

## 탄산염 용액에서 우라늄산화물 용해

서희승, 정동용, 김광욱

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동 150-1)

[meotuldosa@hanmail.net](mailto:meotuldosa@hanmail.net)

## 1. 개요

종래의 SF 용해와는 다르게 저온에서 비산성(non-acidic) 탄산염 계를 사용하여 SF의 산화 용해가 가능함을 제시하고 이후 용매추출법이 아닌 침전법을 사용하여 Pu은 단독으로 분리가 되지 않으면서 U과 TRU 핵종을 FP 핵종으로부터 고순도 분리에 대한 가능성이 최근에 제시되고 있다. 또한 2003년 미국 LANL (Los Alamos National Laboratory)도 AFCI comparison 보고서에서 냉각 결정화에 의한 침전법을 사용하는 습식 공정이 핵확산 저항성 및 폐기물 발생 측면에서 다른 용매추출을 사용하는 습식 공정에 비하여 높은 장점이 있음을 보고하였다.[1] 본 연구실에서는 탄산염 매질에서의 SF 용해 및 침전 기술만을 사용하여, SF의 대부분을 차지하는 U만을 선택적으로 분리하여 C-class화합으로써, 고준위 폐기물 처분장 능력을 증대시킬 수 있고, 핵확산저항성과 친환경적성을 동시에 가지는 한국 실정에 적합한 습식공정 개발의 가능성을 연구하고 있다. SF의 처리를 위해 제시되는 이러한 기술은 최근에 태동되는 기술이어서 자료도 많지 않은 상태이므로 학문적, 기술적 개발 가치를 갖고 있다. 이러한 공정이 핵확산 저항성을 갖게 하기 위해서는 SF의 용해 시 U만의 선택적 용해와 동시에 기타 핵종은 미용해 또는 침전 혼합상 유지, 처분 부지능 증진 증대를 위해서는 U의 고순도 분리, 그리고 친환경성을 위해서는 폐기물 발생의 최소화라는 기술적 조건이 만족되어야 한다.

따라서 본 연구에서는 기존의 습식 공정에서 사용하는 고온 고농도 질산 매질 하에서 SF를 용해하는 개념 대신, 저온에서 SF로부터 U만을 선택적으로 분리하기 위한 연구의 하나로써 탄산염에서 우라늄산화물의 용해 특성을 살펴보았다. 탄산염에서 U은 U-carbonato complex 형태로 용해되는 데[2], Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>와 NaHCO<sub>3</sub>의 농도에 따른 영향을 알아보고 U이 보다 잘 용해할 수 있는 적합한 pH 범위를 실험을 통하여 알아보았다.

## 2. 실험 및 결과

실험에 사용된 우라늄산화물은 UO<sub>2.18</sub>과 UO<sub>2.67</sub> 분말로서 입자크기는 평균 5.4 μm와 7.7 μm 였다. 탄산염 용액은 시약급 Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, NaHCO<sub>3</sub>를 물에 녹여 제조하였다. pH 조절을 위해 10M 짜리 NaOH와 HCl 용액을 사용하였다. 일정한 탄산염 농도와 조정된 pH 를 갖는 용액에 우라늄산화물 분말을 첨가한 후 항온진탕기에서 대략 3일간 교반한 후 용액중 우라늄 농도를 Arsenazo III 시약을 사용하는 비색법을 사용하여 분석하였다.

Fig. 1과 Fig.2는 Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>와 NaHCO<sub>3</sub> 용액에서 UO<sub>2.18</sub>을 용해시킬 때 pH 증가에 따른 용해도 변화를 나타낸 것이다. 탄산염 농도에 상관없이 대략 pH 7에서 pH 10의 범위에서는 용해도가 크게 변하지 않았으나 pH가 더 증가하는 경우 용해도가 급격히 감소하는 경향을 나타내고 있다. 이때 농도가 급격히 감소하는 pH 값은 탄산염 농도가 클 수록 크게 나타났다. 한편 용해시 우라늄은 아래와 같은 반응에 의해 uranyl carbonate 착물로 용해가 일어나는 것이 일반적인 데[3], 용해된 우라늄 용해액의 UV-스펙트럼을 통해 확인할 수 있었다.(Fig.3)



Fig.4는 0.05M~1.0M NaHCO<sub>3</sub> 농도에서 UO<sub>2.18</sub>과 UO<sub>2.67</sub>의 용해정도를 나타낸 것이다. 이때의 용해결과는 용해농도가 거의 변화지 않는 pH 7.5~10.5 범위에서의 값이다. 대체로 O/U 비가 큰

UO<sub>2.67</sub>의 용해가 더 잘되는 것을 볼 수 있다. 이는 우라늄산화물에서 U의 산화상태는 UO<sub>2.67</sub>의 경우가 UO<sub>2.18</sub>보다 높은 경우로 용해시 U의 산화상태가 높을 수록 용해가 더 잘 되고 있는 것이다. 이는 위의 식(1)에서 보는 바와 같이 U 용해가 3가 산화상태보다 6가의 산화상태에서 더 잘 일어나기 때문으로 생각할 수 있다. 한편 탄산염 농도에 따른 용해정도는 0.5M 이상에서 용해는 더 증가하지 않는 것으로 나타났다.

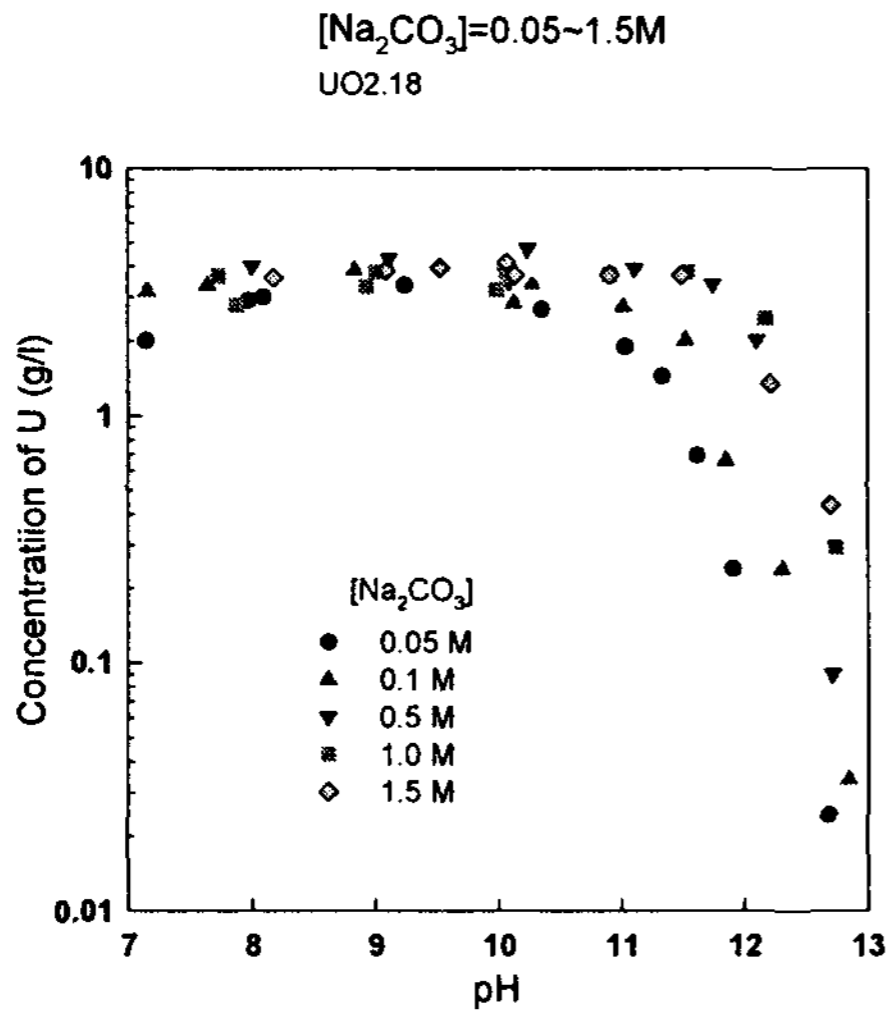


Fig.1 Dissolution of UO<sub>2.18</sub> with pH in various Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> concentration solution.

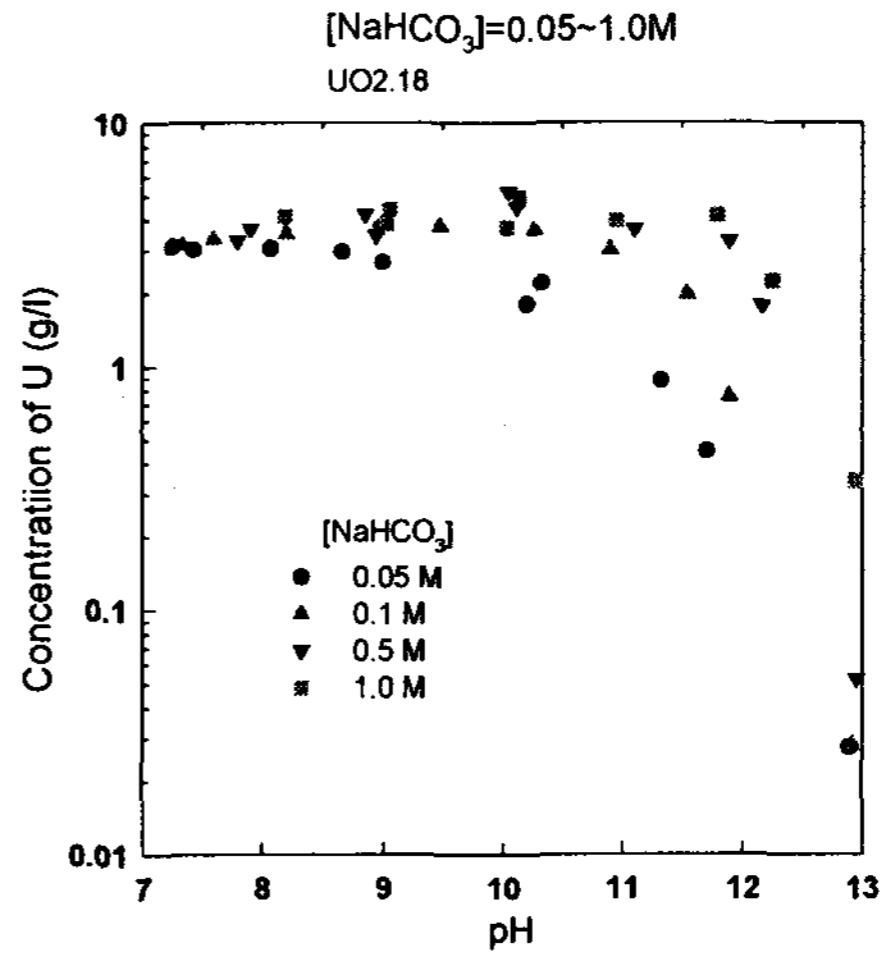


Fig.2 Dissolution of UO<sub>2.18</sub> with pH in various NaHCO<sub>3</sub> concentration solution.

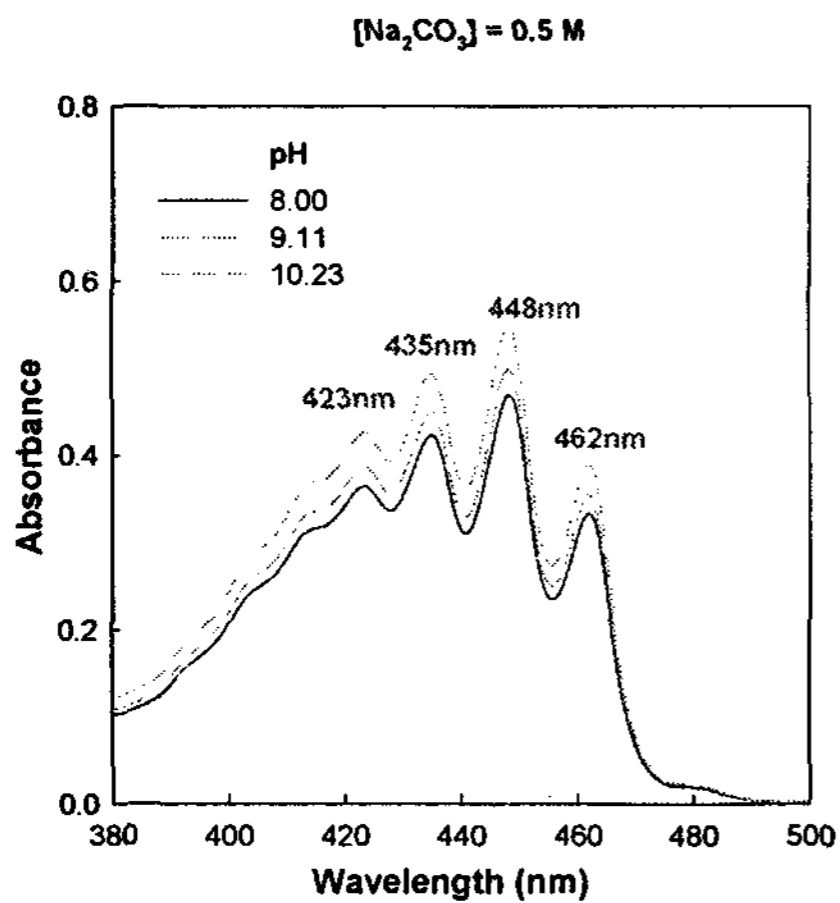


Fig.3 Absorbance spectra of uranyl carbonate complex in [Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>]=0.5M solution.

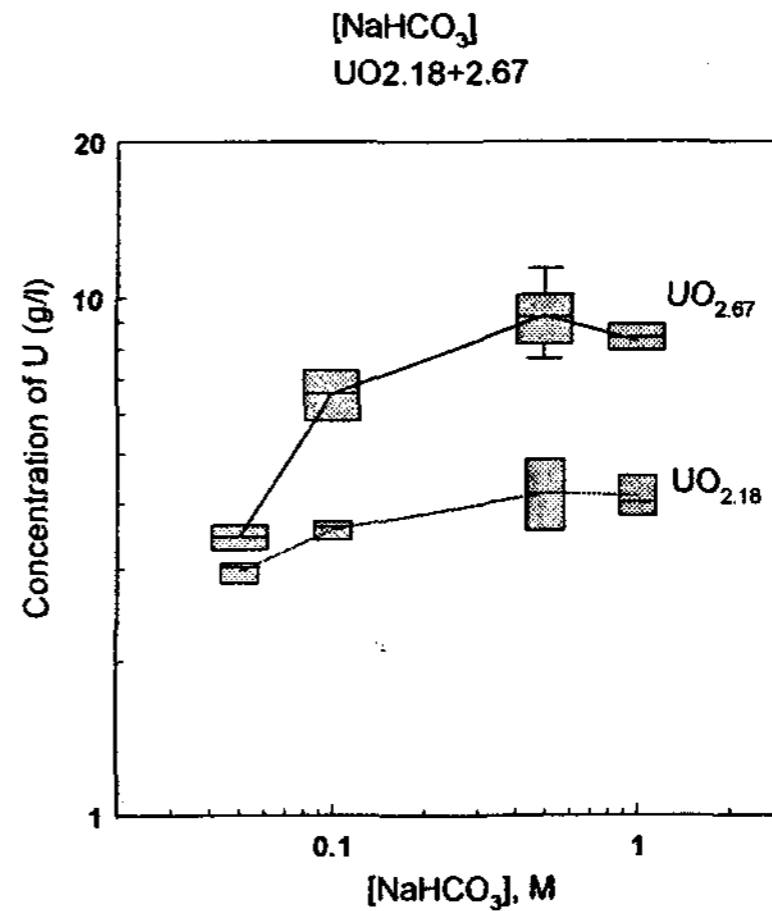


Fig.4 Comparison of the dissolution of UO<sub>2.18</sub> and UO<sub>2.67</sub> with various NaHCO<sub>3</sub> concentration in the range of pH 7.5~10.5.

### 3. 결론

본 실험을 통해 탄산염 용액에서 염 농도의 영향과 pH 영향 등을 통하여 우라늄산화물의 용해 특성을 살펴보았다. UO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub><sup>4-</sup> 착물 형태로 용해됨을 스펙트럼 분석을 통하여 확인할 수 있었으

며, 산화물에서 U 산화상태가 높을수록 용해가 더 잘 일어남을 확인할 수 있었다. 또한 탄산염 농도가 0.5M 이상에서 용해는 그다지 증가 하지 않는 결과를 보였다.

참고문헌

- [1] N. Asanuma, M. Harada, Y. Ikeda and H. Tomiyasu, *J. Nucl. Sci. Tech.*, 38, 866 (2001).
- [2] Grenthe, I., Fuger, J., Konings, R. J. M., Lemire, R. J., Muller, A. B., Nguyen-Trung, C., Wanner, H., *Chemical Thermodynamics of Uranium*, NEA-OECD, Eds., North Holland Elsevier Science Publishers B. V., Amsterdam, The Netherlands, (1992).
- [3] D.L. Clark, D.E. Hobart, M.P. Neu, *Chem. Rev.*, 95, 25 (1995).