

방사선 조사선량에 따른 이온교환수지 폴리머고화체 가스발생 특성 평가

이지훈, 박승철, 양호연

한수원중앙연구원, 대전시 유성구 유성대로 1312번길 70

jihoon@khnp.co.kr

1. 서론

원전의 운전중에 발생하는 방사성폐기물 중 농축폐액이나 폐수지는 시멘트 또는 파라핀을 이용하여 고화처리하여 왔으나 부피의 증가 및 처분의 부적합성 등으로 인하여 대체 고화방법이 요구되었다. 이에 따라 폴리머를 이용한 고화방법이 개발 되었다. 폴리머고화체는 방사선 조사에 의해 가스가 발생할 가능성이 있으므로 이에 대한 검토가 필요하다는 의견이 제시되었다. 방사성폐기물 포장물에 대한 국내 규정인 원자력안전위원회 고시 제2011-53호 “중·저준위 방사성폐기물 인도규정 고시” 제15조에서 폭발성, 인화성, 발화성 물질 등을 포함한 폐기물은 적합하게 처리하여 위험성이 제거되도록 요구하고 있다.

본 연구에서는 이온교환수지 폴리머 고화체를 10^2 , 10^4 , 10^6 , 10^8 및 10^9 rad로 조사한 후 가스 발생 성분 분석, 각 성분의 가스 발생량, 총가스 발생량 및 가연성가스의 폭발성에 대한 특성을 조사하였다.

2. 실험 방법

폴리머고화체 가스 분석용 시험은 폴리머고화체 전처리용 유리관 제작, 유리관내 폴리머고화체 시편 주입, 방사선이 조사된 폴리머 고화체의 특성평가 순으로 수행하였다. 방사선조사용 시편은 원전에서 발생하는 이온교환수지를 국내 K사의 폴리머고화체로 제조하였다. 방사선 조사용 시편 제작을 위하여 시편무게를 측정된 후 시편은 Pyrex 유리관에 주입한 후 유리관 한쪽을 밀봉하고 진공처리하였다.(Fig. 1) 시편은 한국원자력연구소 정읍 방사선과학연구소에 위탁하여 10^2 , 10^4 , 10^6 , 10^8 , 10^9 rad로 방사선 조사하였고 조사 후 1주일이 지난 후 분석을 실시하였다. 가스 분석은 정밀가스 질량분석기(Precision Gas Mass Spectrometer, Gas/MS)와 사중극자 질량분석기(Quadrupole Mass Spectrometer, QMS)를 이용하여 정성 및 정량 분석을 하였다. 가스 압력 측정은 교정된 Baratron gauge를 이용하였으며 시

편은 실린더 모양과 디스크 모양이며 부피와 무게가 다르므로 각 성분의 물분율을 단위질량당 가스량으로 나타내었다.

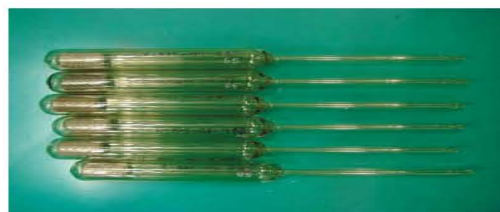


Fig. 1. Pyrex tube for gas collection after irradiation.

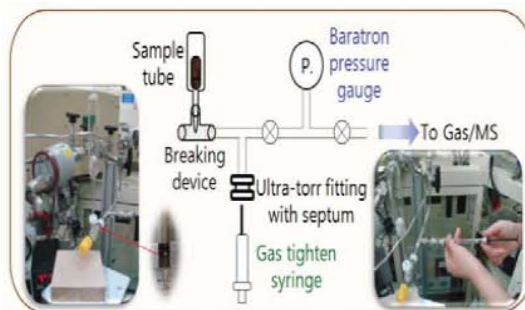


Fig. 2. Gas measurement system.

3. 실험 결과

3.1. 가스 성분별 발생 특성/분율 평가

양이온교환수지(CR), 음이온교환수지(AR) 및 혼상수지(MR)에 10^2 , 10^4 및 10^6 rad의 방사선을 조사한 결과 각각 0.145~0.194 cc/g, 0.108~0.129 cc/g, 0.111~0.128 cc/g의 낮은 가스 발생량을 보였다. 반면에 10^8 rad의 방사선조사에서는 각각 0.154 cc/g, 0.256 cc/g, 0.247~0.428 cc/g로 다소 가스발생량이 증가되는 경향을 보이며 10^9 rad의 방사선조사에서는 각각 14.072 cc/g, 2.04 cc/g, 4.78~17.16 cc/g로 급격한 가스발생량의 증가를 보였다. 양이온수지(K-CR-S)의 경우 10^2 rad에서 10^6 rad까지는 수분이 약 90% 이상 검출되었고 10^8 rad와 10^9 rad에서 급격히 수분량이 줄어들었고 10^9 rad에서 이산화탄소가 42.5%, 수분(18.2

%)과 수소가스(15.5 %) 순으로 CO, H₂O, CH₄과 HCs등 기타성분 등이 검출되었고 총가스 발생량은 약 14 cc/g이었다. 음이온(K-AR-S)도 마찬가지로 10² rad에서 10⁶ rad까지는 수분이 약 87 % 수준으로 검출되었고 10⁸ rad와 10⁹ rad에서 급격히 수분량이 감소되었다. 10⁹ rad에서 수소가스가 69 % 이산화탄소 23 %, 일산화탄소 3.7 %, 탄화수소, 수분, 메탄가스 등이 검출되었으며 총가스 발생량은 약 2 cc/g이었다. 혼상수지(K-MR-S) 역시 수분의 변화는 양이온, 음이온의 경향과 비슷하며 10⁹ rad에서 이산화탄소가 90 %, 수소가스 11.9 %로 나머지 성분들은 Fig. 3과 같다. 총가스 발생량은 평균 11 cc/g이었다. CR, MR 및 AR의 시편에서 가스발생량은 Fig. 4에서 보듯이 10² rad에서 10⁶ rad까지는 3성분 모두 약 0.1 cc/g 수준이었고 10⁹ rad에서 양이온(K-CR-S) 14 cc/g > 혼상수지(K-MR-S) 11.9 cc/g > 음이온(K-AR-S) 2 cc/g의 순이었다.

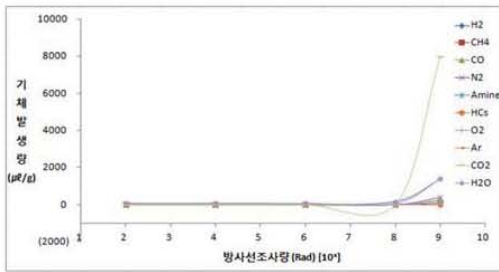


Fig. 3. Gas composition and generation rate of mixed resin(K-MR-S).

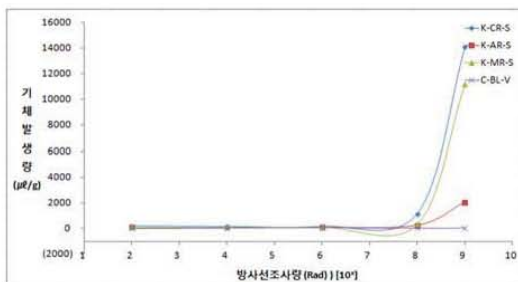


Fig. 4. Gas generation rate of cation resin (K-CR-S)/anion resin (K-AR-S)/mixed resin according to irradiation rate.

3.2. 혼상수지 폴리머고화체(K-MR-S)/혼상 이온교환수지(C-BR-P)/폴리머자체(K-PO-S) 총 가스 발생량 비교평가

폴리머자체(K-PO-S)는 10² rad에서 10⁶ rad까지는 수분이 약 84 % 수준으로 검출되었고 10⁸ rad와 10⁹ rad에서 급격히 수분량이 줄어들었고 10⁹

rad에서 수소가스가 80 %, 이산화탄소가 11 %, 수분(3.5 %) 순으로 CO, CH₄ 및 탄화수소등이 검출되었고 총가스 발생량은 약 2.3 cc/g이었다. 총가스발생량은 10² rad에서 10⁶ rad까지는 MR, BR 및 PO 수지는 각각 약 0.1 cc/g 수준이었고 10⁸ rad의 경우 Fig 5에서 보듯이 혼상수지폴리머(K-MR-S)와 이온교환수지자체(C-BR-P)에 비하여 폴리머자체(K-PO-S)의 가스발생량이 상대적으로 적음을 알 수 있다.

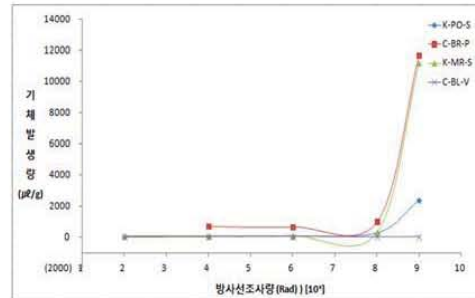


Fig. 5. Gas generation rate of polymer (K-PO-S)/mixed resin(C-BR-P) /mixed resin polymer(K-MR-S) according to irradiation rate.

4. 결론

원전의 이온교환수지 폴리머 고화체에 대하여 방사선조사에 따른 발생 가스 성분 및 발생량을 측정하였다. 10² rad부터 10⁸ rad로 조사하여 가스 발생 성분과 가스 발생량을 분석한 결과 수소, 탄화수소류 등 처분장의 안전성에 영향을 미칠 수 있는 성분 들은 검출되었으나 가스 분율이나 가스 발생량 측면에서 처분장에 미치는 영향은 미미한 것으로 판단되었다. 그러나 10⁹ rad에서는 가스발생량이 급격히 증가되는 양상을 보였다. 향후 국내원전의 이온교환수지 재고량과 중저준위 처분시설에 인도될 수 있는 이온교환수지의 누적 선량에 따른 폴리머고화체의 가스발생특성을 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.