

방사선과 미생물에 의한 침철석의 우라늄 수축특성 변화

이재광*, 이승엽, 정종태, 백민훈

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*jklee1@kaeri.re.kr

1. 서론

우리나라는 사용후핵연료를 포함하는 고준위폐기물의 안전한 처분을 위하여 심부 지하 암반층에 고준위폐기물처분장의 건설을 고려하고 있다. 처분장은 일반적으로 처분용기와 완충재를 포함하는 인공 방벽과 이를 둘러싸고 있는 천연방벽으로 구성되어 있다. 처분용기로부터 핵종이 유출될 경우, 핵종은 지하수 흐름을 따라 이동하게 되고 핵종의 수축반응은 핵종의 이동을 지연시키는 중요한 역할을 한다. 폐쇄 후 초기단계에서 처분장의 지화학적 조건은 산화상태에서 환원상태로 변화하며, 이러한 산화환원조건의 변화는 철 환원 박테리아나 황산염 환원 박테리아와 같은 혐기성 박테리아의 활동성을 증가시킬 수 있다. 특히 철 환원 박테리아는 철산화물의 광물화과정에 변화를 유발하여 우라늄과 같은 산화환원 반응에 민감한 핵종들의 지화학적 거동에 영향을 줄 수 있다[1]. 한편, 처분용기 외벽은 처분장 운영 초기 100년 동안 고준위폐기물로부터 발생하는 100 kGy의 이온화방사선을 조사받을 수 있다[2]. 본 연구에서는 산화철광물인 침철석의 우라늄 수축에 미치는 방사선과 철 환원 박테리아의 영향을 평가하였다.

2. 실험재료 및 방법

2.1 실험재료 및 방사선 조사

수축실험을 위하여 $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ (Merck), $NaHCO_3$ (Sigma), Na-lactate(Sigma)와 침철석(α - $FeOOH$, Alfa Aesar) 등의 시약을 사용하였다. 철 환원 박테리아는 *Schewanella putrefaciens* CN32 (ATCC BAA-1097)을 사용하였다. 방사선 조사실험은 한국원자력연구원 산하 방사선과학연구소의 저준위 조사 시설에서 수행하였다. Co-60을 감마선 선원으로 하여 2 Gy/hr의 선량율로 총 113 시간 동안 조사하였으며, 총 조사량은 약 230 Gy이다.

2.2 수축실험

평균한 탄산수소나트륨(1 mM)을 바탕용액으로

사용하였으며 침철석을 1 g/L의 농도로 주입한 후, 용액 내 용존산소를 제거하기 위하여 고순도질소가스를 약 1시간 폭기하였다. 준비된 용액을 serum 병에 일정량씩 담은 후 부틸고무마개로 병의 입구를 막고 알루미늄 재질의 캡으로 고정시켰다. 수축 실험을 위하여 우라늄과 전자공여체인 젖산나트륨의 농도가 각각 10 μ M과 10 mM이 되도록 주입한 후, *S. putrefaciens*를 일정량씩 serum 병에 주입하였다. 감마선 조사 및 *S. putrefaciens*에 의한 우라늄 수축 특성 변화를 측정하기 위하여 초기 5일 동안 감마선을 조사하였으며, 일정 주기로 시료를 채취하여 총 36 일 동안 미생물 농도와 우라늄의 수축 변화를 분석하였다.

2.3 분석방법

우라늄과 용출된 철의 농도를 측정하기 위하여 0.2 μ m의 기공도를 갖는 주사기 필터를 이용하여 고액 분리 한 후, ICP-MS (Ultramass700, Varian)를 이용하여 분석하였다. Ferrozine법을 이용하여 여과된 용액의 2가 철의 농도를 측정하였고 BCA(Bicinchoninic acid) 법을 이용하여 상등액 중의 단백질을 정량하여 미생물의 개체수 변화를 관찰하였다. 침철석의 변화를 관찰하기 위하여 장방출 주사전자현미경을 이용하였으며, Energy Dispersive X-ray Analysis를 통하여 침철석으로부터 생성된 이차광물의 조성분석을 하였다.

3. 결과 및 논의

3.1 *S. putrefaciens* 생존에 대한 감마선 조사 영향

감마선(2 Gy/hr)을 5 일 동안 조사하였을 때, 단백질의 농도가 초기 10 일 동안 증가하는 경향을 나타내었다. 이는 230 Gy의 비교적 낮은 조사선량은 *S. putrefaciens*의 활동성에 영향을 주지 않음을 의미한다. 높은 선량율의 이온화 방사선 조사는 미생물의 사멸을 유발하고 재증식을 어렵게 하지만 [3], 일반적인 처분용기 설계 기준인 1 Gy/hr 이하의 낮은 선량율은 미생물의 생존에 큰 영향을 주지 않는 것으로 확인된다.

3.2 철의 용출 및 환원

철의 용출은 감마선 조사 보다 미생물의 영향이 더욱 큰 것으로 확인되었다. 감마선 조사와 *S. putrefaciens*에 의한 철의 용출과 산화환원 전위 변화 측정결과를 Table 1에 나타내었다. 감마선만 조사하였을 때, 침철석으로부터 철의 용출은 초기 0.3 μM 에서 0.6 μM 으로 매우 적게 증가하였으나, 감마선 조사시 *S. putrefaciens*가 존재할 때, 철의 용출은 10 μM 으로 뚜렷하게 증가하였다. 또한, 이 때 용출된 대부분의 철은 Fe(II)의 형태로 존재하였다.

Table 1. Dissolution of Fe and Changes in Eh

Total dose (Gy)	S.P. ¹⁾	Fe _{tot} (μM)	Fe(II) (μM)	Fe(II) / Fe _{tot}	Eh (mV)
0	-	0.3	N.D.	0.0	587
230	-	0.6	N.D.	0.0	462
230	0	10.0	8.0	0.8	-28

1) S.P.: *S. putrefaciens*

3.3 우라늄 수착

침철석의 우라늄 수착에 대한 감마선 조사와 *S. putrefaciens*의 영향을 관찰하였다(Fig. 1). 감마선을 조사한 침철석의 우라늄 수착은 감마선을 조사하지 않은 대조군 시료에 비하여 20-30% 높게 확인되었다. 또한, *S. putrefaciens*가 존재할 때 감마선을 조사한 시료는 우라늄 수착이 더욱 증가하는 경향을 보였다. 감마선 조사는 물의 방사선 분해를 유도하여 반응성 화학종을 형성하게 되고 이는 침철석 표면의 전하특성에 영향을 주어 우라늄 수착이 증가하는 것으로 사료된다. Fig. 2의 우라늄 분포에서 확인할 수 있듯이 *S. putrefaciens*는 혐기성 호흡을 통하여 침철석의 철을 환원시키고 침철석에 수착된 우라늄이 환원되어 용액 중 우라늄 농도가 감소된 것으로 이해할 수 있다.

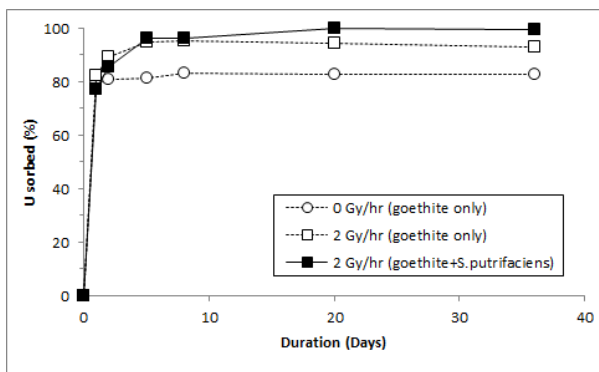


Fig. 1. Sorption of uranium by goethite.

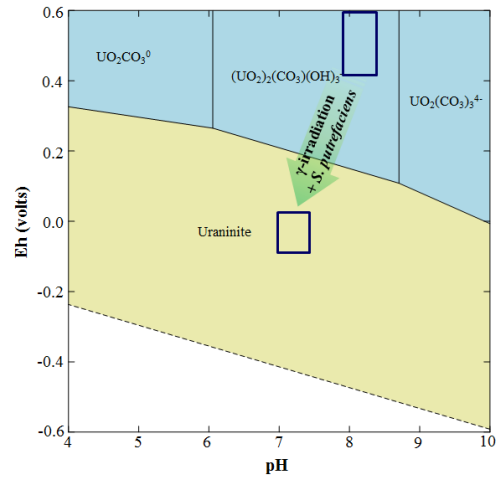


Fig. 2. pH-Eh diagram of uranium.

4. 결론

일반적으로 미생물들은 방사선에 의하여 사멸되지만 낮은 선량율에서는 생존 가능성이 있다. 따라서, 심부 지질 처분환경에서 고준위핵종들의 장기적인 거동을 이해하기 위해서 지화학적인 거동뿐만 아니라, 미생물의 대사작용에 의한 핵종 거동 영향에 대한 다양한 연구가 필요할 것이다.

5. 참고문헌

- [1] C.M. Hansel, S.G. Benner, J. Neiss, A. Dohnalkova, R.K. Kukkadapu and S. Fendorf, "Secondary Mineralization Pathways induced by Dissimilatory Iron Reduction of Ferrihydrite under Advective Flow, Geochim. Cosmochim. Acta 67(16), 2977-2992 (2003).
- [2] Å. Björkbacka, S. Hosseinpour, M. Johnson, C. Leygraf and M. Jansson, "Radiation induced Corrosion of Copper for Spent Nuclear Fuel Storage", Radiat. Phys. Chem. 92, 80-86 (2013).
- [3] D.W. Thayer and G. Boyd G, "Inactivation of *Shewanella putrefaciens* by Gamma Irradiation of Red Meat and Poultry. J. Food. Safety 16, 151-160 (1996).