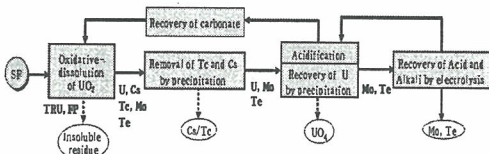


과산화 수소 함유 고염기성 탄산염 용액의 건전성

이일희, 임재관, 최은경, 현준택, 성새름, 정동용, 양한범, 김광욱
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 nehlee@kaeri.re.kr

1. 서론

탄산염 계에 의한 SF로부터 U만을 산화 용해시키는 그림 1과 같은 공정개발에 있어 각 단위 공정에 대한 기술적 타당성 입증도 중요하지만 각 경계 면에서의 탄산염 용액 (또는 유기침전제 함유 탄산염 용액 등)의 특성 분석 특히 H₂O₂가 함유된 고염기성 탄산염 용액의 장기 건전성 평가가 필요하다. 따라서 본 연구는 Na₂CO₃-H₂O₂ 탄산염 계에서 SF의 산화-용해, Cs/Re (Tc의 대체 원소)의 선택적 침전 제거 및 U의 산성화 침전 회수 등을 순차적으로 수행하여 각 단위공정에서 배출되어 다음 공정의 공급 용액으로 사용되는 탄산염 용액 즉, SF의 산화-용해액, Cs/Re의 선택적 침전-상등액, U의 산성화 침전-상등액 등의 건전성을 검토한다.



(Fig. 1)

2. 본론

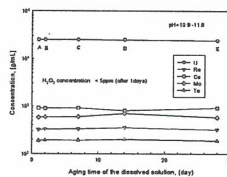
2.1 실험

모의용액의 조성은 탄산염 계에서 SF를 산화-용해 할 시 U과 공용해되는 Cs, Re, Te, Mo 등이 함유된 5성분 계로 구성하였다. SF의 산화-용해액은 모의 FP-산화물을 0.5M Na₂CO₃-0.5M H₂O₂로 산화-용해한 후 여과한 여액으로, Cs/Re의 침전-상등액은 SF 산화-용해액에 NaTPB 및 TPPCI를 각각 첨가하여 Cs과 Re을 선택적으로 침전 제거한 후 여과한 상등액으로, 그리고 U의 산성화 침전-상등액은 Cs/Re의 선택적 침전-상등액을 산성조건에서 U을 UO₄로 침전시킨 후 여과한 상등액으로 각각 준비하였다.

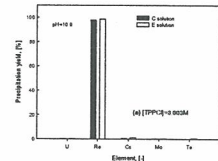
2.2 결과 및 토의

그림 2는 SF 산화-용해액의 숙성시간에 따른 용해액 내 U, Cs, Re, Mo 및 Te의 농도 변화를 나타내었다. 숙성시간에 따른 각 원소의 농도 변화는 거의 없으며, 용액 내 pH 변화 또한 10.9~11.2로 거의 일정하였다.

그림 3은 그림 2의 숙성시간 7일 (C 용액) 및 숙성시간 28일 (E 용액)의 SF 산화-용해액에 TPPCI 및 NaTPB를 각각 첨가할 경우 각 원소의 침전율이다. 본 연구에서는 TPPCI에 의한 Re의 선택적 침전만을 나타내었으나, TPPCI에 의해서는 Re만이 NaTPB에 의해서는 Cs만이 선택적으로 침전된다. 따라서 SF 산화-용해액의 숙성시간에 따른 Cs 및 Re 침전에 영향이 없는 것 같으며, Cs/Re의 선택적 침전의 경우 SF 산화-용해액을 약 1개월간 방치해도 별 문제가 없을 것으로 보인다.



(Fig. 2)

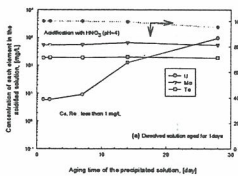


(Fig. 3)

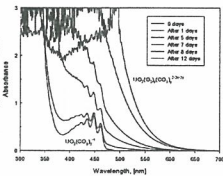
그림 4는 그림 2의 SF 산화-용해액 A 용액과 C 용액에 NaTPB와 TPPCI를 첨가하여 Cs과 Re을 선택적으로 침전 제거시킨 후 여과한 Cs/Re 침전-상등액을 pH 4로 산성화할 때, Cs/Re 침전-상등액의 숙성시간에 따른 U 산성화 침전-상등액 함유되어 있는 각 원소의 농도 및 U의 침전율이다. SF 산화-용해액 A의 경우 U을 제외한 Cs, Re, Mo, Te 등의 숙성시간에 따른 U 산성화 침전-상등액의 농도를 보면 Cs과 Re은 NaTPB와 TPPCI에 의한 선택적 침전 제거 단계를 거쳐 각각 1 mg/L 이하가 존재하고 있으며, Mo와 Te은 각각 595±45 mg/L, 195±5 mg/L로 실험오차 범위에서 변화하고 있고, 산성화에 의해 전혀 침전이 일어나지 않음을

알 수 있다. 그러나 U은 숙성시간에 증가에 따라 산성화 침전-상등액의 농도가 7일 이내는 별 영향이 없으나, 7일 이후부터는 급격히 증가하고 있다. Cs/Re 침전-상등액의 숙성시간 7일 이내에서는 10 mg/L 이하로 별 문제 없이 거의 100%의 U을 회수할 수 있었으나, 숙성시간 28일에서는 957 mg/L로 95.7%의 U을 회수할 수 있었다. 한편 C 용액의 경우 Cs/Re 침전-상등액의 숙성시간 7일에서 126 mg/L로 99% 이상의 U이, 숙성시간 28일에서는 1876 mg/L로 94.8%의 U 회수가 가능하다.

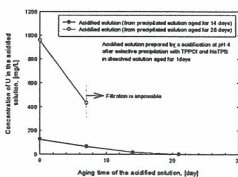
그림 5는 Cs/Re 침전-상등액의 숙성시간 증가에 따라 U의 산성화 침전이 감소되는 원인을 규명하기 위한 것으로 UO_2 0.2g을 $Na_2CO_3-H_2O_2$ 용액 30mL에 용해하여 숙성시간 변화에 따른 U의 UV이다. 숙성시간 7일 까지는 uranyl preoxo carbonato 착물의 전형적인 형태를 유지하고 있으나, 8일이 경과된 부터는 uranyltricarbonato로 전환되고 있다. 따라서 그림 4의 U 산성화 침전-상등액 내 U 농도가 숙성시간에 따라 급격히 증가된 것은 uranyl preoxocarbonato 착물이 일부 uranyl tricarbonato로 전환되어 U 산성화 침전 시 UO_4 로 침전되지 않고 상등액 내 여전히 U 이온상태로 존재하는 데 기인하는 것 같다.



(Fig. 4)



(Fig. 5)



(Fig. 6)

그림 6은 U 산성화 침전-상등액의 숙성시간에 따른 U의 농도 변화를 나타내었다. 1일, 2일 및 7일이 경과된 Cs/Re 침전-상등액의 경우 초기 산성화 침전-상등액 내 U의 농도가 각각 10 mg/L 이하로 U 산성화 침전-상등액의 숙성시간에 따른 U 농도가 분석오차 범위에서 거의 일정하였으며, 숙성시간 14일이 경과된 Cs/Re 침전-상등액에 의한 U 산성화 침전-상등액의 경우에는 U의 농도가

120 mg/L로 숙성시간 증가에 따라 다소 감소하기는 하나 대체적으로 별 영향이 없다. 그러나 28일이 경과된 Cs/Re 침전-상등액에 의한 산성화 침전-상등액의 경우 숙성시간에 따라 상당량의 U이 재 침전되어 U의 농도가 급격히 감소하며 특히 이 경우 침전된 U과 용액 내 존재하는 U의 고-액 분리가 매우 힘들어 다음 단계로의 이송이 거의 불가능하였다.

3. 결론

$Na_2CO_3-H_2O_2$ 용액의 건전성은 각 단계에 주입 용액으로 사용되는 U의 산화-용해액, Cs/Re의 침전-상등액 및 산성화 침전-상등액으로 구분하여 검토하였다. Cs/Re의 선택적 침전의 경우 용해액의 숙성시간에 별 영향 없이 순차적으로 Re과 Cs의 침전 제거가 가능하였다. 그러나 U의 산성화 침전에서는 용해액이나 Cs/Re의 침전-상등액을 장시간 숙성시킬 경우 U이 uranyltricarbonato로 일부 전환되어, U의 침전 회수율을 감소시키므로 99% 이상의 U을 회수하기 위해서는 산화-용해액 및 Cs/Re 침전-상등액의 숙성시간을 각각 7일 이내 즉, 총 14일 이내에 처리하는 것이 효과적이다. 그리고 후속 산/알카리 회수 공정으로 주입되는 산성화 침전-상등액의 경우 또한 숙성시간을 7일 이내에서 최대로 14일 이내에서 처리하는 것이 U의 재침전으로 인한 고-액 분리의 어려움을 방지하는데 효과적이다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발 중장기 계획사업 일환으로 수행된 연구결과입니다.

5. 참고문헌

- [1] K. W. Kim, D. Y. Chung, H. B. Yang, J. K. Lim, E. H. Lee, K. C. Song and K. S. Song, Nucl. Tech., 166, 170-179(2009).
- [2] E. H. Lee, J. K. Lim, D. Y. Chung, H. B. Yang, J. H. Yoo and K. W. Kim, J. Radioanal. Nucl. Chem. 284(2), 387(2010).
- [3] K. W. Kim, Y. H. Kim, S. Y. Lee, E. H. Lee, K. C. Song and K. Song, Ind. Eng. Chem. Res. 48, 2085-2092(2009).