

Cs⁺, Co²⁺, Eu³⁺ 및 Ce⁴⁺로 오염된 알루미늄 표면에 대한 광용발 제염 특성

정선희, 원휘준*, 최병선, 문제권, 정중현, 이근우
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 nhiwon@kaeri.re.kr

1. 서론

고 방사능 시설 및 hot cell 내의 구성 재질이며 냉각장치의 재질로 사용되고 있는 알루미늄 금속 표면을 대상으로 광용발 제염법을 적용하였다. 광용발 제염기술은 고 방사능 시설 내부의 개보수 및 해체에 필요한 고 효율 제염기술이다. 본 연구에서는 Q-switched Nd:YAG 레이저를 이용하였으며 광용발 제염공정의 주 변수인 레이저 조사횟수, 레이저 fluence 및 레이저 조사각도에 대한 특성을 알아보고자 하였다. 알루미늄 표면에 CsNO₃, Co(NH₄)₂(SO₄)₂, Eu₂O₃ 및 CeO₂를 오염시켜 각 이온들의 제염특성을 평가하였다.

2. 본론

2.1 실험

알루미늄 시편에 CsNO₃, Eu₂O₃, CeO₂ 및 Co(NH₄)₂(SO₄)₂ 용액으로 오염시킨 후 건조시켜 모사시편을 제조하였다. 그 후 SEM (Scanning Electron Microscopy, JSM6300) 및 EPMA (Electron Probe Micro Analyzer) 를 이용하여 시편 표면을 분석하였으며 시편표면의 화학적 조성은 Cs (4.3%), Co (4.7%), Eu (5.1%) 및 Ce (5.2%) mole % 였다.

본 연구에서 사용한 광용발 제염장치는 프랑스 Quantel사에서 제작된 Brilliant b 모델을 사용하였다. 이 레이저는 fundamental (1064 nm), second harmonic (532 nm) 및 third harmonic (355 nm)로 구성되어 있어 파장변화가 가능하다. 본 장치의 반복율은 10 Hz (1064, 532 및 355 nm), 펄스폭 6 ns (1064 nm), 5 ns (532, 355 nm)이며 원형렌즈 및 선형렌즈를 사용하였다. 레이저 노즐의 위치를 원격으로 조정하기 위해 XY 방향 이송장치와 제염대상과 레이저의 거리를 조절하기 위한 Z축 방향 이송장치를 자체 제작하였다. 레이저 제염장치의 개요도를 그림 1에 나타내었다.

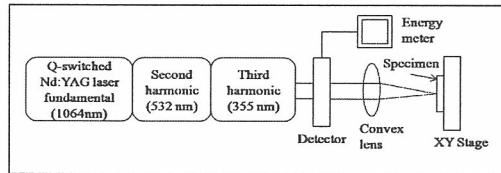


Fig. 1. Schematic diagram of experimental apparatus.

2.2 실험결과

2.2.1 레이저 조사횟수에 따른 제거효과

그림 2와 3은 세 파장에서 동일한 fluence인 12 J/cm² 하에서 레이저 조사횟수에 따른 4가지 오염물질의 잔존 비율 (X_t/X₀)을 나타낸 그림이다. 그림에서 나타난 바와 같이 1064 nm에서 24회를 조사하였을 때 532 nm와 355 nm에 비해 제거효율이 낮아지는 것을 파악할 수 있으며, 532 nm에서의 제거효율은 Cs⁺ > Co²⁺ > Ce⁴⁺ > Eu³⁺ 순이며, 355 nm에서는 Cs⁺ > Co²⁺ > Eu³⁺ > Ce⁴⁺ 순이다.

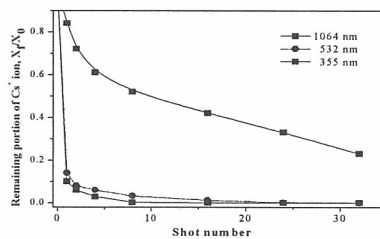


Fig. 2. Remaining portion CsNO₃ against the number of laser shots. (12 J/cm²)

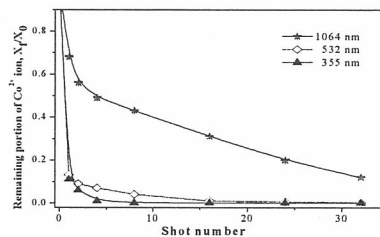


Fig. 3. Remaining portion Co(NH₄)₂(SO₄)₂ against the number of laser shots. (12 J/cm²)

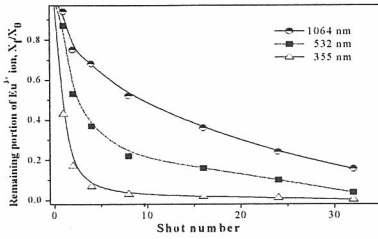


Fig. 4. Remaining portion Eu_2O_3 against the number of laser shots (12 J/cm^2)

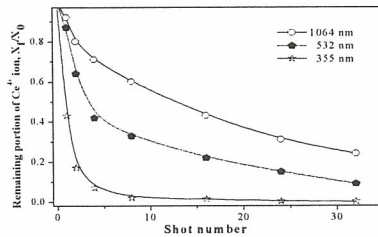


Fig. 5. Remaining portion CeO_2 against the number of laser shots. (12 J/cm^2)

2.2.2 레이저 Fluence에 따른 제거효과

각 과장에 따른 레이저 Fluence의 영향을 알아보기 위하여 동일한 조사횟수 (8회)에서 $3.3 \text{ J/cm}^2 \sim 57.3 \text{ J/cm}^2$ 까지 Fluence 값을 변화시켜 제염실험을 수행하였고, 결과를 Table 1에 수록하였다. 표에서 보는바와 같이 532nm와 355nm 과장범위에서는 Cs^+ 과 Co^{2+} 의 제거효율이 1064nm에 비해 우수한 것을 알 수 있으며, 대체적으로 세 과장 모두 Eu^{3+} 과 Ce^{4+} 의 제거효율이 Co^+ 와 Cs^{2+} 에 비해 낮아지는 것을 관찰할 수 있다.

Table 1. Removal portion (%) after laser decontamination against the laser fluence at 12 J/cm^2 under three wavelength condition (8 shots).

Removal Portion (%)	Laser wavelength (nm)		
	1064	532	355
Cs^+	50.3	96.8	99.8
Co^{2+}	57.2	96.4	99.7
Eu^{3+}	48.1	78.5	95.1
Ce^{4+}	40.3	67.1	96.2

2.2.3 조사각도에 따른 제거효과

그림 6은 532 nm에서 조사각도에 따른 오염물질에 대한 제염효율을 알아본 것이다. 조사각도를 $0^\circ \sim 45^\circ$ 로 변화시키며 실험한 결과, $0^\circ \sim 30^\circ$ 범위

에서는 오염물질의 제거효율이 변화가 없었으나, 45° 에서는 제거효율이 떨어지는 것을 알 수가 있다. 조사각도를 0° 으로 하면 레이저 빔이 시편에 수직으로 닿기 때문에 렌즈가 손상될 수 있으므로 $0^\circ \sim 30^\circ$ 가 적절한 조사각도를 알 수 있으며, 그림 7은 조사각도별 SEM image를 나타낸 것이다.

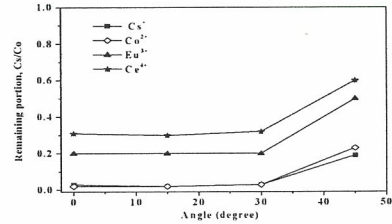


Fig. 6. Effect of irradiation angle on the removal behavior of 4 contaminants.

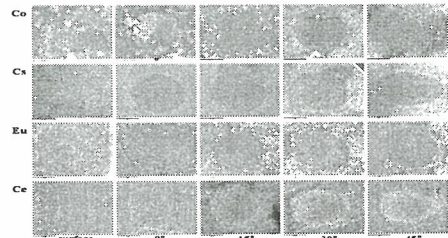


Fig. 7. SEM images of aluminum surface (x30) before and 10 laser shots.

3. 결론

$\text{Cs}^+, \text{Co}^{2+}, \text{Eu}^{3+}$ 및 Ce^{4+} 에 오염된 알루미늄 표면에 대한 제거효율을 레이저 조사횟수, 레이저 fluence 및 레이저 조사각도에 따른 영향에 대해 실험한 결과 오염된 표면의 특성에 따라 최적 laser fluence와 조사횟수를 찾아 각 과장별로 높은 제거효율을 얻을 수 있었다. 조사각도 최대 30° 범위까지는 제거효율이 감소되지 않으며 시편에 수직으로 닿아 생길 수 있는 레이저빔의 손상도 피할 수 있었다. 또한 알루미늄에 대한 레이저 제염은 Type 304 스테인레스 강보다 훨씬 어려운 데 이에 대한 연구가 수행 중에 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.