

'95 춘계학술발표회 논문집  
한국원자력학회

## 콘크리트에서의 방사성핵종 확산계수

금동권, 조원진, 한필수  
한국원자력연구소

### 요 약

처분장 구조물의 주요방벽 재료중의 하나인 콘크리트에서의 핵종확산계수를 측정하기 위하여 내부확산법을 적용하였다. 핵종은 양이온과 음이온을 대표하는 Cs 과 I 이었으며, 고체 시료는 양생된 순수시멘트 또는 시멘트와 모래를 섞은 몰타르로 물과 시멘트의 비 (W/C) 를 변화시켰다. 용액은 표준 제조방법에 따라 제조된 합성지하수이었다. Curve fitting 법을 이용한 모델과 실험의 비교로부터 핵종의 확산계수를 계산하였다. 순수시멘트의 경우 Cs 의 겉보기 확산계수는  $1.7 \times 10^{-12} \sim 1.4 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{sec}$  의 범위로 W/C 가 증가할수록 컸으며 I 는  $2.9 \times 10^{-14} \sim 1.0 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{sec}$  의 범위로 또한 W/C 에 따라 증가하였다. 몰타르의 경우 W/C 가 클수록 Cs 의 확산계수는 증가하였으나 I 에 대해서는 큰 변화를 보여주지 않았다. 본 실험에서 얻어진 핵종의 유효확산계수값이  $10^{-13} \sim 10^{-10} \text{ m}^2/\text{sec}$  의 범위를 갖는 것으로 보아 공극확산이 핵종확산의 지배 메커니즘임이 예상되었다.

### 1. 서 론

우리 나라 방사성폐기물 처분장은 동굴방식의 다중방벽 개념으로 건설될 예정으로 콘크리트 구조물, 뒷채움재 등의 공학적 방벽 도입이 예상된

다. 콘크리트 구조물은 동굴내의 핵종이 지하수에 용해되어 지하수의 흐름을 따라 지하매질로 이동될 때 가장 먼저 접하게 되는 방벽으로서 낮은 투수능, 낮은 확산계수, 높은 수착능의 성능을 가지고 방사성 핵종의 이동을 억제하는 기능을 가지고 있을 뿐 아니라 처분장이 붕괴되지 않도록 하는 구조적 지지대의 역할도 하는 중요한 인공방벽 요소 중의 하나이다.

본 연구는 처분안전성 평가의 입력자료로 사용될 수 있는 콘크리트에서의 핵종확산계수를 구함과 동시에 콘크리트 구조물 내에서 핵종이동 현상을 규명하는 것이 주 목적이다. 이를 위하여 내부확산 실험법의 모델링 및 실험을 통한 핵종확산계수의 측정이 수행되었다.

## 2. 내부확산법

내부확산법은 실험이 매우 간편하다는 장점을 가지고 있으며 모델의 해는 다음과 같다[1].

$$\frac{C(t)}{C_0} = e^{-\lambda t} \left[ \frac{\beta}{1+\beta} + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2\beta \exp(-g_n^2 D_a t / l^2)}{1+\beta+\beta^2 g_n^2} \right] \quad (1)$$

단,

$$D_a = D_e / \alpha = \frac{\varepsilon \cdot D_p + \rho_p \cdot K_d \cdot D_s}{\alpha} \quad (2)$$

$$D_e = \varepsilon D_p + \rho_p K_d D_s = \varepsilon \phi D_M + \rho_p K_d D_s \quad (3)$$

$$\alpha = \varepsilon + \rho_p K_d \quad (4)$$

$$\beta \equiv \frac{V_L}{\alpha V_s} \quad (5)$$

$g_n$  은 다음 방정식을 만족하는 0 보다 큰 근이다.

$$\tan g_n = -\beta g_n \quad (6)$$

### 3. 실험

#### 3.1 시멘트 고화체

고화체는 크게 두종류로 제조되었는데 하나는 시멘트와 물을 사용한 순수 시멘트 고화체로 시멘트와 물의 비 (W/C) 를 0.4, 0.5, 0.6 세 종류로 하여 제조하였으며, 다른 하나는 시멘트, 물, 모래로 구성된 시멘트 몰타르 고화체로 시멘트와 물의 비 (W/C) 를 0.5, 0.6 두종류로 제조하였다. 시멘트는 OPC(Ordinary Portland Cement)이었으며, 몰타르 고화체 제조시 사용된 모래는 직경이 2mm 이하인 것만을 사용하였고 시멘트와 모래의 무게 비는 1 : 2 이었다. 물은 표준방법으로 실험실에서 제조된 합성지하수를 사용하였다.

한국 공업규격 (KS, L5109-1986) 에서 제시한 혼합방법에 따라 위 재료들을 시멘트 몰타르 혼합기로 혼합한 후 내부직경이 5cm 이고 길이가 10cm인 플라스틱 성형기에 부어넣고 비닐로 밀봉한 후 경화시킨다. 2~3 일 후에 경화된 고화체를 플라스틱 성형기로 부터 분리하여  $Ca(OH)_2$  포화수용액내에서 양생시킨다. 양생 후에는 고화체를 다이아몬드 절단기로 약 5 cm 길이로 절단하고, 절단된 면은 부드러운 종이 연마제를 이용하여 연마하고 초음파 세척기로 시료에 붙어있는 미세한 부스러기 등을 세척한 후 확산실험장치에 설치하기 전까지 합성지하수에 담귀 두었다.

#### 3.2 확산실험

확산셀은 내경이 5 cm이고 외경이 6 cm 인 아크릴 튜브로 제작하였으며 전체길이는 12 cm 이다. 확산셀 하단에 고화체가 위치하고 그 위로 고화체와 거의 같은 부피의 합성 지하수 용액이 담겨져 있다. 시멘트 고화체는 확산셀에 설치하기 전에 밀면과 옆면을 우레탄 락커로 여러 번 코팅하여 물의 침입을 방지하고 오직 한 방향으로만 확산이 일어나도록 하였다. 확산셀 밑에는 직경 10 cm 인 아크릴 판으로 밀판을 설치하여 확산셀이 안정하게 유지될 수 있도록 하였으며, 확산셀 위에는 개폐식 뚜껑을 설치하

여 물의 증발방지와 시료채취를 할 수 있도록 하였다. 핵종의 초기농도는 두 핵종 모두  $500 \mu\text{Ci/l}$  이었다. 액상 시료를 적당한 시간 간격으로 0.5cc 씩 채취하여 액체섬광계수기로 농도를 분석하였다.

#### 4. 결과 및 고찰

그림 1과 2 는 각각 Cs 와 I 에 대한 확산실험의 결과를 보여주고 있다. Cs 은 182 일까지, I 는 119 일까지의 실험결과이다. Cs 과 I 모두 W/C 비가 증가할수록, 즉 시료의 단위 체적당 물의 첨가량이 클수록 농도가 더 감소하였다. 이는 공극률의 증가로 인한 플럭스의 증가 때문이라고 판단된다. 수착능이 큰 I 가 Cs 보다 전체적으로 액상농도 감소가 크게 나타났다. 순수 시멘트의 경우 실험과 모델이 비교적 잘 일치하고 있으나, 몰타르의 경우는 실험과 모델이 차이를 보여주고 있다. 시멘트에서 보다 수착능이 상대적으로 작은 몰타르에서 I 는 더 큰 농도감소 현상이 나타났다. 이는 몰타르에서 I 의 확산속도가 순수 시멘트 보다 상대적으로 매우 크다는 것을 의미한다. 몰타르 경우 순수 시멘트 시료 보다 공극이 크고 모래에 대해 I 가 비활성 (inert) 이어서 핵종이동이 상대적으로 용이한 반면에 순수 시멘트의 경우는 밀도가 크고 공극이 작은 시료이므로 시료 표면에서 전기적으로 양성을 띤 매질전하와 전기적으로 음성을 띤 I 이온의 결합력이 핵종이동을 억제할 가능성이 매우 크기 때문이다.

각 시료들의 핵종에 대한 겔보기 확산계수 값을 표 1 에 요약하여 놓았다. 순수시멘트에 대해 Cs 의 겔보기 확산계수는 W/C 가 증가할수록 확산계수값이 증가하였으며, Andersson 등 [3] 이 구한 값보다는 2 order 정도 크나 Atkinson 과 Nickerson [4] 이 구한 값보다는 1 order 정도 작거나 비슷하였다. I 도 역시 순수 시멘트의 경우 W/C 가 증가할수록 확산계수값은 커졌는데 Andersson 등이나 Atkinson 과 Nickerson 등이 구한 값과 유사하였다. 몰타르의 경우 W/C 가 클 때 Cs 은 더 큰 확산계수값을 가졌으나, I 에 대해서는 거의 같은 값을 가졌다. 이때 Cs 의 확산계수값

은 Albinson 등[2]이 구한 값보다 약간 크게 나타났으나 I 는 Andersson 등이 구한 값보다 3 order 정도 크게 나타났다. 전체적으로 본 연구의 경우 유효확산계수 의 값이  $10^{-13} \sim 10^{-10} \text{ m}^2/\text{sec}$  범위의 크기를 갖는 것으로 보아 공극확산이 확산 이동을 지배한 것으로 보인다.

### 5. 참고문헌

- [1]. 한필수 외, "처분안전성 연구", KAERI-NEMAC/RR-119/94
- [2]. Albinson et al., "Diffusion of radionuclide in concrete/bentonite systems", SKB/TR-93-29, 1993
- [3]. Andersson K. et al., "Sorption and diffusion studies of Cs and I in concrete", SKBF/KBS-TR-83-13, 1983
- [4]. Atkinson A. and A.K. Nickerson, "Diffusion and sorption of Cs, Sr and I in water saturated cement", Nuclear Technology, 81, 100-113, 1988

표 1 각 시료에 대한 핵종의 겉보기 확산계수 및 다른 연구결과와의 비교

| R/N | Sample code No. | $D_o \text{ (m}^2/\text{sec)}$ |                                     |                                    |                                 |
|-----|-----------------|--------------------------------|-------------------------------------|------------------------------------|---------------------------------|
|     |                 | This work                      | Andersson et al. <sup>43</sup>      | Atkinson & Nickerson <sup>45</sup> | Albilson et al. <sup>41</sup>   |
| Cs  | CSCE4           | $1.7 \times 10^{-12}$          |                                     |                                    |                                 |
|     | CSCE5           | $6.2 \times 10^{-12}$          | $(2 \text{ to } 7) \times 10^{-14}$ | $1.2 \times 10^{-11}$              | -                               |
|     | CSCE6           | $1.4 \times 10^{-11}$          |                                     |                                    |                                 |
|     | CSC05           | $2.7 \times 10^{-12}$          | $(3 \text{ to } 8) \times 10^{-14}$ | -                                  | $10^{-14} \text{ to } 10^{-12}$ |
|     | CSC06           | $8.7 \times 10^{-11}$          |                                     |                                    |                                 |
|     | ICE4            | $2.9 \times 10^{-14}$          |                                     |                                    |                                 |
| I   | ICE5            | $5.4 \times 10^{-14}$          | $< 10^{-14}$                        | $5 \times 10^{-13}$                | -                               |
|     | ICE6            | $1.0 \times 10^{-13}$          |                                     |                                    |                                 |
|     | ICO5            | $3.9 \times 10^{-11}$          | $< 10^{-14}$                        | -                                  | -                               |
|     | ICO6            | $3.2 \times 10^{-11}$          |                                     |                                    |                                 |

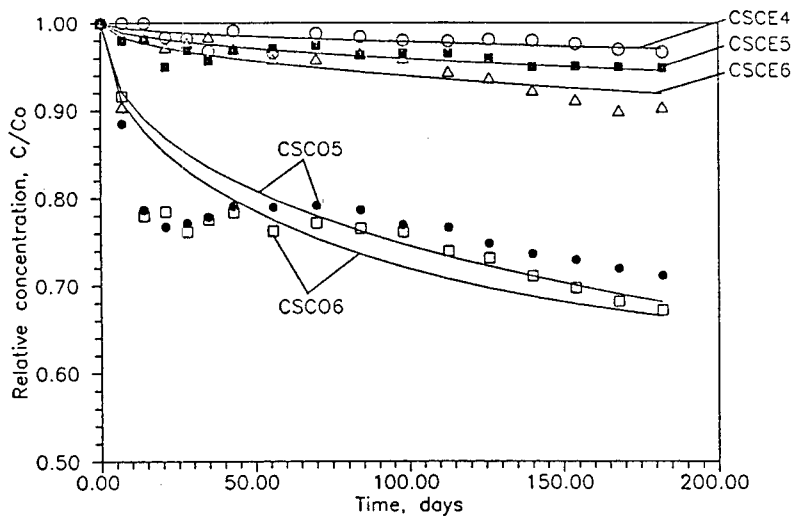


그림 1 Cs의 확산 실험 결과 및 모델과의 비교

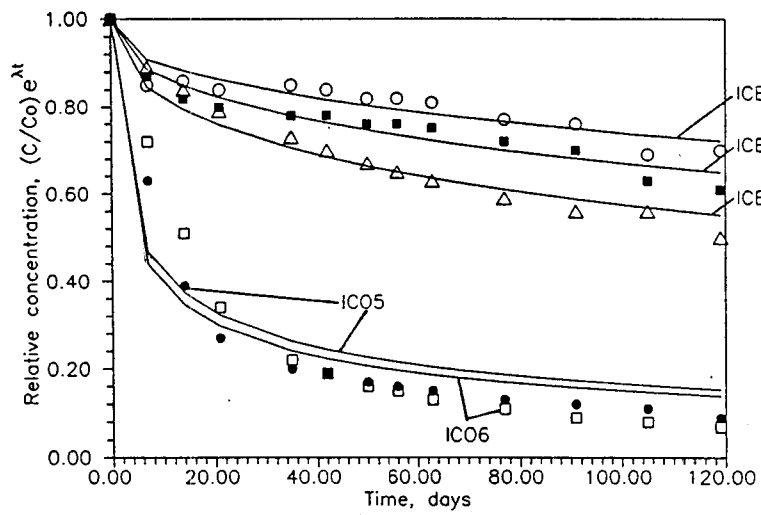


그림 2 I의 확산 실험 결과 및 모델과의 비교