

## 환원환경에서 암반 균열을 통한 우라늄 이동 특성에 대한 연구

백민훈, 조원진, 한필수 (한국원자력연구소)

### 1. 서 론

현재 국내의 고준위방사성폐기물(High-Level Radioactive Waste, HLW) 처분개념은 지하 500미터 정도의 심지층 결정질 암반에 다중방벽 개념에 기초한 처분시스템을 건설하고 사용후핵연료를 처분하는 것이다[1]. 처분장 주변의 포화된 암반 균열을 통해 침투한 지하수가 폐기물을 용해하여 방사성핵종을 유출시키면 유출된 핵종들은 처분장으로부터 지하수를 따라 암반 균열을 통해 자연 생태환경으로 이동하게 된다. 아울러 처분장의 안전성 평가를 위해서는 이러한 암반 균열을 통한 핵종이동과 관련된 수착(sorption), 암반확산(rock matrix diffusion), 이류-분산(advection-dispersion), 콜로이드 및 복합체 형성 등 다양한 물리화학적 과정들에 대한 이해 및 해석, 그리고 수학적 모델링 등이 필요하다[2].

특히 환경 및 인간에 대한 위해도 및 독성 등이 매우 커서 HLRW 관리에서 관심의 주 대상인 악티늄 핵종들의 경우 지하매질 및 지하수와 매우 복잡하고 다양한 상호작용을 하기 때문에 처분장의 안전성 평가에서는 이러한 이동과정 및 상호작용들에 대한 지화학적 변수들의 영향을 꼭 고려해야 한다. 그러나 실제 이러한 지화학적 변수들의 영향을 고찰하기 위한 핵종이동 연구는 많은 제약을 가지고 있기 때문에 쉽게 수행되지 못하고 있는 것이 현실이다[3]. URL 등의 현장 실험을 이용한 실증실험도 중요하지만 이러한 현장 실험의 경우 실제 처분장의 처분환경에서의 핵종이동 현상을 이해하는데, 또 안전성 평가에서 모델 적합성을 평가하는데 많은 도움이 되지만, 핵종이동의 중요한 이동과정이나 지하매질과의 상호작용 대한 정확한 정보를 얻기는 힘들다는 단점과 실제 자연계의 복잡성으로 인해 획득한 자료를 해석하는 것이 어렵다는 단점이 있다. 따라서 본 연구에서는 실제 천연지하수 및 자연균열을 가진 화강암 코어를 이용하여 타당한 지하조건을 모사하기 위한 실험 장치를 글로브박스(Glove-Box) 내에 설치하고 핵종이동 실험을 수행하였다.

### 2. 실 험

#### 2.1 균열 암석

실험에 사용된 자연 균열을 가진 암석 코어는 원자력연구소 부지 내 지하처분연구시설(KURT, KAERI Underground Research Tunnel)의 시추공으로부터 얻은 것이다(그림 1 참조)[4]. 그리고 실험에 실제로 사용된 암석 코어의 사진을 그림 2에 나타내었다. XRD를 이용한 분석결과 암석의 주요 구성광물은 석영, 녹니석, 알바이트(albite), K-장석(K-feldspar), 흑운모(Biotite), 질석(Vermiculite) 등

으로 구성되어 있으며, 균열 충전 광물은 자연 불석(zeolite)의 일종인 로몬타이트(laumontite)인 것으로 확인되었다(그림 3 참조).

표 1에는 암석에 대한 모달 분석 결과를 나타내었다. 그리고 QAP 분석결과에 의하면 사용된 암석은 화강섬록암(Granodioritic gneiss)인 것으로 판단된다. 그 외에도 복운모화강암(Two-mica granite) 및 안산암질 암맥 (Andensitic dyke) 등이 관측되었다. 특히, 본 실험에 사용된 시추 코어의 균열충진 광물인 로몬타이트에 대한 편광현미경 사진 및 SEM 사진을 그림 4에 나타내었다.

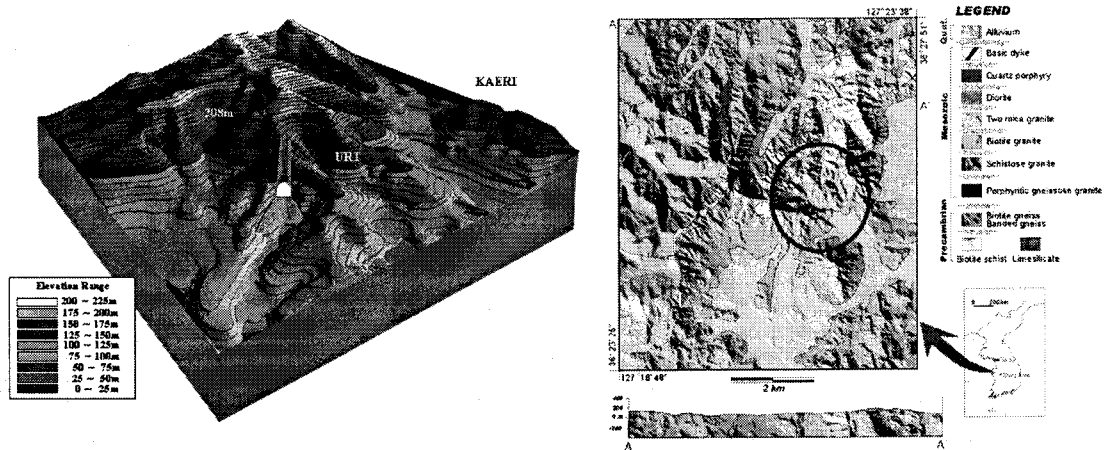


그림 1. KAERI 연구지역의 지형학적 및 지질학적 지도

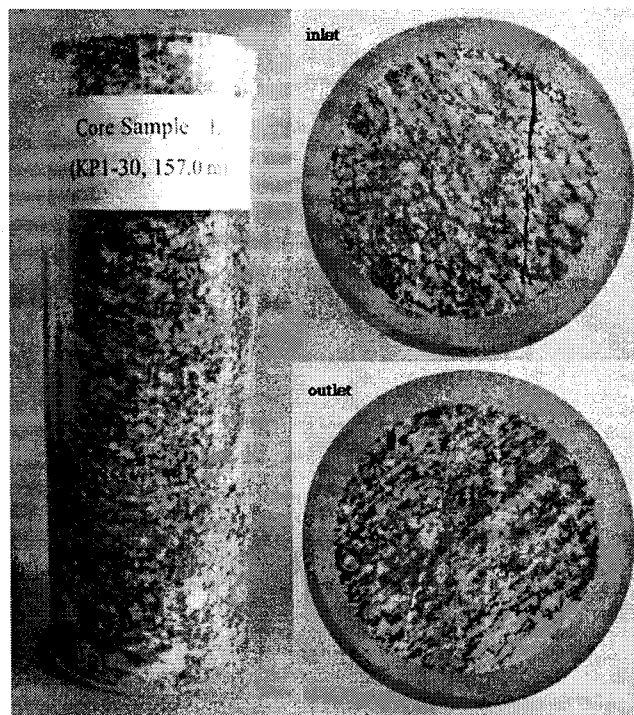


그림 2. 실험에 사용된 균열 암반 코어 사진

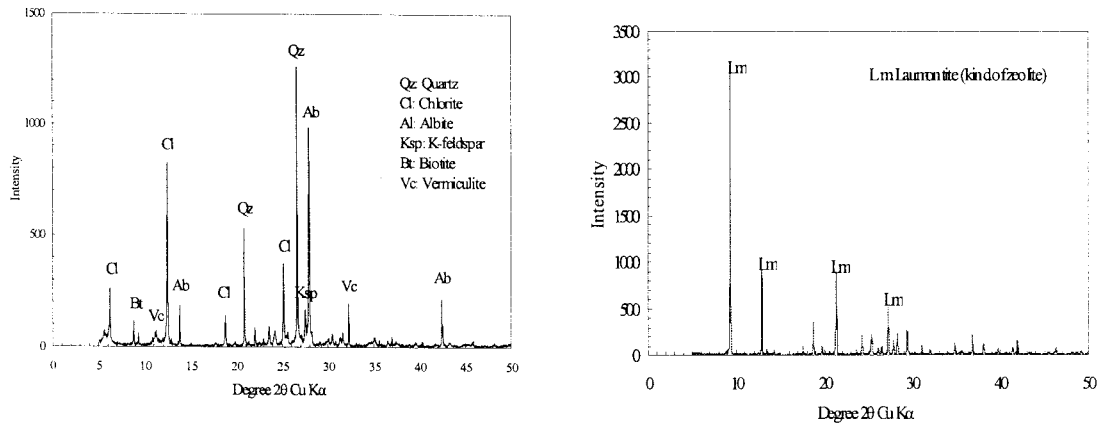


그림 3. 암석 및 균열 충전광물에 대한 XRD 분석 결과

표 1. 모달분석에 의한 화강암의 광물조성

Minerals	Composition (volume %)
Quartz	32.13
Microcline	6.80
Plagioclase	47.07
Biotite	7.20
Muscovite	0.40
Chlorite	6.40
Total	100

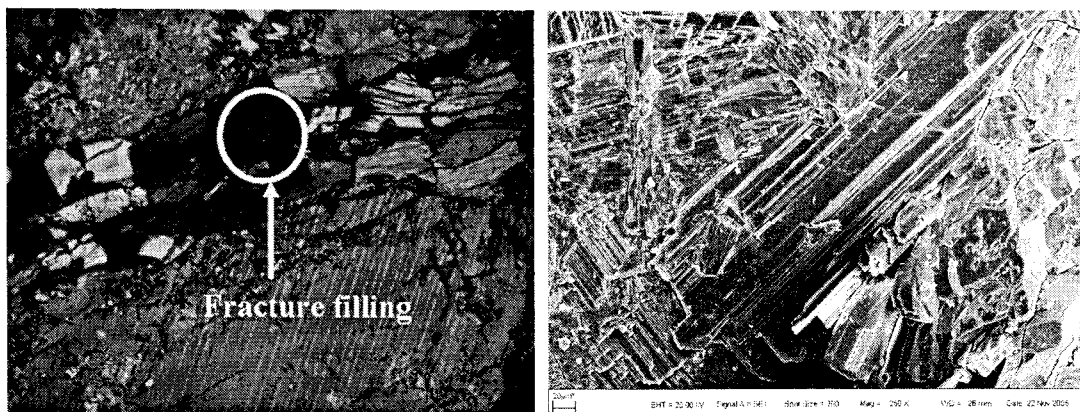


그림 4. 균열충진광물에 대한 편광현미경 및 SEM 사진

## 2.2 지하수

사용된 천연 지하수는 원자력연구소 부지 내 다중팩커(multipacker)가 설치된 시추공 (YS-01)으로 부터 450미터 깊이에서 채취한 지하수를 사용하였다. 사용된 지하수의 지화학적 조건들은 pH = 9.9, Eh = -195 mV,  $P_{CO_2} = 10^{-5.61}$  atm, alkalinity =  $7.5 \times 10^{-4}$  등으로 NaHCO<sub>3</sub> 형 지하수인 것으로 측정되었다(표 2 참조).

표 2. 지하수 주요 변수 및 화학적 조성

Temperature (oC)		24.4	
Eh (mV)		-194	
pH		9.92	
Nuclide	Concentration (mg/L)	Nuclide	Concentration (mg/L)
Na	35.7	Cl	4.2
SiO <sup>2</sup>	18.5	NO <sup>3</sup>	0.01
Ca	2.7	SO <sub>4</sub>	2.3
K	0.33	Al	0.0791
Mg	0.05	Mn	0.0008
Li	0.1176	Fe	0.00155
HCO <sup>3</sup>	0.00065	Sr	0.059
O <sub>2</sub>	0	Pb	0.00029
F	12.7	UO <sub>2</sub>	0.00038

## 2.3 사용 핵종

화강암 시추 코어의 균열을 통한 용액의 수력학적 흐름 특성을 해석하기 위해 비수착성 음이온 핵종인 Br-(0.01M NaBr, Aldrich)를 사용하였고, 실험 후 유출된 용액에 포함된 Br-의 농도는 IC(Ion Chromatography, Waters)를 이용하여 측정하였다. 본 실험에 사용된 악티늄 핵종은 우라늄(UO<sub>2</sub>(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>·6H<sub>2</sub>O, Sigma)을 사용하였고, 우라늄의 농도는 ICP-MS(Varian, Ultramass 700: 상지대학교, 자연과학지원연구센터)를 이용하여 측정하였다. 사용된 우라늄의 농도는 우라늄의 용해도를 고려하여 산용액(10<sup>-3</sup> M HClO<sub>4</sub>)에 용해된 약 10<sup>-3</sup> M의 UO<sub>2</sub>(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>·6H<sub>2</sub>O를 지하수 용액으로 희석하여 약 2×10<sup>-6</sup> M(476 ppb)을 만들어 사용하였다.

우라늄을 포함하는 악티나이드 계열의 핵종들은 지화학적 변수들에 매우 민감하게 변화한다. 그동안 우라늄의 화강암 수착현상에 대한 지화학적 변수들의 영향을 고찰하는 연구들이 수행된 바가 있으며[5, 6], 결론적으로 화강암에 대한 우라늄의 수착에 있어 중요한 지화학적 변수들은 pH, Eh, carbonate 및 유기물 등이라고 할 수 있다. 그러나 이들 변수들의 영향을 모두 고려하기는 쉽지 않으며, 더구나 변수들 간에 서로 상관관계를 가지므로 현장 시료들을 사용한 실험에서는 그 영향을 규명하기가 쉽지 않다. 비록 실험에 의해 확인되지는 않았지만 지화학코드 등을 이용한 계산결과에 의하면[7] 현재 실험에 사용한 지하수의 지화학적 조건에서 우라늄의 주요 화학종은 UO<sub>2</sub>(OH)<sub>3</sub><sup>-</sup> 와 UO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub><sup>4-</sup> 등 주로 음이온 복합체로 존재할 것으로 예상된다.

## 2.4 실험 장치 및 방법

그림 5에 균열 암반 이동 실험 장치를 도시하여 나타내었다. 화강암 코어를 지지하여 화강암 코어의 균열이 아닌 코어 둘레를 따라 용액이 흐르는 것을 방지하고, 지하수 흐름에 의한 균열의 벌어짐을 방지하기 위해 사용된 가압 기체로는 고순도(99.999%) 질소가 사용되었고 약 3.0 MPa 정도의 압력으로 가압하였다.

추적자의 주입은 임펄스(impulse) 형태로 SS(stainless steel)관을 이용하여 HPLC(Younglin 930M) 펌프를 이용하여 주입하였고 용액의 흐름이 정상상태에 도달하면 일정 기간 동안 주입한 후 다시 용액을 흘리는 방식을 도입하였다. 유출되어 나온 용액은 Fractional collector를 이용하여 바이알(vial) 당 80 방울(약 3.8 mL)의 용액을 수집하였다. 수집된 용액들은 농도 분석을 위해 4 °C 냉장고에 보관하였다.

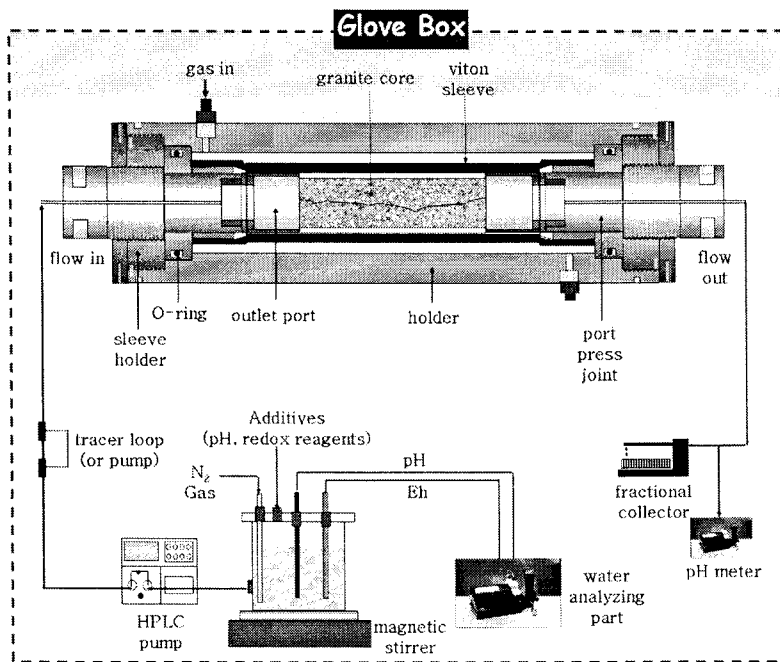


그림 5. 환원환경에서 암반균열을 통한 우라늄 이동 실험 장치.

암반 균열을 통한 우라늄 실험은 환원조건 유지를 위하여 글로버박스 안에서 실시되었다. 산소를 포집하기 위한 포집제로는 CuO가 사용되었고(Ridox Oxygen Scavenger, Fisher Scientific), 산소 농도는 Oxygen analyzer(DF-150, Delta-F)를 이용하여 측정하였다. 글로버박스내의 산소 농도는 약 10 ppm 수준을 유지하도록 하였다. 그리고 CO<sub>2</sub>의 농도는 N<sub>2</sub>를 purging하는 것으로도 충분히 낮은 농도를(< 0.1 ppm) 유지할 수 있었으므로 실제로 따로 포집장치를 설치하지는 않았다.

## 3. 결과 및 논의

### 3.1 균열의 수력학적 특성

화강암 시추 코어의 균열을 통한 용액의 수력학적 흐름 특성은 균열 폭을 계산하거나 흐름 특성을

해석하기 위해 꼭 필요하다. 본 연구에서는 암반 코어의 균열을 통한 지하수 유동을 해석하기 위하여 비수착성 음이온 핵종인 Br<sup>-</sup>(0.01M NaBr)로 지하수 유동 실험을 수행하였고, 그 결과 결과로 얻어진 유출곡선을 그림 6에 나타내었다.

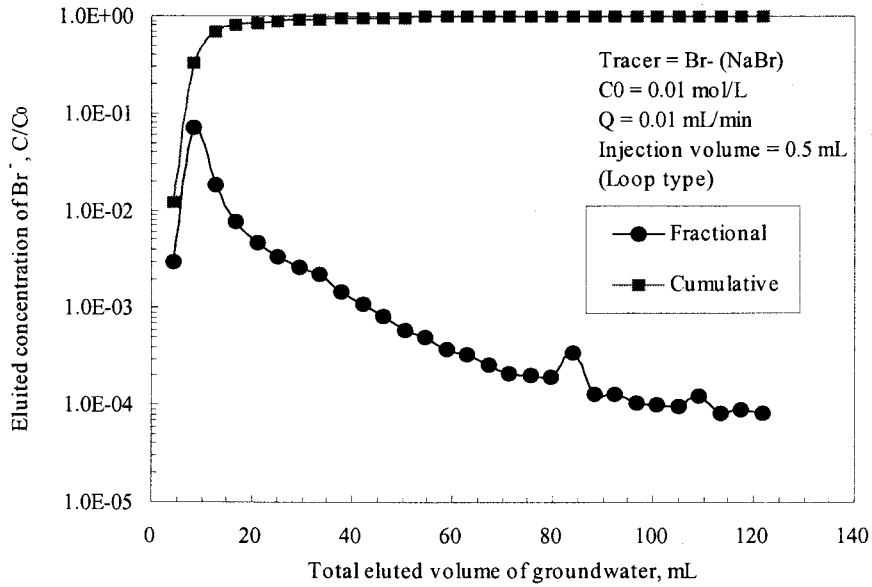


그림 6. 균열 암반을 통한 비수착성 핵종인 Br<sup>-</sup>의 유출 곡선.

시간에 의존하는 비수착성 핵종의 파과곡선의 0<sup>th</sup>, 1<sup>st</sup>, 2<sup>nd</sup> 모멘텀(momentum)을 이용하여 균열의 수력학적 특성에 대한 여러 변수들이 결정된다[8]. 0<sup>th</sup> 모멘텀에 대한 1<sup>st</sup> 모멘텀의 비로 지체시간(residence time)  $t_o$ 이 결정된다.

$$t_o = \frac{\sum t_i \cdot C_i}{\sum C_i} \quad (1)$$

지체시간  $t_o$ 를 코어의 길이  $L$ 로 나누어서 균열에서의 기공수(pore water) 유속  $V_o$ 를 구할 수 있다.

$$V_o = \frac{L}{t_o} \quad (2)$$

그리고 횡방향 분산계수(longitudinal dispersion coefficient)  $\sigma_x^2$ 를 이용하여 분산계수  $D$ 와 분산길이(dispersion length)  $\alpha$ 는 다음의 식에 의해 구해진다.

$$D = \frac{\sigma_x^2}{2 \cdot t_o} \quad (3)$$

$$\alpha = \frac{D}{V_o} \quad (4)$$

또한 수력학적 주요 변수인 Peclet 수는 다음의 정의에 의해 구해진다.

$$Pe = \frac{v_o \cdot L}{D} \quad (5)$$

마지막으로 암반 균열에 대한 기공부피(pore volume)  $V_p$ 는 모멘텀을 이용하여 다음과 같이 구할 수도 있다.

$$V_p = \frac{\sum V_i \cdot C_i}{\sum C_i} \quad (6)$$

그리고 이러한 기공부피를 이용하여 균열폭(aperture width)  $\delta$ 을 다음의 관계식으로부터 구할 수 있다.

$$W \cdot L \cdot \delta = V_p \quad (7)$$

여기서  $W$ 는 균열의 너비(width)를 나타낸다. 이렇게 Br의 파과곡선으로부터 구한 수력학적 변수 값들을 표 3에 정리하여 나타내었다.

표 3. 암반 균열의 수력학적 특성

Variables	Definition	Units	Values
$Q$	Flow rate	mL/min	0.01
$C$	Concentration of tracer	M (mol/L)	0.01
$V_i$	Volume of tracer injected	mL	0.5
$P_c$	Confining pressure	MPa	3
$L$	Length of the core	m	0.1789
$t_o$	Residence time	h	24.022
$W$	Width of the fracture	m	0.0474
$V_o$	Average velocity	m/s	$2.0685 \times 10^{-6}$
$D$	Dispersion coefficient	$m^2/s$	$4.7506 \times 10^{-7}$
$a$	Dispersion length	m	0.2297
$Pe$	Peclet number	-	1.306
$V_p$	Pore volume	mL	14.413
$\delta$	Aperture width	m	0.0017

### 3.2 우라늄 이동 실험 결과

균열 암반 코어를 이용한 환원환경에서 암반 균열을 통한 우라늄 이동 실험결과를 그림 7에 나타내

었다. 유출곡선의 피크를 Br와 상호 비교해보면, 우라늄의 이동속도는 비수착성 핵종인 Br와 유사하게 나타나고 있음을 알 수 있다. 이는 앞에서 간략하게 언급했었지만 주어진 지하수 조건에서 우라늄이 주로 비수착성인 음이온을 띠는 탄산염 복합체 또는 가수화물 복합체로 이동하기 때문인 것으로 추정된다. 비록 실험에 의해 확인된 것은 아니지만 우라늄의 이동 실험 결과로부터 +6가로 주입된 우라늄이 지하수 환원 조건에서 +4가로 환원되지 않고 여전히 +6가로 균열을 통해 이동하는 것으로 추측된다.

일반적으로 환원조건 하에서 우라늄은 수착성이 매우 큰 +4가의 이온 형태로 존재할 것으로 예상하지만, 우리가 사용한 지하수의 Eh 조건(-190 mV 정도) 하에서 초기에 주입한 +6가의 우라늄은 칼럼에서의 이동시간 중에 +4로 환원되지 않을 뿐만 아니라 pH 10정도의 강알칼리 조건하에서는 +4가로 환원되기는 더욱 어렵고, 현재의 분석기술로는 이와 같은 지화학조건 및 낮은 우라늄 농도에서 우라늄의 화학종을 실험적으로 확인하는 것도 거의 불가능한 것이 사실이다.

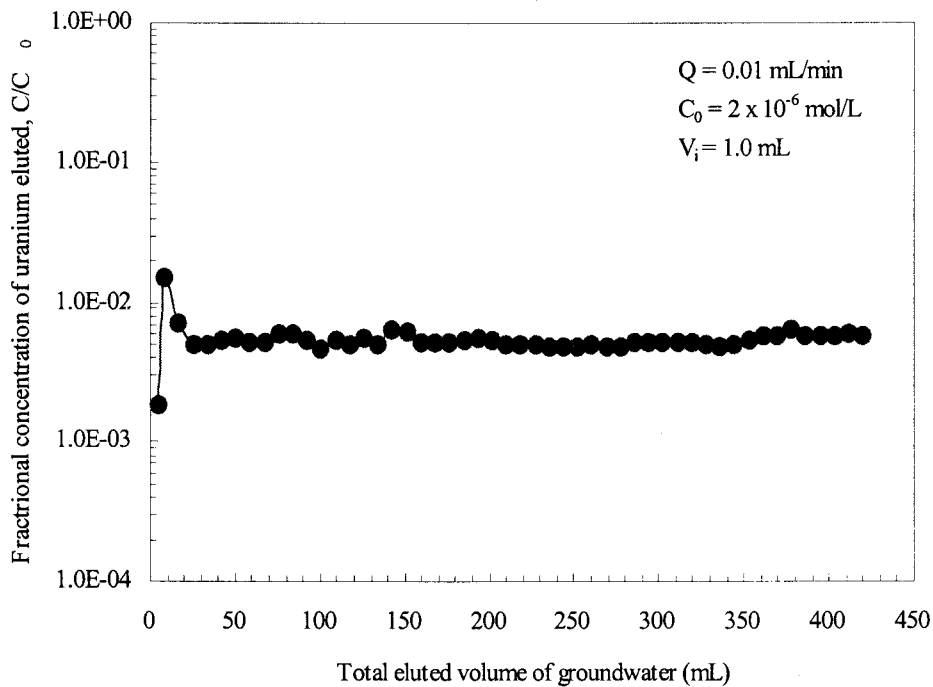


그림 7. 균열 암반 코어를 통한 Br- 및 우라늄 이동실험 결과

아울러 우라늄의 유출곡선을 보면 Br와는 달리 일정한 농도의 긴 꼬리를 가지는 것을 알 수 있다. 비록 측정 농도가  $5 \times 10^{-9}$  M(약 2 ppb) 정도로 ICP-MS로 확인하기에 충분한 농도는 아니지만 확실히 지하수의 우라늄 농도(0.38 ppb)보다는 높게 나타나고 있다. 또한 ICP-MS(Royal Holloway Univ. of London)를 이용한 광물중의 우라늄 농도를 분석한 결과, 암석에는 약 4.3 ppm, 균열충진광물에는 4.6 ppm이 함유되어 있는 것으로 나타났다. 따라서 우라늄 유출곡선의 긴 꼬리는 유동하는 지하수와 접촉한 균열 충진 광물 중의 우라늄이 소량씩 용해되어 유출되어 나온 것일 가능성이 매우 높다. 그러나 이온교환 같은 수착현상도 이에 영향을 미칠 수 있으므로 보다 정확하게 원인에 확인하기 위해서는 균열 표면에 대한 우라늄의 수착현상 및 균열 충진 광물과의 지화학반응 등에 대한 보다 심도 있는 연구가 필요하며 현재 관련 연구를 수행 중에 있다.



## 4. 결 론

환원환경에서 균열 암반을 통한 우라늄의 이동 현상에 연구 수행을 위해 실험 장치를 설치하고 지하수 유동 실험 및 우라늄 이동 실험을 수행하였지만 본 연구는 중간 단계의 연구결과이므로 아직 수행해야 할 연구과제가 많이 남아 있다. 균열 암반을 통한 우라늄의 이동 현상은 지하수/균열 충전 광물/우라늄 간의 매우 복잡한 상호작용과 균열의 수력학적 특성 등에 의존하므로 이러한 상호작용 및 특성에 대한 규명이 우선적으로 이루어져야 할 것이다. 특히 균열 충전 광물에 대한 우라늄의 수착 반응 및 지하수 조건에서의 우라늄의 지화학적 거동 특성에 대한 연구가 추가로 수행되어야 할 것으로 사료된다.

아울러 본 연구에서 수행된 시추 코어 등을 이용한 실험실 규모의 실험뿐만 아니라 대규모 균열 암반을 이용한 실증 실험, 지하시험시설을 활용한 현장 실험, 현장 지질 시료들을 활용한 자연유사 연구 등 다양한 연구를 수행하고 종합적인 결과 해석을 통해 핵종 이동의 장기적인 거동 특성을 이해하고 그 거동의 예측 및 평가에 포함된 여러 불확실성을 감소하고자 노력해야 할 것이다.

### ■ 참고문헌 ■

1. Korea Atomic Energy Research Institute(KAERI), Progress Report on the R&D Program for the Disposal of HLW in Korea, Korea Atomic Energy Research Institute, August 20, 2002, Daejeon.
2. Neretnieks, I., Eriksen, T., and Thtinen, P., 1982, Tracer movement in a single fissure in granitic rock: Some experimental results and their interpretation, *Water Resour. Res.*, Vol. 18, 849–858.
3. Kienzler, B., Vejmelka, P., Römer, Fangh nel, E., Jamsson, M., Eriksen, T. E., and Wikberg, P., 2003, Swedish–German actinide migration experiment at SP hard rock laboratory, *J. Contam. Hydrol.*, Vol. 61, 219–233.
4. 조원진, 박정화, 권상기, 2004, 소규모 지하처분연구시설 부지조사 및 평가, KAERI/TR-2751/2004, 한국원자력연구소, 대전.
5. Baik, M. H. and Hahn, P. S., 2003, Surface and bulk sorption experiments of U(VI) onto granite rock, *J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol. 256, 11–18.
6. Baik, M. H., Hyun, S. P., Cho, W. J., and Hahn, P. S., 2004, Contribution of minerals to the sorption of U(VI) on granite, *Radiochim. Acta* 92, 663–669.
7. Keum, D. K., Baik, M. H., and Hahn, P. S., 2002, Speciation and solubility of major actinides under the deep groundwater conditions of Korea, *J. of the Korean Nuclear Society*, Vol. 34, 517–531.
8. Appelo, C. A. J. and Postma, D., 1994, *Geochemistry, groundwater and pollution*, Ed. BALEKEMA, A. A., Rotterdam, pp. 327.