

《기술보고》

콘크리트를 통한 핵종의 확산계수

금동권, 조원진, 한필수

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

(1995. 9. 21)

요 약

콘크리트를 통한 핵종의 확산계수는 처분장으로 부터의 핵종 유출을 평가하는데 중요한입력 인자이다. 본 연구에서는 콘크리트에서의 핵종확산 연구 현황 및 핵종확산에 미치는 주요 인자들의 영향 등이 조사되었고, 주요 핵종의 확산계수가 직접 측정되었다. 내부확산법으로 측정된 확산계수값은 시료의 물과 시멘트 비 (W/C) 가 증가할 수록 증가하였으나 거의 같은 승수내에 있었으며, 공극확산이 핵종이동을 지배하였다. Cs 과 I 의 겔보기 확산계수는 순수 시멘트에서 각각 $1.0 \times 10^{-12} \sim 1.0 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 및 $3.0 \times 10^{-14} \sim 1.0 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$, 몰타르에서는 각각 $3.0 \times 10^{-12} \sim 9.0 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 및 $3.0 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 의 범위에 있었다. 이와 병행하여 시멘트, 몰타르 및 콘크리트에서의 주요 방사성핵종의 확산계수 값을 문헌으로부터 수집, 정리하였다. 대상 핵종은 Cs, I, Sr, C, Co, H, Am, Pu, Ni, Mn, Fe, Nb 및 Tc 로서 수집된 핵종확산계수 값은 시료의 조건 (공극률, 밀도, W/C 비, 온도 등) 에 따라 큰 편차를 보여주고 있다.

1. 서 론

방사성폐기물 처분용 동굴은 콘크리트구조물, 뒷채움재 등이 도입되는 다중방벽 개념으로 건설되는 것이 일반적이다. 그중 콘크리트 구조물은 폐기물내의 핵종이 지하수에 용해되어 지하수의 흐름을 따라 지하매질로 이동될 때 가장 먼저 접하게 되는 방벽으로서 투수계수 및 이온의 확산계수가 낮아 방사성핵종의 이동을 억제할 뿐만 아니라 처분장이 붕괴되지 않도록 하는 구조적 지지대의 역할도 하는 중요한 인공방벽 요소 중의 하나이다.

콘크리트구조물 단독만으로는 핵종이동 억제효과가 크게 나타나지 않을 수도 있다. 폐기물에 함유된 핵종 중에는 시멘트에 전혀 수착되지 않는 것도 있으며, 특히 콘크리트구조물에 균열이 생겼을 경우 이 균열을 통한 지하수의 흐름이 발생하여 핵종이동저지 기능이 상실될 수 있기 때문이다. 이러한 단점은 콘크리트 외벽에 벤토나이트 같은 뒷채움재를 설치함으로써 보완될 수 있다. 콘크리트 외벽에 뒷채움재가 설치되면 콘크리트 구조물에 수착되지 않은 핵종들은 뒷채움재에서 수착되고, 균열이 생기더라도 바깥쪽의

뒷채움재가 지하수 흐름을 방지하여 주기 때문에 콘크리트 균열을 통한 핵종이동 가속화현상은 구조물의 전체 면적에 대한 균열의 면적 비를 고려하여 볼 때 미미하게 된다. 따라서 외벽에 뒷채움재가 존재할 때 콘크리트를 통한 핵종이동은 균열의 유무에 상관없이 확산에 의해 지배되므로, 확산계수값은 핵종이동을 정량적으로 예측하는데 필수적인 인자이다.

본 연구에서는 처분안전성 평가시 입력자료로 요구되는 콘크리트에서의 핵종 확산계수를 제공하고 동시에 콘크리트를 통한 핵종이동 현상을 규명하고자 하였다. 핵종확산 연구 현황 및 관련 인자들의 영향 등이 조사되었고 실험을 통한 주요 핵종의 확산계수가 측정되었으며, 이와 병행하여 각종 핵종확산계수 데이터가 수집, 정리되었다.

2. 콘크리트에서의 핵종확산 연구 현황

콘크리트는 중단기적으로 물리적 방벽으로의 역할을 하고 장기적으로는 화학적 방벽의 역할을 수행하게 되는데 전자의 경우 콘크리트의 내구성, 콘크리트

를 통한 전달현상이 중요한 요소로 작용하게 된다 [1].

Andersson 등 [2] 은 시멘트와 콘크리트에서 Cs, I 의 수착계수 및 확산계수 값을 각각 회분식법과 침투 확산법으로 측정하였다. 콘크리트에서의 Cs 의 수착은 순수하게 골재만을 사용한 경우와 비슷한 값을 가졌으나, 순수 시멘트만을 사용한 경우에는 거의 수착되지 않아 콘크리트에서의 Cs 수착은 주로 골재에 의해 일어난다고 하였다. 또한 공극수 조성의 용액에서는 Cs 수착이 작았으나, 지하수 조성을 모사한 수용액에서는 탄화물, 황화물, 마그네슘등에 의하여 수착이 증가한다고 하였다. 회귀법에 의하여 Cs 의 겔보 기확산계수 값을 구하였는데 그 평균값이 $4.0 \times 10^{-14} \text{ m}^2/\text{s}$ 이었다. I 는 공극수 조성의 순수시멘트에서 수착이 가장 높고 바닷물 조성의 용액에서는 수착이 일어나지 않았다고 하였다.

Zumwalt 등 [3] 은 원자로 사고시 콘크리트 내로의 I 의 침투와 체류시간을 예측하기 위한 모델과 데이터타를 개발하기 위하여 콘크리트에서 I 의 확산현상을 dynamic method 를 이용하여 조사하였다. 실험결과 콘크리트내에서 I 의 확산에는 빠른확산과 느린확산의 두 가지 메카니즘이 동시에 존재하였고 느린확산이 상대적으로 큰 기여도를 가진다고 하였다. 15개의 농도분포를 가지고 확산계수값을 구하였는데 20~100°C 범위에서 다음의 실험식으로 표현 가능하다고 하였다.

$$\ln D (\text{m}^2/\text{s}) = -(19.1 \pm 0.3) - (2.6 \pm 0.1) \times 10^3/T(^{\circ}\text{K})$$

Muurinen 등 [4] 은 처분장의 안전성 분석을 위한 핵종이동현상 규명 및 매개변수를 측정하기 위하여 여러종류의 콘크리트 혹은 벤토나이트와 분쇄된 암반의 혼합물에 대해서 Cs, Sr 의 핵종확산 실험을 수행하였다. 측정된 농도분포는 이론과 잘 맞지 않았으며 느린확산과 빠른확산이 공존하며, Sr 의 확산속도는 Cs 보다 느리다고 하였다.

Kumar and Roy [5] 는 OPC (Ordinary Portland Cement) 와 혼합시멘트를 통한 CsCl 의 확산실험을 수행하였다. 시료는 양생온도 27~60°C, W/C 비 0.3~0.4 범위에서 제작하였다. 실험결과 OPC 에서 Cs 이온의 유효 확산계수는 Cl 이온보다 작고, 혼합시멘

트에서는 두 이온의 확산계수값이 모두 감소한다고 하였다.

Atkinson and Nickerson [6] 은 물에 포화된 OPC 에서의 Cs, Sr, I 의 확산현상을 관통확산법, 내부확산법, 침투법으로 조사하여 실험방법에 의한 차이와 상대적인 장단점을 제시하였으며 또한 수착계수 값을 회분식법으로 측정하였다. 결과에 따르면 수착계수 값은 $I > Sr > Cs$ 의 크기순으로 나타났다. Cs 의 수착계수 값은 용액과 입자의 부피비의 증가에 따라 증가하였는데 이는 용액의 부피 증가로 인해 경쟁이온들이 희석되었기 때문이라고 하였다. I 의 수착은 가역적이었으며 고농도에서 농도에 의존하였다. 유효 확산계수 역시 $I > Sr > Cs$ 의 크기순이었으며, 기하학적 인자값 역시 이온에 따라 달라 I 일때가 Cs 일때보다 5 배 정도 컸다. 이는 핵종이 다르면 각 핵종이 시멘트의 구조에 따라 받는 기하학적 저항이 다르다는 것을 의미한다고 하였다.

Takebe 등 [7] 은 시멘트 몰타르 내에서 Cs 의 확산에 관한 연구를 수행하였으며 불투성 코팅제로 시료를 표면처리한 것은 표면처리하지 않은 것보다 확산계수 값이 1/2 정도 작았다고 하였다.

3. 확산계수에 대한 관련인자의 영향

콘크리트를 통한 이온의 확산은 공극내의 수용액상을 통해 일어나지만 확산 메카니즘을 간단하게 자유 확산 메카니즘과 동일하게 다룰 수 없다. 다공성 물질에서 수용액상을 통한 이온의 확산은 진행방향에 불규칙하게 놓여있는 경로의 기하학적 인자에 의해 지연된다. 만약 공극지름이 이온의 평균 자유이동거리와 비교할 정도로 작아지면 이온의 확산은 더욱 지연된다. 이런 현상이외에도 표면전하와 이동하는 핵종이 반대되는 전하를 띠게되면 표면과 이온사이에 강력한 결합력이 생겨 이온의 이동은 더욱 지연될 것이며, 만약 공극의 벽이 이온과 동일한 전하를 가지고 있으면 그 이온은 벽에 의해 반발되고 따라서 수착현상이 감소한다. 이렇게 콘크리트 구조 또는 표면전하 같은 물리, 전기화학적 성질에 영향을 주는 주요 요소로는 W/C 비, 양생조건, 시멘트의 조성, 골재의 종류 등이 있다.

3.1. W/C 비의 영향

W/C 비는 물과 시멘트의 비를 말하는데 보통 0.3 ~ 0.7의 값을 갖는다. W/C 값이 작을수록 공극률이 감소하며, 공극크기가 큰 부분의 비율이 작아진다. 따라서 W/C 가 커질수록 확산계수도 커진다. Gjorv and Vennesland [8] 에 의하면 W/C 가 0.6 에서 0.4 로 감소할 때 공극률은 0.125 에서 0.097 로 감소한다고 하였다. Atkinson and Nickerson [9] 은 시멘트 내에서 I 와 Cs 의 확산계수는 W/C 의 증가에 따라 지수함수 형태로 증가한다고 하였다. W/C 변화폭에 따라 확산계수값의 변화폭도 커져서 I 의 경우는 W/C 가 0.2 ~ 0.7 의 범위에서 최대값은 최소값 보다 103 배 정도 컸으며, Cs 인 경우는 104 배 정도까지 차이가 생겼다. 현장에서 사용되는 W/C 는 항상 일정한 값이 아니고 동일 건축물이라도 작업환경에 따라 변할 수 있음을 감안하면 그에 따른 확산계수 값의 변화폭도 클것으로 추정되며 처분안전성 평가측면에서는 보수적 개념을 도입하여 가능한 큰 확산계수값을 적용하여야 할것이다.

3.2. 온도의 영향

콘크리트 내에서의 핵종확산에 온도가 미치는 영향은 크게 두가지로 볼 수 있다. 하나는 직접적 요인으로 이온 자체의 유동성 (mobility) 에 영향을 주는 것이고, 다른 하나는 간접적 요인으로서 공극의 구조변화에 의한 것이다. 온도가 증가하면 이온의 유동성이 증가하고 또 수화반응이 빨리 일어나 핵종에 노출될 수 있는 공극이 많아져 확산계수가 증가하게 된다. Atkinson and Nickerson [9] 등에 의하면 W/C 가 0.4 인 시멘트의 경우 온도가 10~60 °C 로 변할때 I 의 확산계수 값이 $10^{-12} \sim 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 범위의 값을 갖는다고 하였다. Ushiyama and Goto [10] 는 경화된 시멘트는 저온에서 electronegative 반투막처럼 작용한다고 하였고 Goto and Roy [11] 는 70°C 까지는 electronegative, 70°C 이상에서는 electropositive 반투막처럼 작용한다고 하였다. 이때 전기적으로 양의 전하를 띠는 이온은 70°C 이하에서는 음의 전하를 띠는 이온보다 낮은 확산속도를 가질것이다. 그러나 상온에서 시멘트가 electronegative 임에도 불구하고 Cs 의 수축은 없고 오히려 I 의 수축이 있는 것을 볼때 I 의

수축이 이온교환보다는 시멘트 표면을 구성하는 calcium silicate 혹은 calcium aluminate 의 수화물과 착화물을 형성하기 때문인 것으로 추측된다.

3.3. 시멘트 종류 및 첨가제의 영향

콘크리트의 성질을 개량하거나 특수목적으로 OPC 대신 SRPC (Sulphate Resistance Portland Cement) 를 사용하거나, blast furnace slag, silica fume 과 같은 특수시멘트를 OPC 와 혼합하여 사용하는 경우가 있는데 이경우 콘크리트 성분은 달라지게 되며 이것이 공극수의 조성, 또는 수축능에 영향을 주는 표면의 조성을 변화 시키는 주요 원인이 된다. 시멘트에 미네랄 성분의 혼합제를 첨가함으로써 핵종이동을 효과적으로 지연할 수 있으며 첨가하는 혼합제의 특성이 시멘트 수화반응 메카니즘을 결정하는 주요 인자이다. Blast furnace slag 와 같은 혼합제는 물의 수화반응으로 생긴 calcium hydroxide 가 blast furnace 와 반응하여 미세공극구조를 형성하는 calcium silicate hydroxide 를 형성하기 때문에 시멘트의 공극률과 공극크기를 감소시켜 핵종이동을 억제하고, silica fume 과 같은 혼합제는 공극내의 표면에 강력한 전자기장을 형성시키거나 수화반응시 미세한 공극을 형성시켜 tortuosity 효과를 증가시킴으로써 핵종이동을 효과적으로 저지하기도 한다. Kumar and Roy [5] 는 혼합제 첨가가 확산계수값을 1 ~ 2 승수 정도 감소시킨다고 하였다.

3.4. 양생조건

콘크리트 양생시 중요한 요소는 양생온도와 양생기간이다. 이 두 조건은 특히 콘크리트 공극구조에 직접적인 영향을 주기 때문이다. 양생온도가 커질수록 확산계수 값은 증가하는데 이는 온도가 증가 할수록 핵종이동이 용이한 크기의 공극생성이 많아지기 때문이다. Kumar and Roy [5] 는 W/C 가 0.35, 양생기간이 27 일 일때 양생온도가 27 에서 60 °C 로 약 두배 증가하면 확산계수값이 70~80 배 정도 증가한다고 하고, 이 이유로 양생기간이 길면 수화반응이 더욱 많이 진행되어 open pore 가 많이 생겨 핵종이 더욱 쉽게 이동할 수 있기 때문이라고 하였다.

3.5. 골재의 영향

순수 시멘트만 있는 경우 I 이온은 수착되나 Cs 이온은 거의 수착되지 않는다고 알려져 있다. 콘크리트에서 Cs의 수착현상은 순수한 골재를 사용하였을 경우와 아주 유사한 형태를 보여줌으로써 콘크리트에서의 Cs의 수착은 거의 골재에 의한 것으로 볼수있다. 이러한 수착현상은 겔보기확산계수에 직접적 영향을 미치는 인자이다. 또 골재의 존재는 콘크리트의 공극 크기 분포를 변화시켜 기하학적 인자, 즉 공극률, tortuosity, constrictivity 등을 변화시킴으로써 확산계수 값에 영향을 준다.

4. 확산계수의 실험적 측정

콘크리트에서의 핵종확산계수 측정에는 관통확산법, 내,외부 확산법, 침투법 등 다양한 실험방법이 제시되고 있으나 각 방법이 장단점을 가지고 있다 [6]. 본 연구에서는 실험이 매우 간편하다는 장점을 가지고 있는 내부확산법을 적용하였다.

4.1. 이론적 배경

내부확산법은 그림 1에서 보여주는 것과 같이 방사성 핵종이 들어있는 용액에 시멘트 고화체를 접촉시켜 용액 속의 핵종이 시멘트 내로 확산되도록 하는 방법이며, 용액의 시간에 따른 농도변화를 측정하여 확산계수를 결정하는 방법으로 수학적 이론은 다음과 같다.

핵종이 x 방향으로만 확산되고, 핵종의 붕괴(decay)를 고려할 때 시멘트 고화체의 단위 부피당 미분 물질수지식은 다음처럼 표현된다.

$$\epsilon \frac{\partial C_p}{\partial t} + \rho_p \frac{\partial C_s}{\partial t} = \epsilon D_p \frac{\partial C_p}{\partial x^2} + D_s \rho_p \frac{\partial^2 C_s}{\partial x^2} - \lambda(\epsilon C_p + \rho_p C_s) \quad (1)$$

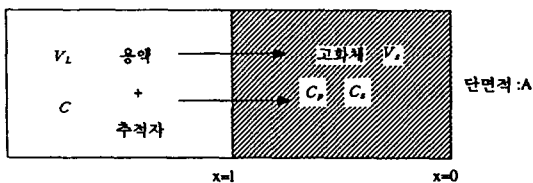


그림 1. 내부확산 실험법 개념도

여기서

C_p : 공극에서의 핵종의 농도

C_s : 고화체내 공극표면에서의 핵종의 농도

ϵ : 콘크리트 공극률

ρ_p : 겔보기 밀도

D_p : 공극 확산 계수

D_s : 표면 확산 계수

λ : 붕괴 상수

만약 표면확산이 없다고 하면 우변의 두 번째 항은 무시된다. 초기조건 및 경계조건은 다음과 같다.

초기조건:

$$C_p = C_s = 0, \quad t=0 \quad (2)$$

경계조건:

$$\epsilon D_p \frac{\partial C_p}{\partial x} + \rho_p D_s \frac{\partial C_s}{\partial x} = 0, \quad x=0 \quad (3)$$

$$C_p(t) = C_s(t), \quad x=l \quad (4)$$

경계조건인 식 (3)은 $x=0$ 에서 플럭스는 없다는 것이며 식 (4)는 $x=l$ 에서 즉, 용액과 고화체의 계면에서 고화체의 공극농도와 용액의 농도는 같다는 것을 의미한다. 고화체 내부에서 수착반응은 확산속도보다 훨씬 빠르게 진행되어 국부평형(local equilibrium)이 존재하고 다음의 평형관계식을 가진다고 가정하자.

$$C_s = K_d \cdot C_p \quad (5)$$

여기서 K_d 는 수착계수이다.

한편, 용액에서의 핵종 농도변화에 따른 미분 물질수지식은 다음과 같다. 단 용액은 완전 혼합되어 임의의 시간 t 에서 용액의 농도는 위치에 상관없이 $C(t)$ 로 같고 고화체 계면에서의 막저항은 없다고 가정한 다.

$$V_L \left(\frac{dC}{dt} + \lambda C \right) = -A \left(\epsilon D_p \frac{\partial C_p}{\partial x} + \rho_p D_s \frac{\partial C_s}{\partial x} \right)_{x=l} = -D_e A \frac{\partial C_p}{\partial x} \Big|_{x=l} \quad (6)$$

여기서

V_L : 용액의 부피

A : 고화체의 단면적

초기조건은 다음과 같다.

$$C = C_0, \quad t=0 \quad (7)$$

위 모델식의 용액중의 농도 $C(t)$ 는 다음과 같이 구해진다 [12].

$$\frac{C(t)}{C_0} = e^{-\mu} \left[\frac{\beta}{1+\beta} + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2\beta \exp(-g_n^2 D_a t / l^2)}{1+\beta + \beta^2 g_n^2} \right] \quad (8)$$

단

$$D_a = D_s / \alpha = \frac{\varepsilon \cdot D_p + \rho_p \cdot K_d \cdot D_s}{\alpha} \quad (9)$$

$$D_s = \varepsilon D_p + \rho_p K_d D_s = \varepsilon \phi D_M + \rho_p K_d D_s \quad (10)$$

$$\alpha = \varepsilon + \rho_p K_d \quad (11)$$

$$\beta = V_L / \alpha V_s \quad (12)$$

여기서 V_s 는 고화체의 부피이고 α 는 수착능 (capacity factor) 이다. D_s 와 D_e 는 각각 고화체에서의 겉보기 확산계수와 유효확산계수, ϕ 는 고화체의 기하학적 인자 (geometric factor), D_M 은 핵종의 자유확산계수 이다. 만약 핵종의 수착이 없다고 하면 $\alpha = \varepsilon$, $D_e = \varepsilon D_p = \varepsilon \phi D_M$, $D_s = D_p$ 의 관계를 가진다. g_n 은 다음 식의 양의 근으로 Newton-Raphson 방법을 이용하여 구하였다.

$$\tan g_n = -\beta g_n \quad (13)$$

한편 반감기가 큰 C_s 같은 핵종에 대해서는 식 (8)의 우변에 있는 $e^{-\mu}$ 항을 무시할 수 있다.

4.2. 실험

4.2.1. 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 W/C 를 0.5, 0.6 두종류로 제조하였다. 시멘트는 쌍용시멘트(주) 에서 제조된 한국공업규격 KSL520I(1종) 이었으며, 시멘트 몰타르 고화체 제조시 사용된 모래는 직경이 2×10^{-3} m 이하인 것만을 사용하였고 시멘트와 모래의 무게비는 1:2 이었다. 물은 표준방법으로 실험실에서 제조된 합성지

하수를 사용하였다.

한국 공업규격 (KSL5109-1986) 에서 제시한 혼합 방법에 따라 위 재료들을 시멘트 몰타르 혼합기로 혼합한 후 내부직경이 0.05 m 이고 길이가 0.1m 인 플라스틱 성형기에 부어넣고 비닐로 밀봉한 후 경화시킨다. 2~3 일후에 경화된 고화체를 플라스틱 성형기로 부터 분리하여 염화칼슘 포화 수용액내에서 양생시켰다. 양생 후에는 고화체를 다이아몬드 절단기로 약 0.05m 길이로 절단하고, 절단된 면은 부드러운 종이 연마제를 이용하여 연마하고 초음파 세척기로 시료에 붙어있는 미세한 부스러기 등을 세척한 후 확산 실험장치에 설치하기 전까지 합성지하수에 담겨 두었다.

4.2.2. 확산실험

확산셀은 내경이 0.05 m이고 외경이 0.06m 인 아크릴 튜브로 제작하였으며 전체길이는 0.12m 이다. 확산셀 하단에 고화체가 위치하고 그 위로 고화체와 거의 같은 부피의 합성지하수 용액이 담겨져 있다. 실험에 사용된 각 시료의 크기와 용액의 부피가 표 1에 요약되어 있다. 시멘트고화체는 확산셀에 설치하기 전에 밀면과 옆면을 우레탄 락커로 여러번 코팅하여 물의 침입을 방지하고 오직 한 방향으로만 확산이 일어나도록 하였다. 확산셀 밑에는 직경 0.1m 인 아크릴 판으로 밀판을 설치하여 확산셀이 안정하게 유

표 1 핵종 확산계수 측정을 위한 실험조건

R/N	Solution			Solid Material			
	Initial conc. $C_0(\mu C_i)$	Volume Sample $V_L(dm^3)$ No.	Volume $V_s(dm^3)$	Length $l(m)$	W/C	S/C	
Cs	500	0.0987	CSCE4	0.092	0.0469	0.4	0.0
		0.1001	CSCE5	0.096	0.0489	0.5	0.0
		0.0994	CSCE6	0.095	0.0484	0.6	0.0
		0.1002	CSC05	0.098	0.0499	0.5	2.0
		0.0992	CSC06	0.099	0.0504	0.6	2.0
		0.1000	ICE4	0.103	0.0525	0.4	0.0
I	500	0.0999	ICE5	0.103	0.0525	0.5	0.0
		0.1004	ICE6	0.103	0.0525	0.6	0.0
		0.0997	ICO5	0.104	0.0525	0.5	2.0
		0.1008	ICO6	0.104	0.0530	0.6	2.0

W/C : water to cement ratio by weight

S/C : sand to cement ratio by weight

지될 수 있도록 하였으며, 확산셀 위에는 개폐식 뚜껑을 설치하여 물의 증발방지와 시료채취를 할 수 있도록 하였다. 적용 핵종은 CsCl 형태의 Cs-137 과 NaI 형태의 I-125 이었고 용액의 초기농도는 두 핵종 모두 $500 \mu\text{C}/\text{dm}^3$ 이었다. 실험개시후 자주 확산셀을 흔들여 용액이 잘 혼합되도록 하였으며, 특히 농도분석을 위한 시료채취 전에는 충분히 흔들여 주어 침전으로 생길지 모르는 실험오차를 최대한 줄이도록 하였다. 시료는 적당한 시간 간격으로 $5 \times 10^{-4} \text{dm}^3$ 씩 채취하였고 액체섬광계수기 (1900TR, PACKARD, Canberra Co.) 로 농도를 분석하였다.

4.3. 결과 및 고찰

4.3.1. 확산특성 모사 및 확산실험 결과

실험결과를 해석하기 전 모사(simulation)를 통해 확산현상의 특성을 알아보았다. 모사를 위한 입력변수는 β 와 D_a 의 두 가지이었으며 고화체의 부피(V_s) 및 길이(l), 용액의 부피(V_L)를 각각 0.1 dm^3 , 0.05 m , 100 dm^3 로 하였고 핵종 붕괴효과는 고려하지 않았다. 시멘트의 공극률이 보통 0.2 내외임을 고

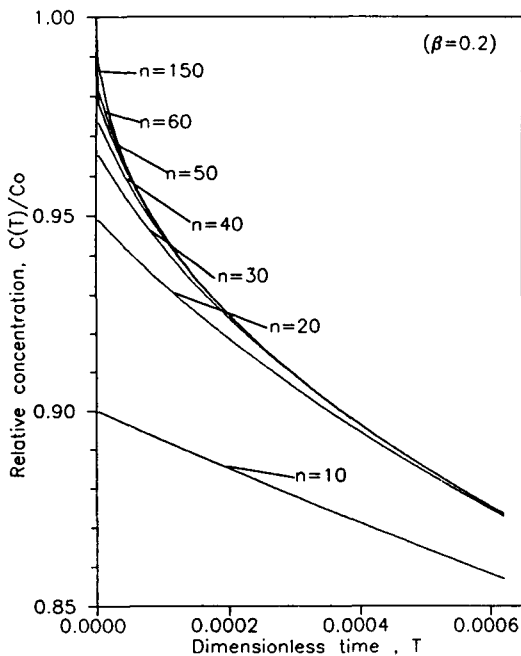


그림 2. n의 갯수가 계산결과에 미치는 영향

려하면 가능한 최대 β 값은 수축이 없는 경우에 해당되는 $\alpha=\epsilon=0.2$ 일때 5 정도가 될 것이므로 β 값은 5 이하로 하였다. 확산계수 D_a 값은 이온의 자유확산계수가 최대 $10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ 정도의 크기이고 문헌에 발표된 시멘트에서의 확산계수값이 보통 $10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ 정도의 크기임을 고려하여 $10^{-15} \sim 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ 범위의 값을 계산에 적용하였다.

입력변수에 따른 농도 변화를 계산하기 전에 모델식의 해인 식 (8) 에서 n 의 갯수가 계산 값에 어떤 영향을 미치는지 알아보았다. $\beta=0.2$ 일 때의 한 계산 예를 그림 2 에서 보여준다. 그림에서 무차원 시간 $T (=D_a t/l^2)$ 가 0 으로 접근할수록 n 의 갯수에 대한 농도 계산값은 그 차이가 커지나 반대로 T 가 증가하면 n 의 갯수가 작아지더라도 계산결과는 동일함을 보여준다. T 값이 크면 g_n 의 값의 증가와 함께 지수함수 $\exp(-g_n^2 T)$ 가 빨리 0 의 값으로 수렴하므로 n 의 갯수가 작더라도 전체 합 의 값에는 영향을 주지 않지만, T 값이 매우 작을 때는 (D_a 값이 극히 작은 경우나 초기의 아주 짧은 시간일 때 해당) g_n 값이 증가하더라도 전체 $g_n^2 T$ 값이 매우 작기 때문에 지수함수가 아주 느리게 0 의 값으로 수렴한다. 따라서 T 값이 작은 경우는 n 의 갯수를 매우 크게 해주어야 정확한 값을 구할 수 있다. 본 연구에서는 이와 같은 계산오차를 피하기 위하여 T 의 값 변화에 따라 n 의 갯수를 변화시키면서 농도를 계산하였다. $T < 10^{-4}$ 인 경우는 n 의 갯수를 150 개 이상으로 하였으며 $10^{-4} < T < 1$ 인 경우 n 의 갯수를 40 개로, $T > 1$ 인 경우는 n 의 갯수를 10 으로 하여 계산하였다.

그림 3 에서는 고정된 D_a 값에서 β 값에 따른 용액

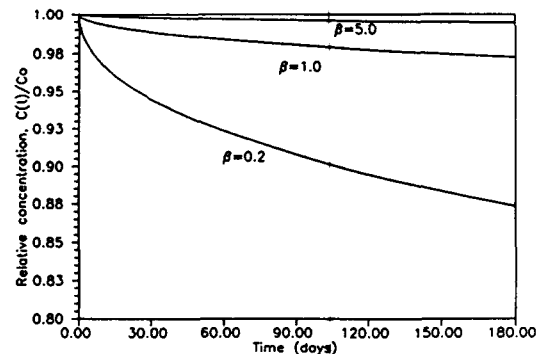


그림 3. β 변화에 따른 액종의 액상 농도 변화 ($D_a = 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$)

의 농도 변화에 대한 계산 예를 보여주고 있다. β 값이 커지면, 즉 α 값이 작아지면 고화체에 수착되는 양이 상대적으로 감소된다는 뜻이므로 동일한 초기 농도 값일 때 액상의 평형농도는 증가하게 된다. 그림에서 보여주는 β 값의 변화에 따른 농도 차이는 그 때문이다. 충분한 시간이 경과되면 시스템은 평형상태에 도달하게 되는데 그때의 액상 평형농도는 다음과 같은 관계로부터 구해진다.

$$\frac{C_{\infty}}{C_0} = \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{C(t)}{C_0} = \frac{\beta}{1+\beta} = \frac{V_L}{\alpha V_s + V_L} \quad (14)$$

위 관계식은 핵종확산속도에 비해 핵종붕괴속도가 무시할 수 있을 정도로 작은 경우에 해당되며 만약 핵종 붕괴속도가 매우 크다면 평형농도는 0 의 값으로 수렴할 것이다. 또한 그림 3 에서 초기시간에 β 값이 작을수록 기울기가 큰데 이는 고화체 내로의 핵종이동 속도가 작은 β 값에서 더 크다는 의미이다.

그림 4 에서는 동일한 β 값 (동일한 수착능을 가질 때임) 에서 D_a 값에 따른 용액의 농도변화를 보여준다. D_a 가 클수록 고화체 내로 빨리 확산되므로 액상 농도가 상대적으로 빨리 감소하고 평형에도 빨리 도달한다. 이들 그림에서는 나타나지 않지만 β 값이 일정하면 D_a 값에 상관없이 평형 농도값은 같아진다. 즉, 시간이 충분히 경과한 후, 액상의 평형농도는 $\beta = 0.2$ 일때 $C_{\infty}/C_0 = 0.167$ (식 14 로 부터 계산됨) 의 값으로 수렴하여야 한다.

그림 5 와 6 에서 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. 또한 수착능이 큰 I 가 Cs 보다 전체적으로 액상농도 감소가 크게 나타났다. 순수 시멘트의 경우 실험과 모델이 비교적 잘 일치하고 있으나, 몰타르의 경우는 실험과 모델의 차이를 보여주고 있다.

몰타르의 경우 Cs 은 농도가 처음에 급속히 감소한 후 증가하다가 다시 천천히 감소하는 경향을 보여주고 있다. 이는 확산초기에 용액과 고화체 계면에 존재하는 모래에 대한 Cs 의 수착 및 고화체 내로의 확산에 의해 농도가 급격히 감소하였다가 계속되는 수화반응으로 계면에서 생성되었을 미세한 시멘트 입자

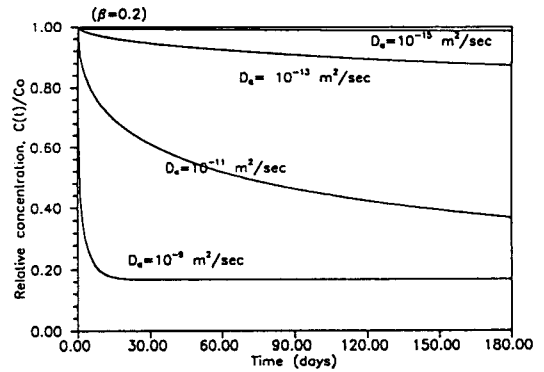


그림 4. D_a 변화에 따른 액종의 액상 농도 변화 ($\beta = 0.2$)

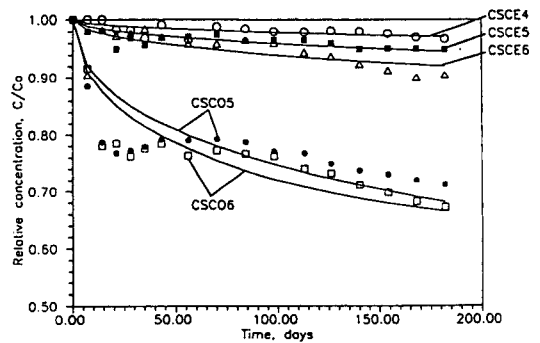


그림 5. Cs의 확산실험 결과 및 모델과의 비교

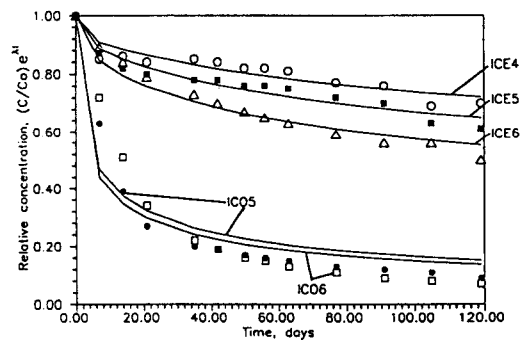


그림 6. I의 확산실험 결과 및 모델과의 비교

가 핵종과 결합된 채 용액 내로 진입하여 액상의 농도를 증가시키나 계속되는 확산에 의해 액상농도는 다시 감소하기 때문이다. 거의 같은 시료임에도 I 에 대해서는 계속적으로 감소되는 농도변화를 보여 준

것은 I 인 경우 시멘트 입자의 용액속으로의 진입에 의한 농도 증가 요인보다도 고화체내로 확산되는 양이 상대적으로 크기 때문이다.

그림 3 에서 보여준 것처럼 수축능이 큰 경우 동일한 확산계수값이라도 액상농도 감소는 더 크게 나타난다. 그럼에도 불구하고 I 는 수축능이 더 작은 몰타르에서 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 억제하기 때문이다.

4.3.2. 확산계수 계산

본 연구에서의 모델식의 해는 두개의 자유 매개변수를 가지고 있다. 즉 D_s 와 α 이다. α 는 식 (14) 에서 보여주는 것과 같이 평형농도 결정에 관계되는 매개변수이다. 평형상태에 도달될 때까지 실험을 하기 위해서는 매우 긴 시간이 요구되기 때문에 실험적으로 정확한 평형 농도값, 즉 α 값을 구하는 것은 현실적으로 어렵다. 만약 일부 초기 데이터 만으로 α 값을 구하는 것은 실험 데이터의 국부 경향에 따라 실제 값과 큰 오차를 유발할 가능성이 매우 크므로 불확실하다. 이와 같은 이유로 본 연구에서는 α 값을 문헌에서 인용하여 적용하였으며, D_s 만을 자유 매개변수로 회귀법을 사용하여 그 값을 구하였다. 본 연구에서 적용한 시료와 유사한 조건에서 얻어진 Cs 및 I 의 α 값을 문헌으로부터 인용하여 표 2 에 요약하였다.

Atkinson and Nickerson [6] 은 순수시멘트에서 Cs 및 I 의 α 값을 내부확산법으로 측정하여 각각 0.26 및 30 의 값을 얻었으며, Andersson 등 [2] 은 회분식 방법으로 α 값을 측정하여 Cs 및 I 에 대해 각각 4 이하, 26 ~ 34 범위의 값을 갖는다고 하였다. 두 연구결과가 거의 유사함을 볼 수 있다. 본 연구에서는 내,외부 확산법으로 실험을 수행한 Atkinson and Nickerson 의 결과를 순수 시멘트에 대한 α 값으로 사용하였다.

Andersson 등 [2] 은 두 종류의 시멘트 몰타르에 대한 α 값을 회분식 방법으로 구하였다. W/C 비가 각각 0.4 와 0.6 이고 시멘트와 골재의 중량 비는 1:4 이며, 골재로는 모래만 사용하고 크기는 4×10^{-3} m 이하인 것이었다. 여러 가지 형태의 용액을 사용하여 얻은 α 값의 결과는 I 가 12 이하, Cs 가 4~1900 범위에 있었다. Hietanen 등 [13] 은 모래의 직경이 1.6×10^{-2} m 이하이고 W/C/S 비가 각각 0.63/1/6.9, 0.5/1/5.7 인 콘크리트에 대해 수축실험을 수행하였으며 얻어진 α 값이 Cs 에 대해서는 40 ~ 1600, I 에 대해서는 4 ~ 16 범위에 있었다. 이들 두 연구결과 또한 유사함을 알 수 있다. 이를 바탕으로 본 연구에서는 시멘트 몰타르에 대한 I 및 Cs 의 α 값으로 각각 10 과 3 을 적용하였다. I 에 대한 α 값은 편차가 크지 않아 Hietanen 결과의 평균값을 선택하였고, 반면에 Cs 의 경우는 α 의 범위가 너무 넓어 평균값을 택하는 것은 불확실성이 너무 크므로 보수적 관점에서 가능한 작은 값을 선택하였다.

회귀법을 사용하여 구한 각 시료들의 핵종에 대한 겉보기 확산계수 값을 표 3 에 요약하여 놓았다. 순수시멘트에 대해 본 연구에서 구한 Cs 의 겉보기 확산계수는 W/C 가 증가할수록 확산계수값이 증가하였으며, Andersson 등이 구한 값보다는 100 배 정도 크나 Atkinson and Nickerson 이 구한 값보다는 1/10

표 2. 문헌으로부터 인용된 α 값의 요약

Solid material	Source	α (Cs)	α (I)	Remark
Pure cement	Atkinson & Nickerson[6]	0.26	30	.in/out diffusion
	Andersson et al.[2]	<4	26 to 34	.batch experiment
	Andersson et al.[2]	4 to 1900	<12	.batch experiment
Cement mortar	Hietanen et al. [13]	40 to 1600	4 to 16	. "
	Plecas et al. [14]	3 to 18	-	.leaching test

표 3. 각 시료의 겔보기확산계수 값 및 다른 연구결과와의 비교

R/N	Sample No.	D_a (m^2/s)			
		This work	Andersson et al. [2]	Atkinson & Nickerson [6]	Albinsson et al. [15]
Cs	CSCE4	1.7×10^{-12}	$(2 \text{ to } 7) \times 10^{-14}$	1.2×10^{-11}	-
	CSCE5	6.2×10^{-12}			
	CSCE6	1.4×10^{-11}			
	CSCO5	2.7×10^{-12}	$(3 \text{ to } 8) \times 10^{-14}$	-	$10^{-14} \text{ to } 10^{-12}$
	CSCO6	8.7×10^{-11}			
I	ICE4	2.9×10^{-14}	$< 10^{-14}$	5×10^{-13}	-
	ICE5	5.4×10^{-14}			
	ICE6	1.0×10^{-13}			
	ICO5	3.9×10^{-11}	$< 10^{-14}$	-	-
	ICO6	3.2×10^{-11}			

정도이거나 비슷하였다. I 도 역시 순수 시멘트의 경우 W/C 가 증가할수록 확산계수값은 커졌는데 Andersson 등이나 Atkinson and 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 확산계수값은 Albinsson 등이 구한 값보다 약간 크게 나타났으나 I 는 Andersson 등이 구한 값보다 103 배 정도 크게 나타났다. 전체적으로 본 연구의 경우 유효확산계수의 값이 $10^{-13} \sim 10^{-10} m^2/s$ 범위의 크기를 갖는 것으로 보아 공극확산이 확산 이동을 지배한 것으로 보인다.

5. 콘크리트에서의 방사성 핵종 확산계수 데이터 베이스

시멘트, 몰타르 혹은 콘크리트에서의 핵종확산계수 값을 위하여 자체적인 실험과 병행하여 문헌조사를 통한 자료 수집 및 분석을 수행하였다. 조사된 핵종들은 Cs, I, Sr, C, Co, H, Am, Pu, Mn, Fe, Nb, Tc, Ni 이었으며 그 결과를 표 4 에 정리하여 놓았다.

데이터 베이스 구성을 보면 가로 방향으로 핵종의 종류, 고체의 형태, 공극률, 밀도, 물과 시멘트의 비 (W/C), 온도, 수축능, 분배계수, 확산계수, 참고문헌 순으로 나열되어 있다. 시멘트의 종류나 골재의 크기 및 형태 등도 중요한 인자이나 데이터의 부재와 분류

상의 기술적인 어려움으로 인해 본 연구에서는 이를 구별하지 않았다. 확산계수값 뒤의 D_a 와 D_p 는 각각 겔보기 확산계수 및 유효확산계수를 의미하는 것이며, 이 두 값은 수축능을 이용하면 서로 환산된다. 일부 핵종에 대해서는 데이터 갯수가 적고 실험 값이 아닌 추정치인 것도 있어 신뢰성이 떨어지는 것도 있지만 현 시점에서는 유일한 데이터이므로 수록하였다. 전체적으로 핵종별로 확산계수값의 범위가 크다는 것을 볼 수 있다. 특히 실험적인 측정이 활발히 수행되었던 Cs, I, Sr, Co 등의 변화 폭이 크다. 이는 실험 자체의 본질적인 오차뿐만 아니라 시료조건의 다양성에 기인하는 것으로 볼 수 있다.

처분안전성 평가를 위한 입력인자나 설계 입력변수로써 콘크리트에서의 핵종확산계수 값은 품질보증 절차를 거친 후 사용되어야 하겠지만, 토목공학적으로 콘크리트 타설 및 양생 등 시공기준은 기계적 강도와 내구성 등 물리적인 요건만을 충족시키면 되므로 시멘트 원료의 조성이나 물과 시멘트 비등 실제로 시멘트 내의 핵종 확산에 핵심적인 영향을 주는 조건은 동일 토목구조물이라고 할 지라도 상당히 가변적이어서 기준값을 제시하는 것은 쉽지 않은 문제이다. 따라서 값 자체가 가지고 있는 불확실성을 고려할 때 스웨덴의 SFR 처분장의 안전성 평가시 적용된 것처럼 가능한 보수적인 값을 사용하는 것이 안전하다고 판단되나 지나치게 보수적인 값의 적용은 경제성을 크게 침해할 수 있으므로 안전 여유도와 경제성을 적

표 4. 콘크리트에서의 핵종의 확산계수

(1)	(2)	(3)	(4)	(5)	(6)	(7)	(8)	(9)	(10)
Cs	Cement			0.2	30			2.E-14 (De)	[9]
Cs	Cement			0.3	30			2.E-13 (De)	[9]
Cs	Cement			0.4	30			9.E-13 (De)	[9]
Cs	Cement			0.5	30			3.E-12 (De)	[9]
Cs	Cement			0.6	30			5.E-11 (De)	[9]
Cs	Cement			0.7	30			1.E-10 (De)	[9]
Cs	Cement			0.4	25-30	0.5		2.E-12 (De)	[6]
Cs	Concrete						122-390	3.E-14 to 8.E-14 (Da)	[4]
Cs	Cement 0.2-0.3			0.35	27-60			2.E-13 to 2.E-11 (De)	[5]
Cs	Cement 0.2-0.3			0.4	27-60			2.E-13 to 2.E-11 (De)	[5]
Cs	Cement			0.35-0.4		<4		2.E-14 to 7.E-14 (Da)	[2]
Cs	Mortar			0.4 -0.6		4-1900	2-850	2.E-14 to 8.E-14 (Da)	[2]
Cs	Mortar	2.0		0.4			1-4	1.E-13 (Da)	[7]
Cs	Concrete						1-10	1.E-14 to 1.E-12 (Da)	[15]
Cs	Concrete						2	5.E-13 (Da)	[16]
Cs	Concrete						1	1.E-11 (Da)	[17]
Cs	Cement			0.4	25-30	3.3		2.E-10 (De)	[18]
Cs	Mortar	0.15	2.5	0.3-0.7			1.6-7	6.E-15 to 5.E-14 (De)	[19]
Cs	Concrete	0.15	2.6	0.35			7.3	3.E-17 to 2.E-16 (De)	[19]
Cs	Cement	0.1-0.2	2.1-2.5	0.25-0.35	21		0.1-0.3	3.E-13 to 1.E-12 (De)	[20]
I	Cement			0.2	30			1.E-13 (De)	[9]
I	Cement			0.3	30			1.E-12 (De)	[9]
I	Cement			0.4	30			5.E-12 (De)	[9]
I	Cement			0.5	30			2.E-11 (De)	[9]
I	Cement			0.6	30			5.E-11 (De)	[9]
I	Cement			0.7	30			1.E-10 (De)	[9]
I	Cement			0.4	25-30	35		9.E-12 (De)	[6]
I	Cement			0.35-0.4		25-34		< 1.E-14 (Da)	[2]
I	Mortar			0.4-0.6		<12		< 1.E-14 (Da)	[2]
I	Concrete						30	1.E-12 (Da)	[16]
I	Concrete						3	4.E-12 (Da)	[17]
I	Cement			0.4	25-30	10		4.E-10 (De)	[18]
Sr	Cement			0.4	25-30	9		3.E-12 (De)	[6]
Sr	Concrete						1-4	1.E-14 to 5.E-14 (Da)	[4]
Sr	Concrete						2	2.E-12 (Da)	[16]
Sr	Concrete						1	1.E-11 (Da)	[17]
Sr	Cement			0.4	25-30	190		6.E-11 (De)	[18]
Sr	Mortar	0.15	2.5	0.3-0.7			5-7	3.E-15 to 2.E-14 (De)	[19]
Sr	Concrete	0.15	2.6	0.35			7.3	9.E-17 to 4.E-16 (De)	[19]
Sr	Cement	0.1-0.2	2.1-2.5	0.25-0.35	21		0.1-0.2	2.E-13 to 4.E-13 (De)	[20]
C	Cement			0.4	25-30	9400		1.E-10 (De)	[18]
C	Concrete						5000	6.E-15 (Da)	[16]
C	Concrete						1000	1.E-14 (Da)	[17]
Co	Concrete						1000	5.E-15 (Da)	[16]
Co	Concrete						500	3.E-14 (Da)	[17]
Co	Mortar	0.15	2.5	0.3-0.7			7	2.E-15 to 7.E-15 (De)	[19]
Co	Concrete	0.15	2.6	0.35			7.3	5.E-17 to 6.E-16 (De)	[19]
H	Cement	0.1-0.2	2.1-2.5	0.25-0.35	21			5.E-12 to 1.E-11 (De)	[20]
H	Concrete						0	2.E-10 (Da)	[17]
Am	Concrete			0.7			2500-40000	1.E-16 to 9.E-16 (Da)	[15]
Am	Concrete						1000	1.E-14 (Da)	[17]
Am	Concrete						5000	1.E-15 (Da)	[16]
Pu	Concrete			0.7			1200-12500	8.E-18 to 2.E-17 (Da)	[15]
Pu	Concrete						1000	1.E-14 (Da)	[17]
Pu	Concrete						5000	1.E-15 (Da)	[16]
Mn	Mortar	0.15	2.5	0.36-0.69			7	2.E-15 to 6.E-15 (De)	[19]
Mn	Concrete	0.15	2.6	0.35			7.3	1.E-16 to 2.E-16 (De)	[19]
Fe	Concrete						1000	5.E-15 (Da)	[16]
Fe	Concrete						500	3.E-14 (Da)	[17]
Nb	Concrete						1000	5.E-15 (Da)	[16]
Nb	Concrete						100	1.E-13 (Da)	[17]
Tc	Concrete						1000	3.E-15 (Da)	[16]
Tc	Concrete						1	2.E-12 (Da)	[16]
Tc	Concrete						100	1.E-13 (Da)	[17]
Ni	Concrete						1000	5.E-15 (Da)	[16]
Ni	Concrete						500	3.E-14 (Da)	[17]

(1): radionuclide, (2): solid form, (3): porosity, (4): density (kg/dm³), (5): w/c, (6): temperature (°C),

절히 조화한 합리적인 값을 선택하여야 할 것이다.

6. 결 론

콘크리트를 통한 핵종의 확산계수는 처분장으로 부터의 핵종 유출을 평가하는데 중요한 입력인자이다. 이를 위하여 핵종확산 연구현황 및 주요 관련 인자들의 영향 등이 조사되었으며 실험으로 주요 핵종의 확산계수를 측정하였다. 이와 병행하여 방사성핵종들의 시멘트, 몰타르 및 콘크리트에서의 확산계수 값을 별도로 수집, 정리하여 처분장 안전성 평가시 필요하게 될 자료로 제시하였다. 이상의 연구결과로부터 다음과 같은 결론을 내릴 수 있다.

- 시멘트 혹은 콘크리트와 같은 다공성 물질을 통한 핵종의 확산은 진행 방향에 불규칙하게 놓여 있는 경로의 기하학적 형태나 표면의 전기 화학적 성질에 결정적인 지배를 받는다. 이들 성질에 영향을 주는 요소는 물과 시멘트의 혼합비 (W/C), 양생조건, 시공방법, 시멘트의 종류, 골재의 크기 및 종류, 온도 등 매우 다양하다. 핵종확산계수 값은 이들 각 요소들의 조건 변화에 따라 보통 1에서 2 승수 정도의 범위에서 변화고, 경우에 따라서는 3에서 4 승수 이상의 차이를 가지는 경우도 있다.
- 본 연구의 실험 조건에서 측정된 확산계수값은 시료의 W/C 가 증가할수록 증가하였으나 거의 같은 승수 내에 존재하였고, 공극확산이 핵종이동을 지배하였다. Cs 과 I 의 겉보기 확산계수는 순수 시멘트에서 각각 $1.0 \times 10^{-12} \sim 1.0 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 및 $3.0 \times 10^{-14} \sim 1.0 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ 몰타르에서는 각각 $3.0 \times 10^{-12} \sim 9.0 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 및 $3.0 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 의 범위에 있었다. 이 값들은 자유확산계수값 수준인 $10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ 와 비교하면 2~4 정도 낮은 승수의 값이다.

감사의 글

본 연구는 방사성폐기물관리기금에 의해 수행된 것이다.

참고문헌

1. Atkinson, A., D.J. Goult, and J.A. Hearne, An assessment of the long-term durability of concrete in

- radioactive waste repositories, MRS, symp. proc., vol 50, 239-246, (1985)
2. Andersson, K., B. Torstenfelt, and B. Alland, Sorption and diffusion studies of Cs and I in concrete, SKBF/KBS-TR-83-13
3. Zumwalt, L.R., M.G. Beck, and S. Mehta, Sorption and diffusion of I in concrete and containment uptake, (unknown)
4. Muurinen, A., J. Rantanen, and R. Ovaskainen, Diffusivities of Cs and Sr in concretes and in mixtures of Na-bentonite and crushed rock, Mat. Res. Soc. Symp. Pro., 44, 883-890, (1985)
5. Kumar, A. and D.M. Roy, Retardation of Cs and Cl diffusion using blended cement admixtures, J. of Am. Ceram. Soc., 69(4), 356-360, (1986)
6. Atkinson, A. and A.K. Nickerson, Diffusion and sorption of Cs, Sr and I in water saturated cement, Nuclear Tech., 81, 100-113, (1988)
7. Takebe, S., K. Shimooka, Y. Kuramoto, and Y. Wadachi, Studies on diffusion of Cs-137 in cement mortar, JAERI-M-89-211, (1989)
8. Giorv, O.E. and O. Vennesland, Diffusion of Cl from seawater into concrete, Cement Concrete Research, 9, 229-238, (1979)
9. Atkinson, A. and A.K. Nickerson, The diffusion of ions through water saturated cement, J. of Mat. Sci., 19, 3068-3078, 1984
10. Ushiyama H. and S. Goto, Proc., 6th Intl. Cong. Chem. Cement, Moscow, vol II-1, 331-337, (1974)
11. Goto, S. and D.M. Roy, Diffusion of ions through hardened cement pastes, Cement and Concrete Research, 11, 751-757, (1981)
12. 한필수 외, 처분안전성연구, KAERI-NE-MAC/RR-119/94, (1994)
13. Hietanen, R., E.L. Kamarainen and M. Alaluusua, Sorption of Sr, Cs, Ni, I and C in concrete, YJT-84-04, (1984)
14. Plecas, I., J. Drijaca, A. Peric, A. Kostadinovic and S. Glodic, "Radionuclide migration through porous nuclear waste forms", Radioactive Waste Management and Nuclear Fuel Cycle, 14, 195-205, (1990)

15. Albinsson, Y., K. Andersson, S. Borjesson and B. Allard, Diffusion of radionuclide in concrete/bentonite systems, SKB/TR-93-29, (1993)
16. Neretnieks, I., S. Arve, L. Moreno, A. Rasmuson, and M. Zhu, Degradation of concrete and transport of radionuclides from sea-repository for low-and intermediate level nuclear waste, SKB, SFR-87-11, (1987)
17. SKB, A joint KAERI-SKB study on the planning for radioactive waste repository, final report, Sep., 1990
18. Krishnamoorthy, T.M., S.N. Joshi, G.R. Doshi and R.N. Nair, Desorption kinetics of radionuclides fixed in cement matrix, Nuclear Tech., 104, 351-357, (1993)
19. Plecas, I. et al., Radionuclide migration through porous nuclear waste form, Radioactive Waste Management and Nuclear Fuel Cycle, 14, 195-205, (1990)
20. Johnston, H.M. and D.J. Wilmot, " Sorption and diffusion studies in cementitious grouts", Waste Management, 12, 289-297, (1992)