

## 국내 원전 부지 내 암석의 광물학적 특성 규명 및 풍화에 따른 방사성 세슘( $^{137}\text{Cs}$ )의 흡착 평가

### Effects of Weathering Processes on Radioactive Cesium Sorption with Mineral Characterization in Korean Nuclear Facility Site

장 세 은(Seeun Chang)<sup>1</sup> · 정 성 욱(Sungwook Choung)<sup>1</sup> · 엄 우 용(Wooyong Um)<sup>1,2,\*</sup> ·  
전 철 민(Chul-Min Chon)<sup>3</sup>

<sup>1</sup>포항공과대학교 첨단원자력공학부

(Division of Advanced Nuclear Engineering, Pohang University of Science and Technology (POSTECH), Korea)

<sup>2</sup>미국북서부연구소 에너지·환경과학부

(Energy and Environment Directorate, Pacific Northwest National Laboratory (PNNL), USA)

<sup>3</sup>한국지질자원연구원 지구환경연구본부

(Geologic Environment Division, Korea Institute of Geoscience and Mineral Resources (KIGAM), Korea)

**요약** : 원자력 발전소 중대사고에 의해 방사성 세슘( $^{137}\text{Cs}$ )이 지하수계로 유출될 경우를 가정하여, 연구 지역의 깊이에 따른 암석매질의 특성을 규명하고 세슘의 흡착계수를 정량적으로 평가하였다. 대상지역인 신고리 원전 3, 4호기의 지하 암석매질은 주로 석영 및 장석류로 이루어진 화강암 계열이며, 운모류를 10~20% 함유하고 있다. 비교적 얕은 심도(6.3~7.4 m)의 파쇄대에서 2차 광물인 녹니석이 일부 포함되어 있었지만, 기반암에서는 거의 발견되지 않았다.  $^{137}\text{Cs}$ 의 흡착분배계수( $K_d$ )는 파쇄대 지역에서 약 880~960 mL/g로 기반암 지역에서의 820~840 mL/g보다 비교적 높게 나타났으며, 이는 파쇄대에 포함되어 있는 풍화생성물인 2차 광물들에 의한 영향으로 판단된다. 따라서  $^{137}\text{Cs}$ 이 지하 매질로 유출될 경우 대부분은 천부 지역에 흡착되어 세슘에 의한 오염 확산 속도가 지연될 것이라고 예상되며, 이러한 결과는 원자력 발전소 안정성 평가인자 자료로 활용될 것으로 기대된다.

**주요어** : 방사성 세슘, 흡착, 파쇄대, 풍화작용, 녹니석, 운모류

**ABSTRACT** : This study was to characterize the minerals in fractured and bedrock zone, and determine quantitatively sorption for radioactive cesium ( $^{137}\text{Cs}$ ) at the Korean nuclear facility site. The rock samples were granite group that mainly consists of quartz and feldspar with 10~20% mica minerals. Chlorite was observed as secondary mineral for the rock samples collected from fractured zone, but not for bedrock samples. The  $^{137}\text{Cs}$  sorption distribution coefficients increased to  $K_d = 880\sim 960$  mL/g in the fractured zone because of the presence of secondary minerals formed by weathering processes, compared to the bedrock zone ( $K_d = 820\sim 840$  mL/g). These results suggest that the released  $^{137}\text{Cs}$  to groundwater environment could be significantly retarded in the fractured zone in the case of severe

\*Corresponding author: +1 (509) 372-6227, E-mail: wooyongum@postech.ac.kr

nuclear accident at the study site.

**Key words** : radioactive cesium, adsorption, fractured zone, weathering, chlorite, mica minerals

## 서 론

전 세계적으로 화석연료 자원의 고갈과 친환경 에너지에 대한 요구에 따라 많은 국가들이 원자력 에너지를 사용하고 있으며 원자력 발전의 중요성이 더욱 강조되고 있는 시기이다. 하지만, 최근 일본 후쿠시마 원자력 발전소 사고에서와 같이 원전 중대사고 발생 시 많은 양의 방사성 폐기물 및 핵종이 자연계에 유출되어 환경과 생태계에 심각한 문제를 야기할 수 있다. 특히, 후쿠시마 원전 사고의 경우 다량의 방사성 세슘( $^{137}\text{Cs}$ )이 자연계로 유출되었으며, 일본 원전 운영사인 도쿄전력은 사고 지점에서 2013년 중순 채취한 지하수 표본에서  $^{137}\text{Cs}$  농도가 약  $16 \times 10^9 \text{ Bq/L}$ 이 검출(일본의  $^{137}\text{Cs}$  환경 기준치 :  $90 \text{ Bq/L}$ )되었다고 보고하였다. 이는 2011년 원전 사고 직후를 뛰어넘는 수준의 농도로서 방사성 세슘이 지속적으로 토양 및 지하수 환경에 유출되는 상황임을 보여준다.

방사성 핵종 중  $^{137}\text{Cs}$ 은 우라늄(U) 및 플루토늄(Pu)이 중성자를 흡수하는 핵분열 과정에서 생성된다. 방사성 세슘은 베타 붕괴( $\beta$ -decay)를 거쳐 바륨(Ba)으로 전환될 때 감마선을 방출하기 때문에 세슘에 의한 일차적 위해는 주로 이 감마선 때문에 발생한다. 또한, 세슘의 생물학적 성질은 칼륨(K)과 비슷하기 때문에 호흡기를 통해 인체 내로 들어온 세슘은 칼륨과 쉽게 교환되어 인체 내 흡수된 후 축적된다. 핵분열 시 발생하는 다른 방사성 원소들과는 달리  $^{137}\text{Cs}$ 의 경우 반감기가 약 30.2년(Ishikawa *et al.*, 2007)으로 한번 자연계에 누출되면 오랜 기간 자연계에 잔존하며 생태계에 악영향을 끼치기 때문에 세슘오염에 의한 위험성은 상당히 심각하다. 후쿠시마 원전 사고와 같이 원자력 중대사고 등으로 인하여 방사성 핵종이 토양 및 지하수 환경으로 지속적으로 유입될 경우, 신속하고 효과적인 핵종 제거를 위하여 방사성 핵종의 정확한 지하 거동 경로에 관한 예측이 매우 중요하다.

방사성 핵종과 매질의 흡착(adsorption) 반응은 핵종의 환경 내 거동을 예측하기 위해 필수적으로

평가되어야만 하는 중요한 지구화학적 반응이다. 세슘의 흡착 메커니즘이나 흡착 속도는 암석 매질의 광물학적 특징이나 구조, 용질의 특성에 따라 다양한 형태를 보인다. Walton *et al.* (1984)은 화강암에 대한 양이온의 흡착실험을 한 결과 흡착 속도가 이중일차가역반응식을 만족한다고 보고하였고, Skagius *et al.* (1982) 등은 화강암에서 세슘의 흡착은 입자 내부로의 확산이 속도결정단계로 작용한다고 결론지은 바 있다. 나아가 Park *et al.* (1994)은 응회암(tuff)을 이용하여 세슘이온의 다중수착메커니즘을 발견한 바 있다. 그러나 세슘은 주로 암석 매질 내 2차 광물에 선택적으로 흡착한다고 알려져 있으며(Anderson, 1983; Oscarson *et al.*, 1987; Cornell, 1993; Bunzl *et al.*, 1998), 석영(quartz), 인회석(apatite), 형석(fluspar), 방해석(calcite), 석고(gypsum) 등에는 그 흡착능이 매우 낮은 것으로 알려져 있다(Torstenfelt *et al.*, 1982). 또한, 세슘은 철산화물(iron-oxides)과도 낮은 흡착 반응을 보이는데, 이는 대상 환경의 pH 조건에 의해 달라질 수 있다. 예를 들어, 산성 환경에서는 음전하를 띠는 흡착위치(negatively charged complexation sites)가 감소하여 철산화물의 표면전하가 변화할 수 있으며, 이로 인하여 세슘의 흡착이 감소할 수 있다(EPA, 1999). 실제로 Prout (1958)는 미국 캐롤라이나 남부 지역의 토양을 대상으로 실험한 결과 pH 6 이하의 환경에서 세슘의 흡착력이 급격히 감소한다고 보고하였다. 하지만, 점토광물인 몬모릴로나이트(montmorillonite), 질석(vermiculite), 흑운모(biotite), 일라이트(illite), 고령석(kaolinite), 녹니석(chlorite) 등은 표면적이 크고 높은 이온교환 능력을 가지고 있어서 세슘의 흡착에 매우 효율적이며, 현재까지 세슘의 많은 흡착 연구는 점토광물을 이용하여 집중적으로 수행되었다(Torstenfelt *et al.*, 1982; Andersson *et al.*, 1983; Cornell, 1993; Zachara, *et al.*, 2002; Cha *et al.*, 2006; Ishikawa *et al.*, 2007).

본 연구는 국내 원자력 발전소 운영 기간 중 배수관로의 노후화 및 원전 중대사고 등 의도치 않은 원인으로 인하여 액체 방사성 폐액이 지하수계로 유출될 경우를 가정하여, 원전 부지를 구성하

는 암석 매질의 광물학적 특성을 규명하고 <sup>137</sup>Cs의 거동 예상경로의 수직범위에 따른 암석 매질과의 흡착 반응을 평가하고자 하였다. 특히, <sup>137</sup>Cs에 대해 흡착력이 강한 점토광물들은 풍화 작용 등에 의해 형성될 수 있으므로, 원자력 발전소 부지의 암석 매질 중 풍화에 의해 영향을 받을 수 있는 비교적 얇은 심도의 파쇄대를 구성하는 암석에서 <sup>137</sup>Cs의 흡착 영향이 더욱 크게 나타날 수 있다. 따라서 본 연구는 현재 건설 중인 신고리 원전 3, 4호기 부지의 파쇄대 및 기반암 구간에서 채취한 암석 시료를 이용하여 <sup>137</sup>Cs의 흡착 실험을 수행하고, 암석 매질에 따른 <sup>137</sup>Cs의 흡착 결과를 비교 분석하였다.

## 시료 및 연구 방법

### 연구 지역 및 시료 준비

본 연구 지역은 신고리 원전 3, 4호기 건설 예정 부지로서 울산광역시 울주군 서생면 신암리 일원에 위치한다. 연구 지역의 지하 암석매질에 발달된 암반연약파쇄대와 지질학적 모양으로 구성된 기반암의 광물학적 형태에 따른 <sup>137</sup>Cs의 흡착 특성을 파악하기 위해 신고리 3호기와 4호기 원전 부지 내의 두 지점에서 깊이에 따른 시추암석 시료와 지하수시료를 채취하여 흡착 반응 실험에 사용하였다. 각각의 시료 정보와 암석 채취 심도는 표 1에 나타내었다.

### 암석 시료의 특성 및 지하수 시료의 수질 분석

채취심도별(기반암, 파쇄대)로 시추된 암석시료의 물리적 특성을 규명하기 위하여 절대건조밀도, 진밀도 및 공극률을 분석하였다. 절대건조밀도와 진밀도는 산업자원부 기술표준원에서 제정한 KS F 2503의 ‘굵은 골재의 밀도 및 흡수율 시험 방법’에 따라 측정하였으며, 암석의 공극률은 한국 지질자원연구원에 의뢰하여 측정하였다. 흡착 실험을 위하여 모든 암석시료들은 입자 크기 < 2 mm 이하로 분쇄되었으며, 분쇄된 입자들은 입자 크기별로 세분화(< 75 μm, 75~500 μm, 500 μm~1 mm, > 1 mm) 되었다. 분쇄된 시료 중 < 1 mm 이하의 시료는 암석의 구성 성분, 광물 조성 분석을 위한 XRF (X-ray Fluorescence Spectrometer), XRD (X-ray Diffraction) 분석에 사용되었

고, 75~500 μm 시료들은 총탄소함량(Total carbon) 분석 및 <sup>137</sup>Cs 회분식 흡착 실험에 이용되었다.

지하수 시료는 신고리 원전 3, 4호기 부지 내 시추공에서 채취되었다. 기본적인 수질인자(pH, 전기전도도, 용존산소)는 시료를 획득한 직후 측정되었다. 채취된 지하수 시료의 주요 양이온과 음이온 성분은 지하수를 0.45 μm 멤브레인 필터로 여과한 후, 각각 ICP-OES (Inductively Coupled Plasma-Optical Emission Spectrometer)와 IC (Ion Chromatography)를 이용하여 분석되었으며, 총용존탄소량(Total Dissolved Carbon)은 탄소분석기(Shimadzu, TOC-V)를 이용하여 측정되었다. 단, 주요 음이온 중 중탄산염(HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>)의 농도는 pH 측정법을 이용한 알칼리도(alkalinity)를 측정하여 분석되었다. 흡착 실험에 사용된 지하수 시료는 각 원전 부지에서 채취된 시료의 수질 성분을 바탕으로 합성된 인공지하수를 사용하였으며, 제조된 인공지하수는 실험 기간 동안 변화를 최소화하기 위하여 4℃에 보관하였다.

### 핵종(<sup>137</sup>Cs)의 준비 및 암석 시료의 전처리

<sup>137</sup>Cs의 표준 시약은 미국 표준과학 기술연구소(National Institute of Standard and technology [NIST])에서 구입하였으며, 제조된 합성 지하수를 이용해 희석한 후 최소 48 h 동안 반응시켜 평형 상태를 이룬 후 실험에 사용하였다. <sup>137</sup>Cs의 초기 및 최종 농도는 감마선 계측기를 이용하여 측정하였다.

흡착 반응 실험에 사용된 암석 시료는 파쇄대 시료인 3PM-6.3, 4PM-6.6과 기반암 시료인 3PM-13.4, 4PM-12.8이다(표 1). 흡착 매질인 암석시료를 실험에 사용 시 흡착 반응 중 암석 내 불순물을 생산하거나 코팅형태로 존재하는 광물의 용해 반응이 발생할 수 있으며, 이 때문에 생성되는 2차 원소는 반응 초기용액의 pH 및 화학적 변화를 일으킬 수 있다. 따라서 흡착반응 동안 지하수의 초기 pH 및 화학적 조건과 유사하게 유지시키기 위하여 합성 지하수를 이용하여 암석시료를 미리 세척함으로써 시료로부터 쉽게 용해되어 나올 수 있는 원소들을 사전에 제거하였다. 흡착실험에 사용된 암석시료 약 10.0 g을 200 mL의 인공지하수와 섞은 후, 상온(25℃)에서 항온 교반기를 이용하여 1~2 h간 교반하였다. 교반 후 원심분리기(6,000 rpm, 30 min)를 사용하여 상등액을 분리하

**Table 1.** Information of Rock and Groundwater Samples Collected from Both Shin-gori 3 and 4 Reactor Sites

Sampling site	Sample name	Collected depth (m)	Remarks
Shin-gori 3	3PM-6.3	6.3~7.0	Fractured zone
	3PM-13.4	13.4~14.2	Bedrock
	3PW	3.36*	Groundwater
Shin-gori 4	4PM-6.6	6.6~7.4	Fractured zone
	4PM-12.6	12.6~13.3	Bedrock
	4PW	4.31*	Groundwater

\* Groundwater level

고 피펫을 사용하여 상등액만 조심스럽게 제거하였다. 제거된 상등액의 pH를 측정하여 초기 인공 지하수의 pH 측정값과 큰 차이가 없을 때까지 위의 세척과정을 3~4회 반복하여 실시하였다. 인공 지하수를 사용하여 세척이 완료된 암석시료를 30~40°C에서 24 h 건조시킨 후 흡착실험에 사용하였다.

#### 흡착 반응 실험

<sup>137</sup>Cs의 신고리 원전 3, 4호기 파쇄대 및 기반암 암석 매질에 대한 흡착 실험은 미국 북서부연구소의 보고서(Relyea *et al.*, 1980; Um, 2005) 및 미국 재료 시험 협회(ASTM, 2001)에 기술된 과정에 따라 수행되었다. 실험에 사용된 <sup>137</sup>Cs의 초기 농도는 기존에 보고되어진 보고서를 토대로 100 Bq/mL로 적정하였으며, 이는 발전소의 보관탱크 내 존재하는 세슘의 농도, 지하수에서의 세슘의 용해도, 감마선 계측기의 신뢰 측정 한계 등이 고려된 값이다(Kim, 2009; Back, 2011). 회분식 흡착 실험에서 이용된 용액에 대한 고체 시료의 비율은 20 mL/g으로 설정하였다(Um, 2005; Um *et al.*, 2007).

15 mL 용량의 원심분리용기에 전처리된 암석 시료 0.5 g과 세슘과 기평형 상태를 이룬 인공지하수 10 mL를 첨가하여 실온에서 10일 동안 교반시켰다. 기존의 참고문헌(Huitti *et al.*, 1998; Um and Papelis, 2004; Vejsada, 2006; Um *et al.*, 2007)에 의해 10일 간의 반응 시간은 흡착이 평형상태에 도달하기에 충분하다고 사료되며, 동일한 반응 시간 조건에서 핵종의 흡착 시료 이외에 핵종이

첨가되지 않은 용액 시료와 암석 시료가 첨가되지 않은 배경시료를 각각 별도로 준비하였다. 이는 순수 암석 시료로부터 용출될 수 있는 세슘의 농도와 반응 시 용기 벽면에 흡착되어 손실되는 세슘의 양을 도출하기 위함이며, 이때 분석된 핵종의 농도를 감마선 계측기의 바탕값으로 사용하였다. 흡착 반응이 종료된 시료는 30 min간 6,000 rpm에서 원심분리한 후 상등액을 분리하여 pH를 측정하였으며, 이를 다시 0.45 μm 주사기 필터로 여과시켜 최종 세슘의 농도 측정에 사용하였다. 모든 과정은 연구실 내 방사선 통제구역에서 진행되었으며, 결과의 신뢰도 확보를 위해 실험을 3회 반복 실시하였다. <sup>137</sup>Cs의 흡착분배계수( $K_d = C_s/C_w$ , 여기서  $C_w$ 는 용액 내 세슘의 농도이고,  $C_s$ 는 매질에 흡착된 세슘의 농도이다)값을 정량하기 위하여 3회 실험 결과의 평균값을 이용하였다. 화학평형 조건 하에서 고체 매질에 흡착된 핵종의 농도와 용액 속에 존재하는 핵종의 농도 사이의 분배 계수인  $K_d$  값은 다음 식으로 계산될 수 있다:

$$K_d = \frac{(C_0 - C_w) V_w}{C_w m_s} \quad (1)$$

여기서  $C_0$  (mol/mL)는 핵종의 초기 농도이고,  $C_w$  (mol/mL)는 평형상태에서 용액 내의 핵종의 농도이다.  $V_w$  (mL)는 용액의 부피이고,  $m_s$  (g)은 사용된 고체 시료의 질량이다.

#### 방사성 세슘(<sup>137</sup>Cs)의 분석 방법

감마선 방출 핵종인 <sup>137</sup>Cs의 농도는 미국 Can-

**Table 2.** Density, Porosity, and Total Carbon Contents of Rock Samples

Rock Samples	Absolute dry density (g/cm <sup>3</sup> )	True density (g/cm <sup>3</sup> )	Porosity (%)	Total carbon (mg/kg)
3PM-6.3	3.26	3.30	1.13	120.7
3PM-13.4	3.20	3.23	0.86	94.82
4PM-6.6	3.21	3.26	1.42	93.45
4PM-12.6	3.22	3.24	0.61	51.29

**Table 3.** The Mineral Composition of Rock Samples (wt%)

Sample name	Quartz	Albite	Orthoclase	Muscovite	Biotite	Chlorite	Actinolite
3PM-6.3	24.2	33.5	16.3	10.8	7.5	3.0	4.7
3PM-13.4	36.5	36.4	14.7	7.2	2.8	0.0	2.4
4PM-6.6	22.2	39.0	19.0	6.0	3.0	6.0	4.8
4PM-12.6	24.5	33.4	20.2	7.9	6.9	3.8	3.3

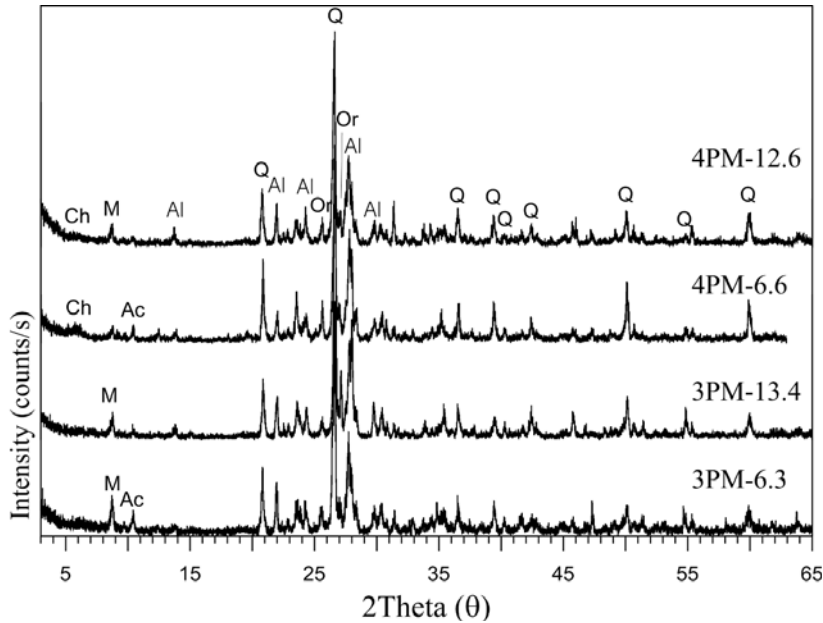
berra사의 GC4020 감마에너지 분석기(Gamma Energy Analysis [GEA])를 이용하여 측정하였다. GEA 분석은 초순도의 게르마늄(Ge) 검출기를 사용하며 계측효율은 40~100%이다. 검출기는 미국 NIST에서 제공하는 10가지의 표준 핵종 시료를 검출기 상단에 올려놓고 2 h 동안 감마선 스펙트럼을 측정하여 감마선 에너지 보정 및 계측효율을 구한 후 사용한다. 표준 핵종 및 흡착 시료들은 20 mL 유리 섬광 용기에 핵종 시료 2.0 mL를 넣어서 준비한다. 모든 시료의 감마 스펙트럼 분석 및 보고는 Canberra사의 Genie 2K Gamma Acquisition and Analysis Software (ver. 3.2.1)를 이용하였고, 검출기 보정 및 계측효율은 <sup>137</sup>Cs을 분석하기 전에 실시하였다. GEA의 효율과 세슘의 방출율, 분석에 사용된 시료의 부피를 이용하여 시료의 방사능 농도(Bq/mL)를 계산하였다. 시료의 최종 세슘 농도는 측정 결과 농도 값에서 같은 조건 하에서 측정된 바탕 농도를 뺀 값으로 결정하였다. <sup>137</sup>Cs에 대한 GEA의 신뢰 측정한계는 1.7E-02 Bq/mL이다.

## 결과 및 토의

### 암석 시료의 물리·광물학적 특성

기반암 및 파쇄대 시료에 대해 측정된 절대건조 밀도, 진밀도, 공극률 및 총탄소함량의 결과를 표 2에 나타내었다. 측정된 시료의 밀도는 3.20~3.30 g/cm<sup>3</sup> 범위로 채취 심도에 상관없이 매우 유사한 분포를 보여주지만, 공극률의 경우 파쇄대 시료가 기반암 시료에 비해 약 2배 정도 높은 값을 나타낸다. 이는 지질학적으로 심부보다 파쇄대 구간(채취 심부 6.3~7.4 m)에 절리가 더 발달했기 때문인 것으로 사료된다. 또한, 신고리 3, 4호기 신축 부지 암석 시료의 총탄소함량 분석 결과 각각의 부지에서 기반암보다 파쇄대 암석 시료에서 높은 탄소 함량을 보여주었다. 파쇄대의 높은 탄소 분포는 파쇄대 구간에 발달된 절리의 틈 사이로 탄소를 함유하는 물질이 침투되어 암석의 표면과 반응 후 방해석과 같은 2차 광물이 형성되거나 유기물 코팅 생성 가능성을 보여준다.

모든 암석 시료들은 주로 밝은 색을 띠고 있으나 파쇄대 시료의 경우 철산화물에 의해 부분적으로 검붉게 나타났다. 분석된 암석 시료는 대부분 유사한 광물조성을 나타내었으며, 주된 광물 성분이 석영 및 조장석으로 나타나 화강암 계열임을



**Fig. 1.** Results of XRD analysis for each rock sample (Q: Quartz; Al: Albite; Or: Orthoclase; M: Mica; Ch: Chlorite; Ac: Actinolite).

**Table 4.** The Chemical Composition of Rock Samples from XRF Analysis (wt%)

Sample name	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> *	K <sub>2</sub> O	MgO	MnO	Na <sub>2</sub> O	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	SiO <sub>2</sub>	TiO <sub>2</sub>	L.O.I.**	Total
3PM-6.3	14.5	4.53	5.63	2.51	2.37	0.111	3.05	0.116	66.8	0.641	0.902	101
3PM-13.4	13.3	3.04	3.81	3.05	1.14	0.063	3.57	0.085	72.2	0.390	0.761	101
4PM-6.6	13.5	3.38	4.46	3.06	1.81	0.088	3.23	0.097	69.7	0.486	1.49	101
4PM-12.6	13.7	3.15	3.60	3.57	1.39	0.066	3.14	0.074	71.6	0.427	0.764	101

\* Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: Total Fe

\*\* L.O.I: Loss of ignition

지시하였다(표 3, 그림 1). 신고리 원전 3호기 및 4호기 부지에서 채취된 파쇄대 및 기반암 시료에 대한 성분 분석 결과 규산화물(SiO<sub>2</sub>)이 약 67~72%로 가장 높게 나타나며, 전체 장석류 대비 정장석의 무게비가 약 30% 내외로 분석된 시료들은 화강 섬록암으로 분류할 수 있다(표 4). 모든 암석 시료에 철 성분을 함유하는 운모류와 감섬석의 일종인 녹섬석(actinolite)이 함유되어 있으며, 특히 각각의 부지에서 채취된 파쇄대 시료(3PM-6.3, 4PM-6.6)의 경우 2차 광물인 녹니석(chlorite)이 각각 3.0%, 6.0%로 기반암 시료에 비해 높게 나타났다. 또한 화학분석 결과 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(각각 5.63%,

4.46%)와 함께 CaO의 함량(각각 4.53%, 3.38%)이 비교적 높은 값을 보여주었으며, 이는 파쇄대의 절리면에 발달한 산화철 및 풍화에 의한 2차 광물의 일부 증진 가능성을 제안한다(Tromp, 1995; Tuttle and Klett, 1996).

#### 지하수 시료의 특성

신고리 원전 3호기와 4호기에서 채취된 지하수 시료(3PW, 4PW)의 기본 수질 인자와 주요 화학이온종의 농도는 표 5에 나타내었다. 지하수의 pH는 중성에 가까운 약알칼리성이었으며, 주된 지하

**Table 5.** Water Quality Parameters and the Measured Concentrations of Major Ions in the Groundwater Samples

	3PW	4PW
Groundwater Quality Parameters		
pH	7.70	7.81
EC <sup>1</sup> (μS/cm)	238.7	186.1
DO <sup>2</sup> (mg/L)	3.98	4.90
TC <sup>3</sup> (mg/L)	37.73	30.79
Anions (mg/L)		
F	0.350	0.426
Cl	39.7	58.2
NO <sub>3</sub>	13.4	0.270
SO <sub>4</sub>	102	60.4
HCO <sub>3</sub>	148	94.2
Cations (mg/L)		
K	6.00	2.20
Na	69.5	51.7
Ca	29.6	27.2
Mg	14.6	11.4
Fe	<0.1	<0.1

<sup>1</sup> EC : electric conductivity

<sup>2</sup> DO : dissolved oxygen

<sup>3</sup> TC : total dissolved carbon

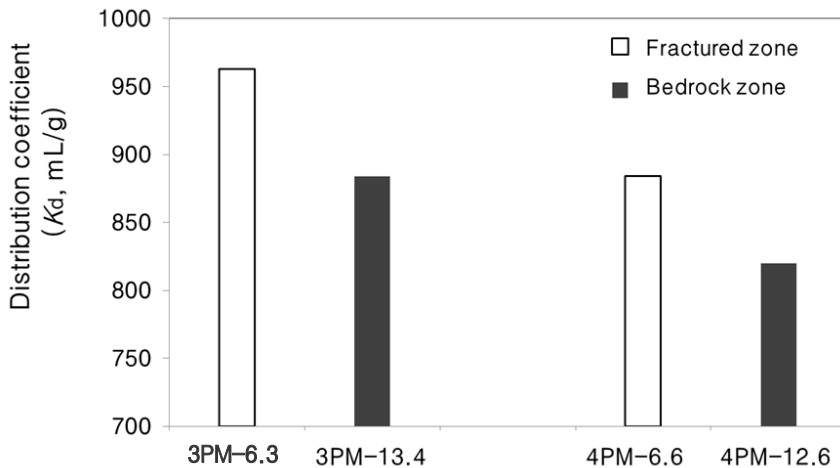
수 유형은(Na, HCO<sub>3</sub>)형으로 분석되었다.

이와 더불어 분석된 지하수의 주요 이온농도 및 흡착 실험에서 사용된 <sup>137</sup>Cs의 농도를 이용하여 신고리 원전 부지의 지하수 환경에서 우세한 세슘의 화학종(species)을 지하학적 모델 코드인 PHREEQC (Parkhurst and Appelo, 1999)를 통하여 분석하였다. 지하학 모델링 결과 신고리 원전 지하수 환경으로 방사성 세슘이 유출될 경우, 세슘은 대부분 자유 이온 상태(Cs<sup>+</sup> [99.9%], CsCl [0.1%])로 존재하는 것으로 나타났다.

### 흡착 실험 결과

본 연구에서 평가된 암석 시료에 대한 <sup>137</sup>Cs의 평균흡착분배계수 값을 그림 2에 도시하였다. 세슘의 K<sub>d</sub> 값은 모든 암석 시료에서 820~960 mL/g의 범위를 나타내 높은 흡착계수를 지시하였는데, 이는 분석된 암석 시료들의 구성 광물 중 운모류 등의 층상규산염광물의 높은 흡착능력의 영향으로 사료된다. 비록 이들 광물들의 함량은 분석된 암석 시료들의 주된 구성 광물인 석영과 장석류(60~70%)보다 최대 약 7배까지 낮은 값을 보여 주지만, 세슘에 대한 운모류의 흡착분배계수는 기존 연구결과에 따르면 석영과 장석류보다 10~1000배까지 증가할 수 있다(Akiba *et al.*, 1989; Torstenfelt *et al.*, 1982).

하지만, <sup>137</sup>Cs의 흡착 분배계수 값들은 시료의



**Fig. 2.** Comparison of <sup>137</sup>Cs sorption distribution coefficients between the rock samples collected from the fractured and bedrock zone.

채취 지역에 상관없이 모두 파쇄대 구간에서 채취한 암석 시료에서 기반암보다 다소 높게 나타났으며, 신고리 4호기 부지에서 채취한 암석 시료들의 경우 기반암 시료가 파쇄대 시료보다 높은 운모류의 함량 값을 보여주었다. 녹니석은 모든 파쇄대 시료들에서 관찰되는 반면, 기반암 시료들에서는 거의 나타나지 않거나 현저히 적은 함량을 보여준다(표 3). 이러한 결과는 파쇄대 구간이 기반암보다 풍화 작용에 더욱 노출되어 있다는 점을 고려할 때, 본 연구지역에서 녹니석이 주요 광물들 중의 하나인 운모류의 풍화에 의해 형성되었음을 간접적으로 암시한다. 따라서 본 연구지역의 지하수 환경에서 가장 우세한 세습 종으로 존재하는  $Cs^+$ 에 대해 풍화 생성 2차 광물인 녹니석은 운모류와 함께 주요한 흡착 광물로서 작용할 수 있다.

풍화생성물 중 하나인 방해석 및 철산화물이 일부 파쇄대 구간에서 관찰되었는데, 이러한 물질들이 방사성 세습의 흡착에 영향을 미칠 수 있다. 특히, 철산화물의 경우 염기성 환경에서 세습에 대해 높은 흡착력을 보일 수 있다(EPA, 1999). 하지만, 본 연구의 대상 지역인 신고리 3, 4호기 원자력 발전소 부지의 지하수는 pH 7.7~7.8의 약알칼리성으로서 환경에 존재하는 철산화물의  $^{137}Cs$ 에 대한 흡착 능력은 제한적일 것으로 판단된다. 또한, 본 연구지역에서 채취된 모든 암석 시료들은 비교적 높은 탄소함량을 보여주었는데, 이러한 탄소기반 유기물 역시 암석 시료에 대한  $^{137}Cs$  흡착 반응을 제한시킬 가능성이 있다.

장기적인 관점에서 흑운모는 파쇄대 구간에서 백운모에 비해  $^{137}Cs$ 에 대하여 더욱 중요한 흡착 광물로서 기능할 수 있는데, 이는 백운모의 경우 이팔면체 구조로서 삼팔면체 구조인 흑운모에 비하여 전하밀도가 높고 세습에 대한 흡착 선택성(selectivity)이 크지만 흑운모는 백운모보다 풍화에 취약하여 세습의 흡착에 유리하기 때문이다(Cornell, 1993; Zachara *et al.*, 2002). Kim *et al.* (2006, 2007)는 흑운모가 풍화 작용의 영향을 받아 일라이트(illite)와 같이 칼륨(K)이 빠져나간 모서리(frayed edge)에 유사한 크기의 세습이 우선적으로 흡착한다고 제안한 바 있다. 따라서, 본 연구 지역에서 원전중대사고 등이 발생하여  $^{137}Cs$ 이 지하수 환경으로 노출될 경우 세습의 흡착 반응은 파쇄대 구간에서 효율적으로 지연될 수 있다.

## 결론 및 제언

본 연구는 현재 건설 중인 신고리 원전 3, 4호기 원자력 발전소 부지의 파쇄대 및 기반암 지역에서 채취한 암석 시료의 광물학적 특성을 밝히고,  $^{137}Cs$ 의 흡착 특성을 평가하기 위하여 수행되었다. 본 연구를 통한 결과 및 결론은 다음과 같이 요약할 수 있다:

1) 신고리 원전 3, 4호기 건설 부지의 파쇄대와 기반암 구간에서 채취한 암석 시료들은 모두 약 10~20% 운모류를 함유하고 있는 화강암 계열로 분석되었다. 특히 파쇄대 구간의 암석 시료들은 붉은 색을 지닌 철산화물과 3~6%의 녹니석 함량을 나타내 천부 심도(6.3~7.4 m)에 위치하는 파쇄대 구간에서 광물 풍화가 진행되었음을 시사한다.

2) 신고리 원전 3, 4호기 모두 기반암 시료에 비해 파쇄대 시료에서  $^{137}Cs$ 에 대하여 더 높은 흡착 분배계수 값을 나타냈으며, 이는 파쇄대에 존재하는 2차 광물인 녹니석에 의한 영향으로 판단된다.

3) 신고리 원전 3, 4호기 부지에서 방사성 액체 폐액을 보관하는 옥외 보관 탱크가 예기치 못한 원인으로 파괴되거나 원전 중대사고 발생 시, 지하수 환경으로 유출되는  $^{137}Cs$ 은 비교적 얕은 심도에 분포하는 파쇄대 구간에서 그 수직 흐름이 흡착에 의해 지연될 수 있다.

본 연구는 광물학적 관점에서  $^{137}Cs$ 의 흡착 상관관계를 해석하였지만, 실제 현장에서 세습의 오염이나 거동을 평가하기 위해서 고려해야 하는 조건은 매우 다양하다. 예를 들면, 일반적으로 지하수 환경에 존재할 수 있는 휴믹산 등의 유기물은 광물의 표면에 수착되어 세습의 광물 흡착을 방해한다고 알려져 있다. 본 연구지역의 암석 시료들의 총유기탄소함량은 신고리 원전 4호기 부지 기반암을 제외하고는 모두 > 90 mg/kg의 비교적 높은 값을 나타낸다. 따라서 이들이  $^{137}Cs$ 의 운모류나 녹니석에 대한 흡착에 미치는 영향에 관한 세부적인 분석이 요구된다. 세습의 광물에 대한 흡착 반응은 매질의 유기물 함량, 점토 함량 이외에도 양이온교환능력 등과 같은 물리화학적 요인, 지하수 내 존재하는 다른 이온과의 경쟁 등에 의해서도 영향을 받기 때문에(Anderson, 1983; Lee *et al.*, 1997), 명확한  $^{137}Cs$ 의 흡착 메커니즘을 파악하기 위해서는 이와 같은 영향을 고려한 다양한



실험을 통한 전반적인 이해가 필요하다.

## 사 사

이 논문은 2012년도 (주)동아 컨설팅의 “신고리 3, 4 호기 실내수리분산 및 핵종 흡착 실내 실험”의 연구 용역과제에 의하여 수행되었다. 논문을 세심하게 검토하여 주신 익명의 심사위원들께 감사드린다.

## 참고문헌

- Back, M.H. (2011) Batch experiments of Radionuclide behavior at Shin-wolsung 1 and 2 reactor sites : Adsorption and Hydrodynamic Dispersion test, Report, Korea Atomic Energy Research Institute (in Korean).
- Kim, S.S. (2009) Batch experiments of Radionuclide behavior at Shin-gori 1 and 2 reactor sites : Adsorption and Hydrodynamic Dispersion test, Report, Korea Atomic Energy Research Institute (in Korean).
- Akiba, D. Hashimoto, H., and Kanno, T. (1989) Distribution coefficient of cesium and cation exchange capacity of minerals and rocks, *Journal of Nuclear Science and Technology*, 27, 275-279.
- Anderson, K. (1983) Transport of Radionuclides in Water/Mineral Systems, Chalmers University of Technology.
- ASTM (2001) Standard Test Method for Distribution Ratios by the Short-Term Batch Method, ASTM D4319-93, American Society of Testing Materials, USA.
- Bunzl, K., Kracke, W., Schimmack, W., and Zelles, L. (1998) Forms of fallout <sup>137</sup>Cs and <sup>239+240</sup>Pu in successive horizons of a forest soil, *Journal of Environmental Radioactivity*, 39(1), 55-68.
- Cha, H.J., Kang, M.J., Chung, G.H., Choi, G.S., and Lee, C.W. (2006) Accumulation of <sup>137</sup>Cs in soil of different bedrock geology and textures, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 267, 349-355.
- Cornell, R.M. (1993) Adsorption of cesium on minerals: A review, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 171(2), 483-500.
- EPA (1999) Understanding variation in partition coefficient, K<sub>d</sub>, values, Volume II: Review of Geochemistry and Available K<sub>d</sub> values for Cadmium, Cesium, Chromium, Lead, Plutonium, Radon, Strontium, Thorium, Tritium (<sup>3</sup>H), and Uranium, United States Environmental Protection Agency, EPA 402-R-99-004B, 5.1.8.
- Huittinen, T., Hakkanen, M., and Lindberg, A. (1998) Sorption of Cesium on Olkiluoto Mica Gneiss, *Granodiorite and Granite*, POSIVA 98-11, POSIVA Oy, Helsinki.
- Ishikawa, N.K., Uchida, S., and Tagami, K. (2007) Distribution coefficients for <sup>85</sup>Sr and <sup>137</sup>Cs in Japanese agricultural soils and their correlations with soil properties, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 277(2), 433-439.
- Kim, Y., Cho, S., Kang, H.D., Kim, W., Lee, H.R., Doh, S.H., Kim, K., Yun, S.G., Kim, D.S., and Jeong, G.Y. (2006) Radiocesium reaction with illite and organic matter in marine sediment, *Marine Pollution Bulletin*, 52, 659-665.
- Kim, Y., Kim, K., Kang, H.D., Kim, W., Doh, S.H., Kim, D.S., and Kim, B.K. (2007) The accumulation of radiocesium in coarse marine sediment: Effects of mineralogy and organic matter, *Marine Pollution Bulletin*, 54(9), 1341-1350.
- Lee, M.H., Lee, C.W., and Boo, B.H. (1997) Distribution and characteristics of <sup>239,240</sup>Pu and <sup>137</sup>Cs in the soil of Korea, *Journal of Environmental Radioactivity*, 47, 1-16.
- Oscarson, D.W., Watson, R.L., and Miller, H.G. (1987) The interaction of trace levels of cesium with montmorillonitic and illitic clays, *Applied Clay Science*, 2, 29-39.
- Park, C.K., Hahn, P.S., and Park, H.H. (1994) *Journal of Korean Nuclear Society*, 26, 461.
- Parkhurst, D.L. and Appelo, C.A.J. (1999) User's guide to PHREEQC (ver. 2)-A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations, USGS, Water-Resources Investigation Report 99-4259.
- Prout, W. E. (1958) Adsorption of Radioactive Wastes by Savannah River Plant Soil, *Soil Science*, 84, 13-17.
- Relyea, J.F., Serne, R.J., and Rai, D. (1980) Methods for determining radionuclide retardation factors, Pacific Northwest National Laboratory, PNL-3349.
- Skagius, K., Svedberg, G., and Neretnieks, I. (1982) *Nuclear Technology*, 59, 302.
- Torstenfelt, B., Allard, B., and Andersson, K. (1982) Sorption of strontium and cesium on rocks and minerals, *Chemical Geology*, 36, 123-137.
- Tromp, D.E. (1995) Clays as indicators of depositional and diagenetic conditions in Pennsylvanian black shales, Paradox Basin, Utah and Colorado. Master's Thesis, Colorado School of Mines.
- Tuttle, M.L. and Klett, T.R. (1996) Geochemistry of two interbeds in the Pennsylvanian Paradox Formation, Utah and Colorado: a record of deposition and diagenesis of repetitive cycles in a marine basin. In: Huffman, A.D. (Ed.).

- Um, W. (2005) Sorption and transport behavior of radionuclides in the proposed low-level radioactive waste disposal facility at the Hanford Site, Washington, *Radiochemica Acta*, 93, 57-63.
- Um, W. and Papelis, C. (2004) Metal ion sorption and desorption on zeolitized tuffs from Nevada Test Site, *Environmental Science and Technology*, 38(2), 496-502.
- Um, W., Serne, R.J., Brown, C.F., and Last, G.V. (2007) U(VI) adsorption on 200-UP-1 aquifer sediments at the Hanford Site, *Journal of Contaminant Hydrology*, 93, 255-269.
- Vejsada, J. (2006) The uncertainties associated with the application of batch technique for distribution coefficients determination-A case study of cesium adsorption on four different bentonites, *Applied Radiation and Isotopes*, 64, 1538-1548.
- Walton, F.W., Melnyk, T.W., Ross, J., and Skeet, A. (1984) Radionuclide Sorption Mechanisms and Rates on Granitic Rock, ACS symposium Series, 246, 46.
- Zachara, J.M., Smith, S.C., Liu, C., McKinley, J.P., Serne, R.J., and Gassman, P.L. (2002) Sorption of Cs<sup>+</sup> to micaceous subsurface sediments from the Hanford Site, USA, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 66(2), 193-211.
- 
- 접수일(2013년 9월 23일), 수정일(1차 : 2013년 9월 26일),  
게재확정일(2013년 9월 26일), 책임편집위원 : 이영재