

평형농도 개념과 고화체 내부 및 주변매질에서의 확산을 고려한 침출식과 모델 검증

김창락[†] · 조찬희 · 최희주 · 이명찬 · 김진웅

한국원자력연구소 원자력환경관리센터
(1994년 2월 2일 접수, 1995년 1월 7일 채택)

Leach Rate Expression Based on Equilibrium Concept and Realistic Boundary Conditions and Model Validation

Chang Lak Kim[†], Chan Hee Cho, Heui Joo Choi, Myung Chan Lee and Jhinwung Kim

Nuclear Environment Management Center, Korea Atomic Energy Research Institute
(Received 2 February 1994; accepted 7 January 1995)

요 약

시멘트 고화체 내 확산과 흡착평형을 고려하고 고화체 표면에서 농도와 질량플럭스의 연속성을 경계조건으로 사용한 침출율 예측모델을 개발하였다. 또한 확산에 의하지 않은 고화체 표면의 제반상태에 영향을 받은 핵종유출 부분을 초기 유실누적분율로 정의하여 반영하였다. 침출모델의 검증을 위하여 담수, 해수, 토양 등의 다양한 침출환경에서 수행된 침출실험결과와 비교하였다. 본 침출모델은 다양한 침출실험결과를 설명하는데 유용하게 사용될 수 있으리라고 판단된다.

Abstract—A model equation for nuclide leaching from cementitious waste form is formulated based on diffusion, sorption equilibrium, and the continuity boundary conditions of concentration and flux on the waste form surface. Nuclide release unrelated to diffusive transport mechanism is reflected in the model as a wash-off fraction which depends on the surface conditions of the waste form. This leaching model is validated by comparison with the results of leaching experiments in various environments including land water, sea water and soils. It is expected that this leaching model will be used satisfactorily in analyzing various leaching experimental results.

1. 서 론

원자력발전소에서 발생된 중·저준위 방사성폐기물은 대부분 시멘트로 고화하고 있다. 고화된 폐기물로부터 지하수로 유출되는 유출율은 방사성핵종의 수리지질학적 이동모형의 선원항으로 사용되며, 장기간에 걸친 방사성핵종의 침출율에 대한 신뢰할만한 예측방법의 확보는 처분 안전성평가에 있어서 필수적이다.

방사성핵종의 침출율을 예측하는 모델이 기존에 제시되어 왔으나 대부분의 모델[1-3]이 수학적 어려움을 극복하기 위해 비현실적인 경계조건을 도입함으로써 비교적 보수적 평가에 초점을 맞추어 왔다. 따라서 보수적이면서도 현실적인 예측을 위하여 침출모델의 개선이 필요하며, 본 연구에서는 이에따라 모델을 개선하였으며, 개선된 침출모델이 실제 침출실험결과에 어느정도 부합되는지를 일본의 JAERI에서 실시한 침출

실험결과[4]와 비교함으로써 검증은 시도하였다.

2. 개선된 침출모델

시멘트와 같이 다공성매질에 고화되어 있는 방사성 핵종의 유출율은 확산에 의해 지배되는 유출개념[1]을 가정함으로써 예측하는 것이 일반적이다. 시멘트 고화체의 침출율을 예측하는 기존모델은 다음과 같은 몇 가지 유형[2]으로 분류할 수 있다. (1) 확산과 화학반응을 고려한 경우, (2) 확산과 포화농도를 고려한 경우, (3) 화학반응만을 고려한 경우. 그러나 이와 같은 모델들은 대부분 수학적 어려움을 피하기 위해 비현실적인 경계조건을 사용하는 경우가 많다. Nestor[3]에 의해 유도된, a 의 반지름과 $2L$ 의 높이를 갖는 용기가 핵종유출 방벽으로서의 기능을 상실하였을 때 원통형 고화체로부터의 비방사성 핵종의 이동에 관한 누적침출분율(cumulative release fraction)식은 약간의 수정후에 여러 안전성평가 코드[5,6]에 사용되고 있다. 그러나 이 모델도 역시 수학적 어려움을 극복하기 위해 고화체 표면에서 핵종의 농도를 0으로 가정한 비현실적인 경계조건을 사용한 단점이 있다. 이러한 단점을 보완하기 위해 평형농도개념에 바탕을 둔 새로운 시멘트 고화체로부터의 침출율 예측모델을 개발하였으며, 이 모델을 장기간의 정적 침출실험(Static Leaching Test) 결과와 비교함으로써 검증은 시도하였다.

본 연구에서 핵종침출율 예측을 위해 사용된 주된 가정은 다음과 같다.

(1) 초기($t=0$)에 고화체 내부에서의 핵종분포는 균일하다.

(2) 유출이 시작되는 순간 각 핵종들은 고화체 내부의 공극수에서 흡착평형농도를 가진다.

(3) 방사선이나 열에 의한 고화체의 성질 변화는 무시된다.

(4) 지하수에 의해 고화체는 완전 포화상태에 있다.

이러한 가정하에 기존모델에서 사용되어 왔던 비현실적인 경계조건을 바로 잡기 위해 고화체 표면에서 농도의 연속성과 질량플럭스의 연속성을 경계조건으로 사용한 모델을 개발하였다. 이 모델은 확산, 흡착, 방사성붕괴를 포함한 원통형 좌표에서 무한길이의 고화체 내부로부터 주변 다공성 매질(예를들면, 되매움재 또는 암반층)로의 방사성핵종의 이동을 나타내며 식 (1), (2)와 같이 기술된다.

$$R_r \frac{\partial C_1(r, t)}{\partial t} = D_r \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[r \frac{\partial C_1(r, t)}{\partial r} \right] - R_r \lambda C_1(r, t), \quad 0 < r < a, t > 0 \quad (1)$$

$$R_p \frac{\partial C_2(r, t)}{\partial t} = D_p \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[r \frac{\partial C_2(r, t)}{\partial r} \right] - R_p \lambda C_2(r, t), \quad r \geq a, t > 0 \quad (2)$$

여기서 C_1 과 C_2 는 각각 고화체 내부와 고화체 주변 다공성 매질의 포화 공극 내에서의 임의의 방사성핵종의 농도를 의미하며, λ 는 방사성 붕괴상수, a 는 고화체의 반경, R_r 는 고화체에서의 핵종이동 지연계수, R_p 는 고화체 주변 다공성매질에서의 핵종이동 지연계수, D_r 는 고화체 내 포화공극에서의 확산계수, 그리고 D_p 는 고화체 주변 다공성매질에서의 공극 내 확산계수이다. 식 (1), (2)와 상응하는 초기조건 및 경계조건은 다음과 같다.

$$C_1(r, 0) = C_0, \quad 0 \leq r \leq a \quad (3)$$

$$C_2(r, 0) = 0, \quad r > a \quad (4)$$

$$C_1(a, t) = C_2(a, t), \quad t > 0 \quad (5)$$

$$- \varepsilon_1 D_r \frac{\partial C_1(a, t)}{\partial r} = - \varepsilon_2 D_p \frac{\partial C_2(a, t)}{\partial r}, \quad t > 0 \quad (6)$$

$$\frac{\partial C_1(0, t)}{\partial r} = 0, \quad t > 0 \quad (7)$$

$$C_2(\infty, t) = 0, \quad t \geq 0 \quad (8)$$

식 (3)과 (4)에 나타나 있는 바와 같이 초기에는 핵종농도가 고화체 내부에서 균일하며, 아직 유출이 시작되지 않았기 때문에 주변 암반층에는 핵종들이 존재하지 않는다. 식 (5)와 (6)은 용기표면에서의 농도와 질량플럭스의 연속성을 표현한 것이며, ε_1 과 ε_2 는 각각 고화체와 주변매질의 공극률을 의미한다. 식 (7)은 원통좌표 중심상에서 대칭적으로 농도가 표현된다는 무선속 조건을 표현한 것이다.

식 (1)과 (2)를 초기조건 (3)과 (4)를 고려하여 라플라스 변환을 취한 후 경계조건 (5)-(8)을 사용하면 라플라스 변환된 영역 s 에서의 고화체 내부 공극에서 핵종농도 $\bar{C}_1(r, s)$ 와 고화체 주변매질에서의 핵종농도 $\bar{C}_2(r, s)$ 는 다음과 같으며, 자세한 유도과정은 부록에 첨부하였다.

$$\bar{C}_1(r, s) = \frac{C_0}{s + \lambda} - \frac{PC_0 \frac{I_0(\sqrt{(s+\lambda)r^2/D_1})}{I_1(\sqrt{(s+\lambda)a^2/D_1})}}{(s+\lambda) \left[\frac{K_0(\sqrt{(s+\lambda)a^2/D_2})}{K_1(\sqrt{(s+\lambda)a^2/D_2})} + P \frac{I_0(\sqrt{(s+\lambda)a^2/D_1})}{I_1(\sqrt{(s+\lambda)a^2/D_1})} \right]} \quad (9)$$

$$\bar{C}_2(r, s) = \frac{C_0 \frac{K_0(\sqrt{(s+\lambda)r^2/D_2})}{K_1(\sqrt{(s+\lambda)a^2/D_2})}}{(s+\lambda) \left[\frac{K_0(\sqrt{(s+\lambda)a^2/D_2})}{K_1(\sqrt{(s+\lambda)a^2/D_2})} + P \frac{I_0(\sqrt{(s+\lambda)a^2/D_1})}{I_1(\sqrt{(s+\lambda)a^2/D_1})} \right]} \quad (10)$$

여기서, I_0 , I_1 , K_0 , K_1 은 각각 modified Bessel function이며,

$$\bar{C}_1(r, s) = \int_0^\infty C_1(r, t) \exp(-st) dt \quad (11)$$

$$D_1 = D_c/R_c \quad (12)$$

$$D_2 = D_p/R_p \quad (13)$$

$$P = \frac{\varepsilon_2 \sqrt{D_p R_p}}{\varepsilon_1 \sqrt{D_c R_c}} \quad (14)$$

식 (9)와 (10)에서 고화체에서의 겉보기 확산계수 D_1 과 고화체 내 공극수의 초기농도 C_0 는 다음과 같이 결정할 수 있다[7]. 즉 겉보기 확산계수 D_1 은 물에서의 핵종의 확산계수 D_0 와 매질의 고유특성(tortuosity)을 반영한 τ_1 , 핵종의 고화체에 대한 흡착비 Rd_1 과 고화체의 밀도 ρ_1 , 그리고 고화체의 공극률 ε_1 과 다음과 같은 상관관계를 보인다.

$$D_1 = \frac{D_0 \tau_1}{1 + \frac{\rho_1}{\varepsilon_1} Rd_1} \quad (15)$$

$$C_0 = \frac{M^0}{2\pi a^2 L(Rd_1 \rho_1 + \varepsilon_1)} \quad (16)$$

여기서 C_0 는 고화체 내 핵종의 초기재고 M^0 가 흡착평형을 이루었을 때의 고화체 내 공극수에서의 핵종농도를 의미한다.

식 (9)와 (10)을 탈보트의 알고리즘을 사용하여 수치적인 방법[7]으로 라플라스 역변환하여 고화체 내부 공극에서의 핵종농도 $C_1(r, t)/C_0$ 와 고화체 주변매질의 포화공극에서의 핵종농도 $C_2(r, t)/C_0$ 를 계산한 예는 Fig. 1에 보였다. 침출실험시의 조건하에서($D_2=D_0$, $\varepsilon_2=1$, $R_p=1$) 시멘트 고화된 Cs-137이 침출시작후 경과시간에 따라 고화체 내부와 주변의 물에서의 농도변화 추이를 보면, 고화체 표면 근처의 핵종이 우선 확산되어 나오고 점차 시간이 경과하면서 방사성붕괴의 영향도 나타남을 알 수 있다. 일단 침출되어 나온 핵종은 물에서 빨리 확산됨을 알 수 있다. Fig. 1에 공통적으로 사용된 파라미터 값은 $D_0=1.82 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$, $\varepsilon_1=0.113$, $\rho_1=$

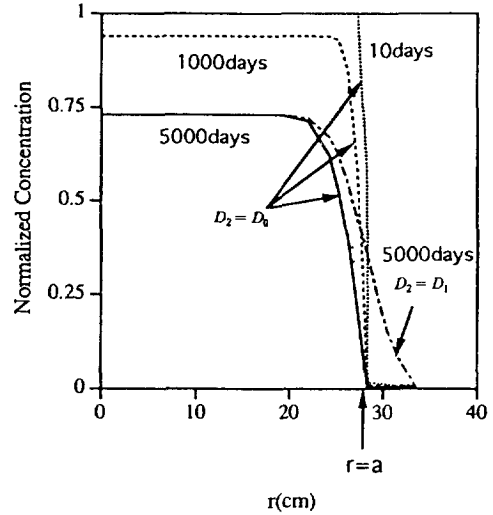


Fig. 1. Normalized concentration $C_1(r, t)/C_0$ in the waste form($0 \leq r \leq a$) and $C_2(r, t)/C_0$ in the surrounding medium($r > a$) of Cs-137 at $t=10$ days, 1000 days, and 5000 days($D_2=D_0$ for free water, no sorption in media; $D_2=D_1$ for backfill same as waste).

2.45 g/cm^3 , $\tau_1=3.7 \times 10^{-3}$, $Rd_1=0.3 \text{ ml/g}$ 이다. 이에 비해 주변이 고화체와 같은 특성을 가지고 있다고 가정할 경우($D_2=D_1$), 표면농도는 매우 큰 값을 갖는다. 실제 처분환경인 고화체가 포화된 다공성매질에 둘러 쌓여 있을 때는 표면에서의 농도가 훨씬 늦게 줄어 들어서, 표면농도가 0이라는 비현실적인 경계조건을 사용하는 기존모델의 단점을 분명히 알 수 있으며, 여기서 본 논문에서 제안된 개선된 침출모델의 의미를 찾을 수 있다.

라플라스 변환된 영역에서의 확산에 의한 고화체로부터의 핵종 유출율은 고화체 표면에서의 농도를 고화체 내부와 주변 다공성매질과의 연속성을 고려하여 다음과 같이 유도되었다.

$$\bar{J}(a, s) = 4\pi a L F \left\{ -\varepsilon_1 D_c \frac{d\bar{C}_1(a, s)}{dr} \right\} \quad (17)$$

식 (9)와 (17)로부터 라플라스 변환된 영역에서의 고화체로부터 핵종 유출율에 대한 최종적 표현은 다음과 같다.

$$\bar{J}(a, s) = \frac{4\pi a L F C_0 \varepsilon_2 \sqrt{D_p R_p}}{\sqrt{(s+\lambda)} \left[\frac{K_0(\sqrt{(s+\lambda)a^2/D_2})}{K_1(\sqrt{(s+\lambda)a^2/D_2})} + P \frac{I_0(\sqrt{(s+\lambda)a^2/D_1})}{I_1(\sqrt{(s+\lambda)a^2/D_1})} \right]} \quad (18)$$

Table 1. Full size cement forms for sea water tests[4]

Test piece no.	Nominal volume (l)	Mix ratio of waste	Radionuclide added to waste form(10^7 Bq)			Diameter (mm)	Height (mm)	Weight (kg)
			Co-60	Sr-90	Cs-137			
K1	200	0.05	16.3	3.63	14.1	568	726	359.4
K2	200	0.05	16.3	3.63	14.1	568	725	359.0
K3	200	0.067	2.48	1.67	1.18	567	744	373.8
K4	200	0.067	2.48	1.67	1.18	568	748	375.2

Table 2. Full size cement forms for land water tests[4]

Test piece no.	Nominal volume (l)	Mix ratio of waste	Radionuclide added to waste form(10^7 Bq)			Diameter (mm)	Height (mm)	Weight (kg)
			Co-60	Sr-90	Cs-137			
R1	200	0.05	2.48	1.67	11.5	568	760	372.2
R2	200	0.05	2.44	1.63	11.5	567	751	369.4
R3	200	0.067	2.89	1.92	1.11	567	706	360.0
R4	200	0.067	2.89	1.92	1.15	567	707	362.2
R5	50	0.05	0.70	0.48	0.34	390	453	107.6
R6	50	0.067	0.70	0.48	0.34	390	453	107.8

여기서 2L은 원통형 고화체의 길이, 그리고 F는 유한 원통길이에 대해 보정을 해주는 보정상수($F=1+a/2L$)이다.

실제 침출실험결과를 보면 침출이 일어난 초기에는 확산이 조절하는 침출모델(이하 확산모델이라 부름)의 예측치보다 비교적 빠른 침출율을 보이고 어느 정도의 시간이 경과한 후에야 확산모델을 만족시킴을 알 수 있다[8]. 초기의 빠른 핵종유�출을 일명 Wash Off Effect라고도 부르는데, 이 현상은 미세 구조상의 표면 불균일로 인해 폐기물 고화체의 실제 표면적이 기하학적 표면적보다 크게 된다는 점과 일부 미립입자들이 다른 입자들보다 빨리 용해(preferential dissolution)되는데 기인한다고 추측하고 있다[9]. 그러나 이와 같은 일시적인 유실(wash off)의 실제적 메커니즘과 원인에 대해서는 아직까지 결론이 나오지 못했는데, 단지 실험의 실제 조건이 모델에서 설정한 가정들을 만족시키지 못하고 있다는 사실을 반영한다고 해석할 수도 있다[8]. 따라서 본 연구에서는 확산에 의하지 아니한 시편 표면의 제반상태에 영향을 받는 핵종유�출 부분을 고려하여 고화체로부터의 누적침출분율 $F(t)$ 을 아래와 같이 정의하였다.

$$F(t) = \int_0^t J(a, t') dt' / M' + \alpha \quad (19)$$

여기서 $J(a, t)$ 는 원통형 고화체로부터의 침출율식 (16)의 라플라스 역변환된 식을 나타내고, α 는 경험적으로

결정되어야 할 초기 유실누적분율을 뜻하는데, 실험결과 해석시 확산에 의하지 아니한 시편 표면의 제반상태에 의한 영향을 총칭한다. 본 연구에서는 $J(a, t')$ 를 탈보트의 알고리즘을 사용하여 수치적인 방법에 의해 라플라스 역변환하였다[7].

3. 개선된 침출모델의 검증

Miyamoto[4] 등의 방사성 핵종 침출실험 절차는 다음과 같다. 침출실험은 거의 3년에 걸친 장기간 동안 실시하였고 Cs-137, Sr-90, 그리고 Co-60 등을 시멘트에 첨가하여 200리터와 50리터 크기의 시멘트 고화체 시편을 만들었다. 특히 주변 매질을 담수, 해수, 토양 등으로 다양화하여 침출실험을 실시하였기 때문에 처분부지 환경에 맞는 실험결과를 선택하여 이용할 수 있을 것이다. 해수를 이용한 침출실험은 해양처분과 관련하여 실시되었으며 해수의 온도를 2°C로 유지하여 4개의 시편(K1-K4)을 해수가 들어있는 용기에 완전히 담가 실험을 실시하였다. 육지처분에 대비한 담수에서의 실험은 deionized water를 사용하여 온도를 20°C로 유지시켜 6개의 시편(R1-R6)으로 실험을 실시하였다. 특히 토양과의 직접 접촉이 예상되는 처분방식과 관련하여 8개의 고화체 시편(D1-D8)을 실험용기 내의 지하수에 의해 포화된 토양에 완전히 묻고 온도를 20°C로 유지시켜 실험을 실시하였다. 침출실험 후에는 고화체 시편을 절

Table 3. Full size cement forms for soil tests[4]

Test piece no.	Nominal volume (l)	Mix ratio of waste	Radionuclide added to waste form(10^7 Bq)			Diameter (mm)	Height (mm)	Weight (kg)
			Co-60	Sr-90	Cs-137			
D1	200	0.05	2.37	1.59	1.11	567	744	361.0
D2	200	0.05	2.44	1.63	1.15	567	752	369.2
D3	200	0.05	2.52	1.67	1.18	567	771	379.8
D4	200	0.05	2.41	1.55	1.11	568	720	353.2
D5	50	0.05	0.78	0.52	0.36	390	498	114.6
D6	50	0.05	0.67	0.44	0.31	390	430	101.0
D7	50	0.05	0.78	0.52	0.36	389	499	116.4
D8	50	0.05	0.74	0.52	0.34	389	447	109.8

단하여 시편 내 핵종밀도 분포를 측정하였고 특히 토양환경의 경우에는 토양 내에 흡착된 핵종의 분포와 침출수 내의 핵종의 양으로부터 그 핵종의 침출량을 계산하였다. 각 고화체 시편의 특성은 다음의 Table 1-3과 같다.

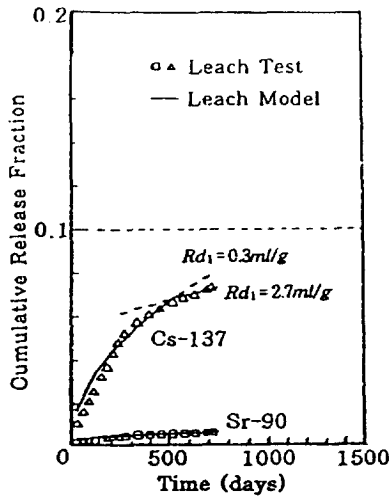
침출실험은 보수적인 측면에서 처분후 즉시 폐기물 드럼이 완전히 부식되어 시멘트 고화체 전면이 외부매질에 완전히 노출되는 것으로 가정한다. 따라서 침출 실험시 탄소강 드럼없이 고화체 시편을 담수 또는 해수에 직접 담구거나, 혹은 토양에 직접 묻어 실험을 실시하였다. 침출수는 한달 혹은 두달에 한번씩 추출하여 침출된 양을 측정하였다. Cs-137, Co-60 등과 같은 감마방출 핵종은 침출수를 증발기로 농축시킨 후 측정하였으며, Sr-90의 경우는 침출수에서 감마방출 핵종으로부터 Sr-90을 화학적으로 분리하여 Standard Fuming Nitric Acid Procedure에 따라 측정하였다고 보고되었다 [4]. 토양환경의 경우 200리터 시멘트 고화체 시편에 대해서는 약 310 mm 두께의 토양을 외부매질로 사용하였으며 50리터 시멘트 고화체 시편에 대해서는 약 180 mm 두께의 토양을 사용하였다.

개선된 침출모델의 검증을 위하여 위의 실험결과와 비교하여 보았다. 본 연구에서 인용한 논문[4]에 Miyamoto 등이 결과를 제시한 담수의 경우 R1과 R5, 해수의 경우 K2의 실험결과에 대하여 검증하여 보았고, 토양의 경우는 D1만이 보고되었기 때문에 D1만을 검증대상에 포함시켜 계산하여 보았다. 실험기간 동안 Co-60의 침출은 거의 관찰되지 않았다고 보고되었기 때문에 본 연구에서 Co-60에 대하여 개선된 침출모델을 적용할 수 없었다. 식 (18)과 (19)에 사용된 파라미터 값은 $D_0 = 1.82 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$, $\epsilon_1 = 0.113$, $\rho_1 = 2.45 \text{ g/cm}^3$, $\tau_1 = 3.7 \times 10^{-3}$ 이다[10].

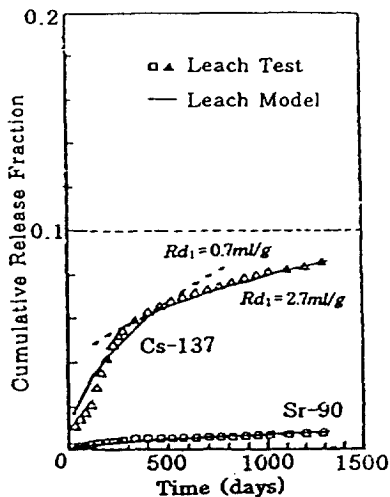
Fig. 2(a)는 시편 R1을 사용한 실험결과와 침출모델의 예측결과를 보여주고 있는데, Cs-137의 경우, 침출초기

에는 $Rd_1 = 0.30 \text{ ml/g}$ 을 가정할 때 실험결과와 잘 일치하였으며 500일 이후에 대해서는 $Rd_1 = 2.7 \text{ ml/g}$ 와 $\alpha = 0.043$ 에 대해 결과가 잘 일치하였다. Sr-90의 경우는 $Rd_1 = 100 \text{ ml/g}$ 와 $\alpha = 0.002$ 를 사용하면 전 실험기간의 침출거동을 잘 재현할 수 있었다. Fig. 2(b)는 시편 R5를 사용한 실험결과와 침출모델의 예측결과를 보여주고 있는데, Cs-137의 경우 침출초기에는 $Rd_1 = 0.70 \text{ ml/g}$ 을 가정할 때 실험결과와 잘 일치하였으며, 역시 500일 이후에는 $Rd_1 = 2.7 \text{ ml/g}$ 와 $\alpha = 0.031$ 에 대해 결과가 잘 일치하였다. Sr-90의 경우는 $Rd_1 = 100 \text{ ml/g}$ 와 $\alpha = 0.0003$ 을 사용하면 전 실험기간의 침출거동을 잘 재현할 수 있었다.

Sr-90의 경우 Cs-137에 비해 시멘트 고화체 내에서 흡착평형이 비교적 빨리 도달하여서 전 실험기간에 대해 단일의 흡착비인 $Rd_1 = 100 \text{ ml/g}$ 을 사용했을 때 실험결과와 침출모델의 예측결과가 잘 일치하였다. 이와 같은 결과로부터 JAERI의 침출시험에 사용된 시멘트를 담수에 담갔을 때 Sr-90의 평형분배계수는 $Kd_1 = 100 \text{ ml/g}$ 이라고 추정이 가능하게 된다. 반면에 Cs-137의 경우는 흡착평형 도달이 느려서 약 500일이 지난후에야 R1과 R5의 침출실험결과에 대해 동일한 흡착비인 $Rd_1 = 2.7 \text{ ml/g}$ 으로 실험결과와 재현이 가능하였다. Table 2에서 알 수 있듯이 R1과 R5 시편은 200리터와 50리터로 크기가 서로 다르고 고화체 내 핵종의 양 또한 상이하며, 고화체의 폐액과의 혼합비와 시멘트의 성분 등은 같다. 본 연구에서는 개량된 침출모델이 고화체의 이러한 차이에도 불구하고 핵종별로 같은 흡착비, 겉보기 확산계수로 장기간에 걸친 침출경향의 예측이 가능함을 보이고 있다. 비록 침출초기의 빠른 핵종유출을 침출모델로 재현이 가능하기는 하지만 이 경우 흡착비는 평형분배계수가 아닌 비교적 작은 흡착비(예를들면, R1 실험에 대해서는 $Rd_1 = 0.3 \text{ ml/g}$ 이고, R5 실험에 대해서는 $Rd_1 = 0.7 \text{ ml/g}$)를 사용하여야 했다. Johnston[10]



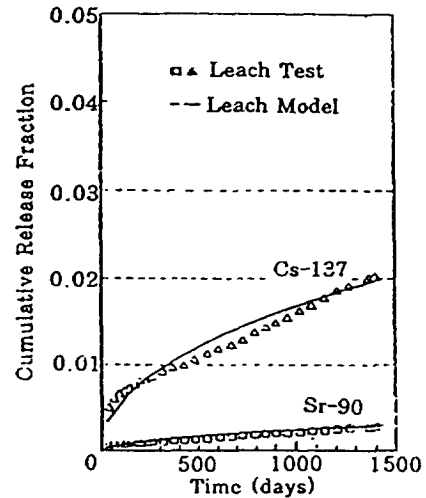
(a) R1



(b) R5

Fig. 2. Comparison of the measured cumulative release fraction[4] and the estimated cumulative release fraction of Cs-137 and Sr-90 in land water as a function of time after initiation of leaching test.

이 보고한 흡착비인 세슘의 0.12 ml/g과 스트론튬의 0.18 ml/g, 영국 AEA[11]에 의한 시멘트에 대한 흡착실험 결과인 세슘의 1 ml/g과 스트론튬의 10 ml/g 등의 데이터와 비교해 볼 때, 이들 실험결과가 실제 평형분배 계수를 얻었다는 확인이 불가능하다는 사실을 고려하더라도, 본 연구에서 제시한 흡착값이 침출초기에는 평형에 도달하지 않았고 궁극적으로는 평형에 도달하게 되는 경향을 잘 반영하고 있다고 판단된다. 확산에 의하지 않은 침출초기의 빠른 핵종유출율은 초기 유실누



K2

Fig. 3. Comparison of the measured cumulative release fraction[4] and the estimated cumulative release fraction of Cs-137 and Sr-90 in sea water as a function of time after initiation of leaching test.

적분율(α)의 도입으로 반영이 가능하였다.

Fig. 3은 시편 K2로서 Cs-137의 경우는 $Rd_1=10.5$ ml/g과 $\alpha=0.0006$ 이고, Sr-90의 경우는 $Rd_1=280$ ml/g과 $\alpha=0.00001$ 이다. 해수에 대한 시멘트 고화체의 침출실험에서는 담수에 대한 실험에서 사용하였던 R1 시편과 유사한 시편 K2가 사용되었다. 담수에서의 침출과 비교해 볼 때 흡착비가 Cs-137과 Sr-90의 두 핵종 모두에 대해 더 큰 값으로 추정되었다.

외부매질이 토양인 경우는 D1 시편의 경우 Cs-137의 누적침출분율이 침출이 시작된 후 1183일에서 0.03이라는 결과만이 본 연구에서 인용한 논문[4]에 보고되었다. 담수에서의 실험결과에 근거하여 추정된 값인 Rd_1 (Cs-137) = 2.7 ml/g과 토양에 대해서 Rd_2 (Cs-137) = 10.0 ml/g과 $\tau_2=0.015$ 을 가정하였을 때, 1000일에서 누적침출분율이 0.028, 1183일에서 0.030, 그리고 1500일에서 0.034로 계산되어서, D1의 실험결과와 일치함을 알 수 있었다.

본 논문에서 제시한 침출모델은 담수, 해수, 토양에 대한 침출실험결과와 비교해 본 결과 흡착비와 초기 유실누적분율만을 추산하여 간편히 실험결과와 재현이 가능함을 알 수 있었다. 초기 유실누적분율은 확산에 의한 침출경향을 보이지 않는 침출실험결과 해석에 편리하게 적용될 수 있을 것으로 판단된다. 또한 침출실험의 초기 거동 재현 과정에서 대부분의 침출실험시 보고되지 않고 있는 고화체 내의 핵종의 흡착비를 측

정해 볼 필요성을 제기하게 된다. 그러나 장기간의 침출거동 해석에는 일반적으로 보고되고 있는 별도의 흡착실험으로 측정된 흡착평형분배계수도 실제 평형이 이루어진 상태에서 측정된 경우 활용이 가능하다.

4. 결 론

개선된 침출모델을 침출실험결과에 적용시켜 보았을 때 다양한 침출실험결과의 재현이 가능하였다. 침출초기에 처분장의 인공방벽 기능으로 인하여 실제 침출이 시작되는 시점은 처분장 내부가 침투된 지하수에 의해 완전 포화되고 시멘트 고화체 역시 지하수와 충분한 기간 동안 접촉이 일어나서 고화체 내에서 주요 핵종에 대해 흡착평형상태가 도달된 이후일 것으로 판단되기 때문에, 장기간에 걸친 처분 안전성평가의 선원향으로 사용할 경우는 흡착평형분배계수를 사용하는 것이 적합하리라고 본다.

사용기호

a : radius of the cylindrical waste form [m]
 C_0 : initial concentration of the radionuclide of interest in pore water of the waste package [g/m³]
 $C_1(r, t)$: concentration of the radionuclide in pore water inside the waste package [g/m³]
 $C_2(r, t)$: concentration of the radionuclide in pore water of surrounding medium [g/m³]
 D_c : diffusion coefficient of the radionuclide in pore water in the waste form [cm²/s]
 D_p : diffusion coefficient of the radionuclide in pore water in the surrounding medium [cm²/s]
 K_d : sorption equilibrium ratio of the radionuclide in the waste form [ml/g]
 I_0, I_1, K_0, K_1 : modified Bessel functions
 M^0 : initial inventory of the radionuclide in the waste form [g]
 r : distance from the center of the waste form [m]
 R_c : retardation coefficient of the radionuclide in the waste form [-] ($R_c = 1 + \frac{\rho_1}{\epsilon_1} Rd_1$)
 Rd_1 : sorption ratio of the radionuclide in the waste form [ml/g]
 Rd_2 : sorption ratio of the radionuclide in the surrounding medium [ml/g]
 R_p : retardation coefficient of the radionuclide in the surrounding medium [-] ($R_p = 1 + \frac{\rho_2}{\epsilon_2} Rd_2$)

t : time after the initiation of leaching [yr]
 ϵ_1 : porosity of the waste form [-]
 ϵ_2 : porosity of the surrounding medium [-]
 λ : decay constant of the radionuclide [1/yr]
 ρ_1 : bulk density of the waste form [g/ml]
 ρ_2 : bulk density of the surrounding medium [g/ml]
 τ : geometric factor [-]

참고문헌

1. American Nuclear Society: ANSI/ANS 16.1(1986).
2. Kim, C. L., Choi, K. S., Cho, C. H. and Kim, J.: *HWAHAK KONGHAK*, **28**(4), 458(1990).
3. Nestor, Jr, C. W.: ORNL/CSD/TM-84(1980).
4. Miyamoto, K., Takeda, T., Muraoka, S., Wadachi, Y. and Maeda, S.: *J. of Nucl. Sci. and Tech.*, **30**(7), 680(1993).
5. Sullivan, T. M. and Suen, C. J.: NUREG/CR-5387 (1989).
6. Kim, C. L., Cho, C. H., Choi, K. S. and Kim, J.: *J. of the Korean Nucl. Soc.*, **22**(4), 315(1990).
7. Kim, C. L., Hwang, Y., Cho, C. H. and Lee, M. C.: Proc. of the Int. Con. on Nucl. Waste Management and Env. Remediation, **1**, 835(1993).
8. Serne, R. J., Lokken, R. O. and Criscenti, L. J.: *Waste Management*, **12**(2/3), 271(1992).
9. Arora, H. and Dayal, R.: NUREG/CR-4756(1986).
10. Johnston, H. M. and Wilmot, D. J.: *Waste Management*, **12**(2/3), 289(1992).
11. AEA Technology, P-KAERI '94 Project Report (1994).

부 록

식 (9)의 유도과정은 다음과 같다.

N_1 과 N_2 를 다음과 같이 정의한다.

$$N_1(r, t) = C_1(r, t)e^{\lambda t} \quad (A-1)$$

$$N_2(r, t) = C_2(r, t)e^{\lambda t} \quad (A-2)$$

식 (12), (13)에 정의된 D_1 과 D_2 를 써서 식 (1)에서 (8)을 N_1 과 N_2 로 정리하면 다음과 같다.

$$\frac{\partial N_1(r, t)}{\partial t} = D_1 \left[\frac{\partial^2 N_1(r, t)}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial N_1(r, t)}{\partial r} \right], \quad 0 < r < a, t > 0 \quad (A-3)$$

$$\frac{\partial N_2(r, t)}{\partial t} = D_2 \left[\frac{\partial^2 N_2(r, t)}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial N_2(r, t)}{\partial r} \right],$$

$$r \geq a, t > 0 \quad (\text{A-4})$$

$$N_1(r, 0) = C_0, 0 \leq r \leq a \quad (\text{A-5})$$

$$N_2(r, 0) = 0, r > a \quad (\text{A-6})$$

$$N_1(a, t) = N_2(a, t), t > 0 \quad (\text{A-7})$$

$$-\varepsilon_1 D_1 R_r \frac{\partial N_1(a, t)}{\partial r} = -\varepsilon_2 D_2 R_p \frac{\partial N_2(a, t)}{\partial r}, t > 0 \quad (\text{A-8})$$

$$\frac{\partial N_1(0, t)}{\partial r} = 0, t > 0 \quad (\text{A-9})$$

$$N_2(\infty, t) = 0, t \geq 0 \quad (\text{A-10})$$

라플라스 변환된 $\bar{N}_1(r, s)$ 와 $\bar{N}_2(r, s)$ 는 다음과 같이 정의된다.

$$\bar{N}_1(r, s) = \int_0^\infty N_1(r, t) \exp(-st) dt \quad (\text{A-11})$$

$$\bar{N}_2(r, s) = \int_0^\infty N_2(r, t) \exp(-st) dt \quad (\text{A-12})$$

식 (A-3)과 (A-4)를 라플라스 변환시키고 초기조건 (A-5)와 (A-6)을 적용하면 다음과 같다.

$$s\bar{N}_1 - C_0 = D_1 \left(\frac{d^2 \bar{N}_1}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{d\bar{N}_1}{dr} \right), 0 < r < a \quad (\text{A-13})$$

$$s\bar{N}_2 = D_2 \left(\frac{d^2 \bar{N}_2}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{d\bar{N}_2}{dr} \right), r \geq a \quad (\text{A-14})$$

경계조건으로

$$\bar{N}_1(a) = \bar{N}_2(a) \quad (\text{A-15})$$

$$-\varepsilon_1 D_1 R_r \frac{d\bar{N}_1(a)}{dr} = -\varepsilon_2 D_2 R_p \frac{d\bar{N}_2(a)}{dr} \quad (\text{A-16})$$

$$\frac{d\bar{N}_1(0)}{dr} = 0 \quad (\text{A-17})$$

$$\bar{N}_2(\infty) = 0 \quad (\text{A-18})$$

이상의 미분방정식을 풀면

$$\bar{N}_1(r, s) = \frac{C_0}{s} - \frac{PC_0 I_0(\sqrt{sr^2/D_1})/I_1(\sqrt{sa^2/D_1})}{s \left\{ \frac{K_0(\sqrt{sa^2/D_2})}{K_1(\sqrt{sa^2/D_2})} + P \frac{I_0(\sqrt{sa^2/D_1})}{I_1(\sqrt{sa^2/D_1})} \right\}} \quad (\text{A-19})$$

여기서 $P = \frac{\varepsilon_2 \sqrt{D_p R_p}}{\varepsilon_1 \sqrt{D_r R_r}}$ 이며, K_0, K_1, I_0, I_1 은 modified

Bessel 함수들이다.

이제 $\bar{C}_1(r, s) = \bar{N}_1(r, s + \lambda)$ 이므로

$$\bar{C}_1(r, s) = \frac{C_0}{s + \lambda} - \frac{PC_0 \frac{I_0(\sqrt{(s+\lambda)r^2/D_1})}{I_1(\sqrt{(s+\lambda)a^2/D_1})}}{(s + \lambda) \left[\frac{K_0(\sqrt{(s+\lambda)a^2/D_2})}{K_1(\sqrt{(s+\lambda)a^2/D_2})} + P \frac{I_0(\sqrt{(s+\lambda)a^2/D_1})}{I_1(\sqrt{(s+\lambda)a^2/D_1})} \right]} \quad (\text{A-20})$$