

2002 추계 학술발표회 논문집  
한국원자력학회

**사용후핵연료 차세대관리 종합공정 실증시설의  
방사선원에 대한 예비 환경영향평가**  
**Preliminary Evaluation of Radiation Doses from  
Releases of Radioactivity in ACP Hot Cells**

국동학, 정원명, 구정희, 조일제, 이은표, 유길성, 박성원

한국원자력연구소  
대전광역시 유성구 덕진동 150

**요 약**

원자력발전소에서 발생하는 사용후핵연료의 효율적인 관리를 위하여 원자력연구소에서는 차세대관리 종합공정(ACP: Advanced spent fuel Conditioning Process)을 개발하고 있으며 공정의 기초가 되는 핫셀을 설계 중에 있다. 핫셀의 설계에 앞서 사용후핵연료를 취급하게 되는 과정에서 발생하는 방사성물질들에 대한 예비 환경영향평가를 수행하였고 공정의 개념설계 보고서와 최근 연구소부지 기상데이터 및 부지특성 자료를 바탕으로 하였다. 각 핵종별 발생량과 방출량을 계산하여 시설주변 주민에 대한 선량을 얻었으며 이와함께 기존의 하나로건물의 원자력관련 시설의 사례를 참조하여 대기확산인자 및 선량평가를 비교하였다. 예비 평가결과 원자력법관련 규제 기준과 핫셀이 위치하게되는 IMEF 건물의 안전성분석 기준보다 매우 안전한 결과를 얻었으나 중요 핵종에 대한 제거장치 효율이 높게 유지되어야 한다.

**Abstract**

The Advanced spent fuel Conditioning Process(ACP) is under development for the effective management of spent fuel which had been generated in nuclear plants. The ACP needs a hot cell where most operations will be performed. To give priority to the environment safety, radiation doses evaluation for the radioactive nuclides was preliminarily performed with the basic concept design report, the meteorological data and the recent site specific data. According to the production and release rate of nuclides, dose evaluations for residents around facility were performed. Comparisons with other nuclear facilities for meteorological data & dose assessment present very good safety, but elimination efficiency for several important nuclides has to be maintained highly.

## 1. 서론

최근 원전의 고연소도 장주기 운전이 세계적으로 관심이 되고 있는 추세에도 불구하고 전체 전력공급 중 원자력발전이 차지하는 비율은 나날이 높아져 원전에서 발생하는 사용후핵연료의 양은 계속 늘어나고 있는 실정이다. 그에 반해 현재 국내 각 원전에서 보관 중에 있는 사용후핵연료의 저장 능력은 곧 포화상태에 이를 것으로 예견되고 아직 사용후핵연료의 저장 및 처분장이 마련되지 않은 현 상황에서 사용후핵연료 차세대관리 종합공정을 통해 이러한 문제점을 해결하고자 한다. 이 공정을 이용하여 사용후핵연료를 고온의 염화리튬용액속에서 금속으로 전환하고, 고발열성 핵종인 Cs와 Sr을 효율적으로 제거하여 사용후핵연료의 부피, 발열량 및 방사선의 세기를 최대 1/4까지 감소시키고, 처분용기의 소요량과 처분장의 소요면적을 1/2이상으로 축소함으로서 처분 안전성과 경제성을 높일 뿐만 아니라, 처분장의 규모 축소로 인해 부지 선정을 용이하게 할 수 있다.

이 공정을 실증하기 위한 차폐시설의 확보를 위하여 조사재시험시설의 지하에 있는 예비 핫셀을 공정의 특성 및 용도에 맞게 설계변경하여 사용하게 되는데 시설의 안전성 확보와 원자력 시설로서의 인허가를 위한 안전성해석 및 주변 환경에 대한 영향을 평가하여 시설의 안전성을 입증할 필요성이 있다. 본 연구는 그 중 실증시설의 운영시 발생하게되는 방사선원들이 환경에 미칠 영향을 정상 운전시와 사고시로 나누어 평가하게 되며 우선 정상 운전시에 관한 결과를 얻어 기존의 시설 안전성 분석 및 환경영향평가 자료와 비교 검토하였다.

## 2. 연구내용 및 결과

### 2.1. 방사선원 결정

차세대관리 종합공정[1,2]은 건식 처리공정이고, 공정에서 필요한 냉각도 불활성 가스인 아르곤(Ar) 가스를 사용하게되므로 액체 방사성 폐기물은 발생하지 않으며, 기체 및 고체 방사성 폐기물만 발생하게 된다. 실증시험에 사용될 핵물질의 취급 기준량이나 기준 방사능을 설정하기 위해서 그 특성을 아래와 같이 설정하였으며 그에 따라 연간 핫셀내 방사능 취급량을 실증 공정 범위, 공정 운전 개념, ORIGEN-2 전산프로그램 계산 결과를 기준으로 하여 표1에 표기된 내용과 같이 총 22,800 Ci로 설정하였다.

- 연간 사용후핵연료 취급량 : 100 kg-HM (1batch당 20 kg, 5 batch/yr)
- 초기 농축도: 3.5 wt%
- 집합체 평균 연소도: 43,000 MWD/MTU
- 냉각기간 : 10년

이와 같은 사양의 원자로 조사조건을 기준으로 ORIGEN-2 전산프로그램을 이용하여 실증 시험에 사용할 사용후핵연료 내의 핵종별 질량과 방사능을 계산하였고 그 결과를 본 공정의 단위공정별로 설정된 공정수율에 맞게 적용시켜 그림 1과 같은 공정별 방사능 수지 diagram 을 작성하였다. 그림에서 보는 바와 같이 실증시험 과정에서 배출되는 배기체 종류로는 사용 후핵연료에 포함되어 있는 핵분열생성물 중 공정조건에 따라 기화되어 배출되는 것으로서, H-3, Kr, Xe, I 등 fission gas와 고온에서 방출되는 Cs, Sr, Ru 화합물들이 있다. Fission gas(H-3, Kr, Xe, I)은 대부분이 분말화 공정에서 배출되며, 잔류하게되는 fission gas들은 금속전환 공정이나 smelting 공정에서 방출되게된다. 그리고 Cs<sub>2</sub>O<sub>3</sub>은 금속전환 (Metalization: 650 °C) 공정에서 방출되고, 잔류하는 Cs, Sr, Ru은 주조 공정(1400 °C)에서

전량 방출된다.

위와 같이 발생되는 휘발성 및 준휘발성 방사성 기체폐기물들을 처리하기 위해 배기체 처리장치를 설치하게 되는데 간략히 살펴보면 먼저 온도구배관(Thermal Gradient Tube, TGT)을 이용하여 준휘발성 핵종을 응축시켜 처리한 다음에 미립자제거장치인 Metal Wool을 통하여 부유입자를 제거한다. 그 다음으로 Silver Impregnated Zeolite로 요오드를 포집하고 Molecular Sieve 5A로 삼중수소를 제거하며 최종적으로 HEPA 필터를 설치하여 미처리된 배기체를 처리한 후 핫셀의 주환기계통으로 방출한다. 핫셀배기설비는 셀내 필터(전처리필터 + 활성탄필터 +HEPA 필터) 및 배기팬실의 2차 필터(HEPA 필터 + 활성탄 필터 + HEPA 필터)로 구성되며 이때 HEPA 필터는 0.3  $\mu\text{m}$  미립자에 대해 최소 99.97 %의 제거 효율을, 활성탄 필터는 CH<sub>3</sub>I에 대한 제거효율이 최소 99.9 %이다.

배기체 처리 규제기준은 원자력법령에서 제시된 기체상태의 방출물에 의한 제한구역 경계에서의 외부피폭에 의한 유효선량을 0.05 mSv/yr, 피부등가선량과 입자상 방사성물질, H-3, C-14, 방사성 옥소에 의한 인체 장기 등가선량을 0.15 mSv/yr, 그리고 동일 부지 내에 다수의 원자력시설을 운영하는 경우에는 제한구역 경계에서 유효선량을 0.25 mSv, 갑상선 등가선량을 0.75 mSv로 제한하는 요건을 만족하도록 배기체 처리시설이 설계되어야 한다.

배기체의 경우 현재 설정된 분말화 공정 반응온도(500 °C) 조건에서 H-3는 전량 방출되나 Kr, Xe, I의 경우에는 상당량(최대 50 %)이 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 분말의 기공 또는 matrix내에 체류할 가능성이 있으며, 다음 공정인 금속전환공정(반응온도 650 °C)이나 주조 공정(1400 °C)의 반응온도가 높아서 fission gas의 전량이 방출되므로 전량 방출을 기준으로 배기체 처리공정을 구성하고, Cs, Sr, Ru 등을 포집할 수 있는 cold trap이 각 반응기의 배기구에 설치되도록 고려하여야 한다. 특히, 반감기가 긴 H-3(12.26년), Kr-85(10.76년)은 배기체 방출로 인한 선량을 평가하여 기준선량보다 높을 경우 포집하여 감쇄된 후에 방출되도록 고려하여야 한다.

공정에서 발생한 기체상 방사성물질은 위에 기술한 배기체 처리장치를 거쳐 핫셀의 배기설비를 통해 하나로의 스택을 통해 환경으로 방출된다. 따라서 환경으로의 방출량을 결정하기 위해서는 배기체 처리장치의 성능을 검토하여 제거율을 설정해야 하므로 각 공정에서의 핵종별 방출량과 제거율을 배기체 처리장치의 성능을 감안하여 표3과 같이 결정하였다.

## 2.2. 대기확산인자 결정

방사선의 피폭의 경로는 크게 외부피폭과 내부피폭으로 나눌 수 있는데 외부피폭에는 방사성물질들이 대기로 확산되어 공중의 구름속에 떠 다니는 방사능운과 지표면에 떨어지는 침적의 경우가 해당되고 내부피폭으로는 사람의 호흡을 통한 경우와 채소 및 육류의 섭취로 인한 경우가 해당된다. 이때 대기확산인자는 방사성물질이 대기중에 확산되는 정도를 나타내며 특히 액체상 방사선 선원이 없는 본 공정에서와 같은 경우에는 공정 전반에 걸친 방사능 영향을 결정짓는 가장 중요한 인자이다. 대기확산인자의 평가는 미국 원자력규제위원회의 규제기준(NRC Regulatory Guide) 1.111에 제시된 모델[3]에 준한다.

본 시설에서 방출된 방사성물질은 하나로의 굴뚝을 통해 외부로 방출되므로 고도방출에 해당하며, 기상관측탑의 67 m 높이에서 측정된 자료를 사용한다. 기상데이터는 해당 시설을 중심으로 16개의 방위와 반경 80km내의 10단계 거리에 대해 사용하는데 보통 부지경계(약 300m 이내)에서의 값이 최고치를 나타내며 이 값을 이용하게 된다. 대기확산인자에는 방사성물질의 봉괴와 침적을 고려한 값을 적용할 수 있는데 가장 보수적인 계산을 위해 두 가지를 모두 고려하지 않은 인자를 선택하였고, 최근의 몇 년 동안의 하나로 건물 주변에 대한 환

경영향 평가의 사례[4-9]들로부터 대기확산인자의 값을 정리하여 표2에 나타내었다. 표에서 보는 바와 같이 90년대 중반까지의 기상자료와 90년 후반부터의 기상자료에 큰 차이가 나타나는데 이는 기상데이터 분석기술의 발달로 좀더 정확한 값을 얻어내기 때문으로 판단되며 그에따라 주민선량평가에 있어서 보다 정확한 평가가 대두되고 있다. 본 연구에서는 2001년도 하나로운영중 방사선환경영향평가[9] 값을 반영하였다.

### 2.3. 피폭선량 계산

주민피폭선량의 계산은 GASDOS 프로그램을 통해 수행하였는데 이 프로그램은 미국 원자력규제위원회의 규제지침 1.111에 근거하여 개발된 전산프로그램 GASPAR를 한국원자력안전기술원(KINS)에서 우리나라의 실정에 맞게 수정·보완한 것이다[3]. 최근 과기부 고시[10]에서 국제방사선방호위원회 (ICRP)의 신권고(ICRP 60)를 법제화하면서 신권고의 평가체계를 반영한 선량환산인자를 적용하여 평가하도록 규정하고 있으므로 본 평가에서도 그와 같은 선량환산인자를 적용하였다.

하나로 스택을 통해 방출되는 주요 핵종의 특성을 고려하여, 본 평가에서는 유효선량과 상대적으로 선량환산인자가 높은 중요 장기에 대한 등가선량만 고려하였다. 방사능운에 의한 외부피폭의 경우 실효선량은 국제원자력기구의 기본안전기준 (IAEA Safety Series 115)에 제시된 선량환산인자를, 공기중 흡수선량과 피부선량은 미국 원자력규제위원회의 규제지침 1.109에 제시된 값을 적용하였다. 지표에 침적된 방사성물질에 의한 외부피폭의 경우에는 미국 원자력규제위원회의 규제지침 1.109에 제시된 선량환산인자 값을 적용하였다. 국제방사성방호위원회와 국제원자력기구에서는 6 개의 연령군으로 분류하고 있으나 최대 피폭 연령군과 최소피폭 연령군의 피폭량 차이가 작으므로 본 평가에서는 성인에 대한 피폭선량만을 평가하였고 또한 피폭을 받는 장기로는 전신, 소화기관, 뼈, 간, 신장, 갑상선, 폐 및 피부 등이 있으나 가장 중요한 평가 기준인 유효선량(전신)과 갑상선에 대해서만 평가하였다.

### 2.4. 결과

하나로 스택을 통해 환경으로 방출된 방사성물질로 인한 부지 주변의 개인최대피폭선량을 표4에 정리하였으며 관련 규제기준과의 간략한 비교를 아래의 표에 나타내었다.

(단위 : mSv/yr)

| 피폭구분   | 원자력법규 | 평가결과   | 분율(%) | 비고  |
|--------|-------|--------|-------|-----|
| 유효선량   | 0.05  | 0.0197 | 39    |     |
| 장기등가선량 | 0.15  | 0.0203 | 13    | 갑상선 |

표4에서 보는 바와 같이 Cs-137는 유효선량과 갑상선에 대한 선량을 지배하므로 Cs의 방출량을 조절하는 것이 무엇보다 중요하다. 본 연구에서는 생성된 Cs 모두를 고려하였지만 Cs는 여러단계의 공정을 통해 전체 양의 2.3% 정도만 금속우라늄과 같이 남아있게 되며[2] 나머지는 폐용융염 속에 있게되므로 향후 계속 수행될 연구에서 이를 반영하면 Cs에 의한 영향이 더욱 낮아질 것으로 예상된다. 또한 Cs의 제거에 반드시 필요한 Cs trap의 설치와 Cs의 제거율에 대한 정확한 예측이 뒷받침되어야 한다. 장기등가선량에 대한 평가에 있어서 여러 선량평가 대상 장기들 중에서 갑상선에 대한 영향이 가장 큰 것으로 알려져 있으므로 일반적으로 갑상선을 기준으로 장기등가선량을 평가하게 된다. 본 연구에서 갑상선에 가장 큰

영향을 주는 핵종으로 알려진 I-129의 영향은 크게 나타나지 않았는데 이는 다른 기존의 연구의 경우와 같이 요오드를 제거하기 위한 요오드 trap의 설치를 가정하였고 그에 따른 제거율은 1%로 정하였기 때문이다[6]. 평가결과 규제기준보다 낮은 선량값을 얻었으나 위에서 가정한 것과 같은 요오드 trap의 설치가 반드시 선행되어야 한다.

## 2.5. 사고시의 환경영향평가

원자력관련 시설의 운영에 관한 안전성 분석에는 정상시 운전과 더불어 사고시에 대한 분석도 수행되어야 한다. 사고시의 환경영향평가를 위해서는 먼저 사고의 형태와 조건들을 가정해야하고 다음으로 그에 따른 방사성물질의 방출량을 설정해야한다. 사고의 형태와 조건들은 그동안의 유사 시설의 경우를 참조하여 여러 가지 경우가 예측가능하나 방사성물질의 방출량에 대한 연구는 아직 진행 중에 있다.

사고시의 방사선안전성을 평가하기 위한 대기확산인자는 부지에서 측정된 기상자료를 사용하여 미국 NRC 규제지침 1.145의 방법에 따라 계산하게되며 사고의 특성상 2 시간 이내에 모든 방사선원이 방출한다는 가정하에 제한구역경계에서의 단기대기확산인자를 사용한다. 시설의 운영에 관한 사고의 유형은 다음과 같이 예상할 수 있다.

- 배기덕트 파단사고
- 배기팬 고장 및 화재
- 핵연료 분진폭발
- 핵연료 붕괴열에 의한 위험성
- 핫셀 내 화재

이중 ACP 시설의 운영중, 방사선 위험이 가장 커지게 될 경우는 화재에 의한 방사성물질의 누출이다. 화재로 인한 피폭선량을 평가하기 위해 적절한 가정을 통해 화재사고시의 누출방사능량을 산정하고 이에 따른 주민의 피폭선량을 평가해야하며 이때의 화재는 크게 핫셀내 화재 및 배기팬실 화재로 나누어 평가한다.

## 3. 결론 및 향후 계획

본 실증시설이 위치하게 될 IMEF(Irradiated Material Examination Facility) 건물에서 방사성물질로 인해 주변거주 개인이 받게되는 방사능피폭량의 법규상 제한치는 유효선량 5.0 mSv/yr 및 갑상선 30 mSv/yr이며 시설의 설계기준치는 법규상 제한치의 1/100로서 전신피폭의 경우 0.05 mSv/yr와 갑상선의 경우 0.3 mSv/yr이다. 표5에 이를 각 시설의 평가 결과와 더불어 나타내었으며 본 연구의 계산결과는 이 기준에도 부합되는 것으로 나타났다.

결론적으로 사용후핵연료 차세대관리 종합공정 실증시설의 방사성 물질에 대한 예비 환경영향평가를 통해 시설의 정상운전시 일반주민에 대한 피폭선량은 법규상의 기준치 만족한다는 것을 알 수 있었으며 향후 사고시 평가에 관한 연구를 계속 수행할 예정이다.

\* Basis :

- PWR Spent Fuel 20kg HM/batch,
- Enrichment : U-235 3.5%
- Burn-up : 43,000 MWd/tU
- Cooling : 10 Years

(Unit : Ci)

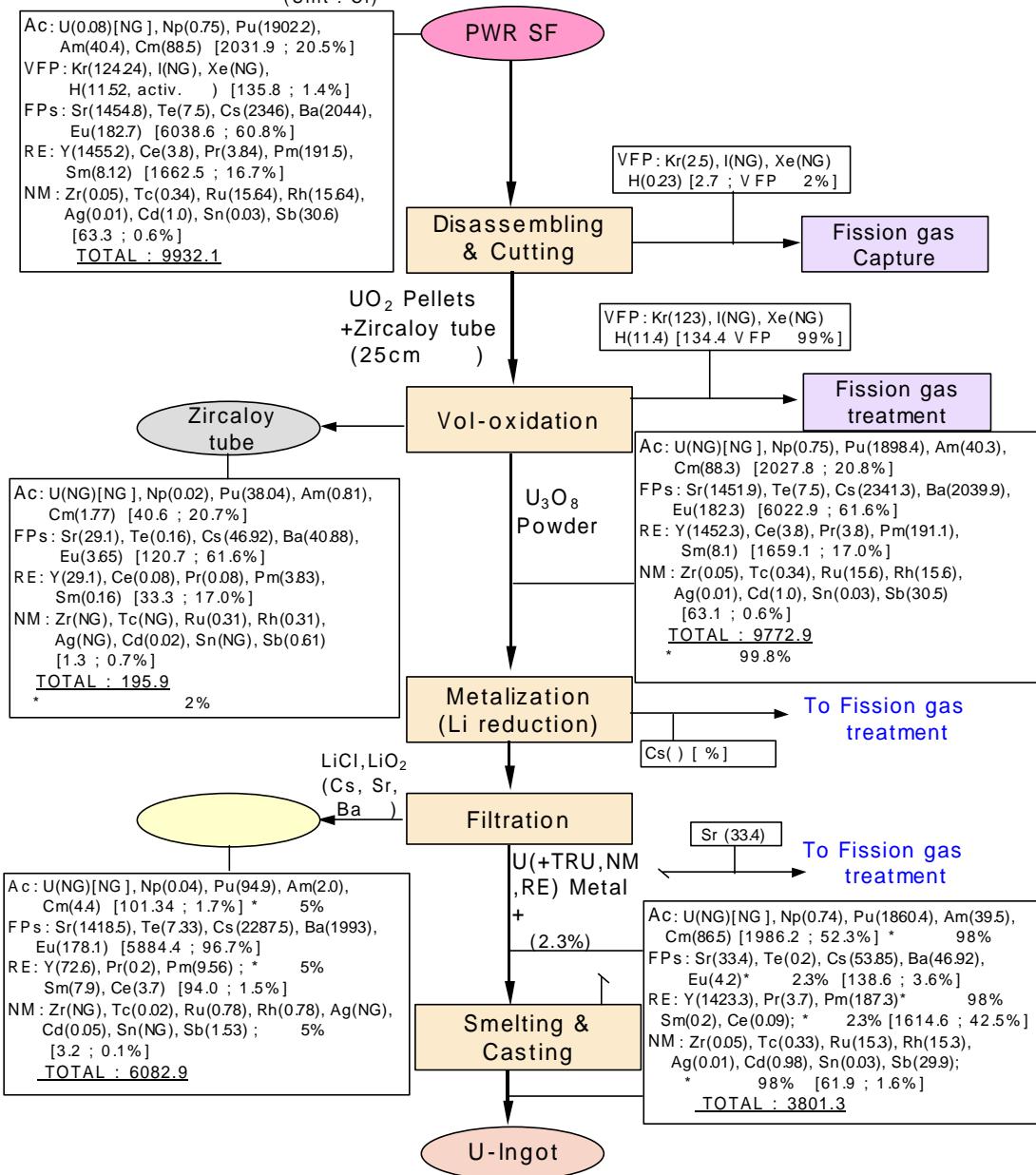


그림 1. Flow Diagram and Radioactivity balance diagram

표 1. 핫셀내 방사능 취급량

| 구 분                                 | 방사능 (Ci)              |
|-------------------------------------|-----------------------|
| 기준 SF 1 batch(20 kg-HM)             | 9,950                 |
| 반감기가 긴 Volatile FP(H, Kr) 5 Batches | 680<br>(136 x 5)      |
| 폐용융염 2 batches                      | 12,170<br>(6,085 x 2) |
| Total                               | 22,800                |

표 2. 각 문현별 하나로 주변 대기확산인자 비교

| 연도   | 구분              | 대기확산인자 [sec/m <sup>3</sup> ] |
|------|-----------------|------------------------------|
| 1986 | HANARO          | $7.37 \times 10^{-6}$        |
| 1994 | IMEF            | $1.26 \times 10^{-6}$        |
| 1999 | KAERI 시설운영 보고서* | $1.22 \times 10^{-4}$        |
| 2000 | DUPIC           | $1.23 \times 10^{-4}$        |
| 2000 | KAERI 시설운영 보고서* | $1.237 \times 10^{-4}$       |
| 2001 | KAERI 시설운영 보고서* | $0.968 \times 10^{-4}$       |

\* 하나로 건물의 원자로굴뚝

표 3. 핵종별 방출율 및 제거율

| 핵 종       | 방출율<br>(%)         | TGT       | PTU       | TTU       | HEPA<br>필터         | 최종<br>누출율            |
|-----------|--------------------|-----------|-----------|-----------|--------------------|----------------------|
|           |                    | DF=10     | DF=10     | DF=1000   | DF=3000            |                      |
| H         | 100                | -         | -         | $10^{-3}$ | -                  | $10^{-3}$            |
| He        | 100                | -         | -         | -         | -                  | 1                    |
| Br        | 100                | -         | -         | -         | -                  | 1                    |
| Kr        | 100                | -         | -         | -         | -                  | 1                    |
| I         | 100                | -         | -         | -         | -                  | $10^{-2}$            |
| Xe        | 100                | -         | -         | -         | -                  | 1                    |
| Ru        | 2                  | $10^{-1}$ | -         | -         | $3 \times 10^{-4}$ | $6 \times 10^{-7}$   |
| Cs        | 10                 | $10^{-1}$ | -         | -         | $3 \times 10^{-4}$ | $3 \times 10^{-6}$   |
| Tc        | 10                 | -         | -         | -         | $3 \times 10^{-4}$ | $3 \times 10^{-5}$   |
| Ag        | 10                 | -         | -         | -         | $3 \times 10^{-4}$ | $3 \times 10^{-5}$   |
| Cd        | 10                 | -         | -         | -         | $3 \times 10^{-4}$ | $3 \times 10^{-5}$   |
| Mo        | 10                 | -         | -         | -         | $3 \times 10^{-4}$ | $3 \times 10^{-5}$   |
| Se        | 10                 | -         | -         | -         | $3 \times 10^{-4}$ | $3 \times 10^{-5}$   |
| Sb        | 10                 | -         | -         | -         | $3 \times 10^{-4}$ | $3 \times 10^{-5}$   |
| Rb        | 10                 | $10^{-1}$ | -         | -         | $3 \times 10^{-4}$ | $1.5 \times 10^{-6}$ |
| Te        | 10                 | -         | -         | -         | $3 \times 10^{-4}$ | $3 \times 10^{-5}$   |
| C         | 100                | -         | -         | -         | -                  | 1                    |
| 기타 FP     | $2 \times 10^{-2}$ | -         | $10^{-1}$ | -         | $3 \times 10^{-4}$ | $6 \times 10^{-9}$   |
| Actinides | $2 \times 10^{-2}$ | -         | $10^{-1}$ | -         | $3 \times 10^{-4}$ | $6 \times 10^{-9}$   |

TGT : Thermal Gradient Tube

PTU : Particle Trapping Unit

TTU : Tritium Trapping Unit

표 4. 주요 핵종의 발생량과 선량

| Nuclide | AP       | AD       | FP       | Total    | RA       | ED       | ED%  | TD       | TD%  |
|---------|----------|----------|----------|----------|----------|----------|------|----------|------|
| C-14    | 7.55E-02 |          |          | 7.55E-02 | 7.55E-02 | 2.09E-03 | 11%  | 2.05E-03 | 10%  |
| Cs-134  |          |          | 9.22E+02 | 9.22E+02 | 2.77E-03 | 1.19E-03 | 6%   | 1.19E-03 | 6%   |
| Cs-137  |          |          | 1.08E+04 | 1.08E+04 | 3.24E-02 | 1.55E-02 | 78%  | 1.49E-02 | 73%  |
| I-129   |          |          | 4.10E-03 | 4.10E-03 | 4.10E-03 | 7.70E-05 | 0%   | 1.46E-03 | 7%   |
| Kr-85   |          |          | 6.21E+02 | 6.21E+02 | 6.21E+02 | 5.01E-04 | 3%   | 5.01E-04 | 2%   |
| Pu-238  |          | 4.38E+02 |          | 4.38E+02 | 2.63E-06 | 1.26E-04 | 1%   | 6.63E-06 | 0%   |
| Sb-125  | 1.86E-02 |          | 1.53E+02 | 1.53E+02 | 4.59E-03 | 2.66E-04 | 1%   | 1.91E-04 | 1%   |
| Total   | 9.40E-02 | 4.38E+02 | 1.25E+04 | 1.29E+04 | 6.21E+02 | 1.97E-02 | 100% | 2.03E-02 | 100% |

AP : Activation Product (Ci)

AD : Actinides + Daughters (Ci)

FP : Fission Production (Ci)

Total : AP + AD + FP (Ci)

RA : Released Activities (Ci/100kg-yr)

ED : Effective Dose (mSv/yr)

ED% : ED fraction for each nuclides (%)

TD : Dose for Thyroid (mSv/yr)

TH% : TD fraction for each nuclides (%)

표 5. 각 시설별 환경영향평가 비교

| 구분           | 국내법  | IMEF<br>설계기준 | IMEF                  | HANARO                | DUPIC                 | ACP                   |
|--------------|------|--------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|
| 대기확산<br>인자   |      |              | $1.26 \times 10^{-6}$ | $7.37 \times 10^{-6}$ | $1.23 \times 10^{-4}$ | $1.23 \times 10^{-4}$ |
| 유효선량<br>(전신) | 0.05 | 0.05         | $3.30 \times 10^{-4}$ | $2.99 \times 10^{-3}$ | $6.50 \times 10^{-3}$ | $1.97 \times 10^{-2}$ |
| 갑상선          | 0.3  | 0.3          | $2.82 \times 10^{-4}$ | $6.97 \times 10^{-2}$ | $5.40 \times 10^{-3}$ | $2.03 \times 10^{-2}$ |