

지질매체내에서의 ^{241}Am , ^{152}Eu , ^{160}Tb , ^{60}Co 의 흡착특성비교: 지표지질내에서의 Am의 거동특성을 위한 최적 유사체로서의 Eu

이승구* · 이길용 · 조수영 · 윤윤열 · 김용제

한국지질자원연구원 지하수지열연구부

Sorption Behavior of ^{241}Am , ^{152}Eu , ^{160}Tb and ^{60}Co in the Geological Materials: Eu as an Optimum Analogue for Fate and Transport of Am Behavior in Subsurface Environment

Seung-Gu Lee*, Kil Yong Lee, Yoon Yeol Yoon, Soo Young Cho and Yongje Kim

Groundwater and Geothermal Resources Division, Korea Institute of Geoscience and Mineral Resources, Daejeon 305-350, Korea

Rare earth elements(REEs) have been used as an useful tool in understanding the various geological processes such as evolution and differentiation in the crust. The REEs also have been used as an analog of actinides for radioactive wastes at the water-rock interactions. Using physicochemical properties of the REEs and actinides, we have shown that Eu is an optimum analogue for understanding the behavior of Am in subsurface environments. Factors affecting sorption behavior of radioactive nuclides in groundwater were investigated by batch experiments. Four nuclides such as ^{241}Am , ^{152}Eu , ^{160}Tb , and ^{60}Co were selected to test our hypothesis, and ^{160}Tb and ^{60}Co were specifically used to compare to the sorption behavior between ^{241}Am - ^{152}Eu and other radioactive nuclides. Four different rock samples and one groundwater were used in the batch experiments where solution pH for all experiments was fixed at 5.5. Our results demonstrate that ^{241}Am , ^{152}Eu , and ^{160}Tb show similar sorption behavior whereas ^{60}Co is different in sorption behavior at the mineral-water interface, suggesting that the sorption behavior of ^{60}Co is affected by different rock types. Our results also show that 1) Eu in REEs is optimum analogue of fate and transport of Am in subsurface environments, and 2) mineral compositions such as SiO_2 , TiO_2 , P_2O_5 and distribution of REEs such as Eu anomaly play key roles in affecting sorption behavior of radioactive nuclides even though physicochemical properties of geological materials such as specific surface area and cation exchange capacity can not be ruled out.

Key words : Rare earth elements, Am, Eu, Analogue, Batch experiment, Sorption behavior

희토류원소는 지각의 진화, 분화작용 등을 포함한 여러 가지 지질학적 역사를 이해하는 매우 유용한 도구로서 활용되어 왔다. 뿐만 아니라, 이 희토류원소는 방사성폐기물의 처분과 관련된 물-암석반응연구에 있어서 액티나이드 원소의 유사체로서 사용되어져 왔다. 본 논문에서는 희토류원소인 Eu와 액티나이드 원소인 Am의 유사한 물리적/화학적 특성을 토대로 지질매체의 종류에 관계없이 희토류원소와 액티나이드 원소의 거동이 매우 유사하다는 가설을 설정하고, 이를 검증하기 위한 회분식(batch experiment) 실험을 수행하였다. 회분식 실험에는 4종류의 암석(화강암, 화강암질 편마암, 앰피블라이트, 응회암)을 지질매체로 선택하였고, 고준위 방사성 핵종으로는 액티나이드계열인 ^{241}Am , 희토류원소 계열인 ^{152}Eu , ^{160}Tb 을 선택하였고, 중저준위 핵종으로는 ^{60}Co 를 사용하였다. 특히 ^{160}Tb 와 ^{60}Co 는 ^{241}Am - ^{152}Eu 의 흡착능과 다른 방사성핵종의 흡착능을 비교하는데 사용되었다. 핵종과 혼합한 흡착실험용 용액의 pH는 5.5전후로 조절하였다. 실험결과, ^{241}Am , ^{152}Eu , ^{160}Tb 의 흡착 특성은 암상의 변화에 관계없이 매우 유사하게 나타났지만, ^{60}Co 는 다르게 나타났다. 이는 ^{60}Co 의 흡착특성은 암상의 종류에 따라 큰 차이가 있음을 시사해주는 것이다. 이와 같은 실험결과를 1) 희토류원소 중 Eu이 지표지질하에서의 Am의 거동을 추적하고 예측하기위한 최적유사체이고, 2) 비

*Corresponding author: sgl@kigam.re.kr

록 암석가루의 비표면적 혹은 양이온교환능과 같은 물리적/화학적 특성에 의한 영향을 배제할 수는 없지만, SiO_2 , TiO_2 , P_2O_5 같은 화학조성 및 Eu의 이상과 같은 희토류원소의 분포도의 차이가 지표지질하에서의 방사성 핵종의 흡착거동에 중요한 역할을 하고 있음을 지시해주는 것이다.

주요어 : 희토류원소, Am, Eu, 유사체, 회분식 실험, 흡착특성

1. 서 언

결정질 암반내에서 지하수는 단열면을 따라 이동하게 되며, 이와 더불어 지하수내에 핵종이 용존성분으로 들어있을 경우, 이 핵종은 지하수와 함께 이동하면서 대수층내에서 암석 혹은 광물등과 다양한 반응을 일으킬 것이다. 이중 흡착은 지하수내 방사성핵종의 이동을 저지하는 가장 중요한 인자중의 하나가 된다. 그리고 방사성핵종의 흡착특성은 지하수의 물리적/화학적 특성, 대수층 구성암석의 물리적/화학적/광물학적/암석학적 특성 등의 다양한 조건에 의해 영향을 받는다(Neretnieks *et al.*, 1982; Hilton *et al.*, 1997; Lee *et al.*, 2001 Metz *et al.*, 2003; Lippold *et al.*, 2005). 이로 인해, 핵발전소로부터 유래되는 방사성폐기물의 지층처분 혹은 핵실험과 관련되어 발생할 수 있는 대수층 구성암석과 지하수내 핵종의 거동에 대한 지구화학적 이해는 국가적인 혹은 국제적인 관심사의 하나이다(Emrn, 1993; Wood *et al.*, 1997; Kashparov *et al.*, 2000; Papelis, 2001; Runde *et al.*, 2002; Turin *et al.*, 2002; Baik *et al.*, 2004). 이와 관련하여, 액티나이드 계열 원소가 지표지질환경하에서 어느 정도의 양이 어느 정도의 거리만큼 이동하는 지에 대한 수많은 연구결과가 보고된 바 있다(Krauskopf, 1986a, 1986b; Buddemeier *et al.*, 1991; Guitierrez *et al.*, 1991; Petit, 1991; Berry and Bond, 1992; Heath *et al.*, 1992; Meece and Benninger, 1993; Curti, 1999; Baik *et al.*, 2004). 이는 다양한 지질환경에서의 물-암석반응에 의한 여러 방사성 핵종의 거동에 대한 이해는 방사성 폐기물 처분지의 선택뿐만 아니라, 처분 후에 발생할 수 있는 여러 지질학적 사건에 의해 방사성 물질이 대수층내에 누출되어 지하수내에 함유되었을 경우의 지질매체와 지하수내 핵종과의 반응관계를 예측할 수 있는 근거가 되기 때문이다. 그러나 트랜스 액티나이드(Np, Pu, Am 등과 같은 원자번호 92번 이상의 액티나이드 계열 원소들)는 우리나라를 제외하고는 자연계내에 실제로 거의 존재하지 않기 때문에, 자연계 저장환경에서의 이들의 거동을 예측한다는 것은 거의 불가능하다. 따라서, 트랜스 액티나이드

의 자연계에서의 거동 예측은 실험실에서 이들의 특성을 관측함으로써 추정하고 있다(McCarthy *et al.*, 1998).

희토류원소는 일반적으로 동질적이며 예측 가능한 특성을 갖고 있기 때문에, 암석, 토양, 해수, 지하수 등의 생성, 분화, 진화과정을 밝혀내는데 매우 유용한 도구로 사용되어 왔다(Henderson, 1984; Lipin and McKay, 1989; Bau, 1996; Johannesson *et al.*, 1995a, 1996; Irber, 1999). 특히 항상 3가로 존재하는 다른 희토류원소에 비해 Ce과 Eu은 3가와 4가 혹은 2가와 3가로 각각 존재할 수 있기 때문에, 지구시스템에서의 화학적 변화를 밝히는 데 있어서 아주 유용한 도구로 사용되어 왔다. 일반적으로 암석내 Eu의 이상(정 혹은 부의 이상)은 대개가 장석의 정출작용과 밀접한 관련을 갖는 것으로 알려져 있지만, 대수층에서의 지구화학적 변화에 따라라도 Eu의 이상이 생성되어 질 수가 있다(Lee *et al.*, 2003, 2004). 뿐만 아니라, 유체와의 반응 및 산화/환원조건의 변화에 의해 Eu의 이동이 이루어 질 수 있음이 밝혀졌다(Sverjensky, 1984; Irber, 1999).

이외에 자연수내 희토류원소에 관한 연구결과에 의하면, 희토류원소가 3가의 액티나이드의 거동에 관한 유사체라는 사실이 밝혀졌다(Krauskopf, 1986a; Johannesson *et al.*, 1995b; Menard *et al.*, 1998). 특히, 지난 20여년간 방사성 핵종의 지질매체내 특성을 밝혀내기 위한 연구에 있어서, 방사성 핵종을 직접적으로 사용할 수 없기 때문에 유사한 특성을 갖는 원소들을 이용한 연구가 선진국에서는 활발하게 이루어져 왔으며, 대부분의 경우 핵종의 흡착실험에 있어서 벤토나이트 혹은 점토광물을 사용하고 있다(Pacheco *et al.*, 1995; Angove *et al.*, 1998; Schlegel *et al.*, 1999; Takahashi *et al.*, 1998a, 1998b; Samadfam *et al.*, 2000; Sakuragi *et al.*, 2002; Bauer *et al.*, 2005). Takahashi *et al.*(1998)은 휴믹산(humic acid)의 존재하에서 카오리나이트와 몬모릴로나이트에 대한 Eu과 Am의 흡착능을 보고하였다. 그리고 최근에 Lee *et al.*(2003, 2004)은 균열면에서의 Eu의 분포도 변화를 지하수의 지구화학적 조건변화와 관련지어 보고하였고,

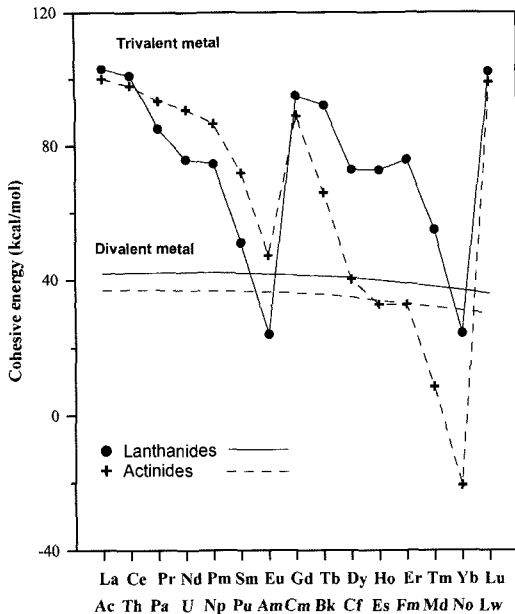


Fig. 1. Cohesive energy for the REEs (full curves) and actinides (dashed curves). The smooth curves denote the cohesive energy where these elements remain divalent in their metallic modification, and the jagged curves the cohesive energy of their trivalent metallic state (after Johansson and Rosengren, 1975).

아울러 희토류원소 중 하나인 Eu이 액티나이드 원소의 하나인 Am의 유사체로서 유용하다고 제시하였다. 또한 Fig. 1과 같이 Johansson and Rosengren (1975)가 제시한 두 원소군의 cohesive energy 비교도면을 토대로, Eu과 Am의 지질매체에 대한 흡착능의 초기연구결과를 보고한 바 있다(Lee *et al.*, 2006). 이는 Eu이 Am의 유사체로서 지질매체내 거동을 이해하는 데 유용함을 보여주는 결과라 할 수 있다.

방사성폐기물 처분지내 지질매체의 암석학적/광물학적 특성은 방사성 핵종의 흡착지연 특성을 좌우하는 중요한 요인이다(Krauskopf, 1986a). 즉 암석, 광물상의 변화는 특정핵종에 대한 친화력에 영향을 미치기 때문에, 이에 대한 평가는 자연방벽의 지연효과를 평가하기 위해서 필수적이다. 점토광물은 인공방벽의 중요한 재료일 뿐만 아니라 자연방벽 내에도 항상 존재하기 때문에 각종 핵종과 점토광물과의 흡탈착 실험 결과는 이미 방대한 연구결과가 보고되었음을 이미 앞의 절에서 언급하였다. 그러나, 실제로 자연수내에 핵종이 용해되어 대수층을 따라 이동할 경우에는 점토광물이 거의 없는 단열면을 따라 지하수가 유동되는 가능성도 배제할 수가 없다. 이 경우, 방사성 핵종의 거동은 점

토광물 이외의 지질특성의 영향을 받을 것임에도 불구하고, 암상 및 암석지구화학적 특성의 변화에 따른 핵종흡착특성연구는 거의 없다. 최근에 Lee *et al.* (2006)은 변성암류와 응회암에서의 Am과 Eu의 흡착특성의 유사함을 보고하였으며, 특히 염기성 편마암에서의 강한 흡착특성은 TiO_2 혹은 P_2O_5 와 같은 화학조성과 관련이 있을 것이라고 추정하였다. Lee *et al.* (2006)의 연구결과는 대수층에서의 핵종의 흡착에 지구화학적 요소가 중요한 인자가 될 수 있음을 시사해 주는 것이다.

현재 본 연구팀은 고준위 핵종인 액티나이드와 희토류원소의 흡착특성이 지질매체의 암석학적, 암석지구화학적, 지하수지구화학적인 모든 조건의 변화에 관계없이 항상 동일할 것이라는 가정을 설정하고 이를 검증하기 위한 회분식(batch) 실험을 수행 중에 있다. 이 논문에서는 상기의 조건 중 암석학적, 암석지구화학적 조건을 중심으로 고준위핵종인 ^{241}Am 과 희토류원소인 ^{152}Eu , ^{160}Tb 그리고 중저준위 핵종인 ^{60}Co 의 지질매체별 흡착능의 비교실험결과를 토의하고자 한다. 이 논문의 주목적은 방사성폐기물 처분시 발생할 수도 있는 방사성핵종의 지하수 유입시 대수층에서의 방사성핵종들의 흡착특성이 지질매체에 따라 어떠한 차이가 있는지를 밝혀냄으로써, 대수층의 지질매체별 특성에 따라 방사성핵종의 특히 고준위핵종의 흡착특성을 예측할 수 있는 자연유사체로서의 희토류원소의 유용성을 밝혀내는데 있다. 또한 향후 단열암반에서의 방사성핵종의 거동을 예측하고자 하는 실험을 수행할 때의 세부적 실험과정자료를 제공하는데 있다.

2. 실험방법

2.1. 지질시료의 선택기준

Lee *et al.*(2006)은 암석의 화학조성이 핵종의 흡착에 영향을 줄 수 있다고 하였다. 이 연구에서는 대수층구성 암석의 변화 즉 화학조성상의 변화가 실제로 핵종의 흡착능에 영향을 주는지를 살펴봄과 동시에 Am과 희토류원소는 항상 같은 흡착특성을 보일 것이라는 가정을 검증하는 데 초점을 두고 시료를 선택하고자 하였다. 따라서 이천, 무주, 금산지역으로부터 암상이 서로 다른 5종류(화강암, 화강암질 편마암, 앰피볼라이트, 염기성 편마암, 응회암)의 암석을 선택한 후, 각각의 시료에 대한 화학조성자료를 토대로 흡착실험을 위한 10개의 시료를 Table 1과 같이 선택하였다. Table 1에서 ICH3는 일반 노두 시료이고, 나머지 9개 시료는 시추코어시료

Table 1. Petrography and physical properties of the samples used in the batch experiment.

Sample	Area	Lithology	SSA(m ² /g) ^{a)}	CEC(meq/100g) ^{b)}
ICH3	Icheon	Granite	0.7452±0.0045	0.88
MJ2-27.0	Muju	Granitic gneiss	0.5438±0.0019	1.34
MJ2-30.5	Muju	Amphibolite	0.7864±0.0049	2.2
MJ2-32.5	Muju	Amphibolite	1.0281±0.0052	3.56
MJ2-64.0	Muju	Granitic gneiss	0.6109±0.0041	1.12
MJ2-75.2	Muju	Amphibolite	-	1.56
MJ3-24.5	Muju	Granitic gneiss	0.5649±0.0046	1.12
MJ3-31.3	Muju	Granitic gneiss	0.373 ±0.0046	0.44
MJ3-181.7	Muju	Mafic gneiss	-	1.78
KS2-62.4	Geumsan	Tuff	1.1513±0.0052	27.6

^{a)}SSA: specific surface area

^{b)}CEC: cation exchange capacity

Table 2. Mineralogical compositions (%) of granitic gneiss, Mafic gneiss by XRD.

Samples	Granitic Gneiss			Amphibolite		Mafic gneiss
	MJ2-27	MJ2-64	MJ3-24.5	MJ2-30.5	MJ2-75.2	MJ3-181.7
Quartz	53.4	39.9	37.3	3.8	-	9.1
Plagioclase	26.9	22.6	41.8	33.4	21.5	3.7
K-feldspar	-	-	0.5	-	-	-
Biotite	-	24.6	8.3	17.8	27.4	18.7
Chlorite	7	12.9	10.5	13.5	7	65.4
Muscovite	12.2	-	1.6	7.7	-	-
Hornblende	-	-	-	27.9	19.4	-
Calcite	0.5	-	-	3.6	8	-
Montmorillonite	-	-	-	-	2.1	-
Talc	-	-	-	-	14.6	-
Total(%)	100	100	100	100	100	99.9

이다. 그리고 시료 MJ2, MJ3, KS2는 각각 부주지역과 금산지역의 편마암과 응회암의 시추공번호이고, 그 뒤에 오는 숫자는 시추코어의 심도를 표시한다. 그리고 각 암석시료의 주성분과 희토류원소는 각각 한국지질자원연구원의 XRF(Shimadzu MXF-2300)와 ICP-MS(Elan 6100, Perkin-Elmer Ltd.)를 이용하여 분석하였다. 주성분의 분석오차는 3% 이내이고 미량원소와 희토류원소의 경우 분석오차는 10% 이내로 판단된다. 분석된 암석가루의 비표면적(specific surface area)은 각각 충남대학교의 Micromeritics ASAP2010 장비를 이용하여 측정하였고, 양이온 교환능(cationic exchange capacity: CEC)은 강원대학교 산업광물은행에서 암모늄 아세테이트법을 이용하여 측정하였다. 그리고 흡착 실험에 사용된 지하수는 한국에너지기술연구원의 천부 지하수(굴착심도 50 m 이하)를 이용하였다. 지하수의 화학조성은 한국지질자원연구원의 원자흡수분광광도계, 유도결합플라즈마 원자방출분광광도계와 이온크로마토그래피에 의해 측정되었다.

2.2. 암석과 지하수의 전처리

흡착실험을 위해서 150 m-300 m의 입도를 가진 암석가루 10 g을 500 mL 폴리프로필렌병에 넣고 지하수 200 mL씩을 혼합한 후, 20±2°C의 항온실험실에서 50 strokes/min 조건으로 4주간 교반하여 실험에 사용할 암석/지하수계를 선평형(pre-equilibrium)상태에 도달시켰다. 교반이 끝난 후 0.45 µm pore filter를 이용하여 암석과 지하수를 여과분리하고 암석분말은 열에 의한 변화를 방지하기 위하여 동결건조(Freeze drying)한 후 분리한 지하수와 같이 4°C 냉장실에 보관하였다.

Table 2는 10종의 암석과 4주간 접촉한 후의 지하수의 화학적 특성을 측정한 결과이며, 초기지하수(PGW)의 조성도 함께 기재되어 있다.

2.3. 추적자용 방사성핵종

실험용 핵종으로서 고준위 핵 폐기물처분에서 중요한 액티나이드계 핵종으로는 ²⁴¹Am을 선택하였고, 액티나이드 계열의 흡착특성을 예측할 수 있는 희토류성

분으로는 결합에너지와 이온반경 등의 핵적/물리적 특성이 Am과 유사하여 흡착특성이 가장 비슷할 것으로 예측되는 ¹⁵²Eu를 선정하였다. 이 두 핵종은 미국의 Isotope Products Laboratory로부터 구입하였으며, 방사화학적 순도가 99%이상으로 1N 질산용액에 용해되어 있다. 그리고 다른 희토류원소 핵종인 ¹⁶⁰Tb과 중/저준위 핵종인 ⁶⁰Co도 추가하여 암석특성에 따른 흡착특성을 비교하고자 하였다. 이 두 핵종은 한국원자력 연구원의 연구용원자로인 하나로를 이용하여 제조하였다. 실제 실험에 있어서는 각 핵종을 건조시킨 후, 증류수에 재용해시키고, pH 7정도로 조정된 후 회분식실험에 들어가기 전에 10 ml 플라스크에 보관하였다. 흡착실험에 사용된 핵종의 농도는 각각 7.9×10^{-8} mol/L ¹⁵²Eu, 1.8×10^{-6} mol/L ²⁴¹Am, 7.3×10^{-4} mol/L ¹⁶⁰Tb, 그리고 3.0×10^{-3} mol/L ⁶⁰Co이다.

2.4. 흡착 실험

암석분말과의 전처리 후 보관중인 각각의 지하수 20 mL를 50 mL 원심분리용 폴리프로필렌 튜브에 넣고, 각 방사성추적자용액을 넣은 후 역시 전처리하여 보관 중인 암석분말 1 g 썩을 넣어 빛을 차단시킨 후 50 strokes/min의 조건으로 교반하였다. 그리고 주기적으

로 교반을 멈추고 원심분리기에서 20,000 g의 조건에서 20분 동안 분리하여 상등액 5 mL를 취한 후, 검출기(HPGe detector: EG&G ORTEC USA, fwhm of 1.9 keV for ⁶⁰Co)로 각 방사성핵종의 비방사능을 측정하였다. 측정이 끝난 용액은 다시 폴리프로필렌 튜브에 옮겨 계속해서 교반을 진행시켰다. 이 때, 교반을 멈추고 측정에 들어간 경과시간은 1시간(0.042일), 6시간(0.25일), 1일, 3일, 7일, 14일이다.

2.4.1. 흡착특성 산출

각 암상별 흡착특성 및 두 핵종의 흡착거동비교는 아래의 식 (1)과 같이 초기 비방사능(specific activity)에 대한 비율(흡착율 R)로 산출하였다.

$$R = A/A_0 \quad (1)$$

A; 지속적 교반 중, 상등액의 비방사능(cps/mL)

A₀; 흡착실험 직전의 비방사능(cps/mL)

방사성핵종의 흡착실험에서 주로 사용하는 분배계수 혹은 분배비는 다음의 식 (2)와 같으나, 본 실험에서는 암상별 상대적인 흡착특성 구별 및 두 핵종의 거동 유사성 측정을 목표로 수행하였기 때문에 위의 식 (1)만

Table 3. Chemical composition (ppm) of groundwater before and after preconditioning with granitic gneisses and mafic gneiss.

Elements	Solutions										
	PGW ^a	ICH3	MJ2-27	MJ2-30.5	MJ2-32.5	MJ2-64	MJ2-75.2	MJ3-24.5	MJ3-31.3	MJ3-181.7	KS2-62.2
K	0.98	8.31	3.18	13.1	10.9	5.01	25.8	1.93	2.93	6.97	3.33
Na	14.7	14.6	14.3	14.7	15	15	17.7	15.3	15.1	15.6	15.1
Ca	13.9	35	32.1	31.8	38.7	36.3	26.3	36.7	29.7	29	14.2
Mg	1.96	2.53	2.61	3.19	4.04	2.82	3.45	2.95	3.45	2.65	1.4
SiO ₂	34	29.7	27.3	29.3	29.5	27.3	30	29.7	30	30.6	30.8
Cl	13.7	15	13.1	14.1	14.2	13.1	12.2	14.2	12.2	13.3	13
SO ₄	7.74	8.16	7.75	9.69	49.2	7.75	7.11	7.73	7.11	9.46	7.71
F	0.13	0.33	0.47	0.21	0.2	0.47	0.24	0.51	0.24	0.23	0.15
Li	0.02	0.03	0.03	0.08	0.59	0.03	0.04	0.03	0.04	0.03	0.02
Sr	0.09	0.18	0.48	2.88	29.1	0.48	0.72	0.19	0.72	0.16	0.06
Mn	0.23	0.35	0.12	0.12	0.15	0.12	0.21	0.31	0.21	0.93	0.07
Cu	0.02	0.02	-	0.01	-	0.01	-	-	-	-	-
TDS	140	214	179	221	305	179	228	202	228	196	146
pH	7.6	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
pH1 ^b	-	7.9	8	8.1	8	7.9	7.7	7.9	7.7	7.9	7.7
pH2 ^c	5.84	5.41	5.41	5.33	5.44	5.52	5.41	5.76	5.41	5.37	5.17
pH3 ^d	6.85	7.72	7.7	8.06	8.12	7.82	8.05	7.84	8.05	7.6	7

^aoriginal groundwater (Korea Institute of Energy Resource)

^bpH values of solutions after shaking with a ratio of 20 ml/g of groundwater volume to rock powder for 6 weeks

^cpH values of the preconditioned solutions and groundwater before batch experiment. After mixing ⁶⁰Co, ¹⁵²Eu, ¹⁶⁰Tb and ²⁴¹Am into the preconditioned solutions, we controlled the pH of the solutions with 0.7 mL 1N NaOH

^dpH values of solutions and groundwater at 3 weeks after the beginning of batch experiment

을 사용하였다.

$$R_d = [(A_0 - A)/A] * [V/m] \quad (2)$$

V; 지하수 부피(mL)

m; 암석 질량(g)

3. 실험결과

3.1. 흡착실험용 암석의 물리적/화학적 특성

실험에 사용된 암석가루시료의 비표면적과 양이온교

환능(CEC)와 같은 물리적 특성은 Table 1에, XRD에 의한 광물조성은 Table 3, 주성분과 미량성분 그리고 희토류원소함량과 같은 화학조성에 대한 결과는 Table 4에 기재되어있다.

3.1.1. 암석의 물리적/화학적/광물학적 특성

Table 1에서 응회암인 KS2-62.4의 시료가 가장 높은 암석의 비표면적 및 양이온 교환능값을 갖는다. 무주지역의 편마암에서는 화강암질 편마암시료인 MJ3-31.3의 비표면적 및 양이온교환능의 값이 가장 작고 엠

Table 4. Chemical composition of the geological samples used in the batch experiment.

Samples	Icheon			Muju						Geumsan
	ICH3	MJ2-27	MJ2-30.5	MJ2-32.5	MJ2-64	MJ2-75.2	MJ3-24.5	MJ3-31.3	MJ3-181.7	KS2-62.4
SiO ₂ (%)	65.4	78	50.7	51.03	76.48	46.6	77.4	77.25	55	76.6
TiO ₂	0.64	0.13	1.25	0.11	0.09	1.13	0.14	0.14	0.89	0.07
Al ₂ O ₃	15.7	11.6	15.3	15.61	11.97	13.2	12.03	12.25	16.6	13.12
Fe ₂ O ₃	4.39	2.31	7.19	6.51	2.58	9.11	1.93	2.1	11.7	1.04
MnO	0.06	0.02	0.1	0.1	0.02	0.15	0.02	0.02	0.2	0.03
MgO	1.57	0.99	6.82	5.64	1.74	10.1	0.37	0.37	5.42	<0.01
CaO	3.49	1.09	7.72	6.87	2.05	10	1	1	2.53	0.54
Na ₂ O	3.42	3.05	3.57	3.78	3.02	2.55	3.86	3.86	2.58	2.16
K ₂ O	3.31	1.45	2.87	2.8	0.66	1.86	1.59	1.59	1.55	5.02
P ₂ O ₅	0.19	0.01	0.99	0.85	0.01	0.8	0.01	0.01	0.09	<0.01
Ig. Loss	1.75	1.38	3.13	5.34	1.16	4.16	0.95	0.95	3.13	1.38
Total	99.92	100.03	99.64	98.64	99.78	99.66	99.3	99.54	99.69	99.96
Zr (ppm)	34.3	69.7	309.7	299	64.6	333.4	121.9	82	109.6	200.8
Hf	0.35	2.09	6.84	6.07	1.48	6.86	3.13	2.26	2.49	6.88
Ta	2.63	70.51	7.96	152	-	2.84	0.18	0.18	4.45	0.169
Th	26.3	19.1	8.74	9.73	12.1	9.15	19.6	20.8	16.2	18.3
U	6.32	3.99	1.68	2.01	4.8	1.56	9.71	5.79	2.12	2.79
Ba	731.6	252.4	1079.2	1059.2	137.2	885.4	231.6	282.1	158.4	124.3
Y	17.1	21.1	22.4	20.2	10.2	26.5	6.51	13.3	44.9	56.1
La	41.2	66.3	111	117.9	23.1	101.9	26.8	58.1	54.6	18.3
Ce	83	922.7	211.5	219.3	143.1	190.5	45	102.3	106.1	157.9
Pr	10.3	12.5	24.2	34.4	461	21.7	4.16	11	13	5.31
Nd	40.3	45.4	92.3	11.3	17.1	84.6	14.5	40.8	53.3	22.3
Sm	7.29	7.58	13	12	3.37	12	2.5	7.26	11.3	6.29
Eu	1.54	0.69	3.22	3.22	0.38	3.08	0.46	0.7	1.5	0.16
Gd	5.41	9.61	9.16	8.92	3.46	8.71	2.35	6.43	9.28	7.61
Tb	0.64	0.56	0.894	0.88	0.27	0.91	0.18	0.49	1.26	0.78
Dy	3.24	3.92	3.97	3.63	2.05	4.37	1.3	3.26	7.02	7.7
Ho	0.57	0.68	0.673	0.61	0.38	0.78	0.24	0.5	1.34	1.7
Er	1.37	1.61	1.77	1.65	0.91	2.13	0.61	1.07	3.32	4.61
Tm	0.21	0.24	0.217	0.21	0.14	0.26	0.097	0.14	0.47	0.74
Yb	1.33	1.6	1.26	1.22	0.92	1.69	0.74	0.99	3	4.77
Lu	0.18	0.3	0.183	0.17	0.13	0.23	0.121	0.14	0.36	0.67
Eu/Eu*	0.72	0.27	0.86	0.91	0.34	0.89	0.57	0.31	0.44	0.07
ΣREE	196.58	1073.69	473.347	415.41	656.31	432.86	99.058	233.18	265.85	238.84

Eu* is defined as the ratio of observed Eu abundance to that which would fall on the Sm-Gd join in chondrite-normalized

Table 5. Adsorption ratio R of radionuclides (^{241}Am , ^{152}Eu , ^{160}Tb and ^{60}Co) onto geological materials.

Nuclide	Time	ICH3	MJ2-27	MJ2-30.5	MJ2-32.5	MJ2-64	MJ2-75.2	MJ3-24.5	MJ3-31.3	MJ3-181.7	KS2-62.4
^{241}Am	0 day	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1
	0.042 day	0.51	0.75	0.50	0.69	0.67	0.42	0.43	0.82	0.61	0.74
	0.25 day	0.25	0.52	0.19	0.38	0.42	0.16	0.25	0.61	0.30	0.41
	1 day	0.10	0.30	0.05	0.10	0.24	0.05	0.12	0.44	0.13	0.12
	3 day	0.03	0.15	0.01	0.04	0.13	0.01	0.04	0.29	0.05	0.02
	7 day	0.008	0.100	0.003	0.01	0.06	0.03	0.02	0.22	0.02	0.01
	14 day	0.004	0.07	0.002	0.01	0.04	0.01	0.01	0.19	0.02	0.01
^{152}Eu	0 day	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1
	0.042 day	0.64	0.75	0.57	0.75	0.68	0.50	0.65	0.84	0.67	0.79
	0.25 day	0.37	0.56	0.25	0.44	0.46	0.24	0.49	0.63	0.37	0.43
	1 day	0.16	0.33	0.09	0.13	0.29	0.10	0.25	0.45	0.19	0.14
	3 day	0.08	0.18	0.02	0.04	0.15	0.03	0.13	0.29	0.08	0.04
	7 day	0.02	0.10	0.01	0.02	0.08	0.03	0.06	0.19	0.05	0.02
	14 day	0.01	0.06	0.01	0.01	0.06	0.01	0.02	0.14	0.04	0.01
^{160}Tb	0 day	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1
	0.042 day	0.86	0.88	0.65	0.83	0.79	0.62	0.79	0.87	0.82	0.81
	0.25 day	0.49	0.63	0.29	0.54	0.53	0.37	0.55	0.66	0.48	0.49
	1 day	0.24	0.41	0.15	0.17	0.37	0.13	0.32	0.46	0.27	0.16
	3 day	0.11	0.18	0.04	0.06	0.18	0.04	0.14	0.30	0.12	0.05
	7 day	0.05	0.10	0.02	0.03	0.09	0.03	0.05	0.17	0.07	0.03
	14 day	0.02	0.07	0.00	0.02	0.06	0.02	0.04	0.14	0.06	0.03
^{60}Co	0 day	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1
	0.042 day	1.00	1.00	0.91	0.97	0.89	0.92	1.02	1.20	1.03	1.12
	0.25 day	0.97	0.91	0.91	0.85	0.82	0.76	0.92	1.14	0.96	0.93
	1 day	0.86	0.85	0.70	0.60	0.75	0.54	0.78	1.10	0.84	0.85
	3 day	0.66	0.69	0.41	0.39	0.60	0.28	0.73	1.01	0.64	0.72
	7 day	0.49	0.60	0.20	0.20	0.49	0.09	0.54	0.96	0.44	0.61
	14 day	0.33	0.44	0.02	0.08	0.36	0.03	0.48	0.87	0.28	0.57

피볼라이트인 MJ2-32.5는 제일 큰 값을 보여준다. XRD에 의한 암석가루에서의 광물조성을 살펴보면 (Table 3), 대부분의 시료에서 점토광물이 감지되지 않았지만, 암피볼라이트인 MJ2-75.2시료에서 몬모릴로나이트와 활석이 측정되어졌다.

3.1.2. 암석의 화학조성

암석의 화학조성은 Table 4에 기재된 바와 같다.

Table 4에서 볼 수 있는 바와 같이, 실험에 사용된 암석들의 화학조성은 SiO_2 가 46.6%(MJ2-75.2)에서 78.0%(MJ2-27), TiO_2 가 0.07%(KS2-62.4)에서 1.25%(MJ2-30.5), CaO가 0.93%(MJ3-24.5)에서 10%(MJ2-72.5), Na_2O 가 2.16%(KS2-62.4)에서 4.04%(MJ3-24.5)와 같이 매우 다양한 화학조성을 보여준다. 특히 MJ2와 MJ3의 시료들은 동일지역의 시료임에도 불구하고, 암상의 변화에 따라 매우 다양한 화학조성과 암상을 보여준다.

3.2. 흡착실험결과

Table 5는 실험계획에 따라서 주기적으로 산출한 R 값을 각 핵종별로 나타낸 것이다. Table 5를 보면 ^{241}Am , ^{152}Eu , ^{160}Tb 의 경우 실험시작 후 6시간(0.25day) 경과후에 일부 암석시료를 제외하고는 대부분의 암석가루에 50% 이상 흡착되었음을 지시해준다. 특히 화강암시료인 ICH3와 암피볼라이트인 MJ2-30.5, MJ2-32.5 MJ2-75.2 시료에서는 90%이상의 흡착율을 보여준다. 반면에 ^{60}Co 의 경우 흡착율이 상기의 세 핵종에 비해 현저하게 낮게 나타났으며, 암피볼라이트 시료를 제외하고는 2주가 경과한 후에도 30-80% 정도 용액 속에 남아있음을 알 수 있다.

4. 토 의

4.1. 지질매체의 변화에 따른 4개 핵종의 흡착특성

본 논문의 서언에서 언급한 바와 같이 이 논문의 주

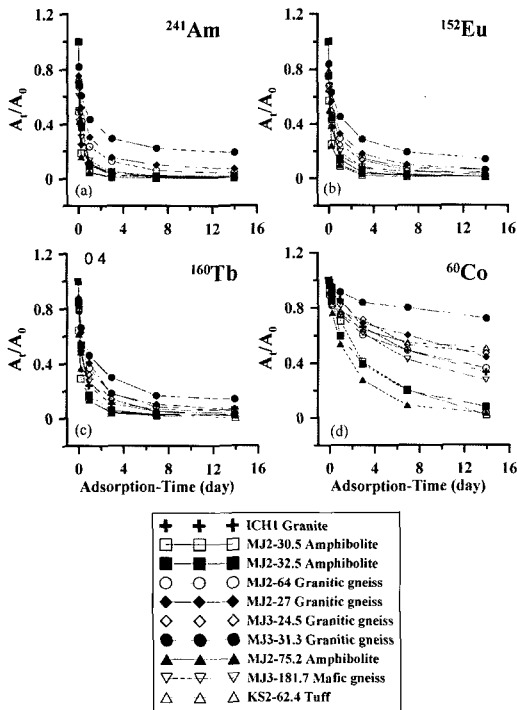


Fig. 2. Sorption ratio (A_t/A_0) of each radionuclide (a) ^{241}Am (b) ^{152}Eu (c) ^{160}Tb and (d) ^{60}Co onto the geological materials.

목적 중의 하나는 고준위 방사성 핵종이며 액티나이드 계열원소중의 하나인 ^{241}Am 과 희토류원소인 ^{152}Eu , ^{160}Tb 그리고 중저준위 핵종인 ^{60}Co 의 흡착특성을 암상의 변화에 따라 비교하는 데 있다. Fig. 2는 Table 5의 자료를 토대로 하여, 암상별에 따른 4개의 핵종 (^{241}Am , ^{152}Eu , ^{160}Tb 과 ^{60}Co)의 흡착특성을 도시화한 도면이다. Fig. 2에서는 전반적으로 크게 3가지의 경향을 살펴볼 수가 있다. 첫째, ^{241}Am 과 ^{152}Eu 그리고 ^{160}Tb 의 흡착경향은 대체적으로 유사하게 나타난다는 것이다. 둘째 ^{60}Co 의 흡착력은 다른 3개 핵종에 비해 암상에 관계없이 약하다는 것이다. 셋째로는 ^{60}Co 의 흡착력이 암상의 변화에 따라 매우 다르다는 점이다.

Am, Eu, Tb의 유사한 흡착특성의 경향은 액티나이드와 희토류원소는 암상의 변화에 관계없이 항상 동일하게 거동한다는 것을 보여주며, 아울러 비교적 빨리 지질매체에 흡착되어지고 있음을 지시해준다고 볼 수 있다. 반면에 Co는 암상의 변화에 따라 현저하게 흡착능이 서로 다르다는 것은 지질학적/지구화학적 조건의 영향을 크게 받고 있음을 지시해준다고 볼 수 있다.

4.2. 핵종의 흡착에 영향을 미치는 매질의 물리적 특성

핵종의 흡착실험에 사용한 50~150 mesh의 매질의 비표면적(specific surface area)과 양이온 교환능(CEC)의 측정결과를 Table 1에 기재되어있다. 비표면적은 단위 무게의 지질매질의 표면적이므로, 이들의 값이 클수록 지하수에 용해되어 있는 핵종의 흡착능이 강하게 될 것이다. CEC는 매질 단위무게당 음전하의 양 혹은 매질입자내의 중성을 유지하기 위해 끌어당겨지는 이온의 숫자를 의미하며, 이 또한 값이 클수록 양이온을 흡착할 수 있는 능력이 크다는 것을 의미한다.

Fig. 3은 이 논문에서 사용된 지질매질의 비표면적, 양이온 교환능 그리고 핵종에 대한 흡착력을 도시화한 그림이다. 비표면적 및 양이온 교환능의 값이 제일 작은 화강암질 편마암 시료인 MJ3-31.3(Fig. 3e)시료에서의 핵종들의 흡착이 가장 느리게 진행되었음을 알 수 있다. 그리고 동일기원이지만 암상이 전혀 다르고 비표면적 및 양이온 교환능의 값이 큰 염기성 편마암시료인 MJ2-32.5(Fig. 3h)는 핵종들의 흡착이 모두 빠르게 진행되었다. 반면에 비표면적 및 양이온 교환능의 값이 제일 큰 응회암질 시료인 KS2-62.4에서의 핵종에 대한 흡착정도를 보면, 액티나이드인 ^{241}Am 과 희토류원소인 ^{152}Eu , ^{160}Tb 의 흡착은 빠르게 진행되었지만, ^{260}Co 은 매우 느리게 진행되고 있음을 알 수 있다. 이와 같이, 핵종별로 양이온 교환능과 비표면적과의 상관관계를 살펴보면, 주로 3가 이온인 희토류원소와 Am의 경우 비표면적과 양이온 교환능이 제일 작은 MJ3-31.3이 제일 약한 흡착력을 보여주시는 하지만, 핵종의 흡착력과 매질의 비표면적 혹은 양이온 교환능의 크기와는 명확한 비례관계를 보여주지 않음을 알 수 있다. 2가 이온으로 존재하는 Co의 경우 KS2-62.4와 같이 매우 큰 양이온 교환능 값을 갖는 매질임에도 불구하고 흡착이 매우 느리게 진행되었다. 그리고 동일기원의 시료들에서의 흡착력을 보여주는 Fig. 3b에서 3i를 비교해보면, 양이온 교환능 값이 클수록 비교적 빠르게 ^{60}Co 가 흡착되고 있다. 비표면적의 경우, 그 값이 제일 큰 MJ2-32.5가 ^{60}Co 에 대해 빠른 흡착력을 보여주고, 비표면적이 제일 작은 MJ3-31.3의 흡착력이 가장 약하기는 하지만 양이온 교환능과 마찬가지로 명확한 비례관계는 보여주지 않는다. 특히 비표면적이 크면서 양이온 교환능도 큰 시료인 MJ2-32.5와 KS2-62.4를 비교해 볼 때, 핵종의 흡착에 영향을 미치는 요인은 비표면적 혹은 양이온 교환능 보다는 다른 요인, 즉 지질학적 혹은 지구화학적 인자가 더 클 수도 있음

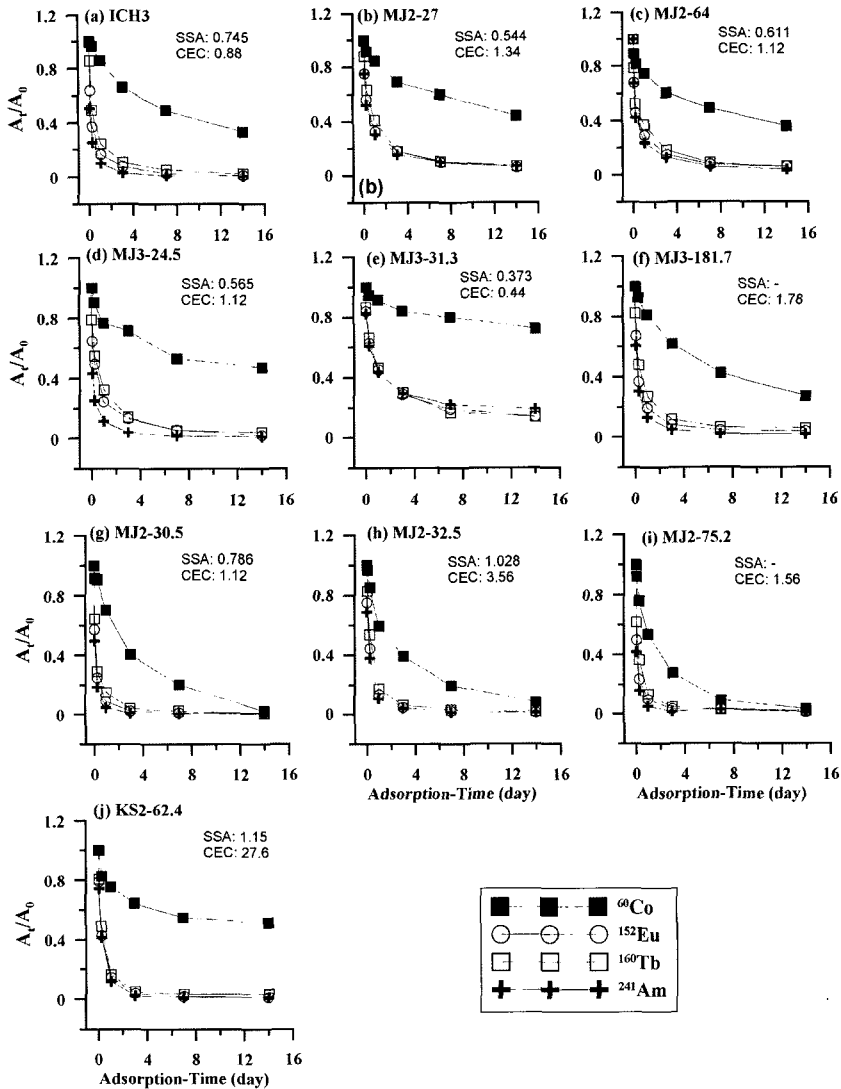


Fig. 3. Sorption ratio of radionuclides ^{241}Am , ^{152}Eu , ^{160}Tb and ^{60}Co according to specific surface area (SSA) and cation exchange capacity of the geological materials (CEC).

을 지시해준다고 볼 수 있다.

4.3. 핵종의 흡착에 영향을 미치는 지질학적, 지구 화학적 인자의 추출실험

Fig. 4는 각각의 4개 핵종별에 따른 10개 암상시료의 흡착능을 도시화한 도면으로서, Fig. 3에서의 물리적/화학적 특성 대신에 암석의 화학조성(SiO_2 , TiO_2 와 P_2O_5)을 기재하였다. Fig. 4a에서 4e는 산성암 즉 화강암질의 암석학적 및 지구화학적 특성을 갖는 암석에서의 핵종의 흡착특성이고, Fig. 4f에서 4i는 염기성암의 암석학적 및 지구화학적 특성을 갖는 암석에서의

흡착특성이다. 그리고 Fig. 4j는 응회암에서의 흡착특성이다. Fig. 2에서 이미 토의한 바와 같이, ^{60}Co 을 제외하고는 ^{241}Am , ^{152}Eu , ^{160}Tb 의 흡착특성이 매우 유사하다는 것을 인지할 수가 있다. 이 또한 암상의 차이, 화학조성의 차이에도 불구하고 Am의 지질매체내 유사체로서 희토류원소가 매우 유용하다는 것을 지시해준다고 볼 수 있다.

서언에서 언급한 바와 같이, 이 논문의 연구목적 중 다른 하나는 지하수에 녹아있는 방사성 핵종의 흡착에 영향을 미치는 지질학적, 지구화학적 인자를 밝혀내는데 있다. 그리고 점토광물은 핵종 혹은 각종 이온에

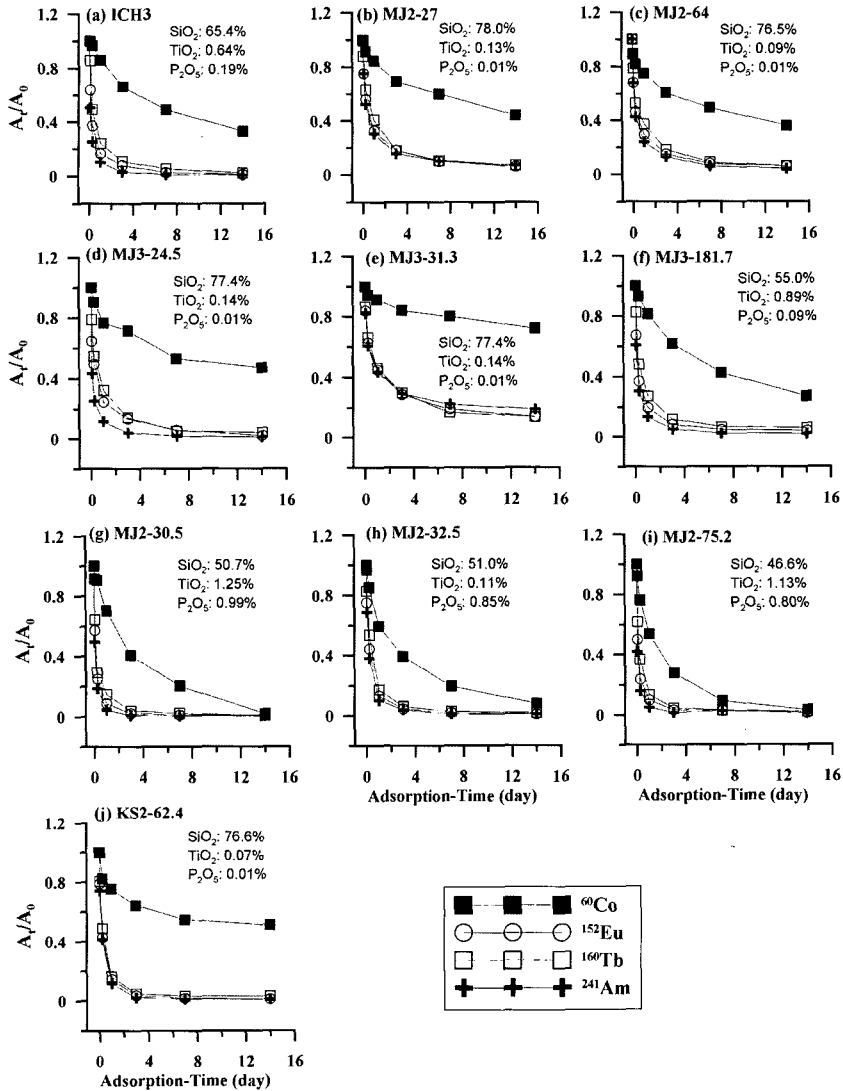


Fig. 4. Sorption ratio of radionuclides ^{241}Am , ^{152}Eu , ^{160}Tb and ^{60}Co according to chemical compositions of the geological materials.

대하여 강한 흡착력을 보유하므로, 이 연구에서는 점토광물에 의한 핵종의 흡착을 저지하기 위해 가능한 한 풍화 혹은 변질을 적게 받은 시료를 선택하여 진행하였다. 그럼에도 불구하고 MJ2-75.2와 같은 시료에서는 몬모릴로나이트와 같은 점토광물이 XRD조사에 의해 감지되었다. MJ2-75.2의 시료를 보면 ^{241}Am , ^{152}Eu , ^{160}Tb 뿐만 아니라 ^{60}Co 의 경우에도 다른 시료에 비해 흡착속도가 매우 빠르게 진행되고 있음을 알 수 있다 (Fig. 4i 참조). 이는 MJ2-75.2 시료의 경우 다른 지구화학적 요인과 더불어 점토광물이 크게 영향을 주었기 때문인 것으로 판단된다. 다른 시료들의 경

우, 광물조성과 핵종의 흡착력과의 상관성을 현저하게 보여주는 않는다. 그리고 MJ2-75.2시료의 경우에도 몬모릴로나이트와 같은 점토광물의 존재가 실제로 핵종의 흡착에 더 영향을 주었는지는 보다 세밀한 연구가 필요하다고 본다.

Fig. 4a에서 4j의 SiO_2 의 함량변화에 따른 흡착도의 차이를 살펴보면, SiO_2 의 함량이 낮을 수록 핵종의 흡착이 빨리 진행되고 있는 것으로 나타난다. 이와 같은 경향은 ^{60}Co 의 경우 더욱 현저하게 나타난다. 즉 SiO_2 의 함량이 낮은 염기성암의 경우, 흡착력이 다른 암석에 비해 현저하게 빠르며, 실험종료 시점인 2주째에는

^{60}Co 이 거의 모두 흡착된 것으로 나타난다.

이와 같은 경향은, SiO_2 의 변화와 같이 현저하게 차이를 보여주지 않아 비교하는 데 다소 어려움이 있지만, 적어도 TiO_2 와 P_2O_5 의 함량이 높은 MJ2-30.5, MJ2-32.5와 MJ2-75.2와 같은 시료에서는 핵종의 흡착이 매우 빠르게 진행되었음을 알 수가 있다. 특히 동일 지역내 동일기원의 시료라 할지라도 Fig. 4b에서 Fig. 4에서 볼 수 있는 바와 같이 핵종에 대한 흡착력이 서로 크게 다르게 나타나며, 이는 화학조성의 차이와 밀접한 연관성을 보여준다. 이와 같은 결과는 지질매체의 특정 화학조성이 방사성 핵종의 흡착에 결정적인 영향을 주고 있음을 시사해주는 것이다.

Fig. 4에서 볼 수 있는 바와 같이, 핵종의 종류에 관계없이 TiO_2 와 P_2O_5 의 함량이 제일 적은 시료(화강암질 계열: M2-27, Fig. 4b 참조)에서 흡착이 제일 적게 일어났다. 그리고 흡착이 가장 잘 이루어진 시료는 TiO_2 가 0.89% 함유된 염기성 편마암(MJ3-181.7, Fig. 4f)으로 나타났다. 특히 MJ3-181.7 시료의 경우 ^{60}Co 과

같은 중저준위 핵종도 흡착이 빨리 일어나고 있음을 알 수 있다. 이 또한 P_2O_5 와 TiO_2 가 방사성 핵종의 흡착에 영향을 주고 있음을 지시해준다고 볼 수 있다.

4.4. 희토류원소의 분포도와 핵종의 흡착의 상관성에 대한 고찰

Lee *et al.* (2003, 2004)는 균열면에서의 희토류원소의 분포도중 Eu의 이상의 변화가 균열면에 침전된 방해석의 영향임을 밝혀냈으며, 또한 이와 같은 변화는 대수층에서의 고지하수의 지구화학적 환경변화를 지시해준다고 하였다. 특히 Eu과 Am의 유사한 물리적, 화학적(Fig. 1 참조) 특성을 토대로, 대수층내에서의 Am의 거동을 추적할 수 있는 유사체로서 유용함을 이미 지적한 바 있다. 그리고, Stipp *et al.* (2003)는 방해석에 의한 Eu의 흡수(uptake)가 지질매체내 액티나이드의 저지효과를 예측하는데 매우 중요한 역할을 한다고 보고하였다. 이는 지질매체내 희토류원소의 분포도의 변화가 그에 상응하는 대수층에서의 액티나이드 거동 예

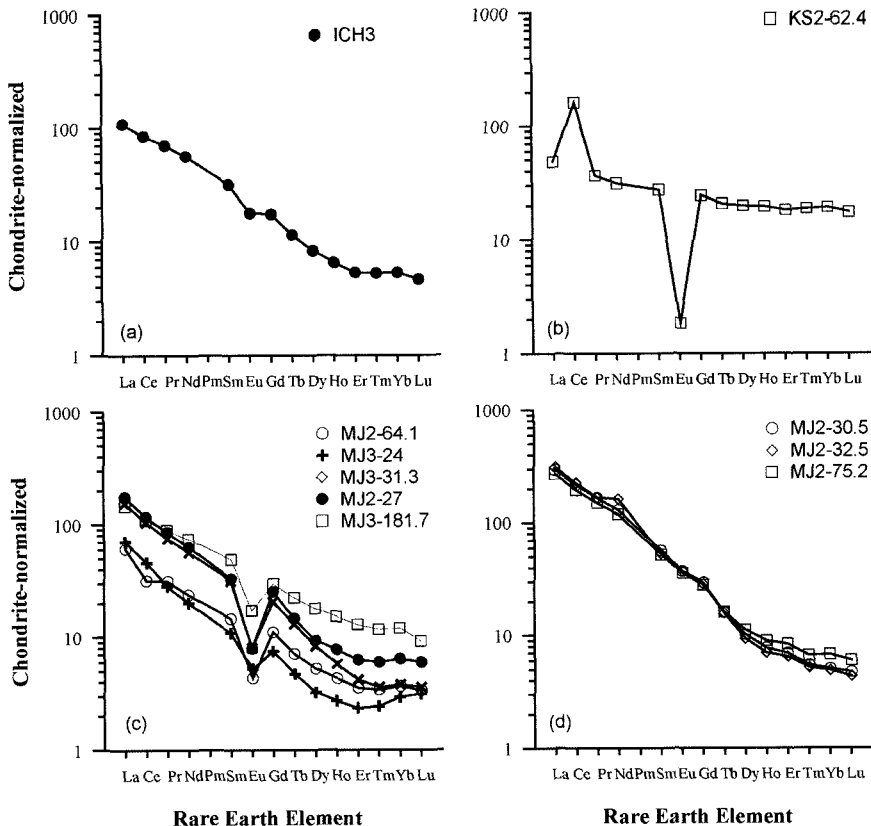


Fig. 5. Chondrite-normalized REE diagram (Masuda *et al.*, 1973; Masuda, 1975) of (a) granite (b) tuff (c) granitic gneiss and (d) amphibolite.

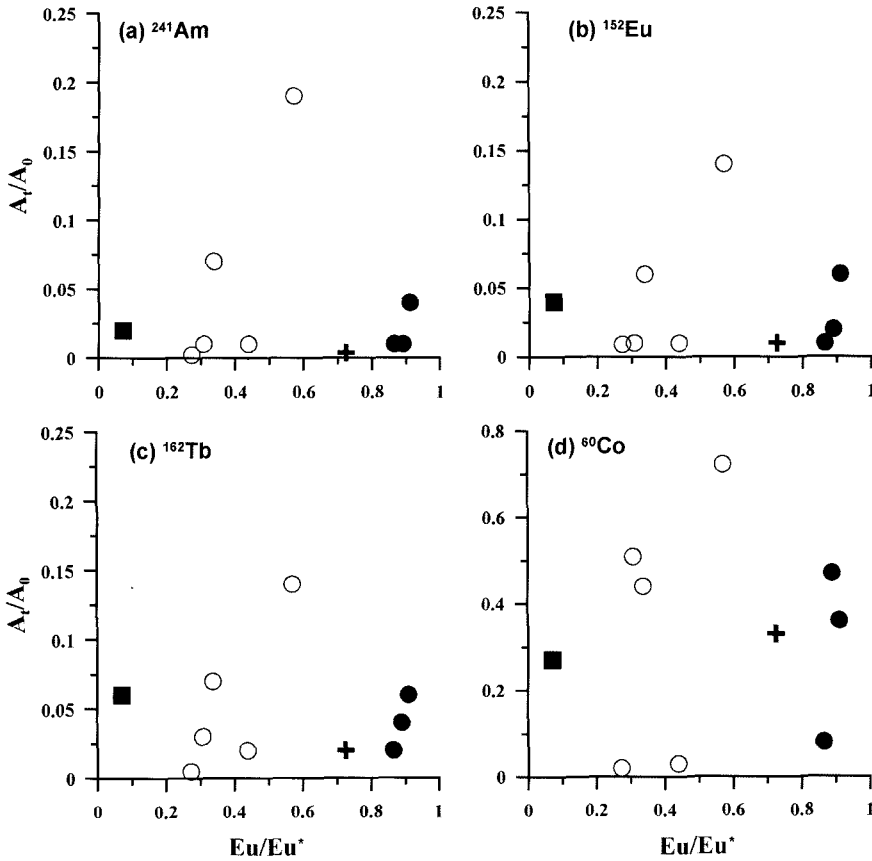


Fig. 6. Eu anomaly of the samples vs. sorption ratio of radionuclides onto the samples used in sorption experiments.

측에 유용하게 쓰여질 수 있음을 지시해주는 것이다. Fig. 5는 금번 연구에 사용된 지질시료의 암상별 희토류원소 분포도이다. Fig. 5를 보면 응회암(Fig. 5b)를 제외하면 경희토류(La-Sm)이 부화되고 중희토류(Gd-Lu)이 결핍된 양상과 같은 유사한 분포도를 보여준다. Eu의 이상이 현저하게 큰 응회암을 제외할 지라도, 화강암, 화강암질 편마암, 암피블라이트의 희토류원소 분포도는 Eu의 이상에 있어서 큰 차이를 보여준다. 우선 화강암질 편마암은 Eu의 부(-)의 이상이 비교적 현저하게 발달되어 있는 반면에 암피블라이트는 Eu의 이상이 거의 관찰되지 않는다. 이와 같은 Eu의 이상의 크기와 핵종의 희분식 실험결과 중 2주치의 흡착도를 비교하여 핵종별로 각각 도시한 것이 Fig. 6이다. Fig. 6에서 볼 수 있는 바와 같이, 암상별로 Eu의 이상이 현저하게 구분되며, 이에 따라 핵종의 흡착능도 다르게 나타난다. Fig. 6을 보면, 동일 암상일 경우, 핵종의 종류에 관계없이 Eu의 이상이 작아질 수록 흡착능도 작아진다. 특히 화강편마암의 경우, Eu의 이상이

제일 작은 MJ3-31.3 시료는 실험에 사용된 전 핵종에 대해 약한 흡착능을 갖는다. 비록 현저하지는 않지만, 암피블라이트의 경우에도 유사한 현상을 보여준다. 이와 같은 결과는 동일기원의 암상으로부터 지질매체라 할 지라도 희토류원소의 분포도에 따라 핵종의 흡착능이 서로 다를 수 있음을 보여주는 것이다.

5. 결 론

이 논문의 주목적은 고준위 방사성 핵종인 Am의 지질매체내 거동을 예측하기 위한 유사체로서 Eu이 최적이라는 가설과 더불어, Eu을 포함한 희토류원소와 액티나이드의 하나인 Am의 흡착능이 암상의 변화에 관계없이 항상 동일할 것이라는 설정을 실험적으로 검증하는 데 주안점을 두었다. 아울러 2가 이온인 Co의 핵종도 추가하여, 이들 핵종들의 흡착력에 영향을 주는 가장 중요한 인자를 추적하기 위한 실험을 수행하였다. 실험용 핵종으로는 ^{241}Am , ^{152}Eu , ^{160}Tb , 그리고

^{60}Co 을 이용하였다.

연구 결과, Am과 Eu 그리고 또 다른 희토류원소인 Tb은 지질매체의 종류에 관계없이 매우 유사한 흡착 특성을 보여주었다. 반면에 Co의 경우, 암상 및 화학 조성의 변화에 따라 흡착특성이 서로 크게 다르게 나타났다. 특히 이 연구결과에 의하면, 지질매체에 대한 핵종의 흡착력에 있어서 양이온 교환능이나 표면적과 같은 매질의 화학적/물리적 특성보다는 광물조성 및 화학조성에 의한 영향이 더 큰 것으로 조사되었다. 그리고 희토류원소의 분포도 중 Eu의 이상의 존재여부 또한 핵종의 흡착능과 상관성이 있는 것으로 나타났다. 이는 대수층내에서 방사성핵종의 흡착에 영향을 미치는 가장 중요한 요인은 매질의 비표면적 혹은 양이온 교환능과 같은 물리적/화학적 특성보다는 광물조성 혹은 화학조성과 같은 지질학적 및 지구화학적 인자임을 지시해준다고 볼 수 있다. 그러나 희토류원소의 분포도와 핵종의 흡착능에서의 보다 명확한 상관성을 밝혀내기 위해서는 향후 체계적인 연구가 필요하다고 본다. 이 연구결과는 지하수내에 용해되어 있는 방사성 핵종이 대수층을 따라 이동할 때 발생될 수 있는 지질매체별 거동 특성을 추적할 수 있는 자료 및 실험조건에 활용할 수 있다고 본다.

사 사

본 연구는 한국지질자원연구원 기본사업인 ‘청정 대용량 지하수자원 확보 기술개발(07-3211)’ 과제의 일환으로 수행되었다. 그리고 논문의 내용을 보완하는 데 있어서 유익한 지적을 해주신 익명의 세분 심사자들에게 깊은 사의를 표한다.

참고문헌

Angove, M.J., Johnson, B.B. and Wells, J.D. (1998) The influence of Temperature on the Adsorption of Cadmium(II) and Cobalt(II) on Kaolinite. *Jour. Colloid Interface Sci.* 204, 93-103.

Baik., M.H., Hyun, S.P., Cho, W.J. and Hahn, P. S. (2004) Contribution of minerals to sorption of U(IV) on granite. *Radiochim. Acta* 92, 663-669.

Bau, M. (1996) Controls on the fractionation of isovalent trace elements in magmatic and aqueous systems: evidence from Y/Ho, Zr/Hf, and lanthanide tetrad effect. *Contr. Mineral. Petrol.* 123, 323-333.

Bauer, A., Rabung, T., Claret, F., Schfer, T., Buckau, G. and Fang Hnel, T. (2005) Influence of temperature on sorption of europium onto smectite: The role of organic contaminants. *Appl. Clay Sci.* 30, 1-10.

Berry, J.A. and Bond, K.A. (1992) Studies of the Extent of Surface Diffusion in the Migration of Radionuclides through Geological Materials. *Radiochim. Acta*, 58/59, 329-335.

Buddemeier, R.W., Finkel, R.C., Marsh, K.V., Ruggieri, M.R., Rego, J.H. and Silva, R.J. (1991) Hydrology and Radionuclide at the Nevada Test Site. *Radiochim. Acta*, 52/53, 275-282.

Curti, E. (1999) Coprecipitation of radionuclides with calcite: estimation of partition coefficients based on a review of laboratory investigations and geochemical data. *Appl. Geochem.* 14, 433-445.

Emrn, A.T. (1993) The influence of heterogeneous rock chemistry on the sorption of radionuclides in flowing groundwater. *Jour. Contam. Hydro.* 13, 131-141.

Guitierrez, M.G., Bidoglio, G., Avogadro, A., Mingarro, E. and D'Alessandro, M. (1991) Experimental Investigations of radionuclide transport through cored granite samples. *Radiochim. Acta* 52/53, 213-217.

Heath, M. J., Montoto, M., Rodriguez rey, A., Ruiz de Argandoa, V. G. and Menendez, B. (1992) Rock Matrix Diffusion as a Mechanism of Radionuclide Retardation: A Natural Analogue Study of El Berrocal Granite, Spain. *Radiochim. Acta* 58/59, 379-384.

Henderson, P. (1984) Rare Earth Element Geochemistry: Developments in Geochemistry. Elsevier, Amsterdam-Oxford-New York-Tokyo, 510p.

Irber, W. (1999) The lanthanide tetrad effect and its correlation with K/Rb, Eu/Eu*, Sr/Eu, Y/Ho, and Zr/Hf of evolving peraluminous granite suites. *Geochim. Cosmochim. Acta* 63, 489-508.

Hilton, J., Nolan, L. and Jarvis, K.E. (1997) Concentrations of stable isotopes of cesium and strontium in fresh waters in northern England and their efforts on estimates of sorption coefficients (Kd). *Geochim. Cosmochim. Acta* 61, 1115-1124.

Johannesson, K.H., Zhou, X. and Stetzenbach, K.J. (1995a) Rare earth elements and groundwater mixing: An example from southern Nevada. *EOS*, 76, F276.

Johannesson, K.H., Stetzenbach, K.J. and Hodge, V.F. (1995b) Speciation of the rare earth element neodymium in groundwaters of the Nevada test sites and the Yucca Mountain and implications for the actinide solubility. *Appl. Geochem.* 10, 565-572.

Johannesson, K., Stetzenbach, K.J., Hodge, V.H. and Lyons, W.B. (1996) Rare earth element complexation behaviour in circumneutral pH groundwaters: Assessing the role of carbonate and phosphate ions. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 139, 305-319.

Johansson, B. and Rosengren, A. (1975) Interpolation scheme for the cohesive energies for the lanthanides and actinides. *Physic. Rev.*, B11, 1367-1373.

Kashparov, V.A., Protsak, V.P., Ahamdach, N., Stammose, D., Peres, J.M., Yoscheko, V.I. and Zvarich, S.I. (2000) Dissolution kinetics of particles of irradiated Chernobyl nuclear fuel: influence of pH and oxidation state on the release of radionuclides in the contaminated soil of Chernobyl. *Jour. Nuclear Mat.* 279, 225-233.

Krauskopf, K.B. (1986a) Aqueous geochemistry of radioactive waste disposal. *Appl. Geochem.* 1, 15-23.

Krauskopf, K.B. (1986b) Thorium and rare earth metals

- as analogs for actinide elements. *Chem. Geol.* 55, 323-335.
- Lee, K.Y., Yoon, Y.Y., Lee, S.G., Lee, D.H., Kim, Y. and Woo, N.C. (2001) Sorption of radionuclides on the container wall during batch migration studies. *Jour. Radioanal. Nuclear Chem.* 249, 271-278.
- Lee, S.G., Lee, D.H., Kim, Y., Chae, B.G., Kim, W.Y. and Woo, N.C. (2003) Rare earth elements as an indicator of groundwater environment changes in a fractured rock system: Evidence from fractured-filling calcite. *Appl. Geochem.* 18, 135-143.
- Lee, S.G., Kim, Y., Chae, B.G., Koh, D.C. and Kim, K.H. (2004) The geochemical implication of a variable Eu anomaly in a fractured gneiss core: application for understanding Am behavior in the geological environment. *Appl. Geochem.* 19, 1711-1725.
- Lee, S.G., Lee, K.Y., Cho, S.Y., Yoon, Y.Y. and Kim, Y. (2006) Sorption properties of ^{152}Eu and ^{241}Am in geological materials: Eu as an analogue for monitoring Am behaviour in heterogeneous geological environments. *Geosci. Jour.* 10, 103-114.
- Lipin, B.R. and McKay, G.A. (1989) *Geochemistry and Mineralogy of Rare Earth Elements. Reviews in Mineralogy*, vol. 21, Mineralogical Society of America, 348pp.
- Lippold, H., Miller, N. and Kupsch, H. (2005) Effect of humic acid on the pH-dependent adsorption of terbium(III) onto geological materials. *Appl. Geochem.* 20, 1209-1217.
- Masuda, A. (1975) Abundances of mono isotopic REE, consistent with the Leedy chondritic values. *Geochem. Jour.* 9, 183-184.
- Masuda, A., Nakamura, N. and Tanaka, T. (1973) Fine Structure of mutually normalized rare-earth patterns of chondrites. *Geochim. Cosmochim. Acta* 37, 239-248.
- McCarthy, J.F., Sanford, W.E. and Stafford, P.L. (1998) Lanthanide Field Tracers Demonstrate Enhanced Transport of Transuranic Radionuclides by Natural Organic Matter. *Environ. Sci. Technol.* 32, 3901-3906.
- Meece, D.E. and Benninger, L.K. (1993) The coprecipitation of Pu and other radionuclide with CaCO_3 . *Geochim. Cosmochim. Acta* 57, 1447-1458.
- Menard, O., Advocat, T., Ambroai, J. P. and Michard, M.A. (1998) Behaviour of the actinides (Th, U, Np and Pu) and rare earths (La, Ce, and Nd) during aqueous leaching of a nuclear glass under geological disposal conditions. *Appl. Geochem.* 13, 105-126.
- Metz, V., Kienzler, B. and Schler, W. (2003) Geochemical evaluation of different groundwater-host rock systems for radioactive waste disposal. *Jour. Contam. Hydro.* 61, 265-279.
- Neretnieks, I., Eriksen, T. and Thinen, P. (1982) Tracer Movement in a Single Fissure in Granitic Rock: Some Experimental Results and Their Interpretation. *Water Res. Res.* 18, 849-858.
- Pacheco, G., Nava-Galve, G., Bosch, P. and Bulbulian, S. (1995) ^{60}Co sorption-desorption in Mexican montmorillonites. *Jour. Radioanal. Chem. Lett.* 200, 259-264.
- Papelis, C. (2001) Cation and anion sorption on granite from the Project Shoal Test Area, near Fallen, Nevada, USA. *Advanced Environ.l Res.* 5, 151-166.
- Petit, J.-C. (1991) Natural Analogue Aspects of Radionuclide Transport in the Geosphere. *Radiochim. Acta* 52/53, 337-340.
- Runde, W., Conradson, S. D., Efurud, W., Lu, N-P, VanPelt, C. E. and Tait, C. D. (2002) Solubility and sorption of redox-sensitive radionuclides (Np, Pu) in J-13 water from Yucca Mountain site: comparison between experiment and theory. *Appl. Geochem* 17, 837-853.
- Sakuragi, T.S., Sato, S., Kozaki, T. (2002) Sorption of Eu(III) on Kaolinite in the presence of humic acid: Effects of Ionic Strength. *Chem. Lett.* 656-657.
- Sakuragi, T., Sato, S., Kozaki, T., Mitsugashira, T., Hara, M. and Suzuki, Y. (2004) Am(III) and Eu(III) uptake on hematite in the presence of humic acid. *Radiochim Acta* 92, 697-702.
- Samadfam, M., Jintoku, T., Sato, S., Ohashi, H., Mitsugashira, T. and Hara, M. (2000) Effects of humic acid on the sorption of Am(III) and Cu(III) on kaolinite. *Radichim. Acta* 88, 717-721.
- Saripalli, K.P., McGrail, B.P. and Girvin, D.C. (2002) Adsorption of molybdenum on to anatase from dilute aqueous solutions. *Appl. Geochem.* 17, 649-656.
- Schlegel, M.L., Charlet, L. and Manceau, A. (1999) Sorption of Metal Ions on Clay Minerals: II. Mechanism of Co Sorption on Hectorite at High and Low Ionic Strength and Impact on the Sorbent Stability. *Jour. Colloid Interface Sci.* 220, 392-405.
- Stipp, S.L.S., Lakstanov, L. Z., Jensen, J.T. and Baker, J.A. (2003) Preliminary results from coprecipitation experiments and observations with surface-sensitive techniques. *Jour. Contam. Hydro.* 61, 33-43.
- Sverjensky, D.A. (1984) Europium redox equilibria in aqueous solution. *Earth. Planet. Sci. Lett.*, 67, 70-78.
- Takahashi, Y., Kimura, T., Kato, Y., Minai, Y. and Tomimaga, T. (1998a) Characterization of Eu(III) Species Sorbed on Silica and Montmorillonite by Laser-Induced Fluorescence Spectroscopy. *Radichim. Acta* 82, 227-232.
- Takahashi, Y., Minai, Y., Kimura, T. and Tominga, T. (1998b) Adsorption of europium(III) and americium(III) on kaolinite and montmorillonite in the presence of humic acid. *Jour. Radioanal. Nuclear Chem.* 243, 277-282.
- Turin, H.J., Groffman, A.R., Wolfsberg, L.E., Roach, J.L. and Strietelmeier, B.A. (2002) Tracer and radionuclide sorption to vitric tuffs of Busted Butte, Nevada. *Appl. Geochem.* 17, 825-836.
- Wood, S.A., Middlesworth, P.V., Gibsson, P. and Ricketts, A. (1997) The mobility of REE, U and Th in geological environments in Idaho and their relevance to radioactive waste disposal. *Jour. Alloy. Comp.* 249, 136-141.