

반응성용질이동 모델링을 통한 시멘트의 변질과정과 우라늄의 용해도 모사

최병영, 유시원, 안상원, 장광수, 신선호, 고용권

한국원자력 연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150)

choiby@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성폐기물 매립장의 주요 역할은 핵종이 외부로 누출되는 것을 방지하는 것으로, 10만년 이상 장기간동안 환경적인 위해성이 없도록 완전히 고립화 시키는 것이다. 이러한 목적으로 중·저준위 매립장에서는 시멘트가 인공방벽으로 주로 사용되고 있다. 하지만 시멘트 물질은 매립되고 난 후에는 주변 지하수와의 반응에 의해 변질(alteration)되게 되며 핵종의 이동에 영향을 미치는 공극률, 내구성 등 물리적 특성뿐만 아니라 pH, Eh, 이온농도 등 지구화학적 특성이 변하게 된다. 따라서 시멘트의 변질 과정은 핵종의 거동에 영향을 미치는 중요한 요인이 되며 안정성 평가를 위해서는 이를 예측하는 것이 중요할 것으로 판단된다. 하지만 몇 만 년 이상의 시간 단위를 요구하는 안정성 평가에 있어서, 단 기간의 실험 결과를 통해서 시멘트 변질 과정을 예측하는 것은 한계가 있다. 따라서 본 연구에서는 반응성용질이동 모델링을 통해 10만년 동안 시멘트의 변질 과정을 모사하고자 하였다. 또한 이에 따른 우라늄의 용해도 변화를 살펴보고자 하였다.

2. 실험 및 결과

매립 후 주변 지하수에 의한 시멘트의 용해/침전 반응은 확산(Diffusion)에 의해 주로 일어나는 것으로 알려져 있으며 확산계수는 $10^{-11} \sim 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ 의 범위를 갖는 것으로 알려져 있다. 본 연구에서는 확산만을 고려하였으며 확산계수를 $10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 로 선정하였다. 모델링은 PHREEQC를 사용하였으며 모델의 개념은 Fig. 1과 같이 시멘트 방벽의 두께는 1m로 가정하였으며 길이가 10cm인 10개의 셀로 구분하였다. 전체 모델링 기간은 10만년으로 하였다.

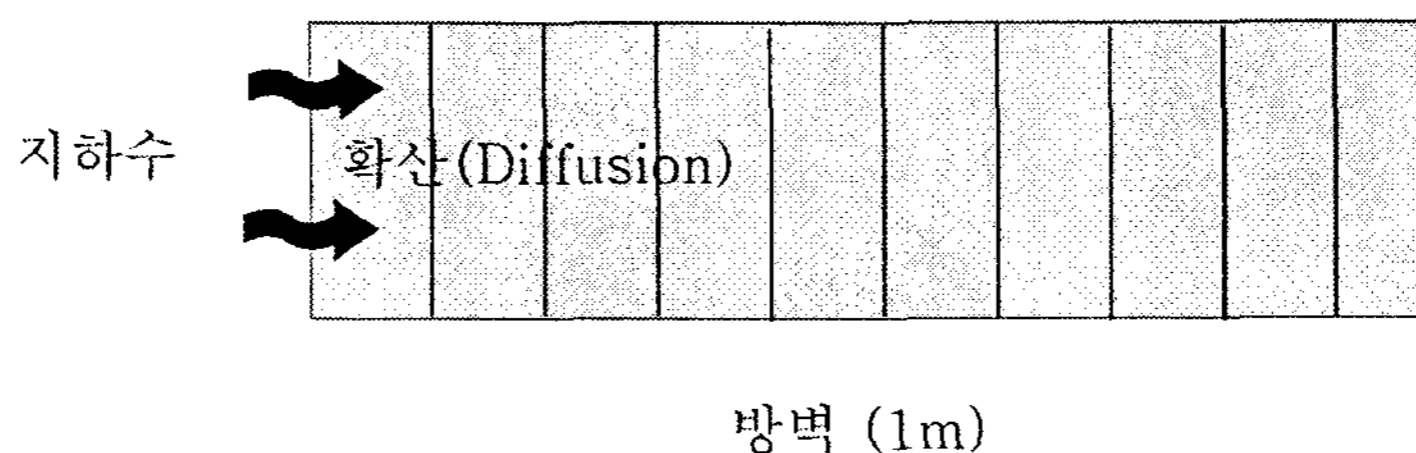


Fig. 1. The concept of transport modeling

시멘트 공극수의 pH 및 화학조성은 포틀랜드 시멘트의 성분과 평형을 가정하여 계산하였으며 주변 지하수는 화강암의 주요 구성 광물인 Albite, Anorthite, K-feldspar와 평형상태에서 구하였다. 그 결과 시멘트 공극수의 pH는 12.996, pe는 -3.353이었으며 지하수의 pH는 8.365, pe는 -4.203이었다.

우라늄의 이온 종은 pH와 Eh에 영향을 받으며 산화/환원 조건에 따라 3, 4, 5, 6가 형태로 존재하는 것으로 알려져 있다. 환원환경에서 U는 4가 형태가 우세하며 산화환경에서는 6가 형태가 우세한 것으로 알려져 있다. U의 고체상은 지하수 조성에 매우 의존적이며 환원환경에서는 UO_{2+x} (안정한 형태는 UO_2 , X=0.33에는 $\text{UO}_{2.33}$ 또는 U_3O_7)로 침전하는 것으로 알려져 있다. 본 연구에서는 우라늄의 용해도 제한 고체상으로 UO_2 로 하였다.

본 초록에서 연구결과는 10개의 셀중 지하수와 접하고 있는 1번 셀만의 변화를 시간에 따라 제시 하였으며 결과는 다음 Fig.2와 Fig. 3과 같다. 모든 축은 변화를 쉽게 볼 수 있도록 log 축을 사용 하였다.

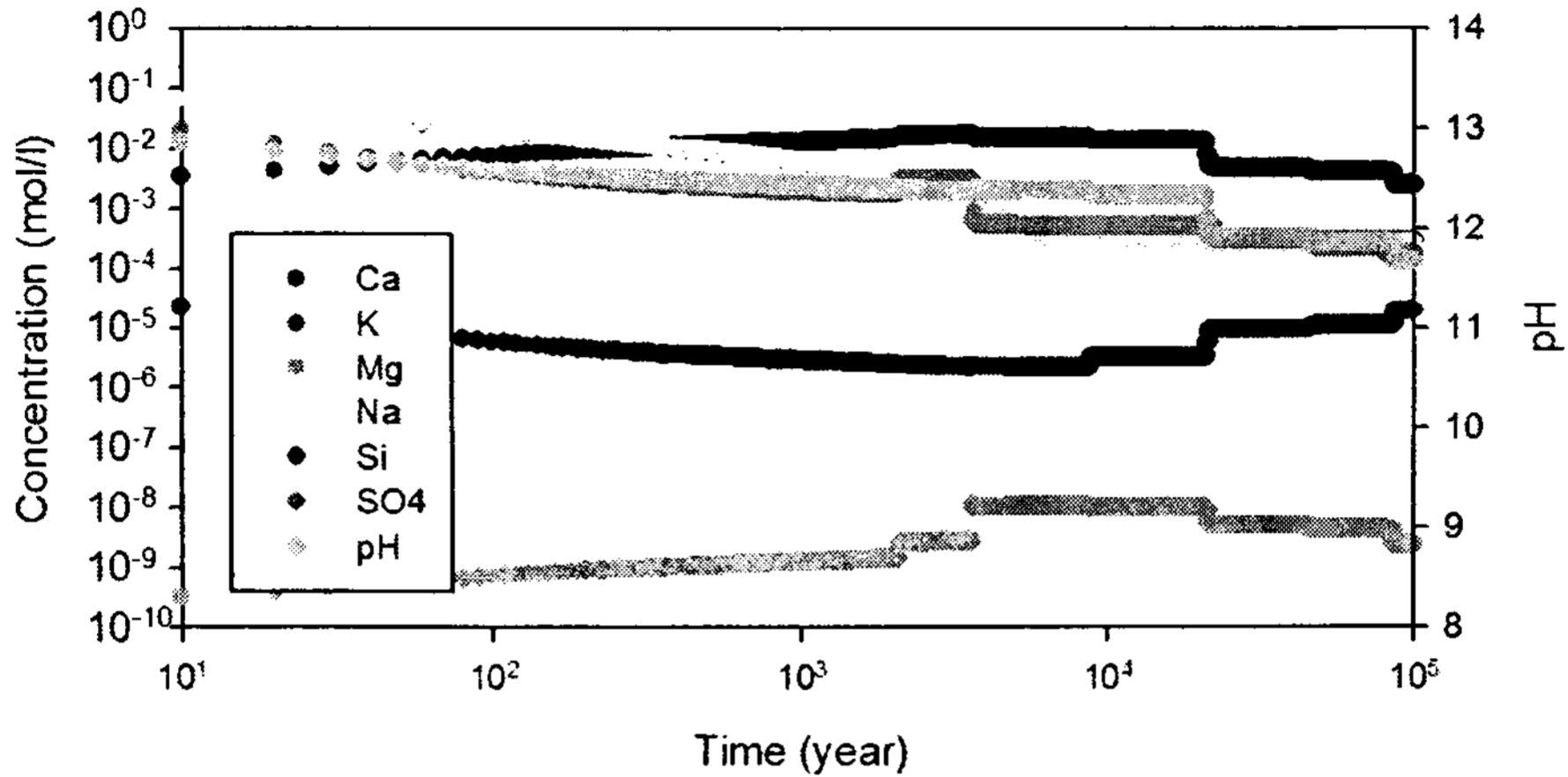


Fig.2. 1번 셀에서 시간에 따른 이온종 및 pH의 변화

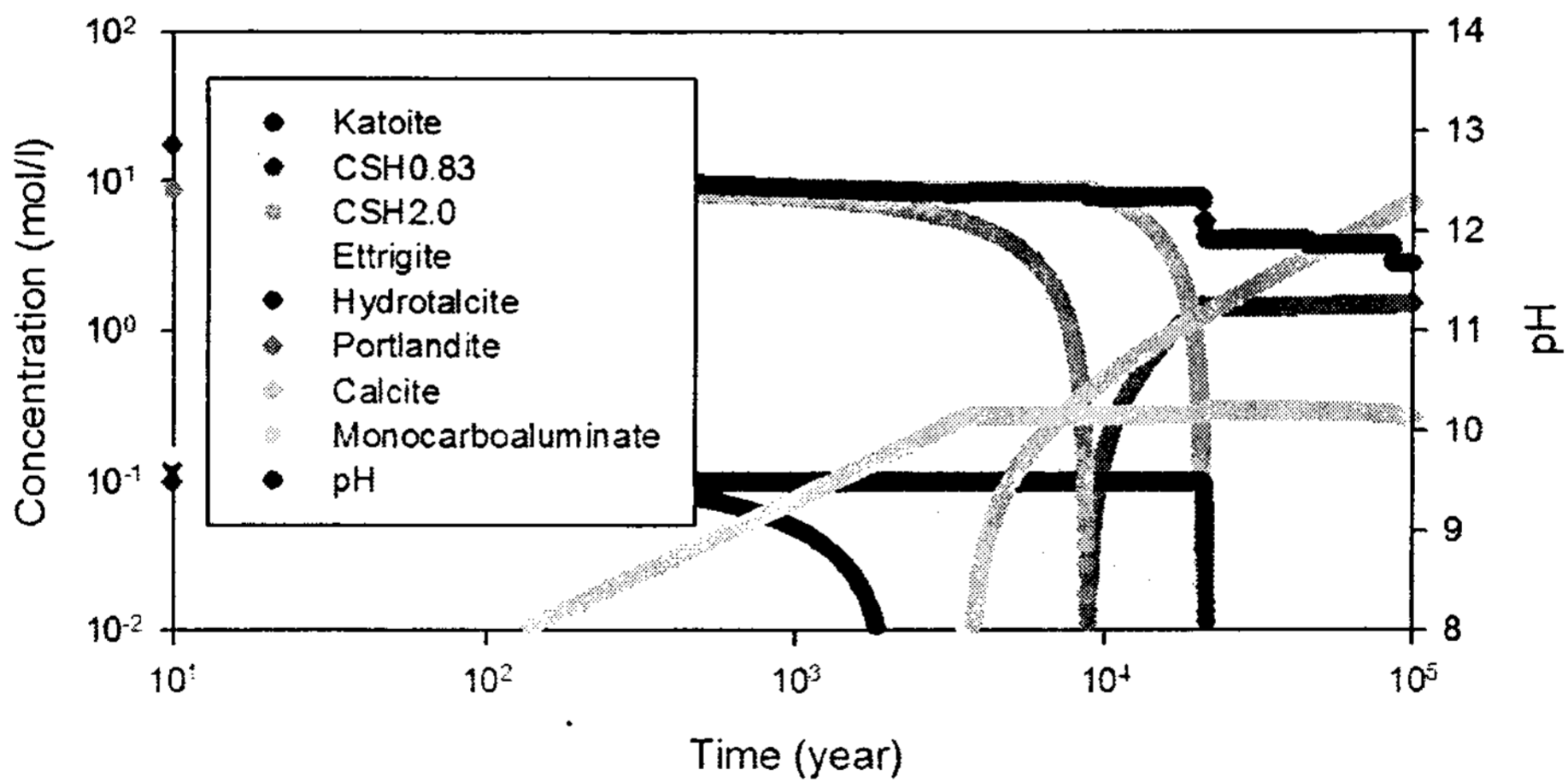


Fig.3. 1번 셀에서 시간에 따른 광물의 용해/침전

3. 결과

본 연구결과 시멘트 방벽은 10만년 후에도 약 50cm(5번 셀)까지는 변질을 받고 있으며 지하수와 접하고 있는 1번 셀의 변질이 가장 심하였다. 1번 셀의 경우 시간에 따라 portlandite>CSH>Calcite 순서에 따른 반응에 의해 pH가 조절되고 있었으며 이들 광물들의 용해/침전반응을 통해 화학조성 또한 결정되고 있었다. pH는 12.996에서 11.6679까지 감소하였으나 pe는 약 -8로 일정하여 우라늄의 용해도는 커다란 변화가 없었다. 본 결과는 장기간 동안 시멘트 변질과 화학 조성을 예측함으로써 처분장 안정성 평가 및 유지관리에도 유용하게 사용될 것으로 판단된다.