

핵종의 수착메카니즘이 암반확산에 미치는 영향 평가

박정균, 백민훈, 정종태

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

ckpark@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성핵종의 암반에 의한 확산을 예측/평가하는데에는 암반매질의 공극률, 핵종의 수착능, 암반의 기하학적 인자값들이 관여한다. 이중 공극률은 암반확산에 직선적으로 영향을 미치는 비례관계를 가지지만, 수착능은 사용하는 확산모델에 따라 단순한 역비례관계를 설정하기도 하지만, 핵종특성에 따라 실험관측치와 상당한 오차가 존재하는 경우가 많으므로 확산과 수착을 좀 더 구체적으로 정의한 확산모델이 필요하다. 이에 일환으로 핵종들의 수착메카니즘들을 살펴보고, 수착특성에 따라 나타나는 확산양태를 분석해 본 후, 이를 통합해 반영할 수 있는 확산모델에 대해 살펴보고자 한다.

2. 연구 내용

원자력연구원부지에 있는 지하시험시설(KURT)에서 풍화확암을 채취하여 원주 15.2cm 길이/20cm 로 가공하였다. 핵종들은 한쪽면만으로 확산해 들어갈수 있도록 밀면만을 제외하고 암석외부는 실리콘으로 피복한 다음, 아크릴로 다시 2cm 두께로 외벽을 만들어 장기간 확산시켰다. 실험대상핵종은 비수착성핵종으로 삼중수소수(THO, tritiated water)와 유기염료인 우라닌(uranine, Na-fluorescence)를 사용하였고, 수착성핵종으로는 Np, Co, Sr, Cs, U, Eu, Th 를 사용하였다. 실험장치를 글로브박스안에 장착하여 실험기간동안 지하화학적 물질변화를 최소화하였다. 용액은 KURT 지하수로서 여기에 THO, Co, Sr, Cs, Np, Th, U 등 핵종을 용해시켜 암석내로 침투되게 하였다. 9개월 후, 암석을 꺼내어 Fig.1와같이 길이방향으로 반 쪽으로 나눈 후 자가방사분석으로 THO와 Np의 농도분석을 시행하였다. 그 후, 암석을 다시 1cm 단위로 잘게 세분한 후, 이들을 단계적 화학추출법을 써서 암석에 수착된 핵종들의 수착량과 수착유형을 분석하였다.

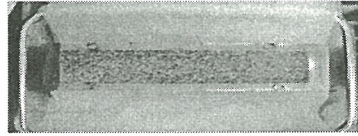


Fig. 1. Half cut rock core after diffusion.

3. 실험결과 및 해석

실험결과를 Fig.2에 실었다. 비수착성핵종인 트리튬은 이미 20cm 길이의 암석전체로 끌고부 확산해 들어갔다.

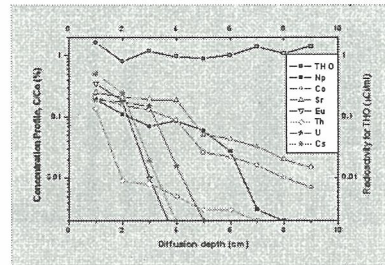


Fig. 2. Concentration profiles of nuclides.

수착성핵종 중 Eu, Cs는 확산깊이가 4cm 수준이었고, Co, Sr, Np, Th, U 등 핵종들은 약 9cm 깊이까지 확산침투가 침투해 들어갔다. 이들은 자기방사분석방법으로 THO와 Np-237의 암석내 핵종농도분포영상을 분석하여 확산깊이를 검증하였다. Np-237의 경우, 암석내 깊이 2-3cm 이내에 핵종이 주로 수착되어 있고, 약 5cm 이상에서는 농도는 낮지만 확산침투는 더 깊이 침투해 들어간 모습이 관찰된다. 계산한 겉보기확산계수는, Eu, Cs는 $10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ 수준이고, Co, Sr, Th는 $10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ 수준으로 가장 크고, Np, U은 그 중간 값을 가졌다. 순차적화학추출법으로 핵종들의 주된 수착메카니즘을 분석해본 결과를 Fig.3에 실었다. Sr, Eu, Cs는 이온교환으로 암석과 주로 결합하였다. 특이하게도, Co와 U는 암석표면과 접촉한 초기에는 이온교환이 주축을 이루다가 암석안으로 깊이 침투해 들어갈수록 철/망간산화물과 결합

이 주된 수착기구로 작용하였다. 이는 Co 와 U 의 경우, 농도가 낮을 경우 철/망간산화물과 결합이 우선적으로 일어나지만, 용액과 암석간 접촉면과 같이 높은 농도로 장시간 접촉시에는 이온교환이 계속 일어나 지배적인 위치를 점하는 것으로 파악된다. 한편, Np 의 경우에는, 반대로, 암석과 접촉초기부분에서는 철/망간산화물과 결합이 주로 일어나지만 깊이 들어갈수록 이온교환이 주를 이루는 것으로 바뀐다. 이는 Np 가 U 에 비해 수착속도가 느리기 때문에, 핵종과 암석이 처음 접하는 확산첨두에서는 U 가 Np 보다 철/망간산화물과 결합을 먼저 하고, Np 는 상대적으로 속도가 빠른 이온교환을 먼저하는 것으로 파악된다. 그리고, 장기간 접촉이 이루어진 확산접촉면 근처에서는 Np 가 느리지만 지속적으로 철/망간산화물과 결합을 늘려나가 독점적인 영역을 구축한 것으로 판단된다.

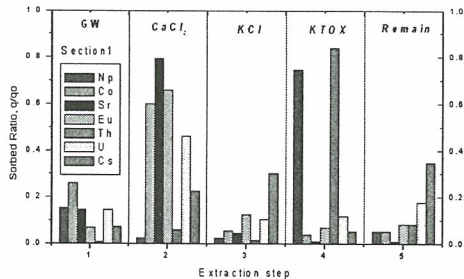


Fig. 3. Dissolved amounts of nuclides after extractions.

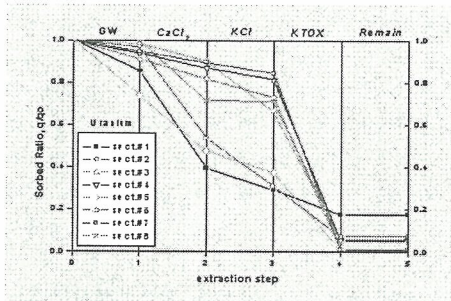


Fig. 4. Remained amounts of nuclides after extractions.

이상에 핵종별 수착특성을 확산모델 및 확산계수 계산에 적용해보면, 우선 흔히 쓰이는 확산모델은 식(1)과 같이 표현할 수 있다. 여기서, 결보기확산계수(D_a)는 암석의 공극물에 직접적으로 비례하

고, 분배계수에는 반비례하는 관계를 가진다. 그러므로 풍화암은 신선암에 비해 공극률이 10배정도 크고, 핵종들의 분배계수크기에 반비례해 D_a값의 순서가 정해져야하지만 실험결과는 그렇지않다. 이는 핵종들의 수착가역성 및 표면확산을 고려하지 않았기 때문이며, 식(2)같이 이를 고려한 모델을 설정하여 구하면 표면확산계수(D_s)는 핵종의 수착가역성에 비례하며 실험결과와 부합되는 결과를 보여준다.

$$D_a = \frac{D_e}{\rho K_d} = \frac{\epsilon D_p}{\rho K_d} = \frac{\epsilon \delta D_v}{\tau^2 \rho K_d} \quad (1)$$

$$D_a = \frac{\epsilon D_p + (1-\epsilon)\rho K_d D_s}{\epsilon + (1-\epsilon)\rho K_d} \quad (2)$$

5. 결 론

암반에 수착가역성의 정도에 따라 핵종들은 다른 확산양태를 나타내었다. Np같은 핵종은 수착반응속도가 수착양태를 결정지었다. 이온결합이 주를 이루어 수착가역성이 가장 큰 Sr은 큰 확산계수값을 가지며 표면확산이 크게 확산과정에 기여하였다. 반면에 수착 가역성이 작은 Np, Th, Cs등은 표면확산 작용이 약해 상대적으로 작은 결보기확산계수를 가졌다.

6. 참고문헌

- [1] J.Berry, K.Bond, M.Cowper, A.Green, and C.Linklater, *Radiochimica Acta* 66/67,447, 1994.
- [2] Y.Ohlsson and I.Neretnieks, *Diffusion data in granite*, SKB/TR97-20, 1997.
- [3] J.Crank, *Mathematics of Diffusion*, Oxford Univ.Press, NewYork 1956.
- [4] H.Sato, *Nucl.Tech*127,199, 1999.
- [5] C.K.Park, and P.S.Hahn, *Kor. J. Chem. Eng.*, 26(5) 1279, 2008.