

## **An Experimental Study on the Sorption of Uranium(VI) onto a Bentonite Colloid**

### **벤토나이트 콜로이드로의 우라늄(VI) 수착에 대한 실험적 연구**

**Min-Hoon Baik and Won-Jin Cho**

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yuseong-gu, Daejeon

[mhbaik@kaeri.re.kr](mailto:mhbaik@kaeri.re.kr)

**백민훈, 조원진**

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

(Received April 10, 2006 / Approved June 12, 2006)

#### **Abstract**

In this study, an experimental study on the sorption properties of uranium(VI) onto a bentonite colloid generated from Gyeongju bentonite which is a potential buffer material in a high-level radioactive waste repository was performed as a function of the pH and the ionic strength. The bentonite colloid prepared by separating a colloidal fraction was mainly composed of montmorillonite. The concentration and the size fraction of the prepared bentonite colloid measured using a gravitational filtration method was about 5100 ppm and 200-450 nm in diameter, respectively. The amount of uranium removed by the sorption reaction bottle walls, by precipitation, and by ultrafiltration was analyzed by carrying out some blank tests. The removed amount of uranium was found not to be significant except the case of ultrafiltration at 0.001 M NaClO<sub>4</sub>. The ultrafiltration was significant in the lower ionic strength of 0.001 M NaClO<sub>4</sub> due to the cationic sorption onto the ultrafilter by a surface charge reversion. The distribution coefficient  $K_d$  (or pseudo-colloid formation constant) of uranium(VI) for the bentonite colloid was about  $10^4 \sim 10^7$  mL/g depending upon pH and ionic strength of NaClO<sub>4</sub> and the  $K_d$  was highest in the neutral pH around 6.5. It is noted that the sorption of uranium(VI) onto the bentonite colloid is closely related with aqueous species of uranium depending upon geochemical parameters such as pH, ionic strength, and carbonate concentration. As a consequence, the bentonite colloids generated from a bentonite buffer can mobilize the uranium(VI) as a colloidal form through geological media due to their high sorption capacity.

---

**Key Words** : Uranium(VI), Buffer Material, Sorption, Precipitation, Ultrafiltration, Bentonite Colloid, Distribution Coefficient

## 요 약

본 연구에서는 현재 국내에서 고준위 방사성폐기물 처분장의 잠재적인 완충재 물질로 고려되고 있는 경주벤토나이트에서 발생 가능한 벤토나이트 콜로이드로의 우라늄(VI) 수착특성에 대한 실험적 연구를 pH 및 이온강도의 함수로 수행하였다. 경주벤토나이트로부터 분리된 콜로이드는 주로 몬모릴로나이트로 구성되어 있다. 중력여과법을 사용하여 측정된 결과 농도 및 크기는 약 5100 ppm 및 200-450 nm 이었다. 우라늄 수착실험에 대한 공시험을 수행하여 수착 반응용기 벽면에 흡착, 침전, 한외여과에 의해 손실된 우라늄 양을 평가하였다. 이러한 과정에 의해 제거된 우라늄의 양은 미량이었다. 그러나 한외여과에 의한 우라늄 손실의 경우 이온강도가 낮은 경우 즉, 0.001 M NaClO<sub>4</sub>의 경우 한외여과 필터의 표면전하 역전에 의한 양이온 수착 영향으로 인해 매우 높은 핵종 손실을 유발하였다. 벤토나이트 콜로이드에 대한 우라늄(VI)의 수착 분배계수  $K_d$  (또는 의사콜로이드 형성상수)는 pH 및 이온강도에 따라 10<sup>4</sup>-10<sup>7</sup> mL/g 값을 가지며 pH중성 영역인 6.5 근처에서 최대값을 가지는 것으로 나타났다. 벤토나이트에 대한 우라늄(VI)의 수착은 pH, 이온강도, 탄산농도 등과 같은 지화학적 변수들에 의존하는 수용액에서 우라늄 화학종과 매우 밀접한 관련이 있다. 따라서 벤토나이트 완충재로부터 발생된 벤토나이트 콜로이드는 높은 수착능으로 인해 우라늄(VI)을 의사콜로이드(pseudo-colloid)의 형태로 지질학적 매질을 통해 이동시킬 수 있을 것이다.

**중심단어**: 우라늄(VI), 완충재, 수착, 침전, 한외여과, 벤토나이트 콜로이드, 분배계수

## I. 서 론

현재 고준위방사성폐기물의 안전한 처분에 대한 가장 유력한 대안으로는 지하 수 백 미터 이상의 심지층에 폐기물을 처분하는 것이며, 대상 매질로는 결정질 암반, 점토질층 또는 암염층 등이 고려되고 있다. 국내에서는 결정질 암반에 처분하는 것을 기본 처분 개념으로 설정하고 있다[1]. 그리고 포장된 폐기물들은 심지층의 굴착된 수평 갱도(drift) 또는 수직 시추공(borehole)에 정치된다. 암반층과 포장물 사이는 완충재로 매우게 되는데, 이때 주로 사용되는 것은 압축된 벤토나이트(compact bentonite)이다. 이러한 완충재는 다중방벽 처분개념에 있어 인공방벽시스템(EBS, Engineered Barrier System)을 구성하는 주요 구성원이다[2].

따라서, EBS의 장기 건전성을 확보하기 위해서는 EBS와 주변 모암(host rock) 사이의 상호작용을 이해하는 것이 필수적이며 다양한 열적, 수력학적, 기계

적(THM, Thermo-Hydraulic-Mechanical) 등의 복합적인 영향들을 고찰하는 것이 필요하다. 이를 위해 심지층 결정질 암반의 실제 처분장 조건에서 EBS의 거동을 이해하고 모암과의 상호작용을 해석하기 위한 연구가 ENRESA(The Spanish Agency for Radioactive Waste Disposal)를 중심으로 스위스 GTS(Gimsel Test Site) 지하 시험 시설에서 FEBEX(Full-scale Engineered Barriers Experiment) 프로젝트로 수행되었다[3].

아울러 GTS의 5 m 규모의 화강암 자연 균열의 지하수에서 FEBEX 벤토나이트를 이용하여 방사성 핵종에 미치는 벤토나이트 콜로이드의 영향 및 이동에 대한 연구를 CRR(Colloid and Radionuclide Retention) 프로젝트로 수행된 바 있다[4]. CRR 현장 실험의 결과는 벤토나이트 콜로이드가 방사성 핵종의 유출량 및 이동 속도를 증가시킨다는 것이었다. 이러한 결과는 그동안 과소평가되었던 콜로이드의 역할 및 중요성에 대한 인식의 새로운 전기를 마련하

는 계기가 되었다.

벤토나이트는 주로(약 60 % 이상) 몬모릴로나이트(montmorillonite)와 같은 2:1 점토광물로 구성되어 있다. 주변 암반의 균열을 통해 흐르는 지하수와 의 접촉에 의한 벤토나이트의 수화(hydration)는 암반 균열로 침투할 수 있는 겔(gel)형의 물질을 형성하고 점토의 높은 팽윤압(swelling pressure)은 이러한 과정을 돕게 된다[5,6]. 벤토나이트의 암반으로의 침투(intrusion)는 EDZ(excavation disturbed zone)의 물리화학적 특성을 변화시킬 수 있고 따라서 이러한 영역에서 핵종 이동의 조건들에 영향을 미칠 수 있다. 더구나 겔 물질들은 암반의 대형균열(macro-fracture) 뿐만 아니라 미세균열(micro-fracture)로 접근하여 암반으로 확산 이동할 수 있는 콜로이드를 발생시킬 수 있다[7]. 벤토나이트가 많은 핵종들에 대해 뛰어난 수착능을 가지고 있음을 고려할 때 점토입자들의 확산은 방사성 핵종의 이동과 관련될 수 있고 핵종의 이동에 영향을 미칠 수 있다. 실제로 이러한 벤토나이트 콜로이드들에 의한 핵종 이동이 가속화됨을 확인하는 실험 결과들이 다수 확인되었다[5-8]. 아울러 벤토나이트에 대한 핵종 수착 특성에 대한 연구는 다년간 많은 연구자들에 의해 수행되어 왔지만 [9~12] 벤토나이트 콜로이드에 대한 수착 연구는 제한적으로 수행되었다[13].

따라서, 본 연구에서는 현재 국내에서 잠재적인 완충재 물질로 고려되고 있는 경주산 칼슘벤토나이트에서 발생하는 콜로이드가 지하매질을 통한 핵종 이동에 미치는 영향을 평가하기 위해 필요한 콜로이드에 대한 핵종 수착특성을 대표적인 고준위 핵종인 우라늄을 이용하여 고찰하였다.

## II. 실험

### 가. 재료 및 장비

실험에 사용된 벤토나이트는 경상북도 경주에서 생산된 것으로 “경주벤토나이트”로 불린다. 경주벤토나이트는 양이온 교환능이 71 meq/100g이고  $Ca^{2+}$  이온이 주 이온 교환가능한 양이온으로 칼슘벤토나이트라 할 수 있다. 벤토나이트의 조성은 몬모릴로나

이트(montmorillonite) (70 wt.%), 알바이트(albite) (29 wt.%), 석영(quartz) (1 wt.%) 및 소량의 클리노프틸로라이트(clinoptilolite) 등으로 구성되어 있다 [14].

벤토나이트 콜로이드 분산액은 약 50 g의 경주벤토나이트를 500 mL의 MQ 초순수를 담은 1 L PE(poly-ethylene)병에 넣어 잘 혼합한 후에 초음파 발생기에서 약 1시간 동안 벤토나이트 입자들을 분산시킨 뒤에 초순수 500 mL를 더 추가하여 희석하였고 이 벤토나이트 혼합액을 6000 rpm에서 30분 동안 원심분리기한 후에 상등액을 분리하였다. 이렇게 분리된 상등액을 벤토나이트 콜로이드 원액으로 사용하였다. 분리된 상등액은 실험에 사용되기 전까지 4 °C 냉장고에 보관하였다.

본 실험에 사용된 우라늄 핵종은  $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ (MERCK) 형태의 시료로 +6가의 우라늄을 사용하였고 우라늄의 농도는 ICP-MS(Ultramass 700, Varian, 상지대학교 자연과학지원연구센터)을 이용하여 측정하였다. 우라늄 핵종의 침전을 방지하기 위해 0.01M  $HClO_4$  산용액에 시약을 첨가하여 용해시킨 후에  $10^{-3}$  M 농도의 원액을 제조하여 사용하였다. 모든 실험 용액은 18.3 M $\Omega$ -cm의 저항도(resistivity)를 가진 초순수 제조기(Milli-Q, Millipore)를 이용하여 제조되었고, AR 등급의 시약들을 사용하였다. 실험용액의 이온강도를 조절하기 위하여 1.0 M의  $NaClO_4$  용액을 적절히 첨가하여 사용하였다.

### 나. 실험 방법

벤토나이트 콜로이드에 대한 우라늄의 수착실험은 pH 및 이온강도의 함수로 회분식으로 수행되었다. 모든 수착 실험은 대기 조건의 일정 온도( $25 \pm 2$  °C)에서 수행되었다. 먼저 일정 농도의  $NaClO_4$  용액 30 mL를 담은 50 mL PC(poly-carbonate) 원심분리기 튜브(Nalgene)에 5100 ppm 농도의 벤토나이트 콜로이드 원액을 약 300  $\mu$ L 첨가하였다. 그리고 이 용액의 pH는 1.0 M 및 0.1 M  $HClO_4$  또는 NaOH를 용액을 이용하여 pH를 조절하였다. pH가 안정화되었을 때  $10^{-3}$  M의 핵종 원액을 30  $\mu$ L를 가하여 초기 우라늄의 농도를  $10^{-6}$  M로 만들었다. 또한 대기 중의

CO<sub>2</sub>와 평형을 유지하기 위하여 물로 포화된 공기 방울을 이 용액에 계속하여 주입하였다. 용기 속 용액에 공기를 넣어주면 pH가 변하게 되는데 pH 조절액을 이용하여 이를 보정하였다. 공기 주입 및 이로 인한 pH 변화가 어느 정도 안정화되면(알칼리 영역에서는 높은 CO<sub>2</sub> 용해도로 인해 보통 1-3일 정도 소요되었음), 용기를 느슨하게 밀봉하여(실제로는 용기 뚜껑에 직경이 2mm 정도 되는 구멍을 3개 뚫었다) 자동 온도제어가 가능한 교반기(incubator shaker)에서 25 °C를 유지하며 100 rpm 정도의 속도로 교반시키며 수착반응을 실시하였다.

수착반응 시킨 3일 후에 용액의 pH를 측정 한 후 (Ion Analyzer EA-940 및 Ross combination electrode 83-02, ORION), 한외여과기(Ultrafiltration Stirred Cell 8000, Millipore)를 이용하여 약 3nm 기공 크기를 가진 XM50(50,000 NMWL, Millipore) 한외여과필터로 벤토나이트 콜로이드를 분리하였고, 여과된 용액 중 약 4 mL를 채취하였다. 채취된 여과액은 시료용기에 담아 65% 질산 10 µL를 가한 후에 ICP-MS로 핵종 농도를 분석하기 위하여 냉장고에 보관하였다.

용기벽에 흡착 또는 부착되거나, 침전되어 손실되는 우라늄의 양과 우라늄이 콜로이드를 형성하여 한외여과에 의해 제거되어 지는 우라늄의 손실을 규명하기 위한 공시험(blank test)을 pH 및 이온강도(즉, NaClO<sub>4</sub>의 농도)를 변화시키면서 수행하였다.

### III. 실험결과 및 논의

#### 가. 벤토나이트 콜로이드의 특성

우선 수착 실험에 사용될 경주벤토나이트로부터 제조된 벤토나이트 콜로이드의 특성을 규명하기 위한 분석을 수행하였다. 벤토나이트 콜로이드의 농도 및 크기를 결정하기 위하여 중력여과법(gravitational filtration method)을 사용하였다. 필터 홀더는 Millipore Swinnex(직경 25 mm)를 이용하였고, 주사기는 고압용 20 mL 주사기를(Millipore) 사용하였다. 측정 결과 벤토나이트 콜로이드 원액의 농도는 약 5100 ppm이고 98% 이상의 콜로이드들이 200-

450nm 크기 사이에 존재하는 것으로 나타났다(Fig. 1 참조).

양이온교환능(CEC, Cation Exchange Capacity)은 암모니아 전극(Thermo Orion)을 이용하여 NH<sub>4</sub>Cl을 벤토나이트의 이온교환양이온과 치환하여 측정하였고[17] 약 93.3 meq./100g인 것으로 측정되었다. 또 BET(ASAP 2010, Micrometrics) 비표면적은 200 °C에서 약 217.75 m<sup>2</sup>/g인 것으로 측정되었다. 그러나 경주벤토나이트에 대한 BET 측정 결과는 200 °C에서 약 59.88 m<sup>2</sup>/g인 것으로 측정되었다.

Fig. 2에 경주벤토나이트 및 제조된 벤토나이트 콜

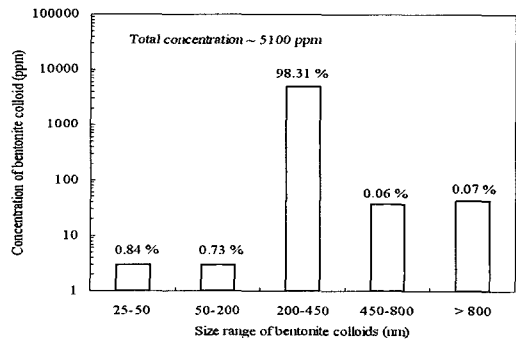


Fig. 1. Size fraction distribution and weight concentration of the bentonite colloids measured by gravitational filtration method

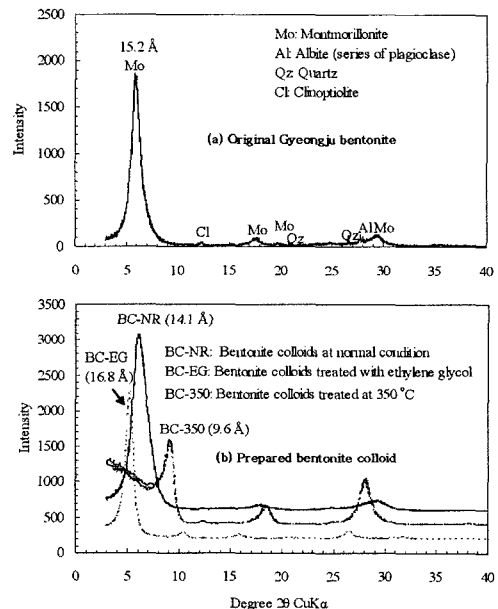


Fig. 2. The results of XRD measurements for (a) the original Gyeongju bentonite and (b) the prepared bentonite colloids

로이드의 XRD 측정 결과들을 나타내었다. XRD(D8 Advance, Brüker, 한국기초과학지원연구원)를 이용하여 제조된 벤토나이트 콜로이드의 구성광물을 분석한 결과 주광물은 몬모릴로나이트이며 다른 부광물은 거의 없는 것으로 나타났다. 이를 확인하기 위한 추가적인 XRD 분석을 수행하였는데 우선 몬모릴로나이트의 팽윤 특성을 확인하기 위하여 EG(ethylene glycol) 처리를 하여 XRD를 측정하였고 몬모릴로나이트의 층간간격(basal spacing)이 14.1 (Å) 에서 16.8 (Å) 으로 팽윤하였다. 그리고 350 °C로 처리한 후에 XRD를 측정한 결과에서는 몬모릴로나이트의 층간간격이 14.1 (Å) 에서 9.6 (Å) 으로 수축하고 특성 피크(peak)가 사라졌다. 위의 두 XRD 측정 결과들로 미루어 제조된 벤토나이트 콜로이드가 몬모릴로나이트의 특성을 보임을 확인할 수 있었다.

아울러 Fig. 3에는 준비된 벤토나이트의 형태를 보기 위해 촬영한 TEM(EF-TEM, Energy Filtering-Transmission Electron Microscope, LEO-912AB, OMEGA, 한국기초과학지원연구원) 사진을 나타내었다. 일반적으로 TEM 촬영시에서는 완전히 건조된 시료를 이용해야 하기 때문에 탄소코팅된 Cu 그리드(carbon coated Cu grid)에 벤토나이트 콜로이드 부유액을 소량(약 10 µL) 침적하여 건조한 후에 촬영하였다. 따라서 촬영된 벤토나이트 콜로이드의 형태는 완전히 분산된 벤토나이트 콜로이드의 형태가 아닌 건조로 인해 응집된 벤토나이트 콜로이드의 모습을 보여주고 있으며 평판형태의 콜로이드들이 서로 응집되어 있는 모습을 확인할 수 있었다.

### 나. 수착계수

일반적으로 처분장의 안전성 평가 또는 방벽의 성능평가에 사용되는 핵종이동모델에서 핵종의 고체

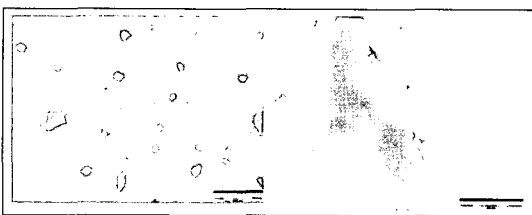


Fig. 3. TEM images for the bentonite colloids deposited on carbon coated grid "Scale bars: 20 nm (left), 500 nm (right)"

매질에 대한 수착은 현상학적 평형상수인 분배계수  $K_d$ (mL/g)를 이용하여 나타낸다. 콜로이드에 대한 핵종의 수착반응 또한 이와 유사한 개념을 이용하여 분배계수(또는 의사콜로이드 형성상수)  $K_d$ (mL/g)는 다음과 같이 정의된다[16,17]:

$$K_d \equiv \frac{[S]}{[U]} = \frac{([U_0] - [U])}{[U]} \cdot \frac{M}{[C]}$$

여기서  $K_d$ 는 수착 분배계수(또는 의사콜로이드 형성상수)(mL/g)이고,  $[U]$ 는 용액에서의 우라늄의 농도(mol/L)이고,  $[S]$ 는 콜로이드에 수착된 우라늄의 농도(mol/g)이고,  $[C]$ 는 용액의 단위부피당 존재하는 콜로이드의 농도(mg/L)이고,  $[U_0]$ 는 우라늄의 초기농도(mol/L)이고,  $M$ 은 L/mg의 mL/g으로의 단위 환산 인자( $=10^6$ )이다.

### 다. 우라늄(VI) 손실량 분석

수착실험 수행 시 반응용기 벽면으로의 수착 또는 한외여과 등에 의해 우라늄의 손실을 유발할 수 있으며 이러한 손실은 결국 수착실험 결과에 오차를 유발하게 되므로 이러한 손실량에 대한 정량적 평가가 중요하다. 우선 우라늄-벤토나이트 수착 반응 용기의 벽면에 대한 우라늄 손실량을 분석하기 위한 공시험을 벤토나이트 콜로이드가 존재하지 않는 조건에서 이온강도(실제로는  $\text{NaClO}_4$ 의 농도)와 pH를 변화시키며 수행하였다. 실험 결과를 Fig. 4에 나타내었다. 반응용기 벽면에 의한 우라늄 손실량은 이온강도에 상관없이 중성 pH 영역에서 가장 크게 나타났지만

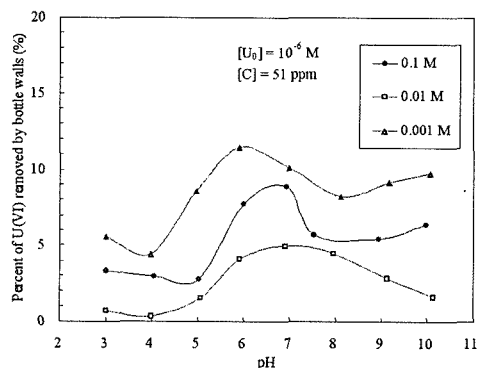


Fig. 4. The amount of U(VI) removed by the used reaction bottles in the sorption experiments

최대 10% 정도로 그 영향이 크지 않은 것으로 나타났다. 그리고 이온강도가 낮을수록 손실량이 증가하는 경향을 보이기는 했지만 그 차이는 크지 않은 것으로 나타났다. 그리고 pH 변화에 따른 반응용기 벽면에 의한 우라늄 손실 거동은 pH 변화에 의한 일반적인 우라늄 수착거동과 거의 유사한 경향을 나타내는 것으로 미루어[19] 수착 메커니즘에 의해 우라늄이 반응용기 벽면에 부착되는 것으로 추정된다.

Fig. 5에는 한외여과에 의한 우라늄 손실량 분석을 위한 공실험 결과를 나타내었다. 한외여과에 의한 우라늄 손실의 경우엔 이온강도의 영향이 크게 나타나고 있음을 알 수 있다. 특히 이온강도가 0.001 M 정도로 매우 낮은 경우엔 중성 pH 영역에서 거의 모든 우라늄이 한외여과에 의한 손실되는 것으로 나타났다. 따라서 벤토나이트-우라늄 수착반응 실험 시에 한외여과에 의해 벤토나이트를 분리하는 것은 용액의 이온강도가 0.01 M 이하일 경우엔 오차가 매우 커서 신뢰할만한 결과를 얻을 수 없음을 주지할 필요가 있다. 이러한 현상은 한외여과 필터 자체의 제타전위의 변화에 기인하는데, 최초로 양전하로 하전된 필터표면의 제타전위는 용액에 존재하는 전해액의 음이온이 필터표면에 붙게 됨에 따라 필터표면의 제타전위가 감소하여 음전하를 띠게 되고 따라서 우라늄과 같은 양이온들이 필터 표면에 수착 됨으로서 핵종량의 손실을 유발하는 것으로 알려져 있다[18,19].

**라. 우라늄 수착**

벤토나이트 콜로이드에 대한 우라늄 분배계수를

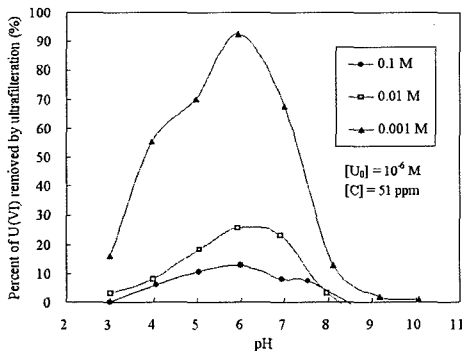


Fig. 5. The amount of U(VI) removed by the ultrafiltration as a function of pH at different ionic strengths of NaClO<sub>4</sub>.

용액의 이온강도와 pH를 변화시키며 측정된 결과를 Fig. 6에 나타내었다. 이온강도가 0.001 M NaClO<sub>4</sub> 일 경우엔 앞에서 논의된 바와 같이 한외여과에 의한 우라늄 손실량이 매우 커서 신뢰할만한 결과를 얻을 수 없었다. 이온강도가 0.1 M일 때와 0.01 M 경우를 비교해보면 중성영역에서는 거의 영향이 나타나지 않지만 산 및 알칼리 영역에서는 이온강도의 영향이 나타나고 있으며 이온강도가 작을수록 수착량이 증가한다.

벤토나이트 콜로이드에 대한 우라늄의 수착 분배계수  $K_d$ 는 pH가 증가함에 따라 증가하다가 중성 영역인 pH 6.5 근처에서 최대값인 약 10<sup>7</sup> mL/g 정도의 값을 가진 후 알칼리 영역으로 pH가 증가함에 따라 다시 감소하는 경향을 보여준다. 수착 분배계수는 pH에 따라 10<sup>4</sup>-10<sup>7</sup> mL/g 정도의 값을 가지는 것으로 관측되었다. 이들 벤토나이트 콜로이드에 대한 분배계수는 일반 벤토나이트 점토 입자들에 대한 분배계수보다 매우 크게 나타났는데 이는 콜로이드 입자의 크기가 매우 작기 때문에 수착에 필요한 보다 큰 표면적을 제공하기 때문인 것으로 사료된다. 즉, 벤토나이트 콜로이드의 표면적(217.75 m<sup>2</sup>/g) 경주벤토나이트의 표면적(59.88 m<sup>2</sup>/g) 보다 약 4배 정도 크다.

일반적으로 스멕타이트(smectite)(몬토릴로나이트는 스멕타이트 점토군 중의 하나이다)에 대한 우라늄의 수착은 모델링 및 분광학적 연구결과들에 의하면 고정표면전하점(fixed charge sites)의 이온교환과 모서리수산화점(edge hydroxyl sites)의 복합화 반응에 기인하는 것으로 알려져 있다[21-24]. 따라서 스멕

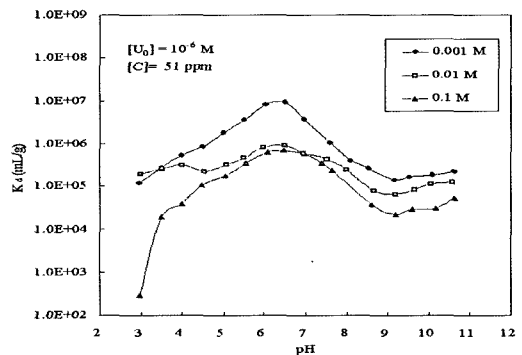


Fig. 6. The distribution coefficient ( $K_d$ ) of the U(VI) sorbed onto the bentonite colloids as a function of pH at different ionic strengths of NaClO<sub>4</sub>.

타이트(smectite) 계열의 점토광물의 경우에 낮은 이온강도 및 낮은 pH 영역에서는 이온교환 반응이 지배적이며, 높은 pH 영역 또는 높은 이온강도에서는 표면복합화 반응이 지배적이다[20,21].

아울러 우라늄의 수착특성은 수용액에서의 우라늄의 화학종과 밀접하게 관련되어 있다[26]. 열린 대기조건의 수용액에서 pH 5 이하의 산영역에서는  $UO_2^{2+}$ 가 지배적이고, pH 6까지는  $(UO_2)_2(OH)_2^{2+}$ 와  $(UO_2)_3(OH)_5^+$ 가 지배적이다. 그리고 pH 6-8사이에서는 우라늄-수산화-탄산의 삼중 복합체인  $(UO_2)_2CO_3(OH)_3^-$ 가 지배적인 화학종이고, pH 8 이상의 알칼리 영역에서는  $UO_2(CO_3)_3^{4-}$ 와 같은 음이온 화학종이 지배적인 것으로 계산되어 진다. 우라늄 화학종에 대한 자세한 계산결과는 다른 연구결과에서 제시되었다[25]. Fig. 6에서 pH가 7보다 큰 알칼리 영역에서 벤토나이트 콜로이드에 대한 우라늄 수착이 급격히 감소하는 경향을 보여주는데 이는 우라늄이 탄산염과 반응하여 음이온의 우라늄-카보네이트 복합체(Uranyl carbonate complexes)를 형성하기 때문인 것으로 사료된다.

Fig. 7은 벤토나이트 콜로이드의 농도가 벤토나이트 콜로이드의 우라늄(VI)의 수착에 미치는 영향을 분석한 실험결과이다. 벤토나이트 콜로이드의 농도를 0.5 ppm에서 1000 ppm까지 변화시키며 우라늄 수착량을 측정 한 결과, 벤토나이트 콜로이드의 농도가 증가할수록 우라늄 수착량도 증가하고 그 증가의 경향은 S-곡선의 형태를 가지고 있음을 알 수 있다. 벤토나이트 콜로이드의 농도가 약 5 ppm에서 부터

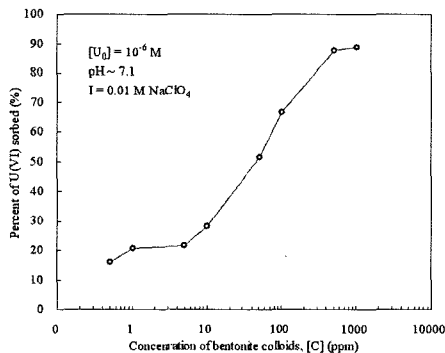


Fig. 7. The effect of the colloid concentration on the sorption of U(VI) onto the bentonite colloids

우라늄 수착량이 급격히 증가하다가 500 ppm 이상이 되면 수착량이 거의 포화됨을 알 수 있다. 이러한 경향은 우라늄 핵종의 농도가 벤토나이트 콜로이드의 농도에 비해 매우 낮기 때문에 충분히 수착점(sorption site)을 제공하기 때문인 것으로 추측된다.

#### IV. 결론

연구결과에 의하면 방사성폐기물 심지층 처분에서 완충재로 고려되고 있는 벤토나이트로부터 벤토나이트 콜로이드가 발생되어 암반 균열을 통해 이동하는 경우에 벤토나이트 콜로이드의 높은 수착능으로 인해 우라늄 등과 같은 방사성 핵종들과 강하게 결합하여 방사성콜로이드의 형태로 지하수를 따라 이동할 가능성이 높다고 하겠다. 하지만 완충재로부터 발생된 벤토나이트 콜로이드가 방사성 핵종의 이동에 미치는 영향을 규명하기 위해서는 침식에 의해 발생하는 벤토나이트 콜로이드의 발생량, 지하수 조건에서의 안정성, 방사성 핵종 수착의 가역성, 지하수를 통한 이동 특성 등 다양한 관점에서 보다 엄밀한 해석 및 실제 심지층 조건을 모사할 수 지화학적 조건에서 추가적인 실험들이 더 수행되어 종합적인 평가가 이루어져야 할 것이다.

#### 감사의 글

본 연구는 과학기술부가 주관하는 원자력중장기 연구의 일환으로 수행되었습니다.

#### 참고 문헌

- [1] Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI), Progress Report on the R&D Program for the Disposal of HLW in Korea, Korea Atomic Energy Research Institute, August 20, 2002, Daejeon (2002).
- [2] N.A. Chapman and I.G. McKinley, The Geological Disposal of Nuclear Waste, Wiley, Chichester (1987).

- [3] M. García-Gutiérrez, T. Missana, M. Mingarro, J. Samper, Z. Dai and J. Molinero, "Solute transport properties of compacted Ca-bentonite used in FEBEX project," *J. Contam. Hydrol.*, 47, pp. 127-137(2001).
- [4] W. Hauser, H. Geckeis, J.I. Kim and Th. Fierz, "A mobile laser-induced breakdown detection system and its application for the in situ monitoring of colloid migration," *Colloids and Surfaces A*, 203, pp. 37-45(2002).
- [5] R. Pusch, *Stability of Bentonite Gels in Crystalline Rock Physical Aspects*, SKBF/KBS Technical Report 83-04, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co., Stockholm (1983).
- [6] P. Grindrod, M. Peletier and H. Takase, H. "Mechanical interaction between swelling compacted clay and fractured rock, and the leaching of clay colloids," *Eng. Geol.*, 54, pp. 159-165(1999).
- [7] U. Alonso, T. Missana, A. Patelli, V. Rigato and P. Rivas, "Study of the contaminant transport into granite microfractures using nuclear ion beam techniques," *J. Contam. Hydrol.*, 61, pp. 95-105(2003).
- [8] 백민훈, 조원진, "압축된 칼슘벤토나이트 블록의 침식에 대한 실험적 연구," *한국방사성폐기물학회지*, 3, pp. 341-348(2005).
- [9] M.H. Bradbury and B. Baeyens, "Modelling the sorption of Zn and Ni on Ca-montmorillonite," *Geochim. Cosmochim. Acta*, 63, pp. 325-336(1999).
- [10] O. Abollino, M. Aceto, M. Malandrino, C. Sarzanini and E. Mentasti, "Adsorption of heavy metals on Na-montmorillonite. Effect of pH and organic substances," *Water Research*, 37, pp. 1619-1627(2003).
- [11] S. Nagasaki, S. Tanaka and A. Suzuki, "Sorption of neptunium on bentonite and its migration in geosphere," *Colloids and Surfaces A*, 155, pp. 137-143(1999).
- [12] W. Xiangke, D. Wenming, G. Yingchun and T. Zuyi, "Sorption characteristics of radioeuropium on bentonite and kaolinite," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 250, pp. 267-270(2001).
- [13] T. Missana, M. García-Gutiérrez and U. Alonso, "Kinetics and irreversibility of cesium and uranium sorption onto bentonite colloids in a deep granitic environment," *Appl. Clay Sci.*, 26, pp. 137-150(2004).
- [14] W.J. Cho, J.O. Lee and K.S. Chun, "The temperature effects on hydraulic conductivity of compacted bentonite," *Appl. Clay Sci.*, 14, pp. 47-58(1999).
- [15] E. Busenberg and C.V. Clemency, "Determination of the cation exchange capacity of clays and soils using an ammonia electrode," *Clays Clay Miner.*, 21, pp. 213-217(1973).
- [16] C. Degueldre, H.J. Ulrich and H. Silby, H. "Sorption behaviour of  $^{241}\text{Am}(\text{III})$  on montmorillonite, illite and haematite colloid," *Radiochimica Acta*, 65, pp. 173(1994).
- [17] M.H. Baik and P.S. Hahn, "Experimental study on uranium sorption onto silica colloids: Effects of geochemical parameters," *J. of the Korean Nuclear Society*, 33, pp. 261-269(2001).
- [18] J.M.M. Peeters, J.P. Boom, M.H.V. Mulder and H. Strathmann, "Retention measurements of nanofiltration membranes with electrolyte solutions," *J. Membrane Sci.*, 145, pp. 199-209(1998).
- [19] D.B. Burns and A.L. Zydney, "Buffer effects on the zeta potential of ultrafiltration membranes," *J. Membrane Sci.*, 172, pp. 39-48(2000).
- [20] J.M. Zachara and J.P. McKinley, "Influence of hydrolysis of the sorption of metal cations by smectites: Importance of edge coordination reactions," *Aquatic Sci.*, 55, pp. 250-261(1993).



- [21] G.D. Turner, J.M. Zachara, J.P. McKinley and S.C. Smith, "Surface-charge properties and  $\text{UO}_2^{2+}$  adsorption of a subsurface smectite," *Geochim. Cosmochim. Acta*, 60, pp. 3399-3414(1996).
- [22] S.P. Hyun, Y.H. Cho, P.S. Hahn and S.J. Kim, "Sorption mechanism of U(VI) on a reference montmorillonite: Binding to the internal and external surfaces," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 250, pp. 55-62(2001).
- [23] C. Henning, T. Reich, R. Dähn and A.M. Scheidegger, "Structure of uranium sorption complexes at montmorillonite edge sites," *Radiochim. Acta*, 90, pp. 653-657(2002).
- [24] C. J. Chisholm-Brause, J.M. Berg, K.M. Little, R.A. Matzner and D.E. Morris, "Uranyl sorption by smectites: spectroscopic assessment of thermodynamic modeling," *J. Colloid Interface Sci.*, 277, pp. 366-382(2004).
- [25] 백민훈, 조원진, 한필수, "U(VI)의 화강암 수착에 대한 매개변수적 연구," *한국방사성폐기물학회지*, 2, pp. 135-143(2004).