

KURT 화강암 내의 U-Th 함유광물의 산출 특성 및 장기 안정성 Occurrence and Long-term Stability of U-Th Containing Minerals in the KURT Granite

조완형*, 백민훈, 박태진

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*cho0714@kaeri.re.kr

1. 서론

고준위 방사성폐기물을 안전하게 영구적으로 처분하기 위해 심층처분시설의 안전성을 평가하고, 평가의 신뢰도를 향상하기 위한 연구가 지속적으로 수행되고 있다. 현재 국내 지질환경을 고려할 때 고준위 방사성폐기물 처분 대상 암종으로 화강암과 같은 결정질 암석이 유력하다. 화강암은 지하 깊은 곳에서 고온의 마그마가 서서히 냉각되어 생성된 결정질 암류로 열과 압력, 물리·화학적 풍화에 강한 특징을 갖는다. 또한 지하수의 양이 매우 적고 수리전도도가 낮아 암반 내에서 지하수의 유동성이 제한적이기 때문에 안정적으로 처분할 수 있는 이점을 가지고 있다.

본 연구는 한국원자력연구원 내의 지하처분연구시설인 KURT(KAERI Underground Research Tunnel)의 화강암에 존재하는 U-Th 함유광물의 산출특성을 확인하고, 장기 안정성에 대한 분석적 연구를 수행하여 추후 암반 내에서 U, Th 등 악티늄 핵종들의 장기거동을 예측하기 위한 연구의 기초자료로 활용하기 위해 수행되었다.

2. 본론

2.1 시료 채취 및 분석

본 연구에 사용된 화강암 시료는 한국원자력연구원 내 KURT에 분포하는 화강암으로, 시추공 DB-1-18 (97.6 m, 99 m구간), DB-1-28(156.2 m 구간)에서 채취한 시추코어의 일부이다. U-Th 함유광물의 산출상태와 결정구조식을 파악하기 위해 시추코어를 연마 박편으로 제작하여 전자현미탐침분석(Electron Micro Probe Analysis: EPMA)을 실시하였다(SHIMADZU 1600, 한국기초과학지원연구원). 분석조건은 가속전압 15 kV, 전류 20 nA이며, 빔 크기는 1 μ m이다. 후방산란전자영상 (Back Scattered Electron, BSE) 영상을 이용하여 EDS(Energy Dispersive Spectrometer)로 정성분석을 실시하였다. EDS로 광물의 함유원소를

확인하였고 U-Th이 확인된 광물은 WDS(Wavelength Dispersive Spectrometer)로 정량분석을 수행하였다. Table 1은 U-Th 함유광물로 확인된 광물의 정량 분석 결과이다.

Table 1. The chemical compositions of U-Th containing minerals(wt.%)

Ele.	J1-3-Th-1-1	J17-3-Th-1-1	J5-7-Th-2-1*	J5-7-Th-4-1*
F	0.23	0.17	0.56	0.58
Na ₂ O	0	0	0.02	0.02
MgO	0	0.01	0.03	0.04
Al ₂ O ₃	0	0	0.44	0.49
SiO ₂	16.97	15.87	16.96	16.36
P ₂ O ₅	0.23	0.98	5.80	6.96
K ₂ O	0.10	0.09	0.08	0.13
CaO	1.56	1.62	6.38	9.84
TiO ₂	0.11	0.03	0.21	0.04
MnO	0.10	0.14	0.06	0.03
FeO	0.23	3.45	1.18	1.23
Y ₂ O ₃	0.01	0.94	2.09	1.76
ZrO ₂	0	0.05	1.86	2.82
La ₂ O ₃	0	0	0.11	0
Ce ₂ O ₃	0	0.01	0.25	0.14
HfO ₂	0	0.02	0.12	0.12
PbO ₂	0.56	0.03	0.20	0.16
ThO ₂	41.61	44.17	50.24	50.19
UO ₂	33.19	25.48	3.72	3.39
Total	95.09	93.04	90.31	94.27

*U-Th Overflow

분석결과에서 U-Th 함유광물의 총 함량이 100wt.% 보다 낮게 나타나게 하는 요인들은[1] 총 함량에 비해 매우 작은 부분을 차지하기 때문에 분석결과에 큰 영향을 미치지 않을 것으로 판단된다. 그러나 분석에 사용되는 U과 Th의 표준시료가 소량일 경우, 정량분석 시 과잉(Overflow)되어 제한된 U과 Th의 함량만을 측정하기 때문에 정확한 함량을 얻는데 어려움이 있다. 추후 이를 보완하여 추가적인 재분석이 필요할 것으로 판단된다.

2.2 U-Th 함유광물 산출상태

KURT 화강암에 존재하는 U-Th 함유광물은 대부분 30 μm 이하의 크기로 석영, 장석, 운모의 경계에서 타형으로 존재하고 있으며, 2차 광물인 녹니석과 견운모가 관찰된다. 분석결과 U-Th 함유광물의 U와 Th는 REEs(Rare Earth Elements) 및 Zr 이 미량으로 치환되어 있으며, Si는 +3가 양이온인 Al이 매우 소량 치환되어 존재하는 것으로 판단된다. 또한 U-Th 함유광물은 인회석(Apatite) 또는 황철석(Pyrite)과 접하거나 포획된 상태로 확인되며 (Fig. 1), 이는 열수작용(변질과 교대작용)이 있었음을 지시한다. 그 외에 Monazite, Bastnaesite, Rutile 등의 광물들이 주변에서 빈번히 관찰된다.

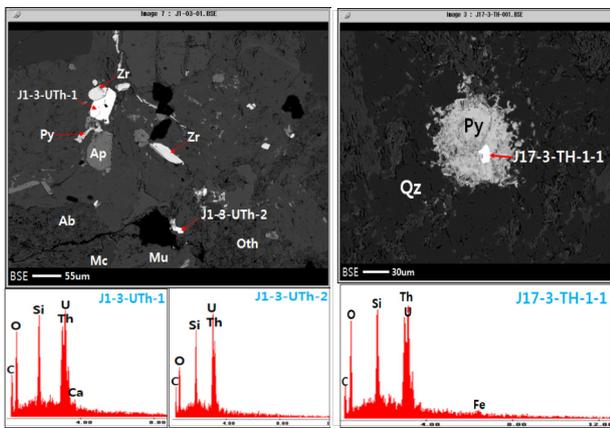


Fig. 1. BSE Image and EDS peak of J1-3(Left, J17-3(Right).

관찰된 U-Th 광물들의 결정구조식은 Table 1에 정리한 정량분석 결과를 이용하여 결정하였다. 결정구조식 계산 결과 KURT에 존재하는 U-Th 함유광물은 독립사면체형 규산염광물인 Thorite와 Uranothorite인 것으로 추측된다(Table 2).

Table 2. Calculated empirical formula of U-Th minerals

Sample No.	Empirical Formula	U-Th Mineral
J1-3-TH-1-01	(U _{0.41} Th _{0.53})Si _{0.95} O ₄	Uranothorite
J5-7-TH-2-01*	(Th _{0.54} U _{0.04})Si _{0.79} O ₄	Thorite
J5-7-TH-4-01*	(Th _{0.50} U _{0.03})Si _{0.72} O ₄	Thorite
J17-3-TH-1-1	(U _{0.32} Th _{0.56})Si _{0.89} O ₄	Uranothorite

*U-Th Overflow

U-Th을 함유하는 독립사면체형 규산염광물은 (U, Th, Y...)A(Si,P)B₄O₄ 형태의 구조를 가진다. Thorite와 Uranothorite의 U-Th은 구성원소 배위상 8개, Si는 4개의 배위수를 가지며[2], 결정구조상 U-Th은

+4가 형태의 이온으로 존재하기 때문에 화강암반 내에서 지하수 등의 지화학적 요인에 의해 쉽게 용해되지 않고 장기간에 걸쳐 안정적인 상태로 존재할 것으로 추정된다.

3. 결론

Thorite와 Coffinite 그리고 Uranothorite와 같은 고용체(solid solution)는 화강암과 페그마타이트 내에 형성 되거나 또는 열수작용에 의해 산출된다. 마그마 분화에 의해 형성된 KURT 화강암은 후기 열수에 의한 변질과 교대작용이 수반되었으며, 이때 열수의 온도, 압력, pH 등의 지화학적 조건에 의해 재결정작용을 일으킨 것으로 추정된다. 또한 재결정작용 중 반복적인 용해/침전 과정 중 열수에 함유된 U의 유입으로 U 양이 증가하여[3] Uranothorite와 같은 고용체가 형성되었을 것으로 판단된다. 따라서 KURT에 존재하는 Thorite와 Uranothorite의 Th와 U는 +4가 형태로 존재하기 때문에 화강암반 내에서 지하수 등의 지화학적 요인에 의해 쉽게 용해되지 않고 안정적인 상태로 존재할 것으로 추정된다.

4. 사사

이 논문은 2016년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임 (원자력연구개발사업, No. 2012M2A8A5025589).

5. 참고문헌

- [1] H. -J. Forster, Composition and origin of intermediate solid solutions in the system thorite-xenotime-zircon-coffinite, Lithos, 88, p.35-55 (2006).
- [2] J. A. Speer, The actinide Orthosilicates. Reviews in Mineralogy 5, 2nd ed, p.113-135 (1982).
- [3] Costin et al., How to explain the difficulties in the coffinite synthesis from the study of uranothorite?, J. Inorg. Chem., 50, p.11117-11126 (2011).