

화강암에서 핵종의 장기침투확산 및 수착 메카니즘 해석

박정균, 김승수, 백민훈, 정중태

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

ckpark@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에서는 지하시험시설(KURT)을 건설하여 다양한 핵종이동과 관련한 항목들을 실험하고 있다. 이의 일환으로 KURT내 주된 암석으로 존재하는 화강암을 채취하여 핵종들의 확산특성을 파악하기 위한 실험을 수행하였다. 화강암같은 결정질 암반이라도 미세하게 공극들이 발달해 있으므로 다공성매질로 간주할 수 있으며, 이 암반세공을 통해 핵종들이 암반내로 확산해 들어갈 수 있다. 방사성핵종이 매질을 통해 확산할 때, 확산속도는 세공의 크기와 모양뿐만 아니라 암석세공표면의 물리화학적 특성에 민감하게 반응한다. 즉, 핵종이 암석세공표면에 수착하거나, 화학결합하고, 용액의 지화학적 조건에 따라 민감하게 화학종이 바뀌면서 확산특성도 다른 양태를 보이는 핵종들도 있다. 이 실험에서는 장기간 확산실험을 수행한 후, 핵종함유암석에 단계적화학추출을 수행하여 각 핵종별로 암석표면에 수착한 메카니즘을 구별해 보고자 한다. 또한, 안전성평가에 중요한 핵종별 확산깊이를 평가하기위해 장시간동안 핵종이 암석내로 침투해 들어가도록한 후, 깊이별로 핵종이 확산해 들어간 농도를 측정하여 확산깊이와 확산계수를 평가하였다.

2. 실험 내용

밀폐개념으로 설계한 실험장치 개념도를 그림1에 실었다. $\Phi 5.2 \times 20 \text{cm}$ 크기 암석코어를 한쪽 밀면만을 핵종들이 확산해 들어갈 수 있도록 남겨두고 나머지 부분은 아크릴로 밀봉 경화 시켰다. 실험용액을 암석이 들어있는 용기에 넣고, 외부와 완전히 차단한 다음, Glove box 밀폐장치에 넣고, 질소농도가 일정하게 유지되도록 하였다. 9개월이 경과한 후 확산실험장치를 밀폐시스템에서 꺼내 해체하고, 암석내로 확산해 들어간 핵종의 농도를 파악하기 위해, 암석시료를 확산깊이

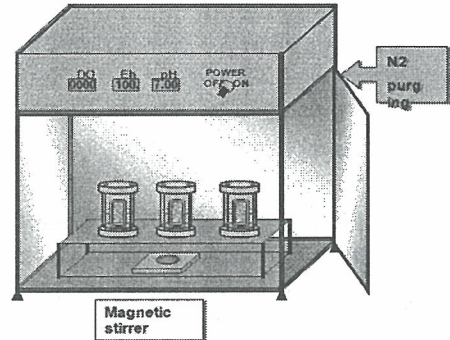


Fig. 1. Schematic diagram of the experimental setups in a glove box

방향으로 절단하여, 절단한 한 쪽 면은 자기방사 분석(autoradiography)을 하고, 나머지 한 쪽면은 다시 깊이 별로 1cm 단위로 절단하였다. 깊이별 각 시료에 함유되어있는 농도를 측정하기위해 화학추출을 시행하는데 그 목적은 암석에 확산/수착되어 있는 핵종 농도 파악하고, 핵종별 결합방식 파악하는데 있다. 실험핵종으로 유기염료, THO, Co, Sr, Cs, U, Eu, Th, Np 를 사용하였다.

3. 확산모델 및 확산계수 결정

핵종이 암석내를 공극을 따라 깊이방향으로 확산해 들어가는 시스템에서 지배방정식을 다음과 같이 세울 수 있다.

$$\frac{\partial C_p}{\partial t} = D_a \frac{\partial^2 C_p}{\partial x^2} \quad \text{----- (1)}$$

수착성핵종에 대해 선형수착관계 $q = K_d C_p$ 를 만족하고, 국부적 화학평형이 성립한다고 가정하고 초기조건과 경계조건은 다음과 같이 가정하였다.

$$\begin{aligned} C_i(t=0) &= C_0 \\ C_p(x,0) &= 0 \quad 0 \leq x < l \\ C_p(0,t) &= C_0 \quad t \geq 0 \end{aligned}$$

이 시스템에 대해 원액농도부에서 핵종농도가 시간에 따라 변하지 않고 일정하다고 가정하고,

확산깊이가 반무한대라고 가정하면, 다음과 같은 해석해를 구할 수 있다. (Crank, 1975)

$$\frac{C}{C_0} = \text{erfc} \left(\frac{x}{2\sqrt{D_a t}} \right) \quad (2)$$

이 식을 사용해 확산깊이별 핵종농도를 측정하여, 선형관계곡선을 구하면, 그 기울기에서 겉보기 확산계수 D_a 를 구할 수 있다.

4. 실험결과 및 해석

그림2에 암석내부로 침투해 들어간 핵종농도분포를 나타내었다. 수착성핵종중 Eu, Cs는 확산깊이가 4cm 수준이었고, Co, Sr, Np, Th, U등 핵종들은 약 9cm 깊이까지 확산침투가 침투해 들어갔다. 이들은 자기방사분석방법(autoradiography)으로 THO와 Np-237의 암석내 핵종농도분포영상을 분석하여 확산깊이를 검증하였다. 그림3에 나타낸 Np-237의 경우, 암석내 깊이 2-3cm 이내에 핵종이 주로 수착되어 있고, 약 5cm 이상에서는 농도는 낮지만 확산침투는 더 깊이 침투해 들어간 모습이 관찰된다. 계산한 겉보기 확산계수는, Eu, Cs는 $10^{-12} \text{m}^2/\text{s}$ 수준이고, Co, Sr, Th는 $10^{-10} \text{m}^2/\text{s}$ 수준으로 가장 크고, Np, U은 그 중간 값을 가졌다. 순차적화학추출법으로 핵종들의 주된 수착메카니즘을 분석해본 결과, Sr, Eu, Cs는 이온교환으로 암석과 주로 결합하였다. 특이하게도, Co와 U는 암석표면과 접촉한 초기에는 이온교환이 주축을 이루다가 암석안으로 깊이 침투해 들어갈수록 철/망간산화물과 결합이 주된 수착기구로 작용하였다. 이는 Co와 U의 경우, 농도가 낮을 경우 철/망간산화물과 결합이 우선적으로 일어나지만, 용액과 암석간 접촉면과 같이 높은 농도로 장시간 접촉시에는 이온교환이 계속 일어나 지배적인 위치를 점하는 것으로 파악된다. 한편, Np의 경우에는, 반대로, 암석과 접촉초기부분에서는 철/망간산화물과 결합이 주로 일어나지만 깊이 들어갈수록 이온교환이 주를 이루는 것으로 바뀐다. 이는 Np가 U에 비해 수착속도가 느리기 때문에, 핵종과 암석이 처음 접하는 확산침투에서는 U가 Np보다 철/망간산화물과 결합을 먼저 하고, Np는 상대적으로 속도가 빠른 이온교환을 먼저하는 것으로 파악된다. 그리고, 장기간 접촉이 이루어진 확산접촉면 근처에서는 Np

가 느리지만 지속적으로 철/망간산화물과 결합을 늘려나가 독점적인 영역을 구축한 것으로 판단된다.

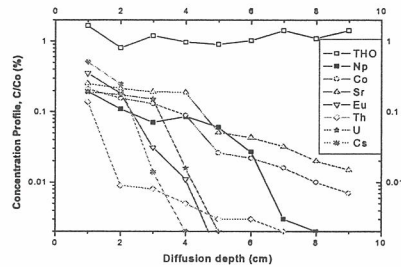


Fig. 2. Diffused concentration profiles of the nuclides in the weathered KURT granite

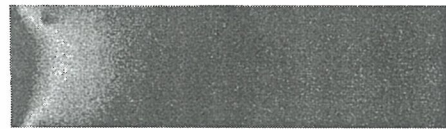


Fig. 3. Autoradiographic image of Np-237 after 9 months

5. 결론

KURT에서 추출한 풍화화강암으로 약 9개월간의 확산침투깊이 실험을 수행한 결과 비수착성핵종인 트리튬은 이미 20cm 길이의 암석전체로 골고루 확산해 들어갔다. 수착성핵종중 Eu, Cs는 확산깊이가 4cm 수준이었고, Co, Sr, Np, Th, U등 핵종들은 약 9cm 깊이까지 확산침투가 침투해 들어갔다. 계산한 겉보기 확산계수는, Eu, Cs는 $10^{-12} \text{m}^2/\text{s}$ 수준이고, Co, Sr, Th는 $10^{-10} \text{m}^2/\text{s}$ 수준으로 가장 크고, Np, U은 그 중간 값을 가졌다.

6. 참고문헌

- [1] J. Berry, K. Bond, M. Cowper, A. Green, and C.Linklater, *Radiochimica Acta* **66/67**, 447, 1994.
- [2] Y.Ohlsson and I.Neretnieks, *Diffusion data in granite*, SKB/TR97-20, 1997.
- [3] J. Crank, *Mathematics of Diffusion*, Oxford Univ. Press, NewYork 1956.
- [4] H. Sato, *Nucl.Tech* **127**,199, 1999.
- [5] C. K. Park, and P. S. Hahn, *Kor. J. Chem. Eng.*, 26 (5) 1279, 2008.