



Special Review on “Geological and Environmental Sciences for Sustainable Nuclear Energy”

Review of Thermodynamic Sorption Model for Radionuclides on Bentonite Clay

Jeonghwan Hwang^{1,*}, Jung-Woo Kim¹, Weon Shik Han², Won Woo Yoon², Jiyong Lee², Seonggyu Choi³

¹Disposal Safety Evaluation Research Division, Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI)

²Department of Earth System Sciences, Yonsei University

³Disposal Performance Demonstration R&D Division, Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI)

*Corresponding author : hwangjh@kaeri.re.kr

ARTICLE INFORMATION

Manuscript received 22 September 2023
Received in revised form 13 October 2023
Manuscript accepted 16 October 2023
Available online 30 October 2023

DOI : <http://dx.doi.org/10.9719/EEG.2023.56.5.515>

Research Highlights

- Thermodynamic sorption models are based on cation exchange and surface complexation mechanisms.
- Sorption parameters for U, Am, Se, Eu on bentonite were related to experimental conditions.
- Optimized sorption models in specific conditions have large uncertainty for application to various environments.

ABSTRACT

Bentonite, predominantly consists of expandable clay minerals, is considered to be the suitable buffering material in high-level radioactive waste disposal repository due to its large swelling property and low permeability. Additionally, the bentonite has large cation exchange capacity and specific surface area, and thus, it effectively retards the transport of leaked radionuclides to surrounding environments. This study aims to review the thermodynamic sorption models for four radionuclides (U, Am, Se, and Eu) and eight bentonites. Then, the thermodynamic sorption models and optimized sorption parameters were precisely analyzed by considering the experimental conditions in previous study. Here, the optimized sorption parameters showed that thermodynamic sorption models were related to experimental conditions such as types and concentrations of radionuclides, ionic strength, major competing cation, temperature, solid-to-liquid ratio, carbonate species, and mineralogical properties of bentonite. These results implied that the thermodynamic sorption models suggested by the optimization at specific experimental conditions had large uncertainty for application to various environmental conditions.

Keywords : bentonite, radionuclide, thermodynamic sorption model, deep geological disposal repository, engineered barrier system

Citation: Hwang, J., Kim, J.-W., Han, W.S., Yoon, W.W., Lee, J., Choi, S. (2023) Review of Thermodynamic Sorption Model for Radionuclides on Bentonite Clay. *Korea Economic and Environmental Geology*, v.56, p.515-532, doi:10.9719/EEG.2023.56.5.515.

✉ Journal homepage: <http://www.kseeg.org/main.html>

This is an Open Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided original work is properly cited.
pISSN 1225-7281; eISSN 2288-7962/©2023 The KSEEG. Printed by Hanrimwon Publishing Company. All rights reserved.

해설 (“원자력과 지질환경과학” 특별호)

벤토나이트와 방사성 핵종의 열역학적 수착 모델 연구

황정환^{1,*} · 김정우¹ · 한원식² · 윤원우² · 이지용² · 최승규³

¹한국원자력연구원 저장처분기술개발부

²연세대학교 지구시스템과학과

³한국원자력연구원 저장처분성능검증부

*책임저자 : hwangih@kaeri.re.kr

요 약

벤토나이트는 고준위 방사성폐기물 처분을 위한 심층처분 시스템에서 처분용기와 암반 사이를 메우는 완충재로 고려되는 팽창성 점토이다. 벤토나이트는 높은 양이온교환능과 비표면적을 가지고 있기 때문에, 처분용기로부터 핵종이 누출될 경우, 수착하여 암반으로의 유출을 지연시키는 역할을 한다. 본 연구에서는 여러 선행연구에서 8종류의 벤토나이트를 사용하여 수행된 U, Am, Se, Eu 핵종의 수착실험 및 모델 자료를 취합하고, 각 연구에서 설정된 실험 조건들을 기반으로 열역학적 수착모델의 특성을 평가하였다. 핵종과 벤토나이트 간의 수착 거동 해석에 중요한 역할을 하는 열역학적 수착모델은 벤토나이트의 광물학적 특성뿐만 아니라 핵종 농도, 용액의 이온강도, 주 양이온, 온도, 고액비, 용존 탄산 농도 등 세부적인 실험 조건과 밀접하게 연관되어 있는 것으로 확인되었다. 이러한 결과는 특정 실험 조건에서 수행된 수착실험 및 모델의 최적화로 제안되는 수착 반응식과 반응상수가 다양한 환경 조건에 적용하기에 불확실성이 크다는 것을 의미한다. 따라서, 심층처분 시스템에 적용가능한 열역학적 수착모델을 구축하기 위해서는 현장 조사 및 실험이 함께 수행되어야 한다.

주요어 : 벤토나이트, 방사성핵종, 열역학적 수착모델, 심층처분 시설, 공학적방법

1. 서 론

세계적으로 기후변화에 대한 관심이 높아짐에 따라, 친환경에너지로서 원자력발전의 필요성에 대한 관심이 증가하고 있다. 원자력발전은 우리나라 연료봉에서 발생하는 방사성 붕괴열을 이용하여 증기 터빈을 가동하는 방식으로, 화석연료에 비해 이산화탄소 배출량이 적기 때문에 기후변화에 대응하는 대체 에너지로 기여할 수 있다 (Dincer and Acar, 2015; Liu et al., 2022; Sadekin et al., 2019; Zhan et al., 2021). 하지만 친환경에너지로서 원자력이 받아들여지기 위해서는 발전소 운영에 의해 발생하는 사용후핵연료의 안전한 처분과 관리가 반드시 필요하다 (Birkholzer et al., 2012; IAEA, 2022). 한국에서도 2021년 ‘제2차 고준위 방사성폐기물 관리 기본계획’을 수립하는 등 큰 관심을 보이고 있다 (MOTIE, 2021).

국내 원자력안전법에 의하면, 방사성폐기물 중 반감기 20년 이상의 알파선을 방출하는 핵종으로 방사능농도가 4000 Bq/g 이상이며, 이와 동시에 열발생률이 2 kW/m³ 이상인 경우 고준위 방사성폐기물로 분류된다. 즉, 장반감기 방사성핵종이 다량 포함되어 있는 사용후핵연료 그 자체와 후속 처리공정에서 발생하는 부산물이 고준위 방사성폐기물로 분류될 수 있으며, 원자력시설을 운영하는

많은 국가에서 IAEA 지침과 해당국의 법적 근거에 따라 고준위 방사성폐기물을 특별히 관리하고 있다 (IAEA, 2022; Silverio and de Queiroz Lamas, 2011). 이러한 고준위 방사성폐기물이 생태계에 미칠 수 있는 방사선 위험영향을 배제하기 위해서는 폐기물에서 방출되는 방사능이 자연 방사능과 비슷한 수준으로 감소할 때까지 최소 만 년 이상 안전한 시설에 격리하는 것이 필요하며 (IAEA, 2003), 많은 국가에서 안전성과 경제성을 동시에 담보할 수 있는 공학적 해결방안으로 심층처분을 고려하고 있다 (IAEA, 2009; IAEA, 2011).

심층처분은 지질학적 조건이 안정적인 지하 500-1,000m의 심부 암반층에 다중 방벽으로 구성된 처분 시스템을 건설하고 방사성폐기물을 처분하는 것을 의미한다 (Chen et al., 2017). 심층처분 시스템은 사용후핵연료를 포장하는 처분용기, 처분용기와 암반 사이의 공간과 터널을 메우기 위한 완충재 및 뒷채움재로 구성되는 공학적방벽과 처분시스템이 위치한 심부 기반암의 천연방벽으로 이루어진 다중방벽 개념을 적용하여, 약 1만 년 이상의 장기적인 처분 기간 동안 방사성폐기물을 영구적으로 격리하고 인간 생활권으로의 유출을 방지하도록 설계된다 (KAERI, 2008; NEA, 2003).

공학적방벽 중, 벤토나이트 완충재는 팽창성 2:1 광물

인 몬모릴로나이트를 주요 조성 광물로 가진 점토를 지칭하며, 처분용기와 처분공 사이의 빈 공간을 채워 처분용기를 고정시키고, 암반의 전단 거동과 같은 물리적 충격으로부터 처분용기를 보호하며, 지하수 침투의 지연 및 처분용기가 기능을 상실할 경우 유출된 방사성핵종에 대한 높은 수착성능을 제공함으로써 주변 암반으로의 핵종 이동을 지연시키는 역할을 수행한다 (Bradbury and Baeyens, 2011; Lee et al., 2017; Samper et al., 2008; Zheng et al., 2017; Zheng et al., 2011). 몬모릴로나이트는 낮은 수리전도도와 높은 양이온 교환 및 비표면적을 가지고 있어서 방사성핵종을 효과적으로 수착하여 이동을 지연시킬 수 있다 (Kale and Ravi, 2019; Kaufhold and Dohrmann, 2016; Marty et al., 2010; Samper et al., 2008). 벤토나이트의 핵종 수착은 양이온교환능, 비표면적과 같은 광물학적 특성과 더불어, 유출되는 핵종의 종류, 지하수의 pH, Eh, 온도, 이온강도, 탄산염 농도 등 수리화학적 특성에도 영향을 받는다 (Bradbury and Baeyens, 2006; Bradbury and Baeyens, 2011; Fernandes et al., 2012; Grambow et al., 2006; Missana et al., 2021; Missana et al., 2014; Tournassat et al., 2018; Yang et al., 2010).

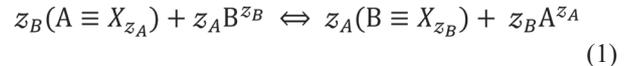
점토광물에 대한 용존 방사성핵종의 화학적 수착기작은 크게 점토광물의 층간 구조에서 일어나는 양이온 교환반응과 더불어, 광물 표면 작용기에 대한 표면 착화반응으로 구분된다 (Dzombak and Morel, 1991; Gaines and Thomas, 1953). 이후, 양이온 교환과 표면 착화 기작에 대한 세부 수착모델이 구현되었으며, 이들을 결합하거나 세분화함으로써 다양한 열역학적 수착모델이 개발 및 제시되어 왔다 (Bradbury and Baeyens, 2005; Fuller et al., 2014; Grambow et al., 2006; Missana et al., 2004; Pabalan and Turner, 1996; Steefel et al., 2003; Tournassat et al., 2018; Zavarin et al., 2022). 하지만 대부분의 열역학적 수착모델은 각 선행연구의 실험 조건을 반영한 지화학적 조건에 의해 보정되기 때문에 연구마다 제안하는 열역학적 데이터가 상이하다. 본 연구는 심층처분 시스템에서 고려되는 벤토나이트 내 핵종 수착에 대한 열역학 데이터베이스 및 지화학 반응 모델 구축을 위한 기초연구의 관점에서, 선행연구에서 다양한 벤토나이트 점토를 사용하여 수행된 실험결과와 열역학적 수착모델을 비교 분석하였다. 특히, U, Eu, Am, Se 핵종에 대한 다양한 수착 선행연구를 취합하였으며, 각 연구에서 설정된 실험 조건들을 기반으로 열역학적 수착모델의 특성을 평가하였다.

2. 열역학적 수착모델

2.1. 양이온 교환 (Cation Exchange, CE) 모델

양이온 교환반응은 벤토나이트 공극수 혹은 심부 지하수의 온도, 주 용존 양이온, 이온강도 등에 따라 방사성 핵종의 수착/이동에 큰 영향을 미칠 수 있다. 양이온 교환모델은 점토 광물의 수착 기여도 및 특성을 평가하기 위해서 점토광물의 층간 혹은 표면에 분포한 양이온과 주용존 핵종 간의 이온 교환 기작을 적용하여 수착 등온선을 해석하는 모델이다.

양이온 교환모델은 점토광물의 표면이 영구적인 음전하 ($\equiv X^-$)를 가지며, 점토광물의 표면 혹은 층간에 있는 양이온이 이들을 보상하고 정전기적 평형을 유지한다는 가정을 가진다 (Bradbury and Baeyens, 1997). 이러한 층간 양이온은 점토광물을 둘러싼 수용액에 존재하는 양이온과 양이온 교환반응을 하게 되며 이러한 반응을 통하여 양이온의 형태로 존재하는 방사성핵종이 수착된다. 예를 들어, 원자기가 z_A 인 양이온 A가 점토 광물의 표면에 위치하고, 주변 용액에 존재하는 원자가 z_B 를 갖는 양이온 B가 광물 표면에 부착된 양이온 A를 대체할 때 이러한 반응은 Gaines and Thomas의 질량 반응 법칙에 따라 아래 식으로 표현된다 (Gaines and Thomas, 1953).



위 양이온 교환반응에 대한 평형상수는 선택계수 (${}^B_A K_{SEL}$)로 정의되는데, 이 값은 점토 표면에서 양이온 A에 대한 양이온 B의 상대적인 수착 친화도를 정량적으로 나타낸 수치이며, 아래와 같은 식으로 표현할 수 있다.

$${}^B_A K_{SEL} = \frac{(N_B)^{z_A} \cdot (a_A)^{z_B}}{(N_A)^{z_B} \cdot (a_B)^{z_A}} \quad (2)$$

여기서, a_A 및 a_B 는 용액에 용해된 양이온 A 및 B의 활성도를 나타내며, 이 값은 활성 계수 (activity coefficient)와 용존 농도의 곱으로 표시된다 (즉, $\gamma_A \cdot [M_A]_{sol}$ 및 $\gamma_B \cdot [M_B]_{sol}$). N_A 와 N_B 는 양이온 A와 B의 등가분율을 지칭하며, 양이온들의 수착당량 ($[M_A]_{sorb}$ 및 $[M_B]_{sorb}$)을 점토 광물의 양이온교환능 (CEC, eq kg⁻¹)에 나눈 값으로 표현된다 (Bradbury and Baeyens, 2000). 이후, 선행 수착계수인 K_d ($K_d = C_s/C_w$, 단, C_s [mol kg⁻¹]와 C_w [mol L⁻¹])는 수착 평형상태에서 각 양이온의 수착 농도와 용존 농도를 나타낸 값을 사용하여 수착당량을 수정하면 아래와 같은 식으로 표현된다.

$$N_A = \frac{z_A \cdot K_{d,A} \cdot [M_A]_{sol}}{CEC} \quad N_B = \frac{z_B \cdot K_{d,B} \cdot [M_B]_{sol}}{CEC} \quad (3)$$

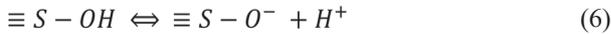
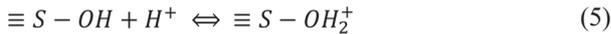
마지막으로, 해당 수용액의 시스템을 양이온 A와 B만 존재하는 이중 이온교환 시스템 (Bi-ionic exchange system) 으로 가정하면, N_A 와 N_B 의 합은 1이 되며, 이때, 흡착된 양이온 B가 매우 적은 미량일 때, 식 (2)에서 N_A 의 값을 1로 볼 수 있다. 위의 가정을 포함하여 최종적으로 선택 계수를 표현하는 수식을 수정하면 아래 식의 형태로 정리된다 (Missana et al., 2021; Missana et al., 2014).

$${}^B K_{SEL} = \left(\frac{z_B \cdot K_d}{CEC} \right)^{z_A} \cdot \frac{\gamma_A^{z_B}}{\gamma_B^{z_A}} \cdot [A]^{z_B} \quad (4)$$

다양한 선행연구에서 방사성 핵종을 비롯한 양이온의 선택계수를 구하기 위한 실험을 수행하였다. 따라서 수탁 선택계수와 시스템의 경쟁 양이온에 대한 정보가 제공될 경우, 양이온 교환모델을 이용하여 핵종의 수탁 특성을 정량적으로 계산할 수 있다.

2.2. 표면 착화 (Surface Complexation, SC) 모델

표면 착화반응은 벤토나이트의 표면에 분포하는 표면 작용기($\equiv S-OH$)에 용존 화학종이 직접 결합하는 반응으로, 핵종별 수화화거동에 따라 상이하나, 일반적으로 방사성핵종의 농도가 낮고, 이온강도가 높고, pH가 높은 조건에서 수탁에 주로 기여하는 것으로 간주된다 (Bradbury and Baeyens, 1997). 벤토나이트의 표면 작용기는 주로 광물의 표면의 가장자리 (edge)나 깨진 결합 (broken bond)에 위치하며, 용액의 pH에 따라 양쪽성 전하를 가진다. 즉, 광물 표면 작용기는 아래와 같은 양성자화 ($\equiv S-OH_2^+$) 또는 탈양성자화 ($\equiv S-O^-$) 반응을 가지는 수산기로서 간단하게 모사할 수 있다.



표면 착화반응의 기초가 되는 양성자화, 탈양성자화 반응의 이온화 상수는 질량 반응식에 다음과 같이 표현될 수 있다.

$$K_{protonation} = \frac{[\equiv S-OH_2^+]}{[\equiv S-OH] \cdot [H^+]_s} \quad (7)$$

$$K_{deprotonation} = \frac{[\equiv S-O^-] \cdot [H^+]_s}{[\equiv S-OH]}$$

위 식에서 $\equiv S-OH_2^+$, $\equiv S-OH$ 및 $\equiv S-O^-$ 는 개별 양쪽성 부위의 몰농도를 지칭하며, $[H^+]_s$ 는 점토광물의 표면에서 용액 내 수소 이온의 활성도를 나타낸다. $[H^+]_s$ 는

점토광물의 표면이 음전하를 띠는 경우 용액 내 전체 수소이온의 활성도 ($[H^+]_{Bulk}$)보다 크고, 음전하를 띠지 않는 경우 그보다 작다. 이를 식으로 나타내면 아래와 같다.

$$[H^+]_s = [H^+]_{Bulk} \cdot \exp\left(\frac{-zF\psi}{RT}\right) \quad (8)$$

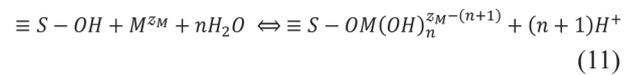
수식 내 지수함수는 정전기 항을 나타내며, z 는 이온 전하 (즉, H^+ 의 경우 1), F 는 패러데이 상수 ($96,485 \text{ C mol}^{-1}$), ψ 는 표면 전위 (V), R 은 기체상수 ($\text{C mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$), T 는 절대온도 (K)이다. 식 (7)과 (8)을 함께 나타내면 아래와 같다 (Kowal-Fouchard et al., 2004).

$$K_{protonation} = \frac{[\equiv S-OH_2^+]}{[\equiv S-OH] \cdot [H^+]} \cdot \exp^{-1}\left(\frac{-zF\psi}{RT}\right) \quad (9)$$

$$K_{deprotonation} = \frac{[\equiv S-O^-] \cdot [H^+]}{[\equiv S-OH]} \cdot \exp\left(\frac{-zF\psi}{RT}\right) \quad (10)$$

이온화 상수 $K_{protonation}$ 과 $K_{deprotonation}$ 는 점토광물 시료를 사용한 산-염기 적정 실험을 기반으로 중화 적정 곡선과의 최적화를 통해 구하게 되며, 이온화 상수의 종류를 나누는 기준에 따라서 1SP (surface protolysis), 2SP로 구분될 수 있다 (Bradbury and Baeyens, 1997). 또한, 식 (9), (10)에서 정전기항을 고려하는 방식에 따라 DL (diffused double layer model), CC (constant capacitance model), NE (non-electrostatic model) 등 다양한 모델을 설정할 수 있다 (Boult et al., 1998; Chen et al., 2014; Guo et al., 2009; Korichi and Bensmaili, 2009; Muller et al., 2012; Pabalan and Turner, 1996; Tertre et al., 2006; Yang et al., 2010).

양쪽성 부위에서 원자가 z_M 를 가지는 양이온 M 및 M의 수성 이온 종의 일반적인 복합 반응은 식 (11)과 같이 정의할 수 있으며 이 식에서 평형상수인 표면 착화상수는 식 (12)에서 구할 수 있다 (Bradbury and Baeyens, 2011).



$$K_{sc} = \frac{[\equiv S-OM(OH)_n^{z_M-(n+1)}] \cdot [H^+]^{(n+1)}}{[\equiv S-OH] \cdot [M^{z_M}]} \cdot \exp\left(\frac{-[z_M - (n+1)]F\psi}{RT}\right) \quad (12)$$

2.3. 양이온 교환-표면 착화 결합모델

양이온 교환-표면 착화 결합모델은 양이온 교환모델과 표면 착화모델의 한계를 극복하고, 점토광물의 수탁 특성을 보다 충실하게 구현하기 위한 결합모델이다 (Bradbury and Baeyens, 1997). 양이온 교환모델은 용액의 이온강도

와 주 용존 양이온의 영향을 잘 구현하는 반면, pH에 따른 수착 특성 변화나 음이온 화학종으로 존재하는 방사성 핵종의 수착을 구현하는 부분에 한계가 있다. 표면 착화모델은 경쟁 양이온의 영향을 반영하는 데 한계가 있으나 양이온 교환모델의 제한점을 보완하므로, 두 모델을 결합하여 각 모델의 단점을 보완하고 다양한 수착 기작을 설명하는 포괄적인 모델을 구현할 수 있다. 본 연구에서 취합된 수착모델은 2SP-NE-SC/CE, 2SP-CC-SC/CE, 2SP-DL-SC/CE의 3종류이며, 주로 표면 착화모델에서 정전기항을 고려하는 방법에 따라 구분된다.

3. 벤토나이트의 방사성핵종 수착모델

3.1. 수착모델 적용을 위한 벤토나이트의 지화학적 매개변수

본 연구에서는 서로 다른 8 종류의 벤토나이트를 활용하여 수행된 17개의 선행연구를 벤토나이트의 종류, 수착모델, 그리고 방사성 핵종에 대해 정리하였다 (Table 1). 또한, 각 연구에서 수행한 핵종 수착실험을 실험 조건에 따라 분류하였다 (Table 2-1, 2-2). 벤토나이트와 핵종의 수착실험은 크게 pH의 영향을 확인하기 위한 실험과 핵종 농도 ($[R]_{initial}$)의 영향을 측정하기 위한 실험으로 나누어 진행되었다. 전자의 경우 정해진 핵종 농도 조건에서 pH를 약 2-10까지 변화시키며 수착률 변화를 관찰하였으며, 후자의 경우 pH가 고정된 조건에서 핵종 농도를

10^{-10} - 10^{-3} mol L⁻¹까지 변화시키며 수착거동의 변화를 관찰하였다. 또한, 용액의 이온강도와 주 용존 양이온의 종류 (주로 Na, Ca), 온도, 고액비, 용존 탄산 농도의 영향을 확인하기 위한 실험도 수행되었다. 이러한 실험 결과를 해석하고 각 실험 조건들의 영향을 정량적으로 평가하기 위해 열역학적 해석을 수반한 TDB (thermodynamic database) 기반의 열역학적 수착모델이 적용되었다.

선행연구에서 적용된 열역학적 수착모델의 표면 착화, 양이온 교환자리에 대한 수착용량 및 이온화 상수를 정리하였다 (Table 3, 4). 여기서 S^s-OH, S^{w1}-OH, S^{w2}-OH, Al-OH, Si-OH, S^w-OH, S-OH, Y-OH는 표면 착화 자리를 의미하며, X는 양이온 교환 자리를 나타낸다. 각 수착 자리의 정의 및 명칭은 광물학적 특성에 근거한 연구자의 판단에 의해 사용된다. S^s-OH와 S^w-OH의 경우, 광물 표면에 핵종에 대한 수착 친화성이 강한 지점 (strong site)과 약한 지점 (weak site)의 두종류의 표면 착화 작용기가 존재한다는 가정을 가지며 (Bradbury and Baeyens, 1997), Si-OH와 Al-OH은 규소 사면체, 알루미늄 팔면체로 이루어진 점토광물 층상 구조의 깨진 가장자리를 가정한다 (Tertre et al., 2006). 각 수착 자리의 매개변수인 수착 용량과 이온화 상수는 각 벤토나이트에 대한 산-염기 적정 실험 최적화를 통해 결정된다. 예를 들어, SWy-1의 경우 정전기항을 고려하지 않는 표면 착화반응과 양이온 교환반응을 결합한 모델 (2SP-NE-SC/CE)을 적용하여 각 수착 자리에 대한 수착 용량 (S^s-OH: 2.0×10^{-3} , S^{w1, w2}-OH:

Table 1. List of previous studies, together with utilized bentonite samples, sorption models, and target radionuclides

No	Reference	Bentonite	Sorption Model	Radionuclides
1	Bradbury and Baeyens (2002)	SWy-1	2SP-NE-SC/CE	Eu
2	Bradbury and Baeyens (2005)	SWy-1	2SP-NE-SC/CE	U, Am, Eu
3	Bradbury and Baeyens (2006)	SWy-1	2SP-NE-SC/CE	Am, Eu
4	Fernandes et al. (2008)	SWy-1	2SP-NE-SC/CE	Eu
5	Fernandes et al. (2012)	SWy-1	2SP-NE-SC/CE	U
6	Schnurr et al. (2015)	SWy-1	2SP-NE-SC/CE	Eu
7	Kowal-Fouchard et al. (2004)	Volclay	2SP-CC-SC/CE	U
8	Bradbury and Baeyens (2011)	MX-80	2SP-NE-SC/CE	U, Eu
9	Tertre et al. (2006)	MX-80	2SP-DL-SC/CE	Eu
10	Yang et al. (2010)	Jinchuan	2SP-DL-SC/CE	U
11	Guo et al. (2009)	Jinchuan	2SP-DL-SC/CE	Eu
12	Missana et al. (2021)	FEBEX	2SP-NE-SC/CE	Eu
13	Missana et al. (2009)	FEBEX	2SP-NE-SC/CE	Se
14	Kumar et al. (2013)	Western India	2SP-NE-SC/CE	Am, Eu
15	Gao et al. (2021)	GMZ	2SP-NE-SC/CE	Am
16	Shi et al. (2014)	GMZ	2SP-DL-SC/CE	Se, Eu
17	Pablan and Turner (1996)	SAZ-1	2SP-DL-SC/CE	U

Table 2-1. List of bentonite samples considered in this study, together with the experimental conditions used in reference studies from 1–10 (details were provided in Table 1). $[R]_{\text{initial}}$ represented the concentration of radionuclides, Major Cat. represented the predominant cations, S:L Ratio represented for the solid to liquid ratio, and $[\text{CO}_3]_{\text{total}}$ represented the carbonate concentration

Bentonite [Ref]	Radio nuclide	$[R]_{\text{initial}}$ (mol L ⁻¹)	pH	Temp (°C)	Major Cat.	Ionic Strength (mol L ⁻¹)	S:L Ratio (g L ⁻¹)	$[\text{CO}_3]_{\text{total}}$ (mol L ⁻¹)
SWy-1 [1]	Eu	9.5×10^{-9}	3–10	25	Ca	0.066	1	-
		10^{-9} – 10^{-3}	6.9	25	Ca	0.066	1	-
		10^{-9} – 10^{-3}	6.0	25	Ca	0.066	1	-
		1.3×10^{-7}	4–9	25	Na	0.1	1.5	-
		10^{-9} – 10^{-3}	6.0, 7.2	25	Na	0.1	0.5	-
		10^{-9} – 10^{-3}	6.0	25	Na	0.1	0.5	-
SWy-1 [2]	U	1.4×10^{-7}	3–10	25	Na	0.01	1.2	-
		1.4×10^{-7}	3–10	25	Na	0.1	1.2	-
	Am	3×10^{-8}	3–10	25	Na	0.1	4	-
		3×10^{-8}	3–10	25	Na	1	4	-
	Eu	1.3×10^{-7}	3–10	25	Na	0.1	1.5	-
		9.5×10^{-9}	4–9	25	Ca	0.066	1	-
SWy-1 [3]	Am	1.5×10^{-10}	3–10	25	Na	0.1	0.62	-
		6.2×10^{-8}	3–9	25	Ca	0.066	0.86–2	-
SWy-1 [4]	Eu	2×10^{-9}	4–9	25	Na	0.1	1	-
		2×10^{-9}	6–10	25	Na	0.1	1	$10^{-3.5}$ atm
		2×10^{-9}	7–9	25	Na	0.1	1	2×10^{-2}
SWy-1 [5]	U	10^{-7}	3–9	25	Na	0.1	0.9	-
		10^{-7}	4–10	25	Na	0.1	2.5	$10^{-3.5}$ atm
		10^{-7}	7–9	25	Na	0.1	4.3	10^{-3} , 3×10^{-3} , 5×10^{-3}
		10^{-8} – 10^{-4}	5, 6.8, 8	25	Na	0.1	0.9	-
		10^{-8} – 10^{-4}	5, 6.8, 8	25	Na	0.1	1.5	$10^{-3.5}$ atm
SWy-1 [6]	Eu	2×10^{-7}	3–12	25	Na	0.1	2	-
		2×10^{-7}	3–12	25	Na	0.9	2	-
		2×10^{-7}	3–12	25	Na	3.9	2	-
Volclay [7]	U	10^{-6}	2–7	25	Na	0.1	10	-
		10^{-3}	2–7	25	Na	0.5	10	-
		10^{-4}	2–7	25	Na	0.1, 0.5	10	-
MX-80 [8]	U	3×10^{-8} – 10^{-6}	7.6	25	Na	0.6	0.32–13.5	-
	Eu	3.2×10^{-11} – 1.6×10^{-6}	7.5	25	Na	0.6	1.56	-
MX-80 [9]	Eu	10^{-6}	3–10	25	Na	0.5	2.5	-
		10^{-6}	4–8	40	Na	0.5	2.5	-
		10^{-6}	2–7	80	Na	0.5	2.5	-
		10^{-6}	2–4	150	Na	0.5	2.5	-
Jinchuan [10]	U	8×10^{-5}	3–10	25	Na	0.1	1	-
		4×10^{-5}	4–10	25	Na	0.1	1	-
		10^{-5} – 10^{-3}	4.8	25	Na	0.1	1	-
		10^{-5} – 10^{-3}	5.8	25	Na	0.1	1	-
		8×10^{-5}	5	25	Na	0.1	0.1–5	-
		8×10^{-5}	3–10	25	Na	0.1	1	$10^{-3.58}$ atm
		8×10^{-5}	3–10	60	Na	0.1	1	-
		8×10^{-5}	3–7	80	Na	0.1	1	-

Table 2-2. List of bentonite samples considered in this study, together with the experimental conditions used in reference studies from 11–17 (details were provided in Table 1). $[R]_{\text{initial}}$ represented the concentration of radionuclides, Major Cat. represented the predominant cations, S:L Ratio represented for the solid to liquid ratio, and $[CO_3]_{\text{total}}$ represented the carbonate concentration

Bentonite [Ref]	Radio nuclide	$[R]_{\text{initial}}$ (mol L ⁻¹)	pH	Temp (°C)	Major Cat.	Ionic Strength (mol L ⁻¹)	S:L Ratio (g L ⁻¹)	$[CO_3]_{\text{total}}$ (mol L ⁻¹)
Jinchuan [11]	Eu	6.7×10^{-8}	2–10	25	Na	0.1	0.5	-
		3.3×10^{-6}	2–10	25	Na	0.1	0.5	-
		6.7×10^{-8}	3–10	25	Na	0.1	0.5	$10^{-3.58}$ atm
		3.8×10^{-7}	3–10	25	Na	0.1	0.5	$10^{-3.58}$ atm
		3.3×10^{-6}	3–10	25	Na	0.1	0.5	$10^{-3.58}$ atm
		$10^{-9} - 10^{-3}$	4, 6	25	Na	0.1	1	-
		$10^{-9} - 10^{-3}$	6.5	25	Na	0.1	0.5	-
		$10^{-9} - 10^{-3}$	7.5	25	Na	0.1	0.25	-
FEBEX [12]	Eu	10^{-8}	3–11	25	Na	0.001–0.2	0.5	-
		$10^{-8} - 10^{-3}$	4.1	25	Na	0.2	0.5	-
		$10^{-9} - 10^{-3}$	3.8	25	Na	0.1	0.5	-
		$10^{-9} - 10^{-3}$	3.9	25	Na	0.05	0.5	-
FEBEX [13]	Se	4×10^{-10}	3–11	25	Na	0.001–0.5	0.5	-
		$10^{-10} - 10^{-4}$	4.3	25	Na	0.1, 0.5	0.5–1	-
		$10^{-10} - 10^{-4}$	7.2	25	Na	0.01	0.5–1	-
Western India [14]	Am	6×10^{-9}	2–10	25	Na	0.1	0.5	-
		6×10^{-9}	2–10	25	Na	0.05	0.5	-
		6×10^{-9}	2–10	25	Na	0.01	0.5	-
		6×10^{-9}	2–10	25	Ca	0.034	0.5	-
	Eu	$10^{-7} - 10^{-3}$	6.0	25	Na	0.1	0.5	-
GMZ [15]	Am	6×10^{-10}	3–10	25, 50, 80	Na	0.1	0.5	-
		6×10^{-10}	3–10	25	Ca	0.1	0.5	-
		6×10^{-10}	4.1, 6.6	25	Na	0–0.3	0.5	-
		$10^{-10} - 10^{-8}$	4.0	25	Na	0.1	0.5	-
		$10^{-11} - 10^{-9}$	6.5	25	Na	0.1	0.5	-
		$10^{-10} - 10^{-8}$	3.7	25	Ca	0.1	0.5	-
GMZ [16]	Se	1.2×10^{-5}	3–9	25	Na	0.1	20	-
		$10^{-6} - 10^{-3}$	4.1	25	Na	0.1	20	-
	Eu	3.3×10^{-5}	4–9	25	Na	0.1	1	-
	Se	1.2×10^{-5}	3–9	25	Na	0.1	20	-
	Eu	3.3×10^{-5}	3–9	25	Na	0.1	20	-
	Se	3.3×10^{-5}	4–9	25	Na	0.1	1	-
	Eu	3.3×10^{-5}	4–9	25	Na	0.1	1	-
	Se	3.3×10^{-3}	4–9	25	Na	0.1	1	-
SAz-1 [17]	U	2×10^{-7}	2–9	25	Na	0.1	0.03–3	$10^{-3.5}$ atm
		2×10^{-6}	2–9	25	Na	0.1	0.3	$10^{-3.5}$ atm

4.0×10^{-2} mol kg⁻¹)과 이온화 상수 ($K_{s, w1(+)}: 4.5, K_{s, w1(-)}: -7.9, K_{w2(+)}: 6.0, K_{w2(-)}: -10.5$)가 최적화되었다 (Baeyens and Bradbury, 1997; Bradbury and Baeyens, 1997). 여기서, 수착 용량과 이온화 상수는 SWy-1의 고유한 광물학

적 특성을 반영하며, FEBEX, Western India, GMZ에서 각각 다른 수착 용량과 이온화 상수가 적용된다.

수착 용량과 이온화 상수는 광물의 고유한 지화학적 특성을 반영하지만, 어떤 수착모델을 적용하는지에 따라 상이

Table 3. Summary of the site types, site capacities of sorption models for various bentonite samples. Here, S^s-OH, S^{w1}-OH, S^{w2}-OH, Al-OH, Si-OH, S^w-OH, S-OH, and Y-OH represented surface complexation sites, and X represented cation exchange sites

Bentonite	Sorption Model	Site Types	Site Capacities	Reference	
SWy-1	2SP-NE-SC/CE	S ^s -OH	$2.0 \times 10^{-3} \text{ mol kg}^{-1}$	1-6	
		S ^{w1, w2} -OH	$4.0 \times 10^{-2} \text{ mol kg}^{-1}$		
		X	0.87 eq kg^{-1}		
Volclay	2SP-CC-SC/CE	Al-OH	$1.75 \times 10^{-2} \text{ mol kg}^{-1}$	7	
		Si-OH	$2.5 \times 10^{-1} \text{ mol kg}^{-1}$		
		X	$5.75 \times 10^{-1} \text{ mol kg}^{-1}$		
MX-80	2SP-NE-SC/CE	S ^s -OH	$2.0 \times 10^{-3} \text{ mol kg}^{-1}$	8	
		S ^{w1, w2} -OH	$4.0 \times 10^{-2} \text{ mol kg}^{-1}$		
		X	0.787 eq kg^{-1}		
	2SP-DL-SC/CE	Al-OH	$1.7 \times 10^{-3} \text{ mol m}^{-2}$	9	
		Si-OH	$3.4 \times 10^{-3} \text{ mol m}^{-2}$		
		X	$3.63 \times 10^{-5} \text{ mol m}^{-2}$		
	2SP-DL-SC/CE	S-OH	$5.88 \times 10^{-7} \text{ mol m}^{-2}$	10	
		Y-OH	$1.18 \times 10^{-6} \text{ mol m}^{-2}$		
		X	$1.16 \times 10^{-5} \text{ mol m}^{-2}$		
Jinchuan	2SP-DL-SC/CE	S ^s -OH	$1.88 \times 10^{-8} \text{ mol m}^{-2}$	11	
		S ^w -OH	$5.69 \times 10^{-7} \text{ mol m}^{-2}$		
		Y-OH	$1.18 \times 10^{-6} \text{ mol m}^{-2}$		
	2SP-DL-SC/CE	X	$1.16 \times 10^{-5} \text{ mol m}^{-2}$		
		S ^s -OH	$2.01 \times 10^{-3} \text{ mol kg}^{-1}$		12
		S ^w -OH	$6.01 \times 10^{-2} \text{ mol kg}^{-1}$		
FEBEX	2SP-NE-SC/CE	X	1.02 eq kg^{-1}	13	
		S ^s -OH	$2.01 \times 10^{-3} \text{ mol kg}^{-1}$		
		S ^w -OH	$6.01 \times 10^{-2} \text{ mol kg}^{-1}$		
Western India	2SP-NE-SC/CE	S ^s -OH	$1.8 \times 10^{-3} \text{ mol kg}^{-1}$	14	
		S ^w -OH	$3.6 \times 10^{-2} \text{ mol kg}^{-1}$		
		X	0.76 eq kg^{-1}		
	2SP-NE-SC/CE	S ^s -OH	$1.04 \times 10^{-8} \text{ mol m}^{-2}$	15	
		S ^w -OH	$1.03 \times 10^{-6} \text{ mol m}^{-2}$		
		Y-OH	$2.08 \times 10^{-6} \text{ mol m}^{-2}$		
GMZ	2SP-DL-SC/CE	X	$1.35 \times 10^{-5} \text{ mol m}^{-2}$	16	
		S-OH	$9.39 \times 10^{-7} \text{ mol m}^{-2}$		
		Y-OH	$1.18 \times 10^{-6} \text{ mol m}^{-2}$		
	2SP-DL-SC/CE	X	$1.35 \times 10^{-5} \text{ mol m}^{-2}$		
		Al-OH	$4.73 \times 10^{-5} \text{ mol L}^{-1}$		17
		Si-OH	$5.69 \times 10^{-5} \text{ mol L}^{-1}$		

한 값이 도출될 수 있다. 예를 들어 MX-80의 경우, 2SP-NE-SC/CE 모델에 대해서는 전체 표면 착화자리 (S^{s, w1, w2}-OH)에 대해서 S^s-OH: 2.0×10^{-3} , S^{w1, w2}-OH: $4.0 \times 10^{-2} \text{ mol kg}^{-1}$ 의 수착 용량과 K_{s, w1}(+): 4.5, K_{s, w1}(-): -7.9, K_{w2}(+): 6.0, K_{w2}(-): -10.5의 이온화 상수 값이 적용되지만, 확산 이중층을 고려하는 모델의 경우 (2SP-DL-SC/CE)의 경우 표면

착화자리 (Al/Si-OH)에 대해서 Al-OH: 1.7×10^{-3} , Si-OH: $3.4 \times 10^{-3} \text{ mol kg}^{-1}$ 의 수착 용량과 K_{Al}(+): 5.1, K_{Al}(-): -8.5, K_{Si}(-): -7.9의 이온화 상수 값이 적용된다. GMZ에서도 2SP-NE-SC/CE와 2SP-DL-SC/CE 모델에서 서로 다른 모델 매개변수가 사용되었다. 따라서 새로운 벤토나이트 후보 물질을 활용하여 수착모델을 구축할 경우, 적용하고

Table 4. Summary of the protolysis reactions and their constants of sorption models for various bentonite samples. Here, S^s-OH, S^{w1}-OH, S^{w2}-OH, Al-OH, Si-OH, S^w-OH, S-OH, and Y-OH represented surface complexation sites, respectively

Bentonite	Sorption Model	Protolysis Reactions	log K _{site}
SWy-1	2SP-NE-SC/CE	$S^{s/w1}\text{-OH} + H^+ \leftrightarrow S^{s/w1}\text{-OH}_2^+$	4.5
		$S^{s/w1}\text{-OH} \leftrightarrow S^{s/w1}\text{-O}^- + H^+$	-7.9
		$S^{w2}\text{-OH} + H^+ \leftrightarrow S^{w2}\text{-OH}_2^+$	6.0
		$S^{w2}\text{-OH} \leftrightarrow S^{w2}\text{-O}^- + H^+$	-10.5
Volclay	2SP-CC-SC/CE	$Al\text{-OH} + H^+ \leftrightarrow Al\text{-OH}_2^+$	7.9
		$Al\text{-OH} \leftrightarrow Al\text{-O}^- + H^+$	-9.4
		$Si\text{-OH} \leftrightarrow Si\text{-O}^- + H^+$	-7.8
MX-80	2SP-NE-SC/CE	$S^{s/w1}\text{-OH} + H^+ \leftrightarrow S^{s/w1}\text{-OH}_2^+$	4.5
		$S^{s/w1}\text{-OH} \leftrightarrow S^{s/w1}\text{-O}^- + H^+$	-7.9
		$S^{w2}\text{-OH} + H^+ \leftrightarrow S^{w2}\text{-OH}_2^+$	6.0
		$S^{w2}\text{-OH} \leftrightarrow S^{w2}\text{-O}^- + H^+$	-10.5
	2SP-DL-SC/CE	$Al\text{-OH} + H^+ \leftrightarrow Al\text{-OH}_2^+$	5.1
		$Al\text{-OH} \leftrightarrow Al\text{-O}^- + H^+$	-8.5
Jinchuan	2SP-DL-SC/CE	$S\text{-OH} + H^+ \leftrightarrow S\text{-OH}_2^+$	3.23
		$S\text{-OH} \leftrightarrow S\text{-O}^- + H^+$	-3.89
		$Y\text{-OH} \leftrightarrow Y\text{-O}^- + H^+$	-6.57
	2SP-DL-SC/CE	$S^{s,w}\text{-OH} + H^+ \leftrightarrow S^{s,w}\text{-OH}_2^+$	3.23
		$S^{s,w}\text{-OH} \leftrightarrow S^{s,w}\text{-O}^- + H^+$	-3.89
		$Y\text{-OH} \leftrightarrow Y\text{-O}^- + H^+$	-6.57
FEBEX	2SP-NE-SC/CE	$S^s\text{-OH} + H^+ \leftrightarrow S^s\text{-OH}_2^+$	4.8
		$S^s\text{-OH} \leftrightarrow S^s\text{-O}^- + H^+$	-9.9
		$S^w\text{-OH} + H^+ \leftrightarrow S^w\text{-OH}_2^+$	5.3
		$S^w\text{-OH} \leftrightarrow S^w\text{-O}^- + H^+$	-8.4
Western India	2SP-NE-SC/CE	$S^s\text{-OH} + H^+ \leftrightarrow S^s\text{-OH}_2^+$	4.5
		$S^s\text{-OH} \leftrightarrow S^s\text{-O}^- + H^+$	-7.9
		$S^w\text{-OH} + H^+ \leftrightarrow S^w\text{-OH}_2^+$	4.5
		$S^w\text{-OH} \leftrightarrow S^w\text{-O}^- + H^+$	-7.9
GMZ	2SP-NE-SC/CE	$S^{s,w}\text{-OH} + H^+ \leftrightarrow S^{s,w}\text{-OH}_2^+$	5.83
		$S^{s,w}\text{-OH} \leftrightarrow S^{s,w}\text{-O}^- + H^+$	-7.02
		$Y\text{-OH} \leftrightarrow Y\text{-O}^- + H^+$	-8.75
	2SP-DL-SC/CE	$S\text{-OH} + H^+ \leftrightarrow S\text{-OH}_2^+$	6.15
		$S\text{-OH} \leftrightarrow S\text{-O}^- + H^+$	-9.27
SAz-1	2SP-DL-SC/CE	$Y\text{-OH} \leftrightarrow Y\text{-O}^- + H^+$	-9.06
		$Al\text{-OH} + H^+ \leftrightarrow Al\text{-OH}_2^+$	8.33
		$Al\text{-OH} \leftrightarrow Al\text{-O}^- + H^+$	-9.73
		$Si\text{-OH} \leftrightarrow Si\text{-O}^- + H^+$	-7.20

자 하는 수착모델을 이용하여 해당 벤토나이트의 산-염기 적정 곡선을 활용한 수착 용량과 이온화 상수 최적화가 우선적으로 수행되어야 하며, 벤토나이트의 수착 자리에 대한 산-염기반응 매개변수가 결정되면, 보다 다양한 핵종에 대한 수착 반응을 해석할 수 있다.

3.2. 방사성 핵종의 벤토나이트에 대한 수착 반응상수

3.2.1. 우라늄 (U)

용존 우라늄은 3가에서 6가에 이르기까지 매우 다양한 주원자가를 가지며, 산화 환경에서는 6가 우라늄, 환원 환경에서는 4가 우라늄이 안정하게 분포한다. 우라늄은

농도 ($[U]_{\text{initial}}$) 및 수용액 환경 (pH, 온도, 이온강도, 용존 탄산 농도)에 따라 다양한 화학종으로 분포한다. 특히, pH에 따라 상이한 분포를 가지며 수착 특성에 영향을 미친다.

우리나라에 대해 수행된 4개의 선행연구에서 적용한 수착 반응식과 관련 반응상수를 정리하였다 (Table 5). 각 선행연구에서 고려된 수착 반응식은 반영한 모델과 더불어, 실험 조건에 따라서 다르게 적용되었다. 예를 들어, SWy-1과 2SP-NE-SC/CE 모델이 적용된 연구 중 Bradbury

and Baeyens (2005)는 용존 탄산이 없는 환경에서 $[U]_{\text{initial}}=1.4 \times 10^{-7} \text{ mol L}^{-1}$ 에 대해서 pH (3–10)와 이온강도 (0.01, 0.1 mol L⁻¹)의 영향을 확인하는 실험을 수행하였고, Fernandes et al. (2012)는 $[U]_{\text{initial}}=10^{-7} \text{ mol L}^{-1}$ 에서 pH (3–10)와 용존 탄산 농도 ($10^{-3.5} \text{ atm}$, $10^{-3} \sim 5 \times 10^{-3} \text{ mol L}^{-1}$)의 영향을 확인하는 실험, pH=5, 6.8, 8에서 $[U]_{\text{initial}}$ 의 영향 ($10^{-8} \sim 10^{-4} \text{ mol L}^{-1}$)을 평가하는 실험을 각각 수행하였다 (Table 2–1). 이로 인하여, Fernandes et al. (2012)에서는

Table 5. Surface complexation constants and selectivity coefficients on surface complexation sites (S^s-OH, S^{w1}-OH, Al-OH, Si-OH) and cation exchange sites (X) for uranium (U) sorption on various bentonites

Surface complexation / Cation exchange reaction	log K
SWy-1 + 2SP-NE-SC/CE	
$S^s\text{-OH} + \text{UO}_2^{2+} \leftrightarrow S^s\text{-OUO}_2^+ + \text{H}^+$	3.1 ^{a,b}
$S^s\text{-OH} + \text{UO}_2^{2+} + \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^s\text{-OUO}_2\text{OH} + 2\text{H}^+$	-3.4 ^a , -4.6 ^b
$S^s\text{-OH} + \text{UO}_2^{2+} + 2\text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^s\text{-OUO}_2(\text{OH})_2^- + 3\text{H}^+$	-11 ^a , -12.6 ^b
$S^s\text{-OH} + \text{UO}_2^{2+} + 3\text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^s\text{-OUO}_2(\text{OH})_3^{2-} + 4\text{H}^+$	-20.5 ^a , -20.9 ^b
$S^s\text{-OH} + \text{UO}_2^{2+} + \text{CO}_3^{2-} \leftrightarrow S^s\text{-OUO}_2\text{CO}_3^- + \text{H}^+$	9.8 ^b
$S^s\text{-OH} + \text{UO}_2^{2+} + 2\text{CO}_3^{2-} \leftrightarrow S^s\text{-OUO}_2(\text{CO}_3)_2^{3-} + \text{H}^+$	15.5 ^b
$S^{w1}\text{-OH} + \text{UO}_2^{2+} \leftrightarrow S^{w1}\text{-OUO}_2^+ + \text{H}^+$	0.7 ^a , 0.5 ^b
$S^{w1}\text{-OH} + \text{UO}_2^{2+} + \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^{w1}\text{-OUO}_2\text{OH} + 2\text{H}^+$	-5.7 ^{a,b}
$S^{w1}\text{-OH} + \text{UO}_2^{2+} + \text{CO}_3^{2-} \leftrightarrow S^{w1}\text{-OUO}_2\text{CO}_3^- + \text{H}^+$	9.3 ^b
$2\text{Na-X} + \text{UO}_2^{2+} \leftrightarrow \text{UO}_2\text{-X}_2 + 2\text{Na}^+$	0.7 ^a , 1.4 ^a , 0.45 ^b
MX-80 + 2SP-NE-SC/CE	
$S^s\text{-OH} + \text{UO}_2^{2+} \leftrightarrow S^s\text{-OUO}_2^+ + \text{H}^+$	3.1 ^c
$S^s\text{-OH} + \text{UO}_2^{2+} + \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^s\text{-OUO}_2\text{OH} + 2\text{H}^+$	-3.4 ^c
$S^s\text{-OH} + \text{UO}_2^{2+} + 2\text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^s\text{-OUO}_2(\text{OH})_2^- + 3\text{H}^+$	-11 ^c
$S^s\text{-OH} + \text{UO}_2^{2+} + 3\text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^s\text{-OUO}_2(\text{OH})_3^{2-} + 4\text{H}^+$	-20.5 ^c
$S^{w1}\text{-OH} + \text{UO}_2^{2+} \leftrightarrow S^{w1}\text{-OUO}_2^+ + \text{H}^+$	0.7 ^c
$S^{w1}\text{-OH} + \text{UO}_2^{2+} + \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^{w1}\text{-OUO}_2\text{OH} + 2\text{H}^+$	-5.7 ^c
$S^{w1}\text{-OH} + \text{UO}_2^{2+} + \text{CO}_3^{2-} \leftrightarrow S^{w1}\text{-OUO}_2\text{CO}_3^- + \text{H}^+$	9.3 ^c
$2\text{Na-X} + \text{UO}_2^{2+} \leftrightarrow \text{UO}_2\text{-X}_2 + 2\text{Na}^+$	0.15 ^c
Volclay + 2SP-CC-SC/CE	
$\text{Al}(\text{OH})_2 + \text{UO}_2^{2+} \leftrightarrow \text{Al}(\text{OH})_2\text{UO}_2^{2+}$	14.9 ^d
$\text{Si}(\text{OH})_2 + \text{UO}_2^{2+} \leftrightarrow \text{Si-O}_2\text{UO}_2 + 2\text{H}^+$	-3.8 ^d
$\text{Si}(\text{OH})_2 + 3\text{UO}_2^{2+} + 5\text{H}_2\text{O} \leftrightarrow \text{Si-O}_2(\text{UO}_2)_3(\text{OH})_5^- + 7\text{H}^+$	-20.0 ^d
$2\text{Na-X} + \text{UO}_2^{2+} \leftrightarrow \text{UO}_2\text{-X}_2 + 2\text{Na}^+$	3.0 ^d
SAz-1 + 2SP-DL-SC/CE	
$\text{Al-OH} + \text{UO}_2^{2+} \leftrightarrow \text{Al-OUO}_2^+ + \text{H}^+$	2.7 ^e
$\text{Al-OH} + 3\text{UO}_2^{2+} + 5\text{H}_2\text{O} \leftrightarrow \text{Al-O}(\text{UO}_2)_3(\text{OH})_5 + 6\text{H}^+$	-14.95 ^e
$\text{Si-OH} + \text{UO}_2^{2+} \leftrightarrow \text{Si-OUO}_2^+ + \text{H}^+$	2.6 ^e
$\text{Si-OH} + 3\text{UO}_2^{2+} + 5\text{H}_2\text{O} \leftrightarrow \text{Si-O}(\text{UO}_2)_3(\text{OH})_5 + 6\text{H}^+$	-15.29 ^e

^aBradbury and Baeyens, 2005

^bFernandes et al., 2012

^cBradbury and Baeyens, 2011

^dKowal-Fouchard et al., 2004

^ePabalan and Turner, 1996

Table 6. Surface complexation constants and selectivity coefficients on surface complexation site (S-OH) and cation exchange site (X) for uranium (U) sorption on Jinchuan bentonite at elevated temperature condition (Yang et al., 2010)

Surface complexation / Cation exchange reaction	log K
Jinchuan + 2SP-DL-SC/CE	
$S-OH + UO_2^{2+} \leftrightarrow S-O(UO_2)^+ + H^+$	-0.9 ^a , 0.1 ^b , 0.5 ^c
$S-OH + 3UO_2^{2+} + 5H_2O \leftrightarrow S-O(UO_2)_3(OH)_5 + 6H^+$	-15.7 ^a , -13.1 ^b , -11.3 ^c
$S-OH + 3UO_2^{2+} + 7H_2O \leftrightarrow S-O(UO_2)_3(OH)_7^{2-} + 8H^+$	-26.2 ^a , -23.0 ^b , -21.0 ^c
$2Na-X + UO_2^{2+} \leftrightarrow UO_2-X_2 + 2Na^+$	0.6 ^{a, b, c}

^aT = 25°C

^bT = 60°C

^cT = 80°C

우라늄 탄산 화학종에 대한 표면 착화반응 ($S^s-O(UO_2)CO_3^-$, $S^s-O(UO_2)(CO_3)_2^{3-}$, $S^{w1}-O(UO_2)CO_3^-$)이 추가로 고려되었다. 개별적인 표면 착화반응에 대한 반응상수를 보면, 동일한 모델을 가정하였더라도 보고된 값이 문헌별로 정확하게 일치하지 않는 경우가 많은데, 이는 각 연구에서 사용한 SWy-1의 전처리 과정, 실험 조건, 또한 실험과 분석 과정에서 발생하는 실험 결과의 오차 등 환경적 요인이 영향을 미치는 것으로 사료된다. 하지만 각 수착 반응에 대한 반응상수 값은 대부분 허용가능한 오차 범위 내에 있으며, 이는 유사한 실험 조건에서 동일한 열역학적 수착모델을 고려할 경우 선행연구에서 제시된 수착 반응상수 값의 범위 내에서 매개변수 최적화를 수행할 수 있음을 의미한다.

MX-80과 우라늄의 수착은 pH=7.6에서 $[U]_{initial}=3 \times 10^{-8} \text{ mol L}^{-1}$ – $10^{-6} \text{ mol L}^{-1}$ 까지 변화시켜가며 실험을 수행하고 2SP-NE-SC/CE 모델을 적용하여 해석되었다 (Bradbury and Baeyens, 2011). 반면, Volclay와 2SP-CC-SC/CE 모델, SAz-1과 2SP-DL-SC/CE 모델에서 사용된 표면 착화 반응식을 살펴보면 표면 착화자리가 다르게 표현될 뿐만 아니라, 가정된 표면 화학종의 형태 또한 상이하다 (Kowal-Fouchard et al., 2004; Pabalan and Turner, 1996). 이는 선행연구의 실험 조건에 따라 고려되는 우라늄의 수성 이온종이 다르기 때문이기도 하며, 또한 수착모델의 반응식 등 세부적인 조건은 최종적으로 모델을 수행하는 연구자의 지화학적 배경지식에 의해 영향을 받기 때문이다. 예를 들어, Pabalan and Turner (1996)은 용존 탄산이 존재하는 조건 ($=10^{-3.5} \text{ atm}$)에서 SAz-1의 수착 실험을 수행하였지만, 수착모델에는 우라늄 탄산 화학종의 수착을 반영하지 않았다.

Yang et al. (2010)은 Jinchuan과 우라늄의 화학적 수착을 규명하기 위해서 pH (3–10), $[U]_{initial}$ (10^{-5} – $10^{-3} \text{ mol L}^{-1}$), 고액비 (0.1–5 g L⁻¹), 온도 (25–80°C) 를 변화시켜가며 실험을 수행하고, 2SP-DL-SC/CE 모델을 적용하여 온도

의 영향을 해석하였다 (Table 6). 연구 결과, 온도가 25°C에서 80°C로 증가함에 따라 우라늄 표면 착화반응의 반응상수가 증가하는 것으로 확인되었으며, 이는 온도가 증가함에 따라 Jinchuan에 우라늄 화학종이 더 많이 수착됨을 의미한다. 반면, 양이온 교환반응의 선택계수는 온도에 관계없이 일정한 값을 가지는 것으로 나타났다.

3.2.2. 아메리슘 (Am)

아메리슘은 우라늄과 마찬가지로 수용액 환경에 따라 다양한 화학종을 형성할 수 있지만, 산화-환원 환경에 관계없이 3가의 산화수로 안정하게 존재하는 특징을 나타낸다. 아메리슘에 대한 선행연구에서의 수착 실험은 주로 용존 탄산이 없는 조건에서 수행되었다 (Table 2–1, 2–2). Bradbury and Baeyens (2005)은 SWy-1을 사용하여 $[Am]_{initial}=3 \times 10^{-8} \text{ mol L}^{-1}$ 에서 pH (3–10)와 이온강도 (0.01, 0.1 mol L⁻¹)의 영향을 확인하는 실험을 수행하였고, Bradbury and Baeyens (2006)에서는 용액의 주 양이온이 Na (=0.1 mol L⁻¹), Ca (=0.066 mol L⁻¹)인 수용액 조건에서 각각 pH (3–10)의 영향을 평가하였다. Kumar et al. (2013)은 Western India 를 사용하여 다양한 이온강도 (0.01–0.1 mol L⁻¹) 및 Na, Ca의 주 양이온 환경에서 pH에 따른 수착을 비교하였다. 마지막으로 Gao et al. (2021)은 GMZ를 사용하여 pH (3–10), $[Am]_{initial}$ (10^{-10} – $10^{-8} \text{ mol L}^{-1}$), 이온강도 (0–0.3 mol L⁻¹), 주 양이온 조성 (Na, Ca), 온도 (25–80°C)에 따른 영향을 종합적으로 평가하였다. GMZ에 대해서 25°C부터 80°C까지 온도를 변화시키며 수행한 수착 실험에서는 온도에 따른 아메리슘의 수착 거동 변화가 관찰되지 않았다.

아메리슘의 수착은 모두 2SP-NE-SC/CE 모델을 사용하여 최적화되었다 (Table 7). SWy-1에 대한 아메리슘의 표면 착화상수는 유사한 값을 나타낸 반면, GMZ에서는 동일한 표면 착화반응에 대해서 상이한 반응상수가 결정되었다. 특히, S^s-OAm^{2+} , $S^s-OAmOH^+$, Am-X₃에서 SWy-1

Table 7. Surface complexation constants and selectivity coefficients on surface complexation sites (S^s-OH, S^w-OH) and cation exchange sites (X) for americium (Am) sorption on various bentonite samples

Surface complexation / Cation exchange reaction	log K
SWy-1 + 2SP-NE-SC/CE	
$S^s\text{-OH} + \text{Am}^{3+} \leftrightarrow S^s\text{-OAm}^{2+} + \text{H}^+$	1.6 ^{a,b}
$S^s\text{-OH} + \text{Am}^{3+} + \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^s\text{-OAmOH}^+ + 2\text{H}^+$	-6.8 ^{a,b}
$S^s\text{-OH} + \text{Am}^{3+} + 2\text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^s\text{-OAm(OH)}_2 + 3\text{H}^+$	-15 ^a , -14.8 ^b
$S^s\text{-OH} + \text{Am}^{3+} + 3\text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^s\text{-OAm(OH)}_3^- + 4\text{H}^+$	-25.6 ^a
$3\text{Na-X} + \text{Am}^{3+} \leftrightarrow \text{Am-X}_3 + 3\text{Na}^+$	1.67 ^a , 1.46 ^b
$3\text{Ca-X}_2 + 2\text{Am}^{3+} \leftrightarrow 2\text{Am-X}_3 + 3\text{Ca}^{2+}$	1.66 ^b
GMZ + 2SP-NE-SC/CE	
$S^s\text{-OH} + \text{Am}^{3+} \leftrightarrow S^s\text{-OAm}^{2+} + \text{H}^+$	2.7 ^c
$S^s\text{-OH} + \text{Am}^{3+} + \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^s\text{-OAmOH}^+ + 2\text{H}^+$	-5.5 ^c
$S^s\text{-OH} + \text{Am}^{3+} + 2\text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^s\text{-OAm(OH)}_2 + 3\text{H}^+$	-13.5 ^c
$S^s\text{-OH} + \text{Am}^{3+} + 3\text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^s\text{-OAm(OH)}_3^- + 4\text{H}^+$	-25.1 ^c
$3\text{Na-X} + \text{Am}^{3+} \leftrightarrow \text{Am-X}_3 + 3\text{Na}^+$	2.0 ^c
$\text{Na-X} + 0.5\text{Ca}^{2+} \leftrightarrow \text{Ca}_{0.5}\text{-X} + \text{Na}^+$	0.4 ^c
Western India + 2SP-NE-SC/CE	
$S^s\text{-OH} + \text{Am}^{3+} \leftrightarrow S^s\text{-OAm}^{2+} + \text{H}^+$	1.87 ^d
$S^s\text{-OH} + \text{Am}^{3+} + \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^s\text{-OAmOH}^+ + 2\text{H}^+$	-5.4 ^d
$S^s\text{-OH} + \text{Am}^{3+} + 2\text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^s\text{-OAm(OH)}_2 + 3\text{H}^+$	-20.2 ^d
$S^w\text{-OH} + \text{Am}^{3+} \leftrightarrow S^w\text{-OAm}^{2+} + \text{H}^+$	-0.3 ^d
$3\text{Na-X} + \text{Am}^{3+} \leftrightarrow \text{Am-X}_3 + 3\text{Na}^+$	1.3 ^d

^aBradbury and Baeyens, 2005^bBradbury and Baeyens, 2006^cGao et al., 2021^dKumar et al., 2013

은 1.6, 6.8, 1.67을 GMZ는 2.7, -5.5, 2.0이 각각 적용되었는데, 이는 두 벤토나이트의 실험 조건이 서로 상이하기 때문이다. GMZ는 용액의 이온강도를 0-0.3 mol L⁻¹까지 매우 넓은 범위에서 변화시켜가며 실험을 수행하였으며, 이온강도가 낮아질수록 양이온 교환반응이 수착에 큰 영향을 미친다. 따라서 GMZ에서는 이온강도가 매우 낮은 실험 결과에 의해 양이온 교환반응의 선택계수가 큰 값 (Am-X₃: 2)에서 최적화된 것으로 볼 수 있다. 또한, 용액의 이온강도는 벤토나이트 표면 수산기에도 영향을 미칠 수 있으며, 이로 인하여 이온강도가 크게 다른 환경에서 실험을 수행하는 경우 동일한 표면 착화반응에 대해 다른 반응상수가 결정될 수 있다. 따라서 표면 착화상수 및 선택계수와 같은 지화학적 매개변수는 각 실험을 가장 잘 설명하기 위해 결정되는 값이며, 벤토나이트의 종류와 실험 환경에 따라 서로 다른 값이 적용될 수 있다. 유사하게, SWy-1, GMZ에 대한 수착 모델에서는 S^s-OH에 대해 4가지 표면 착화반응 (S^s-OAm²⁺, S^s-OAmOH⁺, S^s-OAm(OH)₂, S^s-OAm(OH)₃⁻)이 고려된 반

면, Western India에서는 S^s-OH에 대해 3가지 표면 착화반응 (S^s-OAm²⁺, S^s-OAmOH⁺, S^s-OAm(OH)₂)과 더불어 수착용량이 큰 S^w-OH에서의 표면 착화반응 (S^w-OAm²⁺)이 함께 고려되었다. 이는 넓은 범위의 농도 조건 ([Am]_{initial}=10⁻⁷-10⁻³ mol L⁻¹)에서 나타나는 비선형 수착을 해석하기 위해 추가적인 표면 착화작용기의 도입이 모델링 작업에 필요했기 때문이다. 따라서, 선행연구에서 사용된 수착모델을 참고할 경우 반드시 실험 조건의 비교를 통한 모델 적합성 검토가 필요하다.

3.2.3. 셀레늄 (Se)

셀레늄의 중 분화와 분포는 pH, 고체시료의 화학적 및 광물학적 조성, 미생물 상호작용, 수착 표면의 특성을 비롯한 여러 요인에 따라 변화하며, 특히 산화-환원 전위에 따라 복잡한 수성 이온종을 가진다. Missana et al. (2009)는 FEBEX와 셀레늄의 수착에 대해 pH (3-11), 이온강도 (0.001-0.5 mol L⁻¹), [Se]_{initial} (10⁻¹⁰-10⁻⁴ mol L⁻¹)의 영향을 확인하는 실험을 수행하고 2SP-NE-SC/CE 모델

Table 8. Surface complexation constants on surface complexation sites (S^s-OH, S^w-OH, and S-OH) for selenium (Se) sorption on various bentonite samples

Surface complexation / Cation exchange reaction	log K
FEBEX + 2SP-NE-SC	
$S^s-OH_2^+ + SeO_3^{2-} \leftrightarrow S^s-OH_2SeO_3^-$	12.0 ^a
$S^w-OH_2^+ + SeO_3^{2-} \leftrightarrow S^w-OH_2SeO_3^-$	11.95 ^a
$S^s-OH_2^+ + HSeO_3^- \leftrightarrow S^s-OH_2SeO_3$	17.9 ^a
$S^w-OH_2^+ + HSeO_3^- \leftrightarrow S^w-OH_2SeO_3$	17.65 ^a
GMZ +2SP-DL-SC/CE	
$S-OH_2^+ + HSeO_3^- \leftrightarrow S-SeO_3 + H_2O$	3.3 ^b
$2S-OH + HSeO_3^- \leftrightarrow (S)_2-SeO_3 + H_2O + OH^-$	15.8 ^b
$2S-OH + Eu^{3+} + HSeO_3^- \leftrightarrow (SO)_2-EuSeO_3^- + 3H^+$	-1.1 ^b

^aMissana et al., 2009

^bShi et al., 2014

을 사용하여 최적화하였다 (Table 2-2). 여기서 셀레늄은 표면 착화반응에 대한 반응식만 존재하고 양이온 교환반응에 의한 수착은 제안되지 않았는데 (Table 8), 이는 용존 셀레늄 화학종이 대부분의 pH 조건에서 음이온으로 존재하기 때문이다. [Se]_{initial}에 대한 실험은 최대 10⁻⁴ mol L⁻¹ 까지 수행되었으며, 이를 해석하기 위해서 수착 용량이 큰 S^w-OH에서의 표면 착화반응 (S^w-OH₂SeO₃⁻, S^w-OH₂SeO₃)이 함께 고려되었다. Shi et al. (2014)는 높은 고액비 환경 (20 g L⁻¹) 에서 [Se]_{initial}의 영향 (10⁻⁶-10⁻³ mol L⁻¹)과 더불어, 셀레늄과 यू로피움 핵종 ([Eu]_{initial}=3.3×10⁻⁵ mol L⁻¹)이 함께 존재하는 경우에 대해 GMZ의 수착을 평가하였다 (Table 2-2). 특히, 높은 고액비 조건이 적용되었는데, 이는 셀레늄 화학종이 대부분 음이온으로 분포하기 때문에 총 수착량을 증가시키기 위해서 설정되었을 것으로 사료된다. 고액비가 증가하면 벤토나이트의 총 표면적 및 표면 작용기의 수착 용량이 증가하여 수착 자리의 포화에 늦게 도달하기 때문에, 고농도에서도 유의미한 수착을 확인할 수 있다. 이로 인하여, Shi et al. (2014)에서 사용한 2SP-DL-SC/CE 모델에서는 넓은 범위의 셀레늄 농도에서 실험을 수행하였음에도, 단일 표면 착화자리 (S-OH)에서의 수착 반응 (S-SeO₃, (S)₂-SeO₃, (SO)₂-EuSeO₃⁻)만 고려하여 셀레늄 수착을 설명하였다. 이처럼 수착 반응을 설정할 때, 고려하는 핵종의 농도와 수착 용량, 고액비 조건을 반영하여 추가적인 수착 자리가 반영되어야 할 필요가 있다 (Stockmann et al., 2022).

3.2.4. यू로피움 (Eu)

용존 यू로피움은 아메리슘과 비슷하게 산화-환원 환경에 관계없이 대부분 3가의 산화수로 존재하는 특징을 나타낸다. यू로피움과 점토광물의 수착은 매우 많은 연구

가 수행되었는데, 이는 यू로피움이 매우 특별한 물리화학적 특성을 가지기 때문이다. यू로피움은 3가의 탄탄족 화합물이며, 또한 3가 악티늄족 이온과도 유사한 수착 특성을 나타낸다. 방사성폐기물 관리 측면에서 대부분 악티늄족은 높은 독성과 방사능을 가지고 있기 때문에 연구가 제한되어 있다. 따라서 유사핵종으로 다양한 조건에서 यू로피움의 수착을 연구하고 이를 악티늄족의 수착 특성에 적용하기 위한 방향으로 많은 연구가 진행되었다.

Υ로피움의 수착에 대해서는 가장 많은 선행연구 자료가 구축되었다. Bradbury and Baeyens (2005)에서는 주 양이온이 Na (=0.1 mol L⁻¹), Ca (=0.066 mol L⁻¹)인 환경에서 pH (3-10)의 영향을 평가하고 2SP-NE-SC/CE 모델을 사용하여 최적화하였다 (Table 2-1). Fernandes et al. (2008)은 용존 탄산이 존재 (10^{-3.5} atm, 2×10⁻² mol L⁻¹) 하는 환경에서 pH (4-10)에 의한 영향을 평가하였으며, 이를 모델에 반영하기 위해서 यू로피움 탄산 화학종의 표면 착화반응 (S^s-OEuCO₃, S^s-OEuOHCO₃⁻)을 추가하였다. Schnurr et al. (2015)는 [Eu]_{initial}=2×10⁻⁷ mol L⁻¹에서 용액의 이온강도를 0.1-3.9 mol L⁻¹, pH를 3-12까지 변화시켜가며 실험을 수행하였으며, 특히 pH=12인 환경에서 수행된 실험을 해석하기 위해서 S^s-OEu(OH)₃⁻ 반응을 추가로 설정하여 최적화를 수행하였다. 또한, MX-80은 [Eu]_{initial}=10⁻¹¹-10⁻⁶ mol L⁻¹ 범위에서 수착 거동 변화를 평가하였으며, 2SP-NE-SC/CE 모델을 사용하여 해석되었다 (Bradbury and Baeyens, 2011). 위 실험들은 공통적으로 यू로피움 농도가 최대 10⁻⁶ mol L⁻¹ 이하의 저농도에서 수행된 실험으로, 상대적으로 수착 용량이 적은 S^s-OH만 적용해도 해석이 가능하다.

반면, Jinchuan과 Western India를 사용한 실험에서 [Eu]_{initial}=10⁻⁹-10⁻³ mol L⁻¹ 범위까지 수행되었으며, 이는

Table 9. Surface complexation constants and selectivity coefficients on surface complexation sites (S^s-OH, S^w-OH, S-OH) and cation exchange sites (X) for europium (Eu) sorption on various bentonite samples

Surface complexation / Cation exchange reaction	log K
SWy-1 + 2SP-NE-SC/CE	
$S^s\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} \leftrightarrow S^s\text{-OEu}^{2+} + \text{H}^+$	1.6 ^{a, b} , 2.3 ^c
$S^s\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} + \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^s\text{-OEuOH}^+ + 2\text{H}^+$	-6.4 ^a , -5.9 ^{b, c}
$S^s\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} + 2\text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^s\text{-OEu(OH)}_2 + 3\text{H}^+$	-15.7 ^a , -14.2 ^b , -13.9 ^c
$S^s\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} + 3\text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^s\text{-OEu(OH)}_3^- + 4\text{H}^+$	-25.8 ^c
$S^s\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} + \text{CO}_3^{2-} \leftrightarrow S^s\text{-OEuCO}_3 + \text{H}^+$	8.3 ^b
$S^s\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} + \text{CO}_3^{2-} + \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^s\text{-OEuOHCO}_3^- + 2\text{H}^+$	-0.25 ^b
$3\text{Na-X} + \text{Eu}^{3+} \leftrightarrow \text{Eu-X}_3 + 3\text{Na}^+$	1.47 ^a , 1.46 ^b , 1.5 ^c
MX-80 + 2SP-NE-SC/CE	
$S^s\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} \leftrightarrow S^s\text{-OEu}^{2+} + \text{H}^+$	1.6 ^d
$S^s\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} + \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^s\text{-OEuOH}^+ + 2\text{H}^+$	-16.4 ^d
$S^s\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} + 2\text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^s\text{-OEu(OH)}_2 + 3\text{H}^+$	-15.7 ^d
$3\text{Na-X} + \text{Eu}^{3+} \leftrightarrow \text{Eu-X}_3 + 3\text{Na}^+$	1.5 ^d
Jinchuan + 2SP-DL-SC/CE	
$S^s\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} \leftrightarrow S^s\text{-OEu}^{2+} + \text{H}^+$	1.3 ^{e, f}
$S^w\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} \leftrightarrow S^w\text{-OEu}^{2+} + \text{H}^+$	-2.0 ^{e, f}
$S^w\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} + \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^w\text{-OEuOH}^+ + 2\text{H}^+$	-6.8 ^{e, f}
$S^w\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} + 3\text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^w\text{-OEu(OH)}_3^- + 4\text{H}^+$	-20.6 ^{e, f}
$S^w\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} + \text{CO}_3^{2-} \leftrightarrow S^w\text{-OEuCO}_3 + \text{H}^+$	8.2 ^e
$3\text{Na-X} + \text{Eu}^{3+} \leftrightarrow \text{Eu-X}_3 + 3\text{Na}^+$	1.3 ^{e, f}
GMZ + 2SP-DL-SC/CE	
$S\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} + \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^s\text{-OEuOH}^+ + 2\text{H}^+$	-7.7 ^g
$2S\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} + \text{HSeO}_3^- \leftrightarrow (\text{SO})_2\text{-EuSeO}_3^- + 3\text{H}^+$	-1.1 ^g
$3\text{Na-X} + \text{Eu}^{3+} \leftrightarrow \text{Eu-X}_3 + 3\text{Na}^+$	2.0 ^g
Western India + 2SP-NE-SC/CE	
$S^s\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} \leftrightarrow S^s\text{-OEu}^{2+} + \text{H}^+$	1.87 ^h
$S^s\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} + \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^s\text{-OEuOH}^+ + 2\text{H}^+$	-5.4 ^h
$S^s\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} + 2\text{H}_2\text{O} \leftrightarrow S^s\text{-OEu(OH)}_2 + 3\text{H}^+$	-20.2 ^h
$S^w\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} \leftrightarrow S^w\text{-OEu}^{2+} + \text{H}^+$	-0.3 ^h
$3\text{Na-X} + \text{Eu}^{3+} \leftrightarrow \text{Eu-X}_3 + 3\text{Na}^+$	1.3 ^h

^aBradbury and Baeyens, 2005^bFernandes et al., 2008^cSchnurr et al., 2015^dBradbury and Baeyens, 2011^eGuo et al., 2009^fChen et al., 2014^gShi et al., 2015^hKumar et al., 2013

수착 용량이 적은 S^s-OH만으로 해석이 불가능하다 (Guo et al., 2009; Kumar et al., 2013). 따라서, 수착 용량이 더 큰 S^w-OH의 표면 착화반응 (S^w-OEu²⁺, S^w-OEuOH⁺, S^w-OEu(OH)₃⁻, S^w-OEuCO₃)을 추가하여 고농도에서의 यू로피움 수착을 해석하였다. Chen et al. (2014)는 यू로피움과 셀레늄이 함께 존재하는 환경에서 수착 실험을 수행

하고, 이를 모델링하기 위해서 यू로피움의 반응 (S^s-OEuOH⁺)에 더하여 셀레늄과의 표면 착화반응 ((SO)₂-EuSeO₃⁻)을 함께 적용하였다.

유로피움의 수착은 온도가 25°C에서 150°C로 증가함에 따라서 증가하는 경향을 나타내었으며 (Table 10), 벤토나이트의 층간 양이온이 Ca, Na인지에 따라서 양이온 교

Table 10. Surface complexation constants and selectivity coefficients on surface complexation site (Al-OH) and cation exchange site (X) for europium (Eu) sorption on Jinchuan bentonite at elevated temperature condition (Tertre et al., 2006)

Surface complexation / Cation exchange reaction	log K
MX-80 + 2SP-DL-SC/CE	
$\text{Al-OH} + \text{Eu}^{3+} \leftrightarrow \text{Al-OEu}^{2+} + \text{H}^+$	$-1.0^a, 2.5^b, 6.5^c, 7.5^d$
$3\text{Na-X} + \text{Eu}^{3+} \leftrightarrow \text{Eu-X}_3 + 3\text{Na}^+$	$5.4^{a, b, c, d}$

^aT = 25°C

^bT = 40°C

^cT = 80°C

^dT = 150°C

환반응 뿐만 아니라 표면 착화반응에도 영향이 있는 것으로 확인되었다 (Table 11). 마지막으로 Missana et al. (2021)는 동일한 유로피움 실험에 대해서 같은 2SP-NE-SC/CE 모델을 서로 다른 열역학 데이터베이스 (EQ(3)/6 과 ThermoChimie)에서 각각 최적화시킨 표면 착화상수 값을 나타내었다 (Table 12). 동일한 실험 데이터와 모델

을 적용하였음에도 열역학 데이터베이스에 따라서 표면 착화상수 값의 차이가 크게 다른 것을 확인할 수 있으며, 이는 열역학 데이터베이스에 따라서 고려하는 유로피움 화학종과 평형상수 값이 상이하기 때문이다.

4. 결 론

본 연구에서는 심층처분 시스템에서 고려되는 벤토나이트로의 핵종 수착에 대한 열역학 데이터베이스 및 지하화 반응 모델 구축을 위한 기초연구로써, 여러 종류의 벤토나이트 (SWy-1, Volclay, MX-80, FEBEX, Jinchuan, Western India, GMZ, SAz-1)를 사용한 기존 방사성핵종 수착 실험결과와 열역학적 수착모델에 대해 분석하였다. 이를 위해서, 각 벤토나이트의 표면 착화자리, 양이온 교환자리, 수착 용량과 이온화 상수를 분석하고, 많은 연구가 수행된 핵종 (U, Eu, Am, Se)을 대상으로 기 보고된 수착 반응상수를 평가하였다.

핵종과 벤토나이트 간의 수착 거동 해석에 중요한 역할을 하는 열역학적 수착모델은 벤토나이트의 광물학적

Table 11. Surface complexation constants and selectivity coefficients on surface complexation site (S^s-OH, S^{w1}-OH) and cation exchange site (X) for europium (Eu) sorption on Na- and Ca-bentonite (Bradbury and Baeyens, 2002)

Surface complexation / Cation exchange reaction	log K
SWy-1 + 2SP-NE-SC/CE	
$\text{S}^s\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} \leftrightarrow \text{S}^s\text{-OEu}^{2+} + \text{H}^+$	$1.8^a, 0.8^b$
$\text{S}^s\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} + \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow \text{S}^s\text{-OEuOH}^+ + 2\text{H}^+$	$-5.4^a, -5.7^b$
$\text{S}^s\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} + 3\text{H}_2\text{O} \leftrightarrow \text{S}^s\text{-OEu(OH)}_3^- + 4\text{H}^+$	$-22.1^a, -22.6^b$
$\text{S}^{w1}\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} \leftrightarrow \text{S}^{w1}\text{-OEu}^{2+} + \text{H}^+$	$-0.5^a, -1.2^b$
$\text{S}^s\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} \leftrightarrow \text{S}^s\text{-OEu}^{2+} + \text{H}^+$	$1.8^a, 0.8^b$
$3\text{Na-X} + \text{Eu}^{3+} \leftrightarrow \text{Eu-X}_3 + 3\text{Na}^+$	$1.47^{a, b}$
$3\text{Ca-X}_2 + 2\text{Eu}^{3+} \leftrightarrow 2\text{Eu-X}_3 + 3\text{Ca}^{2+}$	$1.11^{a, b}$

^aNa-montmorillonite

^bCa-montmorillonite

Table 12. Surface complexation constants on surface complexation sites (S^s-OH, S^{w1}-OH) for europium (Eu) sorption on FEBEX bentonite sample using different thermodynamic databases, EQ(3)/6 and ThermoChimie (Missana et al., 2021)

Surface complexation / Cation exchange reaction	log K
FEBEX+ 2SP-NE-SC/CE	
$\text{S}^s\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} \leftrightarrow \text{S}^s\text{-OEu}^{2+} + \text{H}^+$	$0.9^a, 1.24^b$
$\text{S}^s\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} + 2\text{H}_2\text{O} \leftrightarrow \text{S}^s\text{-OEu(OH)}_2 + 3\text{H}^+$	$-12.2^a, -16.02^b$
$\text{S}^{w1}\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} \leftrightarrow \text{S}^{w1}\text{-OEu}^{2+} + \text{H}^+$	$-0.05^a, -0.32^b$
$\text{S}^{w1}\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} + 2\text{H}_2\text{O} \leftrightarrow \text{S}^{w1}\text{-OEu(OH)}_2 + 3\text{H}^+$	$-13.62^a, -17.16^b$
$\text{S}^s\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} + \text{CO}_3^{2-} \leftrightarrow \text{S}^s\text{-OEuCO}_3 + \text{H}^+$	$-2.48^a, 7.68^b$
$\text{S}^{w1}\text{-OH} + \text{Eu}^{3+} + \text{CO}_3^{2-} \leftrightarrow \text{S}^{w1}\text{-OEuCO}_3 + \text{H}^+$	$-3.36^a, 5.7^b$

^aEQ(3)/6 (Delany and Lundeen, 1991)

^bThermoChimie (Guillaumont and Mompean, 2003)

특성뿐만 아니라 핵종 농도, 용액의 이온강도, 주 양이온, 온도, 고액비, 용존 탄산 농도 등 세부적인 실험 조건과 밀접하게 연관되어 있다. 핵종 농도와 고액비는 수착 용량 및 수착 자리와 연관되어 있으며, 이온강도와 주 양이온은 양이온 교환반응에 주로 영향을 미친다. 이온강도가 크게 차이나는 경우에는 벤토나이트 표면 착화반응에도 영향을 미칠 수 있다. 또한, 수착 상수는 온도와 연계된 열역학적 데이터로서 온도에 따라서도 값에 차이가 나타난다. 마지막으로 수착모델의 반응식은 최종적으로 모델을 수행하는 연구자의 지화학적 배경지식에 의해 영향을 받기 때문에 동일한 실험에서도 고려하는 수착 반응에 따라 상이한 수착모델과 수착 반응상수가 결정될 수 있다.

이러한 결과는 특정 실험 조건에서 수행된 수착 실험 및 모델의 최적화로 제안되는 수착 반응식과 반응상수가 다양한 환경 조건에 적용하기에 불확실성이 매우 크다는 것을 의미한다. 예를 들어, 아메리슘은 용존 탄산이 없는 조건에서만 실험이 수행된 모델이기 때문에 이 모델을 탄산 이온이 존재하는 경우의 예측에 사용할 수 없다. 또한, 온도에 대한 영향은 우라늄과 유퀴륨에서는 증가로 보이지만 아메리슘에 대해서는 그 영향이 나타나지 않았으며, 동일한 실험 결과에 대해서도 EQ(6)/3 과 ThermoChimie 데이터베이스에서 서로 다른 표면 착화상수가 결정되었다 (Delany and Lundeen, 1991; Guillaumont and Mompean, 2003). 이러한 불확실성을 극복하고, 심층 처분 시스템에 적용가능한 수착모델을 구축하기 위해서는 실제 처분환경과 유사한 지화학 조건에서의 충분한 수착 실험 자료를 생산하고, 적합한 열역학 데이터베이스를 선정하여 생산한 자료의 모델링 및 최적화된 반응상수를 도출하는 연구가 필요하다.

사 사

본 연구는 2023년도 정부(과학기술정보통신부)의 재원으로 사용후핵연료관리핵심기술개발사업단 및 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구사업임 (NRF-2021M2E1A1085185)

References

- Baeyens, B. and Bradbury, M.H. (1997) A mechanistic description of Ni and Zn sorption on Na-montmorillonite Part I: Titration and sorption measurements. *Journal of Contaminant Hydrology*, v.27, p.199-222. doi: 10.1016/S0169-7722(97)00007-7
- Birkholzer, J., Houseworth, J. and Tsang, C.-F. (2012) Geologic disposal of high-level radioactive waste: Status, key issues, and trends. *Annual Review of Environment and Resources*, v.37, p.79-106. doi: 10.1146/annurev-environ-090611-143314
- Boult, K.A., Cowper, M.M, Heath, T.G., Sato, H., Shibutani, T. and Yui, M. (1998) Towards an understanding of the sorption of U (VI) and Se (IV) on sodium bentonite. *Journal of Contaminant Hydrology*, v.35, p.141-150. doi: 10.1016/S0169-7722(98)00122-3
- Bradbury, M.H. and Baeyens, B. (1997) A mechanistic description of Ni and Zn sorption on Na-montmorillonite Part II: modelling. *Journal of Contaminant Hydrology*, v.27, p.223-248. doi: 10.1016/S0169-7722(97)00007-7
- Bradbury, M.H. and Baeyens, B. (2000) A generalised sorption model for the concentration dependent uptake of caesium by argillaceous rocks. *Journal of Contaminant Hydrology*, v.42, p.141-163. doi: 10.1016/S0169-7722(99)00094-7
- Bradbury, M.H. and Baeyens, B. (2002) Sorption of Eu on Na-and Ca-montmorillonites: experimental investigations and modelling with cation exchange and surface complexation. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, v.66, no.13, p.2325-2334. doi: 10.1016/S0016-7037(02)00841-4
- Bradbury, M.H. and Baeyens, B. (2005) Modelling the sorption of Mn(II), Co(II), Ni(II), Zn(II), Cd(II), Eu(III), Am(III), Sn(IV), Th(IV), Np(V) and U(VI) on montmorillonite: Linear free energy relationships and estimates of surface binding constants for some selected heavy metals and actinides. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, v.69, p.875-892. doi: 10.1016/j.gca.2004.07.020
- Bradbury, M.H. and Baeyens, B. (2006) Modelling sorption data for the actinides Am (III), Np (V) and Pa (V) on montmorillonite. *Radiochimica Acta*, v.94, p.619-625. doi: 10.1524/ract.2006.94.9-11.619
- Bradbury, M.H. and Baeyens, B. (2011) Predictive sorption modelling of Ni (II), Co (II), Eu (III), Th (IV) and U (VI) on MX-80 bentonite and Opalinus Clay: A “bottom-up” approach. *Applied Clay Science*, v.52, p.27-33. doi: 10.1016/j.clay.2011.01.022
- Chen, Z.-G., Tang, C.-S., Shen, Z., Liu, Y.-M. and Shi, B. (2017) The geotechnical properties of GMZ buffer/backfill material used in high-level radioactive nuclear waste geological repository: a review. *Environmental Earth Sciences*, v.76, 270. doi: 10.1007/s12665-017-6580-2
- Chen, Z., Jin, Q., Guo, Z., Montavon, G. and Wu, W. (2014) Surface complexation modeling of Eu (III) and phosphate on Na-bentonite: Binary and ternary adsorption systems. *Chemical Engineering Journal*, v.256, p.61-68. doi: 10.1016/j.cej.2014.06.096
- Delany, J. and Lundeen, S. (1991) The LLNL thermochemical data base--revised data and file format for the EQ3/6 package, Lawrence Livermore National Lab., CA (United States).
- Dincer, I. and Acar, C. (2015) A review on clean energy solutions for better sustainability. *International Journal of Energy Research*, v.39, p.585-606. doi: 10.1002/er.3329
- Dzombak, D.A. and Morel, F.M. (1991) Surface complexation modeling: hydrous ferric oxide. John Wiley & Sons.
- Fernandes, M.M., Baeyens, B. and Bradbury, M.H. (2008) The influence of carbonate complexation on lanthanide/actinide sorption on montmorillonite. *Radiochimica Acta*, v.96, p.691-697. doi: 10.1524/ract.2008.1555
- Fernandes, M.M., Baeyens, B., Dähn, R., Scheinost, A. and Bradbury,

- M.H. (2012) U (VI) sorption on montmorillonite in the absence and presence of carbonate: A macroscopic and microscopic study. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, v.93, p.262-277. doi: 10.1016/j.gca.2012.04.017
- Fuller, A.J., Shaw, S., Peacock, C.L., Trivedi, D., Small, J.S., Abrahamsen, L.G. and Burke, I.T. (2014) Ionic strength and pH dependent multi-site sorption of Cs onto a micaceous aquifer sediment. *Applied Geochemistry*, v.40, p.32-42. doi: 10.1016/j.apgeochem.2013.10.017
- Gaines, G.L. and Thomas, H.C. (1953) Adsorption studies on clay minerals. II. A formulation of the thermodynamics of exchange adsorption. *The Journal of Chemical Physics*, v.21, no.4, p.714-718. doi: 10.1063/1.1698996
- Gao, P., Zhang, D., Jin, Q., Chen, Z., Wang, D., Guo, Z. and Wu, W. (2021) Multi-scale study of Am (III) adsorption on Gaomiaozhi bentonite: Combining experiments, modeling and DFT calculations. *Chemical Geology*, 120414. doi: 10.1016/j.chemgeo.2021.120414
- Grambow, B., Fattahi, M., Montavon, G., Moisan, C. and Giffaut, E. (2006) Sorption of Cs, Ni, Pb, Eu (III), Am (III), Cm, Ac (III), Tc (IV), Th, Zr, and U (IV) on MX 80 bentonite: an experimental approach to assess model uncertainty. *Radiochimica Acta*, v.94, p.627-636. doi: 10.1524/ract.2006.94.9.627
- Guillaumont, R. and Mompean, F.J. (2003) Update on the chemical thermodynamics of uranium, neptunium, plutonium, americium and technetium, 5. Elsevier Amsterdam.
- Guo, Z., Xu, J, Shi, K, Tang, Y, Wu, W. and Tao, Z. (2009) Eu (III) adsorption/desorption on Na-bentonite: experimental and modeling studies. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, v.339, p.126-133. doi: 10.1016/j.colsurfa.2009.02.007
- IAEA (2003) Scientific and Technical Basis for the Geological Disposal of Radioactive Wastes. Technical Reports Series No. 413. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Vienna, Austria.
- IAEA (2009) Geological Disposal of Radioactive Waste: Technological Implications for Retrieval. Nuclear Energy Series No. NW-T-1.19. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Vienna, Austria.
- IAEA (2011) Geological Disposal Facilities for Radioactive Waste, Specific safety guide No. SSG-14. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Vienna, Austria.
- IAEA (2022) Status and Trends in Spent Fuel and Radioactive Waste Management. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Vienna, Austria.
- KAERI (2008) Korean reference HLW disposal system, Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon, South Korea.
- Kale, R.C. and Ravi, K. (2019) Influence of thermal history on swell pressures of compacted bentonite. *Process Safety and Environmental Protection*, v.123, p.199-205. doi: 10.1016/j.psep.2019.01.004
- Kaufhold, S. and Dohrmann, R. (2016) Distinguishing between more and less suitable bentonites for storage of high-level radioactive waste. *Clay Minerals*, v.51, p.289-302. doi: 10.1180/claymin.2016.051.2.14
- Korichi, S. and Bensmaili, A. (2009) Sorption of uranium (VI) on homoionic sodium smectite experimental study and surface complexation modeling. *Journal of hazardous materials*, v.169, p.780-793. doi: 10.1016/j.jhazmat.2009.04.014
- Kowal-Fouchard, A., Drot, R., Simoni, E. and Ehrhardt, J. (2004) Use of spectroscopic techniques for uranium (VI)/montmorillonite interaction modeling. *Environmental Science and Technology*, v.38, p.1399-1407. doi: 10.1021/es0348344
- Kumar, S., Pente, A., Bajpai, R., Kaushik, C. and Tomar, B. (2013) Americium sorption on smectite-rich natural clay from granitic ground water. *Applied geochemistry*, v.35, p.28-34. doi: 10.1016/j.apgeochem.2013.05.016
- Lee, J.O., Choi, H. and Kim, G.Y. (2017) Numerical simulation studies on predicting the peak temperature in the buffer of an HLW repository. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, v.115, p.192-204. doi: 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2017.07.039
- Liu, S., Jiang, Y., Yu, S., Tan, W., Zhang, T. and Lin, Z. (2022) Electric power supply structure transformation model of China for peaking carbon dioxide emissions and achieving carbon neutrality. *Energy Reports*, v.8, p.541-548. doi: 10.1016/j.egyr.2022.10.085
- Marty, N.C.M., Fritz, B., Clément, A. and Michau, N. (2010) Modelling the long term alteration of the engineered bentonite barrier in an underground radioactive waste repository. *Applied Clay Science*, v.47, p.82-90. doi: 10.1016/j.clay.2008.10.002
- Missana, T., García-Gutiérrez, M. and Alonso, U. (2004) Kinetics and irreversibility of cesium and uranium sorption onto bentonite colloids in a deep granitic environment. *Applied Clay Science*, v.26, p.137-150. doi: 10.1016/j.clay.2003.09.008
- Missana, T., Alonso, U. and García-Gutiérrez, M. (2009) Experimental study and modelling of selenite sorption onto illite and smectite clays. *Journal of Colloid and Interface Science*, v.334, p.132-138. doi: 10.1016/j.jcis.2009.02.059
- Missana, T., Benedicto, A., García-Gutiérrez, M. and Alonso, U. (2014) Modeling cesium retention onto Na-, K- and Ca-smectite: Effects of ionic strength, exchange and competing cations on the determination of selectivity coefficients. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, v.128, p.266-277. doi: 10.1016/j.gca.2013.10.007
- Missana, T., Alonso, U. and García-Gutiérrez, M. (2021) Evaluation of component additive modelling approach for europium adsorption on 2: 1 clays: Experimental, thermodynamic databases, and models. *Chemosphere*, v.272, 129877. doi: 10.1016/j.chemosphere.2021.129877
- MOTIE (2021) The 2nd Management of High-Level Radioactive Waste, Ministry of Trade, Industry and Energy, Sejong, South Korea.
- Muller, J., Abdelouas, A., Ribet, S. and Grambow, B. (2012) Sorption of selenite in a multi-component system using the “dialysis membrane” method. *Applied geochemistry*, v.27, p.2524-2532. doi: 10.1016/j.apgeochem.2012.07.023
- NEA (2003) Engineered Barrier Systems and the Safety of Deep Geological Repositories: State of the Art Report. OECD, Nuclear Energy Agency
- Pabalan, R.T. and Turner, D.R. (1996) Uranium (6+) sorption on montmorillonite: Experimental and surface complexation modeling study. *Aquatic Geochemistry*, v.2, p.203-226. doi: 10.1007/BF01160043
- Sadekin, S., Zaman, S., Mahfuz, M. and Sarkar, R. (2019) Nuclear power as foundation of a clean energy future: A review. *Energy*

- Procedia, v.160, p.513-518. doi: 10.1016/j.egypro.2019.02.200
- Samper, J., Zheng, L., Montenegro, L., Fernández, A.M. and Rivas, P. (2008) Coupled thermo-hydro-chemical models of compacted bentonite after FEBEX in situ test. *Applied Geochemistry*, v.23, p.1186-1201. doi: 10.1016/j.apgeochem.2007.11.010
- Schnurr, A., Marsac, R., Rabung, T., Lützenkirchen, J. and Geckeis, H. (2015) Sorption of Cm (III) and Eu (III) onto clay minerals under saline conditions: Batch adsorption, laser-fluorescence spectroscopy and modeling. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, v.151, p.192-202. doi: 10.1016/j.gca.2014.11.011
- Shi, K., Ye, Y., Guo, N., Guo, Z. and Wu, W. (2014) Evaluation of Se (IV) removal from aqueous solution by GMZ Na-bentonite: batch experiment and modeling studies. *Journal of Radio-analytical and Nuclear Chemistry*, v.299, p.583-589. doi: 10.1007/s10967-013-2807-1
- Silverio, L.B. and de Queiroz Lamas, W. (2011) An analysis of development and research on spent nuclear fuel reprocessing. *Energy Policy*, v.39, p.281-289. doi: 10.1016/j.enpol.2010.09.040
- Steeffel, C.I., Carroll, S., Zhao, P. and Roberts, S. (2003) Cesium migration in Hanford sediment: a multisite cation exchange model based on laboratory transport experiments. *Journal of Contaminant Hydrology*, v.67, p.219-246. doi: 10.1016/S0169-7722(03)00033-0
- Stockmann, M., Fritsch, K., Bok, F., Steudtner, R., Müller, K., Nebelung, C., Brendler, V. and Stumpf, T. (2022) New insights into U (VI) sorption onto montmorillonite from batch sorption and spectroscopic studies at increased ionic strength. *Science of The Total Environment*, v.806, 150653. doi: 10.1016/j.scitotenv.2021.150653
- Tertre, E., Berger, G., Simoni, E., Castet, S., Giffaut, E., Loubet, M. and Catalette, H. (2006) Europium retention onto clay minerals from 25 to 150 °C: experimental measurements, spectroscopic features and sorption modelling. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, v.70, p.4563-4578. doi: 10.1016/j.gca.2006.06.1568
- Tournassat, C., Tinnacher, R.M., Grangeon, S. and Davis, J.A. (2018) Modeling uranium (VI) adsorption onto montmorillonite under varying carbonate concentrations: A surface complexation model accounting for the spillover effect on surface potential. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, v.220, p.291-308. doi: 10.1016/j.gca.2017.09.049
- Yang, Z., Huang, L., Lu, Y., Guo, Z., Montavon, G. and Wu, W. (2010) Temperature effect on U (VI) sorption onto Na-bentonite. *Radiochimica Acta*, v.98, p.785-791. doi: 10.1524/ract.2010.1784
- Zavarin, M., Chang, E., Wainwright, H., Parham, N., Kaukuntla, R., Zouabe, J., Deinhart, A., Genetti, V., Shipman, S. and Bok, F. (2022) Community data mining approach for surface complexation database development. *Environmental Science and Technology*, v.56, p.2827-2838. doi: 10.1021/acs.est.1c07109
- Zhan, L., Bo, Y., Lin, T. and Fan, Z. (2021) Development and outlook of advanced nuclear energy technology. *Energy Strategy Reviews*, v.34, 100630. doi: 10.1016/j.esr.2021.100630
- Zheng, L., Rutqvist, J., Xu, H. and Birkholzer, J.T. (2017) Coupled THMC models for bentonite in an argillite repository for nuclear waste: Illitization and its effect on swelling stress under high temperature. *Engineering Geology*, v.230, p.118-129. doi: 10.1016/j.enggeo.2017.10.002
- Zheng, L., Samper, J. and Montenegro, L. (2011) A coupled THC model of the FEBEX in situ test with bentonite swelling and chemical and thermal osmosis. *Journal of Contaminant Hydrology*, v.126, p.45-60. doi: 10.1016/j.jconhyd.2011.06.003