

## 화강암의 우라늄, 넵투늄, 아메리슘 수착에 대한 지화학적 조건의 영향

이재광, 백민훈, 정중태

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

[iklee1@kaeri.re.kr](mailto:iklee1@kaeri.re.kr)

### 1. 서론

지하환경에서 방사성핵종은 장기간 동안 제거되지 않고 이동하므로 생태환경 안전성의 측면에서 방사성핵종의 이동 및 지연 현상은 중요하게 다루어져야 할 부분이다. 방사성폐기물 처분장의 심부 지하 환경에서 방사성핵종이 유출될 경우, 천연방벽에서 핵종들은 모암층 단일의 지하수 흐름에 따라 이동한다. 이 때 천연방벽에서는 광물과 지하수 그리고, 방사성 핵종이 상호반응을 하며 생태계로 이동하는 경로가 된다. 따라서, 방사성폐기물의 처분 안전성 평가 측면에서 천연방벽에서의 핵종의 반응특성을 고려하는 것이 중요하다. 특히, 모암층을 포함하는 천연방벽에서 핵종의 수착은 핵종 이동의 지연에 중요한 역할을 담당하므로 방사성폐기물 처분 안정성 평가 연구에 있어서 매우 중요한 요소라 할 수 있다[1].

한국원자력연구원은 2006년도에 고준위방사성폐기물의 심지층 처분에 대한 현장실증 연구를 위하여 지하연구시설(KAERI Underground Research Tunnel, KURT)을 한국원자력연구원 부지 내에 건설하였으며, 2007년부터 현재까지 다양한 방사성폐기물 처분 관련 현장 실증연구를 수행하고 있다[2].

본 연구에서는 KURT에서 채취한 심부지하수와 화강암을 이용하여 산화환원전위 및 pH 등의 지화학적 인자 변화에 따른 우라늄, 넵투늄, 그리고, 아메리슘에 대한 수착분배계수( $K_d$ )를 측정하고, 수착특성을 실험적으로 비교 및 평가하고자 한다.

### 2. 실험 방법 및 재료

KURT 화강암에 대한 핵종들의 수착분배계수 측정을 위하여 KURT 시추코어 중에서 YH 1-1, KP 1-20, 그리고, KP 1-32 암반코어를 분쇄하여 수착 매질로 사용하였다. 분쇄된 화강암은 입자 크기별로 체분리 하여  $0.15 \leq \Phi < 0.3 \text{ mm}$  크기의 화강암 분말을 사용하였다. 실험에 사용한 지하수는 KURT의 시추공(DB-1)에서 지하 200 m 지점

의 산화환원전위가 약  $-350 \text{ mV}$  되는 지하수를 이중패커 시스템을 이용하여 채취하였다. 수착실험에 사용한 핵종들은 각각  $\text{UO}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  (Merck Co.),  $\text{NpO}_2$  (IPL Co.),  $\text{AmCl}_3$  (IPL Co.) 형태로 제공된 시약을 사용하였다. 희분식 수착실험에서 핵종들의 초기농도는 침전 및 분석한계 등을 고려하여 우라늄, 넵투늄, 그리고, 아메리슘을 각각  $1 \times 10^{-7}$ ,  $1 \times 10^{-6}$ , 그리고,  $1 \times 10^{-11} \text{ mole/L}$ 의 농도로 하였다.

분쇄화강암에 대한 핵종들의 수착실험을 pH와 산화환원전위의 영향에 대하여 희분식으로 수행하였다. 실험 용액은  $18.3 \text{ M}\Omega\text{-cm}$ 의 저항도를 가진 초순수를 이용하여 제조하였고, 모든 실험은 AR 등급의 시약들을 사용하였다. 수용액의 pH 및 산화환원전위는 Thermo Scientific 사의 Orion 5-star 멀티 미터를 사용하여 측정하였으며, 산화환원전위는 상대전위값으로 기록하였다. 분쇄화강암이 담긴 용기에 산화환원전위가 조절된 DB-1 지하수를  $10 \text{ mL}$  씩 첨가한 후,  $0.1$  및  $0.01 \text{ mole/L}$   $\text{HClO}_4$  또는  $\text{NaOH}$ 를 용액을 이용하여 pH를 조절하였다. pH가 안정화되었을 때 고준위 핵종의 stock solution을 일정량 첨가하여 원하는 초기농도의 범위로 조절하였다. 모든 수착실험을 아르곤가스로 채워진 글로브박스 내에서 수행하였다.  $100 \text{ rpm}$  속도로 교반시키며 수착반응 시킨 후에 용액의 최종 pH를 측정하고 상등액을 약  $5 \text{ mL}$  취하여 고액 분리 후, 여과액의 핵종농도를 측정하였다. 핵종농도 분석에는 ICP-MS 또는 액체선풍계수기를 각각 이용하였다. 모든 수착실험은 3반복으로 수행하였다.

### 3. 결과 및 논의

#### 3.1. 산화환원전위 영향

KURT 화강암에 대한 우라늄의 수착은 환원 및 산화조건에서 각각  $1.7 \times 10^{-2} \sim 7.0 \times 10^{-2} \text{ m}^3/\text{kg}$  및  $1.9 \times 10^{-2} \sim 3.4 \times 10^{-2} \text{ m}^3/\text{kg}$ 의 범위로 확인되었다. 넵투늄은  $1.1 \times 10^{-1} \sim 2.6 \times 10^{-1} \text{ m}^3/\text{kg}$  ( $E_h = \sim -0.3 \text{ V}$ ) 및  $8.4 \times 10^{-3} \sim 2.2 \times 10^{-2} \text{ m}^3/\text{kg}$  ( $E_h = \sim +0.3 \text{ V}$ )의

범위로 측정되었다. 한편, 아메리슘의 수착분배계수는 환원조건에서  $4.1 \sim 15.2 \text{ m}^3/\text{kg}$ , 산화조건에서  $3.6 \sim 8.9 \text{ m}^3/\text{kg}$ 으로 확인되었다. 초기 산화환원전위를  $\sim -0.3 \text{ V}$ 로 조절했을 때, 우라늄과 아메리슘의 수착분배계수는  $\sim +0.3 \text{ V}$ 로 조절했을 때보다 1.5배 이상 높게 평가되었다(Table 1).

### 3.2. pH 영향

넵투늄의 수착은 용액의 pH를 증가시킬 경우, pH 3.45에서  $2.3 \times 10^{-2} \sim 3.6 \times 10^{-2} \text{ m}^3/\text{kg}$ 의 범위를 보이다가 pH가 증가할수록 점차 증가하여 pH 8.56에서  $1.1 \times 10^{-1} \sim 2.6 \times 10^{-1} \text{ m}^3/\text{kg}$ 으로 확인되었다. 화강암에 대한 아메리슘 수착은 pH 3.08에서  $2.8 \times 10^{-2} \sim 4.4 \times 10^{-2} \text{ m}^3/\text{kg}$ 의 범위를 보이다가 pH 8.13으로 증가하였을 때,  $4.1 \sim 15.2 \text{ m}^3/\text{kg}$ 의 범위로 수착이 증가하여 넵투늄보다 pH에 대한 영향이 큰 것으로 확인되었다.

Table 1. Effect of Redox Potential on the Sorption of U, Np, and Am by KURT Granite.

Nuclide	Eh (V)	pH	$K_d (\text{m}^3/\text{kg})$
U	$\sim -0.3$	$9.32 \pm 0.03$	$(4.4 \pm 2.6) \times 10^{-2}$
	$\sim +0.3$	$9.13 \pm 0.01$	$(2.7 \pm 0.8) \times 10^{-2}$
Np	$\sim -0.3$	$8.56 \pm 0.04$	$(1.8 \pm 0.7) \times 10^{-1}$
	$\sim +0.3$	$8.70 \pm 0.08$	$(1.5 \pm 0.7) \times 10^{-2}$
Am	$\sim -0.3$	$8.13 \pm 0.11$	$11.2 \pm 6.2$
	$\sim +0.3$	$8.59 \pm 0.15$	$6.3 \pm 2.6$

Table 2. Effect of pH on the Sorption of Np, and Am by KURT Granite.

Nuclide	Eh (V)	pH	$K_d (\text{m}^3/\text{kg})$
Np	$\sim -0.3$	$3.46 \pm 0.54$	$(2.8 \pm 1.3) \times 10^{-2}$
		$5.67 \pm 0.40$	$(4.2 \pm 1.7) \times 10^{-2}$
		$8.56 \pm 0.04$	$(1.8 \pm 0.7) \times 10^{-1}$
Am	$\sim -0.3$	$3.08 \pm 0.09$	$(3.3 \pm 0.4) \times 10^{-2}$
		$6.01 \pm 0.45$	$4.5 \pm 3.3$
		$8.13 \pm 0.11$	$11.2 \pm 6.2$

## 4. 결론

본 연구에서는 방사성폐기물 처분 안전성 평가에 대한 입력자료 제공을 목적으로 KURT에서

채취한 화강암과 지하수를 이용하여 우라늄, 넵투늄, 그리고, 아메리슘 등의 고준위핵종 수착에 대한 산화환원전위 및 pH 등의 지화학적 인자의 영향을 실험적으로 평가하였다. 지하매질의 방사성핵종의 수착은 지화학적 조건 변화에 따라 매우 다양하게 변화한다. 산화환원전위와 pH 등의 대표적인 인자들은 핵종의 화학종 분포에 영향을 주거나, 또는 광물의 표면 전하에 영향을 주어 수착분배계수가 이들 조건 변화에 따라 다양하게 나타난다. 따라서 방사성폐기물 처분 안전성 평가를 위하여 향후 보다 다양한 조건에 대한 수착특성 평가가 이루어져야 할 것이다.

## 5. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

## 6. 참고문헌

- [1] N. A. Chapman, I. G. McKinley, M. D. Hill, The Geological Disposal of Nuclear Waste, John Wiley & Sons, Inc., Chichester (1987).
- [2] 조원진, 박정화, 이재완, 박정균, 김승수, 백민훈, 권상기, 이승엽, "고준위폐기물 처분기술개발: 처분시스템 거동실증 연구", KAERI/RR-2781/2006, 한국원자력연구원, 대전 (2006).