

드라이아이스 펠렛 분사에 의한 모의 시편의 제염

신진명 · 박장진 · 양명승
한국원자력연구소 고방사성핵물질 처리기술개발

Decontamination of Simulated Test Piece by Dry Ice Pellet Blasting

Jin-Myeong Shin · Jang-Jin Park · Myung-Seung Yang
Dept. of DUPIC Facility and Process Waste Management, KAERI, Taejon, Korea

Abstract

Dry decontamination technique is required for maintaining nuclear material handling equipment contaminated with highly radioactive material in a hot cell. In order to determine the optimum blasting conditions of dry ice pellet blasting device, the basic experiments have been conducted on the simulated test specimens of four types of metals. The removal efficiency of test piece was evaluated by the XRF analysis and the change of the surface condition before and after blasting. The removal efficiency of cesium on loose contamination was 100% under blasting pressure; 3 kg/cm², blasting distance; 10 cm, blasting time; 10 sec. In case of fixed contamination, the removal efficiency of cesium was almost 96% under blasting pressure; 4kg/cm², blasting distance; 10 cm, blasting time; 30 sec.

Key Words : Dry ice pellet, Decontamination, Blasting, Cesium

I. 서 론

현재 방사성물질로 오염된 장비는 주로 고압 물 제트 세척방법인 습식으로 오염관리를 하고 있으나 이 방법은 핵임계 문제, 2차 폐기물 발생 때문에 고방사성 환경인 핵연료물질을 취급하는 핫셀 내에서는 적용이 불가능하다. 따라서 운전자가 오염 환경에 노출되지 않고, 2차 폐기물이 없으며 핫셀 내에서 원격조작이 가능한 제염법 개발이 요구된다.

최근에 드라이아이스 제염기술의 하나인 드라

이아이스 분사 제염법은 장비파손 및 장비분해를 할 필요가 없어 주목을 받고 있다. 드라이아이스 분사제염기술은 장비파손 및 장비분해를 할 필요가 없다. 또한 슬래그 제거에서부터 정밀반도체, 회로판 세정, 원자력시설제염 등에 이르기까지 다양한 분야에 응용되고 있다. 기존의 유해화학물질, 고압수 분사와 연마성 모래분사와는 달리 드라이아이스 분사 제염기술은 2차폐기물 처리처분의 추가적인 비용이 들지 않는 장점도 가지고 있다. 이러한 기술적 특성 때문에 핵연료 제조장치 및 시설 내 오염물을 제염할 수 있는 기술로 평가받고

있다. 핫셀 내 핵물질 취급장치의 제염은 작업자들의 방사성 노출뿐만 아니라 방사성폐기물 양의 감소 및 고가장비의 재활용 측면에서 절대적으로 필요하다.

드라이 아이스 분사(dry ice blasting)는 미디어(media)가 가압공기나 다른 불활성 가스흐름 속에서 가속되어 세정/준비 대상의 표면에 충격을 가하는 sand blasting, plastic bead blasting, soda blasting 등과 유사하다. 드라이 아이스 분사에서 대상물질의 표면에 충격을 가하는 미디어는 고체상 CO₂ 입자이다. 블래스트 미디어로 드라이 아이스 입자를 사용할 때의 독특한 특징 하나는 표면에 충돌하자마자 드라이 아이스 입자가 승화한다는 점이다. Pellet과 표면간의 결합 충격에너지 분산 및 극도로 빠른 열전달로 인해 고체 CO₂는 가스상으로 즉시 승화된다. 이 때의 CO₂ 가스는 충돌 지점에서 효과적으로 미소폭발을 일으키는 시간의 수십분의 일초 만에 CO₂ pellet 부피의 약 800 배 이상으로 팽창된다. CO₂가 증발되어 버리기 때문에 드라이 아이스 분사 공정은 다른 2차 폐기물을 생성하지 않으며 남는 것이라고는 제거되는 오염물질 뿐이다.

고체 CO₂인 드라이 아이스를 이용한 분사 기술은 1970년대 후반에서 1980년대 초반에 걸쳐 Lockheed Corp.에 의해 개발이 시작되고 1987년에 최초로 상용화된 기술이다. 드라이 아이스 분사 제염 메카니즘은 열에너지, 운동에너지, 승화에너지의 복합적 작용으로 설명된다. 드라이 아이스 펠렛이 오염대상 표면에 충돌하면 국부적으로 과냉각이 유발되어 표면의 탄성이 소실되고 부착되어 있던 오염물질은 표면과의 결합력이 약해져 떨어져 나간다. 운동에너지 측면에서 보면 드라이 아이스 펠렛과 공기의 운동에너지가 코팅 제거에 기여하는 것이다. 제트압 12 bar, 공기량 11 m³/min에서 고성능 원형노즐을 사용하여 드라이 아이스를 분사하였을 때 제트 충돌력은 최대 150 N에 이르고 입자의 탈출속도는 최대 300 m/s에 이른다고 보고하였다²⁾. 드라이 아이스가 승화하면 드라이 아이스의 부피는 거의 800 배까지 증가하면서 압력의 변화를 유발하며, 이 과정이 제염공정을 더욱 촉진한다고 보고하였다.

드라이 아이스제염에 대한 최근의 연구동향을 살펴보면 국내의 경우, 1999년 류정동 등이¹⁾ 드라이 아이스 눈 입자 세척법(dry ice snow cleaning)을 표면 방사성 오염물 제염에 적용하여 표면 방사능 오염물의 경우에는 최대 제거율 82 % 까지 얻었다고 보고한 바 있다. 원자력 선진국에서는 제염 대상시설의 특성에 맞는 운전성, 단순성 및 제염효율 등의 기술적 성능, 원격 적용성, 환경과 인체에 대한 안전성 연구, 폐기물 발생량을 감소시키기 위한 제염연구가 활발히 추진되고 있다³⁻⁹⁾. 특히 2차폐기물 발생량 저감과 제염비용이 절감될 수 있는 드라이 아이스 제염기술들이 개발되어 일부 적용되고 있으며 기존 기술의 개선연구가 진행되고 있다.

국내에서는 핫셀내 고방사성 물질로 오염된 핵물질 취급장비에 대한 유지보수를 위하여 드라이 아이스 입자들의 충격을 이용한 드라이 아이스 펠렛 분사 장치가 개발되었다¹⁰⁾. 개발된 드라이 아이스 펠렛 분사 장치를 핫셀에 직접 적용하기 전에, 장치의 최적 제염조건을 확립시키기 위해서는 공정변수가 제염효율에 미치는 영향을 이해할 필요가 있다. 따라서 본 연구에서는 4가지 종류의 대표 표면에 대하여 비교착성 및 고착성 모의 시편을 제조하여 기본 실험을 수행하였다. 시편의 제거효율은 XRF 및 분사 전·후의 표면 조건 변화로 평가하였다.

III. 실험

1. 실험장치

드라이아이스 분사장치는 air dryer system, purge/blasting system, blasting gun, blasting nozzle 및 시편 시험장치로 구성된다. Fig. 1에 드라이 아이스 펠렛 분사 시스템 개요도를 나타내었다.

사용된 드라이아이스 펠렛은 직경 3 mm 정도였고 기밀된 드라이아이스 박스에 보관하여 사용하였다. 드라이아이스는 국내 V사에서 공급받아 실험에 이용하였다. Purge system은 드라이아이스 공급라인이 작동 중 막혔을 경우, 운전자가 쉽게 세척할 수 있도록 설계되었다. 시편 시험장치는 드라이아이스 펠렛 분사 후, 제염된 오염물질의 제

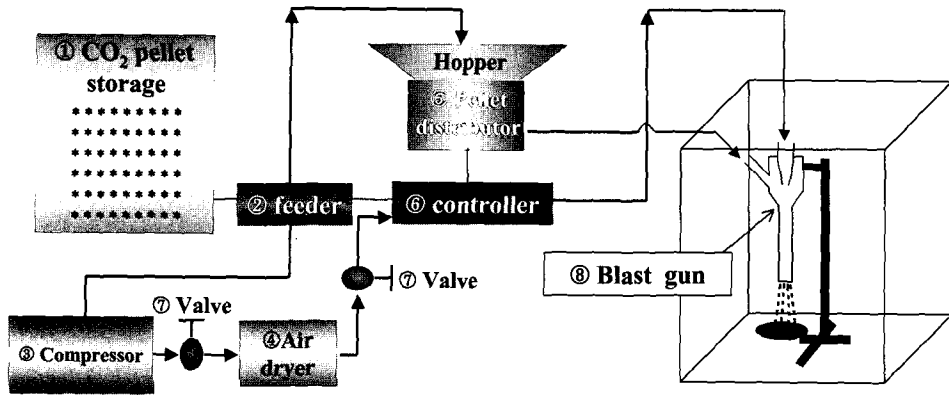


Fig. 1. Schematic diagram of CO₂ pellet blasting system.

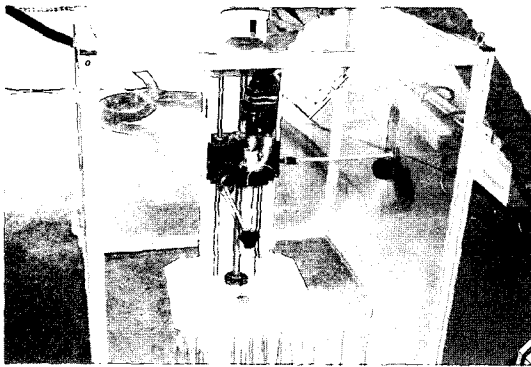


Fig. 2. Photograph of dry-ice blasting chamber system.

비산을 방지하고 높은 압력 하에서도 시편을 고정 화시키고 또한 시편표면을 균일하게 제염하기 위하여 제작되었다. Fig. 2와 같이 시험기는 오염시편을 고정하는 부분, 분사헤드를 수직으로 고정하는 부분, 분사헤드를 시편에 대하여 좌/우, 전/후, 상/하로 이동하는 부분, 비산방지 프레임으로 제작되었다. 비산방지 프레임은 투명 아크릴로 되어 있어 운전자가 오염 환경에 노출되지 않고 제염상황을 관찰할 수 있도록 설계되었다.

2. 모의 시편제조

고방사성 핫셀의 제염대상 재질을 모사하기 위해 대표적으로 4가지 구성 재질로 시편을 가공하여 사용하였다. 시편 종류들에는 SUS304를 단순 연마한 시편(specimen 1), SUS304를 polishing한

시편(specimen 2), steel에 열처리 도장한 시편(specimen 3), SUS304를 기계 가공한 시편(specimen 4)이었다. SUS304 단순 연마한 시편(specimen 1)은 금강석으로 연마 후 pickling 처리한 것으로서 핫셀내 duct, 바닥, connector 등을 대표할 수 있다. SUS304를 polishing한 시편(specimen 2)은 SUS를 금강석 연마 후 알루미나를 이용하여 미세 연마한 것으로서 핫셀 벽면, 저장통 등을 들 수 있다. 열처리도장한 시편(specimen 3)은 steel면에 스프레이를 이용하여 액체 소부 도장 한 후 200℃에서 3시간 열처리한 것으로서 일반 기기 장치의 표면에 해당된다. 기계 가공한 시편(specimen 4)은 선반 가공한 것으로서 기계부품 및 경첩부분에 해당된다. 실험에 사용된 시편은 표면오염 측정방법인 XRF 측정이 가능하도록 금속시편을 직경 43 mm, 두께 6 mm로 가공하여 실험에 사용하였다.

DUPIC 핵연료제조공정 중 산화·환원공정(OREOX) 및 소결공정에서 발생하는 준휘발성 핵분열 가스인 세슘은 방사선적 위해도가 크며 침출성이 큰 핵종 중의 하나이다. 고방사성핫셀 내 대표적인 오염 핵종인 세슘을 모사하기 위해 시편 위에 CsNO₃ (Aldrich Co, 99%) 시약을 사용하여 수 세척에 의하여 오염표면을 완전히 제거시킬 수 있는 비고착성 오염과 수 세척에 의해 용이하게 제거되지 않는 고착성 오염시편을 준비하였다. 비고착성 오염 형성조건은 10,000 ppm의 CsNO₃ 용액을 0.1 ml mass 피펫을 사용하여 소량씩 가하여

총 투입량 1ml 가한 후 상온에서 48시간 단순 건조시켰다. 고착성 오염 형성조건은 시편 2 및 4에 대하여 10,000 ppm의 CsNO₃ 용액을 0.1 ml mass 피펫을 사용하여 소량씩 가하여 총 투입량 1ml 가한 후 24시간 상온에서 건조시킨 후 400°C 온도의 전기로(Lenton, UAF 17/12) 내에서 12시간 가열하였다. 비교착성 및 고착성 오염시편의 제염 전·후 오염량에 대한 분석의 신뢰성을 얻고자 각각 3개씩 분석하였다.

3. 제염실험

드라이 아이스 오염제거장치의 최적 분사조건을 확립시키기 위해서 모의 시편을 제조하여 제염실험을 수행하였다. 비교착성 오염시편 실험의 경우, 상기 4가지 시편종류별로 분사압력(1~4kg/cm²), 분사시간(5초~90초) 및 분사거리(1cm~30cm)로 공정변수를 변화시켜 가면서 드라이 아이스 오염제거장치의 드라이 아이스 분사 제염특성을 조사하였다. 각 공정변수 실험시 드라이 아이스 주입량은 1kg/min으로 일정하게 유입되도록 조절하였고 분사각도는 직각으로 고정하여 실험하였다.

고착성 오염시편 실험의 경우, SUS304를 polishing한 시편(specimen 2) 및 SUS304를 기계 가공한 시편(specimen 4)에 대하여 분사압력(1~4 kg/cm²), 분사시간(5초~90초), 분사거리(1 cm~30 cm)로 공정변수를 변화시켜 가면서 드라이아이스 분사 제염특성을 조사하였다.

4. 분석

드라이아이스 분사제염 전, 후 모의 오염시편의 농도분석은 표면 분석기술인 X-ray Fluorescence (XRF)분석법을 이용하였다. XRF장치(Siemens, SRS-303)는 Rh target을 사용하고 출력 3kw의 파장분산형이다.

III. 실험결과 및 고찰

1. 오염 시편 분석

본 연구에서 사용한 시편의 종류, 고착 상태에 따라 고착성 시편의 오염 정도에 차이가 있음을

알 수 있었다. SUS304를 polishing한 시편(specimen 2)에 대하여 세습을 비교착 시킨 경우, 세습이 각각 2.93 wt%, 2.89 wt% 및 2.90 wt% 으로서 평균 2.91 wt% 이었다. 세습을 고착시킨 오염시편의 경우, 세습이 1.56 wt%, 1.54 wt% 및 1.51wt% 으로서 평균 1.54 wt% 이었다. 고착성 오염시편의 세습 오염량은 비교착성 오염량의 약 53% 수준으로 나타났다, 이는 세습의 일부분이 400°C의 고온에서 시편 표면 내부로 침투된 것으로 사료된다.

한편, SUS304를 기계 가공한 시편(specimen 4)에 대하여 세습을 비교착 시킨 경우, 세습은 각각 2.86 wt%, 2.90 wt% 및 2.88 wt% 으로서 평균 2.88 wt% 이었다. 세습을 고착시킨 오염시편의 경우, 세습이 1.86 wt%, 1.83 wt% 및 1.91wt% 으로서 평균 1.86 wt% 이었다. 고착성 오염시편의 세습 오염량은 비교착성 오염량의 약 65% 수준으로 나타났다. 표면의 거칠기가 상대적으로 큰 SUS304를 기계 가공한 시편(specimen 4)이 SUS304를 polishing한 시편(specimen 2) 보다 오염도가 큰 것으로 나타났다.

2. 제염 성능 평가

비교착성으로 오염시킨 각 시편종류별로, 분사압력을 변화시켜 드라이아이스 펠렛 분사 제염한 결과를 Fig. 3에 나타내었다. Fig. 3에 제시된 것처럼 시편의 종류에 상관없이 분사거리 10cm, 분사시간 10초 및 분사압력 3kg/cm² 이상에서 모두 제거효율이 100 % 으로서 나타났다. 분사압력 증가에 따라 드라이아이스 펠렛 충격에너지의 증가로 인하여 제거효율이 증가된 것으로 비교착성 오염물질 제염시 3kg/cm² 정도의 비교적 낮은 분사압력 조건에서도 우수한 제거효율을 얻을 수 있음을 확인하였다. 이는 비교착성으로 오염물질의 경우, 원격조작으로 고방사성 핫셀 내에서도 낮은 분사압력 조건으로 우수한 제거효율 값을 얻을 수 있을 것으로 판단된다.

Fig. 4에 분사압력 3 kg/cm², 분사거리 10 cm에서 분사시간을 5초부터 90초까지 변화시키면서 비교착성 오염시편의 제염실험을 수행한 결과를 나타내었다. Fig. 4에 제시된 것처럼 분사시간 10초

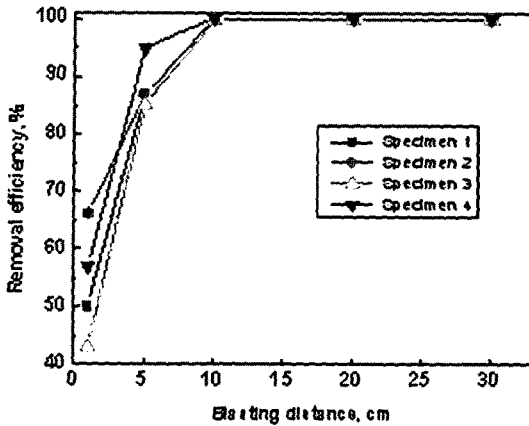


Fig. 3. Removal efficiency of cesium on blasting pressure at different test pieces of loose contamination. (Blasting time : 10 sec. Blasting distance 10cm)

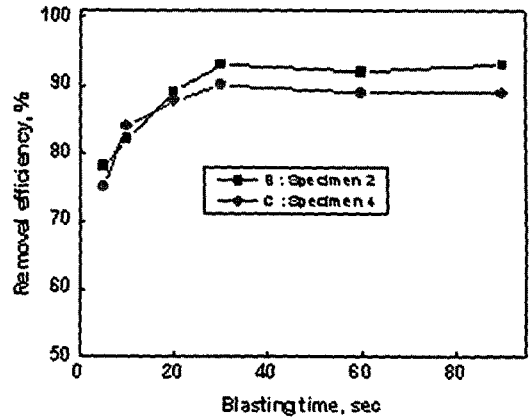


Fig. 5. Removal efficiency of cesium on blasting distance at different test pieces of loose contamination. (Blasting pressure : 3kg/cm^2 , Blasting time : 10 sec)

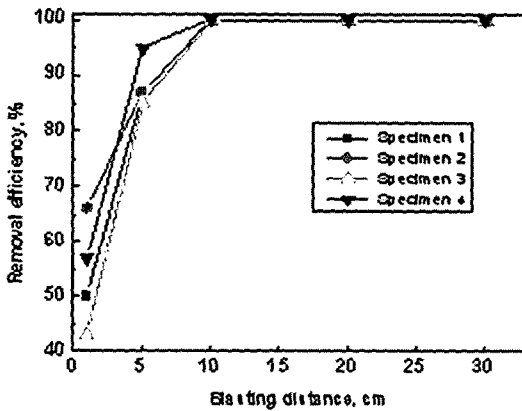


Fig. 4. Removal efficiency of cesium on blasting time at different test pieces of loose contamination. (Blasting pressure : 3kg/cm^2 , Blasting distance 10cm)

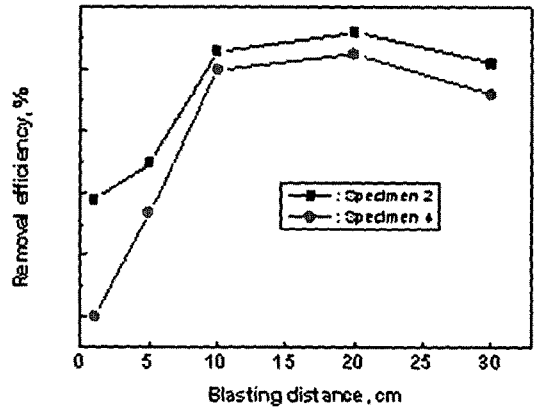


Fig. 6. Removal efficiency of cesium on blasting pressure at different test pieces fixed contamination. (Blasting time : 10 sec. Blasting distance 10 cm)

에서 20초 범위에서는 제거효율이 100%로 나타났다. 반면에 30초 이상에서는 분사시간 증가에 따라 제거효율의 증가는 없었다. 이러한 결과는 분사시간이 증가할수록 드라이 아이스 펠렛이 오염표면에 접촉 후 곧바로 승화되지 못하고 표면에 계속 응결된 상태로 남아 있어서 분사시간이 증가하여도 제거효율을 증가시키지 못하는 것으로 사료된다.

분사압력 3kg/cm^2 , 분사시간 10 초에서 분사거리를 변화시키면서 비고착성 오염시편의 제염실험

을 수행한 결과를 Fig. 5에 나타내었다. 분사거리 10 cm 이상에서 제거효율이 100%로 나타났다. 이러한 결과는 드라이 아이스가 효과적으로 제염표면에 분사하여 접촉하기 위한 최소한의 거리가 필요함을 의미한다.

한편, 고착성 오염시편 표면에 세습을 고착한 시료를 분사시간 10초, 분사거리 10 cm로 고정시킨 후 분사압력($1\sim 4\text{kg/cm}^2$)을 변화시켜 세습의 제거효율을 나타낸 결과를 Fig. 6에 나타내었다. Fig. 6에 나타난 것처럼 분사압력이 증가할수록 세습의

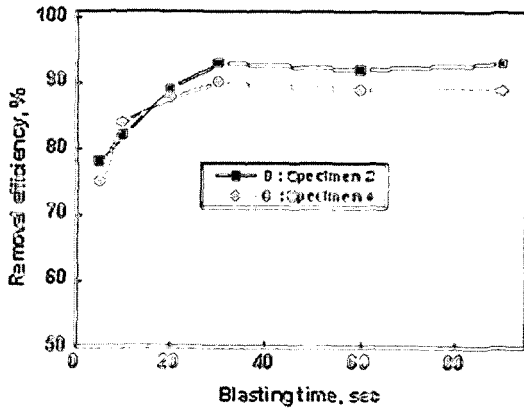


Fig. 7. Removal efficiency of cesium on blasting time at different test pieces of fixed contamination. (Blasting pressure : 4kg/cm^2 , Blasting distance 10cm)

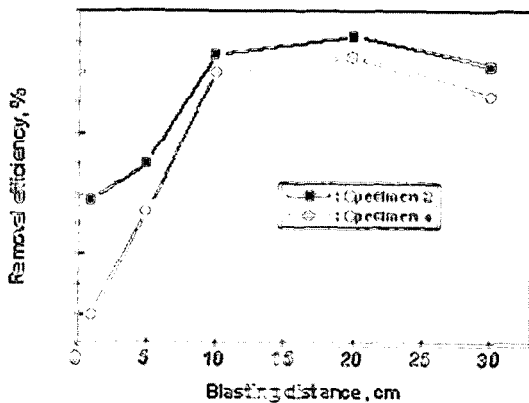
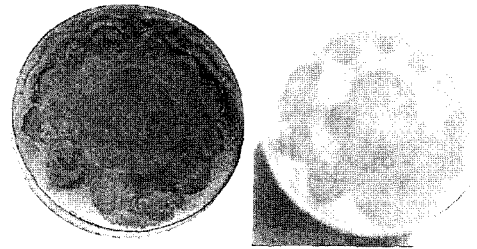


Fig. 8. Removal efficiency of cesium on blasting distance at different test pieces of loose contamination. (Blasting pressure : 4kg/cm^2 , Blasting time : 30 sec)

제거효율이 증가하였다. 이는 분사압력이 증가할수록 드라이아이스와 오염입자가 서로 충돌 횟수가 증가하여, 드라이아이스가 갖고 있던 운동에너지가 증가하여 오염입자에게 전달되었기 때문인 것으로 보인다. 분사압력을 계속 증가시키기에 따라 고착성 세슘의 제거효율이 증가될 것으로 판단되나, 현재 당소 오염제거 실험실 내 드라이아이스오염장치의 가용 사용압력이 최대 4kg/cm^2 이상으로는 사용할 수 없어 실험을 진행시킬 수 없었다.

Fig. 7에 분사압력 4kg/cm^2 , 분사거리 10cm에서 분사시간을 변화시키면서 고착성 오염시편의

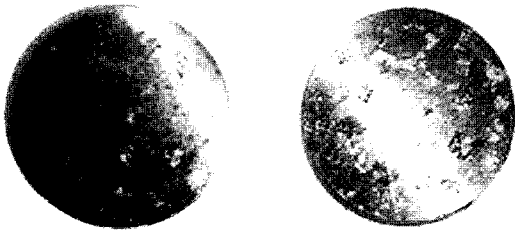


(Before decontamination) (After decontamination)

Fig. 9. Photographs before and after blasting dry ice pellets at test piece 2 of fixed contamination. (Blasting pressure : 4kg/cm^2 , 10sec., Blasting time : 30sec, Blasting distance : 20cm)

제염실험을 수행한 결과를 나타내었다. Fig. 7에 제시된 것처럼 분사시간 5초부터 30초 범위에서는 시간이 증가함에 따라 세슘의 제거효율이 증가하였고 분사시간 30초 이상에서는 더 이상의 제거효율을 증가는 없었다. 분사시간 30초에서 시편 2의 세슘 제거효율은 약 93%, 시편 4의 세슘 제거효율은 약 88%로 나타났다. 이러한 경향은 분사시간이 증가함에 따라 드라이아이스 펠렛이 오염표면에 접촉 후 곧바로 승화되지 못하고 표면에 응결된 상태로 남아 있어서 제거효율이 증가되지 않는 것으로 사료된다. 따라서 고착성 오염시편의 제염시 약 30초 정도의 분사시간이 적당한 것으로 판단된다.

분사압력 4kg/cm^2 , 분사시간 30초에서 분사거리를 변화시키면서 고착성 오염시편의 제염실험을 수행한 결과를 Fig. 8에 나타내었다. Fig. 8에 제시된 것처럼 분사거리 1cm에서 20cm까지는 분사거리가 증가함에 따라 세슘의 제거효율이 증가하였으며 분사거리 20cm에서 시편 2의 세슘 제거효율은 약 96%, 시편 4의 세슘 제거효율은 약 92%로 나타났다. 시편의 종류에 따라 세슘의 제거효율이 다른 이유는 분사압력 4kg/cm^2 , 분사시간 30초, 분사거리 20cm에서 고착성 오염시편의 제염전후의 사진을 Fig. 9 및 10에 제시하였다. Fig. 9 및 10에 나타난 것처럼 제염 전 시편표면에 고착된 검회색 오염층이 제염 후 오염층이 세척되어 얇아진 것을 볼 수 있으며 또한 시편표면이 제염 전 보다 광택이 나고 있음을 알 수 있다.



(Before decontamination) (After decontamination)

Fig. 10. Photographs before and after blasting dry ice pellets at test piece 4 of fixed contamination. (Blasting pressure : 4kg/cm^2 , 10 sec., Blasting time : 30 sec, Blasting distance : 20cm)

드라이아이스 입자들의 충격을 이용한 드라이아이스 오염제거장치의 최적 분사조건을 확립시키기 위해서 4가지 종류의 재질에 대하여 모의 시편으로 기본 실험을 수행한 결과. 비교착성 오염의 경우, 분사압력 3kg/cm^2 , 분사거리 10 cm, 분사시간 10 초 정도로 유지할 경우 100%의 제거효율을 얻을 수 있었다. 고착성 오염의 경우는 분사압력 4kg/cm^2 , 분사거리 20 cm, 분사시간 30초 정도로 유지할 경우 96% 이상의 제거효율을 얻을 수 있었다.

향후, 여러 오염핵종을 다양한 방법으로 오염시켜 제조한 모의오염시편과 실제 고방사능 핫셀내에서 원격으로 고방사성물질로 오염된 핵물질 취급장치에 대하여 드라이아이스 오염제거장치의 제염기술에 대한 연구가 이루어져야 할 것으로 본다.

IV. 결 론

표면에 고착된 오염물을 제거하는 새로운 방안으로서 개발된 드라이아이스오염 제거장치의 최적 제염조건을 확립시키기 위한 실험을 수행하였다. 4가지 종류의 재질에 대하여 모의 시편으로 기본 실험을 수행한 결과 비교착성 오염의 경우, 분사압력 3kg/cm^2 , 분사거리 10 cm, 분사시간 10초 정도로 유지할 경우 제거효율을 얻을 수 있었다. 반면에 고착성 오염의 경우는 분사압력 4kg/cm^2 , 분사거리 20 cm, 분사시간 30초 정도로 유지할 경

우 92~96%의 제거효율을 얻을 수 있었다. 본 기술을 물세척이 불가능한 고방사성 환경인 핵연료 물질을 취급하는 핫셀내에서 사용한다면 매우 좋은 효과를 얻으리라고 전망된다.

참 고 문 헌

1. 류정동, 박광현, 이법식, 김양은 : 드라이 아이스 눈 입자 세척법을 이용한 표면 방사성 오염물 제염, 한국원자력학회 '99 춘계학술발표회 논문집, 1999.
2. Spur, G., Uhlmann, E. and Elbing F. : Dry ice Blasting for Cleaning : Process, Optimization and Application, *WEAR*, Vol. 233-235, 402-411, 1999.
3. Archibald K. E. : CO₂ Pellet Blasting Literature Search and Decontamination Scoping Tests Report, WINCO-1180, 1993.
4. Tripp, J. L. : Criteria and Evaluation of Three Decontamination Technique, WINCO-1187, 1994.
5. Demmer, L. : Development of Simulated Contamination(SIMCON) and Evaluation of Three Decontamination Technique, WINCO-1188, 1994.
6. Benson, C. E., Parfitt, J. E. and Patton, B. D. : Decontamination of Surfaces by Blasting with Crystals of H₂O and CO₂, ORNL/TM-12911, 1995.
7. Aldridge, T. L., Aldrich, L. K. and Bowman, E. V. : CO₂ Pellet Decontamination Technology at Westinghouse Hanford, CONF-940511, 1994.
8. Foster, C. A. and Fisher, P. W. : Advanced Turbine/CO₂ Pellet Accelerator, CONF-940527-1, 1994.
9. Resnick, A. M. : The ROVCO₂ Surface Decontamination System, DOE/MC/30165-5356, 1996.
10. 박장진 : 고방사성 핫셀내 핵물질 가공장비 유지보수 장비 개발, KAERI/RR-2062/99, 2000.