

## 핵종의 수착분배계수에 미치는 지화학적 조건의 영향

이재광, 백민훈, 정종태

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

[jklee1@kaeri.re.kr](mailto:jklee1@kaeri.re.kr)

### 1. 서론

방사성폐기물 처분장(이하 처분장)에서 유출된 핵종들은 지하 환경에서 이류, 분산, 확산 및 이들의 상호작용에 기인하는 이동과정과 수착, 침전, 확산, 여과 등의 다양한 물리화학적 지연과정에 영향을 받으며 거동하게 된다. 다양한 지연과정 중에서 수착은 핵종의 이동을 지연시키는 중요한 기작으로 알려져 있다[1]. 지하 환경에서 핵종의 수착은 핵종의 농도, 지하수 조성, pH, 산화환원전위, 용존 이온농도, 광물의 특성 등의 다양한 지화학적 조건에 민감하게 반응한다. 따라서 처분장의 안전성 평가를 위해서 방사성핵종이 유출되어 지하수 유동로를 따라 이동할 경우, 수착에 영향을 주는 지하수 조성의 변화를 유발하는 인자들에 대한 핵종들의 수착분배계수( $K_d$ )를 평가하는 것이 필요하다.

본 연구에서는 화강암 및 화강섬록암에 대하여 핵종의 용해도 및 화학종 형성에 중요한 영향을 주는 지하수의 pH, 산화환원전위 그리고, 탄산염 농도 변화에 따른 핵종들의  $K_d$ 를 수집 및 비교하고 평가하였다.

### 2. $K_d$ 평가 기준

$K_d$  평가를 위하여 국내외에서 생산된 핵종들의 수착자료의 선정은 다음과 같은 기준 하에 수행하였다.

- 평가 대상 핵종은 테크네튬, 세슘, 스트론튬, 니켈 그리고, 아메리슘으로, 대상 매질은 화강암 또는 화강섬록암으로 한다.
- $K_d$  선정을 위하여 KAERI-SDB와 JAEA-SDB 등의 핵종 수착데이터베이스를 활용하고, 그 외에 국내외의 논문 및 보고서 등의 자료를 활용한다.
- pH, 산화환원전위, 탄산염 등을  $K_d$ 에 영향을 주는 주요 인자로 고려하며, 이를 위하여 유사한 실험조건에서 측정된  $K_d$ 를 비교 및 평가한다.
- $K_d$ 에 영향을 주는 지화학적 인자들의 평가범위는 각각 pH = 4~12, Eh = -400~+400 mV

그리고,  $[CO_3^{2-}] = 0.1 \sim 200$  mM로 한다.

- 평가 결과를  $K_d$ 의 범위와 평균값으로 나타낸다. 단, 자료가 충분하지 않을 경우, 직접적인 비교가 가능한 경우에 한해 단일 값으로 나타낸다.

### 3. 결과 및 논의

#### 3.1 테크네튬(Tc)

Tc의  $K_d$  값은 pH가 증가할수록 감소하는 경향을 보여준다(Table 1). Tc는 주로 표면착물 형성에 의해 수착하기 때문에 pH가 증가할수록 음이온성 화학종이 증가하여  $K_d$ 가 감소하는 것으로 이해할 수 있다. Table 2에 나타낸 바와 같이 환원조건에서 Tc의  $K_d$  값은 산화조건보다 약 10배 정도 높은 것으로 평가되었다. 그러나 탄산염 농도에는 거의 영향을 받지 않는 것으로 확인되었다(Table 3). 이는 산화환원 조건 변화에 따라 Tc 화학종이 Tc(VII)에서 Tc(IV)으로 변화되지만, 탄산염은 Tc의 화학종 분포에 큰 영향을 주지 않기 때문인 것으로 판단된다.

#### 3.2 세슘(Cs)

Cs의 수착은 pH에 비의존적인 것으로 평가되었다(Table 1). 이는 Cs의 수착이 주로 pH에 영향을 받지 않는 이온교환에 기인하기 때문인 것으로 생각된다. 또한 Cs는 Table 2에 나타낸 바와 같이 산화환원 조건 변화에도 크게 영향을 받지 않는다. 그러나 Table 3에 제시된 것처럼 탄산염 농도에 민감하게 반응하는 것으로 평가되었는데, 이는 탄산염 농도가 증가할수록 수용액의 이온강도가 증가하기 때문인 것으로 평가된다.

#### 3.3 스트론튬(Sr)

pH 변화에 따른 Sr의  $K_d$ 는 pH 3~9의 영역에서 큰 차이가 없으나, pH 9 이상의 영역에서  $K_d$ 가 증가하는 경향을 보여준다(Table 1). Table 2에서 보오주듯이 환원조건에서 Sr의  $K_d$ 는  $1.3 \times 10^{-2}$  m<sup>3</sup>/kg으로 보고되었으며[2], 산화환원조건에 영향을 거의 받지 않으므로 산화조건에서도 유사할 것

으로 예측된다. 탄산염의 농도가 증가할 때  $K_d$ 는 약간 감소하는 경향을 보여준다(Table 3). 이는 탄산염이 존재할 때 Sr-탄산염 착물이 형성되는 것과 이온강도가 증가에 의한 것으로 생각 된다.

### 3.4 니켈(Ni)

pH가 증가할 때, Ni의  $K_d$  값은 각 pH 단계별로 거의 10배씩 증가하는 경향을 보인다(Table 1). Ni은 산화환원조건에 민감하지 않은 핵종이므로 산화 및 환원조건에서  $K_d$ 는  $1.0 \times 10^{-1} \text{ m}^3/\text{kg}$ 으로 동일한 것으로 보고되었다[3]. Ni의 화강암 또는 화강섬록암에 대한 탄산염의  $K_d$  자료는 확인된 바가 없기 때문에 직접적인 평가는 어렵지만, 화강암의 주요 구성광물인 석영의 주성분인  $\text{SiO}_2$ 에 대한 니켈의 수착은 탄산염의 영향을 받지 않는 것으로 보고된 바 있다[4].

### 3.5 아메리슘(Am)

Am의  $K_d$  값은 pH 변화에 민감한 것으로 확인되었다(Table 1). pH 5 이하인 경우, Am의  $K_d$  평균값은  $0.2 \pm 0.4 \text{ m}^3/\text{kg}$ 으로 낮게 나타난다. 그러나 pH 5 이상의 영역의  $K_d$  값은  $30 \text{ m}^3/\text{kg}$  이상으로 매우 높은 것을 확인된다. 산화환원조건 변화에 따른 Am의  $K_d$  값은 큰 차이를 보이지 않는다(Table 2). Table 3에 나타난 바와 같이 Am의  $K_d$ 는 탄산염의 농도가 증가할 때 약 50% 감소하는 경향을 보인다. 이는 탄산염이 존재할 때 광물 표면과 반응성이 적은 탄산염 착물 형태의 화학종을 형성하는 것에 기인하는 것으로 사료된다.

Table 1. Average of  $K_d$  values as a function of pH.

pH	$K_d(\text{average}) (\text{m}^3/\text{kg})$				
	Tc	Cs	Sr	Ni	Am
3-5	$5.8 \times 10^{-3}$	$1.5 \times 10^{-1}$	$1.2 \times 10^{-3}$	N/A	0.2
5-7	$4.8 \times 10^{-3}$		$3.9 \times 10^{-3}$	$6.9 \times 10^{-3}$	33.2
7-9	$3.0 \times 10^{-3}$	$2.2 \times 10^{-1}$	$2.3 \times 10^{-3}$	$5.4 \times 10^{-2}$	36.0
9-12	N/A	$2.9 \times 10^{-1}$	$1.0 \times 10^{-2}$	$4.1 \times 10^{-1}$	37.5

Table 2. Average of  $K_d$  values as a function of redox condition.

Redox Condition	$K_d(\text{average}) (\text{m}^3/\text{kg})$			
	Tc	Cs	Sr	Am
Oxidation	$3.0 \times 10^{-3}$	$2.2 \times 10^{-1}$	N/A	36.0
Reduction	$3.1 \times 10^{-2}$	$1.8 \times 10^{-1}$	$1.3 \times 10^{-2}$	17.7

Table 3. Average of  $K_d$  values as a function of carbonate concentration.

Carbonate (ppm)	$K_d(\text{average}) (\text{m}^3/\text{kg})$			
	Tc	Cs	Sr	Am
0-100	$5.0 \times 10^{-4}$	$1.3 \times 10^{-1}$	$1.4 \times 10^{-2}$	12.6
100-200	$7.5 \times 10^{-4}$	$6.3 \times 10^{-2}$	$8.7 \times 10^{-3}$	5.0

## 4. 결론

지화학적 조건 변화에 따른  $K_d$  평가를 통하여 pH에 민감한 핵종은 Ni, 산화환원전위에 민감한 핵종은 Tc 그리고, 탄산염에 민감한 핵종은 Am, Cs, Sr 등인 것으로 확인되었다. 본 연구에서 평가한 5개 핵종들의 영향인자별  $K_d$  자료는 그 측정조건이 처분장 조건과 다를 수 있기 때문에 안전성평가에 직접적으로 활용하기는 어렵지만, 각 영향인자별  $K_d$  분포 경향을 제시함으로써 처분장 안전성평가의 보조자료로 활용할 수 있을 것이다.

## 5. 감사의 글

본 연구는 (주)한국수력원자력에서 주관하는 중저준위방사성폐기물 처분시설 부지특성 조사 사업의 일환으로 수행되었음.

## 6. 참고문헌

- [1] N.A. Chapman et al., The Geological Disposal of Nuclear Waste, John Wiley & Sons, Inc., Chichester (1987).
- [2] J. Crawford et al., Data and Uncertainty Assessment for Radionuclide  $K_d$  Partitioning Coefficients in Granitic Rock for Use in SR-Can Calculations, R-06-75, SKB, Stockholm, 2006.
- [3] I.G. Mckinley and A. Scholtis, Compilation and Comparison of Radionuclide Sorption Database used in Recent Performance Assessments, Proc. of an NEA Workshop on Radionuclide Sorption from the Safety Evaluation Perspective, Interlaken, Switzerland, 1992.
- [4] P.N. Pathak and G. R. Chopin, Nickel(II) sorption on hydrous silica: A kinetic and thermodynamic study, J. Radioanal. Nucl. Chem., 268, pp. 467-473, 2006.