

고품위우라늄 혼합물의 질산용해 특성

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

1. 서론

우라늄 혼합물로부터 U의 회수는 우라늄 혼합물의 효과적인 용해가 관건으로, U의 선택적 용해나 U/불순물을 함께 용해하는 일괄용해로 구별된다. 그러나 이에 관련한 연구는 근본적으로 이를 폐기물로 간주하였기 때문에 거의 수행되지 않았다. 본 연구는 일괄용해에 의해 고품위우라늄 혼합물부터 고수율로 U을 회수하는 기술개발을 목적으로 상온 질산용해에 의한 불순물의 용해특성 및 불순물/U의 공용해 등을 고찰한다.

2. 본론

2.1 실험

2.1.1. 고품위우라늄 혼합물 조성 및 제조

고품위우라늄 혼합물은 핵연료 제조/연삭 과정에서 발생하는 U 핵연료의 조각리와 이때 혼입되는 미량의 금속성분(불순물) 등이 포함된 U의 함유량이 불순물보다 매우 큰 U-스크랩 등을 의미한다. 다음 표는 U-스크랩 내 함유되어 있는 불순물 원소의 성분 및 조성의 일례로서 전처리에 따라 조성이 매우 다양하게 구성되어 있다. 본 연구에서는 Al, B, Ca, Cd, Fe, Gd, Mg, Mo, Ni, Si, Zn과 U 등의 12성분 산화물계와 기타 Al-금속, Ca(OH)₂, FeO(OH), SiC 등의 4성분 비산화물 계로 구분하여 수행하였다.

2.1.2. 실험 방법

모든 실험은 회분식으로 25±1℃에서 수행하였다. 12성분의 산화물계 및 4성분의 비산화물 계를 구성하는 각각의 원소를 화학저울로 0.1 g씩, U은 UO₂ 2.2 g을 칭량하여 100 mL 질산 용액에 넣는다. 그리고 온도, 교반속도 및 시간조절이 가능한 다중 교반기를 이용하여, 400 rpm으로 1시간 동안 용해한다. 그런 다음 원심분리기로 고액 분리한 후 용해액에 존재하는 금속이온의 농도를 분석하여 각 원소의 용해율을 측정한다.

2.1.3. 분석

불순물인 Al, B, Ca, Cd, Fe, Gd, Mg, Mo, Ni, Si, Zn 등과 U은 ICP를 이용하여 각각의 농도를 분석하였으며, 용액 내 pH는 pH meter 이용하여 분석하였다. 그리고 각 원소의 용해율은 $D(\%) = W_M/W_{M,i} \times 100$ 식으로 계산하였으며, 여기서 $W_{M,i}$ 및 W_M 는 각각 금속이온의 초기량(g) 및 용해액 내 함유된 금속이온의 양(g)를 의미한다.

| 원소 (ppm) | 건식 연삭 찌꺼기 | 우라늄 스크랩 -1 | 우라늄 스크랩 -2 |
|----------|--------------|---------------|---------------|
| F | 2 | 12 | 87 |
| C | 259 | 58 | 46 |
| P | 21.8 | 19.1 | 23.7 |
| Na | 14.5 | 12.2 | 12.1 |
| K | 11.9 | 10.6 | 14.7 |
| Si | 2.9 | 4.6 | 14 |
| Ca | 3.1 | 3.7 | 104.4 |
| Cu | 1.2 | 2.3 | 9.6 |
| Fe | 18 | 9.5 | 113.2 |
| Cd | 0.27 | 0.27 | 0.33 |
| Mg | 5.2 | 5 | 15.1 |
| B | 0.45 | 0.29 | - |
| Ni | 20.4 | 1.7 | 82.8 |
| Cr | 2 | 4.4 | 108.9 |
| Al | 20.6 | 3.6 | 114 |
| Mn | 1.5 | 2 | 11.3 |
| Mo | 6.2 | 2.9 | 113.8 |
| Dy | 0.1 | 0.05 | - |
| Gd | 0.14 | 0.1 | - |
| Th | 4.7 | 5.1 | - |

2.2 결과 및 토의

Fig. 1은 질산농도 변화에 따른 10성분 산화물계 및 4성분 비산화물계에서의 각 원소 용해율이다. 질산농도 증가에 따라 용해율이 증가되고 있으며, 질산농도 2M 이상의 경우 10성분 산화물계에서는 질산농도 증가에 따라 B (93~98%), Ca (>99%), Cd (>99%), Gd (>97%) 등은 거의 대부분이 용해되는 데 반해, Mo는 약 470~540 mg/L로 부분용해되고 (61~72% 정도), 기타 Al (12 mg/L), Fe (2~8 mg/L), Ni (1 mg/L 이하), Si (8~10 mg/L)는 아주 미량 용해되고 있다. 반면에 4성분 비산화물계의 경우는 질산농도 2M 이상에서 Ca(OH)₂는 540±20 mg/L로 거의 100% 용

해되지만, Al-금속은 부분적으로 용해되다가 8M 질산에서 거의 모두 용해되었고, 기타 FeO(OH) 및 SiC는 질산농도 증가에 영향없이 각각 5 ppm 이하로 거의 용해되지 않고 있다. 반면에 우라늄(UO₂ 분말)은 용해시간 1시간에서는 질산농도에 관계없이 거의 용해되지 않고 있다. 그러나 용해시간 24시간이 경과된 경우에도 질산농도 2M 이하에서는 거의 용해되지 않았으나, 8M 질산에서는 약 80% 정도가 용해되었다. 이와 같은 U 산화물의 불용해성은 상온 용해에 기인하는 것 같으며, 완전용해를 위해서는 고산도 질산용액에서 용해온도를 증가시키거나 (80~90°C), 충분한 용해시간을 제공하면 가능할 것으로 보인다.

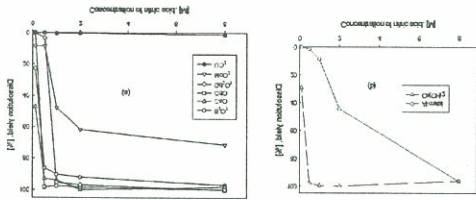


Fig. 1

그리고 본 그림에서는 나타나지 않았으나, 80°C, 8M HNO₃ 에서 1시간 용해할 시 98% 이상의 우라늄이 용해되었으며, 4M 질산이나 6M 질산의 경우에도 80°C에서 2시간 이상 용해시키면 각각 93%, 96% 정도가 용해되었다. 이로부터 UO₂의 질산용해에서는 용해액의 농도 및 용해온도가 중요한 인자임을 알 수 있다.

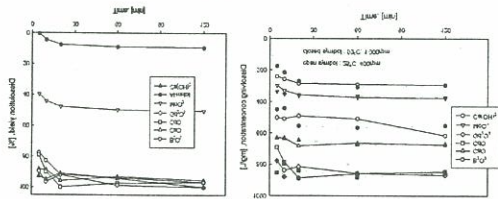


Fig. 2

Fig. 3

그림 2는 1.0M 질산용액으로 용해할 경우 용해시간에 따른 B, Ca, Cd, Gd, Mo 등의 산화물과 Al-금속, Ca(OH)₂의 용해율을 나타내었으며, 그림 3은 온도 및 교반속도 증가에 따른 B, Ca, Cd, Gd, Mo 등의 산화물과 Ca(OH)₂의 용해농도를 각각 나타내었다. 용해시간은 산화물 계나 비산화물 계 모두 약 30분 이상이면 가능할 것 같고, 온도를 50°C, 교반속도를 1,000 rpm 까지 증가시켜도

용해시간 30분 이상에서는 용해농도 변화가 실험 오차범위 내에 있는 것으로 보아, 본 실험 범위의 온도 및 교반속도에서는 온도 및 교반속도가 불순물 원소의 질산용해에 미치는 영향은 매우 미미할 것으로 보인다.

3. 결론

고품위우라늄 혼합물 내 함유된 U의 용해량 차원에서 보면 고농도 질산에 의한 용해가 양호하나, 이 경우 공존 불순물의 용해량이 대폭 증가될 것이고, 불순물의 용해량을 감소시키기 위하여 저농도 질산용해를 한다면 U의 용해량이 급격히 감소될 것으로 보인다. 그러므로 우라늄(UO₂)을 어느 정도 효과적으로 용해하기 위해서는 고온, 고산도 및 장시간의 용해시간이 요구된다. 이외에도 고품위우라늄의 경우 궁극적으로는 함께 용해된 불순물로부터 이를 다시 회수하여야하는 데 불순물의 함량이 많으면 U 침전/회수 시 불순물과의 공침전 등으로 U의 정제 관점에서 많은 문제점을 야기시킬 수 있다. 그러나 질산 용해에서도 후속 U의 침전회수 공정에서 U과 공용해된 불순물 원소를 충분히 제거할 수 있다면 이의 용해법도 효과적일 수 있으므로 질산 용해액 대상 U의 침전 회수가 요구된다.

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).