

An Experimental Study on the Erosion of a Compacted Calcium Bentonite Block

압축된 칼슘벤토나이트 블록의 침식에 대한 실험적 연구

Min-Hoon Baik and Won-Jin Cho

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Daejeon, Duckjin-dong, Yuseong-gu, Daejeon

mhbaik@kaeri.re.kr

백민훈, 조원진

한국원자력연구소, 대전시 유성구 덕진동 150번지

(Received May 20, 2005 / Approved July 26, 2005)

Abstract

Bentonite has been considered as a candidate buffer material in the underground repository for the disposal of high-level radioactive waste because of its low permeability, high sorption capacity, self sealing characteristics, and durability in nature. In this study, the potential for separation of bentonite particles caused by the groundwater erosion was studied experimentally for a Korean Ca-bentonite under the relevant repository conditions. Results showed that bentonite particles can be generated at the bentonite/granite interface and mobilized by the water flow although the intrusion of bentonite into fracture by swelling pressure was observed to be small. Different processes of mobilization of these colloids from the compacted bentonite block have been identified in this study. The concentration of particles eluted in water was increased as the flow rate increased. Thus the result reveals that the erosion of the bentonite surface due to the groundwater flow together with intrusion processes is the main mechanism that can mobilize bentonite colloids in the fracture of the granite.

Key words : Calcium Bentonite, Separation of Bentonite Particles, Erosion of Bentonite, Stability of Bentonite Colloids, Rock/Buffer Interface

요 약

벤토나이트는 낮은 침투성, 높은 수축성, 자체밀봉특성, 내구성 등으로 인해 고준위 방사성

폐기물 처분을 위한 지하처분장에서 완충재 후보물질로 고려되고 있다. 적절한 처분장 조건에서 국내 Ca-벤토나이트에 대하여 지하수 침식에 의한 벤토나이트 입자의 발생 가능성과 발생된 벤토나이트 입자들의 영향에 대한 실험적 연구를 수행하였다. 실험결과 비록 벤토나이트의 팽윤압에 의한 암반 균열로의 벤토나이트의 침투는 적었지만 벤토나이트/화강암 경계에서 벤토나이트 입자가 발생할 수 있고 지하수 흐름에 의해 유동될 수 있음을 보였다. 압축된 벤토나이트 블록으로부터 이러한 벤토나이트 입자들의 유동화에는 각기 다른 과정들이 기여하고 있음을 확인하였다. 유량이 크면 클수록, 유출되는 벤토나이트 입자들의 농도가 높게 나타났다. 따라서 실험결과는 지하수 흐름에 의한 벤토나이트 표면의 침식은 침투과정과 함께 화강암 균열에서의 벤토나이트 입자들을 유동시키는 주요한 과정임을 보여준다.

중심단어 : 칼슘벤토나이트, 벤토나이트 콜로이드, 침식과 발생, 벤토나이트 콜로이드의 안정성, 암반/완충재 경계

I. 서론

사용후핵연료를 포함하여 고준위방사성폐기물 처분을 고려하고 있는 대부분의 고준위방사성폐기물 처분장 설계 개념에 있어 방사성폐기물은 금속 처분 용기(canister)로 포장되어 지하 수 백 미터에 위치하는 지하매질의 처분공에 정치되는데, 이 때 처분 용기와 처분공 벽 사이의 공간은 인공방벽시스템(Engineered Barrier System, EBS)을 구성하는 완충재(buffer) 물질인 점토층으로 메워지고, 처분 터널은 뒷채움재(backfill)로 채워지게 된다. 처분장 폐쇄 후에 암반과 인공방벽, 처분공과 터널들은 결국 지하수에 의해 포화되게 될 것이다. 많은 국가들에서 낮은 침투성, 높은 수착능, 자체 밀봉특성, 자연에서의 내구성 등으로 인해 벤토나이트(bentonite)가 고준위 방사성폐기물 처분을 위한 지하처분장의 완충재 물질로 고려되어져 왔다[1]. 우리나라에서 고려되고 있는 고준위방사성폐기물(현재로는 사용후핵연료) 처분 개념은 폐기물을 부식 저항력이 큰 처분용기에 포장하여 지하 약 500미터 정도의 심지층 결정질 암반에 위치한 처분시설에 처분하는 것이다[2].

처분공에 정치된 고압축된 벤토나이트 블록은 낮은 초기 수분 함량(약 10 wt.%)으로 인해 매우 큰 팽윤능을 가지게 된다. 암반으로부터의 수분 공급과 벤토나이트의 팽윤은 벤토나이트가 암반의 열린 균열

로 들어가게 만든다. 이것을 보통 침투(intrusion)라고 한다. 그리고 이러한 이동하는 벤토나이트의 전방(front)은 매우 부드러운 특성을 가지는 벤토나이트 겔(gel)을 형성하게 된다. 벤토나이트의 침투 속도는 밀도와 균열의 폭에 의존하지만 벤토나이트 겔의 침식은 균열에서의 지하수 유량뿐만 아니라 전단응력(shear stress)에 의존하게 된다[3].

침식성(erosibility)은 지하수 흐름에 의한 견인력을 계산하고 겔 프론트의 입자들 사이의 결합과 비교함으로써 정량적으로 유도될 수도 있다[3]. 아울러 실제로 침식되는 입자들이 평면 형태의 몬토릴로나이트(montmorillonite) 입자들의 구형, 회합한 것이라는 연구 결과들이 제시되었다[3, 4]. 따라서 입자들의 안정성과 침식 현상이 서로 관련되어 있음을 알 수 있다. 회합된 입자들의 안정성은 용액의 이온강도 및 pH 등 화학적 조건 등에 의존하게 된다. 만약 점토의 밀도가 매우 낮아지게 되면, 크게 수화된 점토 평판들(platelets)이 서로 떨어지게 되고 거시적 거동은 겔처럼 된다. 각각의 평판들이 자유롭게 되고 수평으로 흐르는 물에 의해 표면으로 떨어지게 되거나 자유입자로서 확산해 나가게 될 것이다 (Figure 1 참조).

지금까지 원계(far-field)에서 자연 지하수 콜로이드가 방사성핵종의 이동에 미치는 영향에 대해서는 많은 연구들이 수행되어져 왔으나 원계와 근계(near-

field)의 경계에서 발생할 수 있는 벤토나이트 콜로이드에 대해서는 별로 관심이 없었다[5-8]. 원계와 근계의 경계(즉, 벤토나이트가 지하수와 접촉하는 지역)에서 벤토나이트 콜로이드의 발생은 무엇보다도 방사성핵종들이 벤토나이트에 강하게 수착되기 때문에 방사성핵종의 이동에 있어 매우 중요하다[7, 8].

따라서 본 연구의 목적은 타당한 처분장 조건에서 균열을 통한 지하수 흐름에 의한 압축된 벤토나이트 블록의 침식 현상을 조사할 수 있는 실험 장치를 구성하여 벤토나이트-암반균열 경계에서의 벤토나이트 침식 특성 및 침식에 의해 발생한 벤토나이트 입자들을 정량적으로 평가하는 것이다.

II. 실험

가. 실험 재료

본 실험에 사용된 화강암은 경기도 덕정면의 채석장에서 구한 것이다. 사용된 화강암의 부피밀도는 약 2.55 g/cm³ 이고 공극율은 약 0.3% 이다. 실험에 사용된 화강암 코어의 크기와 모양을 Fig. 2에 나타내었다. 본 연구에서 사용한 벤토나이트는 우리나라의 경상북도 경주지역에서 생산된 것으로(경주벤토나이트라 부른다) 우리나라의 고준위방사성폐기물 처분 개념에서 잠정적으로 고려하고 있는 벤토나이트이다. 벤토나이트는 건조, 분말화 및 ASTM의 표준

200 mesh 분체로 분리한 것 외에는 달리 처리되지 않았다.

사용된 화강암 및 벤토나이트의 광물학적 조성은 전자현미경(electronic microscope)을 이용한 point counting 방법과 X-선 회절기(XRD, X-ray diffractometer, 기초과학연구원)를 이용하여 구하였고 그 결과를 Table 1에 나타내었다. 경주벤토나이트의 양이온 교환능(CEC, Cation Exchange Capacity)는 47.7 meq./100g이고, Ca²⁺가 주요 지배적인 이온교환 양이온이므로 결국 경주벤토나이트는 Ca형 벤토나이트이다[9]. 그리고 경주벤토나이트의 총탄소 함량은 3160에서 3600 ppm이고, 유기탄소 함량은 2400에서 2800 ppm 이다[10]. 아울러 경주 벤토나이트의 건조밀도는 2.74 g/cm³ 이고 총 비표면적은 347.6 m²/g 로 측정되었다[9]. 경주벤토나이트의 자유 팽윤속도(free swell rate)는 89.1 ± 2.8 ml/(10g의 건조 벤토나이트)로 나타났다[9].

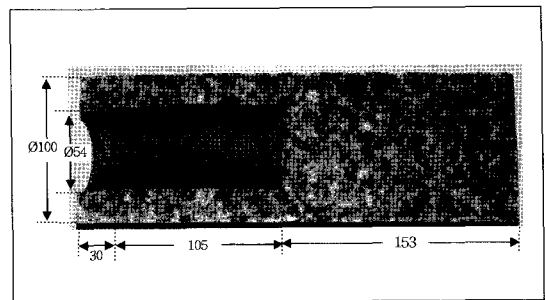


Fig. 2. Granite core and bentonite block used in the bentonite erosion experiments.

Table 1. Mineralogical compositions of the used granite and bentonite.

Minerals	Granite	Bentonite
Quartz	44.2	2.9
Montmorillonite	-	58.8
Plagioclase	25.4	-
K-feldspar	11.5	36.7
Biotite	14.7	-
Hornblende	2.1	-
Clinoptilolite	-	1.7
Sphene	0.8	-
Opaque Phases	1.3	-
Total	100.0	100.0

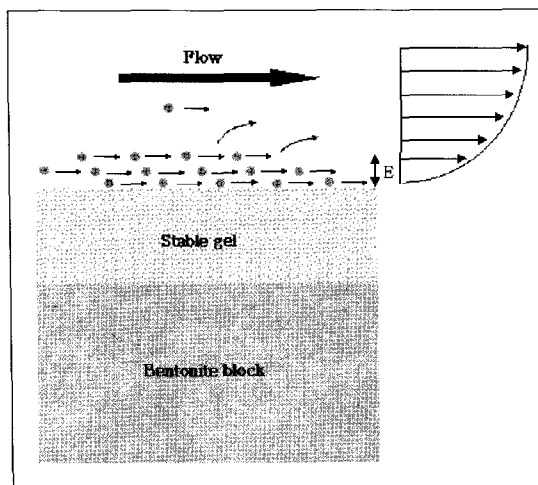


Fig. 1. Schematic diagram for the erosion process of bentonite buffer(E: erosion zone).

나. 측정 장비

지하수 흐름에 의한 침식에 의해 압축된 벤토나이트 블록으로부터 유출된 벤토나이트 입자들의 크기와 농도를 측정하기 위하여 동적광산란(DLS, Dynamic Light Scattering) 또는 Quasi Elastic Light Scattering (QELS) 방법을 이용한 장비(ZetaPlus BI-MAS, Brookhaven)를 사용하여 측정하였다. 사용된 레이저는 15mW 고체 상태 레이저(solid state laser)이고 입자 크기의 측정범위는 2 nm~3 μm이고, 정확도(accuracy)는 단분산(monodisperse) 입자들에 대해 약 1~2% 정도이고 재현성은 먼지 없는 입자들에 대해 약 1~2%이다. 측정의 정확성을 위해 100nm 표준 라텍스 입자(Surfactant-Free Fluorescent Polystyrene Latex, Interfacial Dynamics Corporation)들을 이용하여 측정기기를 검증하였다. 침식되어 유출된 벤토나이트 입자들의 농도는 입자들의 크기 결정에 사용된 DLS 방법을 이용하여 측정하였다. 농도를 알고 있는 벤토나이트 콜로이드 입자들을 이용하여 농도와 count rate(counts per second)로 표현되는 상관 곡선으로부터 적절한 검증선(calibration curve)을 얻어서 측정하였다[8, 11].

다. 실험 방법

Fig. 3에는 실험에 사용된 실험 장치를 개괄적으로 나타내었다. 화강암 코어를 지지하여 화강암 코어의 균열이 아닌 코어 둘레를 따라 용액이 흐르는 것을 방지하고, 압축된 벤토나이트의 팽윤에 의한 균열의 벌어짐을 방지하기 위해 사용된 가압 기체로는 고순도(99.999%) 질소가 사용되었고 약 3.0 MPa 정도의 압력으로 가압하였다.

실험에 사용된 용액은 Milli-Q(Millipore) 초순수(18.2 MΩ-cm)를 이용하여 만든 0.01 M NaClO₄ 용액으로, 질소를 주입하여 용액 중 녹아있는 CO₂(g)를 제거하고 적정농도의 HClO₄과 NaOH 용액을 이용하여 초기 pH를 8.5로 설정하였다. pH 미터(Orion 940) 및 전극(Orion Combination Electrode)을 이용하여 pH를 측정하였다. 준비된 용액은 공기중의 CO₂의 용해 및 기체 발생 등을 방지하기 위하여 실험이 진행되는 동안 용액 보관 용기에 헬륨가스를 소량씩 계속해서 주입하였다. 우선 균열 암반을 통한 용액의 흐름 특성 및 균열 폭 등을 계산하기 위하여 벤토나이트 블록 대신에 암반 균열을 이용하여 0.01M NaBr을 이용하여 HPLC 펌프(영린, 930M)를

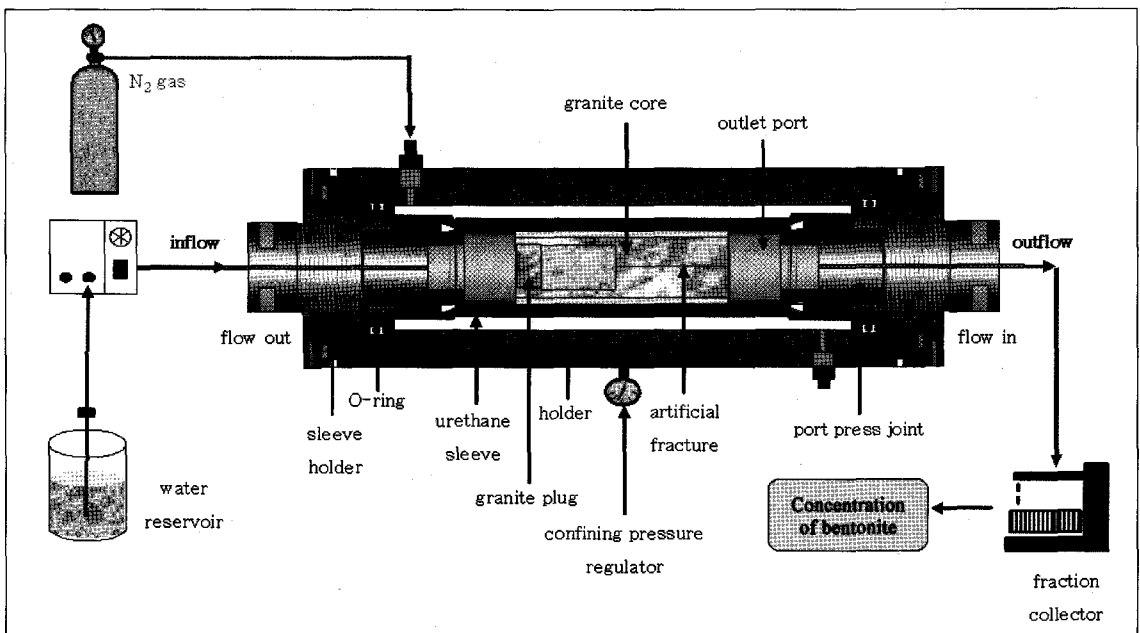


Fig. 3. Experimental system for bentonite erosion.

이용하여 유량을 0.001~0.1 mL/min 으로 변화시키며 음이온 Br-의 추적자 이동 실험을 수행하였다. 추적자의 주입은 임펄스(impluse) 형태로 용액의 흐름이 정상상태에 도달하면 일정 기간 동안 주입한 후 다시 용액을 흘리는 방식을 도입하였다.

추적자 실험 후에 1.6 g/cm³의 밀도로 압축된 벤토나이트 블록을 장착한 후, 질소 가스를 고압용 압력조절기(regulator)를 이용하여 피압을 3 MPa로 일정하게 맞춘 뒤에, 일정한 유량으로 용액을 흘리면서 용액 흐름에 의한 벤토나이트 블록의 침식 실험을 수행하였다. 유출되어 나온 용액은 Fractional collector를 이용하여 바이얼(vial) 당 80 방울(약 3.8 mL)의 용액을 수집하였다. 또한 실험 수행 중 HPLC 펌프의 주입 유압(flow pressure)의 변화를 관측하였다. 실험 후 유출된 용액에 포함된 벤토나이트 입자들의 크기 및 농도를 동적광산란 방법을 이용하여 측정하였다. 실험이 끝난 뒤에 팽윤된 벤토나이트 블록을 함유한 균열 암반을 개봉해서 벤토나이트의 균열 암반으로의 침투 정도를 관측하고 디지털 카메라로 촬영하였다.

II. 결과 및 논의

가. 균열 흐름 특성

화강암 시추코어의 균열을 통한 용액의 수력학적

흐름 특성은 균열 폭을 계산하거나 흐름 특성을 해석하기 위해 꼭 필요하다. 유속, 분산계수, 파과시간(breakthrough time) 등은 HTO 또는 Br와 같은 비수착성 추적자를 이용하여 결정할 수 있다. 본 연구에서는 비수착성 추적자로 음이온인 Br를 이용하였다. 화강암 시추코어의 인공 균열을 통한 Br의 파과곡선을 구하였고, 이렇게 Br의 파과곡선으로부터 구한 수력학적 변수 값들을 Table 2에 나타내었다.

나. 벤토나이트의 암반균열로의 침투

벤토나이트의 팽윤에 의한 팽창은 완충재의 밀도를 감소시키고 암반 균열로의 침투(intrusion)를 일으킨다. 벤토나이트의 일정한 점도 μ 와 균열에서 벤토나이트의 Poisseuille 형 유체흐름을 가정하면 시간에 의존하는 벤토나이트 침투는 팽윤압 $P_{sw}(\rho(t))$ 에 의해 다음과 같이 주어진다[6].

$$\frac{ds}{dt} = \frac{\delta^2}{12\mu} \frac{P_{sw}[\rho(t)]}{s(t)} \quad \dots (1)$$

여기서 δ 은 노출된 균열의 균열폭이다

실질적으로 균일한 점도라는 가정은 벤토나이트가 잠재적으로 비 Newtonian 거동을 하므로 잘못된 것이라 할 수 있다. 그러나 이것은 침투의 정도보다는 침투속도에 영향을 미친다. 더 중요한 것은 벤토나이트

Table 2. Hydrodynamic properties of the granite core determined by non-sorbing tracer tests using Br.

Flow rate			0.01 mL/min	0.1 mL/min
Confining pressure			3 MPa	3 MPa
Variables	Definitions	Unit		
L	Granite core length	cm	30	30
t ₀	residence time	h	50.9269	5.5137
W ¹⁾	Average width of the granite core	cm	13.018	13.018
V ₀	Average velocity	cm/h	0.589	5.441
V _p ²⁾	Pore volume	mL	~20(30.556)	~23(33.082)
δ	Average aperture width	cm	0.0512	0.0589
D	Dispersion coefficient	cm ² /h	6.71	41.25
α	Dispersivity length	cm	11.38	7.58
Pe	Peclet number	-	2.6355	3.9569

¹⁾ W was calculated by considering geometrical shape of the fracture.

²⁾ Obtained from the peak of the elution profile and the value in () was the pore volume obtained from momentum calculations.

트가 일정한 양의 항복응력(yield stress) τ_c 를 가진다는 것이다. 이러한 경우에 균열을 따라서 다음과 같이 주어지는 Bingham 유체가 전파된다고 할 수 있다[6].

$$\delta \frac{P_{sw} [\rho(t)]}{s(t)} > 2\tau_c \quad \dots\dots (2)$$

이 새로운 제약에 의해 벤토나이트는 식 (1)에 따라 침투하고 팽윤압 $P_{sw}[\rho(t)]$ 은 식 (2)가 실패할 때까지 즉, 벤토나이트 최전방이 멈출 때까지, 감소할 것이다. 추측된 항복응력이 $\tau_c=500$ Pa 이라고 가정하면 원통형 구조 시스템에서 1.5 mm의 균열에 대해 11mm의 벤토나이트 침투를 얻을 수 있다[12]. 그러나 실험에서는 20mm 인 것으로 관측되었다. 국내산 벤토나이트에 대한 항복응력과 점성거동에 대한 보다 자세한 연구가 필요하며 진행 중에 있다.

Fig. 4에 균열로 침투된 벤토나이트를 디지털 카메라로 촬영한 결과를 나타내었다. 실제 실험 결과 팽윤에 의해 벤토나이트는 암반 균열로 약 2-3 mm 정도 침투한 것으로 나타났다.

다. 벤토나이트 침식

균열 암반을 통해 유출된 벤토나이트의 파과곡선을 Fig. 5에 도시하였다. 그림에 나타난 바와 같이 유

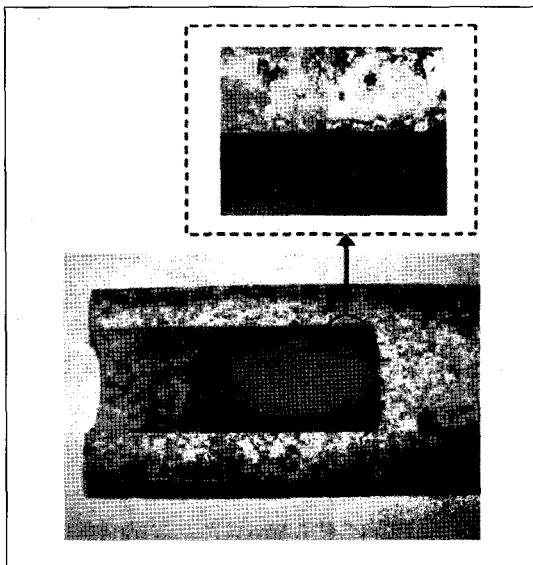


Fig. 4. Intrusion of bentonite into the rock fracture due to the swelling pressure

량이 증가함에 따라 침식되어 유출되는 벤토나이트의 농도도 증가함을 알 수 있다. 실제로 침식된 입자들의 구형 회합에 의한 것이라는 연구결과가 제시되었다[3, 4]. 따라서 입자들의 안정성과 침식 현상이 서로 관련되어 있음을 알 수 있다. 회합된 입자들의 안정성은 용액의 이온강도 및 pH 등 화학적 조건 등에 의존하게 된다.

주변 암반균열로 침투된 벤토나이트의 겔 형태의 최전방에서 손실을 고려하였다. 우선 점토평판들이 확산하여 나간다고 가정하면 확산속도 D는 Stokes-Einstein 관계식으로부터 약 5×10^{-5} m²/y 이어야 한다. 반경이 r, 높이가 h인 원통형 구멍에 벤토나이트가 놓여있고, 균열면의 10%가 콜로이드가 빠져나갈 수 있는 노출된 면이며, 회석된 밀도 $C_0=0.01$ t/m³ 를 가지는 벤토나이트 경계에서 자유 콜로이드 물질이 존재한다고 가정하면 시간 t에서의 가능한 질량 손실은 다음과 같이 계산될 수 있다[6].

$$\text{emplaced mass(g)} \approx 1.6(\pi r^2 h) = 384.75 \quad \dots (3)$$

$$\begin{aligned} \text{lost mass after 100,000 years(g)} \\ = 2c_0(Dt/\pi)^{1/2}(2\pi rh)(0.10) = 0.4 \quad \dots\dots\dots (4) \end{aligned}$$

식 (3)과 (4)의 계산결과에 의하면 유실된 벤토나이트의 양은 100,000이후에도 초기 정치된 양의 약

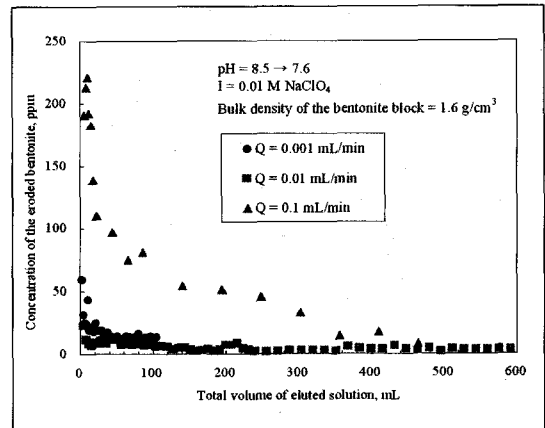


Fig. 5. Breakthrough curves of the bentonite erosion with varying flow rate.

0.1% 정도로 매우 작을 것이다. 이러한 벤토나이트의 침식과정은 질량 유실에 따른 벤토나이트 완충재의 물리적 건전성에는 거의 영향을 미치지 않겠지만 지하수 흐름에 의한 벤토나이트 콜로이드의 발생량은 유출되는 핵종의 농도와 비교하면 결코 적은 양이 아니라고 하겠다. 따라서 수착능이 매우 큰 벤토나이트 콜로이드가 방사성 핵종과 결합하여 암반 균열을 따라 이동하게 될 가능성이 높다는 사실을 고려한다면, 7, 8 완충재와 암반 균열의 경계에서 완충재로부터 지하수에 의해 침식되어 발생된 벤토나이트 콜로이드가 암반균열을 통한 핵종 이동에 중요한 영향을 미칠 것으로 예상된다.

IV. 결론

타당한 처분장 조건에서 국내 Ca 벤토나이트에 대한 지하수 침식에 의한 벤토나이트 입자의 발생 가능성과 발생된 벤토나이트 입자들의 영향에 대한 실험적 연구가 수행되었다. 실험결과 비록 벤토나이트의 팽윤 압에 의한 암반 균열로의 벤토나이트의 침투는 적었지만 벤토나이트/화강암 경계에서 벤토나이트 입자가 발생될 수 있고 지하수 흐름에 의해 유동될 수 있음을 보였다. 아울러 본 연구를 통하여 압축된 벤토나이트 블록으로부터 이러한 벤토나이트 입자들의 유동화에는 각기 다른 과정들이 기여하고 있음과 지하수 흐름에 의한 벤토나이트 표면의 침식은 침투과정과 함께 화강암 균열에서 벤토나이트 입자들을 유동시키는 주요한 과정임을 확인하였다. 따라서 처분장 인공방벽시스템에서 벤토나이트 완충재의 침식과정은 벤토나이트의 질량 유실에 따른 인공방벽 시스템의 물리적 건전성에는 거의 영향을 미치지 않지만 완충재와 암반 균열의 경계에서 완충재로부터 지하수에 의해 침식되어 발생된 벤토나이트 콜로이드가 암반균열을 통한 핵종 이동에 중요한 영향을 미칠 것으로 예상된다.

감사의 글

본 연구는 원자력중장기연구개발연구의 일환으로 과학기술부의 지원을 받아 수행되었음.

참고문헌

- [1]M. J. Smith et al., Engineered barrier development for a nuclear waste repository in basalt: An integration of current knowledge, RHO BWI ST 7, Rockwell Hanford Operations (1980).
- [2]Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI), Progress Report on the R&D Program for the Disposal of HLW in Korea, Korea Atomic Energy Research Institute, August 20, 2002, Daejeon(2002).
- [3]R. Pusch, Stability of bentonite gels in crystalline rock Physical aspects, SKBF/KBS Technical Report TR 83-04, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co.(1983).
- [4]Pusch, R., Piping and erosion phenomena in soft clay gels, SKB Technical Report 87-09, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co.(1987).
- [5]R. Pusch, Clay colloid formation and release from MX?80 buffer. SKB Technical Report TR?99-31, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co.(1999).
- [6]P. Grindrod, M. Peletie and H. Takase, "Mechanical interaction between swelling compacted clay and fractured rock, and the leaching of clay colloids," Eng. Geol., 54, pp. 159-165(1999).
- [7]A. Möri, W.R. Alexander, H. Geckeis, W. Hauser, T. Schäfer, J. Eikenberg, Th. Fierz, C. Deguedre and T. Missana, "The colloid and radionuclide retardation experiment at the Grimsel Test Site: influence of bentonite colloids on radionuclide migration in a fractured rock," Colloids and Surfaces A, 217, pp. 33-47(2003)
- [8]T. Missana, U. Alonso and M.J. Turrero, "Generation and stability of bentonite colloids at the bentonite/granite interface of a deep geological radioactive waste repository," J.

Contam. Hydrol., 61, pp. 17-31(2003).

- [9]조원진, 이재완, 강철형, 진관식, 고준위폐기물처분장 완충재용 국산 벤토나이트 및 벤토나이트-모래 혼합물의 물리화학적, 광물학적 및 역학적 특성, KAERI/TR-1388/99, 한국원자력연구소(1999).
- [10]조원진, 이재완, 강철형, 국산벤토나이트의 유기탄소 함량이 고준위폐기물 처분장 완충재의 성능에 미치는 영향, KAERI/TR 1439/99, 한국원자력연구소(1999).
- [11]A. Ledin, S. Karlsson, S. Düker and B. Allard, "Application of photon correlation spectroscopy for measurement of concentration and size distribution of colloids in natural waters," *Analytica Chimica Acta*, 281, pp. 421-428(1993).
- [12]T. Kanno and H. Wakamatsu, "Experimental study on bentonite gel migration from a deposition hole," *Proceedings of the 3rd International Conference on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste management (RECOD '91)*, Sendai, Japan (1991).