J. of the Korean Radioactive Waste Society
Vol.8(3), P. 229-238, Sept. 2010.

[Technical Paper]

Analysis of Case Studies on Experimental Research of Gas Generation in Foreign Countries for Low- and Intermediate-level Radioactive Waste Disposal

중 · 저준위 방사성폐기물 처분을 위한 국외 기체발생 실증실험시설 운영사례 분석

Jin-Beak Park[1)], Sun-Joung Lee, Suk-Hoon Kim* and Ju-Youl Kim*

Korea Radioactive Waste Management Corporation, 1045 Daedeok-daero Yuseong-gu, Daejeon

*FNC Technology Co., 135-306 Seoul National Univ., Daehak-dong, Gwanak-Gu, Seoul

박진백[1)], 이선정, 김석훈*, 김주열*

한국방사성폐기물관리공단, 대전시 유성구 대덕대로 1045

*㈜미래와 도전, 서울시 관악구 대학동 서울대학교 135동 306호

(Received Jun 16, 2010 / Revised August 03, 2010 / Approved August 25, 2010)

Abstract

In order to acquire a realistic forecast for the lifetime and post-closure period of the LILW (Low- and Intermediate-Level Radioactive Waste) repository and to establish the overall management plan associated gas issues. it is essential to carry out the long-term experimental research in a similar condition to actual disposal environment. Regarding this, as a part of the following-up actions on a construction and operation license for the first stage of the LILW repository at Gyeongju city, a large-scale in-situ experiment is being planned. For securing basic data on the experiment, the experimental researches related to gas generation previously performed in foreign countries are reviewed in detail. Consequently, it is judged that data on the gas generation experiment in Finland could be practically applied as the benchmark for our large-scale in-situ experiment because the same disposal concept as the Korean repository is adopted and the experiment is performed in a scale large enough to allow the use of regular waste packages.

Key words : LILW disposal, Gas generation, Experimental research, Safety assessment

요 약

중 · 저준위 방사성폐기물의 처분/폐쇄 이후 기체 발생특성을 실질적으로 평가하고, 이를 이용하여 발생 기체의 종합관리방안을 수립하기 위해서는 실제 처분환경 및 특성을 고려한 장기간의 실증실험이 반드시 필요하다. 이와 관련하여, 국내에서는 월성원자력환경관리센터의 1단계 10만 드럼 처분에 대한 건설 및 운영허가 후속조치의 일환으로 현장부지에 기체발생 실증실험시설이 설치/운영될 예정이다. 이에 대한 기초자료를 확보하기 위해, 세계 각국에서 다양한 방법으로 수행된 기체 발생 관련실험에 대한 제반사항을 면밀히 검토하였다. 그 결과 우리나라와 처분방식이 동일하며, 실제 폐기물 포장드럼 및 기본 처분단위를 이

1) Corresponding Author. E-mail : jbpark@krmc.or.kr

용하여 대규모로 수행된 핀란드의 기체 발생 실험자료를 국내 실증실험에 대한 유용한 벤치마크로 사용할 수 있을 것으로 판단된다.

중심단어 : 중 · 저준위 방사성폐기물 처분, 기체 발생, 실증실험, 안전성 평가

I. 서 론

우리나라의 중 · 저준위 방사성폐기물은 원자력발전소, 산업체, 병원 등의 동위원소 이용기관, 그리고 한국원자력연구원을 포함한 국내 연구기관 및 한전원자력연료(주)에서 발생하고 있다. 2007년 말 기준 원자력발전소 등에서 저장중인 중 · 저준위 방사성폐기물은 200L 드럼을 기준으로 환산하여 100,027 드럼이며, 전체 저장용량의 75% 가량을 차지하고 있다[1].

제253차 원자력위원회에서 확정된 방사성폐기물 관리대책에 따라 국내에서 발생되는 다양한 물리적 형태의 중 · 저준위 방사성폐기물의 처분을 목적으로 하고 있는 월성원자력환경관리센터에 대한 안전심사는 원자력관계법령에 근거한 교육과학기술부의 위탁에 따라 한국원자력안전기술원에서 수행되었으며, 이러한 심사결과는 원자력안전자문위원회 5개 전문분과의 심의를 거쳐 교육과학기술부에 보고되었다. 교육과학기술부는 원자력안전위원회의 최종 심의를 통해 2008년 7월 31일에 1단계 10만 드럼 처분에 대한 건설 · 운영허가를 발급하였다[2]. 당시 교육과학기술부는 인허가 후속조치를 통해 시스템 특성을 고려한 기체발생 및 이동현상에 대한 재평가를 수행하고 이를 통한 처분안전성의 불확실성 저감 및 안전성증진을 허가조건으로 제시하였다.

해당 시설은 지하수 포화대에 위치하기 때문에 지하처분시설로 분류할 수 있으며, 주위 암반과 지하수의 지화학조건에 따라 처분 안전성에 많은 영향을 받게 된다. 처분환경에서는 금속 부식, 미생물에 의한 유기물질 분해, 방사분해 등에 의해 상당한 양의 기체(수소, 메탄, 이산화탄소 등)가 생성될 것으로 추정된다. 이러한 기체는 처분시설 내부 압력변화(과압)를 초래하며 지하수 유출 및 핵종의 이동을 가속화시키고, 지하매질 및 균열을 통해 지표면에 도달하여 인간과 환경에 대한 방사선 피폭을 야기할 수 있다.

기체 발생에 따른 영향을 평가하기 위해 건설 및 운영허가를 위한 안전성분석보고서 작성시 인허가 심사지침서[3]에 따라 SMOGG 전산 프로그램을 이용하여 비방사성 기체발생량을 예측한 결과 처분시설의 안전성에는 영향을 미치지 않으며, 방사선적 영향에 대한 평가에서도 국내 고시기준을 만족하는 것으로 나타났다[4].

그러나, 해당 평가에 적용된 입력변수는 국외문헌에 제시된 값을 그대로 사용한 것이며, 국내에서 발생되는 방사성폐기물에 대한 실험내용을 반영하지 않은 초기단계 폐쇄 후 안전성평가 내용이다. 또한, 다른 연구결과를 통해 비록 기체발생 모델링을 통한 평가결과는 시스템 거동을 이해하는데 도움은 되지만, 안전성 분석에 요구되는 신뢰수준을 제공하지 못한다는 것이 확인되었다. 즉, 중 · 저준위 방사성폐기물의 처분/폐쇄 이후 기체 발생특성을 실질적으로 평가하고, 이를 이용하여 발생기체의 종합관리방안을 수립하기 위해서는 실제 처분환경과 유사한 조건에서 장기간에 걸친 실증실험이 반드시 필요하다.

국내 처분특성을 고려한 기체 발생 실증실험시설 설치/운영 등에 대한 기초자료를 확보하기 위해 폐기물 처분과 관련하여 세계 각국에서 다양한 방법으로 수행된 관련실험에 대한 제반사항을 면밀히 검토하였으며, 본문에서는 각 실험의 개요, 실험방법, 실험결과 및 분석 등에 대한 검토내용을 기술하였다.

II. 국가별 주요 실증실험시설 운영사례

가. 핀란드

① 개요 및 목적

올킬루오토(Olkiluoto) 원자력발전소의 OL 1, 2호기에서 발생된 중 · 저준위폐기물은 VLJ 처분시설의 2개 사일로 내부에 처분된다. 이러한 처분대상 폐기물 드럼으로부터의 기체 발생을 조사하고 장기 안전성 평가에 사용할 수 있는 실질적인 매개변수를 획득하기 위해 대규모 기체 발생실험(GGE: Gas Generation Experiment)이 처분시설의 건설터널(Figure 1)에서 1997년 8월에 시작되었다. 이러한 실험은 최초에 유럽공동체에서 수행한 PROGRESS (Pricing ROad use for Greater Responsibility, Efficiency and Sustainability in citieS) 프로젝트의 일부로 설계/구성되었으며, 9년간에 걸쳐 기체 발생률, 생성된 기체의 조성, 일련의 광범위한 지화학/미생물학적 측정자료를 생산하였다.

② 실험방법

GGE 시설의 전체적인 형상은 Figure 2와 같으며, 실험규모

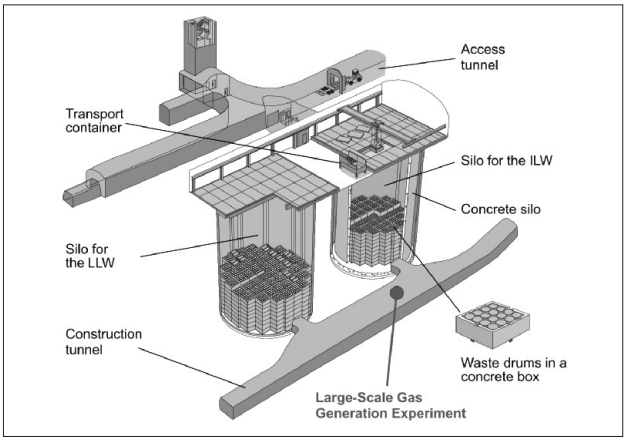

Fig. 1. Location of the gas generation experiment in Finland.

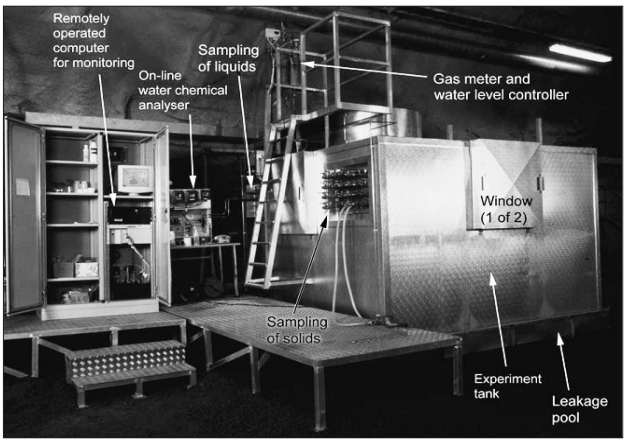

Fig. 2. Configuration of the gas generation experiment in Finland.

는 실질적인 처분조건 및 처분대상 폐기물의 불균질성을 모사하기 위해 압축 폐기물이 채워진 16개의 드럼을 적재할 수 있는 공간이 존재하는 덮개가 없는 1개의 일반 콘크리트 처분용기를 포함하도록 선택되었다. 실험을 위해 올킬루오토 2호기의 폐기물 stream에서 Table 1과 같이 약 1.5톤의 폐기물이 분류되었다[5].

폐기물 포장드럼 및 콘크리트 용기에 대한 처분환경을 조성/유지하기 위해 온라인 측정, 추가 분석을 위한 시료 채취 등에 필요한 연결부가 설치된 실험탱크가 사용되었으며, 탱크 내부는 최초에 현지 연못에 축적된 강물로 충수되었다.

해당 실험의 본질적인 목표 가운데 하나인 기체 발생량을 측정하기 위해 혐기성 소화장치를 감시하기 위해 설계된 기체 유량 측정시스템의 원리가 적용되었다[6]. 일부 주요 화학적 변수(pH, 전기전도도, 산화-환원전위, 용존산소 농도, 온도)는 순환루프에 장착된 센서모듈을 통해 온라인으로 측정/감시된다. 또한, 정기적으로 채취된 기체/액체/고체시료를 대상으로 실험실 측정/분석이 수행되었다.

Table 1. Waste composition used in the gas generation experiment in Finland.

물 질		중량[kg]	질량분율[w/o]	
			값	소계
섬유소 기반	무명 옷/장갑	240	28	41
	종이, 마분지	270	16	
	유성 무명 옷	85	8	
	유성 종이	15	8	
비섬유소 기반	플라스틱(폐기물 포장비닐)	454	7	59
	금속(대부분 스테인리스강)	85	5	
	라텍스 장갑	47	4	
	전기부품	47	3	
	방화복(유리섬유)	47	3	
	PVC 품목	36	3	
	폴리 탄산 에스테르 천	35	2	
	열교환기 세척공(천연고무)	21	2	
	방독면 카트리지	10	1	
	기타	123	10	
합 계		1,514	100	

③ 실험결과 및 분석

9년간의 실험기간 동안 생성된 기체의 누적 부피 변화는 Figure 3에 제시하였다[7]. 최초 1년간은 상대적으로 적은 양의 기체가 방출되는데, 이는 포장비닐에 넣어진 폐기물 내부로 물이 이동함에 따른 폐기물 물질의 포화, 트랩된 공기의 이동, 기체 발생과정의 확립단계를 나타내기 때문으로 판단된다. 1999년 이후 기체 발생률은 비록 보다 신속하거나 완만한 기간이 존재하기는 하지만 상당히 일정(약 1dm³/년)하다.

혐기성 기체 발생과정이 확립되는 최초 1년간 분석되는 상부공간의 기체는 0.1~1.0v/o의 이산화탄소와 이와 유사한 양의 수소를 포함하며, 해당 시점에서 기체의 대부분은 질소로 구성되어 있을 것으로 예상된다. 메탄은 6개월 이후에 최초로 검출되었으며, 1998년부터 그 이후로 발생된 기체에서 메탄의 구성비는 50~90v/o이다. 이 경우에도 상부공간의 이산화탄소 함량은 여전히 약 1v/o이다. 수소는 최초 18개월의 가동기간 동안에만 검출된다. 주기적으로 수행된 기체 분석을 통

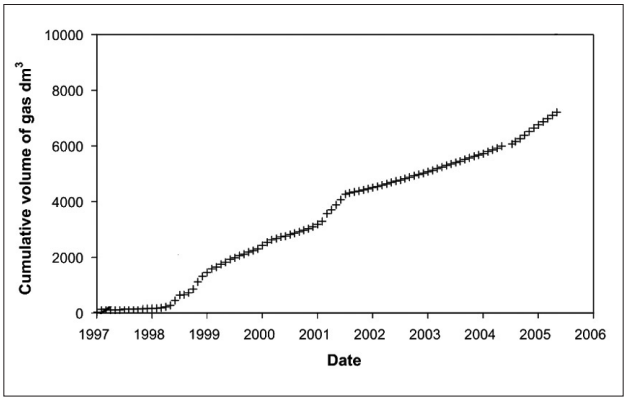

Fig. 3. Cumulative volume of gas recorded from the gas generation experiment in Finland.

해 상당한 양(10~47v/o)의 질소가 존재함이 확인되었으며 2001년 이후의 자료로부터 질소가 서서히 실험장치로부터 배출됨을 알 수 있다. 비록 수 개의 시료는 검출한계 미만이었지만, 산소는 분석되는 상부공간 기체에서 가동기간 내내 낮은 수준으로 검출되었다. 이는 상부공간에 존재하는 산소와 질소가 방출될 때까지 폐기물의 현저한 혐기성 영역으로부터 분리된 플라스틱 포장비닐 내부 등에 트랩된 공기를 주로 나타내기 때문인 것으로 추측된다. 다른 분석대상 기체인 H_2S, C_2H_4, C_2H_6은 실험기간 동안 검출되지 않았다.

나. 미국

① WIPP GGE

- **개요 및 목적** : WIPP(Waste Isolation Pilot Plant)에서의 방사성핵종 이동에 대한 가능성을 보다 잘 이해하기 위해 DOE(Department of Energy)의 후원하에 PNNL(Pacific Northwest National Laboratory), BNL(Brookhaven National Laboratory), LANL(Los Alamos National Laboratory) 등에서 다수의 시험이 수행되었다. 또한, 다른 프로그램을 통해 획득된 결과에 대한 벤치마크 및 확인을 위해 완전히 통합된 시험 프로그램이 약 6.5년간(1996년 초~2002년 가을) ANL(Argonne National Laboratory)에서 시행되었다. 해당 프로그램에 의해 WIPP에서 예상되는 조건에서 다양한 형태의 접촉 제어 초우라늄(CH-TRU: Contact-Handled TRansUranic) 실제 폐기물을 대상으로 견본을 만든 후 미생물이 혼합된 염수로 실험이 수행되었다. 환경조건은 처분깊이에서 예상되는 온도(30℃) 및 지각 평형압력(146기압)으로 설정하였으며, 최초 수 년 이후에 형성되는 혐기성 조건을 모사하기 위해 산소수준은 매우 낮게 유지되었다[8].

- **실험방법** : Rocky Flats 발전소에서 발생되어 WIPP으로 향하는 접촉 제어 TRU 폐기물 중 많은 부분을 차지하는 것으로 알려진 물질(탄소강, 종이, 옷감, 플라스틱, 고무, 납 첨가 고무, 폐수 슬러지 등)을 대상으로 시험이 수행되었으며, 각 폐기물 범주에 대해 악티늄 원소의 동위원소 분포가 결정되었다. 이러한 물질을 다양하게 조합하여 WIPP 지역 천연시료에 대한 분석결과에 따라 적당한 비율로 신중하게 조절된 다수의 염류로 구성되는 염수(brine)가 채워진 시험용기(Figure 4)에 적재한 후 장기간에 걸쳐 기체 발생 거동이 측정되었다.

- **실험결과 및 분석** : WIPP GGE 시험을 통해 획득된 핵심적인 결론을 요약하면 다음과 같다.

  - 폐기물을 함유하지 않은 2개의 실험 대조군 용기에서의 기체 발생은 검출한계를 초과하지 않았다.
  - 복제된 시험용기에 대한 결과는 일반적으로 매우 양호한 일관성을 나타내었다.
  - 탄소강을 함유한 폐기물 조성에서 상당한 수소 발생률이 측정되었다.
  - 수소기체의 지배적인 생성원은 탄소강의 부식이라는 것이 확인되었다.
  - 시험 이후 철재 조각의 부식에 대한 육안 관찰을 통해 상부공간 기체의 측정결과를 확신할 수 있다.
  - 전체 시험에 걸친 경향성과 비교하여 최초 12년 동안의 수소 발생률은 상당히 많이 변동되었다.
  - 탄소강 및 슬러지 폐기물 조성에서 최대 수소 농도가 나타났으며, 이러한 용기의 경우 전체 시험기간에 걸쳐 수소 발생률이 감소되지 않았다.
  - 대부분의 폐기물 조성에서 소량의 이산화탄소가 관찰되었지만, 조성의 상이함에도 불구하고 변동량은 별로 크지 않다.
  - 이산화탄소는 초기에 신속하게 생성되지만, 1~2년 이후 상부공간 농도는 일반적으로 안정상태가 된다.(검출한계를 초과하는 경우에 한정)
  - 일산화탄소 및 메탄은 1개의 폐기물 조성에서만 검출되었으며, 농도 또한 겨우 검출한계를 초과하는 수준이었다.
  - 황화수소는 검출되지 않았다.
  - 일부 구성요소 사이의 상호작용에 따라 탄소강의 부식률이 상당히 감소된다.
  - 탄소강 조각의 부식을 제외하고는, 폐기물 구성요소의 외양에는 어떠한 변화도 관찰되지 않았다.
  - 표면에서 추출된 염수는 맑게 보이지만, 시험용기 내부 전체 염수가 균질화 되는 경우 탁해 보이며, 이를 통해 미립자 물질이 염수로 이송됨을 알 수 있다.
  - 탄소강 조각의 X선 회절분석을 통해 부식생성물은 일

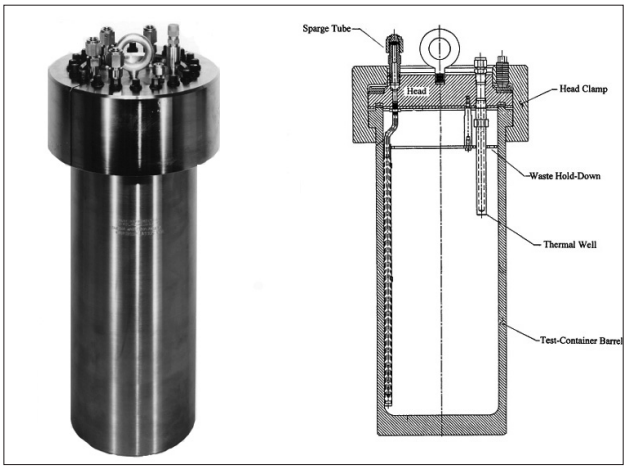

Fig. 4. Configuration of test vessel used for the WIPP GGE in USA.

반적으로 다양한 철 염화물/산화물로 구성되지만, 철 산화물의 경우 시험 이후 공기에 노출되기 때문일 수도 있다는 점을 확인하였다.

- 에너지 및 파장 분산형 분석기를 이용한 전자주사현미경 조사를 통해 Fe, Cl, O_2의 존재를 확인하였다. 또한, 부식생성물에서 U, Mg, Ca, Al, Si는 관찰되었으나, Am 및 Np는 나타나지 않았다.
- 탄소강을 함유한 시험용기 염수의 pH 측정결과는 약산성이었으며, 5.0~6.0±1.0 범위에서 변화한다.
- 염수에서 모든 악티늄 원소의 방사능은 완전히 가용성이 된다고 결정하였으며, 악티늄 원소 콜로이드 및 미립자는 염수로 이송되지 않는 것으로 보인다.

② Hanford 폐기물에 대한 GGT(Gas Generation Testing)

- **개요 및 목적** : Hanford의 다양한 폐기물 탱크(5개)로부터 추출된 실제 슬러리 표본 및 모의 폐기물(1개)로부터의 기체 발생을 측정/평가하기 위한 시험이 Battelle-PNWD(Pacific Northwest Division)에 의해 수행되었다. 실제 Hanford 시료에 대한 기체 발생시험은 다른 기체의 영향뿐만 아니라 산소 cover gas가 수소 발생률에 미치는 영향을 확인하는데 중점을 두고 있다. 시험을 통해 산소 존재 여부에 따라 실제 폐기물 표본으로부터의 기체 발생률을 확인하게 되며, 이러한 결과를 이용하여 폐기물에 대한 산소 추가의 영향이 실증되었다[9].

- **실험방법** : 실제 방사성 탱크 폐기물에 대한 기체 발생시험은 Figure 5와 같은 반응용기 및 기체 분기관 시스템을 이용하여 고방사선 시설 내부에서 수행되었다. 반응용기는 316L 스테인리스강 재질의 실린더 형태이며, 각 용기는 가열 테이프로 단열 처리된다. 온도 조절 및 과온 방지를 위한 2개의 열전대(thermocouple)가 뚜껑을 통해 삽입된 후 반응용기의 외부 몸체에 부착된다. 용기의 하부 및 상부 절반에 중심을 둔 열전대를 이용하여 각각 액체상 및 반응용기 내부 기체상의 온도를 감시한다. Cover gas로는 3가지 종류, 즉 100% 네온, 산소(20%)와 네온(80%)의 특별 혼합물, 고순도 산소가 사용되었으며, 독립적인 분석을 통해 상당한 농도의 불순물을 포함하지 않음이 확인되었다.

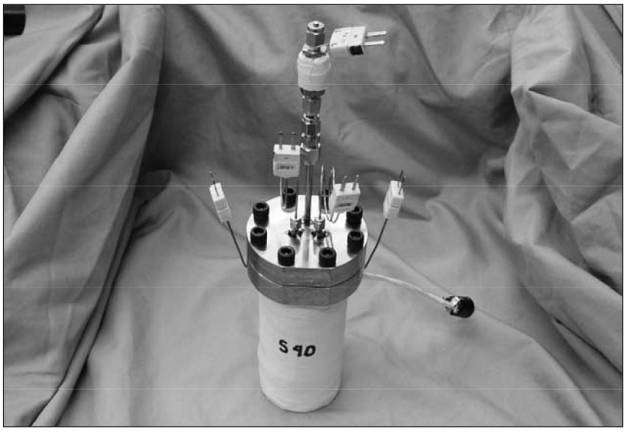

Fig. 5. Reaction vessel used in the GGT for Hanford wastes in USA.

시험에 사용된 폐기물 시료는 2003년에 PNWD에 의해 인수/처리되는 시료의 혼합물이며, 해당 폐기물에 대한 이온 크로마토그래피 및 유도결합 플라스마-원자 방출 분광법 분석, 탄소 분석, 방사화학적 분석(전알파 및 베타, ^{90}Sr)이 수행되었다.

- **실험결과 및 분석** : 불활성 및 20%, 100% 산소가 존재하는 환경에서 탱크 폐기물로부터의 수소 및 다른 기체의 발생률이 측정되었다. 동일한 폐기물 형태/조건에서 100% 네온을 사용하는 경우에 비해 20% 산소를 사용하는 경우의 수소 발생률이 대체적으로 더 높은 것으로 나타났으며, 산소를 포함하는 2가지 환경에서의 발생률에는 현저한 차이가 존재하지 않았다.

TOC의 양이 산소 소모율에 직접적으로 영향을 미친다는 것을 확인하였으나, 양적인 측면뿐만 아니라 산소 소모 및 수소 증대에 기여하는 TOC 형태를 조사하는 것이 중요할 것이다. 산소가 존재하지 않는 경우 알루민산염을 촉매로 하는 반응은 글리콜산, HEDTA, 이미노다이아세트산 등과 같은 화합물에 대해 선택적이며, 산소가 존재하는 경우 일어나는 반응은 이와는 상이한 선택성을 가지게 될 것이다.

산소가 존재하는 경우 N_2/H_2 및 N_2O/H_2 비율은 산소가 존재하지 않는 경우의 값에 비해 훨씬 크며, 이러한 비율의 차이는 산소의 존재 여부에 따라 기체 생성에 대해 상이한 메커니즘이 관련된다는 근거이다. 또한, 산소는 메탄 형성률에 거의 영향을 미치지 않지만, C_2 탄화수소의 형성률을 상당히 증가시킨다. C_2 화합물이 동일한 반응조건에서 복합물(HEDTA, EDTA) 및 잔존물(NTA, IDA 아세트산 이온, 포름산 이온)을 함유한 모의 폐기물에서 형성되지 않았다는 사실은 C_2 화합물이 폐기물 내의 다른 유기 화합물로부터 생성된다는 것을 암시한다.

다. 일본

① 개요 및 목적

일본 RWMC(Radioactive Waste Management funding and research Center)는 안전하고 합리적인 시스템을 확립하기 위해 "첨단 방사성폐기물 처분시스템에 대한 검증시험"을 수행하였으며, 이러한 활동의 일환으로 처분환경(저산소, 고알칼리 조건)에서 탄소강의 부식으로 인한 수소기체 발생률을 평가하기 위한 시험/연구가 약 3년간(1999~2002년) 이루어졌

다. 이전 실험에서 사용된 측정방법의 문제점을 해결하기 위해 장기간에 걸쳐 높은 정확도로 기체 농도를 평가할 수 있는 새로운 실험시설, 즉 ESHG(Experimental System for High-accuracy evaluation of Gas generation)가 제작/사용되었다. 이러한 시스템을 이용하여 지질학적 처분환경에서 탄소강의 부식으로 인한 기체 발생률에 미치는 것으로 생각되는 다양한 인자(염소이온 농도, 액체 pH, 탄소강 등급, 시멘트질 물질 차폐)의 영향, 부식 중량 손실과 등가 부식률 사이의 차이점 등에 대한 평가가 수행되었다[10].

② 실험방법

ESHG는 실험에 요구되는 측정 정확도, 측정장비 및 분석기기, 시스템 구성요건을 종합적으로 고려하여 설계/제작되었다. Figure 6은 이러한 전체 시스템에 대한 개략도이며, Figure 7과 같은 시험용기 내부에 장착된 시편으로부터의 기체 발생 특성이 평가되었다. 운반기체로 사용되는 액체 아르곤에 포함된 상태로 시험계통에 전달되는 다량의 불순물은 금속 부식에 영향을 미칠 수 있기 때문에 기체 정화기를 이용하여 제거되며, 분석장비의 성능을 유지(특히, 측정기체 내부의 습분 제거)하기 위해 전처리장비가 설치된다. 또한, 수소기체 농도/

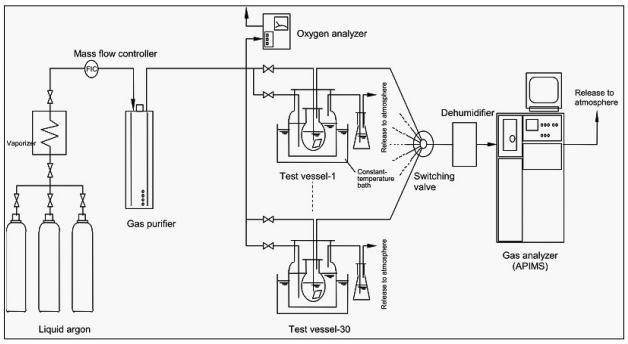

Fig. 6. System diagram of ESHG fabricated in Japan.

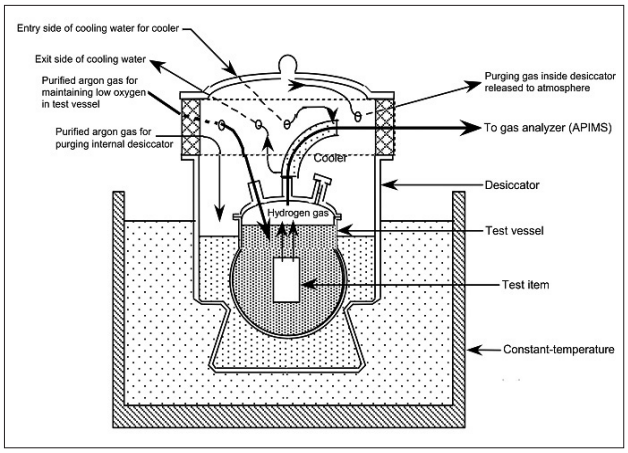

Fig. 7. Schematic representation of test vessel of ESHG in Japan.

발생률에 대한 분석장비로는 대기압 이온화 질량분석기(APIMS: Atmospheric Pressure Ionization Mass Spectrometer)가 사용되었다.

③ 실험결과 및 분석

ESHG를 사용하여 금속시편 및 시험용액의 특성, 시험기간을 변화시키면서 일련의 실험/측정이 수행되었으며, 주요 결과 및 그에 대한 분석내용은 다음과 같다.

- 기체 발생률에 대한 염소이온 농도의 영향
  - 5,000ppm 이하의 농도에서 영향은 거의 없는 것으로 추정되며, 1년 경과 이후의 등가 부식률은 0.05㎛/yr 이하이다.
  - 20,000ppm의 농도에서 시험기간 동안 수소기체 누적 발생률은 5,000ppm 이하인 경우에 비해 약 2~3배이다.
- 기체 발생률에 대한 액체 pH의 영향
  - pH10.5~13.0의 범위에서 pH가 높아짐에 따라 기체 발생률은 약간 증가하는 경향을 나타내지만 거의 동일하다. 또한, 이러한 pH 범위에서 300~400일 기간의 평균 등가 부식률은 약 0.05㎛/yr이며 더욱 낮아지는 경향을 나타내므로, 처분환경에서 장기간에 걸친 등가 부식률의 최대값을 0.05㎛/yr로 가정해도 충분하다.
  - pH14.0에서는 pH10.5~13.0에 비해 다량의 수소기체가 생성되고, 400일 경과 이후조차 발생률은 거의 감소하지 않으며, pH13.0 이하인 경우에 비해 10배 이상의 기체를 생성한다. 이는 pH14.0에서 과도한 수산화 이온 또는 나트륨 이온에 의해 손상되는 보호막의 안정성으로 설명될 수 있다.
- 기체 발생률에 대한 탄소강 등급의 영향
  - 탄소강 제조법의 상이함으로 인한 등급/성분 차이는 기체 발생률에 거의 영향을 미치지 않는다고 추정할 수 있다.
- 기체 발생률에 대한 시멘트질 물질 차폐의 영향
  - 포화용액에 침수된 모든 시편에서 약 100일 동안 시멘트질 물질 외부로 수소기체가 거의 방출되지 않음이 확인되었다.
- 부식 중량 손실과 부식률 사이의 차이점
  - 단기간 시험에서의 부식 중량 손실로 침수 초기 단계 부식률을 산정한 결과, 5~35일 동안 생성된 수소기체 농도에는 큰 차이가 없으며, 단위면적당 수소기체 누적 발생률은 침수기간에 따라 선형으로 증가함이 확인되었다.
- 탄소강으로부터 생성된 기체의 장기 거동

- 수소기체 발생률은 비록 일부 변화는 존재하지만 시간에 따라 단조 감소한다.
- 최초 침수단계, 1년 및 800일 경과 이후의 수소기체 발생률을 등가 부식률로 환산하면 각각 0.1㎛/yr 이상, 0.1㎛/yr 이하, 약 0.02㎛/yr가 된다. 따라서, 처분환경에서 탄소강의 수소기체 발생률은 장기적으로 0.02㎛/yr라고 추정된다.

라. 헝가리

① 개요 및 목적

중·저준위폐기물에서의 기체 발생량 및 발생률에 대한 신뢰할 수 있는 평가치를 획득하기 위해 헝가리의 Paks 원자력발전소 부지에서 생성/임시 저장중인 폐기물 패키지 가운데 대표적으로 선택된 10개의 드럼에 대해 2년(2004~2005년)에 걸쳐 일련의 측정이 수행되었다[11].

② 실험방법

10개의 드럼(비압축 : 3개, 슬러지 : 4개, 압축 : 3개)은 2003년 말 Figure 8과 같이 반복적인 시료 채취를 위한 밸브가 장착되어 있는 밀폐 컨테이너에 배치되었다.

컨테이너 내부 상부공간 기체의 온도/압력은 자동 측정시스템에 의해 매일 기록되었으며, 드럼 및 컨테이너 상부공간 기체의 성분은 현장에서 사중극자 질량분석기를 사용하여 매달 정기적으로 분석되었다. 기체 발생률은 상태변수 측정결과 및 폐쇄된 컨테이너 내부 기체의 성분 변화를 이용하여 계산되었다.

2년의 저장기간 동안 연 1회의 동위원소 분석측정을 위해 밸브가 폐쇄된 1리터의 유리구를 사용하여 각 드럼 및 밀폐컨테이너 상부공간의 기체시료를 채취하였다. 추가적으로 동위원소에 대한 측정을 위해 Figure 9와 같이 상이한 기체성분을 분리/처리할 수 있는 특수한 취급배관이 개발되었다.

극저온 시료 취급과정에서 기체에 포함된 모든 수증기와 이산화탄소 성분은 각각 수증기 트랩 및 이산화탄소 트랩에 수집된다. 시료 내부에 수소 또는 메탄이 존재하는 경우 별도의 구에서 산소가 추가되어 산화반응이 일어나며, 이러한 과정에서 생성된 수증기 및 이산화탄소 또한 각각에 대한 트랩에서 포집된다. 채취된 시료에 대한 동위원소 분석항목별 측정방법은 Table 2에 요약하였다.

③ 실험결과 및 분석

중·저준위폐기물을 구성하는 주요 성분의 화학적 형태와 무관하게 드럼에서의 기체 발생률은 상대적으로 높은 것으로 나타났으며, 시료분석을 통해 생성되는 기체는 주로 이산화탄소, 메탄, 수소, 질소임이 확인되었다. 최초 수개월간의 저장시 일반적으로 상부공간의 기체에서 산소가 소멸되므로 연구기간 동안에는 드럼에서 어떠한 가연성 기체 혼합물도 나타나지 않았다. 또한, 드럼 내부에 저장된 폐기물의 총 방사능과 기체 발생량/발생률 사이에는 어떠한 관계도 확인되지 않으며, 이는 기체 생성이 주로 부식 및/또는 미생물 활동에 의해 제어되고, 방사분해가 중요하지 않기 때문인 것으로 보인다.

마. 벨기에

① 개요 및 목적

Boom clay 층을 고·중준위 방사성폐기물의 처분을 위한

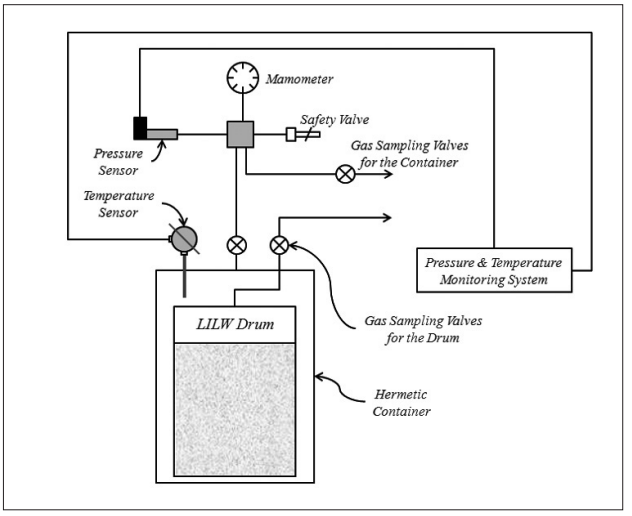

Fig. 8. Hermetic container designed for gas generation measurements of LILW drums in Hungary.

Table 2. Methods for isotope measurement in the vapor and gas samples (Hungary).

항 목	측 정 방 법
^{3}H 방사능	액체 섬광계수기
^{14}C 방사능	기체 비례계수기
δ^{13}C	안정 동위원소 질량분석기
δ^{3}He 및 He 함량	불활성기체 질량분석기

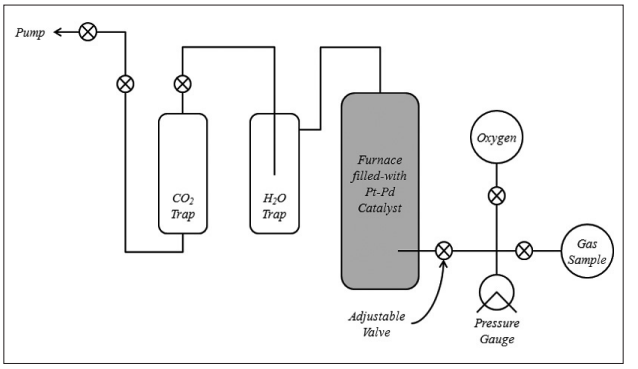

Fig. 9. Cryogenic gas preparation line for headspace gas samples from LILW in Hungary.

잠재적인 주층(Host Formation)으로 사용하기 위한 다각적인 연구가 벨기에를 포함한 유럽 각국의 공동 프로젝트로써 20년 이상 진행되었다. 이 가운데 진흙의 물리적 변형이 방사성핵종의 이동에 미치는 잠재적인 영향을 연구하기 위한 목적으로 Boom clay에 인공적으로 경로를 조성하여 장기간에 걸친 현장 기체 이동실험이 시행되었으며, 이러한 연구의 일환으로 처분갱도 내부 탄소강 및 스테인리스강의 존재로 인한 기체 발생 선원항에 대한 대략적인 평가치를 획득하기 위한 연구실 규모의 실험적 연구가 수행되었다[12].

② 실험방법

철재가 물로 포화된 Boom clay와 접촉하는 경우의 부식률을 평가하기 위해 신중히 제어된 혐기성 조건에서 준비된 진흙 슬러리와 미세금속 분말을 혼합하여 압력 변환기가 부착된 일괄 반응기에 주입한 후 계속적으로 섞는다. 금속분말의 총중량 및 비표면(specific surface)을 알고 있는 경우 기체 발생 선원항은 최초 반응순간의 방출압력으로부터 유도된다. 또한, 액체상 염도가 기체 발생에 미치는 영향을 평가하기 위해 슬러리 준비단계에서 2가지 종류의 물(순수, Boom clay 합성 공극수)을 사용하였다.

③ 실험결과 및 분석

시험 초기 물리화학적 조건 및 일련의 실험결과를 Table 3에 요약하였다. 이러한 결과로부터 고준위폐기물 캐니스터의 재질로 선정된 스테인리스강의 부식률은 무시할 만하며, 생성된 기체분자의 보다 많은 부분이 방사분해에 의해 생성될 것으로 예상된다. 철의 경우 슬러리의 pH/산화-환원전위와 부식률 사이에 어떠한 명확한 관계도 관찰되지 않았다.

그럼에도 불구하고, 용액의 이온강도는 금속의 부식률을 결정하는데 매우 중요한 역할을 담당하는 것으로 보인다. 박테리아 개체수가 증가하면서 수소가 생성되며, 압력이 최대치에 도달할 때 황산염 및 티오황산염(thiosulfate) 환원 박테리아에 의한 수소 소비가 기체 발생률보다 높아진다. 이는 산화된 황의 종류가 일단 환원되면 황산염 및 티오황산염 환원 박테리아가 비활성 상태로 되며, 박테리아에 의해 생성된 수소가 메탄으로 변환되기 때문으로 생각된다. 해당 실험에 대한 기체 크로마토그래피 분석을 통해 실험의 후반 단계 동안 반응기 내부의 압력 증가는 특히 메탄의 형성 때문임을 알 수 있다.

Table 3. Overview of the gas generation experiment performed in Belgium.

번호	혼합물 형태		슬러리 특성		기체 발생률	기체 발생률
	금속	슬러리	pH	ORP*[mV/SHE]	[mol/m² · yr]	[mol/m² · yr]
1	316L SS**	B.C***+순수	10.07	-291	4.6×10^{-6}	3.5×10^{-5}
2	316L SS	B.C+SCW	8.27	-167	검출한계 미만	
3	철	B.C+순수	9.19	-153	5.0×10^{-3}	2.7×10^{-2}
4	철	B.C+순수	9.85	-405	5.9×10^{-3}	3.2×10^{-2}
5	철	B.C+SCW	8.21	-451	3.0×10^{-2}	1.6×10^{-1}

* ORP: Oxidation-Reduction Potential, ** SS: Stainless Steel, *** B.C: Boom Clay

Ⅲ. 결 론

앞서 기술한 바와 같이, 중 · 저준위 방사성폐기물의 처분/폐쇄 이후 기체 발생특성을 실질적으로 평가하고, 이를 이용하여 발생기체의 종합관리방안을 수립하기 위해서는 실제 처분환경 및 특성을 고려한 장기간의 실증실험이 반드시 필요하다. 이와 관련하여, 국내에서는 월성원자력환경관리센터의 1단계 10만 드럼 처분에 대한 건설 및 운영허가 후속조치의 일환으로 현장부지에 기체발생 실증실험시설을 설치/운영할 예정이다.

이를 위한 기초자료를 확보하기 위해, 세계 각국에서 다양한 방법으로 수행된 폐기물 처분 관련실험에 대한 제반사항을 면밀히 검토하였다. 이러한 검토결과를 Table 4에 요약하였으며, 이러한 사항을 종합하여 다음과 같은 결론을 도출하였다.

- 국내에서 설치/운영될 예정인 실증실험시설의 궁극적 목적은 다양한 메커니즘을 통해 발생되는 기체의 발생률 및 누적 발생량을 종합적으로 평가/분석하는 것이며, 이러한 목적을 달성하기 위해 실질적 처분조건 및 처분대상 폐기물에서의 불균질성을 고려할 수 있도록 충분히 큰 규모(Pilot-scale 이상)에서 수행되어야 한다.
- Table 4에 제시한 바와 같이 기체 발생과 관련하여 국외에서 수행된 대부분의 실험적 연구에 대한 주요 목적은 금속시편의 부식률 및 그에 따른 수소 발생량 평가, 드럼 및 시험용기 내부 상부공간의 기체시료 채취를 통한 성분 분석 등이며, 이러한 목적으로 수행된 다수의 실험에 대한 경험을 국내의 실험에 직접적으로 적용하기는 어렵다.
- 국내에서 계획중인 기체 발생 관련 실증실험의 목적을 달성하기 위해서는 실제 폐기물 포장드럼 및 기본 처분단위(콘크리트 용기) 사용이 전제되어야 하지만, 이러한 조건을 만족하는 가용 실험자료는 압축 폐기물이 채워진 16개의 드럼을 적재할 수 있는 1개의 콘크리트 처분용기를 사용하여 9년간 수행된 핀란드 GGE가 유일하다.
- 또한, 핀란드 VLJ 처분시설에서 수행된 GGE와 관련된 다음과 같은 주요사항을 국내 실증실험에 대한 벤치마크로 사용할 수 있을 것으로 판단된다.
  - 폐기물이 실제로 처분되는 부지와 유사한 위치(건설동

Table 4. Main features of the experimental researches on gas generation performed in foreign countries.

구 분	세 부 내 용
핀란드	• 실험목적 : 처분대상 폐기물 드럼으로부터의 기체 발생특성 조사 및 장기 안전성 평가에 사용 가능한 실질적 매개변수 획득 • 실험대상 : 철제 포장드럼(16개) 및 콘크리트 처분용기(1개) • 평가항목 - 누적 기체 부피 및 생성된 기체의 조성 - 온라인 분석(액체) : pH, 전기전도도, 산화-환원 전위, 용존 산소 농도, 온도 등 - 시료 분석(액체) : 용해 유기 화합물(DOC : Dissolved Organic Compound), 양이온, 음이온, 미생물 영양소, 용해된 기체 - 시료 분석(고체) : 주요 미생물 군의 개체수 및 미생물 활동
미국 WIPP	• 실험목적 : WIPP에서의 방사성핵종 이동에 대한 가능성을 보다 잘 이해하기 위해 수행된 다수의 시험결과에 대한 벤치마크 및 확인 • 실험대상 : 접촉 제어 초우라늄(CH-TRU) 폐기물 • 평가항목 - 시험용기 내부 상부공간 기체시료 분석 및 수소/이산화탄소 발생률 - 시험 종료 이후 폐기물 육안 관측 - 염수의 pH 분석 및 시료 내부 총 방사능 및 방사성핵종 함량 - 탄소강 시료에 대한 X선 회절, 에너지 분산형 X선, 전자주사 현미경 (Scanning Electron Microscopy) 조사
미국 Hanford	• 실험목적 : Hanford의 다양한 폐기물 탱크로부터 추출된 실제 슬러리 표본으로부터의 기체 발생 측정/평가 • 실험대상 : Hanford 부지 폐기물 탱크 시료(5개) 및 모의 폐기물 (1개) • 평가항목 - 기체 발생/소모율 및 생성된 기체의 몰 퍼센트 조성 - 기체 발생에 대한 영향 : 유기물, 혼합, 산소, 온도, pH
일본	• 실험목적 : 처분환경에서 탄소강 부식으로 인한 수소기체 발생률 평가 • 실험대상 : 시편(탄소강, 모르타르, 모르타르 차폐) • 평가항목 - 수소기체 발생률 및 등가 부식률 - 기체 발생에 대한 영향 평가 : 염소이온 농도, 액체의 pH, 탄소강 등급, 시멘트질 물질의 차폐 - 시편의 외양/표면/무게 변화 및 시험용액의 조성 변화
헝가리	• 실험목적 : LILW에서의 기체 생성량/발생률에 대해 신뢰할 수 있는 평가치 획득 • 실험대상 : LILW 개별 포장드럼(10개) • 평가항목 - 드럼 내부 기체 발생률 - 기체시료 분석 : 이산화탄소/메탄 성분으로부터의 $\delta^{13}C$, He 함량 및 $\delta^{3}He$, ^{3}H 및 ^{14}C 방사능 농도
벨기에	• 실험목적 : 처분갱도 내부 철재의 존재로 인한 기체 발생 선원항에 대한 대략적인 평가치 획득 • 실험대상 : 미세 금속분말과 진흙 슬러리의 혼합물 • 평가항목 - 스테인리스강/철의 부식률 및 기체 발생률

굴)에 실험시설 설치

- 실질적인 처분조건 및 처분대상 폐기물의 불균질성을 모사하기 위해 실제 처분대상 폐기물 stream에서 선별한 포장드럼 및 기본 처분단위를 이용한 대규모 실험 수행
- 다양한 기체 발생 메커니즘(금속 부식, 미생물에 의한 유기물 분해, 방사분해 등)을 종합적으로 분석/평가
- 철제 밀폐용기 제작/설치 및 지하수 충수를 통해 처분장 폐쇄 이후의 단계에 대한 환경조건 모사

감사의 글

본 연구는 2009년도 지식경제부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다.(2009T100100500)

참고문헌

[1] 박주완, 윤정현, 김창락, "월성원자력환경관리센터의 폐쇄후 처분안전성평가 : 1단계 인허가 적용사례를 중심으로," 방사성폐기물학회지, 6(4), pp. 329～346 (2008).

[2] 정재학, 이관희, 이윤근, 정찬우, 노병환, "중 · 저준위 방사성폐기물 처분시설에 대한 기술기준 및 안전심사," 방사성폐기물학회지, 6(4), pp. 357～368 (2008).

[3] 한국원자력안전기술원, "중 · 저준위 방사성폐기물 처분시설 안전심사지침서," KINS/GE-W001 (2005).

[4] 한국수력원자력(주), "중 · 저준위 방사성폐기물 처분시설 안전성분석보고서," 개정 1(2008).

[5] European Commission, "Final Report: Research into Gas Generation and Migration in Radioactive Waste Repository Systems (PROGRESS Project)," EUR 19133EN (2000).

[6] A. Beaubien, C. Jolicoeur, and J. F. Alary, "Automated High Sensitivity Gas Metering System for Biological Processes," Biotechnology and Bioengineering, 32, pp. 105～109 (1988).

[7] J. Small, M. Nykyri, M. Helin, U. Hovi, T. Sarlin, and M. Itävaara, "Experimental and Modelling Investigations of the Biochemistry of Gas Production from Low and Intermediate Level Radioactive Waste," Applied Geochemistry, 23, pp. 1383～1418 (2008).

[8] F. S. Felicione, S. M. Frank, and D. D. Keiser, "WIPP Gas-Generation Experiments," Idaho National Laboratory, INL/EXT-07-12631 (2007).

[9] S. A. Bryan, D. M. Camaioni, T. G. Levitskaia, B. K. McNamara, R. L. Sell, and L. M. Stock, "Gas Generation Testing and Support for the Hanford Waste Treatment and Immobilization Plant," Battelle-Pacific Northwest Division, PNWD-3463 (2004).

[10] M. Kaneko, N. Miura, A. Fujiwara, and M. Yamamoto, "Evaluation of Gas Generation Rate by Metal Corrosion in the Reducing Environment," The Radioactive Waste Management Funding and Research Center, RWMC-TRE-03003 (2004).

[11] M. Molnár, L. Palcsu, É. Svingor, I. Futó, Z. Major, and L. Rinyu, "Isotope-analytical Results of a Study of Gas Generation in L/ILW," Czechoslovak Journal of Physics, 56, pp. D637~D644 (2006).

[12] L. Ortiz, G. Volckaert, and D. Mallants, "Gas Generation and Migration in Boom Clay, a Potential Host Rock Formation for Nuclear Waste Storage," Engineering Geology, 64, pp. 287~296 (2002).