TECHNICAL NOTE

벤토나이트 완충재 장기 침식을 모사하기 위한 Two-region 모델 소개

이재원^{1*}, 김정우²

¹한국원자력연구원 선임연구원, ²한국원자력연구원 책임연구원

Introduction of Two-region Model for Simulating Long-Term Erosion of Bentonite Buffer

Jaewon Lee^{1*} and Jung-Woo Kim²

¹Senior Researcher, Korea Atomic Energy Research Institute ²Principal Researcher, Korea Atomic Energy Research Institute

*Corresponding author: jwl@kaeri.re.kr

Received: August 14, 2023 Revised: August 20, 2023 Accepted: August 21, 2023

ABSTRACT

Bentonite is widely recognized and utilized as a buffer material in high-level radioactive waste repositories, mainly due to its favorable characteristics such as swelling capability and low permeability. Bentonite buffers play an important role in ensuring the safe disposal of radioactive waste by providing a low permeability barrier and effectively preventing the migration of radionuclides into the surrounding rock. However, the long-term performance of bentonite buffers still remains a subject of ongoing research, and one of the main concerns is the erosion of the buffer induced by swelling and groundwater flow. The erosion of the bentonite buffer can significantly impact repository safety by compromising the integrity of buffer and leading to the formation of colloids that may facilitate the transport of radionuclides through groundwater, consequently elevating the risk of radionuclide migration. Therefore, it is very important to numerically quantify the erosion of bentonite buffer to evaluate the long-term performance of bentonite buffer, which is crucial for the safety assessment of high-level radioactive waste disposal. In this technical note, Two-region model is introduced, a proposed model to simulate the erosion behavior of bentonite based on a dynamic bentonite diffusion model, and guantitative evaluation is conducted for the bentonite buffer erosion with this model.

Keywords: High-level radioactive waste repository, Performance assessment, Bentonite buffer erosion, Two-region model

초록

벤토나이트는 팽윤 능력과 낮은 투수율 등의 유리한 특성으로 인해 고준위방폐물처분장에서 완충재로 널리 인정받고 활용되고 있으며, 낮은 투수율로 인해 방사성 핵종이 주변 암반으로 이동하는 것을 효과 적으로 방지하여 방사성 폐기물의 안전한 처분을 보장하는 데 중요한 역할을 한다. 그러나 벤토나이트 완충재의 장기적인 성능은 여전히 지속적인 연구의 대상으로 남아 있으며, 주요 우려 사항 중 하나는 벤 토나이트의 팽윤과 지하수 흐름에 의한 완충재의 침식이다. 벤토나이트 완충재의 침식은 완충재의 무결 성을 손상시키고 지하수를 통한 방사성 핵종의 이동을 촉진할 수 있는 콜로이드 형성을 초래하여, 결과 적으로 방사성 핵종 이동 위험을 높임으로써 처분장 안전에 중대한 영향을 미칠 수 있다. 따라서 벤토나 이트 완충재의 침식 메커니즘과 침식 정도를 수치 해석적으로 정량화하여 장기적인 벤토나이트 완충재



의 성능 및 콜로이드 형성 정도를 평가하는 것이 고준위방폐물처분장의 안전성 평가에 매우 중요하다. 본 기술 보고에서는 동적 벤토나이트 확산 모델을 기반으로 거동이 유사한 영역을 두 개로 분류하여 벤 토나이트의 균열 침투 및 콜로이드 형성을 모사할 수 있도록 제안된 모델인 Two-region 모델을 소개하 였으며, 이 모델을 이용해 벤토나이트 완충재 침식 정도를 정량적으로 평가하였다.

핵심어: 고준위방폐물처분장, 안전성 평가, 벤토나이트 완충재 침식, Two-region 모델

1. 서 론

고준위방폐물의 안전한 관리는 현대 사회에서 가장 중요한 환경 및 안전 문제 중 하나로 꼽히며, 방사성 물질의 장기적인 위험성 을 효과적으로 관리하는 것이 필요하다. 이에 따라 지하 수백 미터 깊이에 방사성 폐기물을 처분하고 공학적방벽 및 천연방벽으로 이루어진 다중방벽 개념을 이용하여 방사성 물질의 누출을 차단 및 지연시키는 심층처분방식이 가장 유력한 방식으로 고려되고 있 다. 공학적방벽을 구성하는 주요 요소 중 하나인 벤토나이트 완충재는 팽윤 능력 및 낮은 투수율 등의 유리한 특성으로 인해 방사성 핵종의 이동을 효과적으로 방지하여 방사성 폐기물의 안전한 처분을 보장함으로써 환경 및 인류에 대한 장기적인 위험을 최소화하 는 역할을 수행한다(IAEA, 2011). 하지만 벤토나이트 완충재의 장기적인 성능은 여전히 불확실성이 많기에 지속적인 연구의 필요 성은 물론, 그 중요성도 더욱 부각되고 있다. 특히 벤토나이트의 팽윤과 지하수 흐름에 의한 완충재의 침식은 벤토나이트 완충재의 무결성을 위협할 뿐만 아니라, 방사성 핵종의 누출 가능성을 증가시킬 수 있는 콜로이드 형성을 초래할 수 있다. 이는 방사성 핵종의 누출 위험성을 증대시켜 고준위방폐물처분장의 안전성에 큰 영향을 미칠 수 있기에, 벤토나이트 완충재의 침식 메커니즘과 침식에 영향을 미치는 요인에 대한 포괄적인 이해가 필수적이다.

일반적으로 벤토나이트 완충재 침식 메커니즘은 크게 화학적 침식과 물리적 침식으로 구분할 수 있다(Hong et al., 2022). 화학 적 침식은 지하수 유입으로 인해 벤토나이트 완충재에서 팽윤 현상이 발생해 젤(gel) 형태로 처분공 주변 균열로 침투하는 현상과, 침투된 벤토나이트 젤이 점점 농도가 낮아져 콜로이드 형태인 졸(sol)로 변화하여 지하수를 따라서 확산하는 현상을 모두 의미한다 (Neretnieks et al., 2009). 물리적 침식은 지하수 유동에 의한 견인력(drag force)에 의해 점토 입자가 물리적으로 떨어져 나가는 현 상을 의미한다(Liu and Neretnieks, 2006). 화학적 및 물리적 침식 정도는 지하수의 유량, 지하수 내 양이온의 농도, 완충재의 건조 밀도, 그리고 균열의 크기 등 다양한 요인에 의해 결정되는데(Sane et al., 2013), 안전성평가 측면에서 장기적인 벤토나이트 완충재 의 성능 및 콜로이드 형성 정도를 평가하여야 하므로 침식 정도를 수치 해석적으로 정량화하는 것이 필요하다.

벤토나이트 완충재 침식을 모사하기 위한 수치 모델은 동적 벤토나이트 확산 모델(dynamic bentonite diffusion model) 및 팽창 성 점토 모델(expansive clay model), 그리고 수리-역학 모델로 크게 세 그룹으로 구분할 수 있다(Hong et al., 2022). 먼저 동적 벤 토나이트 확산 모델은 2009년 스웨덴 왕립 공과대학(KTH)에서 제안한 모델로서 벤토나이트의 나노 입자에 작용하는 정전기적 척 력인 확산 이중층 힘(diffuse double layer force)과 인력으로 작용하는 van der Waals 힘의 평형에 기반한 모델이다(Neretnieks et al., 2009). 팽창성 점토 모델은 Barcelona Basic Model(BBM, Alonso et al., 1990)과 Barcelona Expansive Model(BEXM, Alonso et al., 1999) 등과 같은 지반공학에서 사용되는 불포화 매질에 대한 탄소성 모델을 의미하며, 매질의 거시적인 탄소성 응력-변형률 관계를 기반으로 흡인력(suction) 및 입자의 팽윤(swelling)을 고려한 모델이다(Alonso et al., 1999). 마지막으로 수리-역 학 모델은 벤토나이트 팽윤압과 암반 균열 표면 사이의 마찰력, 공극 수압 등과 같이 벤토나이트에 작용할 수 있는 힘들의 평형을 이 용해 벤토나이트의 균열 침투를 모사하는 힘 평형 모델(Börgesson et al., 2018)과 균열로 침투한 벤토나이트 젤을 점성 유체인 Bingham 유체로 가정하여 거동을 모사한 모델(Lee et al., 2020a)을 의미한다(Hong et al., 2022). 앞서 설명한 벤토나이트 완충재 침식 모사를 위한 수치 모델 중 팽창성 점토 모델과 수리·역학 모델은 팽윤에 의해 균열로 침투하는 벤토나이트의 거동을 모사하는 데는 적합하지만, 침투된 벤토나이트 첨단에서 발생하는 입자 탈락 현상, 즉 콜로이드의 형성을 모사할 수 없다는 단점이 존재한다. 동적 벤토나이트 확산 모델은 팽윤에 의한 벤토나이트의 균열 침투 뿐만 아니라 콜로이드 형성 까지 모두 모사가 가능하다는 장점이 있지만, 이 모델은 벤토나이트 팽윤에 따른 위치 변화, 벤토나이트 입자의 젤/졸의 변화하는 화 학특성, 입자 간에 작용하는 힘, 벤토나이트 젤/졸의 확산도 및 점도 등 모델을 구성하는 방정식들이 비선형적이기에 해석의 부담이 매우 큰 모델이다(Hong et al., 2022). 또한 이렇게 복잡한 편미분 방정식을 풀어서 나오는 수치 해석 결과가 실내 시험을 제대로 모 사하지 못한다는 단점으로 인해, 새로운 완충재 침식 모사 모델인 Two-region 모델이 제안되었다(Neretnieks et al., 2017). Two-region 모델은 벤토나이트 완충재 침식 관련 국제 공동 연구인 BELBaR 프로젝트의 수행 결과로 도출되었으며, 이는 기존의 동적 벤토나이트 확산 모델을 기반으로 거동이 유사한 영역을 두 개로 분류하여 벤토나이트의 균열 침투 및 콜로이드 형성을 모사 할 수 있도록 제안된 모델이다. 본 기술 보고에서는 벤토나이트 완충재의 장기 침식을 모사하여 침식 정도를 정량화할 수 있는 Two-region 모델을 소개하고자 하며, 추후 국내 심층처분장의 완충재 장기 침식을 고려한 안전성 평가에의 적용을 통해 장기적인 성능과 안전성을 정확하고 신뢰성 있게 평가하고자 한다.

2. Two-region 모델의 개념

Two-region 모델에서는 팽윤에 의해 균열 내로 침투한 벤토나이트 영역을 점토 팽윤 영역(expanded clay region)과 테두리 영 역(rim region)으로 구분하였다(Fig. 1). 점토 팽윤 영역은 벤토나이트가 젤의 형태로 존재하며 방사 방향으로 점차 벤토나이트의 농도가 감소할 뿐만 아니라 지하수의 흐름에 영향을 받지 않고 확산에 의해서만 벤토나이트가 이동하는 영역이며, 테두리 영역은 벤토나이트가 졸의 형태로 존재하며 확산 뿐만이 아니라 지하수의 흐름에 따라 벤토나이트가 이동하는 영역이다(Neretnieks et al., 2017).



Fig. 1. Schematic view of Two-region model (Neretnieks et al., 2017)

Two-region 모델에서 젤 및 졸로 존재하는 벤토나이트 농도는 부피율(volume fraction)의 개념을 이용해 표현된다. 부피율이란 단위 부피 내에 존재하는 벤토나이트 입자의 비율을 의미하며 이는 다음과 같다.

$$\phi = \frac{V_b}{V} = \frac{V - V_p}{V} = 1 - \epsilon_p \tag{1}$$

여기서 ϕ 는 벤토나이트의 부피율, V는 단위 부피, V_b는 단위 부피 내에 존재하는 벤토나이트 입자의 부피, V_p는 단위 부피 내에 존재하는 공극의 부피, 그리고 ϵ_p 는 공극률을 의미한다.

Fig. 1에 나타나 있듯이 반경 r_i 값을 갖는 처분공 내에 존재하는 압축 벤토나이트의 부피율을 ϕ_i 라 한다면, 점토 팽윤 영역에서의 벤토나이트 부피율은 방사 방향으로 점차 감소해 최종적으로 벤토나이트가 졸 화 되는 ϕ_R 의 부피율까지 감소하게 되며 이때의 반 경을 테두리 반경 (r_R) 이라 한다. 또한 벤토나이트 부피율이 ϕ_R 보다 작은 영역을 테두리 영역이라 하는데, 테두리 영역에서는 부피 율이 매우 급격하게 0으로 감소하기 때문에 매우 좁게 형성이 된다(Moreno et al., 2011).

Two-region 모델에서는 테두리 영역의 모사를 더욱 간략화하기 위해 직선의 형태로 표현하였다(Fig. 2). 테두리 영역은 점토 팽 윤 영역에 비해 매우 작은 영역이기 때문에, 테두리 영역의 안쪽과 바깥쪽 길이 차이를 무시할 수 있다. 즉, 테두리 영역은 x 축 방향 으로 πr_R의 길이를 갖고 y축 방향으로는 r_R의 길이를 갖는 사각 영역의 외부 반경인 직선으로 근사할 수 있다. 이와 같이 테두리 영역 의 경우 직교 좌표계로 표현함으로써 모델을 간략화하였으나, 점토 팽윤 영역의 경우는 기존의 원통형 좌표계를 그대로 이용하였다.



Fig. 2. Rim region represented by a straight line

3. 확산도(diffusivity) 및 점성도(viscosity)

Two-region 모델의 이론식을 설명하기에 앞서 확산도 및 점성도에 대해 먼저 설명하고자 한다. Two-region 모델은 동적 벤토나 이트 확산 모델의 보완을 위해 새롭게 제시되었는데, 동적 벤토나이트 확산 모델에서 이용된 확산도와 점성도 개념만큼은 Two-region 모델에서도 그대로 적용되었다.

3.1 확산도

균열로 침투한 벤토나이트 젤 및 졸의 팽창은 물에서의 용질 확산과 유사한 방식으로 모사할 수 있다. 하지만 일반적인 용질과 달

리 벤토나이트 입자는 전하가 높아 확산 이중층이 형성되는데, 입자 농도가 높다면 브라운 힘(Brownian forces) 뿐만 아니라 확산 이중층 힘에 의해 추가적인 척력이 발생하여 확산이 더 강하게 발생한다. 또한 벤토나이트 입자는 크기가 작아 높은 이온 강도(ionic strength)에서 확산 이중층이 매우 얇아져 인력인 van der Waals 힘이 반발력 보다 커지게 되며, 이에 따라 브라운 운동(Brownian movement)만으로는 응집성 젤에서 입자가 방출될 수 없다(Neretnieks et al., 2017). 동적 벤토나이트 확산 모델 및 Two-region 모델에서의 확산도는 이러한 현상을 모두 고려하여 부피율 및 이온 농도, 그리고 입자 크기에 따라 값이 변화한다.

Fig. 3은 벤토나이트의 입자 크기가 300 nm 일 때의 부피율 및 이온 농도에 따른 확산도를 나타낸 그래프이다. 1 mM의 이온 농도에서는 부피율 범위가 0.2 < ϕ < 0.6일 때 확산도가 약 1.0×10⁻⁹ m²/s로 거의 일정한 값을 갖는 것을 확인할 수 있으며, 만약 이온 농도가 더 낮은 0.01 mM의 경우는 부피율이 0.002 이상일 때 거의 일정한 값을 갖는 것을 확인할 수 있다.



Fig. 3. Diffusivity for the gel/sol as function of the volume fraction ϕ for different concentrations of monovalent ions. The curves from left to right are for 0.01, 0.1, 1, 10, 50 and 100 mM ion (Neretnieks et al., 2009)

3.2 점성도

벤토나이트 젤 및 졸의 점성도는 벤토나이트 부파율이 증가함에 따라 증가하며, 확산도와 마찬가지로 이온 농도와 입자 크기에 따라 변화한다. 벤토나이트 부파율이 커짐에 따라 용액의 점성도가 증가하여 결국 Bingham 유체의 거동과 유사해지는데, Bingham 유체가 흐르기 위해서는 유체의 전단력(shear force) 이상의 힘이 필요하다. 즉, 지하수의 흐름이 벤토나이트 젤에 가하는 전단력이 더 커야지 벤토나이트 젤의 움직임이 발생하게 되는데, 이때의 점성도를 갖는 부파율이 점토 팽윤 영역과 테두리 영역 경 계의 부파율인 ϕ_R 이다. 벤토나이트 부파율이 ϕ_R 보다 큰 경우(점토 팽윤 영역) 지하수 흐름이 벤토나이트 젤에 가하는 전단력이 벤 토나이트 젤 자체의 전단력보다 작기 때문에 벤토나이트 젤이 움직이지 않지만, 부파율이 ϕ_R 보다 작아지는 테두리 영역에서는 지 하수 흐름에 의한 벤토나이트 이동이 발생하게 된다.

벤토나이트 젤 및 졸의 점성도 모델은 2011년에 제안된 Liu 모델을 이용하였다(Liu, 2011). 이 모델은 공동 부피율(co-volume fraction) 개념을 이용하였는데, 공동 부피율은 벤토나이트 입자들이 자유롭게 회전할 수 있는 최소한의 부피율을 의미하며 벤토나이트 입자의 크기, 양이온의 전하 및 농도에 따라 그 값이 달라진다. 벤토나이트 젤 및 졸의 점성도를 물의 점성도로 나눈 무차원 값 인 상대 점성도(relative viscosity)는 다음과 같다(Liu, 2011).

$$\eta_r = \frac{\eta}{\eta_w} = 1 + 1.022\phi_{cov} + 1.358\phi_{cov}^3 \tag{2}$$

여기서 η_r 은 상대 점성도, η 는 벤토나이트 젤 및 졸의 점성도, η_w 는 물의 점성도, 그리고 ϕ_{cov} 는 공동 부피율을 의미한다.



Fig. 4. Relative viscosity for the gel/sol as function of the volume fraction for different concentrations of monovalent ions (Neretnieks et al., 2017)

Fig. 4는 벤토나이트 입자 크기가 200 nm 일 때의 부피율 및 이온 농도에 따른 상대 점성도 그래프이다. 이온 농도가 낮을 때 부피 율에 따라 상대 점성도는 급격하게 증가하며, 벤토나이트 젤의 최대 점성도는 물의 약 10배 인 것을 확인할 수 있다.

4. 점토 팽윤 영역에서의 벤토나이트 완충재 균열 침투(Neretnieks et al., 2017)

처분공 중심에 위치하는 평면 균열을 통해 벤토나이트 침투가 발생한다고 가정한다면, 균열 내 존재하는 벤토나이트 질량은 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\frac{dM}{dt} = N_{in} - 2N_{rim} \tag{3}$$

여기서 *M*은 균열 내 존재하는 벤토나이트의 질량, *N_{in}*은 처분공에서 균열로 침투하는 벤토나이트의 질량 유속(mass flow rate), 그리고 *N_{rim}*은 테두리 영역에서 빠져나가는 벤토나이트 질량 유속이다. *N_{rim}*의 경우 Fig. 2에서처럼 반원을 대상으로 한 값이기 때문에, 전체 테두리 영역에서 빠져나가는 벤토나이트 질량을 계산하기 위해 2배를 해 주었다.

Fig. 1과 같이 r_i 의 반경을 갖는 처분공에 ϕ_i 의 부피율을 갖는 압축 벤토나이트가 존재하며, 부피율이 ϕ_R 까지 감소하는 지점이 점 토 팽윤 영역의 경계가 되고 이때의 반경이 r_R 이라 한다면, 균열 내 존재하는 벤토나이트 질량은 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$M = \rho_s \delta_{fr} \pi \phi_{mean} \left(r_R^2 - r_i^2 \right) \tag{4}$$

여기서 ρ_s 는 벤토나이트 입자 밀도(grain density), δ_{fr} 은 균열의 간극(aperture), 그리고 ϕ_{mean} 은 점토 팽윤 영역에 존재하는 벤토 나이트 젤의 평균 부피율이다.

식(4)를식(3)에 적용하면 다음과 같다.

$$\frac{dM}{dt} = \rho_s \delta_{fr} \pi \left(\frac{d\phi_{mean}}{dt} \left(r_R^2 - r_i^2 \right) + 2\phi_{mean} r_R \frac{dr_R}{dt} \right) = N_{in} - 2N_{rim}$$
(5)

4.1 시간에 따른 점토 팽윤 영역의 반경(r_R)

식(5)를 통해 시간에 따른 점토 팽윤 영역의 반경을 얻을 수 있으며, 이는 다음과 같다.

$$\frac{dr_R}{dt} = \frac{N_{in} - 2N_{rim}}{2\rho_s \delta_{fr} \pi \phi_{mean} r_R} - \frac{d\phi_{mean}}{dt} \frac{\left(r_R^2 - r_i^2\right)}{2\phi_{mean} r_R} \tag{6}$$

4.2 시간에 따른 점토 팽윤 영역 내의 부피율(*ϕ*)

점토 팽윤 영역 내에서는 벤토나이트의 이동이 확산에 의해서만 이루어지기 때문에, 원통형 좌표계의 검사체적(control volume) 내 질량 보존 방정식은 다음과 같다.

$$\frac{\partial (A\,dr\,\phi)}{\partial t} = -D_r A_r \frac{\partial \phi}{\partial r} |_r + D_{r+dr} A_{r+dr} \frac{\partial \phi}{\partial r} |_{r+dr} = \frac{\partial}{\partial r} \left(DA \frac{\partial \phi}{\partial r} \right) dr \tag{7}$$

여기서 A는 반경 방향의 단면적(cross section area)이며, D는 확산도이다.

식(7)의 등호 좌측 항목은 다음과 같이 풀어쓸 수 있다.

$$\frac{\partial (A\,dr\,\phi)}{\partial t} = A\,dr\frac{\partial\phi}{\partial t} + A\phi\frac{\partial(dr)}{\partial t} + dr\,\phi\frac{\partial A}{\partial t} = A\,dr\frac{\partial\phi}{\partial t} + A\phi\frac{\partial(dr)}{\partial t} + dr\,\phi\frac{\partial A}{\partial r}\frac{\partial r}{\partial t} \tag{8}$$

점토 팽윤 영역은 시간이 지남에 따라 점차 확장되기에, 점토 팽윤 영역 경계 반경인 r_R 은 시간에 따른 함수이다. 따라서 시간에 따른 변수 r은 다음과 같이 표현될 수 있다.

$$\frac{\partial r}{\partial t} = \frac{\partial r_R}{\partial t} \frac{r - r_i}{r_R - r_i} \tag{9}$$

또한 반경 방향에 대해 전체 부피를 N_i개수의 작은 부피로 이산화하면, dr 및 d(dr)은 다음과 같이 표현될 수 있다.

$$dr = (r_R - r_i)/N_j \quad \text{and} \quad d(dr) = dr_R/N_j \tag{10}$$

식(9)와식(10)을식(8)에 대입하면 다음과 같다.

$$\frac{\partial (A\,dr\,\phi)}{\partial t} = A\,dr \left(\frac{\partial\phi}{\partial t} + \frac{dr_R}{dt}\phi \left(\frac{1}{N_jdr} + \frac{1}{A}\frac{dA}{dr}\frac{r-r_i}{r_R-r_i}\right)\right) \tag{11}$$

이때, 식 (10)에 의해 $N_j dr = r_R - r_i$ 이며, A(r)의 경우 원통형 좌표계에서 반경 방향의 단면적이므로 $2\pi r \delta_{fr}$ 과 같다. 이를 식 (11)에 적용하면 다음과 같다.

$$\frac{\partial (A \, dr \, \phi)}{\partial t} = 2\pi r \delta_{fr} \, dr \left(\frac{\partial \phi}{\partial t} + \frac{dr_R}{dt} \frac{\phi}{r_R - r_i} \left(1 + \frac{r - r_i}{r} \right) \right) \tag{12}$$

식(12)를 이용하면 식(7)은 최종적으로 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\frac{\partial\phi}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(Dr \frac{\partial\phi}{\partial r} \right) - \frac{dr_R}{dt} \frac{\phi}{r_R - r_i} \left(1 + \frac{r - r_i}{r} \right) \tag{13}$$

시간에 따른 점토 팽윤 영역 내의 부피율을 나타내는 식 (13)은 $\frac{dr_R}{dt} = 0$ 인 경우 원통형 좌표계에서의 일반적인 확산 방정식과 동일하다.

4.3 처분공에서 균열로 침투하는 벤토나이트의 질량 유속(N_{in})

처분공에서 균열로 침투하는 벤토나이트의 질량 유속은 식(13)의 해를 통해 처분공 경계에서의 부피율 기울기를 얻게된다면 다음과 같이 적분하여 계산할 수 있다.

$$N_{in} = -2D\pi r_i \rho_s \delta_{fr} \frac{\partial \phi}{\partial r} \mid_{r=r_i}$$
(14)

4.4 시간에 따른 처분공 내의 부피율(φ_i)

벤토나이트 완충재가 팽윤 현상에 의해 처분공에 접한 균열로 침투하게 되면 처분공 내의 벤토나이트 부피율은 점차 감소하게 되며, 이는 다음과 같다.

$$\frac{d\phi_i}{dt} = -\frac{N_{in}}{V_h \rho_s}$$

여기서 V_h는 처분공 부피를 의미한다.

4.5 의사 정상 상태(Pseudo steady state) 가정

벤토나이트 완충재의 균열 침투 정도를 정량화하기 위해서는 점토 팽윤 영역의 반경을 계산할 수 있는 편미분 방정식(partial differential equation)인 식 (6)과 점토 팽윤 영역의 부피율을 계산할 수 있는 편미분 방정식인 식 (13)을 동시에 계산하여야 한다. 물론 동적 벤토나이트 확산 모델에 비해 단순화 된 식들 이지만, 안전성 평가에서 사용하기에는 아직도 계산 시간과 노력이 많이 필 요한 것은 사실이다. 따라서 추가적인 가정을 통해 위 식들을 더 단순화하고자 하였다.

(15)

식(6)과 식(13)을 이용하여 수치 해석 수행 중, 확산도를 상수로 가정한다면 시간이 지남에 따라 태두리가 더 멀리 이동하더라도 부피율 분포(profile)의 모양이 크게 변하지 않는다는 점에서 착안하여, 각 시간 간격(timestep)에서 점토 확산 영역의 반경 및 부피 율이 실제는 시간에 종속적인 상태이지만 반경 및 부피율의 변화가 빠르지 않기 때문에 정상 상태일 때와 같다라는 의사 정상 상태 를 가정하였다. 즉, 이 가정 조건에서는 확산도가 일정한 상수이며 처분공 내에 존재하는 압축 벤토나이트의 부피율인 ϕ_i 가 각각의 시간 간격에서 일정하다. 이 조건을 이용하면 점토 확산 영역 내의 부피율 분포는 식(13)을 직접 계산할 필요가 없이 각 시간 간격에 서 다음과 같이 계산할 수 있으며, 이 식의 형태는 원통형 좌표계에서의 온도 분포 식과 유사하다.

$$\phi(r) = \phi_i - (\phi_i - \phi_R) \frac{\ln\left(\frac{r}{r_i}\right)}{\ln\left(\frac{r_R}{r_i}\right)} \qquad \text{for } r_i < r < r_R \tag{16}$$

식(16)을 통해 계산된 벤토나이트 부피비 분포를 이용하여, 각 시간 간격 별 처분공 경계에서의 부피비에 대한 반경 방향의 미분 값을 직접적으로 계산할 수 있으며, 이를 이용해 처분공에서 균열로 침투하는 벤토나이트의 질량 유속인 식(14)를 다음과 같이 계 산할 수 있다.

$$N_{in} = 2D\pi\rho_s \delta_{fr} \frac{\phi_i - \phi_R}{\ln\left(\frac{r_R}{r_i}\right)} \tag{17}$$

또한식(16)을 통해 각시간 간격 별 벤토나이트의 평균 부피율 및 시간에 따른 평균 부피율 변화는 다음과 같이 직접적으로 계산 할 수 있다.

$$\phi_{mean} = \frac{\left(r_i^2 - r_R^2\right)(\phi_i - \phi_R) + 2\left(r_i^2\phi_i - r_R^2\phi_R\right)\ln\left(\frac{r_R}{r_i}\right)}{2\left(r_i^2 - r_R^2\right)\ln\left(\frac{r_R}{r_i}\right)}$$
(18)

$$\frac{d\phi_{mean}}{dt} = \frac{\partial\phi_{mean}}{\partial r_R} \frac{dr_R}{dt} + \frac{\partial\phi_{mean}}{\partial\phi_i} \frac{d\phi_i}{dt}$$

$$where \quad \frac{\partial\phi_{mean}}{\partial r_R} = \frac{\left(\phi_i - \phi_R\right) \left\{ \left(r_i^2 - r_R^2\right)^2 - 4\ln\left(\frac{r_R}{r_i}\right)^2 r_i^2 r_R^2\right\}}{2r_R \ln\left(\frac{r_R}{r_i}\right)^2 \left(r_i^2 - r_R^2\right)^2} \quad \text{and} \quad \frac{\partial\phi_{mean}}{\partial\phi_i} = \frac{\left(r_i^2 - r_R^2\right) + 2r_i^2 \ln\left(\frac{r_R}{r_i}\right)}{2\left(r_i^2 - r_R^2\right) \ln\left(\frac{r_R}{r_i}\right)}$$

$$(19)$$

식(18)과 식(19)를 점토 팽윤 영역의 반경에 대한 식인 식(6)에 적용하면 다음과 같다.

$$\frac{dr_R}{dt} = \frac{\frac{N_{in} - 2N_{rim}}{\rho_s \delta_{fr} \pi} - \frac{\partial \phi_{mean}}{\partial \phi_i} (r_R^2 - r_i^2) \frac{d\phi_i}{dt}}{2r_R \phi_{mean} + \frac{\partial \phi_{mean}}{\partial r_R} (r_R^2 - r_i^2)}$$
(20)

이처럼 의사 정상 상태를 가정하면 시간에 따른 점토 팽윤 영역의 반경 및 부피율이 편미분 방정식이 아닌 일반 미분 방정식 (ordinary differential equation)으로 변환되어 계산 효율이 매우 증대된다.

5. 테두리 영역에서의 침식(Neretnieks et al., 2017)

테두리 영역은 Fig. 2에서처럼 x 축 방향으로 πr_R의 길이를 갖고 y축 방향으로는 r_R의 길이를 갖는 사각 영역의 외부 반경인 직 선으로 가정하였다. 또한 테두리 영역에서는 벤토나이트가 졸 화 되어 지하수 흐름 및 확산에 의해 이동하기에, 테두리 영역에서 빠 져나가는 벤토나이트 질량 유속인 N_{rim}은 지하수의 유속과 벤토나이트 부파율의 곱을 테두리 반경이 시작되는 지점인 y = 0인 지 점부터 무한대까지 적분하여 계산할 수 있다.

$$N_{rim} = \rho_s \delta_{fr} \int_0^\infty u_x(y) \phi(y) \, dy = \rho_s \delta_{fr} u_0 \int_0^\infty \frac{\phi(y)}{\eta_r(\phi(y))} \, dy \tag{21}$$

여기서 u_0 는 균열에서의 지하수 유속이며, η_r 은 상대 점성도이다.

직교 좌표계에서 이류와 확산을 고려한 벤토나이트의 질량 보존 방정식은 다음과 같다.

$$\frac{d\phi}{dt} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D \frac{\partial \phi}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(D \frac{\partial \phi}{\partial y} \right) - u_x \frac{\partial \phi}{\partial x} - u_y \frac{\partial \phi}{\partial y}$$
(22)

이때, 테두리 영역에서 y축 방향의 유속은 매우 낮기 때문에 u_y 항목은 무시할 수 있다. 실제로는 x축 방향에 비해 y축 방향의 유 속은 매우 낮지만($u_x \gg u_y$), x축 방향의 부피비 변화($\frac{\partial \phi}{\partial x}$)에 비해 y축 방향의 부피비 변화($\frac{\partial \phi}{\partial y}$)가 훨씬 크기($\frac{\partial \phi}{\partial x} \ll \frac{\partial \phi}{\partial y}$) 때문에 $u_x \frac{\partial \phi}{\partial x}$ 와 $u_y \frac{\partial \phi}{\partial y}$ 는 비슷한 오더의 값을 갖을 수 있으나, 여기에서는 식의 단순화를 위해 $u_y \frac{\partial \phi}{\partial y}$ 의 값을 0으로 가정하였다. 또한 벤 토나이트가 y축 방향으로 확산되는 속도가 x축 방향으로 확산되는 속도에 비해 훨씬 크기 때문에, x축 방향의 확산은 무시할 수 있다.

$$\frac{\partial}{\partial y} \left(D \frac{\partial \phi}{\partial y} \right) = \frac{u_0}{\eta_r} \frac{\partial \phi}{\partial x}$$
(23)

5.1 2차원 문제를 1차원으로 변환

식 (23)은 직교 좌표계에서의 2차원 편미분 방정식이기 때문에, 이를 1차원 문제로 변환하여 식을 간략화 시키고자 하였다. 이를 위해 무차원 확산계수의 개념 및 무차원 변수 *z*를 다음과 같이 도입하였다.

$$D_r = \frac{D}{D_0} \tag{24}$$

$$z = \frac{y}{2\sqrt{\frac{D_0 x}{u_0}}}$$
(25)

여기서 D_0 는 기준 확산 계수이며, 여기에서는 $1 \times 10^9 \text{ m}^2/\text{s}$ 를 이용하였다.

식(24)와식(25)를 이용하면,식(23)은 다음과 같이 z에 대한 1차원 편미분 방정식으로 바뀌게 된다.

$$\eta_r D_r \frac{d^2 \phi}{dz^2} + \eta_r \frac{dD_r}{d\phi} \left(\frac{d\phi}{dz}\right)^2 = -2z \frac{d\phi}{dz}$$
(26)

또한 테두리 영역에서 빠져나가는 벤토나이트 질량 유속에 대한 식인 식 (21)도 다음과 같이 변환된다.

$$N_{rim} = \rho_s \delta_{fr} u_0 \frac{dy}{dz} \int_0^\infty \frac{\phi(z)}{\eta_r \phi(z)} dz = 2\rho_s \delta_{fr} \sqrt{D_0 x u_0} \int_0^\infty \frac{\phi(z)}{\eta_r \phi(z)} dz = 2\rho_s \delta_{fr} \sqrt{D_0 x u_0} \times N_{rim}^{DL}$$
(27)

여기서 N_{rim}^{DL} 은 무차원 항목으로써, 물의 화학식(water chemistry), 벤토나이트 입자 크기, 부피율에 따른 점성도 및 확산도를 모두 고려한 항목이다.

만약 벤토나이트 졸의 점성도와 확산도가 일정(constant)하다면 식 (26)의 두 번째 항목이 0이 되며, 식의 해인 부피율 분포는 다음과 같다(Neretnieks et al., 2010).

$$\phi(z) = \phi_R Erfc(z) \tag{28}$$

TUNNEL & UNDERGROUND SPACE Vol. 33, No. 4, 2023

식 (28)을 통해 무차원 항목인 N^{DL} 을 다음과 같이 구할 수 있다.

$$N_{rim}^{DL} = \frac{\phi_R}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{D_R}{D_0 \eta_r}}$$
(29)

여기서 D_B은 벤토나이트 부피율이 ϕ_B 일 때의 확산도를 의미한다.

식 (29)를 식 (27)에 적용하면, 테두리 영역에서 빠져나가는 벤토나이트 질량 유속은 최종적으로 다음과 같다.

$$N_{rim} = \rho_s \delta_{fr} \phi_R \frac{2}{\sqrt{\pi}} \sqrt{D_R x u_0} \tag{30}$$

6. Two-region 모델을 이용한 벤토나이트 완충재 침식 평가

6.1 입력 자료

2020년 Lee et al.이 제안한 한국형 기준 처분시스템(Improved Korean Reference Disposal System, KRS+)의 PWR형 사용후 핵연료 중 R-SNF(Regular-Spent Nuclear Fuel) 처분공 규격을 이용하였으며(Lee et al., 2020b), 그 중심에 위치한 평면 균열에서 벤토나이트 완충재 침식이 발생한다고 가정하였다. 참고 문헌의 예제에 이용된 입력 자료들을 이용해 총 10만 년 해석을 수행하였으 며, 이는 Table 1에 정리되어 있다. 본 해석에서는 테두리 영역에서의 침식을 강조하기 위해 빠른 속도의 지하수 유속을 가정하였다.

 Table 1. Input parameters for Two-region model(Neretnieks et al., 2017)

Parameters	Value
Ion concentration	0.1 mM
Initial volume fraction	0.59
Fracture aperture	100 nm
Groundwater velocity	1×10 ⁻⁵ m/s
Diffusivity	1×10 ⁻⁹ m ² /s
Relative viscosity	8.2

6.2 해석 결과

6.2.1 테두리 반경(r_R)

Fig. 5는 테두리 영역에서의 침식을 고려하지 않은 모델(w/o N_{rim})과 침식을 고려한 모델(w/ N_{rim})의 시간에 따른 테두리 반경 결과를 나타낸 그래프이다. 테두리 영역에서의 침식을 고려하지 않았을 경우 10만 년 후 최대 약 115 m, 테두리 영역에서의 침식을 고려하였을 경우 최대 약 28 m 까지 균열 침투가 발생한 것으로 나타났다. 다만 Two-region 모델은 벤토나이트 입자의 자유 팽윤만

을 고려한 모델로서 벽면 마찰 등 구속조건으로 인한 저항력을 고려하지 못하기 때문에 실제보다 벤토나이트 균열 침투 거리가 과 대평가 되는 모델이기 때문에, 추후 안전성 평가에 이 모델을 이용할 시 이 부분에 대한 주의가 필요하다.



Fig. 5. Rim radius due to the bentonite intrusion

6.2.2 처분공 내에 존재하는 벤토나이트의 부피율(ϕ_i)

Fig. 6은 시간에 따른 처분공 내에 존재하는 벤토나이트 부피율을 나타낸 그래프이다. 벤토나이트 완충재가 균열을 통해 지속적 으로 누출이 발생하여 처분공 내에서의 부피율이 감소하는 것으로 나타났으며, 10만 년 후 약0.567까지 감소한 것으로 나타났는데 이는 초기 부피율인 0.59에 비해 약 4% 감소한 값이다.



Fig. 6. Volume fraction of bentonite buffer in the deposition hole

6.2.3 벤토나이트의 질량

Fig. 7은 시간에 따른 균열로 침투된 벤토나이트 질량을 나타낸 그래프이다. 검은색 실선은 균열로 침투된 총 벤토나이트 질량, 붉은색 실선은 테두리 영역에서 침식이 발생한 벤토나이트 질량, 파란색 실선은 점토 팽윤 영역 내 남아있는 벤토나이트 질량을 의 미한다. 10만 년 후 약 910 kg의 벤토나이트가 균열로 침투하였는데, 초기 처분공 내에 설치된 벤토나이트 질량이 약 22,000 kg이 므로 약 4.1%의 벤토나이트가 균열로 침투하였다. 10만 년 이라는 오랜 해석 시간에 비해 균열로 침투한 벤토나이트의 비율이 상대 적으로 낮은 것을 확인할 수 있으며, 이러한 결과를 바탕으로 처분공 내에 존재하는 압축 벤토나이트의 부파율인 φ_i가 각각의 시간 간격에서 일정하다는 의사 정상 상태 가정 조건이 타당하다는 것을 확인할 수 있었다. 테두리 영역에서 침식이 발생한 벤토나이트 양은 10만 년 후 약 850 kg이며, 이는 초기 벤토나이트 질량 대비 약 3.85%에 해당한다. 마지막으로 점토 팽윤 영역 내 남아있는 벤 토나이트 양은 10만 년 후 약 60 kg 정도이며, 이는 초기 벤토나이트 질량 대비 약 0.25%에 해당하는 값으로 균열로 침투된 벤토나이트의 대부분이 침식에 의해 빠져나갔음을 의미한다.



Fig. 7. Intrusion mass of bentonite buffer

7. 결론

벤토나이트 완충재의 침식은 완충재의 무결성을 손상시키고 지하수를 통한 방사성 핵종의 이동을 촉진할 수 있는 콜로이드 형성을 초래하여, 결과적으로 방사성 핵종 이동 위험을 높임으로써 처분장 안전에 중대한 영향을 미칠 수 있다. 따라서 본 기술 보고에서는 동 적 벤토나이트 확산 모델을 기반으로 거동이 유사한 영역을 두 개로 분류하여 벤토나이트의 균열 침투 및 콜로이드 형성을 모사할 수 있도록 제안된 모델인 Two-region 모델을 소개하였으며, 이 모델을 이용한 벤토나이트 완충재 침식 정도를 정량적으로 평가하였다. Two-region 모델에서는 팽윤에 의해 균열 내로 침투한 벤토나이트 영역을 점토 팽윤 영역과 테두리 영역으로 구분하였으며, 점 토 팽윤 영역은 확산에 의해서만, 테두리 영역은 확산 뿐만이 아니라 지하수의 흐름에 따라 벤토나이트가 이동하는 영역이다. 점토 팽윤 영역의 경우는 기존의 원통형 좌표계를 그대로 이용하였으나, 테두리 영역은 모델을 간략화 하기 위해 직선의 형태로 표현하 였다. 또한 의사 정상 상태를 가정해 편미분 방정식을 일반 미분 방정식으로 변환하여 모델을 더욱 간소화 하였으나, 동적 벤토나이 트 확산 모델에서 이용된 확산도와 점성도 개념만큼은 Two-region 모델에서도 그대로 적용되었다.

Two-region 모델을 아용해 한국형 기준 처분시스템의 PWR 형 사용후핵연료 중 R-SNF 처분공을 대상으로 총 10만 년 해석을 수행 한 결과, 약 4%의 벤토나이트가 처분공에서 균열로 빠져나갔음을 확인할 수 있었다. 다만 이 결과는 처분공 주변의 균열 분포 및 간극, 지하수 유속, 이온 농도 등 입력 자료에 따라 얼마든지 바뀔 수 있기에, 실제 현장을 잘 모사할 수 있는 입력 자료 도출이 필수적이다.

본 기술 보고에서 소개한 Two-region 모델은 연속체 모델에서의 적용을 위한 추가연구를 통해 한국원자력연구원에서 제안한 심 지층 처분시스템에 대한 프로세스 기반 성능 평가 모델인 APro(Adaptive Process-based total system performance assessment framework for a geological disposal system)에 적용될 예정이며, 추후 이를 이용해 국내 심층처분장의 완충재 장기 침식에 의한 장기적인 성능과 안전성을 정확하고 신뢰성 있게 평가하는 데 이용할 계획이다.

ACKNOWLEDGEMENT

This work was supported by the Institute for Korea Spent Nuclear Fuel (iKSNF) and National Research Foundation of Korea (NRF) grant funded by the Korea government (Ministry of Science and ICT, MSIT) (No. NRF-2021M2E1A1085185).

REFERENCES

- Alonso, E.E., Gens, A., and Josa, A., 1990, A constitutive model for partially saturated soils, Géotechnique, 40(3), 405-430.
- Alonso, E.E., Vaunat, J., and Gens, A., 1999, Modelling the mechanical behaviour of expansive clays, Engineering Geology, 54(1-2), 173-183.
- Börgesson, L., Hedström, M., Birgersson, M., and Karnland, O., 2018, Bentonite swelling into fractures at conditions above the critical coagulation concentration, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Company, TR 17-11, Svensk Kärnbränslehantering AB.
- Hong, C.H., Kim, J.W., Kim, J.S., and Lee, C., 2022, Review of Erosion and Piping in Compacted Bentonite Buffers Considering Buffer-Rock Interactions and Deduction of Influencing Factors, Tunnel and Underground Space, 32(1), 30-58.
- IAEA, 2011, Geological disposal facilities for radioactive waste, IAEA Specific Safety Guide No. SSG-14.
- Lee, C., Cho, W.J., Kim, J.S., and Kim, G.Y., 2020a, Penetration of Compacted Bentonite into the Discontinuity in the Excavation Damaged Zone of Deposition Hole in the Geological Repository, Tunnel and Underground Space, 30(3), 193-213.
- Lee, J., Kim, I., Ju, H.J., Choi, H., and Cho, D.K., 2020b, Proposal of an Improved Concept Design for the Deep Geological Disposal System of Spent Nuclear Fuel in Korea, J. Nucl. Fuel Cycle Waste Technol., 18, 1-19.
- Liu, L. and Neretnieks, I., 2006, Physical and chemical stability of the bentonite buffer, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Company, R 06-103, Svensk Kärnbränslehantering AB.
- Liu, L., 2011, A model for the viscosity of dilute smectite gels, Physics and Chemistry of the Earth, 36, 1792-1798.
- Moreno, L., Liu, L., and Neretnieks, I., 2011, Erosion of sodium bentonite by flow and colloid diffusion, Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C, 36(17-18), 1600-1606.

- Neretnieks, I., Liu, L., and Moreno, L., 2009, Mechanisms and models for bentonite erosion, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Company, TR 09-35, Svensk Kärnbränslehantering AB.
- Neretnieks, I., Liu, L., and Moreno, L., 2010, Mass transfer between waste canister and water seeping in rock fractures. Revisiting the Q-equivalent model, TR-10-42, Svensk Kärnbränslehantering AB.
- Neretnieks, I., Moreno, L., and Liu, L., 2017, Clay erosion: impact of flocculation and gravitation, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Company, TR 16-11, Svensk Kärnbränslehantering AB.
- Sane, P., Laurila, T., Olin, M., and Koskinen, K., 2013, Current status of mechanical erosion studies of bentonite buffer, Posiva Oy, No. POSIVA-12-45.