

우라늄 수탁에 미치는 생지화학적 인자의 영향

이재광*, 이승엽, 백민훈

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*jklee1@kaeri.re.kr

1. 서론

지하환경에서 핵종의 이동과 지연은 방사성폐기물 처분의 안전성 측면에서 반드시 평가되어야 할 부분이다. 심부 처분환경에서 핵종의 거동은 pH, 산화환원전위, 미생물, 그리고, 이온화 방사선 등의 다양한 생지화학적 인자에 영향을 받는다[1]. 우라늄은 산화환원 조건에 민감한 핵종으로 다양한 연구가 국내외에서 수행되어져 왔다. 본 연구에서는 처분환경의 지하수에 존재할 수 있는 용존이온과 방사성폐기물에서 나오는 이온화 방사선, 그리고, 미생물 등의 생지화학적 인자들의 우라늄 거동에 대한 연구를 수행하였다.

2. 본론

2.1 실험재료 및 방사선 조사

우라늄은 $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ (Merck)을 수탁매질로는 경주벤토나이트와 침철석(α -FeOOH, Alfa Aesar)을 각각 사용하였다. 구리 치환 벤토나이트의 우라늄 수탁실험을 위하여 0.5 CEC(Cation Exchange Capacity) 에 해당하는 $CuCl_2$ 용액을 이용하여 경주벤토나이트의 층간이온을 구리로 치환하였다. 철 환원 박테리아는 *Schewanella putrefaciens* CN32(CN32)을 사용하였다. 방사선 조사실험은 한국원자력연구원 산하 방사선과학연구소의 저준위 조사시설에서 Co-60을 감마선 선원으로 하여 2 Gy/hr의 선량율로 총 113 시간 동안 230 Gy를 조사하였다.

2.2 수탁실험

구리(0.5 CEC) 치환 벤토나이트와 미처리 벤토나이트(5 g/L)에 대한 우라늄 수탁에 대한 회분식 실험을 수행하였다. 시간변화에 따른 우라늄 수탁과 $NaClO_4$ 를 이용하여 이온강도가 각각 0.01 및 0.1 M 일 때, pH 4 ~ 9의 대기조건에서 실험을 수행하였다. 초기 우라늄 농도는 10^{-6} M로 하여 3일간 진탕교반 후, 고액분리($\phi=0.22 \mu m$) 하여 용액 중 우라늄 농도를 측정하였다. 침철석(1 g/L)의 우라늄 수탁실험을 위하여 멸균한 무산소 조건의

$NaHCO_3(10^{-3} M)$ 을 바탕용액으로 사용하였다. 우라늄($10^{-6} M$)과 전자공여체로 젖산나트륨($10^{-3} M$)을 주입한 후, CN32를 일정량씩 serum 병에 주입하였다. 방사선 조사 및 CN32에 의한 우라늄 수탁 특성 변화를 측정하기 위하여 초기 113 시간 동안 감마선을 2 Gy/hr의 선량율로 230 Gy 조사하였으며, 일정 주기로 시료를 채취하여 총 36 일 동안 미생물 농도와 우라늄의 수탁 변화를 분석하였다.

2.3 벤토나이트의 구리치환에 의한 우라늄 수탁 영향

벤토나이트 층간이온의 구리치환과 상관없이 우라늄 수탁은 수 시간 이내에 빠르게 진행되었다. 구리치환 벤토나이트는 미처리 벤토나이트 보다 우라늄 수탁이 높게 나타났으며, 미처리 벤토나이트는 반응 시간이 증가할수록 우라늄 수탁이 감소하는 경향을 나타내었다(Fig. 1). 이는 구리치환 벤토나이트는 층간이온(칼슘)이 구리로 치환되어 칼슘의 용출이 적은 반면에, 미처리 벤토나이트는 칼슘이 용출되어 우라늄의 수탁을 저해하는 것으로 판단된다. 또한, 미처리 벤토나이트의 우라늄 수탁은 구리치환 벤토나이트에 비하여 pH와 이온강도에 의존적인 것으로 평가되었다(Fig. 2). 미처리 벤토나이트는 중성영역(pH 6)에서 우라늄을 가장 많이 수탁하였으며 산성(pH 4) 또는 염기성(pH 8) 영역에서 수탁이 약간 감소하였다. pH에 의존적인 벤토나이트의 우라늄 수탁은 바탕전해질로 사용된 나트륨과 경쟁관계에 있음을 의미한다. 미처리 벤토나이트에서는 $2.5 \times 10^{-6} M$ 의 칼슘이 용출되었는데 이는 칼슘-우라늄-탄산 착물 형성[2]을 유발하여 우라늄의 수탁을 감소시킨 것으로 판단된다[2].

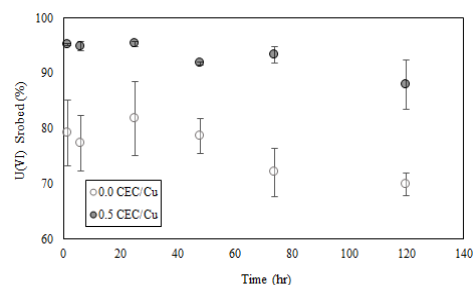


Fig. 1. Kinetic sorption of uranium sorption by bentonite.

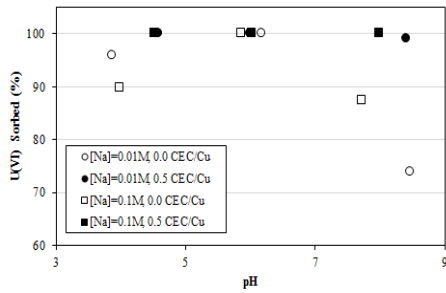


Fig. 2. Uranium sorption bentonite: effect of ionic strength.

2.4 침철석의 우라늄 수탁에 대한 미생물과 방사선 조사의 영향

방사선 조사(총 조사량: 230 Gy)는 CN32의 생존 또는 사멸에 영향을 주지 않았으며, 침철석의 우라늄 수탁은 조사하지 않은 시료에 비하여 약 10~20% 증가하는 경향을 보였다(Fig. 3). 방사선을 조사한 시료에서는 CN32를 주입한 침철석 시료가 미생물이 없는 시료에 비하여 우라늄 수탁을 약간 증가시키는 경향을 나타내었다. 이는 이온화 방사선은 광물의 표면 전하 특성이 변화하여 우라늄 수탁에 영향을 준 것으로 이해된다. 또한, 혐기성 미생물의 대사작용을 통하여 우라늄(VI)이 우라늄(IV)으로 환원되어 우라니나이트로 침전하여 수용액 중의 우라늄 농도가 감소한 것으로 판단된다.

수용액의 산화환원전위 변화와 침철석으로부터 용출된 철의 환원 관찰을 통하여 우라늄이 환원될 수 있음을 간접적으로 확인하였다. 방사선 조사 시 CN32가 존재할 때 산화환원전위가 587 ± 45 mV에서 -28 ± 10 mV로 큰 폭으로 감소하였으며, 이 때 침철석으로부터 철의 용출과 용출된 철의 환원이 관찰되었다. 또한 EDS 분석과 연속화학추출 실험 결과를 통하여 용출된 철의 일부는 이차광물을 형성하여 우라늄과 강하게 결합하는 것을 간접적으로 확인하였다(Fig. 4).

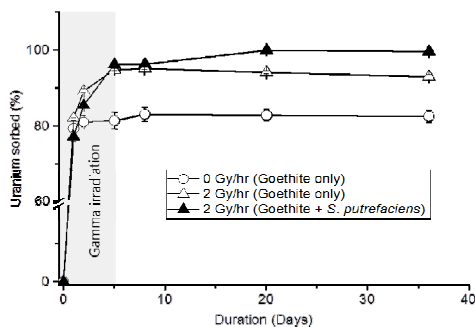


Fig. 3. Sorption of uranium by goethite.

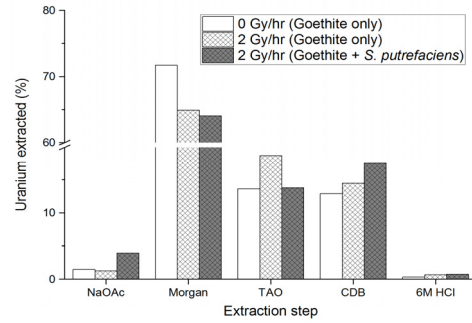


Fig. 4. Relative amount of uranium extracted from goethite.

3. 결론

처분환경에서 우라늄의 거동은 공학적 방벽과 자연방벽에서 벤토나이트의 층간이온, 지하수 용존이온, 산화환원전위, 미생물, 그리고, 이온화 방사선 등의 다양한 생지화학적 인자에 많은 영향을 받는다. 따라서 방사성폐기물 처분 안전성을 평가하기 위해서 다양한 영향인자들의 복합적인 상호작용에 대한 심도 있는 연구가 지속적으로 수행되어야 할 것이다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력연구개발사업(No. 2012M2A8A5025589)의 일환으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행되었다.

5. 참고문헌

- [1] N.A. Chapman, I.G. McKinley, and M.D. Hill, The geological disposal of nuclear waste, John Wiley & Sons, Chichester, (1987).
- [2] P.M. Fox, J.A. Davis, J.M. Zachara, The effect of calcium on aqueous uranium(VI) speciation and adsorption to ferrihydrite and quartz, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 70, 1379 (2006).