

대수층내 고준위/중저준위 방사성핵종의 거동 예측을 위한 Am, 희토류원소, Co 흡착특성 비교: 화강암질 매체를 중심으로

이승구, 이길용, 윤윤열, 조수영, 김용제
한국지질자원연구원, 대전광역시 유성구 가정동 30
sgl@kigam.re.kr

1. 서언

희토류원소는 그 유사한 물리적·화학적 특성으로 인해 지질시료(물, 암석)의 생성 및 분화과정을 설명하기 위한 지구화학적 연구도구로서 지난 40여년간 매우 유용하게 사용되어져 왔다. 또한 희토류원소와 액티나이드 원소는 물리적/화학적 특성이 매우 유사하기 때문에 방사성폐기물 선정 지와의 관련연구에 있어서 유사체(analogue)로서 매우 활발하게 연구되어 왔다 (Krauskopf, 1986; Johannesson et al., 1996). 본 연구팀은 중/저준위 핵종인 Co와 고준위 핵종인 Am의 지질매체내 흡착특성을 비교하고, 액티나이드 계열원소와 유사한 물리적·화학적 특성을 갖는 희토류원소가 액티나이드의 최적 유사체임을 증명하기 위한 batch 실험을 수행하였다. 이 발표에서는 1) 희토류원소와 액티나이드 원소의 이온반경, 배위수 등의 상호비교와 2) 응집력(cohesive energy)의 유사성과 물리적/화학적 특성 그리고 3) 희토류원소 지구화학의 연구결과를 토대로 하여, 이를 방사성 폐기물처분후의 지질매체내에서 발생할 수 있는 고준위 방사성핵종의 거동을 예측함에 있어서 희토류원소의 유용함에 대한 실험결과를 보고하고자 한다. 특히 이 발표에서는 동일한 암석학적 특성을 갖는 화강암이라 할지라도 핵종의 흡탈착특성에 있어서는 서로 간에 차이가 있음을 토의하고자 한다.

2. 실험방법

2.1. 지질매체 및 암석/지하수의 전처리

핵종원소의 지질매체별 흡착특성을 밝혀내기 위해서 금번 실험에서는 암상별 지질학적/지구화학적 특성을 고려하여 우리나라의 기반암중 대표적인 주 구성암석이며 전국적으로 분포하고 있는 화강암을 흡착실험대상 암석으로 사용하였다. 흡착실험에는 pH 6.7전후의 값을 갖으며 Ca-Na-HCO₃형의 수질특성을 보여주는 한국지질자원연구원의 지하수를 사용하였다.

각 암석시료 10g을 500mL PP bottle에 넣고 지하수 200mL씩을 혼합한 후, 20±2°C의 항온 실험실에서 50 strokes/min 조건으로 6주간 교반하여 실험에 사용할 암석/지하수계를 pre-equilibrium상태에 도달시켰다. 교반이 끝난 후 0.45μm pore filter를 이용하여 암석과 지하수를 여과분리하고 암석분말은 열에 의한 변화를 방지하기 위하여 동결건조(Freeze drying)한 후 분리한 지하수와 같이 4°C 냉장실에 보관하였다.

2.2. 추적자용 방사성핵종

실험용 핵종으로서 고준위 핵 폐기물처분에서 중요한 액티늄계 핵종으로는 ²⁴¹Am을 선택하고, 액티늄계열의 흡착특성을 예측할 수 있는 희토류성분으로는 ¹⁵²Eu 이외에 ¹⁶⁰Tb와 ¹⁶⁹Yb을 선택하였다. 그리고 중/저준위 핵종으로는 ⁶⁰Co를 선택하였다. ²⁴¹Am과 ¹⁵²Eu은 미국의 Isotope Products Laboratory에서 구입하였고, ¹⁶⁰Tb, ¹⁶⁹Yb과 ⁶⁰Co은 한국원자력연구소의 Hanaro reactor를 이용하여 생성하였다. 흡착실험에 사용된 핵종의 농도는 각각 ¹⁵²Eu은 7.9×10⁻⁸ mol/L, ²⁴¹Am은 1.8×10⁻⁶ mol/L, ¹⁶⁰Tb는 7.3×10⁻⁴ mol/L, 그리고 ⁶⁰Co는 3.0×10⁻³ mol/L이다.

2.3. 흡착 실험 및 흡착특성 산출

암석분말과 접촉을 통하여 전처리 후 보관중인 각각의 지하수 20mL를 50mL 원심분리용 polypropylene tube 넣고, 각 방사성추적자용액을 넣은 후 역시 전처리하여 보관중인 암석분말 1g 씩을 넣고 빛을 차단시킨 후 50strokes/min조건으로 교반하였다. 계획에 따라서 주기적으로 교반을 멈추고 원심분리기에서 20,000g의 조건에서 20분 동안 분리한 후 상층액 5mL를 취하여 각 방사성핵종의 비방사능을 측정하였다.

각각의 암석에 대한 방사성핵종들의 흡착특성은 아래의 식과 같이 지속적인 교반 중 주기적으로 측정된 상층액과 초기의 비방사능의 비율로 산출하였다.

$$R = A/A_0$$

여기에서, A는 지속적 교반 중, 상층액의 비방사능(cps/mL)이며, A₀는 흡착실험 직전 초기의 비방사능(cps/mL)값이다.

3. 결과 및 토의

그림 1은 국내에 분포하는 화강암류에 대한 방사성 핵종의 흡착력을 보여주는 그림이다.

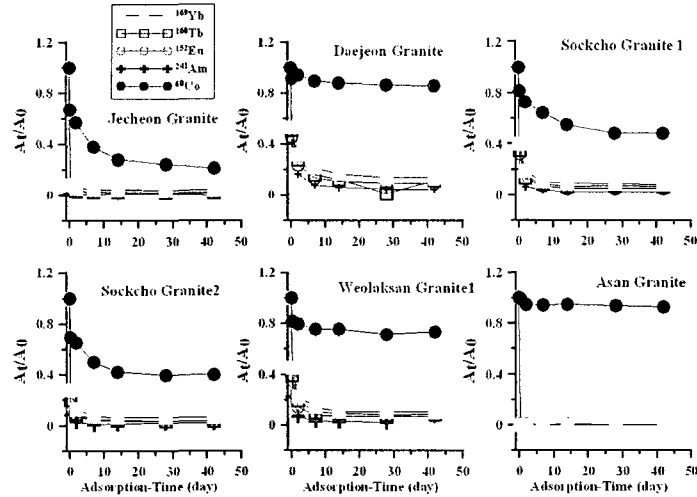


그림 1. 국내에 분포하는 화강암류에 대한 ²⁴¹Am, ¹⁵²Eu, ¹⁶⁰Tb, ¹⁶⁹Yb과 ⁶⁰Co의 흡착특성

그림1에서 각종 핵종의 흡착특성은 다음과 같이 정리될 수 있다. 첫째 ²⁴¹Am, ¹⁵²Eu, ¹⁶⁰Tb과 ¹⁶⁹Yb은 대체적으로 서로 유사한 흡착특성을 보여주는 반면에 ⁶⁰Co은 이들과는 다른 흡착특성을 갖는다. 둘째 ²⁴¹Am, ¹⁵²Eu, ¹⁶⁰Tb과 ¹⁶⁹Yb은 대전화강암을 제외하고는 실험시작 후 5일 이내에 거의 모두 흡착되었음을 알 수 있다. 셋째로 ⁶⁰Co은 앞의 핵종들에 비해 화강암의 종류에 따라 서로 다른 흡착력을 보여준다. 제천화강암과 속초화강암2에서는 7주(42일) 경과 후 60%이상이 흡착된 반면에 아산화강암과 대전화강암의 경우 7주가 경과한 후에도 거의 흡착이 되지 않았음을 보여준다. 따라서 그림 1의 흡착실험결과는 다음과 같은 사항을 지시해준다고 볼 수 있다. 액티나이드계열인 ²⁴¹Am과 희토류원소인 ¹⁵²Eu, ¹⁶⁰Tb, ¹⁶⁹Yb은 암상의 변화, 암석의 광물조성 혹은 화학조성에 관계없이 지질매체에 항상 유사한 흡착력을 지닌다는 것을 지시해주는 것이다. 반면에 ⁶⁰Co과 같은 2가의 중/저준위 핵종은 동일한 화강암이라 할지라도, 암상 특히 광물조성 및 암석의 화학조성에 따라 흡착력이 다름을 지시해주는 것이다. 현재의 실험결과로 최종결론을 내리기는 어려우나, 적어도 화강암지역에서의 중/저준위 핵종의 흡착력이 서로 큰 차이를 가지고 있으며, 이는 ⁶⁰Co과 같은 핵종이 지하수내에 유입된다면 경우에 따라서는 대수층구성암석에 흡착됨이 없이 장기간 지하수와 더불어 유동될 수 있음을 지시해주는 것이다.

4. 참고문헌

- Johannesson, K., Stetzenbach, K. J., Hodge, V. H. and Lyons, W. B., 1996, Rare earth element complexation behaviour in circumneutral pH groundwaters: Assessing the role of carbonate and phosphate ions. *Earth and Planetary Science Letter*, 139, 305-319.
- Krauskopf, K.B., 1986, Thorium and rare earth metals as analogs for actinide elements. *Chemical Geology*, 55, 323-335.