

KURT 지하수 내 유기물과 우라닐(VI) 화학종의 착물 형성에 관한 연구

정의창*, 백민훈, 조혜륜, 김희경, 차완식

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*ecjung@kaeri.re.kr

1. 서론

고준위방사성폐기물의 처분 안전성을 예측하기 위한 연구의 일환으로 처분부지의 지하수와 악티나이드 원소의 화학반응을 이해하는 것이 필요하다. 대표적인 화학반응으로 산화환원, 착물 (complex) 형성, 광물 표면 흡착 반응 등을 꼽을 수 있다. 이 연구에서는 레이저 분광학 기술을 이용하여 KURT에서 채취한 지하수에 존재하는 유기물과 우라닐(VI) 화학종의 착물 형성 반응을 조사하였다.

지하수에 존재하는 유기물과 악티나이드 원소의 착물 형성 반응에 관한 연구는 오랜 기간 동안 처분 안전성에 관한 연구를 수행해 온 나라에서도 어렵게 여기고 있는 분야이다. 현재까지도 대표적인 유기물로 휴믹산을 대상으로 한 일부 실험결과만이 발표된 실정이다. 연구가 어려운 이유는 지하수에 함유된 유기물의 종류가 지역마다 다르고, 그 종류를 구분할 수 있는 화학종 규명 (chemical speciation) 기술도 체계적으로 확립되지 않았기 때문이다. 일반적으로 지하수에 함유된 유기물의 양은 용존 유기 탄소 (DOC, dissolved organic carbon) 농도에 비례한다고 알려져 있다. KURT 지하수에서 채취한 6개의 시료에는 Table 1에서 나타난 농도 범위의 DOC와 우라닐(VI) 화학종이 함유되어 있다.

이 실험에서는 시간분해 레이저 형광 분광학 (TRLFS, time-resolved laser fluorescence spectroscopy) 기술을 이용하여 KURT 지하수에 존재하고 있는 유기물 및 우라닐(VI) 화학종에서 발생하는 발광 (luminescence) 스펙트럼을 각각 측정하였다. 현 시점에서 유기물의 종류를 정확하게 구분할 수는 없지만 여러 종류의 유기물이 공존한다는 것과 지하수에 존재하는 우라닐(VI) 화학종이 Ca-U(VI)-CO₃ 착물이라는 것을 확인하였다. KURT 지하수 조건과 유사한 조건에서 제조한 Ca-U(VI)-CO₃ 착물을 지하수에 섞어 발광 스펙트럼을 측정함으로써 유기물과 우라닐(VI) 화학종의 착물 형성 여부를 조사한 결과에 대해 논의한다.

2. 실험

2.1 지하수 시료

지하 41.7-299.7 m 깊이에서 지하수 시료를 채취하였다. 참고문헌 [1]에 각 깊이별로 채취한 시료의 물리화학적 특성이 정리되어 있다. Table 1에 6개 지하수 시료에 함유된 DOC 농도와 우라늄 농도를 나타내었다.

Table 1. Concentrations of DOC and uranium in KURT groundwater samples

Sample	DOC (mg/L)	U (mg/L)
S1	0.386	33.97 ± 0.20
S2	0.360	788.41 ± 2.51
S3	0.521	151.37 ± 0.78
S4	1.130	0.16 ± 0.02
S5	1.743	4.89 ± 0.05
S6	0.384	1.62 ± 0.01

2.2 TRLFS 장치

실험에 이용한 TRLFS 장치의 구성을 Fig. 1에 나타내었다. 장치의 각 구성부품에 대한 설명은 참고문헌 [2]에 상세하게 정리되어 있다. 유기물의 흡수 및 발광 특성을 추가적으로 측정하기 위해 분광 광도계 및 형광 분광계를 각각 이용하였다.

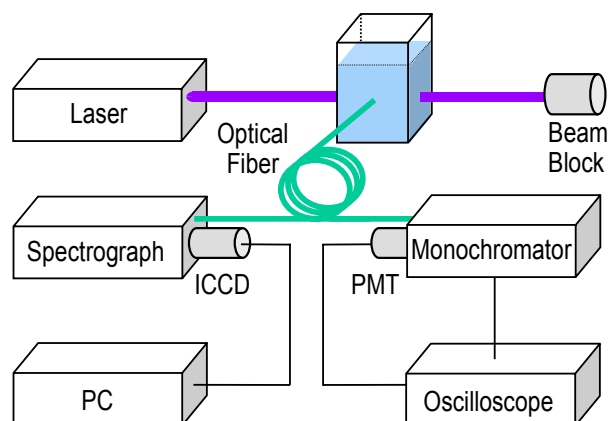


Fig. 1. Experimental setup for TRLFS.

3. 결과 및 논의

3.1 유기물 분광 특성

Table 1의 시료 S1과 S5에서 측정된 발광 스펙트럼을 Fig. 2에 나타내었다. DOC 농도가 높은 시료 S5에서는 유기물의 발광 스펙트럼이 강하게 나타난다. 시료 S1에서 우라닐(VI) 화학종의 존재를 나타내는 발광 봉우리를 점선으로 표시하였다.

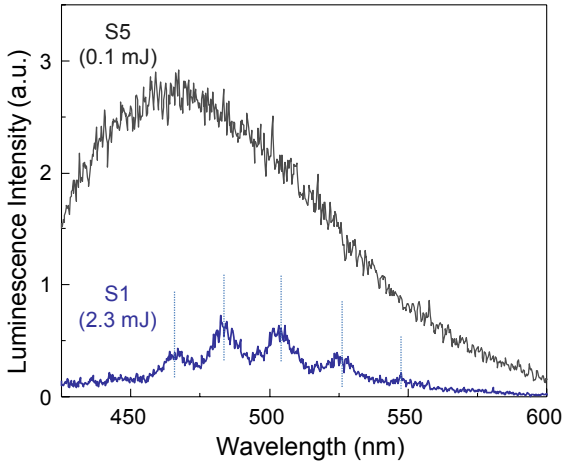


Fig. 2. Luminescence of the raw groundwater samples (gate delay 36 ns, gate width 200 ns).

3.2 우라늄 정량분석 및 우라닐(VI) 화학종 규명

Fig. 1의 TRLFS 장치를 이용하여 지하수 시료의 우라늄 총량을 간편하게 결정할 수 있는 방법에 대해 설명하고, 우라닐(VI) 화학종의 종류를 구분한 결과에 대해 논의한다. Fig. 3에 지하수 시료 S2에서 측정된 발광 스펙트럼과 실험실에서 제조한 U(VI)-CO₃ [3], Ca-U(VI)-CO₃ 착물의 발광 스펙트럼을 비교하였다. 또한 이 화학종들의 발광 수명을 측정된 결과에 대해 논의한다.

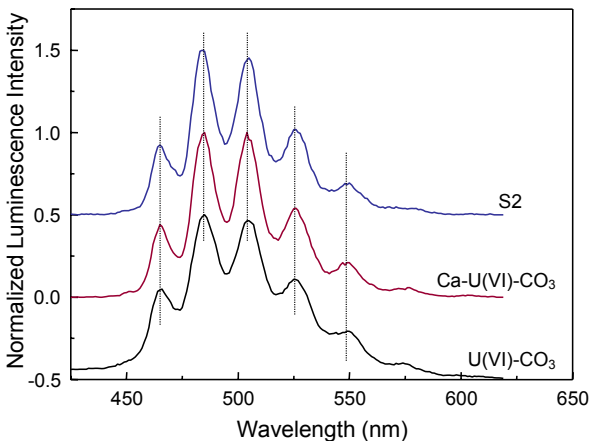


Fig. 3. Luminescence spectra of the groundwater sample S2, Ca-U(VI)-CO₃ and U(VI)-CO₃ species.

3.3 유기물과 우라닐(VI) 화학종 착물 형성 반응

Fig. 4에 실험실에서 제조한 Ca-U(VI)-CO₃ 화학종을 지하수 시료 S5에 섞었을 때 우라닐(VI) 화학종의 발광 세기가 감소한 실험 결과를 나타내었다. 우라닐(VI) 화학종과 지하수 내 유기물이 발광에 기여하지 않는 새로운 착물을 형성하는 것으로 이 결과를 해석할 수 있다. 각각의 농도를 변화시키면서 측정된 결과를 비교하였다.

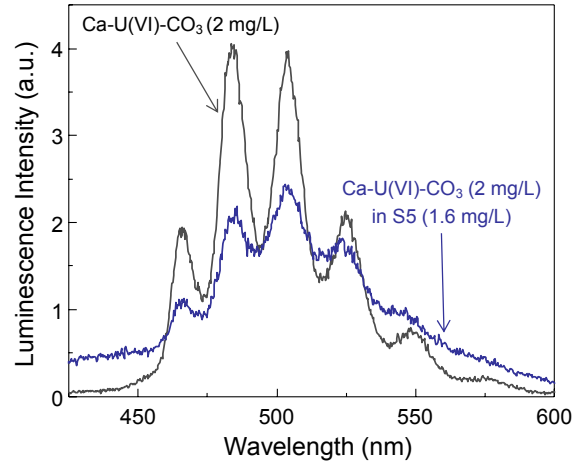


Fig. 4. Luminescence spectra of Ca-U(VI)-CO₃ in groundwater sample S5 (gate delay 100 ns).

4. 결론

KURT에서 채취한 지하수에 존재하고 있는 유기물과 우라닐(VI) 화학종은 착물을 형성하고 있는 것처럼 보인다. 유기물과 우라닐(VI) 화학종 각각의 분광 특성을 살펴보고, 화학종을 구분할 수 있는 방법을 논의하였다.

5. 참고문헌

- [1] M.H. Baik, E.C. Jung, and J. Jeong, "Determination of uranium concentration and speciation in natural granitic groundwater using TRLFS", *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 305, 589-598, (2015).
- [2] E.C. Jung, H.-R. Cho, W. Cha, J.-H. Park, and M.H. Baik, "Uranium determination in groundwater using laser spectroscopy", *Rev. Anal. Chem.* 33(4), 245-254 (2014).
- [3] E.C. Jung, H.-R. Cho, M.H. Baik, H. Kim, and W. Cha, "Time-resolved laser fluorescence spectroscopy of UO₂(CO₃)₃⁴⁻", *Dalton Trans.* 44, 18831-18838 (2015).