셀레늄의 철산화물 흡착에 미치는 음이온의 영향

김승수, 민제호, 이재광, 백민훈, 최종원
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
nsskim@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성 핵종 중 Se-79는 반감기가 $6.5x10^4$ 년으로 장수명 핵종이지만, 자연수 중에 Se(VI)와 Se(IV)의 산화상태로서 음이온으로 존재하여 처분장 주변의 암석에 잘 흡착되지 않고 지하수에 따라 쉽게 이동할 것으로 예상된다. 그러나 방사성폐기물 혹은 사용후핵연료가 심부지하에 처분되었을 경우, 이들로부터 유출되어 나온 셀레늄은 낮은 산화환원전위를 갖는 지하수 중에서 Se(0), 혹은 처분용기의 부식생성물과 반응하여 용해도가 낮은 FeSe, $FeSe_2$를 형성할 수 있다. 그러나 이 조건에서도 Se(IV)이 미량으로 존재할 수 있는데, 이들도 처분용기의 부식생성물인 철 산화물에 쉽게 흡착하는 것으로 알려져 있다 [1]. 한편, 일반적으로 실제 지하수에는 탄산, 플루오린, 황, 염소, 규소 이온과 같은 음이온들이 상당량 존재한다. 따라서 이 음이온들이 철산화물에 의한 셀레늄의 흡착을 방해할 수 있다.

본 연구에서는 처분장에서 고준위폐기물로부터 유출되어 나온 셀레늄의 지화학 거동을 예측하기 위하여 KURT 지하수에 존재하는 음이온들의 농도를 참고하여[2] 이들 이온들이 셀레늄의 철산화물 흡착에 미치는 영향을 조사하였다.

2. 실험

지하수에 흔히 존재하는 음이온들이 셀레늄의 철산화물 흡착에 미치는 영향을 실험하기 위하여 고체 흡착매질로서 magnetite와 ferrite 분말을 사용하였다. 이 철산화물 1.0 g을 $1.0x10^{-4}$ ~ $1.0x10^{-6}$ mol/L 농도의 selenite (Se(IV)) 혹은 selenate (Se(VI)), 그리고 방해이온으로 $1.0x10^{-2}$ ~ $1.0x10^{-4}$ mol/L 농도의 탄산, 플루오린, 규산 이온을 각각 포함한 20 mL의 용액에 넣고, $NaClO_4$을 넣어 용액중 이온강도를 비슷하게 조절하였다. 그 후, 소량의 $HClO_4$과 NaOH를 첨가하여 용액의 pH를 조절한 후 7일동안 반응시켰다.

반응후 상등액을 0.2 μm의 공극크기를 갖는 polyethersulfone 필터, 혹은 NMWL 10k ultrafiltration membrane (Millipore, PES)으로 거른 다음, 용액중에 녹아있는 셀레늄의 양을 inductively coupled plasma - mass spectrometry로 측정하였다.

3. 결과 및 토의

탄산 이온과 플루오린의 농도에 따라 셀레늄의 magnetite 흡착에 미치는 영향을 그림 1에 나타냈으며, 규산 이온의 영향을 표 1에 나타내었다. 그림 1에서 Se(IV)는 용액의 pH가 증가함에 따라 magnetite에 흡착이 감소하는 것으로 나타났으며, 탄산 이온은 셀레늄의 흡착에 방해를 한 반면, 플루오린 이온은 거의 영향을 주지 않는 것으로 나타났다.

표 1의 결과는 규산 이온도 셀레늄의 흡착에 방해를 하는데, 상당량의 규소가 magnetite에 흡착하는 것으로 보아 셀레늄과 서로 경쟁반응을 하는 것으로 나타났다. 또한, 동일한 농도의 탄산 이온과 규산 이온을 넣은 조건에서 Kd값의 비교한 결과는 규산 이온의 영향이 탄산 이온보다 더 큰 것으로 나타났다. 그러나 magnetite와 달리 ferrite의 경우에는 규산 이온의 영향이 크게 나타나지 않았다.

Selenate는 pH 7 ~ 11 영역에서 magnetite와 ferrite 모두에 흡착되지 않았다.

4. 결론

지하수에 흔히 존재하는 음이온 중 셀레늄의 magnetite 흡착에 미치는 음이온들의 방해효과는 규산 > 탄산 > 플루오린 이온 순으로 나타났으나, ferrite의 경우에는 규산 이온의 영향이 탄산 이온보다 작게 나타났다.

5. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 지원으로 수행되었습니다.

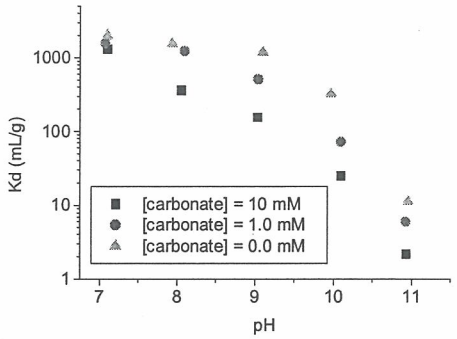
6. 참고문헌

[1] M. Martı´nez, J. Gime´nez, J. de Pablo, M. Rovira, L. Duro, Applied Surface Science Vol. 252, 3767-3773, 2006.

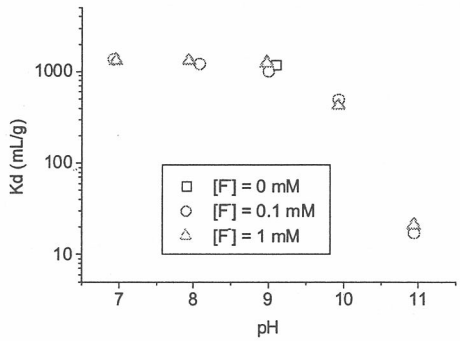
[2] S. S. Kim, M. H. Baik, K. C. Kang, J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry Vol. 280, No.3, 577-583, 2009.

Table 1. The distribution constant (Kd) of selenite onto magnetite in silicate and carbonate solutions at near pH=9.0

Se(IV) (mM)	Na_2SiO_3 (mM)	Na_2CO_3 (mM)	Kd (mL/g)
0.1	1		14
0.01	1		30
0.01	0.1		587
0.1		1	82
0.01		1	506



(a)



(b)

Fig. 1. Variation of distribution constant (Kd) of selenite onto magnetite as a function of pH; (a) in various carbonate solutions, and (b) in various fluoride solutions