

'95 춘계 학술 발표회 논문집

한국원자력학회

석탄회를 통과하는 방사성핵종의 이동기구

신진성, 이재민, 황주호

경희대학교

요 약

방사성폐기물의 처분시에는 원자력발전소와 유사한 안전개념을 도입하여 다중방벽을 구성하는 것이 일반적이다. 다중방벽중에서 뒷채움재는 처분안전성 향상의 주도적 역할을 하는 요소로서 지하수 침투방지, 방사성핵종 이동저지능의 기능을 가져야 한다. 석탄회를 뒷채움재의 부재료로서 사용하기 위해서는 방사성폐기물처분장 설계에 적용할때 안전성과 경제성을 만족시킬 수 있어야 한다. 본 연구에서는 석탄회의 핵종에 대한 흡착능의 관점에서 석탄회의 이용가능성을 평가하였다. 또한 Column 실험을 통하여 표면확산과 공극확산을 비교, 분석함으로써 석탄회를 통과하는 방사성핵종의 이동기구를 검토하였다.

1. 서 론

원자력발전에 따른 부산물로서 발생하는 방사성폐기물의 안전한 처분은 국민보건의 확보와 국민의 원자력발전에 대한 이해도 제고를 위해 지속적으로 심층적인 연구를 필요로 하고 있다. 방사성폐기물 처분장 건설시 뒷채움 물질의 주재료로서 고려되는 벤토나이트를 사용할 경우 기계적특성이 약하다는 약점이 있다. 이러한 점을 보강하기 위해 이제까지 부재료로 고려되어온 모래와 구성성분은 유사하나 화학적특성이 다르고, 경제성이 뛰어난 석탄회를 선정하여 실험을 수행하였다. 석탄회의 이용은 수밀성을 향상시키는 성능과 화학적 특성이 방사성폐기물 처분장 기능을 향상시킬 수 있고, 석탄화력발전소에서 문제시되는 부산물을 방사성폐기물 처분에 활용한다는 이점이 있다. 본 연구에서는 뒷채움물질의 부재료로서 석탄회를 사용했다고 가정하고, 방사성핵종(Cs-137)을 사용하여 석탄회내에서 확산현상을 규명하는 실험을 수행하였다. 그리고, 현재 뒷채움물질로 주로 고려되고 있는 벤토나이트와 비교하여, 석탄회의 방사성핵종 이동지연 효과를 평가하였다.

2. 확산계수 결정 이론

확산계수 측정방법에는 Back-to-back방법, In-diffusion방법, Through-diffusion 방법이 있으며, 방사성용액이 흐르는 상태에서 분산계수를 측정하여 확산계수를 구하는

Column방법등이 있다. 본 실험에 사용한 매질의 특성상 유체의 흐름이 없는 상태에서는 측정이 불가능 하므로 Column방법을 택했다. Column방법에 적용된 수평류 분산모델⁽¹⁾,⁽²⁾은 다음과 같다. 이식은 Steady-state이며, 포화된 균일한 입자상태의 다공질 매질을 통해 나오는 단일 용질에 대한 1차원 Flux를 나타낸다.

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - \bar{V} \frac{\partial C}{\partial x} - \frac{\rho_b}{\eta} \frac{\partial \bar{C}}{\partial t} \quad (1)$$

여기서 C:용액내 용질 농도, D:수력학적 분산 계수, \bar{V} : 평균 선형 공극수 속도, ρ_b :공극 매질의 겉보기 밀도, η :공극률, \bar{C} :공극성 매질의 단위질량당 고체상내에 있는 용질의 질량이다. 그리고

$$D = \alpha \bar{V} + D_0 \cdot \tau \quad (2)$$

여기서 D_0 :물에서의 확산계수, τ :굴곡계수이다. D_0 는 물에서의 확산계수로서 Cl의 경우 약 $1E-5 \text{ cm}^2/\text{sec}$ ^{(3),(4)}의 값이고, Cs의 경우 약 $2E-05 \text{ cm}^2/\text{sec}$ ⁽⁵⁾의 값이다. τ 는 매질의 굴곡된 통로를 설명하는 것으로 1이하의 값을 갖는다. 비반응성 핵종에 대한 연구결과⁽⁴⁾를 통해 살펴보면 0.59에서 0.84 범위에 놓여 있는 것을 알 수 있다. \bar{V} 는 평균 공극수 속도이고 α 는 공극매질의 역학적 분산도로 알려진 특성치이다.⁽⁴⁾ 실험결과⁽¹⁾에 따르면 α 는 \bar{V} 의 변화에 거의 영향을 받지 않으며 작은 범위 내에 분포한다는 것을 알 수 있다. \bar{C} 와 C의 관계는 일련의 batch 실험에 의해 결정된다.

$$\frac{d\bar{C}}{dC} = K_d \quad (3)$$

식 (3) 을 식 (1) 에 대입하여 다시 정리하면 다음과 같다.

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D' \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - V' \frac{\partial C}{\partial x} \quad (4)$$

$$\text{여기서 } D' = D/R_d, \quad V' = \bar{V}/R_d \quad (5)$$

$$R_d = 1 + (\rho_b / \eta) K_d \quad (6)$$

Column 실험에서 사용된 초기 및 경계조건은 다음과 같다.

$$\begin{aligned} C(x, 0) &= 0 ; & x > 0 \\ C(0, t) &= C_0 ; & t > 0 \\ \frac{\partial C}{\partial x}(L, t) &= 0 \text{ where } 0 \leq x \leq L \end{aligned} \quad \left[\begin{array}{l} L : \text{Column의 길이} \\ x : \text{확산매질의 길이} \end{array} \right.$$

위의 초기 및 경계조건을 대입하여 다음의 해를 구할 수 있다.^{(1), (2)}

$$C = \frac{C_0}{2} \left[\operatorname{erfc}\left(\frac{x - V \cdot t}{2(D \cdot t)^{\frac{1}{2}}}\right) \right] + \exp\left(\frac{V \cdot x}{D}\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{x + V \cdot t}{2(D \cdot t)^{\frac{1}{2}}}\right) \quad (7)$$

반응성 용질의 경우 V, D 를 V', D' 로 바꿔준다.

반응성 용질의 공극확산과 표면확산을 구하기 위해 식 (2)는 다음과 같이 표시될 수 있다. ^{(1), (6)}

$$D = \alpha \bar{V} + D_a \quad (8)$$

$$= \alpha \bar{V} + \frac{D_p + K_d \cdot \rho_b \cdot D_s}{\theta + K_d \cdot \rho} \quad (9)$$

여기서 θ :함수율, D_a :겉보기 확산계수, D_p (고유공극확산계수) = θD_p , D_p :공극확산계수, K_d :분배계수, D_s :표면확산계수, ρ_b :겉보기밀도이다.

(2)식과 (8)식의 관계를 보면 (2)식의 $D_0 \tau$ 항이 (8)식의 D_a 항과 같은 관계로 놓여져 있다. 비반응성 용질의 경우 흡착이 거의 무시되므로 $K_d=0$ 을 식(9)의 두번째 항에 대입하여 겉보기 확산계수(D_a)를 구하면 다음과 같은 관계식이 성립한다. ⁽⁶⁾

$$D_a = \frac{D_p}{\theta} = D_p \quad (10)$$

$$D_p = D_0 \cdot \tau \quad (11)$$

그러므로 비반응성 용질에 대해 식(8)은 다음과 같은 식으로 나타낼 수 있다.

$$D = \alpha \bar{V} + D_p \quad (12)$$

반응성 용질에 대한 D_a 는 먼저 분산계수(D)를 구하고 α 를 계산한 후 D에서 $\alpha \cdot \bar{V}$ 를 빼줌으로써 구할 수 있다. 본 실험에서는 분산계수(D)를 구하기 위한 보정 프로그램으로 (7)식을 이용하여 최소자승법을 통해 FORTRAN으로 작성 하였다. 구해진 겉보기 확산계수에는 식(9)에 보는바와 같이 공극확산계수와 표면확산계수 값이 포함되어 있다. 식 (11)를 이용하여 공극확산계수를 구하고 이 공극확산계수 값과 Batch 실험을 통한 K_d 값을 식 (9)에 대입하여 표면확산계수 값을 구할 수 있다.

3. 실험

3.1 석탄회의 특성 및 분배계수

Culter Counter를 이용하여 입자크기를 측정된 결과 평균입도는 22.84 μ m이었다. ⁽⁷⁾ 그림1은 석탄회의 SEM에 의한 촬영사진이다. 그림에서 보는 바와 같이 석탄회는 대부분 구형을 이루고 있으며 매끄러운 표면상태를 유지하고 있다. 그런데 석탄회를 모의지하수에 1:1로 반죽하여 수분과 접촉시켜 보면 시간의 경과에 따라 그림2, 3, 4에서 보는 바와 같이 구형의 입자 표면에 작은 혹이 점점 지나니 불규칙하게 기린 입자로 변화하는 것을 볼 수 있다. 이는 석탄회의 비표면적 증가를 의미할 수 있다. pH는 Soil Laboratory Method ⁽⁸⁾에 의해 측정하였다. 이 측정에 의해 석탄회의 pH는 9.80 ~ 9.90 정도를 나타내었다. 부수능

측정은 석탄회 시료를 완전히 포화시켜 직경50mm×50mm크기의 원통에 넣고 Falling Head Method⁽⁶⁾로 측정하였다. 측정된 석탄회의 투수율은 3.6×10^{-8} cm/s이며 석탄회가 팽윤성이 없다는 것을 고려한다면 비팽윤성 물질로서는 매우 낮은 투수율을 가지고 있음을 알 수 있다.

본 실험에서는 보령화력발전소에서 채취한 석탄회를 망체에 통과시켜 시료들을 분말형태로 만들어서 24시간 오븐건조 시킨 후 사용하였다. 분배계수의 측정을 위해 모의지하수⁽⁶⁾가 섞인 $10^{-8} \sim 10^{-10}$ mol/l의 방사성용액을 모의지하수와 섞어서 Batch방법으로 석탄회의 Kd값을 측정하였다. 측정된 Kd값은 석탄회의 경우 약 100ml/g이고, 석탄회와 벤토나이트 10:1 혼합시에는 약 800ml/g이며 이 값은 모래를 섞어 실험한 Kd값과 비교하여 효과적인 흡착이 일어남을 알 수 있다.⁽⁷⁾

3.2 Column 실험에 의한 확산계수 측정

3.2.1 실험장치 및 방법

실험장치는 그림6에 보여지는 바와 같이 구성되어 있다. 실험방법은 반응성(Cs-137)원소의 수용액은 $8.31E-09$ mol/l 농도로 500ml를 만들어 사용하였고, 비반응성 용액은 NaCl을 증류수에 녹여서 Cl:200mg/l의 농도로 2000ml를 사용하였다. 매질의 높이측정과 무게측정은 공극률 및 겉보기 밀도에 영향을 미치게 되고 이 인자들은 실험에 있어서 분산계수 및 확산계수에 영향을 미치게 되므로 측정에 있어서 정확성이 요구된다. 매질은 함수율(θ)을 공극률(η)과 같게 하기 위해 충분한 시간을 통해 포화상태로 만든다. 그리고 수조에 용액을 넣고 펌프를 일정한 속도로 가동시켜 용액을 순환시킨다. 매질을 통과한 용액을 일정 용량씩 채취하여 용액내의 원소농도를 구한다. 본 실험에서는 비반응성 용질에 대해서는 적정법⁽⁹⁾을 사용하였고, 반응성 용질에 대해서는 NaI 계측기를 사용하여 계측기로 검출된 계측수를 비교하여 초기농도(C_0)에 대한 매질을 통과한 용질의 농도(C) 비인 C/C_0 를 구하였다.

3.2.2 각 실험별 인자값 계산

가. 석탄회를 통한 Cl 확산 실험

석탄회 매질의 높이는 4.5cm로 하였고, 겉보기 밀도(ρ_b)는 1.190 g/cm^3 , 입자 밀도(ρ)는 2.3 g/cm^3 , 공극률(η)은 0.483, 평균공극수 속도($Q/A/\eta$)는 $2.070 E-04 \text{ cm/sec}$ 이다. 여기서 Q:유량이고, A:매질의 단면적이다. 이 실험을 진행하는 동안 실험실의 온도 변화가 크게 일어났다. 온도의 분포는 $13^\circ\text{C} \sim 6^\circ\text{C}$ 로 확산계수가 온도의 함수임을 고려할 때 무시할 수 없는 것이었다. 본 실험에서는 20 분마다 온도를 측정하여 측정된 공극수 속도와 비교를 하였다. 그림 6에서 보는 바와 같이 공극수속도는 온도의 영향을 받고 그 차이는 무시할 수 없는 것이기에 온도에 따른 공극수 속도를 일정온도(11°C)의 상태로 보정할 필요가 있었다. 먼저 온도와 공극수 속도와의 함수 관계를 찾기 위해 각 온도별 평균 공극수 속도를 구한 후 이를 통해 다항식 회귀법을 이용하여 함수의 형태로 나타내었다. 보정된 온도와 공극수 속도와의 관계는 2차곡선으로 나타났으며 그 관계식은 다음과 같다.

$$V = 0.019189 T^2 - 0.216538 T + 2.163785$$

여기서 V : 공극수 속도 [$E-04 \text{ cm/sec}$], T : 온도 [$^\circ\text{C}$]이다.

위 식을 이용하여 각 온도별로 보정된 공극수 속도(V^*)를 구한 후 온도에 맞춰 실측 공극수 속도(V_0)와의 오차를 구해 11°C 로 보정된 속도에 곱하여 V^{**} 를 구해 이를 실험 자료로 삼아 평균공극수 속도를 구하였다.

나. 석탄회를 통한 Cs 확산 실험

석탄회 매질의 높이는 0.5cm로 하였고, 겉보기밀도(ρ_b)는 1.189 g/cm³, 입자밀도(ρ)는 2.3g/cm³, 평균 공극수 속도는 4.940 E-04 cm/sec 이다.

다. 석탄회와 벤토나이트 혼합체를 통한 CI 확산 실험

혼합비율(석탄회:동해-A벤토나이트의 무게비)은 10:1, 혼합매질의 높이는 0.25cm, 겉보기 밀도 (ρ_b)는 1.406 g/cm³, 입자밀도(ρ)는 2.3 g/cm³, 공극율은 0.3885, 평균공극수 속도는 1.175 E-04 cm/sec으로 하였다.

4. 실험 결과 분석

4.1 석탄회에서의 CI(비반응성용질) 확산 실험

CI은 흡착이 안되므로 식(2)를 통해 분석을 한다. 먼저 실험을 통해 얻은 자료를 보정프로그램에 넣어 분산계수 $D = 2.217 \text{ E-}05 \text{ cm}^2/\text{sec}$ 를 구하였다. 그리고 미리 구한 평균 공극수 속도(\bar{V})와 D_0 를 이용하였고, τ 의 경우 연구결과⁽⁵⁾에 의하면 벤토나이트 단일 매질에서는 0.84의 값을 갖으며 매질 입자의 크기가 증가할수록 작아짐을 고려하여 0.8로 하였다.⁽¹⁾ 이렇게 구한 α 는 0.068의 값을 갖는다. 비반응성용질에 대한 분산계수는 확산항($D_0 \cdot \tau = 8 \text{ E-}06 \text{ cm}^2/\text{sec}$)에 비해 분산항($\alpha \cdot \bar{V} = 1.407 \text{ E-}05 \text{ cm}^2/\text{sec}$)의 영향을 더 많이 받는 것을 알 수 있다.

4.2 석탄회에서의 Cs(반응성용질) 확산 실험

Cs의 처음 농도 C_0 는 $8.31 \text{ E-}9 \text{ mol}/\ell$ 이다. 본 실험에서는 식 (8), (9)를 이용하여 공극확산계수와 표면확산계수를 구하였다. 이 실험에서의 공극부피에 대한 C/Co의 변화는 그림 7과 같은 파과곡선형태로 나타난다. 이 파과곡선에서 세로축은 초기농도에 대한 매질을 통과한 용질의 농도비로 나타났고, 가로축은 매질을 통과해 나온 용액의 부피를 공극부피의 비율로 나타낸 것이다. 먼저 실험 자료와 보정프로그램을 통하여 $D = 7.787 \text{ E-}05 \text{ cm}^2/\text{sec}$ 를 구하고, Batch 실험을 통해 얻은 K_d (100 ml/g)값을 적용하여 $V' = 4.754 \text{ E-}07 \text{ cm}/\text{sec}$, $D' = 3.150 \text{ E-}07 \text{ cm}^2/\text{sec}$ 를 얻은 후 식 (8)을 이용하여 구한 겉보기 확산계수값(D_a)은 $3.050 \text{ E-}07 \text{ cm}^2/\text{sec}$ 이다.

4.3 석탄회와 동해-A 벤토나이트 혼합체 (10:1의 무게비)에서 Cs-137 확산 실험

본 실험에서는 공극수 속도의 측정값의 분포가 너무 넓어 먼저 D_a 를 구하고 앞에서의 Batch 실험을 통한 K_d 값과 R_d 값을 가지고 역으로 분산계수를 산출하였다. 먼저 앞에서 실험을 통해 얻은 K_d 값은 석탄회:벤토나이트의 혼합비율이 10:1 일 때 약 800 ml/g 이고 R_d 는 2896 이다. 여기서 D_a 는 다음 식을 이용하여 구한다. 다음 식에서 x 는 장치내의 확산매질의 길이이며 t 는 C/C_0 가 0.5 일때의 시간(sec)이다.⁽¹⁰⁾

$$C(x, t) = C_0 \operatorname{erfc} \left[\frac{x}{2\sqrt{D_a \cdot t}} \right] - 849 -$$

위 식을 통하여 $D_a = 4.5457 \text{ E-}08 \text{ cm}^2/\text{sec}$ 를 얻고, 이 실험에서 공극 부피에 대한 농도 비의 변화는 그림 8에 나타내었다. 그림 7과 그림 8에 나타낸 파파곡선을 비교해 볼때, $C/C_0=0.5$ 에 도달 하는데 석탄회만을 사용한 경우의 공극부피는 80이고, 동해-A 벤토나이트 10%섞은 혼합체의 공극부피는 710이다. 초기농도에 비해 같은 농도에 도달하는데 많은 공극부피가 소요된다는 것은 확산계수가 작아진다고 판단된다.

4.4 표면확산 및 공극확산계수의 계산 및 검토

D_s 와 D_p 는 (9)식의 두번째 D_a 항을 이용하여 계산하였다. 각 인자값은 앞에서 구한 값들을 사용하였다. D_p 값은 표면확산이 없는 비반응성 용질의 경우($K_d=0$)에 $D_a=D_p/\eta=D_p$, $D_p=\tau \cdot D_0$ 이다. D_0 값은 C_s 에 대해 $2\text{E-}5\text{cm}^2/\text{sec}$ ^[6]의 값을 갖는다. τ 와 α 값은 실험 4.1에서 얻은 값을 사용하였다. 구해진 공극확산계수(D_p)와 표면확산계수(D_s) 등은 표.1에 나타내었다.

표.1 공극확산계수와 표면확산계수 비교

	석탄회에서 C_s 의 확산계수	석탄회+동해A-벤토나이트 혼합체에서 C_s 의 확산계수	reference data ¹ (압축 B← C_s)	reference data ² (B ← C_s)
D_a [cm^2/sec]	3.050 E-07	4.546 E-08	6.71 E-09	2.5 E-08
D_p [cm^2/sec]	1.600 E-05	1.600 E-05	1.012 E-06	9.5 E-07
D_{ip} [cm^2/sec]	7.728 E-06	6.216 E-06		
D_s [cm^2/sec]	2.412 E-07	3.995 E-08	6.66 E-09	0.5-2.1 E-08
① [cm^2/sec]	6.473 E-08	5.524 E-09		
② [cm^2/sec]	2.402 E-07	3.994 E-08		
①/ D_a	0.268	0.122		
②/ D_a	0.787	0.879		
D_s/D_a	0.791	0.879		

$$\textcircled{1} = \frac{D_{ip}}{\eta + K_d \cdot \rho_b} \quad \textcircled{2} = \frac{K_d \cdot \rho_b \cdot D_s}{\eta + K_d \cdot \rho_b}$$

5. 결 과

이상의 실험 및 결과 분석을 통하여 석탄회는 벤토나이트 사이에 침투하여 충전율을 증가시켜 줄 수 있는 미세한 입자크기, 그리고 비팽윤성 물질로서는 낮은 투수능과, 뒷채움재의 견전성을 높일 수 있는 낮은 함수율등은 부재료로서의 이상적인 조건이라 여겨진다. 확산 실험에서 겉보기 확산대 공극확산의 비보다 표면확산의 비가 높게 나타났는데, 이는 매질로 사용할 석탄회를 모의지하수와 충분히 접촉시켜 포화상태가 되었을 때 석탄회의 표면적이 거칠어지기 시작하여 표면확산의 경로가 되는 미세공극이 증가한다고 생각되어진다. 그래서 공극률의 감소현상이 발생하고, 표면적이 증가하는 현상으로 판단되나 더 많은 연구가 필요하다.

참 고 문 헌

1. W.D.Reynolds. "Evaluation of distribution coefficients for the prediction of strontium and cesium," Department of Earth Sciences, Univ. of Waterloo, Waterloo,

- Ont., Canada, N2L3GL, 1981
2. M.Fukui, K.Katsurayama, "Fundamental Study on Longitudinal Dispersion of Tritiated Water Through Saturated Porous Media," Health Physics Pergamon, Vol. 28, pp717~725, 1975
 3. J.H.Westsik Jr., F.N.Hodges, W.L.Kuhn, and T.R.Myers, "Water Migration Through Compacted Bentonite Backfills for Containment of High-Level Nuclear Waste," Nuclear & Chemical Waste Management, Vol.4, pp.291-299, 1983
 4. R.W.Gillham, "Diffusion of nonreactive and reactive solutes through finegrained barrier materials," Department of Earth Sciences, Univ.of Waterloo, Waterloo, Ont., Canada, N2L3GL, 1984
 5. Chung Kyun PARK, Hun Hwee PARK, " Computer Simulation Study of Transient Diffusion of Cesium Through Granite With Unsteady-State Diffusion Model," Korea Atomic Energy Research Institute, Taejeon, Korea, 1991
 6. 최종원, "사용후핵연료 처분장의 공학적방벽으로서 국산벤토나이트의 기능적 특성에 관한연구," 한양대학교 원자력공학과 박사학위논문, 1991
 7. 윤형준, "방사성폐기물 처분장 뒷채움재로서의 석탄회사용 가능성," 경희대학교 원자력공학과 석사학위논문, 1994
 8. K. H. Head, "Soil Laboratory Testing," Pentech press, 1986
 9. 김남천, "환경공학실험(수질편)," 도서출판 동화기술, 1988
 10. J.Crank, "The mathematics of Diffusion," 2nd., "Clarendon Press, Oxford, pp.11-53, 1976

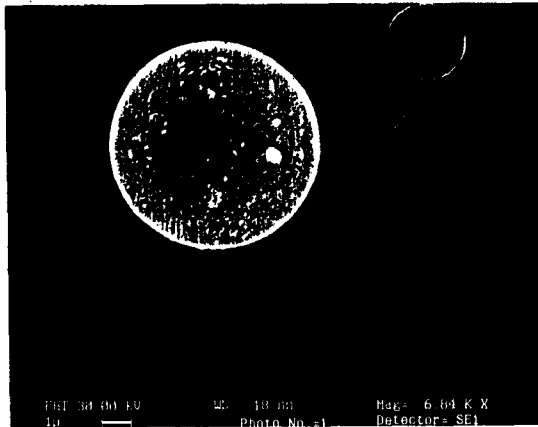


그림1. 석탄회의 입자형태

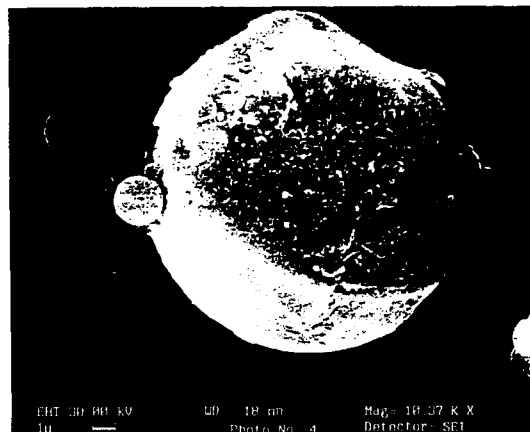


그림2. 시간경과(13일)에 따른 석탄회의 입자형태 변화

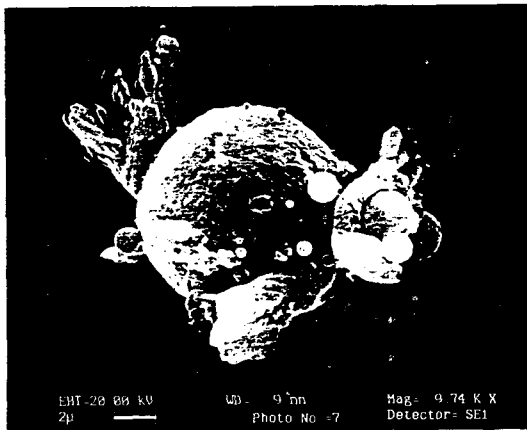


그림3. 시간경과(42일)에 따른 석탄회의 입자형태 변화

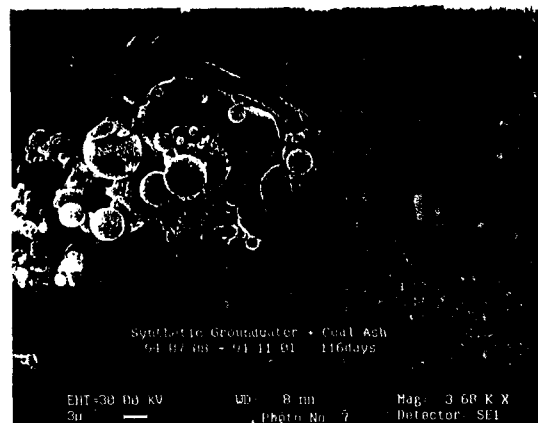
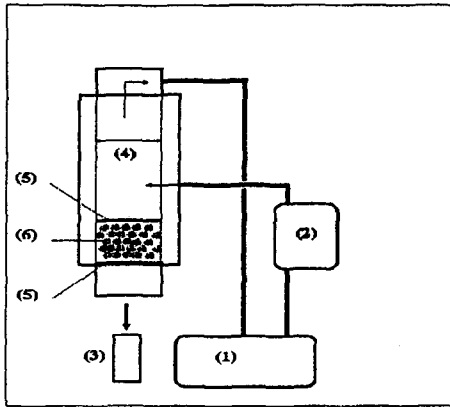


그림4. 시간경과(116일)에 따른 석탄회의 입자형태 변화



(1) 수조 (2) pump (3) Bial (4) 내경 : 2.5 cm
(5) 망체 : 공극 $2\mu\text{m}$ 이하 (6) 매질

그림5. 액종이동기구 실험장치

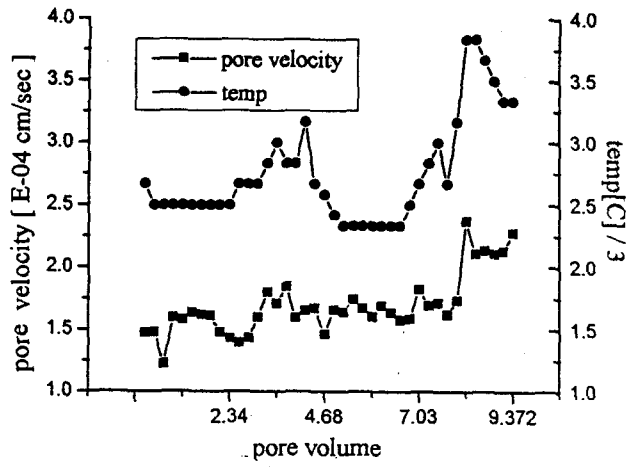


그림6. 온도에 따른 공극수 속도 변화

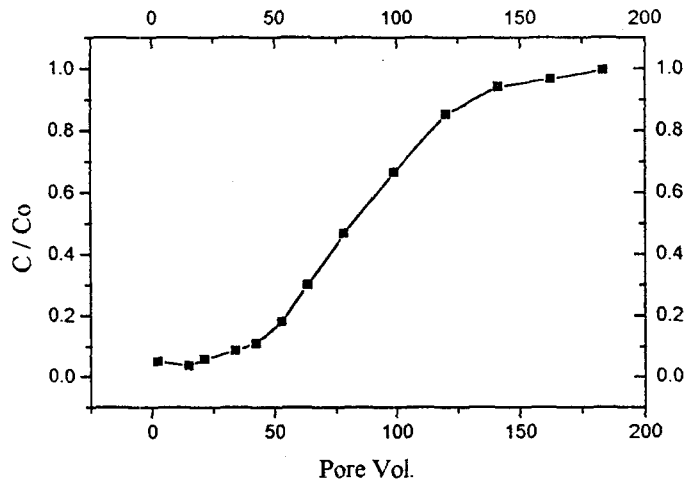


그림7. 석탄회를 통과하는 Cs의 농도비 변화곡선

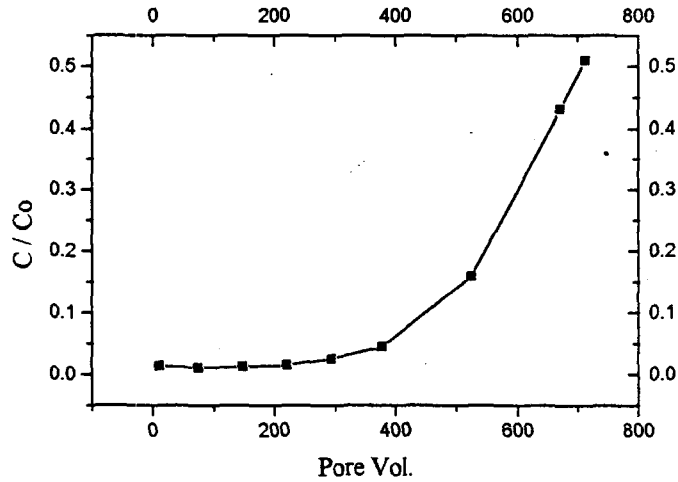


그림8. 석탄회와 동해-A 벤토나이트 혼합체를 통과하는 Cs의 농도비 변화 곡선