

LIBD 기술을 이용한 우라늄(VI) 가수분해물의 용해도 측정

조해륜, 정의창, 박경균, 김원호, 지광용
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
hrcho@kaeri.re.kr

악티나이드 화합물의 용해도와 확인된 용존 화학종을 바탕으로 하는 악티나이드 원소의 화학적 거동은 방사성폐기물 처분장의 안전성 평가에서 중요한 요인으로 고려되어야 한다. 이는 긴 세월동안의 안전성을 고려해야하는 방사성폐기물 처분장에 지하수가 유입되었을 때, 용해도에 의존하여 악티나이드 원소가 지하수로 녹아들어가고 지하수에 존재하는 다양한 리간드나 콜로이드와의 착물 반응에 의해 여러 가지 안정한 용존 화학종을 형성하여 악티나이드 원소가 지하수의 흐름을 따라 이동할 수 있기 때문이다. 본 연구에서는 악티나이드 원소의 용해도를 보다 정확하고 간편하게 측정하기 위하여 레이저 유도 파열 검출(LIBD, Laser-Induced Breakdown Detection) 기술을 이용하였고, 형광 스펙트럼을 측정하여 용액 내에 존재하는 악티나이드 화학종을 확인하고 자하였다.

LIBD 기술은 용액 중에 존재하는 나노미터 크기의 미량 콜로이드 입자를 검출하는데 사용되는 기술이다. 레이저 유도 파열 현상을 유발시키는 레이저빔의 에너지는 플라즈마가 형성되는 물질의 상태에 따라 다르다. 고체상 < 액체상 < 기체상의 순서로 레이저 유도 플라즈마를 형성시키는데 필요한 레이저빔 에너지가 증가한다. 따라서 콜로이드가 존재하는 용액 중에 적절한 에너지의 레이저빔을 입사시키면, 빛의 초점 영역에서 고체상의 콜로이드는 레이저 펄스에 의해 플라즈마를 형성하고, 용액은 플라즈마를 형성하지 않는다. 이러한 특성을 이용하여 용액 중에 존재하는 콜로이드 입자를 검출할 수 있다. 광 산란 세기를 이용하는 상용화된 광 상관 분광계(PCS, Photon Correlation Spectrometer)는 100 nm 이상 크기의 비교적 큰 콜로이드 입자를 검출하는데 유리하지만 그보다 작은 크기의 콜로이드 입자를 검출하기에는 측정감도가 좋지 않다. 반면, LIBD 기술을 이용하면 50 nm 이하 크기의 콜로이드를 수 십 ppt 정도의 미량 농도까지 검출할 수 있다. 악티나이드 이온을 함유하고 있는 용액의 pH, 농도 등을 변화시키면, 해당 이온의 용해도 한계를 넘어서는 순간 용액 내에 크기가 작은 고체상의 콜로이드가 형성된다. LIBD 기술을 이용하여 나노미터 크기의 콜로이드 입자가 형성되는 순간을 직접 결정함으로써 악티나이드 원소의 용해도를 측정할 수 있다. 이는 용존 이온의 농도를 알기 위해 여과나 원심분리와 같은 별도의 콜로이드 제거 과정을 거치는 기존의 용해도 측정 방법에 비해 간편하면서도 보다 정확한 결과를 나타낼 것으로 기대된다.

그림 1은 본 연구에서 용해도를 측정하기 위해 구성한 LIBD 장치이다. 액체 시료 내에서 플라즈마를 발생시키기 위해 Nd:YAG 레이저(Continuum Surelite II)의 제 2 고조파(파장 532 nm, 반복률 10 Hz)를 시료가 담겨 있는 석영 셀에 입사시켰다. 에너지를 조절하기 위해 두 개의 선형 편광판을 이용하였고, 초점 렌즈 앞에서 레이저빔의 에너지를 측정하였다. 시료 내에서 형성되는 플라즈마 영상은 CCD 카메라를 사용하여 검출하였다.

증류수(18 MΩ, Millipore)에 포함된 폴리스티렌 표준 나노 입자(21 nm 100 ppt, 240 nm 300 ppb)를 대상으로 측정한 LIBD 신호의 입사 에너지에 대한 의존성을 그림 2에 나타내었다. 그림 2에서 보인 것과 같이 파열 확률(플라즈마 발생 횟수 / 입사된 총 레이저 펄스 수)은 레이저빔 에너지에 의존한다. 따라서 콜로이드 입자를 함유하지 않은 증류수에서 플라즈마가 형성되지 않는

표 1 핵종 누출량과 최대선량

핵종 누출량	1/357,140	1/384,620	1/400,000	1/408,160
최대선량 [mSv/yr]	0.1126	0.1052	0.1013	0.09915

가정한 덮개 토양의 두께가 두꺼우므로 그림 5에서 보는 것처럼 외부피폭, 흡입, 음용수 미중속 경로의 섭취에 따른 피폭선량의 영향은 미비하다. 따라서 경주 중·저준위 방사성폐기물 처분장에서는 음용수 중속 경로의 섭취가 가장 큰 영향을 미친다. 음용수 중속경로의 피폭선량은 우물 내 방사성핵종의 방사능의 추이와 일치한다. 그림 2,3,4를 통하여 우물 내 방사능의 발현시점은 각 핵종의 분배계수가, 감소속도는 반감기가 각각 결정하는 것을 알 수 있다.

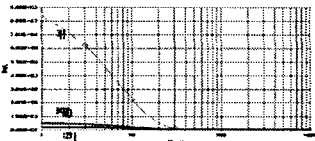


그림 2 우물 내 비방사능 (분배계수가 0인 핵종)

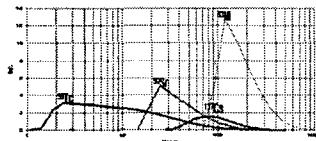


그림 3 우물 내 비방사능 (분배계수가 0이 아닌 핵종)

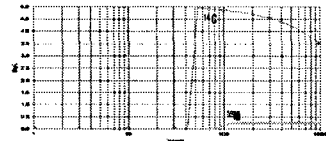


그림 4 우물 내 비방사능 (반감기가 긴 핵종)

시간에 따른 위험도는 피폭선량과 같은 추이를 보이며, 피폭 시간에 따라 증가한다. 피폭시간이 30년일 때, 그림 6과 같이 최대 시점에서 4.87E-04를 나타낸다. 이 때 ³H가 가장 큰 영향을 미치고 있으며, 이는 초기 방사능량이 기여한 것으로 보인다.

결정론적인 평가에서 1/400,000이 누출될 경우, 피폭 선량은 0.1 mSv/yr 이상으로 성능목표치를 만족하지 못한다. 그러나 각 인자들의 불확실성을 가정하여 확률론적인 평가를 수행할 경우 0.1 mSv/yr 미만일 확률은 98%임을 알 수 있다.

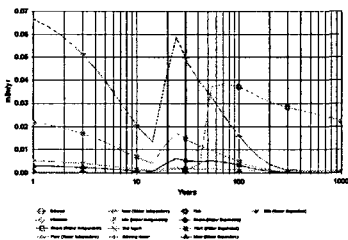


그림 5 피폭경로에 따른 선량변화

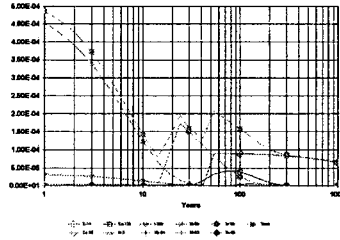


그림 6 위험도

- 결론 및 향후 계획

방사선 피폭을 결정론적으로 평가할 경우, 피폭 선량이 성능목표치를 만족하지 않더라도 확률론적인 평가에서는 성능목표치를 만족할 수 있음을 알 수 있다. 덮개토양이 두꺼운 경주 방사성폐기물 처분장 부지에서는 우물 내 방사성 핵종 방사능이 피폭 선량에 큰 영향을 끼치며, 이 방사능은 분배계수와 반감기에 영향을 받고 있다. 하지만 분배계수는 핵종의 종류, 매질의 종류와 성질 등에 민감하게 반응하므로 우물 내 방사능과 피폭선량에 대한 정확한 평가를 기대할 수 없다.

따라서 추후 각 매질에서 각 핵종별 분배계수에 대한 상세한 연구가 필요하다.