

# 균열입반 대수층에서의 방사성 핵종원소 거동에측을 위한 이론적/실험적 고찰

이승근, 이길용, 조수영, 김용제, 윤윤열

한국지질자원연구원 지하수지열연구부 (sgl@kigam.re.kr)

## <요약문>

최근 Lee et al.<sup>1,2)</sup>은 화강암질 편마암내 균열면의 방해석이 Eu의 변화에 큰 영향을 주며, 아울러 Eu은 Am의 유사체로서 매우 적합한 원소라고 제안하였다. 이 논문에서는 1)희토류원소와 액티나이드 원소의 이온반경, 배위수 등의 상호비교와 2) 응집력(cohesive energy)의 유사성과 물리적/화학적 특성 그리고 3) 희토류원소 지구화학의 최근 연구결과를 토대로 하여, 고준위 방사성 핵종원소인 Am의 지질매체내 거동을 예측하기 위한 유사체(analog)로서 Eu이 매우 유용한 역할을 해준다는 가설2)을 검증한 결과를 보고하고자 한다. 연구방법으로서, 핵종원소의 지질매체별 흡착특성을 밝혀내기 위해 금번 실험에서는 희토류원소 암상별 분포의 특성을 고려하여 4종류(화강암질 편마암류 2종, meta-basalts, 응회암)의 시료를 선별하였다. 방사화학적 흡탈착 실험의 핵종동위원소로서는 <sup>152</sup>Eu와 <sup>241</sup>Am을 선택하였다. 이는 본 연구팀의 연구결과, Eu과 Am의 밀접한 물리적/화학적 상관관계 그리고 지질환경내에서의 거동특성을 고려한 것이다. 실험결과 양 동위원소의 지질매체와의 흡착 반응 특성을 비교해 볼 때, 시간의 경과에 따라 서로간에 매우 유사한 양상의 증감을 보여주면서 변화함을 알 수가 있었다. 이 결과는 희토류원소가 액티나이드 원소의 지질환경내 거동예측을 위한 유사체로서 매우 훌륭한 도구라는 것을 입증해주는 것이라 할 수 있다.

주요어: 대수층, 방사성 핵종원소, 희토류원소, Eu, Am, 흡탈착 특성, 유사체

## 1. 서언

지난 40여년간, 희토류원소는 유사한 물리적/화학적 성질로 인해 자연계내에서 규칙성이 매우 강하기 때문에 암석, 지하수, 해수와 같은 지구구성물질 및 지구외물질(운석)의 생성시 환경 및 현재의 환경변화를 해석하는 데 아주 중요한 도구로 사용되고 있다<sup>3,5)</sup>. 특히 액티나이드원소의 유사체로서 희토류원소를 이용한 연구는 방사성 폐기물의 처분과 관련하여 많은 연구결과가 보고된바 있다<sup>6,9)</sup>. 이 연구에서는 당 연구팀의 연구결과를 토대로 Eu이 Am의 지질매체내 거동 예측을 위한 최적유사체라는 가설을 세운 후, 이를 실험적으로 증명하고자 하였다. 그 결과, 두 원소의 핵종이 지질매체의 종류에 관계없이 매우 유사한 흡착 특성을 갖고 있음을 알 수가 있었다. 이는 고준위 방사성 원소인 Am의 지질매체별 대수층에서의 거동을 보다 정확하게 예측할 수 있는 근거가 될 수 있다고 본다.

## 2. 연구의 이론적 배경

최근 이승구 등<sup>1)</sup>은 암반내 대수층을 형성해주는 균열면에서의 Eu의 이상을 토대로 희토류원소 분포도 변화가 고지하수 환경변화 추적에 매우 유용함을 밝힌 바 있다 (그림 1).

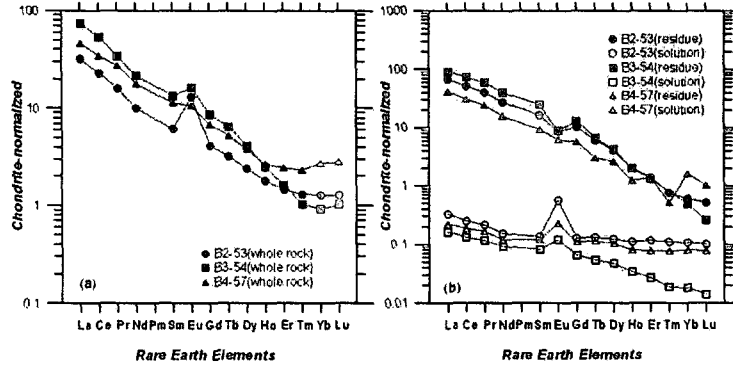


그림 1. a) 균열면이 지하수로부터의 침전물인 방해석으로 피복되어 있는 시추코어에서의 희토류원소 분포도. 일반적인 화강암질 기원의 암석은 Eu의 부(-)의 이상을 보여주지만, 이 시료들은 정(+)의 이상을 보여줌. b) 방해석의 용탈실험에 따른 방해석용해액(하부의 그림)암석잔류물(상부의 그림)의 희토류원소 분포도. 이 그림은 방해석의 침전이 Eu 이상의 주 요인이라는 것을 잘 설명해준다.

그림 2는 희토류원소와 액티나이드의 물리적-화학적 거동에 있어서의 유사성을 보여주는 응집에너지변화도이다<sup>10)</sup>. 그림 2를 보면 Eu과 Am, Yb과 No의 응집에너지가 급격히 낮아져 있음을 알 수가 있다. 이는  $f^m s^2$ 와  $f^{-1} d^1 s^2$  기저상태 전자배치도에서도 매우 유사하게 나타난다<sup>11)</sup>. 상기의 물리적/화학적 특성, 시추코어에서의 Eu의 분포도 변화 그리고 각각의 원소들의 이온반경을 토대로 하여 이승구 등<sup>2)</sup>은 고준위 방사성 핵종인 Am의 각종 지질매체내 거동을 예측하는데 있어서 Eu이 최적 원소임을 제시하였다. 이 연구에서는 이와 같은 가정을 Eu과 Am의 핵종원소를 이용하여 실험적으로 검증하고자 하였다.

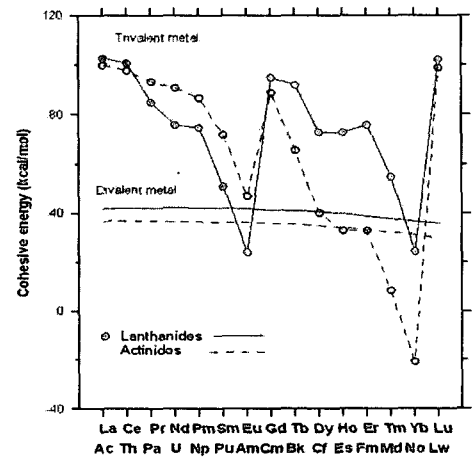


그림 2. 희토류원소와 액티나이드 원소의 원자번호에 따른 응집에너지 변화도<sup>10)</sup>

## 3. 실험방법

연구방법으로서, 핵종원소의 지질매체별 흡착특성을 밝혀내기 위해서 금번 실험에서는 희토류원소 암상별 분포의 특성을 고려하여 4종류(화강암질 편마암류 2종, meta-basalts, 응회암)의 시료를 선별하였다. 방사화학적 흡탈착 실험 핵종동위원소로서는 미국의 Isotope Products Laboratory에서 제조한 <sup>152</sup>Eu와 <sup>241</sup>Am을 선택하였다. <sup>152</sup>Eu와 <sup>241</sup>Am의 추적자 용액내 비방사능은 각각 1μCi/mL, 5μCi/mL이며, 모든 흡착실험은 50mL 폴리프로필렌관에서 이루어졌다. 암석가루시료(φ 150μm~300μm)와 지하수시료는 서로 섞은 후 6주간에 걸쳐 지속적으로 흔들어주어 충분한 평형관계를 유지시키는 전처리를 실시하였다. 흡착실험은 batch method를 적용하였고, 핵종원소를 넣은 후의 지질시료의 비방사능 흡착도를 측정하기 위한 측정장비는 HPGe detector를 이용하였다. 측정 후, 방사성추적자 용액은 본래의 원심관으로 옮긴 후, 다음의 측정시간까지 반복해서 흔들어 주었다.

## 4. 결과 및 토의

그림 3은 110일간에 걸친  $^{152}\text{Eu}$ 와  $^{241}\text{Am}$ 의 흡착실험결과도이다. X축은 지질시료별  $A$ 에 대한 두 핵종 원소의 측정시간이고, Y축은 각각의 지질시료별 초기비방사능 값에 대한 측정당시의 비방사능 값이다. 그림 3에서 볼 수 있는 바와 같이,  $^{152}\text{Eu}$ 과  $^{241}\text{Am}$ 의 시료별 비방사능비가 매우 유사하게 거동하고 있음을 알 수가 있다. 이는  $^{152}\text{Eu}$ 와  $^{241}\text{Am}$ 에 대한 지질시료들의 흡착력이 유사하다는 것을 말해준다. 이와 같은 유사성은 지질매체내 대수층에서의 방사성 핵종원소인 Am의 거동을 보다 정확하게 예측할 수 있는 자연계내 원소로서 Eu이 매우 유용하다는 것을 지시해주는 것이다.

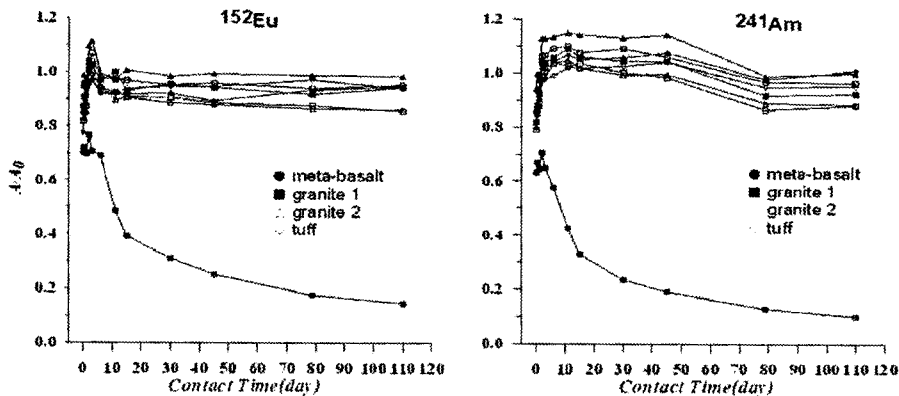


그림 3.  $^{152}\text{Eu}$ 과  $^{241}\text{Am}$ 의 지질매체별 비방사능변화도. Y축의  $A/A_0$ 는 초기 비방사능값과 측정당시의 비방사능값의 비율이다

## 5. 참고문헌

- 1) Lee, S. G., Lee, D. H., Kim, Y., Chae, B. G., Kim, W. Y. and Woo, N. C., 2003, Rare earth elements as an indicator of groundwater environment changes in a fractured rock system: Evidence from fractured-filling calcite. *Appl. Geochem.* 18, 135-143.
- 2) Lee, S. G., Kim, Y., Chae, B. G., Koh, D. C., Kim, K. H., 2004, The geochemical implication of a variable Eu anomaly in a fractured gneiss core: application for understanding Am behavior in the geological environment. *Appl. Geochem.* 19, (in printing).
- 3) Lee, S. G., Masuda, A. and Kim, H. S., An early Proterozoic leuco-granitic gneiss with the REE tetrad phenomenon. *Chem. Geol.*, 114, 59-67, 1994.
- 4) Johannesson, K. H., Stetzenbach, K. J., Hodge, V. F., Rare Earth Elements as geochemical tracers of regional groundwater mixing. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 61, 3605-3618, 1997.
- 5) Dia, A., Gruau, G., Olivie-Lauquet G., Riou, C., Molenat J. and Curmi, P., The distribution of rare earth elements in groundwaters: Assessing the role of source-rock composition, redox changes and colloidal particles. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 64, 4131-4151, 2000.
- 6) Coppin, G. R., 1983, Comparison of the solution chemistry of the actinides and the lanthanides. *J. Less-Common Metals* 93, 232-230.
- 7) Krauskopf, K. B., 1986, Thorium and rare earth metals as analogs for actinide elements. *Chem. Geol.* 55, 323-335.
- 8) Runde, W., Meinrath, G., Kim, J.I., 1992, A Study of Solid-Liquid Phase Equilibria of Trivalent Lanthanide and Actinide Ions in Carbonate Systems. *Radichim. Acta* 58/59, 93-100.

- 9) Ionova, G., Madic, C., Guillaumont, R., 1997, Covalency Effects in the Standard Enthalpies of Formation of Trivalent Lanthanide and Actinide Halides. *Radiochim. Acta*, 78, 83-90.
- 10) Johansson, B., Rosengren, A., 1975, Interpolation scheme for the cohesive energies for the lanthanides and actinides, *Phys. Rev. B* 11, 1367-1373.
- 11) Fred, M., 1967, in *Lanthanide/Actinide Chemistry*, vol. 71, *Advances in Chemistry*.

## 6. 사사

이 연구는 한국지질자원연구원의 2004년도 기본사업의 일환으로 수행되어졌습니다.