

화강암류 매질에서의 Am, 희토류원소, Co 흡착특성 비교: 화강암질 대수층에서의 고준위 핵종의 거동예측을 위한 희토류원소의 활용연구

이승구^{1)*} · 이길용 · 윤윤열 · 조수영 · 김용제

1. 서언

지난 20여년간 방사성 핵종의 지질매체내 특성을 밝혀내기 위한 연구에 있어서, 방사성 핵종을 직접적으로 사용할 수 없기 때문에 유사한 특성을 갖는 원소들을 이용한 연구가 선진국에서는 활발하게 이루어져 왔다 (Menard et al., 1998; Krauskopf, 1986). 그리고 대부분의 경우, 고준위 핵종의 특성을 밝혀내기 위해 유사체로서 Sm 혹은 Nd를 많이 이용하여 왔다. 그러나 최근의 연구결과(Lee et al., 2003, 2004)에 의하면 희토류원소 중 하나인 Eu이 액티나이드 원소의 하나인 Am의 유사체로서 타당하다는 지질학적/지구화학적 연구결과가 보고된 바 있다. 또한 암석 매질과 핵종인 ^{152}Eu , ^{241}Am 을 이용한 흡착실험에서 Eu이 Am의 지질매체내 거동을 이해하는 데 유용하다는 실험적 증거를 제시한 바 있다 (Lee et al., 2006). 이 발표에서는 1)희토류원소와 액티나이드 원소의 이온반경, 배위수 등의 상호비교와 2) 응집력 (cohesive energy)의 유사성과 물리적/화학적 특성 그리고 3) 희토류원소 지구화학의 연구결과를 토대로 하여, 이를 방사성 폐기물처분후의 화강암질 대수층내에서 발생할 수 있는 고준위 방사성핵종의 거동을 예측함에 있어서 희토류원소 지구화학의 유용함 특히 Eu과 Am의 유사성에 대한 지질학적/지구화학적/방사화학적 실험결과를 보고하고자 한다.

2. 실험방법

2.1. 지질매체 및 암석/지하수의 전처리

핵종의 지질매체별 흡착특성을 밝혀내기 위해서 우리나라의 기반암중 대표적인 주 구성암석이며 전국적으로 분포하고 있는 화강암을 사용하였다. 흡착실험에는 pH 6.7전후의 값을 갖으며 Ca-Na-HCO₃형의 수질특성을 보여주는 한국지질자원연구원의 지하수를 사용하였다.

각 암석시료 10g을 500mL PP bottle에 넣고 지하수 200mL씩을 혼합한 후, 20±2°C의 항온실험실에서 50 strokes/min 조건으로 6주간 교반하여 실험에 사용할 암석/지하수계를 pre-equilibrium상태에 도달시켰다. 교반이 끝난 후 0.45µm pore filter를 이용하여 암석과 지하수를 여과분리하고 암석분말은 열에 의한 변화를 방지하기 위하여 동결건조(Freeze drying)한 후 분리한 지하수와 같이 4°C 냉장실에 보관하였다.

2.2. 추적자용 방사성핵종

실험용 핵종으로서 고준위 핵 폐기물처분에서 중요한 액티늄계 핵종으로는 ^{241}Am 을 선택하고, 액티늄계열의 흡착특성을 예측할 수 있는 희토류성분으로는 ^{152}Eu 이외에 ^{160}Tb 와 ^{169}Yb 을 선택하였다. 그리고 중/저준위 핵종으로는 ^{60}Co 를 선택하였다. ^{241}Am 과 ^{152}Eu 은 미국의 Isotope Products Laboratory에서 구입하였고, ^{160}Tb , ^{169}Yb 과 ^{60}Co 은 한국원자력연구소의 Hanaro reactor를 이용하여 생성하였다. 흡착실험에 사용된 핵종의 농도는 각각 ^{152}Eu 은 7.9×10^{-8} mol/L, ^{241}Am 은 1.8×10^{-6} mol/L, ^{160}Tb 는 7.3×10^{-4} mol/L, 그리고 ^{60}Co 는 3.0×10^{-3} mol/L이다.

2.3. 흡착 실험 및 흡착특성 산출

암석분말과 접촉을 통하여 전처리 후 보관중인 각각의 지하수 20mL를 50mL 원심분리용

주요어: 핵종흡착, Am, Eu, 지질매체, 유사체

1) 한국지질자원연구원, 대전광역시 유성구 가정동 30 (sgl@kigam.re.kr)

polypropylene tube 넣고, 각 방사성추적자용액을 넣은 후 역시 전처리하여 보관중인 암석분말 1g 썩을 넣고 빛을 차단시킨 후 50strokes/min조건으로 교반하였다. 계획에 따라서 주기적으로 교반을 멈추고 원심분리기에서 20,000g의 조건에서 20분 동안 분리한 후 상층액 5mL를 취하여 각 방사성핵종의 비방사능을 측정하였다. 그리고 흡착실험을 수행함에 있어서, 일반적인 대기압상태와 Glove box를 이용한 환원상태에 따른 흡착력차이도 비교하여 수행하였다.

각각의 암석에 대한 방사성핵종들의 흡착특성은 아래의 식과 같이 지속적인 교반 중 주기적으로 측정된 상층액과 초기의 비방사능의 비율로 산출하였다.

$$R = A/A_0$$

여기에서, A는 지속적 교반 중, 상층액의 비방사능(cps/mL)이며, A₀는 흡착실험 직전 초기의 비방사능(cps/mL)값이다.

3. 결과 및 토의

그림 1은 화강암류에서의 Am과 Eu의 흡착력을 보여주는 그림이다.

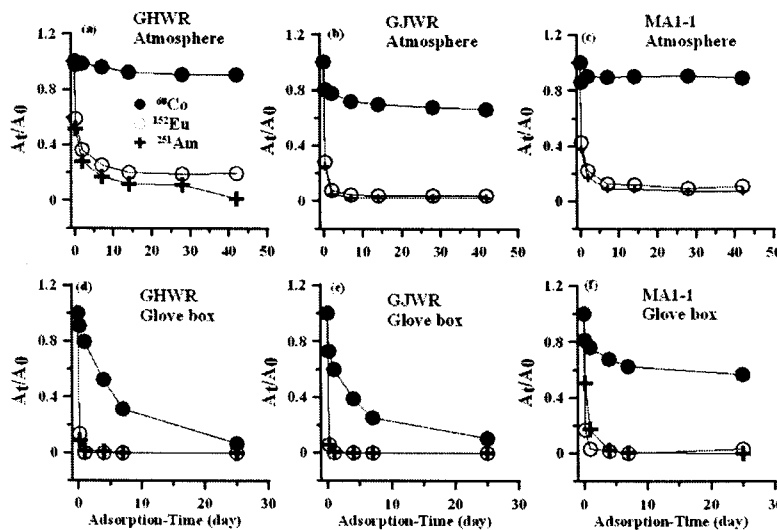


그림 1. (a)-(c) 대기압하 조건(산화환경)과 (d)-(f)환원환경(Glove box)하에서의 화강암질 매체에 대한 3개 핵종(Am-241, Eu-152, Co-60)의 흡착능.

GHWR : 강화도 화강암
GJWR : 경주 화강암
MA1-1 : 무암사 화강암

그림 1을 보면, 크게 두 가지 특징을 관찰할 수가 있다. 첫째, 희토류원소인 Eu과 액티나이드인 Am의 거동은 암상의 변화, 대기압조건과 환원조건에 관계없이 항상 거의 유사한 흡착능을 보여주는 반면에, Co는 상기의 두 핵종과는 다르게 거동함을 알 수가 있다. 둘째로는 산화/환원조건의 변화에 따른 각 핵종의 흡착능이다. 우선 Eu과 Am의 경우, 산화/환원조건의 변화에 관계없이 암석의 흡착능이 거의 유사한 반면에, Co는 환원조건하에서 더 빨리 흡착이 진행되었다. Lee et al. (2006)은 편마암을 대상으로한 Am과 Eu의 흡착능의 초기실험에서 두 핵종이 유사하게 거동하고 있음을 보고 하였다. 그러므로 상기의 그림 1은 Am과 Eu이 지질학적 매체의 변화 혹은 지구화학적 조건의 변화에 관계없이 모든 종류의 지질매체내에서 거의 동일한 지구화학적 거동을 갖는다는 것을 시사해주는 것으로 볼 수 있다. 반면에 Co의 경우, 암상의 차이 이외에 지하수의 지구화학적 조건에 의해서도 흡착능이 영향을 받을 수 있음을 시사해주는 것이다.

서언에서 언급한 바와 같이, Lee et al. (2003, 2004)은 균열암반의 대수층을 형성하고 있는 균열면에서의 희토류원소의 분포도 변화 특히 Eu의 분포도 변화(Eu 이상의 변화, 그림 2와 3 참조)를 토대로, Eu의 분포도변화가 고지하수 환경변화의 지시자로서 활용될 수 있다고 보고하였다. 그리고 Lee et al. (2003, 2004)은 그림 2에서 관찰되는 시료 B2-53, B3-54, B4-57에서 관찰되는 Eu의 정(+)의 이상은 그림 3에서 볼 수 있는 바와 같이 고지하수환경변화와 연관되어 생성된 것으로 해석하였다. 즉 과거 지하수 유동중에 발생된 지구화학적 환경

변화(산화/환원적 환경변화)에 의해 방해석이 침전되면서 이와 함께 Eu도 방해석에 치환/흡착됨으로써 균열면에서의 농도변화를 일으켰다는 것이다. 이는 대수층을 형성하고 있는 지질매체와 지하수와의 반응에 의해 지하수내의 희토류원소 특히 Eu의 함량변화가 일어날 수 있는 것과 같이, 지하수내에 Am이 함유되어 있다면 이 Am 역시 Eu과 거의 동일한 거동을 가져올 것이라고 예측할 수 있음을 지시해주는 것이다. 따라서 금번 연구결과(그림 1)와 Lee et al. (2003, 2004)의 연구결과를 서로 통합하여 해석하여보면, 그림 2에서의 B2-53, B3-54, B4-57와 같은 조건을 갖는 대수층에서의 Am은 방해석과 같은 광물의 침전과 더불어 Eu과 함께 지하수내에서의 함량이 감소하게 될 것이라고 볼 수 있다. 상기의 연구결과만으로도, 지질매체에 대한 Am과 Eu의 흡착력 및 활용도를 단정하기는 무리일지도 모른다. 그럼에도 불구하고, 본 연구결과에 의하면 Am과 Eu이 화강암을 포함한 대부분의 지질매체내에서 매우 유사한 흡착특성을 갖고 있음을 확인할 수가 있었다. 각종 지질매체에 대한 보다 정확한 핵종의 흡착력을 밝혀내기 위해서는, 향후 자연계에서의 지질매체의 조건과 유사한 상태에서의 각 핵종의 흡착력의 정량화에 대한 많은 연구가 필요하다고 본다.

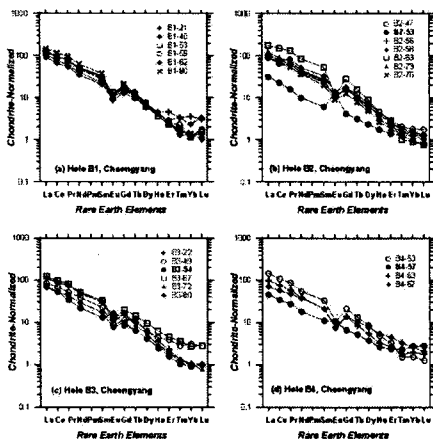


그림 2. 화강암질 편마암지역내 시추코어에서의 희토류원소 분포도 변화(Lee et al., 2003)

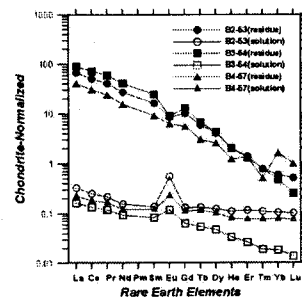


그림 3. 그림 2b, 2c, 2d의 균열면 방해석과 잔류물의 희토류원소 분포도 변화도. 그림 2b, 2c, 2d에서의 시료 B2-53, B3-54, B4-57에서 관찰되는 Eu의 정(+)의 이상은 균열면을 따라 성장한 방해석의 존재에 의해 만들어진 것임

4. 참고문헌

- Krauskopf, K. B., 1986, Thorium and rare earth metals as analogs for actinide elements. *Chemical Geology*, 55, 323-335.
- Lee, S. G., Lee, D. H., Kim, Y., Chae, B. G., Kim, W. Y. and Woo, N. C. (2003) Rare earth elements as an indicator of groundwater environment changes in a fractured rock system: Evidence from fractured-filling calcite. *Applied Geochemistry* 18, 135.
- Lee, S. G., Kim, Y., Chae, B. G., Koh, D. C. and Kim, K. H. (2004) The geochemical implication of a variable Eu anomaly in a fractured gneiss core: application for understanding Am behavior in the geological environment. *Applied Geochemistry* 19, 1711-1725.
- Lee, S. G., Lee, K. Y., Cho, S. Y., Yoon, Y. Y., Kim, Y. J. (2006) Sorption properties of ^{152}Eu and ^{241}Am in geological materials: Eu as an analogue for monitoring the Am behaviour in heterogeneous geological environments. *Geoscience Journal* 10, 103-114.
- Menard, O., Advocat, T., Ambroai, J. P., Michard, m A. (1998) Behaviour of the actinides (Th, U, Np and Pu) and rare earths (La, Ce, and Nd) during aqueous leaching of a nuclear glass under geological disposal conditions. *Applied Geochemistry* 13, 105-126.