

고준위폐기물 지하처분연구시설(KURT)에서 관찰되는 방해석의 광물학적 특징

Mineralogical Characteristics of Calcite observed in the KAERI Underground Research Tunnel

이 승 엽(Seung Yeop Lee)* · 백 민 훈(Min-Hoon Baik) · 조 원 진(Won-Jin Cho)

한국원자력연구소 방사성폐기물처분연구부
(Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon 305-353, Korea)

요약 : 대전광역시 유성구 덕진동 한국원자력연구소에 위치한 지하처분연구시설은 2003년 부지조사를 시작으로 최근에 완공하였다. 이 곳의 지질은 약한 변성작용을 받은 지역으로 소규모 단열이 잘 발달되어 있는 곳이다. 단열을 따라서 많은 종류의 이차충전광물들이 존재하지만, 그 중에서 광범위하게 분포하고 지하 핵종 이동에 상당한 영향을 끼치는 방해석의 광물학적 특징을 살펴보았다. 지하처분연구시설 암석 단열에 분포하는 방해석은 다른 이차광물들과 유사하게 단열대를 따라 분포하며, 부분적으로 두꺼운 층을 형성하기도 한다. 방해석으로 충전되어 있는 대부분의 단열대에는 석영, 철 산화물 및 돌로마이트 등이 소량 부성분 광물로 존재하고 있다. 방해석 결정은 일정한 방향성을 가지고 성장한 모습을 보여주고 있으며, 피복 물질로 산화철 광물인 침철석이 방해석 표면으로부터 성장하는데, 주로 방해석 결정의 가장자리 부근과 상부 표면의 용식된 부분에서 과밀하게 성장하고 있다. 터널 벽체의 슛크리트에서 녹아 나온 성분들이 침전되어 새로운 방해석 결정들이 형성되었는데, 지하수의 성분 및 흐름에 의해 형태 변화가 있었다. 단열충전광물 중 방해석은 지하수 화학특성을 변화시키고 핵종의 흡착 거동에 큰 영향을 끼치는 광물로, 본 연구에서 관찰된 방해석의 결정학적 구조 및 표면 특성은 추후 핵종 이동 실험시 중요한 기초 자료로 활용될 것이다.

주요어 : 지하처분연구시설, 단열, 이차충전광물, 핵종 이동, 방해석, 침철석

ABSTRACT : KAERI Underground Research Tunnel (KURT) was recently constructed through the site investigation from the year of 2003 at KAERI site, Dukjin-dong, Yuseong-gu, Daejeon city. The geologic setting of the site has been slightly metamorphosed. There are small fractures developed in the rock and several kinds of secondary filling minerals exist in the fractures. We examined mineralogical characteristics of fracture-filling calcite, which is not only largely distributed, but also can significantly affect the radionuclides migration. The calcite is found along fractures like other secondary minerals, forming thick veins in part. Most calcite-filled fractures contain quartz, iron oxides, and dolomite as minor minerals. The calcite crystals show a characteristic appearance with a uniformly oriented growth, coated with goethite on the edge and the etch-pit sites of their surface. Some calcite crystals have been newly formed by the precipitation of elements dissolved from the tunnel shotcrete

*교신저자: seungylee@kaeri.re.kr

wall, and their morphology changed according to the chemistry and flow of groundwater. The calcite can modify the groundwater chemistry and significantly affect the sorption behavior of radionuclides. The characteristic crystal structure and surface morphology of the calcite examined in the KURT site will be used as important basic data for the radionuclide migration experiment in the future.

Key words : KAERI Underground Research Tunnel, fracture, secondary filling minerals, radionuclide migration, calcite, goethite

서 론

일반적으로 고준위방사성 폐기물처분의 가장 큰 목적은 방사성폐기물을 격리하여, 생물권(biosphere)으로의 회귀를 최대한 지연시켜 그 위해성을 최소화 하는 데 있다. 이를 위해 다양한 고준위방사성 폐기물처분에 관한 방법이 제안되었으나, 현재 전 세계적으로 널리 검토되고 있는 방법은 지중처분이다. 통상적으로 지중처분을 통해 방사성폐기물을 생물권으로부터 격리 혹은 생물권 회귀 시간을 지연시키고자 할 때, 크게 두 가지 개념적 방법을 이용하는 데, 공학적 방법과 지질학적 방법이 이에 해당한다. 이 중 지질학적 천연방벽은 공학적 방법의 붕괴로 이후 누출된 방사성폐기물이 즉각적으로 생물권으로 노출되지 않도록 만들어 주는 지질학적 조건을 지칭하는 것으로 지하수를 따라 이동하는 핵종 원소들의 이동 지연을 담당한다(한필수 외, 2003).

한국원자력연구소는 고준위방사성폐기물 한국형처분시스템의 공학적 방벽 및 지질학적 천연방벽의 성능을 실제의 처분지질환경과 유사한 조건에서 실증하기 위한 지하처분연구시설(KURT; KAERI Underground Research Tunnel) 건설을 완료하였다(그림 1a). 지하처분연구시설은 단면적 6 m × 6 m이고 10 % 경사의 177 m 연장을 갖는 직선형 진입터널과 막장부의 좌측(27 m)과 우측(43 m)의 연구터널로 구성되며, 향후 지하처분연구시설에서 계획된 각종 현장 시험이 수행될 계획이다. 천연방벽의 역할을 담당하는 지질의 특성 중, 우선 핵종 원소들의 이동 지연에 많은 영향을 끼치는 단열충전광물들의 특성을 파악하고자 하였다. 대부분의 누출 핵종 원소들은 암석 단열을 흐르는 지하수를 따라 이동하기 때문에, 단열에 분포하며 핵종 흡착에 관여하는 이차광물들에 대한 연구가 필수적이다. 지하처분연구시설에는 많은 단열충전광물들이 분포하고 있으며, 그 중에서 광범위

하게 잘 발달된 탄산염광물인 방해석의 특징을 이번 연구를 통해 알아보하고자 하였다. 또한, 지하처분연구시설 건설과정 중에 사용된 샷크리트(shotcrete)의 변질 및 풍화에 의해 형성된 방해석에 대해서도 조사하였다. 향후 방사성폐기물 처분장 건설시 사용될 샷크리트는 지하수에 의해 화학적 변질이 쉽게 일어나고 이차광물 형성이 활발하며 지하수 성분을 변화시키는 등 심부지질환경에서 큰 변수로 작용할 가능성이 있어, 이에 대한 기초 연구가 필수적이라 하겠다.

지질특성

이 지역의 지질을 살펴보면, 경기변성암 복합체에 속하고 주로 선캠브리아기의 편마암류와 중생대의 심성암과 맥암류로 구성되어 있다(그림 1b). 연구 지역을 구성하고 있는 심성암류는 크게 시대미상의 편상화강암과 중생대 복운모화강암으로 나눌 수 있다. 이 중 복운모화강암은 연구 지역의 전 범위에 걸쳐 가장 광범위하게 분포하는 암석으로 편상화강암을 관입하고 있다. 복운모화강암은 중립 내지 세립질이며 주 구성광물은 석영, 사장석, 미사장석, 흑운모, 백운모 등이고 저어콘, 금홍석, 인회석 등이 소량 관찰된다(김건영 외, 2004). 시추코아 분석에 의하면 장석류는 시추코아 심도와 관계없이 견운모화 되어 있는 양상을 흔하게 보이며 흑운모의 녹니석화 작용도 빈번하게 관찰된다. 일부 석영맥이 산출되는 구간에서는 황철석 및 물리브데나이트 등의 광석광물이 산출되는 것으로 보아 국지적인 광화작용이 있었던 것으로 판단된다(김건영 외, 2004).

시료채취 및 분석

시료채취는 지하처분연구시설 공사가 진행 중인 시점부터 이뤄졌으며(이승엽 외, 2006), 지하처분연구시설 터널 벽면의 절리 및 단층과

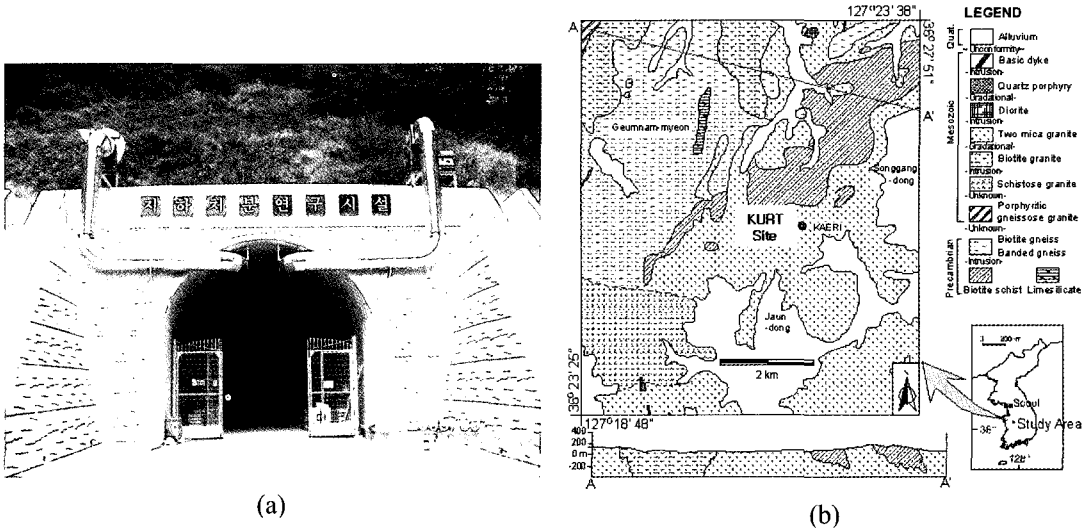


Fig. 1. (a) The gateway of the KURT site, (b) Geological map around the KURT site.

같은 단열면에 분포하는 방해석과 일부 암석, 그리고 터널 바닥 침전물 등을 대상으로 시료를 채취하였다. 채취된 시료의 광물학적 분석을 위해 실체현미경, 편광현미경, X-선 회절분석(XRD), 전자현미화학분석(EPMA), 그리고 주사전자현미경(SEM) 기기를 이용하였다. 분석 과정을 구체적으로 살펴보면, 채취시료를 실내 대기 조건에서 건조시킨 후, 일부 시료를 작게 쪼개어 전처리 없이 시료대 위에 올려놓고 실체현미경을 통해 약 200배까지 확대하여 광물의 형태를 관찰하였다. 채취한 시료의 절단면에 대한 광물 구조 및 조직을 mm 수준에서 관찰하기 위해 박편을 만든 후, 편광현미경을 이용하여 관찰하였다. 또한, 기초과학지원연구원의 X-선 회절분석기(Bruker D8 Advance, Germany)를 이용하여 암석 및 미지시료의 광물을 동정하였다. X-선 회절분석을 위하여 시료는 막자사발을 이용하여 곱게 갈아 시료 홀더에 채운 후 X-선 회절분석을 실시하였다. 분석조건은 주사범위 2θ 를 60까지 하여 시료 내에 존재 가능한 모든 광물들을 분석하려고 하였다. 광물의 미세한 구조 및 조직 표면을 수 μm 이하로 관찰하기 위해 기초과학지원연구원의 주사전자현미경(LEO 1455VP, Germany)을 이용하였다. 수분이 제거된 건조한 시료에 Au 코팅을 실시하고 수천에서 수만 배까지 확대($\sim \mu\text{m}$ 크기)하여 관찰하였다. 경우에 따라서 EDS

(Energy Dispersive Spectroscopy)를 이용하여 관찰중인 광물의 특정 부분을 in-situ 표면화학 분석하였다. 그리고, 전자현미화학분석기(EPMA)를 이용하여 광물의 구성화학 성분 조사 및 특정 원소에 대한 원소분포도 분석을 실시하였다.

결과 및 토의

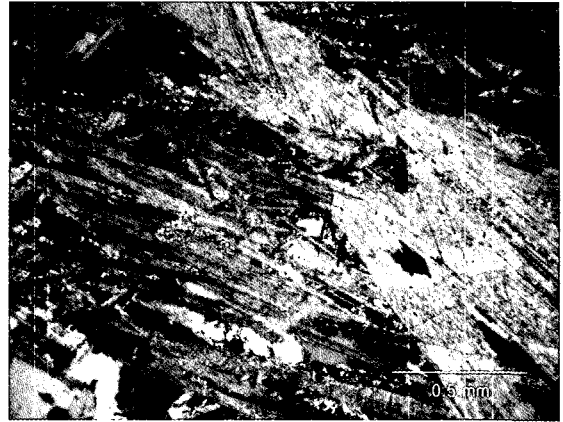
단층 및 균열충전 방해석

지하처분연구시설의 지질은 약한 변성작용 및 조구조 운동을 겪어 대체로 암상이 균일하지 못하고 소규모의 단층, 절리 및 균열 등이 발달해 있다. 다양하게 발달된 단열들은 불규칙하게 분포하고 있으며 부분적으로 복잡한 망상구조 배열을 보여준다. 오랜 세월동안 다양한 단열들이 지하수 및 열수 등에 의해 이차광물질로 채워지고 변질되어 현재의 모습을 보여주고 있다. 이 곳에 분포하는 단열충전 이차광물들은 매우 다양하며, 특정 이차광물이 특정 균열대에 다량 분포하기도 한다(김진영 외, 2004). 또한, 이차광물들이 온도, 압력에 의한 지질작용에 의해 영향을 받기도 하고, 비정질 혹은 결정화되지 못한 형태의 모습을 갖고 있기도 한다.

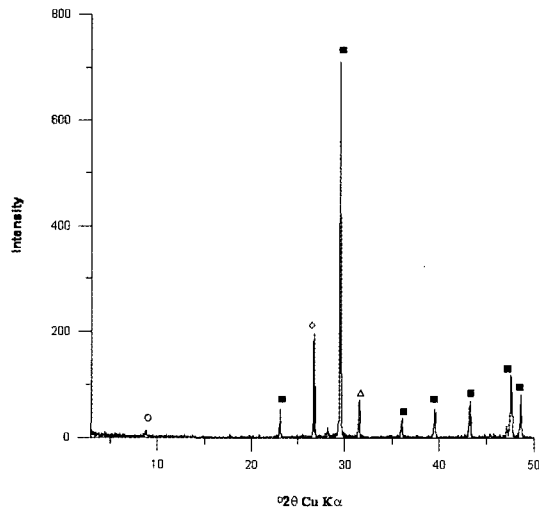
지하처분연구시설 암석 단열에 분포하는 방



(a)



(b)



(c)

Fig. 2. (a) Some KURT rock fractures filled with calcite (indicated by arrows) accompanying iron oxides, (b) a thin-section photomicrograph and (c) XRD pattern of fracture-filling calcite and minor minerals. (○: illite, ■: calcite, ◇: quartz, △: dolomite).

해석은 다른 이차광물들과 유사하게 단열대를 따라 선상으로 분포하며, 부분적으로 두꺼운 층을 형성하기도 한다(그림 2a). 때로는 단열층 전광물로 존재하는 일라이트나 스멕타이트와

같은 점토성 광물들과 섞여 소량으로 산출되기도 한다. 보통, 방해석으로 충전되어 있는 대부분의 단열대에는 석영, 철 산화물 및 돌로마이트 등이 부성분 광물로 소량 존재하고 있다.

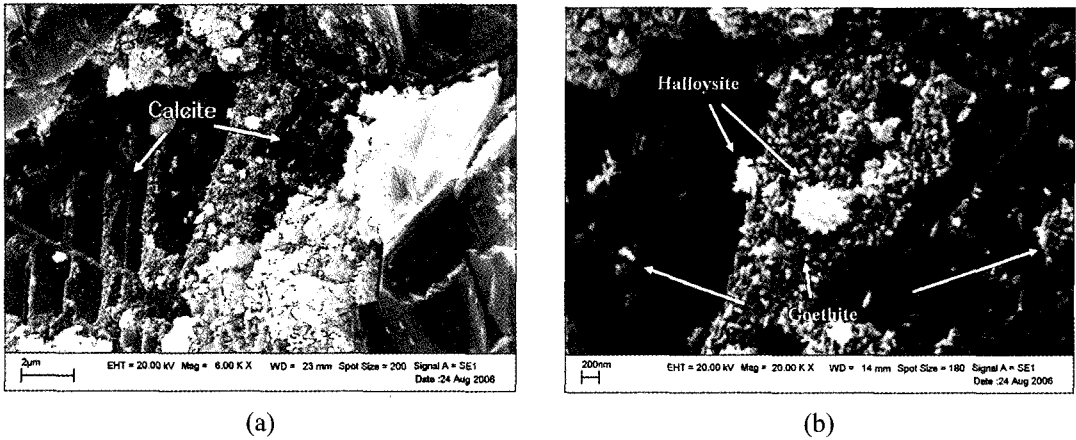


Fig. 3. SEM photomicrographs of (a) fracture-filling calcite and (b) some secondary minerals such as goethite and halloysite precipitated on its surface.

그림 2a에서 보는 바와 같이 백색으로 보이는 부분이 방해석 광물이며 단열을 따라 길게 분포하고 있고, 산화철 광물들이 공존하여 침전되어 있다. 편광현미경으로 관찰해 보면, 방해석 결정은 일정한 방향성을 가지고 한 쪽 방향으로 성장한 모습을 보여주고 있으며, 그에 비해 상대적으로 작은 폭을 가지고 있다(그림 2b). 여러 개의 방해석 결정들이 겹겹이 쌓여 방향성을 가지고 있으며, 이는 과거 균열을 따라 일정한 방향으로 흐른 지하수로부터 응집, 침전되면서 성장된 모습을 보여주는 것으로 판단된다. 방해석 주변은 부분적으로 석영 및 산화철 광물들이 공존하고 있다. 또한, X-선 회절 분석 결과, 소량의 일라이트 및 돌로마이트가 부수 광물로 존재하고 있음을 확인할 수 있다(그림 2c).

단열을 따라 발달, 성장한 방해석을 전자현미경으로 관찰해 보면 그림 3a에서 보는 바와 같이, 계단식 형태로 겹겹이 쌓이면서 성장한 모습을 관찰할 수 있다. 암석 단열과 동일한 방향으로 나란히 배열된 구조는 과거 지하수가 단열을 따라 흐르면서 물 속에 과포화 되어 있던 탄산칼슘 성분들이 침전(윤해온과 김수진, 2001, 2004)되면서 암석 단열면과 평행하게 방해석 결정들이 형성된 것으로 보인다. 그리고, 전자현미경 관찰에서 이차적으로 발달한 산화철 광물들이 방해석 표면으로부터 성장하고 있는데(그림 3b), 주로 방해석 결정의 가장자리

부근과 상부 표면의 용식(etch pit)된 부분에서 과밀하게 성장하고 있다. 확인된 산화철은 주로 nm 크기의 침철석(goethite)으로 확인되었으며, 방해석 표면의 높은 흡착자리를 중심으로 넓게 분포하고 있다. 이는 방해석 광물이 형성된 이후, 이차적으로 지하수로부터 산화된 Fe^{3+} 원소들이 방해석 표면의 높은 에너지의 흡착자리와 결합하여 성장하면서 방해석 표면을 피복하는 것으로 보인다. 실제로 지하처분연구시설 암석 단열대에 방해석과 산화철이 함께 공존하여 단열을 충전하고 있는 모습을 흔히 관찰할 수 있다. 이러한 사실은 Fe^{3+} 이온들이 지하 암반 절리구조가 발달한 지하수 조건에서 탄산염 광물인 방해석의 높은 에너지를 갖는 표면 흡착을 선호하고 강한 결합을 이루어 표면 산화철 광물을 형성하는 것으로 보인다. 또한, 수백 nm 크기의 콜로이드성 할로이사이트가 침철석 광물 표면에 산발적으로 분포, 성장하는 것을 확인할 수 있는데(그림 3b), 이는 지하수를 따라 이동하는 콜로이드성 알루미늄 규산염 광물들이 방해석 보다는 침철석과 같은 산화철 광물에 선택적으로 흡착 또는 결합되는 것으로 보인다.

전자현미분석기를 이용하여 암석 단열에 분포하는 방해석을 관찰해 보면, 성장 방해석 광물 틈새에 역시 Fe 광물들이 방해석 표면에서 발달되어 분포하고 있는 모습을 확인할 수 있다(그림 4). 전자현미분석 원소분포도 사진에서



Fig. 4. EPMA mapping for the fracture secondary minerals such as calcite and iron oxides.

산화철 광물은 개별적 입자로 발달하는 특징을 보여주고 있는데, 이것은 방해석 표면에 흡착된 Fe 성분들이 결정핵으로 작용하여 독립적으로 성장하면서 수 μm 이상의 결정으로 발달하는 것으로 보인다.

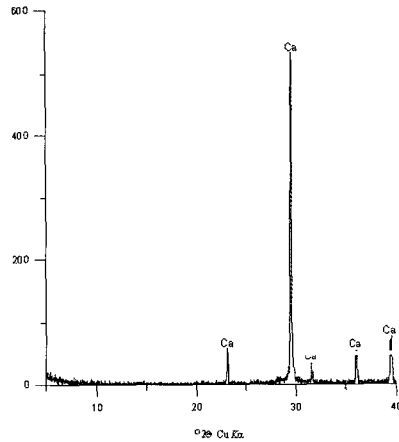
-shotcrete 용해 생성물

지하처분연구시설 건설을 위한 터널 굴착 과정에서 암반의 붕괴 혹은 낙석 방지를 목적으로 시멘트 성분의 모르타르 물질을 터널 암반 벽면에 강제 분사하여 암석을 골고루 피복하는데, 이러한 shotcrete(shotcrete) 물질은 지하수 혹은 대기중의 수분과 결합하여 서서히 용해되거나 침식된다. shotcrete 성분에는 석회석(limestone) 입자가 다량 포함되어 있으며, 이 입자들은 물에 의한 용해도가 커서 쉽게 용해되면서 칼슘 이온들이 용출된다. 본 현장에서는 지하수에 의해 녹아나온 탄산칼슘 이온들이 과포화 상태에 이르러 서로 응집, 침전되면서 터널 벽면과 바닥을 흰색 물질로 피복하는 현상이 관찰되었다.

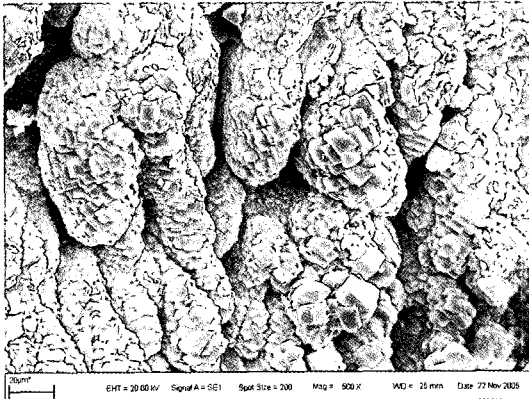
shotcrete 풍화에 의해 형성된 흰색 침전물들을 X-선 회절분석으로 확인한 결과, 대부분 방해석 광물로 형성되어 있었으며, 결정성이 비교적 좋았다(그림 5a). 또한, 그림 5b, c에서 보는 바와 같이, 지하처분연구시설 터널 침출수

의 지화학적 조건에 따라 방해석의 외형은 육면체와 구상 혹은 침상 구조(Mullin, 1991; 윤희은과 김수진, 2004) 등 다양한 광물 형태를 이루고 있다. 새롭게 형성된 방해석 광물들은 결정형태가 매우 뚜렷하고 수 μm 크기의 입자들이 서로 엉켜붙어 전체 모양을 형성한다. 특히, 그림 5의 (b)에서 볼 수 있듯이, 방해석의 결정성장 형태가 일정한 방향성을 보이며 발달하고 있음을 알 수 있고, shotcrete로부터 용해되어 지하수를 따라 흘러내리면서 형성된 방해석의 특징을 잘 보여주고 있다. 즉, 응집, 침전되어 형성되는 탄산염 광물들의 결정 성장에는 지하수의 흐름 및 방향이 큰 영향을 미침을 알 수 있다.

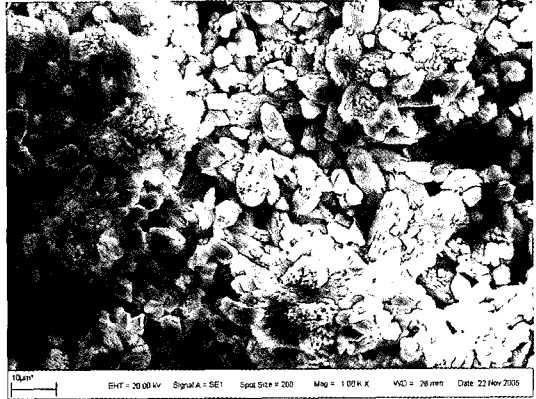
터널 벽면에 침전된 흰색 물질 외에 지하수를 따라 흘러내려 터널 바닥에 침전된 물질들을 조사하였는데, 지하수에 녹아 있던 다양한 무기질 성분들 때문에 균일하지 않은 광물형태와 화학조성을 보여 주었다. 터널 바닥 침전물의 경우, 탄산염광물의 조직은 균일하지 않은 망상, 구상 혹은 다면체 모양과 대체로 응집된 형태를 보여준다. 화학조성으로는 칼슘 성분 외에 부성분으로 마그네슘, 알루미늄, 그리고 규소 등이 포함되어 있고, shotcrete 성분 외에 암석 풍화 성분들이 다량 지하수에 녹아 있어 다양한 화학조성과 조직을 갖는 탄산염광물들을 만드는 것으로 보인다.



(a)



(b)



(c)

Fig. 5. (a) A XRD pattern and (b), (c) SEM photomicrographs of the calcite crystals precipitated from the shotcrete weathering by groundwater. The morphology of the calcite crystals varies according to the geochemical conditions of groundwater.

결 론

우리나라 심부지질 단열대에서 흔하게 접할 수 있는 이차광물인 방해석은 본 연구지역에 광범위하게 단열을 충전하고 있다. 본 지하처분연구시설 암석 단열에 분포하는 방해석은 일정한 방향성을 가지고 한 쪽 방향으로 성장한 모습을 보여주고 있으며, 단열을 따라 흐르는 지하수의 영향을 받은 것으로 판단된다. 방해석과 함께 공존하는 부성분 광물 중 침철석은 nm 크기의 쌀알 모양으로, 방해석 표면의 높은 흡착자리를 중심으로 넓게 분포하고 있다. 방해석은 슛크리트 풍화에 의해서도 만들어지는

데, 그 형태는 지하수의 화학적 조건에 의해 다양하게 변화했다. 이상의 연구결과를 통해 알 수 있는 사실은, 단열에 분포하는 방해석은 일반지질에서 대규모로 관찰되는 방해석과 달리 방향성을 가지고 있으며, 침철석과 같은 부수 광물들과 함께 공존하며, 지하수에 의해 쉽게 형성될 수 있다는 사실이다. 만약, 단열을 따라 이동하는 방사성 핵종들이 방해석과 반응하게 될 때, 방해석 표면에 존재하는 콜로이드성 부수 광물들도 반응에 참여하여 핵종 거동에 상당한 영향을 끼칠 것이다. 즉, 방해석은 물과 접촉시 지하수의 pH를 상당히 높일 수 있고 또한, 부수적 광물로 공존하는 산화철 광

물 등은 핵종 원소들의 중요한 흡착제로 작용하여, 지하수에 의한 핵종들의 이동을 상당히 지연시킬 수 있을 것이다. 향후, 방해석 광물의 광물학적 특성과 부수 광물들에 의한 지하 핵종 거동의 영향을 지하처분연구시설 현장 및 실내 실험을 통해 보다 구체적으로 살펴볼 계획이다.

참 고 문 헌

- 김건영, 고용권, 배대석, 김천수 (2004) 방사성폐기물처분연구를 위한 유성지역 화강암내 심부 시추공 단열층진광물의 광물학적 특성. 한국광물학회지, 17, p. 99-114.
- 윤혜은, 김수진 (2001) 방해석 결정 성장시 금속 양이온의 분배 현상에 대한 연구. 한국광물학회지, 14, p. 31-38.
- 윤혜은, 김수진 (2004) 다양한 과포화 조건하에서의 탄산염광물의 합성에 대한 연구. 한국광물학회지, 17, p. 11-21.
- 이승엽, 백민훈, 조원진 (2006) 지하처분연구시설의 암석 및 균열/단층의 광물학 및 지화학적 특성 연구 (I). KAERI/TR-3140/2006, 한국원자력연구소, 40p.
- 한필수, 박정균, 금동권, 조영환, 강문자, 백민훈, 한경원, 박현수 (2003) 지하 핵종 거동 규명 연구 (고준위폐기물 처분 기술 개발). 한국원자력연구소 보고서 KAERI/RR-2326/2002, 과학기술부, 397p.
- Mullin, J.W. (1991) Crystallization. Butterworth-Heinemann, p. 291-308.

2006년 12월 1일 원고접수, 2006년 12월 18일 게재승인.