

2002 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

균열암반에서 콜로이드를 동반한 방사성 핵종의 이동:
핵종 붕괴사슬과 제한적 확산의 영향

Colloid-facilitated Radionuclide Transport in the Fractured Rock:
Effects of Decay Chain and Limited Matrix Diffusion

박진백, 박주완, 이은용, 김창락
원자력환경기술원

대전광역시 유성구 유성우체국 사서함 149

요 약

균열암반에서 콜로이드를 동반한 방사성 핵종이동 연구를 위해 방사성 붕괴사슬과 제한적 분자확산을 함께 고려하였다. 핵종이동 시스템과 지배방정식 및 초기/경계조건을 설정하고 반해석해를 구하였으며, 구해진 해에 대한 수치적 라플라스 역변환을 통하여 반해석해의 검증을 실시하였다. 유사콜로이드의 반응상수가 균열 내에 미치는 영향과 콜로이드의 여과작용이 핵종이동에 미치는 영향 그리고 주변 암반으로 제한적 확산이 핵종이동에 미치는 영향에 대하여 알아보았다. 콜로이드에 존재로 인한 핵종 가속과 더불어, 주변암반의 방사성핵종의 분자확산이 제한적일 경우에 예측된 핵종가속현상은 확산깊이가 적을수록 더 커지는 것을 알 수 있었고, 이때 핵종가속에 영향을 주는 유효확산깊이가 존재하는 것을 발견할 수 있었다. 또한 주변암반의 지연계수가 클수록 제한적 확산깊이에 따른 핵종들의 가속 범위의 증가를 볼 수 있었다.

Abstract

Colloid-facilitated radionuclide transport in the fractured rock is studied by considering radioactive decay chain and limited matrix diffusion into surrounding porous media. Semi-analytical solution in the Laplace domain is obtained from the mass balance equation of radionuclides and colloid particles. Numerical inversion of the Laplace solution is used to get the concentration profiles both in a fracture and in rock matrix. Three issues are analyzed for the radionuclide concentration in a fracture by 1) formation constant of pseudo-colloid, 2) filtration coefficient of radio-colloid and 3) effective diffusion depth into the surrounding porous rock media.

1. 서론

방사성폐기물의 처분을 위한 성능평가과정은 인간생활로부터 방사성핵종들을 저지하기 위해 설치된 공학적 인공방벽과 자연암반 그리고 생태계를 통해 피폭되는 선량이 허용치를 도달하지 않도록 지하 처분장을 건설하는데 그 목적을 두고 있으며, 이 과정에서 현재까지 알려진 물리적 현상들을 모델링하고 그 결과를 바탕으로 공학적 판단을 내리는데 있다. 국내 자연암반으로 알려진 화강암을 통한 방사

성핵종들의 이동은 많은 해석적 연구들과 실험적 연구들을 통하여 진행되어왔다. [1-2]

자연조건에서 지하수내에 존재하는 방사성핵종은 물리-화학적 형태 및 특성에 의해 크게 영향을 받게 되고, 일반적으로 방사성핵종들은 지하수 내에서 이온성 핵종, 복합물질 (핵종착화물) 또는 입자성 물질로 존재하며, 입자성 물질의 경우 지하수내에 충분히 분산안정성을 유지하는 콜로이드 범위의 입자들을 의미한다.

일반적으로 방사성콜로이드 (radio-colloid)는 그 형성과정에 따라 참콜로이드 (true-colloid)와 유사콜로이드 (pseudo-colloid)로 나눌 수 있다[3]. 참콜로이드는 가수분해 또는 침전과정 그리고 분자나 이온들의 응축에 의해 형성된 수산화물 또는 고분자들이며, 그 크기가 $1nm$ 에서 $10\mu m$ 의 지름을 가지는 원자, 이온 또는 분자들을 포함하는 아주 작은 입자로 특징지으며, 약 $300 m^2/g$ 정도의 큰 표면적을 가지기 때문에 흡착과 같은 표면반응이 중요한 특성이라 할 수 있다[3]. 유사콜로이드는 용액에 존재하는 불순물들에 흡착된 결과로 형성되며 대체로 참콜로이드보다 크며. 유사콜로이드의 형성은 콜로이드성 불순물에 대한 흡착속도 및 그 모양에 의해 결정된다고 알려져 있다[3].

지하수 내의 존재하는 이러한 물질들은 고체상의 지질학적 매질에 수착되어 핵종들이 이동에 영향을 주게된다. 방사성핵종들은 정지된 고체표면에 수착되어 핵종이동을 감소시키는 반면, 유동상 입자성 물질로 흡착되어 유사콜로이드를 형성하고 콜로이드가 이동매체로 작용함으로 핵종이동을 가속시킨다는 결과들이 보고되고 있다. [3-7]

지하수내의 콜로이드의 존재가 균열 내 방사성핵종의 가속에 영향을 주는 것과 더불어, 주변암반으로 방사성핵종들의 확산이 제한적일 경우 균열 암반에서 핵종이동이 가속된다는 결과가 보고되었다. [8-12]

본 논문에서는 이러한 콜로이드를 동반한 방사성핵종의 이동에 관하여 방사성 붕괴사슬과 주변 암반으로 확산이 제한적임을 함께 고려한 반해석해를 도출하였으며, 균열 내의 방사성핵종들의 농도를 얻기 위해서 IMSL 모듈 (DINLAP)의 수치적 라플라스 역변환을 10^6 의 정확도를 이용하여 계산하였다. [13]

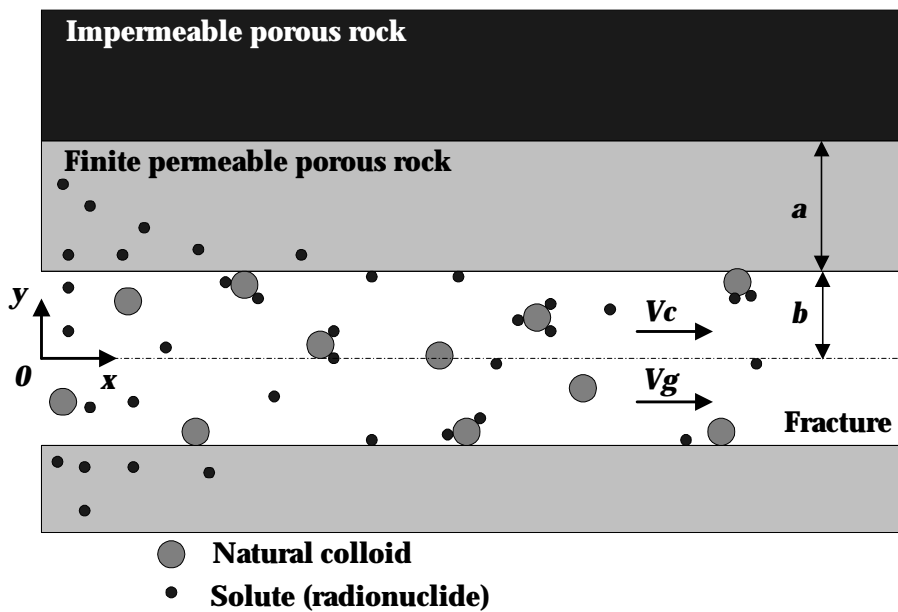


그림 1 콜로이드를 동반한 방사성핵종의 이동시스템

2. 지하 균열암반에서 콜로이드를 동반한 방사성 핵종이동의 방정식

가. 핵종이동 시스템과 지배 방정식

균열암반에서 콜로이드를 동반한 핵종이동 시스템을 개략적으로 그림 1에 도시하였다. 그림 1에 나타난 바와 같이 지하수 내에서 균열을 고려한 유사 콜로이드의 이동을 설명할 때에는 균열 내의 방사성핵종의 질량 보존, 균열 내 유사 콜로이드의 질량보존 그리고 주변 다공성 암반에서 방사성핵종의 질량보존 등 세 가지 보존 방정식을 미분 방정식형태로 유효체적분석 (control volume analysis)을 통해 이끌어 내었다. 지하수로 포화된 균열 내에 존재하는 방사성핵종의 보존방정식을 핵종 붕괴사슬을 고려하면 아래와 같이 나타낼 수 있다.

$$\begin{aligned} \frac{\partial N_i}{\partial t} + \frac{1}{b} \frac{\partial N_i^f}{\partial t} - D_n \frac{\partial^2 N_i}{\partial x^2} + v_g \frac{\partial N_i}{\partial x} + \lambda_i \left(N_i + \frac{N_i^f}{b} \right) - \\ \lambda_{i-1} \left(N_{i-1} + \frac{N_{i-1}^f}{b} \right) - \frac{\theta_p D_p}{b} \frac{\partial M_i}{\partial y} \Big|_{y=b} = 0, x > 0, t > 0 \end{aligned} \quad (1)$$

여기서 N_i^f 은 균열 벽면에 흡착된 i 번째 방사성핵종의 농도[kg/m²]를 나타내며, N_i 는 균열 내에 존재하여 이동하는 i 번째 방사성핵종의 농도[kg/m³]를 의미한다. D_n 은 균열 내 방사성핵종의 분산계수 (dispersion coefficient)[m²/yr]를 나타내며, v_g 는 균열 방향 (x)으로 균열을 따라 이동하는 지하수의 평균 유속[m/yr]을 나타내며, θ_p 는 주변 다공성 암반의 공극율[-], λ_i 는 i 번째 핵종의 붕괴상수[1/yr], $2b$ 는 균열의 폭[m]을 나타낸다. 균열 내에 존재하는 유사콜로이드에 대한 보존 방정식은 다음과 같다.

$$\begin{aligned} \frac{\partial C_i}{\partial t} + \frac{1}{b} \frac{\partial C_i^f}{\partial t} - D_c \frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} + v_c \frac{\partial C_i}{\partial x} + \lambda_i \left(C_i + \frac{C_i^f}{b} \right) - \\ \lambda_{i-1} \left(C_{i-1} + \frac{C_{i-1}^f}{b} \right) + v_c A_i C_i = 0, x > 0, t > 0 \end{aligned} \quad (2)$$

여기서 C_i^f 는 유사콜로이드를 형성한 i 번째 방사성핵종이 균열벽면에 흡착되어 존재하는 농도 [kg/m²]를 의미하며, C_i 는 유사콜로이드를 형성한 i 번째 방사성핵종이 균열 내에 존재하는 농도 [kg/m³], D_c 은 균열 내의 콜로이드의 이산계수[m²/yr], v_c 는 균열 내의 콜로이드 평균유속[m/yr], A_i 는 i 번째 핵종이 흡착된 유사콜로이드의 균열 내 여과계수[1/m]를 나타낸다.

균열 내의 방사성핵종과 유사 콜로이드에 대한 보존 방정식을 이용하여 주변 다공성 매질에 대한 방사성 핵종의 보존방정식은 아래와 같다.

$$\begin{aligned} \theta_p \frac{\partial M_i}{\partial t} + (1 - \theta_p) \rho_p \frac{\partial M_i^p}{\partial t} - \theta_p D_p^i \frac{\partial^2 M_i}{\partial y^2} + \lambda_i (\theta_p M_i + (1 - \theta_p) \rho_p M_i^p) \\ - \lambda_{i-1} (\theta_p M_{i-1} + (1 - \theta_p) \rho_p M_{i-1}^p) = 0, x > 0, b < |y| < a + b, t > 0 \end{aligned} \quad (3)$$

여기서 M_i 는 주변 암반 내 지하수내에 존재하는 i 번째 방사성핵종의 농도[kg/m³]를 나타내며, M_i^p 는 주변 암반의 단위 질량 당 흡착되어 존재하는 i 번째 방사성핵종의 농도[kg/kg], ρ_p 는 주변 암반의 밀도, [kg/m³], D_p^i 는 주변암반에서 i 번째 방사성핵종의 분자확산계수[m²/yr],를 의미한다. a 는 방사성 핵종이 주변암반으로 확산을 할 수 있는 확산 깊이를 나타낸다.

균열암반 내의 방사성핵종과 콜로이드가 균열표면에 흡착되는 물리적 현상을 해석하기 위해 아래의 분배계수들을 가정하였다. 분배계수들은 흡착현상을 위한 가역적 평형조건을 가정하였을 때, 용액 상과 고체 상에 존재하는 용질 (즉, 방사성핵종과 콜로이드)의 비율로 각각 아래와 같이 정의된다.

$$K_{n,i} = \frac{N_i^f}{N_i} \quad (4)$$

$$K_{c,i} = \frac{C_i^f}{C_i} \quad (5)$$

$$K_{m,i} = \frac{M_i^b}{M_i} \quad (6)$$

$K_{n,i}$ 는 균열면과 지하수 사이의 i 번째 방사성핵종의 분배계수이고, $K_{c,i}$ 는 i 번째 방사성핵종이 흡착된 유사 콜로이드의 균열 내 벽면에 대한 분배계수이고, $K_{m,i}$ 는 주변 암반 내에서 일어나는 i 번째 방사성핵종의 분배계수이다. 균열암반 내에 존재하는 지하수 콜로이드 (또는 자연콜로이드)의 농도와 방사성핵종이 평형상태에서 형성하는 유사콜로이드의 생성반응을 설명하기 위한 반응식과 반응계수 ($K_{nc,i}$)는 다음과 같이 정의하였다[3]. 아래의 정의는 지하수에 존재하는 자연콜로이드 (또는 지하수 콜로이드)의 농도가 거리 및 시간 등에 관계없이 일정하게 유지된다는 가정을 동반한다.

$$\text{반응식 : } N_i + C_o \leftrightarrow C_i \quad (7)$$

$$\text{반응상수 : } K_{nc,i} = \frac{C_i}{N_i C_o} \quad (8)$$

여기서 C_o 는 균열 내에 존재하는 자연콜로이드의 농도 [kg/m^3]이다. 여기서 C_o 를 상수로 가정할 때 식 (8)은 겉보기 반응상수 (apparent pseudo-colloid formation constant)로 다시 정의된다. [3]

식 (1)~(3)의 지배 방정식과 식 (4)~(6)의 분배계수 그리고 식 (8)의 반응 상수를 이용하여 최종적으로 콜로이드를 동반한 핵종이동의 지배 방정식을 유도하면 아래와 같이 표현할 수 있다.

$$R_{f,i} \frac{\partial N_i}{\partial t} - D_i \frac{\partial^2 N_i}{\partial x^2} + v_i \frac{\partial N_i}{\partial x} + (\lambda_i R_{f,i} + v_c A_i C_o K_{nc,i}) N_i - \lambda_{i-1} R_{f,i-1} N_{i-1} - \frac{\theta_b D_{b,i}}{b} \frac{\partial M_i}{\partial y} \Big|_{y=b} = 0, x > 0, t > 0 \quad (9)$$

$$R_{b,i} \frac{\partial M_i}{\partial t} - D_{b,i} \frac{\partial^2 M_i}{\partial y^2} + \lambda_i R_{b,i} M_i - \lambda_{i-1} R_{b,i-1} M_{i-1} = 0, x > 0, b < |y| < a + b, t > 0 \quad (10)$$

식 (9)와(10)에서 사용된 변수들은 아래와 같이 정의되었다.

$$R_{f,i} = \left(1 + \frac{K_{n,i}}{b}\right) + \left(1 + \frac{K_{c,i}}{b}\right) C_o K_{nc,i} \quad (11)$$

$$D_i = D_n + D_c C_o K_{nc,i} \quad (12)$$

$$v_i = v_g + v_c C_o K_{nc,i} \quad (13)$$

$$R_{b,i} = 1 + \left(\frac{1 - \theta_b}{\theta_b}\right) \rho_b K_{m,i} \quad (14)$$

나. 초기 및 경계 조건

식 (9)와 (10)의 편미분 방정식들을 풀기 위한 초기 및 경계조건은 아래와 같이 정의하였다.

$$N_i(x, 0) = 0, x > 0, \quad (15)$$

$$M_i(x, y, 0) = 0, x > 0, b < |y| < a + b, \quad (16)$$

$$v_g N_i(0, t) - D_n \frac{\partial N_i}{\partial x} \Big|_{x=0} = \frac{I_i(t)}{A}, \quad (17)$$

$$\lim_{x \rightarrow \infty} N_i(x, t) = 0, \quad (18)$$

$$M_n(x, b, t) = N_n(x, t), x > 0, t > 0, \quad (19)$$

$$\frac{\partial M_i}{\partial y} \Big|_{y=a+b} = 0, x > 0, t > 0. \quad (20)$$

여기서 A 는 흐름방향에 수직인 균열의 단면적[m²], 을 나타내며 $I_i(t)$ 는 균열입구에서 i 번째 방사성 핵종의 총 유속[kg/yr]을 나타낸다. 식 (15)와 (16)은 초기시점에는 지하수로 포화된 균열과 주변 다공성 매질 내에는 방사성핵종이 존재하지 않음을 의미하며, 식 (17)과 (18)은 균열의 입구와 출구의 경계조건을 나타낸다. 식(19)는 균열과 주변 암반 경계에서의 물질보존식이며, 식 (20)은 주변 다공성 암반으로 제한적 확산을 고려한 경계조건을 나타내었다. 식 (20)의 경계조건은 주변암반으로 방사성핵종의 확산이 제한적임을 의미하며 유효확산거리, a ,로 표시하였다.

다. 라플라스 해

최종적으로 정리된 식 (9)와 (10)을 식 (15)에서 식 (20)까지의 초기 및 경계조건을 이용한 해를 해석적으로 구하고 균열 내 핵종의 농도를 계산하게 된다. 이러한 방법에는 적분변환의 한 가지 방법인 라플라스변환법을 이용하여 시간평면 (real time domain)에서의 편미분방정식과 초기 및 경계조건들을 복소수평면 (complex domain)으로 변환하여 선형 상미분방정식의 해를 구한 다음, 구해진 해를 다시 시간평면으로 역변환 (inverse Laplace transform)을 통해서 최종적인 해를 구하게 된다. 그러나 역변환 과정은 복소평면 상의 적분과정을 통해서 구하게 되는데 수학적인 어려움과 구해진 시간평면에서의 해의 복잡성으로 인한 계산과정의 어려움으로 인하여 복소평면상의 해를 Talbot 법[14] 에 의한 역변환으로 처리하여 시간평면상의 핵종 농도를 구하였다.

라플라스 평면 (s)에서 연립미분방정식의 해는 식 (9)와 (10)을 식(15)에서 식(20)까지의 초기 및 경계조건에 대한 라플라스 변환과정을 이용하여 $\mathcal{N}_i(x, s)$ 와 $\mathcal{M}_i(x, y, s)$ 를 구하였다. 라플라스 평면에서 주변 암반에 대한 방사성핵종의 농도, $\mathcal{M}_i(x, y, s)$ 는 아래와 같이 구해진다. [8]

$$\mathcal{M}_n(x, y, s) = \sum_{m=1}^n W_{mn}(y, s) \mathcal{N}_m(x, s) \quad (21)$$

$$\text{여기서, } W_{mn}(y, s) = \frac{\cosh(\Phi_n(y - a - b))}{\cosh(a_n \Phi_n)} \quad (m = n), \quad (22)$$

$$W_{mn}(y, s) = \left[\prod_{k=m}^{n-1} \frac{R_{p,k} \lambda_k}{D_{p,k+1}} \right] \sum_{k=m}^n \frac{W_{kk}(y, s)}{\prod_{l=m, l \neq k}^n [\Phi_l^2(s) - \Phi_k^2(s)]}, \quad (m < n), \quad (19)$$

$$\text{그리고,} \quad \Phi_m(s) = \sqrt{(s + \lambda_m) R_{p,m} / D_{p,m}} \quad (23)$$

또한 라플라스 평면에서 균열 내에 존재하는 방사성핵종의 농도, $\mathcal{N}_i(x, s)$ 는 아래와 같다.

$$\mathcal{N}_n(x, s) = \sum_{m=1}^n u_{nm}(s) a_m(s) \exp[-b_m(s)x], \quad (24)$$

$$\text{여기서,} \quad b_m(s) = \frac{v_m}{2D_m} \left[-1 + \sqrt{1 + 4g_m(s)D_m/v_m^2} \right], \quad (25)$$

$$g_m(s) = R_{f,m}(s + \lambda_m) + v_c A_m C_o K_{nc,m} + \frac{\theta_p D_{p,m}}{b} \Phi_m \tanh(a \Phi_m), \quad (26)$$

$$\text{그리고,} \quad [g_n(s) - g_m(s)] u_{nm}(s) = R_{f,n-1} \lambda_{n-1} u_{m,n-1}(s) + \sum_{k=m}^{n-1} B_{kn}(s) u_{mk}(s), \quad (27)$$

$$u_{nm}(s) = 1. \quad (28)$$

식 (24)와 식 (27)에서 사용된 변수들은 다음과 같이 정의된다.

$$B_{kn}(s) = -\frac{\theta_p D_{p,n}}{b} \left(\prod_{l=k}^{n-1} \frac{R_{p,l} \lambda_l}{D_{p,l+1}} \right) \sum_{l=k}^n \frac{\Phi_l \tanh(a \Phi_l)}{\prod_{j=k, j \neq l}^n [\Phi_j^2 - \Phi_l^2]}, \quad (29)$$

$$a_m(s) = \frac{1}{v_g + D_g b_m} \sum_{i=1}^m v_{im}(s) \frac{\mathcal{I}_i(s)}{A}, \quad (30)$$

$$\text{그리고,} \quad v_{im}(s) = -\sum_{j=i}^{m-1} u_{jm}(s) v_{ij}(s), \quad (m > i), \quad (31)$$

$$v_{mm}(s) = 1. \quad (32)$$

라. 균열입구의 핵종유속과 유출모드

식 (17)과 식 (30)에 표시된 $\mathcal{I}_i(t)$ 는 균열입구에서 i 번째 방사성핵종의 총 유속으로 정의하였다. 일반적으로 지하수내에서 핵종이 용해되어 균열로 유입될 때 핵종에 따른 지하수내 용해도와 유출시간이 유출모드를 결정한다고 알려져 있다[15-17]. 따라서 균열로 유입되는 핵종의 용해특성과 핵종의 유출시간에 따라서 그 유출모드를 다르게 생각하여야 한다.

지하수의 화학적 조건에서 액티나이드 핵종들은 그 용해도가 낮아 방사성폐기물로부터 유출된 핵종들이 유출지점에서 침전물 형태로 존재하고 핵종별 용해도에 따라 지하수에 용해되어 균열로 유입된다고 가정할 수 있다. 또한 처분된 해당 핵종이 모두 용해되어 누출되는 시간 (leaching time, T)을 함

게 고려하게 되는데, 이를 수학적으로 나타내면 다음과 같다.

$$I_i(t) = N_{o,i} [h(t) - h(T-t)]. \quad (33)$$

여기서 계단시간함수, $h(\cdot)$,는 아래와 같이 정의하였으며, 각 방사성 붕괴사슬의 첫 번째 핵종 (Am-241 과 U-234)만이 균열입구를 통해서 유입된다고 가정하였다.

$$h(t) = \begin{cases} 1 & t > 0 \\ 0 & t < 0 \end{cases} \quad (34)$$

마. 방사성핵종들의 붕괴사슬과 입력데이터

균열암반에서 콜로이드를 동반한 핵종이동의 계산을 위해 사용된 붕괴사슬 (decay chain)과 입력데이터들을 표 1과 표 2에 각각 나타내었다. 균열 내에 존재하는 자연 콜로이드 (natural colloid)의 농도는 PCS (photon correlation spectroscopy)방법을 사용한 문헌[18]에서 주로 50~500 nm의 콜로이드에 대하여 그 구성에 따라 대부분 약 0.1 ppb에서 수십 ppm사이에서 존재한다고 보고하고 있다. 본 연구에서는 문헌상에 나타난 범위 중 20 ppm, 즉, 2×10^{-2} (kg/m³)를 사용하였다.

붕괴사슬 내에서 핵종에 의한 유사콜로이드의 생성율, $K_{nc,i}$ (m³/kg),은 식 (8)에 의해서 결정하며 이때 균열 내에 존재하는 방사성핵종과 생성된 유사콜로이드의 농도비에 대한 데이터를 구하여야 한다. 이 농도의 비는 지하수내에 존재하는 콜로이드의 종류, 방사성핵종 그리고 지화학적 특성에 따라 다른 값을 가지게 된다. 또한 보수적인 관점에서 방사성핵종과 유사콜로이드가 균열표면으로 흡착되어 핵종 이동에서 제외되는 것은 없다고 가정하였다.

표 1 핵종이동 계산에 사용된 붕괴사슬과 입력데이터 1

Two member chain (n)	Am-241	Np-237		Reference
$T_{1/2}$ (yr)	458	2.14e+6		KAERI DB
Dp (m ² /yr)	1.26e-6	1.26e-6		KAERI DB
Λ_n (1/m)	$e^{-2} \sim e^{+1}$	$e^{-2} \sim e^{+1}$		[21]
Kn (m)	0.0e+0	0.0e+0		(가정)
Kc (m)	0.0e+0	0.0e+0		(가정)
Knc (m ³ /kg)	1.0e-2	1.0e-2		(가정)
Km (m)	5.0e-1	5.0e-1		TILA99 [12] Nonsaline, reducing
Three member chain (n)	U-234	Th-230	Ra-226	Reference
$T_{1/2}$ (yr)	2.47e+5	8.0E+4	1600	KAERI DB
Dp (m ² /yr)	1.26e-6	1.99e-7	1.17e-6	KAERI DB
Λ_n (1/m)	$e^{-2} \sim e^{+1}$	$e^{-2} \sim e^{+1}$	$e^{-2} \sim e^{+1}$	(가정)
Kn (m)	0.0e+0	0.0e+0	0.0e+0	(가정)
Kc (m)	0.0e+0	0.0e+0	0.0e+0	(가정)
Knc (m ³ /kg)	1.0e-2	1.0e-2	1.0e-2	(가정)
Km (m)	1.0e+1	5.0e-1	5.0e-1	TILA99 [12] Nonsaline, reducing

표 2 핵종이동 계산에 사용된 입력데이터 2

입력변수	입력데이터	입력변수	입력데이터
C_o (kg/m^3)	2.0e-2 (20 ppm)	θ_p (-)	0.1
v_c (m/yr)	1.5	v_g (m/yr)	1.0
D_c (m^2/yr)	1.0	D_g (m^2/yr)	1.0
C_i/N_i	0.5	a (m)	1.0(기준값)
ρ (kg/m^3)	2700	b (m)	5.0e-3
T (yr)	10 000		

지하수내의 이류현상 (advection)을 지배하는 지하수유속은 방사성핵종의 경우 1 m/yr로 설정하였으며, 콜로이드의 경우 수리적 크로마토그래피 (hydrodynamic chromatography) [19-20]에 의한 평균유속의 증가를 고려하여 방사성핵종의 경우보다 높게 가정하였다. 방사성핵종과 콜로이드에 대한 지하수내의 수력학적 분산 (hydrodynamic dispersion)현상에는 차이를 두지 않고 함께 1 m²/yr로 설정하였다. 균열의 두께, b ,와 주변암반의 공극율, θ ,은 문헌상에서 발견되는 값들을 사용하여 기준입력변수로 설정하였다.

3. 지하 균열암반에서 콜로이드를 동반한 방사성 핵종이동 결과

가. 라플라스 반 해석해의 검증

식 (21)과 (24)는 각각 라플라스 변환을 통해서 구해진 복소수평면상의 해이며, 이 식들의 검증을 위하여 본 연구에서는 균열 내 방사성핵종의 이동에 대한 복소수 평면상의 라플라스 해[9]와 비교하였다.

먼저 식 (7)과 (8)에 나타난 유사콜로이드 반응을 고려하지 않는 즉, $K_{nc,i} = 0$ 으로 하였을 때 지배 방정식이 방사성핵종을 고려한 반해석해 [9]로 유도되는지를 알아보았다. 식 (11)에서 콜로이드를 고려하였을 때 새로이 정의된 지연계수 (retardation factor)는 방사성핵종을 고려하였을 때와 같은 지연계수로 유도가 되며, 이산계수와 지하수내 방사성핵종의 유속이 각각 방사성핵종만을 고려하였을 때 정의한 변수로 쉽게 유도된다. 또한, 프로그램이 정확히 작성되었는지를 검증하기 위하여 콜로이드를 동반한 방사성핵종 이동결과와 콜로이드를 동반하지 않았을 때 균열 내 방사성핵종의 이동 결과[9]를 비교하여 그림 2와 그림 3에 도시하였다. 그림 2는 방사성핵종의 누출시간을 10 000년으로 하였을 때 20 000년 시점에서 Am-241 붕괴사슬의 거리에 대한 표준화된 핵종농도를 나타내었고 그림 3에서는 U-234 붕괴사슬에 대하여 나타내었다. 그림 2와 그림 3으로부터 이들에 대한 프로그램들이 정확히 작성되었음을 알 수 있다.

나. 유사콜로이드의 반응상수

식 (8)에서 정의된 평형상태에서 유사콜로이드의 겔보기 반응상수가 균열의 방사성핵종 이동에 미치는 영향을 그림 4와 5에 나타내었다. 지하수 내에서 콜로이드 입자와 방사성핵종들이 서로 반응하여 유사콜로이드로 존재하는 양이 많아질수록 방사성핵종 이동은 유동성 콜로이드에 의한 핵종이동의 가속화 현상이 두드러지는 것을 알 수 있다. 그림 4는 Am-241 붕괴사슬에 대하여 그리고 그림 5에서는 U-234 붕괴사슬에 대하여 나타내었다.

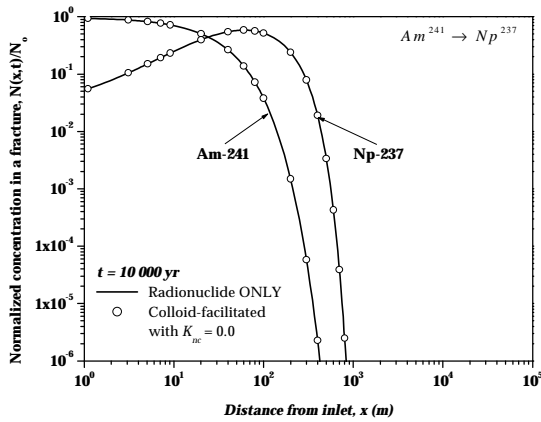


그림 2 라플라스 반해석해의 검증 1
($n=2$, $K_{nc} = 0.0$, $t = 10\,000$ yr)

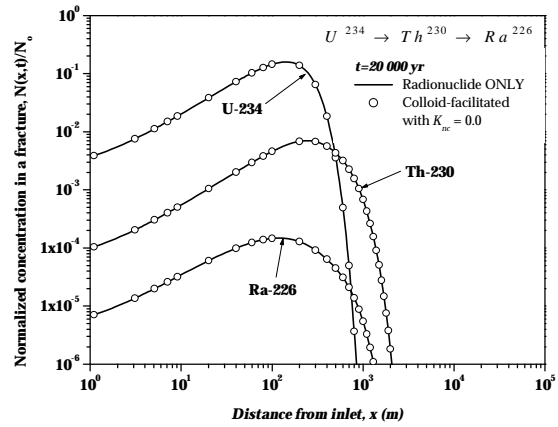


그림 3 라플라스 반해석해의 검증 2
($n=3$, $K_{nc} = 0.0$, $t = 20\,000$ yr)

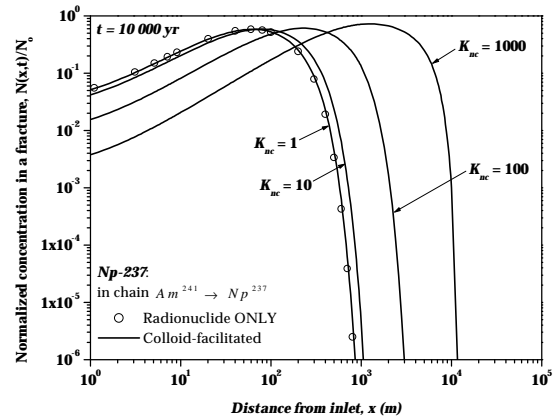
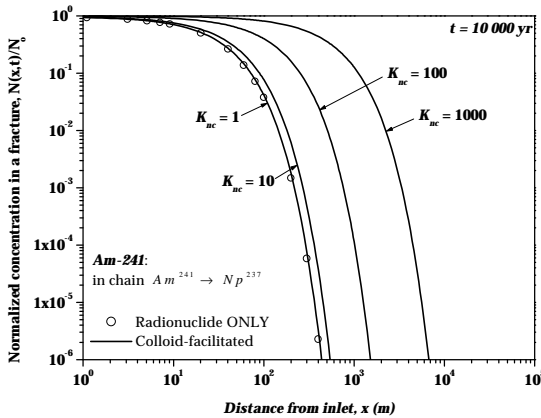


그림 4 $Am^{241} \rightarrow Np^{237}$ 붕괴사슬에서 유사콜로이드 반응상수의 영향 ($t = 10\,000$ yr)

다. 콜로이드의 여과작용

콜로이드 입자는 지하매질과 다양한 반응을 하게 되며, 이러한 거동들은 방사성핵종들의 이동과는 매우 다르게 정의된다. 특히 콜로이드 입자의 여과작용 (filtration)은 핵종수착과는 다른 물리적 과정으로 정의된다. 콜로이드가 전하를 띠고 있는 경우 인력적인 Van der Waals 힘과 콜로이드의 크기에 의해 벽면과의 접촉, 고정화 등 균열 벽면과 이루어지는 물리적인 반응들에 의하여 콜로이드 입자들을 감속에 중요한 역할을 한다. Am의 경우 다공질 매질에서 여과 계수를 $2.0e-3$ (1/m) ~ $1.0e-1$ (1/m)의 실험결과 [21]가 있으며, 이는 지하수내 존재하는 콜로이드의 크기에 크게 관계되며, 이를 분포로 고려하여 콜로이드의 누적분포함수를 구하는 연구들이 있다. [3, 21]

식 (21)과 (24) 그리고 표 1과 2를 이용하여 콜로이드의 여과에 의한 핵종이동 영향을 그림 6과 7에 나

타내었다. 그림 6과 7은 식(2)에서 정의되어 사용된 여과 계수가 10^3 보다 클 경우에 여과효과를 무시 할 수 없음을 알 수 있다.

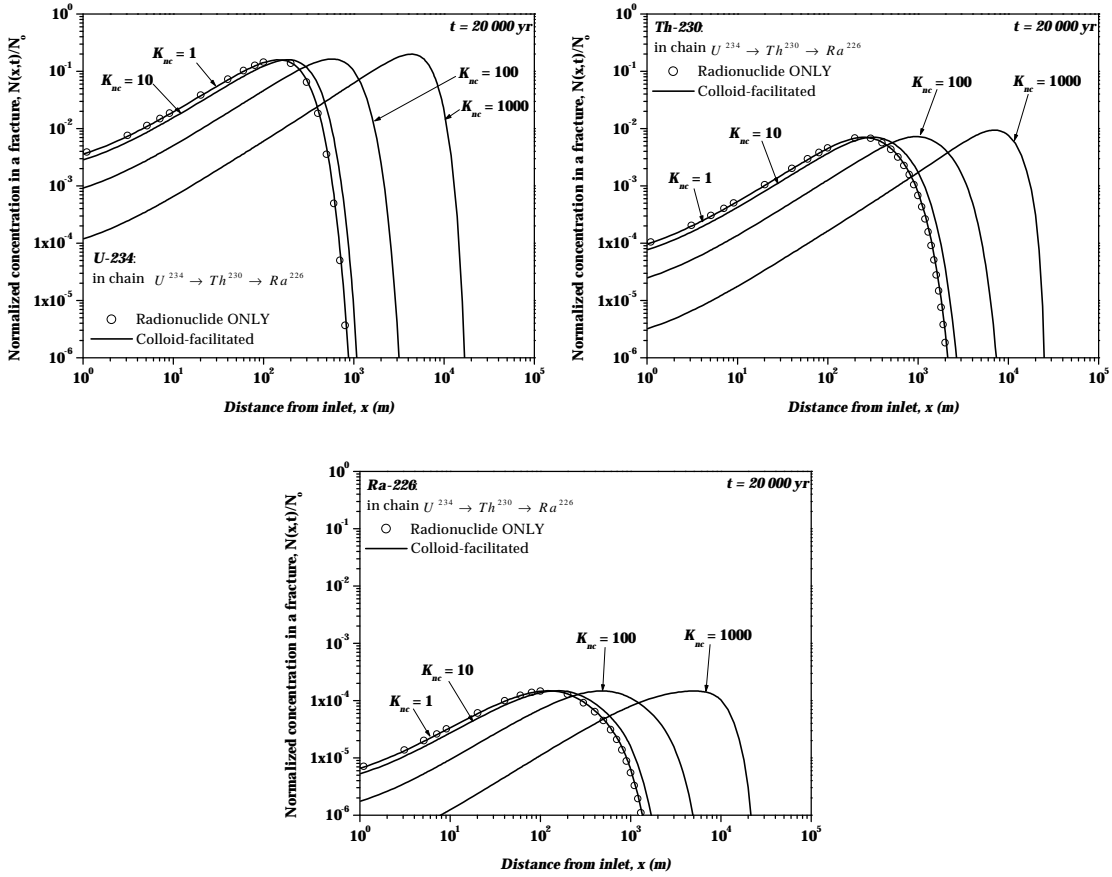


그림 5 $U^{234} \rightarrow Th^{230} \rightarrow Ra^{226}$ 붕괴사슬에서 유사콜로이드 반응상수의 영향 ($t = 20\,000\text{ yr}$)

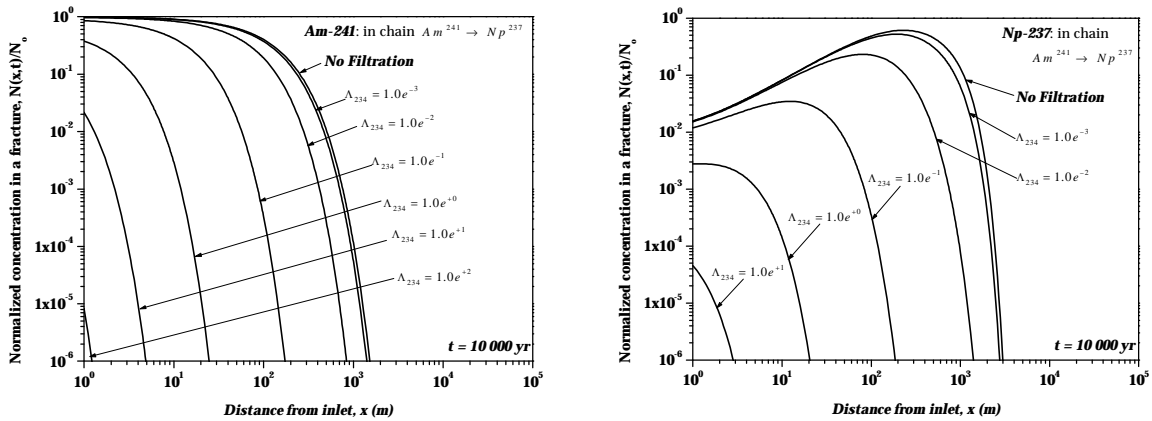


그림 6 $Am^{241} \rightarrow Np^{237}$ 붕괴사슬에서 콜로이드의 여과작용이 핵종이동에 미치는 영향 ($K_{nc} = 100.0, t = 10\,000\text{ yr}$)

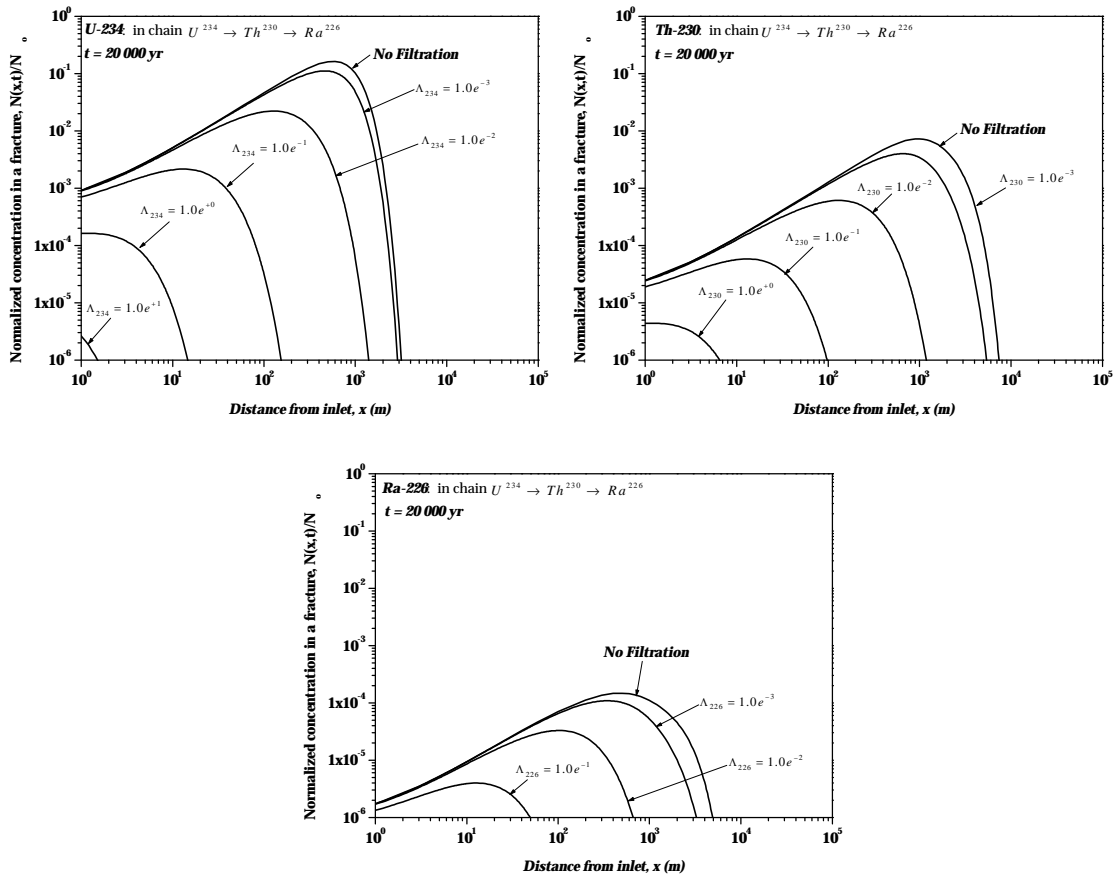


그림 7 $U^{234} \rightarrow Th^{230} \rightarrow Ra^{226}$ 붕괴사슬에서 콜로이드의 여과작용이 핵종이동에 미치는 영향
 $(K_{nc} = 100.0, t = 20\,000\text{ yr})$

라. 주변암반의 제한적 확산

지하수 내에 존재하는 콜로이드는 그 물리적인 크기와 전기적 특성에 의하여 주변암반으로 확산할 수 없다고 가정을 하였다. 그러나, 콜로이드와 결합하지 않는 용해된 방사성핵종들은 균열 벽면에 흡착되거나 주변암반을 통하여 확산하게 된다. 주변암반의 확산특성에 대한 연구들 [10-12]은 방사성핵종이 균열의 주변암반으로 확산할 때 확산 영역이 제한적이며, 제한된 영역 이상의 확산은 주변암반의 특성 (즉, 확산계수의 감소와 공극율의 감소에 의한 저지계수 상승 등)으로 인하여 일어나기 힘들다는 결과를 발표하였고, 이러한 제한적 확산특성은 균열 내의 핵종이동을 가속화시킨다는 연구결과들이 있다 [9, 23-24]. 본 연구에서는 식 (20)의 제한적 확산의 경계조건을 도입하여 이러한 사실을 콜로이드를 동반한 핵종이동 연구에 반영하였다.

Am-241 붕괴사슬에 대한 주변암반으로 확산두께에 따른 핵종이동 현상을 그림 8에 나타내었다. 그림 8에서는 유사콜로이드의 생성반응계수, K_{nc} 는 $100.0\text{ (m}^3/\text{kg)}$ 을 가정하였으며, 여과에 의한 영향은 무시하였고, 주변 암반의 지연계수, R_p , (retardation factor)는 붕괴사슬에 속한 핵종에 대하여 10^5 로 가정하였다. 다른 입력변수들은 붕괴사슬에 대하여 표 1과 표 2에 도시된 값들을 사용하였다.

그림 8에서 주변암반으로의 확산이 제한적임을 고려할 때, 지하수내에 콜로이드가 존재 유무에 관계 없이 핵종들의 이동이 가속되는 것을 알 수 있다. 즉, 주변암반으로 방사성핵종의 확산이 일어날 수 있

는 영역이 줄어들수록 균열 내에 존재하는 방사성 핵종이동은 콜로이드의 존재 여부에 관계없이 가속된다.

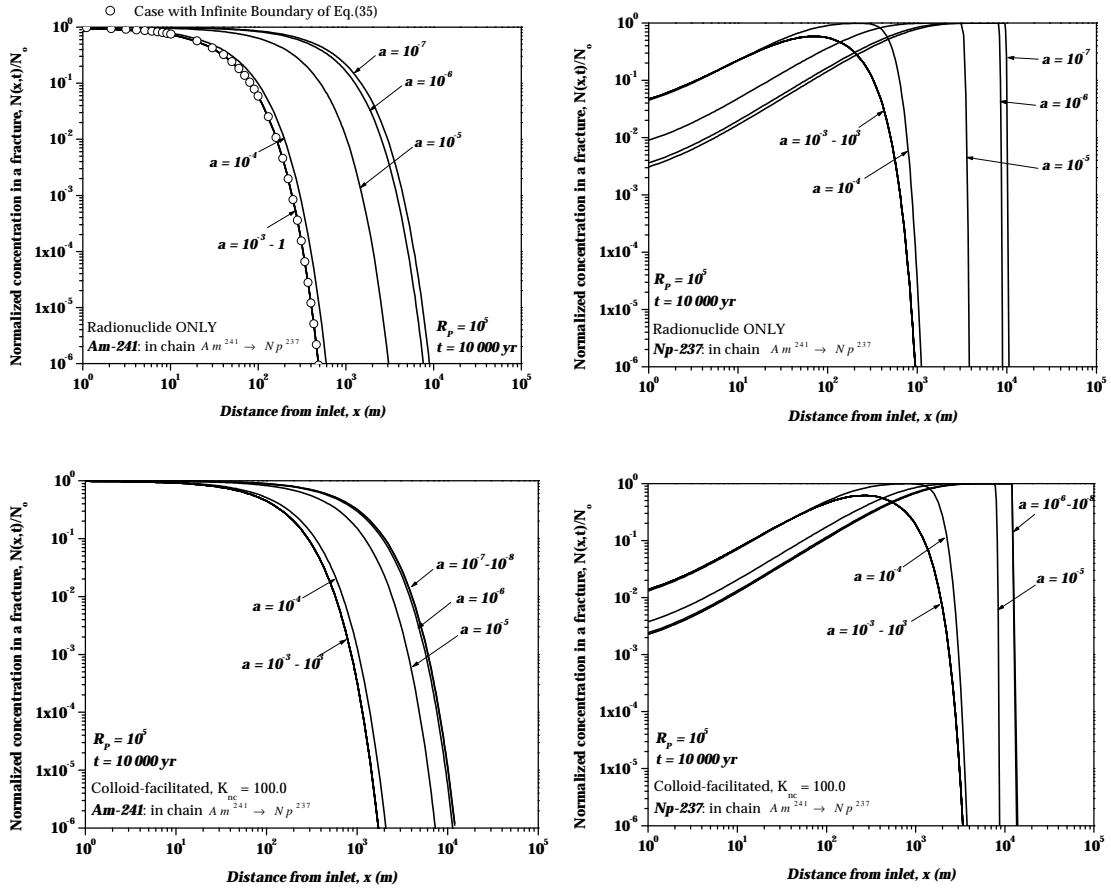


그림 8 $Am^{241} \rightarrow Np^{237}$ 붕괴사슬에서 주변암반의 제한적 확산이 핵종이동에 미치는 영향 ($K_{nc} = 0$ and 100.0 (m^3/kg), $R_p = 10^5$, $A_m = 0.0$ ($1/m$), $t = 10,000$ yr)

또한 제한적 확산을 나타내는 확산깊이에도 균열 내 핵종가속에 영향을 미치는 수치영역이 존재함을 그림 8을 통하여 예측할 수 있다. 즉, 특정 확산깊이의 영역에서 가속현상이 일어나며 그 확산깊이가 이 영역보다 더 커지는 경우에는 제한적 확산을 무시한 이동모델로 예측한 것과 동일하며, 더 이상의 가속이 나타나지 않는다. 그리고, 확산깊이가 이 수치영역보다 더 작은 확산깊이를 고려하더라도 핵종들의 추가적인 가속에는 영향을 미치지 않는 것을 볼 수 있다. 제한적 확산을 무시한 모델은 식 (20)의 경계조건 대신 아래의 경계조건을 이용하여 구할 수 있다[15].

$$\lim_{y \rightarrow \infty} M(x, y, t) = 0, x > 0, y > b, t > 0. \quad (35)$$

그림 9에서는 그림 8을 통해서 예측할 수 있는 유효한 제한적 확산깊이에 대하여 나타내었다. 균열내의 표준화된 핵종농도가 10^{-6} 이 되는 지점(y축)과 균열표면으로부터 확산깊이(x축)를 주변암반의 지연계수에 따라 나타내었다. 제한적 확산의 두께가 균열 내에 핵종가속에 영향을 미치는 수치적 범위가 존재함을 명확히 알 수 있으며, 이러한 수치적 범위를 벗어나는 영역에서는 두께에 따른 핵종들의 가속효과를 볼 수가 없었다. 이 가속에 유효한 수치범위보다 큰 값에서 얻어진 핵종농도는 제한적 확산을 무시한

모델과 동일한 결과를 보인다고 할 수 있다.

또한, 주변암반의 지연계수가 클수록 제한적 확산깊이에 따른 핵종들의 가속범위에 큰 영향을 주는 것을 볼 수 있으며, 주변암반의 핵종지연계수가 10^5 일 때 Am-241의 경우 (그림 8) 콜로이드가 존재하지 않는 경우에 유효한 제한적 확산깊이에서 500 m에서 9000 m 까지 가속이 일어날 수 있는 반면, 콜로이드를 동반한 경우 동일한 조건에서 1500 m에서 11 000 m 까지 가속이 일어날 수 있는 것으로 예측되었다.

즉, 균열암반 내에서 방사성핵종들이 콜로이드를 동반하여 이동할 때 핵종들의 가속현상이 일어나며, 이것은 주변암반으로 핵종확산의 두께가 매우 작을 때에는 주변암반에 흡착되어 핵종이동이 되지 않는 비율에 큰 차이를 보이지 않지만, 확산이 가능한 두께가 증가할 수록 주변암반 속으로 확산되어 흡착되는 핵종들이 증가하기 때문에 이러한 제한적 확산깊이에 대한 핵종가속범위는 증가하게 된다.

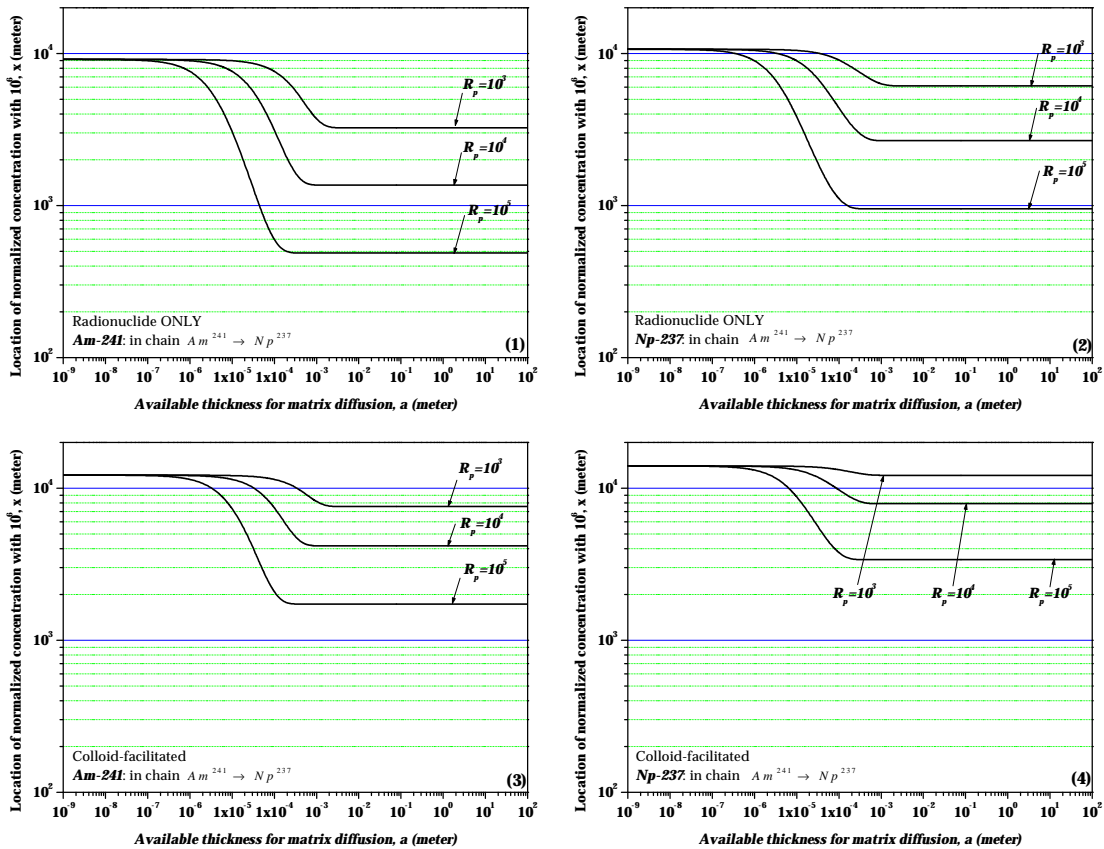


그림 9 $Am^{241} \rightarrow Np^{237}$ 붕괴사슬에서 주변암반의 확산 깊이가 핵종농도에 미치는 영향

$$(K_{nc} = 0 \text{ and } 100.0 \text{ (m}^3/\text{kg)}, R_p = 10^5, \Lambda_{nc} = 0.0 \text{ (1/m)}, t = 10\,000 \text{ yr})$$

4. 결론

본 논문에서는 균열암반에서 콜로이드를 동반한 방사성 핵종이동을 방사성 붕괴사슬과 제한적 분자 확산을 함께 고려하였다. 핵종이동 시스템과 지배방정식 및 초기/경계조건을 설정하고 반해석해를 구하였으며, 구해진 해에 대한 라플라스 역변환을 통하여 반해석해의 검증을 실시하였다. 유사콜로이드

의 반응상수가 균열 내에 미치는 영향과 콜로이드의 여과작용이 핵종이동에 미치는 영향 그리고 주변 암반으로 제한적 확산이 핵종이동에 미치는 영향에 대하여 알아보았다.

지하수내에 존재하는 유사콜로이드의 양이 많아질수록 균열 내 방사성핵종에 있어 가속현상이 크게 나타났으며 여과계수는 모든 핵종에 대하여 10^3 (1/m)보다 클 경우 여과에 의한 핵종 지연을 무시할 수 없었다.

콜로이드의 존재로 인한 핵종가속과 더불어, 주변암반의 방사성핵종의 분자확산이 제한적일 경우에 예측된 핵종가속현상은 확산깊이가 적을수록 더 커지는 것을 알 수 있었고, 이때 가속에 영향을 주는 유효확산깊이가 존재하는 것을 발견할 수 있었다. 또한 주변암반의 지연계수가 클수록 제한적 확산깊이에 따른 핵종들의 가속범위가 증가함을 알 수 있었다.

따라서, 방사성폐기물 처분을 위한 성능평가에서 유사 콜로이드를 고려하지 않는 일반적인 핵종이동 모델링은 덜 보수적으로 평가되며, 유사 콜로이드 이동에 있어서도 주변 암반으로의 확산이 제한적일 경우에 핵종이동에 미치는 영향이 크므로 향후 현장실험 등을 통해 제한적 확산 범위 실측이 절실히 요구된다. 또한 유사 콜로이드 형성과 관련된 인자 값들에 대한 실험이 계속적으로 수행되어 핵종이동 모델링에 필요한 입력인자 값들이 충실히 확보되어야 하겠다.

5. 감사의 글

본 연구를 위해 많은 조언을 아끼지 않으신 한국원자력연구소 황용수 박사님과 강철형 박사님 그리고 백민훈 박사님께 감사를 드립니다. 본 연구는 2002년도 신규 국가지정연구실사업(NRL)인 원자력환경기술원의 '부지환경 종합관리시스템 개발'의 일환으로 수행되었습니다.

6. 참고문헌

- (1) Grisak, G.E., Pickens, J.F., and Cherry, J.A. (1980), "Solute transport through fractured media: 2. Column study of fractured till," *Water Resources Research*, Vol.16, No.4, 731-739.
- (2) Neretnieks, I. (1980), "Diffusion in the Rock Matrix: An Important Factor in Radionuclide Retardation?," *Journal of Geophysical Research*, Vol.85, No.B8, 4379-4397.
- (3) Baik, M.H., Hahn, P.S., and Park, H.H. (1995), "A Theoretical Study on the Radionuclide Transport Mediated by Pseudo-Colloid in the Fractured Rock Medium," *Journal of the Korean Nuclear Society*, Vol.27, No.4, 532-543.
- (4) Bonano, E.J. and Beyeler, W.E. (1985), "Transport and capture of colloidal particles in single fractures," *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, Vol.44, 385-392.
- (5) Grindrod, P. (1993), "The impact of colloids on the migration and dispersal of radionuclides within fractured rock," *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol.13, 167-181.
- (6) Ibaraki, M. and Sudicky, E.A. (1995), "Colloid-facilitated contaminant transport in discretely fractured porous media 1. Numerical formulation and sensitivity analysis," *Water Resources Research*, Vol.31, No.12, 2945-2960.
- (7) Laaksoharju, M., Degueudre, C., and Skarman, C. (1995), *Studies of colloids and their importance for repository performance assessment*, SKB TR 95-24.
- (8) Hodgkinson, D.P. and Maul, P.R. (1988), "1-D Modeling of Radionuclide Migration through Permeable and Fractured Rock for Arbitrary Length Decay Chains using Numerical Inversion of Laplace Transforms," *Annals of Nuclear Energy*, Vol.15, No.4, 175-189.

- (9) Park, J.B., Hwang, Y., and Lee, K.J. (2001), "Analytic Solutions of Radionuclide Transport with the Limited Diffusion from the Fracture into a Porous Rock Matrix," *Annals of Nuclear Energy*, Vol.28, No.10, 993-1011.
- (10) Sato, H. (1999), "Matrix Diffusion of Simple Cation, Anion and Neutral Species in Fractured Crystalline Rocks," *Nuclear Technology*, Vol.127, 199-211.
- (11) Sidle, R.C., et al. (1998), "Spatially varying hydraulic and solute transport characteristics of a fractured till determined by field tracer tests, Funen, Denmark," *Water Resources Research*, Vol.34, No.10, 2515-2527.
- (12) Vieno, T. and Nordman, H. (1999), Safety Assessment of spent fuel disposal in Hastholmen, Kivetty, Olkiluoto and Romuvaara TILA-99, POSIVA 99-07, POSIVA, Helsinki.
- (13) Numerics, V. (1997), *IMSL Fortran subroutines for Mathematical Applications*.
- (14) Talbot, A. (1978), "The Accurate Numerical Inversion of Laplace Transforms," *J. Inst. Maths Applics*, Vol.25, 97-120.
- (15) Ahn, J. (1988), *Mass Transfer and Transport of Radionuclides in Fractured Porous Rock*, Ph. D. Dissertation, Univ. of California at Berkeley.
- (16) Ahn, J., et al. (1996), *Radionuclide Transport in Disturbed Zone Between Engineered and Natural Barriers Deep Geologic Disposal of High-Level Radioactive Wastes*, UCB-NE-4217, Department of Nuclear Engineering, University of California, Berkeley, California 94720-1760.
- (17) Park, J.B. (2000), *A Study on the Radionuclide Migration in a Fractured Porous Rock with Limited Diffusion*, Ph. D. Dissertation, Dept. of Nuclear Eng., Korea Advanced Institute of Science and Technology.
- (18) Ledin, A., et al. (1995), *Measurements of colloid concentration in the fractured zone*, Asop Hard Rock Laboratory, Sweden, SKB TR 95-17.
- (19) Jen, C.-P. and Li, S.-H. (2001), "Effects of hydrodynamic chromatography on colloid-facilitated migration of radionuclides in the fractured rock," *Waste Management*, Vol.21, 499-509.
- (20) Wels, C., Smith, L., and Vandergraaf, T.T. (1996), "Influence of specific surface area on transport of sorbing solutes in fractures: An experimental analysis," *Water Resources Research*, Vol.32, No.7, 1943-1954.
- (21) Saltelli, A., Avogadro, A., and Bidoglio, G. (1984), "Americium Filtration in Glauconitic Sand Columns," *Nuclear Technology*, Vol.67, 245-254.
- (22) Park, J.B., Hwang, Y., and Kang, C.H. (2001), "Effects of Limiting Matrix Diffusion of Radionuclide in Fractured Porous Rock: Back Diffusion of Np-237," *Korean Nuclear Society Autumn Meeting*, Seoul.
- (23) Park, J.B., Hwang, Y., and Lee, K.J. (2001), "Transport of Radionuclide in Fractured Porous Rock with Limiting Matrix Diffusion," *The 9th International High-Level Radioactive Waste Management IHLRWM '01*, Las Vegas.
- (24) Park, J.B., Lee, K.J., and Hwang, Y. (2001), "Effects of Limiting Matrix Diffusion of Radionuclide in Fractured Porous Rock : Numerical Inversion of Laplace Transform," *Korean Nuclear Society Spring Meeting*, Cheju.