

화강암의 넵투늄 수착에 대한 실험적 평가

이재광*, 강광철, 손우정

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

jkleel@kaeri.re.kr

1. 서 론

현재까지 고려되고 있는 방사성폐기물 처분개념은 심부지하 암반층에 방사성폐기물을 처분하는 것이다. 그러나, 오랜 시간이 경과하여 지하수가 방사성폐기물 처분장 구조로 유입될 경우, 핵종들이 암반층의 균열면을 따라 외부로 유출될 수 있다. 그러므로 방사성폐기물 처분의 장기 안전성 평가를 위하여 지하매질에서 핵종의 거동특성에 대한 이해가 중요하다[1]. 특히, 수착(sorption)은 지하매질에서 핵종의 이동 및 지연에 중요한 요소이다[2]. 따라서 본 연구에서는 심부 지질의 처분장 모암으로 평가되고 있는 화강암에 대한 넵투늄의 회분식 수착실험을 수행하여 안전성평가의 기초자료를 제공하고자 수착 분배계수를 측정하였다. 또한 화강암에 대한 넵투늄의 수착에 미치는 산화환원전위와 광물학적 조성의 영향을 실험적으로 평가하고자 하였다.

2. 실험재료 및 방법

지하수는 한국원자력연구원 부지 내 지하처분연구시설(Korea underground research tunnel, KURT)의 시추공(TB-10)에서 지하 200m 지점의 지하수를 채취하여 사용하였다. 현장에서 채취한 지하수는 지하수 채취 전용으로 제작한 50L 알루미늄 용기에 외부공기와의 접촉을 최소화 한 상태에서 즉시 저장하였다. 분배계수(K_d) 측정을 위하여 지하처분연구시설의 시추공 YH 1-1, KP 1-20, 그리고, KP 1-32를 매질로 사용하였다. 각 시추공 시료를 분쇄하여 입자 크기별로 체분리하여 직경크기가 $0.15 \leq \Phi < 0.3\text{mm}$ 인 분쇄화강암을 사용하였다. 분쇄화강암에서 철성분의 용출로 인한 철산화물 형성 등을 방지하기 위하여 건식으로 입자크기별 분리를 하였다.

수착분배계수 측정을 위한 회분식 수착실험을 위하여 질산에 용해된 형태의 넵투늄을 10 mL 폴리에틸렌 병에 농도를 각각 10^{-6}M 로 하여 25°C 의 진탕교반기에서 분쇄화강암과 5일간 반응시켰다. 넵투늄 수착에 대한 산화환원전위의 영향을 확인하기 위하여 환원제인 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 를 적당량 첨가하여 산화환원 전위를 $-400 \sim +400$ mV의 범위로 조절하였다. 수용액의 pH를 일정하게 조절하기 위하여 NaOH 또는 HClO_4 를 사용하여 pH 8.6 ± 0.2 의 범위로 조절하였다. 광물/수용액 비를 50 g/L(0.5 g/10 mL)하여 3종류의 화강암에 대한 핵종의 수착 분배계수를 측정하였다. 반응이 평형에 도달한 후 수용액 중 넵투늄 농도를 LSC를 이용하여 분석하였다. 모든 수착 실험은 3반복으로 대기조건이 일정하게 유지되는 글로브박스(Glove-Box)에서 수행하였다. 글로브박스 내부의 대기조건은 99.999%의 고순도 아르곤(Ar)은 이용하여 CO_2 농도를 0.1ppm 이하로 유지하였다. 아울러 O_2 제거기를 설치하여 글로브박스 내부의 산소농도를 10ppm 이하 유지하였다.

3. 결과 및 토의

넵투늄의 수착실험결과를 Fig. 1에 나타내었다. 3종류의 KURT 화강암에 대한 넵투늄의 수착 분배계수는 산화환원 전위가 -387 mV 일 때, $109.4 \sim 256.2$ mL/g의 범위를 나타내었으며 이때의 평균값은 177.1 mL/g이었다. 반면에 산화환원 전위가 $+365$ mV일 때, 수착 분배계수는 $8.4 \sim 22.2$ mL/g의 범위로 측정되었으며 이때의 평균값은 14.8 mL/g으로 측정되었다. 산화환원전위에 따른 넵투늄 수착의 변화는 산화상태 변화에 따른 넵투늄의 산화수 변화에 의한 것으로 판단된다. 또한, 화강암 시료에 따른 수착분배계수는 YH 1-1 > KP 1-20 > KP 1-32의 순으로 나타났다. 이는 Fig. 2에 나타내었듯이 YH 1-1의 경우 KP 1-32 보다 핵종 수착능이 비교적 좋은 흑운모와 녹니석 등이 다량 함유되어 있어서 넵투늄에 대한 수착 분배계수가 높은 것으로 이해할 수 있다.

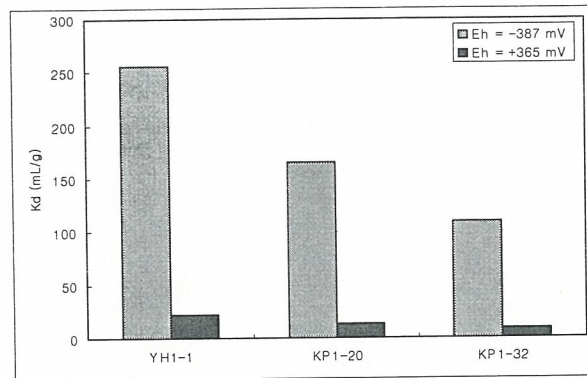


Fig. 1. K_d values for Neptunium sorption onto KURT granite

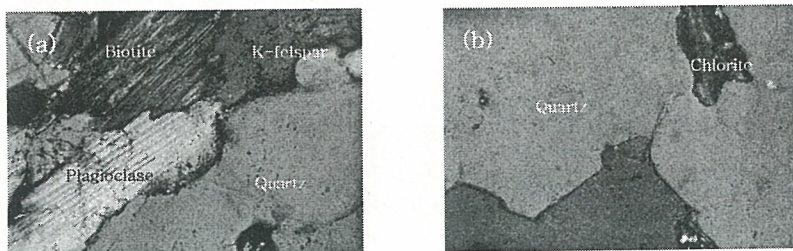


Fig. 2. Polarization microscope images for granite rock plate (a) YH 1-1, (b) KP 1-32

4. 결론

분쇄화강암에 대한 넵투늄의 회분식 수착실험을 수행하여 고준위 방사성폐기물 처분 안전성평가 입력자료를 확보하기 위하여 수착분배계수를 측정하였다. 산화환원전위는 넵투늄의 화학종 형성에 중요한 인자로 작용하므로 분쇄화강암에 대한 넵투늄의 수착은 수용액의 산화환원전위에 대한 영향이 매우 큰 것으로 나타났다. 또한, 수착매질로 사용한 분쇄화강암의 조성 변화에 따라 넵투늄의 수착분배계수는 큰 차이를 나타냈다. 향후, pH, 탄산염 농도, 이온강도의 변화 등 다양한 영향인자에 대한 수착특성을 평가할 예정이며 이러한 일련의 연구들을 통하여 방사성폐기물 처분 안전성 평가자료를 확보할 수 있을 것으로 기대한다.

사사

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 중장기 연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

참고문헌

- [1] S. Aksoyoglu, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **134**, 393-403 (1989)
- [2] N.A. Chapman et al., "The Geological Disposal of Nuclear Waste", John Wiley & Sons, Inc., Chichester (1987)