

Geochemical characteristics of a LILW repository I . Groundwater

중 · 저준위 방사성 폐기물 처분부지의 지구화학 특성 I . 지하수

Byoung-Young Choi¹⁾, Geon-Young Kim, Yong-Kwon Koh, Seon-Ho Shin,
Si-Won Yoo and Doo-Haeng Kim*

Korea Atomic Energy Research Institute, 1045 Daedeokdaero, Youseong-gu, Daejeon

*Korea Hydro & Nuclear Power, 167 Samsung-dong, Kangnam-gu, Seoul, Korea

최병영¹⁾, 김건영, 고용권, 신선호, 유시원, 김두행*

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

*한국수력원자력, 서울시 강남구 삼성동 167번지

(Received November 24, 2008 / Revised December 04, 2008 / Approved December 16, 2008)

Abstract

This study was carried out to identify the characteristics of hydrochemistry controlling groundwater chemical condition in a repository site of Gyeongju. For this study, 12 bore holes of all monitoring bore holes in the study area were selected and total 46 groundwater samples were collected with depth. In addition, 3 surfacewater samples and 1 seawater sample were collected. For water samples, cations and anions were analyzed. The environmental isotopes($\delta^{18}\text{O}$ - δD , Tritium, $\delta^{13}\text{C}$, $\delta^{34}\text{S}$) were also analyzed to trace the origin of water and solutes. The result of $\delta^{18}\text{O}$ and δD analysis showed that surface water and groundwater were originated from precipitation. Tritium concentrations of groundwater decreased with depth but high concentrations of tritium indicated that groundwater was recharged recently. The results of ion and correlation analysis showed that groundwater types of the study area were represented by Ca-Na-HCO₃ and Na-Cl-SO₄, which was caused by sea spray and water-rock interaction. Especially, high ratio of Na content in groundwater resulted from ion exchange. For redox condition of groundwater, the values of DO and Eh decreased with depth, which indicated that reducing condition was formed in deeper groundwater. In addition, high concentration of Fe and Mn showed that redox condition of groundwater was controlled by the reduction of Fe and Mn oxides.

Key words : repository, hydrochemistry, ion exchange, redox condition

1) Corresponding Author. E-mail : choiby@kaeri.re.kr

요 약

본 연구는 방사성 폐기물 처분장의 지하수 화학 조건을 조절하는 수리지구화학 특성을 규명할 목적으로 수행되었다. 이를 위해 처분장 주변의 관측공 중 12개의 관측공이 선정되었으며, 이들 시료를 심도별로 총 46 지점에서 채취하였다. 또한 지표수 3점과 해수 1점의 시료도 채취하였다. 채취된 시료는 양/음이온 분석이 수행되었으며, 물과 용질의 기원을 규명할 추적자로서 산소-수소, 삼중수소, 탄소, 황 동위원소도 분석되었다. 산소-수소 동위원소 분석 결과 지표수와 지하수는 모두 강우 기원임을 보여주었으며, 삼중수소 농도는 깊이가 깊어짐에 따라 감소하고는 있으나 높은 삼중수소 농도는 최근에 충전된 물임을 나타내고 있었다. 양/음이온 분석 결과를 통한 수질 유형 분석에서는 연구 지역 지하수는 Ca-Na-HCO₃ 유형과 Na-Cl-SO₄ 유형이 대표적이었으며, 상관 분석 결과 이들 이온은 해염, 물-암석 반응의 영향을 받은 것으로 판단된다. 특히 연구 지역에서 Na 비율이 높은 이유는 양이온 교환 반응에 의해 이루어지고 있음을 보여주었다. 연구 지역의 산화-환원 조건의 경우에는 심도가 깊어짐에 따라 낮은 DO와 Eh 값을 나타내어 환원 환경이 형성되었음을 나타내며, 높은 Fe와 Mn의 농도는 Fe와 Mn 산화물의 환원 반응이 산화-환원 조건을 조절하고 있음을 보여주었다.

중심단어: 방사성폐기물처분장, 수리지구화학, 이온교환, 산화-환원 조건

I. 서 론

방사성 폐기물 처분장은 핵종들의 농도가 자연 배경치 까지 감소할 때까지 폐기물을 안전하게 고립시키기 위해 심부 지질층에 매립하며, 최소한 만년 이상 안전성을 유지하기 위해 시멘트와 벤토나이트 같은 인공 방벽을 주로 사용하게 된다. 이러한 방사성 폐기물 처분장 연구는 해외 선진국인 스웨덴, 핀란드, 미국, 일본 등에서 수행되고 있으며, 지질학적 측면에서도 처음으로 연구가 시작된 후 약 25년 동안 연구가 진행되고 있다. 또한 최근에는 한정된 화석연료와 이들 연소에 의해 발생하는 이산화탄소 문제로 인해 원자력 발전 확대가 세계적으로 논의 되고 있으며, 이와 함께 방사성 폐기물 처분장의 안전성 확보도 매우 중요한 문제로 인식되고 있다[1]. 이러한 처분장의 조건을 만족하기 위해서는 장기간의 안전성 평가가 요구되며 이를 위해서는 지구화학, 특히 지하수 화학의 자료 획득과 해석이 필수적이다. 왜냐하면 지하수의 지구화학 조건과 화학 반응은 용기 부식, 천연 및 인공 방벽의 내구성, 핵종의 용해도 및 거동에 영향을 미치며 이

러한 이유로 처분장의 계획, 처분 및 운영 전 과정에 매우 중요한 요인으로 인식된다[2].

따라서 본 논문에서는 현재 국내 최초로 경주 지역에 건설 중인 중·저준위 방사성 폐기물 처분장의 처분부지에서 수행되었던 지구화학 조사를 바탕으로 처분 부지 지하수의 수리지구화학 특성을 규명하고자 하였다. 이러한 연구는 현재 처분 부지의 수리지구화학 특성을 이해할 뿐만 아니라 이를 조절하는 요인을 규명함으로써 장기간에 걸친 지하수의 수리지구화학 조건 변화를 예측하는데 필수적이다.

II. 연구 방법

가. 연구 지역

연구 지역은 방사성 폐기물 처분장이 위치하는 경주시 양남면 봉길리 지역으로 Fig. 1에 제시하였다. 그림에서 보이는 것과 같이 연구 지역은 해안에 접하고 있으며, 연구 지역 서쪽은 해발 고도가 동쪽에 비해 상대적으로 높아 동쪽으로 완만하게 경사를 이루고 있다. 지표 조사에 의한 암석의 분포는 크게 백악

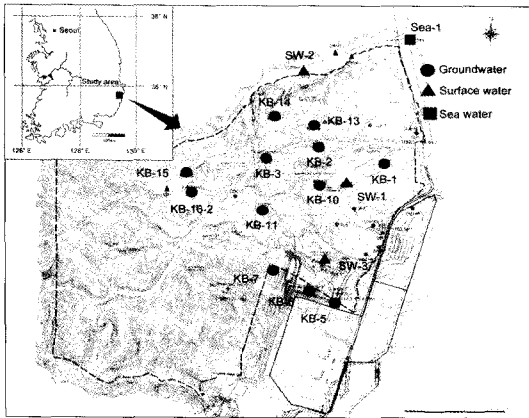


Fig. 1. Decision of regional scale area for groundwater flow modeling

기 퇴적암류와 후기에 관입한 화강암류로 구성되어 있으며, 화강암류는 백악기 퇴적암류를 관입하여 연구 지역의 중심 지역에서부터 북동부 지역에 걸쳐 폭넓게 분포하고 있다[3]. 또한 시추코아 관찰을 통한 단일 광물은 산출 빈도 및 양을 기준으로 몬모릴로나이트, 제올라이트 광물, 녹니석, 일라이트 순으로 산출되었다[3]. 또한 전체적으로 황철석의 양은 많지 않으나 산점상으로 광범위하게 분포하고 있으며 매우 드물게 국지적으로는 수 밀리미터 두께의 맥상에 이르기까지도 한다. 이는 조사지역 전반에 걸쳐 광범위한 광화작용 혹은 열수변질작용이 있었음을 지시한다. 일반적으로 방해석은 매우 흔한 단열충전광물임에도 불구하고 조사지역의 시추코아에서는 방해석의 산출이 드물었다.

연구 지역의 기후는 연평균 기온 12.5℃이고 평균 최고 기온은 8월에 25℃, 평균 최저 기온은 12월에 -0.9℃를 나타내고 있으며, 연평균 강우량은 1,157 mm이며 평균 최고 강우량은 9월에 342.5 mm를 나타내고 있다 (<http://www.gyeongju.go.kr>). 또한 여름에는 태풍이 연평균 3-4회 내습하는 것으로 알려져 있다.

나. 시료 채취 및 분석

연구 지역 시료 채취 위치는 Fig. 1에 제시되어 있다. 시료 채취 대상은 지표수, 시추공 지하수, 해수로 이 시료들은 2006년 5월, 8월, 10월, 12월에 걸쳐 총 4회 채취되었다. 하지만 본 논문에서는 이들 화학 분

석 결과가 시기별로 큰 변동이 없어 수리지구화학 특성을 규명하는데 가장 먼저 채취된 2006년 5월 시료들을 사용하였다. 지표수 시료는 처분 부지내 소규모 계곡의 하류지점 (SW-2, SW-3)과 처분부지 외곽 북쪽의 남동방향으로 흐르는 대종천 하류 지점 (SW-1)의 총 3지점에서 채취되었다. 지하수 시료는 12개 시추공에서 깊이별로 총 46개 지점에서 채취되었다. 각 시추공의 채취 심도는 코아로깅, BHTV (Borehole Televier), 수리 시험 등의 자료와 지질 자료를 근거하여 선정하였으며, 더블패커를 이용하여 구간을 격리한 후 시료를 채취하였다. 각 시추공의 시료 채취 심도와 시료 개수는 화학분석 자료와 함께 Table 1에 제시하였다. 해수 시료는 처분 부지 인근 해안가 지점 (Sea-1)에서 채취하였다.

현장 측정은 모든 물시료들에 대해 pH, Eh, EC (Electrical Conductivity), DO (Dissolved Oxygen), 알칼리도, 온도 측정이 이루어 졌으며, 알칼리도는 0.05 N 염산을 이용하여 산-염기 적정법으로 측정하였다. 시추공 지하수의 경우는 현장 측정과 시료 채취를 위해 현장 측정 항목이 안정화 될 때까지 충분한 양의 지하수를 양수하였다. 또한 현장 측정 및 시료 채취를 위해서는 공기 접촉을 차단하기 위해 제작된 용기(flow cell)를 사용하였다. 시료 채취는 양이온, 음이온, 산소-수소 동위원소, 탄소 동위원소, 황 동위원소, 삼중수소를 대상으로 수행하였으며, 모든 시료는 0.45 μm 셀룰로즈 막필터로 여과하였다. 특히 양이온 분석용 시료는 고순도 질산을 이용하여 pH를 2이하로 유지하였으며, 탄소 동위원소 분석용 시료는 고순도 염산을 첨가하여 pH를 10이상으로 유지한 후 BaCl₂와 반응시켜 BaCO₃로 침전시켰다. 또한 황 동위원소 분석용 시료는 고순도 염산을 이용하여 pH를 4이하로 낮춘 후에 BaCl₂를 이용하여 BaSO₄로 침전시켰다. 모든 시료는 아이스박스를 이용하여 4℃ 이하로 유지하여 실험실로 운반하였다. 모든 시료채취 및 분석 절차는「APHA」(1995) [4]의 표준 절차를 따랐다. 양이온 분석은 ICP-AES (Ion Coupled Plasma-Atomic Emission Spectrometry)를 이용하여 Na, Ca, Mg, Si를, AAS (Atomic Adsorption Spectrometer)를 이용하여 K와 Fe를 한국기초과학

지원연구원에서 분석하였다. 음이온은 IC (Ion Chromatography)를 이용하여 대전대학교 지질공학 연구소에서 분석하였다. 또한 모든 산소-수소, 탄소, 황 동위원소는 한국기초과학지원연구원에서 분석하였으며 삼중수소는 한국원자력연구원에서 분석하였다. 양/음이온 분석결과 물의 전하균형 (charge balance)은 두 개의 시료를 제외하고는 모두 $\pm 5\%$ 미만으로 매우 양호하였다. 동위 원소 분석 결과 산소 동위원소의 분석 에러는 $\pm 0.1\%$, 수소 동위원소는 $\pm 0.7\%$, 탄소 동위원소는 $\pm 0.1\%$, 황 동위원소는 $\pm 0.2\%$ 로 매우 양호하였다.

수질 자료의 통계 분석은 SPSS12.0 [5]을 사용하였으며, 변수들의 정규성을 검증한 후 정규분포를 이루지 않는 변수는 로그변환을 하여 정규분포에 근접시킨 후 통계분석을 수행하였다.

III. 결과 및 토의

가. 물의 기원

산소-수소 동위원소는 물의 구성 성분이며 혼합과 증발의 영향을 받지 않는다면 지구화학 반응에 의해서 동위원소 조성이 변하지 않기 때문에 물의 기원을 규명하는데 추적자로서 사용되고 있다[6]. 또한 삼중수소는 12.43년의 반감기를 가지며 1950년대 핵실험 이후 그 농도가 크게 증가하였기 때문에 대략적인 물의 연령을 측정하는데 사용되고 있다[6].

Fig. 2에 세계천수선(Global Meteoric Water Line)과 함께 시료들의 산소-수소 동위원소 값을 도시하였다. 일반적으로 해수의 산소-수소 동위원소 값은 각각 0‰에 근접하며, 연구 부지의 해수 역시 유사한 값을 보여주고 있다. 관심 대상인 지표수와 지하수의 동위원소 값은 대부분 세계천수선 상에 군집하여 도시되고 있으며, 지하수 시료들 또한 깊이에 상관없이 지표수와 함께 도시되고 있다. 이는 이들 지표수와 지하수의 기원이 강수에 기인하고 있음을 나타내며, 해수 침투에 의한 직접적인 영향은 없음을 보여주고 있다. 해수 침투 영향을 직접적으로 받았다면 다량의 해수가 유입됨으로 해수의 동위원소 값과 혼합선(mixing line)에 도시되어야 하기 때문이다.

지하수 연령을 나타내는 삼중수소 농도 분포는 Fig. 2에 또한 제시되어 있다. 그림에서 보이는 것과 같이 삼중 수소 농도는 심도 100 m 이상에서 매우 높은 농도 분포를 보여주고 있으며 최고 약 400 TU의 값을 보여주고 있다. 최근 국내 강우의 삼중수소 농도는 10 TU이하로 알려져 있으며 자연 배경치와 유사한 값을 갖는 것으로 알려져 있다[7]. 이를 고려하였을 때 연구 지역의 삼중수소 농도는 매우 높은 값으로 이는 주변에 위치한 월성원전의 영향을 받고 있음을 나타낸다. 반면 100 m 이하에서는 농도가 급격히 감소하여 100 TU 이하의 값을 보여주고 있다. 따라서 100 m 이하의 지하수는 100 m 이상의 지하수보다 상대적으로 오래된 지하수임을 나타내고 있다. 하지만 100 m 이하 지하수 역시 최근 국내 강우의 삼중수소 보다 매우 높은 값을 보여주고 있어 이들 지하수는 1960년 대 이후로 충전되었으며 빠르게는 월성원전 가동 시기인 1983년 이후에 충전된 것으로 판단된다. 이러한 사실은 지하수 충전이 일반적인 심부 대수층보다 비교적 빠르게 일어나고 있음을 지시한다. 이는 또한 지하수의 산소-수소 동위원소 값이 심도에 무관하게 군집되어 유사한 값을 나타내는 요인임을 보여주고 있다.

나. 용질의 기원 및 지구화학 반응

다양한 지구화학 반응에 의해 형성되는 지하수 성분의 기원을 규명하기 위해 우선 파이퍼 다이어그램을 Fig. 3에 제시하였다. 그림에서 보이는 것과 같이 양이온의 상대적인 농도 분포의 경우 Ca가 우세한

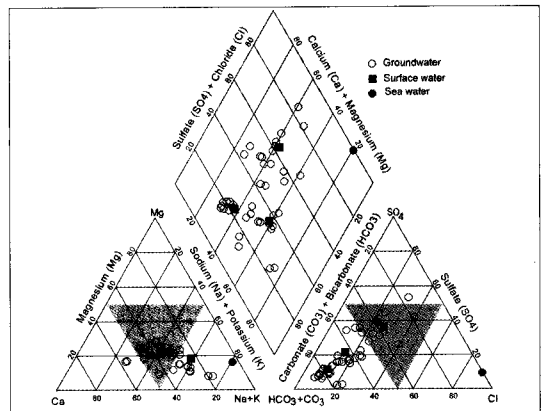


Figure 2. The Piper diagram of water samples in this study

Table 1. The results of water analyses for cation, anion, and environmental isotopes

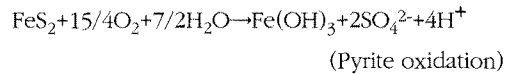
Sample no.	Sampling depth(m)	Temp. (°C)	pH	Eh (mV)	EC (μ S/cm)	DO (mg/L)	Concentration (mg/L)							$\delta^{18}O$ (‰)	δD (‰)	$\delta^{13}C_{org}$ (‰)	$\delta^{34}S$ (‰)	Tritium (T.U.)
							Na	K	Cu	Mg	SiO ₂	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻					
Borehole Groundwater																		
KB-1-1	32.3	16.2	7.03	81.4	103	3.33	12.4	3.2	24.2	4.8	3.9	65.7	2.5	-9.28	-66.2	-	-	113
KB-1-2	107.1	16.6	7.10	9.8	197	1.93	16.9	4.5	40.5	3.9	5.2	84.2	5.9	-7.70	-50.5	-18.7	8.30	78.1
KB-2-1	47.0	16.3	7.30	-38.0	160	0.66	14.6	1.6	60.5	6.8	10.8	61.5	0.3	-7.72	-54.4	-19.5	-	158
KB-2-2	65.0	16.2	7.56	-23.0	150	0.39	13.6	1.7	57.2	6.2	9.3	50.9	0.3	-7.75	-56.1	-	-	160
KB-2-3	81.0	16.1	6.89	-75.3	152	0.03	16.4	1.4	55.4	8.3	9.9	46.6	0.2	-7.74	-56.1	-	-	40.3
KB-2-4	99.0	16.6	6.79	-69.1	147	0.02	17.1	1.5	57.2	8.3	10.0	49.4	0.2	-7.75	-56.3	-17.8	-	39.7
KB-3-1	28.6	15.3	6.39	68.8	158	5.85	16.7	1.9	51.5	11.8	22.0	38.5	1.3	-7.88	-53.9	-18.5	-	14.7
KB-3-2	57.7	15.5	6.52	44.8	169	0.90	16.6	1.7	50.4	6.0	13.3	58.8	2.9	-7.79	-51.7	-	7.00	19.6
KB-5-1	25.0	17.3	8.26	-32.4	276	2.23	15.2	2.2	39.3	8.9	8.6	115.6	0.3	-7.88	-54.8	-	-	4.36
KB-5-2	35.0	16.9	8.38	-83.6	276	0.15	16.1	2.3	39.4	6.9	13.4	111.7	0.2	-7.89	-53.9	-19.0	-	5.92
KB-5-3	45.0	17.3	8.30	-89.2	276	0.31	16.3	2.3	39.2	6.5	10.0	117.2	0.2	-7.84	-53.3	-18.4	6.30	12.3
KB-5-4	85.0	17.5	8.21	-93.4	281	0.20	15.7	2.7	39.8	6.9	8.9	124.0	0.1	-7.84	-53.3	-	-	14.2
KB-5-5	105.0	17.9	8.19	-100.9	282	0.10	17.0	2.4	20.9	7.0	11.3	111.3	0.2	-7.96	-52.8	-17.5	-	11.1
KB-5-6	130.0	17.5	8.18	-80.8	275	0.14	18.7	2.3	20.7	7.0	12.4	118.7	0.3	-7.79	-52.6	-18.6	6.20	6.47
KB-5-7	160.0	18.9	8.35	-109.0	276	0.20	15.3	2.1	21.4	7.1	9.0	114.9	0.1	-7.85	-54.9	-	7.10	5.60
KB-6-1	25.6	15.5	7.37	-32.3	259	0.73	16.9	2.5	40.8	7.4	9.4	103.5	0.7	-7.87	-53.7	-17.7	6.60	34.2
KB-6-2	38.0	15.4	7.38	-33.8	260	2.72	16.5	2.5	41.3	10.4	10.1	102.0	0.8	-7.77	-47.9	-	-	11.1
KB-7-1	45.0	15.1	7.38	19.0	169	2.50	14.6	3.3	38.8	13.3	20.7	35.0	0.0	-7.47	-48.4	-	-	178
KB-7-2	60.0	15.3	7.55	-82.6	171	0.30	16.1	2.1	39.8	21.6	31.1	17.5	0.0	-7.64	-52.2	-	-	192
KB-7-3	75.0	15.5	7.67	-85.5	182	0.30	16.4	2.1	40.3	12.9	17.9	55.3	0.0	-7.68	-48.6	-	-	132
KB-7-4	95.0	15.1	7.72	-73.0	187	0.24	16.9	2.2	41.8	9.8	13.0	70.8	0.0	-7.67	-52.3	-	-	40.3
KB-7-5	105.0	15.1	7.67	-85.2	203	0.30	17.9	2.1	46.6	15.6	17.9	65.8	0.1	-7.70	-50.0	-	-	21.2
KB-7-6	115.0	15.7	7.75	-99.7	178	0.25	15.7	2.2	39.4	6.9	10.4	71.9	0.0	-7.70	-50.7	-	-	18.9
KB-7-7	125.0	15.0	7.70	-95.6	201	0.21	17.5	2.0	46.1	20.1	21.4	52.5	0.1	-7.69	-51.7	-	-	24.5
KB-10-1	45.0	16.1	6.09	-43.2	178	0.57	18.7	1.4	42.7	19.4	17.4	29.4	1.2	-7.55	-52.2	-	-	196
KB-10-2	55.0	16.2	6.20	-112.8	179	0.80	18.2	2.0	43.3	10.3	10.3	55.7	1.1	-7.63	-54.0	-	-	204
KB-10-3	65.0	16.2	6.18	-119.1	173	0.72	18.3	1.8	45.5	10.9	12.4	51.9	0.0	-7.55	-52.2	-	-	112
KB-10-4	240.0	16.8	6.16	-140.4	171	0.20	16.9	1.2	44.9	10.8	11.4	43.2	0.6	-7.62	-52.6	-20.6	5.80	31.1

Table 1. continued

Sample no.	Sampling depth(m)	Temp. (°C)	pH	Eh (mV)	EC (µS/cm)	DO (mg/L)	Concentration (mg/L)							δ ¹⁸ O (‰)	δD (‰)	δ ¹³ C _{org} (‰)	δ ³⁴ S (‰)	Tritium (T.U.)		
							Na	K	Ca	Mg	SiO ₂	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻						Alkalinity	Fe
Borehole Groundwater																				
KB-11-1	40.0	17.4	6.01	60.3	448	1.51	31.1	5.2	26.8	11.8	49.8	23.3	60.0	114.6	0.3	-7.64	-53.5	-	-	332
KB-11-2	50.0	18.1	6.04	115.4	447	1.98	30.5	5.5	26.2	11.6	48.2	31.0	79.9	72.6	0.0	-7.62	-49.6	-	-	299
KB-11-3	75.0	19.4	6.88	83.7	409	2.30	30.0	5.5	24.9	11.2	45.6	28.5	67.5	84.6	0.0	-7.60	-52.8	-	-	248
KB-11-4	85.0	18.1	6.05	41.3	469	2.10	30.7	5.0	26.3	11.6	49.4	28.8	73.8	84.1	0.5	-7.59	-49.6	-	5.30	75.5
KB-11-5	95.0	16.8	6.10	2.5	384	1.60	29.1	5.0	24.3	10.7	45.7	25.6	63.5	87.8	0.0	-7.55	-46.5	-	-	80.4
KB-11-6	130.0	18.1	6.07	12.4	435	0.80	28.5	4.3	23.1	10.0	46.4	37.0	86.3	32.1	4.4	-7.60	-47.6	-20.9	5.60	45.5
KB-13-1	32.0	18.6	5.82	42.8	197	10.6	27.4	1.1	6.6	1.6	42.5	12.2	2.0	79.7	1.0	-7.97	-49.6	-	12.9	394
KB-13-2	104.5	18.4	5.83	11.6	192	10.0	28.5	1.0	5.8	1.6	44.2	13.8	2.1	77.0	0.6	-7.73	-52.2	-20.8	-	374
KB-14-1	20.0	14.2	7.46	-33.7	293	2.96	20.0	7.0	21.6	2.6	35.6	12.2	18.5	96.6	0.0	-7.97	-52.4	-21.9	-	253
KB-14-2	40.0	14.6	8.03	-43.8	294	2.94	20.9	6.6	20.9	2.6	37.1	12.4	18.7	94.6	0.0	-7.81	-52.5	-	-	226
KB-14-3	135.0	15.0	9.85	-115.4	305	0.30	22.4	9.6	25.6	1.9	27.4	14.4	29.2	51.7	0.0	-7.72	-50.7	-23.2	4.40	77.5
KB-14-4	150.0	15.0	11.1	-159.6	436	0.25	21.1	9.6	38.5	1.2	25.9	71.8	16.0	0.0	0.0	-7.78	-53.5	-	3.60	40.4
KB-14-5	164.0	15.2	10.0	-125.2	261	0.22	17.8	5.3	20.6	1.5	23.6	10.6	22.7	35.4	0.0	-7.68	-51.0	-	-	38.8
KB-14-6	180.0	15.0	8.43	-181.7	269	0.21	17.3	5.6	17.5	5.6	30.1	7.6	12.4	101.8	0.0	-7.66	-51.4	-19.4	-	20.3
KB-15-1	25.3	16.2	8.07	-12.1	192	0.34	12.7	2.2	16.2	3.8	40.1	9.2	29.1	50.7	1.2	-7.63	-52.7	-	-	274
KB-15-2	41.3	15.5	7.39	-82.5	203	10.2	12.2	2.0	13.6	4.2	42.7	13.4	21.3	47.0	1.9	-7.73	-53.4	-18.0	6.20	235
KB-16-2	25.8	15.7	8.23	-11.5	256	0.94	14.0	2.4	28.9	5.1	37.2	7.9	40.6	85.1	0.1	-7.68	-53.2	-21.7	6.30	15.3
KB-16-2	63.2	16.7	8.17	-80.0	252	14.2	13.9	2.2	27.4	5.0	37.7	10.8	41.1	74.8	0.0	-7.65	-52.7	-	-	38.0
Surface Water																				
SW-1	-	21.0	7.33	-7.2	149	11.3	9.3	1.4	10.1	2.9	16.6	4.5	6.5	55.4	0.0	-7.81	-53.3	-14.7	2.20	33.2
SW-2	-	17.8	7.06	8.2	153	10.4	15.4	1.0	5.5	2.6	28.8	6.2	12.2	45.5	0.0	-7.46	-49.1	-16.3	-	32.1
SW-3	-	19.9	7.71	0.7	224	6.58	15.6	1.9	12.7	4.4	22.1	16.3	29.7	38.3	0.0	-7.29	-48.5	-15.2	-	351
Sea Water																				
Sea-1	-	25.0	8.13	-54.7	52600	5.07	9119.1	550.8	322.0	996.8	1.1	19357.2	2687.5	183.6	0.0	-0.04	2.37	-4.70	20.6	78.6

시료는 단 두 개이면 대부분 Ca-Na가 유사한 비율을 보여주거나 Na가 우세한 비율을 보여주고 있다. 음이온의 경우 HCO₃가 우세하거나 HCO₃-SO₄-Cl이 혼합되어 있는 것을 보여주고 있으며, 해수만이 Cl이 우세한 비율을 차지하고 있다. 이러한 경향은 지표수에서도 유사하게 보여지고 있다. 일반적으로 지표수는 반응 속도가 빠른 방해석과 같은 탄산염 광물과 반응을 하여 Ca-HCO₃ 유형을 보여주게 되며, 탄산염 광물은 그 양이 적더라도 빠른 반응 속도에 의해 수질을 조절하는 중요 요인이다. 하지만 본 지역에서는 지표수 역시 지하수와 유사한 경향을 보여주는 것으로 보아 Na, SO₄, Cl의 비율을 증가시키는 다른 작용이 있음을 지시하고 있다. 따라서 지하수 이온 농도를 이용하여 상관관계 분석을 수행하여 용질들의 기원을 유추해보고자 하였다. 상관관계 결과는 Table 2에 제시하였다. 표에 보이는 것과 같이 지하수내 용질의 양을 나타내는 EC는 Na, K, Ca, Mg, Cl, SO₄, 알칼리도와 양의 상관성을 보여주고 있다. 일반적으로 물-암석 반응이 진행될수록 용질의 양이 많아지기 때문에 EC 값은 증가하게 되며 또한 연구 지역과 같이 규산염 광물로 대수층이 구성되어있을 때는 Si 농도도 함께 증가하게 된다. 하지만 본 연구에서는 표에서 보이는 것과 같이 EC값은 Si 농도와 상관성을 보여주지 않고 있다. 이는 앞서 언급한 것과 같이 지하수 충전이 비교적 빠르기 때문에 규산염 광물과 평형을 이루어 충분히 반응하지 못했음을 나타낼 뿐만 아니라 용존 이온의 농도는 물-암석반응에 의해 주로 증가하는 것이 아니라 다른 요인이 있음을 나타낸다. 이러한 요인은 Cl과 Na의 상관관계에서 찾아볼 수 있는데 해수의 주성분인 Na와 Cl이 높은 상관성을 보여주고 있어 본 연구지역이 해안가에 접하고 있는

것으로 판단해 볼 때 해염의 영향으로 판단된다. SO₄ 또한 Cl과 매우 높은 상관성을 보여주고 있다. 이는 SO₄의 기원이나 거동이 Cl과 유사함을 나타낸다. SO₄는 또한 다음과 같은 반응식과 같이 용존 산소와 반응하는 황철석의 산화에 의해 기인하기도 한다.



따라서 본 연구 지역에서는 황철석이 분포하고 있기 때문에 황철석 산화에 의한 SO₄의 증가도 존재할 것으로 판단된다.

알칼리도는 Ca, Mg와 양의 상관성을 보여주고 있다. 이는 다음 반응식과 같이 방해석이나 돌로마이트의 용해 반응에 의해 Ca, Mg, 알칼리도의 농도가 증가하는 것으로 보이며, 이들 탄산염 광물은 앞서 언급한 것과 같이 매우 빠른 반응 속도 때문에 소량이 존재하더라도 수질에 미치는 영향이 매우 크다. 또한 Ca는 본 연구 지역 구성 광물인 사장석의 주요 원소로 사장석의 용해에 의해서도 Ca와 알칼리도는 양의 상관성을 보여줄 수 있다.

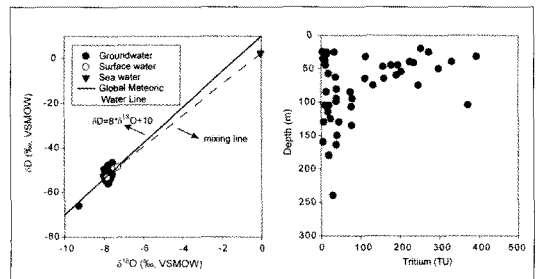


Fig. 3. The plots of δ¹⁸O vs. δD and depth vs. Tritium

Table 2. The result of correlation analysis

	EC	Na	K	Ca	Mg	Si	Cl	SO ₄	Alk.
EC	1								
Na	0.67	1							
K	0.72	0.45	1						
Ca	0.84	0.25	0.72	1					
Mg	0.85	0.37	0.81	0.87	1				
Si	0.19	0.45	0.14	0.02	-0.07	1			
Cl	0.59	0.72	0.48	0.31	0.43	0.30	1		
SO ₄	0.62	0.36	0.68	0.59	0.60	0.19	0.70	1	
Alk.	0.54	0.18	0.32	0.63	0.56	0.00	-0.21	-0.15	1

*: alkalinity

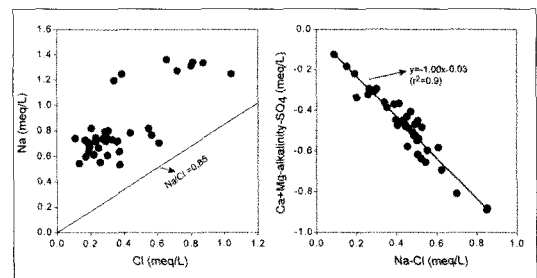
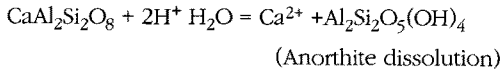
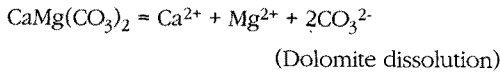
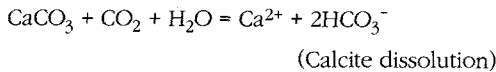
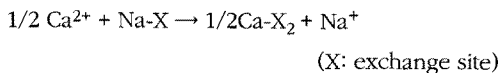


Fig. 4. The plots of Cl vs. Na and Na-Cl vs. Ca+ Mg-alkalinity-SO₄



하지만 앞서 살펴본 것과 같이 본 연구 지역의 수질 유형은 대부분 Ca가 상대적으로 적고 Na가 많은 유형을 보여주었으며, 이는 Na의 증가 요인이 있음을 보여주었다. 일반적으로 해수의 Na/Cl 몰비는 0.85를 보여주며, 해염의 영향을 받았다면 해수의 Na/Cl 비를 나타나게 된다. 하지만 Fig. 4에서 보이는 것과 같이 연구 지역 지하수의 Na/Cl 비는 해수의 비율보다 높으며 이는 해염 외의 Na를 증가시키는 작용이 있음을 보여준다. 이는 다음 반응과 같이 양이온 교환 반응으로 설명될 수 있다[8].



위와 같이 양이온 이온 교환이 우세한 지구화학 반응일 경우 Na-Cl과 Ca+Mg-alkalinity-SO₄ 관계는 기울기 -1의 선형관계를 보여주는 것으로 알려져 있다 [9]. 본 연구 지역의 지하수 역시 Fig. 4에서 보이는 것과 같이 기울기 -1의 뚜렷한 선형관계를(r²=0.9) 보여주고 있다. 따라서 Na의 증가요인은 양이온 교환 반응에 기인하고 있으며, 이로 인해 Na가 우세한 수질이 형성되고 있음을 알 수 있다.

다. 산화-환원 반응

방사성 폐기물 처분장에서 산화-환원 조건은 핵종의 용해도와 이동도에 영향을 미치기 때문에 고려해야 할 매우 중요한 요소 중 하나이다. 특히 환원환경에서는 핵종의 용해도가 매우 낮기 때문에 SKB의 경우 처분장의 Eh 조건을 0 mV 이하로 제시하고 있다 [10]. 따라서 여기서는 연구 부지의 산화-환원 조건과 이를 결정하는 요인이 무엇인지 살펴보고자 하였다.

일반적으로 지하수에서 산화-환원에 민감한 원소

는 O₂, NO₃, Mn, Fe, SO₄, H₂S, CH₄ 등으로 잘 알려져 있다. 또한 이들 원소와 관련된 산화-환원 반응에는 유기물이 주로 관여하며 산소 소모, 탈질 반응, Fe-Mn 환원, SO₄ 환원 등의 순서로 발생하는 것으로 알려져 있다[11]. 이들 반응은 Table 3과 같으며 이들 반응에 의해 지하수의 산화-환원 조건이 주로 결정되게 된다. Fig. 5에서 보이는 것과 같이 DO는 관정의 심도가 깊어짐에 따라 감소하고 있음을 볼 수 있으며, Eh 값 또한 DO와 유사한 경향을 보여 주고 가장 깊은 심도인 약 250 m에서는 약 -150 mV의 매우 낮은 값을 보여주고 있다. 이는 심도가 깊어짐에 따라 환원 환경이 형성되고 있음을 나타내며, 이에 따라 Fe와 Mn의 농도 또한 높아 Fe와 Mn 산화물의 환원 반응이 연구 지역 지하수의 산화-환원 조건을 결정하고 있음을 알 수 있다. 이러한 환원 반응은 유기물 산화와 관련되어 있기 때문에 탄소 동위원소 결과로도 환원 반응이 일어나고 있음을 알 수 있다. 본 연구 지역 지하수의 탄소 동위원소 값은 Table 1에서 보이는 것과 같이 평균 -19.5 ‰이며 최소 -23.2‰에서 최고 -17.5‰의 값을 보여주고 있다. 반면 처분부지 단열대에 분포하는 탄산염 광물의 탄소 동위원소 값은 평균 -12.2‰이며 최소 -18.6‰에서 최고 -8.4‰로 지하수 보다 높은 값을 보여주는 것으로 보고되고 있다[3]. 이는 지하수의 탄소 동위원소 값이 탄산염 광물의 용해에 의해서만 형성된 것이 아니고 유기물의 산화가 우세하여 탄소 동위원소 값이 낮아졌음을 잘 보여주고 있다. 왜냐하면 일반적으로 유기물 산화에 의한 탄소 동위원소 값은 약 -25‰로 알려져 있기 때문이다[6].

유기물 산화가 활발한 환원 환경에서 Fe와 Mn 산화물의 환원 반응 다음으로 SO₄ 환원반응을 고려할 수 있다. 하지만 앞서 살펴본 것과 같이 SO₄는 지구 화학 반응에 참여하지 않는 보존성 원소인 Cl과 높은 상관성을 보여주고 있었으며, 또한 Fig. 5에서 보이는 것과 같이 두 이온은 뚜렷한 선형관계를 보여

Table 3. The sequential redox reaction related with redox sensitive elements

Aerobic respiration	CH ₂ O + O ₂ = CO ₂ + H ₂ O
Denitrification	5CH ₂ O + 4NO ₃ ⁻ + 4H ⁺ = 2N ₂ + 5CO ₂ + 10H ₂ O
Mn reduction	CH ₂ O + 2MnO ₂ + 4H ⁺ = 2Mn ²⁺ + CO ₂ + 3H ₂ O
Fe reduction	CH ₂ O + 4FeOOH + 8H ⁺ = 4Fe ²⁺ + CO ₂ + 7H ₂ O
Sulfate reduction	2CH ₂ O + SO ₄ ²⁻ + H ⁺ = HS ⁻ + 2CO ₂ + 2H ₂ O
Methane fermentation	2CH ₂ O = CH ₄ + CO ₂

주고 있다. 이는 SO_4 가 환원 반응에 의해 지하수 내에서 농도가 감소하지 않고 Cl과 함께 보존적인 거동을 보여주고 있음을 나타낸다. 이러한 결과는 또한 지하수의 SO_4 와 황철석의 황 동위원소 값으로 확인할 수 있다. 왜냐하면 일반적으로 SO_4 환원이 우세하게 발생하면 지하수 내 SO_4 농도는 감소하고 황 동위원소 값은 무거운 지기 때문이다[12]. Table 1에서 보이는 것과 같이 연구 지역 지하수의 황 동위원소는 각 관정에서 매우 유사한 값을 보여주고 있으며, 평균 6.5‰값을 가지고 최소 3.6‰에서 최고 12.9‰의 값을 보여주고 있다. 또한 연구 지역 황철석의 황 동위원소 값은 평균 4.3‰이며 최소 1.7‰에서 최대 9.8‰의 값을 갖는 것으로 알려져 있다 [3]. 이는 지하수와 황철석의 황 동위원소가 유사한 값의 범위를 보여주는 것으로 보아 황철석의 동위원소 조성을 그대로 반영하고 있음을 보여주고 있다.

따라서, 연구 지역 지하수의 환원 조건은 Fe와 Mn 산화물의 환원 반응에 의해 주로 형성되고 있음을 보여주고 있다.

IV. 결론

본 연구는 방사성폐기물 처분장의 수리지구화학

특성을 규명함으로써 지하수 수질을 결정하는 요인을 규명하고자 하였다. 연구 결과 연구 지역 지하수의 수질은 물-암석 반응, 해염의 영향과 양이온 교환 반응에 의해 수질이 결정되고 있었다. 또한 연구 지역의 산화-환원 조건은 철과 망간 산화물의 환원 반응에 의해 주로 결정되고 있었다. 이러한 결과들은 장기간에 걸친 기후 변화와 관련하여 지하수 지구화학 조건 변화를 평가하는데 고려해야 할 점을 제시하고 있다. 기후 변화가 지하수에 미치는 영향은 크게 지하수 충전 특성의 변화와 더불어 해수면 상승에 의한 해수 침투를 고려할 수 있다. 해수 침투가 발생할 때 흔히 관찰되는 지구화학 반응은 이온교환과 방해석과 같은 탄산염의 용해-침전 반응이다. 이온교환은 용질의 운송을 조절하는 중요한 반응이며, 탄산염의 용해-침전은 pH 변화에 영향을 미치게 된다. 또한 해수 침투에 의한 고농도의 SO_4 유입과 더불어 SO_4 환원 반응 역시 흔히 관찰되는 현상으로 이는 지하수의 산화-환원 조건에 영향을 미치게 된다. 따라서 처분 부지의 안전성 평가를 위해서는 현재 수리지구화학 특성을 바탕으로 예상되는 지구화학 반응을 고려하여 지하수의 장기적인 안정성을 예측해야 할 것으로 판단된다.

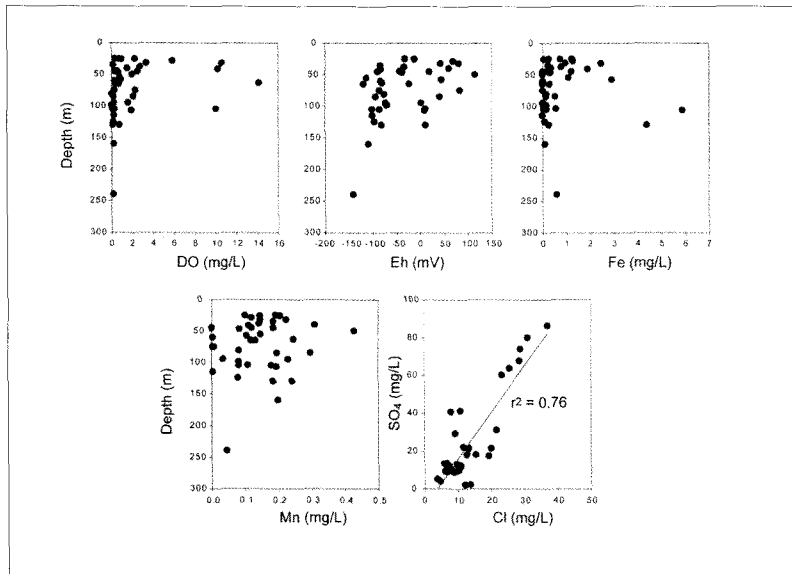


Fig. 5. The plots of DO, Eh, Fe, and Mn vs. depth and Cl vs. SO_4

참고문헌

- [1] M. Gascoyne and M. Laaksoharju, " High-level radioactive waste disposal in Sweden: Hydrogeochemical characterisation and modelling of two potential sites," Applied Geochemistry, 23, 1745-1746(2008).
- [2] M. Gascoyne, S. Stroes-Gascoyne and F.P. Sargent, "Geochemical influences on the design, construction and operation of a nuclear waste vault," Applied Geochemistry, 10, 657-671(1995).
- [3] 한국수력원자력, 중·저준위 방사성 폐기물 처분시설 안전성 분석 보고서(2007).
- [4] APHA, AWWA, and WEF, Standard methods for the examination of water and wastewater, 19th. ed. APHA publication (1995).
- [5] SPSS Inc., Statistical Package for the social science, Chicago, IL 60606(2002).
- [6] I.D. Clark and P. Fritz, Environmental isotopes in hydrogeology, CRC Press, Boca Raton, 328 pp(1997).
- [7] IAEA (International Atomic Energy Agency), Isotope Hydrology Information System. The ISOHIS Database. Accessible at <http://isohis.iaea.org>(2004)
- [8] Appelo, C.A.J. and Postma, D., Geochemistry, Groundwater and Pollution. Balkema, Rotterdam. 536 pp(1994).
- [9] R.S. Fisher, F. William, and I. Mullican, "Hydrochemical evolution of sodium-sulfate and sodium-chloride groundwater beneath the northern Chihuahuan Desert, Trans-Pecos, Texas, USA", Hydrogeology Journal 5, 4-16(1997).
- [10] SKB, Hydrochemical stability of groundwaters surrounding a spent nuclear fuel repository in a 100,000 year perspective. TR-01-28(2001).
- [11] W. Stumm and J.J. Morgan, Aquatic Chemistry: Chemical equilibria and rates in natural waters, John Wiley & Sons, INC. 3rd ed(1996).
- [12] H.R. Krouse and B. Mayer, "Sulphur and oxygen isotopes in sulphate", In: Cook, P.G. and Herczeg, A.L. (Eds), Environmental Tracers in Subsurface Hydrology (pp 195-231). Kluwer Academic Publisher, Boston (2000).