

# 방사성폐기물 처분장에서의 $^{238}\text{U}$ 과 $^{99}\text{Tc}$ 핵종 이동에 관한 연구

최세호<sup>1\*</sup>, Wooyong Um<sup>2</sup>

<sup>1</sup>한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

<sup>2</sup>Pacific Northwest National Laboratory (PNNL), Richland, WA, USA

\*seho0405@kaeri.re.kr

## 1. 서론

정부는 경주월성지역에 첫 번째 중·저준위 폐기물처분장을 건설하여 100,000 드럼을 저장할 예정에 있으며, 125,000 드럼을 저장할 2차 중·저준위 폐기물처분장 건설예정이다. 첫 번째 처분장의 경우 지하동굴 처분방식을 따르며, 2차 처분장의 경우는 천정부지방식으로 건설예정이다. 처분장을 건설하기 전 해당지역 환경에 적용된 방사성물질의 거동에 대한 연구는 주변 환경과 지역주민의 건강에 영향을 줄 수 있으므로 필수적이다[1]. 따라서 월성지역의 두 번째 처분장 건설지역의 환경 조건에 맞는 핵종거동연구가 필요하다.

이 연구의 목적은 월성지역내의 두 번째 방사성 폐기물처분장 부지 특성 조사를 위한 핵종의 이동성연구에 있다. 따라서 해당지역에서 채취한 지하수와 암석을 이용하여 흡착, 확산 그리고 칼럼실험을 실시하였다. 각각의 실험결과를 해당지역 환경에 적용된 우라늄과 테크니슘의 이동성에 대한 정보를 제공할 것이다.

## 2. 재료 및 실험방법

### 2.1 Material

실험에 사용될 이암, 사암, 파쇄암의 경우 지역특성에 맞는 실험을 위하여 월성지역에서 채취하였으며 지하수 역시 월성지역 내 borehole #PW 5에서 채취하였다.

### 2.2 회분식 흡착실험

회분식 흡착실험을 위하여 3가지 다른 암석시료와 테크니슘, 우라늄을 준비하였다. 세가지 다른 조건의 우라늄과 한 가지 조건의 테크니슘을 실험에 사용하였다. 암석시료의 경우 0.075 ~ 0.15 mm 크기로 분쇄하였으며, 해당 지하수의 pH 상태와 비슷한 수준에서 변화가 없을 때까지 지하수를 이용하여 세척을 하였다. 전 처리된 암석시료를 우라늄 또는 테크니슘을 함유시킨 지하수용액에 반응 시켰다. 흡착실험을 실시한 지 7일이 지난 이후 해당 샘플을 분석

전에 centrifuge를 이용하여 얻은 상청액을 필터(0.45 $\mu\text{m}$ )하였다. 우라늄과 테크니슘의 농도는 ICP-MS 와 LSC를 이용하여 각각 분석하였다.

### 2.3 확산실험

가로, 세로 1.8 cm, 두께 0.4 cm 로 제작된 이암 시편을 아크릴로 제작된 확산장치 내 tracer cell과 measurement cell 사이에 부착시킨다. 각각의 셀에는 지하수 500ml를 채우고 이암시편을 포화상태로 만든다. 시편을 포화상태로 만든 이후 tracer 셀에 Br을 주입시킨 후 일정시간마다 measurement 셀에서 샘플링을 하여 Br의 확산농도를 체크한다. Time-lag 식을 이용하여 비 흡착성물질인 Br의 effective diffusion coefficient과 rock capacity를 얻었다. 추적자 실험을 마친 이후 우라늄과 테크니슘을 두 아크릴 확산장치의 tracer 셀에 각각 주입시켜주고, measurement 셀에는 지하수로 채워준다. 일정기간마다 measurement 셀에서 샘플링을 하여 우라늄의 경우 ICP-MS로 테크니슘의 경우는 LSC를 통하여 확산농도를 측정한다.

### 2.4 칼럼실험

Chromaflex 칼럼을 이번 실험에 사용하였다. 칼럼 내부는 1.50 $\mu\text{m}$ -1mm 크기의 이암으로 채웠으며 지하수를 이용하여 포화시키는 과정을 거쳤다. 포화과정 이후 펌프를 이용하여 일정유속을 조절하였으며 비 흡착물질인 Br을 이용하여 추적자실험을 실시하였다. 추적자 실험을 마친 이후 우라늄 또는 테크니슘을 포함한 지하수 용액을 일정유속으로 컬럼에 주입시켰다. 각각의 칼럼에서 얻은 샘플들은 우라늄의 경우 ICP-MS에서 테크니슘의 경우 LSC에서 농도를 분석하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1 회분식 흡착실험

해당 실험은 세배수로 실험을 실시하였으며, 월성지역 암석시료에 대한 테크니슘과 우라늄의 분배

계수의 경우 세 번의 실험의 평균값으로 Table 1에 나타나있다. 각각의 분배계수를 비교하여 보면 우라늄이 테크니슘의 비해 높은 흡착능을 보였다. 테크니슘의 경우 대부분의 암석에서 낮은 흡착능을 보였다. 우라늄의 경우 파쇄암에서 가장 큰 흡착능을 보였는데 표면적 분석결과와 비교하여 지표와 관련이 있음으로 사료된다 [2]. 그에 반해 테크니슘의 경우 이암에서만 흡착능을 보였는데 이는 우라늄의 경우와 다르게 퇴적암의 일종이 이암의 유기탄소량과 관련이 있음으로 사료된다.

Table 1. Sorption distribution coefficient,  $K_d$ , total carbon and surface area

	$K_d$ of 238-U (ml/g)	$K_d$ of 99-Tc (ml/g)	surface area ( $m^2/g$ )
mud-stone	13.41	0.242	0.954
sand-stone	7.560	-	0.344
fault-rock	71.81	-	12.66

### 3.2 확산실험

브롬이온의 확산된 농도를 이용하여 time-lag 식에 대입한 후  $D_{eff}$ 를 얻을 수 있었다. 핵종물질인 우라늄과 테크니슘의  $D_{app}$ 와  $D_{mol}$ 를 브롬을 이용하여 얻은  $D_{eff}$ 와 해당물질의 확산된 농도를 이용하여 구할 수 있었다. 우라늄의 경우 높은 흡착능으로 인하여 120일이 지난 이후에도 확산된 농도를 얻을 수 없었다. 따라서 우라늄의  $D_{mol}$ 의 경우 참고문헌을 통하여 다른 요소를 얻는데 이용하였다 [3]. 각 물질들에 대한 확산계수 및 지연계수들은 Table 2에 표기하였다. 우라늄의 지연성은 테크니슘에 비하여 확산계수 및 지연계수를 참고하여 보면 확연히 이동성이 떨어짐을 알 수 있었다. 이는 테크니슘이 흡착능이 우라늄에 비해 낮으므로 사료된다.

Table 2. Estimated  $D_{app}$  value for U-238 and Tc-99

	Tortuosity	$K_d$ (ml/g)	R	$D_{app}$ ( $m^2/s$ )
U-238	$1.18 \times 10^3$	13.41	68.80	$2.71 \times 10^{-14}$
Tc-99	$2.11 \times 10^3$	$1.80 \times 10^{-3}$	5.410	$2.01 \times 10^{-13}$

### 3.3 칼럼실험

칼럼의 선형평균유속은 평균유량을 칼럼의 단면적 및 공극률로 나누어 결정하였고, 분산계수는 CXTFIT 모델을 이용하여 Br-, 우라늄 그리고 테크니슘의 파괴곡선을 최적화하는 방법으로 구해졌다.

테크니슘의 지연계수가 우라늄에 비해서 낮음을 표를 통해서 알 수 있다. 게다가 테크니슘의 지연계수와 비흡착물질인 브롬의 해당 계수와 비교하여 보면 큰 차이가 없음을 알 수 있다(Table 3). 테크니슘이 이암에 대한 흡착성 때문에 비흡착물질인 브롬보다 이동성이 약간 낮기는 하지만 큰 차이가 없음을 알 수 있다. 테크니슘과 우라늄의 분배계수 모두 회분식 흡착실험에 비해 각각 낮고 높음을 보이지만 회분식 흡착실험 시에 실시하였던 3번의 실험의 결과범위 안에는 속하므로 두 실험의 분배계수가 큰 차이가 없음을 알 수 있다.

Table 3. Transport parameters

	Dispersion coefficient ( $cm^2/min$ )	Distribution coefficient ( $cm^3/g$ )
U-238	$1.7 \times 10^{-2}$	15.5
Tc-99	$3.9 \times 10^{-4}$	0.10

## 4. 결론

본 연구에서는 방사성폐기물처분장 2차부지내에서 흡착 및 확산실험을 통해서 핵종거동을 연구하였다. 세 가지 실험을 바탕으로 테크니슘의 경우 우라늄과 비교하여 흡착능이 무시할 정도로 낮았지만 이암에서는 이동성이 감소함을 알 수 있었다. 2차부지내의 파쇄암에서 우라늄의 거동에는 파쇄대의 표면이 거동지연에 효과적임이 관찰되었다.

## 5. 참고문헌

- [1] Um W.Y., Serne R.J., "Sorption and transport behavior of radionuclides in the proposed low-level radioactive waste disposal facility at the Hanford site, Washington", Radiochim. Acta(93), (2005).
- [2] Davis J.A., Meece D.E., Kohler M., Curtis G.P., "Approaches to surface complexation modeling of Uranium adsorption on aquifer sediments", Geochimica et Cosmochimica Acta (68), (2004).
- [3] Moore S.M., Shackelford C.D., "Uranium Diffusion in Soils and Rocks", Proceedings Tailings and Mine Waste, (2011).