

플라즈마 공정 기술을 이용한 금속 표면의 고착성 오염물질 제염 연구

윤상필*, 전상환*, 진동식*, 김용수*, 정종현, 김계남, 오원진

*한양대학교, 서울특별시 성동구 행당동 17번지

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

yongskim@hanyang.ac.kr

플라즈마를 이용한 건식제염공정은 원자력 이용 시설에서 발생하는 금속 표면의 고착성 오염물질 제염에 적용이 가능한 기술로서, 현재 실용화를 위한 연구가 진행 중이다. 본 연구에 앞서 수행된 CF_4/O_2 와 SF_6/O_2 혼합 기체를 이용한 플라즈마 공정실험에서 출력과 반응 온도를 높일수록 식각률이 증가되는 것을 확인 하였으며, 바이어스 전압으로 이온 보조 식각을 유도할 경우 식각률은 더욱 향상되는 것을 알 수 있었다. 이렇게 확보한 오염 핵종별 단위 공정 조건을 근간으로 실제 제염 대상물에 적용을 위한 연구를 수행하였다.

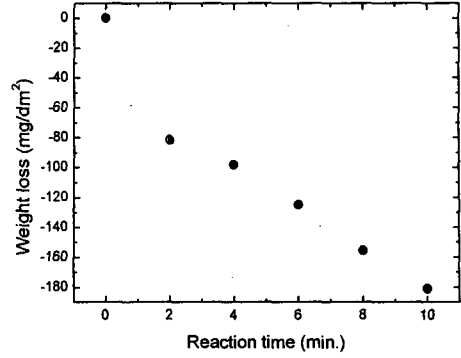
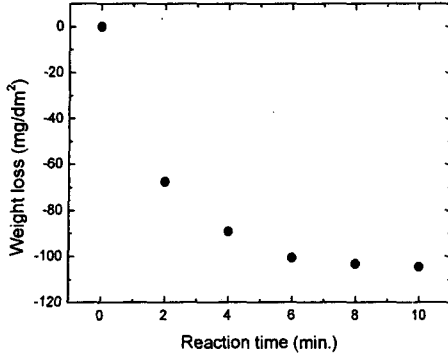
제염 대상 핵종으로는 원자력 발전소에서 발생하는 주요 오염 핵종으로 핵연료 붕으로부터 누설 시 오염을 초래하는 TRU 핵종인 우라늄과, 대표적인 부식생성물로 반감기가 상대적으로 길고 (5.27년) 고에너지 (1.17 MeV, 1.33 MeV) 핵종인 코발트를 선정하였다. 시편은 각 핵종의 금속 표면 오염 상태를 모사하기 위하여 원자력 시설 내부의 주요 구성 소재인 SUS 304와 Inconel 600 모재 표면 위에서 uranyl nitrate hydrate와 cobalt nitrate hydrate 수용액을 공기 중에서 가열하여 우라늄과 코발트 산화물로 제작하였다. 이 산화막은 공정 조건 도출을 위하여 두꺼운 산화층으로 형성시키고 반응을 관찰하였다. 공정 기체로는 식각을 향상을 위하여, 불소 원자의 해리율이 높으며 표면 반응을 저해하는 carbon 혹은 sulfur의 잔류 가능성을 배제할 수 있는 NF_3 기체를 선택하였다. 원활한 식각 반응을 일으키기 위하여 Ar 기체를 혼합하여 제염을 향상을 도모하였다.

NF_3/Ar 플라즈마 공정의 기체혼합 조성에 대한 실험 결과 $NF_3:Ar$ 의 혼합비가 1:4일 때 최대 식각율을 얻었으며, 금속 시편에 -300 V의 DC 바이어스 전압을 가하였을 때 향상된 식각율이 도출되었다. 이와 같이 최적화된 실험 조건에서 RF출력 150 W, 압력 0.3 Torr, 시편 표면온도 300 °C의 조건을 유지한 채 각 시편을 10분간 반응 시켰고 식각율을 조사하였다.

우라늄 산화막의 식각 실험 결과 초기에는 무게가 선형적으로 감소하였으나 반응이 진행됨에 따라 금속 표면에서 우라늄의 농도가 낮아지면서 무게 감소율이 포화되는 결과를 보였다. SUS 304와 Inconel 600에 형성된 우라늄 산화막의 단위면적당 무게 감소를 Figure 1에 도시하였다. 시편 무게가 선형적으로 감소하는 구간에서 식각율을 도출한 결과 SUS 304 모재에서 0.5 $\mu m/min.$, Inconel 600 모재에서 0.6 $\mu m/min.$ 의 결과를 얻었다. Figure 2는 동일한 조건에서 플라즈마와 반응한 코발트 산화막의 식각 결과이다. 역시 무게 감소율이 점차 포화되었으며 식각율은 SUS-304 모재에서 0.2 $\mu m/min.$, Inconel-600 모재에서 0.5 $\mu m/min.$ 이었다. 특히, 코발트의 경우 단위공정조건을 도출하기 위한 실험에서는 350 °C보다 낮은 온도에서는 반응이 일어나지 않았으나 NF_3/Ar 기체를 사용한 이 실험에서는 300 °C의 온도에서도 원활한 식각반응을 관찰할 수 있었다.

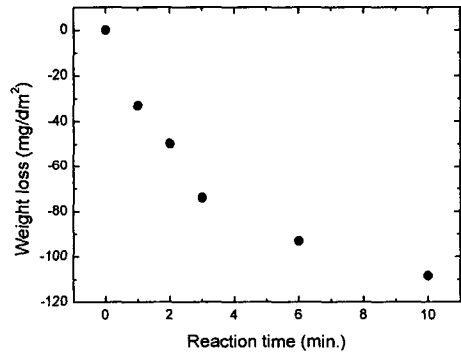
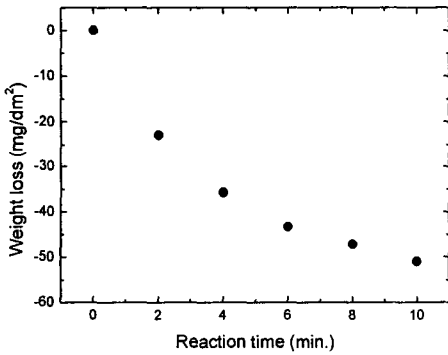
각 시편의 반응 전후 표면은 SEM과 XPS를 이용하여 분석하였다. SEM 분석결과 두 핵종 모두 Inconel 600 모재에서 보다 균일한 반응이 관찰되었으며 XPS 표면 분석 결과 각 산화막이 반응시간 10분 내에 쉽게 제거됨을 확인하였다.

본 연구 내용은 플라즈마 건식제염 공정기술의 실제 제염 대상물에 대한 적용 가능성을 보여주고 있다. 현재 핵분열생성물에 대한 제염 연구와 플라즈마 반응기체와 대상 핵종의 반응 기구를 규명하기 위한 실험이 진행 중이다. 이러한 연구결과를 기초로 하여 추가적인 활용 기술개발 및 응용분야 확대를 위한 연구가 추진 중이다.



(a) Weight loss of uranium oxide on SUS (b) Weight loss of uranium oxide on Inconel

Figure 1 Weight loss of uranium oxide on the SUS and Inconel vs. time using NF₃/Ar plasma (Flow rate: NF₃ 10 sccm and Ar 40sccm, total pressure: 0.3 Torr, rf power: 150 W, DC bias: -300 V, substrate temperature 300 °C)



(a) Weight loss of cobalt oxide on SUS (b) Weight loss of cobalt oxide on Inconel

Figure 2 Weight loss of cobalt oxide on the SUS and Inconel vs. time using NF₃/Ar plasma (Flow rate: NF₃ 10 sccm and Ar 40sccm, total pressure: 0.3 Torr, rf power: 150W, DC bias: -300 V, substrate temperature 300 °C)