

초임계 이산화탄소와 TBOD를 이용한 토양으로부터 우라늄 추출 분리

성진현, 김정수, 박광현, 김홍두, 김학원, 김계남*, 문제권*

경희대학교, 경기도 용인시 기흥구 서천동 1

*한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150)

sungjh@khu.ac.kr

1. 서론

원자력 분야의 주요 현안 중의 하나인 방사성 오염물의 제염(Decontamination)은 이차 폐기물의 발생이 적은 보다 환경친화적인 기술의 개발을 필요로 하고 있다. 현재 제염 분야에서 사용되고 있는 방법은 산과 알칼리 용액에 의한 표면용해 등의 화학적 제염과 고압의 물이나 증기의 분사에 의한 표면세척 등의 물리적 제염 등이 실행되고 있으나, 이러한 습식제염 기술들은 제염시 이차 폐기물을 다량으로 발생시키는 단점을 가지고 있다. 미래에는 원자력 시설들의 노후화로 인하여 이들 시설물의 폐기 또는 해체에 대한 수요가 증가할 것이므로 노후화된 원자력 관련 시설의 유지 보수와 수명 연장 또는 폐기와 해체로 발생하게 될 방사성 오염 물질의 제염에 대하여 이차폐기물의 발생을 근본적으로 억제하는 혁신적인 기술이 필요하다. 초임계 이산화탄소를 이용한 건식 제염 기술은 이차폐기물의 발생이 적은 기술적 특징을 가지고 있다. 그러나 비극성 물질인 이산화탄소는 이온성 물질에 대하여 낮은 용해도를 나타내므로, 금속이온을 이산화탄소로 직접 추출하여 제염효율을 향상시킬 수 있는 킬레이트 리간드를 필요로 한다. 본 연구에서는 자체적으로 개발하여, 우라늄 수용액으로부터 우라늄 이온을 90%까지 추출할 수 있는 효율을 보여준 *N,N,N',N'*-Tetrabutyl-3-oxapentanediamide(TBOD) 킬레이트 리간드를 이용하여 초임계 이산화탄소 하에서 토양으로부터 우라늄의 추출 분리효율을 평가하고, 원자력산업에서 이미 많이 사용되고 있는 Tri-*n*-butyl phosphate(TBP)를 이용한 초임계 이산화탄소 하에서 토양으로부터 우라늄의 추출 분리효율과도 비교하여 적용 가능성을 모색하여 보았다.

2. 실험 및 결과

토양으로부터 우라늄의 추출분리효율을 평가하기 위하여 비방사성 모의시료를 제조하였다. 토양을 75 μ m-2mm의 크기로 분리하고 과산화수소수와 질산수용액으로 토양 내의 유기물과 금속성분들을 제거하였다. 전처리된 토양 250g에 비방사성 우라늄이온(Atomic Absorption Spectroscopy 표준용액, Aldrich, 973 μ g/ml) 50ml와 증류수 200ml를 혼합한 후 상온에서 방치하였다. 진공회전증발 농축기로 물을 제거하면서 비방사성 우라늄을 토양에 흡착시킨 후 토양을 자연 건조시켜 비방사성 모의토양시료를 제조하였다. 그림 1에 나타낸 화학적 구조를 갖는 TBOD는 Diglycolyl chloride와 Dibutylamine을 반응하여 직접 합성하였다. 비방사성 우라늄이 흡착된 토양 약 10g을 초임계유체 추출용 컬럼에 넣은 후 온도와 압력을 상승시켜 토양으로부터 우라늄을 추출 분리하였다. TBOD와 TBP는 리간드 용해용기에 질산과 함께 각각 넣은 후 20분간 교반하면서 질산-리간드 착물을 먼저 형성시켰다. 형성된 착물을 초임계 유체에 용해시키면서 우라늄 추출용기에 40분간 연속적으로 주입하여 배출하면서 토양에 흡착된 비방사성 우라늄을 추출하여 분리하였다. 초임계 이산화탄소하에서 우라늄 추출실험을 위한 초임계 유체 추출장치를 그림 2에 나타내었다. 추출전후 토양에 흡착되어 있는 비방사성 우라늄 농도를 ICP-MS로 분석하여 각각의 추출효율을 평가하였다. 서로 다른 질산농도에서의 우라늄 추출효율과 우라늄에

대한 질산과 TBOD 각각의 몰비율에 대한 추출효율을 표 1에 정리하였으며, TBOD와 TBP에 의한 우라늄의 추출효율도 표 2에 비교하였다.

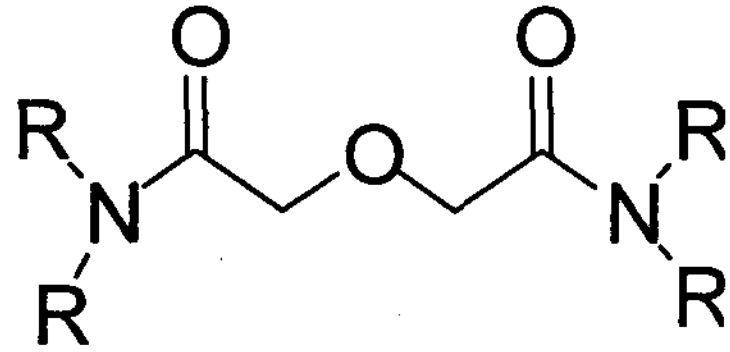


그림 1. 길레이트 리간드로 합성된 TBOD 화합물 (R=(CH₂)₃CH₃)

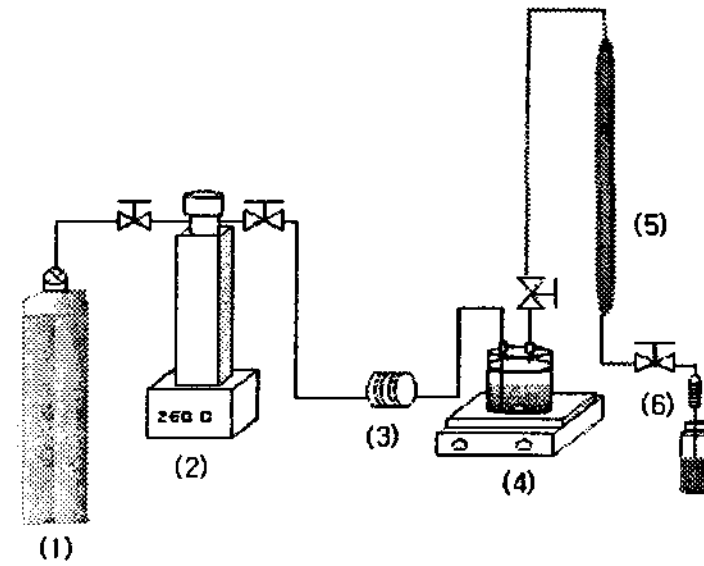


그림 2. 초임계 이산화탄소와 리간드를 이용한 우라늄 추출장치 (1)이산화탄소 공급용기 (2)이산화탄소 정량가압 펌프 (3)이산화탄소 예열기 (4)리간드 용해용기 (5)초임계 유체 우라늄 추출컬럼 (6)분리용기

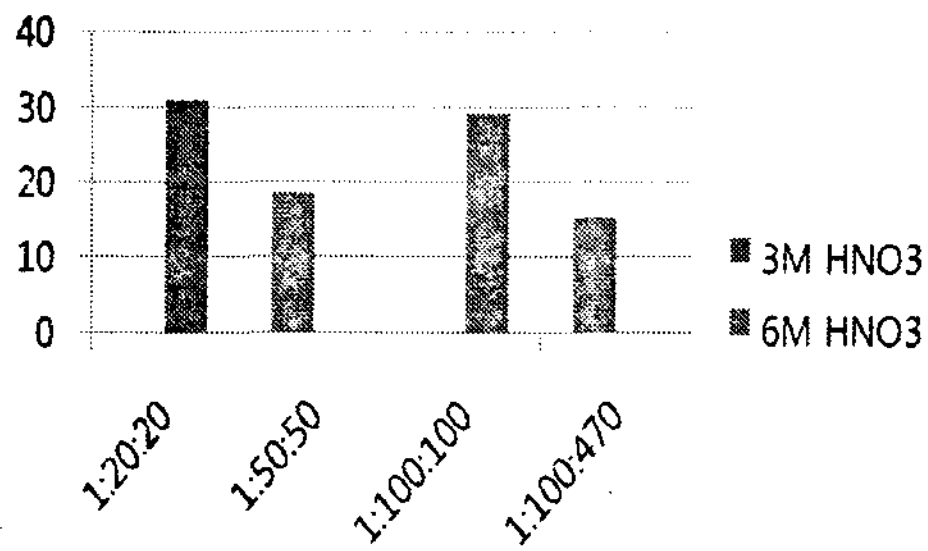


표 1. 3M과 6M 질산농도에서의 TBOD와 질산의 몰비에 의한 비방사성 우라늄의 추출 효율 (실험조건 : 40℃, 200bar)

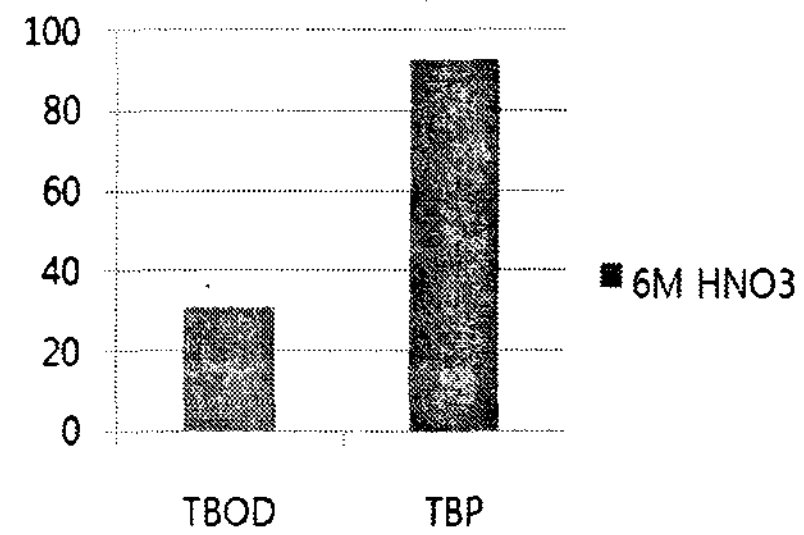


표 2. TBOD와 TBP에 의한 비방사성 우라늄의 추출효율 (실험조건 : 40℃, 200bar)

3. 결론

초임계 이산화탄소하에서 TBOD를 이용하여 토양으로부터 우라늄을 초기농도의 약 30%정도까지 추출 분리할 수 있었다. 표 1에서 TBOD를 이용하여 추출할 경우 3M 질산 수용액에서 보다는 6M 질산 수용액에서 추출 효율이 약 1.5배 증가함을 확인할 수 있었다. 또한 표 2에서 길레이트 리간드로 TBOD보다는 TBP를 사용할 경우 추출효율이 약 3배 정도 높음을 확인할 수 있었다. TBOD에 의한 우라늄의 추출분리효율을 증가시키기 위해서는 초임계 이산화탄소에 대한 TBOD-질산 착물의 용해도를 증가시켜 주어야 할 것이다.