

방사성 폐기물의 방사선 분해에 의한 기체 발생 평가

Assessment of Radiolytic Gas Generation from Low- and Intermediate-Level Radioactive Wastes

박주완, 윤정현, 최희주, 김창락

한전 원자력환경기술원
대전광역시 유성우체국 사서함 149호

요 약

방사성 폐기물 처분장에서의 기체 발생 요인으로서 유기물의 미생물 분해, 각종 금속재의 부식 및 방사선에 의한 분해가 고려되고 있다. 기체 발생 요인중 방사선 분해에 의한 수소기체 발생을 예측하기 위한 모델을 구성하고, 국내 원전에서 사용되는 고화체 및 포장용기에 적용하기 위한 전산프로그램을 작성하였다. 작성된 프로그램에서는 파라핀 고화체 드럼의 적재에 따른 감마에너지 흡수 효과가 고려되었다. 고화체 및 포장용기별로 방사선 분해에 의한 수소기체 발생량을 계산한 결과 시멘트 고화체, 고건전성 용기, 파라핀 고화체의 순으로 발생량이 많은 것으로 나타났다.

Abstract

Corrosion of metal, microbial degradation of organic materials, and radiolysis are considered as the principal mechanisms to address gas generation from radioactive waste repositories. The aim of the paper is to present an assessment on radiolytic hydrogen gas generation. A computer program for calculating rates and total volumes of hydrogen gas generated in radwaste packages is developed. Interactions among adjacent waste packages are included in the program by considering the contribution to the absorbed gamma dose rate when a large number of waste packages are emplaced together. The resulting cumulative H₂ gas generation from cement-solidified drum, high integrity container, and paraffin-encapsulated liquid concentrate drum shows an increase in the same order, although it is not likely to be significant amount.

1. 서론

방사성폐기물 처분장에서의 기체 발생 요인으로는 유기물의 미생물 분해, 각종 금속재의 부식 및 방사선에 의한 각종 재료의 분해가 고려되고 있다. 이러한 기체 발생 메카니즘중 방사선 분해에 의한 수소기체 발생량은 유기물의 분해나 금속부식에 의한 기체 발생량에 비해 상대적으로 많지는 않으나 원전 내에서의 취급, 저장, 처분장으로의 운반 및 처분장 폐쇄 전까지의 기간중 포장용기의 건전성 확보 측면에서도 검토할 필요가 있다. 방사선에 의한 각종 재료의 열화 및 기체성분의 생성에 관한 연구는 비교적 많이 수행되었는데, 흡수에너지와 방사선 분해와의 관계는 G-값(기체발생상수)으로 정량화되며, 처분장 조건하에서 방사선에 의해 분해되는 것으로서는 물, 시멘트, 플라스틱, 아스팔트 등이 고려되고 있다. 국내 원전에서 발생하는 방사성폐기물로는 시멘트, 파라핀, 콘크리트 고화체 등이 있으며, 고리 제1발전소에서는 1996년 부터 폐수지 건조설비를 도입하여 폐수지를 탈수, 건조처리한 후 고건전성용기(HIC)에 보관하고 있다.

본 논문에서는 고화체나 고화용 결합재의 분해에 의한 수소기체 발생의 예측을 위하여 사용될 수 있는 모델을 구성하고, 국내 원전에서 사용되는 고화체 및 포장용기에 적용할 경우 예상되는 문제점을 파악하여 보다 신뢰성있는 예측을 위한 향상된 전산프로그램을 작성하였다. 개선된 프로그램에서는 파라핀 고화체 드림의 적재에 따른 감마에너지 흡수 효과가 고려되었다. 작성된 프로그램을 이용하여 시멘트고화체, 폐수지용 고건전성용기 및 농축폐액의 파라핀 고화체로부터의 수소기체 발생량을 계산하고 그 영향을 평가하였다.

2. 방사선 분해 기체 발생 예측모델

방사선 분해 기체 발생은 주로 방사성폐기물 내에 존재하는 핵종의 붕괴에너지에 의한 것이며, 생성된 기체량은 대략 고화체내에 흡수된 에너지량에 선형적으로 비례한다. 일반적으로 기체발생과 에너지 흡수사이의 관계는 G-값으로 표시되며, 이는 흡수에너지 100 eV당 분해 혹은 생성된 분자수로 정의된다. 대표적인 고체 폐기물 및 고화체의 수소기체에 대한 G-값은 표 1과 같다[1]. 방사능 붕괴 과정에서 고화체 내에 흡수되는 에너지량은 방사능, 방사성폐기물의 특성(밀도, 감마선 감쇠, 흡수계수) 및 고화체/포장용기의 기하학적 형상의 함수이며, 방사성폐기물에 흡수되는 총 에너지는 알파, 베타 및 2차 방사선(예를 들면 X-선) 붕괴에너지와 감마선 에너지중 방사성폐기물 매질내 흡수량의

함이다. 보통 알파, 베타 입자에 의한 에너지는 고화체내에 모두 흡수된다고 가정하며, 감마선에 의한 에너지 흡수량은 고화체와 감마선 사이의 상호작용 정도와 감마선이 고화체를 통과하는 길이에 관계된다. 그 상호작용의 정도는 감마선 질량흡수계수(gamma ray mass absorption coefficient)로 표시되며, 이는 흡수물질의 전자밀도와 감마선 에너지의 함수이다. 감마선 통과 거리는 고화체내의 감마 점선원이 전체 고화체에 미치는 영향을 평가하기 위해 대부분 ISOSHIELD, QAD-CG 등과 같은 차폐계산용 전산코드를 사용하여 계산된다. 결국 주어진 시간에서의 수소발생량(체적)은 모든 방사성 핵종에 의한 총 누적 흡수선량을 구한 후 G-값에 총 흡수선량과 방사성폐기물의 질량을 곱한 것에 비례한다.

이러한 방사선 분해 기체발생 예측모델을 적용하여 전산 프로그램을 작성하였다. 프로그램에서는 통상 원전 방사성폐기물에 포함된 46개의 베타, 감마 방출 핵종과 U-235, U-238, Pu-238, Pu-239의 4가지 알파 붕괴 핵종으로부터 고화체내로의 붕괴에너지 축적을 계산할 수 있다. 누적 흡수선량을 계산하는 데 필요한 감마에너지 흡수분률은 이를 방사성폐기물의 밀도와 감마에너지의 함수로 나타낸 미국 DOE 모델에서의 결과를 준용하였다[2]. 이러한 감마에너지 흡수분률 상관식의 적용타당성 검증을 위해 MCNP4B코드를 사용하여 파라핀 고화체 드럼에 대한 감마에너지 흡수분률을 계산하고 DOE 모델과 비교하였다. 그림 1에서 알 수 있는 바와 같이 DOE 모델에서의 흡수분률은 대체적으로 MCNP4B계산 결과와 유사한 경향을 보이며 약간 높은 값을 보이고 있다. 파라핀 고화체 드럼에서의 평균 감마에너지는 대략 0.84 MeV 정도이므로 DOE 모델에서의 함수식을 적용할 경우 약간 보수적인 결과를 줄 것으로 예상된다. 한편, 많은 폐기물 드럼이 함께 저장 또는 적재되어 있을 때의 인접한 포장용기 사이의 상호작용으로 인해 감마에너지 흡수율이 증가하게 된다. 이 상호작용은 용기의 적재배열과 처분시 용기사이 채워지는 뒷채움재의 종류에 따라 다르게 나타나는데, 본 계산을 위하여 설정된 용기의 적재배열은 일반적인 4*4*3 배열을 가정하였다. 이 때 감마선에너지에 따라 MCNP4B 코드로 계산된 드럼내 최대 에너지 흡수분률을 DOE 모델에서의 함수식을 적용한 결과와 비교하여 그림 2에 나타내었다. 파라핀 고화체 드럼에서의 평균 감마에너지 범위에서 드럼 적재시의 고화체내의 감마에너지 흡수분률은 단일 드럼인 경우에 비해 약 1.5배 정도 높게 나타나며 이를 기체발생 예측모델에서 보정하였다. 본 프로그램으로는 포장용기당 시간에 따른 수소기체 발생농도, 누적 발생량 및 발생률 뿐만 아니라 밀폐된 포

장용기내에서의 허용 수소기체 농도에 도달하는데 걸리는 시간을 역으로 계산하는 것도 가능토록 하였다.

3. 기체 발생 평가 및 검토

시멘트고화체의 기체발생원은 주로 고화매질로 사용된 시멘트내에 혹은 결합재로 사용된 유기물질내에 포함된 물이며, 물의 방사선 분해로 인해 수소기체가 발생한다. 시멘트고화된 폐수지 고화체에 대한 G-값은 표 1에 나타난 바와 같이 0.19~0.24이다[2]. 방사선분해 기체발생 예측모델을 이용하기 위하여 G-값은 농축폐액과 폐수지 모두에 보수적으로 0.24를 적용하였다. 그림 3은 폐수지 시멘트고화체에 대한 드럼당 방사능 농도별 누적 흡수선량을 나타낸 것으로 고화체내 핵종조성은 폐수지 시멘트고화체의 추정치를 이용하였다[3]. 예상되는 바와 같이 흡수선량은 드럼당 방사능량에 비례하였으며, 방사선 분해에 의한 수소기체 발생량은 흡수선량에 비례하므로 발생량은 드럼당 방사능량이 감소함에 따라 감소하였다. 시멘트고화체로부터의 방사선 분해에 의한 수소기체 발생량은 비교적 적은 편이며, 그림 4에서와 같이 포장용기내의 수소기체 농도도 상당히 낮았다.

이온교환수지와 같이 산소를 별로 포함하지 않은 유기물질로부터 생성된 방사선 분해 기체량의 90%이상은 수소가 차지한다. 폐수지로부터의 수소기체 발생은 폐수지내에 포함된 물의 방사선 분해와 더불어 폐수지 자체의 방사선 조사시 탄소와 수소분자사이의 결합이 끊어짐에 의한 것이다. 탈수(dewatered) 폐수지는 건조한 것으로 보여도 50~66%의 수분을 포함하고 있으며 G-값은 팽윤상태에서 0.1~0.6을 가진다. 건조(dried) 폐수지의 경우 G-값은 보편적으로 팽윤상태의 1/10정도의 값을 갖는다. 폐수지가 차지하는 체적과 폐수지내의 내부 공극에 의한 체적을 고려하여 발생된 수소기체 농도를 계산하는 데 사용되는 총 공극의 체적을 계산하였으며, 폐수지에 대한 G값은 양이온 수지와 음이온 수지가 혼합된 경우 각각 무게비로 가중평균한 값을 사용하였다. 그림 5는 건조 폐수지 저장에 사용되고 있는 고건전성용기(HIC)에 대해 상기 G-값을 각각 적용한 경우의 수소기체의 발생량을 나타낸 것이다. 폐건조수지는 드럼내에 1.14 m³까지 채우는 것으로 가정하고(드럼 내부 체적은 1.27 m³), HIC내의 공극율은 폐수지가 용기내에 충전된다고 가정하여 0.35를 적용하였다. 이 그림에서 알 수 있는 바와 같이 포장용기 밀봉후 1,000년 까지의 기체 누적량은 표준상태(0°C, 1기압)에서 용기당 0.45~4.5 ℓ의 범위를 갖

는 것으로 나타났다. 그러나 HIC용기에 설치된 통기장치(passive vent)를 통해 누적된 기체가 누출되므로 처분장에서의 기체발생량은 이보다 훨씬 적은 값이 될 것이다.

파라핀과 같은 포화 탄화수소는 대부분 방사선 분해에 의한 수소기체를 발생시키며 G-값은 2~6 정도인데 그 발생 메카니즘은 페이온교환수지와 같이 방사선 조사시 탄소와 수소분자사이의 결합이 끊어짐에 의한 것이다. 본 논문에서는 국내에서 사용되고 있는 DOT-17H(200 l) 드럼내의 파라핀 고화체에 대해 수소기체 발생량을 추정하였다. 파라핀 고화체 드럼의 적재상태를 고려한 감마에너지 흡수분율 보정치의 영향을 보기 위해 방사선 기체발생 예측모델에 보정치를 적용한 경우와 적용하지 않은 경우 각각에 대해 수소기체 발생량 및 발생률을 그림 6에 나타내었다. 주입 파라핀 양은 45 kg을 사용하고 드럼내의 총 방사능은 고리 제2발전소의 방사성폐기물 드럼 핵종분석 장치로부터의 드럼당 핵종분석 이력을 평균한 값을 사용하였다. 그림 6에서 알 수 있는 바와 같이 감마에너지 흡수분율 보정치를 적용한 경우가 발생량이 약 12~15% 정도 증가되고 있다. 드럼 밀봉후 1,000년 까지의 수소기체 누적 발생량은 용기당 5~6 l의 범위를 가지며, 기체발생률은 0.001~0.008 cm³/hr정도로서 시간에 따라 감소한다. 고화체 및 포장용기별 방사선 분해에 의한 밀봉후 1,000년간 수소기체의 누적발생량은 표 2와 같다. 그러나 발생된 수소기체는 포장용기 외부로 누설되어 실제 누적되지는 않는다. 표에서 알 수 있는 바와 같이 시멘트 고화체, 고건전성 용기, 파라핀 고화체의 순으로 발생량이 많은 것으로 나타났다.

4. 결 론

방사성폐기물 처분장에서 폐기물의 방사선분해에 의한 수소기체 발생량을 예측하기 위한 모델을 구성하고, 이를 전산 프로그램화하여 국내 원전에서 발생하는 시멘트 고화체, 고건전성용기 및 파라핀 고화체에 적용한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 처분후 1,000년간의 방사선 분해에 의한 수소기체 발생량은 포장용기당 대략 1~6 l의 정도이며, 시멘트 고화체, 고건전성 용기, 파라핀 고화체의 순으로 많은 것으로 나타났다.
- 파라핀 고화체에 드럼 적재에 따른 감마에너지 흡수분율 보정치를 적용한 경우 발생량이 약 15% 정도 증가하는 것으로 나타났다.
- 개발된 전산프로그램으로 방사성폐기물 포장용기당 방사선분해로 인한 기체발생량

을 예측가능하며, 이는 금속부식 및 미생물분해에 의한 기체 발생량 예측과 함께 처분 볼트(vault) 혹은 처분 동굴내 포장용기의 배치 등 처분장의 설계 및 성능평가에 활용될 수 있다.

참고문헌

1. B. Siskind, Gas Generation from Low-Level Radioactive Waste : Concerns for Disposal, BNL-NUREG-47144 (1992)
2. J.E. Flaherty et al., "Calculational Technique to Predict Combustible Gas Generation in Sealed Radioactive Waste Containers", GEND-041 (1986)
3. 김창락 외, "처분안전성연구, 제3권 선원항 평가 및 검증", KAERI-NEMAC/RR-116/94 (1994)

표 1. 수소기체에 대한 G-값

Waste Form	G(H ₂)
• Portland cement	0.03~0.35
• saturated hydrocarbon (paraffins)	2~6
• ion-exchange resin	0.3~0.6
• cement-solidified ion exchange resin	0.19~0.24
• cement-solidified filter sludge (mixed "powdex" resins)	0.11~0.17

표 2. 방사선분해에 의한 수소기체 누적발생량 (밀봉후 1,000년간)

고화체/포장용기	발생량 (l /package)	내부 형태
• 시멘트고화체	0.5~0.6	폐수지+시멘트
• HIC	0.45~4.5	폐건조 수지
• 파라핀 고화체	5~6	파라핀왁스+ 건조 농축폐액

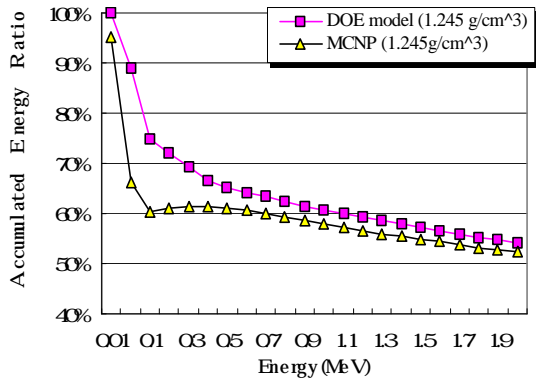


그림 1. 파라핀고화체에 대한 감마에너지 흡수분률

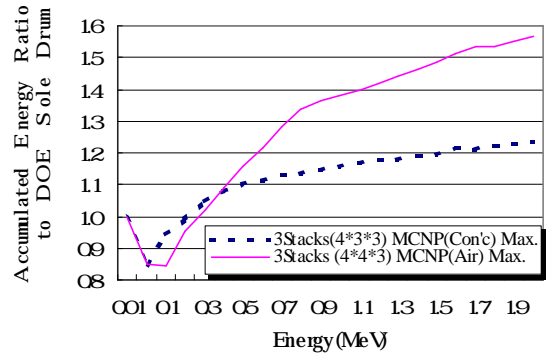


그림 2. 드럼 적재시 파라핀고화체 내부의 누적 감마에너지 흡수분률

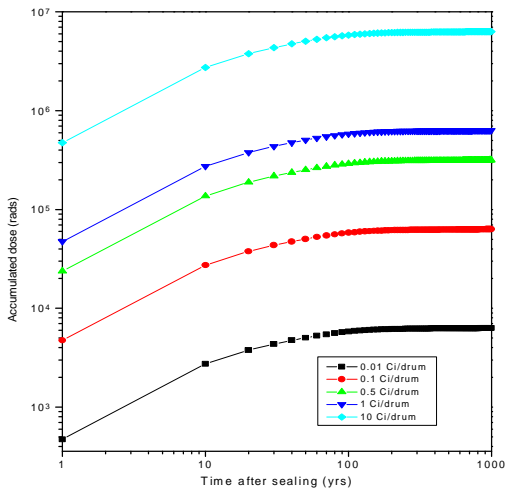


그림 3. 시멘트고화체에 대한 방사능농도별 누적방사선량

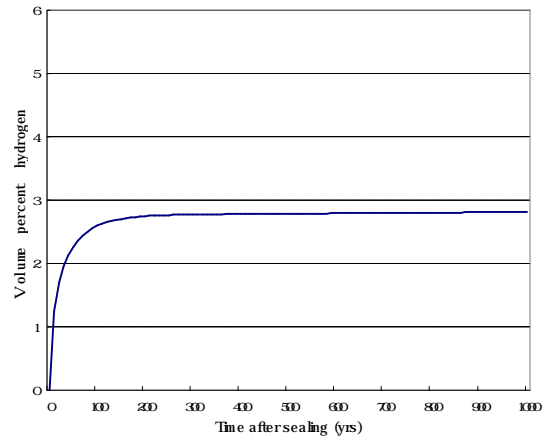


그림 4. 시멘트고화체 드럼내부의 수소기체 농도 변화

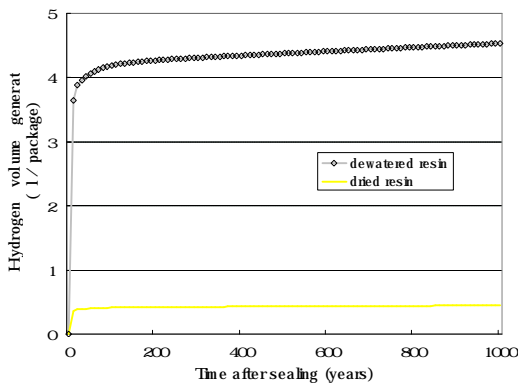


그림 5. HIC로 부터의 수소기체 발생량

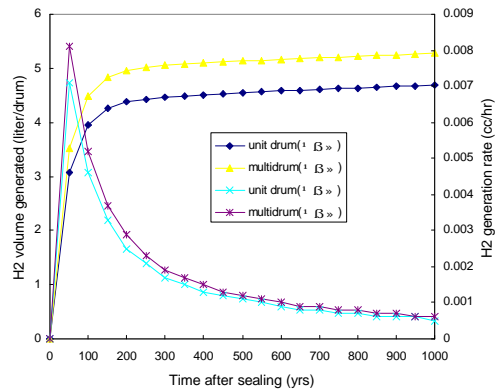


그림 6. 파라핀 드럼에서의 수소기체 발생량 및 발생률