

# 불포화 암반 파쇄대를 통한 핵종 이동 Fracture Flow of Radionuclides in Unsaturated Conditions at LILW Disposal Facility

김원석\* · 김정진\* · 안진모\* · 남성식\* · 엄우용\*.\*.\*†  
Won-Seok Kim\* · Jungjin Kim\* · Jinmo Ahn\* · Seongsik Nam\* · Wooyong Um\*.\*.\*†

\*포항공과대학교  
\*\*북서태평양국가연구소

\*Pohang University of Science and Technology (POSTECH)

\*\*Pacific Northwest National Laboratory (PNNL)

(Received August 19, 2015; Revised August 28, 2015; Accepted August 30, 2015)

**Abstract :** Adsorption experiments for radionuclides such as  $^3\text{H}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{99}\text{Tc}$  were conducted using fractured rock collected in unsaturated zone. The released radionuclide through artificial barrier from the near surface repository can be transported by the flow of rainfall or pore water through fractures in unsaturated zone and reach to groundwater flow. Therefore, it is important to investigate transport behavior (retardation) of radionuclides through fractured rock for the safety assessment and long-term performance of repository. Fractured rock samples were collected and characterized by X-ray microtomography (XMT) analysis, which can be used to develop a more robust unsaturated fracture transport model. When fracture-filling materials are exist, distribution coefficient of  $^{90}\text{Sr}$  is higher than without fracture-filling materials. In this study, batch sorption distribution coefficient ( $K_d$ ) of radionuclide was determined and used to increase our understanding of radionuclide retardation through fracture-filling materials.

**Key Words :** Fractured Rock, Unsaturated Zone, Radionuclides, Low- and Intermediate- Level Waste, X-ray Microtomography

**요약 :** 불포화대 암반 단열에서 방사성 핵종인  $^3\text{H}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{99}\text{Tc}$ 의 흡착실험이 진행되었다. 천층처분시설의 인공방벽을 통과해 누출된 방사성 핵종은 빗물이나 공극수에 의해 불포화대 암반 단열을 통하여 지하수로 도달하게 된다. 그러므로 처분장의 장기간 안전점검을 위해, 불포화대 암반 단열을 통한 방사성 핵종의 거동을 연구하는 것이 중요하다. 천층처분주변에서 채취된 불포화대 암반 단열 샘플을 이용하여 X-ray microtomography 분석을 수행하였고, 회분식 흡착실험을 이용하여 방사성 핵종인  $^3\text{H}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{99}\text{Tc}$ 의 흡착실험이 진행되었다. 암반 단열의 충전물질로 불석광물 및 점토광물 존재 시 중흡착성 핵종인  $^{90}\text{Sr}$ 의 흡착 분배계수 값이 충전물질이 존재하지 않을 때 보다 높게 나타내었다. 본 연구를 통해, 암반 단열 특성화 및 방사성 핵종의 흡착분배계수를 구했으며, 불포화대 암반 단열을 통한 핵종의 거동이 지연됨을 이해할 수 있었다.

**주제어 :** 암반 단열, 불포화대, 방사성 핵종, 중저준위 방사성 폐기물, XMT

## 1. 서론

방사성폐기물 처분시설은 그 깊이에 따라 천층처분시설, 동굴처분시설, 심지층처분시설로 구분할 수 있으며, 일반적으로 중·저준위방사성폐기물은 천층처분 혹은 동굴처분방식을 통해 최종 처분하며, 사용후핵연료 및 고준위폐기물은 지하 300 m~500 m 깊이에 심지층처분 방식을 수행한다.<sup>1)</sup> 국내에서는 중·저준위방사성폐기물 처분을 위한 1단계 시설이 공식적으로 운영에 착수하였으며, 2단계 천층처분시설을 계획하고 있다.<sup>2)</sup>

방사성폐기물 금속 포장물이 장시간동안 환경에 노출 될 경우, 용기가 부식되어 다양한 방사성 핵종들이 주변 환경에 유출될 수 있다. 천층처분시설에서 방사성 핵종이 처분장 인공방벽을 통하여 처분장 주변의 암반으로 누출된다면 핵종의 이동은 주로 여러 규모의 불포화 암반에 발달한 단열대(fracture)를 통한 지하수의 흐름에 따라 자연 생태계에 도달하게 된다.<sup>3,4)</sup> 암반에는 여러 규모의 단열이 존재하고,

이러한 단열을 통해 지하수에 유출된 방사성 핵종들이 암반 단열을 통해 이동할 때 이류, 분산, 확산 등의 이동과정들과 흡착, 침전, 암반확산 등의 지연 과정들이 발생한다.<sup>5,6)</sup> 지하매질에서의 핵종의 이동은 농도차에 의한 확산에 의한 반응이고 주변매질과의 흡착에 의해 지연되게 된다. 암반 단열을 통해 지하수가 흐를 경우 핵종의 이동은 암반 단열 내의 불균질 혼합물과의 반응을 통해 확산과 이류현상에 의한 반응이며 암반 단열내 충전물과의 흡착으로 인해 핵종의 이동이 지연된다.<sup>5)</sup> 처분장에서 유출될 것으로 예상되는 방사성핵종들은 인공방벽을 거쳐 처분장 주변의 지하매질과 반응하여 지하수 보다는 느린 속도로 이동할 것이라고 예상되나, 물리화학적 조건들(pH, Eh, 및 이온강도 등)이 변화하게 되고, 이러한 변화된 조건에 따라서 핵종의 지하매질과의 흡착 분배계수 및 지하 환경에서의 거동이 달라지므로 암반 단열대를 통한 핵종의 거동예측이 필요하다.<sup>7)</sup> 따라서 방사성폐기물 처분시설의 불확실성을 저감하고, 안전성평가 입력자료를 확보하기 위해서는 지하수 및 핵종 이

† Corresponding author E-mail: wooyongum@postech.ac.kr Tel: 054-279-9563 Fax: 054-279-9559

동 경로인 불포화 암반 단열대(fracture zone)에 대한 정량화 및 이를 통한 지하수 유동 및 핵종이동 모델 개발이 필요하다.

암반 단열과 방사성 핵종과의 상관관계에 의해 방사성 핵종의 이동이 영향을 받기 때문에 단열의 특성을 파악하여 암반 단열을 통한 핵종 이동 현상을 이해하고 평가하는 것은 방사성폐기물 처분장의 폐쇄 후 처분 안전성 평가와 평가의 신뢰성 확보를 위해 매우 중요하다.<sup>8)</sup> 암반 단열을 통한 핵종 이동 현상을 조사하기 위하여 실험실 규모의 수많은 연구들이 그동안 해외에서 수행되었으며, 현재에도 중요한 연구 주제로 많은 연구들이 수행되고 있다. 또한 세계적으로 현장 규모의 심부지하 환경에서 핵종의 이동 및 지연 현상에 대한 이해를 위하여 다양한 현장 실험 조건에서 용질이동에 관한 실험이 수행 중이다.<sup>9-18)</sup> 하지만 국내에서는 불포화 조건의 암반 단열대를 통한 핵종 이동에 관한 연구가 진행된 적이 없다.

불포화 암반을 통한 지하수 유동은 암반에 발달한 단열의 물리적·화학적 특성 및 단열대를 통한 수리전도도와 단열의 연결성 등에 크게 영향을 받는다.<sup>19)</sup> 자연상의 암반은 기공과 단열면으로 구성되어져 있어서 기공 및 단열면에 기인한 공극률을 고려해야한다. 암반에 존재하는 공극을 통한 용질의 이동과 단열면에 의한 용질의 이동특성은 다르며, 단열면에 의한 용질의 이동이 공극을 통한 용질 이동보다 훨씬 우세하다. 단열면은 매우 거칠고 단열면 구멍크기는 다양하다.<sup>20)</sup> 또한 Fig. 1과 같이 단열면 충전물질이 방사성 핵종의 이동에 영향을 미칠 수 있다.<sup>21)</sup> 지하수의 거동이 연결된 암반의 단열면으로만 흐르는 선택적 거동 특성 현상 때문에 지하수의 흐름이 없는 암반 단열면도 존재한다. 지하수가 암반 단열면을 따라 흐르면서 방사성 핵종을 이동시키는데 이유, 분산, 확산, 흡착과정을 통하여 방사성 핵종의 거동도 영향을 받게 된다. 방사성 핵종이 암반 단열

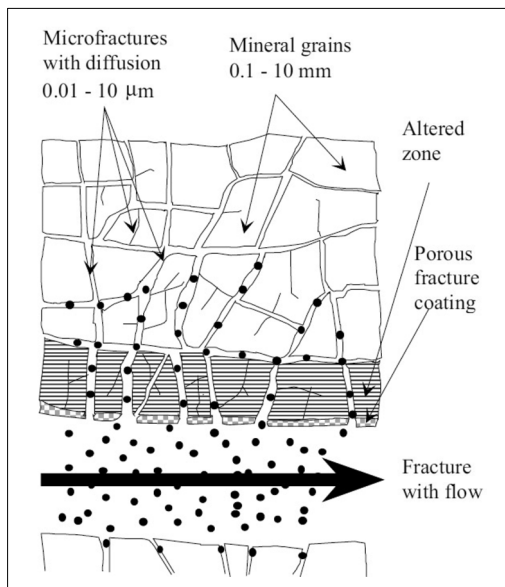


Fig. 1. Heterogen structure of the crystalline rock matrix.<sup>21)</sup>

면에 흡착하는 것과 암반 매질내로의 확산현상이 암반 단열대를 통한 방사성 핵종의 이동을 지연시키는 주요 작용이다. 방사성 핵종의 유효확산계수( $D_{eff}$ : effective diffusion coefficient), 암반의 공극률( $\epsilon$ : rock porosity), 핵종의 단열물질과의 흡착 분배계수( $K_d$ : distribution coefficient) 등이 암반 단열대를 통한 핵종 거동의 지연현상을 이해하기 위하여 필요한 변수들이다.

불포화 지역 암반내에 존재하는 단열면에서의 핵종거동을 예측하는 모델을 개발하기 위해 본 연구에서는 불포화 암반에서 시추코어를 채취하여 암반 단열면의 구조적 특징을 파악하고 암반 단열의 미세구조를 정량화하여 처분장 부지특성을 반영한 지하수 유동 모델링 및 핵종이동 모델 개발에 필요한 정보를 제공할 것이다. 단열구조를 파악하기 위해 기존에 방법들은 단열 특성을 정량적으로 산출해내기 어렵고 측정의 오차가 크게 발생하게 된다.<sup>22,23)</sup> 따라서 암반에 발달한 단열의 특징 및 미세구조를 정량화하기 위한 연구의 일환으로 X-ray microtomography (XMT)를 활용한 연구가 많이 진행되고 있다.

본 연구에서의 목적은 (1) XMT를 이용하여 암석의 단열구조를 파악하고, (2) 방사성 핵종이 불포화 암반의 단열을 통과할 때 단열 충전물이 핵종의 흡착에 미치는 영향을 조사하여 이를 지하수 및 핵종 이동 모델링의 입력 자료로 활용하고자 하는데 있다.

## 2. 연구방법

### 2.1. 실험 대상 단열 선정 및 핵종

Fig. 2와 같이 불포화 암반지역에서 시추한 코어 샘플에서 암반 단열이 발달된 부분을 채취하여 암반 단열면의 충전물을 포함한 부분과 포함하지 않은 부분을 나누어 흡착실험용 샘플로 준비하였고, XMT 분석을 위하여 켈럼 형태의 샘플을 준비하였다. 핵종 흡착 분배계수 측정을 위하여, 흡착정도에 따른 결과를 비교분석하기 위하여 흡착의 정도가 상이한 비흡착성(<sup>3</sup>H) 약흡착성(<sup>99</sup>Tc), 중흡착성(<sup>90</sup>Sr)의 핵종들을 선정하여 실험을 수행하였다. 단열면의 구조 특성을 확인하기 위한 XMT 분석을 위하여 단열이 포함된 켈럼 형태의 샘플(직경 5.0 cm × 12.5 cm)을 준비하였다.

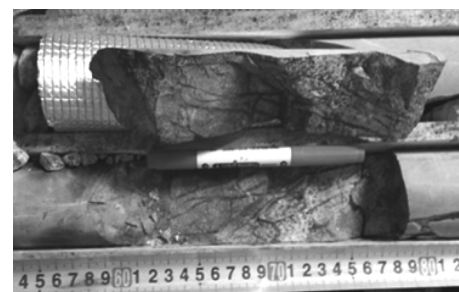


Fig. 2. Fractured rock sample.

## 2.2. 암반 단열의 분석

암반 단열 내부의 암석과 단열면의 코팅(coating) 및 충전물(filling)을 분석하기 위하여, 암석박편과 코팅(coating)/충전물(filling)박편 그리고 연마박편을 제작하여, X-ray diffraction analysis (XRD), Electron Probe Micro Analysis (EPMA), Scanning electron microscopy (SEM), Transmission Electron Microscopy (TEM), Polarized Light Microscopy (PLM), Inductively Coupled Plasma spectrometry (ICP)분석을 실시하였다. 편광현미경(PLM) 결과를 이용하여 코팅(coating)/충전물(filling)의 정량 분석을 실시하였다.

## 2.3. XMT를 이용한 단열면 분석 및 시각화 자료 구축

암반 단열 내부 단열면 시각화를 위하여 high - resolution microfocus X-ray computed tomography 스캐너(X-Tek/Metris XTH 320/225 kV)를 이용하여 암반 단열면을 스캔하였다. 98-kV와 536- $\mu$ A 범위에서 0.1 mm Cu 필터를 사용하였고, 샘플은 측정동안 360도로 계속 회전하였다. 하나의 프레임을 얻기 위하여 0.5초 동안 360도 회전하여 3,142장의 프로젝션 자료를 수집하였고, 2차원 이미지 자료는 CT Pro 3D (Metris XT 2.2, Nikon Metrology, UK)를 이용하여 3차원으로 복원되었다.

## 2.4. 방사성 핵종 흡착실험

회분식 핵종 흡착실험에 사용할 목적으로 천층처분시설 건설 현장의 대표 지점을 선정하여 지하수를 채취하였다. 불포화 암반지역에서 시추한 코어샘플을 이용하여 단열면의 충전 물질을 포함한 시료와 충전 물질을 포함하지 않은 시료(시료크기: 75-250  $\mu$ m)를 준비하였다. 핵종 흡착실험을 위하여 암석 시료에 대한 세척 전처리 과정을 채취한 지하수를 이용하여 실시함으로써 회분식 흡착반응 중 용액의 pH 및 화학적 변화를 최소화하였다.<sup>24)</sup>

핵종이 포함되지 않은 지하수를 이용하여 control test를 수행하였고, 핵종의 농도는 각 핵종의 흡착성을 참고하여, <sup>3</sup>H: 100 Bq/mL, <sup>90</sup>Sr: 20 Bq/mL, <sup>99</sup>Tc: 100 Bq/mL의 조건으로 준비하였다. 15 mL 용량의 원심분리용기에 전처리된 암석 시료(<sup>3</sup>H: 1.0 g, <sup>99</sup>Tc: 1.0 g, <sup>90</sup>Sr: 0.5 g)와 핵종을 포함한 지하수 10 mL를 첨가하여 실온에서 14일 동안 교반시켰다. 참고문헌<sup>25-28)</sup>에 의해 14일 간의 반응시간은 대부분 핵종의 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 핵종의 농도와 회분식 흡착반응 시 용기 벽면에 흡착되어 손실되는 핵종의 양을 도출하기 위함이다. 배경시료에서 구한 핵종의 농도는 방사능 계측기의 바탕 값으로 사용하였다. 각 시료의 pH는 반응기간 동안 2회 이상 측정하여 필요 시 0.1 M의 HNO<sub>3</sub> 혹은 NaOH 용액을 사용하여 지하수의 초기 pH 값 6.8과 유사하게 조

정하였다. 반응이 종료된 시료는 약 20분간 4,000 rpm에서 원심분리한 후 상등액을 분리하여 최종적으로 흡착평형 pH를 측정하였으며, 이를 다시 0.45  $\mu$ m 주사기 필터로 여과시켜 최종 핵종의 농도 측정에 사용하였다. 모든 과정은 연구실 내 방사선 통제 구역에서 진행되었으며, 결과의 신뢰도 확보를 위해 실험을 3회 반복 실시하였다. 핵종의 흡착 분배계수를 계산하기 위해 3회 실험 결과의 평균값을 이용하였다.

## 2.5. 흡착 분배계수(K<sub>d</sub>)

단열 내에서의 핵종의 이동속도는 주변 암반과의 반응에 의해 비 반응성인 지하수의 이동속도보다 느리다고 알려져 있다. 처분시설에서 누출 가능한 핵종의 지연은 핵종을 포함한 지하수와 접촉하는 고체매질과 핵종 사이의 정전기적 또는 화학적 상호작용에 기인하며, 이러한 현상을 흡착(sorption)이라 한다. 흡착은 광범위하게 핵종의 화학적인 지연현상 및 주변 고체매질과의 화학적인 반응을 나타낸다. 일반적으로 핵종의 흡착은 핵종들의 고체매질과 용액 사이의 평형적 분배를 묘사하는 현상학적 또는 경험적인 값인 분배계수(distribution coefficient) 값인 K<sub>d</sub>에 의해 특징지어진다.

$$K_d = \frac{C_s}{C_q} \quad (1)$$

여기서 C<sub>s</sub> (mol/kg 또는 Bq/kg)와 C<sub>q</sub> (mol/m<sup>3</sup> 또는 Bq/m<sup>3</sup>)는 각각 화학적 평형상태에서 고체상 및 용액상에서의 핵종 농도이고, K<sub>d</sub> (m<sup>3</sup>/kg)는 해당 핵종의 특정조건에서의 흡착 분배계수이다. 고체상에 흡착된 핵종 농도는 다음과 같이 계산될 수 있다.

$$C_s = (C_o - C_q) \frac{V}{M} \quad (2)$$

여기서 C<sub>o</sub> (mol/m<sup>3</sup> 또는 Bq/m<sup>3</sup>)는 핵종의 초기 농도이고, V (m<sup>3</sup>)는 용액의 부피, M (kg)은 사용된 고체 시료의 질량이다. 따라서 식 (2)을 이용하면 분배계수 K<sub>d</sub>는 다음과 같이 표현된다.

$$K_d = \frac{(C_o - C_q)}{C_q} \cdot \frac{V}{M} \quad (3)$$

비록 K<sub>d</sub> 개념이 열역학적인 이론에 기초를 가지고 있지만 자연적인 암반-지하수 시스템에서의 핵종들의 흡착은 매우 복잡하기 때문에 이 변수를 규정하기 위해 요구되는 조건들(즉, 평형이 신속하고 가역적이며 핵종의 농도와 독립적이어야 한다는 제약조건들)이 회분식 흡착실험 동안 늘 성립되는 것은 아니다. 사실 현재의 접근방법에서는 K<sub>d</sub>를

경험적인 변수로 취급하고 있으나 대개의 경우 표면적 측정을 한 분쇄된 암석 등을 이용한 회분식 흡착실험들이 행해져 왔다.<sup>29,30)</sup> 또한 핵종의  $K_d$  값은 실험조건의 지화학적 특성인 pH와 이온강도에 특히 많은 영향을 받으므로, 동일한 핵종의  $K_d$  값을 비교하기 위해서는 반드시 실험조건을 확인할 필요가 있다.

## 2.6. 방사성 핵종 분석

### 2.6.1. $^3\text{H}$ 및 $^{90}\text{Sr}$

베타선 방출 핵종의 농도는 액체섬광계수기(Perkin Elmer 3100 TR liquid scintillation analyzer)를 사용하여 측정하였다. 각각의 방사성 핵종에 대한 소광표준물을 만들고 계측하여 소광효과에 따른 계측효율 및 보정곡선을 구하였다. 시료는 용액(1.0 mL)이 든 유리 용기에 섬광제(Ultima Gold<sup>TM</sup> Cocktails, Perkin Elmer) 15 mL을 넣고 잘 혼합하여 준비한다. 계수기의 바탕시료로 사용하기 위해 대표 지하수 1.0 mL에 섬광제를 15 mL 넣고 혼합하여 별도로 준비한다. 모든 제조된 시료들은 24시간 정도 암소에서 보관한 후 액체섬광계수기를 이용하여 60분씩 2회 반복 계측한다. 각 핵종의 계측비와 CPM (counts per minute)은  $^3\text{H}$ 의 경우는 1-18 KeV 그리고  $^{90}\text{Sr}$ 은 0-2,000 KeV 구간에서 구하였고, 보정곡선을 이용하여 구한 계측효율을 이용하여 Bq 값으로 환산하였다.  $^{90}\text{Sr}$  핵종시료의 경우에 계측 후 1주일 후에 다시 계측하여 Y-90 (Yttrium) 과의 평형상태를 결정한 후 보정하여  $^{90}\text{Sr}$ 의 최종 Bq값을 구하였다. 핵종시료에 대한 Bq 값에서 기기 바탕시료에서 구한 Bq 값을 빼준 후 시료의 부피로 나누어 각 핵종의 농도(Bq/mL)를 구하였다.

### 2.6.2. $^{99}\text{Tc}$

Perkin Elmer 사의 농도를 알고 있는  $^{99}\text{Tc}$  ( $10^{-3}$  M)용액을 사용하여 시료 준비방법이 간단하고, 측정한다가 훨씬 우수하며, 가격이 저렴한 Inductively Coupled Plasma - Mass Spectrometry (ICP-MS)를 사용하여 검량곡선을 구한 후 시료용액 중  $^{99}\text{Tc}$ 의 농도를 측정한다. ICP-MS의  $^{99}\text{Tc}$ 에 대한 신뢰 측정한계는 0.01 ppb이다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1. 암석 특성

불포화 지역 암반 단열의 코팅(coating)/충전물(filling)을 분석한 결과, 열변성 세립사암의 절리면이 황갈색으로 코팅되어 있으며 암갈색 반점들이 흩어져 있다. Fig. 3에 PLM, SEM, XRD의 결과를 나타내었다. 코팅물질의 XRD 분석에 의해 구성물질의 성분을 조사한 결과, 불석광물이 87% (heulandite 32%, laumontite 55%)로 대부분을 차지한다. 박편의 편광현미경 관찰에 의하면, 500  $\mu\text{m}$  두께의 불석광물층이 절리면을 코팅하고 있다.

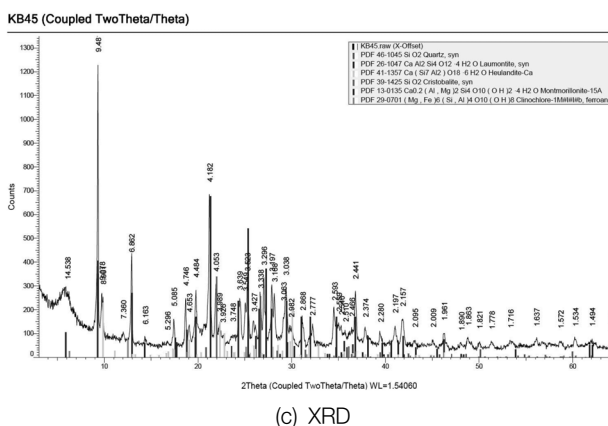
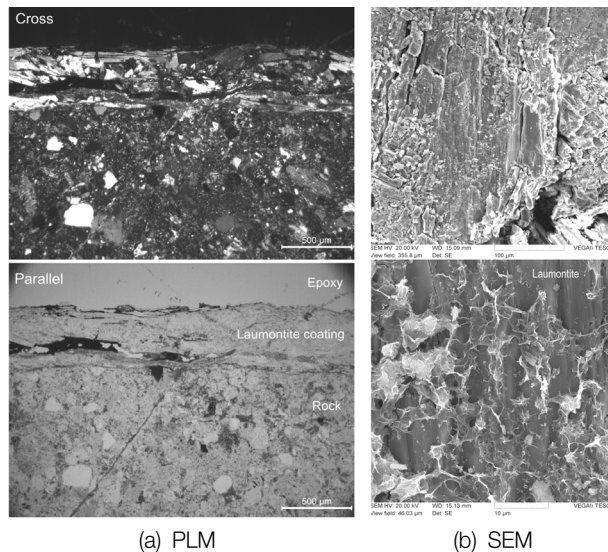
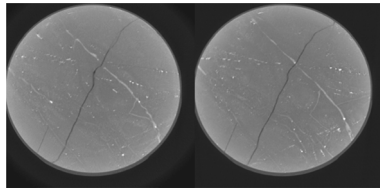


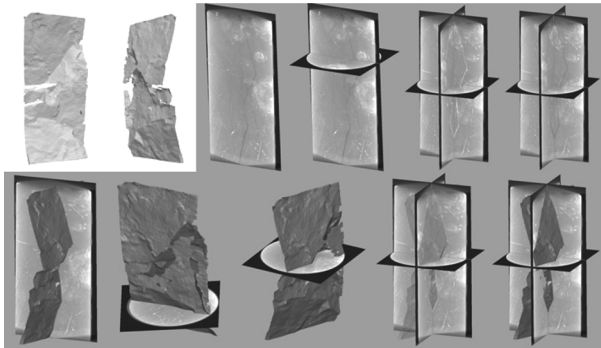
Fig. 3. (a) PLM, (b) SEM, (c) XRD result of fractured rock.

### 3.2. XMT를 이용하여 암석의 단열구조 특성 분석

암반 단열이 발달한 시추 코어 샘플의 크기는 길이가 12.4 cm이고 직경이 5 cm이다. XMT 분석을 통해 컬럼 형태의 코어 샘플을 가로방향으로 1977 slices로 나누어 찍었다. 각각의 slice volxel 크기는 0.0628 mm이다. Fig. 4에 XMT 분석 결과를 형상화하여 나타내었다. 가로방향으로 나누어 찍은 것 중에 검은색 바탕에 원형으로 나타내어진 사진인 Fig. 4(a)의 왼쪽이 117번째 찍힌 사진이고, 오른쪽이 167번째 찍힌 사진이다. Fig. 4(b)는 세로방향으로 찍힌 XMT 분석 결과들을 나타낸다. 암반 단열이 컬럼 샘플 위에서부터 아래까지 샘플 내부에 지그재그 형태로 발달되어 있고, micro fracture가 존재하고 있지만 샘플의 위에서 아래까지 연결되어 있지 않다. 의학 분야에서는 XMT를 이용하여 눈으로 보이지 않는 치아의 내부구조를 파악하여 치료에 이용한다.<sup>31)</sup> 암반의 내부구조 또한 XMT를 이용하여 보이지 않는 내부의 단열 구조를 파악하여 지하수나 이산화탄소 또는 중금속 물질들의 이동통로를 조사한다.<sup>32,33)</sup> 본 연구에서는 암반 단열의 구조를 XMT로 조사하여 핵종물질의 이동통로를 파악하였다. 중·저준위방사성폐기물 처분장에서 유출된 핵



(a) Slice number 117 and 167



(b) Snapshots of sample

Fig. 4. The result of XMT for core sample with fractures (a) horizontal and (b) vertical XMT slices.

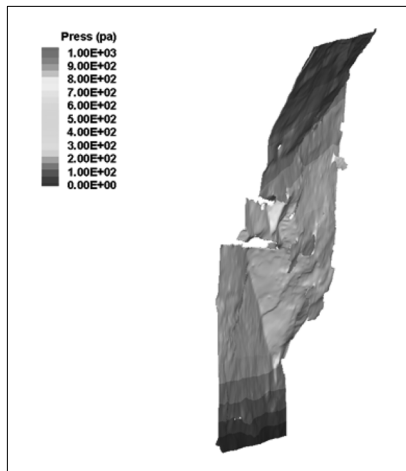


Fig. 5. Pressure distribution through fracture rock sample for permeability measurement.

중은 Fig. 2에서 보이는 것처럼 불포화대에 발달된 암반 단열면을 통해 이동하게 된다. 암반 단열면을 통과하는 용액의 permeability 측정을 위해 Fig. 5와 같은 25°C, 1 Kpa의 압을 형성시켜 계산하였다. 그림에서 보이는 것과 같은 압력이 암반 단열을 통하여 형성되며, 주어진 압력에서의 암반 단열을 통하여 흐르는 용액의 유속속을 구할 수 있다. 샘플의 밀도는 997.13 kg/m<sup>3</sup>이고, dynamic viscosity는 8.91E-04 kg/ms이며, kinematic viscosity는 8.94E-07 m<sup>2</sup>/s이다. 용액 유입구의 표면적은 2.06E-05 m<sup>2</sup>이고, 유출구의 표면적은 9.91E-06 m<sup>2</sup>이며, 단열면의 표면적은 1.36E-02 m<sup>2</sup>이다. 암반 단열의 부피는 1.38E-06 m<sup>3</sup>이고, 길이는 0.1161 m이라는 조건으로 구한 용액의 유속속은 2.91E-07 m<sup>3</sup>/s이고 단열면을 통과하는 permeability는 2.54E-09 m<sup>2</sup>이다.

Table 1. Distribution coefficient of <sup>90</sup>Sr (w/: with, w/o: without)

<sup>90</sup> Sr	K <sub>d</sub> (mL/g)	Average K <sub>d</sub> (mL/g)	K <sub>d</sub> SD
w/ fracture filling rock 1	48,178	45,1	2,919
w/ fracture filling rock 2	44,704		
w/ fracture filling rock 3	42,376		
w/o fracture filling rock 1	30,486	30,3	0,449
w/o fracture filling rock 2	29,817		
w/o fracture filling rock 3	30,671		

Table 2. Distribution coefficient of <sup>99</sup>Tc (w/: with, w/o: without)

<sup>99</sup> Tc	K <sub>d</sub> (mL/g)	Average K <sub>d</sub> (mL/g)	K <sub>d</sub> SD
w/ fracture filling rock 1	0,535	0,9	0,364
w/ fracture filling rock 2	1,258		
w/ fracture filling rock 3	0,965		
w/o fracture filling rock 1	1,445	1,1	0,553
w/o fracture filling rock 2	0,458		
w/o fracture filling rock 3	1,384		

### 3.3. 불포화 암반의 단열면의 충전물에 따른 핵종의 흡착

충전물질이 포함된 암석시료와 충전물질이 포함되지 않은 암석시료 모두 pH가 7.0인 지하수를 이용하여 <sup>3</sup>H, <sup>90</sup>Sr, 그리고 <sup>99</sup>Tc의 흡착실험을 수행하였다. <sup>90</sup>Sr과 <sup>99</sup>Tc 흡착실험의 결과는 Table 1과 2에 나타내었다. <sup>3</sup>H의 흡착실험 결과는 모든 시료 조건에서 비흡착성(K<sub>d</sub>=0)을 보여주어서 별도로 Table에 나타내지 않았다. 본 실험은 triplicate으로 진행되었으며, standard deviation 값을 확인해본 결과 데이터의 신빙성을 확인할 수 있다.

지질환경에서 핵종물질의 이동특성은 여러 환경에 따라 영향을 받는다. 그중 암반표면의 물리 화학적 성질과 이온 교환 의한 흡착정도가 큰 비중을 차지하며, 암반표면의 구성물질에 의해 흡착정도가 다르게 나타난다.<sup>34)</sup> 여러 실험을 통해 heulandite와 laumontite가 여러 핵종들의 흡착능에 영향을 미치는 것으로 알고 있고, 특히 우라늄과 스트론튬의 경우 heulandite와 laumontite 존재시 흡착능이 커져 지질 환경에서 지연정도가 커짐을 알 수 있다.<sup>35-37)</sup>

<sup>90</sup>Sr의 흡착분배계수는 충전물을 포함한 시료(K<sub>d</sub>: 45.1 mL/g)가 충전물을 포함하지 않은 시료(K<sub>d</sub>: 30.3 mL/g)보다 크게 나타났다. 중흡착성 물질인 스트론튬이 단열면의 충전물과의 흡착정도가 충전물이 존재하지 않는 암반과의 흡착정도보다 강해서 흡착분배계수가 149% 높게 나타난다. 단열면에 충전된 이차광물들이 대부분 heulandite와 laumontite으로 <sup>90</sup>Sr과 반응성이 높아 흡착분배계수가 높게 나타난 것으로 사료된다. <sup>99</sup>Tc의 흡착분배계수는 충전물을 포함한 시료(K<sub>d</sub>: 0.9 mL/g)와 충전물을 포함하지 않은 시료(K<sub>d</sub>: 1.1 mL/g)의 경우 거의 차이가 나타나지 않았다. 약흡착성 물질인 테크네튬이 단열면 충전물질과의 흡착정도가 충전물이 존재하지 않는 암반과의 흡착정도와 비슷하게 나타난다. 단열면에 충전된 이차광물들이 대부분 heulandite와 laumontite으로 <sup>99</sup>Tc과 반응성에 영향을 주지 않는 것으로 사료된다.

예상했던 대로, 약흡착성( $^{99}\text{Tc}$ )과 중흡착성( $^{90}\text{Sr}$ )의 핵종을 이용하여 단일 암반에서의 흡착분배계수를 측정된 결과,  $^{90}\text{Sr}$ 의 흡착분배계수가 약흡착성인  $^{99}\text{Tc}$ 의 흡착 분배계수보다 높게 측정되었으며 불포화대 암반 단일의 충전물이 존재할 경우  $^{90}\text{Sr}$ 의 흡착반응이 더욱 크게 작용함을 알 수 있다. 이러한 결과는 방사성폐기물 처분장에서 다양한 핵종들이 유출되었을 때, 흡착능이 상대적으로 높은  $^{90}\text{Sr}$ 의 이동은 단일면에서도 지연이 될 수 있지만, 약흡착성인  $^{99}\text{Tc}$ 과 비흡착성인  $^3\text{H}$ 의 이동은 암반 단일면을 통하여 주변 생태계로 빠르게 유출될 수 있음을 시사한다.

흡착실험에 의해 구해진 흡착분배계수와 암반 단일 분석 및 정량화 결과는 처분장 불포화 암반을 통한 연속체 모델과 단일망 모델 개발에 이용될 것이며, 지하수 유동 경로에 대한 개념 모델 개발에 적용될 것이다. 또한 지하수 유동 모델링 결과와 실제 실험 데이터를 비교 분석하여 모델링 결과를 교정하는데 제공될 것이다.

#### 4. 결론

본 연구는 퇴적암 암반의 불포화대 암반 단열이 발달된 지역에서 채취한 시료의 광물학적 특성을 밝히고, 다양한 핵종( $^3\text{H}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ , 그리고  $^{99}\text{Tc}$ )의 흡착 특성을 평가하기 위하여 수행되었다. 본 연구를 통한 결과 및 결론은 다음과 같이 요약할 수 있다.

- 1) 퇴적암 암반의 불포화대 암반 단열의 충전물질에 500  $\mu\text{m}$  두께의 불석광물층이 단열면을 코팅하고 있으며, 불석광물이 87%(heulandite 32%, laumontite 55%)로 대부분을 차지하며 소량의 점토광물 계열의 스�멕타이트도 존재한다.
- 2) 중흡착성 핵종인  $^{90}\text{Sr}$ 에 대하여 약흡착성 핵종인  $^{99}\text{Tc}$ 과 비흡착성 핵종인  $^3\text{H}$  보다 더 높은 흡착 분배계수 값을 나타내었으며,  $^{90}\text{Sr}$ 의 경우 불포화대 암반 단열의 충전물이 존재할 경우 흡착반응이 더욱 크게 나타내었다. 이는 충전물질에 존재하는 불석광물 및 점토광물에 의한 영향으로 판단된다.
- 3) 천층처분시설에서 유출되는 핵종은 불포화대의 암반 단열을 통해 이동할 것으로 예상된다.  $^{90}\text{Sr}$ 는 불포화대 암반 단열의 충전물질과의 흡착 반응에 의하여 핵종 거동이 지연될 수 있다.

본 연구는  $^3\text{H}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ 과  $^{99}\text{Tc}$ 의 불포화대 암반 단열에서의 흡착 상관관계를 해석하였지만, 실제 현장에서 핵종의 오염이나 거동을 평가하기 위해서 고려해야 하는 조건은 매우 다양하다. 광물에 대한 핵종 흡착 반응은 각 지역 매질의 유기물 함량, 점토 함량 이외에도 양이온교환능력 등과 같은 물리화학적 요인과, 빗물이나 지하수 내 존재하는 다른 이온과의 경쟁 등에 의해서도 영향을 받기 때문에, 명확한 핵종 흡착 메커니즘을 파악하기 위해서는 이와 같은 영향

을 고려한 다양한 실험을 통한 전반적인 이해가 필요하다. 또한 정확한 핵종거동 예측 모델 개발을 위해서 단일면 특성 분석 및 불포화 조건에서의 단일 칼럼실험을 통하여 모델에 필요한 인자들이 제공되어야 한다.

#### Acknowledgement

본 논문은 에너지기술평가원의 재원으로 지원을 받아 수행된 연구입니다(방사성폐기물관리기술개발사업 No. 2014-1720100610).

KSEE

#### References

1. Kim, Y. K., Kang, J. M. and Jung, W. J., "International Cooperation Possibility for Radioactive Waste Management in Northeast Asia," *Korean Energy Economic Rev.*, **3**(1), 71~98(2004).
2. Choi, H. J., The Management Plan and the meaning of Wolsong Radionuclide Repository Construction," *Journal of the electrical world, Special Issues*, pp. 6~11(2008).
3. Cherrey, K. D., Flury, M. and Harsh, J. B., "Nitrate and colloid transport through coarse Hanford sediments under steady state, variably saturated flow," *Water Resour. Res.*, **39**(6), 1165(2003).
4. Rod, K. A., Um, W. and Flury, M., "Transport of Strontium and Cesium in Simulated Hanford Tank Waste Leachate through Quartz Sand under Saturated and Unsaturated Flow," *Environ. Sci. Technol.*, **44**, 8089~8094(2010).
5. Kim, J. I., "Significance of Actinide Chemistry for the Long Term Safety of Waste Disposal," *Nucl. Eng. Technol.*, **38**(6), 459~482(2006).
6. Baik, M. H., Lee, S. Y., Lee, J. K., Kim, S. S., Park, C. K. and Choi, J. W., "Review and Compilation of Data on Radionuclide Migration and Retardation for the Performance Assessment of a HLW Repository in Korea," *Nucl. Eng. Technol.*, **40**(7), 63~76(2008).
7. Chang, H. S., Um, W., Rod, K., Serne, R. J., Thompson, A., Perdrial, N., Steefel, C. I. and Chorover, J., "Strontium and Cesium Release Mechanisms during Unsaturated Flow through Waste-Weathered Hanford Sediments," *Environ. Sci. Technol.*, **45**, 8313~8320(2011).
8. Hautojärvi, A. and Vieno, T., "Assessment of releases from a nuclear waste repository in crystalline rock," *Future Groundwater Resources at Risk: Proceedings of an International Conference (FGR 94) Held at Helsinki, Finland, June 1994*, IAHS Publ. no. 222(1994).
9. Vandergraaf, T. T., "Radionuclide Migration Experiments under Laboratory Conditions," *Geophys. Res. Lett.*, **22**, 1409~1412(1995).
10. Vandergraaf, T. T., Drew, D. J., Archambault, D. and

- Ticknor, K. V., "Transport of Radionuclides in Natural Fractures: Some Aspects of Laboratory Migration Experiments," *J. Contam. Hydrol.*, **26**, 83~95(1997).
11. Sakamoto, Y., Nagao, S., Ogawa, H. and Rao, R. R., "The Migration Behavior of Np (V) in Sandy Soil and Granite Media in the Presence of Humic Substances," *Radiochim. Acta*, **88**, 651~656(2000).
  12. Li, M., Wang, T. and Teng, S., "Experimental and Numerical Investigations of Effect of Column Length on Retardation Factor Determination: A Case Study of Cesium Transport in Crushed Granite," *J. Hazard. Mater.*, **162**, 530~535 (2009).
  13. Baik, M. H., Lee, S. Y. and Shon, W. J., "Retention of Uranium(VI) by Laumontite, a Fracture-Filling Material of Granite," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **280**, 69~77(2009).
  14. Baik, M. H., Lee, J. K. and Choi, J. W., "Research Status on the Radionuclide and Colloid Migration in Underground Research Facilities," *J. Korean Radioact. Waste Soc.*, **7**(4), 243~253(2009).
  15. Navakowski, K. S., Bickerton, G. and Lapcevic, P., "Interpretation of Injection-Withdrawal Tracer Experiments Conducted between Two Wells in a Large Single Fracture," *J. Contam. Hydrol.*, **73**, 227~247(2004).
  16. Mazurek, M., Jakob, A. and Bossart, P., "Solute Transport in Crystalline Rocks at Äpöl: Geological Basis and Model Calibration," *J. Contam. Hydrol.*, **61**, 157~174(2003).
  17. Kienzler, B., Vejmelka, P., Röer, J. and Jansson, M., "Actinide Migration in Fractures of Granite Host Rock: Laboratory and In Situ Investigations," *Nucl. Technol.*, **165**, 223~240(2009).
  18. Hoehn, E., Eikenberg, J., Fierz, T., Drost, W. and Reichlmayr, E., "The Grimsel Migration Experiment: Field Injection-Withdrawal Experiments in Fractured Rock with Sorbing Tracers," *J. Contam. Hydrol.*, **34**, 85~106(1998).
  19. Dai, Z., Wolfsberg, A., Reimus, P., Deng, H., Kwicklis, E., Ding, M., Ware, D. and Ye, M., "Identification of sorption processes and parameters for radionuclide transport in fractured rock," *J. Hydro.*, **414-415**, 516~526(2012).
  20. Grenier, C., Mouche, E. and Tevissen, E., "Influence of variable fracture aperture on transport of non-sorbing solutes in a fracture: A numerical investigation," *J. Contam. Hydrol.*, **35**, 305~313(1998).
  21. Rasilainen, K., "Matrix diffusion model - In situ tests using natural analogues," *Technical Research Centre of Finland, Espoo, VTT Publications*, **331**, 81(1997).
  22. Kohn, J. L., Dixon, K. L. and Nichols, R. L. Fractured media update. SRNL-L3200-2012-00029\_R0(2012).
  23. Dixon, K. L., Estimating Hydraulic Properties For E-Area Sediments Using A Multi-Step Outflow Extraction Method. SRNL-STI-2010-00655, Rev. 0(2011).
  24. ASTM, Standard test method for distribution ratios by the short-term batch method, ASTM D4319-93 (Reapproved 2001), USA(2001).
  25. Um, W. and Papelis, C., "Metal ion sorption and desorption on zeolitized tuffs from Nevada Test Site," *Environ. Sci. Technol.*, **38**(2), 496~502(2004).
  26. Huitti, T., Hakanen, M. and Lindberg, A., "Sorption of Cesium on Olkiluoto Mica Gneiss, Granodiorite and Granite," PO-SIVA98-11, POSIVA Oy, Helsinki(1998).
  27. Um, W., Serne, R. J., Brown, C. F. and Last, G. V., "U(VI) adsorption on 200-UP-1 aquifer sediments at the Hanford Site," *J. Contam. Hydro.*, **93**, 255~269(2007).
  28. Vejsada, J., "The uncertainties associated with the application of batch technique for distribution coefficients determination- A case study of cesium adsorption on four different bentonites," *Appl. Radiat. Isotopes*, **64**, 1538~1548(2006).
  29. Baik, M. H. and Hahn, P. S., "An experimental study on the sorption of U(VI) onto granite," *J. Korean Nucl. Soc.*, **34**, 445~454(2002).
  30. Baik, M. H., Cho, W. J. and Hahn, P. S., "A Parametric Study on the Sorption of U(VI) onto Granite," *Korean Radioactive Waste Soc.*, **2**(2), 135~143(2004).
  31. Shin, D. H., "Three Dimensional Reconstruction of Teeth using X-ray Microtomography," *The Korean Academy of Conservative Dentistry*, **28**(6), 485~490(2003).
  32. Krásný, J. and Sharp, J. M., "Groundwater in Fractured Rocks," Taylor & Francis Group, London, UK.(2007)
  33. Jung, H. B., Jansik, D. and Um, W., "Imaging wellbore cement degradation by Carbon Dioxide under geologic sequestration conditions using X-ray computed microtomography," *Environ. Sci. Technol.*, **47**, 283~289(2013)
  34. Andersson, K., Torstenfelt, B. and Allard, B., "Sorption of radionuclides in geologic systems," SKBF/KBS report, Chalmers University of Technology, Göteborg, Sweden(1983).
  35. Chernjatskaja, N. B., "Strontium removal by clinoptilolite and heulandite," *Radiochemistry*, **27**, 618(1988)
  36. MATIJAŠEVIĆ, S., DAKOVIĆ, A., TOMAŠEVIĆ-ČANOVIĆ, M., STOJANOVIĆ, M. and ILEŠ, D., "Uranium(VI) adsorption on surfactant modified heulandite/clinoptilolite rich tuff," *J. Serb. Chem. Soc.*, **71**(12), 1323~1331(2006)
  37. Baik, M. H., Lee, S. Y. and Shon, W. J., "Retention of uranium(VI) by laumontite, a fracture-filling material of granite," *J. Radioanalytical and Nuclear Chem.*, **280**(1), 69~77(2009).