

## Measurement of the Radiolysis Gases Generated in Several Waste Forms by External Irradiation

### $\gamma$ -조사에 의한 방사성폐기물의 방사분해가스 발생량 평가

**Kyung-Kil Kwak**, Young-Gerl Ryue, Ki-Hong Kim, \*WHan-Gyeong Je and Dong-Ho Kim

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Dukjin-dong, Yuseong-gu, Daejeon

\*Hanji Nuclear Co., Ltd., 3F, Dongyoung Venturestel, 202-4, Anyang7-dong, Manan-gu, Anyang

[nkkkwak@kaeri.re.kr](mailto:nkkkwak@kaeri.re.kr)

곽경길, 유영걸, 김기홍, \*제환경, 김동호

한국원자력연구소, 대전시 유성구 덕진동 150번지

\*한일원자력(주), 안양시 만안구 안양 7동 동양벤처스텔 202-4

(Received August 28, 2006 / Approved October 31, 2006)

#### Abstract

The cemented and paraffin wastes form which are incorporated the concentrated wastes, the cemented waste form which is incorporated the spent ion-exchange resins, and the miscellaneous waste(decontamination paper) were irradiated up to  $10^{+8}$  rads at  $5.43 \times 10^{+5}$  rads/hr with Co-60(72,023.9 Ci) as an external irradiation source. As a result, the radiolysis gases such as H<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>, O<sub>2</sub>, CO and CO<sub>2</sub> were measured in all the wastes. The major gas which was generated in all the wastes was hydrogen(H<sub>2</sub>). The volume of the generated gases showed a difference from 0.029 cm<sup>3</sup>.atm/1.1g to 0.788 cm<sup>3</sup>.atm/1.1g according to the type of wastes, and more was generated in the cemented waste form incorporated a spent ion-exchange resin than in the other wastes. More hydrogen(H<sub>2</sub>) gas was generated in the decontamination paper waste than in the other wastes, and the G(H<sub>2</sub>) value was 0.12.

**Key words** : radioactive waste, waste form, characterization, irradiation, radiolysis, G-value

#### 요 약

붕산폐액을 함유한 시멘트 및 파라핀 고화체, 폐이온교환수지를 함유한 시멘트 고화체 그리고 잡고체중의 제염지에 대하여 Co-60을 조사선원으로 하여  $10^8$  rads 까지 조사하여 발생되는

분해가스의 종류 및 그의 발생량을 분석하였다. 그 결과 분해가스로는 H<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>, O<sub>2</sub>, CO 및 CO<sub>2</sub> 등이 발생하였으며, H<sub>2</sub>가 대부분을 차지하였다. 가스발생량은 폐기물과 고화매질의 종류에 따라 0.029 ~ 0.788 cm<sup>3</sup>.atm/1.1g으로 상당한 차이를 보였으며, 폐이온교환수지를 함유한 고화체에서 가장 높은 분해가스 발생량을 보였다. 그리고 수소가스는 제염지 폐기물에서 가장 많이 발생하였다. 제염지의 G(H<sub>2</sub>)는 0.12이었다.

**중심단어** : 방사성 폐기물, 방사성 고화체, 특성평가, 방사선 조사, 방사분해가스, G 값

**I. 서론**

일반적으로 원자력발전소에서 발생하는 중저준위 방사성폐기물은 처분장에 처분되어질 때, 300 년간의 처분 관리기간 동안에 방사성 폐기물내에 함유된 방사성 핵종들로부터 ~ 10<sup>6</sup> rads 정도를 피폭 받게 된다[1, 2]. 이러한 방사선 피폭의 결과로 폐기물 고화체의 팽윤, 방사분해가스 및 휘발성물질의 발생으로 폐기물 고화체는 그의 구조적 안정성에 영향을 받게 되며, 궁극적으로 처분장의 안전성에 영향을 미치게 된다. 따라서 이러한 폐기물 고화체에 대한 방사선의 악영향을 배제하기 위하여 처분되기 전에 폐기물 고화체에 대한 방사선 영향을 평가하여야 한다. 하지만 세계 여러 나라에서 이에 대한 평가방법만을 제시하고 있을 뿐 조사관련 표준 시험법은 없는 실정이다. 미국의 NRC/BTP에서는 유기폐기물 또는 누적 방사선량(300년)이 10<sup>6</sup> rads이상일 것으로 예상되는 이온교환수지를 함유한 고화체에 대하여 10<sup>6</sup> rads 까지 방사선 조사시험을 수행할 것을 권고하고 있으며, 프랑스에서는 모든 폐기물고화체에 대하여 방사선 조사시험을 요구하고 있으며, 2 × 10<sup>4</sup> rads의 조사선량으로 10<sup>7</sup> rads 까지 조사하여 고화체의 제반특성 및 분해가스 종류 및 발생량을 시험토록 권고하고 있다. 한편 국내의 경우, 방사성폐기물 인도규정인 과기부 고시 제2005-18호에서는 취급단계에서 예상되는 상황 그리고 처분단계에서 예견되는 압력과 온도에서 구조적 안정성을 유지할 수 있도록 충분한 강도를 가질 것만 요구하고 있다[3].

본 연구에서는 원자력발전소 등의 원자력관련시설에서 발생량이 비교적 많은 폐기물, 그리고 널리

이용되고 있는 고화매질들을 선정하여 이들 폐기물의 소량을 pyrex 유리관 넣어 5.43 × 10<sup>5</sup> rads/h (Co-60)로 조사시켰다. 그리고 발생된 분해가스의 종류 및 발생량을 측정하였다.

**II. 재료 및 실험방법**

**가. 방사성폐기물 및 고화체 제조**

원자력발전소 등의 원자력관련시설에서 방사성 폐기물의 발생량과 폐기물고화를 위한 고화매질의 사용빈도를 고려하여 봉산폐액을 고화한 시멘트 고화체 및 파라핀 고화체, 폐이온교환수지를 고화한 시멘트 고화체, 그리고 잠고체중의 제염지를 방사선조사 대상폐기물로 선정하였다. 이들 폐기물을 각각 1.1 g씩 해당 pyrex 유리관에 넣은 후, 유리관내의 진공도가 0.1 torr가 되도록 로터리 펌프로 공기를 배출하여 방사선조사를 위한 시료를 준비하였으며 이어

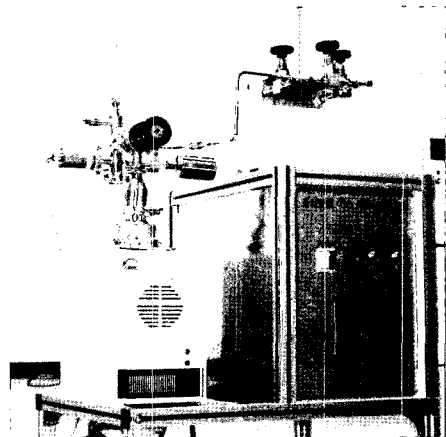


Figure 1. Sample preparation device for the irradiation

서 0.1 torr의 분위기내에서 유리관의 상부를 밀봉하였다(Fig. 1, 2 참조).

**나. 방사선 조사**

Pyrex 유리관내의 폐기물에 대한 방사선조사를 위하여 외부  $\gamma$ 선원으로 72,023.9 Ci의 Co-60을 이용하였다. 방사선조사 기간 동안 폐기물시료가 담겨진 pyrex 유리관을 회전시키면서  $5.43 \times 10^5$  rad/h의 조사선량율로 총 누적선량이  $10^8$  rads가 될 때까지 조사시켰다.

**다. 분해가스의 분석**

가스분석 대상 시료가 1기압이하이고 가스 발생량이 수 cm<sup>3</sup> 일 경우에 분석기기로의 시료 주입이 어려움이 있어 일반적인 가스분석장비인 가스크로마토그래피나 전용분석기로 분석하는 것보다는 저진공 가스나 미량가스의 정량분석을 위하여 진공에서 가스를 포집할 수 있는 장치를 부착한 질량분석기를 이용하는 방법을 이용하였다.

그리고 발생된 가스의 화학종을 측정하기 위하여 각 발생 가스의 분압을 측정할 수 있는 Finnigan MAT 271 정밀가스 질량분석기(precision gas mass spectrometer)를 이용하여 각 가스종과 그의 분압을 측정하였다. 이때 시료로부터 발생된 수분이 질량분석기 측정을 방해할 수 있으므로 수분을 제거하기 위하여 -60 °C cryogenic trap을 이용하였다(Fig. 3). 가스 발생량은 밀봉 유리관을 부피를 알고 있는 진공챔버에 넣고 주변을 진공으로 만든 후 대상 시료의 유

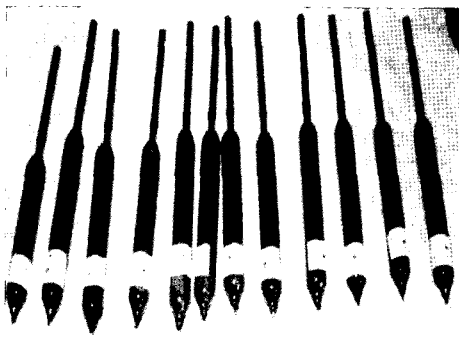


Figure 2. Specimens for the  $\gamma$ -irradiation

리관을 깨서 압력변화를 교정된 baratron 압력측정기로 측정하였다(Fig. 3).

본 연구의 가스분석에 이용된 Finnigan MAT 271 정밀가스 질량분석기는 이상기체에 가까운 상태에서 압력과 분압, 부피, 온도를 측정하여 가스량을 결정하는 분석기로써 기기의 측정 농도 범위의 한계는 100% 순수가스로부터 10 ~ 20 ppb의 불순물까지 (~  $10^7$  range)이다. 비흡착성 가스에 대하여서는 주입 압력에 따른 이온화 양의 변화, 전기적인 오차, 이온화 온도, 시료의 온도변화, baratron 압력 측정기의 직선성 등을 고려하여 전체적인 상대 불확도가 2.0% 이내이다. 일반적으로 가스 질량분석기의 측정한계는 가스종류에 따라 다르지만 Faraday 검출기로 사용할 경우 약 10 ppm 정도가 되며, 더 낮은 농도를 측정할 경우나 분해능을 높여서 측정할 경우는 SEM(Secondary Electron Multiplier)을 사용할 수가 있다.

본 연구에서는 신속한 분석 조건인 Faraday 검출기를 주로 사용하였고 (분해능 250), 질량이 비슷한 화학종이 한 피크로 나타날 경우에는 질량 분해능이 높은 SEM 검출기(분해능 2500)를 사용하였다. 그리고 표준가스를 이용하여 각 가스 종의 특성 피크의 감도를 구한 뒤 실제 시료 피크의 정량에 적용하였다. 시료 중의 특정 성분의 농도는 시료 속에 들어 있는 각 가스 성분들의 시그널의 크기, 감도, 시료 주입부에 취한 시료 압력 등으로부터 각 성분의 분압을

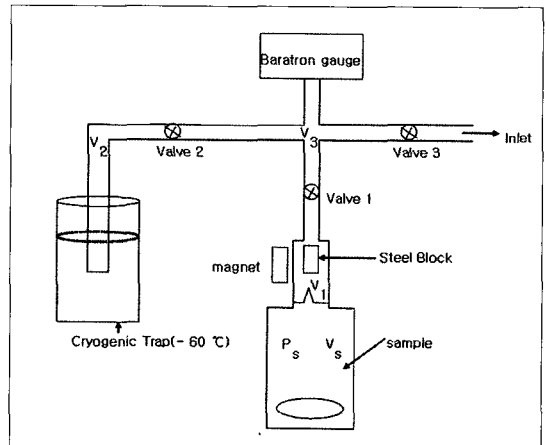


Figure 3. Pretreatment device to measure the gas generated in various wastes

구하여 측정하였다. 측정의 상대 불확도는 기기의 직선성과 압력, 부피, 간섭이온 효과 등을 고려할 때 0.5% 이상의 농도에서 5%이내이었다.

**라. 분해가스의 발생량**

가스 양의 단위는 mole, 주어진 온도에서 압력과 부피의 곱(예를 들면  $cm^3 \cdot atm$ ), 또는 정해진 온도와 압력하에서의 부피(ml, 또는  $cm^3$ ) 등으로 표현할 수 있다. 본 연구에서는 폐기물 고화체의 방사분해로 발생한 가스의 양을 실험실 온도 22℃하에서 측정하였기 때문에 이 온도에서의 압력과 부피의 곱으로 표현하였다. 이를 위하여 STP(standard temperature and pressure, 0℃, 1기압) 상태로 변환하기 위하여 이상기체 상태방정식의  $PV/T = constant$  이므로 22℃하에서 측정한 가스량 측정값에 0.925(이 값은  $273.15/(273.15+22) = 0.925$ )를 곱하여 주었다.

따라서 밀봉한 시료에서 방사선 조사에 의해 발생한 가스량은 유리관 내부 부피( $V_s$ )와 이 유리관 안에 들어있는 압력( $P_s$ )의 곱인  $V_s \cdot P_s$ 로 표현하기 위하여  $V_s$ 와  $P_s$ 를 측정하기 위하여 Fig. 3과 같이 전처리장치를 만들었다. 이 이유는 직접 유리관내의 압력과 부피를 측정할 수 없기 때문이었다. 사전에 교정된 압력게이지(baratron gauge)를 전처리장치에 연결하고 시료에서 발생한 가스를 전처리장치내로 확산 평형시켜 수분이 제거된 상태로 압력( $P_{sys}$ )을 측정하였다. 그리고 발생한 각 가스의 분압을 질량분석기로 측정하였다. 유리관내의 압력과 각 가스의 분압을 측정 한 후에는 다시 전처리장치를 진공으로 만들고 이어서 질소  $5 cm^3 \cdot atm$  (22℃)을 전처리장치( $V_s + V_1 + V_2 + V_3$ )에 주입하여 압력을 측정( $P_{N_2}$ )하여 전처리장치 전체의 부피를 구하였다.

$$5 cm^3 \cdot atm = P_{N_2} \cdot (V_s + V_1 + V_2 + V_3)$$

(22℃의 조건에서)

$$(V_s + V_1 + V_2 + V_3) = 5 cm^3 \cdot atm / P_{N_2}$$

전처리장치의 부피( $V_s + V_1 + V_2 + V_3$ ), 시료에서 발생한 가스를 전처리장치에 확산하여 평형시킨 후 측정된 압력( $P_{sys}$ )을 이용하여  $V_s \cdot P_s$ 를 구하면 아

래 식과 같다.

$$V_s \cdot P_s = P_{sys} \cdot (V_s + V_1 + V_2 + V_3)$$

여기서 전처리장치 말단의  $V_2$  부분에 -60℃의 cryogenic trap을 설치하였으므로 전처리장치내의 모든 수분은 cryogenic trap으로 들어가게 되어 방사선조사 유리관내에 있었던 방사선 조사로 발생되었거나 시료에 처음 존재하였던 수분은 측정에서 제외된다. 따라서  $V_s \cdot P_s$ 는 순수한 건조 가스만의 가스량이 된다.

질량분석기로 측정된 각 가스종의 분압은 상대농도로서 %mol/mol로 표시하게 되므로 가스종 1, 2, 3, 4 만으로 이루어진 가스의 총 압력  $P_s$ 는 아래 식과 같이 표현할 수가 있다.

$$P_s = P_1 + P_2 + P_3 + P_4$$

질량분석기로 구한 각 가스종의 분압은 각 가스종의 분압( $P_i$ )을 총 압력으로 나누어준 값으로  $P_i/P_s \cdot 100\%$ 로 표현된다. 따라서 방사분해로 발생한 각 가스종의 분압( $P_i$ )과 총 발생가스량( $V_s \cdot P_s$ )을 측정하게 되면 각 가스의 발생량을 구할 수 있게 되므로, 본 연구에서는 아래 식으로 방사선 조사에 의해 발생한 각 가스의 발생량을 구하였다.

$$V_s \cdot P_i = (P_i/P_s \cdot 100) \cdot (V_s \cdot P_s)/100$$

**III. 결과 및 논의**

**가. 방사분해 가스의 종류**

Table 1에 방사선조사에 의해 폐기물 고화체 및 폐기물로부터 발생한 분해가스의 종류 및 그의 분압을 나타냈다. Table 1의 pyrex 유리관 내부의 부피는 시료가 차지하는 부피를 제외한 부피를 압력과 부피를 알고 있는 질소가스를 이용하여 측정된 것이다. 그리고 발생한 각 가스종의 분압은 Finnigan MAT 271 정밀가스 질량분석기를 이용하여 분석하였다.

메탄의 분석에서 m/e(질량위치, mass position) 15와 16에서 측정을 하였으며, 질소와 산소의 간섭은 피크의 분해능으로 구분을 하였으며, m/e 28에서는 일산화탄소, 질소, 아민류에서 나온 CH<sub>2</sub>N, 탄화수소 등이 복합적으로 피크를 구성하므로 SEM에서 분리하여 각각을 정량하였다.

Table 1의 Concentrate-Cement는 방사성 농축폐액을 고화한 시멘트 고화체, Concentrate-Paraffin는 방사성 농축폐액을 고화한 파라핀 고화체, IER-Cement는 폐이온교환수지를 고화한 시멘트 고화체 그리고 Decon, Papers는 제염지를 의미한다.

Table 1에서 보듯이 폐기물시료에서 발생된 가스는 주종이 수소이며 이밖에 질소, 산소, 알곤, 이산화탄소, 메탄, 에탄이 발생되었음을 보여 주고 있으며, 일부 시료에서는 아민류가 다량 검출되기도 하였다. 방사선조사에 의해 발생된 가스중의 수소가스는 전체중의 13 ~ 98%를 차지하였다.

본 방사선조사 대상의 폐기물내에는 수화물형태이거나 유기물의 형태로 수소가 존재하고, 파라핀 고화체, 폐수지 및 제염지에서는 유기물 형태의 탄소가 존재하며, 폐수지인 경우 혼합수지나 음이온교환수지에 질소가 수지내 이온교환 관능기의 한 구성물질로 존재하게 된다. 이 같은 사실로 폐기물로부터 방사선조사에 의해 발생 가능한 분해가스 화학종을 예측할 수 있는데 Table 1은 그 가능성대로 가스가 발생하였음을 보여주고 있다. 즉 아민류는 폐이온교환

수지를 함유한 고화체에서만 발생되었는데 이는 혼합이온교환수지중의 음이온교환수지의 관능기로부터 발생된 것으로 판단된다.

Table 1의 동일 폐기물 고화체와 폐기물에서 발생 가스의 분압 차이(발생량)를 보이는 것은 방사선조사 시료를 폐기물드럼의 상중하에서 각각 채취하였기 때문에 그들의 조성차이에 기인하는 것으로 판단된다. Fig. 4는 Table 1의 자료를 그래프로 나타낸 것이다.

Table 1과 Fig. 4에서 알곤 가스의 발생을 볼 수 있지만 시료내에 알곤 가스를 발생할 수 있는 어떠한 화학종도 없기 때문에 방사선조사로부터 발생된 것보다는 시료에 들어있거나 시료준비과정에서 들어간 공기의 오염으로부터 발생된 것으로 보여 진다.

특히 Table 1의 시료 8번과 9번을 보면 알곤의 농

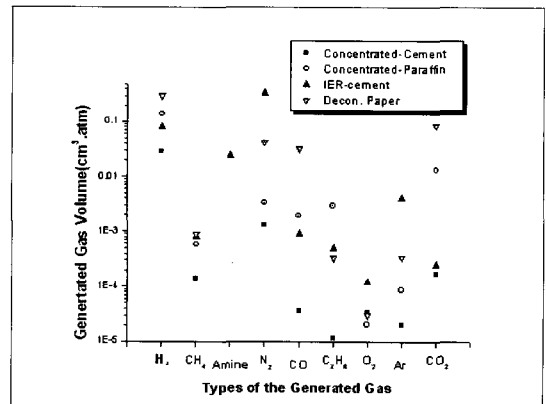


Figure 4. Type of the generated gases in the various wastes

Table 1. Types and Partial Pressures of Gases Generated in the Wastes(발생한 가스의 분압 (%mol/mol), pyrex 유리관의 부피(cc))

Waste Type (Waste-matrix)	No.	H <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	Amine	N <sub>2</sub>	CO	Ethane	O <sub>2</sub>	Ar	CO <sub>2</sub>	total volume	pyrex volume
Concentrate-Cement	1	97.79	0.17	0.00	1.04	0.06	0.03	0.17	0.06	0.69	0.03	11.36
	2	93.90	0.32	0.00	5.08	0.11	0.02	0.04	0.05	0.48	0.03	11.46
	3	91.62	0.83	0.00	6.55	0.18	0.06	0.13	0.07	0.55	0.03	11.32
Concentrate-Paraffin	4	87.39	0.39	0.00	2.00	1.13	1.94	0.01	0.05	7.07	0.18	10.78
	5	90.90	0.34	0.00	1.53	0.79	1.96	0.01	0.05	4.41	0.20	11.56
	6	78.17	0.32	0.00	2.84	1.87	1.72	0.02	0.05	15.01	0.12	11.24
IER-Cement	7	55.56	1.09	39.00	1.31	1.64	0.95	0.21	0.03	0.21	0.11	11.50
	8	12.81	0.05	0.57	85.46	0.00	0.00	0.01	1.06	0.03	0.79	11.99
Decon. Papers	9	57.94	0.15	0.00	24.56	4.97	0.06	0.01	0.28	12.04	0.52	11.50
	10	72.53	0.15	0.00	0.00	8.03	0.06	0.01	0.00	19.21	0.45	11.46
	11	66.20	0.31	0.00	0.00	8.03	0.09	0.01	0.00	25.36	0.42	11.50

**Table 2. The Individual Gas Volume Generated in the Wastes(cm<sup>3</sup>.atm)**

Waste Type (Waste-matrix)	No.	H <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	Amine	N <sub>2</sub>	CO	Ethane	O <sub>2</sub>	Ar	CO <sub>2</sub>	total volume
Concentrate-Cement	1	0.029	5E-05	0	0.0003	2E-05	8E-06	5E-05	2E-05	2E-04	0.029
	2	0.027	9.3E-05	0	0.0015	3E-05	6E-06	1E-05	1E-05	1E-04	0.029
	3	0.031	0.00028	0	0.0022	6E-05	2E-05	4E-05	3E-05	2E-04	0.034
Concentrate-Paraffin	4	0.155	0.00069	0	0.0036	0.002	0.003	2E-05	9E-05	0.013	0.178
	5	0.177	0.00067	0	0.003	0.0015	0.004	2E-05	1E-04	0.009	0.195
	6	0.096	0.00039	0	0.0035	0.0023	0.002	2E-05	7E-05	0.018	0.123
IER-Cement	7	0.062	0.00122	0.044	0.0015	0.0018	0.001	2E-04	4E-05	2E-04	0.112
	8	0.101	0.00042	0.004	0.6732	0	0	4E-05	0.008	3E-04	0.788
Decon. Papers	9	0.298	0.00077	0	0.1265	0.0256	3E-04	3E-05	0.001	0.062	0.515
	10	0.324	0.00067	0	0	0.0359	3E-04	3E-05	1E-05	0.086	0.447
	11	0.279	0.00132	0	0	0.0339	4E-04	3E-05	9E-06	0.107	0.422

도가 높아지면서 질소의 농도가 높아진 것으로 보아 공기의 유입으로 판단되지만, 두 시료 모두 산소의 농도는 아주 낮게 나타났기 때문에 공기로부터 유입된 산소는 방사선 조사중에 조사 시료와 반응하여 산화물로 전환되는데 소모되어 낮게 된 것으로 판단된다.

**나. 방사분해 가스의 발생량**

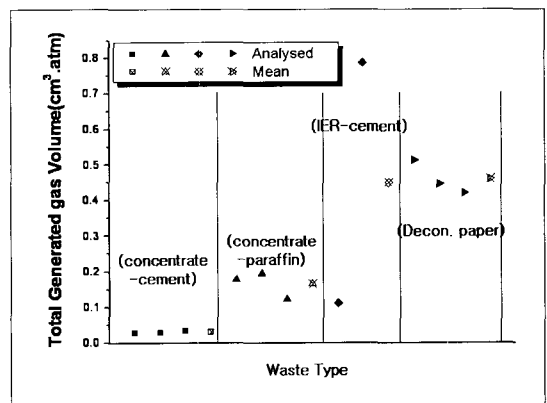
Table 2는 pyrex 유리관 내부의 가스 화학종별 발생량을 보여주고 있는데, 가스 화학종별 발생량은 앞에서 기술하였듯이 Table 1의 각 가스종의 분압 측정 결과를 이용하여 가스발생 총량과 각 가스종별 분압의 곱으로 계산하였다.

폐기물 종류별로 발생된 가스의 총 발생량을 Fig. 5에 나타냈고, Fig. 6과 7에 각각 농축폐액을 고화한 시멘트 고화체와 파라핀 고화체의 가스 화학종별 발생량을 나타냈다.

Fig. 5에서 보듯이 방사선 조사에 의해 발생된 가스의 총 발생량은 폐이온교환수지를 고화한 시멘트 고화체에서 가장 높았으며 그리고 이와 반대로 봉산 농축폐액을 고화한 시멘트 고화체에서 가장 낮았음을 알 수 있다. 폐수지-시멘트 고화체와 제염지에서 발생된 총 가스의 평균 양은 비슷하지만 발생된 가스의 화학종은 매우 다름을 알 수 있다. 이는 폐기물 종류의 차이와 폐기물내의 수분 함유량 차이에 기인하기 때문이며, 폐수지를 고화한 시멘트 고화체에서는 비교적 화학결합이 약한 음이온교환수지의 관능기에

서 발생된 질소가스가 대부분이었지만 반면에 제염지에서는 발생가스중의 수소가 대부분을 차지하였다. 또한 일반적으로 방사선 조사에 의해 발생하는 수소 가스는 주로 폐기물내에 존재하는 수분으로부터 발생되는 것으로 보고 있는 것으로[4] 보아 제염지가 폐수지-시멘트 고화체보다 수분을 더 많이 함유하고 있기 때문일 것으로 보여진다.

Fig. 6과 7에서 동일한 폐기물(농축폐액)을 함입하고 있으면서 고화매질인 다른 시멘트 고화체와 파라핀 고화체에서 발생하는 방사분해 가스의 화학종을 비교할 수가 있다. 우선 파라핀 고화체가 시멘트 고화체에 비하여 가스발생 총량은 약 5.5배가 많은데 이는 유기물에서 발생될 수 있는 화학종의 가스 발생량의 비율과 비슷하였다. 즉 수소, 메탄 및 에탄 등은 폐기



**Figure 5. Total gas volume generated in the wastes**

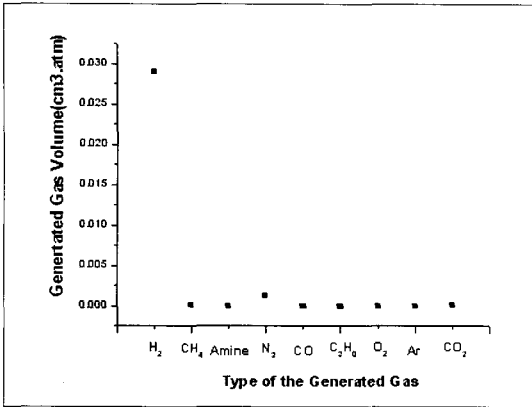


Figure 6. Types of Gas generated in the Concentrated-Cement Waste

물에서 발생된 것보다는 고화매질을 이루고 있는 포화탄화수소물인 파라핀에서 발생되기 때문이다.

**다. G-value 계산**

G 값(G-value) 또는 G(가스종)는 물질에 조사된 100 eV 당 발생된 가스의 분자수(molecules of gas/100eV absorbed)를 나타내는 것으로 값이 적을 수록 방사선에 안정하다는 의미를 부여하여 준다. 본 연구에서 방사선 조사에 의해서 발생된 가스종들의 G-value는 아래 식으로 계산하였다[5].

$$G(gas) = (P_f - P_i) \left( \frac{NV}{RT} \right) \left( \frac{100eV}{D} \right)$$

여기서,

G(gas) = total molecules evolved per 100 eV

Pf = final pressure(atm)

Pi = initial pressure(atm)

N = Avagadro's number,  $6.02 \times 10^{23}$  /gmol

V = ampule free volume(cm<sup>3</sup>)

R = ideal gas constant, 82.057 atm · cm<sup>3</sup>/gmol · K

T = temperature, K

D = energy deposited, eV

위 식에 의해 계산된 각 폐기물에서 발생한 각 가스종들의 G 값을 Table 3에 나타냈다. Table 3에서 보듯이 발생된 동일한 가스의 G값들에 차이를 보이는데 이는 고화매질과 폐기물의 종류, 또한 폐기물

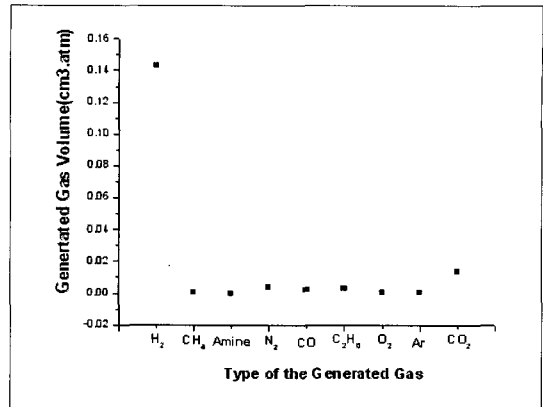


Figure 7. Types of Gas generated in the Concentrated-Paraffin Waste

내의 수분함유량 차이에 기인하는 것으로 판단된다. 즉 폐수지-시멘트 폐기물에서의 G(H<sub>2</sub>)는 0.03으로써 0.058의 농축폐액-파라핀 G(H<sub>2</sub>)보다 낮는데 이는 수소를 발생할 수 있는 폐수지가 포화탄화수소 화합물인 파라핀보다 안정할 뿐만 아니라 시멘트 매질이 차폐역할을 하였기 때문으로 판단된다. 그리고 순수한 유기물질인 제염지에서의 G(H<sub>2</sub>)가 0.12로 매우 크다는 사실이 이를 입증하여 준다.

페이온교환수지-시멘트 폐기물인 경우, 질소화합물의 G 값(아민; 0.009, 질소; 0.13)이 매우 큰 것으로 나타났고, SOx가 측정되지 않은 것으로 보아 시멘트 고화체내의 혼합수지중의 음이온교환수지의 관능기가 분해되었음을 알 수 있으며, 또한 방사선에 취약함을 알 수 있다.

일반적으로 폐기물의 방사선조사에 의해 발생되는 방사분해 가스량은 폐기물의 구성물질, 단위 시간 당의 조사선량에 크게 의존하게 된다. 즉 폐기물을

Table 3. G-Value of the Generated Gas in Various Wastes

	Concentrate - Cement	Concentrate - Paraffin	IER - Cement	Decon. Papers
H <sub>2</sub>	0.011554	0.057795	0.031464	0.118553
CH <sub>4</sub>	0.000056	0.000236	0.000317	0.000363
Amine	-	-	0.009266	-
N <sub>2</sub>	0.000531	0.001364	0.130239	0.016645
CO	0.000015	0.000783	0.000347	0.012553
C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	0.000005	0.001215	0.000193	0.000132
O <sub>2</sub>	0.000013	0.000008	0.000046	0.000012
Ar	0.000008	0.000035	0.001552	0.000134
CO <sub>2</sub>	0.000066	0.005401	0.000097	0.033553

구성하는 물질 가운데 수분이나 유기물질이 많으면 많을수록 발생가스를 많이 발생시킬 것이며, 그리고 단위시간당 고에너지를 폐기물에 조사할 경우에도 가스 발생량은 많아질 것이다. 따라서 Palmer[4]의 연구와 본 연구 결과를 비교하여 보면, 본 연구에서 얻은 폐기물 및 폐기물 고화체에서의 G 값은 상당한 낮은 값을 갖게 되었는데 이는 파라핀이나 이온교환수지 등 순수물질을 이용한 것이 아니고 일정한 폐기물과 고화매질의 비율을 갖는 폐기물 고화체(예, 파라핀 고화체는 봉산농축폐액(72%)과 파라핀 고화매질(28%)로 구성)에 대하여 수행하였기 때문일 것으로 보이며, 또한 저조사선량을 이용하였기 때문일 것으로 판단된다.

#### IV. 결론

봉산폐액을 함유한 시멘트 및 파라핀 고화체, 페이온교환수지를 함유한 시멘트 고화체 그리고 잠고체중의 제염지에 대하여 Co-60을 조사선원으로 하여  $10^8$  rads 까지 조사하여 발생하는 분해가스의 종류 및 그의 발생량을 분석한 결과는 아래와 같다.

가. 방사선조사에 의해 발생된 주요 분해가스로는  $H_2$ ,  $CH_4$ ,  $N_2$ ,  $C_2H_6$ ,  $O_2$ , CO 및  $CO_2$  등이다. 이들 가스중  $H_2$ 의 발생이 대부분(~ 98%)을 차지하였다

나. 외부 방사선 조사에 의해 발생된 가스의 양은 폐기물과 고화매질의 종류에 따라 0.029 ~ 0.788  $cm^3.atm/1.1g$ 으로 상당한 차이를 보였으며, 페이온교환수지를 함유한 고화체에서 가장 높은 분해가스 발생량을 보였다. 그리고 수소가스는 제염지 폐기물에서 가장 많이 발생하였다.

다. 동일한 가스의 G 값도 폐기물과 고화매질의 종류에 따라 차이를 보였으며, 폐수지-시멘트, 농축폐액-파라핀 및 제염지 폐기물에서의 G( $H_2$ )는 각각 0.03, 0.05 그리고 0.12 이었다.

#### 참고문헌

[1] United States Nuclear Regulatory Commission, Waste Form Technical Position, rev. 1,-

Appendix A Cement stabilization, 1991

[2] "Caractérisation des Colis de Dechets Radioactifs Fable et Moyenne Activite", .DRDD/BECC, 1984  
 [3] 과학기술부 고시 제2005-18호, "중·저준위방사성 폐기물 인도규정", 2005  
 [4] C. R. Palmer, "Radwaste Radiolytic Gas Generation Literature Review", EPRI NP-5977, 1988  
 [5] S. T. Kosiewicz, "Gas Generation from the alpha Radiolysis of Bitumen," Nuclear and Chemical Waste management, vol. 1, pp. 139-141, 1980