

동적광산란 방법을 이용한 칼슘벤토나이트 콜로이드의 안정성에 대한 연구

백민훈^{1*} · 박종훈² · 조원진¹

¹한국원자력연구소, ²한스주식회사

A Study on the Stability of the Ca-Bentonite Colloids Using a Dynamic Light Scattering Method

Min-Hoon Baik^{1*} · Jong-Hoon Park² · Won-Jin Cho¹

¹Korea Atomic Energy Research Institute

²R&D Department, HANS

ABSTRACT

In this study, the stability of Ca-bentonite colloids from Gyeongju area was studied by investigating the changes in the size of the bentonite colloids using a dynamic light scattering method depending on the geochemical conditions such as pH and ionic strength. Kinetic and equilibrium coagulation behavior of the bentonite colloids was investigated by changing the pH and ionic strength of the bentonite suspensions. The results showed that the stability of the bentonite colloids strongly depended upon contact time, pH, and ionic strength. It was also shown that the bentonite colloids were unstable at higher ionic strength greater than 0.01 M NaClO₄ at whole pH values considered. In addition, the stability ratio *W* and the critical coagulation concentration (CCC) were also calculated using the data from the kinetic coagulation experiments. The stability ratio *W* was decreased as the ionic strength increased and varied with pH depending on the ionic strength. The CCC of the Ca-bentonite colloids was about 0.05 M NaClO₄ around pH 7.

Key words : Ca-bentonite colloids, Dynamic light scattering, Kinetic coagulation, Stability ratio, Critical coagulation concentration

요 약 문

본 연구에서는 우리나라의 경주에서 산출된 칼슘벤토나이트 콜로이드의 안정성에 대한 연구를 동적광산란 방법을 이용하여 이온강도 및 pH 등의 지화학적 조건 변화에 따른 크기 변화를 관측함으로써 수행하였다. 속도론적 및 평형 상태에서 pH 및 이온강도의 변화에 따른 칼슘벤토나이트 콜로이드의 크기변화를 관측하였다. 실험결과 칼슘벤토나이트 콜로이드의 안정성은 접촉시간, 매질의 이온강도와 pH에 매우 크게 의존함을 보였으며 0.01 M NaClO₄ 이상의 이온강도에서는 고려된 대부분의 pH에서 콜로이드가 불안정함을 보였다. 아울러 칼슘벤토나이트 콜로이드의 안정비 *W*와 CCC(Critical Coagulation Concentration) 등을 속도론적 응집 실험 자료들을 이용하여 계산하였다. 안정비 *W*는 이온강도가 증가함에 따라 감소하는 경향을 뚜렷하게 나타내었으며 pH 변화에 따른 *W* 값의 변화는 이온강도에 따라 다른 양상을 보였다. 또 pH 7 근처에서 칼슘벤토나이트 콜로이드의 CCC는 약 0.05 M NaClO₄임을 알 수 있었다.

주제어 : 칼슘벤토나이트 콜로이드, 동적광산란, 속도론적 응집, 안정성 비, 임계응집농도

*Corresponding author : mhbaik@kaeri.re.kr

원고접수일 : 2005. 6. 1 게재승인일 : 2006. 4. 2

질의 및 토의 : 2006. 8. 31 까지

1. 서 론

사용후핵연료를 포함하여 고준위방사성폐기물 처분을 고려하고 있는 대부분의 심지층 지하처분장 설계개념에 있어 방사성폐기물은 금속 처분용기(canister)에 포장되어 지하 수 백 미터에 위치하는 지하매질의 처분공에 정치되는데, 이 때 처분용기와 처분공 벽 사이의 공간은 인공방벽시스템(Engineered Barrier System, EBS)을 구성하는 완충재(buffer) 물질인 점토층으로 메워지고, 처분 터널은 뒷채움재(backfill)로 채워지게 된다. 처분장 폐쇄 후에 암반과 인공방벽, 처분공과 터널들은 결국 지하수에 의해 포화되게 될 것이다. 많은 국가들에서 낮은 침투성, 높은 수축능, 자체 밀봉특성, 자연에서의 내구성 등으로 인해 벤토나이트(bentonite) 점토가 고준위방사성폐기물 처분을 위한 지하처분장의 완충재 물질로 고려되어져 왔다(Smith et al., 1980).

지금까지 처분 대상 암반의 지하수 등에서 자연 지하수 콜로이드가 방사성핵종의 이동에 미치는 영향에 대해서는 많은 연구들이 수행되어져 왔으나 처분장의 인공방벽과 암반의 경계에서 발생할 수 있는 벤토나이트 콜로이드에 대해서는 별로 관심이 없었다(Pusch, 1999; Grindrod et al., 1999). 처분장의 인공방벽과 암반의 경계(즉, 벤토나이트가 지하수와 접촉하는 지역)에서 벤토나이트 콜로이드의 발생은 무엇보다도 방사성핵종들이 벤토나이트에 강하게 수착되기 때문에 방사성핵종의 이동에 있어 매우 중요하다 하겠다. 최근에 이러한 처분장의 완충재와 주변 암반의 경계에서 완충재로부터 벤토나이트 콜로이드가 발생되어 암반 균열을 따라 이동할뿐만 아니라 수착성이 큰 방사성핵종들의 이동을 가속화시킨다는 보고가 있었다(Möri et al., 2003; Missana et al., 2003).

이러한 벤토나이트 콜로이드가 방사성폐기물 처분장으로부터 오염물질을 얼마나 유출시킬 수 있는가 하는 문제를 해결하기 위해서는 콜로이드의 발생, 안정성, 그리고 유동경로를 따른 이동 특성 등에 대한 연구를 필요로 한다. 지금까지 오염물질이 콜로이드와 결합하였을 때 더 긴 거리를 이동한다는 많은 보고들이 있었다(Buddemeier and Hunt, 1988; Penrose et al., 1990; Kersting et al., 1999). 그러나 콜로이드의 생태계로의 이러한 가속화된 이동의 관점에서 보면 콜로이드 안정성, 가역적 응집(coagulation) 또는 회합(agggregation), 그리고 이류 이동과 비교할만한 시간대에서 회합의 성장성 등을 가진 콜로이드들만이 주요한 관심이 된다고 하겠다(Hesterberg and Page, 1990; Frenkel et al., 1992; Heil and Sposito, 1993; Kretzschmar

et al., 1998). 왜냐하면 불안정한 콜로이드들은 결국 회합물(agggregates)을 형성하여 침전되거나 여과되어 이동될 수 없기 때문이다(McDowell-Boyer, 1992).

지하수를 따라 이동하는 콜로이드가 안정될 것인지 응집할 것인지 아니면 침전할 것인지는 콜로이드 입자의 크기와 밀도, 표면화학적 특성, 용액화학적 특성, 수력학적 흐름 특성 등 여러 개의 변수들에 의존한다. 따라서 콜로이드 부유물의 안정성은 응집의 속도론적인(kinetics) 문제에 귀결된다고 하겠다. 점토의 응집거동에 대한 연구를 위해 사용된 기술들은 매우 다양하다. 점토 측정용을 이용하는 방법(Chen et al., 1990), 응집 침전 실험을 이용하는 방법, photographic 기술(Lasgow Glasgow, 1989), 비탁(tubulidimetry) 기술, 그리고 정적광산란(static light scattering) 또는 동적광산란(dynamic light scattering) 기술을 이용하는 방법(Ledin et al., 1993; Tombácz et al., 1999; Holthoff et al., 1996; Missana and Adell, 2000; Novich and Ring, 1984; Virden and Berg, 1992) 등이 사용되어져 왔다. 최근에는 LIBD(Laser-Induced Breakdown Detection)이라고 불리는 새로운 방법이 콜로이드의 안정성 연구에 적용되기도 하였다(Bitea et al., 2003).

따라서 본 연구에서는 고준위방사성폐기물 처분장의 잠재적인 완충재 물질로 고려중인 국내 경주산 칼슘벤토나이트를 이용하여 지화학적 조건 변화에 따른 콜로이드의 속도론적 응집 특성을 동적광산란 방법을 이용하여 고찰함으로써 방사성핵종 및 중금속과 같은 오염물 이동에 미치는 벤토나이트 콜로이드의 안정성을 평가하고자 한다.

2. 실 험

2.1. 경주벤토나이트

본 연구에 사용된 벤토나이트는 경상북도 경주에서 산출된 것으로 “경주벤토나이트”라 부른다. 경주벤토나이트의 주요 구성광물을 X-ray diffractometer(XRD, D8 Advance, Brüker)를 이용하여 분석하였으며, 분석결과 약 59%의 몬모릴로나이트(montmorillonite), 37%의 알바이트(albite) 및 소량의 석영(quartz)과 클리놉틸로라이트(clinoptilolite) 등으로 구성되어 있다(Fig. 1 참조). 경주벤토나이트의 양이온 교환능(CEC, Cation Exchange Capacity)은 71 meq./100g이고, 소량의 Na⁺ 이온을 함유하고 있지만 지배적인 이온교환 양이온은 Ca²⁺로 칼슘벤토나이트이다(조원진 등, 1999). 아울러 경주벤토나이트의 건조 밀도는 2.74 g/cm³이고 총 비표면적은 347.6 m²/g로 측정되었다(조원진 등, 1999).

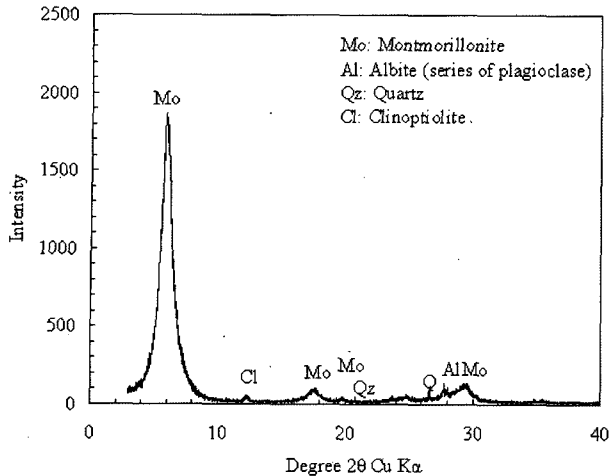


Fig. 1. XRD result of the raw Gyeongju bentonite.

2.2. 벤토나이트 콜로이드의 제조 및 특성

이러한 벤토나이트를 체(sieve)로 64 μm 이하의 입자들만 분리한 후, 1:20의 비율로 50 g의 벤토나이트와 1 L의 Milli-Q 초순수(18.2 MO-cm)를 잘 혼합한 후 3일 동안 일정한 온도(25°C)를 유지하며 교반한 후, 원심분리기를 이용하여(12000 rpm으로 30분) 두 번 세척하였다. 세척된 벤토나이트는 동일한 비율로 초순수에 다시 부유시킨 후, 7000 rpm에서 20분 동안 원심분리한 후 콜로이드를 포함하고 있는 상등액만을 모은 후에 추후 사용할 때까지 4°C 냉장고에 보관하였다.

준비된 칼슘벤토나이트 콜로이드 부유액을 오븐에서 105°C로 3일 동안 건조한 후 저울을 이용하여 부유액의 농도를 중력법으로 측정된 결과 약 1920 mg/L인 것으로 관측되었다. 또 XRD를 이용하여 구성광물을 분석한 결과 벤토나이트 콜로이드를 구성하는 주광물은 몬모릴로나이트이며 다른 부광물은 거의 없는 것으로 나타났다(Fig. 2 참조). 양이온교환능은 암모니아 전극(Thermo Orion)을 이용하여(Busenbergl and Clemency, 1973) NH_4Cl 을 벤토나이트의 이온교환 양이온과 치환하여 측정하였고 약 93.3 meq./100 g인 것으로 측정되었다. 실험에 사용된 벤토나이트 콜로이드의 최종 농도(C)는 1000 mg/L이며 위의 원액을 적당히 희석하여 사용하였다. 콜로이드 부유액의 이온강도는 적정량의 NaClO_4 용액을 이용하여 조절하였고, pH는 적당한 농도의 NaOH 또는 HClO_4 를 첨가하여 조절하였다.

2.3. 크기 측정

시간 변화에 따른 벤토나이트 콜로이드의 크기를 측정

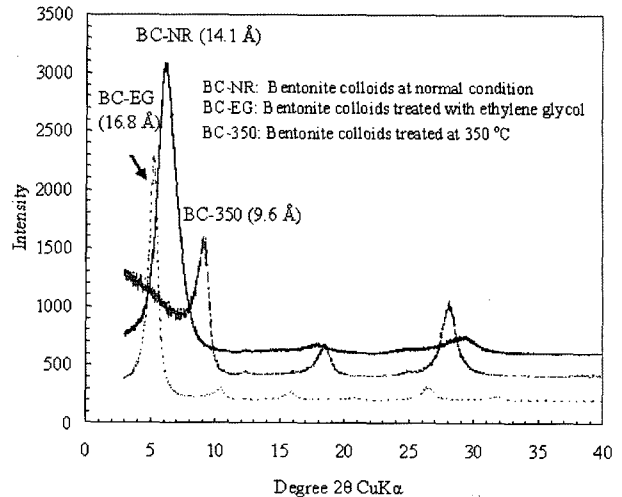


Fig. 2. XRD result of the prepared Ca-bentonite colloids.

하기 위하여 동적광산란(DLS, Dynamic Light Scattering) 또는 Quasi Elastic Light Scattering(QELS)을 이용하는 PCS(Photon Correlation Spectroscopy) 방법을 이용하였다(ZetaPlus BI-MAS, Brookhaven). 사용된 레이저는 15 mW 고체상태 레이저(solid state laser)이고 측정가능한 입자크기 범위는 2 nm~3 μm 이고, 정확도는 단분산(monodisperse) 입자들에 대해 약 1~2% 정도이고 재현성은 약 1~2%이다. 측정의 정확성을 위해 100 nm 표준라텍스 입자들(Interfacial Dynamics Corporation)을 이용하여 측정기기를 검증하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 결과 분석 방법

DLS를 이용하여 측정되는 주요 측정 양은 액체에서 분산된 작은 입자들의 병진확산계수(translational diffusion coefficient) D 이다. 입자 크기는 구형이라는 가정 하에서 Stokes-Einstein 관계식을 적용하면(Van Olphen, 1977),

$$r_h = \frac{k_B T}{6\pi\eta D} \quad (1)$$

여기서, k_B 는 Boltzmann의 상수이고(1.38054×10^{-16} ergs/deg), T 는 절대온도이고(°K), η 는 액체의 점도이고(centi poise), r_h 는 입자의 반경이다. DLS로 얻은 입자들의 반경은 수력학적 반경(hydrodynamic radius)이다. 즉, 입자의 순수 반경과 이중층의 두께를 더한 값이다.

콜로이드 분산액의 응집속도(coagulation rate)는 잘 분산된 시스템에서부터($t=0$) 시간 t 의 증가에 따른 수력학

적 반경의 변화를 측정함으로써 수행된다. 시간에 대한 콜로이드 입자들 반경의 초기 변화는 응집속도상수 k 와 초기 입자농도 C 에 비례한다(Holthoff et al., 1996).

$$\left(\frac{dr_h}{dt}\right)_{t \rightarrow 0} = \beta k C \quad (2)$$

여기서 β 는 입자의 반경, 산란각, 파장 등에 의존하는 광학인자이다. 만약 C 의 단위가 mg/L이고, 크기변화속도의 단위가 nm/s라면 k 의 단위는(nm · L)/(s · mg)가 될 것이다.

콜로이드의 응집속도는 종종 빠른(확산 제약적인) 응집속도 k 에 대해 정규화 함으로서 안정비(W , stability ratio)라고 불리는 상대적인 양으로 표현된다(Kretzschmar et al., 1998).

$$W = \frac{k^f}{k} = \frac{1}{\alpha} \quad (3)$$

여기서 k 는 고려되고 있는 콜로이드 시료의 응집속도상수이고 α 는 콜로이드-콜로이드 간의 붙음효율(attachment efficiency)이다. 빠른 응집속도상수인 k^f 는 이론적 값일 수도 있고(즉, Smoluchowski 속도) 빠른 응집영역에서 측정된 실험적인 값일 수도 있다. 따라서 고려중인 콜로이드가 주어진 영역에서 안정하면 안정할수록 W 의 값은 점점 커지게 될 것이고, 빠른 응집이 일어난다면 W 는 1의 값을 가질 것이다.

식 (2)가 정당하다는 가정 하에 안정비 W 는 응집곡선(coagulation curve)의 초기 기울기로부터 다음과 같이 직접 구할 수 있다(Kretzschmar et al., 1998).

$$W = -\frac{[(dr_h/dt)_{t \rightarrow 0} / C]^f}{[(dr_h/dt)_{t \rightarrow 0} / C]} \quad (4)$$

여기서 위첨자 f 는 빠른 응집영역에서의 측정을 의미한다. 응집곡선 $(dr_h/dt)_{t \rightarrow 0}$ 의 초기 기울기는 시간에 따른 콜로이드의 평균 반경이 증가하는 응집 실험의 초기 단계에서 구한 자료를 직선으로 피팅(fitting)하여 구한다.

3.2. 속도론적 응집 특성

Figs. 3~5에는 각 이온농도에서 벤토나이트 콜로이드 입자들의 시간에 따른 응집곡선을 나타내었다. Fig. 3에 보여 지는 것처럼 0.001 M NaClO₄의 낮은 이온강도에서 벤토나이트 콜로이드 입자들의 크기는 비록 그 변화가 크지는 않지만 모든 pH에서 시간이 증가함에 따라 증가하고 있음을 보여준다. 따라서 낮은 이온강도에서 벤토나

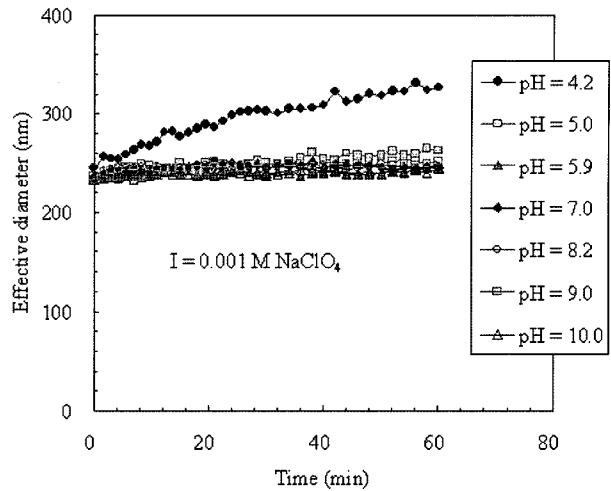


Fig. 3. Coagulation curve for the Ca-bentonite colloid suspensions at I = 0.001 M NaClO₄ with varying pH.

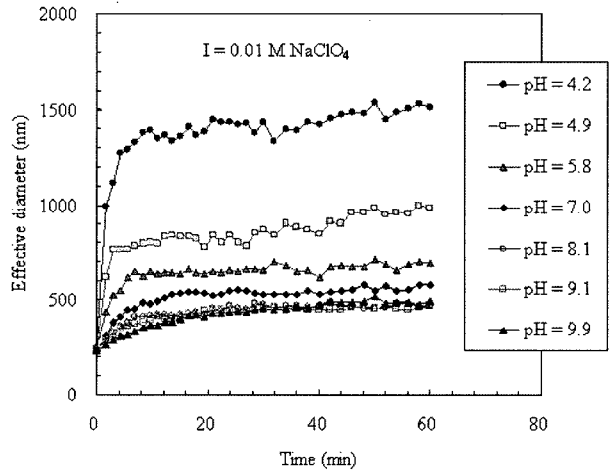


Fig. 4. Coagulation curve for the Ca-bentonite colloid suspensions at I = 0.01 M NaClO₄ with varying pH.

이트 콜로이드 입자들은 대부분의 pH 영역에서 안정적임을 알 수 있었다.

Fig. 4에는 0.01 M NaClO₄일 때 pH 변화에 따른 벤토나이트 콜로이드 입자들의 속도론적 응집거동을 보여주고 있다. 시간 증가에 따라 벤토나이트 콜로이드 입자들의 크기 변화가 0.001 M NaClO₄ 일 때 보다 커졌고, 그 변화의 크기는 알카리 영역에서보다 산영역에서 더 크게 나타났다. 이것은 몬모릴로나이트 점토입자들이 알칼리 영역에서는 평판 점토입자들의 모서리점(edge sites)이 음전하를 띠게 되고, 구조적으로 양이온 치환에 의해 형성된 층간 음전하와 서로 동일 전하를 가지게 되어 안정화되는 반면, 산영역에서는 점토입자들의 모서리점에서 양전하가

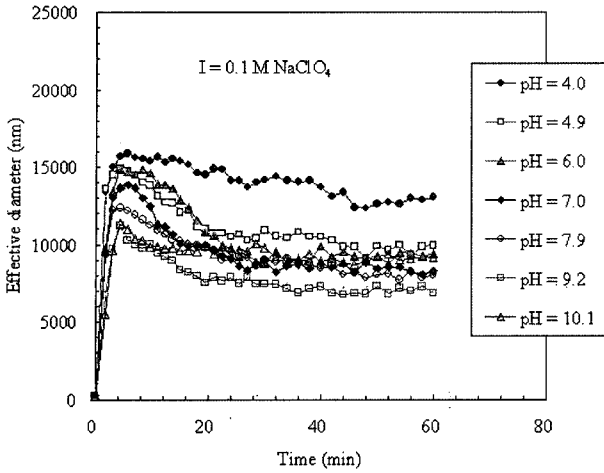


Fig. 5. Coagulation curves for the Ca-bentonite colloid suspensions at $I = 0.1 \text{ M NaClO}_4$ with varying pH.

형성되어 층간 음전하와 서로 다른 전하를 띠게 되어 점토입자들이 서로 응집될 확률이 증가하기 때문이다(Lagaly and Ziesmer, 2003; Tombácz and Szekeres, 2004).

Fig. 5에는 0.1 M NaClO_4 의 높은 이온강도일 때 pH 변화에 따른 벤토나이트 콜로이드 입자들의 속도론적 응집거동을 보여주고 있다. 시간이 증가함에 따라 벤토나이트 콜로이드 입자들의 크기가 갑자기 증가하다가 최대값에 도달한 후 점차 감소하는 경향을 모든 pH에서 보여주고 있다. 따라서 0.1 M NaClO_4 의 높은 이온강도에서는 벤토나이트 콜로이드들이 pH 상관없이 매우 불안정하다는 것을 알 수 있다.

3.3. 평형론적 응집 특성

Fig. 6에는 약 1일 동안 반응시킨 평형상태에서 이온강도 및 pH의 변화에 따른 칼슘벤토나이트 콜로이드의 크기변화를 나타내었다. 0.001 M NaClO_4 의 매우 낮은 이온강도에서는 벤토나이트 콜로이드 입자들의 크기가 초순수에서 입자크기와 거의 비슷하며, 대부분의 pH에 대해 콜로이드 입자들의 응집은 일어나지 않았다. 따라서 벤토나이트 콜로이드 입자들은 낮은 이온강도에서는 대부분의 pH 영역에서 안정적임을 알 수 있다. 아울러 벤토나이트 입자들의 유효평균직경(effective average diameter)은 전체 측정 시간동안 230-250 nm 범위를 보여주고 있다. 그러나 pH 4.2의 낮은 pH에서는 벤토나이트 콜로이드들의 크기가 증가되어 응집되는 거동을 보이는 것은 매우 흥미롭다. 이러한 낮은 pH 영역에서의 응집 거동은 몬모릴로나이트 점토입자들의 PZC(point of zero charge) 이

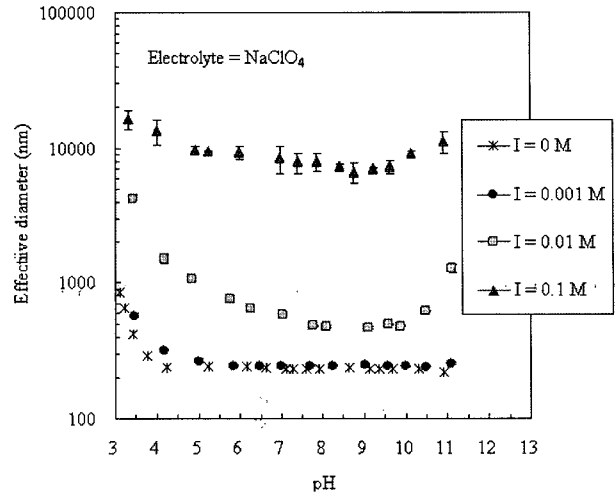


Fig. 6. Effects of pH and ionic strength on the effective hydrodynamic diameter of Ca-bentonite colloids at equilibrium after contacting 1 day. The vertical bar in data means a range of measured values.

하의 pH에서 점토입자들의 모서리점에서 형성되는 양전하와 층간 음전하 사이의 Coulombic 인력에 의한 EF (edge-to-face) 불균질응집(heterocoagulation)에 의한 것으로 예상된다(Tombácz and Szekeres, 2004).

그러나 이온강도가 0.01 M NaClO_4 로 점차 증가함에 따라 입자들의 응집이 전 pH 영역에 걸쳐 일어났음을 보여 준다. 벤토나이트 입자들의 유효평균직경은 pH에 따라 $0.5\text{-}4 \mu\text{m}$ 정도인 것으로 나타났다. 그리고 강알칼리영역($\text{pH} < 5.0$) 및 강알칼리영역($\text{pH} > 10.0$)에서 콜로이드 입자들의 응집에 의한 크기 증가가 현저하게 나타나고 있다. 강알칼리 영역에서의 응집은 모서리점들의 음전하와 층간의 음전하가 서로 이온공유(ion-pairing)에 의해 결합될 수 있기 때문인 것으로 해석된다. 서로 같은 표면 전하를 가지는 몬모릴로나이트 입자들은 전기이중층(electric double layer)의 상호작용에 의한 FF(face-to-face) 균질응집(homocoagulation)을 하게된다(Lagaly and Ziesmer, 2003).

이온강도가 더 증가하여 0.1 M NaClO_4 일 때는 모든 pH 영역에서 벤토나이트 콜로이드의 크기가 크게 증가하여 벤토나이트 입자들의 유효평균직경은 pH에 따라 약 $7\text{-}10 \mu\text{m}$ 정도인 것으로 나타났다. 그러나 상대적으로 pH의 영향은 적게 나타나고 있음을 보여 주었다. 이러한 이온강도 증가에 따른 벤토나이트 콜로이드의 불안정성은 이온강도 증가에 따른 몬모릴로나이트 점토입자들의 전기이중층의 압축(compression)에 의한 겹침현상(overlapping)에 기인한 것으로 예상된다(Tombácz and Szekeres, 2004).

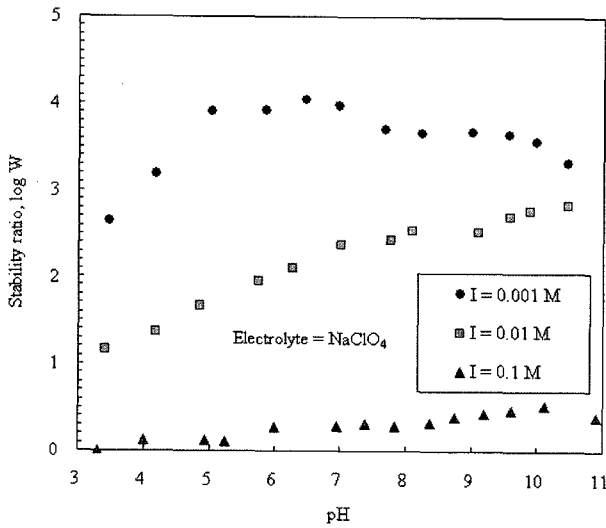


Fig. 7. Stability ratios as a function of the pH with varying ionic strengths calculated from the coagulation curves plotted in Figs. 3-5.

3.4. 안정비 및 임계응집농도

Fig. 7에는 이온강도 및 pH의 변화에 따른 안정비 W 를 Fig. 6에 제시된 속도론적 응집곡선의 자료로부터 식 (4)를 이용하여 계산하여 나타내었다. 안정비는 이온강도가 증가함에 따라 감소하는 경향을 뚜렷하게 나타내고 있다. 그러나 pH 변화에 따른 W 값의 변화는 이온강도에 따라 다른 양상을 보이고 있다. 일반적으로 벤토나이트 콜로이드 입자들의 모서리점들은 PZC 이하의 pH에서 양전하를 띠고, PZC 이상의 pH에서는 음전하를 띠게 될 것이다(Van Olphen, 1977). Fig. 7에서 보여지는 pH 변화에 따른 응집 거동은 모서리점의 전하역전이(즉, 모서리 표면의 PZC) 0.001 M 및 0.01 M NaClO_4 의 이온강도에서 약 pH 8 근처에서 발생되고 있다는 것을 보여주고 있다. 이러한 결과는 Fig. 7에서 pH 8 근처에서 W 값의 상대적인 기울기의 변화를 통해 유추할 수 있다(Kretschmar et al., 1998).

임계응집농도(Critical Coagulation Concentration, CCC)는 주어진 조건에서 응집을 유도하기 위해 요구되는 전해 매질 이온의 최소농도로 정의되며 콜로이드의 안정성을 분석하는 중요한 성질 중의 하나이다(Hsu et al., 2006). 또한 CCC는 느린 응집곡선과 빠른 응집 곡선이 교차하는 곳에서의 매질의 이온강도를 말한다. pH 7에서 이온강도 변화에 따른 안정비 W 값을 구하여 Fig. 8에 나타내었다. Fig. 8에 의하면 pH 7에서 벤토나이트 콜로이드에 대해 CCC는 약 0.05 M NaClO_4 임을 알 수 있다. 이 값은 보통 일반 자연계에서 관측되는 지하수의 이온강

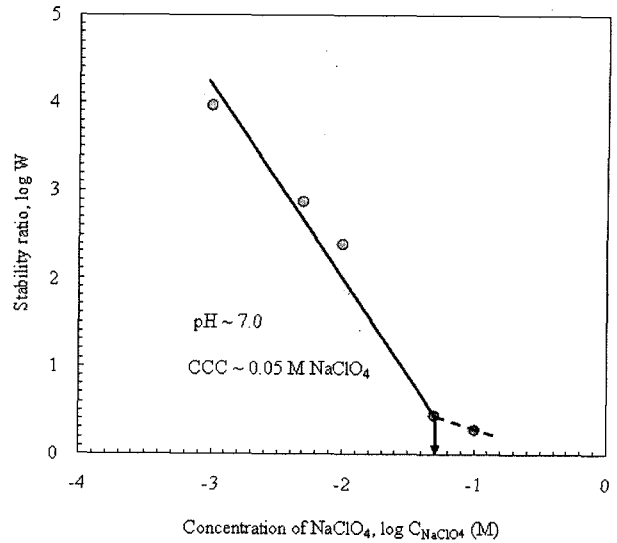


Fig. 8. Stability ratio vs. NaClO_4 concentration for Ca-bentonite colloids at about pH 7.0.

도보다는 상당히 높은 값이라 하겠다. 따라서 일반적인 지하수 환경에서 벤토나이트 콜로이드는 매우 안정적으로 존재할 것으로 예상된다.

5. 결 론

본 연구에서는 pH와 이온강도 등 용액의 지화학 조건 변화에 따른 속도론적 및 평형론적 응집특성을 콜로이드 입자크기의 변화를 동적광산란 방법을 이용하여 관측함으로써 국내 경주산 칼슘벤토나이트 콜로이드의 안정성에 대한 연구를 수행하였다. 실험결과 칼슘벤토나이트 콜로이드의 안정성은 접촉시간 및 매질의 이온강도와 pH에 매우 크게 의존함을 보였으며 0.01 M NaClO_4 이상의 이온강도에서는 pH에 상관없이 벤토나이트 콜로이드가 불안정함을 보였다. 아울러 칼슘벤토나이트 콜로이드의 안정비 W 는 이온강도가 증가함에 따라 감소하는 경향을 뚜렷하게 나타내었으며 pH 변화에 따른 W 값의 변화는 이온강도에 따라 다른 양상을 보였고, 사용된 벤토나이트 콜로이드들의 모서리점들의 PZC가 약 pH 8 근처임을 실험 결과로부터 유추할 수 있었다. 또 pH 7 근처에서 벤토나이트 콜로이드의 CCC는 약 0.05 M NaClO_4 임을 알 수 있었다.

따라서 본 연구의 결과들은 현재 방사성폐기물 처분장의 인공방벽을 구성하는 잠재적 완충제로 고려되고 있는 국내 경주산 칼슘벤토나이트로부터 벤토나이트 콜로이드 입자들이 발생된다면 이들 입자들은 일반적인 처분환경의

지하수 조건(즉, 낮은 이온강도 및 중성/알칼리 영역)에서 매우 안정적이기 때문에 암반 균열에 존재하는 지하수를 따라 이동할 가능성이 있을 것으로 예상된다. 또 이러한 콜로이드 입자들은 높은 수착성을 가지므로 유출된 방사성 핵종들과 결합하여 방사성 콜로이드의 형태로 이동할 가능성이 매우 높다. 따라서 본 연구의 결과들은 다양한 지화학적 조건에서의 벤토나이트 콜로이드의 안정성을 평가함으로써 방사성 핵종 및 중금속과 같은 오염물질의 지하매질을 통한 이동에 미치는 벤토나이트 콜로이드의 영향을 평가하는데 도움을 줄 것으로 사료된다.

사 사

본 연구는 과학기술부에 의해 지원되는 원자력중장기연구개발의 일환으로 수행되었음.

참 고 문 헌

- 조원진, 이재완, 강철형, 전관식, 1999, 고준위폐기물처분장 완충재용 국산 벤토나이트 및 벤토나이트-모래 혼합물의 물리화학적, 광물학적 및 역학적 특성, KAERI/TR-1388/99, 한국원자력연구소, 대전.
- Bitea, C., Walther, C., Kim, J.I., Geckeis, H., Rabung, Th., Scherbaum, F.J., and Cacuci, D.G., Time-resolved observation of ZrO₂-colloid agglomeration, 2003, *Colloids and Surfaces A*, **215**, 55-60.
- Buddemeier, R.W. and Hunt, J.R., 1988, Transport of colloidal contaminants in groundwater: radionuclide migration at the Nevada Test Site, *Appl. Geochem.*, **3**, 535-548.
- Busenberg, E. and Clemency, C.V., 1973, Determination of the cation exchange capacity of clays and soils using an ammonia electrode, *Clays Clay Miner.*, **21**, 213-217.
- Chen, J.S., Cushman, J.H., and Low, P.F., 1990, Rheological behavior of Na-montmorillonite suspensions at low electrolyte concentration, *Clays Clay Miner.*, **38**(1), 57-62.
- Frenkel, H., Fey, M.V., and Levy, G.J., 1992, Organic and inorganic anion effects on reference and soil clay critical flocculation concentration, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, **56**, 1762-1766.
- Glasgow, L.A., 1989, Effects of the physicochemical environment on floc properties, *Chem. Engr. Prog.*, **85**(8), 51-55.
- Grindrod, P., Peletie, M., and Takase, H., 1999, Mechanical interaction between swelling compacted clay and fractured rock, and the leaching of clay colloids, *Eng. Geol.*, **54**, 159-165.
- Heil, D. and Sposito, G., 1993, Organic matter role in illite soil colloids flocculation: I. Counter ions and pH, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, **57**, 1241-1246.
- Hesterberg, D. and Page, A.L., 1990, Critical coagulation concentration of sodium and potassium illite as affected by pH, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, **54**, 735-739.
- Holthoff, H., Egelhaaf, S.U., Borkovec, M., Schurtenberger, P., and Sticher, H., 1996, Coagulation rate measurements of colloidal particles by simultaneous static and dynamic light scattering, *Langmuir*, **12**, 5541-5549.
- Hsu, J.-P., Yu, H.-Y., Yseng, S., 2006, Critical coagulation concentration of a salt-free colloidal dispersion, *J. Phys. Chem. B.*, **110**, 7600-7604.
- Kersting, A.B., Efurud, D.W., Finnegan, D.L., Rokop, D.J., Smith, D.K., and Thompson, J.L., 1999, Migration of plutonium in groundwater at the Nevada Test Site, *Nature*, **397**, 56-59.
- Kretzschmar, R., Holthoff, H., and Sticher, H., 1998, Influence of pH and humic acid on coagulation kinetics of kaolinite: A dynamic light scattering study, *J. Coll. Interf. Sci.*, **202**, 95-103.
- Lagaly, G., Ziesmer, S., 2003, Colloid chemistry of clay minerals: the coagulation of montmorillonite dispersions, *Adv. Colloid Interf. Sci.*, **100-102**, 105-128.
- Ledin, A., Karlsson, S., Düker, A., and Allard, B., 1993, Applicability of photon correlation spectroscopy for measurement of concentration and size distribution of colloids in natural waters, *Analytica Chimica Acta*, **281**, 421-428.
- McDowell-Boyer, L.M., 1992, Chemical mobilization of micron-sized particles in saturated porous media under steady flow conditions, *Environ. Sci. Technol.*, **26**(3), 586-593.
- Missana, T., Alonso, U., and Turrero, M.J., 2003, Generation and stability of bentonite colloids at the bentonite/granite interface of a deep geological radioactive waste repository, *J. Contam. Hydrol.*, **61**, 17-31.
- Missana, T. and Adell, A., 2000, On the applicability of DLVO theory to the prediction of clay colloids stability, *J. Coll. Interf. Sci.*, **230**, 150-156.
- Möri, A., Alexander, W.R., Geckeis, H., Hauser, W., Schäfer, T., Eikenberg, J., Fierz, Th., Degueudre, C., and Missana, T., 2003, The colloid and radionuclide retardation experiment at the Grimsel Test Site: influence of bentonite colloids on radionuclide migration in a fractured rock, *Colloids and Surfaces A*, **217**, 33-47.
- Novich, B.E., and Ring, T.A., 1984, Colloid stability of clays using photon correlation spectroscopy, *Clays Clay Miner.*, **32**, 400-406.
- Penrose, W.R., Polzer, W.L., Essington, E.H., Nelson, D.M., and Orlandini, K.A., 1990, Mobility of plutonium and americium through a shallow aquifer in a semiarid region, *Environ. Sci. Technol.*, **24**, 228-234.

Pusch, R., 1999, Clay colloid formation and release from MX-80 buffer, SKB Technical Report TR-99-31, Swedish Nuclear Fuel and Waste Waste Management Co., Stockholm, Sweden.

Smith, M.J. et al., 1980, Engineered barrier development for a nuclear waste repository in basalt: An integration of current knowledge, RHO-BWI-ST 7, Rockwell Hanford Operations.

Tombácz, E., Filipcsei, G., Szekeres, M., and Gingl, Z., 1999, Particle aggregation in complex aquatic systems, *Colloids and Surfaces A*, **151**, 233-244.

Tombácz, E., Szekeres, M., 2004, Colloidal behavior of aqueous montmorillonite suspensions: the specific role of pH in the presence of indifferent electrolytes, *Appl. Clay Sci.*, **27**, 75-94.

Van Olphen, H., 1977, An Introduction to Clay Colloid Chemistry, 2nd Ed., A Wiley Interscience Publisher, New York, p. 32.

Virden, J.W. and Berg, J.C., 1992, The use of photon correlation spectroscopy for estimating the rate constant for doublet formation in an aggregating colloidal dispersion, *J. Coll. Interf. Sci.*, **149**(2), 528-535.