고준위폐기물 처분환경조건에서 고압축벤토나이트로부터 확산 및 용출되는 우라늄의 특성

이승엽*, 이재광, 황진하, 백민훈
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*seungylee@kaeri.re.kr

1. 서론

고준위폐기물 심지층 처분시 일반적으로 폐기물 용기 주변을 벤토나이트 분말을 고압축한 완충재로 감싼다[1]. 벤토나이트의 역할은 물리적 충격으로부터 금속용기를 보호하고 지하수의 접촉과 반응을 최대한 억제하는 기능 등을 담당한다. 그리고 폐기물로부터 서서히 용출되기 시작하는 방사성 핵종들의 이동을 최대한 지연 및 억제시키는 기능도 있다. 그래서 벤토나이트의 이러한 기능들을 극대화 시킬 수 있도록 벤토나이트 분말을 최대한 압축(보통, 1.6 g/cm^3 이상)하여 블록을 만들고 이들을 용기 주변에 배치한다. 고압축된 벤토나이트는 물과 접촉했을 때 급격히 팽창하여 공극(porosity)이 심히 감소하고 따라서 폐기물로부터 용해된 핵종들은 공극 내에서 대부분 확산(diffusion) 형태로만 천천히 이동하게 된다.

본 실험에서 지하처분환경과 매우 유사한 소형 처분모형을 자체 제작하였으며, 그 형태를 화강암/압축벤토나이트/핵종 3부분으로 구성하였다. 핵종은 우라늄을 사용하였고, 이는 지하환원환경조건에서 압축벤토나이트 내부 폐기물로부터 확산되는 대표적인 핵종인 우라늄의 거동을 좀 더 명확히 이해하고자 하는 이유 때문이었다. 아쉽게도 국내에서 지금까지 지하처분환경조건 하에서 압축벤토나이트로부터 확산 및 용출되는 우라늄의 거동을 장기간 모사 및 연구한 사례가 전무하였다. 따라서 본 연구의 의미는 지하처분환경과 매우 유사한 조건(예: 장기간 환원환경 + 압축벤토나이트)에서 테스트함으로써, 실제 처분환경에서 일어날 수 있는 우라늄의 거동을 보다 명확히 이해할 수 있으며, 향후 우라늄의 거동을 예측하는 유용한 자료로 활용될 수 있을 것이다.

2. 본론

2.1 실험방법

소규모 압축 벤토나이트 모형을 제작하기 위해 경주지역에서 산출되는 점토(Ca-type 벤토나이트)를 실험용 완충재로 사용하였고, 벤토나이트를 둘러싸는 암석은 KURT 화강암으로 구성하였다(Fig. 1). 벤토나이트는 1.6 g/cm^3 이상으로 압축하여 화강암 내부에 장착하였는데, 직경 5.2 cm, 높이 5.0 cm 원주 형태의 화강암 내부를 직경 3.0 cm, 높이 2.0 cm 형태로 공간을 만들고 미리 압축한 점토블록을 넣었다. 우라늄($UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$) 분말은 벤토나이트를 압축하는 과정에서 점토블록 중앙에 위치시켰다. 그리고 장기간의 실험에서 압축벤토나이트와 물과의 접촉을 위해, 화강암 중간부위(약 2.5 cm 부근)를 0.1~0.2 mm의 틈새로 계속 유지시켰다. 이는 야외 현장에서 암반단열(rock fracture)의 역할과 흡사하도록 설계한 것이다.

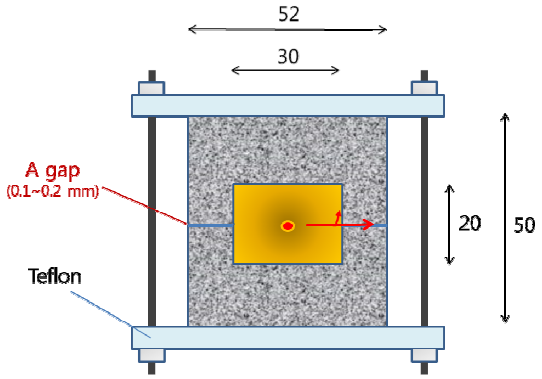

Fig. 1. A small apparatus that consists of KURT granite and compacted bentonite with uranium powder in its center was used in the experiment.

준비된 실험 장치를 플라스틱 용기에 담아 물을 채우고 N_2 가스가 충전된 글로브박스(glove box) 내부에 위치시켰다. 물은 환원수(N_2 gas로 퍼징)를 사용하였는데, $NaHCO_3$ 1 mM 조건으로 만들었고 벤토나이트 토착미생물의 영향을 살펴보기 위해 Na-lactate 10 mM과 Na_2SO_4 2 mM을 환원수에 추가하였다.

5개월여 동안의 실험과정에서 환원수의 변화를 관찰하기 위해 주기적으로 수용액을 채취하여 pH 및 Eh 등을 측정하였고, 우라늄은 ICP-MS로 분석하였다. 실험 종료 후 압축벤토나이트를 절단하여 내부 우라늄의 확산 형태를 EPMA(전자현미분석기)를 이용하여 면밀히 분석하였다.

2.2 실험결과

장기간의 실험과정에서 수용액의 점진적인 변화가 관찰되었는데, 황산염(SO_4^{2-})의 존재 유무에 따라 pH 및 Eh의 변화가 있었다. 황산염이 존재하지 않은 환원수에서는 초기 pH 6.4의 변화가 거의 없었던 반면, 황산염이 존재할 때에는 최종적으로 pH가 5.7이라는 낮은 값을 보여주었다. 또한 Eh의 경우 전반적으로 140 mV의 약환원 상태를 보여주었으나, 황산염이 존재한 경우에서는 최종적으로 -130 mV의 강환원의 수용액으로 변하였다. 이러한 결과는 황산염의 존재 유무가 환원수의 변화에 큰 영향을 미친 것으로 보이며, 황산염 자체가 영향을 주었다기보다는 황산염을 황화물(sulfide)로 환원시키는 '황산염환원미생물(SRB)'의 역할이 매우 컸던 것으로 보인다[2].

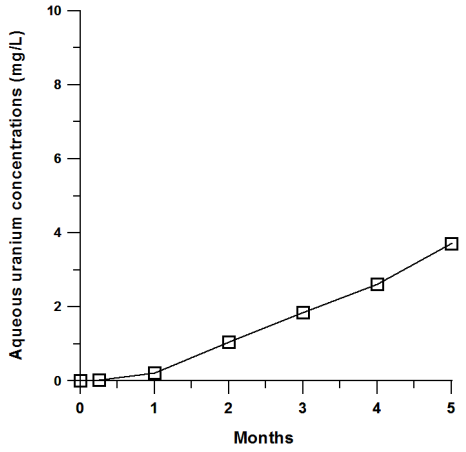

Fig. 2. Release of uranium from the compacted bentonite to the aqueous solution with time.

우라늄의 지화학적 거동을 살펴보면, 1개월이 지나는 시점에서 압축벤토나이트로부터 서서히 용출되기 시작하였고 5개월 이후에는 약 4 ppm 정도의 우라늄이 점토 밖으로 용출되었다(Fig. 2). 하지만, 특이하게도 황산염이 물속에 존재한 조건에서는 우라늄의 용출이 거의 이뤄지지 않았다. 이러한 흥미로운 결과는 우라늄의 지화학적 거동에 있어서 벤토나이트 미생물의 생지화학적 역할이 매우 중요하다는 사실을 다시 한 번 알 수 있으며, 이에 대한 구체적인 추가 연구 및 실증실험이 필요할 것이다.

3. 결론

국내에서 처음 시도된 지하환경조건 고압축벤토나이트로부터 시간에 따른 우라늄 용출특성 변화를 관찰한 결과, 예상외로 우라늄의 용출이 초기(1개월 내)에 빠르게 이뤄짐을 알 수 있었다. 물론 본 실험조건에서의 결과이기는 하지만, 벤토나이트 완충재가 우라늄의 수착 및 이동지연에 의미있는 역할을 감당하리라는 기존 예측을 빗나가게 한 결과로, 향후 추가 실험과 지화학적 모델링이 필요할 것으로 사료된다. 하지만 이번 실험결과에서 새롭게 발견한 중요한 점은, 벤토나이트 토착 황산염환원미생물이 지하심부환경과 유사한 환원환경+고압축벤토나이트 조건 하에서 우라늄 화학종의 안정성에 크게 기여할 뿐만아니라 우라늄의 확산 이동을 매우 효과적으로 억제시킨다는 사실이었으며, 이에 대한 추가 실험 및 연구가 필요할 것으로 사료된다.

4. 참고문헌

[1] H.J. Choi, J.Y. Lee and J. Choi, "Development of Geological Disposal Systems for Spent Fuels and High-Level Radioactive Wastes in Korea", Nuclear Engineering and Technology, 45, 29-40 (2013).

[2] 이지영, 이승엽, 백민훈, 정종태, "고준위폐기물 완충재로 사용되는 벤토나이트의 미생물의 존재 및 특성", 방사성폐기물학회지, 11(2), 95-102 (2013).