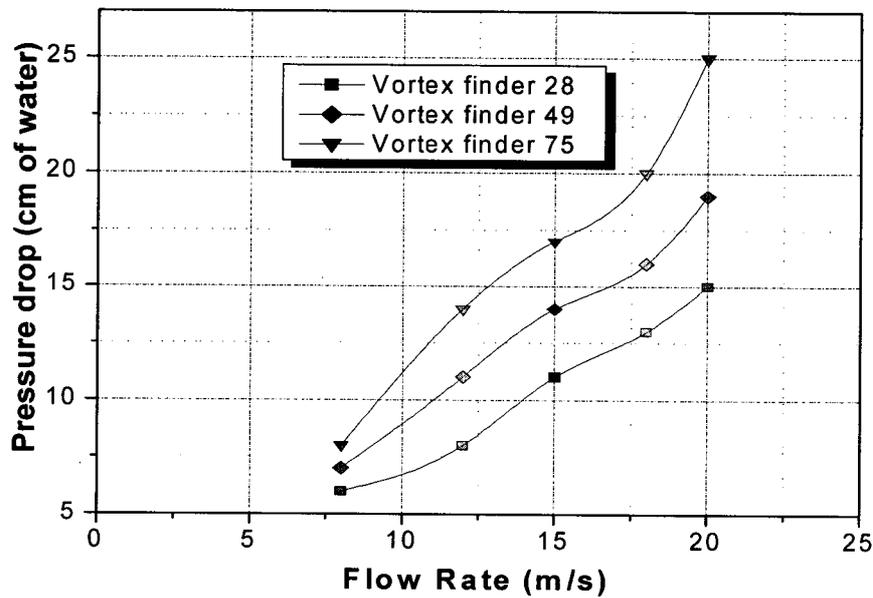


Fig. 3.1.4.28 Pressure drop along flow rate in cyclone

(9) 비방사능 실증실험

개발된 장치의 비방사능 실증은 원자력연구원 내의 고화폐기물시험시설 핫셀 내에서 수행하였다. 개발된 고방사능 분진처리장치를 Fig. 3.1.4.29와 같이 운반용 철판을

사용하여 고화체 검사시설 핫셀 내에 투입하였다. 이때, 장치의 오염을 방지하기 위해 장치 외부를 비닐로 포장하였고, 단지 고방사능분진 흡입관, 고방사능 분진 Collection Box, 필터박스 전면 등은 Manipulator에 의한 실증실험을 위하여 개방하였다. 개발된 장치는 핫셀 내에서 Manipulator로 원격 작동하여 PIEF, IMEF 등의 핫셀 내부표면 위에 부착된 고방사능 분진을 흡입 제거한다. 흡입관에 흡입된 고방사능분진은 대부분 사이클론을 통해 Collection Box에 포집되며, 사이클론을 통과한 미세분진은 Bag/HEPA 필터에서 대부분 제거된다. 그러므로 Collection Box에 포집된 고방사능분진은 Manipulator로 Collection Box의 손잡이를 잡고, 잡아 당겨 Collection Box 케이스로부터 서랍형태의 박스를 꺼낸 후, 박스 내에 쌓인 고방사능 분진을 고방사능 폐기물통에 버리고 박스는 Collection Box에 원위치 시킨다. 또한, Bag과 HEPA 필터도 Manipulator로 Bag/HEPA 필터의 손잡이를 잡고, 잡아당겨 필터박스로부터 필터카트리지를 분리한 후 새 것으로 교환해야 한다. 그러므로 핫셀 비방사능 실증내용은 다음과 같다.

- a) Manipulator에 의한 흡입관 입구 붙잡기 및 오염표면 위로의 흡입관의 이동
- b) Manipulator에 의한 사이클론 Collection Box의 탈부착
- c) Manipulator에 의한 Bag/HEPA 필터의 교환

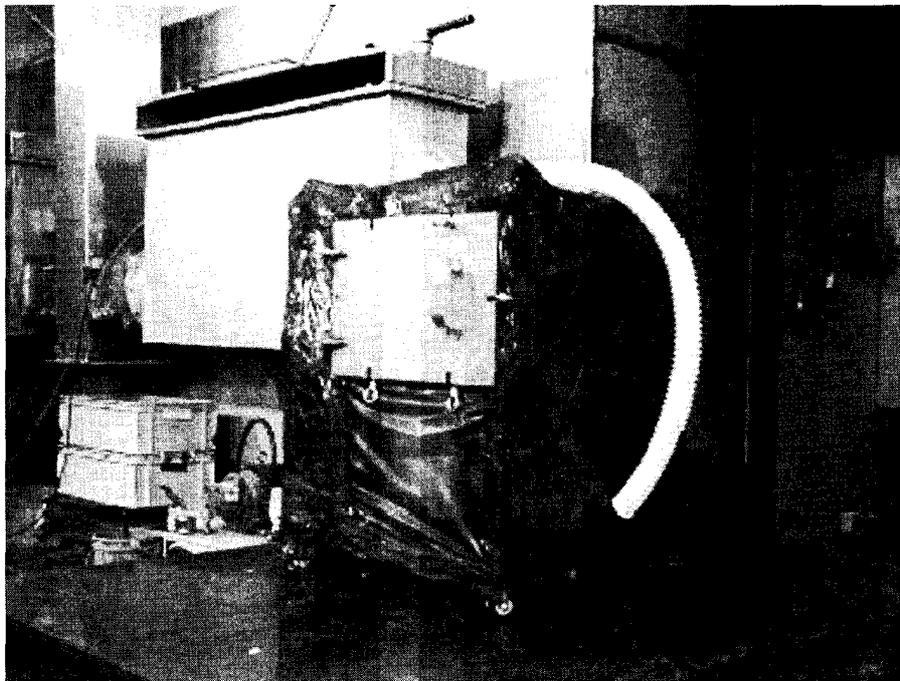


Fig. 3.1.4.29 The equipment covered with vinyl for cold demonstration

위의 비방사능 실증내용은 동영상으로 촬영했다. 모든 작업은 대체적으로 원활히 수행되었다. 단지, Manipulator에 의한 사이클론 Collection Box의 탈착 작업이 원활하게 작동되지 않아 이 문제점을 보완하였다.

(10) 실증규모 고방사능분진 제거장치 개선

실증규모 고방사능분진 제거장치는 아래 그림과 같이 두 가지 목적을 위해 제작하였다. 첫 번째는 CO₂ Pellet 분사제염장치와 연결하여 CO₂ Pellet 분사제염 시 발생하는 고방사능분진을 Vacuum으로부터 흡입하여 본 장치로 제거하는 것이고 두 번째는 핫셀 벽면 및 바닥 표면에 부착된 고방사능 분진을 공기청소기처럼 제거하는 것이다.

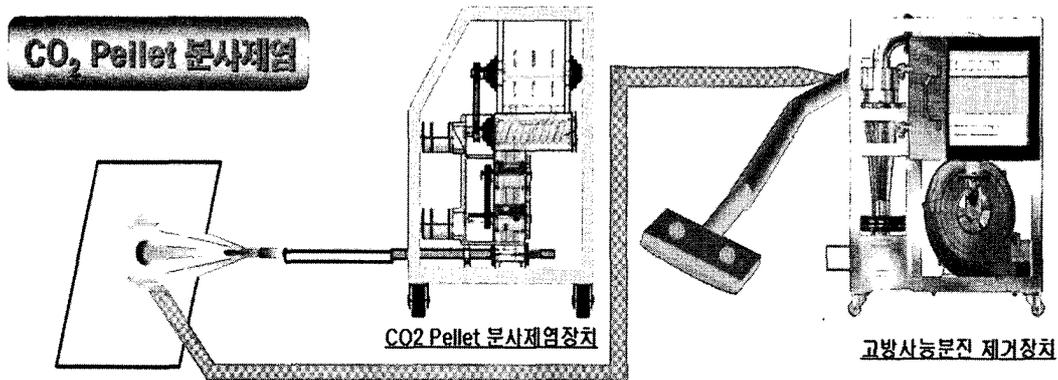


Fig. 3.1.4.30 Connection diagram of CO₂ pellet decontamination equipment and equipment for removal of hot particulate

(가) 필터박스 패킹시스템 개선

일차적으로 개발한 실증규모 고방사능분진 제거장치 실험결과 필터박스 패킹시스템에 문제가 발생하여 일부의 미세분진이 누출되었다. 따라서 이와 같은 문제점을 개선하기 위하여 Filter box내의 HEPA 필터와 Bag 필터를 받쳐주었던 밀판들을 제거하고, 필터박스의 제작 및 필터박스 안에 HEPA필터와 Bag필터를 넣도록 제작하여 필터교환을 쉽도록 개선하였다 또한 필터박스 윗부분은 고무 Sealing을 하여 미세분진의 누출을 방지하였다.

(나) 필터 박스 문 여닫이 문제점 개선

필터 박스 문 아래 고리의 개폐 어려움으로 인하여 필터박스의 여닫이가 어렵기 때문에 필터박스 나사식 잠금 문을 원터치 잠금 문으로 교환함으로써 Manipulator에

의한 필터박스문의 여닫이를 원활히 하였다.

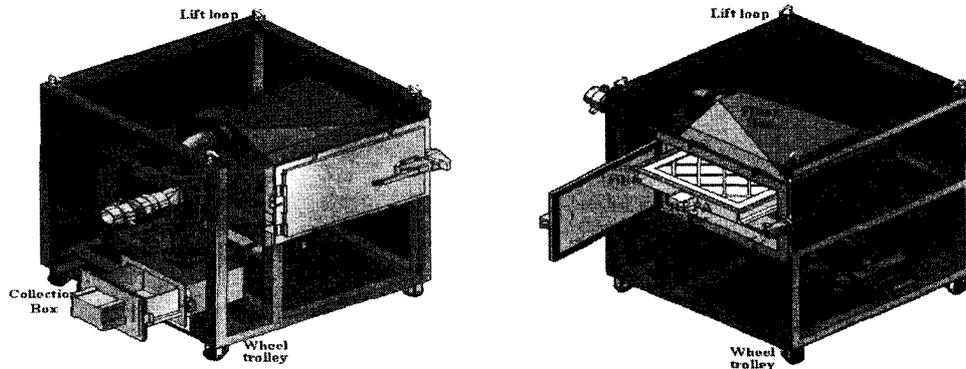


Fig. 3.1.4.31 The improved equipment for removal of hot particulate

(다) Collection box 여닫이 개선

Manipulator에 의한 사이클론 밑에 위치한 Collection box 여닫이가 어려웠기 때문에 나사형 박스를 원터치형 박스로 교체하여 Collection box 여닫이를 원활하게 개선하였다.

(라) 흡입구 및 연결관

고방사능분진 제거장치의 사이클론 입구에 분진 흡입구가 부착된 연결관을 연결하여 진공청소기처럼 핫셀 내부표면과 핫셀 내에 있는 장치들의 표면에 부착된 고방사능 분진을 제거할 수 있도록 하였다. 기존 진공청소기와의 차이점은 사이클론을 이용하여 대부분의 고방사능 분진을 제거하므로 필터교환 시기를 연장시켜 발생 폐기물량을 감소시키며, 방사능에 강한 재질을 사용하고 Manipulator에 의한 필터교환이 가능하므로 장치의 수명을 연장시킨 점이다.

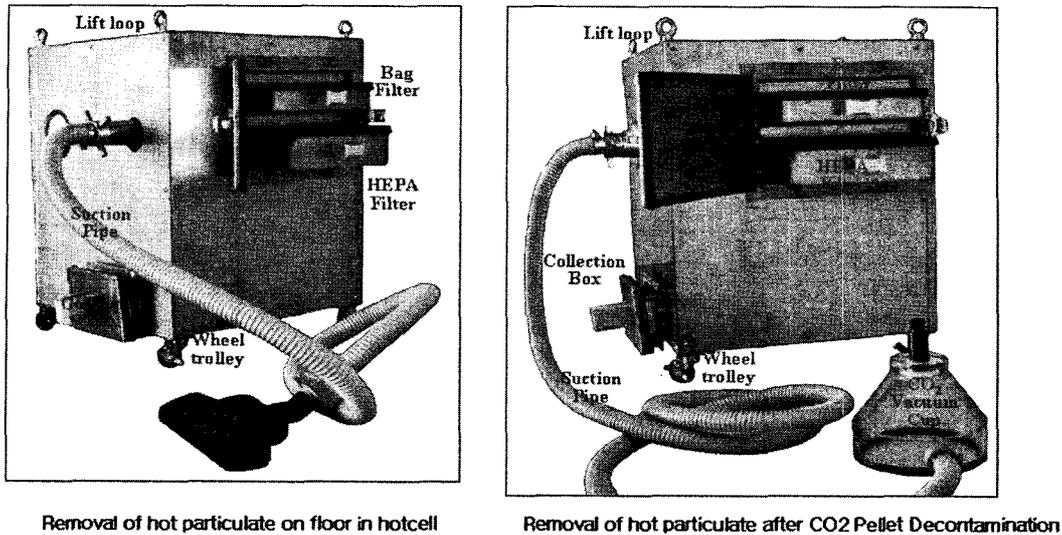
(마) CO₂ 분사 Vacuum cup과의 연결관 제작

고방사능분진 제거장치의 사이클론 입구에 CO₂ 분사 Vacuum cup이 부착된 연결관을 연결하여 CO₂ Pellet 분사제염 시 발생하는 고방사능분진을 흡입하여 본 장치로 제거할 수 있게 개선하였다.

(바) 대용량의 사이클론으로 교체

고방사능분진 제거장치의 사이클론을 몸체직경의 크기가 10cm 인 것(기존 7.6cm)

으로 교환하여 흡입된 분진제거효율을 향상하도록 개선하고 분진제거 성능평가 실험을 수행하였다.



Removal of hot particulate on floor in hotcell Removal of hot particulate after CO2 Pellet Decontamination

Fig. 3.1.4.32 The improved equipment for removal of hot particulate with cover

(사) Fan 용량 증가

분진흡입용 fan의 용량을 3 m³/min로 증가시켜 사이클론 내의 흡입속도를 20 m/sec 이상을 확보함으로써 고방사능분진의 높은 제거효율을 확보하도록 하였다.

(아) 장치커버 제작

고방사능 분진 제거장치에 스테인레스 스틸 커버를 씌워 핫셀 내의 고방사능으로부터 내부장치를 보호하여 장치의 수명을 연장시키고 핫셀 내에서 여러 가지 실험 중에 발생하는 고방사능 분진에 의한 오염을 방지토록 하였다.

(11) 개선된 실증규모 Hot Particulate 제거장치의 성능평가

앞에서 언급한 것처럼 사이클론의 몸체직경을 10cm 인 것으로 교환하여 분진제거 성능평가 실험을 수행하였다. 핫셀 내에 분포한 고방사능 분진의 크기가 1~10 μm이므로 1, 2.5, 5, 10 μm 크기 의 Al₂O₃와 TiO₂ 모의입자를 사용하여 제작된 고방사능 분진 제거장치의 효율을 분석하였다. 사이클론 포집기에서의 포집효율은 아래와 같았다. 첫 번째로, Vortex Finder 길이가 3.5cm일 때의 모의입자 유입속도별 포집효율을 보면, 모의입자 유입속도가 커질수록 포집효율이 높아진다. 그러나 15m/sec 이상 일 때 포집효율의 증가속도는 둔화됨을 알 수 있다. 한편 15m/sec에서 1μm의 모의

입자를 약 55% 포집하는 것으로 나타났다. 두 번째로 Vortex Finder 길이가 6.5cm일 때의 모의입자 유입속도별 포집효율을 보면, 모의입자 유입속도가 커질수록 포집효율이 높아지지만 15m/sec 이상일 때 포집효율의 증가속도는 매우 둔화됨을 알 수 있다. 한편 15m/sec에서 1 μ m의 모의입자를 약 70% 포집하는 것으로 나타났고 5 μ m 이상의 모의입자는 약 95% 포집하는 것으로 나타났다. 세 번째로 Vortex Finder 길이가 10.0cm일 때의 모의입자 유입속도별 포집효율을 보면, 모의입자 유입속도가 커질수록 포집효율이 높아지지만 15m/sec 이상일 때 포집효율의 증가속도는 둔화됨을 알 수 있다. 한편 15m/sec에서 1 μ m의 모의입자를 약 60% 포집하는 것으로 나타났다. 그러므로 Vortex Finder 길이가 6.5 cm일 때 포집효율이 가장 높음을 알 수 있었다.

Fan의 가동으로 사이클론 내부로 모의입자를 유입시킬 때, 사이클론 내에서는 압력강하를 나타낸다. 모의입자 유입속도의 증가에 따라 압력강하는 증가하며, Vortex Finder의 길이가 커질수록 압력강하는 증가한다. 그러나 사이클론에서 일반적으로 허락되는 압력강하 20-25cm 보다는 작은 것으로 나타났다. 사이클론 내부표면을 좀 더 매끄럽게 만들면 압력강하를 좀 더 줄일 수 있다고 사료된다.

사이클론에 유입하는 기체의 온도를 80 $^{\circ}$ C로 상승시켰을 때의 사이클론의 포집효율을 측정한 결과는 아래와 같이 모의입자 유입속도가 15m/sec일 때 1 μ m 포집효율은 68%로 상온에서 보다 제거효율이 약간 저감되는 것을 알 수 있었으며, 이것은 온도 상승에 따른 밀도 감소로 예측된다. 한편, 사이클론에 유입하는 기체의 습도를 80%로 상승시켰을 때의 사이클론의 포집효율을 측정한 결과는 모의입자 유입속도가 15m/sec일 때 1 μ m 포집효율은 80%로 실내습도에서 보다 제거효율이 증가함을 알 수 있었으며, 이것은 습도 상승에 따른 미립자의 응집력 상승으로 예측된다.

사이클론 내부의 압력이 낮을수록 미립자의 Cut size는 감소했다. 또한, Vortex finder의 길이가 6.5cm일 때 Cut size의 크기가 감소하는 것으로 나타났다. 여기서, Cut size는 포집된 미립자의 중간크기를 말한다. 한편, 사이클론 내에서의 흐름은 아래 Fig.과 같이 난류에 속하며, Stokes number는 0.01-0.02사이로 0에 가까우므로 미립자가 대부분 Flow line을 따라 흐름을 알 수 있다.

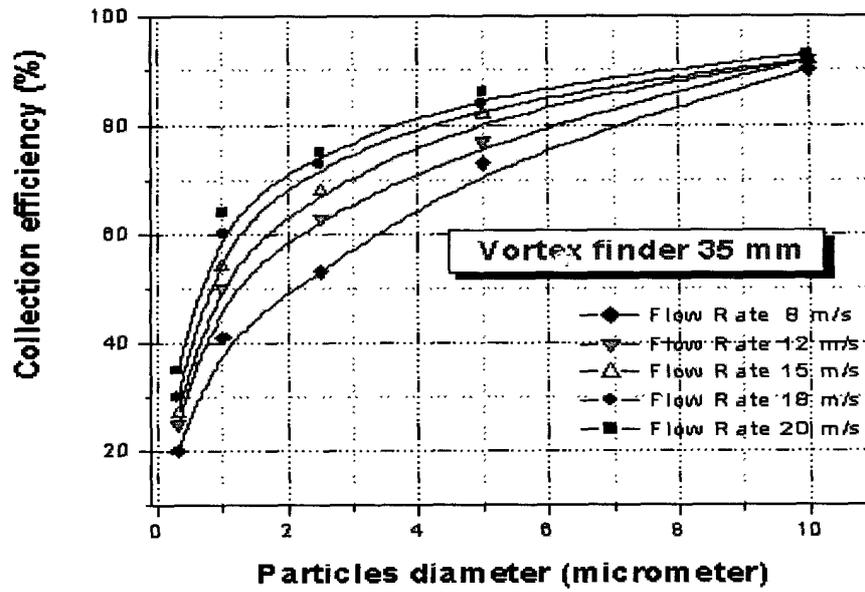


Fig. 3.1.4.33 Collection efficiency as a function of the particle size for vortex finder 35 cm

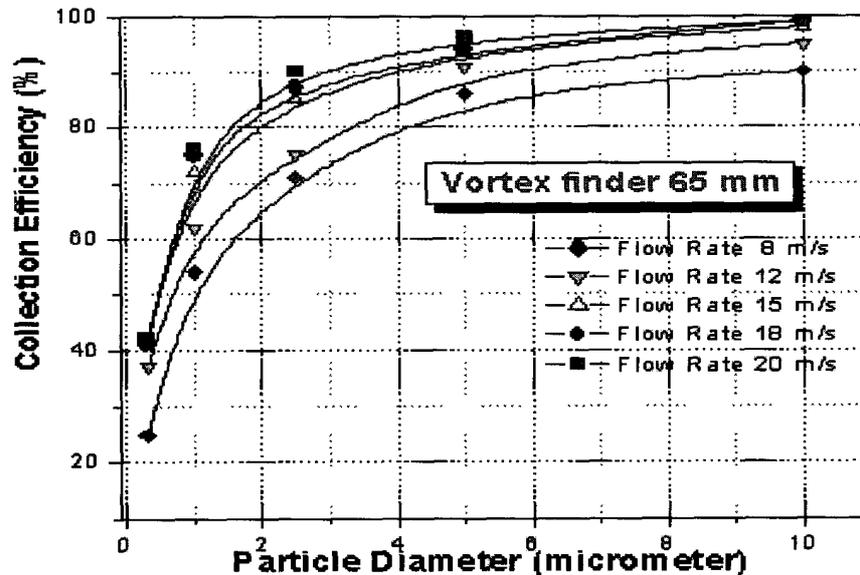


Fig. 3.1.4.34 Collection efficiency as a function of the particle size for vortex finder 65 cm

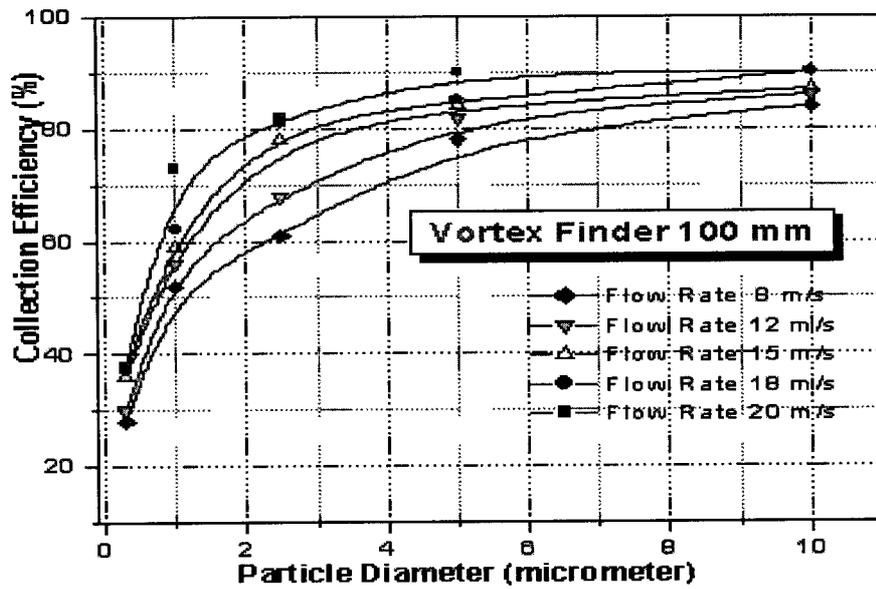


Fig. 3.1.4.35 Collection efficiency as a function of the particle size for vortex finder 100cm

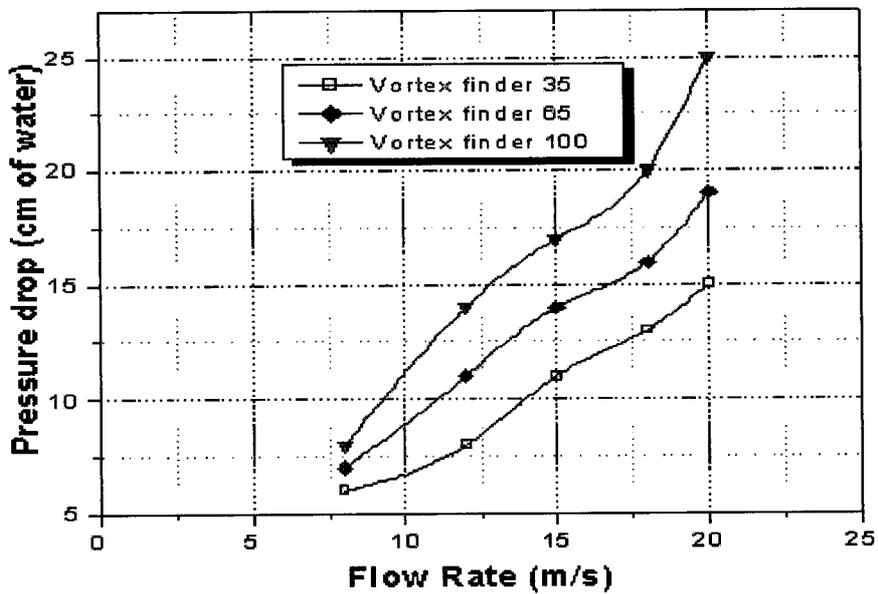


Fig. 3.1.4.36 Pressure drops of the cyclone at different inlet flow rates

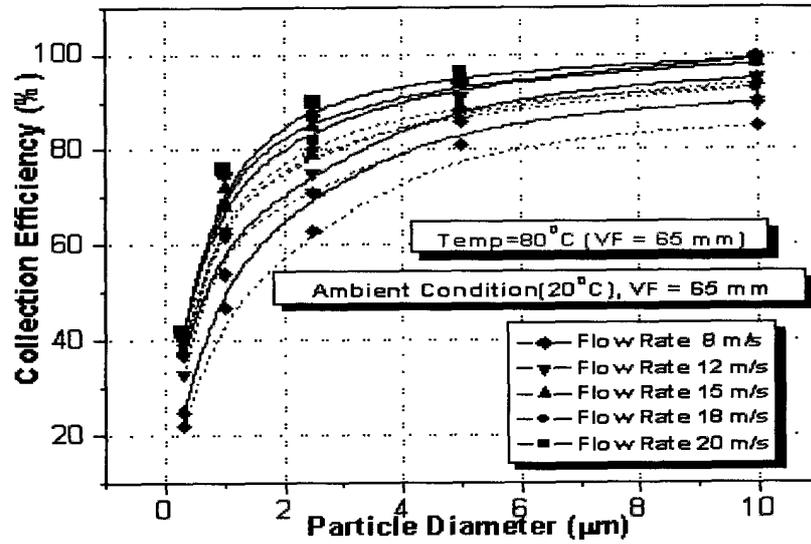


Fig. 3.1.4.37 Effect of the temperature on the cyclone collection efficiency

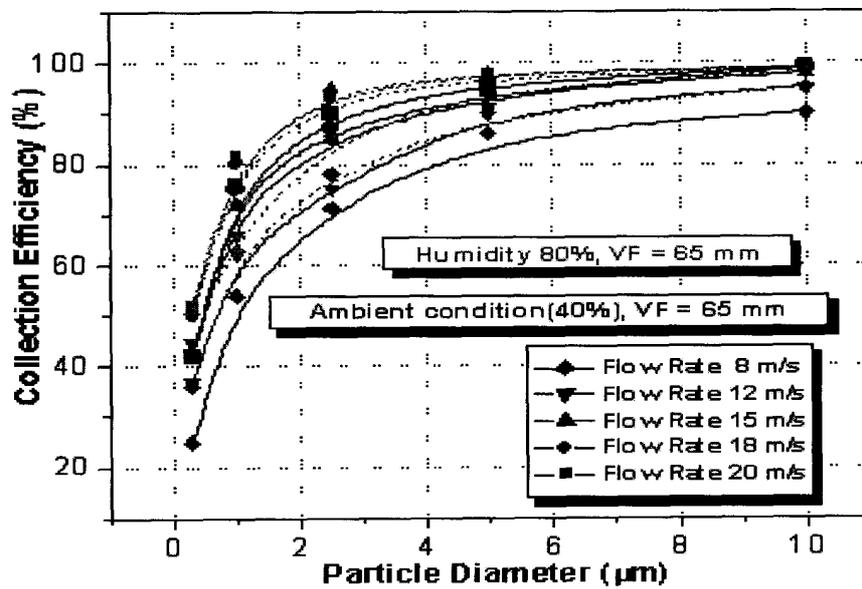


Fig. 3.1.4.38 Collection efficiency as a function of the humidity with different inlet flow rates

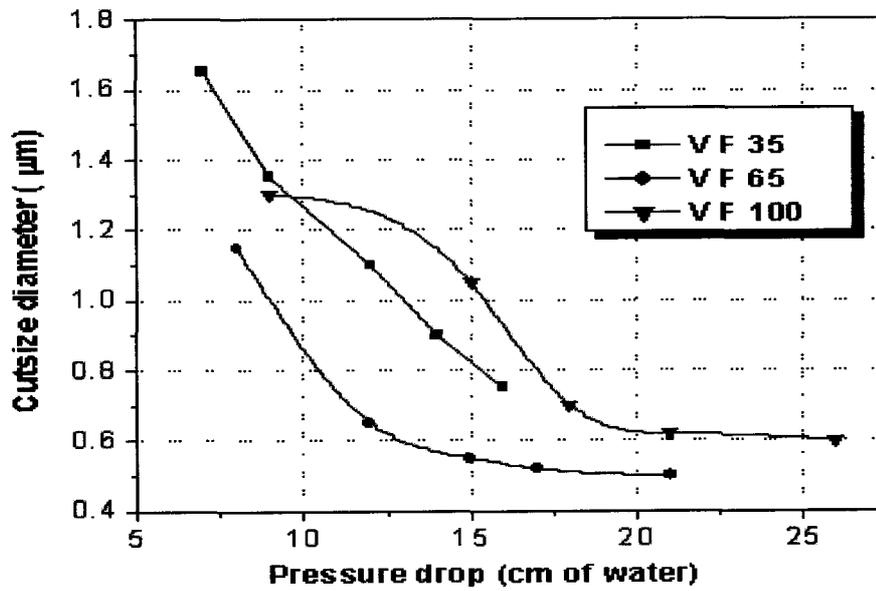


Fig. 3.1.4.39 Cut size diameters versus the pressure drop at different vortex finder length

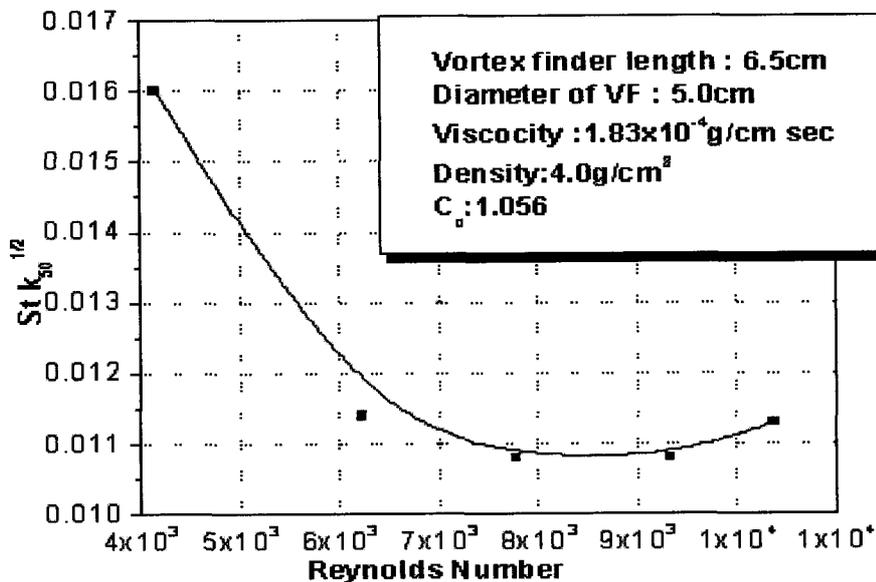


Fig. 3.1.4.40 Correlation between the Stokes number and the Reynolds number

(12) 개선된 실증규모 Hot Particulate 제거장치의 실증실험

개선된 실증규모 고방사능분진 제거장치의 성능에 대한 실증실험을 위해 고방사능 분진 제거장치를 원자력연구원 내의 고화체 검사 시설에 투입하여 Manipulate를 이용하여 수행하였다. 아래 그림과 같이 원격으로 Manipulator를 사용하여 원격으로 고방사능분진 제거장치의 가동 실험을 하였다. 먼저, Manipulator에 의해 Filter box를 열고 내부의 HEPA filter와 Bag filter의 교환 가능 여부를 수행한 결과, Manipulator에 의한 Filter box의 개폐 및 필터 교환이 원활하게 이루어짐을 알 수 있었다. 또한 Manipulator에 의해 사이클론에서 포집한 분진들이 모여 있는 Collection box의 여닫이도 원활함을 알 수 있었다. Collection box에 쌓인 고방사능 분진은 주기적으로 Manipulator를 이용하여 Collection box를 빼내어 고방사능 분진을 방사성폐기물통에 버리므로 실증규모 Hot Particulate 제거장치를 계속 사용할 수 있고, 흡입된 고방사능분진의 80% 이상을 사이클론에서 포집하여 줌으로 HEPA filter와 Bag filter의 교환 기간을 연장시킬 수 있다.

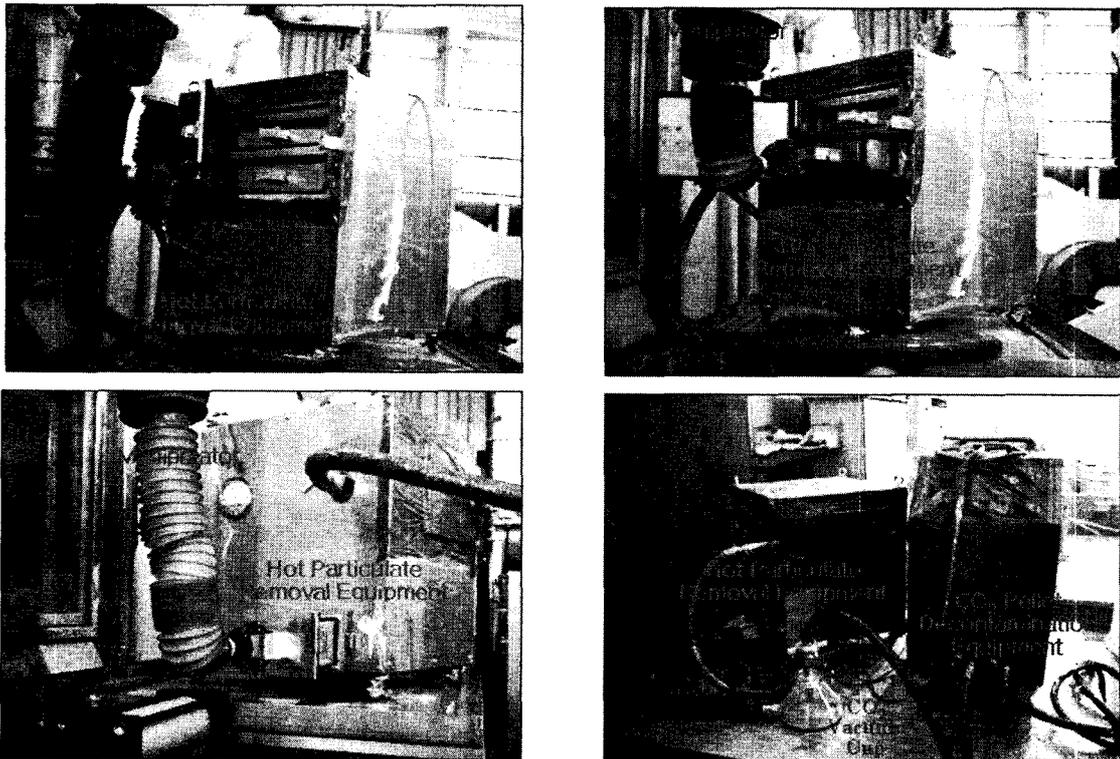


Fig. 3.1.4.41 Demonstration experiment of the improved equipment for removal of hot particulate

다음으로 고방사능분진 제거장치의 사이클론 입구에 부착된 흡입구를 Manipulator로 조작하여 핫셀 바닥 및 벽면의 분진을 원활히 제거할 수 있었다. 또한 CO₂

Pellet 분사제염 시 발생하는 고방사능 분진을 흡입하기 위해 고방사능 분진 제거 장치의 사이클론과 연결된 Vacuum cap이 Manipulator에 의해 원활히 움직이며, Vacuum cup내에 발생된 고방사능 분진들을 원활히 제거하였다.

나. PFC 제염폐액 여과장치 개발

한국원자력연구원 조사재시험시설(Irradiated Material Examination Facility)과 조사후 시험시설(Post-Irradiation Examination Facility)의 핫셀에서는 사용 후 핵연료의 산화환원 및 분쇄공정, 사용후 핵연료의 절단 및 분말화 공정, 균분리 공정, 사용후 핵연료 금속전환 공정 등을 수행하고 있다. 이들 공정 수행 중 핫셀 바닥과 벽면 그리고 핫셀 내부에 있는 여러 장치표면들이 연구실험 과정에서 발생한 고방사능 분진과 고방사능 핵연료의 조사 등에 의해 오염되어 핫셀 내의 방사능 준위가 높아지고 있다. 그러므로 핫셀 내 핵종 실험을 원활히 수행하기 위해서는 주기적으로 핫셀 내부 표면과 장치표면에 오염된 고방사능 분진을 제거하여 핫셀 내의 방사능 준위를 낮추어야 한다. 핫셀 표면에 단단히 고착된 고방사능 분진은 CO₂ Blasting, 초음파 PFC 제염, 플라즈마 제염 등과 같은 건식제염기술을 사용하여 제거효율을 높일 수 있다 [3.1.4.13-3.4.4.15]. 특히, PFC(PerFluoroCarbon) 제염기술은 기존의 프레온제염과 유사한 방법으로 고체표면에서 작은 입자를 더욱 효과적으로 제거할 수 있는 건식제염 공정의 하나이다. PFC 제염공정은 DuPont 이나 3M사에서 개발한 PFC계 세정제 (Vertel 2454, PF-5070)를 주된 세척제로 사용하고, 여기에 PFC계 계면활성제를 소량 첨가하여 공정의 제염성능을 증진시킨다[3.1.4.15-3.1.4.16]. 또한 금속표면의 고착성 오염물을 처리하기 위하여 PFC 공정과 초음파를 복합한 공정개발이 진행되고 있다. PFC 공정은 미국의 ESI(Entropic System, Inc.)에서 주도적으로 개발되고 있으며, 미국 DOE Savannah River Site에서 보관 중인 Pu-238로 오염된 TRU Waste를 제염하기 위한 Sonatol 공정에 적용되었다[3.1.4.17].

원자력연구시설 핫셀 내 방사성 오염 입자의 제염을 위하여 PFC 제염기술을 적용할 때, 제염종료 후 이차폐기물의 발생을 최소화시키며, 고가의 PFC용액 자체를 회수하여 재사용할 목적으로 PFC 여과장치를 개발할 필요가 있다. 폐쇄공정으로 운영되는 PFC 제염공정은 PFC 용액을 연속 순환하여 사용하게 되며, 제염과정에서 제거된 오염입자가 PFC 용액 내에 존재하여 재 오염의 원인이 된다. 그러므로 적합한 여과 막을 사용하여 PFC 용액내의 오염입자를 제거해야 한다. 여과 막에는 여러 중

류가 있으며, 여과 막 오염과 높은 플럭스를 유지하며, 여과 막의 효율을 증가시키기 위하여 최근 새로운 막 재질[3.1.4.18-3.1.4.19] 및 모듈 디자인 개발[3.1.4.20-3.1.4.22]와 아울러 Flow Pattern의 변화[3.1.4.23] 등에 대한 많은 연구가 진행 중에 있다.

본 연구에서는 PFC 매질내 현탁성 방사성입자를 제거하기 위해 Hot Particulate 오염특성을 조사한 후 오염특성에 적합한 여과막 및 여과장치를 개발하고 입자제거 성능 평가시험을 수행하였다. 또한, 개발된 장치를 원자력연구원 핫셀내에서 사용하기 위해 핫셀 출입구와 핫셀 연결문의 크기를 조사했다. 핫셀에 투입된 장치의 작동은 Manipulator에 의해 수행되어야 하므로 Manipulator의 작업범위도 조사했다.

(1) 실험실규모 여과장치 제작 및 여과막 특성 실험

(가) PFC 여과 실험장치 선정 및 공정도 작성

- 원자력연구시설 핫셀 내 방사성 오염 입자의 제염을 위하여 PFC 제염기술을 적용한다. 이때 발생된 PFC 제염용액과 방사성 오염 입자를 분리하여 PFC 제염 용액은 재사용하고자 한다.
- 기초 여과실험을 위한 여과장치를 Stirred Cell Model 8050로 선정하였고 (Fig. 3.1.4.42), 여과 실험장치의 공정도를 도식화하였다(Fig. 3.1.4.43).
 - Stirred cell 안에 장착하는 막의 직경은 44.5mm이고 stirred cell이 견딜 수 있는 최대 압력은 75psi, 이고 최대용량은 50mL이다.
 - 여과 실험 시 교반 함으로써 PFC 매질 내 현탁성 입자들의 분포를 골고루 하여 여과를 수행 한다.
 - 효과적인 여과를 위하여 N2 가스로 가압을 하였고 가압하는 경우 stirred cell의 흔들림을 방지하기 위하여 retaining stand assembly를 부착하였다.
 - PFC 여과 실험 공정도는 PFC와 PFC 계면활성제 그리고 오염입자가 포함된 혼합 탱크로부터 여과막이 장착된 Stirred Cell 안으로 PFC 제염 폐액이 투입 된다.



Fig. 3.1.4.42 Stirred cell for basic experiment

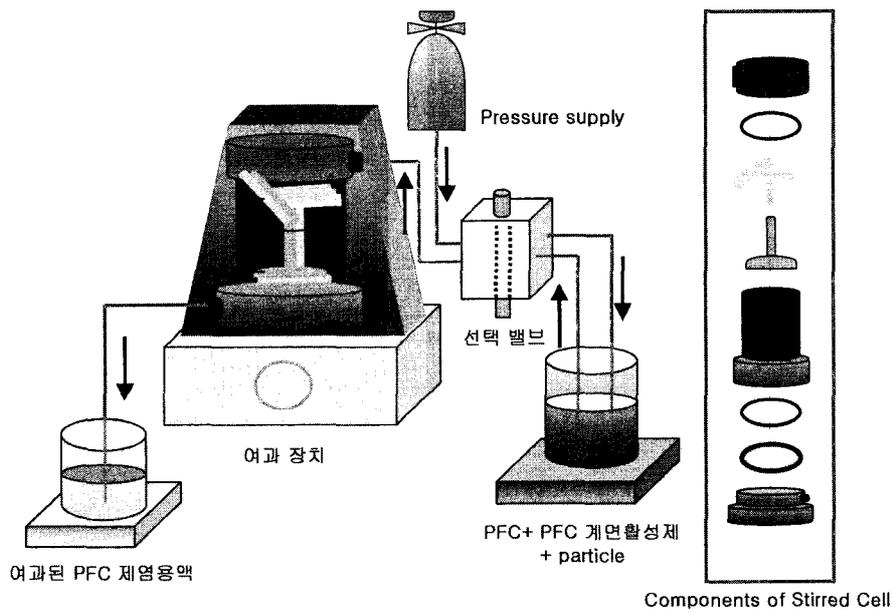


Fig. 3.1.4.43 Process diagram for PFC filter experiment

(나) 모의 입자 선정

- 기초 여과실험에 이용할 모의 입자들의 크기 선정을 위해서 핫셀 내 오염 입자들을 채취하여 그 크기 분포를 SEM으로 분석하였다(앞의 SEM 사진 참조).
- 본 여과공정은 $2\mu\text{m}$ 이상의 입자들은 prefiltration을 거쳐서 미리 여과한 후에

미세한 입자들($0.2\mu\text{m}$ 이상)의 여과를 수행하고 모의입자를 $0.3, 1, 2\sim 3, 10\mu\text{m}$ 크기의 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 와 $5\mu\text{m}$ 의 TiO_2 입자를 선정하였다.

(다) 여과막 특성 실험

- PFC 매체가 소수성이므로 본 여과실험에 사용할 막으로 소수성 막을 선택하였고, sonatol 공정에서 사용한 세라믹 막을 선택하여 각각의 막에 대해 입자의 제거효율과 플럭스의 영향을 파악하였다.

① 입자의 제거효율

본 여과실험에서 입자의 제거효율은 비어있는 Stirred Cell의 무게와 투입한 모의 입자의 정확한 양을 계산하여 여과실험 후 건조기에서 60°C 의 온도로 10시간 이상 건조 후의 Stirred Cell의 무게를 측정하여 산정하였다. 막의 기공크기가 $0.2\mu\text{m}$ 인 PTFE, PP, PVDF, Ceramic(Al_2O_3) 막을 이용하여 7psi로 투과속도를 고정시키고 5분 동안의 여과 실험 후 각각의 막에 대한 입자의 제거효율을 Fig. 3.1.4.44에 나타내었다. 사용된 모든 막에서 95% 이상의 제거효율을 보였고, Ceramic(Al_2O_3) 막은 다른 막들과 비교해서 약간 낮은 제거효율을 보였다. Fig. 3.1.4.44에서 알 수 있듯이 PTFE, PP, PVDF 막에서의 제거효율은 실험 오차 수준에서의 차이가 있을 뿐 97% 이상의 높은 제거효율을 보였다.

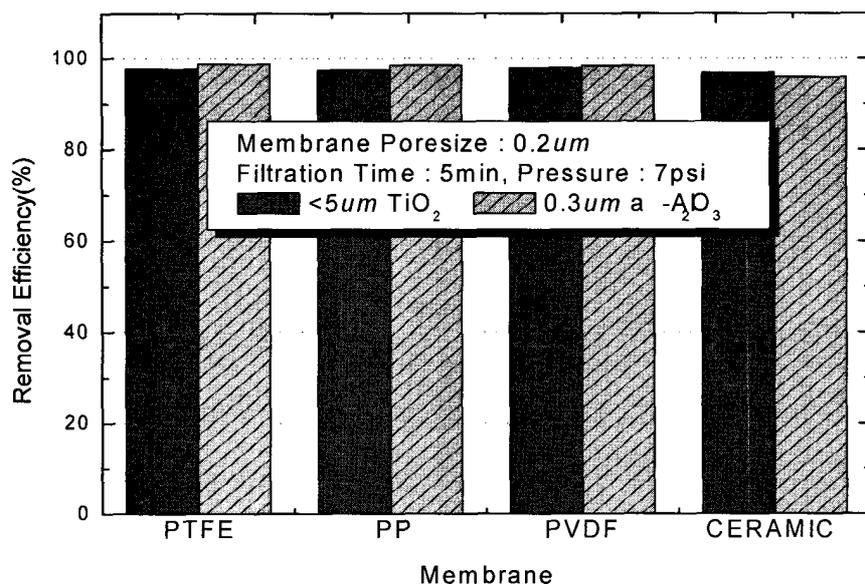


Fig. 3.1.4.44 Removal efficiency of membrane for mimic particle

- PVDF(Poly vinylidene fluoride)막

위에서 수행한 기초 실험을 통하여 압력 및 모의 입자의 크기에 대한 제거효율의 영향을 알아보려고 하였다. 5분 동안의 여과실험으로 공급압력이 증가함에 따라 모의 입자의 제거효율의 증가를 보임을 알 수 있었다(Fig. 3.1.4.44). 3psi의 낮은 압력에서는 94.5%의 비교적 낮은 제거효율을 나타내었고, 공급압력을 7psi 이상으로 가하였을 경우에 최대의 제거효율을 보였다.

공급압력을 5psi로 일정하게 하고 모의 입자의 크기에 따른 제거효율을 산정한 결과 여과실험에 사용된 모든 입자에서 97% 이상의 제거효율을 보였고, 입자의 크기가 작은 0.3 μ m의 α -Al₂O₃ 입자를 사용한 경우의 제거효율에서 근소하나마 약간의 낮은 제거효율을 나타내었다(Fig. 3.1.4.45).

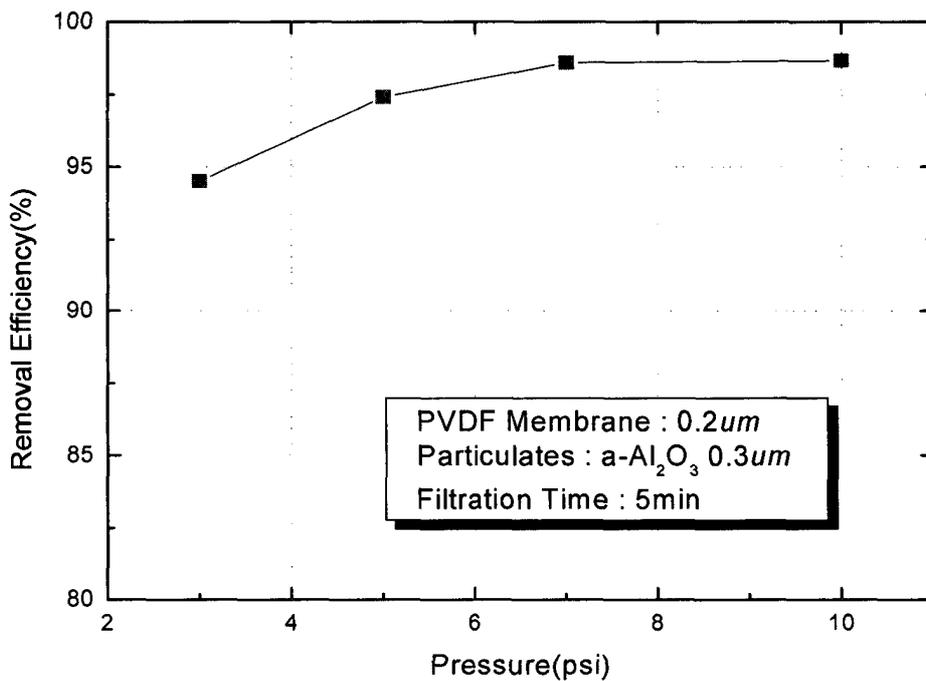


Fig. 3.1.4.45 Removal efficiency of PVDF according to pressure

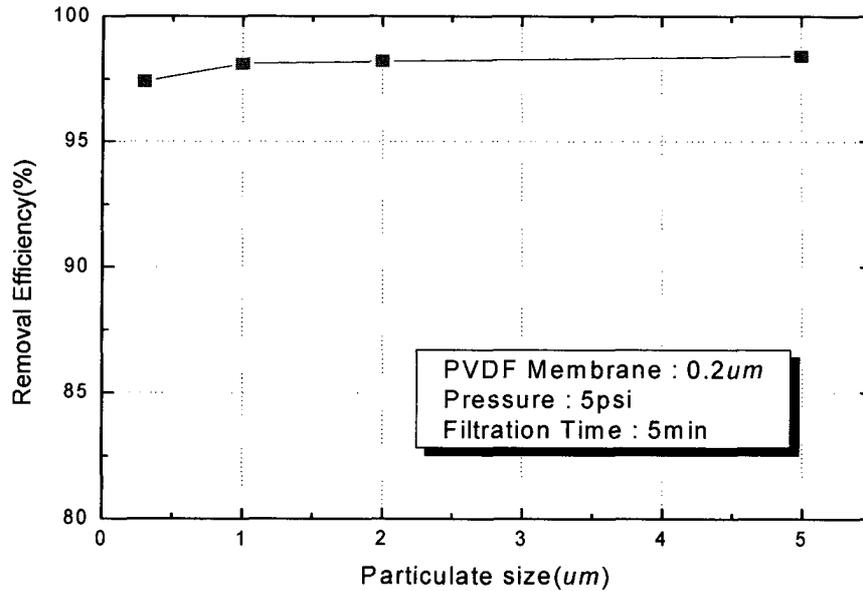


Fig. 3.1.4.46 Removal efficiency of PVDF according to particle size

- PP(Polypropylene) 막

α -Al₂O₃ 입자(0.3 μ m, 2~3 μ m)를 이용하여 기공크기가 각각 0.2 μ m, 2.0 μ m인 PP 막에서의 5분 동안의 여과실험 후 제거효율을 조사하여 Fig. 3.1.4.47에 나타내었다. PP 막의 기공크기와 관계없이 공급압력의 증가에 따라 제거효율이 증가하는 비슷한 경향을 나타내었으며, 모의 입자의 크기가 큰 2~3 μ m에서 약간의 높은 제거효율을 나타냈다. 여과실험에서 압력을 7~8psi로 가하였을 경우 최대(한계) 제거효율을 보였다.

- Ceramic(Al₂O₃) 막

Sonatot 공정에서 PFC 제염공정 후 오염입자의 여과를 위해서 사용한 바 있는 세라믹 막을 이용하여 제거효율을 알아보려고 하였다. Fig. 3.1.4.48은 세라믹 막(0.2 μ m)을 이용하여 PFC 제염 용액 내 α -Al₂O₃ 입자(0.3 μ m)의 존재 시 압력별 제거효율을 산정하기 위해 5분 동안의 여과 실험을 수행하였다. 위에서 수행한 PVDF, PP 막에서의 제거효율과 마찬가지로 세라믹 막에서의 결과 또한 높은 수치를 나타냄을 확인하였다. 하지만 세라믹 막을 이용한 모의 입자 여과실험에 있어서 실험 준비과정이나 본 여과실험을 진행하는 과정에서 막 자체가 쉽게 깨지는 성질을 알 수가 있었

다. 따라서 세라믹 막을 이용한 입자의 여과는 상당한 주의가 필요한 것으로 판단된다. 그러나 본 여과 실험은 최종적으로 핫셀 내 방사능으로 오염된 입자의 여과가 주목적이다. 일반적인 고분자 재질로 만들어진 PVDF와 PP 막은 알파 방사능 분위기에서 H₂ gas를 생성하지만 세라믹 막은 구조적으로 H₂를 포함하고 있지 않기 때문에 H₂ gas를 생성하지 않고 안정적이므로 세라믹 막을 본 여과공정에 적용하기에 유리할 것으로 판단된다. 압력을 5psi로 일정하게 가하면서 5분 동안의 여과실험 후 세라믹 막에서의 모의 입자 크기에 따른 제거효율을 알아보았다(Fig. 3.1.4.48). 여과실험에 사용된 세라믹 막에서는 입자의 제거효율이 입자의 크기에 별다른 영향을 받지 않는 것으로 나타났다.

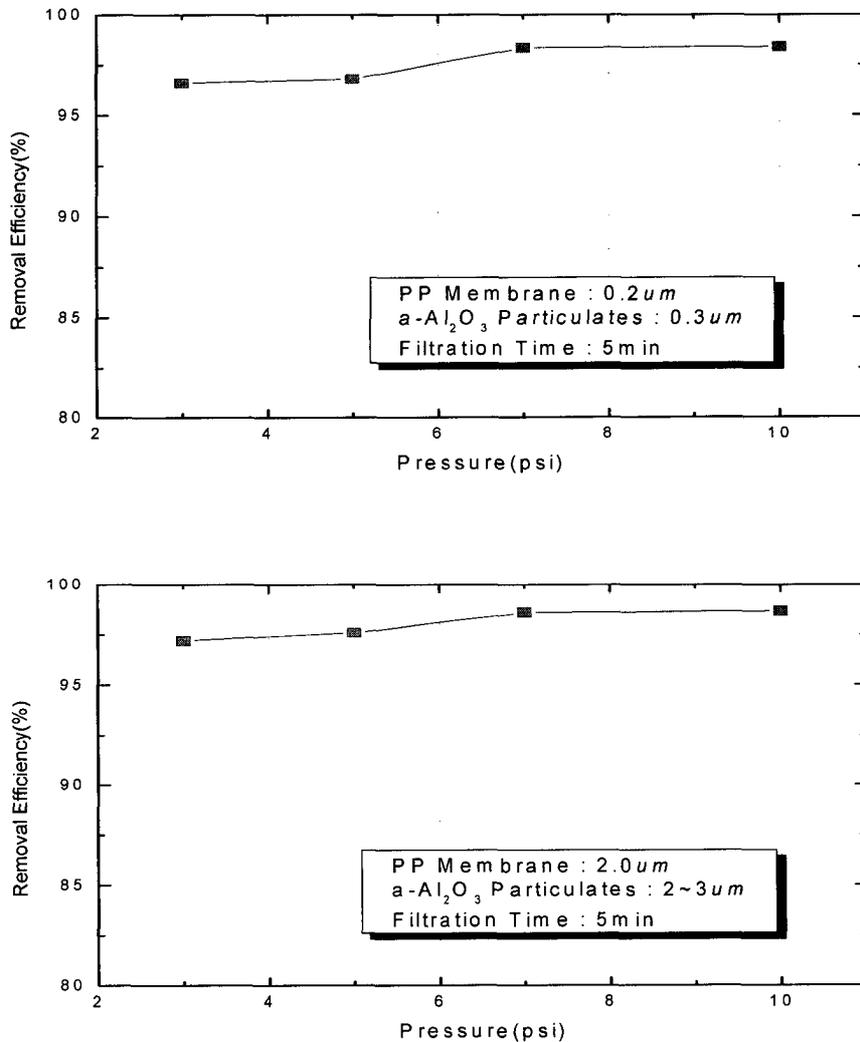


Fig. 3.1.4.47 Removal efficiency of PP according to pressure

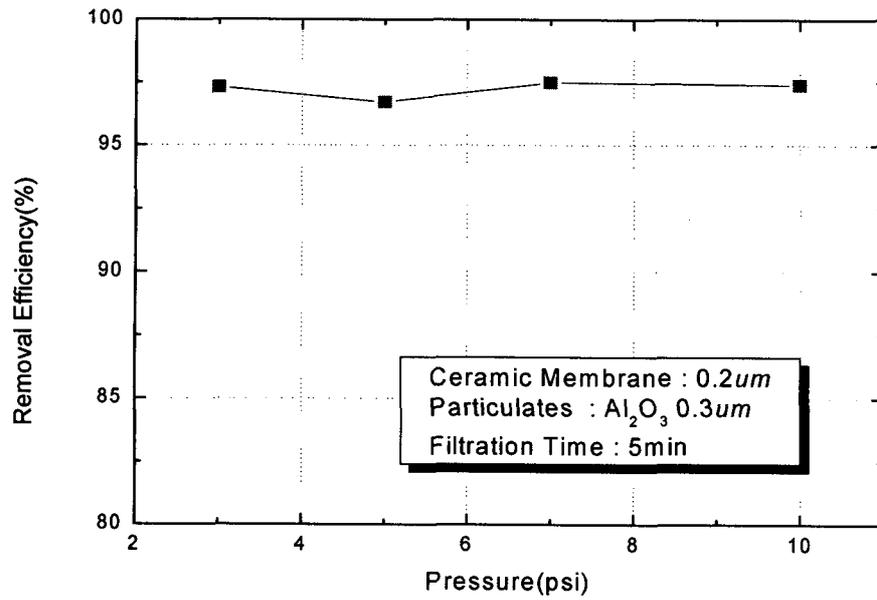


Fig. 3.1.4.48 Removal efficiency of Ceramic membrane according to pressure

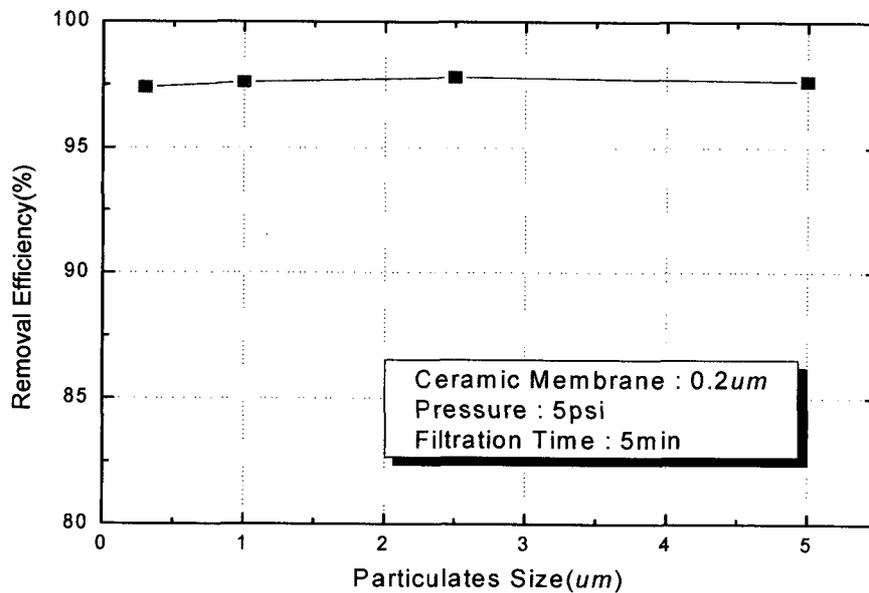


Fig. 3.1.4.49 Removal efficiency of ceramic membrane according to particulate size

② 플럭스

오염 입자의 여과를 위한 여과 막의 선정을 위해 막의 성능 평가를 실시하였다. 앞서 입자의 제거효율을 살펴보고 지금부터 각각의 막에서의 플럭스를 산정하여 제거효율과 견주어 고려함으로써 적절한 여과 막을 선정하고자 하였다.

- PVDF(Poly vinylidene fluoride) 막

PVDF(0.2 μ m) 막에서 여과시간의 경과에 따라 공급 압력별 PFC 제염용액의 플럭스를 조사하였다. PFC 제염용액 내에 α -Al₂O₃ 입자(0.3 μ m)의 존재 시 여과 시간이 증가함에 따라 플럭스가 증가하였고 비교적 낮은 3psi로 압력을 가하였을 경우 최대(한계) 플럭스에 도달하는 시간이 5분 정도 걸렸으며 5psi 이상으로 압력을 가했을 경우에는 3분 정도 지나면서 최대(한계) 플럭스에 도달함을 확인하였다(Fig. 3.1.4.50). 입자의 여과실험 수행에 있어서 100% 플럭스에 도달하지 못한 것은 막의 기공 표면에 미립자가 흡착이 되어 입자의 여과를 방해한 것으로 판단된다.

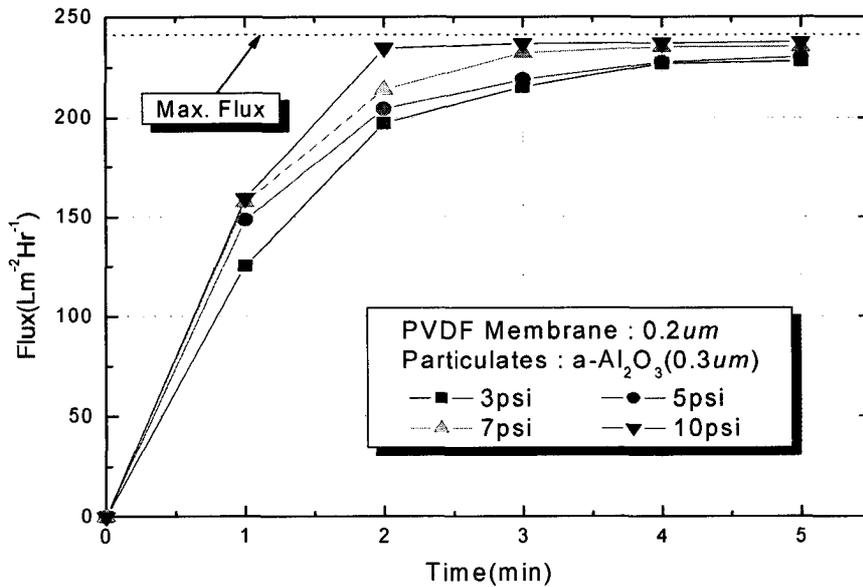


Fig. 3.1.4.50 Flux of DVDF according to time and pressure

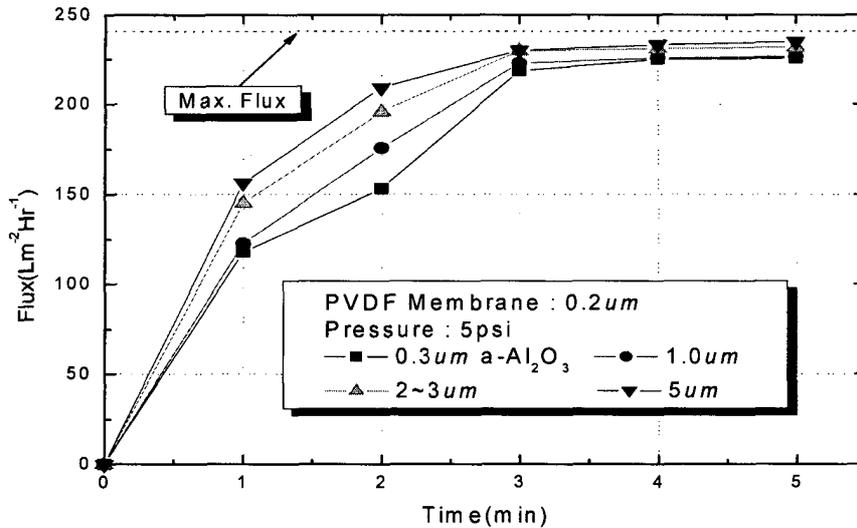


Fig. 3.1.4.51 Flux of PVDF according to time and particulate size

PVDF 막에서 5psi의 일정한 압력 하에 모의 입자의 크기를 변화시켜가며 시간에 따른 플럭스의 변화를 확인하였다(Fig. 3.1.4.51). Fig. 3.1.4.51에서 보는 바와 같이 시간이 증가함에 따라 전반적으로 플럭스도 함께 증가하고 있으며 PFC 제염용액 내에 3 μ m 이하의 비교적 작은 입자가 존재할 경우 5 μ m의 입자 존재 시의 보다 플럭스가 낮게 나타났다.

- PP(Polypropylene) 막

PFC 제염용액 내에 모의 입자로 α -Al₂O₃(poresize 0.3 μ m)의 존재 시 PP 막을 이용하여 여과시간의 경과에 따른 압력별 플럭스를 파악하였다. Fig. 3.1.4.52에서 나타낸바와 같이 제염용액 내 포함되어 있는 입자의 크기가 작을 경우 낮은 압력으로 가압하였을 경우와 비교적 고압으로 여과 실험한 결과를 비교하였다. 그 결과 비교적 고압으로 가압할 때 그렇지 않은 경우에 비해 높은 플럭스에 도달함을 보여준다. 여기서 최초에 투입한 제염용액이 모두 빠져 나오지 못한 이유는 stirred cell 안에 남아 있는 입자들 표면에 제염용액이 묻어 있는 경우와 아주 미세한 입자들이 막의 기공 표면에 부착되는 membrane blockage 가 형성되는 것으로 생각되고 이러한 현상은 또한 입자의 여과 시 제염용액의 여과 성능을 떨어뜨리는 것으로 판단된다.

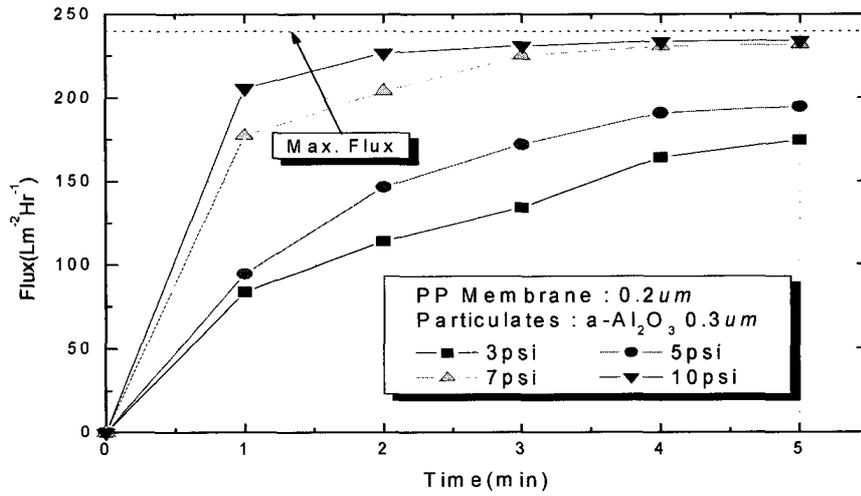


Fig. 3.1.4.52 Flux of PP according to time

Fig. 3.1.4.53에서는 TiO_2 모의입자를 이용하여 PP 막의 여과 성능을 알아보려고 하였다. $5\mu\text{m}$ 의 TiO_2 모의입자를 사용하여 실험 한 결과 투입된 입자의 크기가 크기 때문에 비교적 낮은 압력인 3psi로 가하였을 경우에도 빠른 시간에 높은 플럭스를 나타냈음을 알 수 있었다. 따라서 PP 막을 이용하여 현탁성 용액 내 입자의 여과 시 입자의 크기가 비교적 작을 경우 7psi 이상의 압력을 가해야 하고 입자의 크기가 비교적 클 경우는 비교적 낮은 압력을 가해도 만족할 만한 플럭스를 얻을 수 있음을 확인하였다.

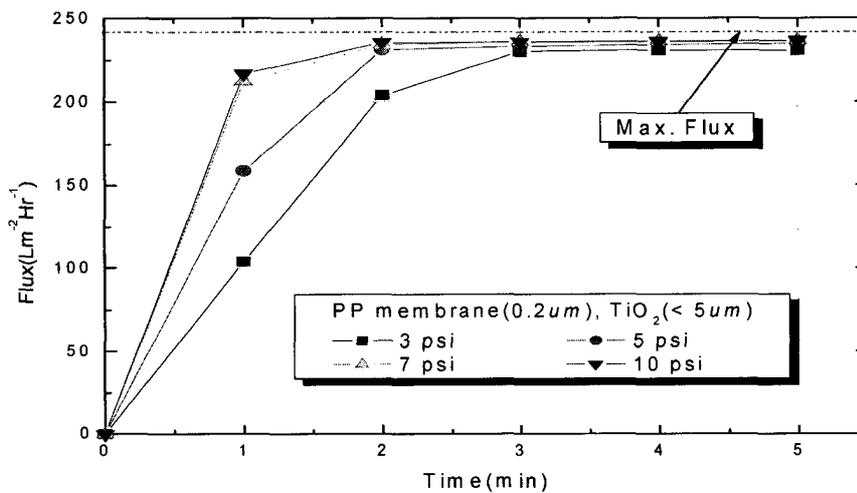


Fig. 3.1.4.53 Flux of PP according to time and pressure

Fig. 3.1.4.54는 Fig. 3.1.4.53과 비교하여 막의 기공 크기가 $2.0\mu\text{m}$ 이고 여과실험에 이용한 모의 입자 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 의 크기 또한 $2\sim 3\mu\text{m}$ 로 좀 더 굵은 입자 경우의 여과성능을 알아보려고 하였다. Fig. 3.1.4.53과 마찬가지로 여과 시간이 경과함에 따라서 압력별 플럭스가 증가함을 확인하였다. 그러나 좀더 큰 입자의 여과 시 비교적 작은 입자의 여과실험과 비교해서 다소 빠른 시간에 최대(한계) 플럭스에 도달함을 보인다. 약 4분의 경과 후 모든 압력에서 더 이상의 여과되는 용액의 양이 증가되지 않음을 확인할 수 있었다.

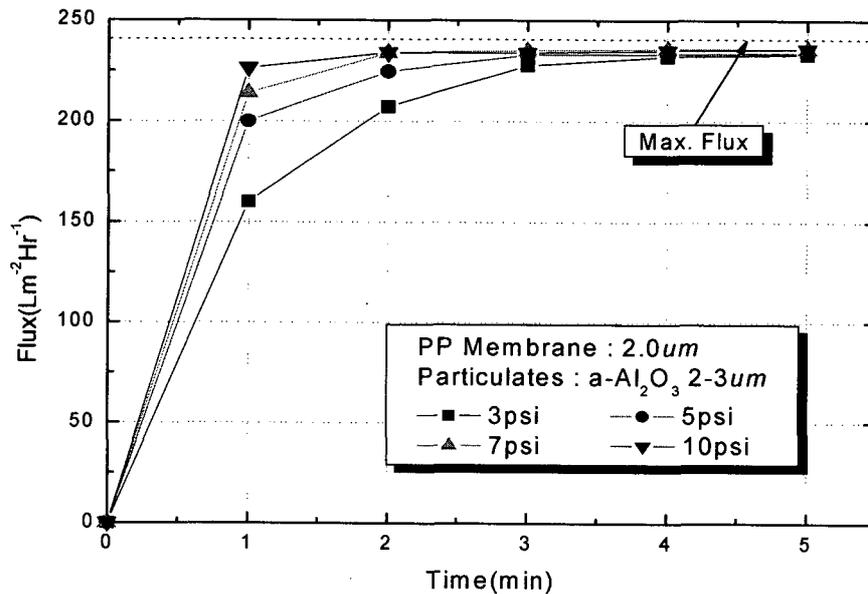


Fig. 3.1.4.54 Flux of PP according to time and pressure

- Ceramic(Al_2O_3) 막

Pu-238 입자의 분리 제거를 위해 Sonatol 공정에서는 무기물로 된 세라믹 막이 알파 방사능 환경에서 안정함을 보이기 때문에 일반적으로 사용되고 있는 유기화합물로 된 고분자 막을 대체하여 세라믹 막을 사용한 경험이 있다. 따라서 본 여과실험은 세라믹 막을 이용하여 플럭스와 입자 크기와의 관계를 파악하여 여과실험의 최적 조건을 찾고자 하였다. Fig. 3.1.4.55에서 알 수 있듯이 세라믹 막을 사용하였을 경우 제거효율은 전반적으로 타 여과 막과 비슷한 성능을 보였지만 근소하게 작은 플럭스를 나타냄을 확인할 수 있었다. $0.3\mu\text{m}$ 정도의 미세한 입자의 여과를 위해 세라믹 막을 사용 시 10psi 이상으로 가압을 해야 90% 이상의 여과 성능을 얻을 수 있음을 확인하였다. 조금 더 큰 $2\sim 3\mu\text{m}$ 입자 크기의 여과실험 결과는 보다 낮은 압력

에서도 보다 빠른 여과 성능을 보임을 확인하였다.

Fig. 3.1.4.56에서는 모의 입자의 크기에 따라서 세라믹 막의 플럭스 영향을 알아보기 위해 5psi로 일정한 압력을 주어 실험한 결과이다. 제염용액 내 입자의 크기가 작을 경우 입자가 큰 경우에 비해 플럭스가 낮게 나타났으며 실험 대상 입자의 크기 차이가 플럭스에 영향을 미친다는 것을 보여주고 있다.

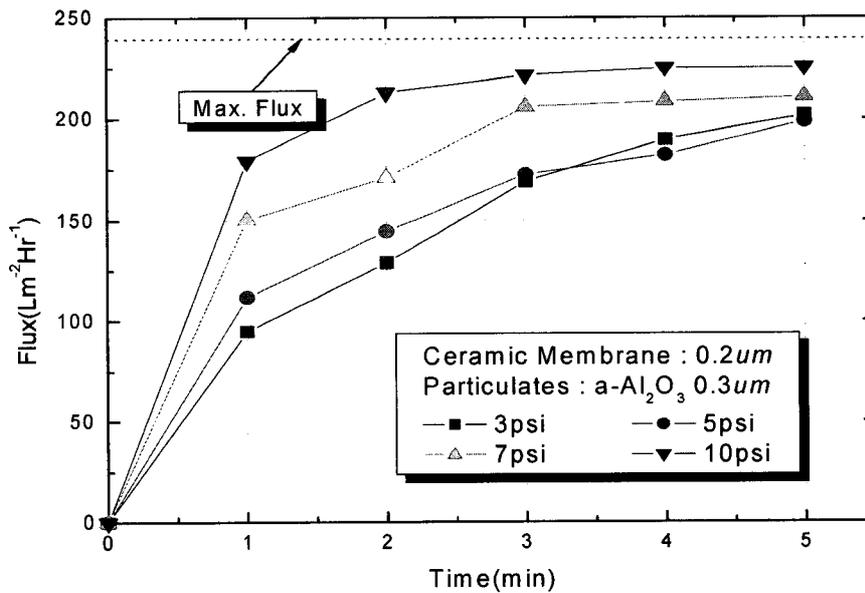
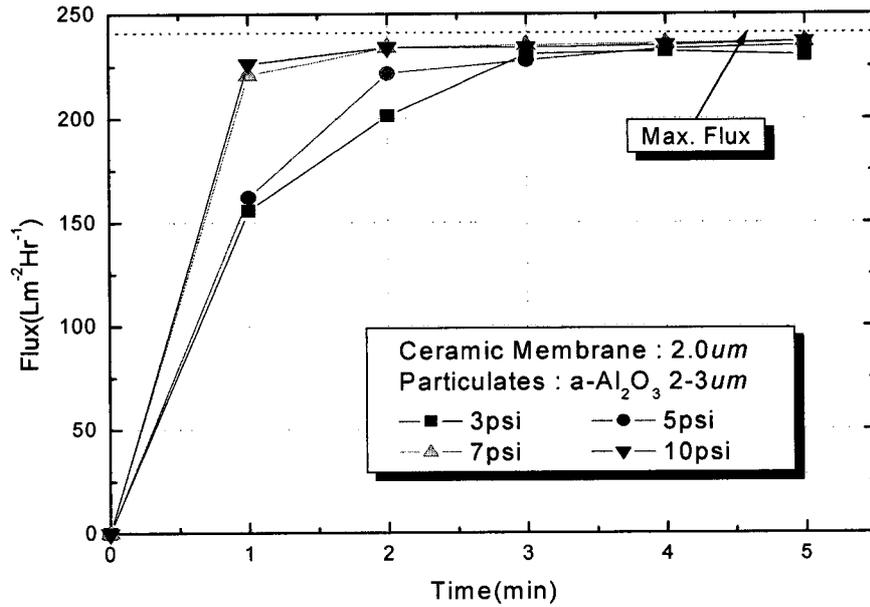


Fig. 3.1.4.55 Flux of ceramic according to time and pressure

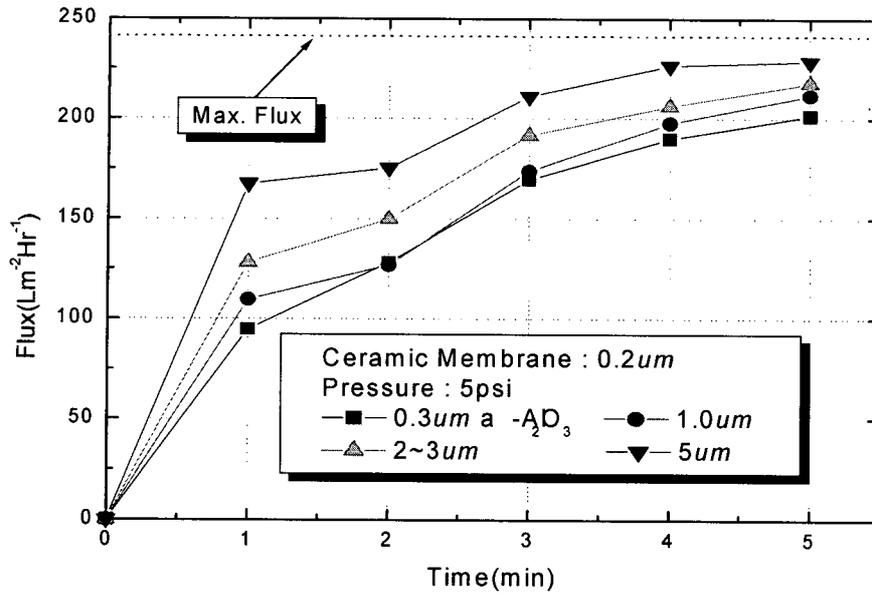


Fig. 3.1.4.56 Flux of ceramic according to time and particulate size

(2) 최적 여과막 선정

앞에서 모의 입자가 함유된 PFC 제염용액의 여과성능을 살펴보기 위하여 여과 막을 이용하여 제거효율 및 플럭스 실험을 수행하였다. 모의 입자에 대한 여과 막의 성능 실험 결과를 정리하여 Table 3.1.4.9에 정리하였다. 우선 모의 입자의 제거효율 측면에서 보면 PVDF, PP, Ceramic 막 모두가 전반적으로 94~97%의 여과 성능을 보여 성공적임을 확인하였다. 서로 같은 막의 기공 크기에서 모의 입자의 크기가 작은 것 보다 클수록 가하는 압력이 높을수록 좀더 효과적인 제거효율을 나타내었다. 이는 모의입자의 크기가 더욱 미세하고 낮은 압력으로 여과를 수행할 때 Membrane blockage가 형성이 되는 것으로 판단되어 필요시 보다 높은 고압으로 입자의 여과 실험이 바람직함을 알 수 있었다. 또한 플럭스의 경우 같은 기공크기와 모의 입자를 기준으로 할 때 5분간 5psi의 공급압력에서 PVDF 막에서 약 97%로 가장 좋은 여과 성능을 나타내었고, 세라믹 막에서는 약 82% 정도의 여과 성능을 나타내었으며, PP 막에서는 약 80% 정도의 여과 성능을 나타내었다. 또한, 실제 여과장치에 장착될 여과막은 0.2 μ m 65mmD x 10"L 크기로 여과막과 하우징을 합한 가격을 분석한 결과 Fig. 3.1.4.57과 같이 PTFE, Ceramic, PVDF, PP 순으로 가격이 저렴한 것으로 조사되었다. 특히 PP는 가격 면에서 매우 경제적인 것으로 나타났다.

결론적으로 말하면, 무기화합물인 세라믹 막은 다소 낮은 Flux 성능을 갖고, 쉽게 파손되며, 가격도 비싸지만 막은 알파 방사능 환경에서 H₂ gas를 발생하는 고분자 막인 PVDF, PP 막과 비교하여 훨씬 더 안정하였다. PP막은 가격이 가장 저렴하고, 다소 낮은 Flux 성능을 갖으며, 깨지지는 않지만 알파 방사능 환경에서 H₂ gas의 발생 가능성이 있었다. PVDF막은 다소 낮은 Flux 성능을 갖고, 가격은 중간이고, 깨지지 않지만, 알파 방사능 환경에서 H₂ gas의 발생 가능성이 있다.

Table 3.1.4.9 Merits and demerits of membranes

파라미터	Membrane		
	Ceramic (Al ₂ O ₃)	PP (Polypropylene)	PVDF (Poly vinylidene fluoride)
온도(100℃)	상	상	상
제거 효율	95% 이상	95% 이상	95% 이상
플럭스	중	중	상
가격	하	상	중
깨짐	하	상	상
방사능	상	하	중

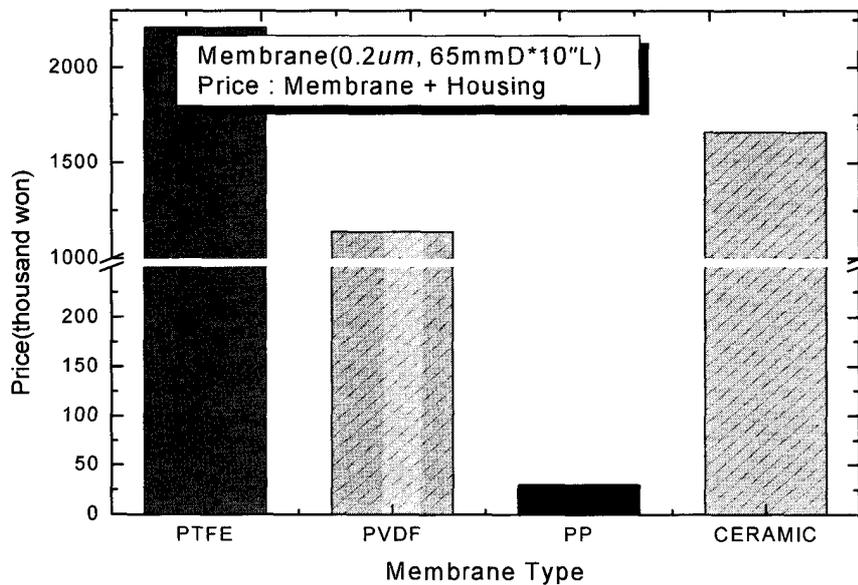


Fig. 3.1.4.57 Comparison of membrane price

(3) 실증규모 PFC장치 여과공정도 도출

앞서 수행한 기초 여과실험은 핫셀 내 입자 크기 분포와 비슷한 모의 입자를 선정하였고 현탁성 PFC 제염용액에 대한 PVDF, PP, Ceramic 막을 사용하여 모의 입자의 여과성능을 살펴보았다. 이를 기초로 하여 PFC 제염용액의 회수를 위해서 PFC 제염공정에 연결될 제염 용액 내 오염 입자의 여과제거 장치를 Fig. 3.1.4.58과 같이 설계하고자 하였다. 그림에서 나타낸 바와 같이 실증을 위한 공정도는 기초 실험을 위해 stirred cell을 이용한 공정도와 비슷하지만 본 실증 공정은 두 단계의 여과공정을 첨가할 예정이며 첫 번째 단계에서는 prefiltration 단계로 입자의 크기가 5.0 μm 이상인 비교적 큰 입자를 미리 제거하였다. 두 번째 단계는 final filtration 단계로 0.2 μm 이상의 오염 입자를 여과하여 아주 미세한 입자들을 제외하고 모두 여과 제거할 예정이다. 두 단계의 공정에 있어 여과 막은 오염되기 쉬우므로 교체가 용이하게 탈·부착이 가능하도록 제작할 예정이다. 여과되지 못하고 제염용액과 함께 흘러나오는 아주 작은 입자들은 PFC 용액의 boiling point가 낮다는 점을 이용하여 증류 장치를 통과시켜 제거할 계획이다.

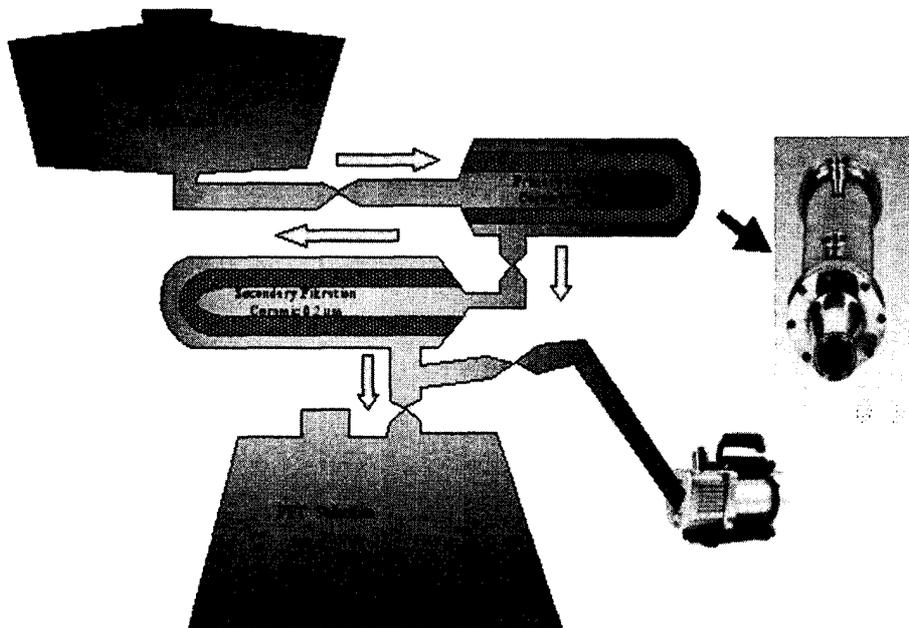


Fig. 3.1.4.58 Process diagram of PFC filtration equipment

(4) 실험방법

(가) Hot Particulate 크기 측정 및 핫셀구조 조사

기초 여과실험 수행에 이용할 모의 입자들의 크기 선정을 위해서 핫셀 내의 오염 입자들을 채취하여 그 크기를 분석하였다. 즉, 한국원자력연구원 연구시설에 보관된 사용후 핵연료 소결립의 크기를 광학현미경으로 측정하였고, DUPIC 산화환원공정과 사용후 핵연료 절단 및 파괴 공정 후의 Hot Particulate의 크기를 SEM으로 측정하였다.

개발된 장치를 원자력연구원 핫셀 내에서 사용하기 위해 핫셀 출입구와 핫셀 연결문의 크기를 조사했다. 핫셀에 투입된 장치의 작동은 Manipulator에 의해 수행되어야 하므로 Manipulator의 작업범위도 조사했다.

(5) PFC 제염폐액 여과장치개발

(가) 여과막 성능 실험 및 안정성 평가

여과 장치에 사용될 여과막의 선정을 위해서 여러 가지(세라믹(Al_2O_3), PP(Polypropylene), PVDF(Poly vinylidene fluoride)) 여과막의 flux 및 제거 효율을 측정하였고 α -방사능 조건에서 안정성 실험을 하였다. 기초 여과 실험을 위한 여과장치로 Stirred Cell Model 8050을 사용하였고 여과 실험장치의 공정도를 작성하였다. 교반셀(Stirred Cell) 안에 장착하는 막의 직경은 44.5mm이고 교반셀이 견딜 수 있는 최대 압력은 75psi이었다. 여과 실험 시 PFC 계면활성제를 사용하고 교반함으로써 PFC 매질 내 현탁성 입자들의 분포를 균일하게 하였다. 효과적인 여과를 위하여 N_2 가스로 가압을 하였다. 핫셀 내의 높은 α -방사능 조건에서 필터의 안정성을 실험하기 위해 위의 3가지 필터를 PIEF 핫셀 안에 10개월간 넣어 방사능 피폭 후 꺼내어 SEM 촬영을 통해 전후의 여과막 변화를 관찰하였다.

(나) 실증여과장치 크기 및 구조 결정

최종적인 여과장치는 핫셀 구조 및 Manipulator의 수행에 적합하고, 여과막 선정 실험으로 결정된 효율이 좋은 여과막중 방사선 조건에 안정한 ceramic filter를 사용하여 제작하였다. 또한 핫셀 내부로 들어가기 위해서 그 크기가 제한된다. 즉 IMEF M4셀에서의 실증실험을 위해 제작된 여과장치는 M1셀의 뒷문(1m x 1m)을 통과한 후 크레인을 이용하여 셀과 셀의 연결문(1m x 0.8m)을 통과해야 하므로 장치의 크기가 1m x 0.8m 보다 작아야 한다(Table 3.1.4.10).

PFC 제염시 발생하는 폐액용량이 분당 0.2 L이므로 제염과 동시에 PFC를 회수하기 위해서는 여과 장치내의 순환용액 부피가 0.2L가 넘어야 한다. 저장용기는 10L로 하여 약 50분간의 제염폐액을 모을 수 있도록 설계하였다. 여과장치의 펌프용량은 제염폐액 발생부피를 충분히 순환시킬 수 있는 0.2 kw의 1.7-2.4L/min 펌프를 사용하였다.

Table 3.1.4.10 Restriction of condition of equipment design

Design element	Restriction condition	Design element	Restriction condition
- 여과막 Housing	Manipulator로 교체용이	- 장치크기	0.85x0.75x0.55m(1x0.8m이하)
- 장치이동	바퀴와 고리 부착	- 여과시스템	Pre-filter와 Final filter
-PFC제염폐액저장통	발생폐액저장(10L)	- 분진제거효율	97% 이상
- Flux	발생폐액 처리 가능량	- 필터크기	원통형 (∅0.7x25cm)

(다) 여과필터 용량 및 갯수 결정

여과 막은 여과 막 선정 실험에서 선정된 ceramic filter를 사용하였으며, 입자를 모으는 것이 아니라 폐액이 장치내부를 순환하면서 여과된 PFC 만을 분리해낼 수 있는 원통형 membrane filter를 사용하였다. filter는 기초 실험에서 오염입자들의 크기가 0.2~10 μ m이므로 공극이 작은 filter 하나를 사용하여도 되지만 하나의 filter만을 사용하게 되면 filter의 수명도 짧아지고 filter에 무리를 주며, flux 또한 감소될 것으로 예상된다. 그러므로 pre-filter로 공극크기 1.4 μ m의 원통형 filter를 finer filter로 0.2 μ m의 원통형 filter를 사용하도록 설계하였다. 한 개의 filter를 쓰는 것과 두 개의 filter를 쓰는 것의 차이점을 알아보려고, 이 장치는 각 filter 하나만을 통과하는 경우와 두개 filter를 통과하는 경우를 합쳐 모두 세 가지 경로에 대한 여과실험을 할 수 있도록 설계 및 제작하였다.

(6) PFC 제염폐액 여과장치 성능평가

PFC 제염폐액 여과장치의 성능을 평가하기 위하여 flux와 오염입자 제거효율을 각각의 다른 압력과 경로에 대하여 실험하였다. flux는 각각 세 가지 경로 즉, 1.4 μ m filter만을 통과하는 경우, 0.2 μ m filter만 통과하는 경우 그리고 두 filter를 모두 통과

하는 경로에 대하여 압력에 따른 변화 시간에 따라 실험하였다. 먼저 순수한 PFC의 flux를 각각의 경로에 대하여 측정하여 최대 flux를 알아보았고 폐액의 입자 농도를 두 단계(0.3g/L, 0.6g/L)로 나누어 각각에 대한 flux를 측정하였다. flux는 단위 시간당, filter의 면적분에 투과된 PFC의 부피로 계산하였다.

모의 입자들은 친수성으로 PFC용매에 용해되지 않기 때문에, PFC 계면활성제를 PFC 용액에 첨가하여 입자들을 PFC 용액 내에 잘 분산시킨 후 탁도를 측정하여 그 농도를 산정하였다. 탁도는 농도가 낮을 때 탁도와 농도는 선형으로 비례하지만 농도가 증가하면 더 이상 선형이 아니다. 그러나 여과된 오염폐액의 농도는 현저히 낮을 것으로 기대하기 때문에 농도와 탁도가 선형으로 비례하는 구간에서 측정 가능할 것으로 기대된다. 따라서 낮은 농도에서의 탁도를 측정하여 농도와 탁도의 관계를 도시한 표준 곡선을 작성하였다. 표준 곡선은 일정 농도의 모의 폐액을 희석하는 방법으로 각각에 대한 탁도를 측정하여 직선의 상관관계 그래프를 얻었다.

제거 효율은 여과된 PFC의 농도를 여과 전의 모의 폐액의 농도와 비교하여 제거된 모의오염입자의 농도를 백분율 값으로 나타내었다. 제거 효율 또한 일정 농도의 오염폐액에 대하여 각각의 경로에 따라 측정하였으며, 농도를 증가시켰을 때의 효과를 알아보기 위해 농도를 두배로 증가시켜 실험하였다. 또한 100kPa, 300kPa, 500kPa로 압력을 변화시켰을 때의 제거효율을 측정하였다.

(7) 실험결과에 대한 고찰

(가) 실증여과장치 설계의 제한조건

사용후 핵연료 피복관 주변 CRUD Particulate의 크기를 SEM으로 측정한 결과 핫셀 내부의 오염입자들의 크기 분포는 0.2~10 μ m임을 알 수 있었다. 한편, 각 연구시설 Hot Cell에서 발생하는 Hot Particulate 성분을 EDS로 분석결과 UO₂, U₃O₈, Cs-137, Cs-134, Ru-106, Ce-144, Eu-154의 방사성핵종으로 구성되어 있었다. 또한, PFC 오염폐액에 대한 여과공정은 1.4 μ m 이상의 입자들은 pre-filter를 통해 먼저 제거한 후 다음 final-filter에서 0.2 μ m 이상의 작은 미세한 입자들을 제거하는 공정으로 필터 모양은 실린더형이고, 가압을 위해 펌프를 후미에 부착시킨다(Fig. 3.1.4.58). 여과실험에 사용할 모의입자는 조사된 Hot Particulate 크기와 filter 공극크기에 근거하여 0.3 μ m, 2~3 μ m 크기의 α -Al₂O₃ 입자로 선정하여 여과실험을 수행하였다.

조사재시험시설(IMEF)의 M4셀은 많은 핵연료시험장비가 보관되어 있어 방사능이 가장 높은 곳으로 고방사능분진을 제거해야할 지역 중의 하나이다. 고방사능 분진제

거장치를 개발한 후 이 장치를 M4셀에 투입시키기 위해서는 앞에서 기술했듯이 셀과 셀의 연결문을 통과해야 하므로 장치의 크기가 1m x 0.8m 보다 작아야 한다. 또한 개발된 장치를 이용하여 핫셀 내의 제염작업을 수행할 때 Manipulator만을 이용해야 한다. Manipulator의 드는 힘은 20kg이고, 잡아당길 수 있는 힘은 8 kg이며, robot 손은 두 손가락으로 구성되어 있기 때문에 장치의 세부부품의 설계는 이 작업조건에 적합해야 한다.

(나) 여과막 성능 실험 및 안정성 평가

여과막의 성능을 살펴보기 위하여 여과 막을 이용하여 제거효율 및 플럭스 실험을 수행하였다. 또한 온도 실험결과 PVDF, PP, 세라믹 막 모두 100℃에서 안정하였다. 모의 입자에 대한 여과막의 성능 실험 결과와 고온에서의 적응성, 여과막의 가격, 여과막 자체의 부서지는 정도, 그리고 방사능에 대한 막 재질의 안정성에 관한 특성을 비교하여 Table 3.1.4.11에 나타내었다. 여과막 실험결과 모의 입자 제거효율 측면에서 PVDF, PP, 세라믹 막 모두가 전반적으로 95-99%의 여과 성능을 보였다. Flux 성능은 PVDF 막이 가장 우수했고, 세라믹과 PP막은 다소 낮은 성능을 보였다. 각 여과막의 성능 실험 결과는 이전의 보고[3.1.4.24]에서 보다 자세히 서술하였다.

한편, Fig. 3.1.4.59는 여과막들을 원자력연구소 핫셀내부에 투입하여 알파방사능에 10개월 동안 노출시킨 후 핫셀에서 꺼내어 SEM으로 관찰한 것을 원형의 여과막과 비교한 것이다. 이것들을 살펴보면 세라믹 막의 공극구조는 거의 원형 그대로 보존되었지만 PP와 PVDF막의 공극은 알파방사능에 의해 파괴되어 공극이 커진 것으로 나타났다. 이것은 PP막과 PVDF막은 폴리머 물질이기 때문에 알파방사능 환경에서 H₂ 가스가 발생되어 여과막 파괴되었기 때문으로 사료된다[3.1.4.17]. 따라서 기초 여과막의 성능 비교실험을 통하여 방사능 환경에 적응성이 뛰어난 세라믹 막을 적용한 PFC제염폐액에 대한 실증여과장치를 개발하였다.

Table 3.1.4.11. Comparative characteristic of tested membrane

Parameter	Membrane		
	Ceramic (Al ₂ O ₃)	PP (Polypropylene)	PVDF (Poly vinylidene fluoride)
Temp.(100℃)	high	high	high
Removal Efficiency(%)	over 95%	over 95%	over 95%
Flux	middle	middle	high
Radioactivity	high	low	low
Fragility	high	low	low
Price	high	low	middle

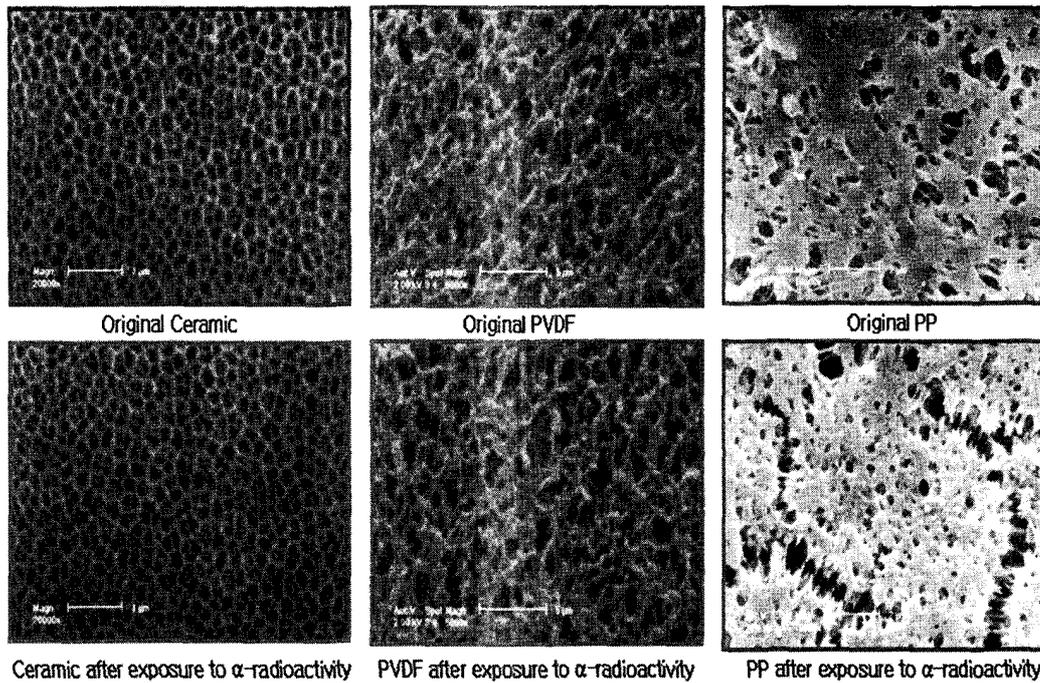


Fig. 3.1.4.59 Changes of filter pore structure after exposure in α -radioactivity environment

(다) 실증규모 PFC 제염폐액 여과장치 개발 및 성능 평가

① PFC 제염폐액 여과장치개발

본 연구에서 개발한 여과장치는 중량 60kg, 가로 85cm, 세로 55cm, 높이 75cm이며 핫셀 내부로 들어갈 수 있는 크기로 제작하였다. 또한 1.4 μ m와 0.2 μ m의 두 가지 세라믹 원통형 filter를 장착하였으며, 밸브제어를 통해 3가지 경로를 가질 수 있다. PFC 폐액 저장 용기의 용량은 10L이며 최대 압력은 2 MPa 이다.

Fig. 3.1.4.60은 개발된 여과장치를 보여준다. 세라믹 filter의 직경은 0.7cm, 길이 25cm, 표면적은 55cm²이고, Manipulator로 탈·부착이 용이하도록 제작되었으며, 각각의 밸브를 제어하여 filter를 선택적으로 사용할 수 있게 설계되어 세 가지 경로로 여과할 수 있는 기능을 가진다. 이는 기존의 장치에서 하나의 filter만을 사용하는 것과 비교하여 두개의 filter를 사용하여 얻을 수 있는 효과를 알아보기 위함이다. 첫 번째 filter는 1.4 μ m 세라믹 filter로 비교적 큰 입자들을 제거할 수 있고, 두 번째 filter는 0.2 μ m 세라믹 filter로 미세 입자를 제거하게 된다. 두 번째 0.2 μ m 세라믹 filter 만을 사용하는 것은 filter에 많은 무리를 주어 flux 효율을 떨어뜨릴 것으로 생각되어 두 개의 filter를 장착하도록 설계하였다. 이를 입증하기 위해 각각의 경로별로 flux를 측정하였고 모의 폐액을 준비하여 제거효율을 측정하였다.

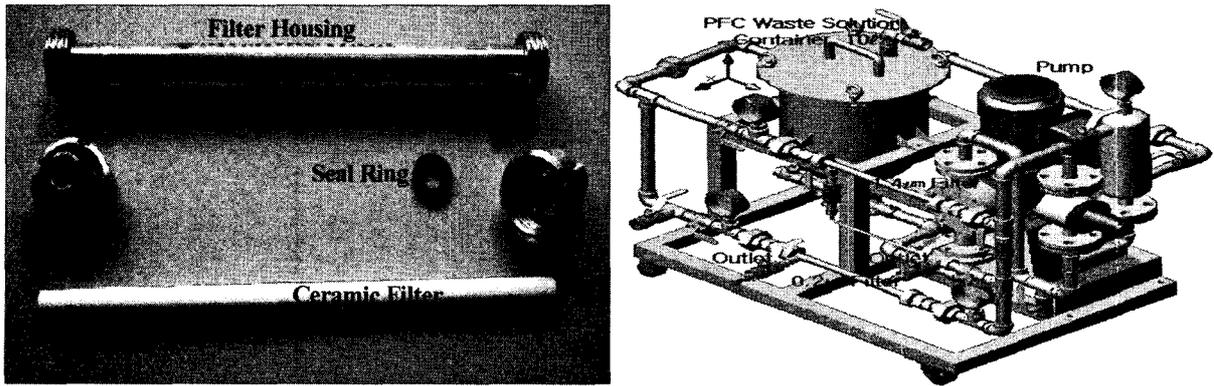


Fig. 3.1.4.60 Filtration equipment manufactured to purify PFC decontamination waste solution

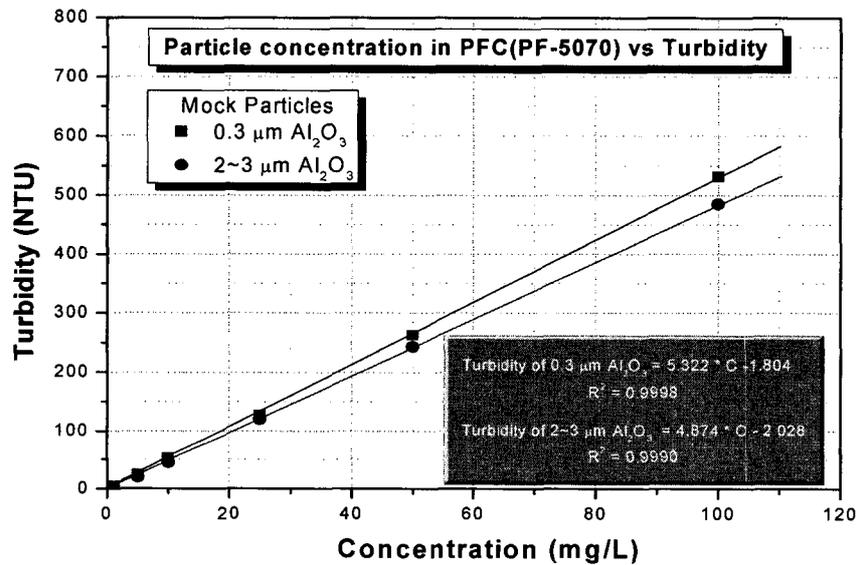


Fig. 3.1.4.61 Particle concentration in PFC(PF-5070) vs Turbidity

② PFC 제염폐액 여과장치 성능 평가

개발된 여과장치의 성능을 평가하기 위하여 PFC의 최대 flux, 각각의 농도에서 나타나는 Flux 변화, 압력에 따른 Flux 변화, 농도와 압력에 따른 입자 제거효율을 측정하였다. Flux는 단위 시간당 여과되는 PFC의 부피를 filter의 표면적으로 나누어 계산하였다. 또한 제거효율을 구하기 위해 농도에 따른 탁도를 측정하여 표준곡선을 그리고 여과된 PFC의 탁도를 측정하여 표준곡선을 이용해 농도로 환산하였다. 제거

효율은 초기농도에 비례하여 제거된 백분율로 나타내었다. 각 입자의 크기에 따른 탁도와 농도의 관계를 Fig. 3.1.4.61에 나타내었다. 탁도 측정에는 HF scientific, inc사의 DRT-15CE Turbidimeter를 사용하였다.

본 여과 장치는 1.4 μm 와 0.2 μm 의 두 가지 세라믹 filter를 장착하여 밸브조절로 세 가지 경로를 가지게 되는데, 1.4 μm filter 통과경로, 0.2 μm filter 통과경로 그리고 1.4 μm 와 0.2 μm filter 모두를 통과하는 경로이다. 두 filter를 모두 통과하게 될 경우 1.4 μm 세라믹 filter를 먼저 통과 하게 되는데, 이것은 큰 입자를 먼저 제거하고 나머지 작은 입자를 0.2 μm 에서 제거하기 위함이다. 먼저 순수한 PFC의 Flux를 각각의 경로에 대하여 측정하고 Fig. 3.1.4.62에 그 결과를 나타내었다.

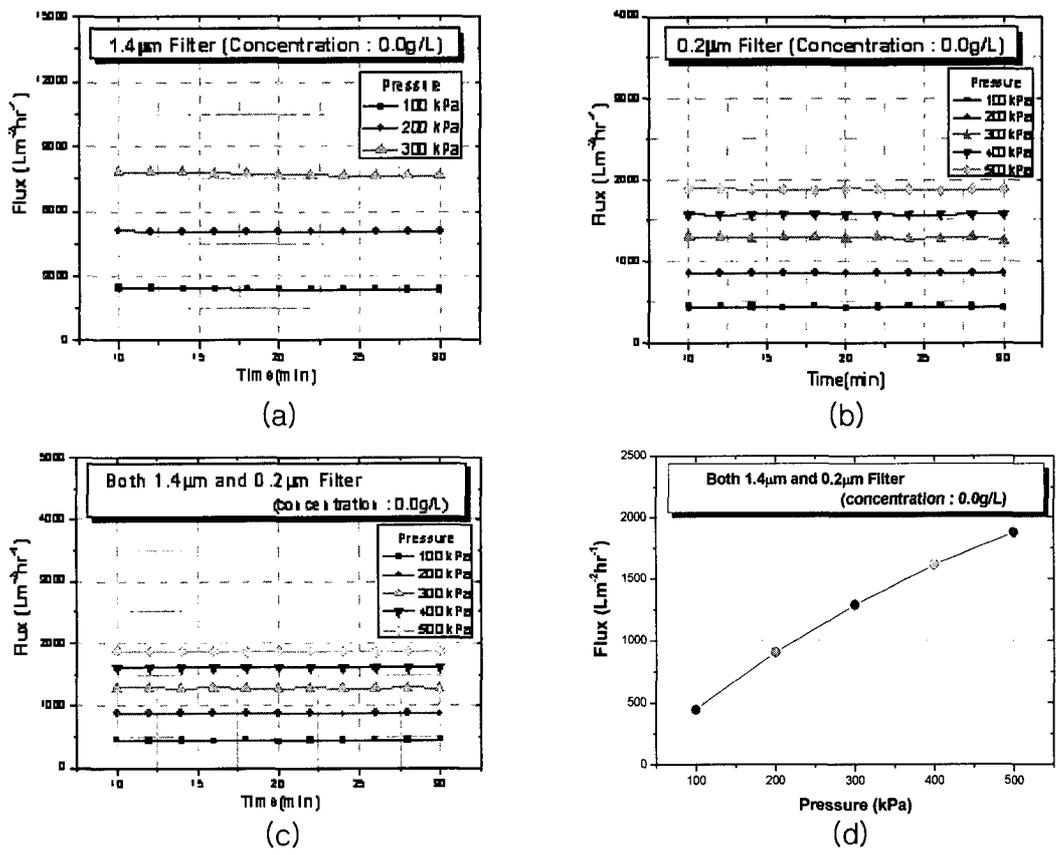


Fig. 3.1.4.62 Flux of PFC solvent by (a) 1.4 μm , (b) 0.2 μm , (c) and (d) 1.4 μm and 0.2 μm filter

순수한 PFC의 Flux는 1.4 μm filter만을 통과하는 경우 300kPa에서 약 7600 $\text{Lm}^2\text{hr}^{-1}$ 이지만 0.2 μm filter만을 통과할 경우 1300 $\text{Lm}^2\text{hr}^{-1}$ 으로 공극크기가 감소함에 따라 Flux도 상당히 감소함을 알 수 있다. 두 filter를 모두 통과할 경우는 Fig. 3.1.4.62(c)와

같이 0.2 μ m filter만을 통과할 경우와 비슷한 결과를 보였다. 또한, 세 가지 경우 모두 압력의 증가에 따라 flux 또한 증가함을 알 수 있다. 그러나 Fig. 3.1.4.62(d)에서 보는 바와 같이 정확히 비례하는 것은 아니며 압력증가폭에 비해 Flux 증가폭은 약간씩 감소함을 알 수 있다. 압력이 증가하면 flux 또한 증가하며 시스템 내부에서 흐르는 PFC의 유속 또한 증가한다. 유속이 증가함에 따라 저항 또한 증가하기 때문에 압력 대 Flux가 정확히 비례하지 않고 flux 증가폭이 약간씩 줄어드는 것으로 판단된다.

순수한 PFC 용매의 flux는 오랜 시간이 흘러도 계속 유지된다. 그러나 PFC 폐액에는 수많은 방사성 입자들을 포함하고 있기 때문에 저항이 증가하여 flux가 감소할 것이다. Fig. 3.1.4.63은 1.4 μ m filter만을 통과하는 경우 0.0, 0.3, 0.6 g/L의 입자 농도를 갖는 PFC 모의 폐액을 사용하여 각 경로별로 시간에 따른 flux를 나타낸 것이다. Fig. 3.1.4.63(a)의 경우 모의입자로 오염되지 않은 PFC 용액 이다. 시간이 흘러도 그 flux는 계속 유지되는 것을 확인할 수 있다. Fig. 3.1.4.63의 (b)와 (c)는 각각 0.3, 0.6g/L의 입자 농도를 가지는 PFC 모의 폐액의 Flux를 나타낸다. 이 경우 (a)의 순수한 PFC의 flux와 비교하여보면, 초기의 Flux가 폐액의 농도가 증가 할수록 감소하는 것을 알 수 있다. 또한 시간이 지남에 따라 각각의 압력에 대한 Flux가 점점 감소해 가는 것을 알 수 있다. 그 감소되는 비율은 압력이 높을수록 크며 농도가 증가할수록 더 커진다는 것을 Fig. 3.1.4.63에서 확인 할 수 있다.

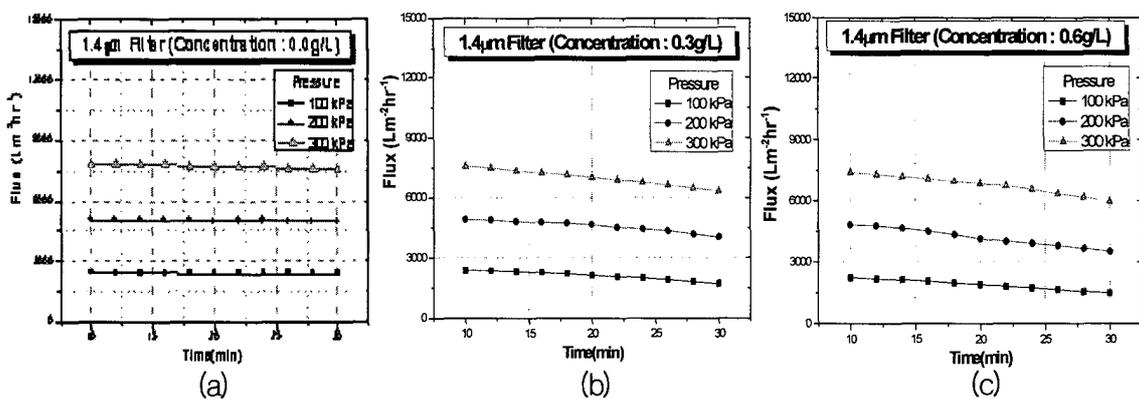


Fig. 3.1.4.63 Changes of the permeate flux as a function of time under different pressure and concentrations for primary filter(1.4 μ m filter)

Fig. 3.1.4.64는 0.2 μ m filter만을 통과하는 경우의 flux를, Fig. 3.1.4.65은 1.4 μ m filter와 0.2 μ m filter를 모두 통과하는 경로를 가질 때의 flux를 시간과 각각의 압력에 대하여 나타낸 것이다.

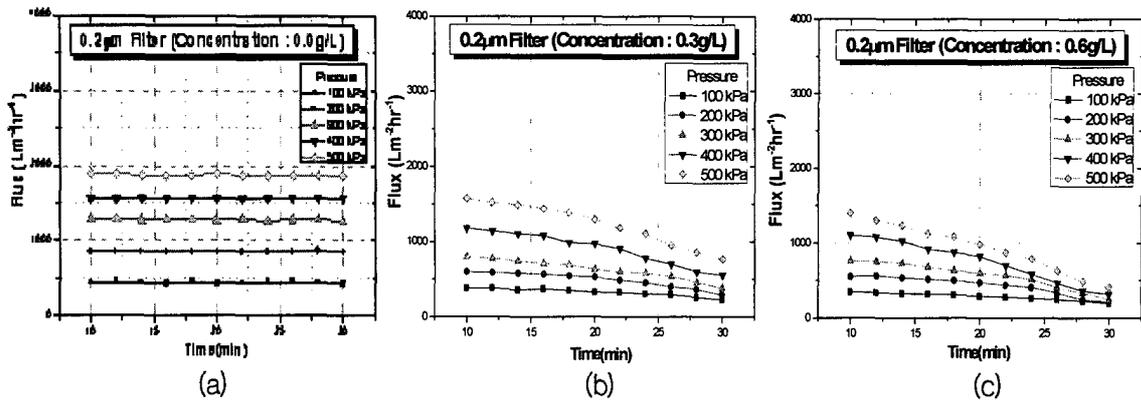


Fig. 3.1.4.64 Changes of the permeate flux as a function of time under different pressure and concentrations for final filter(0.2µm filter)

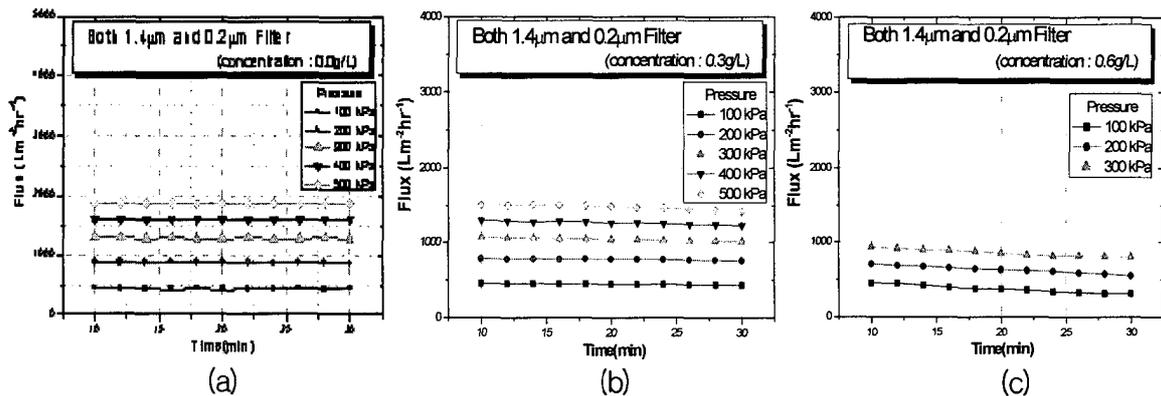


Fig. 3.1.4.65 Changes of the permeate flux as a function of time under different pressure and concentrations for full path(1.4 and 0.2µm filter)

Fig. 3.1.4.64에서 볼 수 있듯이 0.2µm filter만을 통과 하는 경우는 1.4µm filter를 통과 하는 경우보다 시간경과에 따라 flux는 좀더 급격한 감소를 보인다. 이것은 filter의 공극 크기 차이가 원인이라고 볼 수 있다. 즉 공극이 크면 작은 입자들은 쉽게 통과 할 수 있는 반면, filter의 공극이 작을 경우 작은 입자들은 공극을 통과 하지 못하고 공극을 막아 flux를 감소시키기 때문이다. 실험에 사용한 모의 입자의 직경은 각각 2-3µm와 0.3µm 두 가지 입자로, 2-3µm 입자의 경우는 1.4µm filter의 공극과 크기 면에서 두 배정도 차이가 나지만 0.3µm크기의 입자의 경우는 0.2µm filter의 공극 크기

와 거의 비슷해 공극을 막게 되는 결과를 나타낸 것으로 사료된다. Fig. 3.1.4.65에서는 pre-filter와 final-filter를 모두 통과하는 경우의 flux를 나타낸 것인데 위의 두 결과와는 다르게 시간이 흘러도 어느 정도 flux가 유지된다는 것이다. 두개의 filter를 동시에 사용할 경우 나타나는 장점은 하나의 filter만으로 부담해야 하는 입자들을 둘로 나누게 줌으로써 flux 효율을 증대시킨 것으로 사료된다. 또한 첫 번째 filter에서 통과한 작은 입자들을 두 번째 filter에서 걸러 주기 때문에 제거 효율에도 좋은 효과를 나타낼 것으로 사료된다. pre-filter를 사용하지 않은 경우(Fig. 3.1.4.64)는 시간에 따라 급격한 flux 감소를 보이지만 pre-filter를 사용한 경우(Fig. 3.1.4.65)는 약간의 flux 감소만을 보인다. 농도가 클 경우 시스템 내부의 저항은 급격히 증가하여 첫 번째 filter에 걸리는 압력이 상승하게 된다. Fig. 3.1.4.65(c)에서 300kPa까지의 데이터만 있는 것은 이 때문이다. 오염 용액의 농도가 0.6g/L 이상일 때 final-filter에 걸리는 압력이 500kPa이 되려면 pre-filter에 걸리는 압력은 한계압력을 초과하게 된다. 따라서 폐액의 농도가 클 경우는 회수하는 PFC용액의 양이 감소하더라도 낮은 압력에서 여과시켜야 할 것이다.

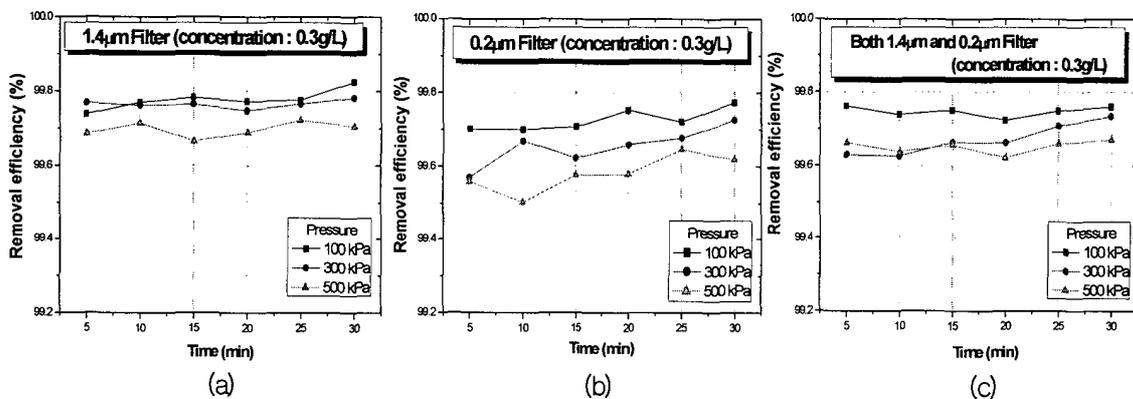


Fig. 3.1.4.66 Changes of the removal efficiency as a function of time under different pressure

여과 장치에서 Flux와 함께 중요한 또 다른 인자는 입자의 제거 효율이다. Fig. 3.1.4.66는 0.3g/L의 PFC 오염용액의 제거 효율을 나타낸다. 모든 경우의 제거 효율은 99% 이상으로 만족할 만한 결과를 보여준다. pre-filter(1.4µm) 없이 final-filter(0.2µm)만을 사용할 경우도 제거효율은 비슷하지만 앞서 본 바와 같이 flux가 급격히 감소하는 단점이 있다. 그러나 두 filter를 모두 사용한 경우의 제거효율은 99.5% 이상의 제거 효율을 보이며 flux 또한 장시간 일정하게 유지되기 때문에 두 개의 filter를 사

용한 장치 구성이 최적이라 사료된다. 압력에 따른 제거효율을 살펴보면 낮은 압력 (100kPa)에서 더 좋은 제거효율을 나타낸다는 알 수 있다. 이것은 membrane filter가 입자를 포집하는 것이 아니라 용매만을 통과시키고 입자는 저장용기로 순환되기 때문에 낮은 압력에서 제거 효율이 더 유리하다고 판단된다.

Fig. 3.1.4.67은 두 filter를 모두 통과하는 경로에서 (a) 100kPa과 (b) 300kPa의 압력에서 각각의 농도의 PFC 오염폐액의 입자 제거효율을 농도별로 시간에 따라 나타낸 그래프이다. 압력변화에 관계없이 모두 높은 제거 효율을 보이며, 오염폐액의 농도가 클수록 제거효율은 약간씩 높아졌다. 여기서 제거효율이 높다는 것과 여과된 PFC의 오염농도가 낮다는 의미가 아니라, 단순히 초기 농도와 여과 후 농도를 비교한 것이다. 실제로 0.6g/L PFC 오염폐액의 경우 0.1g/L의 오염폐액의 제거효율보다 더 높지만 실제 여과된 후 PFC의 농도는 0.1g/L 오염폐액을 여과한 PFC가 더 낮다. 즉 농도가 낮은 오염폐액일 수록 더 깨끗한 PFC를 얻을 수 있는 것이다. 그러므로 제염폐액 여과장치를 장시간 계속하여 사용할 경우 장치 내부의 입자오염도는 더욱 증가하기 때문에 PFC용액이 일정농도로 농축 되었을 때, PFC 농축폐액을 영향을 미친다는 것을 보여주고 있다.

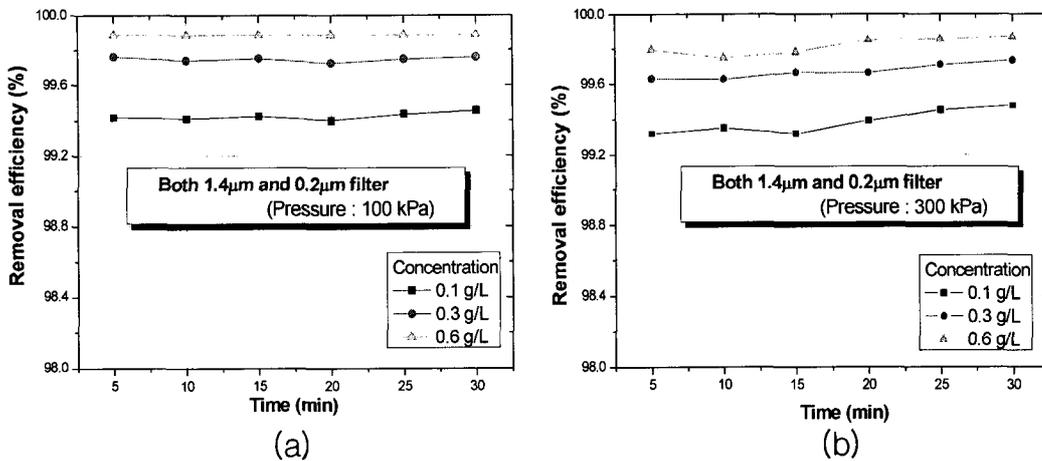


Fig. 3.1.4.67 Variations of the removal efficiency as a function of time under different pressure and concentrations

원자력 시설의 핫셀 내부표면에 부착된 고방사능 분진을 PFC 용액을 사용하여 제염 할 때, 제염 후 발생하는 이차폐기물의 양을 줄이고 고가의 PFC 제염 용액을 재활용하기 위해 실증규모 여과장치를 개발하였다. 핫셀 내의 오염입자를 전자 현미경

으로 분석한 결과 입자 크기 분포가 0.2-10 μ m임을 알 수 있었다. 여과막 선정 실험 결과 모의 입자 제거효율 측면에서 PVDF, PP, 세라믹 막 모두가 전반적으로 95-99%의 여과 성능을 나타냈다. 그러나 α -방사능 환경에서의 안정성 실험 결과, PVDF와 PP막은 공극이 커지는 등의 변형이 일어나며 불안정했지만 세라믹 막은 안정했다. 세라믹 막을 사용하여 개발된 PFC 여과장치는 핫셀 내부로 들어갈 수 있는 크기와 무게로 설계되었다. 또한 제거 효율과 flux를 향상시키기 위해 여과장치에 pre-filter(1.4 μ m)를 첨가했다. 제작된 실증여과장치의 성능실험 결과는 아래와 같다.

- 실증규모 여과장치로 모의입자에 대한 실험결과 제거효율을 99%이상이며, Flux는 1,000~2,000 Lm²hr⁻¹이다.
- 순수한 PFC용액의 Flux는 여과막의 공극크기가 감소함에 따라 Flux도 상당히 감소함을 알 수 있다.
- Flux는 PFC 폐액의 농도가 증가 할수록 감소하고, 여과 시간이 지남에 따라 Flux가 점점 감소하며, 감소 비율은 농도가 증가할수록 그리고 압력이 높을 수록 좀 더 커졌다.
- Final-filter(0.2 μ m)만을 통과 하는 경우는 Pre-filter(1.4 μ m filter)만을 통과하는 경우보다 시간경과에 따른 flux가 좀 더 급격한 감소를 보였다.
- Pre-filter를 사용하지 않은 경우는 시간에 따라 급격한 flux 감소를 보였지만 pre-filter를 사용한 경우는 약간의 flux 감소만을 보였다.
- 같은 여과량을 얻기 위해 PFC 폐액의 농도가 클 경우는 좀 더 높은 압력이 필요하다.
- 제거효율은 pre-filter부착유무와 관계없이 일정했다.
- 제거 효율은 압력변화에 관계없고, 오염폐액의 농도가 클수록 제거효율은 약간 높았다.
- 두 filter를 모두 사용한 경우 제거 효율(99.5% 이상)이 높고, 시간경과에 따른 flux의 감소가 미소하며, 여과양도 충분하므로, 두 filter의 사용이 적합하다고 사료된다.
- 제염폐액 여과장치를 장시간 계속하여 사용할 경우 장치 내부의 입자오염도는 더욱 증가하기 때문에, 주기적으로 PFC 농축폐액을 회수하여 증류 장치로 보내어 오염입자를 분리해 내는 공정이 필요하다.

(8) 실증규모 PFC용액 여과장치 제거장치 개선

폐쇄공정으로 운영되는 PFC 제염공정은 PFC 용액을 연속 순환하여 사용하게 되며, 제염과정에서 제거된 오염입자가 PFC 용액 내에 존재하여 재 오염의 원인이 된다. 그러므로 PFC제염 종료 후 이차폐기물의 발생을 최소화시키며, 고가의 PFC용액 자체를 회수하여 재사용하기 위해 PFC 여과장치를 개발할 필요가 있다. PFC여과장치에 사용되는 여과막은 핫셀 내의 높은 알파방사선에 강한 세라믹 원통형 여과막을 사용하였고, 개발된 장치는 원자력연구원 핫셀 내에서 사용되므로 핫셀 내의 투입이 용이한 크기와 재질로 설계하였다. PFC 여과장치의 작동은 Manipulator에 의해 수행되어야 하므로 Manipulator에 의해 작동 및 필터의 교환이 가능하도록 개선하였다. 모의오염폐액을 이용하여 개선된 PFC여과장치의 flux 및 입자 제거효율을 측정하고, 핫셀 내에서 개선된 장치에 대한 실증실험을 수행하였다.

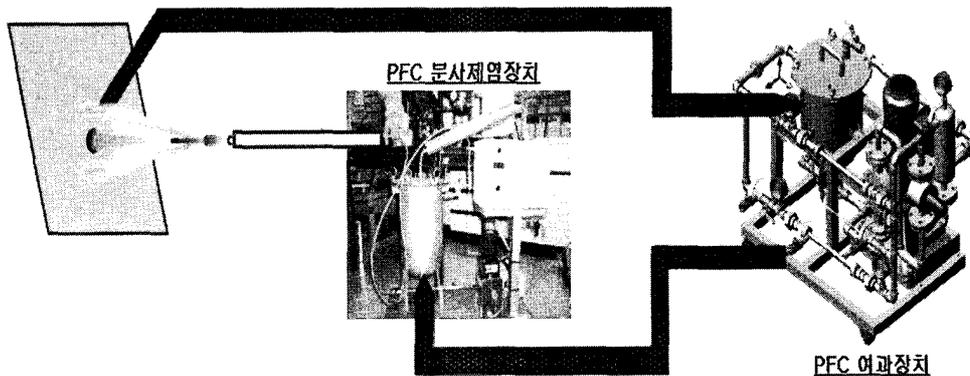


Fig. 3.1.4.68 Connection diagram of PFC decontamination equipment and PFC filtration equipment

(가) Pre-filter와 Final filter 연결

PFC폐액 여과장치 내의 여과막은 여과막의 시간에 따른 Flux 감소를 방지하고 고 방사능 분진의 부하를 낮추기 위해 두개의 필터, 즉 1.4 μ m의 Pre-filter와 0.2 μ m의 Final-filter를 사용하였고, 두 필터를 SUS 관으로 연결하였다.

(나) Manipulator에 의한 필터하우징 탈부착 가능토록 개선

Pre-filter는 주변에 위치한 3개의 Connector를 Manipulator로 분리하고, Final-filter도 주변의 3개의 Connector를 분리하여 교환한다. 또한, Pre-filter와 Final-filter는 필터대에 부착시켰고, 필터대 바닥은 레일식으로 제작하여 필터 교환시 좌측 Connector를 분리한 뒤 필터대를 레일을 따라 우측으로 이동시켜 필터가 필터대로부터 빠져나올

수 있도록 제작하였다.

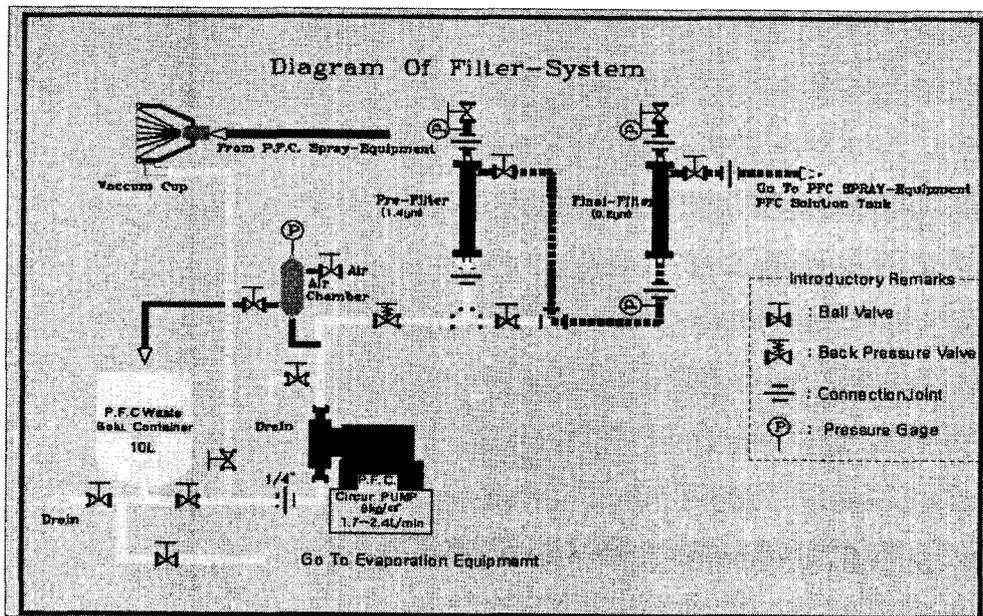


Fig. 3.1.4.69 The diagram of filter-system

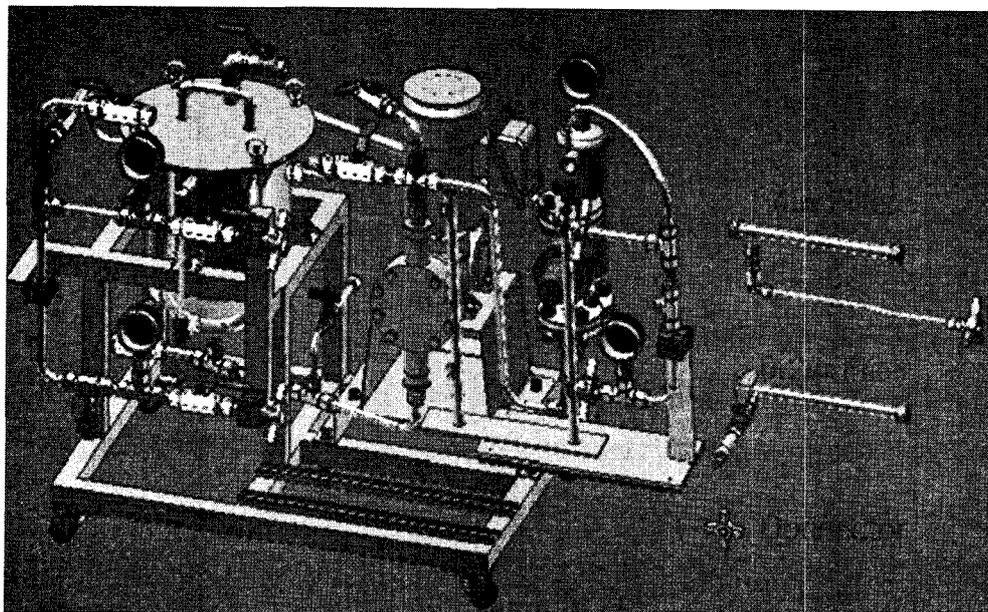


Fig. 3.1.4.70 Filter separation by manipulator

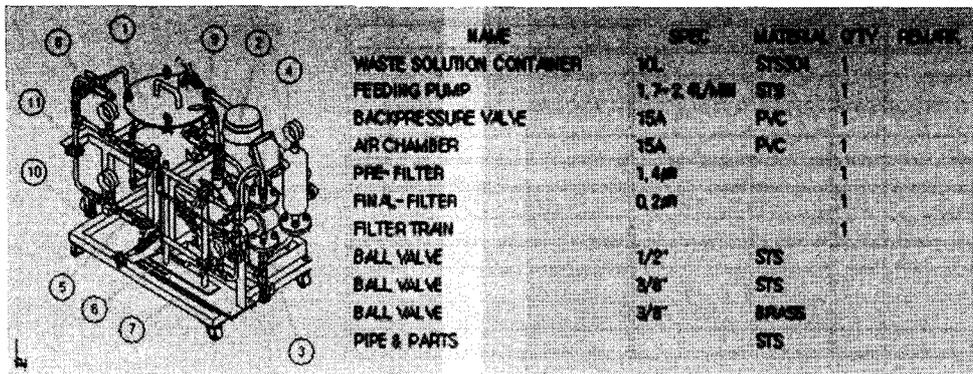


Fig. 3.1.4.71 Design diagram of PFC filtration equipment

(다) PFC용액 분사 Vacuum cup과의 연결관 제작

PFC 제염장치를 이용하여 핫셀 내부를 제염할 때 발생된 PFC 제염폐액과 고방사능분진을 여과장치로 흡수하기 위해 PFC 용액분사를 Vacuum cup 내부에서 수행하도록 하였으며, 이때, 발생된 Vacuum cup 내부의 PFC 제염폐액을 여과장치로 흡입하여 필터를 통해 정화시킨다. 이와 같이 PFC 제염폐액을 흡입하기 위해 PFC 폐액 여과장치에 Vacuum cup과 연결된 연결관을 제작 부착하였다.

(라) 펌프 교환(용량 증가)

PFC폐액 여과장치에 부착된 펌프의 용량은 제염폐액 발생부피를 충분히 순환시킬 수 있는 0.2 kw의 1.7-2.4 L/min 펌프를 사용하였다.

(마) 증류장치로의 이송관 부착 (Hot particulate 오염 PFC 폐액)

PFC 폐액 여과장치의 PFC 폐액저장통 내의 PFC 폐액을 주기적으로 정화시키기 위해 PFC 폐액을 PFC 제염장치의 증류장치로 이송할 수 있도록 PFC 폐액 여과장치에 이송관을 부착하여 PFC 제염장치의 증류장치와 연결하였다.

(바) PFC 용액 저장통으로의 이송관 부착(여과된 용액)

PFC 폐액 여과장치의 Pre-filter와 Final-filter를 통과하며 정화된 PFC 여과액을 PFC 제염장치의 PFC 용액 저장통으로 이송할 수 있도록 PFC 폐액 여과장치에 이송관을 부착하여 PFC 제염장치의 PFC 용액 저장통과 연결하였다.

(9) 개선된 실증규모 PFC 폐액 여과장치의 성능평가

실험실적으로 개발된 PFC 여과장치의 단점을 보완하고 성능을 향상시켜 실제 제염에 적용할 수 있도록 장치를 최적화시켰다. Flux 향상을 위하여 고성능 펌프로 교체 하였으며, 실험을 위해 여러 경로를 가지게 만들었던 폐액의 흐름도 두 Filter를 통과하는 단일 경로를 가지도록 최적화하였다. 또한, 장기간 사용 후 필터 교환을 용이하게 하기 위해 Filter 탈부착 레일을 설치하였다. 실제 제염 후 생성되는 제염폐액을 흡입하는 Vacuum cup을 제작하여 연결하고, 제염 후 발생하는 고농도 폐액의 처리를 위한 증류장치와 연결하여 완전한 PFC 제염장치를 구성하여 실제 제염이 가능하도록 하였다.

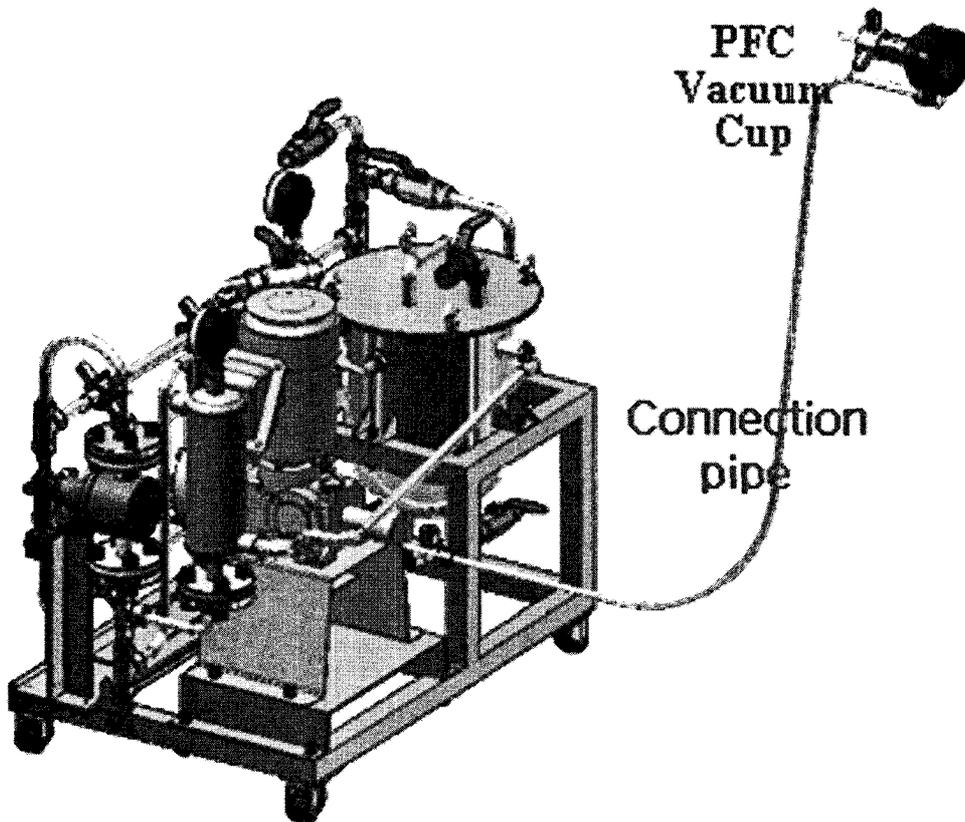


Fig. 3.1.4.72 Connection of PFC filtration equipment and vacuum cup

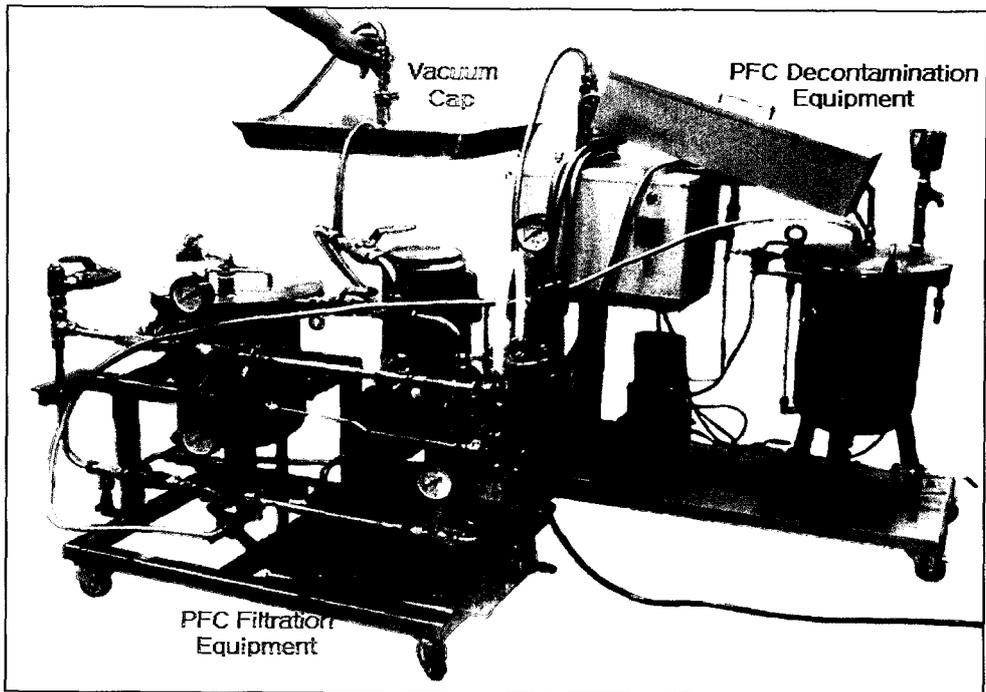


Fig. 3.1.4.73 Connection of PFC filtration equipment and PFC decontamination equipment

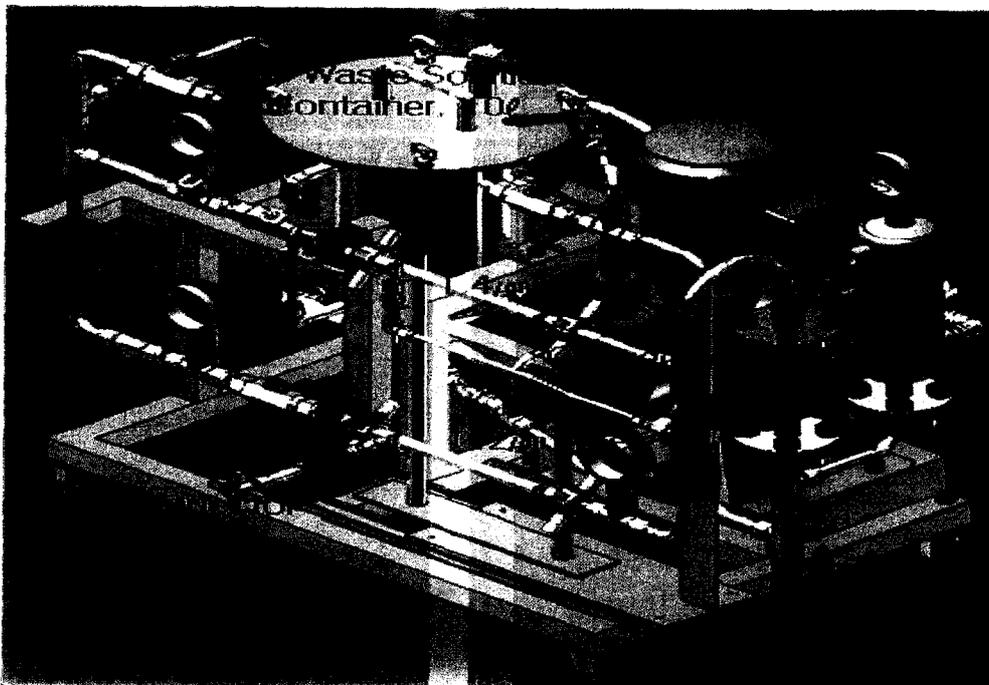


Fig. 3.1.4.74 The improved PFC filtration equipment

Fig. 3.1.4.75의 (a)와 (b)는 순수한 PFC 용매의 Flux를 여과시간과 압력에 따라 나타낸 그래프이다. 두 필터의 연결 및 고성능 펌프로의 교체로 인하여 개선된 장치의 PFC 용매 Flux는 이전 장치보다 3배 이상 증가하였음을 알 수 있다. 두 장치의 PFC 용매 Flux를 보다 쉽게 비교하기 위해 평균 Flux를 계산하여 Fig. 3.1.4.76에 나타내었다.

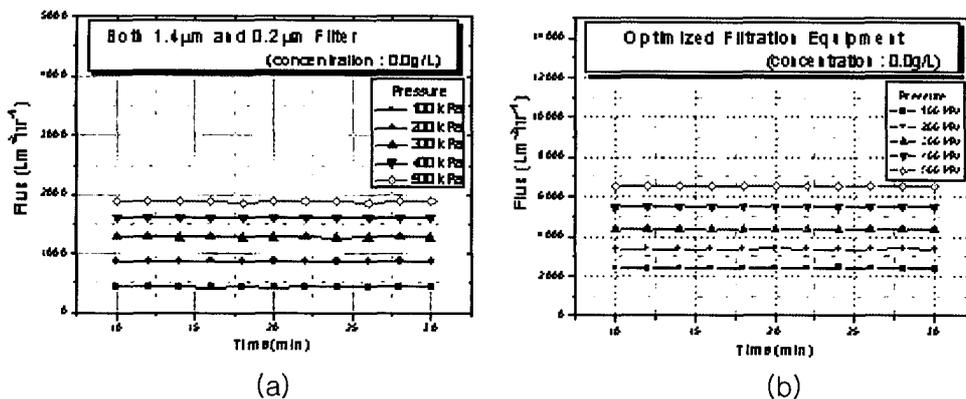


Fig. 3.1.4.76 Flux of PFC solvent ; (a) Previous and (b) Optimized equipment

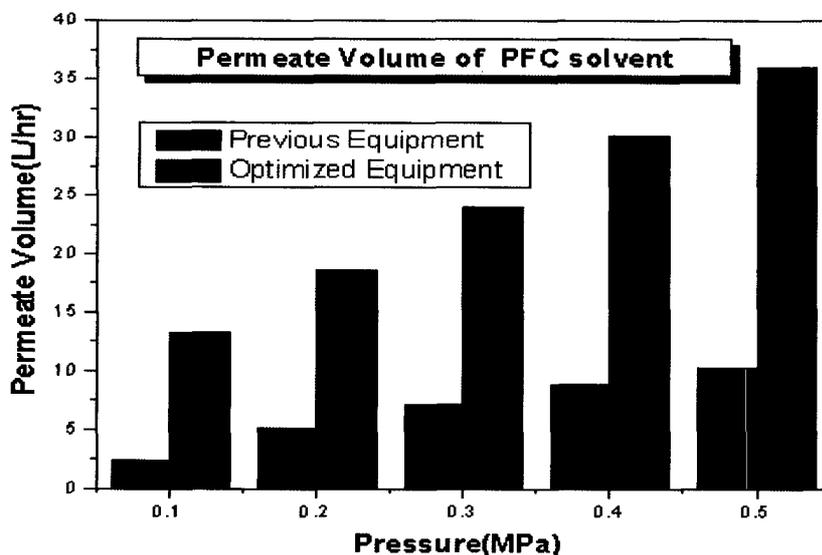


Fig. 3.1.4.76 Permeate volume of PFC solvent as a function of pressure in PFC filtration equipment

모의 입자로 오염된 폐액의 Flux를 비교하기 위해 Al_2O_3 ($0.3-3.0 \mu m$)로 $0.3g/L$ 의 모의 오염용액 5L를 준비하여 Flux를 측정하였다. Fig. 3.1.4.77은 Al_2O_3 $0.3g/L$ PFC 용액의 여과 결과 Flux를 시간과 압력에 대해 나타낸 그래프이다. (a)는 여러 경로를 갖는 이전 장치에서 두 필터를 지나는 경로를 설정했을 때 나타난 Flux를 측정한 것이고, (b)는 단일경로를 갖는 개선된 장치의 Flux를 나타낸다. 개선한 장치가 이전의 장치의 Flux 보다 2-3배정도 더 증가한 것을 볼 수 있다. Fig. 3.1.4.78에 $0.3g/L$ 오염용액의 Flux를 비교하여 나타내었다.

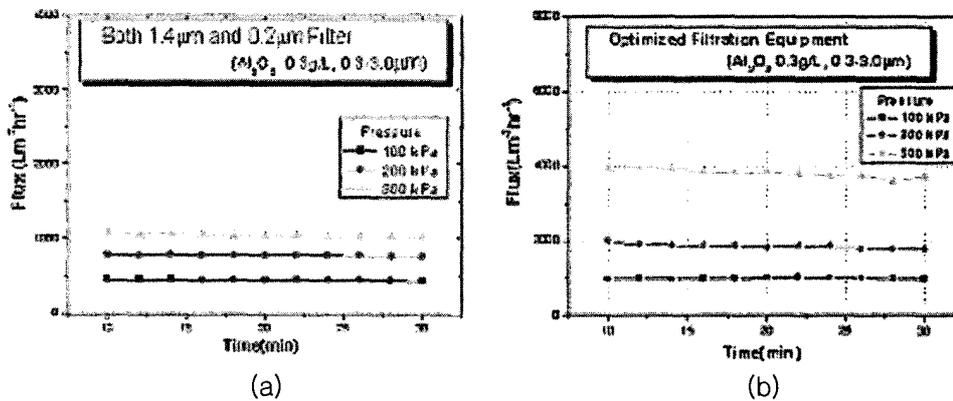


Fig. 3.1.4.77 Flux of 0.3g/L PFC waste solution as a function of time

또한, 개선된 장치의 입자 제거 효율은 여과된 용액의 탁도를 측정하여 농도로 환산한 후 초기 오염 용액의 농도와 여과 후 용액의 농도비로 산출하였다. Fig. 3.1.4.79에서 알 수 있듯이 입자제거효율은 99.5% 이상으로 큰 변화 없이 계속 높은 제거 효율을 나타내었다.

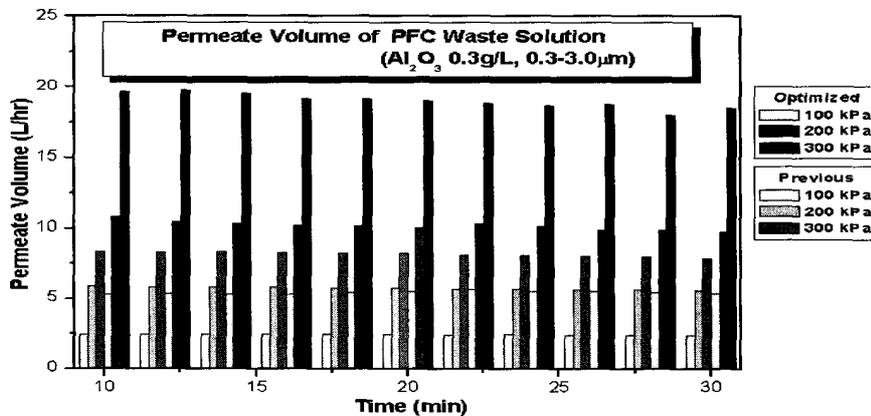


Fig. 3.1.4.78 Permeate volume of PFC waste solution

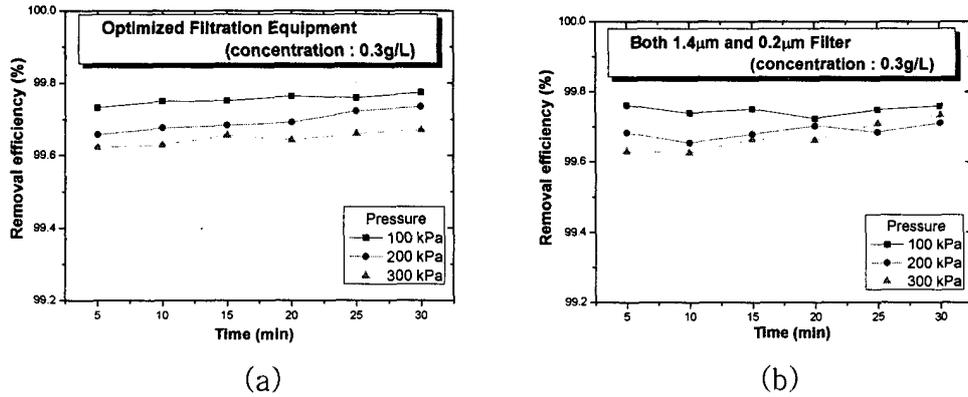


Fig. 3.1.4.79 Removal efficiency of mock particles by (a)previous and (b)optimized filtration equipment

한편, 필터교환 시기를 좀 더 연장하기위해 보편적으로 Back flushing을 사용하나 Back flushing을 위해서는 보조 장치가 필요하다. 본 여과장치는 가능한 소형으로 제작되어야 하므로 Back flushing 대신에 유량 증가를 통한 세척방법을 사용했다. 즉, 압력조절밸브를 개방하여 장치내부를 순환하는 PFC 용액의 유량을 늘려주고 장치내부를 순환하게 함으로써 장치 내부에 쌓여있는 모의입자들을 세척하는 개념을 도입하였다. 필터를 일정기간 사용하므로 필터와 연결관 내부에 오염입자들이 쌓여 Flux가 감소 할 때, 깨끗한 PFC 용액으로 장치내부를 여러 번 순환시켜 필터와 연결관 내부에 쌓인 오염입자들을 씻어내므로 필터의 Flux를 향상시킬 수 있다. Fig. Fig. 3.1.4.80에서 실험 결과를 보여준다.

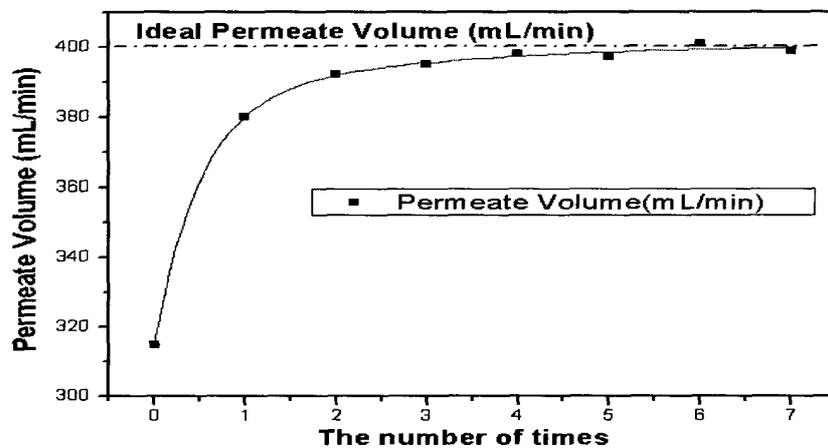


Fig. 3.1.4.80 Permeate volume of PFC solvent at 200 kPa

여과장치 내부를 순환할 수 있는 최소 부피는 약 1L 정도이며 순수한 PFC 용액 1L를 이용하여 장치를 세척한 후 Flux를 측정하였다. Fig. 3.1.4.80의 결과에서 세 번 세척 후 약 95% 이상의 Flux를 회복하는 것을 볼 수 있다. Filter가 크게 오염되지 않는다면 장치 내부세척을 통해 적절한 Flux를 유지하면서 사용할 수 있다.

또한, Filter의 오염정도를 알아보기 위하여 0.3g/L 입자성 오염폐액 10L를 여과한 후 4회 순환시켜 장치 내부세척을 한 후 Filter를 분리하여 Sonic wave로 Filter를 세척하였다. Filter에 포집된 입자의 양을 알아보기 위해 세척액의 탁도를 측정하고 농도/탁도 표준곡선으로 농도를 계산한 후 입자의 양을 계산하였다. 0.2 μ m와 1.4 μ m filter의 세척액 탁도는 각각 2.74 NTU(500mL)와 35.2NTU(500mL)이다. 농도로 환산하면 각각 0.85mg/L와 6.95mg/L 이다. Pre-filter인 1.4 μ m Filter에서 8배 이상 많은 입자가 포집된 것을 알 수 있다. 실제 포집된 입자의 질량은 각각 0.43mg과 3.46mg이다. 3g의 입자중 약 0.13%가 Filter에 포집되었음을 알 수 있다. 한편 필터가 포집할 수 있는 오염입자의 총 무게는 $2 \times (55\text{cm}^2 \times 0.2\text{cm} \times 0.4 \times 1.2\text{g/cm}^3) = 10.56\text{g}$ 이며, 두 필터가 30% 포화될 때의 오염입자 무게는 3.17g 이므로 본 여과장치는 0.3g/L 오염폐액 약 8,155L를 여과처리한 후 필터를 교체하면 된다. 한편, Sonic wave로 세척한 Filter를 재 장착하여 순수 PFC의 Flux를 측정한 결과 사용전의 Filter와 거의 같은 수준의 Flux를 나타냄을 확인하였다.

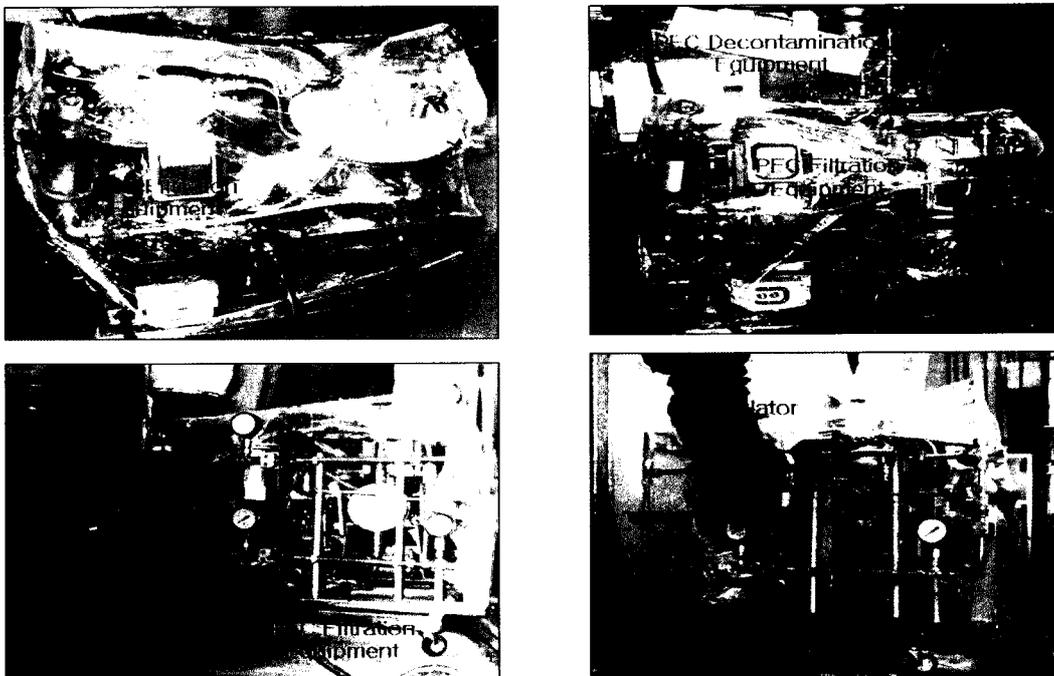


Fig. 3.1.4.81 Demonstration experiment of the improved PFC filtration equipment

(10) 개선된 실증규모 PFC폐액 여과장치의 실증실험

개선된 PFC폐액 여과장치의 성능에 대한 실증실험을 위해 PFC 폐액 여과장치를 원자력연구원 내의 고화체 검사시설에 넣고 Manipulate를 이용하여 PFC폐액 여과장치의 가동실험을 하였다. Pre-filter는 주변에 위치한 3개의 Connector를 Manipulator로 분리하고, Final-filter도 주변의 3개의 Connector를 분리하여 필터 교환이 원활함을 실증하였다. 또한, PFC제염폐액을 흡입하기 위해 PFC폐액 여과장치에 연결된 Vacuum cup이 Manipulator에 의해 핫셀 내부표면에서의 이동이 원활하고 Vacuum cup 내부의 분진들을 잘 흡입하는 지를 실증하였다. 한편, Manipulator의 조작에 의해 PFC 폐액 여과장치의 PFC 폐액 저장통 내의 PFC 폐액을 PFC 제염장치의 증류장치로의 이송의 원활함을 실증하였고, 정화된 PFC 여과액을 PFC 제염장치의 PFC 용액 저장통으로의 이송의 원활함을 실증하였다.

다. 결 문

본 연구에서는 한국원자력연구소 조사제 시험시설과 조사후 시험시설 핫셀의 내부 표면과 핫셀 내의 장치표면에 부착된 고방사능 분진을 제거하기 위한 장치들을 개발하였다. 개발된 고방사능분진 제거장치는 핫셀 바닥 및 벽면에 부착된 고방사능 분진을 제거하고, CO₂ pellet 분사장치와 연결하여 CO₂ pellet 분사장치 사용 시 발생하는 고방사능 분진을 제거한다. 또한, 개발된 PFC폐액 여과장치는 PFC제염장치와 연결하여 PFC제염장치 사용 시 발생하는 고방사능 분진을 제거한다.

연구시설 핫셀 구조 및 오염특성을 분석하였고, 핫셀 내부 오염도 측정결과 베타·감마는 $4 \times 10^5 \sim 4 \times 10^7$ Bq/cm²(MCA)이고, 알파는 $2 \times 10^3 \sim 2 \times 10^5$ Bq/cm²(Scintillator HP380A)이었고, 주요 분진크기는 0.2~15 μ m이었다. 핫셀 구조 및 오염특성에 적합한 실증규모 Hot Particulate 제거 장치 개발하였다. 실험실 실험결과와 기존의 Stairmand와 Yifang Zhu가 제시한 규격을 근거로 1 μ m 미세 분진을 70% 이상 제거할 수 있는 사이클론을 설계 제작하였다. 핫셀 내의 Manipulator에 의해 Collection box의 탈부착 및 Bag/HEPA filter의 교환이 용이하고, 고방사선에 안정되며, 발생 Hot Particulate의 85% 이상을 포집하였다. Vortex Finder 길이가 6.5cm일 때 사이클론은 1 μ m를 15m/sec 이상의 흡입속도에서 모의입자의 약 70%를 포집하며, 5 μ m 이상의 모의입자는 약 95%를 포집하였다. 80 $^{\circ}$ C에서 포집효율은 2% 감소하고, 습도를 80%로 증가하면 포집효율은 10%증가하였다.

PFC제염장치에서 발생된 고방사능분진을 제거하기 위한 PFC폐액 여과장치를 개발

하였다. 여과장치에 적합한 최적 여과막을 선정하기 위해 여과막들을 핫셀 내부에 투입하여 알파방사능에 10개월 동안 노출후 SEM 관찰결과 세라믹막의 공극구조는 보존되었지만 PP(Poly-propylene)와 PVDF(Poly Vinylidene Fluoride)막의 공극은 파괴되므로(폴리머는 알파방사능에 H₂ 가스를 방출하며 분해됨) 여과장치에 사용할 필터 재질로 세라믹 필터를 선정하였다. 설계 제한조건에 적합한 실증규모 여과장치를 설계하였다. 즉 PFC제염폐액 저장용기(10L), 펌프(0.2kw), Pre-filter(1.4 μ m) 하우징과 Final filter(0.2 μ m) 하우징(\varnothing 0.7x25cm), 압력 게이지로 구성된 장치를 제작하였다. 제작한 실증규모 여과장치에 의한 모의입자 여과 실험결과, 99% 이상의 제거효율과 1,000~4,000 Lm²hr⁻¹(0.1~0.4L/min) Flux를 확보했다. Flux는 PFC 제염폐액의 농도 증가 및 여과시간 경과에 따라 감소하며, 감소비율은 농도증가 및 압력이 높을수록 커졌다. 제거효율은 PFC제염폐액의 농도가 클수록 약간 증가했고, 압력변화 및 Pre-filter 부착 유무에 의한 증감은 미미했다. 고화체 검사시설 내에서의 현장 실증시험을 통해 핫셀 내의 Manipulator를 사용하여 원격으로 필터 교환을 원활하게 수행할 수 있음을 입증하였다.

여백

제 2 절 금속성 해체폐기물 용융제염기술 개발

1. 서문

원자력시설의 유지·보수 및 해체 시 다양하면서 방대한 양의 방사성 금속 폐기물이 발생되며 효과적인 제염방법으로 용융제염이 최근 전 세계적으로 각광을 받고 있다. 용융에 의한 방사성 금속폐기물제염 개념은 주로 금속 표면에 오염된 방사성 핵종을 용융 시 첨가한 슬래그에 주로 산화물 형태로 포집시켜 주괴에서 방사성 핵종을 제염하는 기술과 비 균질적으로 금속폐기물 표면에 오염된 핵종을 주괴에 균일하게 배분시켜 잔류 오염도 측정을 손쉽게 하는 기술로 대별된다. 일반적으로 환경방출 기준 수준의 제염을 위해서는 제염 후 잔류방사능이 자연방사능 보다 더 낮아야 하기 때문에 잔류방사능 측정에 시간과 비용이 많이 든다. 또한 잔류 방사능이 균일하지 않을 경우에는 더 많은 계측과 더 엄격한 허용기준이 요구된다. 금속성폐기물의 제염방법에는 화학제염, 전해제염, 초음파제염, 진동연마법 등 다양한 방법이 있으나 용융제염에 비해 제염폐기물 발생량이 많고 잔류방사능 측정이 훨씬 더 어렵다. 이러한 제염방법은 주로 용융제염 전처리 기술로 많이 사용되고 있다. 금속용융 기술은 다른 처리방법에 비해 부피 감용비가 클 뿐만 아니라, 휘발성 핵종이나 우라늄(U)과 같이 모재 금속과 반응성이 적은 핵종은 무기물질의 혼합물인 슬래그(slag)와 알루미늄 용융시 사용되는 두개 이상의 혼합된 공용염 즉, 플럭스(flux)에 의해 안정화 되어 제염되며 용융 후 최종적으로 재사용이 가능한 금속 주괴(ingot)를 생산하여 유용한 자원을 재활용 할 수 있으며 휘발되지 않는 방사성 핵종들은 용융 금속의 결정격자 내에 방사성 핵종을 고정화시켜 비방사능을 낮출 수 있다. 오염된 방사성핵종의 농도는 대개 ppm order이내 이며 핵종별로 물리화학적 특성이 다르기 때문에 제염 특성도 상이하며 대부분의 방사성 핵종은 자연 상태에 흔히 존재하지 않는 물질이므로 용융제염의 이론적 고찰에 필요한 물리화학적 데이터베이스(database)가 많지 않아 실험적 방법으로 접근할 수 밖에 없다.

따라서 본 연구에서는 용융제염 요소기술을 평가한 후 알루미늄과 철금속 폐기물에 오염되어 있는 코발트(Co), 세슘(Cs), 스트론튬(Sr), 세륨(Ce)과 우라늄(U) 오염핵종에 대한 용융실험을 통해 금속과 방사성 핵종, 슬래그와 방사성 핵종간의 반응 특성과 이들의 분배 특성을 명확히 규명하여 용융제염의 단위기술을 개발하고 이를 토대로 파일럿 규모의 용융제염 기술 실증 시험을 수행하여 용융제염기술의 적용성 및 기술성능을 확보함과 동시에 우라늄 오염 해체폐기물 용융제염을 위한 고온용융

시설의 보완 방안을 제시하고자 한다.

2. 금속성 해체 폐기물 용융제염 요소기술 평가

가. 금속성 해체 폐기물 특성조사

원자력 시설에서 발생하는 방사성 금속 폐기물(탄소강 및 스테인레스강)에 대한 재활용 및 재사용은 자원의 재활용이라는 경제적 측면과 제염을 통한 방출이라는 환경적인 측면에서 매우 중요한 부분이다. 지금까지 방사성 금속 폐기물에 대한 무구속 방출을 위해 원자력 산업분야에서 많은 노력을 기울여왔으며, 그 결과 원자력 산업분야로의 제한적인 방출이 실행되고 있다. 본 장에서는 방사성 금속 폐기물을 이용하여 제작 가능하고 또는 제작되고 있는 제품들에 대한 시나리오를 세워 매립과 같은 직접 처분과의 경제성을 비교하였다.

(1) EU의 원자력 시설에서 발생하는 해체 폐기물의 예상량[2.2.1.1]

원자력 시설의 해체와 정기적인 유지, 보수 과정에서 발생된 방사능 오염 물질이나 방사화된 폐기물들을 제한된 원자력분야에서 재활용이나 재사용이 가능한지를 알아보기 위해 영국의 AEA Technology plc와 스페인의 Empresa Nacional de Residuos Radioactivos SA(ENRESA)가 컨소시엄을 이루어 수행한 연구 결과를 정리하였다. 기본적인 연구의 조건은 다음과 같다.

- 원자력 분야에서의 재활용과 재이용을 위한 경로(route)와 시나리오(scenario) : 규제받는 원자력분야를 가지고 있는 EC 국가들에 적용할 수 있는 재이용과 재활용을 위한 가능한 경로와 시나리오의 추정을 제공한다.
- 재활용과 재사용을 위해 예상되는 폐기물의 형태와 양 : 시나리오의 기간 동안 재활용과 재이용을 위한 물질을 제공하기 위해서 처리에 필요한 저준위 폐기물이 충분히 발생하는지 추산해야 한다. 이 평가는 건물의 탄소강, 스테인레스강, 알루미늄, 구리 및 구조강제 등과 같이 많이 발생하는 물질에 한정된다.
- 가장 가능성 있는 재활용 경로와 세부적인 해석을 선택 : 보다 많은 연구를 통해서 가장 가능성 있는 12가지 시나리오를 선택하였다.
- 재활용 경영을 위한 추천 : 여러 나라에서 적용하고 있는 해체전략의 범위와 관련하여 가능성 있는 재활용 시나리오의 가치에 대한 전략적인 관점을 발

전시킨다. 전략적인 평가의 가장 중요한 부분은 처분시설의 건설과 이용의 변화에 따라서 폐기물 흐름에 대한 오랜 기간의 관리에 대한 장점을 제공하는 것이다.

EC에서 원자력시설의 운영과 관련하여 생산되는 저준위 폐기물(스테인레스강, 기타 강재, 콘크리트, 구리 및 알루미늄)의 부피 추정은 영국과 스페인, 그리고 프랑스의 폐기물 생산자와 공장의 운영자가 발간한 자료에 근거하였다. 다른 유럽 국가들에 대한 자료는 이들의 자료를 기본으로 하여 추정하였다. 이 평가는 큰 규모의 원자력 발전소와 핵연료 순환 시설의 자료도 포함하였을 뿐만 아니라, EC에 있는 작은 연구로의 해체 시 발생하는 폐기물의 평가도 수행하였다. EC에서 발생할 물질의 양에 대한 추정은 Figs. 3.2.2.1~3.2.2.4에 나타내었다. 고려된 물질들의 방사능 범위는 0.4 Bq/g에서 12 kBq/g이었다. 그림에서 재사용과 재활용을 위해 고려되는 잠재적인 물질의 양이 매우 많다는 것을 알 수 있다. 이용할 수 있는 물질의 양은 원자로 용기와 그것에 오염된 물질을 해체할 때, 원자력 발전소의 stage 3 해체에 의해 좌우된다.

다음은 영국의 British Energy가 소유한 원자력 발전소 AGR의 해체 전략의 단계를 나타낸다.

Stage 1 :

- Phase 1 - 원자로에서 핵연료를 제거하여 off-site로 이송(기간~2.5년).
- Phase 2 - 원자로 영역의 외부에 존재하는 건물의 해체, 원자로의 영역안에 있는 작은 건물과 설비의 해체, 남아 있는 건물과 설비를 안전한 곳에 위치할 수 있게 하기 위한 유지와 보수의 준비(기간 ~ 1.5년)
- Phase 3 - 유지와 보수 1, 설비에 대해 아주 많은 해체와 제거가 없는 시기, 건물은 정기적으로 검사하고 보수(기간 ~ 31년)

Stage 2 :

- Phase 1 - 제한된 장비와 건물의 해체. 방사선에 오염된 장비나 물질들을 안전하고 보안이 잘된 장소에 저장하기 위한 안전 저장 시설의 건설(기간 ~ 4년)
- Phase 2 - 유지와 보수 2, 필요한 부분의 검사와 보수(기간 ~ 96년)

Stage 3 :

저장장소의 해체와 마지막 저장장소의 제염. 이것은 원자로의 가동 중지 후 약 135년 후에 이루어질 것으로 예상된다.

Figs. 3.2.2.1과 3.2.2.2는 2045년까지 발생될 금속 양의 추정을 나타낸다. 이것은 원자력발전소 해체의 2단계(stage)와 3단계가 일어날 때 나타나는 것이다. 원자력발전소 해체의 수명과 일정계획에 기초하여 보면 2040년경에 상당히 많은 원자력발전소들의 해체가 진행 중에 있을 것으로 추정된다. Fig. 3.2.2.1의 자료에서 보면 스테인레스강은 2050년까지 년평균 발생량이 5,000 ton/year이며, 2045년에 13,000 ton/year으로 가장 많이 발생할 것으로 추정된다. Fig. 3.2.2.2에 연강이나 탄소강과 같이 스테인레스강과 다른 형태의 금속이 발전소 해체 시 예상되는 발생량을 나타내었다. 이 금속들의 대부분은 많은 원자로가 해체 3단계가 진행될 것으로 추정되는 2040년에서 2048년 사이에 발생될 것이다. 2045년에 연간 발생량이 80,000 ton으로 가장 많이 발생할 것으로 예상된다. 2030년까지 발생될 것으로 추정되는 금속의 양은 연간 5,000 ton이다.

Fig. 3.2.2.3은 발생될 것으로 예상되는 알루미늄의 양으로 금속에 비해 적은 양이다. 이 자료는 원자력발전소보다는 원자력 연구 시설 및 공장의 해체시 발생되는 알루미늄의 예상량으로 주로 영국의 자료이다. 영국에서는 주로 우라늄 농축 시설의 해체에서 알루미늄이 발생한다. PWR이나 BWR의 해체시 발생할 것으로 예상되는 알루미늄의 양은 매우 적다. 영국의 확산 농축 시설의 해체에서는 많은 양의 알루미늄이 발생하지만, 이것은 매우 적게 오염되어 있어서 대부분의 금속 조각은 상업적인 합금 회사에 무제한 방출로 보내어 질 수 있다. 이 기간 동안 각 나라의 해체 일정계획과 세부적인 발생 예상량을 알 수 없기 때문에 프랑스와 독일, 네덜란드와 같은 다른 EC 국가에 있는 우라늄 농축 시설의 해체 시 발생하는 자료는 전체 발생 예상량에 포함시키지 않았다. 그러나 프랑스의 기체 확산 시설과 같은 설비들에서 발생된 알루미늄 폐기물의 양은 상당할 것으로 예상된다. 원자력 시설의 운전 결과로 발생할 구리의 예상량을 Fig. 3.2.2.4에 나타내었다. 발생될 구리의 양은 연간 100~200 ton의 수준으로 1998에서 2000년에 최대를 나타내다가 2040년 이후에 연간 400 ton 이상이 발생할 것으로 예상된다. 최대 발생량은 2045년에 거의 1,000 ton에 이를 것으로 예상된다.

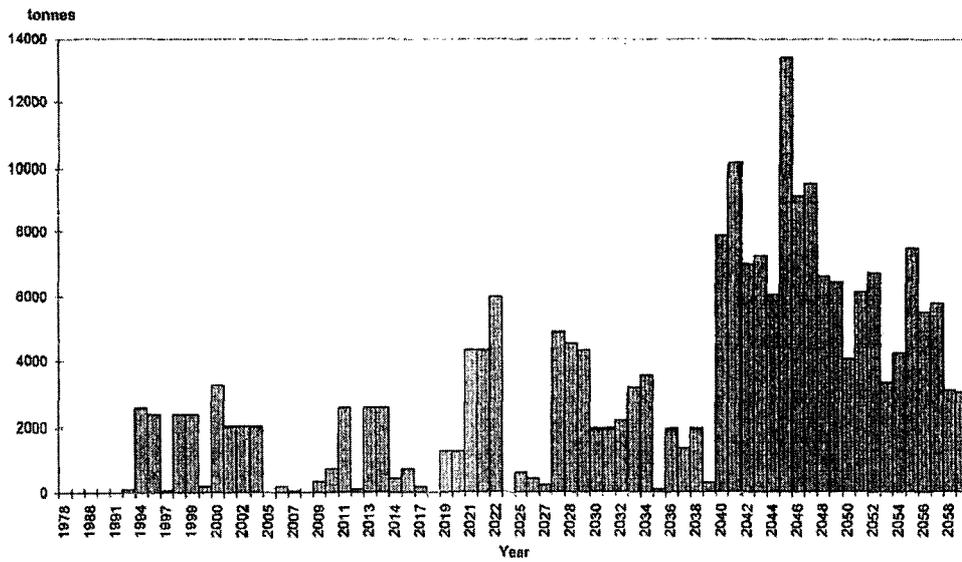


Fig. 3.2.2.1 EC stainless steel LLW arisings

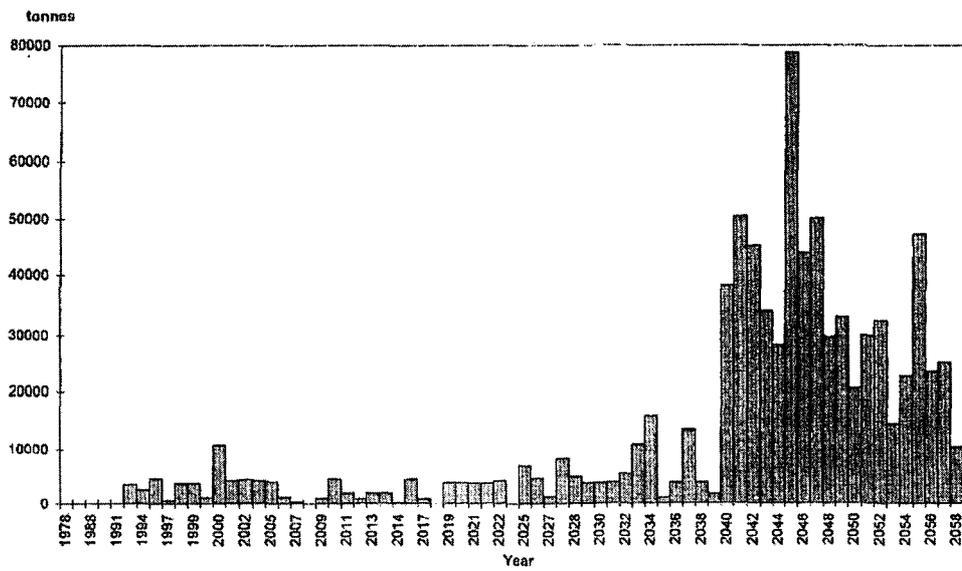


Fig. 3.2.2.2 EC other steel LLW arisings

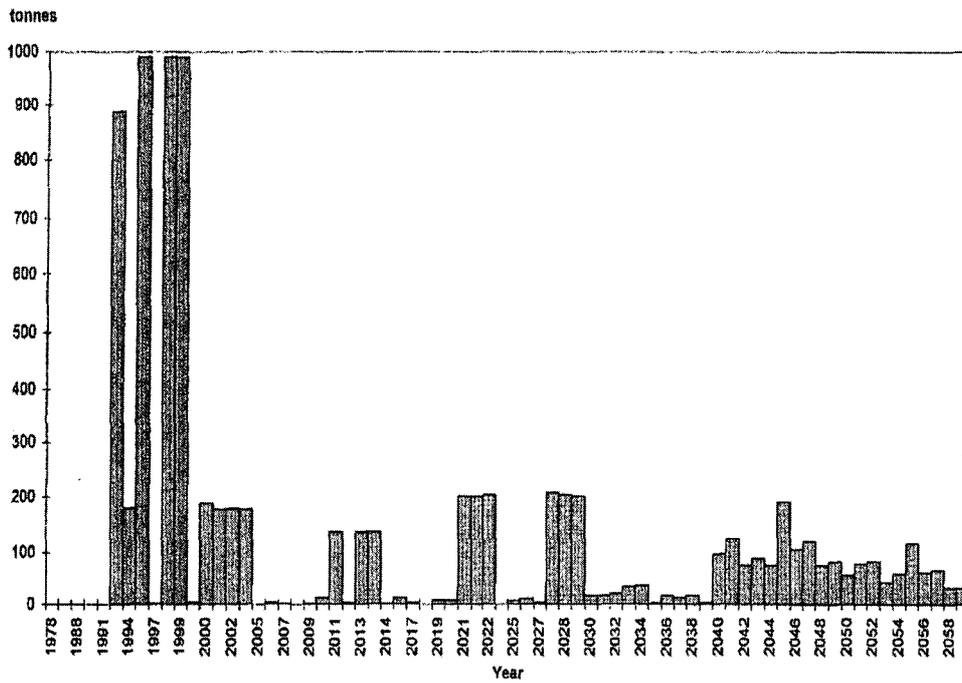


Fig. 3.2.2.3 EC aluminium LLW arisings

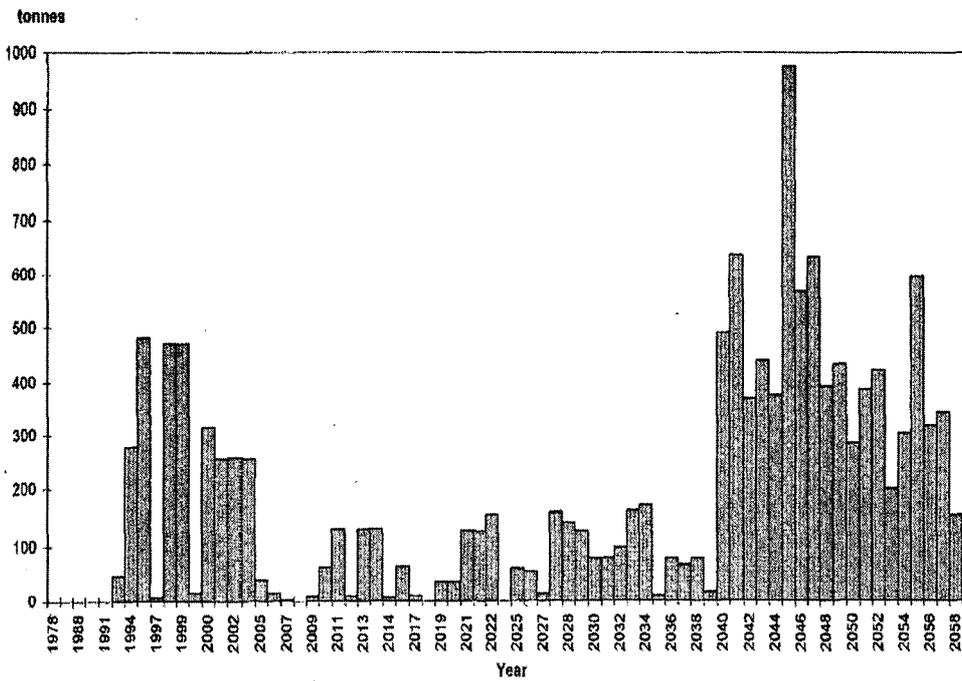


Fig. 3.2.2.4 EC copper LLW arisings

(2) 미국의 원자력 시설에서의 해체 폐기물 발생량

1994년 미국의 DOE에 의해 의뢰받아 Parsons Environmental Service에 의해 조사된 바에 의하면 1994년 당시 사용할 수 있는 방사성 금속 조각의 재고량은 203,000 ton

에 이른다고 보고하였다. 이중에서 157,000 ton은 탄소강이 차지하고 있으며 약 25,000 ton은 스테인레스강, 10,000 ton은 니켈 그리고 7,000 ton은 알루미늄으로 구성되어 있다. 그러나 이러한 자료는 건물의 구조재나 공정 및 생산시설의 장비에 대한 잠재 폐기물 발생량은 포함시키지 않았다. 1995년 Parsons Study의 발간이후 수많은 원자력 시설들이 해체되기 시작하거나 10년 안에 수많은 시설들이 해체될 예정에 이르렀으며, DOE의 D&D 계획에 따라 3개의 Oak Ridge 기체 분산 공장과 Hanford Reservation에 있는 원자로의 해체가 이루어져 수많은 금속 조각이 발생되었다. DOE의 D&D 활동에 의해 수 십년 동안 100만 톤 이상의 방사성 조각 금속(radioactive scrap metal : RSM)이 발생할 것으로 예상하였다.

(3) 세계 원자력 시설에서의 금속 조각 발생 예상량

향후 50년 동안 전 세계 원자력 시설의 철거 및 해체에 의해서 약 1,200만 톤의 금속 조각이 발생할 것으로 추정되며, 오염된 금속의 처분은 금속의 방출 기준이 나라에 따라 표면오염이나 체적오염이나에 따라 다양하기 때문에 매우 복잡하다. 비록 IAEA(international atomic energy agency)와 CEC(commission of european communities)가 기준을 설정하는 작업을 수행 중에 있으나, 현재 국제적으로 받아들여지는 저준위 오염 물질의 방출(release)에 대한 기준은 없는 실정이다. 만약 금속 폐기물이 외부로 방출되지 않는다면 이 금속들은 대부분 저준위 폐기물로서 처분된다. 그러나 현재 이용할 수 있는 저준위 폐기물의 저장소 용량은 한계에 다다랐을 뿐만 아니라, 처분 비용도 많이 소요되기 때문에 재활용하지 않고 처분한다는 것은 자원의 관리 측면에서 매우 비효율적이다.

원자력 시설에서 발생하는 금속 폐기물은 주로 구리, 철, 스테인레스강이고 알루미늄, 납, 니켈, 지르코늄은 상대적으로 적은 양이 발생한다. 또한, 핵발전소의 어떤 부품들은 다른 발전소의 보수에 사용되거나 여분으로서 매우 중요한 가치를 갖고 이러한 시장은 이미 활성화되어 있다. 원자력 시설의 해체 시 금속 조각으로 재이용하는 것보다 다른 발전소의 여분으로 재이용하는 것이 훨씬 경제적이다.

나. 해체 폐기물 재활용 시나리오 검토

(1) EU의 방사성 금속 폐기물에 대한 재활용 시나리오

원자력 분야에서 방사성 금속 폐기물의 재활용에 대한 신뢰할 수 있는 시나리오를 평가하는 것은 매우 중요하다. 신뢰할 수 있는 시나리오라는 것은 제한된 원자력 분

야의 사용에 필요한 요구사항에 적합하여 폐기물을 경제적으로 중요한 원료물질로 사용할 수 있다는 것을 의미한다. 재활용에 관한 시나리오는 1996년 5월 스페인에서 열린 회의에서 처음 제시되었으며, 영국과 스페인의 브레인스토밍 분과에서 초기에 수행되었다. 그 결과 콘크리트, 탄소강, 스테인레스강, 구리, 알루미늄의 재사용과 재이용에 대한 20개 이상의 가능한 시나리오가 확인되었다. 회의에서 확인된 시나리오는 Table 3.2.2.1과 같다. 그리고 이중에서 보다 연구할 가치가 있는 12가지의 시나리오를 선정하였으며 이를 Table 3.2.2.2에 나타내었다. 주로 방사성 금속 폐기물인 스테인레스강, 탄소강, 구리, 알루미늄에 대한 재활용과 콘크리트에 대한 재활용이다. 스테인레스강은 캐니스터나 폐기물 드럼 등으로 재활용하고 탄소강은 CIDBOX나 ISO 컨테이너 등을 제작하는데 재활용된다. 오염된 금속 조각에 일반적으로 존재하는 핵종은 ^{58}Co 과 ^{60}Co , ^{51}Cr , ^{95}Fe , ^{58}Ni , ^{65}Zn 및 ^{54}Mn 이다. 이들이 주요 분열성 핵종인 ^{134}Cs , ^{137}Cs 그리고 ^{90}Sr 과 함께 나타난다. 금속 조각이 유도로에서 용융될 때 휘발성 핵종인 Cs과 Sr은 용융물(melt)에서 이탈하기 때문에 결과적으로 슬래그와 증기로 이동한다. 이들은 그 다음에 특별한 필터 시스템에 의해 포집된다. Co, Ni, Cr, Fe, Zn, Mn과 같은 다른 핵종들은 아주 적은 부분만 슬래그로 이동하고 대부분은 용융물 안에 존재하게 된다. 용융 공정은 용융물 속에 존재하는 이들 핵종을 균일하게 분포시킨다. 이것이 원자력 시설의 해체시 발생하는 금속 폐기물의 제염을 위해 가장 중요한 점이다. 왜냐하면 폐기물의 대부분이 방사화가 되었다기 보다는 표면만 오염되었기 때문이다.

Table 3.2.2.1 The recycling and reuse scenarios for waste materials from decommissioning of nuclear facilities

Scenario No	Material	Recycling Scenario
1	stainless steel	waste drum(eg. UK 500 liter)
2	carbon steel	waste drum(eg. Spain 220 liter)
3	carbon steel	steel box for decommissioning wastes(eg. 6 m ³)
4	carbon steel	shielded box(eg. 3 m ³)
5	carbon steel	overpack-reusable box for transport
6	carbon steel	metal fibers in concrete ie re-bar replacement
7	carbon steel	metal granulate in concrete ie aggregate replacement
8	carbon steel	sacrificial moulds for casting
9	stainless steel	spent fuel storage casks
10	carbon steel	temporary shielding blocks
11	carbon steel	concrete re-bars
12	c / s steel	spent fuel transport containers
13	carbon steel	waste furniture eg racks
14	copper	direct disposal container(eg Swedish design)
15	copper	electrodes
16	copper	fusion research programme
17	copper	temporary storage container
18	aluminium	MTR fuel cladding
19	aluminium	waste containers
20	concrete	shielding in spent fuel storage facility
21	concrete	concrete casks
22	concrete	back-fill for repository
23	concrete	re-use of fuel ponds as interim waste stores
24	concrete	re-use for shielding blocks

Table 3.2.2.2 Twelve of possible scenarios for further study

No	Description	Lead Organization
1	- Stainless steel, product is □flask□	AEA Technology
2	- Carbon steel-casting, product is shielded type disposal box for medium level waste	ENRESA
3	- Stainless steel-rolling, product is generic waste drum	AEA Technology
4	- Carbon steel-rolling, product is large thin-walled box of ISO type for decommissioning wastes	ENRESA
5	- Carbon steel-continuous casting, product is re-bar for concrete	ENRESA
6	- Steel granulates/fibers-casting into water, product is aggregate for concrete	ENRESA
7	- Copper, product is direct disposal container for fuel	AEA Technology
8	- Aluminium-rolling, product is a waste canister, general purpose type for hot cells, fuel pools	AEA Technology
9	- Concrete-crush and recycle, product for incorporation into shield walls	AEA Technology
10	- Concrete-crush and recycle, product for use in construction for repository in clay	ENRESA
11	- Concrete-reuse of NNP fuel ponds as interim waste store during decommissioning	AEA Technolgy

이 금속폐기물은 용융로에 주입하기 쉽게 하기 위해서 충분히 작은 크기로 잘라져야 하며, 주입공정에 있는 동안 에어로졸의 방출을 막기 위해 적당한 air-lock이 있어야 한다. 또한, 최종 생산물의 품질을 저하시킬 수 있는 구리, 납, 카드뮴 등은 미리 분리되어야 한다. 그리고 물을 포함하는 금속 폐기물들은 미리 제거되어야 하는데, 이는 수소에 의한 폭발의 위험과 용융물에서의 증기 형성을 유발할 수 있기 때문이다. 슬래그는 용융체로부터 제거되어야 하며 방사능 농도도 계속 측정되어야 한다. 일반적으로 슬래그는 용융로의 배기 장치로부터 발생하는 필터와 마찬가지로 방사능 폐기물로 처리되어야 한다.

Siempelkamp와 연합한 GNS에 의해 수행된 실험 결과 방사능의 95~97%가 최종 생산물에 균일하게 분포되었으며, 필터 시스템으로는 1~2%, 그리고 슬래그에는 1~2% 이동하였음을 알 수 있었다. 적은 양의 추적자가 용융로의 벽에서 검출되었다. 이러한 결과는 다른 나라에서 시행된 다양한 금속 용융 실험에서 재현되었다.

자료를 얻기 위한 많은 실험들은 금속 용융에 초점을 맞추었는데, 이는 제염의 수단으로 용융이 금속을 일반 사회에 재이용 방출을 가능하게 했기 때문이다. 원자력 분야에서 금속폐기물을 재사용하기 위하여 해체로부터 발생한 금속을 용융시킨 시도는 별로 없었다. 용융된 금속을 저장 상자의 제품으로 재이용하려고 하는 세 가지의 시도가 현재 미국, 독일, 프랑스에서 진행 중에 있으며 세부적인 내용은 다음과 같다.

미국의 DOE(Department of Energy)는 Savannah River Site의 68기 공정수 열 교환기로부터 발생하는 방사성 금속 조각을 장기 보관하기 위한 스테인레스강 용기로 재이용하는 사업에 자금을 지원하고 있다. 각각의 열교환기의 무게는 100 ton으로 방사능에 오염되어 있다. 만약 처분하려면 1억 달러의 비용이 소요된다. 이 열교환기는 95%이상이 304 스테인레스강으로서 상업적인 조각 금속 시장에서 수백만 달러의 가치를 나타내고 있다. 1994년에 DOE는 방사성 금속 조각 60 ton을 용융하여 오염된 스테인레스강을 재활용하는 실험을 시행하였다. 이 용융물은 장기간의 임시 저장에 적당한 컨테이너(55 gallon 드럼과 100 ft³ 상자)로 제작되었다.

미국의 Idaho Falls Engineering Lab에서는 고밀도로 유리화된 고준위 방사능 폐기물을 위한 스테인레스강 상자와 핵연료 저장폴 임계도 장벽, 그리고 연료 저장 선반과 같은 스테인레스강 부품의 재활용을 연구하였으며, 범용 캐니스터 시스템은 사용 후 연료의 건식 저장을 실험하였다[3.2.2.1]. 또한, Idaho Falls는 오염된 스테인레스강을 가공하여 용융, 주조, rolling, 설비제작 등의 세부적인 공학 연구와 조각 금속으로부터 고품질의 스테인레스강을 생산하기 위해 필요한 정제 기술을 연구하였다.

영국의 GNS는 독일의 Siempelkamp와 함께 금속의 용융에 대한 연구를 수행하였다. 이 연구의 대부분은 용융공정에서의 정제 기술과 용융시 다양한 핵종의 거동에 대한 것이다. 용융된 물질은 형태 B MOSAIK 폐기물 캐스크와 차폐부품으로 사용되었다. 폐기물 캐스크는 이온교환수지, 증발기의 농축액, 건조 슬러지와 같은 물질의 임시 저장, 이송, 최종 처분용으로 사용되었다.

“Onion” 용융 기술을 사용하여 저준위 방사능 금속뿐만 아니라 고준위 방사능 금속으로부터 단일체 형태의 캐스크를 생산하는 기술을 개발 중이다. 이 캐스크는 IAEA와 독일의 수송 및 저장의 요구치에 충족되어 독일의 KPB-A 공장의 해체 시 사용될 예정이다[3.2.2.2].

프랑스에서는 원자력 산업으로부터 물질의 무제한 방출에 대한 규정이 없으며, Marcoule에 있는 G3 주조소는 G2/G3 원자로의 1차 회로 파이프의 해체시 발생하는

금속 조각의 처리를 위해 건설되었다. 3,500 ton의 금속이 이미 용융되었으며, 현재 주괴로 저장되어 다음 사용의 결정을 기다리고 있다. 현재 제안은 폐기물 처리 용기로 주괴를 주조하자는 것이다. EC의 지원을 받아 수행되는 G2/G3 프로젝트는 15 ton의 전기 아크 가열 용융로를 설치하여 700 ton의 금속을 용융시키는 것이다.

현재 여러 시설들이 오염되고 방사화된 금속의 용융을 위해 존재하고 있다. 금속은 시설에 반입된 후 용융로에 주입되어 용융되고 몰드로 주조되어 주괴로 시설에 저장된다. 각 물질에 포함된 방사능의 농도에 대한 한계는 각 시설마다 다양하다. 법적으로 알파 방출체, 베타-감마 방출체, 베타 방출체의 방사성 핵종에 대한 한계가 제시되고 있다.

1989년부터 운전하기 시작한 독일 Siempelkamp에 있는 CARLA 공장은 3.2 ton 용량의 전기 유도로를 가지고 있다. 이것은 베타-감마 방출체에 대해 200 Bq/g, 알파 방출체에 대해서는 100 Bq/g, 그리고 우라늄으로 오염된 경우에 특별한 한계치를 가지고 금속을 용융시키며, 베타 방출체에 대한 한계치는 매우 높다.

1987년에 가동을 시작한 스웨덴의 STUDVISK 시설은 3 ton 용량의 전기 유도로를 가지고 있는데, 물질내에 있는 알파나 베타-감마 방출체의 비방사능에 대해 설정된 한계값이 없다. 용융운전을 위한 허가는 각각의 경우에 따라 얻어진다.

Marcoule에 있는 INFANTE 공장은 특별히 G2와 G3의 원자로 해체 시 발생하는 물질의 용융을 위해 설계되었다. 1992년부터 운전을 시작하였으며, 12 ton 용량의 전기 아크로를 가지고 있다. ^{60}Co 의 최대 비방사능이 250 Bq/g까지 용융할 수 있다. 용융하고자 하는 물질에 있어 ^{60}Co 과 ^{137}Cs 이 가장 중요한 핵종이었다. 알파 방출체의 최대 방사능의 값은 설정되지 않았다.

미국의 SEG(Scientific Ecology Group Inc)는 Oak Ridge에 방사성 금속을 용융시킬 수 있는 공장을 가지고 있다. 1992년에 운전을 가동하기 시작하였으며 20 ton 용량의 전기 유도로를 보유하고 있다. 용융을 위한 물질의 허가 기준은 감용을 위한 용융과 재활용을 위한 물질의 용융으로 구분한다. 감용을 위한 방사능 한계치의 경우에는 위의 다른 공장들과 유사하게 주어진다. 설정된 한계는 물질의 방사능 농도와 방사능의 준위에 따라 좌우된다. 물질의 표면선량율은 2 mSv/h보다 적어야 하며 비방사능 한계는 핵종에 따라 다르다. ^{60}Co 이 한계는 1,850 Bq/g(5.0×10^{-2} $\mu\text{Ci/g}$)이고, ^{226}Ra 은 370 Bq/g(10 nCi/g)이다. Transuranic의 한계는 37 Bq/g(1 nCi/g)이다.

프랑스 Codolet에 위치한 CENTRACO 공장은 1997년 중반에 운전되었으며 4 ton 용량의 전기유도로를 가지고 있다. 공장에 들어오는 물질에 대한 방사능의 기준은

최대 방사능 준위가 알파 방출체에 대해 370 Bq/g이고 베타-감마 방출체에 대해 20,000 Bq/g이었다. 부가적으로 최대 선량율은 방사능 물질의 컨테이너에 접해서 2 mSv/h로 설정되었다.

스페인의 Madrid에 있는 CIEMAT의 원자로 JEN-1의 해체시 발생하는 방사능 금속의 용융을 위해 실험적인 공장이 설립되었다. 이것은 1994년에 운전을 시작하였으며 50 kg 용량의 전기 유도로를 보유하고 있다. 감마 방출체 방사성 핵종에 대해서는 상한의 한계가 정해져 있으나 알파 방출체 핵종에 대해서는 상한의 한계 값이 정해져 있지 않다.

일반적인 조건하에서 평균 방사성 핵종의 농도는 ^{60}Co 이나 감마-베타 방출체에 대해 1,500 Bq/g, 알파 방출체에 대해 100 Bq/g을 초과하지 않는다.

(가) 스테인레스강 유리화 폐기물 캐니스터 - Scenario 1

이 시나리오는 해체 시 발생하는 스테인레스강 조각 금속의 용융과 압연 시설의 공정으로부터 유리화된 폐기물의 처리에 적당한 스테인레스강의 용기로 만드는 최종 생산공정을 포함하고 있다. 초기에 주조 스테인레스강 생산품에 대해서는 이 시나리오밖에 없다고 여겨졌다. 그러나 스테인레스강은 금속판으로 만들어져 이송과 저장 그리고 방사성 폐기물의 처분을 위한 컨테이너와 같은 품목으로도 사용되고 있다. 유리화 폐기물을 저장하는 캐니스터의 생산은 고준위 폐기물과 사용 후 연료의 관리를 위해 가장 적당한 스테인레스강 생산품이라고 여겨진다.

유리화 공정에 의해 만들어진 고준위 폐기물 유리 화합물은 직경이 약 0.4 m이고 높이가 1.3 m인 스테인레스강 캐니스터에 주입된다. 이 컨테이너의 모형은 Fig. 3.2.2.5와 같다. 컨테이너는 약 400 kg(150 liter)의 용융 pot에서 2번 정도 부어서 넣는다. 그 다음 컨테이너는 서서히 냉각시켜 밀봉한 다음, 제염실에서 고압수 분사로 표면오염 물질을 제거한다. 유리화된 생산품 저장소는 정육방체의 모양으로 크게 4부분으로 구성되어 있다. 각각의 부분은 바닥이 thimble 튜브로 밀봉되어있고 천장은 마개로 되어 있으며 10층으로 쌓을 수 있는 여러 개의 저장 channel이 있다. 이 저장소의 용량은 8,000개의 컨테이너까지 보유할 수 있다. 유리화된 폐기물 컨테이너는 약 50년 동안 저장소에 보관될 것이다.

Sellafield에 있는 유리화 공장의 컨테이너 사용량은 라인 1과 2에서 1년에 400~425개 정도이고 1999년에 라인 3이 가동되면 1년에 250개 정도의 컨테이너가 더 요구된다. 따라서 2000년 이후에 요구되는 스테인레스강 컨테이너는 1년에 최대 625개

정도이다. 이 컨테이너는 deep-drawn pressing으로 잘 알려진 공정에 의해 SS309의 스테인레스강으로 제작되어진다. 빈 컨테이너의 무게는 75 kg 정도이며 평균 벽의 두께는 5 mm이다. 따라서 이러한 컨테이너를 제작하기 위해서는 1년에 50.6 ton의 스테인레스강이 요구된다. 앞으로 2050년까지 유리화 공장의 운영을 위해 최대 2,530 ton의 스테인레스강이 필요하다. 이에 반해서 조각 금속으로 발생할 스테인레스강의 양은 약 4,000 ton이다. 그러므로 유리화 생산품의 컨테이너를 생산하기 위해 필요한 것 보다 더 많은 조각 금속을 이용할 수 있다고 생각된다.

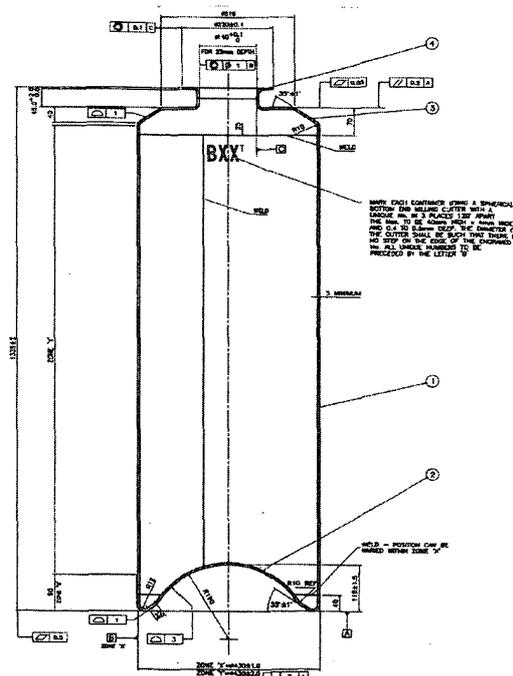


Fig 3.2.2.5 Stainless steel canister for a nitrified waste

경제성 분석 결과 유리화 폐기물 컨테이너의 제작을 위한 재활용의 비용이 폐기물로서 처분할 때의 추산 비용보다 상당히 큰 것을 알 수 있었다. 경제성 분석은 압연 공장이 1년 동안 요구되며 이에 따라 짧은 기간동안 상당히 많은 비용을 투자해야 한다고 가정하였다. 이 생산품의 제조는 다른 목적으로 사용될 수 있는 스테인레스강 판으로 다른 생산품을 제조할 수 있게 조합되어 있다. 또한 발생하는 금속 조각이 상당히 많기 때문에 여기에 제안된 시나리오에 모두 이용할 수 없다. 따라서 발생하는 금속 조각의 무제한 방출이나 일반 사회로의 물질 재활용에 대한 폭넓은 사용 전략을 포함한 시나리오가 더 많이 구상되어야 한다. 통합된 전략은 폐기물의 부

피 감소의 목적뿐만 아니라 재이용을 위한 재활용으로 제어된 용융시설을 보다 많이 사용하게 할 것이다. 금속 압연의 경제성 분석 결과 만약 몇 년 동안 운전할 수 있을 정도로 원자력 산업에서 스테인레스강의 컨테이너에 대한 충분한 수요가 있다면 압연 시설은 사용가능하다.

미국의 연구 결과도 유사함을 알 수 있으며, 미국도 원심 주조를 사용하여 유리화 캐니스터를 제작하는 등의 새로운 대안을 고려중이다. 문헌에 의하면 유리화 처리된 고준위 폐기물(HLW)을 위한 HLW 처분 캐니스터의 생산에 대한 가능성을 시험하고 있다. 현재 스테인레스강판을 가공하고 용접하여 304 L의 캐니스터를 생산하고 있다. 미국의 연구는 back-extrusion의 방법에 의해 저준위로 오염된 금속 폐기물로부터 캐니스터를 생산할 수 있음을 제안하고 있다.

대포의 포신을 포함해서 여러 가지의 다른 물품을 back 압축성형으로 제작하는 것처럼 알루미늄 음료 캔도 이러한 방법으로 성형된다. Back 압축 성형된 컨테이너의 가장 큰 두 가지의 장점은 다음과 같다. 첫째, 통의 반을 결합하는데 한번의 들레 용접을 하면 된다. 둘째, 생산 공정에 고비용의 압연공장이나 스테인레스강의 주괴를 가공하기 위해서 정밀한 성형 설비를 요구하지 않는다.

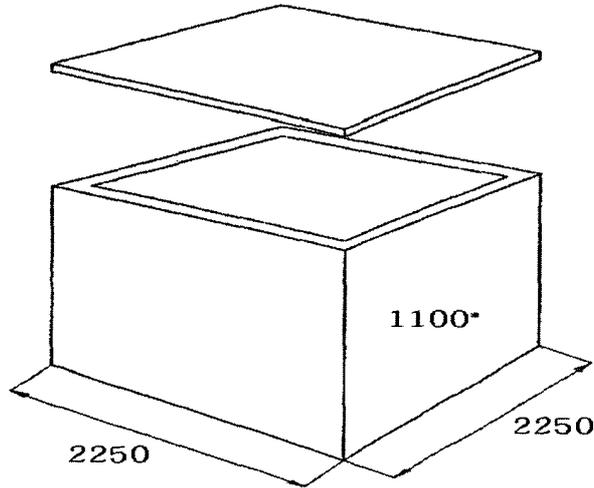
따라서 경제적 관점에서 볼 때 비록 이 시나리오가 실현가능성이 없어 보이지만, back extrusion의 방법을 사용하여 생산되는 컨테이너의 제작은 대안적인 접근방법을 제공한다.

(나) 탄소강 주조(차폐 처분 box) - Scenario 2

최종 생산품은 중·저준위 폐기물을 위한 주철 처분상자(CIDBOX)로서 스페인의 원자력 시설 해체로부터 발생하는 방사성 탄소강을 이용하여 제조한다. 현재 콘크리트 처분 컨테이너는 스페인의 El Cabril 처분 시설에서 연간 440~500개가 사용되고 있으나 이 콘크리트 컨테이너를 재활용 금속 조각으로 만들어진 금속 컨테이너로 교체하려는 생각 중에 있다. 재활용 공장의 처리용량은 연간 2,000~3,000 ton으로 4.5 ton의 전기 유도로를 사용하여 연간 200개의 상자를 만들 수 있다. 이 상자들은 El Cabril에 있는 약 100개의 콘크리트 컨테이너를 대체하는데 사용할 수 있을 것이다. 고안된 CIDBOX는 전체 부피가 약 $5 \text{ m}^3 (2.25 \text{ m} \times 2.25 \text{ m} \times 1.1 \text{ m})$ 이고 두께가 50 mm이며 200 L 드럼 9개를 저장할 수 있다. 뚜껑을 포함한 상자의 무게는 9,500 kg 정도로 약 3,000 kg의 방사성 폐기물을 저장할 수 있다. CIDBOX의 개략도는 Fig. 3.2.2.6에 나타내었다. CIDBOX의 크기는 El Cabril에서 현재 사용되고 있는 콘크리트

컨테이너 절반의 크기에 상응한다.

스페인인 2000년부터 핵 시설의 해체에 의해 약 20,000 ton의 탄소강 조각 금속을 이용할 수 있으며, 이 양은 이러한 재활용 공장에서 10년 동안 원료물질로 충분한 양이다. 스페인에서는 2005년 이후부터 재활용 공장을 운영할 계획이다.



* Including LID

DB- 9/5	Dimensions	$L \times W \times H = 2,250 \times 2,250 \times 1,100$ mm
	Volume (GROSS)	$= 5\text{m}^3$
	Volume (NET)	$= 4.6\text{m}^3 < > 9 \times 200\text{L drum}$
	Weight	$= 7,560$ kg
	LID Weight	$= 1,974$ kg
	Shielding	$= 50$ mm

Fig. 3.2.2.6 CIDBOX - cast iron box for disposal of wastes

스페인의 처분과 제조의 비용을 비교해 볼 때 탄소강의 조각을 금속 처분 컨테이너로 가공하여 재활용하는 시나리오는 경제적으로 가능성이 있음을 보여준다.

(다) 스테인레스강 압연(폐기물 드럼) - Scenario 3

이 시나리오는 영국의 핵 산업에서 발생하는 재활용된 LLW의 금속을 사용하여 Nirex 저장시설에서 ILW의 저장과 처분을 위해 사용되는 폐기물 드럼을 제조하는 것이다. 이 시나리오의 경제적 및 기술적 가능성을 평가하기 위해서 발생하는 폐기물의 양에 맞게 용융과 제조가 통합된 공장을 설립하려고 한다. 통합된 용융 및 제조 공장은 미국의 Idaho Falls 프로젝트에서 이미 제안되었다[2.2.2.1].

영국의 Nirex 저장소에서 ILW의 처분을 위한 제안된 포장은 스테인레스강(316 L)

로 제작된 500 L 드럼이 있으며, 이 드럼에 넣지 못하는 것은 스테인레스강으로 만들어진 3 m³의 상자에 넣어 처분한다. BNFL, UKAEA, AWE와 NE와 같은 회사에서 생산되는 500 L 드럼은 여러 가지 약간 다른 디자인을 가지지만 전체 용량은 같다. 드럼의 직경은 0.8 m이고 높이가 1.2 m이며 평균 드럼의 두께는 2.5 mm이다. 드럼의 평균 무게는 130 kg이며, 전형적인 형태는 Fig. 3.2.2.7와 같다. 드럼의 제작은 스테인레스강 판을 용접하여 만든다.

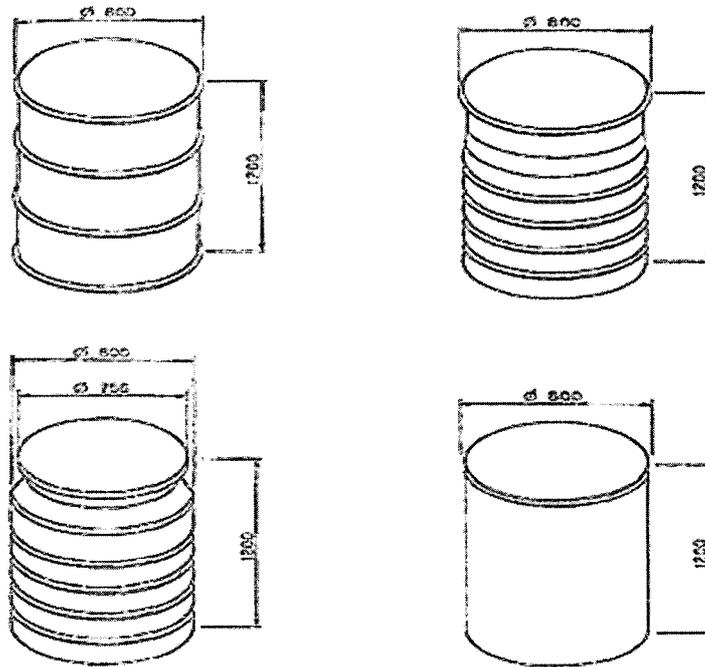


Fig. 3.2.2.7 Various structure of 500 liter drum

현재 영국의 Nirex 저장소에서 처분이 계획된 ILW와 LLW의 양은 약 275,000 m³(1996)이고, 추산되는 ILW와 LLW의 비율은 비는 3:1(1995)이다. 따라서 206,250 m³의 ILW 폐기물을 처분하기 위해서는 500 L 드럼 412,500개가 필요하다. 이러한 가정에 기초하여 계산하면, 드럼을 생산하기 위해 필요한 스테인레스강의 전체 양은 26,800 ton이다.

2060년까지 영국에서 발생될 스테인레스강 폐기물의 예상량은 연간 2,000 ton으로 2020년부터 2029년까지는 연평균 4,400 ton으로 최대의 발생량이 예상된다. 따라서 발생할 스테인레스강의 양은 폐기물 드럼의 제조를 위해 필요한 양보다 훨씬 많다.

경제성 분석은 압연 공장이 모든 금속을 금속 폐기물 드럼으로 가공한다면 단지 3년 동안만 가동이 될 수 있다는 결과를 나타내었다. 만약 다른 생산품을 가공할 수

없다면, 짧은 기간동안 너무 많은 비용이 투자된다. 용융과 압연을 합한 전략은 부피감소의 목적과 재활용 및 재사용을 위해 고안된 용융시설을 보다 잘 이용하게 한다. 미국의 자료는 일반적인 산업에 사용되는 공장의 크기가 영국의 핵 시설에 사용하기에는 조금 크다는 것을 암시한다. 따라서 다른 나라의 큰 시설보다는 유럽의 큰 시설이나 다른 방사성 폐기물의 용융을 위한 시설을 고려해 봐야 할 것이다. 영국의 Sellafield에서 발생하는 스테인레스강 폐기물은 재활용 전략을 가져오기 위한 충분한 동기를 유발하지 않는다.

(라) 탄소강 압연(ISO 컨테이너) - Scenario 4

ISO 컨테이너는 스페인 핵 시설의 해체시 발생하는 방사성 탄소강으로부터 제조되는 최종 생산품이다. ISO 컨테이너는 단지 방사성 물질을 수송에만 사용된다. ISO 컨테이너는 넓이가 2 m인 판을 가지고 제작한다. 이 판을 제조하기 위해서는 큰 시설이 필요하며, 컨테이너를 제작하기 위해서는 넓은 작업장이 필요하다. ISO 컨테이너의 개략도는 Fig. 3.2.2.8과 같다. ISO의 무게는 대략 4.5 ton으로 대략 2.5 ton은 바닥 판의 무게이며 2.0 ton은 벽면의 무게이다. 연간 10개의 ISO 컨테이너가 필요한데 이를 생산하기 위해서는 연간 25 ton의 판 제품이 요구된다. 이에 따른 압연공장 설비의 최소 용량은 연간 200,000 ton에 이른다.

2000년부터 스페인의 원자력 시설 해체로부터 발생하는 방사성 폐기물의 추산 양은 연간 20,000 ton 이상으로 예상된다. 이는 재활용 공장에서 원료 물질로 10년 동안 사용해도 될 충분한 양이다. 스페인에서는 2005년 후부터 재활용 공장을 운전할 계획이다. 따라서 ISO 컨테이너의 제조를 위해서는 연간 조각 금속 생산량의 1.25%만이 요구된다.

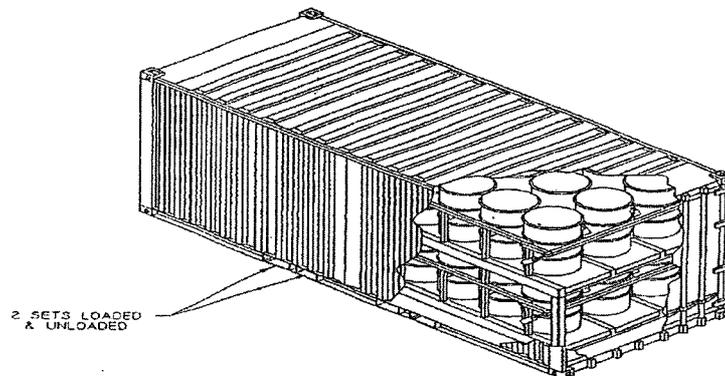


Fig. 3.2.2.8 Schematic of ISO container

이 시나리오는 ISO 컨테이너의 제조에 사용되는 금속 판재의 생산을 위한 압연 공

장의 준비에 대한 부가적인 자산 비용과 시설의 용량에 비해 매우 적은 공장의 가동률 때문에 실행 불가능하다. 부가적으로 낮은 방사성 물질로 만들어진 ISO 컨테이너는 수송 컨테이너로 사용하기 위해 요구되는 방사선학적 및 행정상의 규제와 같은 본질적인 문제를 유발한다. 이러한 이유 때문에 이 시나리오는 더 많은 고려가 필요하다.

(마) 탄소강 연속 주조(Reinforcement bar) - Scenario 5

강화 막대(reinforcing bar)는 스페인 핵 시설의 해체시 발생하는 방사성 탄소강으로부터 제조되는 최종 생산품이다. 제조된 강화 막대는 콘크리트 처분 컨테이너에 전체 또는 부분적으로 상업적 강화 막대를 대신하여 사용된다. 콘크리트 컨테이너는 직경이 10 mm인 강화막대를 사용하여 제조된다. 현재 El Cabril 처분장에서 연간 440~500개의 콘크리트 컨테이너가 사용된다. 각 콘크리트 컨테이너는 약 620 kg의 강화 막대를 혼합하여 제작되고 있다. 따라서 처분장에서 요구되는 막대의 양은 연간 273~310 ton에 이른다. 2000년부터 스페인의 핵 시설 해체로부터 발생하는 방사성 폐기물의 추산 양은 연간 20,000 ton 이상으로 예상된다. 이는 재활용 공장에서 원료 물질로 10년 동안 사용해도 될 충분한 양이다. 강화 막대를 생산하기 위해 방사성 금속 조각을 사용할 경우에 연간 금속 조각 생산량의 15%가 강화 막대의 원료 물질로 요구된다.

스페인의 자료를 사용한 경제성 분석은 콘크리트 처분 컨테이너의 제작에 사용되는 강화 막대의 생산품으로 금속을 재활용하는 비용이 금속 폐기물로 처분하는 비용에 절반 정도임을 보여준다. 본 시나리오를 가능하게 하는 수송과 금속 조각 취급에 관련된 추정에 대한 시나리오의 재평가는 본 시나리오를 경제적으로 유용하게 만들기 위해서 표면 처분 시설에 대한 처분 부담이 약간 상승함을 나타낸다.

(바) 시멘트 강화를 위한 탄소강 과립 및 섬유 - Scenario 6

입자 형태의 주철은 스페인 원자력 시설의 해체시 발생하는 방사성 탄소강으로부터 제조되는 최종 제품이다. 제조된 입자는 드럼에서 폐기물의 고정화 및 충진을 위해 사용되는 시멘트 모르타르(mortar) 속에 전체 또는 부분적으로 모래를 대신하여 사용된다. 또한 부가적으로 금속 섬유의 제품이 최종 생산품으로 고려 중에 있다. 그러나 이 경우에 섬유는 처분 컨테이너 속의 드럼 사이에 위치하거나 컨테이너가 시멘트 풀(grout)로 채워져 있을 때 시멘트 matrix와 혼합되어있다. 현재 El Cabril 처

분장에서 사용되고 있는 시멘트 풀(grout)은 모래 175 kg과 시멘트 100 kg으로 구성되어 있다. 모래를 금속 입자로 대체하여 증가된 질량은 무시할 만하다. 각 컨테이너에서 4,550 kg의 시멘트와 모래의 혼합물에 사용된 모래는 2,800 kg이다. 만약 모래의 50%를 금속 입자로 대체한다면, 컨테이너당 3,800 kg의 금속이 요구된다. 금속 입자로 모래를 모두 대체하면 컨테이너당 7,600 kg이 될 것이다. 현재 El Cabril 처분장에서 연간 440~500개의 콘크리트 컨테이너가 사용된다. 그러므로 만약 모래 50%와 금속 입자 50%를 사용한다고 가정하면 연간 1,670 ton의 금속 입자가 사용될 것이다.

스페인의 비용을 사용한 경제성 평가는 섬유나 금속 입자의 생산 비용이 거의 비슷하지만 금속 입자의 생산 비용보다 섬유 생산 비용이 약간 높음을 알 수 있었다. 두 경우 모두 조각 금속을 처분장에 얇게 매립하여 처분하는 것보다 상당히 비용이 적은 것을 알 수 있다. 두 경우에서 경제성을 가지기 위해서는 표면 처분이 요구된다. 재활용과 처분에 대한 추정 비용은 2차 폐기물을 컨테이너에 초고압압축에 의해 처리했느냐 아니면 직접 처분했느냐에 따른 포장 밀도와 관련한 가정에 따라 크게 좌우된다.

(사) 알루미늄 저장 캐니스터 - Scenario 8

원자력시설의 해체시 발생하는 물질중의 하나가 알루미늄이다. 특별히 알루미늄은 우라늄 확산 농축 공장과 시설 부지를 줄이기 위한 우라늄 원심분리기 공장에 많은 양이 사용되었다. 또한 알루미늄은 일반적으로 적은 용량의 원자력 발전소 공장의 해체시 발생된다. 본 연구는 영국의 핵 시설에서 발생하는 저준위 알루미늄 금속 조각의 재활용과 핵시설 내에 알루미늄을 재사용을 위한 재활용 가능성을 평가하고자 한다. 알루미늄은 아주 오래 전부터 산업적으로 많이 사용되어져왔으며 이에 따라 많은 금속 조각이 발생하고 이를 처리하는 수많은 2차 정련소가 건설되어 알루미늄 금속 조각을 주괴로 만들어 처리하고 있다. 본래의 높은 가치 때문에 알루미늄의 재활용은 경제적으로 매우 매력적이다. 알루미늄과 알루미늄 합금은 현대 기술로 손실 없이 용융시켜 다시 주조할 수 있다. 새로운 주괴를 만드는 알루미늄의 재활용은 최초 용해로의 공정을 통해서 같은 양의 알루미늄을 생산하기 위해 필요한 에너지의 95%를 절약할 수 있다. 다양한 알루미늄 금속 조각은 오염의 정도에 따라 가공, 처리된다. 알루미늄 변전기는 일반적으로 물, 기름, 철에 의해 오염되어 있다. 그러므로 건조시킨 후 기름을 제거하고, 자석에 의한 공정을 통해 철을 제거해야 한다. 알

루미늄 음료수 캔의 경우 용융 시 증기 발생을 증가시키는 래커 코팅을 제거하는 처리가 수행되어야 한다.

조각 금속의 품질에 따라 여러 용융 공정이 사용된다. 깨끗하고 코팅이 없는 조각 금속은 반사로(reverberatory furnace)에서 용융되고, 변압기와 같이 잘 분리되는 물질은 코일이 없는 유도로에서 용융시킨다. 오염이 적게 된 조각 금속은 유동성 있는 회전로(rotary furnace)에서 용융하고, 금속 볼트와 같이 여러 가지 물질로 오염된 조각 금속은 경사진 hearth 로(sloping hearth furnace)에서 용융시킨다. 용융금속을 심한 충격 없이 고품질의 알루미늄 합금을 생산할 수 있는 유동체와 여과 기술이 개발되고 있다. 대부분의 2차 알루미늄 용융로는 배기가스에 최소의 분진과 다른 물질이 포함될 수 있게 하기 위해서 섬유 필터가 설치되어 있다. 2차 알루미늄 정련기는 구리와 망간과 같은 다른 물질을 포함하고 있는 알루미늄-실리카 합금 시스템을 기준하였을 때 그들 물질의 대부분을 주조 주괴로 변환시킨다. 이들 주괴는 알루미늄 주물을 만드는데 사용된다. 몇몇 2차 정련기는 탈산소제와 경화제, 알루미늄-망간 합금을 생산한다. 상업적인 회사인 Alcan은 영국의 Warrington에 있는 알루미늄 음료수 캔을 재활용하는 공장이다. 만족스러운 알루미늄 주괴를 생산하기 위해서 99.7%의 알루미늄을 용융시킨다. Alcan은 25 ton의 주괴를 생산하여 새 음료수 캔을 생산하는 독일의 압연 mill 회사로 이송한다. 알루미늄을 위한 압연 mill은 전형적으로 2개나 4개의 열간 압연 mill이 있고 그다음에 냉간 압연 mill로 구성되어 있다.

영국에서 추산되는 저준위 방사성 알루미늄의 대부분은 Capenhurst에 있는 우라늄 농축 공장의 해체시 발생될 것으로 예상된다. 보다 많은 양의 알루미늄 조각 금속은 Capenhurst에 있는 Urenco 소유의 원심분리 우라늄 농축 공장의 해체시 발생할 것이다. 알루미늄 조각 금속은 전체 폐기물에 대해 1% 정도밖에 없기 때문에 이를 재활용하기 위해서 분리한다는 것은 비경제적이라고 생각된다. 핵 시설에서의 정기적인 운전의 결과 발생하는 알루미늄의 폐기물 양은 무시할 정도이다. 1996년부터 2050년까지 영국에서 발생될 것으로 추산되는 알루미늄의 양은 9,000 ton 정도이다. EC에 의한 조사의 결과도 마찬가지로 발생할 알루미늄 조각 금속의 양은 아주 적다. 핵 발전소의 해체시 알루미늄의 발생량은 연간 100 ton 미만일 것이다.

이 시나리오의 최종 생산품인 폐기물 캐니스터는 Sellafield에 있는 BNFL 시설과 AEA에 의해 사용된다. 이 캐니스터는 나선형 뚜껑을 가지고 있는 작은 실린더형의 컨테이너이다. 전형적으로 높이가 2~10 cm이며 직경이 10 cm이다. 이것들은 일반적으로 PIE 시설에서 검사하는 동안 사용후 연료의 저장과 표시를 위해서 사용된다.

알루미늄은 원자로 연료나 연구용 원자로의 코팅 물질로 광범위하게 사용된다. 그러나 많은 연구용 원자로는 폐쇄되거나 해체됨으로서 점차적으로 감소하고 있다. 따라서 핵 시설 내에 재활용된 알루미늄의 사용은 제한되고 감소되고 있다. 우라늄 농축 시설의 해체 결과 다량의 알루미늄이 발생하기 때문에 이 재료를 새로운 농축 시설의 건설에 재활용할 수 있는 가능성을 검토 중에 있다. 그러나 새로운 농축 시설은 많은 알루미늄을 필요로 하지 않는 레이저 농축과 같은 방법을 채택하고 있기 때문에 이 방법은 실현 가능성이 희박해 보인다. 따라서 이러한 정황으로 볼 때 알루미늄 폐기물은 효과적으로 제염하여 일반적인 상업 시장에 자유 방출에 의해 처리하는 것이 가장 좋은 방법이라 생각된다. 자유 방출의 기준에 미치지 못하는 용융된 조각 금속은 오래전부터 고려된 금속 재활용의 시나리오를 위해 제강 산업에서 사용되어온 탈산소제의 제조를 위해 사용될 수 있다.

(2) 미국의 방사성 금속 폐기물에 대한 재활용 시나리오 검토

미국의 방사성 금속 폐기물의 처리 방법은 처분(매립), 제한적 재사용(restricted reuse), 그리고 무제한적인 방출(unrestricted release)이다. DOE와 원자력 시설에서 발생하는 금속 폐기물의 80%는 부피 감용의 공정을 거친 후 매립하는 방법을 이용하여 처리하고 있다. 제한적 재사용은 매립을 대체하는 방법으로 이러한 물품은 매우 제한적인 곳에 사용되며 일반적인 금속 산업 시장으로는 방출이 금지되어 있다. 제한적 재이용이 가능한 방사성 조각 금속(RSM, radioactive scrap metal)은 금속, 부품, 장치의 형태로 재사용이 가능한데 이에 대한 세부적인 사항은 다음과 같다. 첫 번째는 방사성에 오염된 폐 부품이나 장치는 제염하여 안전하고 제한된 장소에 본래의 이용 목적에 맞게 현재의 형태를 유지하면서 재이용하는 것이고, 두 번째는 차폐 블록(shielding block)처럼 제한된 물품을 만들기 위해 방사성 조각 금속을 용융하거나 재가공하여 형태를 다시 변형시켜 이용하는 것이고, 세 번째는 건조된 방사성 폐기물의 포장을 위한 55 gallon의 드럼을 만들기 위해 제한된 목적으로 사용하는 것이다.

방사성 조각 금속의 대부분은 상업적 자격을 갖춘 시설인 Nuclear Power Plant와 DOD(Department of Defense)에서 처리한다. 표면이 제염된 RSM은 적당한 크기로 절단되고 용융로에 넣은 후 DOE에서 관리하는 accelerator로 사용하기 위한 10 ton의 차폐 블록으로 가공한다. 이러한 차폐블록은 DOE의 "Spallation Neutron Source" 시설에 사용될 수천 ton의 차폐 블록으로 이용될 것이다. 이러한 제한적인 재사용은 원

자력 시설에서 발생하는 수많은 RSM의 처리에 대한 안전성 및 경제성이 보장되어야만 더욱 많이 이용될 것이다. 금속 폐기물을 처분하는 대신에 차폐 블록으로의 제한적인 재이용은 RSM의 재고량을 일정량 사용할 수 있는 상업적인 시장을 형성하게 했으며 금속 폐기물량의 최소화와 오염방지, 그리고 재활용을 더욱 활성화시켰다.

NMR(National center of excellence for Metals Recycle)은 안전하고 경제적으로 RSM(including metal, excess equipment and large component)을 매립하는 대신에 자유 방출(free release)할 수 있는 혁신적인 방법을 연구해왔다. 예를 들어 1999년 NMR은 DOE의 저준위 매립장인 Nevada Test Site(NTS)에 매립될 것으로 예정되어 있는 1,300 ton의 구리 winding에 대하여 자유 방출을 수행하였다. NMR은 오염된 절연피복을 효과적으로 제거하기 위한 안전하고 효과적인 기술을 사용하여 오염된 구리를 제염처리하였다. 이러한 처리를 통하여 구리의 처분 비용과 처리한 장소의 제염 비용을 고려했을 때 DOE는 \$7.3 million를 절약하였다. DOE는 원래 구리 winding의 매립을 위해 \$1.5 million의 예산을 책정했었다. 그러나 구리의 매입자가 구리의 매입액으로 \$1.1 million를 지불했으며, DOE가 자원 보전 및 회수 법령(Resource Conservation and Recovery Act)에 의거하여 중장비(heavy equipment)에 보상해야할 \$6.9 million를 절약할 수 있었기 때문에 \$7.3 million를 절약할 수 있었다.

1998년과 1999년 사이에 NMR은 RSM이 DOE 저장 시설로부터 재활용이나 제한적 및 무제한적인 사용을 위한 재이용의 이동 경로에 대한 광범위한 조사를 수행하였다. 그러나 DOE에서 발생하는 RSM의 연간 재고량 중 상당량이 직접 매립에 의해 처리되며, 이는 매립에 의해 처리되는 양을 최소화하고 경제성을 증가시키기 위해 부피감소 및 제염 처리되는 양의 몇 배에 해당한다.

1998년과 1999년 사이에 ARMR(Association of Radioactive Metal Recyclers)과 그 회사에서 처리한 RSM의 양은 약 10,000 ton에서 12,000 ton(7,800 ton came from Nuclear power plant, 3,000 ton came from DOD, remaining 1,200 ton came from the DOE) 정도로 추산된다. 1998년 한해에 거의 9,000 ton 정도가 금속 산업 시장에 무제한 방출을 위해 처리되었으며, 나머지 3,000 ton의 탄소강과 스테인레스강은 차폐 블록을 만들기 위해 용융시켜 가공처리하였다. 그 후 1999년 중반까지는 제한적 재이용을 위한 응용이 연구되었다. 차폐 블록을 만들기 위해 GTS Duratek(ARMR member)은 DOD(Department of Defense)에서 발생된 탄소강 조각을 사용하였다. 상업적인 원자력 발전 시설에 재활용이나 재이용으로 사용될 금속은 탄소강이 65%, 스

테인레스강이 15%, 구리가 10%, 그리고 알루미늄이 5% 정도이고, RSM에 오염되어 있는 방사성 동위 원소는 Fe-55, Co-60, Ni-63, Mn-54이다. DOE에서 재활용 및 재이용을 위해 방출되는 금속은 탄소강이 75%, 스테인레스강이 8%, 구리가 7%, 알루미늄이 1.5% 그리고 니켈이 0.7% 정도이다.

NMR의 노력에 의하여 DOE는 안전하고 경제성있는 금속의 재활용 및 재이용을 위한 기원의 기초를 설립하였다. NMR의 도움에 의해 DOE는 거의 40,000 ton의 방사성 조각 금속을 매립하지 않았으며, 이는 처분에 관련된 비용인 \$40 million를 절약한 것이다. NMR에 의해 관리되어 완성되었거나 진행 중에 있는 과제의 목록과 NMR에 의해 새롭게 제안된 재활용 및 재이용의 과제에 대한 목록이 Table 3.2.2.3과 3.2.2.4에 나타나있다.

Table 3.2.2.3 Completed and ongoing projects

Projects	Recycled Material (metric tons)	Dollars(\$)	Validation
		17,000	
Weldon Springs Scrap Yard	218	452,751	Site
Sale of Metal Pallets	244	2,126,000	UT**
ORNL Tower Shielding	468	1,136,000	Site
Sale of LLW Drums	187	149,500	Site
B-25 Box Recycle	102	691,629	UT
K-1401 Machine Tools	9,072	1,103,833	UT
ETTP Switch Yards	4,088	2,500,038	UT
KAFaD Group I Demolition	1,689	637,317	UT
Metal Pallets Reuse by BNFL	376	7,200,000	UT
FEMP Copper Recycle	1,216	532,176	Site
Recycle/Reuse Y-12 Machine Tools	123	26,500	UT
Mound Plating shop	45	72,000	Site
ORNL Breeder Steel	16	10,880	UT
SS Drum Transfer to Los Alamos	1	TBD*	Site
RFETS Metals Recycle	514	55,000,000	Site
ETTP 3-Building D&D	7,501	Credit*	UT
ORNL Scrap Metal and Pans	2,973	11,333,293	site
ETTP K-1200	117	TBD*	
Hanford Trins/Equipment	317	2,600,000	
		(~4,600,000)	
ORNL Biology Division Buildings at Y-12	717	1,250,000/year	
	(+9,000 items)	*	
ETTP Copper Spools	212	Burial Cost	
K-1094 Scrap Yard	470	TBD	
ORO Electronics	100	TBD*	Site
Mound Tritium Equipment	6	TBD*	Site
ORO EM Site Metals Recycle Program	2,144	469,716	Site
ORNL Site Metals Recycle Program	2,040	1,438,269	Site
		9,114,000	
		431,422	
Total	37,853	40,808,678	

* Amounts not included in total savings.

** UT-University of Tennessee Business School

Table 3.2.2.4 New project initiatives

Project	Recycled Material (metric tons)	Dollars(\$)
K-700 Scrap Yard	27,200	23,000,000
Y-12 Scrap Yard	19,960	TBD
ORNL Tower Shielding Sodium Contaminated Vehicles	6	TBD
BNFL Concrete	567	TBD
ORNL Annual Scrap Metal Sales	28,803	149,500
Shield Blocks	500	TBD
Aluminium Blades	8,229	6,000,000
Coal Handler / Water Tower	329	2,400,000
ETTP UF6 Cylinders	Disposal of Facility	TBD
ORNL ISV Hood and Structure	Approx. 1,200 Cylinders	TBD
Commercial Gas Cylinders	47	TBD
Brookhaven Graphite Research Reactor	Approx. 250 Cylinders	TBD
Yttrium Oxide	970	TBD
Ohio Concrete Crusher	1	TBD
	40,000	15,000,000

(3)독일의 방사성 금속 폐기물에 대한 재활용 시나리오 검토

독일은 1981년에 아주 낮은 방사능으로 오염된 금속 조각의 재활용을 위한 R&D 연구를 시작하였으며, 1983년에 Siempelkamp에 EC에서 지원하는 R&D 프로그램을 시작하였다. 초기에 연구는 200 ℓ 드럼 전체를 용융시킬 수 있는 20 ton 용량의 유도로에서 수행되었다. 용융에 의한 경제성 평가는 1989년에 CARLA(Centrale Anlage Zum Recyclieren Leichtaktiver Abfälle)에 지어진 용융 장치를 이용하여 수행하였다.

재활용을 위해 10년 동안 14,000 ton의 방사성 금속 폐기물을 용융시켰으며 1차 용융에 의해 12,000 ton이 용융하였고, 주괴로부터 입자상의 금속을 생산하기 위해 2차 용융으로 2,000 ton을 용융시켰다. 용융된 방사성 금속 폐기물의 조성을 보면 탄소강이 9,562 ton으로 79%, 스테인레스강이 2,080 ton으로 17% 그리고 비철금속이 476 ton으로 4%를 차지하였다. CARLA에서 생산된 12,000 ton의 금속 중에서 방출되거나 다른 물품으로 재활용된 목록은 Table 3.2.2.5과 같다. 전체 재활용된 양의 25%를 차지하는 MOSAIK의 컨테이너는 3,000 ton을 재활용하여 IAEA에 의한 지정된 Type A 와 Type B 형태의 컨테이너 400개를 만들었으며, 2,500 ton은 Forschungszentrum Karlsruhe의 연구 센터에 있는 KASKADE 차폐를 위한 차폐 판(shielding plate)으로

재활용되었다. 또한 hot cell이나 폐기물 관리 시설의 차폐 문(shielding door)으로 응용되어 재활용될 수도 있다.

Table 3.2.2.5 Recycling balance in the CARLA

Quantity(total = 12,000 ton)	Recycling balance
3,000 ton	MOSAİK container
2,500 ton	Shielding(KASKADE bulk shielding)
1,500 ton	Heavy concrete components(granules recycling)
2,500 ton	Release
2,500 ton	Storage for recycling

다른 재활용의 용도는 2 m × 1.6 m × 0.85 m 크기의 “Monolith” 컨테이너를 제작하는 것으로 이 컨테이너는 상당히 많이 방사화된 금속 조각을 충전한 후 최종 처분을 위해 나머지 부분은 낮은 농도로 오염된 물질의 용융물을 채워 처리한다. 주철로 스테인레스강을 재활용하는 것은 크롬과 니켈의 함유량에 따라 제한을 받는다.

콘크리트 폐기물 컨테이너에는 hematite와 같은 철광석이 사용되는데, 이러한 철광석 첨가제는 미미하게 오염된 금속 조각을 재활용한 금속 과립으로 대체할 수 있다. Siempelkamp는 water jet 흐름에 액체 금속을 부어넣음으로서 액체 금속으로부터 과립 형태의 금속을 만드는 기술을 개발하였다. 직경이 1에서 8 mm의 금속 과립은 콘크리트의 첨가제로서 매우 활용성이 좋은 제품이다. 콘크리트 폐기물 컨테이너 제조 회사와 협력한다면 200 l 나 400 l 드럼을 위한 차폐제로서 원형의 콘크리트 컨테이너나 직경이 3 m × 1.7 m × 1.45 m의 직사각형 컨테이너를 생산할 수 있으며, 각 컨테이너 질량의 50%는 금속 과립으로 구성된다.

이러한 재활용의 여러 가지 공정은 Siempelkamp에 의해 다양한 방사성 금속 조각을 재활용하기 위해 연구되었다. 앞으로 근시일내에 NPP의 해체가 증가될 것이고 이때 발생한 다량의 방사성 금속 폐기물은 안전하게 처리되어야 할 것이다. 따라서 재활용의 공정은 원자력 시설에서 발생하는 다량의 금속 자원을 회수한다는 경제적인 측면에서 매우 가능성이 있다고 판단된다.

다. 금속성 해체폐기물 용융제염 요소기술 평가

(1) 용융기술의 열역학적 특성 규명

(가) 용융기술의 열역학적 원리 규명

금속 용융기술은 용융 시 오염핵종은 금속에 존재하는 산소와 결합하여 산화물의 형태로 존재하며, 비중 및 교반에 의해 슬래그와 접촉하면서 다시 silicate 화합물 (SiO-) 등으로 바뀌어 슬래그 층에 흡수되거나 휘발성 핵종은 증발됨으로서 방사성 핵종이 제거된다. 슬래그는 금속산화물(FeO-)과 규산염(Silicate), 인산염(PO4-), 붕산염, 할로겐화물 등을 함유하고 있는 용융된 혼합물이다. 용융 공정에서 슬래그는 cleaning agent로 사용되며, 용융된 합금보다 밀도가 낮으므로 용융 표면으로 부상하고, 열손실 및 산화되는 것을 방지한다. 슬래그의 효력은 화학적 화합물을 위해 금속속에서 원치 않는 원소의 친화력뿐만 아니라 최종 화합물의 밀도에 의존한다. 일반적으로 불순물 원소들과 슬래그내의 원소들(oxygen 등) 사이에서 형성된 화합물은 저밀도이기 때문에 슬래그에 존재한다[3.2.2.3]. 화합물은 그들의 특성에 의해 형성되며, 화합물 형태의 안정성에 관련하여 접근하는 것뿐만 아니라 주요 합금원소 또는 모재 금속에 포함되어 있는 유사한 화합물 형성 온도가 중요하다. 이와 같은 것은 용융 정련 시스템 설계에서 중요하며, 유용한 원소들을 존속시키기 위해 합금하는 동안 금속으로부터 불순물 원소들을 선택적으로 제거할 수 있다(Fig. 3.2.2.9).

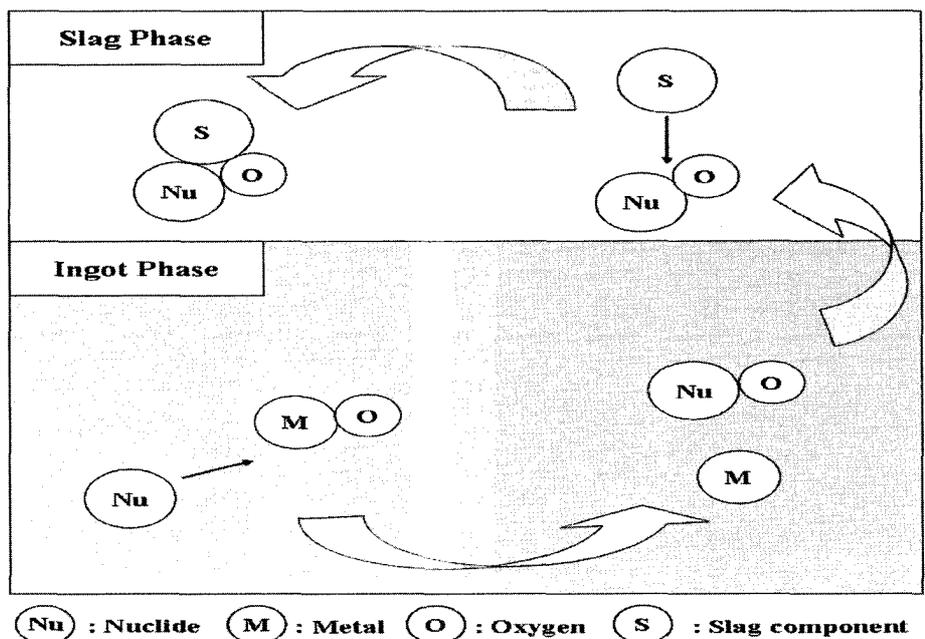


Fig. 3.2.2.9 The removal mechanism of radioactive nuclides by melting

(나) 활동도에 의한 반응 메카니즘 규명

활동도 메카니즘 용융 제염을 가능하게 만드는 열역학적 원리는 원소가 금속과 슬래그의 두 상에서 활동도가 같아지는 평형 쪽으로 분배된다는 것이다[3.2.2.4]. 이상 용액에서 화합물의 활동도는 농도와 같다. 대부분의 용액은 이상용액이 아니기 때문에 활동도는 용액에 구성성분의 유효 농도나 화학적 반응에 관여하는 구성성분의 정도에 따라 다르다. 용액에서 주어진 구성성분의 활동도는 용질-용질, 용질-용매의 상호작용을 통해 복잡한 방법으로 형성된 겉보기 농도에 따라 다양하게 나타난다. 용액내 b 성분의 활동도(a_b)를 구하기 위해서는 분자 또는 이온의 농도(X_b)를 활동도 계수(γ_b)와 곱하면 된다.

$$a_b = \gamma_b X_b \quad (1)$$

금속이 용융될 때, 화학적 성분은 용융 금속이나 용융 슬래그에 있는 다른 성분과 자유롭게 반응한다. 용융에 의해 금속으로부터 오염물이 제거되는 정도는 이 오염물과 슬래그상의 구성성분 사이에 형성된 화합물의 안정화도에 의해 좌우된다. 원소들이 슬래그 상으로 모이는 안정한 화합물을 형성할 때, 슬래그에서의 활동도는 감소하고, 원소의 많은 부분이 활동도 평형을 위해 금속으로부터 슬래그로 분배된다. 이러한 공정은 평형이 될 때까지 또는 동역학적으로 멈춰질 때까지 계속된다. 금속과 슬래그사이에 원소가 분배되는 정도는 슬래그의 성분과 열역학적으로 생성 가능한 화합물의 안정화도나 시스템이 평형을 이룰 수 있는 정도에 의해 좌우된다.

만약 이것이 동역학적으로 허가된다면, 용융 제염 시스템은 가장 낮은 전체 자유에너지를 구하는 것에 의해 평형에 도달할 것이다. 이것은 Product의 자유에너지와 반응물의 자유에너지가 같을 때나 ΔG 가 0일 때 일어난다. ΔG 의 값은 작업에 이용할 수 있거나 화학적 변화를 유발하는 자유에너지의 표시이다. 금속/슬래그 시스템에서 평형 위치와 용융 제염 가능성은 여러 가지 요인에 영향을 받는다. 이러한 요인에는 생성물의 농도, 현재 반응물, 압력, 온도 등이 포함된다. 일반적인 반응은 다음과 같다.



p, q, r, s는 A, B, C, D 각각의 mole 수이다. 반응 진행의 정도는 역반응 비율뿐만

아니라 정반응 비율에 의해 조절되고, 평형상수 K_C 로 기술된다.

$$K_C = \frac{a_C^r a_D^s}{a_A^p a_B^q} \quad (3)$$

순수한 고상 또는 액상의 활동도는 1이다. 만약 K_C 가 1보다 더 크다면 평형은 오른쪽(정반응이 우세하다)으로 이동하고, 그 반응은 위와 같이 진행된다. 만약, 반대로 K_C 가 1보다 작다면, 평형은 왼쪽으로 이동하며, 반응은 역으로 진행될 것이다. 만약 반응물이나 생성물 하나의 농도를 선택했다면, 다른 것들의 농도는 K_C 상수를 변화시킬 것이다. 부피 변화가 없는 기상상 반응을 포함한 고상 또는 액상일 때만 압력 변화는 평형 위치에 영향을 주지 않는다. 농도 변화와 압력은 평형의 위치에 영향을 주지만, K_C 의 값에는 영향을 주지 않으며, 온도는 영향을 준다. K_C 는 온도에 의존하는데, 온도 변화는 정반응과 역반응 모두의 비율에 영향을 준다. 그러나 같은 크기를 나타내는 것은 드물다.

화학적 반응으로부터 자유에너지와 평형을 위한 반응식은 다음과 같다.

$$\Delta G = \Delta G^0 + RT \ln K_C \quad (4)$$

여기서 T 는 절대온도, R 은 기체 상수이다. 반응이 역으로 일어날 때 표준 자유에너지 변화, ΔG^0 는 계에서 얻을 수 있는 최대 일의 양이다.

반응의 표준자유에너지 변화는 생성물에서 반응물의 표준자유에너지를 빼 표준자유에너지의 총계와 같다. 298 K, 표준상태에서 원소의 표준자유에너지는 0이다. 화합물의 표준자유에너지는 화합물 형태 즉, 298 K, 대기압에서 형성된 화합물의 1mole의 표준자유에너지 ΔG^0 의 변화와 같다. 반응이 평형이 도달했을 때, ΔG 는 0이고, 반응과 관련한 표준자유에너지 변화는 평형상수의 기능으로 표현할 수 있다.

$$\Delta G^0 = -RT \ln K_C \quad (5)$$

K 가 1보다 더 클 때, ΔG^0 은 (-)이고(정반응), 반응은 쓰여진 것과 같이 진행된다. K 가 1보다 작을 때, ΔG^0 은 (+)이고, 반응은 쓰여진 것과 같이 진행되지 않는다. 그러나 역반응에서는 진행된다. 그러므로 ΔG^0 의 계산은 초기와 최종 반응점에 관하여 확

실한 정보를 주고, 실행할 수 있고 평형위치를 추측할 수 있다. 그러나 반응의 과정에서 계는 평형을 이루지 않았기 때문에 ΔG 는 사용된다.

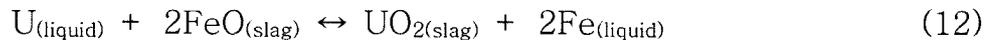
(2) 실험에 의한 다양한 원소들의 열역학적 계산 및 분석

용융된 금속과 접촉하고 있는 슬래그의 제염 특성을 이해하기 위해서는 이들 상사이의 상호작용을 좌우하는 일반적인 열화학에 대한 이해가 필요하다. 슬래그와 용융체 사이에서의 원소이동은 대부분 슬래그 상에서의 열역학에 의존한다. 고온의 액체 슬래그에 대한 열역학적 연구결과를 접하기가 어렵기 때문에 정확한 열역학적 Data를 얻기가 힘들다. 그럼에도 불구하고 여러 연구자들은 용융 금속과 슬래그사이의 방사성 핵종 분포를 예측하기 위해서 열역학적 접근을 시도해 보았다.

플루토늄(Plutonium)과 다른 TRU 원소들이 강한 산화물을 형성하는 경향은 모체 금속으로부터 산화물의 제거를 용이하게 만든다. 산소는 대기로부터 또는 재용융시 금속 조각에 있는 산소로부터 그리고 유동성 화합물에 존재하는 산소로부터 슬래그로 들어간다. 합성된 산화물은 슬래그나 주피에 포함된다.

a. Heshmatpour와 Copeland에 의한 우라늄 분배특성

Heshmatpour와 Copeland[3.2.2.5], Copeland[3.2.2.6] 등은 liquid iron과 슬래그사이에서의 우라늄 분배를 연구하였다. 연구자들은 우라늄 제거는 산소와 반응하여 열화학적 평형이 완전히 도달했을 때 제거된다고 추측하였다. 슬래그는 이상용액처럼 거동한다고 가정하였다. 슬래그속의 철산화물과 용융체 속의 우라늄사이에 산소 교환은 다음과 같이 예상된다.



액체 금속용액은 철과 우라늄으로만 구성되어 있다고 간주하고, 무한 희석 시 우라늄의 활동도는 우라늄의 무게 분율에 접근한다. 이런 반응을 갖는 표준자유에너지는 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$\begin{aligned} \Delta G^0 &= \Delta G^0_{(UO_2)} - 2\Delta G^0_{(FeO)} - RT \ln[(2.364 \times 10^{-3})\gamma^0_{(U)}] \\ &= -RT \ln \frac{X_{(UO_2)} X_{(Fe)}^2}{X_{(FeO)}^2 (wt. \%U)} \end{aligned} \quad (13)$$

방정식에서 알려진 혹은 가정된 양의 치환은 액체 철에서 우라늄의 평형농도와 그것들의 활동도 계수($\gamma^0(U)$)사이의 관계에서 유도할 수 있다.

1,900 K에서 UO_2 와 FeO 의 형성 표준자유에너지는 다음과 같다.

$$\begin{aligned}\Delta G^0(FeO) &= -140.9 \text{ kJ/mol } (-33.670 \text{ kcal/mol}) \\ \Delta G^0(UO_2) &= -738.7 \text{ kJ/mol } (-176.550 \text{ kcal/mol})\end{aligned}$$

Liquid iron에서 표준상태 1 wt% 우라늄 원자의 계산은 다음과 같다.

$$X(U) = \frac{wt.\%(U)}{(100 - wt.\% U) \left[\frac{M(U)}{M(Fe)} \right] + wt.\% U} = 2.364 \times 10^{-3} \quad (14)$$

여기서, wt% U은 금속용액에서 우라늄의 무게(weight) %이고, $M(U)$ 과 $M(Fe)$ 은 우라늄과 철의 분자 무게이다. 용액은 단지 철과 우라늄으로만 구성되어 있기 때문에 철과 우라늄의 무한 희석 활동도는 원자 분율과 대략적으로 같다고 간주된다. 50% CaO , 44% SiO_2 , 5% FeO , 1% UO_2 로 구성된 슬래그에서 FeO 와 UO_2 가 이상적으로 거동한다고 가정하면, 슬래그에서 FeO 와 UO_2 의 원자 분율은 다음과 같이 계산된다.

$$\begin{aligned}X(FeO) &= 4.10 \times 10^{-2} \\ X(UO_2) &= 2.18 \times 10^{-2}\end{aligned}$$

적당한 양의 치환에 의해 철에서 우라늄의 평형 wt.%는 다음과 같다.

$$wt \% U = \frac{1.5 \times 10^{-10}}{\gamma^0(U)} \quad (15)$$

분배율(λ)은 [슬래그속의 오염된 양/금속내의 오염물 양]로 정의되고, 용융제염 실험에서 쉽게 측정된다. 비록 이론적 농도가 같지 않더라도, 평형시 두 상에 존재하는 용질 종의 활동도는 같을 것이다. 이런 현상은 그들 각각의 환경에서 종들의 화학적 potential이 다름을 반영한다. 이 같은 계에서 분배율을 결정하기 위해서 최종

슬래그의 무게를 liquid iron 무게의 5%로 간주하였다. 그러므로 금속 100 g에 대해서 슬래그의 무게는 5 g이며, 1 wt%의 UO₂(0.05 g)를 포함하고 있다. 따라서 슬래그 속의 우라늄의 무게는 다음과 같다.

$$m(U)(slag) = \frac{M(U)}{M(UO_2)} m(UO_2) = \frac{238.07}{270.07} (0.05) = 0.4408g$$

그리고 용융체 속에 있는 우라늄의 양은,

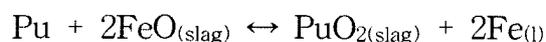
$$m(U)(melt) = m(metal)(wt \% U) = 100(wt. \% U)$$

그러므로, 분배율은 다음과 같다.

$$\lambda = \frac{m(U)(slag)}{m(U)(melt)} = (2.95 \times 10^6) \gamma^0(U) \quad (16)$$

액체 철(liquid iron)속에 있는 우라늄의 활동도 계수 값은 이용할 수 없기 때문에 다른 용매의 무한 희석 시 우라늄의 활동도 계수 값을 조사하거나, 이런 값을 토대로 철에서 우라늄 희석용액의 활동도 계수가 0.1과 10⁻⁵사이에 놓여 있을 것이라고 제안하였다. 우라늄으로 오염된 연철의 용융과 관련된 결과는 CaO-Al₂O₃-FeO flux의 10 g에 녹은 연철의 샘플은 금속에 평균 1 ppm의 우라늄이 있고 슬래그에 1,000 ppm이 존재함을 보여준다. 이의 분배 계수는 100이다. 이 연구는 액체 철에서 γ^0 가 10⁻³과 10⁻⁴사이의 값을 갖는 것을 가리킨다.

이와 관련된 연구에서 Heshmatpour[3.2.2.7] 등은 간단한 용융 제염 시스템의 열역학적 분석을 수행하여 산소와 결합된 플루토늄이 슬래그로 들어가 액체 철로부터 제거되는 정도를 계산하였다. 처리 방법은 액체 철과 슬래그에 포함되어 있는 철 산화물 사이에 완전한 열역학적 평형이 이루어 졌다고 가정한다. Pu의 산화는 다음과 같이 나타난다.

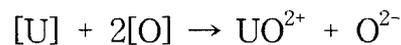
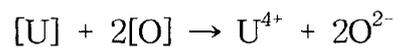


1,900 K 온도에서 액체 철은 50 wt% CaO, 44% SiO₂, 5% FeO, 1% PuO₂로 구성된 슬래그와 접촉한다고 가정한다. 용융실험의 분배율은 대략 300이었다. 비록 액체 철에서 보고된 $\gamma^0(\text{Pu})$ 값을 얻을 수는 없었지만, 액체 철에서 $\gamma^0(\text{Pu})$ 값은 2×10^{-4} 과 3×10^{-6} 또는 0.03 ppm plutonium (wt%)의 값이 산출되었다.

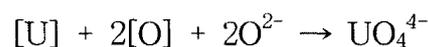
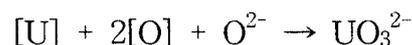
b. Joyce, Lally와 Ozturk, Fruehan 의한 TRU 원소의 열화학적 연구

액체 금속 재활용과 폐기물 처리 그리고 열화학적 범위의 연구에 있어서 가장 주요한 논쟁으로서 금속과 슬래그상 사이의 방사성 분배를 연구하였다. 열역학적 해석을 원칙은 슬래그 상으로 산소를 이동시키는 것과 산소를 결합시켜 금속으로부터 transuranic 원소를 제거하는 것이다. 산소의 화학적 퍼텐셜에 의하면, UO₂, UO₃, U₄O₉, U₃O₈과 같은 종들은 우라늄이 산소 퍼텐셜에 의해 바뀌는 원자가로 형성될 것으로 예상된다. 그러나 제강의 조건에서 슬래그속의 우라늄은 UO₃²⁻, UO²⁺ 또는 UO₄⁴⁻로 존재하더라도 주로 U⁴⁺로 존재할 것으로 예상된다.

슬래그를 형성하는 용융 산화물은 양이온과 음이온으로 분리된다. 이 같은 산화물에는 두 개의 주된 형태가 있는데, 슬래그로 O²⁻이온을 주는 염기 산화물과 O²⁻이온을 수용하는 산성 산화물이 있다. 만약 슬래그에서 우라늄이 U⁴⁺ 또는 UO²⁺로 발견된다면, 반응은 다음과 같을 것이다.



이런 반응은 O²⁻이온을 수용한 산성 슬래그의 선택에 의해 정반응을 한다. 만약 우라늄이 UO₃²⁻나 UO₄⁴⁻라면, 산성 작용은 슬래그에서 O²⁻의 활동도 감소에 따른 결과이다.

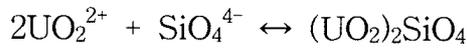


이런 반응은 O²⁻이온을 줄 수 있는 염기성 슬래그의 사용에 의해 촉진될 수도 있다. Abe[3.2.2.8] 등은 슬래그의 염기도가 용융 금속으로부터 우라늄의 제거 효율에 영향을 증명하는 연구를 수행하였다. 슬래그의 이온 특성은 염기도에 의해 표현되

며, 다음과 같이 정의된다[3.2.2.9].

$$\text{Basicity} = \frac{\text{mole of basic oxide (CaO)}}{\text{mole of acidic oxide (SiO}_2 + \text{Al}_2\text{O}_3)} \quad (17)$$

이런 연구에서 얻을 수 있는 최대 제염은 슬래그의 염기도가 1.5일 때이다. 이는 산성일 때 슬래그에서 UO_2^{2+} 이온과 결합하여 슬래그 내에 우라늄 이온을 가둘 수 있는 SiO_4^{4-} 나 $\text{Al}_2\text{O}_5^{4-}$ 와 같은 산성 산화물 이온을 많이 생산할 수 있기 때문이라고 사료된다.



이와 같은 열역학적 연구들을 보면, 몇몇의 가설과 실험 데이터의 결합에 의해 매우 간단한 용융에서 제염 가능성을 예측할 수 있다. 보다 복잡한 system에서 제염의 범위는 용융체에 여러 가지 원소들이 존재하고 슬래그에서 이들 원소와 반응성이 있는 다른 원소사이에서 발생하는 반응의 열화학적인 경쟁 때문에 예측하기 매우 어렵다.

(3) 주요 핵종들에 대한 분배 특성 평가

a. Cesium(Cs)

자유에너지와 증발 압력을 고려할 때 Cs는 용융체로부터 휘발될 거라고 예상된다. 더욱이 Cs는 liquid iron에 대한 용해성을 가지고 있지 않다. Abe[3.2.2.10] 등에 의하면 “Cs-Fe는 고상과 액상에서 실질적으로 완전히 혼합되지 않음이 확실하다.” 고 발표하였다.

많은 연구자들에 의해 금속 용융 시 Cs의 실험적인 분포에 대한 측정결과가 발표되어 왔다. Sappok[3.2.2.11] 등은 강제 약 2,000 ton을 공기 유도에서 용융하는 동안 ^{134}Cs , ^{137}Cs 은 용융체에 남아있지 않음을 관찰하였다. Cs는 슬래그와 분진 포집장치에서 발견되었지만 분포는 정량화되지 않았다. 일본 원자력 연구소(JAERI)의 Nakamura와 Fujuki[3.2.2.12]는 ASTM-A335와 SUS 304 금속의 공기 유도에서 의한 용융실험으로부터 유사한 결과를 얻었다. ^{137}Cs 는 슬래그와 분진 포집장치에 거의 동일하게 분포되었지만, 넣는 양의 약 77%만이 회수되었다. Idaho National Engineering

Laboratory (INEL)에서 Larsen[3.2.2.13] 등은 Special Power Excursion Reactor Test(SPERT) III로부터 오염된 금속 조각을 용융하는 동안 슬래그와 bag-house에서 Cs를 검출하였다. Tracer 실험에서 Larsen 등은 약 5~10%의 Cs이 304L 스테인레스강 주괴에 남아있음을 발견하였다. Gomer[3.2.2.14-3.2.2.15]는 3개의 5 ton 전기 아크로(EAF)와 1개의 500 kg 유도로에서의 용융 실험 결과를 Table 3.2.2.6에 서술하였다. 여기에는 각 반응로에서 발견된 Cs 화합물 형태와 각 부분에서의 핵종 분배율을 나타내었다. CsCl의 형태로 Cs를 첨가했을 때의 용융에서, 금속 용융 온도 아래에서 휘발되는 Cl은 슬래그에 포집되지 않았는데, 이는 CsCl이 완전히 증발한 다음에 슬래그가 형성되기 때문이다. 유도로 실험에서 CsOH는 활동하지 않는 산성 슬래그 하에서 액체 금속에 첨가하였다. CsOH를 넣은 아크로 실험에서 슬래그는 슬래그에 Cs이 cesium silicate로 존재할 수 있을 정도로 충분한 산성이 아니었다. Cs₂SO₄를 추가한 아크로 용융에서 이 화합물은 상당히 많은 양이 슬래그 속으로 혼합되었다.

Table 3.2.2.6 Distribution of ¹³⁴Cs following steel melting

Furnace type	Cs addition	Cs concentration (%)			Cs recovery (%)
		steel	slag	off-gas	
EAF	CsCl	0	0	100	100
Induction	CsOH	0	100	0	91
EAF	CsOH	0	7	93	50
EAF	Cs ₂ SO ₄	0	66	34	64

b. Cobalt (Co)

자유에너지 계산에서 알 수 있듯이 Co는 주로 용융체에 남아있다. Nakamura와 Fujuki[3.2.2.12]는 500 kg의 공기유도로에서 탄소강과 스테인레스강을 용융시켰을 때 주괴에는 ⁶⁰Co만이 검출되었다. INEL에서 6번의 오염된 탄소강 조각을 용융하는 동안 약간의 ⁶⁰Co 방사능이 슬래그와 분진 포집장치에서 검출되었다[3.2.2.13]. 차후 3번의 304L 스테인레스강 실험에서는 ⁶⁰Co의 약 96~97%가 주괴에서 회수되었다. Sappok[3.2.2.11] 등은 금속이 유도로에서 용융되는 동안 ⁶⁰Co는 슬래그와 분진 포집장치에서도 비록 정량하기에는 적은 양이 검출되었지만, 대부분이 용융체에서 검출되었다고 보고하였다. 초기 문헌에 Sappok[3.2.2.15]은 전체 24 ton의 9번 실험에 의해

^{60}Co 가 금속에 97%, 슬래그에서 1.5% 사이클론과 bag-house에서 1.5% 검출되었다고 언급하였다. Schuster와 Haas[3.2.2.16]는 실험실적 용융실험에서 ^{60}Co 가 주괴에서 99.8%, 슬래그와 에어로졸 필터에서 0.2%를 검출하였다. Harvey[3.2.2.17]에 의하면, 전기 아크로나 유도로 모두에서 ^{60}Co 은 금속에 거의 대부분이 전체적으로 균일하게 희석되어 존재한다. 라고 하였다. 이와 같은 결론으로 Harvey는 5 ton의 전기 아크로에서 2가지 금속의 용융에 대해 서술하였다. 첫 번째 실험은 매우 높은 환원 조건(high carbon과 ferro -silicon)을 채택하고, 반면에 다른 실험은 산화 조건(oxygen blow)에서 수행하였다. 두 경우 모두에서 ^{60}Co 의 방사능은 슬래그에서 검출되지 않았다. 용융체에서 발견된 ^{60}Co 의 양은 처음 로에 첨가되어 측정되어질 것이라고 예상된 양과 거의 일치하였다. 비록 약간의 ^{60}Co 가 슬래그로 이동하거나 산화된 금속 미립자가 기체 정화 시스템으로 이동될 것이라고 예상되지만, 용융로 분진에서는 발견되지 않았다. Harvey는 용융로에 첨가된 저준위 방사능(약 0.23 Bq/g)이 이미 필터에 포집된 분진에 희석되어 배기체에서 측정되는 ^{60}Co 의 양이 검출한계 이하로 나타나는 결과를 야기시킨다고 하였다. Menon [3.2.2.18]등은 탄소강 33.6 ton을 공기 유도로에서 용융한 결과, ^{60}Co 은 슬래그에서 검출되지 않았지만, 적은 양이 bag-house 분진(1,300 Bq/kg)에서 검출되었다고 발표하였다. 전체 5,000 kg의 스테인레스강을 2회에 걸쳐 수행한 실험에서 ^{58}Co 과 ^{60}Co 의 방사능은 주괴에서 26×10^6 Bq, 슬래그에서 4×10^4 Bq, bag-house 분진에서 7.8×10^4 Bq 측정되었다.

c. Plutonium (Pu)

열역학적으로 플루토늄은 대부분 슬래그에 분배될 것으로 예상된다. Harvey[3.2.2.17]는 토륨이나 우라늄과 같은 플루토늄의 화학적 유사성에 기초하여 플루토늄은 안정한 산화물을 형성하여 슬래그에 흡수될 것이라고 예상하였다. 그러나 그는 플루토늄이 매우 고밀도(11.5 g/cc)이기 때문에 생성된 PuO_2 가 슬래그로 이동하는 것이 느리거나 대부분은 용융로의 바닥으로 떨어질 가능성이 높아 슬래그에 도달되지 못한다고 보고하였다. Gerding[3.2.2.19] 등은 전기 저항로(electric resistance furnace)에서 플루토늄 산화물과 연철을 가지고 작은 규모(10~200 g)의 실험을 수행하였다. 용융은 약 0.5 atm, He 분위기에서 1,773 K로 1~2시간 동안 다양한 슬래그를 가지고 수행했으며, 슬래그/강재의 무게비는 0.05~0.20 이었다. 이 연구에서 슬래그에 분배된 Pu과 분배계수(슬래그 내 농도/금속 내 농도)는 2×10^{-6} ~ 8×10^{-6} 이었다. 제염 효율은 400이었고, 14,000 ppm의 Pu과 여러 가지 실리케이트 슬래그의 조성변

화는 분배에 중요한 역할을 하지 않았다.

d. Uranium (U)

자유에너지의 계산 결과, 우라늄은 슬래그에 분배됨을 알 수 있었다. Heshmatpour와 Copeland[3.2.2.20]는 50~500 g의 연철에 500~1,000 ppm의 UO_2 을 첨가하여 유도로나 저항로에서 소규모의 많은 분배 실험을 수행하였다. 슬래그와 crucible의 구성물을 다양하게 변화시켜 가면서 실험하였다. 매우 유동성있는 염기성 슬래그와 유도로 용융을 사용했을 때 분배율은 1.2에서 371이상 얻었다.

Larsen[3.2.2.13]은 비록 U이 feed stock에서 검출되지 않았지만 가끔 슬래그와 bag-house 분진에서 검출되었다고 보고하였다. Schuster와 Haas[3.2.2.16]는 실험실 규모의 실험에서 슬래그 형성제를 첨가했을 때, 우라늄의 함유량이 $330\mu\text{g U/g Fe}$ 에서 $5\mu\text{g U/g Fe}$ 까지 감소함을 관찰하였다. Harvey[3.2.2.17]는 때때로 British Steel에서 제강시 추적자 원소로 우라늄을 사용했다고 보고했다. 그들의 경험에 기초로 할 때, 철보다 밀도가 매우 높은 $UO_2(10.9\text{ g/cc})$ 는 개념적으로는 용융체에 위치해야 한다는 사실에도 불구하고 우라늄은 슬래그에 흡수된다.

Abe [3.2.2.8]등은 소규모 실험실적인 용융로(100 g)를 사용하여 연철에서의 우라늄 제염을 연구하였다. 용융은 Ar으로 200 mmHg까지 감압한 분위기에서 금속에 약 10 wt%의 유동매체(flux)를 첨가한 후 알루미늄 crucible에 넣어 수행하였다. 우라늄 제염 계수는 초기 오염된 정도의 함수로 나타났으며 우라늄의 농도가 10에서 1,000ppm일 때, 약 200에서 5,000까지 폭넓은 값을 나타내었다. 최적의 제염은 $CaO-Al_2O_3-SiO_2$ 슬래그의 슬래그 염기도가 1.5일 때 얻어졌다. 제염 효과는 슬래그에 CaF_2 나 NiO 를 첨가했을 때 더 많이 향상되었다.

3. 실험실적 용융제염 단위기술 개발

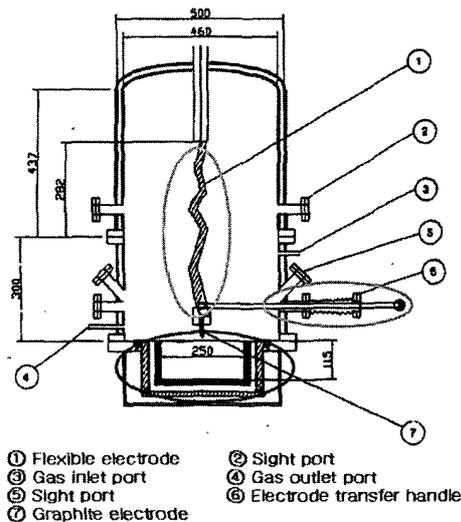
가. 실험실적 기술실증을 위한 실증장치의 제작을 위한 설계

(1) 실험장치의 개요 및 각 부분별 제작특성

실험실적 기술실증을 위한 실험 장치(bench-scale arc furnace)는 원자력시설 해체 시 발생하는 각종 금속성 해체폐기물(stainless steel, carbon steel, aluminum 등)을 용융하기 위한 실험설비이고, 실험 장치는 제작 시 내부식성 재료의 사용을 원칙으로 한다.

(2) 장치의 각 부분별 상세 제작내용

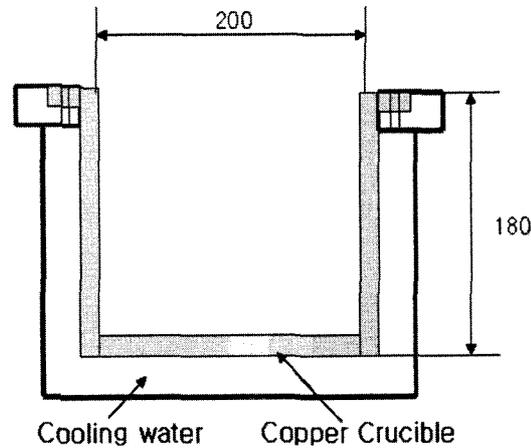
실험실 규모의 실험을 위해 기존의 Arc furnace 장치(1 kg/batch)를 개조하였다. 금속을 용융시킬 흑연도가니(graphite crucible)의 용량을 10 kg/batch까지 증가시키기 위해서는 고정식의 흑연전극(graphite electrode)을 이동이 가능한 형태로 제작하여야 한다. 이를 위해서는 유동성있는 적극 cable이 흑연전극에 연결되어야 하는데 이를 위해서는 챔버의 높이가 증가되어야 한다. 따라서 이동식 전극 cable을 설치하기 위해 챔버의 높이를 300mm 증가시켰다. 챔버 내부의 환원성 분위기를 유지하기 위해 아르곤을 주입하는데 기존의 챔버가 300 mm 높아졌기 때문에 하부에 아르곤을 주입할 수 있는 port를 설치하였다. 아래 그림은 기존의 설비에서 추가로 설치할 챔버와 유동성 전극과 조절 핸들을 나타낸 것이다.



10kg/batch의 금속을 용융하기 위해 이에 맞는 용량의 구리 Hearth를 제작하였다.

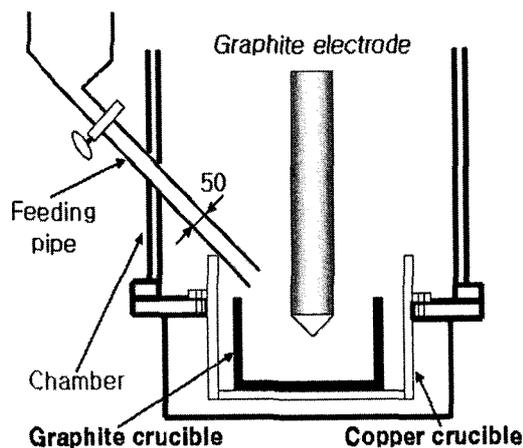
: 180(hight) × 230(outer diameter) × 200(inner diameter) mm

: Thickness : 15 mm, Material : Copper



Copper Hearth

용융로의 크기가 증가하였기 때문에 아크가 닿지 않는 부분의 금속용융을 위해 전극을 유동성있는 이동식으로 제작하였다. 이동식 흑연전극의 좌우 조절을 위해 설치한 조절용 막대의 밀봉과 이동을 위한 port를 설치하였다. Semi-continuous로 원료물질을 용융 도가니에 넣기 위해서 feeding system을 다음과 같이 제작하였다. 측면에서 port를 통해 직경이 약 50 mm인 pipe 설치하였으며 주입용량은 1.5 kg/batch이다.



Feeding system

이동식 flexible cable을 사용하여 흑연전극의 이동성 증가함으로서 아크가 최대한 넓게 영향을 미치게 함으로서 반응로의 금속을 균일하게 용융시키고자 하였으며, 흑

연 전극은 아크의 세기와 관련되므로 반응로의 크기에 비례하여 증가시키는 것이 필요하다. 따라서 200 mm의 반응로 크기를 고려하여 직경이 60 mm의 흑연전극을 사용하였다.

(3) 장치의 제작내용 및 세부사양

No	품 명	제작내용 및 세부사양	수량
1	진공 Chamber 확장	<ul style="list-style-type: none"> ◆ 이동식 전극 cable을 설치하기 위해 Chamber의 높이를 증가(300 mm) - Ø 406 × 300 mm Height 제작 	1EA
2	Port 부착	<ul style="list-style-type: none"> ◆ 증가된 Chamber에 아르곤 주입과 전극이동용의 port 설치 - Argon gas inlet port - Sight port - 전극좌우 이동 port 	1EA 2EA 2EA
3	Copper hearth 제작	<ul style="list-style-type: none"> ◆ 10kg/batch의 금속용융을 위해 Hearth를 제작 - 180(H) × 230(O.D.) × 200(I.D.) mm - Hearth의 처리용량 : 10 kg/batch - Height : 180mm, Thickness : 15mm 	1EA
4	원료물질 Feeding system	<ul style="list-style-type: none"> ◆ Semi-batch 식의 용융을 위한 원료물질의 feeding system 제작 - 측면에서 port를 통해 직경이 약 50mm인 pipe 설치 	1EA
5	Arc 전극연장	<ul style="list-style-type: none"> ◆ 이동식 flexible cable을 사용하여 전극의 이동성 증가 	
6	전극	<ul style="list-style-type: none"> ◆ 증가된 crucible의 크기에 맞는 전극 사용 - Ø 60 mm graphite electrode 	5EA

(4) 실험실 규모(10 kg/batch)의 실증장치의 제작

확장된 진공 챔버와 금속 해체 폐기물의 주입시스템, 유동성 있는 흑연전극, 전극 이송용 핸들이 부착된 실험실 규모의 용융제염 실증장치 사진을 Fig. 3.2.3.1에 나타내었다. Fig.3.2.3.1에서 볼 수 있듯이 확장된 진공 챔버는 기존의 진공 챔버에 클립 프로 연결하고 연결부분에 고무링을 설치하여 진공이 유지되도록 설치하였다. 확장된 챔버의 표면이 아크열에 의해 손상받는 것을 방지하기 위해 챔버를 이중 jacket으로 제작되었으며 냉각수에 의해 냉각되어 고온에 대한 영향을 최소화하였다.

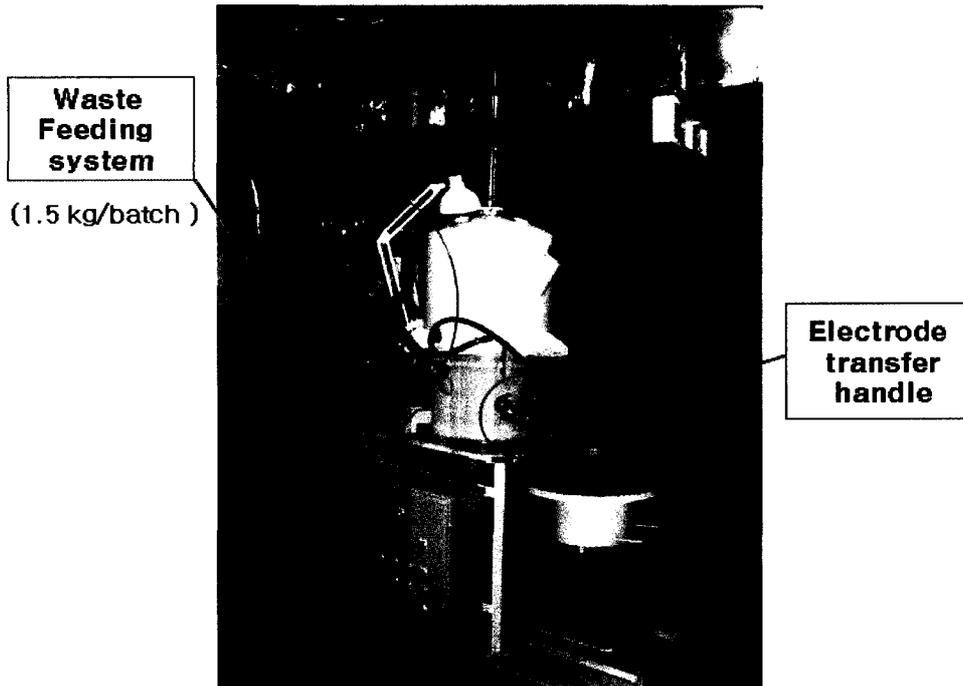


Fig. 3.2.3.1 Photo of the bench-scale arc furnace (10kg/batch)

(5) 실험실 규모(10 kg/batch)의 실증장치의 시운전

금속성 해체폐기물의 주입장치 및 전극 이동 핸들은 제작의도에 맞게 잘 작동하며, 흑연 전극봉도 잘 연결되어 작동하였다. 금속(스테인레스강, 탄소강, 알루미늄) 해체 폐기물의 용융 실험 결과, 금속 용융이 실험의도에 맞게 이루어짐을 확인할 수 있었다. 이동용 전극 핸들이 존재하여 흑연전극을 이동함으로써 흑연 도가니의 벽면에 위치하고 있는 금속 폐기물까지 용이하게 용융시킴을 관찰할 수 있었다.

나. 베타/감마 오염 해체폐기물 용융제염 실증시험

(1) 알루미늄 해체폐기물 cold test(1 kg/batch 아크로)

우수한 강도와 UF6에 대한 내부식성 때문에 원자력 연구시설 및 우라늄 정련시설 (Gaseous diffusion plant)의 구조재 및 배관 등으로 사용된 알루미늄은 원자력 시설의 노후화와 해체에 의해 다양한 오염 준위를 나타내는 방사성 폐기물로 발생된다. EC의 자료에 의하면 2060년까지 유럽의 우라늄 농축 시설을 포함한 원자력 시설에서 약 9000 ton의 방사성 알루미늄 해체 폐기물이 발생할 것으로 예측하고 있다. 이러한 알루미늄 폐기물들은 대부분 방사능 오염도가 낮기 때문에 적절한 제염처리를 거치면 재활용이 가능하며 이에 대한 시나리오가 연구되어져 오고 있는 실정이다. 특히, 국내적으로도 1995년에 운전이 정지되어 현재 해체 진행 중인 TRIGA Mark-

II, III(연구로 1~2호기)의 해체 시 노심 라이닝(lining) 및 배관, 조사 설비 등의 오염된 알루미늄 폐기물들이 발생되고 있다. 방사성 알루미늄 폐기물들의 처리 기술 중 부피감용 및 제염 측면에서 가장 효과적인 방법 중의 하나가 금속용융 처리기술이다. 용융 처리 기술은 화학제염이나 초고압 압축과 같은 다른 기술에 비해 최대의 부피감용 효과를 얻을 수 있을 뿐만 아니라 적절한 플럭스를 첨가하여 용융하면 높은 제염 효과도 얻을 수 있다는 장점을 가지고 있다. 일반적으로 금속용융 처리 기술에서는 금속 용융체의 유동성 및 점성, 이온이동도 등의 물리적 및 화학적 특성을 향상시키기 위해 슬래그 형성제인 SiO_2 , CaO , Al_2O_3 , Fe_2O_3 , CaF_2 등의 화합물을 첨가하여 용융하지만, 알루미늄의 용융 기술에서는 슬래그 형성제의 용점이 알루미늄의 용점보다 높을 뿐만 아니라, SiO_2 가 알루미늄 용융체와의 환원반응에 의해 금속 실리콘(Si)과 산화알루미늄(Al_2O_3)을 생성하기 때문에 KF , CaF_2 , NaF , NaCl 등과 같은 플럭스를 첨가하여 알루미늄 폐기물을 용융시킨다[3.2.2.21]. 지금까지 금속용융에 대한 대부분의 연구는 탄소강과 스테인레스강에서의 용융특성 및 방사성 핵종의 분배에 대한 연구로서 방사성 알루미늄 폐기물에 대한 연구는 미흡한 실정이다. 따라서 본 연구에서는 전기 아크로에서 첨가된 플럭스의 종류 및 첨가량에 따라 알루미늄 용융체의 용융특성 및 슬래그의 발생량의 변화를 고찰하고자 한다. 또한 알루미늄의 용융 시 표면에 오염되어 있는 Co, Cs, Sr과 같은 방사성 핵종이 플럭스의 조성 및 첨가량에 따라 주괴와 슬래그 상에 분포되는 분배 특성을 알아보려고 하였다.

(가) 알루미늄 해체폐기물 실증 시험을 위한 실험장치

본 연구에서 사용된 흑연 아크로 용융설비(arc furnace, 1kg/batch)의 개략도는 Fig. 3.2.3.2와 같다. Fig.에서 보는 바와 같이 설비는 1개의 동관 기저전극과 상부에 1개의 흑연전극, 장·탈착이 자유로운 동(copper) 도가니, 150kW DC 전원공급시스템과 전극봉 상·하 구동 모터, 냉각시스템 및 지역 제어반, 내부 육안 점검 포트(view port), Chamber, 유압시스템, 진공시스템으로서 구성되어 있다.

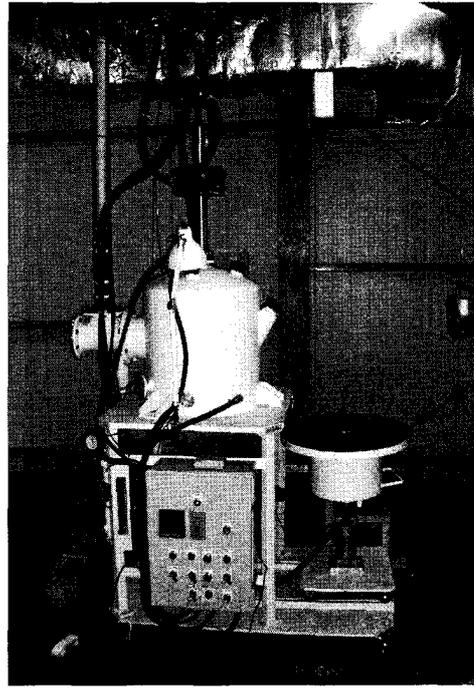
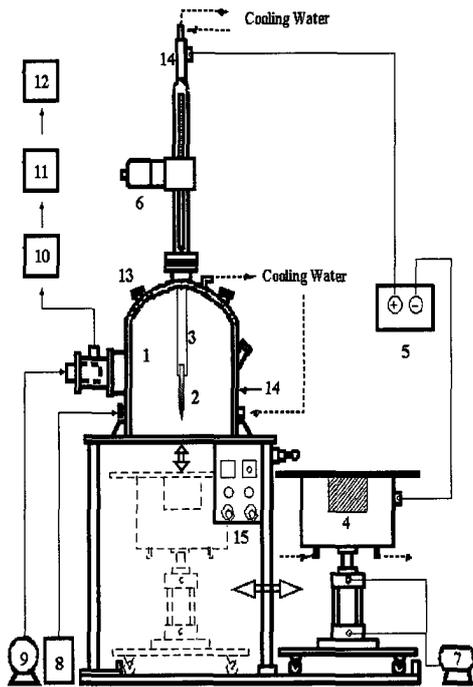


Fig. 3.2.3.2 Schematic of the electric arc furnace

금속 용융 아크로 장치의 상·하부 전극과 챔버(chamber)는 이중 jacket으로 구성되어 있으며 이곳을 통해 냉각수를 공급함으로써 시스템의 안정을 유지하도록 하였다. 아크 용융로는 용융시킬 금속의 바로 위에서 아크를 발생시켜 금속 폐기물을 용융시킨다. 아크 용융로의 용융용량은 최대 1000g/batch이며, DC power supply에 의해 150kw의 전원을 공급할 수 있다. 전극봉(electrode)의 상하 구동은 챔버 상부에 위치하고 있는 스텝퍼 모터에 의해 조절되며, 이 조절에 의해 아크열의 길이 및 운전형태를 자유로이 조절하여 안정하게 유지할 수 있다. 하부 기저 전극의 역할을 수행하는 수냉식 동 도가니(water-cooled copper crucible)는 자유로이 탈부착이 가능하도록 되어 있어 1회분 운전 시 빠르고 자유로이 도가니를 핸들링 할 수 있다. 상부에는 용융로 내부를 육안으로 확인할 수 있도록 챔버에 3개의 view 포트가 설치되어 있다.

측면에는 노내 분위기를 자유로이 조절할 수 있도록 진공 시스템과 불활성 가스(inert gas)를 주입할 수 있는 밸브가 설치되어 있다. 필터 시스템은 3단으로 구성되어 있으며 필요 시 게이트 밸브를 통해 자유로이 사용 위치를 조정할 수 있으며 매 위치마다 Prefilter-HEPA-Charcoal-HEPA 필터로 구성되어 있어 응축된 배기가스 또는 입자상의 배기가스를 완전 처리 할 수 있도록 하였다.

실험에 사용된 알루미늄 시편은 우라늄 변환시설의 제염/해체 시 발생하는 알루미늄

납과 동일한 조성의 알루미늄을 선택하여 용융하였다. 알루미늄 시편은 습분 및 폭발을 일으킬 수 있는 유해물질과 유기용제 및 오일과 같은 환원물질을 완전 제거하기 위해 완전 건조한 후 사용하였으며, 두께가 1 mm인 판을 10 mm×10 mm의 크기로 절단하여 300g의 알루미늄을 용융하였다. 방사성 동위원소의 핵종 거동을 평가하기 위해 사용된 모의 핵종(surrogate elements)은 총 3가지로서(Co, Cs, Sr) 각각의 화합물을 사용하였다. 화합물은 대기 중에서 Aluminium 시편(2 cm×2 cm×2 cm)에 각각 1000 ppm으로 오염시킨 후 흑연 도가니의 충전하여 용융하였다. 알루미늄 용융체의 산화를 방지하고 유동성을 증가시켜 용융금속과 원소의 이동을 쉽게 하며 불순물의 안정한 제거를 위해 첨가되는 플럭스는 시편무게의 각각 3, 5, 7, 9 wt%로 주입하였으며 플럭스 종류와 주입된 농도에 의한 모의 핵종의 분배 특성 및 거동을 평가하였다. 본 실험에서 사용된 모의 핵종과 용융실험조건은 Table 3.2.3.1과 같다. 본 실험에서 사용된 플럭스들은 금속성 알루미늄 폐기물 처리 시 필요한 높은 전기전도도 및 열전도도, 큰 열용량, 낮은 밀도, 적절한 점도, 상호간의 혼합성, 높은 표면에너지, 낮은 증기압 등의 다양한 장점을 가지고 있는 플럭스들을 사용하였다.

Table 3.2.3.1 The composition of flux agent and experimental condition for aluminum melting

Flux agent	A : NaCl(45%), KCl(40%), Na ₃ AlF ₆ (15%) B : NaCl(45%), NaF(40%), KF(15%) C : CaF ₂ D : LiF(14%), KCl(76%), BaCl(10%)
Surrogate nuclide [1000 ppm]	CoCl ₂ · 6H ₂ O CsCl SrCl ₂ · 6H ₂ O
Flux weight(wt%)	3, 5, 7, 9
Power (kw)	5.6 ~ 7.8
Melting time(min)	3

(나) 알루미늄 해체폐기물 실증 시험을 위한 실험방법

방사성 핵종들의 분배특성은 물질 전달, 화학반응, 열전달 등 다양한 운전조건에 의해 좌우되는데 본 실험에서는 플럭스 종류와 조성을 운전변수로 채택하였다. 알루

미늄 용융실험은 흑연 도가니에 300 g의 알루미늄을 충전 시킨 후 그 중간에 모의 핵종을 알루미늄 시편 사이에 주입하는 형태를 취하였다. 시편과 모의 핵종 및 플럭스를 장입 후 흑연 도가니는 하부 전극 역할을 수행하는 구리 도가니 위에 안착하였으며 공기유압 시스템을 사용하여 하부 전극시스템이 포함되어 있는 수직·회전 테이블(turn-table) 상부 챔버(chamber)에 완전 밀착시켰다. 용융로 내부의 용융조건을 환원성 분위기로 만들기 위해 진공 시스템을 사용하여 약 720 mmH₂O로 진공을 만든 후 불활성 가스인 아르곤(Ar)를 주입하여 챔버 내부를 대기압 상태로 만들었다. 아르곤 가스는 탄소 전극봉의 소모를 방지하기 위하여 10 ℓ/min으로 연속 주입하였다. 배기가스의 유량을 자유로이 조절할 수 있는 2개의 배기팬(Induced fan)을 사용하여 배기가스를 대기 중으로 배출시켰으며 대기 중으로 배출되기 전에 연속공기감시기(Continuous Emission Monitoring)와 방사선량측정기(Radiation Monitoring System)를 거쳐 배출시켰다. 첨가된 플럭스의 양에 대한 모의 핵종의 분포 특성을 알아보기 위해서 플럭스를 3, 5, 7, 9 wt%로 변화시켜 가면서 실험을 수행하였다.

용융된 알루미늄의 용융체는 주형에 부어 실린더 형태의 주괴를 생성하였으며, 알루미늄 금속 용융체의 하부에 존재하는 분말형태의 불순물들은 알루미늄 용융체와 쉽게 분리되어 존재하기 때문에 쉽게 채취하였다. 생성된 주괴에 존재하는 핵종의 농도는 하부와 상부, 그리고 측면에서 각각 깊이 5~15mm의 구멍을 뚫어 알루미늄 조각을 채취한 후 이것을 분석하였다. 채취한 주괴와 슬래그는 전처리를 거친 후 Co는 ICP-AES (IRIS DUO, Thermo elemental Co)를 사용하여 정량을 분석하였으며, Cs과 Sr은 ICP-MS(X-7, Thermo elemental)를 사용하여 분석하였다. 또한 XRD 분석을 통해서 각각의 시료에 모의 핵종이 어떠한 화합물들이 존재하는지 알아보았다.

(다) 알루미늄 해체폐기물 실증 시험을 위한 cold test 실험결과

Figs. 3.2.3.3과 3.2.3.4는 알루미늄 시편을 3분간 용융시킨 후 용융된 알루미늄의 형상 및 용융에 의해 얻어진 주괴(ingot)와 슬래그(slag)를 나타낸 것으로 4가지 종류의 플럭스를 사용하여 실험한 결과 유동성 측면에서는 두 가지 형태의 용융 특성을 나타내었다. 첫 번째는 Fig. 3.2.3. 3과 같이 유동성이 매우 좋은 알루미늄의 용융체가 생성되는 것으로 Table 3.2.3. 1에 수록한 플럭스 A(NaCl, KCl, Na₃AlF₆의 혼합물)와 D(LiF, KCl, BaCl₂의 혼합물)가 이에 속하며 Fig. 3.2.3.4는 플럭스 B(NaCl, NaF, KF)와 플럭스 C(CaF₂)를 각각 첨가한 경우로서 첫 번째 형태의 플럭스보다는 유동성 확보가 어려웠다.

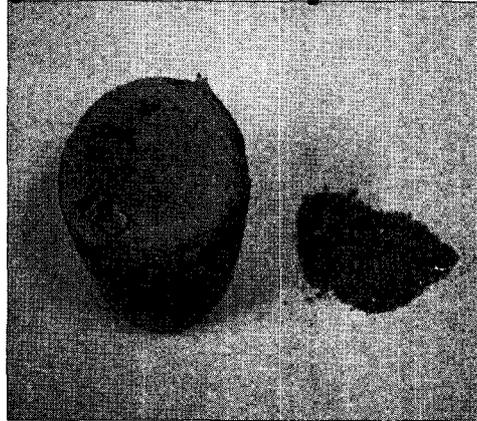


Fig. 3.2.3.3 The melting sample of the aluminum with flux A or D(5wt%)

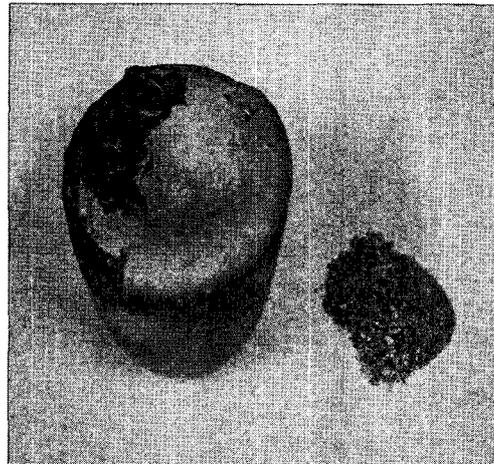


Fig. 3.2.3.4 The melting sample of the aluminum with flux B or C (5wt%)

알루미늄 용융 시 용융체의 유동성이 좋은 플럭스 A와 플럭스 D의 주괴와 슬래그는 분리가 용이하고 슬래그 양이 매우 적은 반면에 플럭스 B와 C를 첨가한 알루미늄 용융체의 주괴와 슬래그는 분리도 어려울 뿐만 아니라 슬래그의 발생량도 많았다. 알루미늄 용융 시 사용되는 용융염은 밀도의 차이에 의해 주괴의 상부에 위치하게 되며 상부에 위치한 용융염은 플럭스의 종류에 따라 유동성이 매우 높은 것과 그렇지 않은 것으로 나타난다.

전반적으로 모든 실험에서 염성분의 슬래그와 주괴의 분리는 비교적 쉽게 이루어졌으며 용융특성 실험 결과 커다란 차이점을 보인 것은 용융 염 성분들이 지니고 있는 고유의 특성에 기인한 분진형 입자들의 비산 및 비말동반 현상으로 인한 운전 시야 확보의 어려움이다. 플럭스 A와 D를 첨가한 실험은 심한 입자성 분진(Fume)의 발생으로 용융로 내부의 시야 확보가 상당히 어려워 자유로운 운전을 유지할 수 없었으나, 플럭스 C를 첨가한 실험에서는 운전 용이성이 우수하였으며 플럭스 B를 첨가한 실험도 비교적 양호한 편이었다. 이러한 차이는 투입되는 플럭스의 조성 특히 불화물과 염화물의 물리적 특성에 지배되기 때문이다. 용융 초기 약 2분 동안은 노내 분위기가 상당히 양호한 상태이나 도가니의 온도가 염화물의 휘발 온도에 근접하면 급격히 입자성 물질이 발생함을 알 수 있었으며 이는 고온에서 안정된 염화물은 증기압이 커서 쉽게 휘발한다는 특성과 일치한다[3.2.2.22].

Fig. 3.2.3.5는 플럭스를 첨가한 알루미늄의 용융실험에서 얻어진 슬래그의 XRD 분석결과로 슬래그의 기본 물질뿐만 아니라 모의 방사성 핵종과 알루미늄의 화합물인 CoAl_2O_4 가 검출됨을 알 수 있었으며, 이러한 결과로 볼 때 방사성 핵종이 슬래그 상에 존재하는 염이나 산화알루미늄 화합물과 결합하여 안정화됨을 확인할 수 있었다. 일반적으로 Co는 탄소강이나 스테인레스강과 같은 금속의 용융 시에는 대부분이 주괴 내에 균일하게 분포됨으로써 희석에 의한 비방사능의 감소로 제염효과를 얻을 수 있다고 보고되었으나[3.2.2.11, 3.2.2.18, 3.2.2.23], 알루미늄의 용융 반응에서는 용융체내에서의 혼합에 의한 제염 효과뿐만 아니라 슬래그내의 화합물과 결합하여 보다 안정한 화합물을 형성함으로써 보다 높은 제염 효과를 얻을 수 있음을 알 수 있었다.

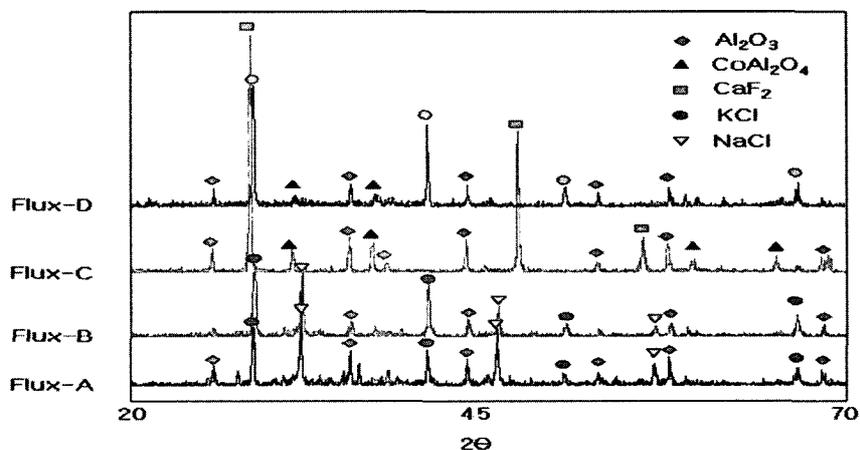


Fig. 3.2.3.5 Typical XRD pattern for the slag

알루미늄 용융 기술에서 중요한 변수는 용융온도와 첨가된 플럭스의 조성으로 이들은 오염물질의 열화학적 및 전기화학적 반응에 영향을 미친다. 특히, 첨가된 플럭스는 알루미늄 용융 시 이온으로 해리되어 알루미늄 용융체의 전기전도도와 점도 그리고 비중에 영향을 미치며, 알루미늄 용융체에 존재하는 불순물과 반응하여 보다 안정한 화합물을 생성한다. 그러나 알루미늄 용융 시 제염에 영향을 미치는 용융염은 실리콘(Si)처럼 격자 구조 또는 결정을 형성하여 불순물을 제거 하는 것이 아니라 세정제로서 알루미늄에 고착되어 있는 불순물을 용해하여 산화물로 만든 후 플럭스의 구성성분과 화학적 결합에 의해 불순물을 제거시키는 것이[3.2.2.24]다. 첨가된 플럭스의 증가에 따른 슬래그의 발생량 변화를 Fig. 3.2.3.6에 나타내었다.

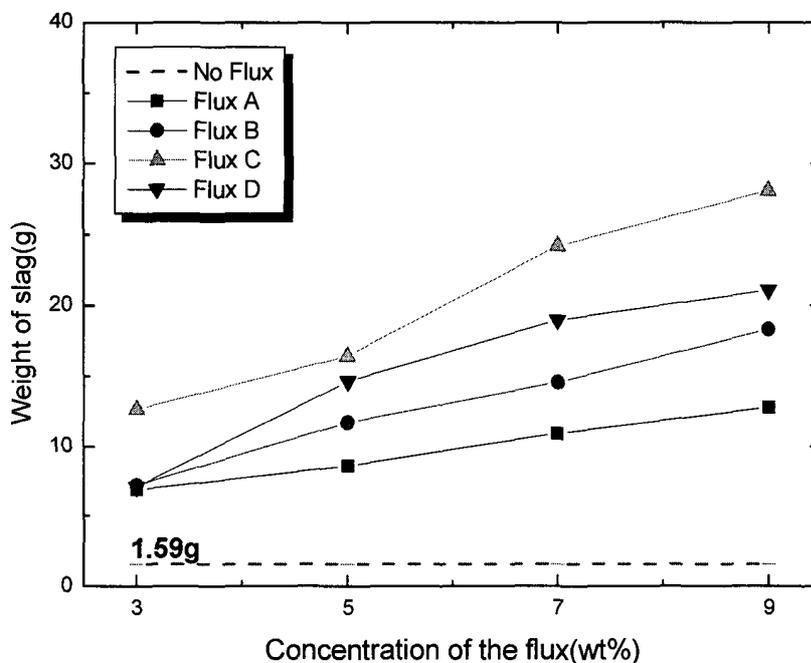


Fig 3.2.3.6 Effect of flux composition on the weight of the slag

첨가된 모든 플럭스의 경우에 첨가된 플럭스의 양이 증가할수록 슬래그의 발생량은 증가하는 경향을 나타냈으며 플럭스 C(CaF_2)가 가장 많은 양의 슬래그를 발생시켰다. 그러나 이와 반대로 플럭스 D(LiF , KCl , BaCl_2)를 첨가한 용융실험에서는 슬래그가 가장 적게 생성되었다. 슬래그의 증가 경향은 플럭스의 종류에 따라 다른 형태로 나타나고 있다. 유동성이 좋은 A, D Type Flux은 상대적으로 유동성이 적은 B, C type flux에 비해 슬래그 발생량이 많게는 약 50% 정도 적게 발생하였다.

Fig. 3.2.3.7은 첨가된 플럭스 양의 증가에 따른 Co의 분배특성을 나타내었다. 일반

적으로 금속 용융체상에서 형성된 방사성 핵종 산화물은 첨가되는 플럭스의 영향에 의해 확산이나 비중 및 활동도 차이 그리고 교반에 의해 플럭스와 접촉하면서 슬래그 상으로 이동한다. Fig. 3.2.3.7에서 볼 수 있듯이 Co는 플럭스를 주입하지 않은 경우보다 플럭스를 주입한 경우에 많은 양의 Co가 주괴에서 슬래그 상으로 이동되어 높은 제염효과를 얻을 수 있음을 알 수 있다. 즉, 플럭스를 주입하지 않고 알루미늄만 용융하였을 경우에 Co의 분배율은 주괴에 82.5%, 슬래그에 12.8%로 대부분이 주괴에 잔류하지만, 플럭스를 첨가함에 따라 주괴에 대부분 존재하던 Co가 슬래그 상(phase)으로 이동하여 최대 60%까지 슬래그에 분배됨을 확인할 수 있었다. 전반적으로 주괴에 포집되는 Co의 농도는 25~40% 정도로 나타났으며 슬래그에서는 좀 더 많은 40~50 % 정도의 포집율을 나타내었다. 비휘발성인 Co의 경우 시험조건에 관계없이 초기 투입량의 대부분이 주괴와 슬래그에 잔존하고 있음을 확인할 수 있었다. 플럭스 A의 경우에는 78%, 플럭스 B는 68%, 플럭스 C는 74%, 플럭스 D는 77%가 용융로에 잔재하여 각각 주괴와 슬래그에 함유되어 있다. Co는 특성상 약 1500℃까지의 고온에서도 염소원소의 존재 유무에 관계없이 안정된 고체 산화물(CoO)의 형태로 존재하며 증기압이 없기 때문에 대부분이 용융로에 존재해야 하지만 20~30%의 Co가 소실된 이유는 용융 시에 발생하는 기체의 유동특성과 플럭스 성분의 휘발에 의해 Co가 함께 입자상 물질로 변화하여 용융로에서 이탈했기 때문으로 판단된다.

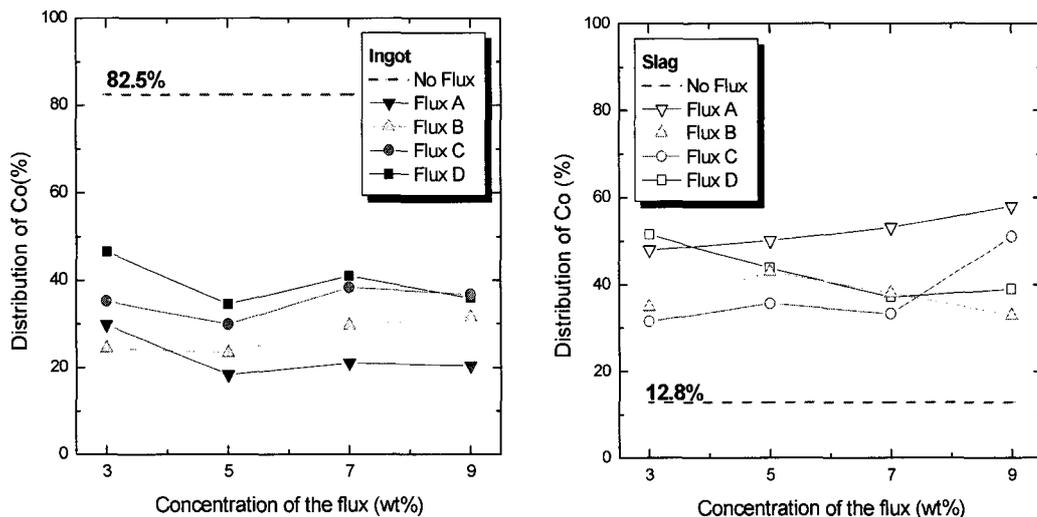


Fig. 3.2.3.7 Effect of the flux concentration on the distribution of cobalt in the ingot & slag phases

이러한 입자상 물질로 동반된 Co은 용융로의 배관에 응축되어 침적되거나 필터 시스템에 의해 포집된다. 일반적으로 Co은 열역학적 특성을 고려해 볼 때 금속주괴에 고루 분포되는 것으로 보고되고 있는데 본 실험에서는 다소 차이를 보이고 있다. 이는 Co와 같은 비휘발성 금속들도 화염부의 극 고온에 의해서나 다른 기체와의 반응에 의해 휘발성이 큰 물질로 변해 휘발하기 때문이다. 특히 염소성분이나 불화물 성분이 존재하는 경우에 금속성분들은 할로겐화물로 변화하게 되며 금속의 염화물은 산화물보다 훨씬 증기압이 높기 때문에 잘 휘발한다.

플릭스의 종류와 첨가량을 변화시켜 가면서 알루미늄을 용융하였을 경우에 주괴와 슬래그로 분배되는 Cs의 분배특성을 Fig. 3.2.3.8에 나타내었다. 휘발성인 Cs의 경우 실험조건에 따라 다소 차이를 보이거나 플릭스 C의 경우 1000℃ 이상의 고온실험에서도 투입된 양의 최대 40% 정도가 슬래그에 분배되어 포집됨을 알 수 있었다. 플릭스 D의 경우 슬래그 상으로의 분배율이 약 20%로 다른 플릭스에 비해 분배효율이 낮은 것을 볼 수 있는데 이는 실험 시 상당히 많은 양의 입자상 물질이 발생되어 배기가스로 휘발되는 것이 주원인이며 챔버와 테이블의 입자를 분석한 결과 많게는 약 10%의 Cs이 검출되었다. Cs화합물은 높은 증기압으로 인해 대부분 배기체로 이동할 것이라고 생각되었으나 본 실험에서는 상당량의 Cs이 슬래그상으로 분배됨을 알 수 있었다. 이는 향후 Cs으로 오염된 방사성 금속폐기물의 용융 시 배기체의 부하를 줄임과 동시에 필터의 가동시간을 연장시켜 운전비용에 상당히 유리하게 작용할 것이며 2차 폐기물 처리에 대한 부담을 상당히 완화시키는 역할을 할 것으로 판단된다. 고온의 흑연 도가니에서 휘발된 세슘의 대부분은 응축되어 용융로 내부 또는 HEPA filter에 포집된다. Cs의 분배특성 실험 시 Cs에 대한 포집효율의 차이는 투입된 플릭스의 조성에 따른 비활동반 특성 및 가스상 성분의 평형조성과 증기상 세슘의 응축기구의 차이에 따른 입자상 세슘의 분포특성에 기인된다고 볼 수 있다 [3.2.2.25]. 주괴에서 Cs은 플릭스 종류 및 첨가량에 관계없이 1% 미만의 적은 농도만이 검출되었다. 전반적으로 슬래그의 양이 증가할수록 슬래그 상으로 분배되는 비율이 증가함을 알 수 있으며 플릭스 D를 제외한 나머지 플릭스에 의한 분배특성은 비슷한 수준을 나타냈다.

Fig. 3.2.3.9는 주괴와 슬래그 상에 존재하는 Sr의 분배 특성을 나타낸 Fig.으로 많은 부분이 분진이나 증기에 동반되어 제거된 Cs의 경우와 비교할 때 반휘발성인 Sr은 보다 많은 양의 Sr이 주괴와 슬래그 상에 분배됨을 알 수 있었다. 이는 반휘발성 핵종인 Sr의 특성으로 Sr의 경우에는 850℃ 이하에서는 증기압이 낮아 쉽게 증발되

지 않기 때문이다. Sr의 경우에서도 Cs의 경우와 마찬가지로 플럭스 D를 제외한 모든 플럭스에서 첨가된 플럭스의 양이 증가함에 따라 슬래그에 분배되는 Sr의 양이 증가함을 확인할 수 있었다. 플럭스 D에서는 Sr의 약 70% 정도가 휘발되어 분진으로 이동되는 반면에 플럭스 A, B, C를 첨가한 용융실험에서는 최대 75% 정도까지 슬래그에 포집시킬 수 있음을 알 수 있다. 이러한 차이는 투입되는 플럭스의 조성 특히 불소(F)와 염소(Cl)의 물리적 특성에 기인한다.

알루미늄에 플럭스와 각 핵종을 첨가한 후 용융하였을 경우에 주괴와 슬래그 그리고 분진에 각각 분포하는 핵종의 분배 특성을 Fig. 3.2.3.10에 나타내었다. Cobalt의 경우 실험조건(Flux A, 9wt%)에 따라 최대 60%까지 주괴에서 슬래그로 이동시켜 제거함으로써 높은 제염효과를 얻을 수 있었다. Cesium과 Strontium의 분배 특성은 대부분이 주괴에서 휘발되어 슬래그와 분진으로 이동하는 것을 확인할 수 있었다.

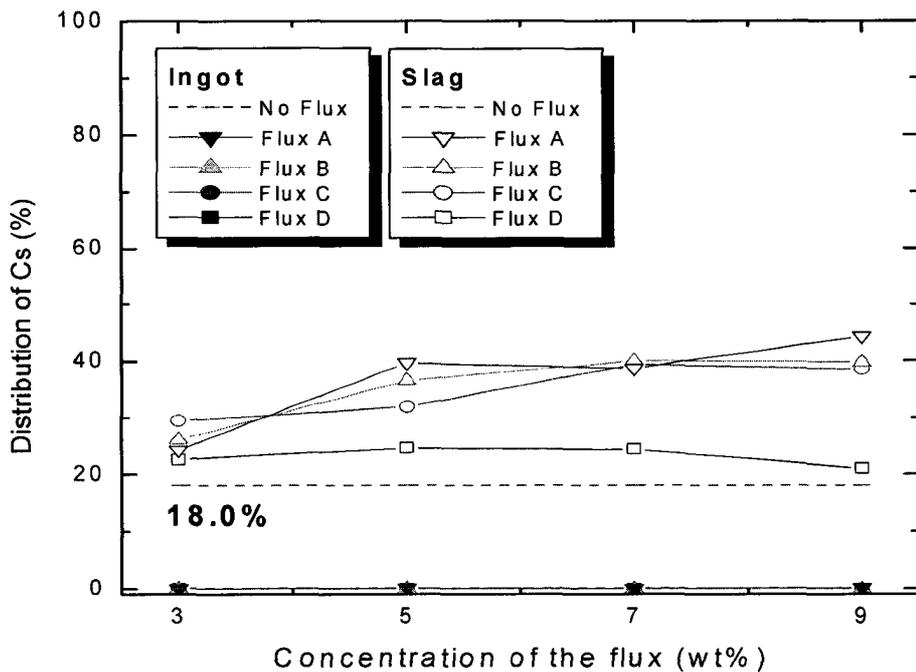


Fig. 3.2.3.8 Effect of the flux concentration on the distribution of Cesium in the ingot & slag phases

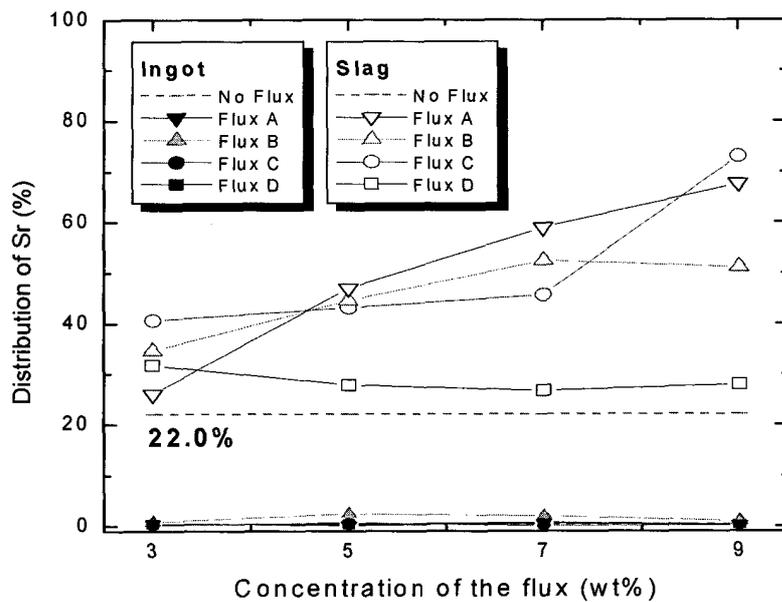


Fig. 3.2.3.9 Effect of the flux concentration on the distribution of Strontium in the ingot & slag phases

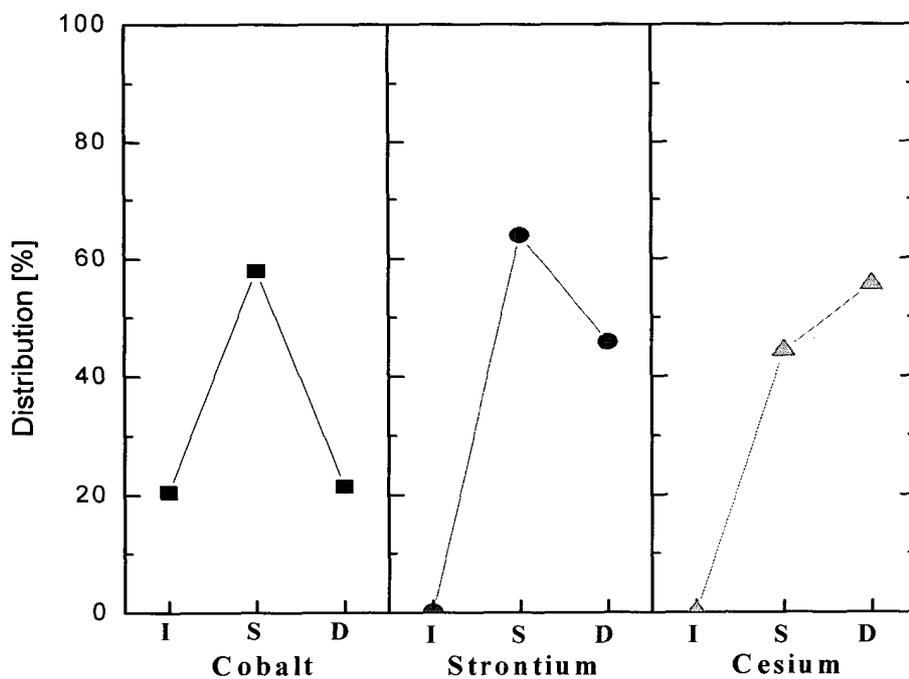


Fig. 3.2.3.10 The distribution of surrogate nuclides (Flux A, 9wt%).
(I : Ingot, S : Slag, D : Dust)

(라) 알루미늄 해체폐기물 실증 시험을 위한 cold test 결론

전기아크로에서 알루미늄 용융 시 알루미늄의 용융특성 및 플럭스 종류, 그리고 플럭스의 첨가량에 따른 방사성 핵종의 분배특성을 연구한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 알루미늄 용융체의 유동성 측면에서는 A>D>B>C 플럭스 순으로 우수하였으며, 아크로에서 알루미늄 용융의 운전 용이성은 플럭스 C>B>D>A 순으로 나타났다. 분진의 분석결과 Cs과 Sr 모두 10% 이상이 함유되어 있었으며 Sr보다 Cs이 더 많이 검출됨을 확인 할 수 있었다.
- Co는 실험조건(플럭스 농도 및 종류)에 따라 최대 약 60%, 휘발성 핵종인 Cs은 최대 44%, 반 휘발성인 Sr의 경우 최대 73%가 용융체에서 슬래그 상으로 이동함으로써 매우 우수한 제염 효과를 얻을 수 있었다.
- 운전의 용이성과 용융 및 제염특성을 평가한 결과 플럭스 NaCl-KCl-Na₃AlF₆와 CaF₂가 다른 플럭스보다 알루미늄 금속 제염 시 가장 유리한 플럭스로 나타났다.

(2) Carbon steel 및 Stainless steel 용융 제염 Cold Test

원자력 시설에서 발생하는 방사성 금속 폐기물은 특성상 매우 다양한 금속재질의 구성품, 배관류, 기기, 공구류 및 펌프류, 파이프, 볼트, 너트 등으로 이러한 금속 폐기물은 부피 감용비가 적고 발생 장소와 위치 그리고 하나의 부품이라도 위치에 따라 오염의 정도가 다르기 때문에 처분 및 처리에 많은 어려움을 가지고 있으며 이러한 금속 조가의 폐기물은 대부분 아주 미미하게 오염되어 있어 대부분은 무구속 방출이나 제염 후 일정한 공정을 거쳐 재활용이 가능하다. 일반적으로 1000MWe PWR(Pressurized Water Reactor)과 881MWe PHWR(Pressurized Heavy Water Reactor) 원자력 발전소의 해체 시 각각 24,800ton과 26,500ton의 금속성 해체 폐기물이 발생할 것으로 예상된다. 이러한 금속 폐기물 처분의 안정성과 경제성을 확보하기 위해 안정화와 감용 및 재활용을 추구하는 처리기술의 확보 및 개선에 대한 연구가 많이 이루어져 오고 있으며 이중 가장 설득력이 있는 기술이 용융 기술이다. 방사성 금속 폐기물을 처리하기 위한 방법으로 가장 적절한 기술로 유지보수가 용이하고 약 5000~6000℃의 아크열의 효율을 극대화 시킬 수 있으며 이로 인한 빠른 승온과 자유로운 용융 온도조절이 가능하면서 간단한 배기체 시스템, 운전비용 저감 등의 장점을 가지고 있는 아크로가 국외적으로 많이 사용되고 있으며 산업현장에서는 금

속 용융을 위해 폭넓게 사용되고 있다. 독일과 프랑스, 미국 등의 해외 원자력 선진국들은 아크로를 사용하여 강재를 용융제염한 결과 상당히 우수한 결과를 얻었으며 아울러 매우 안정하게 주괴 내에 낮은 오염도로 균질화시켜 오염된 금속폐기물의 안전성과 부피의 감소 그리고 저준위 금속 폐기물의 재활용이라는 3가지 목표를 충분히 만족시켰다. 따라서 본 연구에서는 국내적으로 현재 해체 진행 중인 TRIGA Mark-II, III(연구로 1, 2호기)와 우라늄 변환시설의 해체 시 발생하는 여러 가지 금속성 폐기물중 Stainless steel(SUS)과 Carbon steel(CS)에 대한 용융 기술을 수립하고자 실험실 규모의 아크 용융로에서 모의 핵종으로 오염시킨 SUS 304 폐기물을 대상으로 용융 특성과 모의 핵종의 분배특성을 살펴보았다.

(가) Carbon steel 및 Stainless steel의 용융 실증 시험 실험방법

용융 실험에 사용된 SS 시편은 원자력 시설에서 일반적으로 쓰이는 SUS 304L과 Carbon steel을 택하였다. 시편은 두께가 1mm인 금속판을 10 mm×10 mm의 크기로 절단하여 500g을 흑연도가니에 장입하여 용융하였다. 방사성 동위원소의 핵종 거동을 평가하기 위해 사용된 모의 핵종(surrogate nuclide)은 총 3가지(Co, Sr, Cs)로서 각각의 화합물들은 약 500 ppm으로 금속 시편에 고착성 형태로 오염시켰다. 비방사성 모의 핵종의 안전한 제거를 위해 슬래그 양은 시편무게의 10 wt%로 첨가하였으며 다양한 슬래그 구성에 따라 이들 각각에 대해 모의 핵종의 분배 특성 및 거동을 평가하였다. 본 실험에서 사용된 모의 핵종과 용융실험조건은 Table 3.2.3.2와 같다.

Table 3.2.3.2 Chemical forms of surrogate nuclide and experimental variables

Surrogate nuclide	CoCl ₂ 6H ₂ O, CsCl, SrCl ₂ 6H ₂ O (each 500ppm)
Melting time [min]	10
Melting temperature[°C]	1300 ~ 1500
Melting materials	Carbon steel, Stainless steel
Basicity Index [BI]	0.52, 0.828, 1.283, 1.598, 2.325
Melting electrode	Graphite rod(20mm), Tungsten rod(5mm)
Melting crucible	Graphite crucible (300cc)
Electric power [Kw]	7 ~ 20

Surrogate nuclides들의 분배특성은 물질전달, 화학반응, 열전달 등 다양한 운전조건에 의해 좌우되는데 본 실험에서는 슬래그의 종류와 조성을 운전변수로 채택하였다. 흑연 도가니에 500 g의 SUS 304와 Carbon steel 시편에 모의 핵종을 장입한 후 아크를 발생시켜 용융하였다. 본 실험에서 SUS와 CS의 용융을 위해 사용된 슬래그 형성제(slag former)의 성분 및 조성을 Table 3.2.3.3과 4에 나타내었다. Molten metal/Slag의 충분한 혼합이 이루어지는 시점에 도달하면 용융된 SUS 용융체는 동으로 제작된 몰드에 용융물을 부어 주괴를 생산하였으며, 금속 용융체의 하부에 존재하는 슬래그는 분말 형태로 채취되었다. 이러한 과정을 Fig. 3.2.3.11에 나타내었다. 채취한 주괴와 슬래그는 ICP-AES(IRIS DUO, Thermo Elemental Co)와 ICP-MS(X-7, Thermo Elemental)를 사용하여 정량을 분석하였으며, XRD와 XRF, SEM 분석을 통해서 각각의 시료에 결정상 구조, 형성된 화합물의 구조와 표면조직을 살펴보았다.

Table 3.2.3.3 The composition of the slag former for the melting of stainless steel

Slag former composition, wt%						
Slag Former	SiO ₂	CaO	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	B ₂ O ₃	Other
SF - S1	40	40	20			
SF - S2	40	30	20			CaF ₂ - 10
SF - S3	30	40	10	20		
SF - S4	30	50	10	5		CaF ₂ - 5
SF - S5	80	4	2		13	K ₂ O - 1
SF - S6	38.1	41.4	14.1	2.6		MgO - 3.8
SF - S7	75	25				
SF - S8	35	65				

Table 3.2.3.4 The composition of the slag former for the melting of carbon steel

Slag former composition, wt%						
Slag Former	SiO ₂	CaO	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	Other	Basicity
SF - C1	50	30	20			0.520
SF - C2	40	40	20			0.828
SF - C3	30	50	20			1.283
SF - C4	10	50	40			1.598
SF - C5	10	60	30			2.325
SF - C6	80	4	2		B ₂ O ₃ - 13	
SF - C7	30	40	10	20		
SF - C8	40	30	20		CaF ₂ - 10	
SF - C9	38.1	41.4	14.1	2.6	MgO - 3.8	
SF - C10	30	40	10		P ₂ O ₅ - 20	

(나) Carbon steel 및 Stainless steel의 용융 실증 시험의 실험결과

용융실험에 의해 얻어진 슬래그의 결정상 구조는 X선 회절분석기(X-ray Diffractometer, XRD)를 사용하여 분석하였다. Monolithic 판상 고화체 시편의 XRD 분석에 사용된 기기는 일본 Rigaku사의 D/MAX 2500H 제품으로서 분석시험은 Cu/α 표적을 이용하여 조사각도 10~130°, 조사속도 5°/분으로 실시하였다. XRD 분석 결과는 Fig. 3.2.3.12에 나타내었는데 모든 시료에서 결정상이 존재함을 나타내는 특정 피크가 없이 완전한 곡선형태를 보였다. 이는 유리와 같은 전형적인 무정질체(amorphous material)에 나타나는 형상으로 용융실험에 의해 첨가된 슬래그 형성제가 균질하게 용융되어 유리질의 슬래그로 전환됨을 의미한다.

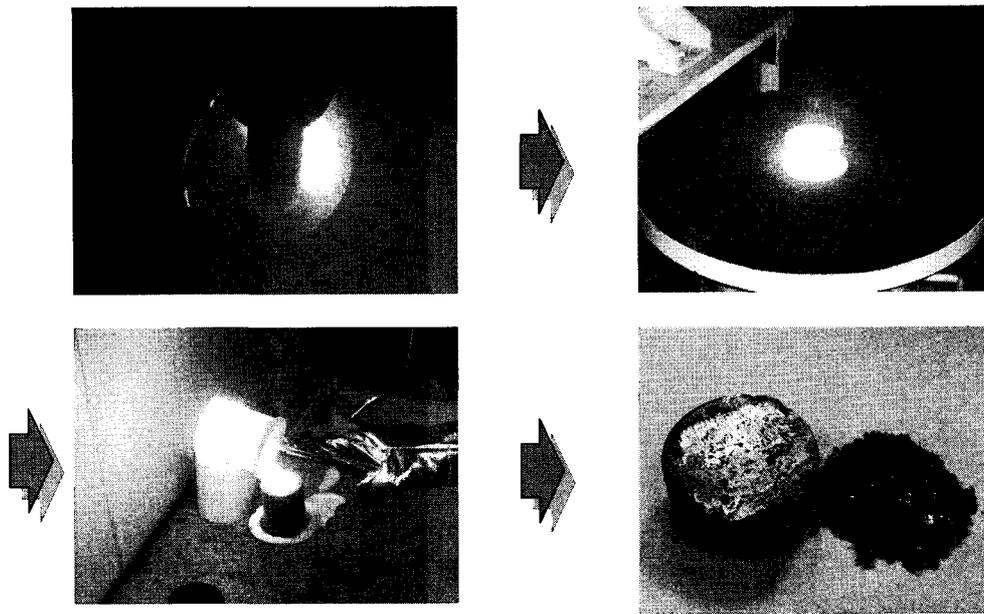
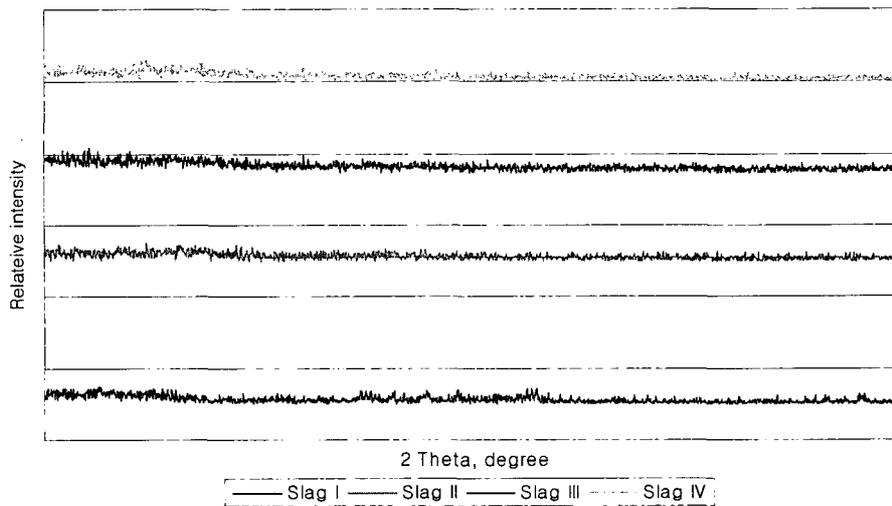


Fig. 3.2.3.11 Procedure of the stainless steel melting



No	Slag former	Basicity
Slag I	SiO ₂ -CaO-Al ₂ O ₃	0.52
Slag II		0.82
Slag III		1.28
Slag IV		1.42

Fig. 3.2.3.12 Results of XRD analysis for the slag generated by melting

실험에 의해 얻어진 슬래그는 JEOL LTD사의 SEM을 사용하여 시편의 미세구조 분석을 실시하여 촬영 결과를 Fig. 3.2.3.13에 나타내었다. Fig. 3.2.3.13에서 볼 수 있

듯이 슬래그 내에 기포 결합 및 불연속성이 존재하지 않음을 알 수 있다. 즉 유리성분의 결정질 부분과 유리 및 유리 폐기물 금속산화물 부분의 계면 이질성이 존재하지 않아 용융 시험에서 생성된 슬래그는 전체적으로 비결정질 부분으로 안정화되어 균질한 고화체가 형성되었음을 알 수 있다.

아크 용융 시스템에서 슬래그 형성제의 성분 및 조성은 방사성 핵종의 분배 및 용융 특성에 많은 영향을 미친다. Fig. 3.2.3.14는 스테인레스강의 용융 시 슬래그 발생량에 대한 슬래그 형성제의 영향을 나타내었다. 슬래그 형성제의 양이 증가함에 따라 전체적으로 슬래그 발생량이 증가하는 경향을 나타내고 있다. 슬래그의 유동성 측면에서 CaF_2 를 함유하고 있는 SF-S2의 용융실험이 매우 좋은 유동성을 나타내었는데, 이는 CaF_2 에 포함되어 있는 불소(F)가 슬래그 형성제를 주로 구성하고 있는 SiO_2 의 실리케이트 network를 절단하기 때문이다[3.2.2.3, 3.2.2.9]. 따라서 SF-S2의 용융 실험에서는 슬래그 형성제의 양이 증가함에도 슬래그 발생량의 증가폭이 다른 실험에 비해 적게 증가함을 알 수 있다.

코발트 핵종은 방사선량의 측면에서 볼 때 금속성 해체 폐기물 내에 매우 많은 양을 차지하고 있기 때문에 제염 및 해체 분야에서 매우 중요한 핵종으로 분류된다. 스테인레스강의 용융 시 슬래그 형성제의 증가에 따른 코발트 핵종의 분배 특성을 Fig. 3.2.3.15에 나타내었다.

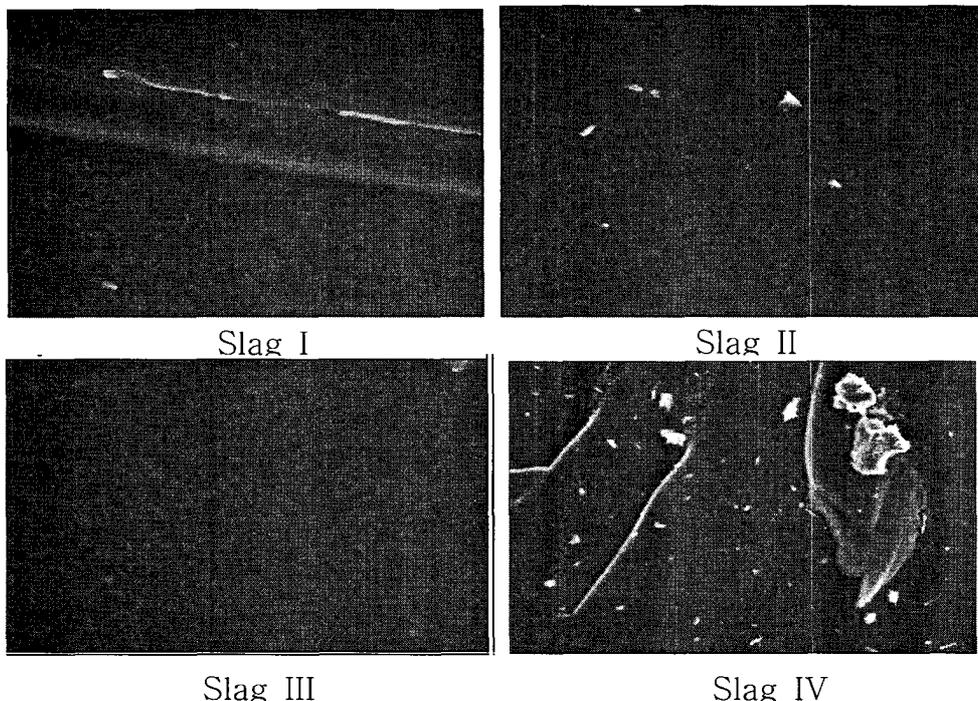


Fig. 3.2.3.13 SEM photographs of the slags generated by stainless steel melting

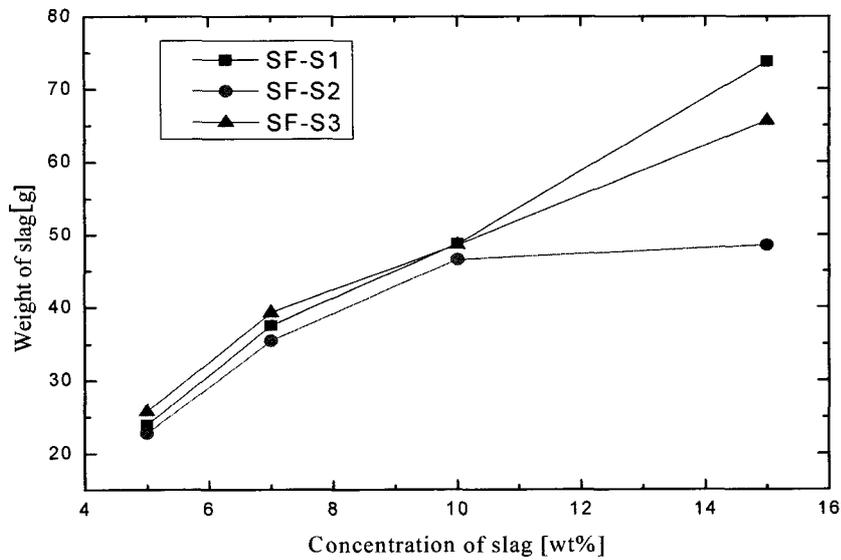


Fig. 3.2.3.14 Effects of the concentration of the slag former on the slag formation

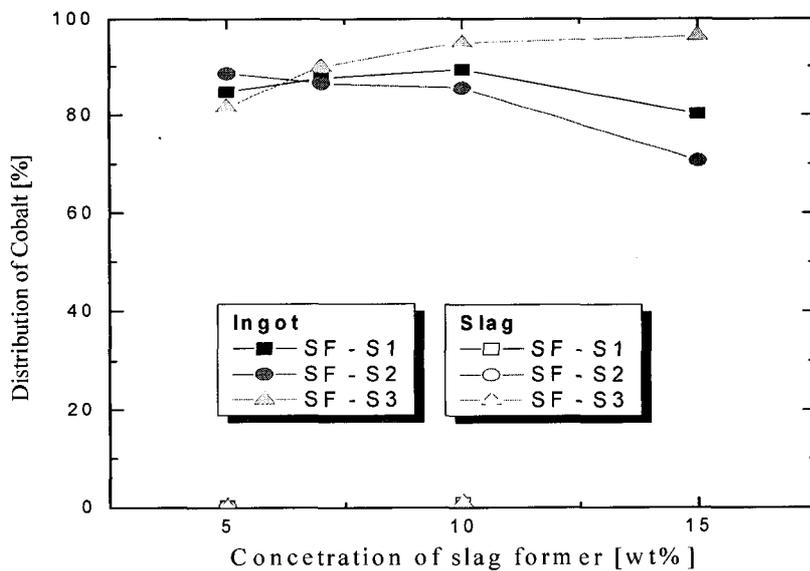


Fig. 3.2.3.15 Effects of the concentration of the slag former on the distribution of cobalt

주괴에서의 Co의 분배 특성은 첨가한 슬래그 형성제의 종류에 따라 여러 가지 다른 경향을 나타내었다. Fe_2O_3 를 포함한 SF-S3의 용융 실험에서 코발트는 슬래그 형

성제의 첨가량이 증가함에 따라 주괴에서 다른 상으로 이동하지 않음을 알 수 있다. 그러나 반대로 CaF_2 를 포함하고 있는 SF-S2의 용융 실험에서는 슬래그 형성제의 첨가량이 증가함에 따라 슬래그 상이나 분진상으로 이동하는 코발트 양이 증가함을 알 수 있다. 이는 코발트가 불소의 휘발 시 함께 휘발되어 분진상으로 이동하기 때문이다.

Fig. 3.2.3.16은 스테인레스강의 용융 시 첨가한 슬래그 형성제의 종류에 따라 주괴, 슬래그, 분진 등의 각 상으로 분배되는 코발트의 특성을 나타낸 Fig.이다. Fig.에서 볼 수 있듯이 첨가한 슬래그 형성제의 종류에 따라 코발트의 분배 특성은 매우 상이한 결과를 나타내고 있다. 여러 가지의 슬래그 형성제를 가지고 실험한 결과 SF-S8을 포함한 용융 실험이 코발트를 금속 용융체에서 제거하는데 가장 효과적인 것으로 나타났다. 이러한 결과는 금속성 해체 폐기물에서 코발트 핵종을 제거하기 위해서는 적절한 슬래그 형성제와 첨가량이 존재함을 나타낸다.

슬래그 형성제의 첨가량에 따른 Sr의 분배 특성을 Fig. 3.2.3.17에 나타내었다. 반휘발성 특성을 지닌 Sr은 모든 슬래그 형성제의 종류에 관계없이 첨가량이 증가함에 따라 주괴에서 휘발되어 슬래그 상에 많이 포집됨을 알 수 있다. 일반적으로 스테인레스강의 용융체 온도가 매우 높기 때문에 용융체 내에 포함되어 있는 Sr은 거의 대부분 주괴에서 휘발하여 슬래그나 분진으로 이동한다[3.2.2.26]. 슬래그 형성제의 첨가량이 증가함에 따라 포집되는 Sr이 증가되는 이유는 Sr을 포집할 수 있는 슬래그의 양이 증가할 뿐만 아니라 슬래그와 반응하여 슬래그에 포집되는 반응시간과 강도가 증가하기 때문이다.

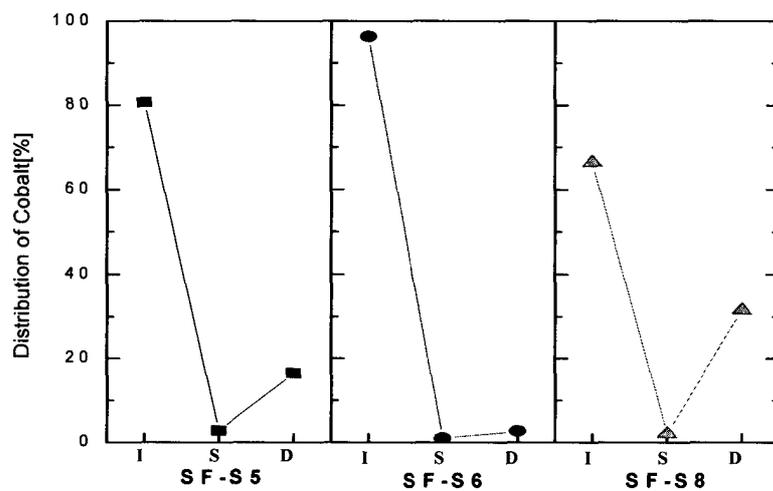


Fig. 3.2.3.16 Effects of the kinds of slag former on the distribution of cobalt

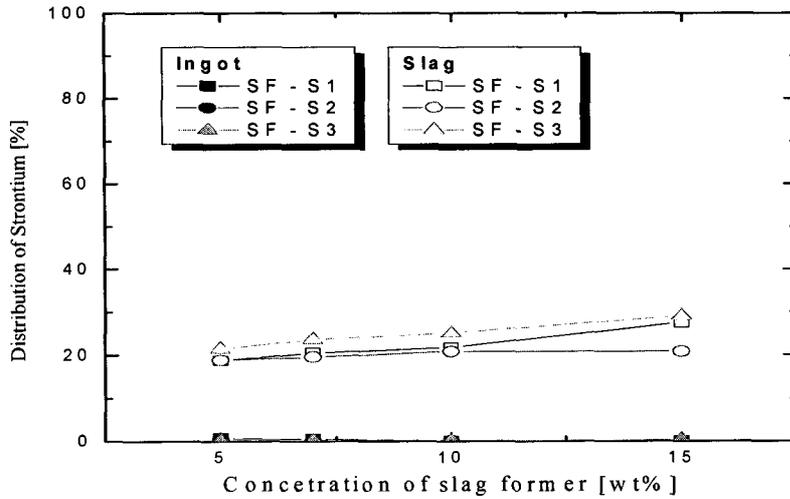


Fig. 3.2.3.17 Effects of the concentration of the slag former on the distribution of strontium

Fig. 3.2.3.18은 스테인레스강의 용융 시 Cs의 분배특성을 나타낸 Fig.이다. Fig.에서 볼 수 있듯이 Cs은 주괴와 슬래그에서는 거의 1%정도만이 분포하고 99%가 휘발되어 분진상으로 이동함을 알 수 있다. 이는 휘발온도가 상대적으로 낮은 Cs이 1500℃ 이상의 용융체내에서 대부분 휘발되어 분진으로 이동하기 때문이다[3.2.2.27]. Fig.에서 볼 수 있듯이 첨가한 슬래그 형성제의 종류에 관계없이 거의 모두 분진상에 분포함을 알 수 있다.

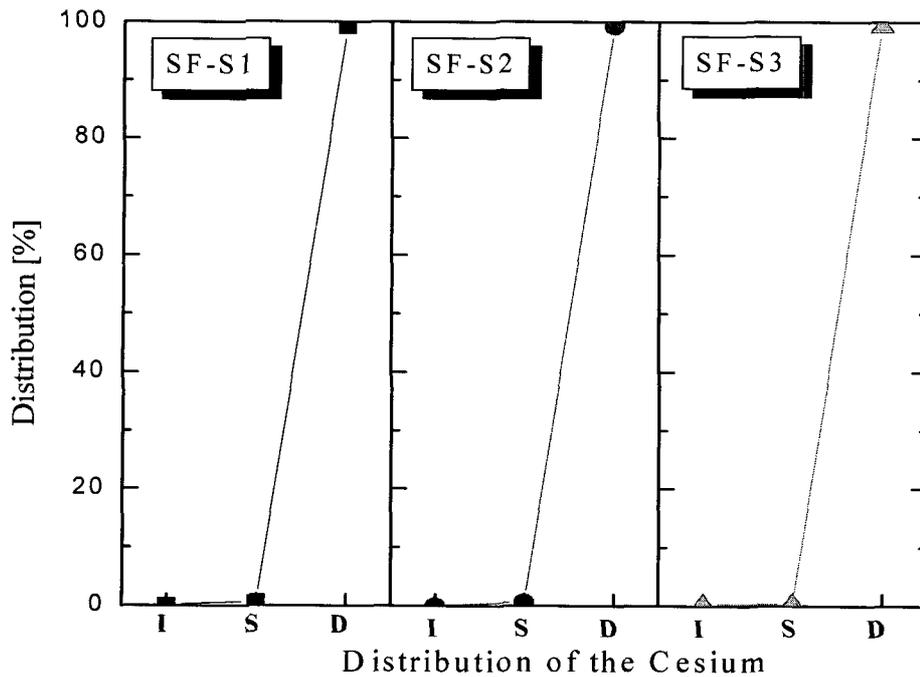


Fig. 3.2.3.18 Effects of the kinds of slag former on the distribution of cesium

염기도는 금속 용융 기술에서 슬래그를 제어하는데 매우 중요한 변수로서 염기도에 의해 슬래그의 유동성 및 슬래그의 용융온도가 변화한다. Fig. 3.2.3.19는 염기도에 따른 탄소강과 스테인레스강의 용융 시 발생하는 슬래그의 양을 나타낸 Fig.이다. Fig.에서 볼 수 있듯이 염기도가 증가함에 따라 두 금속 모두에서 슬래그의 발생량이 증가하다가 감소하는 경향을 나타내고 있다. 스테인레스강의 경우 염기도가 1.2일 때 가장 많은 슬래그가 발생하였고, 탄소강의 경우에는 염기도가 약 0.8일 때 가장 많은 슬래그가 발생함을 알 수 있다. 슬래그의 조성에 따라 약간의 차이는 있겠지만 대부분 염기도에 따라 슬래그의 발생량이 증가하였다가 감소하는 변곡점을 나타내는데 이는 염기도가 슬래그의 용융온도와 밀접한 관계를 갖고 있기 때문이다. 일반적으로 슬래그의 용융온도는 슬래그의 염기도가 증가함에 따라 감소하다가 증가하는 것으로 알려져 있다[3.2.2.28]. 즉, 염기도가 증가함에 따라 슬래그의 용융온도는 최소값을 나타낸다는 것이다. 따라서 용융온도가 낮은 부분에서 슬래그 형성제는 빨리 용융되어 슬래그를 형성함으로써 다른 부분에서 슬래그 형성제가 용융되지 않고 휘발되거나 입자상의 슬래그로 존재하는 것보다 많은 슬래그가 발생하는 것이다.

Fig. 3.2.3.20은 염기도의 증가에 따른 각 핵종의 분배 특성을 나타낸 것으로 Co의 경우에는 염기도의 변화에 크게 영향을 받지 않고 있음을 알 수 있다. Fig. 3.2.3.15

와 비교할 때 Co 핵종은 첨가한 슬래그 형성제의 조성이나 염기도보다는 슬래그 형성제의 성분에 더욱 큰 영향을 받는다는 것을 의미한다. Cs 또한 스테인레스강의 용융 결과와 같은 결과를 나타내고 있는데 이는 용융체의 온도가 Cs의 휘발온도보다 상대적으로 매우 높기 때문에 대부분 분진으로 이동하였기 때문이다. 그러나 Sr의 경우에는 슬래그 발생량과 같은 경향을 나타냄을 알 수 있다.

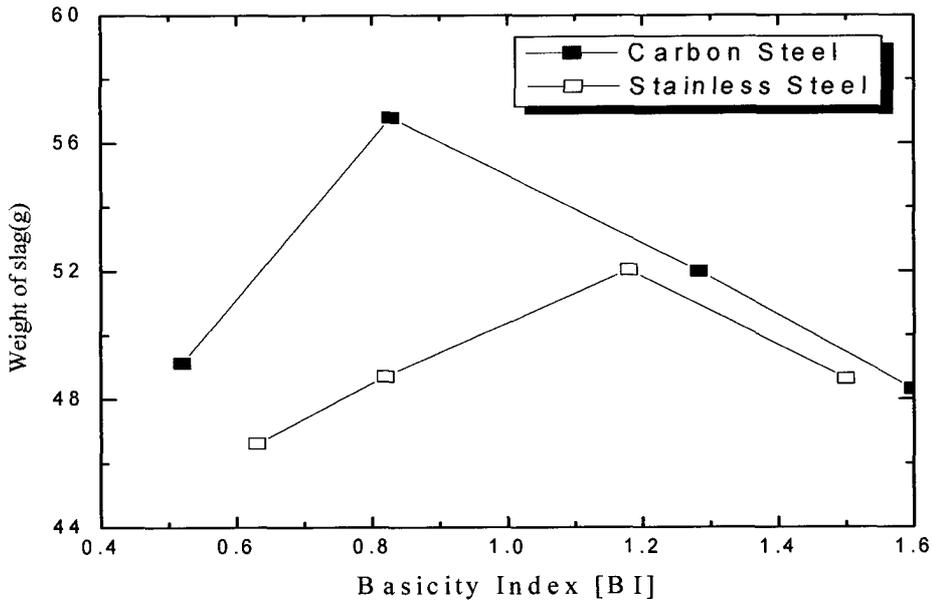


Fig. 3.2.3.19. Effects of the slag basicity on the slag formation.

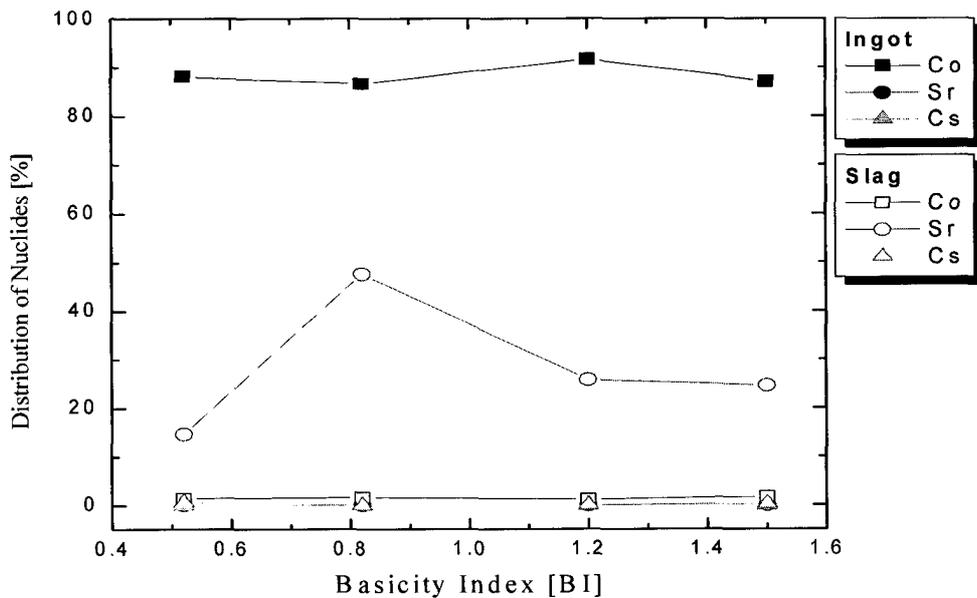


Fig. 3.2.3.20. Effects of the slag basicity on the distribution of the surrogate nuclides in the carbon steel melting.

Fig. 3.2.3.21은 SF-C8의 슬래그 형성제를 첨가한 탄소강 용융 실험에서 각 핵종의 분배 특성을 나타낸 그림이다. Cs은 대부분 분진상에 분포함을 알 수 있으며 Sr은 약 30%까지 슬래그 상에 포집되고 나머지는 분진상으로 이동함을 알 수 있다. Co의 경우에는 약 90%가 주괴에 분포하고 슬래그와 분진에 나머지 10%가 분포함을 확인할 수 있었다.

슬래그 형성제의 종류에 따른 각 핵종의 분배 특성을 Fig. 3.2.3.22에 나타내었다. 스테인레스강의 경우와 마찬가지로 탄소강의 경우에서도 슬래그 형성제의 종류에 따라 핵종의 분배 특성이 변화함을 알 수 있다. Co의 경우 SF-C7의 슬래그 형성제를 첨가한 용융 실험에서 가장 많은 양의 코발트가 주괴에서 이동하여 슬래그나 분진상으로 이동함을 알 수 있었으며, Sr의 경우에는 SF-C9의 슬래그 형성제가 가장 효과적임을 알 수 있었다. Cs의 경우에는 슬래그 형성제의 종류에 무관하게 대부분 분진으로 이동함을 알 수 있다.

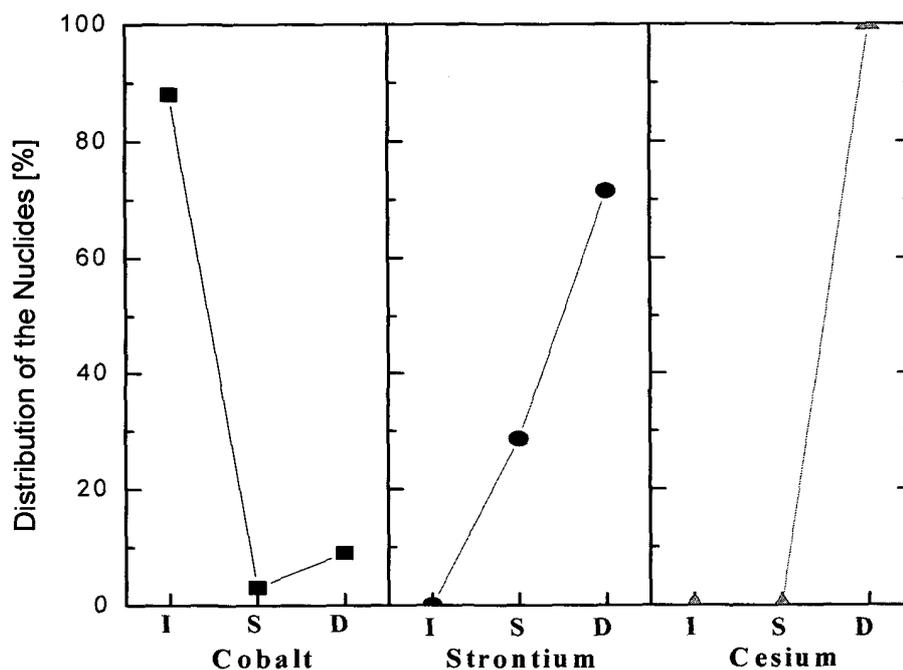


Fig. 3.2.3.21. The distribution of the nuclides in the melting with SF-C8(SF-C8, 10wt%).

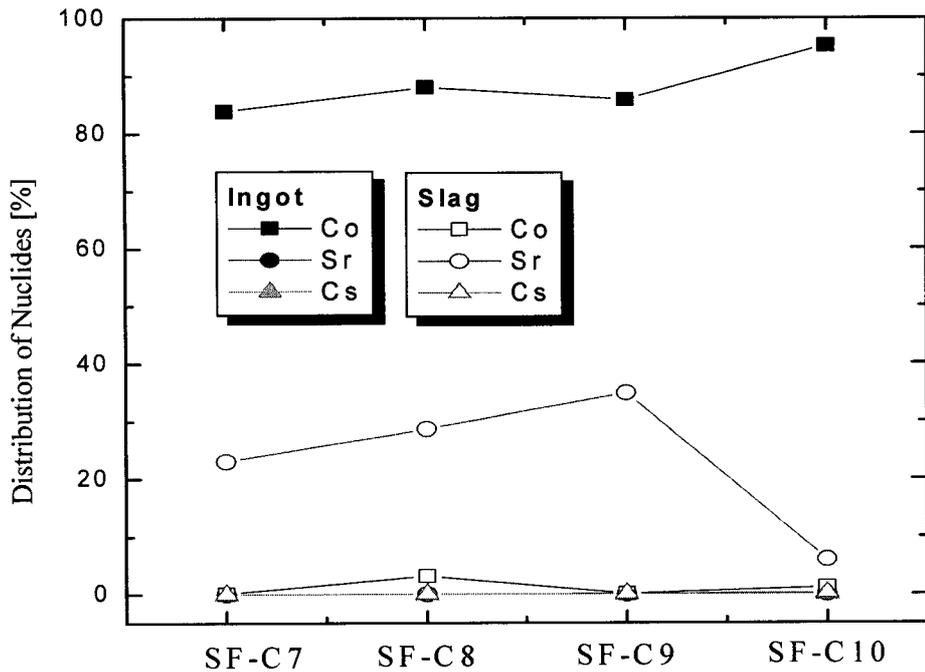


Fig. 3.2.3.22. Effects of the kinds of slag former on the distribution of the nuclides.

(다) Carbon steel 및 Stainless steel의 용융 실증 시험의 결론

스테인레스강의 용융 시 슬래그의 발생량 및 유동성은 CaF₂를 함유한 SF-S2가 가장 유동성이 좋았으며 슬래그의 발생량도 적음을 알 수 있었다. 슬래그 형성제의 첨가량이 증가함에 따라 Co는 형성제의 종류에 따라 다른 경향을 나타내었으며, Cs은 주괴와 슬래그 상에서 휘발되어 대부분이 분진 상으로 이동함을 확인할 수 있었다. Sr의 경우에는 다른 핵종과 달리 슬래그 형성제의 첨가량이 증가함에 따라 슬래그 상에 포집되는 양이 증가함을 나타내었다. 따라서 스테인레스강의 용융 시 방사성 핵종의 제거를 위해서는 적절한 슬래그 형성제의 선택이 필요함을 알 수 있었다.

탄소강의 용융 결과 염기도가 증가함에 따라 슬래그 발생량이 증가하였다 감소하는 경향을 나타내었는데 이는 슬래그 상에서 Sr의 분배 경향과 거의 일치함을 알 수 있었다. Co의 분배 특성은 염기도와는 무관함을 알 수 있었으며 Cs의 경우에는 스테인레스강의 결과와 동일함을 알 수 있었다.

(3) Aluminum 해체 폐기물 RI(radioisotope) Test

알루미늄 해체 폐기물의 용융 및 용융 시 알루미늄 폐기물 표면에 오염되어 있는 방사성 핵종들(Co, Cs)의 분배특성을 고찰하기 위해 Radioisotope(RI)를 이용하여 알

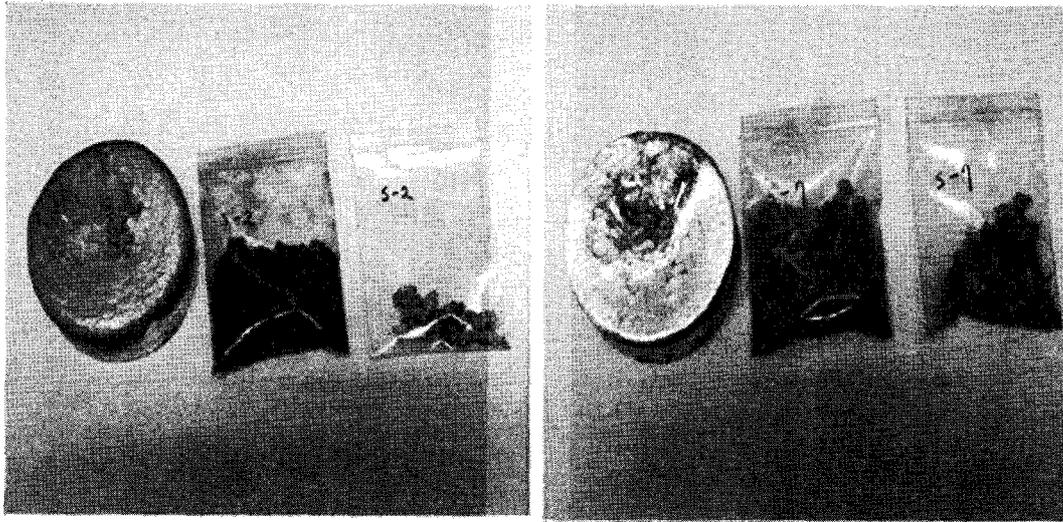
루미늄을 오염시킨 후 분포특성을 고찰하였다. 본 실험에 사용한 RI는 한국원자력연구소에서 구입한 것으로 Co와 Cs이 각각 2N 농도의 HNO₃ 10ml에 5mCi씩 포함되어 있다.

알루미늄 RI test는 Co와 Cs의 RI를 알루미늄 200g에 각각 1.12와 1.0 μ Ci씩 오염시킨 후 300ml 용량의 흑연도가니(graphite crucible)에 넣고 아크로에서 용융시켰다. 알루미늄 용융실험에 사용한 플럭스의 종류와 첨가량, 그리고 실험변수를 Table 3.2.3.5에 나타내었다.

Fig. 3.2.3.23은 RI로 오염시킨 알루미늄 시편을 용융했을 때 얻어진 알루미늄 주괴와 슬래그를 나타낸 사진이다. 용융실험을 마친 후 알루미늄의 용융체는 구리 몰드에 부어 원통형의 주괴를 얻었으며, 슬래그는 흑연도가니 표면과 바닥에 존재하는 것을 채취하였다. 이렇게 얻어진 주괴와 슬래그는 일정량을 샘플링하여 Canberra사의 HP-Ge 검출기를 사용하여 방사능을 측정하였다. 방사능의 분석 결과 알루미늄 용융시 Co-60은 Fig. 3.2.3.24에서 볼 수 있듯이 플럭스를 첨가하지 않았을 경우에는 약 65%이상이 주괴에 존재하지만 플럭스를 첨가한 후 용융하였을 경우에는 최대 16%(Flux B)까지 감소하는 경향을 나타내었다. Cold test의 결과와 비교할 때 RI 실험결과는 플럭스를 첨가하지 않은 경우에 보다 많은 양의 Co가 슬래그나 분진으로 이동하였고 플럭스를 첨가한 경우에는 거의 비슷한 결과가 나타났음을 확인할 수 있었다.

Table 3.2.3.5 The composition of the flux agent and experimental variables

Flux composition	Flux A : NaCl + KCl + Cryolite Flux B : NaCl + NaF + KF Flux C : CaF ₂ Flux D : LiF + KCl + BaCl ₂
Radioisotope	Co-60 Cs-137
Aluminum specimen	200g / Batch
Melting temperature	700 ~ 900 $^{\circ}$ C
Melting time	3 ~ 5 min



(a) Flux B (NaCl, NaF, KF ; 7wt%)

(b) Flux C (CaF₂ ; 9wt5)

Fig. 3.2.3.23 The example of the ingot and slag generated by the aluminum melting

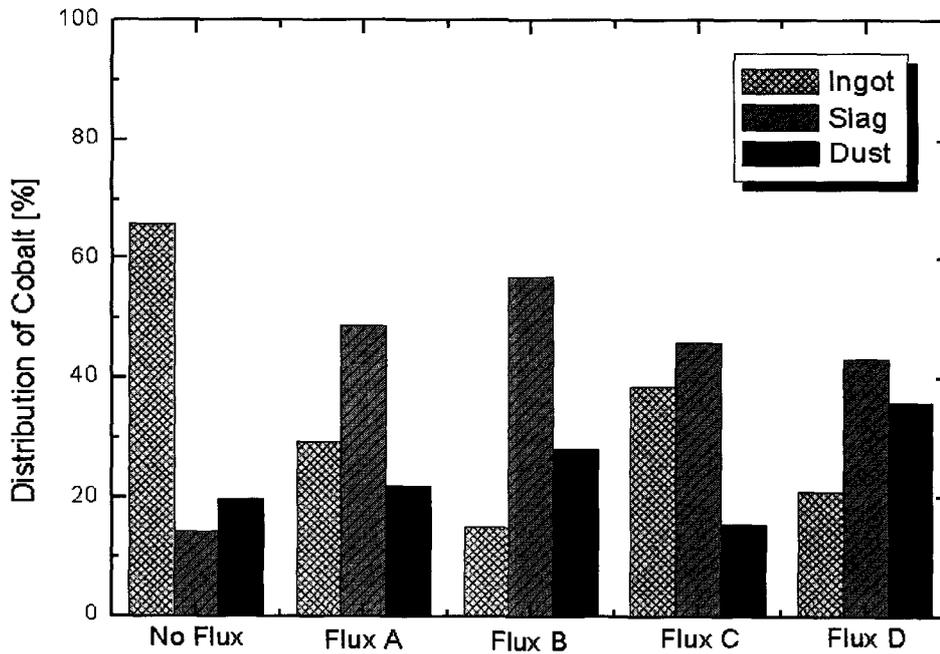


Fig. 3.2.3.24 Effect of flux type on the distribution of cobalt in ingot, slag and dust phases

Fig. 3.2.3.25는 아크로에서 알루미늄 용융 시 방사성 핵종인 Cs-137의 분배 특성을 나타낸 Fig.으로서 대부분의 Cs이 주괴에서 휘발되어 슬래그와 분진 상으로 이동함

을 확인할 수 있다. Cs-137을 포함한 알루미늄의 용융 결과도 마찬가지로 Cold test의 결과와 비교할 때 거의 같은 경향을 나타내고 있음을 알 수 있다. 플럭스를 첨가하지 않은 경우에 Cold test에서는 약 22%가 슬래그에 포집되었는데, RI test에서는 약 18%정도 포집되었다. 플럭스를 첨가한 경우도 마찬가지로 거의 비슷한 포집율을 나타내었으며, Flux A를 포함한 실험이 Cold test와 RI test에서 비교적 높은 포집효율을 나타내었다.

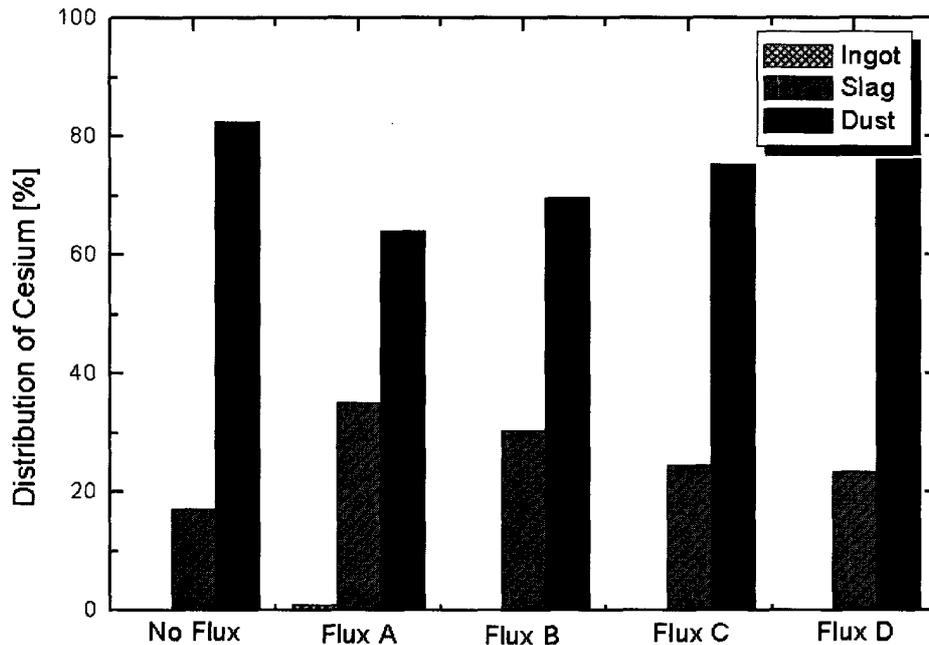


Fig. 3.2.3.25 Effect of flux type on the distribution of cesium in ingot, slag and dust phases

(4) 베타/감마 오염 해체폐기물의 용융제염 기술실증

금속 용융제염의 실험실적 기술실증을 위한 마지막 단계로 베타/감마/U으로 오염된 실제 해체폐기물의 용융실험을 수행하고자 TRIGA Mark-II, III의 해체 시 발생한 알루미늄 시편을 준비하였다. Fig. 3.2.3.26은 오염된 알루미늄의 시편의 사진으로서 경화알루미늄(Duralumin)과 알루미늄 파이프의 두 종류이다.

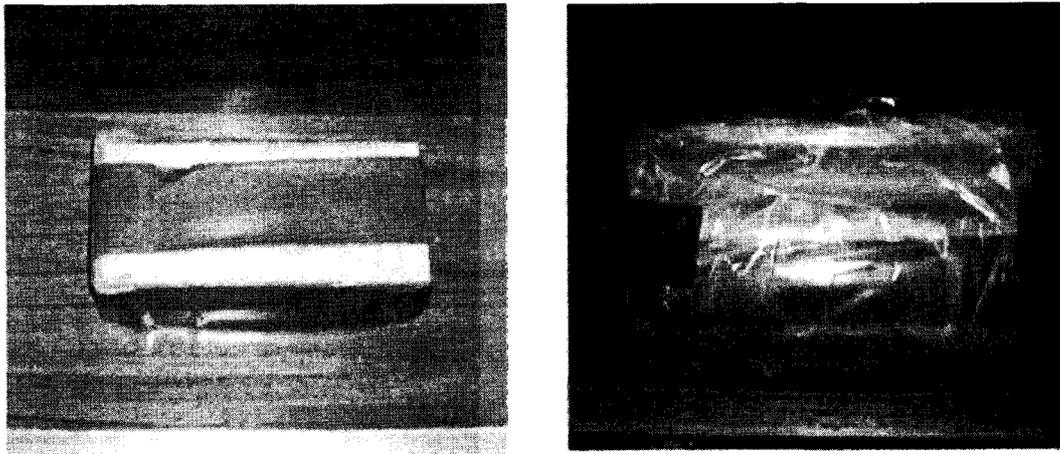


Fig. 3.2.3.26 Samples of the duralumin and aluminum pipe from TRIGA MARK-II, III

실제 해체폐기물의 용융 시 핵종의 분배 특성을 위해 연구하고자 준비한 알루미늄 시편의 비방사능 분석 결과를 Table 3.2.3.6에 나타내었다. Duralumin의 비방사능은 다른 알루미늄 파이프의 비방사능에 비해 매우 높게 나타남을 알 수 있으며 Co-60의 핵종 하나만이 존재함을 알 수 있다. 그러나 알루미늄 파이프의 경우에는 비방사능이 거의 검출되지 않는 시편과 상대적으로 높은 비방사능을 나타내는 시편으로 나누어진다. 또한 일부의 알루미늄 파이프에서는 Cs-137이 검출됨을 확인할 수 있다. 앞으로 알루미늄 해체폐기물의 용융 시 방사성 핵종인 Co-60의 분배특성을 고찰하기 위해 실험실적인 기술실증이 이루어질 것이다.

Table 3.2.3.6 The results of the activity for the duralumin and aluminum pipe

Sample name	Weight of sample (g)	Specific activity (Bq/g)	
		Co-60	Cs-137
Duralumin	11.76	967.36±10.29	-
Aluminum pipe 1	18.32	253.59±2.80	-
Aluminum pipe 2	5.92	0.21±0.006	0.73±0.02
Aluminum pipe 3	4.10	0.20±0.01	0.29±0.01
Aluminum pipe 4	10.93	190.61±2.34	1.25±0.13
Aluminum pipe 5	11.06	85.96±1.26	0.57±0.12
Aluminum pipe 6	11.88	110.17±1.49	-
Aluminum pipe 7	11.08	97.57±1.53	0.57±0.13
Aluminum pipe 8	11.37	127.92±2.02	-
Aluminum pipe 9	12.48	100.52±1.41	-
Aluminum pipe 10	10.87	153.40±2.23	

다. 우라늄 오염 해체폐기물 용융제염 시험

금속용융기술은 용융에 의해 오염 핵종의 제염 및 높은 부피감용의 효과 때문에 방사성 금속폐기물의 처리에 매우 효과적인 방법으로 알려져 있다[3.2.2.29]. 특히 우라늄으로 오염된 금속폐기물의 경우에는 용융에 의해 매우 높은 제염계수를 얻을 수 있기 때문에 이에 대한 연구가 많이 진행되고 있는 실정이다. 현재 한국원자력연구소에서는 연간 100 톤 정도의 우라늄 원료를 생산하던 우라늄 변환시설이 해체 중에 있으며 최종적으로 약 180 톤 정도의 금속성 해체 폐기물이 발생할 것으로 예상하고 있다. 따라서 우라늄으로 오염된 금속 해체폐기물의 처리에 대한 기술 개발이 절실히 요구되고 있다.

이에 본 연구에서는 아크용융로를 이용하여 여러 가지 용융조건에서 슬래그 상으로 포집되는 우라늄의 분배특성을 고찰하고자 한다. 우라늄 분배특성을 고찰하기 위해 우라늄과 물리화학적으로 매우 유사한 특성을 가진 Ce과 천연우라늄(Natural Uranium, UO₂ powder)을 사용하여 먼저 cold test를 수행한 후 실제 우라늄 변환시설에서 인출한 우라늄 오염 금속폐기물을 대상으로 실증시험을 수행하였다.

방사성 동위원소의 핵종 거동을 평가하기 위해 사용된 핵종은 Ce 화합물의 모의핵종과 천연우라늄(Natural uranium, UO_2 powder)을 사용하여 약 500 ppm으로 금속 시편에 고착성 형태로 오염시켰다. 비방사성 모의 핵종의 안정적인 제거를 위해 슬래그 양은 시편무게의 10wt%로 첨가하였으며 다양한 슬래그 조성에 따라 이들 각각에 대해 모의 핵종의 분배 특성 및 거동을 평가하였다. 본 실험에서 사용된 모의 핵종과 용융실험 조건은 Table 3.2.3.7과 8에 나타내었다.

Table 3.2.3.7 Physical properties and experimental condition of the surrogate nuclide and natural uranium

	Cerium (Ce)	Uranium (U)
Compound form	Cerium nitrate [$Ce(NO_3)_2$]	Uranium oxide (UO_2)
Melting point, $^{\circ}C$	2600	2878
Density, g/cm^3	7.13	10.96
Added amount, ppm	500	500 ~ 8,000

Table 3.2.3.8 Composition and type of the slag former

Heat No.	Basicity index	Slag (wt%)	UO ₂ (ppm)	Composition (%)			
				SiO ₂	CaO	Al ₂ O ₃	Other
1	0.52	10	500	50	30	20	
2	0.82	10		40	40	20	
3	1.28	10		30	50	20	
4	1.49	10		30	54	16	
5	2.32	10		10	60	30	
6	3.14	10		15	70	15	
7	1.49	5	500	30	54	16	
8		7					
9		12					
10		15					
11	Aluminoborosilicate glass	10	500	Al ₂ O ₃ (14.5), B ₂ O ₃ (7.50), CaO(21.8), Fe ₂ O ₃ (0.2), Li ₂ O(0.5) Na ₂ O(0.5), SiO ₂ (55), TiO ₂ (0.5)			
12		10	1,000				
13		10	2,000				
14		10	4,000				
15		10	8,000				
-	High silica	10	500	70		30	
-	Fluoride containing	10		50		30	CaF ₂ (20)
-	Calcium Ferric Silicate	10		30	40	10	Fe ₂ O ₃ (20)
-	Calcium Magnesium Silicate	10		38.1	41.1	14.1	Fe ₂ O ₃ (2.0), MgO(3.7)
-	Borosilicate	10		80	4	2	B ₂ O ₃ (14)
-	Aluminum Ferric Silicate	10		60		20	Fe ₂ O ₃ (20)
-	Fluoride containing	10			25	25	CaF ₂ (50)

방사성 핵종의 분배특성은 물질전달, 화학반응, 열전달 등 다양한 운전조건에 의해 좌우되는데 본 실험에서는 슬래그의 종류와 조성 및 첨가량을 운전변수로 채택하였다. 시험 중 아크로의 Furnace power, Current, Frequency, Temperature, Time을 기록하였으며 충전 물질이 용융되면 아크로 전력을 승온시켜 용융물의 유동이 활발히 이루어지는 준위까지 증가시킨 후 유지시켰다. 흑연 도가니에 500g의 SUS 304 시편에 모의 핵종을 장입한 후 하부 전극 역할을 수행하는 Copper 도가니 안에 장착하였으며 유압시스템에 의해 상부의 Chamber에 완전 밀착시킨 후, 진공 시스템을 사용하여 약 720mmH₂O로 진공을 건 후 불활성 가스인 아르곤(Ar)을 주입하여 대기압과 동일

하게 유지하였다. 아르곤 가스는 탄소 전극봉의 소모를 방지하기 위하여 20 l/min의 유속으로 연속 주입하였고, 배기가스는 연속공기감시기(CEM)과 방사선량측정기(RMS)를 거쳐 유량을 자유로이 조절할 수 있는 2개의 배기팬(Induce pan)에 의해 대기 중으로 배출하였다. 방사성 핵종의 분포 특성을 알아보기 위해 500ppm의 Ce 화합물을 첨가하였으며, RI test를 하기위해 NU를 사용하여 실험하였다. 첨가한 슬래그 양은 각각의 조건에 따라 변화시켜 가면서 이들 슬래그의 조성과 종류에 따라 용융 실험을 수행하였다. 일단 Molten metal/Slag의 충분한 혼합이 이루어지는 시점에 도달하면 용융된 SUS 용융체는 동으로 제작된 몰드에 용융물을 부어 주괴를 생산하였으며, 금속 용융체의 하부에 존재하는 슬래그를 채취되었다. 주괴 내에 존재하는 각 핵종의 정확한 분석을 위해서 주괴의 다양한 위치에서 시료를 채취하였으며, 채취한 주괴와 슬래그는 전처리를 거친 후 Ce과 NU는 ICP-AES(IRIS DUO, Thermo elemental Co)를 사용하여 정량을 분석하였으며, SEM 분석을 통해서 각 시료의 결정상 구조와 형성된 화합물의 구조와 표면조직을 살펴보았다.

슬래그 형성제의 염기도 변화에 따른 Ce의 포집효율을 Fig. 3.2.3.27에 나타내었다.

본 실험에 사용된 슬래그는 calcium-aluminum-silicate로서 염기도는 0.52~1.5의 범위에서 실험을 수행하였다. 결과에서 볼 수 있듯이 Ce의 포집효율은 염기도가 증가함에 따라 증가하다가 감소하는 경향을 나타내고 있는데 이는 슬래그의 염기도가 Ce을 포집할 수 있는 화합물을 생성하는데 매우 중요한 역할을 하기 때문이다. 주괴로부터 슬래그상으로 분배되는 Ce의 값은 SUS 304 시편을 사용하여 시험한 천연우라늄(NU) 산화물의 분배율과 유사 보다 다소 높게 나타났다. 이는 슬래그의 화학적 조성과 대용물질로 사용된 Ce 핵종의 물리적 특성 차이에 기인한다. Sappok은 Ce을 사용한 용융실험에서 Ce-144은 모두 슬래그 상으로 이동한다고 보고하고 있다 [3.2.2.11]. 낮은 염기도와 슬래그량은 다른 실험치에 비해서 낮은 포집율을 보여주고 있는데 이는 CaO 성분이 낮아 Ce과 반응할 수 있는 SiO₂ 성분의 망상구조와 관능기가 낮기 때문으로 사료된다. Ce의 슬래그상의 포집율을 높이기 위해서는 0.8 이상의 염기도가 필요하며 1.5에서 최대 포집율을 보여주었다.

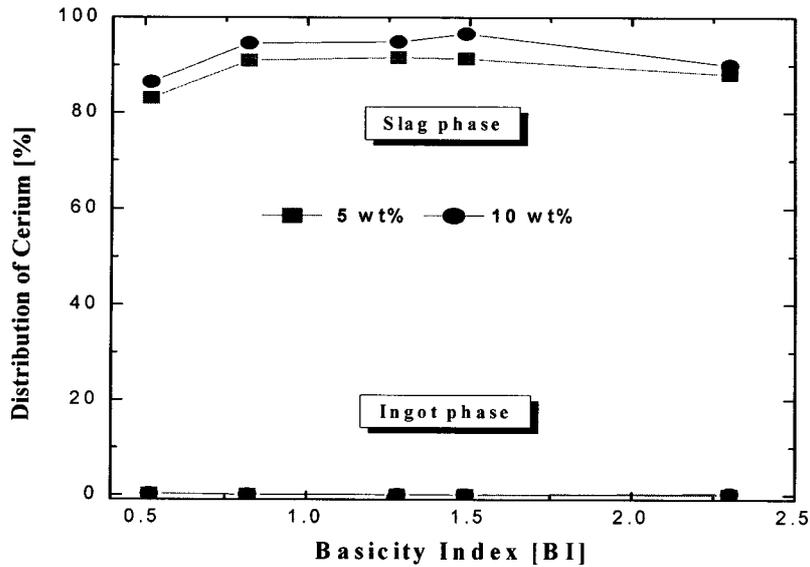


Fig. 3.2.3.27 Effects of the slag basicity on the distribution ratio of cerium in the slag and ingot

Fig. 3.2.3.38은 첨가한 슬래그의 변화에 따른 Ce의 포집 특성을 나타낸 그림으로 슬래그의 첨가량이 증가함에 따라 Ce의 포집효율이 선형적인 증가를 나타내었다. 슬래그의 첨가량이 증가함에 따라 Ce의 포집효율이 선형적으로 증가하는 이유는 Ce을 포집할 수 있는 Si 화합물이 증가하기 때문이다. 용융제염시 U, Ce, Sr의 오염핵종들은 슬래그 성분과 결합하여 용융체로부터 제거되는데 이는 산소와의 친화력으로 인해 산화물을 형성한다. 각 염기도에서 슬래그량이 10wt% 이하에서는 포집율이 떨어지며 10wt% 이상에서는 Ce 포집율 변화에 효과적이지 못한 것으로 미루어 보아 10wt %의 슬래그 량과 염기도 1.49에서 용융제염을 수행하는 것이 효과적으로 Ce을 제거 할 것으로 사료된다. 이는 우라늄 용융 제염결과에서도 같은 경향을 보여주었다. 일반적으로 아크로의 용융제염 공정에서는 약 5~10wt%의 슬래그를 첨가한다.

Fig. 3.2.3.39는 슬래그 형성제의 염기도를 변화시킬 경우에 슬래그 상에 포집되는 우라늄의 포집특성을 나타낸 그림으로 Ce의 실험과 마찬가지로 슬래그는 calcium-aluminum-silicate 슬래그를 사용하였고, 염기도는 0.52~3.14로 변화시켜가면서 실험을 수행하였다. Ce의 결과와 마찬가지로 염기도가 증가함에 따라 포집 효율이 증가했다가 감소하는 경향이 뚜렷이 나타남을 확인할 수 있는데, 이는 다른 연구자와 같은 결과[3.2.2.9]로서 대부분 연구자들은 염기도가 약 1.5일 때 최대 포집효율을

얻었다고 발표하였다. UO_2 은 대부분 금속폐기물의 표면에 오염된 상태로 존재한다. 본 실험에서는 염기도 1.5에서 94% 정도가 슬래그상에 포집됨을 알 수 있었다. 우라늄 산화물은 열역학적으로 슬래그상으로 전량 이동될 것으로 예상된다. 그러나 실제 용융제염 시 우라늄은 산화물 형태로 슬래그 상으로 이동하게 되는데 이는 슬래그의 화학적 조성과 다양한 실험조건에 좌우된다. 이미 언급한 바와 같이 염기도화 슬래그와 화학적 조성은 금속폐기물에 오염된 TRU 핵종을 제거하는데 아주 중요한 변수로 나타났다.

본 실험에서는 염기도 1.5가 금속폐기물에 오염된 TRU 물질을 제거하는데 최적의 조건으로 나타났다. 금속폐기물에 오염되어 있는 우라늄을 금속 용융시 우라늄 이온 상태(UO_2^{2+})로 존재하며 이는 슬래그 상에 존재하는 실리케이트 음이온(SiO_4^{4-})와 반응하여 안정한 화합물을 생성하여 슬래그 상으로 이동하여 제거된다. 이때 슬래그 염기도는 실리케이트의 사슬 구조를 끊어 우라늄 이온과 반응 할 수 있는 반응 사이트를 만드는 역할을 수행하기 때문에 금속용융제염시 슬래그의 염기도는 TRU 물질을 제거하는데 중요한 인자가 된다. 그러나 실험을 통해 알 수 있었던 것처럼 TRU 오염물질의 분배특성이 단지 슬래그의 염기도에만 국한된 것은 아니다. 슬래그의 열역학적 특성과 슬래그의 양, 슬래그-주괴의 계면에서의 반응, 용융조건과 같은 다양한 변수가 조합되어야만이 TRU를 금속폐기물에서 효과적으로 슬래그 상으로 이동하여 제거할 수 있다.

Fig. 3.2.3.40은 염기도로 1.5에서 500ppm의 UO_2 을 사용하여 첨가한 슬래그의 변화에 따른 우라늄의 포집 특성을 나타낸 그림으로 슬래그의 첨가량이 증가함에 따라 UO_2 은 최대 95%의 포집효율을 보여주고 있으나 10wt% 이상의 슬래그 량에서는 포집율의 커다란 차이를 보여 주지는 못하였다. 슬래그의 첨가량이 많으면 많을수록 오염물질을 상대적으로 많이 포집할 수 있지만 그에 따라 2차 폐기물인 슬래그의 발생량이 증가하기 때문에 적절한 제염효과와 2차폐기물의 양을 고려하여 슬래그의 첨가량을 선정할시 최적의 슬래그 량은 10 wt%로 판단된다.

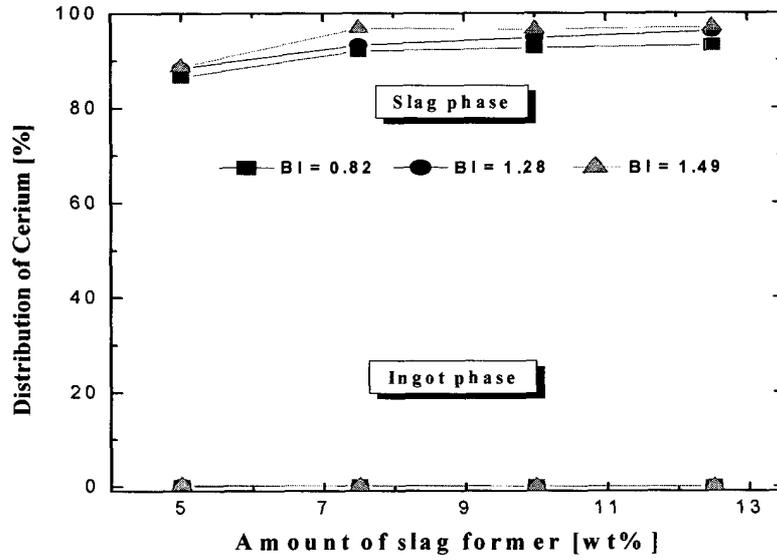


Fig. 3.2.3.38 Effects of the amount of the slag former on the distribution ratio of cerium in the slag and ingot phase

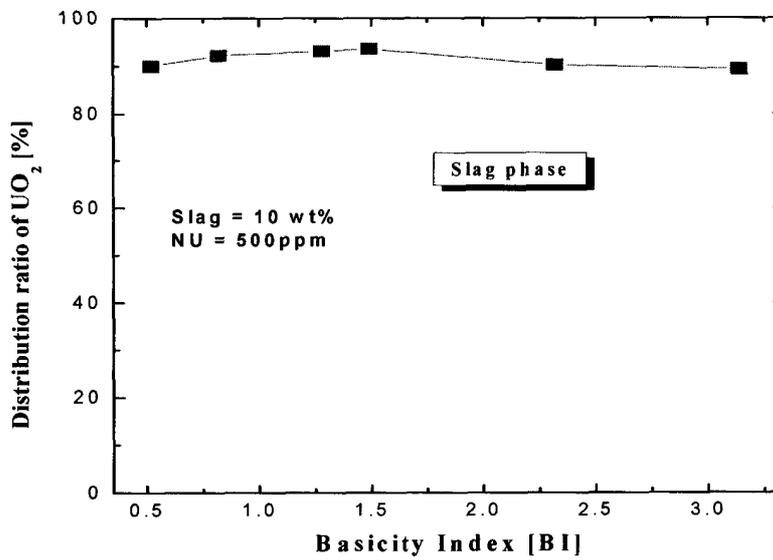


Fig. 3.2.3.39 Effects of the slag basicity on the distribution ratio of uranium oxide

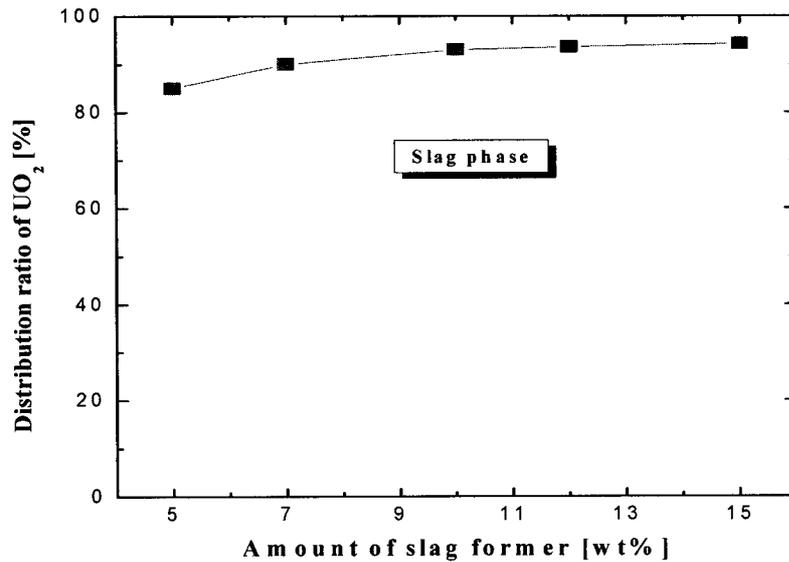


Fig. 3.2.3.40 The relationship between the amount of the slag former and the distribution ratio of uranium oxide

Fig. 3.2.3.41은 500ppm의 UO_2 을 오염시켜 10wt%에서 다양한 슬래그 형성제에 대해 우라늄의 용융실험을 수행한 결과이다. 그림에서 볼 수 있듯이 우라늄의 포집효율은 슬래그 형성제의 조성 및 물질의 종류에 따라 영향을 받은 것으로 나타내고 있다. 이는 슬래그 형성제의 조성 및 물질의 종류가 우라늄을 포집할 수 있는 화합물의 생성에 직접적인 관계를 맺고 있기 때문이다. 본 실험을 통해 가장 좋은 효과를 나타낸 슬래그 형성제는 high silica 슬래그와 CaF_2 을 포함하고 있는 슬래그이다. 위의 2가지 슬래그에서는 다른 슬래그에 비해 UO_2 포집율 95% 정도를 보여주었다. CaF_2 은 슬래그가 첨가된 실험에서 우수한 포집율을 보여주었는데, 플ورا이드 성분이 U 원소 반응하여 고온에서 UF_3 로 반응하여 안정한 가스 상으로 형성되며 U 원소를 포집한 형태의 화합물과 반응하기 때문이다. 이는 열역학적 고찰을 통해 예측한 결과와 잘 맞아 떨어진다. 슬래그 상에 존재하는 CaF_2 , NiO 은 우라늄 오염물질과 슬래그의 반응을 촉진시킬 수 있도록 슬래그의 유동성, 전기전도도, 점도, 자유이온의 생성, 산화력으로 슬래그의 성질을 지배하기 때문이다. 일반적으로 CaF_2 은 SiO_2 의 사슬구조를 끊어 우라늄 오염물질과 반응할 수 있는 반응 사이트를 제공하며 슬래그의 용융온도와 점도를 낮추는 역할을 동시에 수행한다. 본 실험에 사용된 모든 슬래그에서 주피에 잔존하는 UO_2 의량은 1ppm 이하로 측정되어 대부분 슬래그 상으로 이동하였으며 슬래그의 특성에 따라 포집율의 차이가 난다는 것을 확인할 수 있

었다. 즉 앞서 설명한 바와 같이 강력한 산화력을 가진 슬래그는 오염물질의 포집율을 높이는 여러 가지 인자에 영향을 주나 상대적으로 산화되어 휘발되는 미립자들이 많이 발생되며 이는 초기 주입되었던 슬래그에 변화를 주어 UO_2 의 정확한 물질수지를 세우는데 영향을 미친다. 즉, 산화력이나 높은 슬래그는 용융제염시 산화되어 용융로 챔버내부에 분산되고 점도가 강한 슬래그는 도가니 벽면에 침적되는데 이때 슬래그상에 용해되어 있는 우라늄의 손실을 초래한다. 이러한 현상으로 핵종들의 퍼센티지(%) 분배율 값에 영향을 끼치는 요인으로 작용한다. 그럼에도 불구하고 다양한 슬래그 종류를 사용한 용융제염시 용융체에 남아있는 우라늄의 농도는 1ppm 이하로 검출되었다. 그러나 이러한 물질들은 슬래그 고화체의 압축강도, 인장강도, 침출특성을 향상시키는데 기여한다는 특성을 가지고 있다. Borosilicate을 사용한 슬래그는 다른 슬래그에 비해 상대적으로 낮은 포집율(%)을 보였는데 이는 SiO_2 성분이 80%로 구성되어 있기 때문에 슬래그의 유동성이 적어 용융체에 있는 UO_2 와의 원활한 반응이 이루어 지지 않았기 때문이다. 그러나 용융체에 남아 있는 UO_2 는 1ppm 이하로 검출되었으며 슬래그 상에 약 3600ppm 으로 농축되어 포집되었다. Ce 및 UO_2 의 실험으로 통해 우라늄으로 오염된 금속폐기물의 용융제염에 의해 매우 높은 제염효과를 얻을 수 있음을 확인할 수 있었으며, 최적의 제염효과를 얻기 위해 염기도와 첨가된 플럭스의 형태와 조성이 최적화 되어야 함을 알 수 있었다.

제강 산업 현장에서 슬래그 물질로 폭넓게 사용하고 있는 alumino-boro-silicate glass bead을 사용하여 용융 실험을 수행하였다.

Fig 3.2.3.42에는 오염도를 500ppm~8000ppm 범위에서 용융실험을 수행하여 얻은 결과 값을 주괴 상에 남아 있는 우라늄 량과 슬래그 상으로 이동하여 포집된 슬래그 분배율을 량(Mass) 형태로 나타내었다.

초기 오염도가 증가함에 함께 슬래그 상에 농축되어 포집되는 UO_2 의 값이 비례적으로 증가함을 알 수 있었다. 우라늄 첨가량 2000mg과 4000mg에서 각각 0.833mg과 1.227mg이 주괴 상에 잔존하였고 상당량의 우라늄 핵종은 슬래그 상으로 이동함을 보였다. Fig 3.2.3.43 식(4.2)에 준하여 주괴 상에 대한 슬래그상의 partitioning ratio을 나타내었다.

$$Partitioning\ ratio = \frac{mass\ in\ slag}{mass\ in\ metal} \quad (4.2)$$

투입된 우라늄 농도가 증가할수록 용융체 상에서 슬래그 상으로 이동하는 Partitioning ratio가 증가하는 경향을 나타내었다. 슬래그 상에 대한 주괴상의 Partitioning ratio 은 10^3 을 나타내었다. 열역학적 이론에 근거하여 제시함 분배율과는 다소 큰 차이를 보였다. 실질적으로 금속의 용융제염은 매우 복잡하다. 방사성 오염물의 분포는 많은 화학적, 물리적 요인 즉, Steel bath의 구성성분, 슬래그의 화학적 성질, 미립자의 진공압력, Molten iron에서 원소의 용해도, 산화물의 밀도, 금속 용융온도와 용융방법, 용융로 형태와 크기, 용융시간, 탄소 조절 방법과 합금 추가에 의한 방법에 의한 영향을 받게 되므로 비교적 복잡한 공정이다. 이러한 시스템에서의 용융제염은 용융체에 여러 가지 원소들이 존재하고 슬래그에서 이들 원소와 반응성이 있는 다른 원소사이에서 발생하는 반응의 열화학적인 경쟁 때문에 예측하기 매우 어렵다.

최종 용융되어 나오는 주괴의 형태 또한 용융 운전시 중요한 평가 인자이다. 용융 후 주괴 제조과정에서 슬래그가 용융체와 함께 쏟아져 주괴 표면에 강하게 부착되는 몇몇 실험들이 있었다. 이는 슬래그의 염기도 및 슬래그의 조성과 관계가 있다. 많은 양의 SiO_2 가 함유되어 있는 슬래그는 SiO_2 특성상 다른 슬래그에 비해 점도가 높아 상대적으로 점성이 강하다. 이에 반대로 CaF_2 을 함유한 슬래그는 점도가 낮아 주괴 제조시 용융물과 함께 주괴로 혼입되거나 주괴 표면을 덮어 쉽게 제거되는 우수한 형태의 주괴를 생산됨을 확인할 수 있었다. Fig.3.2.3.44은 실험을 통해 생산된 주괴의 상태를 나타낸 것으로 A은 용융염을 사용하여 얻은 알루미늄 주괴로서 바로 재 사용이 가능할 수 있을 정도의 좋은 주괴를 생산하였다. B은 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-CaO-SiO}_2$ 슬래그를 사용 염기도 1.5에서 수행한 SUS 304L 주괴로서 상당히 양호한 형태의 주괴를 얻었다. C은 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-CaO-SiO}_2$ 슬래그 Fe_2O_3 을 첨가하여 얻은 주괴로서 용융후 물드에 주괴를 만드는 과정에서 표면이 얇게 산화된 피막이 형성됨을 알 수 있었다. D는 용동성이 작은 알루미늄 보로실리케이트를 사용하여 얻은 주괴로서 슬래그의 점성이 높아 소량의 슬래그가 주괴에 침적됨을 확인할 수 있었다. 지금까지의 실험결과를 바탕으로 원자력 연구소의 우라늄 변환시설에서 발생된 SUS 304에 150ppm의 우라늄으로 오염된 SUS 304을 사용하여 실증을 수행하였다. 실험결과는 Table 3.2.3.9에 요약하였다. 2가지 종류 Alumino-boro-silicate와 Calcium-aluminum-silicate 슬래그에 5kg의 SUS 304L을 용융시켜 우라늄 핵종을 분배특성을 살펴보았다. 실험결과 실험실 규모의 실험에서 수행된 UO_2 실험결과와 매우 유사한 거동 특성을 보였다. 금속 시편의 기하학적 형태로 인해 정확한 초기 오염도를 알기는 어려워 제염계수를 구

하기는 다소 어려웠으나, 시험 종료 후 SUS 304L 금속폐기물에 표면 오염되어 있는 우라늄 핵종은 대부분 슬래그 상으로 이동하여 용융체에 남아 있는 우라늄 핵종은 각각 0.207mg(0.0423ppm)과 0.128mg(0.0263ppm)으로 측정되었으며 partition ratio는 10^3 을 보여주어 앞서 실험한 실험값과 잘 일치함을 보여주었다.

Ce 및 UO_2 의 실험으로 통해 우라늄으로 오염된 금속폐기물의 용융제염에 의해 매우 높은 제염효과를 얻을 수 있음을 확인할 수 있었으며, 최적의 제염효과를 얻기 위해 최적을 슬래그 염기도가 존재함을 검증하였다.

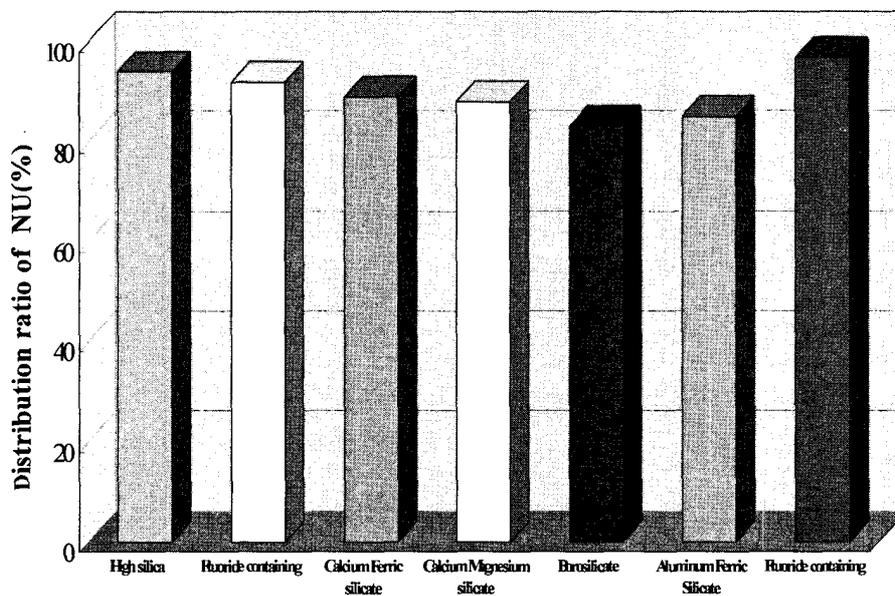


Fig. 3.2.3.41 Effects of slag type on the distribution ratio of uranium oxide in the slag phase

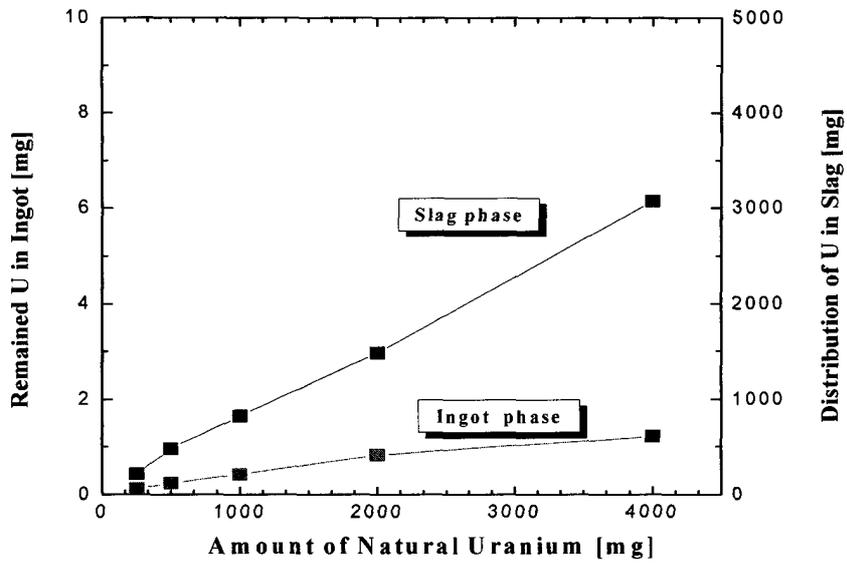


Fig. 3.2.3.42 Amount of distributed natural uranium between ingot and slag

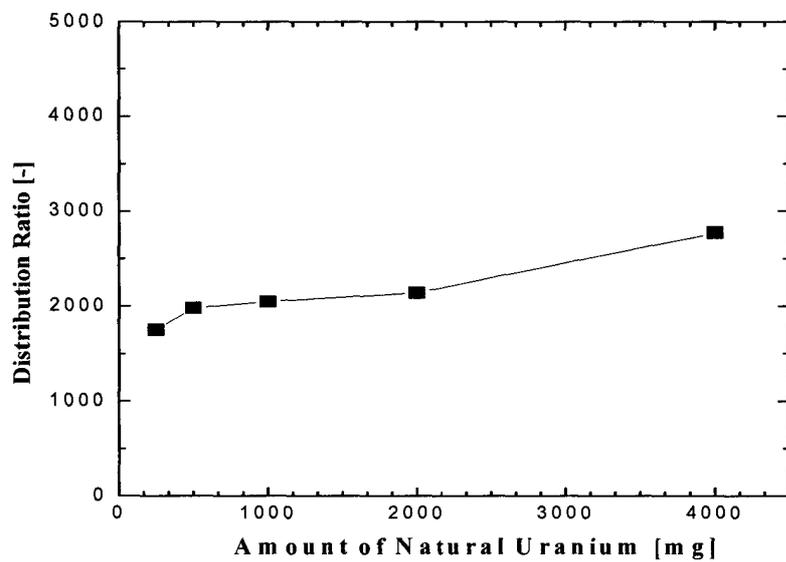
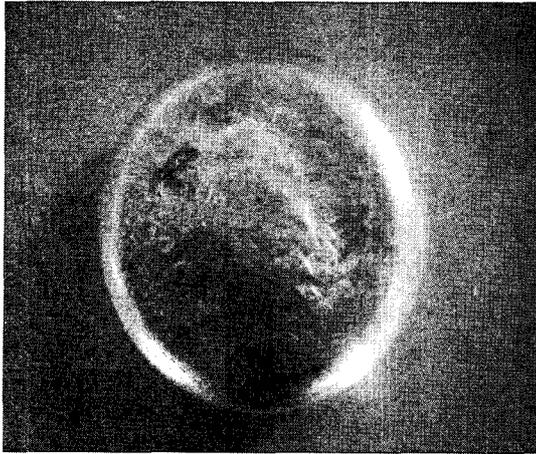


Fig. 3.2.3.43 Distribution ratio(mass in slag/mass in ingot) of natural uranium



A. Ingot of aluminum



B. Ingot of SUS 304L



C. Ingot of Carbon steel



D. Ingot of contained slag

Fig. 3.2.3.44 Photograph of ingot generated by melting

Table 3.2.3.9 Results of the decontamination for the melting of stainless steel wastes from Uranium Conversion Plant in KAERI

Slag composition [%]				Uranium in Ingot [mg]	Uranium in slag [mg]	Distribution Ratio
SiO ₂	CaO	Al ₂ O ₃	Other			
55	21.8	14.5	B ₂ O ₃ (7.5)	0.207	648	3.13E3
30	54	16	-	0.128	385	3.01E3

4. 파일럿규모 용융제염 기술 실증

가. 파일럿 규모의 용융제염에 따른 경제성 평가

(1) 연구로 2호기 금속 해체폐기물의 처리비용 평가

연구로 2호기(TRIGA MARK III)에서 발생한 방사성 금속 해체폐기물을 처리 할 경우에 소요되는 처리비용은 금속용융 시설의 운전 시 소요되는 인건비, 동력/재료비 및 유지 보수비 등을 포함한 시설운전비와 본 시설을 방사성 폐기물 처리 설비로 활용하기 위해서 필요한 시설보완 및 인허가 등에 소요되는 비용으로 구성된다.

(가) 연구로 2호기 해체폐기물 현황

연구로 2호기에서 발생한 해체폐기물은 2005년 12월 기준으로 2,076ton이 발생하였으며 94.5%가 콘크리트 폐기물이고 4.6%가 금속 폐기물, 그리고 0.9%가 기타 폐기물로 구성되어 있다.

Table 3.2.4.1 Total waste generated by dismantle the retired research reactor II

[unit : kg, 2005. 12. 31]

종 류	방사성폐기물	자체처분대상	비방사성	총계
금 속	10,506	13,620	73,678	97,804
콘크리트	255,831	22,579	1,684,549	1,962,959
기타	3,617	4,485	7,210	15,312
총계	269,954	40,684	1,765,437	2,076,075

연구로 2호기에서 발생한 방사성 금속폐기물(aluminum, stainless steel, carbon steel)은 4m³의 컨테이너에 넣어 보관하고 있다. 2006년 6월까지 발생한 방사성 금속폐기물은 총 16,660 kg으로 5개의 컨테이너에 적재하여 보관 중에 있으며 자세한 사항은 Table 3.2.4.2와 같다. 이중 방사성 알루미늄 폐기물의 양은 전체 중에서 약 20%로서 3,332kg이고, steel의 폐기물 양은 약 13,328kg이다. 5개의 컨테이너 용량은 총 20m³으로 200L(0.2m³) 폐기물 드럼에 방사성 금속 폐기물을 적재할 경우에 약 100개의 드럼이 소요될 것으로 예상된다.

Table 3.2.4.2 Amount of radioactive metal waste generated by dismantle the retired research reactor II

[2006. 6. 30]

컨테이너	금속폐기물 무게(kg)	표면 방사선량률($\mu\text{Sv/hr}$)	방사능량(MBq)
1	4,396	19.2	6.786
2	2,957	200	137.591
3	3,153	620	6916.105
4	4,399	24	369.853
5	1,755	215	25.569
	16,660		

(나) 고온 용융 설비의 처리용량

고온 용융 설비는 시설 제작사(미국 MTI사, 두산중공업)의 권고치에 의하면 장기간 연속 운전 시 비가연성 폐기물에 대해 최대 200 kg/h로 폐기물을 처리할 수 있다. 따라서 고온 용융 설비의 가동률에 따른 금속 폐기물의 처리량을 계산하면 다음과 같다.

- 가동률이 50%일 경우 : 가동률이 50%이면 시간당 처리량은 100kg으로 하루 24시간, 그리고 200L 드럼의 무게를 200kg으로 가정할 때 하루당 처리할 수 있는 드럼의 수는 약 12드럼이다.

$$100 \frac{\text{kg}}{\text{hr}} \times 24 \frac{\text{hr}}{\text{day}} = 2400 \text{ kg/day}$$

$$\left(2400 \frac{\text{kg}}{\text{day}} \right) / \left(200 \frac{\text{kg}}{\text{drum}} \right) = 12 \text{ drums}$$

- 가동률이 100%일 경우 : 가동률이 100%이면 시간당 처리량은 200kg으로 하루 24시간, 그리고 200L 드럼의 무게를 200kg으로 가정할 때 하루당 처리할 수 있는 드럼의 수는 약 24드럼이다.

$$200 \frac{\text{kg}}{\text{hr}} \times 24 \frac{\text{hr}}{\text{day}} = 4800 \text{ kg/day}$$

$$\left(4800 \frac{kg}{day}\right) / \left(200 \frac{kg}{drum}\right) = 24 \text{ drums/day}$$

따라서 연구로 2호기에서 발생한 방사성 금속폐기물을 200L 드럼에 적재하여 고온 용융 처리한다고 가정하면 약 100개의 방사성 금속폐기물 드럼이 발생하므로 가동률이 50%일 경우에는 8.3일(하역 및 운반 등 전처리 시간 제외)이 소요되고, 가동률이 100%일 경우에는 4.1일(하역 및 운반 등 전처리 시간 제외)이 필요하다.

만약 고온 용융 설비를 연간 125일(폐기물 드럼의 하역, 운반, 시설관리 등을 제외하면 실제 처리 시간은 2.5일/주이며 50주 연속 가동하는 것으로 계산했을 경우) 연속 가동하고 가동률이 50%일 경우에는 1500드럼, 그리고 가동률이 100%일 경우에는 3000드럼을 처리할 수 있을 것으로 판단된다.

(다) 고온 용융 설비의 처리비용

- 시설 운전비

고온 용융 시설의 운전비를 산정한 결과 총비용은 연간 765,000천원(2,109천원/일)으로 조사되었으며, 세부항목은 Table 3.2.4.3에 나타내었다.

- 인건비 : 360,000천원/년 ≒ 1,000천원/일
- 동력/재료비 : 236,300천원/년 ≒ 647천원/일
- 유지보수비 : 168,700천원/년 ≒ 462천원/일
- 시설비/감가상각비 : 0천원/년

따라서 연구로 2호기에서 발생한 방사성 금속 폐기물(100드럼)을 처리하는데 필요한 처리비용을 계산하면 다음과 같다.

- 가동률 50% : 2,109천원/일 × 25일 = 52,725천원
- 가동률 100% : 2,109천원/일 × 13일 = 27,417천원

- 추가 비용

고온 용융 설비는 연구목적으로 인허가된 시설이므로 방사성 폐기물 처리시설로 사용하기 위해서는 인허가 변경이 요구되며, 인허가 기준을 만족시키기 위한 시설의 보완이 필요하다. 이와 아울러 방사성 금속 폐기물을 원활하게 처리하기 위한 장비의 확보도 요구된다. 이러한 근거에 의해 부가적으로 추가되는 비용을 추산하였으며, 총 275,000천원이 소요되는 것으로 조사되었다(Table 3.2.4.4).

Table 3.2.4.3 Facility operation cost in melting of radioactive metal wastes

항 목	구 분	금액 (백만원)	세부산출 내역
인건비	인건비	360	3명×3교대×40,000천원/년.명 = 360,000천원 1. 소요인원 : 운전 2명, 현장보조 1명 2. 1인당 연봉 : 40,000천원 (두산중공업 평균 연봉 기준)
동력 및 재료비	전기료	205.8	(500kW×3000h+164kW×300h+200kW×1200h)×115원/kWh = 205,758천원 1. 사용전기량 - 초기시스템 가동(12시간 소요) : 164kWh(총 300시간 소요) - Arc 발생시(HVAC 포함 : 40% 출력) : 350~400kWh (실제 arc 운전 3000시간 소요) - Cooldown 시(48시간 소요) : 200kWh (총 1200시간 소요) 2. 운전기간 : 3000h (125일 24시간 실 arc 운전) + 초기시스템 가동시간 + Cooldown 시간 3. 전력단가 : 기존 실험수행 전기료의 원(연) 청구 평균단가 적용
	질소 및 교정 가스	30.5	1. 액화질소 : 160L/일 × 75천원/160L × 125일 = 9,750천원 2. 액화산소 : 160L/일 × 80천원/160L × 125일 = 10,000천원 3. 교정가스 - 500ppm HCl / N ₂ : 1,420천원/회 × 3회/년 = 4,260천원 - 50ppm HCl / N ₂ : 1,420천원/회 × 3회/년 = 4,260천원 - 1% O ₂ / N ₂ BAL : 135천원/회 × 3회/년 = 405천원 - 40% H ₂ / He BAL : 135천원/회 × 3회/년 = 405천원 - 8% CO ₂ , 24ppm NO, 80ppm Propane / N ₂ BAL : 250천원/회 × 3회/년 = 750천원 - 80% CO, 8% O ₂ , 8ppm Propane / N ₂ BAL : 210천원/회 × 3회/년 = 630천원
유지 및 보수비	설비 보수 및 보완	48.7	1. 전극봉 Air clamp 교체 : 1,000천원 2. Auto-darking 카메라 설계변경 및 재설치 : 1,500천원 3. Metal canister 레이저 수위 검출기 재설치 : 3,000천원 4. Airlock 고무패킹 설치 : 1,000천원 5. HEPA 필터 전후단 습도계 설치 : 1,000천원 6. 세정펌프 spare part 구매 : 500천원 7. 증발기 냉각펌프 구매 및 설치 : 700천원 8. HCl 및 O ₂ 분석기 수리 : 3,000천원 9. PCL 프로그램 구매 : 13,000천원 10. 기타 : 24,000천원
	내화재 축로	20	10,000천원/회 × 2회/년 = 20,000천원 1. 기존 내화재 축로 비용 참고 : 6,950천원 2. 방사능 오염에 따른 인건비 상승 고려
	필터 교체비	30	15,000천원/회 × 2회/년 = 30,000천원 1. 견적가 기준 2. 차압 증가에 따른 실험결과 참고
	전극봉 소모비	70	125일 × 280천원/개 × 2개/일 = 70,000천원 1. 가동일 : 실제 arc 운전일 기준 2. 전극봉 개당 단가 : 외국 견적가 기준 3. 전극봉 소모량 : 2개(1쌍)/일, 10드럼 처리당 1개 사용
계		765	

Table 3.2.4.4 Supplementary cost for operation of high temperature melting facility

항 목	구 분	금액 (백만원)	세부산출 내역
인허가 비용	시설 인허가	75	- 시설 인허가/정기검사 수검비 : 75,000천원
	차폐벽 타설비	25	- 방사선차폐용 콘크리트 옹벽 타설비 : 25,000천원 : 처리시설 외벽에 두께 10cm, 높이 3m의 방사선 차폐용 콘 크리트 옹벽 설치
유지 및 보수비	바닥 도장	20	- 바닥 내방사성 에폭시를 도장하고 액체폐기물 누출 방지턱 시공(pump 실)
	구조물 도장	20	- 시설 내부 구조물 및 설비의 녹 제거 / 도장
부대 시설 설치 및 장비 구입비	부대 시설 설치비	80	- 액화가스 옥외저장 탱크 설치비 : 80,000천원 : (160L × 125일) 용량 액화질소 및 액화산소를 5회 분할 구 매 시 각각 4톤 저장용량의 탱크 설치
	장비 구입비	30	- 크레인/지게차 구입비 : 30,000천원 : 유리고화 시설에서 드럼 하역용
재료비 수수료	드럼 및 재료비	20	- 고화용 드럼 구매 : 15,000천원 (230개 × 65,000원/개) - 재료비 : 5,000천원 : 적재용 pallet, 방사선 표지물, 목재합판 등
	수수료	5	- 계측기 검교정비, 시험분석료, 장비(UPS 등) 정기 검사비
계		275	

- 총 소요비용

고온 용융 시설의 운전을 위해 필요한 비용은 시설 운전비와 추가 비용으로 구성 되는데, 시설 운전비는 운전시간에 비례하여 증가하지만 추가비용은 시설을 운전을 위해 초기에 요구된다. 따라서 연구로 2호기에서 발생한 방사성 금속폐기물을 처리 하기 위해서는 가동률에 따른 시설 운전비와 추가비용이 소요된다. 따라서 각 가동 률에 따른 총 소요비용은 다음과 같다.

- 가동률 50% : 2,109천원/일×25일(시설운전비) + 275,000천원(추가비용)
= 327,725천원/100드럼 = 3,277천원/드럼
- 가동률 100% : 2,109천원/일×13일(시설운전비) + 275,000천원(추가비용)
= 302,417천원/100드럼 = 3,024천원/드럼

연구로 2호기에서 발생하는 방사성 금속 폐기물을 고온 용융 시설로 처리 후 방사성 폐기물로 처리 시 경제적 손익을 계산한 결과 가동률이 50%일 경우에는 약 107,000천원의 이득이 발생하며, 가동률이 100%일 경우에는 약 111,500천원의 경제적 이득을 예상할 수 있다.

- 가동률 50%

- 용융 처리 비용 : 3,277천원/드럼 × 100드럼 = 327,700천원
- 용융 후 Ingot 수 : 100드럼 × 0.2 (1/5로 감용 가정) = 20drum
- 용융하지 않고 처리했을 때 폐기물 처리 비용
= 100drum × 5,000천원/drum = 500,000천원
- 용융 후 처리 비용 = 용융 처리 비용 + Ingot 폐기물 처리 비용
= 327,700천원 + (20drum × 5,000천원/drum) = 427,700천원
- ⇒ 용융 후 처리 시 처리 비용 손익
= 500,000천원 - 427,700천원 = 72,300천원

- 가동률 100%

- 용융 처리 비용 : 3,024천원/드럼 × 100드럼 = 302,400천원
- 용융 후 Ingot 수 : 100드럼 × 0.2 (1/5로 감용 가정) = 20drum
- 용융하지 않고 처리했을 때 폐기물 처리 비용
= 100drum × 5,000천원/drum = 500,000천원
- 용융 후 처리 비용 = 용융 처리 비용 + Ingot 폐기물 처리 비용
= 302,400천원 + (20drum × 5,000천원/drum) = 402,400천원
- ⇒ 용융 후 처리 시 처리 비용 손익
= 500,000천원 - 402,400천원 = 97,600천원

방사성 폐기물의 드럼 당 처리 비용을 500만원으로 가정할 때 용융하지 않고 처분할 경우와 용융 후 처분할 경우의 비용 손실에 대해 Table 3.2.4.5와 Fig. 3.2.4.1에 나타내었다. 위에서 언급한 시설 운용 시 발생하는 비용을 바탕으로 계산한 결과 고온 용융 시설의 가동률이 50%일 경우에 약 80드럼 이상을 처리할 경우에 이득이 발생할 것으로 예상된다. 이는 고온 용융 시설의 가동을 위해 초기 시설 투자비와 인허가 비용이 소요되기 때문이다. 고온용융 시설의 가동률이 100%일 경우에 요구되는 최소 처리 드럼수는 약 73드럼으로 손익계산을 Fig. 3.2.4.2에 나타내었다.

Table 3.2.4.5 Economic assessment per drum (operation rate 50%) [unit :
1,000 ₩]

처리 드럼수	직접 처분 비용	용융 후 처분 비용	손 실
1	5000.0	276527.3	-271,527
12.0	60000.0	293327.0	-233,327
24.0	120000.0	311654.0	-191,654
36.0	180000.0	329981.0	-149,981
48.0	240000.0	348308.0	-108,308
60.0	300000.0	366635.0	-66,635
72.0	360000.0	384962.0	-24,962
79.0	395000.0	395652.8	-653
96.0	480000.0	421616.0	58,384
100.0	500000.0	427725.0	72,275
120.0	600000.0	458270.0	141,730
132.0	660000.0	476597.0	183,403
144.0	720000.0	494924.0	225,076
200.0	1000000.0	580450.0	419,550

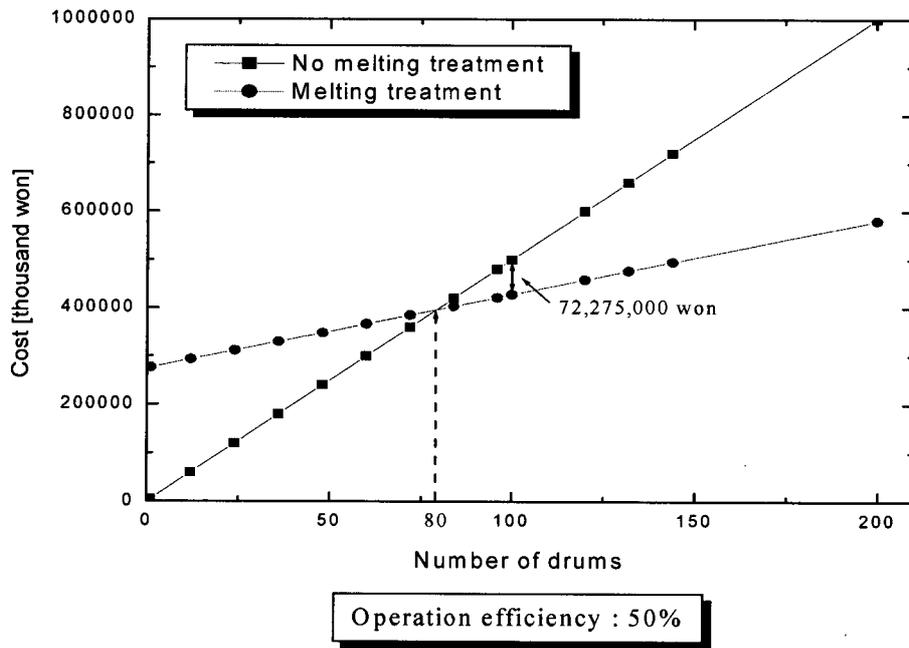


Fig. 3.2.4.1 Economic assessment per drum of pilot plant (operation rate : 50%)

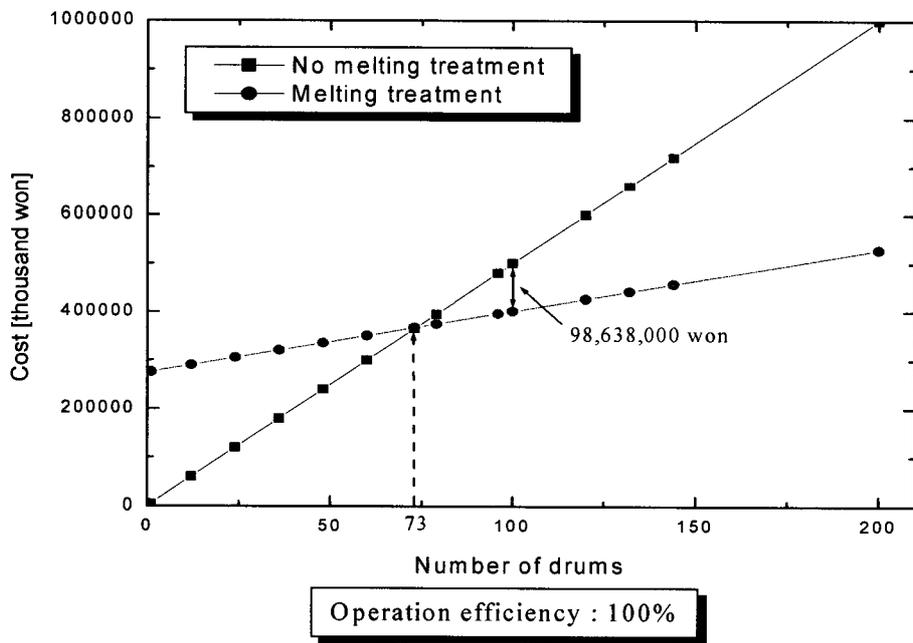


Fig. 3.2.4.2 Economic assessment per drum of pilot plant (operation rate : 100%)

고온 용융 시설의 운전을 1년으로 가정하고 방사성 금속 폐기물의 처리 비용에 대

한 경제적 손익을 계산하였다. 먼저 가동률에 따른 드럼당 고온 용융 시설의 처리비용을 산정한 결과 가동률이 50%인 경우에는 693천원/드럼이 소요되었고, 100%로 가동할 경우에는 346천원/드럼이 소요됨을 알 수 있었다.

- 가동률 50% : 765,000천원(시설운전비) + 275,000천원(추가비용)
= 1,040,000천원/1500드럼 = 693천원/드럼
- 가동률 100% : 765,000천원(시설운전비) + 275,000천원(추가비용)
= 1,040,000천원/3000드럼 = 346천원/드럼

이러한 고온 용융 시설의 가동률에 따른 방사성 금속 폐기물의 처리 시 발생하는 연간 경제적 손익을 계산하면 다음과 같다.

- 가동률 50% (1년 가동을 기준)
 - 용융 처리 비용 : 693천원/드럼 × 1,500드럼 = 1,039,500천원
 - 용융 후 Ingot 수 : 1,500드럼 × 0.2 (1/5로 감용 가정) = 300drum
 - 용융하지 않고 처리했을 때 폐기물 처리 비용
= 1,500drum × 5,000천원/drum = 7,500,000천원
 - 용융 후 처리 비용 = 용융 처리 비용 + Ingot 폐기물 처리 비용
= 1,039,500천원 + (300drum × 5,000천원/drum) = 2,539,500천원
⇒ 용융 후 처리 시 처리 비용 손익
= 7,500,000천원 - 2,539,500천원 = 4,960,500천원
- 가동률 100% (1년 가동을 기준)
 - 용융 처리 비용 : 693천원/드럼 × 3,000드럼 = 2,079,000천원
 - 용융 후 Ingot 수 : 3,000드럼 × 0.2 (1/5로 감용 가정) = 600drum
 - 용융하지 않고 처리했을 때 폐기물 처리 비용
= 3,000drum × 5,000천원/drum = 15,000,000천원
 - 용융 후 처리 비용 = 용융 처리 비용 + Ingot 폐기물 처리 비용
= 2,079,000천원 + (600drum × 5,000천원/drum) = 5,079,000천원
⇒ 용융 후 처리 시 처리 비용 손익
= 15,000,000천원 - 5,079,000천원 = 9,921,000천원

d. PWR 발전시설 해체 시 방사성 금속 폐기물 처리 비용 산정
1100MWe급의 PWR 발전 시설의 해체 시 고온 용융 시설로 용융처리 할 수 있는

방사성 금속 폐기물의 양은 약 6,500ton 정도이다(Fig. 3.2.4.3). 이를 200L 드럼에 넣어 처리한다고 가정했을 때 폐기물의 양은 약 32,500드럼이 발생할 것으로 예상된다. 이를 본 고온 용융 설비를 이용하여 처리한다면 가동률이 50%(1500drum/year)일 경우에는 21.6년이 소요되고, 가동률을 100% (3000drum/year)로 계산하면 10.8년이 요구된다. 드럼당 방사성 폐기물의 처리비용을 500만원으로 산정한다면 32,500드럼을 용융 처리하는데 필요한 비용과 경제적 이득은 다음과 같다.

- 고온 용융 시설의 가동률이 50%일 때 금속 폐기물 처리 비용 산정

· 용융 처리 비용: 693천원/드럼 × 32,500드럼 = 22,522,500천원

· 용융 후 Ingot 수: 6,500ton/(1.2ton/drum)(200L 드럼에 1.2ton 충전)
= 5417drum

· 용융하지 않고 처리했을 때 폐기물 처리 비용

= 32,500drum × 5,000천원/drum = 162,500,000천원

· 용융 후 처리 비용 = 용융 처리 비용 + Ingot 폐기물 처리 비용

= 22,522,500천원 + (5,417drum × 5,000천원/drum)=49,607,500천원

⇒ 용융 후 처리 시 처리 비용 손익

= 162,500,000천원 - 49,607,500천원 = 112,892,500천원

- 고온 용융 시설의 가동률이 100%일 때 금속 폐기물 처리 비용 산정

· 용융 처리 비용 : 346천원/드럼 × 32,500드럼 = 11,245,000천원

· 용융 후 Ingot 수: 6,500ton/(1.2ton/drum)(200L 드럼에 1.2ton 충전)
= 5,417drum

· 용융하지 않고 처리했을 때 폐기물 처리 비용

= 32,500drum × 5,000천원/drum = 162,500,000천원

· 용융 후 처리 비용 = 용융 처리 비용 + Ingot 폐기물 처리 비용

= 11,245,000천원 + (5,417drum × 5,000천원/drum)= 38,330,000천원

⇒ 용융 후 처리 시 처리 비용 손익

= 162,500,000천원 - 38,330,000천원 = 124,170,000천원

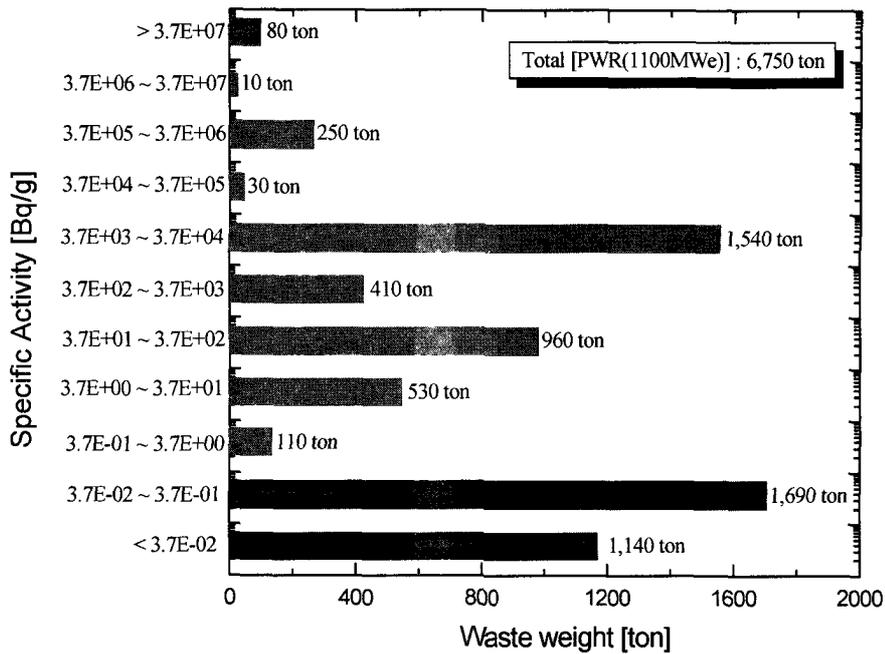


Fig. 3.2.4.3 An assumed generation of radioactive metal waste of dismantling 1100MWe PWR

나. 파일럿 규모 용융제염 기술실증 시험

(1) 실험 절차

본 실험은 Pilot-Scale의 금속용융 반응기에서 Surrogate(Co, Cs, Ce, Sr) 및 Radioisotopes(Co-60, Cs-137)로 오염된 폐기물과 TRIGA 연구로에서 인출한 금속 해체폐기물의 용융 시 반응기 내부의 용융 특성 및 각 핵종의 분배 특성을 규명하고자 한다. 이를 통하여 방사성 금속폐기물의 용융처리기술을 확립하고 최적의 용융조건을 도출하고자 한다. 실험의 순서는 오염핵종을 넣지 않고 슬래그만 용융시키는 blank test를 먼저 수행한 후 용융로내에 잔존하는 Slag 전량 인출하는 1차 시험을 수행한다. 1차 시험을 수행한 다음 준비한 슬래그 형성제와 Surrogate를 사용한 Surrogate test를 수행한다. 이때 금속폐기물은 약 500kg 넣고 슬래그는 약 150kg 정도 넣어 용융을 수행한다. 마지막 3차 시험 단계로 RI 및 Real waste를 사용한 시험을 수행한다. Table 3.2.4.6과 7에 파일럿 규모 용융 시험 절차 및 분석방법을 요약하여 나타내었다.

Table 3.2.4.6 Test sequence of pilot plant

실험명	시험기간 ¹⁾	Spiking Materials			주요목 Table
		종류	농도	투입량	
Surrogate test	2	Cs, Co, Sr, Ce	2000ppm (200ppm/1회)	Slag ²⁾ : 50kg Metal : 300kg SUS 304	Uniform distribution (시간, 농도) 확인 용융로 온도분포
RI and Real waste test		⁶⁰ Co ¹³⁷ Cs	-	-	Uniform distribution (시간, 오염도) 용융로 온도분포 (Thermal Diffusion) 자체처분기준만족

1) 연속운전으로 연계하여 수행

2) Slag : Aluminum-borosilicate 사용

3) 높이 33cm(150L, 370kg) 잔존하며 현재 용융로에 존재하는 Slag의 Sampling을 통해 성분 및 오염도검사

Table 3.2.4.7 Analysis item

시험종류	시험목적
1. 고화체 및 주괴 채취	• 고화체 특성 분석 및 핵종의 Uniform Distribution
2. 배기체 성능 시험	• Cold Cap 효율 확인/Metal 성분 처리 분석 • 내화재 상태/각종 제어설비 재 확인 • 전극봉 형태 및 무게 측정
3. 세정시스템 성능시험	• 세정수 채취 및 분석
4. Melter 폐기물 처리능력	• 설계처리 용량 확인
5. Melter 표면온도 측정	• 80℃ 이하 유지 확인
6. Melter 내부 온도 측정	• Melter 내부 온도 분포를 조사 • 온도 분포 특성 규명
7. 전극봉 형태 및 무게	• 설비 운전 특성 파악 및 운전 인자 재설정 • 전극봉 산화상태 및 소모율 측정
8. 연속운전 성능확인	• 정상 운전 조건에서 5일 이상으로 연속 운전을 실시하여 Long Term Operation에 대한 신뢰성을 확인
9. Metal tapping 수행	• Metal Tapping에 대한 신뢰성 확보
10. CDAS Modification	• CDAS상의 Data 값에서 Scrubber water, Air와 Total offgas flow 비율값을 확인
11. 소모품 소모율 측정	• 경제성 확인 • 필터, 교정개스, 전극봉, 전력 등
12. System Leak Test	• System 공기 누설 부위 확인 - 설비 성능 및 체류시간 재확인
13. HEPA 차압 증가 분석	• HEPA 차압 증가 원인분석 및 Filter 교체 주기 검토 - 습도측정, 정성분석, 무게측정 실행
14. 운전 표준화 자료 생산	• 금속용융의 운전 표준화 자료 획득 • 향후 사업화에 필요한 인허가 자료 획득생산

(2) 베타/감마 해체폐기물 용융제염 파일럿 규모 기술실증

파일럿 규모에서 금속시편과 슬래그, 그리고 RI를 사용하여 금속성 해체폐기물에 대한 기술 성능을 실증하였다. 파일럿 규모에서의 금속용융 단계를 Fig. 3.2.4.4에 나타내었다. 금속용융은 초기 충전되어 있는 슬래그를 직경이 약 200mm 정도되는 흑연 전극봉에서 발생하는 고온의 아크에 의해 용융시켰다. 슬래그 형성제의 용융이 모두 완료된 후 SUS-304의 금속폐기물을 용융로에 첨가하여 함께 용융시켰다. 이때 약 250kg의 금속폐기물을 첨가하였는데 50kg씩 나누어 용융로에 넣었다. 각각 금속폐기물을 첨가할 때 surrogate 또한 함께 일정량을 넣어 용융시켰다. 슬래그 및 금속폐기물이 완전히 용융시킨 후 용융된 금속 및 슬래그는 Fig. 3.2.4.4의 마지막 단계에서 볼 수 있듯이 tapping system에 의해 하부의 드럼에 배출된다.

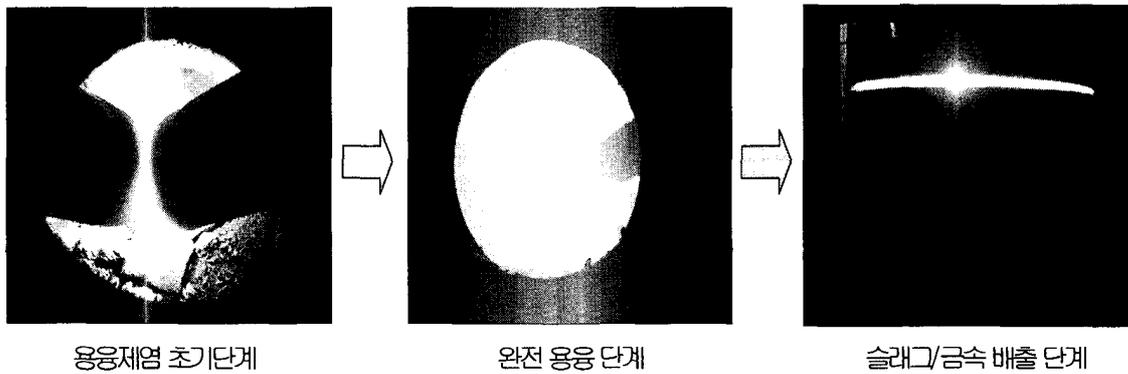


Fig. 3.2.4.4 Melting photograph of pilot plant

용융로 주변은 매우 높은 아크 및 용융열에 견디기 위해 내구성이 좋은 내화재로 구성되어있다. 용융로 내부의 온도변화를 직접적으로 측정할 수 있는 방법이 없기 때문에 이 내화재 벽면에 온도계를 넣어 간접적으로 용융로 내부의 온도를 유추한다. Fig. 3.2.4.5는 이러한 온도 변화 자료로서 아크가 발생한 시점부터 전원이 꺼진 후 약 21시간동안의 온도변화를 나타내고 있다. 용융로 내부의 온도는 아크가 발생한 시점부터 용융온도가 상승하기 시작하여 전원을 넣지 않은 시점(Dec. 14, 09:40)까지 계속 상승하였다. 그 이후에는 자연감소하는 경향을 나타내었다.

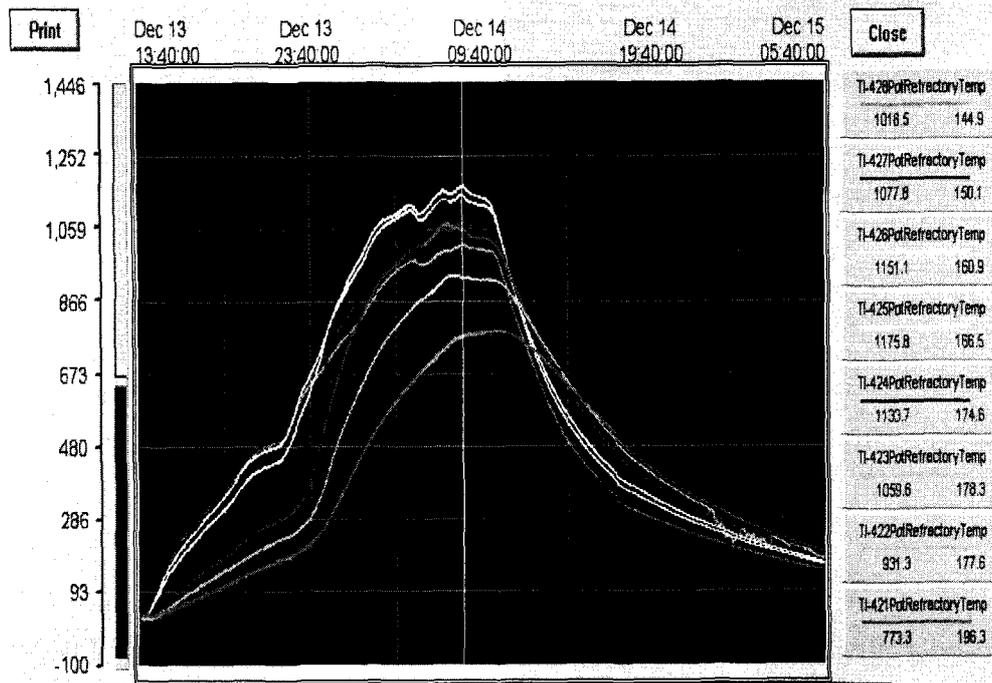
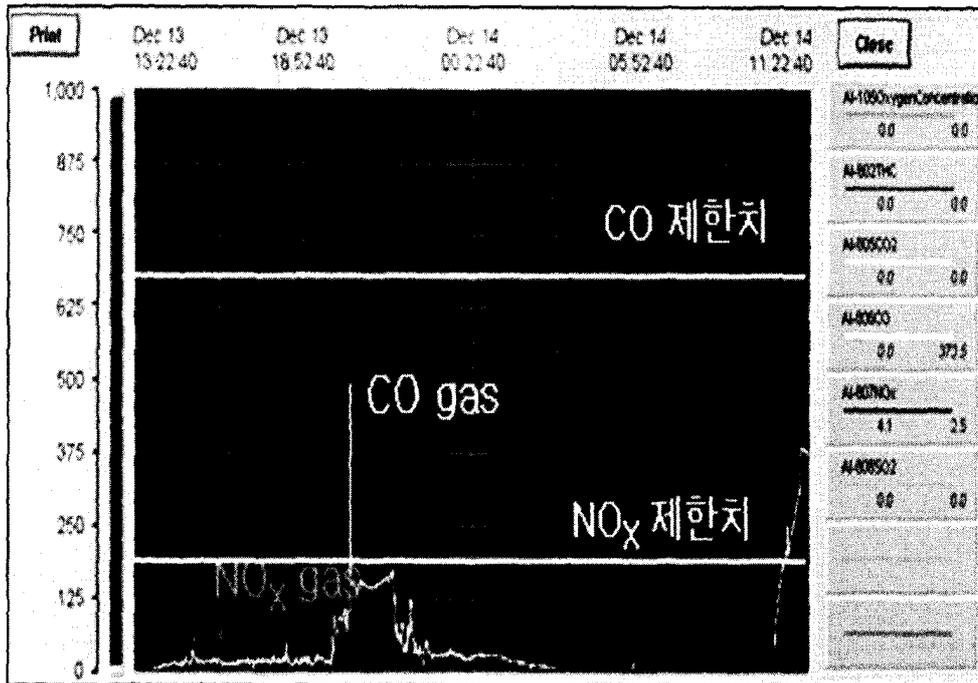


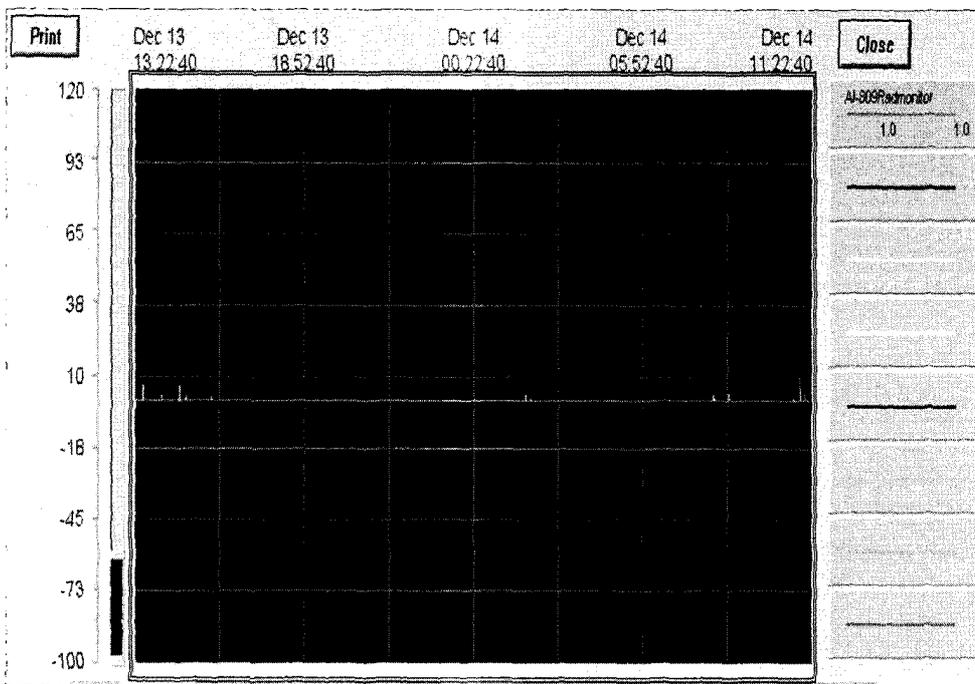
Fig. 3.2.4.5 Test result of temperature profile during the demonstration

용융제염 실증시험 동안 CEMS(Continuous Emission Measurement System)에 의해 발생한 배기체의 분석 결과를 Fig. 3.2.4.6에 나타내었다. Fig.에서 볼 수 있듯이 검출된 CO 및 NO_x의 독성 물질은 환경 처리기준 이하로 나타나 본 파일럿 실증장치의 안전성을 확인시켜 주었다. Fig. 3.2.4.7은 RMS(Radiation Monitoring System)를 통하여 측정된 배기체의 전체 방사능으로서 분석결과는 MDA이하로 검출됨을 확인할 수 있다. 이로서 방사성 금속폐기물 처리에 대한 본 시설의 안정성 및 적합성을 확인하였다. 이러한 기술실증 시험을 통해 방사성 금속폐기물에 대한 처리기술을 확보하였고, 원자력시설 해체폐기물의 용융제염에 대한 사업의 타당성을 확보하였다.



<배기체 CEM 분석결과>

Fig. 3.2.4.6 Test result of CEM profile during the demonstration



<배기체 방사능 분석 결과>

Fig. 3.2.4.7 Test result of RMS profile during the demonstration

5. 우라늄 오염 폐기물 용융제염을 위한 고온 용융시설 보완 방안

가. 인허가

유리고화시험시설(고온용융시설)의 사용 허가를 위하여 이 시설에서의 방사성동위원소 사용 목적을 "중·저준위 방사성폐기물의 물리·화학적 조성을 모의한 비방사성폐기물에 핵종 및 농도를 알고 있는 방사성동위원소를 추적자로 사용한 유리고화시험을 통하여 유리고화 특성 및 중·저준위 방사성폐기물 유리고화시설 특성에 대한 기술자료의 확보"로 정의하고 이에 필요한 방사성동위원소와 양을 Co-60에 대하여 60 mCi, Cs-137에 대하여 30 mCi만을 사용하도록 되어 있다.

허가 신청에 필요한 구비서류는 원자력법 제65조 및 동법 시행규칙 제77조에 의거 작성하여 한국원자력안전기술원에 접수하여 이에 대한 한국원자력안전기술원의 안전성 심사를 받고 당초 허가조건을 연장하기 위한 변경허가 신청을 하여 다음과 같은 조건으로 변경허가를 받았다.

- 유리고화시험시설은 연구목적에 한하여 운영할 것.
- 동 시설에서 사용할 수 있는 핵종 및 수량은 Co-60에 대해서 60 mCi, Cs-137에 대해서 30mCi 이며, 각각 2회 이상으로 분할 사용할 것.
- 시설 운영 기간은 연구과제의 종결 또는 상기 2항 사용량의 소진 시점까지임.

상기와 같이 고온용융시설은 연구목적에 한해 베타/감마 핵종인 Co, Cs만을 사용하도록 인허가를 받았다.

그러므로 현 시설을 우라늄으로 오염되어있는 철금속 용융제염을 위해서는 시설의 변경과 인허가가 필요하다. 시설의 성능 및 안정성은 여러 실증실험을 통해 축적된 노하우와 data 등이 확보되어 있기 때문에 기술적인 측면과 시설의 안정성 측면에서는 크게 문제시 되지 않을 것이나, 본 시설이 베타/감마만을 사용할 수 있는 연구시험 시설이기 때문에 알파핵종의 금속성 폐기물 용융제염시는 시설의 안정성 측면을 보완하여야 할 필요성이 대두될 수도 있다. 인허가 방향은 크게 두 가지로 나누어 생각할 수 있다. 본 시설을 독립시설 규정하여 인허가를 신청할 것인지 아니면 소내 폐기물 처리시설의 일환으로 할 것이지에 따라 인허가 규정과 소요되는 시간, 방향에 차이점이 있을 것이다. 또 다른 하나는 처리하고자 하는 금속 폐기물의 발생장소이다. 당 소는 자체처분을 할 수 있도록 인허가를 받은 공인기관이기 때문에 소내 자체에서 발생하는 폐기물(TRIGA 포함)을 처리하는 것은 큰 문제점이 없을 것으로

사료되나 사용되는 핵종의 종류에 대한 안전성 평가가 포함된 방사선 안전보고서를 작성하여 인·허가를 신청하여야 할 것으로 보인다.

나. 시설의 보완방안

현 유리고화 실증시설(고온용융시설)은 가연성폐기물의 조각이나 토양, 콘크리트, 비금속 비가연성 폐기물등 Multi-phase의 다양한 형태의 방사성폐기물을 처리하도록 설계되어 있다. 이에 착안하여 원자력 중장기연구와 연구로 해체 사업에서 해체폐기물 용융재활용 기술개발을 위한 최종단계로 고온용융시설을 사용하여 설비의 성능과 연속 운전시 안전성을 충분히 만족할 수 있는지의 여부를 확인하기위해 방사성 금속폐기물을 사용하여 실증실험을 수행한 결과 방사성 금속폐기물 처리에 대한 유리고화실증시설의 안정성 및 적합성을 확인하였다. 이러한 기술실증 시험을 통해 방사성 금속폐기물에 대한 처리기술과 원자력시설 해체폐기물의 용융제염에 대한 사업의 타당성을 확보하였으며, 모든 시스템은 기능상실 없이 정상가동 되어 안전성을 충분히 만족시켜 주었다. 그러나 다양한 형태(모양, 크기, 두께)의 방사성 금속 폐기물의 장시간 연속운전시 안정적이며 원활한 용융제염을 위해서는 설비 및 시설의 일부가 보완되어야 한다.

(1) 용융로

베타-감마 핵종으로 오염된 극 저준위 (가연성-삭제) 잡고체 폐기물의 처리 실증처리연구에는 아무런 문제가 없으나 철 금속 용융시 1500℃ 이상으로 용융로가 운전되어야 하는데, 이러한 온도를 유지시키기에는 용융로의 용량이 커 유동성 확보의 어려움이 있어 해체 금속폐기물의 용융제염을 위해서는 용융로의 체적의 축소가 필요하다. 용융로의 하부로의 원활한 열전달 공급을 위해서는 현재, 용융로 하부로부터 약 5cm 높게 내화재를 축조하여 용융로의 체적을 축소하여야 할 것이다.

(2) 전극봉

용융로 축소와 연장선상에서 고려해 보아야 할것이 전극봉의 크기이다. 현 시스템에서의 전극봉은 금속성 폐기물을 용융시키기 위한 열량을 공급하는데 부족함으로 나타났다. 이에 전극봉의 크기를 확대하는 방안도 고려해 보아야 할 것이다.

(3) 전처리 시스템

현 고온용융시설의 전처리 시스템으로는 컨베이터와 파쇄기, 공급기로 구성되어 있다. 이중 파쇄기는 최대 6000psi로 운전이 가능하므로 콘크리트와 DOT 철계 드럼을 포함한 3T 두께의 금속 폐기물만이 파쇄가 가능하다. 원자력 시설에서 발생하는 금속 폐기물은 형상과 두께가 다양하여 원활한 용융제염을 위해서는 전처리 시스템의 보완이 필요하다.

(4) 인출시스템

현재 고온 용융시스템은 금속과 슬래그의 밀도를 이용하여 배출되도록 용융로 좌우에 높이를 달리하여 금속 인출 시스템과 슬래그 인출 시스템이 설치되어 있다. 수차례 실증실험을 통한 결과 슬래그 인출 시스템은 정상적인 작동으로 원활하게 슬래그가 인출되어 우수한 형태의 고화체를 얻을 수 있었으나 장기간 연속 운전시 원활한 금속 인출을 위해서는 금속 인출시스템의 변경이 필요한 것으로 나타났다. 인출시스템의 변경은 용융로 체적의 축소, 전극봉 보완 문제와 동시에 고려되어야 할 것이다.

(5) 배기가스 시스템

금속 폐기물 용융시 배기가스 시스템에 영향을 미치는 핵종은 Cs과 Sr이다. 아크로 특성상 산화금속폐기물이 발생되나 이는 배기체 시스템에 크게 영향을 미치지 않으므로 고려대상에서 제외하였다. 휘발성 물질의 원활한 포집과 안정적인 배기체 시스템을 구축하기 위해서는 열적산화기 후단 부분에 고온 필터 시스템을 갖추는 것이 좋은 방법으로 사료된다. 현재 시스템은 습건식 시스템을 채택하고 있어 고온 필터 시스템 미 장착시 휘발성 핵종들이 세정수에 검출되어 2차 폐기물의 양을 증가시키는 요인이 될 것이다.

6. 결론

연구로 1, 2호기와 원자력 연구소에 있는 핵 연료 변환 시설의 해체 시 발생하는 금속폐기물의 효율적인 감용 및 재활용기술 개발의 일환으로 실험실 규모의 플라즈마 아크 용융로를 사용하여 알루미늄과 철 금속(SUS 304L, 탄소강) 금속폐기물의 용융 특성 및 금속폐기물에 함유된 오염 핵종들의 주피와 슬래그 분배 특성과 용융 거동을 파악하였으며, 이를 기초로 고온용융 설비를 사용한 파일럿 규모 용융제염기술 실증을 통하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

가. 베타/감마 핵종으로 오염된 알루미늄 폐기물의 용융제염

첨가한 플럭스의 종류에 따라 알루미늄 용융체의 유동성이 매우 달라지며 이에 따라 슬래그의 발생량도 최대 2배까지 증가함을 알 수 있었다. 알루미늄의 용융온도가 증가함에 따라 알루미늄의 산화속도가 증가하여 슬래그의 발생량은 선형적인 증가를 나타내었으며 유동성의 차이에 따라 슬래그 발생량도 차이가 나타남을 알 수 있었다.

용융온도와 시간이 증가함에 따라 슬래그에서 Co는 증가하는 반면 주피에서는 감소하는 경향을 나타내었다. 이는 용융시간이 증가함에 따라 Co를 포집할 수 있는 산화알루미늄의 화합물이 증가하였기 때문으로 판단된다. 그러나 Cs과 Sr은 슬래그에서 용융온도가 증가함에 따라 분배율이 증가하다가 900℃ 이상에서는 휘발에 의해 분배율이 감소하였으며 용융시간이 증가함에 따라 선형적으로 감소하는 경향을 나타내었고 주피에서는 대부분 휘발되어 검출되지 않음을 알 수 있었다.

플럭스 첨가량의 증가에 따른 슬래그의 발생량은 플럭스의 첨가량이 증가할수록 증가하는 경향을 나타내었다. 플럭스 첨가량의 변화에 따라 슬래그 내에서의 Co는 플럭스의 첨가량이 5wt%일 때 슬래그 상으로 가장 많이 분배되었으며, Cs과 Sr은 플럭스의 첨가량이 증가할수록 분배량이 증가하는 경향을 나타내었다. 알루미늄의 용융 및 제염 시 가장 중요한 핵종은 Co로서 알루미늄의 용융 및 제염특성을 고려할 때 Flux로 CaF₂를 사용하고 900℃, 40min, 5wt%인 경우에 실험범위 내에서 최적의 제염효과를 얻을 수 있었다. Co 핵종은 플럭스 상단에 산화알루미늄 CoAl₂O₄ 피막 형태로 존재하며 50%이상 제염이 가능하고 유동성이 낮은 플럭스 조성은 피막형성을 용이하게 하여 제염성능을 향상시키지만 주피와 플럭스 분리특성 저하와 슬래그 폐기물 증가를 유발한다.

나. 베타/감마 핵종으로 오염된 철금속의 용융제염

스테인레스강의 용융 시 슬래그 형성제의 첨가량이 증가함에 따라 Co는 형성제의 종류에 따라 다른 경향을 나타내었으며, Cs은 주괴와 슬래그 상에서 휘발되어 대부분이 분진 상으로 이동함을 확인할 수 있었다. Sr의 경우에는 다른 핵종과 달리 슬래그 형성제의 첨가량이 증가함에 따라 슬래그 상에 포집되는 양이 증가함을 나타내었다. 따라서 스테인레스강의 용융 시 방사성 핵종의 제거를 위해서는 적절한 슬래그 형성제의 선택이 필요함을 알 수 있었다.

염기도가 증가함에 따라 슬래그 발생량이 증가하였다 감소하는 경향을 나타내었는데 이는 슬래그 상에서 Sr의 분배 경향과 거의 일치함을 알 수 있었다. 탄소강의 용융결과 Co의 분배 특성은 염기도와는 무관함을 알 수 있었으며 Cs의 경우에는 스테인레스강의 결과와 동일함을 알 수 있었다.

Ferric oxide, CaF_2 와 같은 강한 산화력이 첨가된 슬래그는 핵종의 슬래그상으로의 분배율을 촉진시키는데 기여함을 알 수 있었다. 슬래그에 포집된 Cs은 Cs_2SO_4 화합물 형태로 대부분 존재할 것으로 사료되므로 Cs의 높은 포집율을 위해 온도 및 노내 분위기 슬래그의 종류와 함량을 조절하여 슬래그에 Cs_2SiO_3 와 같은 안정한 화합물로 슬래그상으로의 분배율을 높이기 위한 운전조건을 모색하여야 할 것이다. 아울러 Al_2O_3 -CaO-SiO₂의 주 구성 슬래그에 산화력 및 전기전도도 등의 슬래그의 물성을 변화시키는 플러스를 첨가하면 슬래그 상으로의 이동을 촉진 시킬 수 있다.

방사성 추적자를 사용한 실험 금속 용융 시 Cs의 실험적인 분포에 대한 측정결과 ^{137}Cs 은 용융체에 남아있지 않음을 관찰하였다. Cs은 슬래그와 분진 포집장치에서 발견되었다. 일부 Slag에서 약 5%의 Cs이 스테인레스강 주괴에 남아있음을 발견하였다. ^{60}Co 은 95% 이상 주괴에서 검출되었으며 약간의 ^{60}Co 방사능이 슬래그에서 검출되었다. ^{60}Co 은 금속에 거의 대부분이 전체적으로 균일하게 희석되어 존재함을 알 수 있었다. 이는 슬래그를 이용한 제거 방법보다는 균질화에 의한 희석방법으로 ^{60}Co 오염된 금속성 방사성 폐기물을 처리하는 것이 최적의 방법으로 평가된다. 최적의 제염조건은 Basicity 0.8~1.5에서 슬래그 10 wt%로 평가되었다.

다. 우라늄 핵종으로 오염된 철금속의 용융제염

Ce과 우라늄 오염핵종은 대부분 슬래그 상에 존재(주괴 존재량 1ppm 미만)하며 이것은 Ce과 우라늄의 산화물 전환 반응이 Fe, Co, Ni 보다 수십 배 낮은 Gibbs Free Energy를 갖기 때문이다. Ce 대용물질을 사용한 Surrogate 실험에서 최적의 염기도

조성은 0.8로 나타났으며 UO_2 실험에서는 1.5에서 최적의 제염효과를 얻을 수 있었다.

대부분의 슬래그에서 90% 이상으로 Ce, U을 제거하는 특성을 보였다. 제염 효과는 슬래그에 CaF_2 가 첨가했을 때 더 많이 향상됨을 확인할 수 있었으며 U은 Ce의 거동과는 다른 양상을 보였다. 주괴에 잔존하는 U의 양은 Ce의 양에 비해 더 높았으며 이는 슬래그에서 형성되는 화학적 형태가 다르기 때문으로 사료된다. Ce과 우라늄의 용융제염은 CaF_2 가 포함된 슬래그 농도 7 wt%이상과 염기도 1.5에서 가장 높은 제염거동을 갖는다.

라. 파일럿 규모 용융제염기술 실증

파일럿 규모 용융제염 실증시험 동안 CEMS(Continuous Emission Measurement System)에 의해 발생한 CO 및 NO_x 의 독성 물질은 환경 처리기준 이하로 나타났으며 RMS(Radiation Monitoring System)를 통하여 측정된 배기체의 전체 방사능으로서 분석결과는 MDA이하로 검출됨을 확인할 수 있었다. 이러한 실증 시험을 통해 방사성 금속폐기물의 용융제염 감용처리기술을 확보하였고, 방사성 금속폐기물 처리시 본 시설의 안정성 및 적합성을 확인하였으며, 용융제염에 대한 사업의 타당성을 확보하였다. 모든 시스템은 기능의 상실 없이 정상적으로 가동되었으며, 안전성을 충분히 만족시켜 주었다. 다만 용융로의 체적이 방사성 금속물질을 최적의 상태로 용융시키는 온도까지 이르기에는 용량이 커 유동성 확보의 어려움이 있었다. 슬래그 고화체는 슬래그 인출 시스템을 통해 성공적으로 배출되었으며 육안 점검상 우수한 형태의 고화체를 얻을 수 있었다. 용융로의 체적의 감소나 전극봉의 크기를 늘리면 방사성 금속 물질을 용융하는데 이상이 없을 것으로 사료된다. 시스템의 안정성과 성능 확보를 위해 주기적인 시설 운전과 유지보수를 통한 소모품의 주기적인 교체가 필요하다.

본 연구를 통해 원자력시설의 유지 보수 및 해체 시 발생하는 실제 금속성 해체폐기물의 용융제염 기술개발을 효과적으로 수행할 수 있도록 실용화 단계의 기술 자료를 도출하였으며, 본 연구의 결과들은 방사성 금속 폐기물의 용융제염 및 재활용을 위한 연속공정 개발 및 운전 및 설계에 필수적인 공학적 자료를 제공할 수 있을 것으로 사료된다.

여백

제 4 장 연구개발목표 달성도 및 대외 기여도

제 1 절 연구개발 목표 달성도

1. 고방사능 건식제염기술 개발

국내 사용후 핵연료 건식처리 연구설비의 유지보수 및 해체에 필요한 건식제염기술의 단위공정별 시험을 통해 제염성능을 평가하였으며, 독창적이고 진보적인 건식제염 공정장치개발 및 IMEF M4 hot cell 내에서 기술실증 등의 계획된 연구목표를 다음과 같이 충분히 달성하였다.

- CO₂ 분사제염장치를 고방사성 Hot Cell에서 사용 시 문제인 동결 및 불연속 분사 등을 feed screw, idle roller, air-lock feeder 등의 부가 설비를 개발하여 창의적으로 해결하였으며, 유압구동식 진공흡입헤드 및 vacuum cup개발로 제염과 동시에 오염입자를 회수함으로써 재오염을 방지할 수 있는 독창적 CO₂ 분사제염장치를 개발하였고 기술을 특허화하였다. 또한 고방사성 건식 Hot Cell의 다양한 오염재질(금속, 콘크리트, 플라스틱 등)과 오염형태(분진, 화합물, 오일형 등)에 따른 최적 제염공정을 도출하였고, 방사성 Hot시편 시험과 IMEF M4 hot cell 실증시험을 통해 우수한 제염성능을 확인하였다.
- 고 방사능 입자로 오염된 표면에 효과적으로 적용 가능하며, 제염, 회수, 여과공정 및 건식 hot cell 내에서 적용이 가능하도록 독창적으로 고안되어 기술 특허화 한 건식 증류공정이 복합된 PFC 제염장치를 개발하였으며, 고방사능 IMEF M4 hot cell 내에서 Hot 실증시험을 통해 제염공정의 고방사능 현장 적용성 및 제염 성능(제염효율 90% 이상)을 확보하였다. 또한 고방사성 연구시설 Hot cell 내부 및 장치 표면에 오염된 Hot particulate의 오염특성을 파악하고, 3 μm 입자에 대하여 85% 이상의 포집율을 갖는 고효율 싸이클론 및 Hot particulate 제거장치를 개발하여 기술 특허화 하였다.

2. 금속성 해체폐기물 용융제염기술 개발

실험실 규모(10kg/batch)에서 비방사능 시험, RI 시험 및 실제 폐기물을 사용한 모든 단계의 시험을 통해 금속폐기물의 용융특성 및 방사성 핵종의 분배거동을 파악하였으며, 고온용융 실증시설을 활용한 파일럿 규모(200 kg/batch)의 기술실증을 통해

금속폐기물 용융제염에 대한 시설의 안전성 및 사업 적용성을 확인함으로써 계획된 연구목표를 다음과 같이 충분히 달성하였다.

- 전기아크방식의 용융제염 시험을 통해 금속성폐기물 용융특성 및 주괴와 슬래그로의 핵종(Co, Cs, U) 분배특성을 파악하였으며, Cs에 대해서는 약 100이상, U에 대해서는 10~100의 제염계수를 얻을 수 있었다.
- 기 확보 고온 용융시설을 활용한 파일럿 규모(200 kg/batch)의 용융제염 기술 실증을 성공적으로 수행하여 금속성 해체폐기물의 감용을 위한 용융제염 성능(감용율 1/7) 및 경제성(연간 2,500 드럼 처리 시 직접처분에 비해 약 90억 원 절감)을 확인하였고, 연구로 및 우라늄변환시설 해체로부터 발생한 금속폐기물의 처리에 필요한 시설 인허가 자료를 확보하였다.

제 2 절 대외 기여도

1. 고방사능 건식제염기술 개발

사용후핵연료 연구개발시설의 유지보수 및 해체 시 필요한 요소기술의 자체 확보 및 작업자 피폭저감으로 후행핵연료주기 기술의 안전성 향상과 아울러 국내 특성에 적합한 독창적인 건식제염기술의 확보로 기술 자립에 기여하고, 원자력 산업에 기술 파급 효과뿐만 아니라 사용후핵연료 연구개발시설과 원자력시설의 제염 시 국내 기술의 적용으로 외화 대체 효과가 클 것으로 기대된다. 특히, 고방사능 건식제염은 고방사성 Hot Cell에서 수행되는 기술로 국내 취약한 고방사성 핵물질 취급기술, 원격 조작기술, Hot Cell 유지 보수 기술의 선진화에도 크게 기여할 것이다.

2. 금속성 해체폐기물 용융제염기술 개발

본 용융제염기술은 당면한 원자력 시설의 해체 (TRIGA 연구로 및 우라늄 변환시설) 및 핵연료주기 이용과 관련한 연구개발 과정에서 발생하는 다량의 금속성폐기물의 감용 및 재활용 기술로 활용함으로써 처분장이 부재한 국내의 현실 및 소내 임시 폐기물 저장고의 수용한계를 극복할 수 있는 경제적이고 효과적인 기술이며, 향후 대규모 원자력시설의 해체에도 미치는 파급효과가 클 것으로 기대된다.

제 5 장 연구개발결과의 활용 계획

제 1 절 기술적 측면

- 사용후핵연료 연구시설의 유지·보수 및 해체 시 필요한 요소기술의 자체 확보로 후행 핵연료주기 기술의 안전성 향상에 기여
- 국내 특성에 적합한 독창적인 건식제염기술의 확보로 국내 기술자립에 기여하고 원자력 산업 및 일반산업에 대한 기술 파급효과가 큼
- DUPIC, 사용후핵연료 관리이용 기술개발, 방사학분리 공정개발 및 장수명 핵종 전환 기술개발 실증 시설의 설계, 유지, 개보수 및 해체 시 제염기술로 활용
- 원자력 발전시설 및 핵물질 취급시설의 유지·보수, 해체 및 해체 폐기물 처리/처분사업에 기술 활용
- TRIGA 연구로 및 우라늄 변화시설 해체 발생 금속성 폐기물 및 원자력연구소에 보관중인 금속폐기물 감용 및 재활용에 기술을 활용
 - TRIGA 연구로 2호기 발생 금속성 해체폐기물(약 170톤) 처리기술로 활용
 - 우라늄 변환시설 발생 금속성 해체폐기물(약 180톤) 처리기술로 활용
 - 원자력연구소에 보관중인 700드럼(425드럼- α 폐기물, 295드럼- $\beta\gamma$ 폐기물)의 금속폐기물 처리기술로 활용
- 향후 원자력 연구 및 발전시설의 해체 시 발생할 방사성 금속폐기물의 저감화 및 재활용에 활용
- 해외 선진국 및 북한의 영변 핵주기시설 제염 해체사업 대비 제염기술로 활용
- 반도체, 미세 광학산업 등 일반산업의 청정기술 분야에 세척기술로 활용

제 2 절 경제적 측면

- 사용후핵연료 연구시설 및 장비의 유지·보수와 실증시험 후 시설의 해체 및 대규모 보수 시 작업자 피폭저감에 의한 경제적 이득 효과가 매우 큼.
- 사용후 핵연료 연구시설과 원자력시설의 제염 시 국내 기술의 적용으로 외화 대체 효과
- 대량의 방사성 고체폐기물 감용 및 재활용 기술의 개발로 빈약한 국내 부존

자원 재활용 및 높은 감용율에 의해 처분비용을 획기적으로 절약함으로써 경제적 이득에 기여

- 기술의 선진화 및 적용 경험의 축적을 통한 관련 기술의 수출 등으로 외화대체 효과

제 3 절 사회적 측면

- 방사성폐기물 처분장 부재 하의 국내 여건에서 볼 때 환경친화적 이미지 제고 및 원자력에 대한 대국민 신뢰도 증진에 기여.
- 원자력 시설 특성에 적합한 제염기술의 개발로 원자력 시설의 해체 시 작업자 및 공중에 대한 안전성과 신뢰도 향상을 도모
- 원자력 연구시설 제염 등 방사성폐기물 관리 기반기술 개발로 원자력 전반에 대한 대국민 신뢰도 증진

제 6 장 참고문헌

- 1.1. K.L. Hopkinson, A. Bishop, M.T. Cross, J. Harrison and F. Selgas, “Recycling and reuse of radioactive material in the controlled nuclear sector”, EUR18041 EN, European Commission (1998).
- 1.2. D.G. Atteridge, J. Buckentin, J. Carter, H.L. Decletian, M.R. Scholl, R.B. Trupin, S.L. Webster and R.E. Mizia, “Refining technology for the recycling of stainless steel radioactive scrap metals FY-94 Bu-annual report”, WINCO-1224(1994)
- 1.3. G. Imbard and S. Rigaud, “Melting of Cs-contaminated ferritic steel from G2/G3 reactors, Marcoule”, Proceeding of Technical seminar on melting and recycling of metallic waste materials from decommissioning of nuclear installations, European Commission, Germany, pp. 193-208(1993).
- 1.4. K.-H. Gräbener, H. Beyer, H. Westermann, “Melting Aluminium and Copper on Laboratory and Industrial Scale”, Proceeding of Technical seminar on melting and recycling of metallic waste materials from decommissioning of nuclear installations, European Commission, Germany, pp. 209-224(1993).
- 1.5. H. Bosse, M. Sappok, H. Westermann, W. Dümpelmann and H. Steiner, “Separation of Metals by Melting”, Proceeding of Technical seminar on melting and recycling of metallic waste materials from decommissioning of nuclear installations, European Commission, Germany, pp. 225-236(1993).
- 2.1.1.1. Souvik Banerjee., Andrea Campbell, □Principles and mechanisms of sub-micrometer particle removal by CO₂ cryogenic technique□, *J. Adhesion*, **19**, 739-751(2005).
- 2.1.1.2. Smith J. M, Van Ness H. C., □Introduction to Chemical Engineering Thermodynamics□.
- 2.1.1.3. 오원진, □국내핵연료주기개발에 필요한 고방사능 분식제염 기술수요 및 기술현황□한국원자력연구소, KAERI/AR-581/2000.

- 2.1.1.4. Liepmann H. W, Roshko A., □Element of Gasdynamics□.
- 2.1.1.5. Christopher. T, Goodarz. Ahmadi, □Particle removal mechanisms in cryogenic surface cleaning□, *J. Adhesion*, **79**, 175–201(2003).
- 2.1.1.6. Mehdi. Soltani, Goodarz. Ahmadi, □On particle adhesion and removal mechanisms in turbulent flows□, *J. Adhesion*, **8**, 763–785(1994).
- 2.1.1.7. Hills M, □Carbon dioxide jet spray cleaning of molecular contaminants□, *J. Vac. Sci Technol. A*, **13**, No.1, Jan/Feb 1995.
- 2.1.1.8. L. C. Archibald, □Cryogenic blasting Using Carbon Dioxide Media for the Removal of Organic Coatings□, IMF Annual Conference Torquay, UK(1991).
- 2.1.1.9. David, R. Linger, □Fundamentals of Dry ice blast cleaning Technology□Precision Cleaning Conference(1997).
- 2.1.1.10. Hill E. A, □Carbon Dioxide Snow Examination and Experimentation□, *Precision Cleaning*, 36–39, 1994.
- 2.1.1.11. Spur G., Uhlmann E, Elbing F., □Dry ice blasting for Cleaning Process, Optimization and Application□, *Wear*, **233–235**, 402–411, (1999).
- 2.1.1.12. Rober. K, Robet. W, □Particle blast cleaning apparatus□, US Patent 5415584, 1995.
- 2.1.1.13. Daniel. L, Fredric. C, □Method and apparatus for producing carbon dioxide pellets□, US Patent 5473903, 1995.
- 2.1.1.14. Russel. G, Allen. J, □Dry ice pelletizer and method for production□, US Patent 5845516, 1998.
- 2.1.1.15. Alan. E, Philip. S, □Apparatus for producing and blasting sublimable granules on demand□, US Patent 5520572, 1996.
- 2.1.1.16. James. R, Becker, □Dry Ice Pellet Surface Removal Apparatus And Method□, US Patent 6174225, 2001.
- 2.1.1.17. Noboru. Sawada, Hoya, □Particle Feeder□, US Patent 6024304, 2000.
- 2.1.1.18. Gary. S, Settles, Bellefonte. Pa, □Abrasive blast Cleaning Nozzle□, US Patent 5975996, 1999.

- 2.1.1.19. J. Sun and M.M. Chen, *Int. J. heat transfer*, Vol 31, No 5, 969-975 (1988)
- 2.1.1.20. G Spur et al, *Wear* 233, 35, 402-411 (1999)
- 2.1.1.21. F. Elbing et al, *Int. J. Adhsion & Adhesives* 23,69-79 (2003)
- 2.1.1.22. T. Toscano et al, *J. Adhesion* 79, 175-201 (2003)
- 2.1.1.23. D.P. Weston et al, *Waer* 258, 392-401 (2005)
- 2.1.2.1. J. Draulans, Decontamination and dismantling of large plutonium contaminated glove boxes, EUR-13644, Commission of European Communities(1991).
- 2.1.2.2. H. E. Chamber, J. T. Dalton, R. K. Dawson, S. C. Gaudie and A. D. Turner, Experimental study of the recovery of plutonium from non-combustible wastes. EUR-10491, Commission of European Communities(1986).
- 2.1.2.3. R. Kaiser, C. E. Benson, E. S. Meyers and V.C. A. Vaughan, Decontamination by cleaning with fluorocarbon surfactant solutions, ORNL/TM-12444(1994).
- 2.2.1.1. K.L. Hopkinson, A. Bishop, M.T. Cross, J. Harrison and F. Selgas, "Recycling and reuse of radioactive material in the controlled nuclear sector", EUR18041 EN, European Commission (1998).
- 2.2.1.2. S. Frigren, "Recommended radiological protection criteria for the recycling of metals from the dismantling of nuclear installations," Radiation Protection 89, European Commission(1998)
- 2.2.1.3. J.K. May and S.D. Wahnschaffe, "Engineering study for a melting, casting, rolling and fabrication facility for recycled contaminated stainless steel", WINCO-1189, January(1994).
- 2.2.2.1. WINCO metal recycle annual report FY, 1993.
- 3.1.1.1. 대한도장기술협회, □표면처리와 전처리□, 도장기술, 30-55, 152(2004).
- 3.1.2.1. 오원진 등, 고준위폐기물처리전환기술개발-고방사능건식제염기술개발, KAERI/RR-2131/2000 (2001).
- 3.1.2.2. R. Kaiser and O. K. Harling, Enhanced removal of radioactive particles by fluorocarbon surfactant solutions, Phase 1 Final Report

- , Report No. NUREG/CR-608(1993).
- 3.1.2.3. A. E. Desrosiers and R. Kaiser, Separation and extraction of plutonium in mixed wastes, DE-AC26-01NT41308, Bartlett Services Inc. Plymouth, USA(2002).
- 3.1.2.4. H. Schmidt, J. I. Baumbach and D. Klockow, Detection of perfluorocarbons using ion mobility spectrometry, *Analytica Chimica Acta*, 484(2003).
- 3.1.2.5. C. C. Allgood, Fluorinated gases for semiconductor manufacture : Process advances in chemical deposition chamber cleaning, *J. of Fluorine Chemistry*. 122(2003).
- 3.1.2.6. J. G. Weers and R. A. Arlauskas, Particle size analysis of perfluorocarbon emulsions in a complex whole blood matrix by sedimentation field-flow fractionation, *Colloid and Surfaces B: Biointerfaces* 33(2004).
- 3.1.2.7. Physical principles of ultrasonic technology, Vol.1, Edited by L. D. Rozenberg, Translated from Russian by J. S. Wood, Plenum Press, New York(1973).
- 3.1.2.8. Particles on surfaces: Detection, adhesion and removal, Vol. 1, 2 and 3, K. L. Mittal, Plenum Press, New York(1973).
- 3.1.2.9. Zeta Potential in Colloid Science- Principles and Applications, Robert J. Hunter, Academic Press, Australia(1981).
- 3.1.2.10. G. N. Kim, S. Y. Lee, H. J. Won, C. H. Jung, W. Z. Oh and J. H. Park, " Membrane Characteristics for Removing Particulate in PFC Wastes ", J. Korean Radioactive Waste Society, Vol. 3, No. 2(2005).
- 3.1.4.1. Korea Atomic Energy Research Institute : Decontamination Technology Development for Nuclear Research Facilities, KAERI/RR-2416/2003, (2003)
- 3.1.4.2. Korea Atomic Energy Research Institute : Development of High-Level Radioactive Waste Treatment and Conversion Technologies, KAERI/RR- 2131/2000, (2003)

- 3.1.4.3. Kim, H. T, Zhu, Y., Hinds, W.C., and Lee, K. W. : Experimental Study Virtual Cyclones as Particle Concentrators, *Journal of Aerosol Science*, Vol. 33, pp. 721-733, (2002)
- 3.1.4.4. Hinds, W. C. : *Aerosol Technology: Properties, Behavior and Measurement of Airborne Particles*, 2nd Ed., Wiley, New York,(1999)
- 3.1.4.5. Chen, B. T., Yeh, H. C., and Rivero, M. A. : Use of Two Virtual Impactors in Series as an Aerosol Generator, *Journal of Aerosol Science*, Vol. 19, pp. 137-146, (1998)
- 3.1.4.6. Stairmand, C. J.;The design and performance of cyclone separators. *Trans. Instn. Chem. Engrs.* 29, 356-383 (1951).
- 3.1.4.7. Smith, W. B., Wilson, R. R. and Harris, D. B.; A five-stage cyclone system for *in-situ* sampling. *Environ. Sci. technol.* 13, 1387-1392 (1979).
- 3.1.4.8. Jackson, R. : *Mechanical Equipment for Removing Grit and Dust from Gases*. Cheney and Sons, Banbury, England,(1963)
- 3.1.4.9. Dirgo, J. and Leith, D. : Cyclone Collection Efficiency: Comparison of Experimental Results with Theoretical Predictions, *Aerosol Science and Technology*, Vol. 4, pp.401-415,(1985)
- 3.1.4.10. Zhu, Y. and Lee, K. W. : Experimental Study on Small Cyclones Operating at High Flowrates, *Journal of Aerosol Science*, Vol. 30, No. 10, pp. 1303-1325, (1999).
- 3.1.4.11. Iozza, D.L. and Leith, D. : the Logistic Function and Cyclone Fractional efficiency. *Aerosol Sci. Technol.* Vol. 12, pp.598-606, (1990).
- 3.1.4.12. Jaroszczyk, T. and Ptak, T. : Experimental study of aerosol separation using a minicyclone. *Power and Bulksolid Confer.*(10th Annual), pp. 611-622(1985).
- 3.1.4.13. Archibald, K.E. : *CO₂ Pellet Blasting Literature Search and Decontamination Scoping Tests Report*, WINCO-1180 (1993)
- 3.1.4.14. Tatenuma, K., Hishinuma, Y. and Tomatsuri, S. : Newly

- Developed Decontamination Technology Based on Gaseous Reactions Coverting to Carbonyl and Fluoric Compounds, Nucl. Tech., Vol.124, pp.147-164 (1998)
- 3.1.4.15. Kaiser. R. and Harling. O. K. : Enhanced Removal of Radioactive Particles by Fluorocarbon Surfactant Solutions, NUREG/CR-6081 (1993)
- 3.1.4.16. Kaiser. R. and Benson. C. E. : Decontamination by Cleaning with by Fluorocarbon Surfactant Solutions, ORNL/TM-12444 (1994)
- 3.1.4.17. Desrosiers, A. E. and Kaiser, R. : Separation and Extraction of Plutonium in Mixed Waste, Bartlett Services, Inc., Plymouth, MA, USA, DE-AC26- 01NT41308 (2002)
- 3.1.4.18. Wang, P., Tan, K.L., Kang, E.T., and Neoh, K. G. : Plasma-induced Immobilization of Poly(ethylene glycol) onto Poly(vinylidene fluoride) Microporous Membrane, J. Membr. Sci. Vol. 195, pp. 103-114 (2002)
- 3.1.4.19. Brink, L.E.S., Elbers, S.J.G., Robbertsen, T., and Both, P. : The Anti-fouling Action of Polymers Preadsorbed on Ultrafiltration and Microfiltration Membranes, J. Membr. Sci. Vol. 76, pp.281-291 (1993)
- 3.1.4.20. Bai, R.B. and Leow, H.L. : Microfiltration of Polydispersed Suspension by a Membrane Screen-hollow Fiber Composite Module, Desalination Vol. 140, pp. 277-291 (2001)
- 3.1.4.21. Leow, H.L. and Bai, R.B. : Nylon Screen Incorporated into Hollow Fiber Microfiltration System for Wastewater Treatment, Water Sci. Technol. (Wat. Supply) Vol. 1, pp.131-146 (2001)
- 3.1.4.22. Bai, R.B. and Leow, H.L. : Modeling and Experimental Study of Microfiltration Using a Composite Module, J. Membr. Sci. Vol. 204, pp.359-377 (2002)
- 3.1.4.23. Yamamoto, K., Hiasa, M., Mahmood, T., and Matsuo, T. : Direct Solid-liquid Separation Using Hollow Fiber Membrane in an Activated Sludge Aeration Tank, Water Sci. Technol. Vol. 21, pp.

43-54 (1989)

- 3.1.4.24. G.N. Kim, S.Y. LEE, H.J. Won, C.H. J, W.Z. Oh and J.H. Park :
Membrane Characteristics for Removing Particulates in PFC
Wastes, J. Kor. Rad. Waste Soc, Vol. 3(2), pp. 149-157 (2005)
- 3.2.2.1. Raffestin, D., et al., "Risk assessment associated with the
transportation of low and intermediate level radioactive waste to
the center L'Aube disposal facility", France, IAEA, Tech. Doc
802, 1994.
- 3.2.2.2. "Factors relevant to the recycling or reuse of components arising
from the decommissioning and refurbishment of nuclear facilities",
IAEA, Tech. Reports series No. 293, 1988.
- 3.2.2.3. M. R. B. Joanna, "Melt decontamination of radioactive stainless
steel by electroslog remelting", Dissertation of Doctor Philosophy,
Oregon Graduate Institute of Science & Technology, USA, 1996.
- 3.2.2.4. Heshmatpour, B., Copeland G. L., Heestand, R. L., "Decontamination of
transuranic contaminated metals by melt refining", Nuclear and
Chemical waste management, vol 4, 129, 1983.
- 3.2.2.5. Heshmatpour, B. and Copeland G. L., "Metllurgical aspects of waste
metal decontamination by melt refining", Nuclear and Chemical
waste management, vol 2, 25, 1981.
- 3.2.2.6. Copeland G. L., Heestand, R. L. and Mateer, R. S., "Volume
reduction of low level contaminated metal waste by melting
selection of method and conceptual plan", ORNL/TM-6388, Oak
ridge national laboratory, Oak ridege, Tennessee, 1978.
- 3.2.2.7. Heshmatpour, B. and Copeland G. L. "Decontamination of
contaminated steel and copper by melt refining", Nuclear and
Chemical waste management, vol 3, 364, 1982.
- 3.2.2.8. Abe, M., Uda, T. and Iba, H., "A melt refining method for uranium
contaminated steels and copper", Waste Management 85,
Proceedings of the Symposium on waste management at Tucson,
Arozona, 375, 1985.

- 3.2.2.9. Uda, T., Iba, H. and Tshchiya, H. "Decontamination of uranium contaminated mild steel by melt refining", Nuclear Technology, vol 73, 109, 1986.
- 3.2.2.10. W. C. Thurber and J. Mackinney, "Distribution of radionuclides during melting of carbon steel", Beneficial reuse 96 : 4 annual conference on the recycle and reuse of radioactive scrap metal, Knoxville, TN, U.S.A, 1996.
- 3.2.2.11. Sappok, M., et al., "Melting of radioactive metal scrap from nuclear installations", in Decommissioning of Nuclear Installations, Elsevier Applied Science, 482, 1990.
- 3.2.2.12. Nakamura, H. and K. Fujiki, "Radioactive metal melting test at japan atomic energy research institute", 1993.
- 3.2.2.13. Larsen, M. M., et al., "Sizing and melting development activities using contaminated metal at the waste experimental reduction facility", EGG-2411 EG&G Idaho, Inc., 1985.
- 3.2.2.14. Gomer, C. R. and J. T. Lambley, "Melting of contaminated steel scrap arising in the dismantling of nuclear power plants", British Steel Corporation, for Commission of the European Communities, Final Report Contract No. DED-002-UK, 1985.
- 3.2.2.15. Pflugard, K., C. R. Gomer and M. Sappok, "Treatment of steel waste coming from decommissioning of nuclear installations by melting", in Proceedings of the International Nuclear Reactor Decommissioning Planning Conference, NUREG/CP-0068, 349, Bethesda, MD, 1985.
- 3.2.2.16. Schuster, E. and E. W. Haas, "Behavior of difficult to measure radionuclides in the melting of steel", Siemens Aktiengesellschaft Unterehrensbereich KWU, in Decommissioning of Nuclear Installations, Elsevier Applied Science, 1990.
- 3.2.2.17. Harvey, D. S., "Research into the melting/refining of contaminated steel scrap arising in the dismantling of nuclear installations", EUR-12605, commission of the european communities, 1990.

- 3.2.2.18. Menon, S., G. Hernborg and L. Andersson, "Melting of low-level contaminated steels", Stdsvik AB, Sweden in Decommissioning of Nuclear Installations, Elsevier Applied Science, 1990.
- 3.2.2.19. Gerding, T. J. et al., "Salvage of plutonium- and americium-contaminated metals", in AIChE symposium series 75(191), 118, 1997.
- 3.2.2.20. Heshmatpour, B. and G. L. Copeland, "The effects of slag composition and process variables on decontamination of metallic wastes by melt refining", ORNL/TM-7501, Oak Ridge National Laboratory, 1981.
- 3.2.2.21. 김의훈, 박홍채, 오기동, 이운복, 최태현, 내화물 공학개론, 다성출판사, pp. 316-321(2002).
- 3.2.2.22. USEPA, "Operation Parameters for Hazardous Waste Combustion Devices," USEPA, Office of Research and Development, Cincinnati, OH 45268 (1993).
- 3.2.2.23. G. Imbard and S. Rigaud, "Melting of Cs-contaminated ferritic steel from G2/G3 reactors, Marcoule," Proceeding of technical seminar on melting and recycling of metallic waste materials from decommissioning of nuclear installations, European Commission, Germany, pp. 193-208(1993).
- 3.2.2.24. D. K. Fukumoto, S. Matthews, G. Klein, "Low dross aluminum melter project," California Energy Commission(1999).
- 3.2.2.25. H.C. Yang, J.H. Lee, J.G. Kim, J.H. Yoo and J.H. Kim, "Behavior of radioactive metal surrogates under various waste combustion conditions", J. of the Korean Nuclear Society, 34, pp. 80-89(2002).
- 3.2.2.26. G.A.Reimann, EGG-WTD-10056, Idaho National Engineering Laboratory (1992)
- 3.2.2.27. S.A.Worcester, L.G. Twidwell, D.J. Paolini, T.A. Weldon, and R.E.Mizia, WINCO-1138 (1993)
- 3.2.2.28. L.S.Ökvist, ISIJ International, 41, pp, 1429-1436 (2001)

3.2.2.29. F.W.Ldedbrink, H.Westermann, Uranium-contaminated steel melting in Germany, in Proc, of technical seminar on melting and recycling of metallic waste materials from decommissioning of nuclear installations, Krefeld, Germany (1993) 173-2192

서 지 정 보 양 식

수행기관보고서번호	위탁기관보고서번호	표준보고서번호	INIS 주제코드
KAERI/RR-2795/2006			
제목 / 부제		원자력연구시설 제염기술 개발	
연구책임자 및 부서명		최왕규/제염해체기술개발센터	
연구자 및 부서명		정종현, 오원진, 원희준, 김계남, 박진호, 황성태, 최운동, 황두성, 문재권/제염해체기술개발센터, 박현수/선진핵주기공정개발그룹, 윤두병/원전기기상태감시·진단랩, 김기홍/조사후시험센터	
출판지	대전	발행기관	한국원자력연구원
페이지	416 p.	도표	있음(o), 없음()
발행년	2007	크기	A4
참고사항			
공개여부	공개(o), 비공개()	보고서종류	연구보고서
비밀여부	대외비(), — 급비밀		
연구수행기관	한국원자력연구원	계약번호	
<p>초록 (15-20줄내외)</p> <p>CO₂ 분사제염장치를 고방사성 Hot Cell에서 사용 시 문제인 동결 및 불연속 분사를 feed screw, idle roller, air-lock feeder 등의 부가 설비를 창의적으로 개발하여 해결하였으며, 유압구동식 진공흡입헤드 및 vacuum cup개발로 제염과 동시에 오염입자를 회수함으로 재오염을 방지할 수 있는 독창적 CO₂ 분사제염장치를 개발하였다. 고방사성 건식 Hot Cell의 다양한 오염형태에 따른 최적 제염공정을 도출하였고, 방사성 Hot시편 시험과 IMEF hot cell 실증시험을 통해 우수한 제염성능을 확인하였다. 또한 고 방사능 입자로 오염된 표면에 효과적으로 적용 가능하며, 제염, 회수, 여과공정 및 건식 hot cell 내에서 적용이 가능하도록 독창적으로 고안된 PFC 제염장치를 개발하였으며, 고방사능 IMEF M4 hot cell 내에서 실증시험을 통해 제염공정의 고방사능 현장 적용성 및 제염 성능(제염효율 90% 이상)을 확보하였다. 오염 핵종의 플라즈마 건식 제염 실험 및 QMS/AES/OES 진단 기구를 이용한 플라즈마 진단을 통해 최적 공정과 식각율을 도출해 낼 수 있었으며 플라즈마 제염 메커니즘이 불화반응에 의한 것이라는 것을 밝혀내었다.</p> <p>전기아크방식의 용융제염 시험을 통해 금속성폐기물 용융특성 및 주피와 슬래그로의 핵종(Co, Cs, U) 분배특성을 파악하였으며, Cs에 대해서는 약 100이상, U에 대해서는 10~100의 제염계수를 얻을 수 있었다. 기 확보 고온 용융시설을 활용한 파일럿 규모(200 kg/batch)의 용융제염 기술실증을 성공적으로 수행하여 금속성 해체폐기물의 감용을 위한 용융제염 성능(감용율 1/7) 및 경제성(연간 2,500 드럼 처리 시 직접처분에 비해 약 90억원 절감)을 확인하였다.</p>			
<p>주제명키워드 CO₂ 분사제염, PFC 제염, 플라즈마 제염, 용융제염, 금속폐기물, (10단어내외) 전기아크로, 핵종분배, 감용, 재활용</p>			

BIBLIOGRAPHIC INFORMATION SHEET					
Performing Org. Report No.		Sponsoring Org. Report No.		Standard Report No.	INIS Subject Code
KAERI/RR-2795/2006					
Title/ Subtitle Decontamination Technology Development for Nuclear Research Facilities					
Project Manager and Department		W. K. Choi/Decommissioning Technology Development Center			
Researcher and Department		C. H. Jung, W. Z. Oh, H. J. Won, G. N. Kim, J. H. Park, S. T. Hwang, Y. D. Choi, D. S. Hwang, J. K. Moon (Decommissioning Technology Development Center), H. S. Park (Advanced Nuclear Fuel Cycle Process Development Group), D. B. Yoon (Advanced Condition Monitoring and Diagnostic Lab.), G. H. Kim (Post Irradiated Examination Center)			
Publication Place	Taejon	Publisher	KAERI	Publication Date	June, 2007
Page	416 p.	Fig. & Tab.	Yes (o), No ()	Size	A4
Note					
Open	Open(o), Closed ()		Report Type	Research report	
Classified	Restricted (), __ Class Document				
Performing Org.	KAERI		Contract No.		
Abstract (15-20 Lines)					
<p>The originative CO₂ pellet blasting equipment was developed by improving additional components such as feed screw, idle roller and air-lock feeder to clear up the problems of freezing and discontinuity of blasting and by adopting pneumatically operated vacuum suction head and vacuum cup to prevent recontamination by collecting contaminant particulates simultaneously with the decontamination. The optimum decontamination process was established according to the kind of materials such as metal, concrete and plastic and the type of contaminants such as particulate, fixed chemical compound and oil. An excellent decontamination performances were verified by means of the lab-scale hot test with radioactive specimen and the technology demonstration in IMEF hot cell. The PFC dry decontamination equipment applicable to the surface contaminated with high radioactive particulate was developed. This equipment consists of the unit processes such as spray, collection, filtration and dry distillation designed originatively applicable to inside of dry hot cell. Through the demonstration of PFC spray decontamination process in IMEF hot cell, we secured on-site applicability and the decontamination efficiency more than 90 %.</p> <p>We investigated the characteristics of dismantled metal waste melting and the radionuclide(Co, Cs, U) distribution into ingot and slag by melting decontamination experiments using electric arc melter. We obtained the decontamination factors greater than 100 for Cs and of 10~100 for uranium. The pilot scale(200 kg/batch) demonstration for melting decontamination was carried out successfully using high temperature melting facility at KAERI. The volume reduction factor of 1/7 and the economical feasibility of the melting decontamination were verified.</p>					
Subject Keywords (About 10 words)		CO ₂ Blasting, PFC Decontamination, Plasma Decontamination, Melting, Metal Waste, Electric Arc Melter, Radionuclide Distribution, Volume Reduction, Recycling			

후 Hot particulate 장치와 연결하여 처리

- manipulator의 원활한 작업을 위해 체결부위의 quick connection 설치
- 분사호스 : 직경(2/1인치), 길이(현재4.5m →10m 연장), 재질(현재 내부 : 테프론, 외부 : robber → 고방사능용 재질로 교체)

② CO₂ 분사제염 Hot 실증시험 장치(고화체 검사시설 Hot cell 이용)



(a) CO₂ 분사제염장치



(b) 시설 내 장치 투입



(c) 분사노즐과 vacuum cup



(d) 분사노즐과 vacuum cup 연결



(e) 분사노즐과 vacuum cup 장착



(f) CO₂ 분사제염



(g) 분사 제염 전



(h) 분사제염 후

Fig. 3.1.1.78 Demonstration test of Hot cell decontamination(the inspection facility of the hardening material)

- 실증시험 결과, hot cell 내에서 분사장치와 vacuum cup의 manipulator에 의한 탈, 부착이 용이함을 확인
- CO₂ pellet이 지속적으로 분사가 이루어짐을 확인.
- 분사제염후 박리된 오염물질이 vacuum cup에 의한 진공의 우수성으로 오염 물질이 외부로 누출되지 않고 suction unit으로 포집됨.
- CO₂ pellet의 우수한 제염효과 확인.

③ CO₂ 분사제염 Hot 실증시험 장치(IMEF시설 Hot cell 이용)

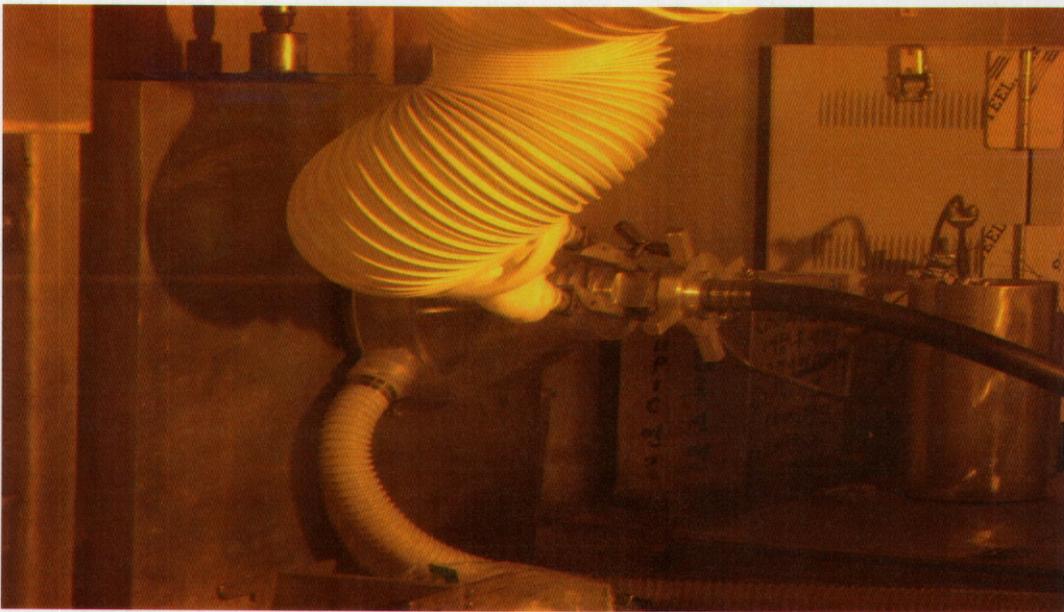


Fig. 3.1.1.79 Demonstration test of Hot cell decontamination(IMEF facility)

④ CO₂ 분사제염장치 제염 및 제염대상, 방사능 측정방법

㉠ 분사제염 방법

- Shielding Window를 통해 Master-Slave Manipulator를 이용하여 CO₂ pellet을 분사와 동시에 제염된 오염물질을 포집

㉡ 분사제염 설치 장소 및 필요한 utility

- In cell : 분사호스, Nozzle head부
- Out cell : CO₂ 분사장치, 분사호스

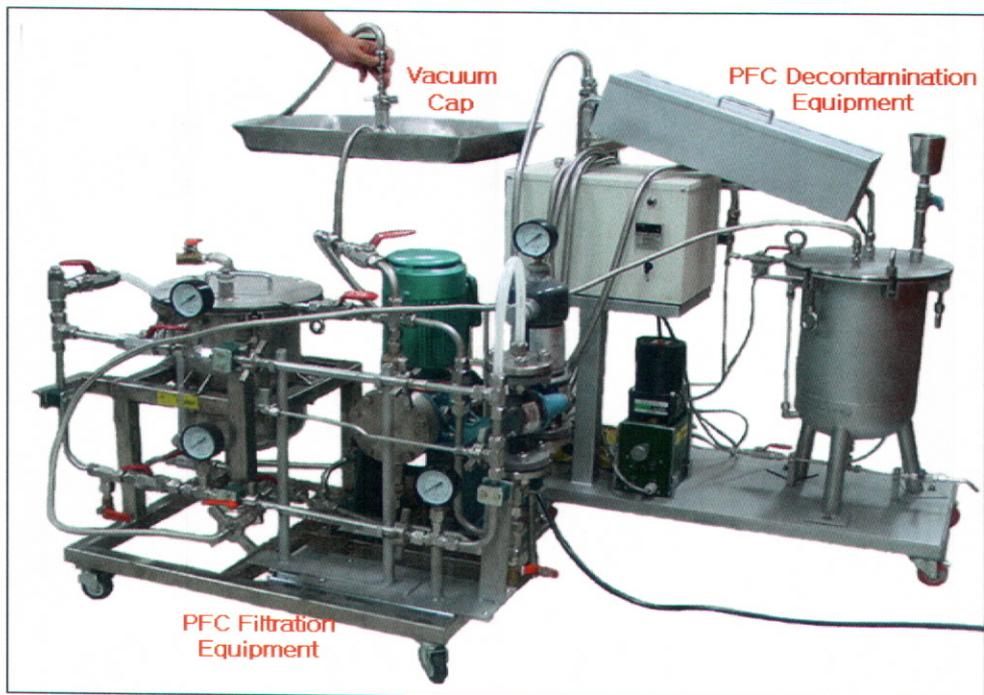


Fig. 3.1.4.73 Connection of PFC filtration equipment and PFC decontamination equipment

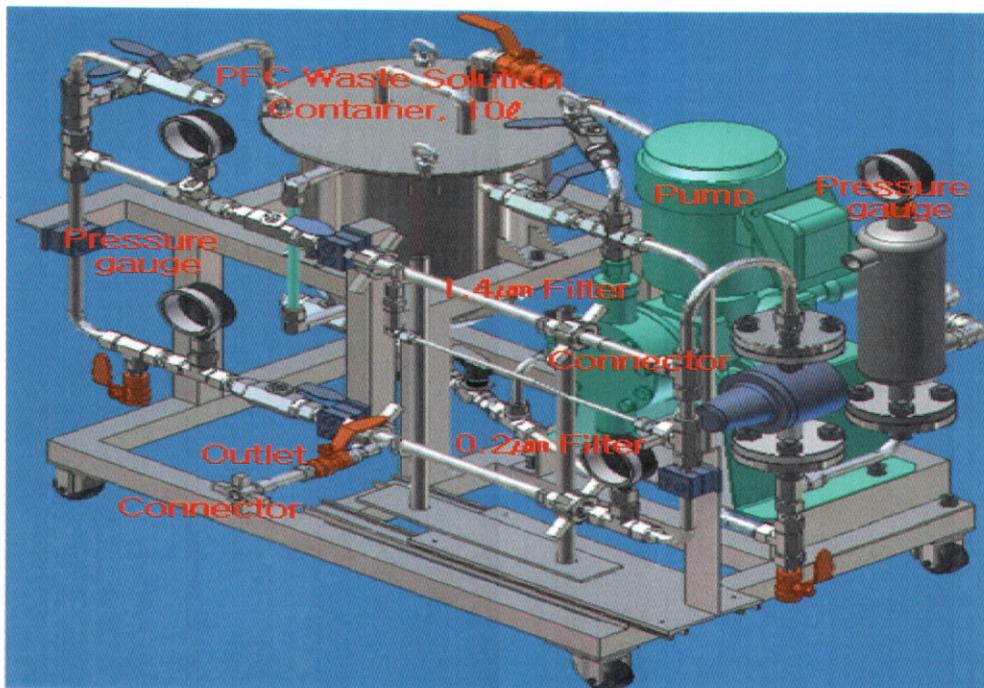


Fig. 3.1.4.74 The improved PFC filtration equipment

Fig. 3.1.4.75의 (a)와 (b)는 순수한 PFC 용매의 Flux를 여과시간과 압력에 따라 나타낸 그래프이다. 두 필터의 연결 및 고성능 펌프로의 교체로 인하여 개선된 장치의 PFC 용매 Flux는 이전 장치보다 3배 이상 증가하였음을 알 수 있다. 두 장치의 PFC 용매 Flux를 보다 쉽게 비교하기 위해 평균 Flux를 계산하여 Fig. 3.1.4.76에 나타내었다.

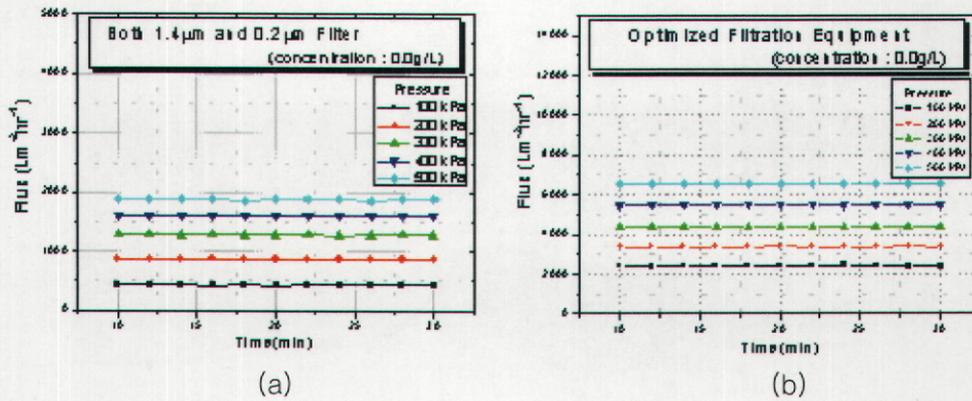


Fig. 3.1.4.76 Flux of PFC solvent ; (a) Previous and (b) Optimized equipment

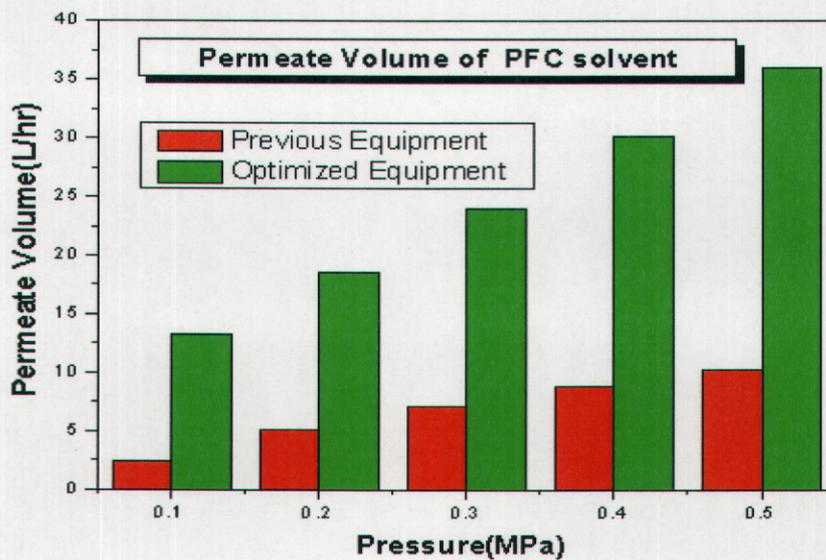


Fig. 3.1.4.76 Permeate volume of PFC solvent as a function of pressure in PFC filtration equipment

여과장치 내부를 순환할 수 있는 최소 부피는 약 1L 정도이며 순수한 PFC 용액 1L를 이용하여 장치를 세척한 후 Flux를 측정하였다. Fig. 3.1.4.80의 결과에서 세 번 세척 후 약 95% 이상의 Flux를 회복하는 것을 볼 수 있다. Filter가 크게 오염되지 않는다면 장치 내부세척을 통해 적절한 Flux를 유지하면서 사용할 수 있다.

또한, Filter의 오염정도를 알아보기 위하여 0.3g/L 입자성 오염폐액 10L를 여과한 후 4회 순환시켜 장치 내부세척을 한 후 Filter를 분리하여 Sonic wave로 Filter를 세척하였다. Filter에 포집된 입자의 양을 알아보기 위해 세척액의 탁도를 측정하고 농도/탁도 표준곡선으로 농도를 계산한 후 입자의 양을 계산하였다. 0.2 μ m와 1.4 μ m filter의 세척액 탁도는 각각 2.74 NTU(500mL)와 35.2NTU(500mL)이다. 농도로 환산하면 각각 0.85mg/L와 6.95mg/L 이다. Pre-filter인 1.4 μ m Filter에서 8배 이상 많은 입자가 포집된 것을 알 수 있다. 실제 포집된 입자의 질량은 각각 0.43mg과 3.46mg이다. 3g의 입자중 약 0.13%가 Filter에 포집되었음을 알 수 있다. 한편 필터가 포집할 수 있는 오염입자의 총 무게는 $2 \times (55\text{cm}^2 \times 0.2\text{cm} \times 0.4 \times 1.2\text{g/cm}^3) = 10.56\text{g}$ 이며, 두 필터가 30% 포화될 때의 오염입자 무게는 3.17g 이므로 본 여과장치는 0.3g/L 오염폐액 약 8,155L를 여과처리한 후 필터를 교체하면 된다. 한편, Sonic wave로 세척한 Filter를 재 장착하여 순수 PFC의 Flux를 측정한 결과 사용전의 Filter와 거의 같은 수준의 Flux를 나타냄을 확인하였다.



Fig. 3.1.4.81 Demonstration experiment of the improved PFC filtration equipment

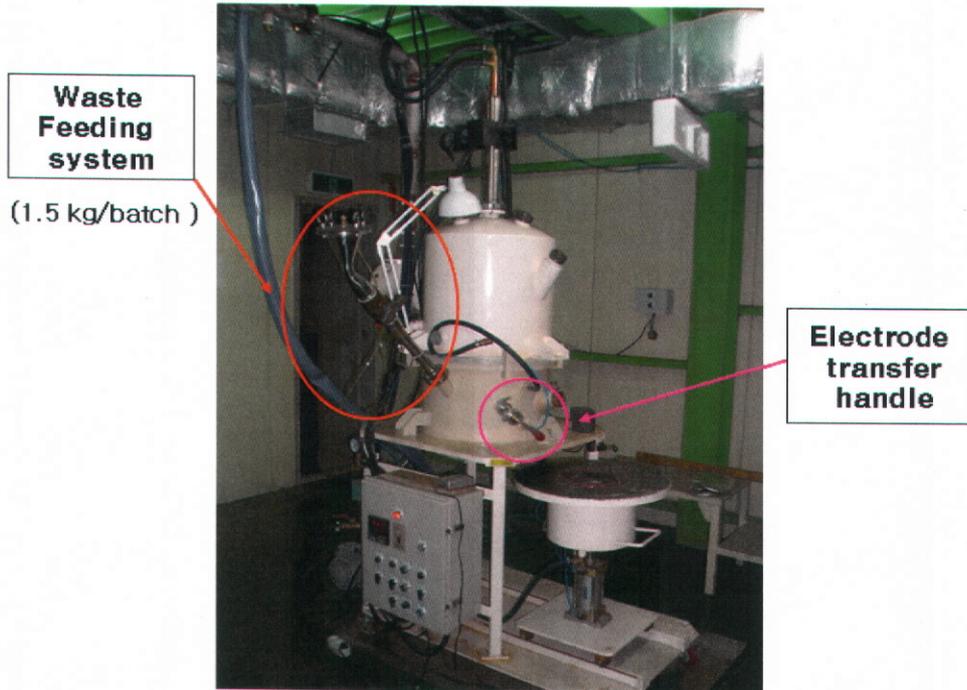


Fig. 3.2.3.1 Photo of the bench-scale arc furnace (10kg/batch)

(5) 실험실 규모(10 kg/batch)의 실증장치의 시운전

금속성 해체폐기물의 주입장치 및 전극 이동 핸들은 제작의도에 맞게 잘 작동하며 흑연 전극봉도 잘 연결되어 작동하였다. 금속(스테인레스강, 탄소강, 알루미늄) 해체 폐기물의 용융 실험 결과, 금속 용융이 실험의도에 맞게 이루어짐을 확인할 수 있었다. 이동용 전극 핸들이 존재하여 흑연전극을 이동함으로써 흑연 도가니의 벽면에 위치하고 있는 금속 폐기물까지 용이하게 용융시킴을 관찰할 수 있었다.

나. 베타/감마 오염 해체 폐기물 용융제염 실증시험

(1) 알루미늄 해체 폐기물 cold test(1 kg/batch 아크로)

우수한 강도와 UF6에 대한 내부식성 때문에 원자력 연구시설 및 우라늄 정련시설 (Gaseous diffusion plant)의 구조재 및 배관 등으로 사용된 알루미늄은 원자력 시설의 노후화와 해체에 의해 다양한 오염 준위를 나타내는 방사성 폐기물로 발생된다. EC의 자료에 의하면 2060년까지 유럽의 우라늄 농축 시설을 포함한 원자력 시설에서 약 9000 ton의 방사성 알루미늄 해체 폐기물이 발생할 것으로 예측하고 있다. 이러한 알루미늄 폐기물들은 대부분 방사능 오염도가 낮기 때문에 적절한 제염처리를 거치면 재활용이 가능하며 이에 대한 시나리오가 연구되어져 오고 있는 실정이다. 특히, 국내적으로도 1995년에 운전이 정지되어 현재 해체 진행 중인 TRIGA Mark-