Research Paper

http://dx.doi.org/10.7733/jnfcwt.2014.12.4.267

Gas Migration in Low- and Intermediate-Level Waste (LILW) Disposal Facility in Korea

중 · 저준위 방사성폐기물 처분시설 폐쇄후 기체이동

Jaechul Ha[1], Jeong-Hwan Lee[1], Haeryong Jung[1]*, Juyub Kim[2] and Juyoul Kim[2]

[1]*Korea Radioactive Waste Agency, 111 Daedeok-daero 989, Yuseong-gu, Daejeon, Korea*

[2]*FNC Technology, 705-5 Gongse-dong, Giheung-gu, Yongin, Korea*

하재철[1], 이정환[1], 정해룡[1]*, 김주엽[2], 김주열[2]

[1]*한국원자력환경공단, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111*

[2]*FNC , 경기도 용인시 기흥구 공세동 705-5*

(Received October 2, 2014 / Revised December 17, 2014 / Approved December 22, 2014)

The first Low- and Intermediate-Level Waste (LILW) disposal facility with 6 silos has been constructed in granite host rock saturated with groundwater in Korea. A two-dimensional numerical modeling on gas migration was carried out using TOUGH2 with EOS5 module in the disposal facility. Laboratory-scale experiments were also performed to measure the important properties of silo concrete related with gas migration. The gas entry pressure and relative gas permeability of the concrete was determined to be 0.97±0.15 bar and 2.44×10^{-17} m^2, respectively. The results of the numerical modeling showed that hydrogen gas generated from radioactive wastes was dissolved in groundwater and migrated to biosphere as an aqueous phase. Only a small portion of hydrogen appeared as a gas phase after 1,000 years of gas generation. The results strongly suggested that hydrogen gas does not accumulate inside the disposal facility as a gas phase. Therefore, it is expected that there would be no harmful effects on the integrity of the silo concrete due to gas generation.

Keywords: Low- and intermediate-level radioactive waste disposal facility, Gas migration, Silo concrete, Gas entry pressure, Gas permeability

*Corresponding Author.
Haeryong Jung, Korea Radioactive Waste Agency, E-mail: nohul@korad.or.kr, Tel: +82-42-601-5314

ORCID

Jaechul Ha http://orcid.org/0000-0003-3771-8211
Jeong-Hwan Lee http://orcid.org/0000-0003-4671-5282
Haeryong Jung http://orcid.org/0000-0003-1776-9206
Juyub Kim http://orcid.org/0000-0003-4718-7127
Juyoul Kim http://orcid.org/0000-0003-4076-0760

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited

본 연구에서는 중 · 저준위방사성폐기물 처분시설(이하 처분시설)에서 발생하는 기체의 이동현상을 예측하기 위한 2차원 수치 모델링을 수행하였다. 또한, 기체 이동 모델링에서 주요 입력변수로 적용되는 사일로 콘크리트의 기체침투압(gas entry pressure)와 기체 투과도(gas permeability)를 실측하여, 모델링 입력변수로 적용하였다. 사일로 콘크리트의 기체침투압(gas entry pressure)와 기체 투과도(gas permeability)는 각각 0.97±0.15 bar 및 2.44×10^{-17} m^2로 측정되었다. 기체 이동 모델링 결과, 사일로 내부에서 발생하는 수소 기체는 기상으로 이동하지 않고 지하수에 용해되어 지하수와 함께 생태계로 이동하는 것을 알 수 있다. 또한, 폐쇄 후 약 1,000 년 후 부터 사일로 상부부터 수소기체 밀도가 증가하기 시작하는 것으로 예측되었다. 따라서, 사일로 내부에서 발생된 기체는 기상으로 사일로 내부에 축적되지 않으며, 이로 인해 사일로 콘크리트의 내구성에 영향을 미치지 않을 것으로 판단된다.

중심단어: 중저준위방사성폐기물 처분시설, 기체이동, 사일로 콘크리트, 기체침투압, 기체투과도

1. 서 론

현재 국내 최초의 중 · 저준위방사성폐기물 처분시설(환경관리센터 이하 처분시설) 1단계사업이 완공되었다. 1단계 처분시설은 높이 50 m, 직경 25 m의 사일로 6개로 구성되어 있으며, 해수면 기준 (-)80~130 m 깊이의 대수층에 위치하고 있다. 1단계 처분시설은 다중방벽 개념을 적용하여 안전성을 담보하고 있으며, 다중방벽은 크게 인공방벽과 자연방벽으로 나눌 수 있다. 인공방벽은 폐기물 포장용기(철재 드럼), 콘크리트 처분용기, 뒷 채움재, 사일로 콘크리트로 구성되어 있으며, 자연방벽은 주위 암반을 예로 들 수 있다. 이 중, 특히 사일로 콘크리트는 사일로 내부의 방사성핵종의 유출과 지하수 유입을 제한하는 역할을 수행하게 된다. 사일로 콘크리트의 두께는 위치별로 차이가 발생하지만 최소 1 m가 넘는 것으로 설계되었다. 처분시설 폐쇄후, 사일로 내부에서는 유기성 폐기물의 미생물 분해, 철제 용기 및 폐기물의 부식으로 인해 기체가 발생될 것으로 예상된다[1].

다공성 매질을 통한 기체이동 모델링에서 주요한 입력변수는 기체침투압(gas entry pressure)과 기체투과도(gas permeability)를 들 수 있다. 본 연구에서는 처분시설 콘크리트 사일로와 같은 배합비를 가지는 콘크리트 시편을 제작하여 실험실 규모 실험을 수행하여, 처분시설 콘크리트에 대한 기체침투압(gas entry pressure)과 기체투과도(gas permeability)를 도출하였다. 기체침투압(gas entry pressure)은 다공성 매질 내에서의 이상 유동 특성에 대한 조절 요인으로, 완전히 포화된 다공성 매질에서 물을 밀어내기 위해 필요한 기체 주입압력과 수압간의 압력 차를 의미한다. 즉, 기체가 포화상태인 다공성 매질의 공극으로 침투하기 시작하는 시점에서 기체압력을 의미한다. 기체투과도(gas permeability)는 다공성 매질에서의 유량을 지배하는 성질로, Darcy's law에 의해 결정된다. 기체투과도(gas permeability)는 다공성 매질 고유의 특성이므로, 유체 및 특정 이동 메커니즘의 특성에 영향을 받지 않는다[2].

본 연구에서는 향후 예상되는 처분시설 폐쇄를 대비하여 사일로 내부에서 발생하는 기체의 이동특성을 예측하기 위하여 기체이동과 관련된 사일로 콘크리트의 주요 특성인 기체침투압(gas entry pressure)과 기체투과도(gas permeability)를 실험으로부터 도출하고 처분시설 부지를 2차원 도메인으로 구성하여 기체이동 모델링을 수행하였다.

2. 실험방법

2.1 콘크리트 시편

처분시설 사일로 콘크리트 타설에 사용되는 동일한 재료를 이용하여 동일한 배합비로 직경 150 mm, 높이 50 mm의 콘크리트 시편을 제작하였다. 콘크리트 시편의 특성과 배합비는 Table 1, 2에 나타내었다. 콘크리트 시편은 91 일 수중양생으로 제작하여 포화 상태를 유지하도록 하였다.

2.2 실험장비 및 방법

Table 1. Composition of concrete specimen

W/(C+F)	S/a (%)	Proportion (kg/m^3)							
		Water	Cement	Fly-ash	3/4"	Coarser	Finer	WRA	AEA
40.0	38.4	206	412	103	961	357	241	2.3193	0.1287

* Standard Specification of Concrete based on Ministry of Land, Infrastructure and Transport (MOLIT)

Table 2. Charateristics of concrete specimen

Material	Permeability $k_h[m^2]$	PorosityØ [-]	Density [kg/m^3]
Concrete	2.44E-17	0.10	2389

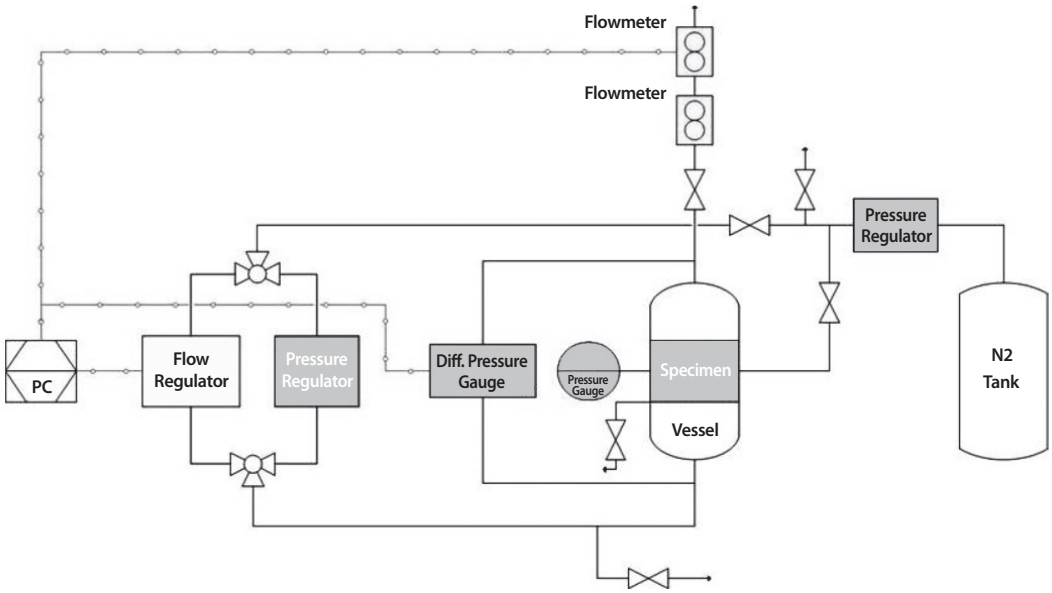

Fig. 1. Schematics of experimental apparatus.

본 연구에서 기체침투압(gas entry pressure)과 기체투과도(gas permeability)를 측정하기 위해 사용한 실험장치 구성을 Fig. 1에 나타내었다. 실험장치는 콘크리트 시편이 설치되는 압력용기, 기체 탱크, 압력조절기, 유량계, 압력계 등으로 구성되어 있으며, Fig. 1에 나타낸 바와 같이 콘크리트 시편이 설치된 압력용기 하단에 질소 기체를 주입하고 압력용기 하단과 상단에서 기체 압력 및 유량을 실시간 측정하였다[3].

3. 기체이동 모델링

3.1 개 요

본 연구에서는 범용 다차원 다상 열-수리학적 수치 모델인 TOUGH2를 사용하였다. 도메인 구성은 cell-centered 유한체적법을 기반으로 각 격자의 질량, 에너지 보존 방정식을 해석한다. EOS 모듈이 구성 요소별 (water-air, water-hydrogen, water-CO_2, water-brine 등)로 다양하게 존재하여 해석하고자 하는 대상에 따라 구분 된다[4]. 기체이동 모델링은 처분시설 내 지하수유동 특성을 반영하기 위하여 처분시설 전체영역을 대상으로 하였다. 처분시설은 서쪽이 높고 동쪽이

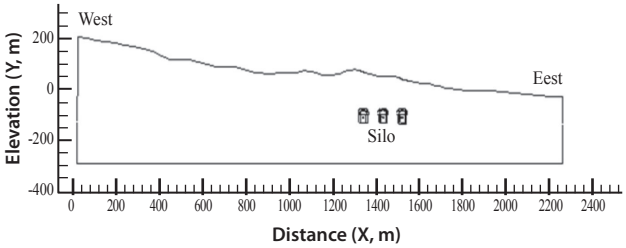

Fig. 2. Geometry of the model domain.

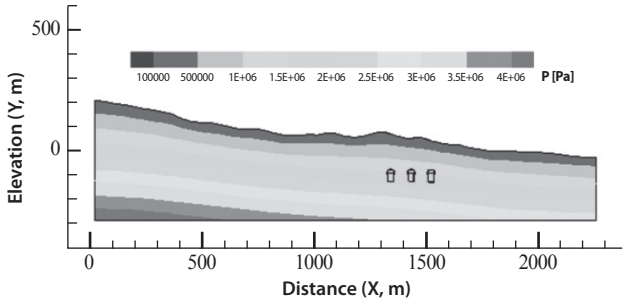

Fig. 3. Distribution of hydraulic head at initial condition.

Table 3. Input parameters of van Genuchten function

Materials	van Genuchten function parameters								
	Relative permeability					Capillary pressure			
	n	λ	S_{lr}	S_{ls}	S_{gr}	λ	S_{lr}	$1/P_o$ [Pa]	S_{ls}
Waste	2	0.50	0.30	0.895	0.01	0.5	0.25	500	0.9
Crushed -rock	2	0.50	0.30	0.895	0.01	0.5	0.25	500	0.9
Concrete	1.54	0.35	0.25	1.0	0.01	0.35	0.20	0.97E+5	1.0
Host rock	1.67	0.40	0.3	1.0	0.01	0.4	0.25	4000	1.0

낮은 서고동저의 특징을 보여주고 있다. 본 수치모델링에 사용된 모델 영역의 크기는 가로 2,300 m, 세로 500 m로 구성하였다. Fig. 2에는 모델 영역의 구성을 나타내었다. 모델 영역은 사일로 내부[폐기물(waste) 및 쇄석(crushed rock)], 사일로 콘크리트(concrete), 및 모암(host rock)으로 구성하였다. 사일로 콘크리트의 직경은 1~1.6 m로 사일로별 enRP의 차이가 있지만, 기체이동 평가의 보수적 관점에서 1 m로 균일하게 설정하였다. 본 연구에서는 Fig. 2에 나타낸 바와 같이 2차원 수치모델링을 수행하였기 때문에 1번, 3번, 5번 사일로를 대상으로 하였다.

3.2 경계조건 및 초기조건

처분시설의 특성상 서고동저의 지형 구조를 갖기 때문에 수두압 분포와 지하수 흐름은 좌에서 우로 이동하는 경향을 기본 조건으로 고려하였다. 모델 영역 좌, 하단 부분은 불투수층, 상부는 대기압력(1.013×10^5 Pa (1 atm))으로 일정한 압력을 유지하는 것으로 설정하였고, 오른쪽은 해수 경계

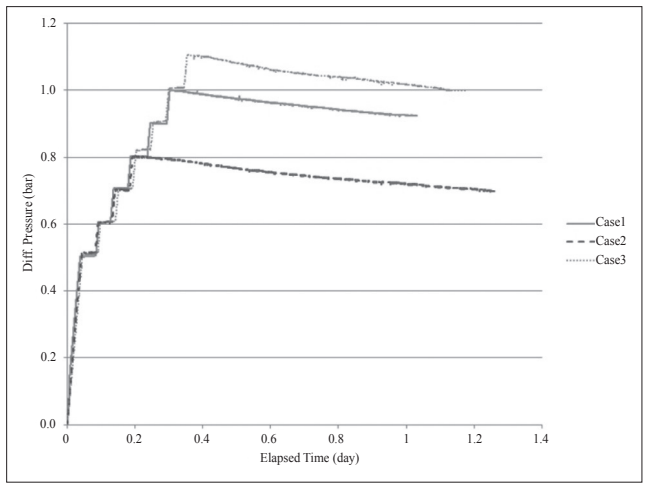

Fig. 4. Measurement of gas entry pressure of concrete specimen (100% water saturation, 0.1mL/min gas flow rate).

조건으로 설정하였다. 또한, 초기에 사일로를 포함한 처분시설 전 영역이 지하수에 의해 포화된 상태로 가정을 하였으며, 이 조건에서 모델 영역의 수두분포를 Fig. 3에 나타내었다.

3.3 입력변수

수치 모델에 적용된 매질의 다상 유동 특성을 결정짓는 모세관압 및 상대 투과도는 van Genuchten 비선형 함수를 사용하였으며 Table 3에 나타내었다[2][5][6]. 사일로 콘크리트는 내구수명이 1,400 년으로 예측이 되는바, 모델링 종료 시점을 사일로 콘크리트의 건전성이 유지되는 1,400 년까지 평가하였다. 모델링의 선원인 방사성폐기물로부터의 기체발생량은 처분장 안전성분석보고서(SAR, Safety Analysis Report)를 기준으로 하였다[1]. 일반적으로 중 · 저준위방사성폐기물에서 발생하는 기체는 대부분 금속폐기물 및 처분용기의 부식에 의해 발생하는 수소기체이며, 처분시설에서도 대부분 수소기체가 발생하는 것으로 평가되었다[1]. 따라서, 본 연구에서는 TOUGH2 EOS5 모듈을 적용하였다.

모델 영역 전체에 대하여 지온은 25°C (298.15°K)로 설정하였으며, 중력 가속도 상수(gravitational acceleration constant)는 9.81 m/sec^{2}으로 설정하였다.

4. 결과 및 토의

4.1 실험결과

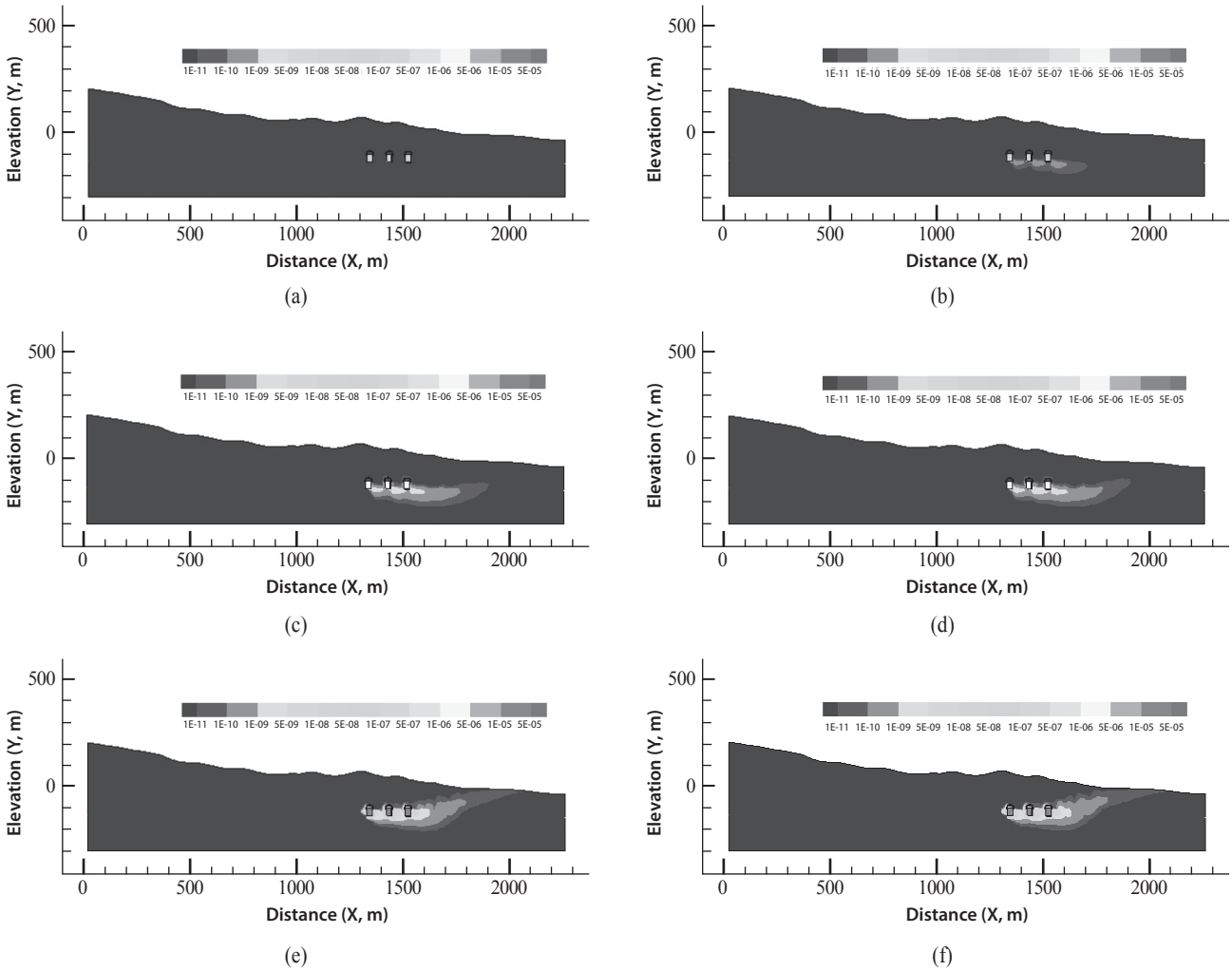

Fig. 5. Migration of hydrogen gas dissolved in groundwater after closure (full scale)
[(a) 1 year, (b) 10 years, (c) 100 years, (d) 200 years, (e) 1,000 years, (f) 1,400 years].

콘크리트의 기체 침투압(gas entry pressure) 측정결과를 Fig. 4에 나타내었다. Fig. 4에 나타낸 바와 같이 100% 포화된 콘크리트 시편에 질소 기체를 0.1 mL/min의 유속으로 주입하여 3회 실험을 수행하였다. 실험결과 처분시설 사일로 콘크리트의 기체 침투압(gas entry pressure)은 0.97±0.15 bar로 측정되었다.

기존 문헌에서는 방사성폐기물 처분시설에 사용된 콘크리트의 기체 침투압(gas entry pressure)을 1~50 bar 범위에서 보고하고 있다[7]. 본 실험결과는 기존 문헌 값의 가장 낮은 범위에 포함되고 있다. 기존 문헌 값들은 대부분 미량의 콘크리트 시료에 대해 수은-물 주입 실험을 통하여 도출된 결과를 물-공기 데이터로 변환한 값으로 변환하는 과정에서 공극율 분포, 삼투압, angle 차이 등 물성의 차이로 인한 오차 발생 가능성이 있다. 반면, 본 연구에서는 지하수로 포화된 콘크리트 시편에 질소 기체를 직접 주입하여 정밀 측정한 자료로 실제 값에 더욱 가까운 값으로 판단된다.

콘크리트 시편의 기체 투과도를 측정하기 위하여 기체 주입압력을 2 bar, 3 bar, 4 bar 증가시키며 실험을 수행하였으며, 0% 포화된 콘크리트 시편의 기체 투과도는 2.44×10^{-17} m^2로 측정되었다. 콘크리트 시편의 포화도를 증가시켰을 경우 상대기체 투과도는 지수함수적으로 감소하는 경향을 보였으며, 이 결과는 기존의 문헌 값과 유사한 경향을 나타내고 있다[8][9]. 사일로 콘크리트 시편에 대해 측정된 기체침투압(gas entry pressure)과 기체투과도(gas permeability) 결과

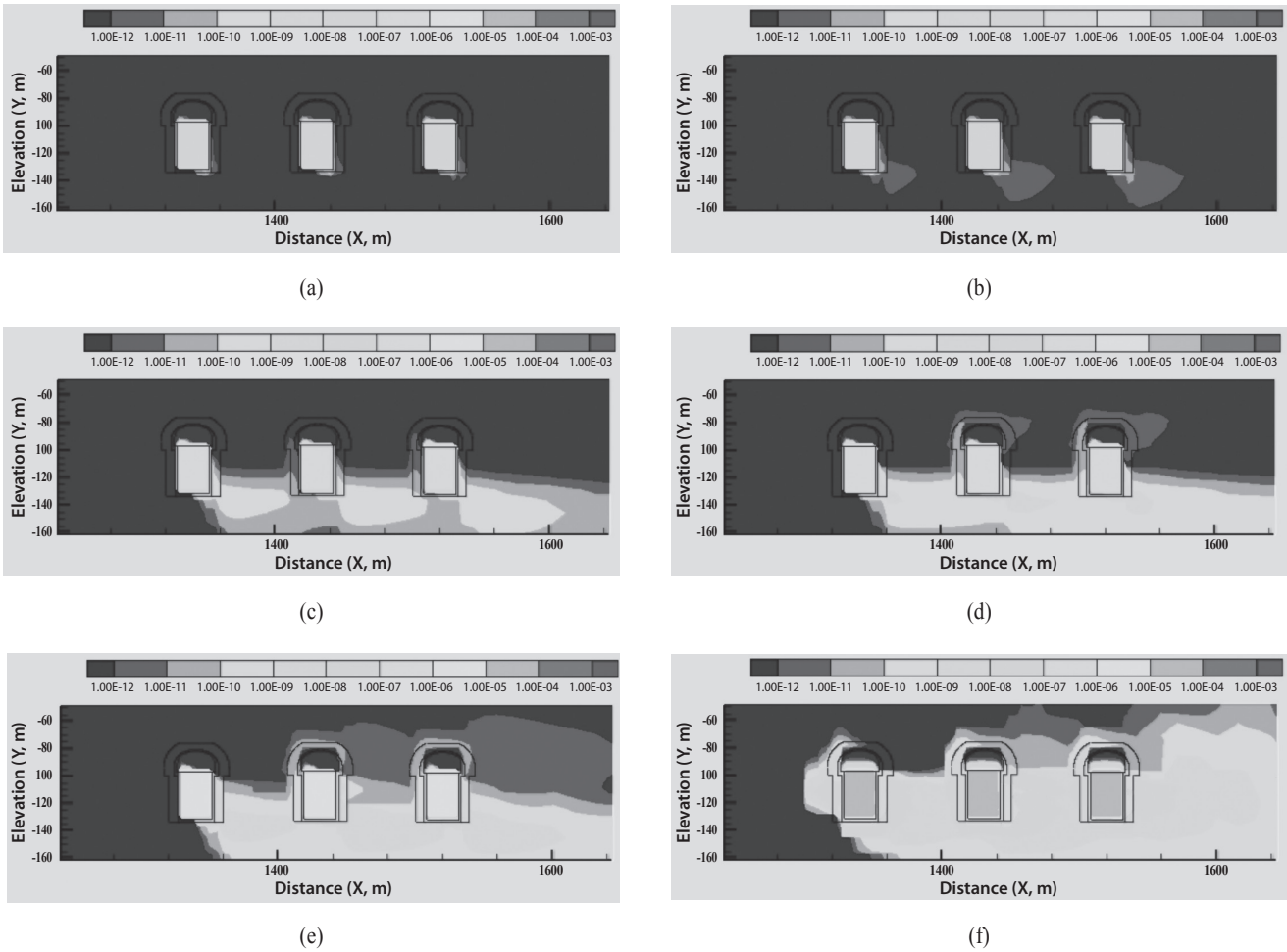

Fig. 6. Migration of hydrogen gas dissolved in groundwater after closure (local scale)
[(a) 1 year, (b) 10 years, (c), 100 years, (d) 200 years, (e) 1,000 years, (f) 1,400 years].

는 수치 모델링의 입력변수로 활용되었다.

4.2 모델링 결과

4.2.1 수소기체 이동

사일로 폐쇄후 시점부터 모델링 종료 시점인 1,400 년까지 지하수에 용해된 기체의 이동 특성을 Fig. 5에 나타내었다. Fig. 5에 나타낸 바와 같이, 사일로 폐쇄후 발생하는 수소기체는 사일로 내부 지하수에 용해되어 해안 방향으로 이동하는 것을 알 수 있다. 폐쇄후 10 년 이후부터, 지하수에 용해된 수소기체가 사일로 하부를 통해 외부로 이동하는 것을 알 수 있다. 처분시설은 수두구배가 서고동저의 형태이기 때문에 지하수에 용해된 수소기체는 지하수의 흐름을 따라 동쪽의 해안방향으로 이동하는 것을 알 수 있다. 또한 사일로 내부에서 발생된 수소 기체는 폐쇄 초기에는 사일로 하부를 통해 사일로 외부로 이동하는 것을 확인할 수 있지만 시간이 지남에 따라 사일로 상부로 기체의 이동이 확장되는 것을 확인할 수 있다. 기체이동 모델링 결과, 사일로 내부에서 발생하는 수소 기체는 기상으로 이동하지 않고 지하수에 용해되어 지하수와 함께 생태계로 이동하는 것을 알 수 있다. 따라서, 사일로 내부에서 발생하는 수소 기체는 기상으로 사일로 내부에 축적되지 않으며, 이로 인해 사일로 콘크리트의 내구성에 영향을 미치지 않을 것으로 판단된다.

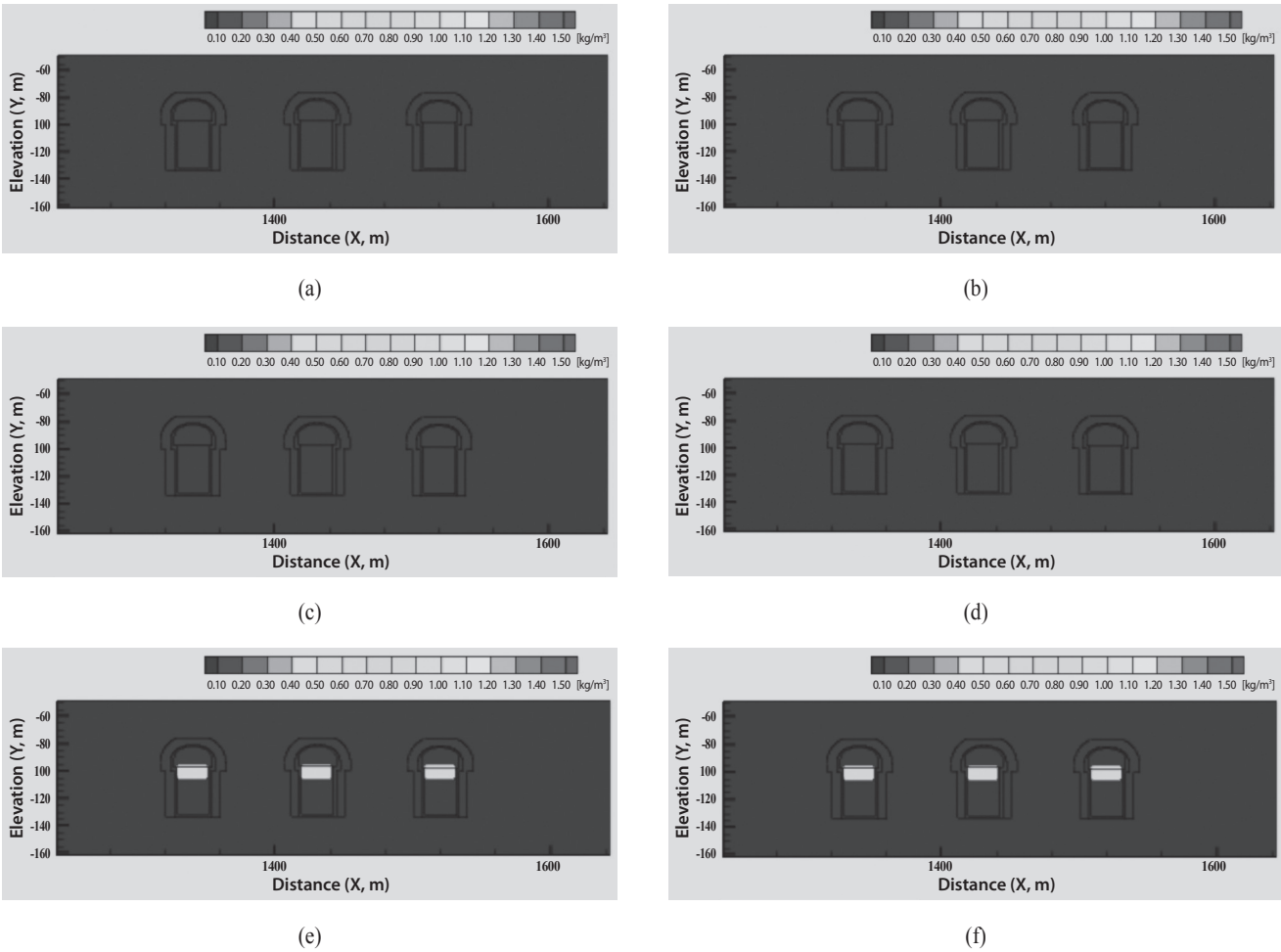

Fig. 7. Change of hydrogen gas density after closure
[(a) 1 year, (b) 10 years, (c), 100 years, (d) 200 years, (e) 1,000 years, (f) 1,400 years].

4.2.2 수소기체 밀도

사일로 내부에서 수소기체의 밀도 변화는 수소 기체에 의한 사일로 내부 포화와 직접적인 관련이 있다. 폐쇄후 시간 변화에 따른 사일로 내부 수소기체 변화를 Fig. 6에 나타내었다. 폐쇄후 약 1,000년 이후부터 사일로 폐기물 적치부의 상부에서부터 수소 밀도가 증가하는 현상을 확인할 수 있다. 수소 기체 발생 직후부터 약 1,000 년 까지는 사일로 내부의 지하수에 용해되지만 1,000 년 이후부터 용해도 제한치를 초과하여 기상으로 존재하게 되는 것을 알 수 있다. 기체 형태로 존재하게 될 경우, 밀도차이에 의해 기체가 발생하는 폐기물 적치부에서 사일로 상부로 이동하는 것으로 판단된다.

5. 결 론

본 연구에서 처분시설에 대한 2차원 모델 영역을 구성하여 콘크리트 열화 예상 시점인 1,400 년까지 기체이동 수치 모델링을 수행하였다. 이에 앞서 처분시설 사일로 콘크리트에 대한 기체침투압(gas entry pressure)과 기체투과도(gas permeability)를 실험으로 측정하였다. 본 연구의 결론은 아래와 같다.

- 사일로 콘크리트의 기체침투압(gas entry pressure)과 기체 투과도(gas permeability)는 각각 0.97±0.15 bar 및 2.44×10^{-17} m^2로 측정되었다.
- 사일로 폐쇄후 발생된 수소기체는 발생과 동시에 지하수 용해가 시작되며, 지하수에 용해된 수소기체는 좌에서 우로 흐르는 지하수의 흐름에 따라 이동하는 것을 확인할 수 있었다. 따라서 폐쇄 후 초기에는 사일로 내부의 기체 밀도는 뚜렷한 증가양상을 나타내지 않지만, 약 1,000 년 후 부터 사일로 상부부터 밀도가 증가하기 시작한다. 하지만 모델링 종료시점까지 사일로 내부의 수소 기체 밀도가 큰 폭으로 증가하지는 않는다. 즉, 1,400 년 이후에도 사일로 내부에서 발생된 수소 기체는 기상으로 존재하는 분율이 극히 작음을 확인할 수 있다. 이와 같은 결과로부터 사일로 내부에 처분되는 폐기물에서 발생하는 기체는 사일로 내부에 축적되지 않으며, 이로 인해 사일로 콘크리트의 내구성에 영향을 미치지 않을 것으로 판단된다.

REFERENCES

[1] Korea Radioactive Waste Management Agency (KORAD), Safety Analysis Report (SAR) (in Korean), 6.1.1-6.1.4 (2008).

[2] J. Kim, J. Kim, H. Jung, J.C. Ha, and E.H Kim, “Gas threshold pressure and gas permeability of silo concrete specimens for a low- and intermediate-level waste disposal facility in Korea”, Ann. Nucl. Energy, 55, 1-8 (2013).

[3] G. Mayer, H.A. Moetsch, and F.H. Wittmann, “Large-scale Experiment for Water and Gas Transport in Cementitious Backfill Materials (Phase 1) COLEX I”, Nagra Technical Report 98-03 (1998).

[4] K. Pruess, C. Oldenburg, and G. Moridis, “TOUGH2 user`s guide, Version 2.0”, LBNL-43134, Berkeley, CA (1999).

[5] Y. Mualem, “A new model for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated porous media”, Water Resour. Res. 12, 513-522 (1976).

[6] M. Th. van Genuchten, “A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils”. Soil Sci. Soc. Am. J. 44, 892-898 (1980).

[7] National Co-operative for the Disposal of Radioactive Waste(Nagra), “Effects of post-disposal gas generation in a repository for low- and intermediate-level waste sited in the Opalinus Clay of Northern Switzerland”, TR 08-07 (2008).

[8] A. Abbas, M. Carcasses, and J.P. Ollivier, “Gas permeability of concrete in relation to its degree of saturation”, Mater. Struct. 32, 3-8 (1999).

[9] F. Jacobs, G. Mayer, and F.H. Wittmann, “Permeability of backfill materials”, Proceedings of Post-Conference Seminar No. 10 of 12th International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology SMiRT-12, Stuttgart, 83-99 (1993).