

Migration and Retardation Properties of Uranium through a Rock Fracture in a Reducing Environment

환원환경에서 암반 균열을 통한 우라늄 이동 및 지연 특성

Min-Hoon Baik, Chung-Kyun Park and Won-Jin Cho

Korea Atomic Energy Research Institute, 1045 Daedeok-daero, Yuseong-gu, Daejeon

mhbaik@kaeri.re.kr

백민훈, 박정균, 조원진

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

(Received April 9, 2007 / Approved May 7, 2007)

Abstract

In this study, uranium migration experiments have been performed using a natural groundwater and a granite core with natural fractures in a glove-box constructed to simulate an appropriate subsurface environment. Groundwater flow experiments using the non-sorbing anionic tracer Br^- were carried out to analyze the flow properties of groundwater through the fracture of the granite core. The result of the uranium migration experiment showed a breakthrough curve similar to that of the non-sorbing Br^- . This result may imply that uranium migrates as anionic complexes through the rock fracture since uranium can form carbonate complexes at a given groundwater condition. The distribution coefficient K_d of the uranium between the groundwater and the fracture filling material was obtained as low as 2.7 mL/g from a batch sorption experiment. This result agrees well with the result from the migration experiment, showing a faster elution of the uranium through the rock fracture. In order to analyze retardation properties of the uranium through the rock fracture, the retardation factor R_d (~ 16.2) was obtained by using the K_d obtained from the batch sorption experiment and it was compared with the R_d (~ 14.3) obtained by using the result from the uranium migration experiment. The values obtained from the both experiments were very similar to each other. This reveals that the retardation of the uranium is mainly occurred by the fracture filling material when the uranium migrates through the fracture of a granite core.

Key words : Uranium migration, Glove-box, Rock fracture, Hydraulic properties, Retardation factor, Distribution coefficient

요 약

본 연구에서는 타당한 지하조건을 모사하기 위한 실험장치를 글로버박스(Glove-box) 내에 설치하고 천연지하수 및 자연균열을 가진 화강암 시추코어를 이용하여 핵종이동 실험을 수행하였다. 암반코어의 균열을 통한 지하수 유동을 해석하기 위하여 비수착성 음이온 핵종인 Br로 지하수 유동실험을 수행하였다. 암반 균열을 통한 우라늄 이동 실험결과에서 유출된 우라늄의 파곡선이 비수착성 핵종인 Br와 유사한 거동을 보여주었는데, 이는 주어진 지하수 조건에서 우라늄이 주로 탄산염과 결합된 음이온 복합체로 이동하기 때문인 것으로 추정된다. 아울러 균열 충전광물에 대한 우라늄의 회분식 수착실험을 수행한 결과, 균열충전광물에 대한 우라늄의 분배계수 K_d 는 약 2.7 mL/g로 낮게 나타났다. 이러한 우라늄 수착실험 결과는 빠른 유출을 보인 우라늄 이동실험 결과와 일치한다. 균열암반을 통한 우라늄 이동의 지연 특성을 보다 자세히 분석하기 위하여 회분식 수착실험으로 부터 구한 K_d 값을 이용해 지연인자 R_d 값(~ 16.2)를 구하고 이동실험 결과로 부터 구한 R_d 값(~ 14.3)과 비교한 결과, 서로 매우 유사한 지연인자 값을 가진다는 것을 알 수 있었다. 이는 화강암 코어의 균열을 통한 우라늄의 이동 지연이 주로 균열충전광물에 의해 이루어지고 있음을 의미하는 것이라고 하겠다.

중심단어 : 우라늄 이동, 글로버박스, 암반균열, 수력학적 특성, 지연인자, 분배계수

1. 서론

현재 국내의 고준위 방사성폐기물(High-Level Radioactive Waste, HLW) 처분개념은 지하 500미터 정도의 심지층 결정질 암반에 다중장벽 개념에 기초한 처분시스템을 건설하고 사용후핵연료를 처분하는 것이다[1]. 처분장 주변의 포화된 암반 균열을 통해 침투한 지하수가 폐기물을 용해하여 방사성핵종을 유출시키면 유출된 핵종들은 처분장으로부터 지하수를 따라 암반 균열을 통해 자연 생태환경으로 이동하게 된다. 아울러 처분장의 안전성 평가를 위해서는 이러한 암반 균열을 통한 핵종이동과 관련된 이류(Advection), 분산(dispersion), 수착(sorption), 암반 확산(rock matrix diffusion), 콜로이드 및 복합체 형성 등 다양한 물리화학적 과정들에 대한 이해 및 해석, 그리고 수학적 모델링 등이 필요하다[2].

특히 환경 및 인간에 대한 위해도와 독성이 매우 커서 고준위 방사성폐기물의 관리에서 중요한 관심 대상인 악티늄 핵종들의 경우, 지하수 및 지하매질과 복잡하고 다양한 상호작용을 하기 때문에 처분안전

성 평가에서는 이러한 악티늄 핵종들의 이동과정 및 상호작용들에 대한 지하학적 변수들의 영향을 꼭 고려해야 한다[3]. 그러나 실제 이러한 지하학적 변수들의 영향을 고찰하기 위한 핵종이동 연구는 많은 제약을 가지고 있기 때문에 쉽게 수행되지 못하고 있는 것이 현실이다[4,6].

URL(Underground Research Laboratory) 등의 현장 실험을 이용한 현장 실험의 경우 실제 처분장의 처분환경에서 핵종이동 현상을 이해하는데 또 안전성 평가에서 모델의 적합성을 평가하는데 많은 도움이 되지만, 핵종이동의 중요한 이동과정이나 지하매질과의 상호작용에 대한 정확한 정보를 얻기는 힘들다는 단점과 실제 자연계의 복잡성으로 인해 획득한 자료를 해석하는 것이 어렵다는 단점이 있다.

따라서 본 연구의 목적은 자연균열을 가진 화강암 코어와 천연지하수를 이용하여 타당한 지하조건을 모사하기 위한 실험 장치를 글로버박스(Glove-Box) 안에 설치하고, 자연균열을 통한 우라늄의 이동 특성과 균열충전광물과의 상호작용에 의한 지연특성을 규명하는 것이다.

II. 이동 실험

가. 암석 및 균열충진광물

실험에 사용된 자연균열을 가진 암석코어는 원자력연구원 부지 내 지하처분연구시설(KURT, KAERI Underground Research Tunnel)의 시추공으로부터 얻은 것이다(Fig. 1 참조)[7].

그리고 실험에 실제로 사용된 암석 코어의 사진을 Fig. 2에 나타내었다. XRD(X-Ray Diffraction, Brüker, D8 Advance, Germany)를 이용한 분석결과 암석의 주요 구성광물은 석영, 녹니석, 엘바이트(albite), K-장석(K-feldspar), 흑운모(Biotite), 질석(Vermiculite) 등으로 구성되어 있으며, 균열충진광물은 대부분이 자연 불석(zeolite)의 일종인 로몬타이트(laumontite)인 것으로 확인되었다(Fig. 3 참조).

Table 1에는 암석에 대한 모달(modal) 분석 결과를 나타내었다. 그리고 QAP(Quartz-Albite-

Plagioclase) 분석결과에 의하면 사용된 암석은 화강섬록암(granodioritic gneiss)인 것으로 판단된다. 그 외에도 복운모화강암(two-mica granite) 및 안산암질암맥(andesitic dyke) 등이 관찰되었다[8]. 특히, 본 실험에 사용된 시추 코어의 균열충진광물인 로몬타이트에 대한 SEM(Scanning Electron Microscope,

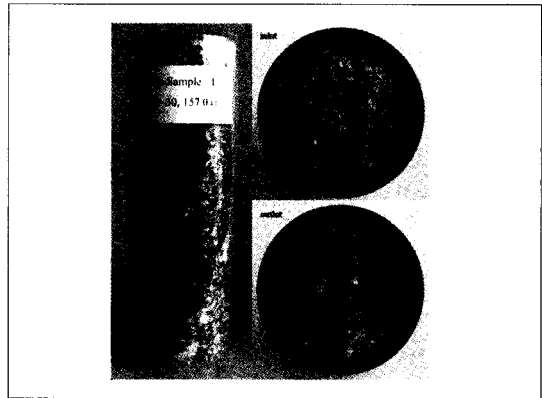


Fig. 2. The rock core with natural fractures used in the uranium migration experiments.

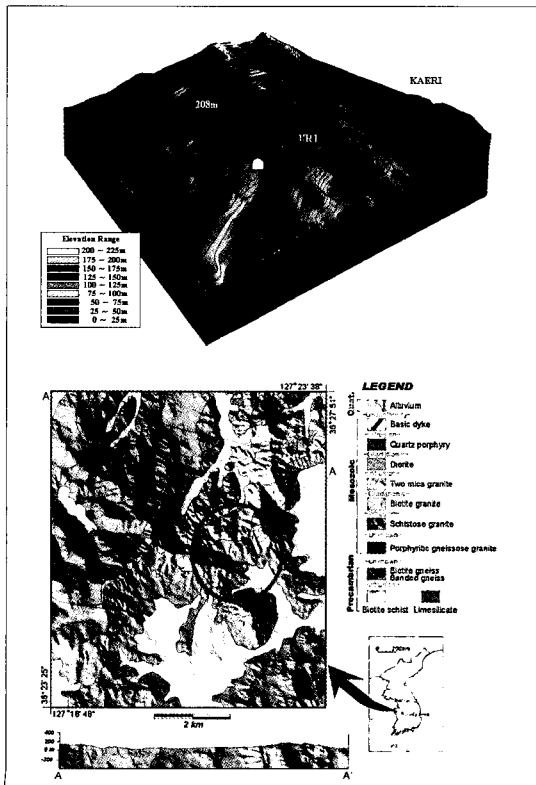


Fig. 1. Geological map for the KAERI study site.

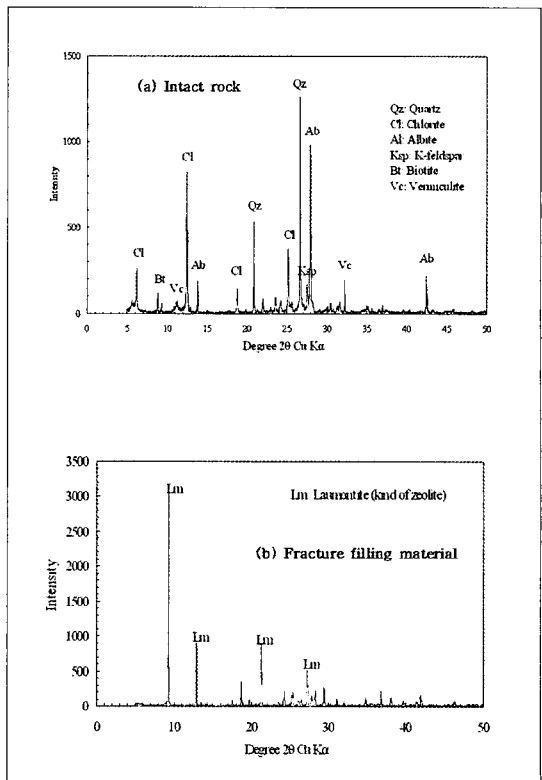


Fig. 3. XRD results of the intact granite and fracture filling material used in the uranium migration experiments.

Table 1. The result of mineralogical modal analysis of the granite

Minerals	Composition (volume %)
Quartz	32.13
Microcline	6.80
Plagioclase	47.07
Biotite	7.20
Muscovite	0.40
Chlorite	6.40
Total	100

Table 2. Major parameters and chemical composition of the groundwater used in the migration experiments.

Temperature (°C)		24.4	
Eh (mV)		-194	
pH		9.92	
Element	Concentration(mg/L)	Element	Concentration(mg/L)
Na	35.7	Cl	4.2
SiO ₂	18.5	NO ₃	0.01
Ca	2.7	SO ₄	2.3
K	0.33	Al	0.0791
Mg	0.05	Mn	0.0008
Li	0.1176	Fe	0.00155
HCO ₃	39.66	Sr	0.059
O ₂	0	Pb	0.00029
F	12.7	UO ₂	0.00038

LEO 1455VP, Germany, 기초과학연구원) 사진을 Fig. 4에 나타내었다.

나. 지하수

사용된 천연지하수는 원자력연구원 부지 내 다중 팩커(multipacker)가 설치된 시추공(YS-01)으로부터 450미터 깊이에서 채취한 지하수를 사용하였다(Fig. 1 참조). 사용된 지하수의 지화학적 조건들은 pH = 9.9, Eh = -195 mV, = 10^{-5.61} atm, alkalinity = 7.5 × 10⁴ M 등으로 NaHCO₃ 형 지하수인 것으로 측정되었다(Table 2 참조).

다. 추적자

화강암 시추코어의 균열을 통한 용액의 수력학적 흐름 특성을 해석하기 위해 비수착성 음이온 핵종인 Br⁻(0.01M NaBr, Aldrich)를 사용하였고, 실험 후 유출된 용액에 포함된 Br⁻의 농도는 IC(Ion

Chromatography, Waters)를 이용하여 측정하였다.

본 실험에 사용된 악티늄 핵종은 우라늄(UO₂(NO₃)₂ · 6H₂O, Sigma)을 사용하였고, 우라늄의 농도는 ICP-MS(Inductively-Coupled Plasma-Mass Spectrometer, X-series, VG Elemental Ltd., 기초과학연구원)를 이용하여 측정하였다. 사용된 우라늄의 농도는 우라늄의 용해도를 고려하여 산용액(10⁻³ M HClO₄)에 용해된 약 10⁻³ M의 UO₂(NO₃)₂ · 6H₂O를 지하수 용액으로 희석하여 약 2 × 10⁻⁶ M(476 ppb)을 만들어 사용하였다.

우라늄을 포함하는 악티나이드 계열의 핵종들은 지화학적 변수들에 매우 민감하게 변화한다. 그 동안 국내 화강암을 대상으로 우라늄 수축현상에 대한 지화학적 변수들의 영향을 고찰하는 연구들이 수행된 바가 있으며[9,10], 결론적으로 화강암에 대한 우라늄의 수축에 있어 중요한 지화학적 변수들은 pH, Eh, carbonate 및 유기물 등이라고 할 수 있다[11]. 그러나 이들 변수들의 영향을 모두 고려하기는 쉽지 않으며, 더구나 변수들 간에 서로 상관관계를 가지므로 현장 시료들을 사용한 실험에서는 그 영향을 규명하기가 쉽지 않다.

비록 실험에 의해 확인되지는 않았지만 지화학코드 등을 이용한 계산결과에 의하면, 현재 실험에 사용한 지하수의 지화학적 조건에서 우라늄의 주요 화학종은 UO₂(OH)₃⁻ 와 UO₂(CO₃)₃⁴⁻ 등 주로 음이온 복합체로 존재할 것으로 예상된다[12,13].

라. 실험 시스템

Fig. 5에 균열암반 이동 실험 장치를 도시하여 나



Fig. 4. A SEM photograph of the fracture filling material.

타내었다. 화강암 코어를 지지하여 화강암 코어의 균열이 아닌 코어 둘레를 따라 용액이 흐르는 것을 방지하고, 지하수 흐름에 의한 균열의 벌어짐을 방지하기 위해 사용된 가압 기체로는 고순도(99.999%) 질소가 사용되었고 약 3.0 MPa 정도의 압력으로 가압하였다.

추적자의 주입은 계단펄스(step-pluse) 형태로 SS(stainless steel)관을 이용하여 HPLC(High Pressure Liquid Chromatography, Younglin 930M) 펌프를 이용하여 주입하였고 용액의 흐름이 정상상태에 도달하면 일정 기간 동안 주입한 후 다시 용액을 흘리는 방식을 도입하였다. 유출되어 나온 용액은 분류수집기(Fraction collector, ISCO Foxy Jr.)를 이용하여 바이얼(vial) 당 80 방울(약 4.0 mL)의 용액을 수집하였다. 수집된 용액들은 농도 분석을 위해 4°C 냉장고에 보관하였다.

암반균열을 통한 우라늄 실험은 환원조건 유지를 위하여 글로버박스 안에서 실시되었다(Fig. 6 참조). 산소를 포집하기 위한 포집제로는 CuO가 사용되었고(Ridox Oxygen Scavenger, Fisher Scientific), 산소 농도는 Oxygen analyzer(DF-150, Delta-F)를 이용하여 측정하였다. 글로버박스내의 산소 농도는 약 10 ppm 수준을 유지하도록 하였다. 그리고 CO₂의 농도는 N₂를 purging하는 것으로도 충분히 낮은 농도(< 0.1 ppm)를 유지할 수 있었으므로 실제로 따로 포집장치를 설치하지는 않았다.

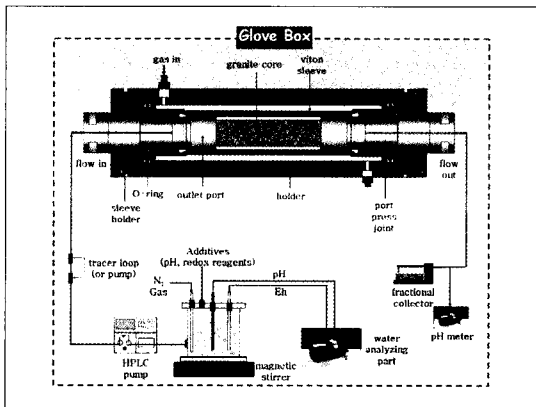


Fig. 5. The experimental system used in the uranium migration experiments through a rock fracture in a reducing environment.

III. 실험결과 및 논의

가. 균열의 수력학적 특성

화강암 시추코어의 균열을 통한 용액의 수력학적 흐름 특성은 균열 폭을 계산하거나 흐름 특성을 해석하기 위해 꼭 필요하다. 본 연구에서는 암반코어의 균열을 통한 지하수 유동을 해석하기 위하여 비수착성 음이온 핵종인 Br(0.01M NaBr)로 지하수 유동 실험을 수행하였고, 그 결과로 얻어진 유출곡선을 Fig. 7에 나타내었다.

비수착성 음이온 핵종인 Br의 유출곡선은 주입한 추적자의 부피(1.0 mL)가 적어서 유출 곡선의 농도가 낮게 나타나고 peak의 폭이 좁게 나타나고 있지

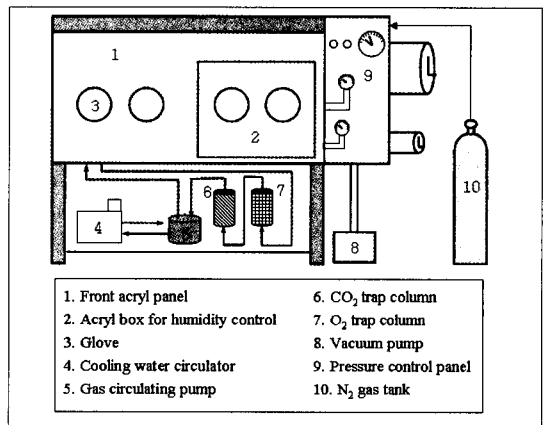


Fig. 6. The glove-box system used for the uranium migration experiments in a reducing environment.

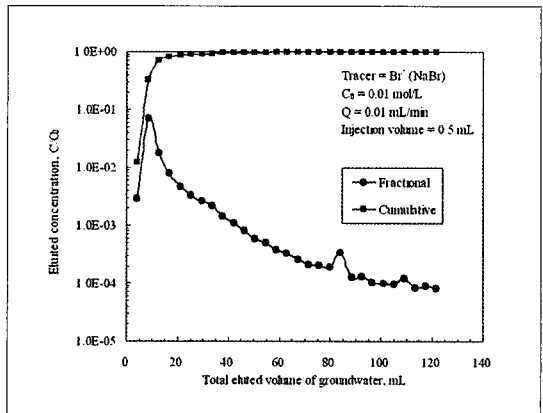


Fig. 7. The breakthrough curve of the non-sorbing tracer Br eluted through a rock fracture

만, 전형적인 음이온의 이동 특성을 보여주고 있다. 추적자의 회수율을 알 수 있는 cumulative 유출 곡선도 1.0에 근접하고 있어서 약 40mL의 지하수가 유출된 이후(즉, 67 시간 이후)에는 거의 모든 Br이 회수되었음을 알 수 있다.

시간에 의존하는 비수착성 핵종의 파과곡선의 0th, 1st, 2nd 모멘텀(momentum)을 이용하여 균열의 수력학적 특성에 대한 여러 변수들이 결정된다[14]. 0th 모멘텀에 대한 1st 모멘텀의 비로 지체시간(residence time) t_0 이 결정된다.

$$t_0 = \frac{\sum t_i \cdot C_i}{\sum C_i} \quad \dots\dots\dots (1)$$

지체시간 t_0 를 코어의 길이 L로 나누어서 균열에서의 공극수(pore water) 유속 V_0 를 구할 수 있다.

$$V_0 = \frac{L}{t_0} \quad \dots\dots\dots (2)$$

그리고 횡방향 분산계수(longitudinal dispersion coefficient) σ_x^2 를 이용하여 분산계수 D와 분산길이(dispersion length) α 는 다음의 식에 의해 구해진다.

$$D = \frac{\sigma_x^2}{2 \cdot t_0} \quad \dots\dots\dots (3)$$

$$\alpha = \frac{D}{V_0} \quad \dots\dots\dots (4)$$

또한 수력학적 주요 변수인 Peclet수 Pe 는 다음의 정의에 의해 구해진다.

$$Pe = \frac{v_0 \cdot L}{D} \quad \dots\dots\dots (5)$$

마지막으로 암반 균열에 대한 공극부피(pore volume) V_p 는 모멘텀을 이용하여 다음과 같이 구할 수도 있다.

$$V_p = \frac{\sum V_i \cdot C_i}{\sum C_i} \quad \dots\dots\dots (6)$$

그리고 이러한 공극부피를 이용하여 균열폭(aperture width) δ 을 다음의 관계식으로부터 구할 수 있다.

$$W \cdot L \cdot \delta = V_p \quad \dots\dots\dots (7)$$

여기서 W는 균열의 너비(width)를 나타낸다. 이렇게 Br의 파과곡선으로부터 구한 수력학적 변수 값들을 Table 3에 정리하여 나타내었다.

나. 우라늄 이동 특성

균열암반코어를 이용한 환원환경에서 암반균열을 통한 우라늄 이동 실험 결과를 Fig. 8에 나타내었다. 유출곡선의 피크를 Br와 상호 비교해보면, 우라늄의 이동속도는 비수착성 핵종인 Br와 유사하게 나타나고 있음을 알 수 있다. 이는 앞에서 간략하게 언급했었지만 주어진 지하수 조건에서 우라늄이 주로 비수착성인 음이온을 띠는 탄산염 복합체 또는 가수화물 복합체로 이동하기 때문인 것으로 추정된다 [12,13,15]. 비록 실험에 의해 확인된 것은 아니지만 우라늄의 이동 실험 결과로부터 +6가로 주입된 우라늄이 지하수 환원 조건에서 +4가로 환원되지 않고 여전히 +6가로 균열을 통해 이동하는 것으로 추측된다.

일반적으로 환원조건 하에서 우라늄은 수착성이 매우 큰 +4가의 이온 형태로 존재할 것으로 예상하지만,

Table 3. The calculated or measured hydraulic properties of the rock fracture used in the migration experiment

Variables	Definition	Units	Values
Q	Flow rate	mL/min	0.01
C	Concentration of tracer	M (mol/L)	0.01
V_i	Volume of tracer injected	mL	0.5
P_c	Confining pressure	MPa	3
L	Length of the core	m	0.1789
t_0	Residence time	h	24.022
W	Width of the fracture	m	0.0474
V_0	Average velocity	m/s	2.0685×10^{-6}
D	Dispersion coefficient	m ² /s	4.7506×10^{-7}
α	Dispersion length	m	0.2297
Pe	Peclet number	-	1.306
V_p	Pore volume	mL	14.413
δ	Aperture width	m	0.0017

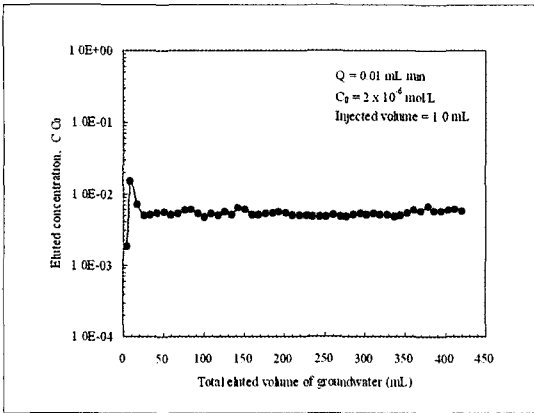


Fig. 8. The breakthrough curve of the uranium eluted through a rock fracture

우리가 사용한 지하수의 Eh 조건(-190 mV 정도) 하에서 초기에 주입한 +6가의 우라늄은 칼럼에서의 이동 시간 중에 +4로 환원되지 않을 뿐만 아니라 pH 10 정도의 강알칼리 조건 하에서는 +4가로 환원되기는 더욱 어렵고, 현재의 분석기술로는 이와 같은 지화학조건 및 낮은 우라늄 농도에서 우라늄의 화학종을 실험적으로 확인하는 것도 거의 불가능한 것이 사실이다.

아울러 우라늄의 유출곡선을 보면 Br와는 달리 일정한 농도의 긴 꼬리를 가지는 것을 알 수 있다. 비록 측정 농도가 5×10^{-9} M(약 2 ppb) 정도로 ICP-MS로 확인하기에 충분한 농도는 아니지만 확실히 지하수에 존재하는 우라늄 농도(0.38 ppb)보다는 높게 나타나고 있다. 또한 ICP-MS(Royal Holloway Univ. of London)를 이용한 광물 중의 우라늄 농도를 분석한 결과(Table 4 참조), 암석에는 약 4.3 ppm, 균열충전 광물에는 4.6 ppm이 함유되어 있는 것으로 나타났다. 따라서 우라늄 유출곡선의 긴 꼬리는 균열을 통한 우라늄 이동특성과는 상관없이 유동하는 지하수와 접촉한 균열충전광물 중의 우라늄이 소량씩 용해되어 유출되어 나온 것일 가능성이 매우 높다. 그러나 보다 정확하게 원인에 확인하기 위해서는 지하수와 균열충전광물과의 지화학반응 특성 등에 대한 연구가 필요하다.

다. 우라늄 지연 특성

균열암반을 통한 우라늄 지연 특성을 위한 회분식

수착 실험을 수행하였다. 회분식 수착실험에 사용된 고체 시료는 균열충전물질을 채취하여 사용하였다. 그리고 사용된 우라늄 용액은 이동 실험에 사용된 용액과 동일한 용액을 사용하였다.

균열충전광물에 대한 우라늄의 수착분배계수 (mL/g)는 다음과 같이 정의된다[15].

$$K_d = \frac{S}{C} \cdot \frac{V}{M} = \frac{C_0 - C}{C} \cdot \frac{V}{M} \dots\dots\dots (8)$$

C = 용액에서의 우라늄의 농도(mol/L),

S = 수착된 우라늄의 농도 (mol/L)

C₀ = 우라늄의 초기농도 (2×10^{-6} mol/L)

M = 사용된 고체의 양(0.5 g)

V = 사용된 용액의 부피(10 mL)

균열충전광물에 대한 우라늄의 회분식 수착 실험 결과, 균열충전광물에 대한 우라늄의 분배계수 K_d 는 약 2.7 mL/g로 낮게 나타나서 우라늄의 빠른 유출 특성을 보인 이동 실험 결과와 유사하였다. 즉, 우라늄이 균열을 통해 이동할 때 균열충전광물에 거의 수착되지 않고 이동하는 것으로 생각된다. 앞서서도 논의했지만 이는 용액에 존재하는 우라늄의 대부분 음이

Table 4. Major nuclides and their concentrations contained in the intact rock and fracture filling materials analyzed by ICP-MS

Major nuclides	Intact rock (ppm)	Fracture filling material(ppm)
Ba	696	54
Co	7	1
Cu	12	5
Ni	5	3
Sr	479	368
Zn	332	30
Pb	17	6
U	4.3	4.59
Th	22.24	1.68
Rb	193	28
Cs	5.16	21.48
Ce	173.1	14.6
Nd	82.5	6.7
Sm	12.99	1.82
Eu	1.75	0.41

온으로 존재하기 때문일 것으로 추정된다.

균열압반을 통한 우라늄 이동의 지연특성을 보다 자세히 분석하기 위하여 회분식 수착실험에 의해 구한 K_d 값을 이용하여 지연인자(retardation factor) R_d 값을 구하여 이동 실험의 유출 결과를 이용하여 구한 R_d 값과 비교하였다. 일반적으로 균열매질을 통한 용질 이동의 경우 지연인자 R_d 는 다음과 같이 정해진다[16].

$$R_d = \frac{V_w}{V_r} = 1 + \frac{2}{\delta} K_a \quad \dots\dots\dots (9)$$

V_w = 균열을 통한 지하수의 평균이동속도(m/s)
 V_r = 균열을 통한 용질(우라늄)의 평균이동속도(m/s)
 K_a = 암반 균열에 대한 우라늄의 수착분배계수(m)

균열면에 대한 수착분배계수 K_a (m)는 다음과 같이 정의된다.

$$K_a = \frac{S_a}{C} \quad \dots\dots\dots (10)$$

여기서, S_a (mol/m²)는 균열의 단위 표면적당 수착된 우라늄의 양으로 정의된다.

분쇄된 균열충전광물을 이용한 회분식 수착실험의 결과를 이동실험에서 구한 수착계수와 직접 비교하는 것은 불가능하다. 실제로 균열은 결정성의 물질로 채워져 있고, 결정성 물질들과 벽면과의 공극에 의해 지하수가 유동할 것이다. 하지만 분쇄된 충전물질로 실험을 수행한 회분식 수착실험과 비교하기 위하여 균열이 공극률을 가지는 입자성의 다공성 충전매질로 충전되어 있다는 가정 하에 다음과 같이 균열에 대한 지연인자를 정의하여 사용하였다[16].

$$R_d = \frac{V_w}{V_r} = 1 + \frac{(1-\theta)}{\theta} \rho_b K_d \quad \dots\dots (11)$$

θ = 균열충전광물의 공극률(porosity),
 ρ_b = 균열충전광물의 겉보기밀도(bulk density)(g/mL).

Br⁻ 및 우라늄 이동 실험 결과로부터 얻어진 유

출곡선의 모멘텀 계산결과로부터 지하수 및 우라늄의 균열을 통한 평균이동속도를 다음과 같이 구하였다.

$$V_w = 2.07 \times 10^{-6} \text{ m/s}, V_r = 1.45 \times 10^{-7} \text{ m/s} \quad \dots\dots (13)$$

따라서 식(11)에 나타난 지연인자의 정의에 따라 다음과 같이 지연인자를 구하였다.

$$R_d = \frac{V_w}{V_r} = \frac{2.07 \times 10^{-6}}{1.45 \times 10^{-7}} = 14.3 \quad \dots\dots (14)$$

수착 실험 결과로부터 구한 수착분배계수 K_d 값을 이용하여 식(11)을 이용하여 지연인자 R_d 값을 다음과 같이 구하였다.

$$R_d = 1 + \frac{(1-\theta)}{\theta} \rho_b K_d \quad \dots\dots\dots (15)$$

$$= 1 + \frac{(1-0.3)}{0.3} (1.8)(2.7) = 16.2$$

여기서, 분쇄된 균열충전광물을 이용한 회분식 수착실험의 결과를 일반적인 지하매질의 경우에 공극률 θ 는 약 0.1 ~ 0.4 정도의 범위를 가지고, 겉보기밀도 ρ_b 는 1.6 ~ 2.1 g/mL 정도의 값을 가지는 것으로 알려져 있다[16]. 따라서 본 연구에서는 균열이 다공성 균열충전매질로 충전되었을 경우의 공극률 θ 는 0.3, 부피밀도 ρ_b 는 1.8 g/mL 로 가정된 값을 사용하였다.

따라서 회분식 수착 실험에 의해 구한 K_d 값 (2.7 mL/g)을 이용하여 구한 지연인자 R_d 값 (~16.2)과 이동 실험의 유출곡선을 이용하여 구한 R_d 값(~14.3)과 비교한 결과, 매우 유사한 지연인자 값을 얻을 수 있었다. 이는 화강암 코어의 균열을 통한 우라늄의 이동 지연이 주로 균열충전광물에 의해 이루어지고 있음을 의미하는 것이라고 하겠다.

IV. 결론

환경환경에서 균열압반을 통한 우라늄의 이동현

상에 대한 연구 수행을 위해 글로버박스에 실험 장치를 설치하고 지하수 유동 실험 및 우라늄 이동 실험을 수행하였다. 압반 균열을 통한 우라늄 이동 실험 결과에서 유출된 우라늄의 파과곡선이 비수착성 핵종인 Br와 유사한 거동을 보여주었는데, 이는 주어진 지하수 조건에서 우라늄이 주로 탄산염과 결합된 음이온 복합체로 이동하기 때문인 것으로 추정된다. 균열암반을 통한 우라늄 이동의 지연 특성을 분석하기 위하여 이동실험 결과를 회분식 수차실험 결과와 비교하였고, 서로 매우 유사한 지연인자 값을 가진다는 것을 알 수 있었다. 이는 화강암 코어의 균열을 통한 우라늄 이동의 지연이 주로 균열충전광물에 의해 이루어지고 있음을 의미하는 것이라고 하겠다.

사 사

본 연구는 과학기술부의 원자력 중장기 연구개발 사업의 일환으로 수행하였습니다. 아울러 본 연구에 사용된 화강암 코어 및 실험장치의 구성에 도움을 준 이우시스템의 한우종 씨에게 감사드립니다.

참고문헌

- [1] 최희주, 최종원, 한필수, 이종열, 김경수, 김성기, 조동건, 이양, 고준위폐기물 한국형처분시스템 개념설계 요건, 한국원자력연구소 기술보고서, KAERI/TR-3003/2005(2004).
- [2] I. Neretnieks, T. Eriksen and P. Tähtinen, "Tracer movement in a single fissure in granitic rock: Some experimental results and their interpretation," *Water Resour. Res.*, 18, pp. 849-858(1982).
- [3] J.I. Kim, Significance of actinide chemistry for the long-term safety of waste disposal, *Nuclear Engineering and Technology*, 38(6), pp. 459-482(2006).
- [4] B. Frieg, W.R. Alexander, H. Dollinger, C. Bühler, P. Haag, A. Möri and K. Ota, In situ resin impregnation for investigating radionuclide retardation in fractured repository host rocks, *J. Contam. Hydrol.*, 35, pp. 115-130(1998).
- [5] B. Kienzler, P. Vejmelka, J. Römer, Th. Fanghänel, M. Jansson, T.E. Eriksen and P. Wikberg, "Swedish-German actinide migration experiment at Aspö hard rock laboratory," *J. Contam. Hydrol.*, 61, pp. 219-233(2003).
- [6] P. Andersson, J. Byegård, E.-L. Tullborg, Th. Doe, J. Hermanson and A. Winberg, In situ tracer tests to determine retention properties of a block scale fracture network in granitic rock at the Aspö Hard Rock Laboratory, Sweden, *J. Contam. Hydrol.*, 70, pp. 271-297(2004).
- [7] 조원진, 박정화, 권상기, 소규모 지하처분연구시설 부지조사 및 평가, 한국원자력연구소 기술보고서, KAERI/TR-2751/2004(2004).
- [8] 김건영, 고용권, 배대석, 김천수, "방사성폐기물 처분연구를 위한 유성지역 화강암내 심부 시추공 단열충전광물의 광물학적 특성", *한국광물학회지*, 7(1), pp. 99-114(2004).
- [9] M.H. Baik and P.S. Hahn, "Surface and bulk sorption experiments of U(VI) onto granite rock," *J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 256, pp. 11-18(2003).
- [10] M.H. Baik, S.P. Hyun, W.J. Cho and P.S. Hahn, Contribution of minerals to the sorption of U(VI) on granite, *Radiochim. Acta* 92, 663-669(2004).
- [11] R.T. Pabalan, D.R. Turner, F.P. Bertetti and J.D. Prikryl, "Uranium(VI) sorption onto selected mineral surfaces: Key geochemical parameters," in: *Adsorption of Metals by Geomedia*, E.A. Jenne, ed., Academic Press, San Diego(1998).
- [12] D.K. Keum, M.H. Baik and P.S. Hahn, "Speciation and solubility of major actinides under the deep groundwater conditions of Korea," *J. of the Korean Nuclear Society*, 34, pp. 517-531(2002).

- [13]R. Guillaument, Th. Fanghänel, J. Fuger, I. Grenthe, V. Neck, D.A. Palmer and M.H. Rand (OECD-NEA TDB), Update on the Chemical Thermodynamics of Uranium, Neptunium, Plutonium, Americium and Technetium, F.J. Mompean, M. Illemassene, C. Domenech-Orti and K. Ben Said, eds., Elsevier, Amsterdam (2003).
- [14]C.A.J. Appelo and D. Postma, Geochemistry, groundwater and pollution, pp. 327, A.A. Balekema, Rotterdam(1994).
- [15]백민훈, 조원진, 한필수, "U(VI)의 화강암 수탁에 대한 매개변수적 연구," 방사성폐기물학회지, 2(2), pp. 135-143 =(2004).
- [16]R.A. Freeze and J.A. Cherry, Groundwater, Prentice-Hall, Inc., Englewood Cliffs(1979).