

황산-세륨 제염법에 의한 Inconel-600 및 304 Stainless steel 산화막 용해 특성

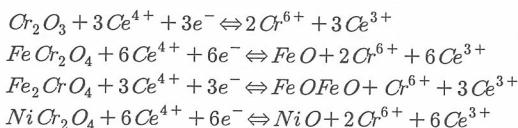
이정준, 문제권, 이근우

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

jjlee@kaeri.re.kr

원자력 발전소에서 교체된 증기발생기(Steam Generator; SG)의 전처리 제염 기술은 작업시 폐폭을 줄이기 위해 SG의 방사선 준위를 낮출 목적으로 적용되어지며, 제염대상으로는 SG 내부의 수실과 세관 내부의 부식 산화물에 누적된 방사핵종이다. 제염 기술로는 물리적 방법, 전기화학적 용해 방법, 화학적 용해방법 등이 개발 및 적용되어지고 있다.

본 연구에서는, 금속 제염기술로서 대표적인 황산-세륨(S-C) 제염법의 SG 전처리 제염으로서 적용가능성을 조사하였다. S-C 제염은 저농도(2~5 mM)의 Ce⁴⁺를 황산용액(0.25 M)에 혼합하여 사용하는데, Cr의 산화와 Fe 및 Ni의 환원 반응이 동시에 가능하여 많이 사용되고 있다. 아래의 반응식에 S-C 제염의 산화 환원반응을 소개하였다.



SG의 수실과 세관의 구성재질인 SUS와 Inconel을 시편으로 하여 autoclave를 이용하여 인위적으로 부식산화막을 생성시킨 다음(270°C, 55 atm, 72시간), Ce⁴⁺ 농도 및 온도를 변화시켜 가며 제염실험을 실시하여, 제거된 산화물의 양(시간에 따른 시편의 중량감소)을 측정함으로써 기초적인 실험변수에 대하여 파악하였고, 실제 적용에 필요한 공정조건을 도출하였다. Table 1에 실험에 사용한 시편의 개요와 실험조건 등을 나타내었다.

먼저, Ce⁴⁺ 농도의 영향을 조사한 실험 결과를 Fig. 1에 나타내었다. 금속 재질에 상관없이 농도에 비례하여 제거되는 정도가 증가하는 것으로 나타났다. SUS의 경우, 2, 3.5 mM의 농도조건에서 1-2시간 경과 후에 거의 변화가 없는 것으로 나타났고, 5 mM에서 2시간 동안 약 50%가 제거되고 이후에도 산화물이 계속적으로 제거되는 경향을 보였다. 10 mM의 경우, 5 mM의 경우보다 제거속도는 빠르게 나타났으나, 제염시간을 6시간으로 고려한다면, 5 mM, 10 mM 모두 90% 이상의 제거율을 보이는 것으로 파악되었다. Inconel의 경우, 산화물이 제거되는 속도는 모든 농도 조건에서 SUS에 비해 낮은 경향을 보였다. 제염시작 후 2시간 이내에는 3.5, 5, 10 mM에서의 산화물 제거속도는 거의 유사하게 나타났다. 그러나, 6시간을 기준으로 비교하면, 3.5, 5, 10 mM에서 각각 63, 75, 86% 제거율을 보였다. SUS와 Inconel의 제염에 필요한 Ce⁴⁺ 농도는 제염시간을 고려하여 5 mM 또는 10 mM이 적절할 것으로 판단된다.

S-C 제염법의 적절한 반응온도를 선정하기 위하여, 앞서 조사한 Ce⁴⁺ 농도 조건을 5 mM로 정하여 60, 70, 80, 90°C에서의 산화물 제거 특성에 대하여 실시한 실험결과를 Fig. 2에 나타내었다. 반응온도가 높을수록 산화물 제거속도는 증가하는 것으로 조사되었다. SUS의 경우, 90°C에서 1시간에 98%가 제거되었고, 80°C에서는 2시간에 99%가 제거되는 것으로 조사되었다. Inconel의 경우, 시간에 따른 산화물 제거 속도는 모든 온도 조건에서 일정한 것으로 나타났으나, SUS에 비해 제거속도는 느린 것을 알 수 있다. 90°C에서 6시간 제염했을 때, Inconel의 산화물이 100% 가까이 제거되었다. 즉, S-C 제염법에서 Ce⁴⁺ 5 mM에서의 온도조건은 SUS의 경우 80°C 이상에서, Inconel의 경우 90°C에서 적절할 것으로 판단된다.

Table 1. Sample description and experimental conditions for metal decontamination by using S-C method

Sample type	Ce ⁴⁺ conc. (mM)	Temp. (°C)	Remarks
SUS, Inconel	2	60	0.25 M H ₂ SO ₄
	3.5	70	Solution vol. : 1.2 L
	5	80	Flow rate for circulation :
	10	90	1.0 L/min

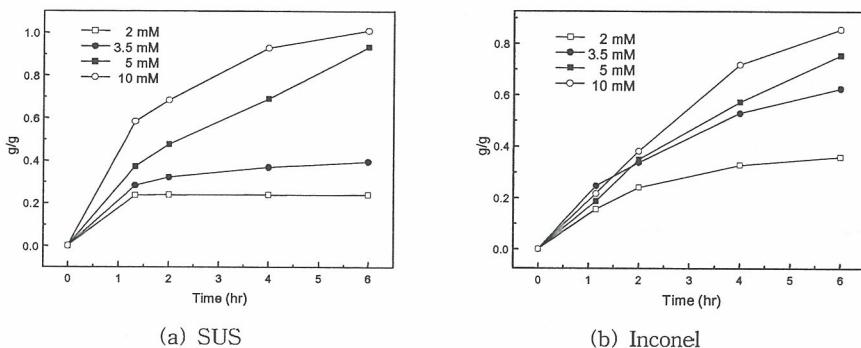


Fig. 1. Effect of Ce⁴⁺ concentration on the removal of metal oxide

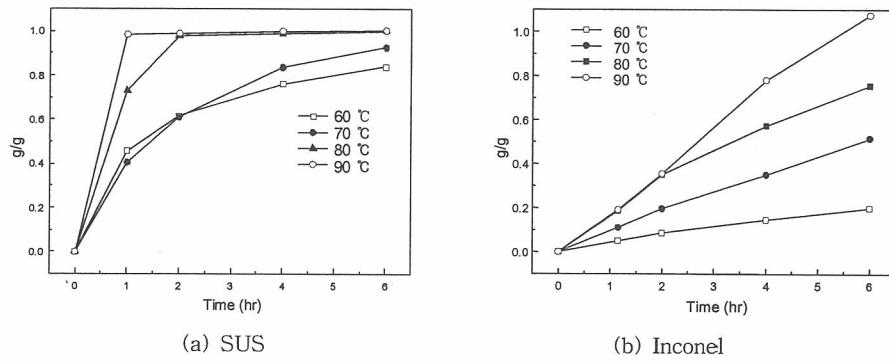


Fig. 2. Temperature effect on the removal of metal oxide

참고문헌

- [1] H. Yasunaka, 특집 원자력 플랜트에서의 제염기술 <JPDR의 해체와 제염기술>, 원자력공업, Vol. 36, No. 8, pp.53-60 (1990) (*in Japanese*)