

## 폴리머고화체의 방사선 조사에 의한 가스발생 특성 시험

이지훈, 김홍태\*, 박종길

한수원중앙연구원, 대전시 유성구 유성대로 1312번길 70

\*한국원자력안전기술원, 대전시 유성구 과학로 62

jihoon@khnp.co.kr

### 1. 서 론

원자력발전소의 방사성폐기물 중 폴리머고화체의 처분적합성 확인 및 성능입증을 위해 가스발생 시험을 수행하였다. 폴리머고화체의 방사선 분해에 의한 발생 가스는 포장물의 건전성, 처분시설 성능 영향 및 작업자의 안전성 등에 영향을 미치며 이를 입증하기 위하여 상세한 가스발생 메커니즘의 규명이 필요하다.[1,2] 발생 가스는 분석시점에 따라 가스 조성 및 발생량이 달라진다. 이러한 불확실성과 가스발생량의 과대평가를 방지하기 위해 실제 원전 폐수지 및 농축폐액 선원향을 바탕으로 폴리머고화체의 수명기간동안 방사선 조사량을 측정하는 실질적인 발생 가스 특성 평가가 요구되었다. 따라서 본 연구에서는 원전에 적용되는 폴리머고화설비의 성능 입증을 위해 폴리머고화체의 방사선분해에 의한 가스발생 특성을 규명하고 가스 발생에 따른 폴리머고화체 포장물의 건전성, 처분시설의 성능, 작업자 안전성 여부를 검토하기 위하여 가스 발생 특성 시험을 하였으며, 그 결과를 고찰하였다.

### 2. 본 론

#### 2.1 방사성폐기물 처분 기술기준

방사성폐기물 포장물에 대한 국내 규정에는 교과부 고시 제2009-37호 “중·저준위 방사성폐기물 인도규정 고시” 제15조에서 폭발성, 인화성, 발화성 물질 등을 포함한 폐기물은 적합하게 처리하여 위험성이 제거되도록 요구하고 있으며, 폐기물은 방사분해, 생물학적 및 화학적 반응에 의한 가스, 증기 및 액체를 발생시켜 포장물의 건전성이나 처분시설의 성능을 저하시켜서는 안되며, 폐기물을 취급할 때 작업자의 안전을 저해하여서는 아니 된다고 명시되어 있다. 미국은 NRC Generic Letter 81-38을 통해 유기폐기물에 대해 방사분해, 생분해, 화학반응에 의한 가스발생물을 포장물 손상, 발화/폭발 조건의 형성 관점에서 평가하도록 요구하고 있다. 또한 NRC Information Notice 84-72 “Clarification of Conditions for Waste Shipments subject to Hydrogen Gas

Generation”에서 포장물의 수소 발생량을 포장용기 자유공간 부피의 5% 이하로 제한하고 있으며, NRC Technical Position(1991)에 따르면 포장물은 자연발화, 폭발성, 유독성 물질의 처분을 금지하고 있다. 현재 중·저준위 방사성폐기물 처분시설 폐기물 인수기준에 의하면 포장물 내의 기체 발생은 포장물 용기 건전성이나 처분시설 성능을 저하시켜서는 안 된다고 규정되어 있다.

#### 2.2 폴리머고화체 가스 분석용 시험법

폴리머고화체 가스 분석용 시험은 폴리머고화체 전처리용 유리관 제작, 유리관내 폴리머고화체 시편 주입, 방사선이 조사된 폴리머 고화체의 특성평가 순으로 수행하였다. 방사선조사용 시편은 원전에서 발생하는 농축폐액 건조물을 국내 A사의 폴리머고화체로 제조하였다. 방사선 조사용 시편제작을 위하여 시편무게를 측정 후 시편은 Pyrex 유리관에 주입한 후 유리관 한쪽을 밀봉하고 진공처리하였다.(Fig. 1&2)  $10^2$  rad와  $10^4$  rad로 방사선이 조사된 폴리머 고화체의 특성평가를 위하여 발생가스의 정성분석은 가스크로마토그래프/질량분석기(6890N/5973, Agilent, USA), 정량 및 총가스 발생량 측정은 정밀가스 질량분석기(Finnigan MAT 271M, Thermo Electron, Germany)로 수행하였다

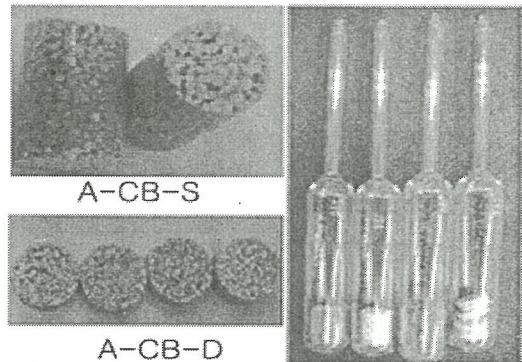


Fig. 1. Solidified polymer waste specimen for irradiation (A-CB-S : cylinder type liquid concentrate polymer, A-CB-D : disk type liquid concentrate polymer).

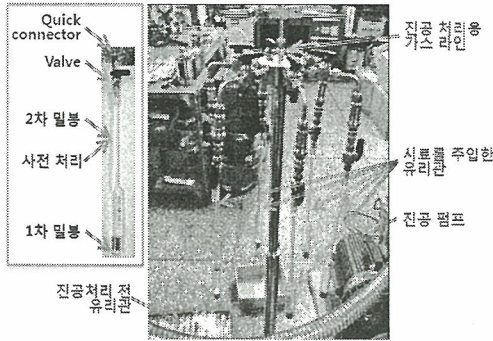


Fig. 2. Vacuum sealing of the specimen to pyrex glass tube.

### 3. 실험 결과

원전의 농축폐액 폴리머 고화체에 대하여  $10^2$  rad와  $10^4$  rad의 방사선을 조사한 후 가스발생 특성을 평가하였으며 실험 결과는 Table 1과 2에 제시되었다. 방사선 조사에 의하여 원전 농축폐액 폴리머고화체에서 발생된 가스 조성은 증기, 질소 및 산소 등이 주요 성분이었으며 처분장 안전성 측면에서 고려되는 수소, 메탄, 탄화수소류 등이 발생되었다.  $10^2$  rad를 조사한 후 수소나 메탄 등 성분은 전체의 0.09 %, 0.01 %,  $10^4$  rad를 조사한 후 수소나 메탄 등 성분은 전체의 0.17 %, 0.02%이 내로 매우 미미한 것으로 나타났다. 발생량 측면에서 볼때도  $10^2$  rad 조사시 총가스발생량은 166.5  $\mu$  L-atm/g, 수소발생량은 0.15  $\mu$  L-atm/g,  $10^4$  rad 조사시 165.9  $\mu$  L-atm/g, 수소발생량은 0.29  $\mu$  L-atm/g으로 발생하였다.  $10^2$  rad시와  $10^4$  rad 조사시 발생 특성을 비교해 보면 총가스발생량 측면에서는 큰 차이를 보이지 않았으나 수소발생량 측면에서는  $10^4$  rad일 경우가 2배 많이 발생되었다. 발생된 가스발생량과 수소발생량을 200L 처분드럼으로 환산하여 계산할 경우에는  $10^2$  rad 조사시는 각각 0.033 $m^3$ , 0.3x10 $^{-4}$  $m^3$ ,  $10^4$  rad 조사시는 0.033  $m^3$ , 0.58x10 $^{-4}$  $m^3$ 으로 산정되었다. 현재 사용중인 국내 원전의 철제드럼은 폴리머고화체내 가스발생으로 드럼 상부 자유공간으로 배출된 가스의 영향을 최소화하기 위해 드럼과 드럼 뚜껑사이의 가스켓을 통해 가스가 배출되게 설계되었으므로 드럼의 건전성은 유지될 것으로 판단된다. 또한 상기 조건 하에서 시설내부로 배출된 가스량은 국내 원전의 철제드럼의 건전성에 사일로 배기통로를 통하여 사일로 외부로 배출된 후 암반의 틈새를 통하여 확산되기 때문에 처분시설내 가스발생으로 인한 가압현상은 발생되지 않을 것으로 판단되었다.

Table 1. Gas Generation Characteristics of Polymer Waste Forms after  $10^2$ rad irradiation.

기름 = 1.5 cc, 높이 = 2.3 cm, 표면적 = 14.4 cm <sup>2</sup> , 무게 = 3.8 g					
성분	농도 (% mole fraction)	전조 가스 농도 (% mole fraction)	가스량 ( $\mu$ L-atm)	단위 표면적당 가스량 ( $\mu$ L-atm / cm <sup>2</sup> )	단위 무게당 가스량 ( $\mu$ L-atm / g)
수소 (H <sub>2</sub> )	0.09	0.23	0.9	0.06	0.15
메탄 (CH <sub>4</sub> )	0.01	0.02	0.1	0.01	0.01
탄화수소 (H <sub>2</sub> C)	0.03	0.07	0.3	0.02	0.05
일산화탄소 (CO)	0.29	0.74	2.8	0.20	0.49
이산화탄소 (CO <sub>2</sub> )	0.25	0.87	3.7	0.26	0.63
산소 (O <sub>2</sub> )	9.26	23.75	90.4	6.50	15.59
질소 (N <sub>2</sub> )	28.77	72.96	277.9	19.95	47.92
아르곤 (Ar)	0.49	1.24	4.7	0.35	0.81
기타 성분	0.01	0.02	0.1	0.01	0.02
합 (H <sub>2</sub> O)	60.57	/	(885.0)	(45.72)	(100.87)
합	100.0	100.0	965.4	67.2	166.5

Table 2. Gas Generation Characteristics of Polymer Waste Forms after  $10^4$ rad irradiation.

기름 = 1.5 cm, 높이 = 2.45 cm, 표면적 = 15.1 cm <sup>2</sup> , 무게 = 5.6 g					
성분	농도 (% mole fraction)	전조 가스 농도 (% mole fraction)	가스량 ( $\mu$ L-atm)	단위 표면적당 가스량 ( $\mu$ L-atm / cm <sup>2</sup> )	단위 무게당 가스량 ( $\mu$ L-atm / g)
수소 (H <sub>2</sub> )	0.17	0.39	1.5	0.11	0.29
메탄 (CH <sub>4</sub> )	0.02	0.04	0.1	0.01	0.03
탄화수소 (H <sub>2</sub> C)	0.07	0.14	0.6	0.04	0.11
일산화탄소 (CO)	0.91	1.37	5.5	0.36	1.51
이산화탄소 (CO <sub>2</sub> )	0.55	1.19	5.1	0.34	0.91
산소 (O <sub>2</sub> )	9.07	19.61	84.3	5.59	15.05
질소 (N <sub>2</sub> )	34.87	75.26	324.0	21.50	57.96
아르곤 (Ar)	0.60	1.29	5.0	0.37	0.99
기타 성분	<0.00	<0.00	<0.0	<0.00	<0.00
합 (H <sub>2</sub> O)	53.74	/	(429.4)	(29.12)	(83.18)
합	100.0	100.0	929.2	61.65	165.94

### 4. 결론

원전의 농축폐액 폴리머 고화체에 대하여 방사선조사에 따른 발생 가스 성분 및 발생량을 측정하였다.  $10^2$  rad와  $10^4$  rad로 조사하여 가스 발생 성분과 가스 발생량을 분석한 결과 두 조건 모두 수소, 탄화수소류 등 처분장의 안전성에 영향을 미칠 수 있는 성분 들은 검출되었으나 가스 분율이나 가스 발생량 측면에서 처분장에 미치는 영향은 미미한 것으로 판단되었다. 향후 농축폐액 시료와 원전 폐수지의 폴리머 고화체에 대해서도 미국 NRC에서 제시한 바와 같이  $10^9$  rad까지 조사하여 가스발생에 대한 처분장 안전성 평가를 심도있게 평가할 계획이다.

### 5. 참고문헌

- [1] Gas Generation in Radioactive Wastes -MAGGAS Predictive Life Cycle Model, WM'06 Conference, 2006.
- [2] UCRL-ID-138352, Hydrogen Generation in TRU Waste Transportation Packages, 2000.