

KAERI-SDB를 이용한 우라늄의 수착특성 평가

이재광, 백민훈, 이태엽

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

jklee1@kaeri.re.kr

1. 서론

세계적으로 많은 나라에서 방사성폐기물의 안전한 처분을 위하여 처분장 건설을 고려하고 있다. 방사성폐기물 처분의 가장 중요한 목적은 핵종들을 방사성폐기물 처분장에 격리시키는 것이고, 핵종들이 유출되었을 경우 생태계로의 이동을 최소화 하는 것이다. 특히, 지하환경에서 핵종의 이동은 핵종과 주변 모암, 지하수 그리고 단열충전광물 등의 상호 반응, 즉 수착에 많은 영향을 받는다. 따라서, 수착은 심부 지하 처분환경에서 방사성폐기물 처분 안전성 평가에 중요한 요소이다.

일반적으로 방사성폐기물 처분 안전성 평가 입력 자료 중의 하나로 분배계수(Distribution coefficient, K_d)가 사용된다. K_d (mL/g)는 고체매질에 수착된 핵종의 농도에 대한 용액에 존재하는 핵종의 농도의 비로 나타내며 다음 식과 같이 정의한다.

$$K_d = \frac{(C_o - C_q)}{C_q} \cdot \left(\frac{V}{M} \right)$$

여기서, C_o , C_q 는 핵종의 초기 및 평형상태 도달 후 용액에 존재하는 농도(mol/L)를 의미하며, V 와 M 은 각각 수용액 용량(mL)과 고체매질의 양(g)을 의미한다.

핵종의 수착은 고체매질, pH, 산화환원전위, 탄산염 농도, 이온강도, 용존유기물 그리고, 핵종의 농도 등 다양한 지화학적 요인에 많은 영향을 받는다. 수착 메커니즘이 매우 복잡하기 때문에 특정한 지화학적 조건에서 대표적인 K_d 값을 선정하거나, 방대한 양의 수착 자료로부터 필요한 수착자료를 구하는 것은 매우 어렵다. 이러한 이유로 지난 수십년 동안 다양한 형태의 수착 데이터베이스가 개발되어 왔다.

한국원자력연구원에서는 사용자들에게 보다 효율적인 방법으로 핵종 수착자료 또는 핵종의 수착특성을 제공하기 위하여 웹기반의 핵종 수착데이터베이스(KAERI-SDB)를 2009년에 개발하였다. KAERI-SDB는 31개 핵종에 대한 16,000 여개의 국내의 수착자료가 수록되어 있으며, 사용자가 인터

넷 웹브라우저를 이용하여 시간과 장소에 제한 없이 누구나 핵종의 수착자료를 검색 및 저장할 수 있도록 구현되었다.

본 연구에서는 KAERI-SDB의 활용성을 향상시키기 위하여 KAERI-SDB를 이용한 사례분석을 통하여 대표적인 악티나이드 핵종 중의 하나인 우라늄에 대한 수착특성을 평가하였다.

2. 본론

2.1 KAERI-SDB 개요

KAERI-SDB는 웹기반으로 구현되었기 때문에 <http://sdb.kaeri.re.kr>에 접속하여 사용할 수 있다. KAERI-SDB는 검색기능, 관리자기능, 차트 구현, 자료다운로드, 그리고, 통계 기능 등을 포함하며 다음과 같은 다양한 적용이 가능하다.

1. 다양한 지화학적 조건에서 대표적인 K_d , 또는 K_d 범위의 선정
2. 산포도를 이용한 지화학적 조건에 따른 수착 특성 평가
3. 지수도를 이용한 지화학적 조건들의 범주별 수착 경향 분석
4. 통계분석을 통한 수착 자료 평가

2.2 우라늄 수착 특성 분석

KAERI-SDB를 이용한 우라늄 수착 특성에 대한 사례분석 항목은 다음과 같다.

- 사례 1. 침철석에 대한 우라늄 수착
- 사례 2. 화강암에 대한 우라늄 수착
- 사례 3. 우라늄 수착에 대한 탄산염의 영향

2.2.1 침철석에 대한 우라늄 수착

침철석(goethite)과 같은 산화철광물은 암반 단열 충전광물로도 존재하는데, 핵종에 대한 수착 친화력이 매우 좋기 때문에 심부 지하환경에서 핵종의 이동 지연에 중요한 역할을 한다. KAERI-SDB를 이용한 평가 결과, 침철석의 우라늄 수착은 pH 변화에 민감하게 반응하였다. Table 1에서 보여주듯이, 침철석에 대한 우라늄의

수착은 pH 3.0~5.0 범위에서 적게 수착이 되었으나, pH 5.0~7.0의 영역에서 수착이 급격히 증가하는 경향을 보인다. 또한 pH 7.0~9.0에서 우라늄 수착은 다소 감소하는 경향을 나타내는데 이는 수착이 잘 안되는 우라닐 탄산 화학종 형성에 기인하는 것으로 판단된다[1].

2.2.2 화강암의 우라늄 수착에 대한 pH 영향

화강암은 심부지질의 고준위폐기물 처분장의 모암으로 평가되고 있다. KAERI-SDB를 이용하여 평가된 화강암의 우라늄 수착은 침철석에 비하여 매우 적게 나타났다(Table 1). 한편, 침철석의 경우와 마찬가지로 화강암의 우라늄 수착은 pH에 매우 의존적이며 이는 수용액에 존재하는 탄산염의 영향에 의한 것으로 사료된다.

Table 1. Population Mean of K_d (mL/g) of Uranium Sorption onto Goethite and Granite

pH	K_d (mL/g)	
	Goethite	Granite
3~5	59.7±57.2	7.5±2.1
5~7	1655.5±816.8	32.4±8.5
7~9	829.4±475.6	27.3±17.8
9~12	N/A	3.9±0.4

2.2.3 수착에 대한 탄산염의 영향

KAERI-SDB를 이용한 침철석과 화강암에 대한 우라늄 수착 평가결과 우라늄수착은 pH 의존적이며, 알칼리 영역에서의 수착은 탄산염에 영향을 받는 것을 간접적으로 확인하였다. 따라서, 본 사례에서는 우라늄 수착에 대한 탄산염의 영향을 평가하고자 하였다.

카올리나이트에 대한 우라늄의 수착은 수용액 중에 탄산염이 대기압($pCO_2=3.16 \times 10^{-4}$ atm) 상태로 존재할 때 탄산염이 1×10^{-2} mol/L 농도로 존재할 때 보다 훨씬 높은 것으로 확인 되었다(Fig. 1). 이는 수용액의 탄산염 농도 변화에 따른 우라늄 화학종의 변화에 기인한 것으로 판단된다. 탄산염 농도 변화에 따른 우라늄의 화학종을 예측하기 위하여 지화학적 평가 모델인 Visual MINTEQ Ver.3.0을 이용하여 우라늄 화학종을 계산하였다[2].

화학종 계산 결과, 대기압 상태에서 우라늄은 대부분 수산화 우라닐 이온들로 존재하지만, 탄산염 농도가 1×10^{-2} mol/L로 증가하게 되면 대부분의 우라늄은 $UO_2(CO_3)_2^{2-}$ 및 $UO_2(CO_3)_3^{4-}$ 등의 광물에 대한 수착친화도가 낮은 우라닐 탄산 화학

종의 형태로 존재하게 된다. 화학종 분포 계산 결과 및 KAERI-SDB를 이용한 검색 결과를 통하여 탄산염은 우라늄 수착에 많은 영향을 주는 것을 확인 할 수 있다.

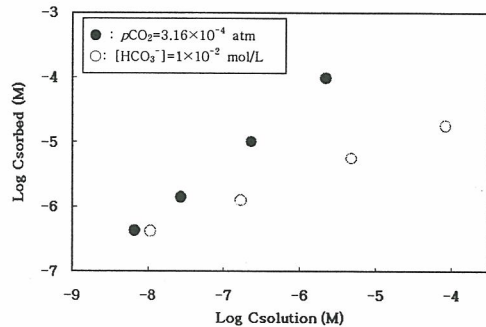


Fig. 1. Effect of dissolved carbonate on the sorption of uranium onto kaolinite

3. 결론

본 연구에서는 핵종 데이터 베이스의 성능과 접근성을 향상시키기 위하여 개발한 KAERI-SDB를 활용한 우라늄의 수착특성을 평가하였다. KAERI-SDB를 이용한 우라늄 수착특성 평가를 통하여 KAERI-SDB는 핵종들의 수착 특성을 평가하고 특정한 지화학적 조건에서의 K_d 값의 범위를 정하거나, 통계적인 방법을 이용하여 핵종의 K_d 값을 산정하는데 유용한 활용될 수 있음을 확인하였다.

따라서, KAERI-SDB는 방사성폐기물 처분장 안전성평가 뿐만 아니라, 지하환경에서 다양한 핵종들의 이동 및 지연현상의 예측에 유용한 도구로 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

5. 참고문헌

[1] T. D. Waite et al., Geochim. Cosmochim. Acta, Vol. 58, pp. 5465-5478, 1994.
 [2] J. P. Gustafsson, Visual MINTEQ Ver. 3.0, <http://www.lwr.kth.se>, Stockholm, 2010.