

전기화학셀을 이용한 우라늄의 용해도 측정

김승수, 강광철, 연제원, 백민훈, 최종원
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150
 nsskim@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료를 직접처분할 경우 장기간이 경과한 후 우라늄 매트릭스의 용해는 안전성 평가에 매우 중요한 요인이다. 처분장에서의 우라늄의 용해에 미치는 영향은 지하수의 pH, 산화환원전위(Eh), 탄산농도, 콜로이드를 생성할 수 있는 원소들의 양, 그리고 우라늄의 산화상태 등이 중요하다. 고준위방사성폐기물로 고려되고 있는 심부 지하에서는 지하수의 Eh값이 -0.2V 이하로 예상되는데, 이 조건에서 pH에 따른 우라늄의 용해도는 지하수의 pH가 산성에서 중성으로 갈수록 감소하다가, 알칼리 영역에서는 증가하거나 중성영역과 같은 값을 유지하는 것으로 알려져 있다. 또한, 자연 지하수 조건에서 Eh값은 토륨과 아메리슘을 제외한 악티늄족 원소의 용해도에 가장 큰 영향을 주는 것으로 알려져 있는데, 우라늄이 산화수 4가로 존재할 경우 용해도가 매우 낮아진다. 본 연구에서는 KURT(KAERI Underground Research Tunnel)에 채취한 지하수를 채취하여, 이 지하수에서 Eh 및 pH의 변화에 따른 우라늄의 용해도를 측정하고자 하였다. 또한, 외국의 실험결과 및 지화학코드로 계산한 값과도 상호 비교하였다.

2. 실험 및 계산

지하수의 Eh 값을 낮추기 위한 기존의 방법은 hydrazine, Fe^{2+} 혹은 S^{2-} 와 같은 환원제를 사용한다. 그러나 이들을 지하수에 첨가할 경우 지하수의 조성이 변화하여 우라늄의 용해도에 영향을 줄 수 있다. 특히, KURT지하수와 같이 이온강도가 낮은 경우(표 1), 이들의 영향을 무시할 수 없을 것이라 생각된다. 따라서 본 실험에서는 전기화학셀(그림 1)을 이용하여 용액의 Eh 값을 조절함으로써 지하수의 조성변화를 최소화하고자 하였다.

또한, 본 실험에 사용한 지하수 조성에서 우라늄의 용해도를 지화학코드 PHREEQC V.2로 계산하였다. 계산에 사용된 열역학 데이터는 OECD/NEA, Nagra/PSI, KAERI/TR-2046/02 자료를 이용하였으며, 296.15 K, 0.1 MPa와 이온강도 "0"인 데이터 값들을 수정 없이 그대로 사용하였다. 용액 중 우라늄의 농도를 좌우하는 Solubility Limiting Solid Phase (SLSP)로는 $UO_2(am)$ 로 계산하였다.

3. 결과 및 토론

본 연구에서는 전기화학셀을 이용하여 KURT 지하수의 Eh 값을 -0.2, -0.4 V 부근으로 각각 조절한 결과, 용액중 우라늄의 농도가 $10^7 \sim 10^8$ mol/L로 나타났다. 이 때 용액을 -0.2와 -0.4 V로 조절한 경우 pH값은 각각 9.4와 8.1이 얻어졌다. 이 실험에서 얻어진 우라늄의 농도는 FZKA 6420에 보고된 농도와 비슷하게 나타났으나, 보다 결정성이 강한 (well-crystallized) UO_2 를 사용할 경우 1 승수만큼 더 감소할 수 있다고 제안되어 있다. 그러나 보다 정확한 우라늄의 용해도 측정을 위해서는 한 가지 조건에서 200일 이상의 장기간의 실험이 필요하다.

이 지하수 조건에서 지화학코드를 이용하여 우라늄의 용해도는 구한 결과, -0.2 V, pH 8.1에서는 3×10^8 mol/L, -0.4 V, pH 9.4에서는 3.2×10^9 mol/L이 얻어졌다. 이들 계산값과 실험값을 비교한 결과, 실험값이 -0.2 V, pH 8.1에서는 유사하였으나, -0.4 V, pH 9.4조건에서는 계산된 값보다 3~4배 높은 값에 해당한다.

4. 참고문헌

- 1) B. Grambow, et al., Long-term safety of radioactive waste disposal: source term for performance assessment of spent fuel as a waste form, FZKA 6420, Institut für Nukleare Entsorgungstechnik, 2000.

사 사

본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

Table 1. Composition of a KURT ground water

Unit : mole/L								
Na	K	Ca	Mg	Sr	Al	Ni	Pb	Mn
7.2×10^{-4}	9.8×10^{-6}	4.3×10^{-4}	7.1×10^{-5}	7.1×10^{-6}	3.6×10^{-7}	2.9×10^{-8}	1.4×10^{-8}	2.6×10^{-6}
Fe	Cu	Cl	SO ₄	NO ₃	F	SiO ₂	HCO ₃ + CO ₃	
1.6×10^{-5}	7.9×10^{-8}	6.2×10^{-5}	7.3×10^{-5}	3.7×10^{-6}	1.8×10^{-4}	6.9×10^{-4}	1.3×10^{-3}	

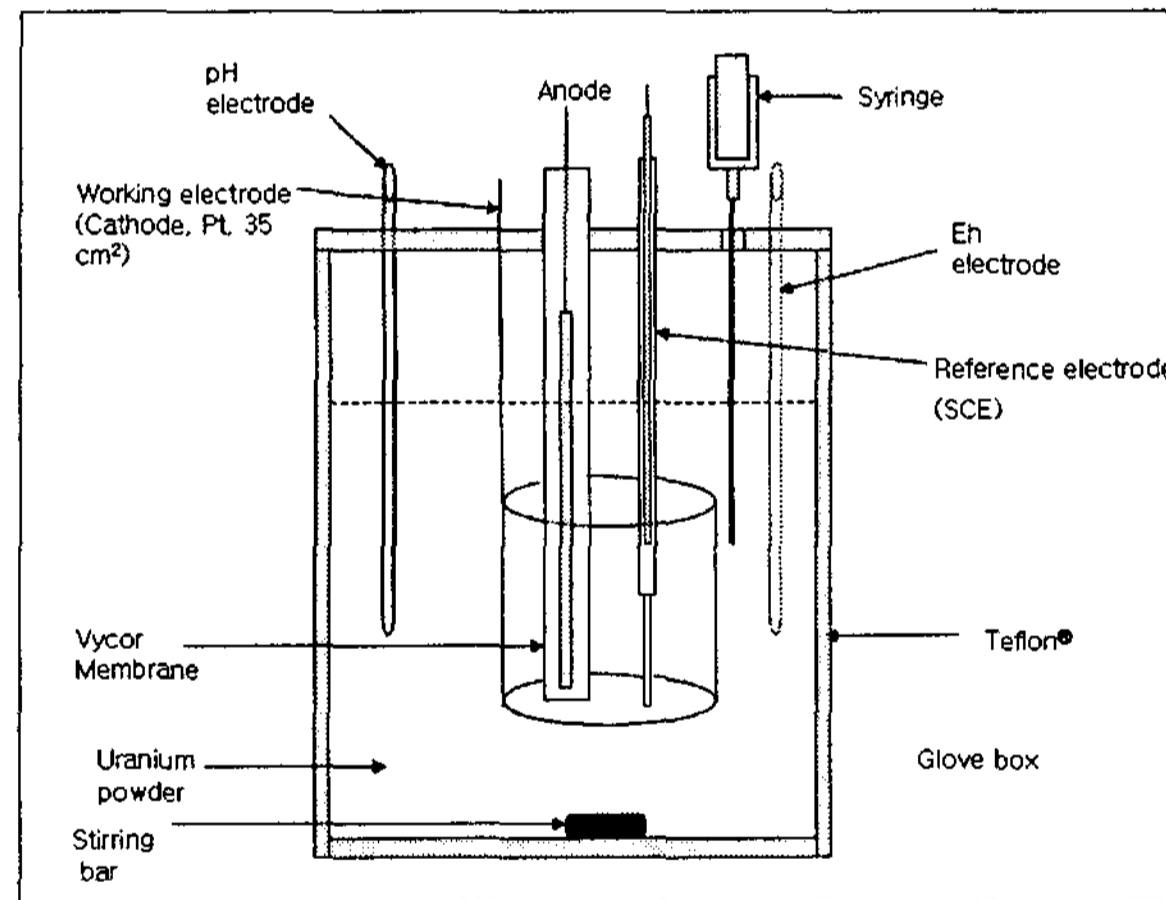


Fig 1. Electro-chemical cell for the solubility measurement of uranium.