

우라늄 석회침전물의 탄산염계 용해액으로부터 UO_4 침전

정동용, 최은경, 양한범, 이일희, 김광욱

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

ndvchung@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력발전소에서 사용되는 핵연료로는 주로 산화우라늄이 사용되는데 이의 제조를 위해서는 우라늄 원광으로부터 정련과 변환, 농축, 재변환, 가공 등의 제조 과정을 거치게 된다. 이와 같은 산화 우라늄 제조 과정으로 부터 여러 가지 종류의 우라늄 함유 폐액이 발생된다. 다양한 화학적 상태로 존재하는 폐용액 중 우라늄의 처리는 이온교환법, 역삼투압, 중화 및 침전법 등이 주로 사용된다. 핵연료 제조시설에서 발생되는 대부분의 우라늄 폐액에는 우라늄 외에 Ca, Fe, Si, Mg, Mo, Al, Cr, Zn, Ni, Cr 등의 금속이온들이 함유되어 있다. 이때 폐액 처리는 처리된 후 배출 수질, 중화된 침전물 취급, 수력학적 성질과 중화제 비용 및 산 용액의 중화 수율 등을 고려하여 판단하지만 우라늄 함유 액체 폐기물 처리를 위해 가장 효과적이며 지금까지 많이 사용되고 있는 방법 중 하나는 소석회를 첨가하여 폐액 중 우라늄을 침전시키는 것이다. 이때 U과 공존하는 다른 금속이온들도 대부분 함께 공침전하게 된다.

지금까지 이들 우라늄 함유 석회침전물을 직접 대상으로 하여 우라늄을 저감화하는 연구는 거의 수행되지 않았다. 이는 석회침전물이 바로 최종 폐기물로 간주되었기 때문이다. 따라서 경제성이 있으면서 환경 친화적으로 석회침전물로부터 우라늄을 저감화 시키는 기술은 아직 개발되어 있지 않는 상태이다. 석회침전물을 질산 등의 산에 녹이는 경우 우라늄은 물론 기타 함유 금속이온들도 다량 같이 용해된다. 산에 용해된 우라늄 용해액으로부터 우라늄만을 분리하는 방법으로 지금까지 이온교환이나 용매추출, 중화, 침전 방법 등이 높은 선택도와 정제도를 가짐으로써 가장 많이 사용되어 왔다. 그러나 이 방법은 유기 용매, 산 등을 추가적으로 사용함으로써 2차 폐기물이 다량 발생하는 등 우라늄 함유 석회침전 폐기물의 양을 감소시키는 측면과 경제성에서 전혀 장점이 없다.

본 연구팀에서는 최근 탄산염 용액 계를 이용하여 사용후핵연료를 대상으로 우라늄의 선택적 용해-침출 침전 기술을 이용하는 COL (Carbonate-based Oxidative Leaching) 공정을 개발한 바 있다.[1] COL 기술에서는 탄산염-과산화수소 용액 계를 사용하여 대부분의 금속 산화물은 불용해 상태를 유지하며 우라늄 산화물만을 선택적으로 용해하고, 용해된 우라늄은 최종 UO_4 형태로 고순도 침전 회수하며, 사용된 탄산염은 salt-free한 방법으로 처리를 하여 2차 폐기물의 발생이 없이 재순환하는 것을 특징으로 한다. COL 기술은 우라늄만을 처리하는 경우 종래의 어떠한 습식방법보다 환경친화성이 높은 것으로 평가되고 있다.

본 연구에서는 COL 기술을 사용한 석회침전물 처리의 일환으로 수행되는 것으로 우라늄 및 여러 기타 금속원소들이 함유된 석회침전물로부터 탄산염 용액을 사용하여 우라늄을 선택적으로 용해시킬 때 같이 함유된 기타 원소들의 용해정도를 살펴보고 UO_4 침전에 의한 우라늄의 침전 분리 특성과 그때 기타 원소들의 공침전 정도 그리고 우라늄 침전 생성물의 특성에 대한 연구를 수행하였다.

2. 본론

2.1 실험

탄산나트륨, 질산, 과산화수소 등은 시약급을 사용하였다. 실험은 비이커에 담겨있는 탄산용액에 용액에 불순물을 포함하고 있는 우라늄 석회 침전물 분말을 첨가한 후 항온진탕기에서 교반하면서 24시간 정도 용해시켰다. 용해 후 고액 분리하여 우라늄 용액을 침전 전 용액으로 하였다. 우라늄 침전은 용액에 과산화수소를 첨가한 후 질산을 첨가하면서 용액의 pH를 조절하였다. pH의 감소에 따라 우라늄이 침전된다.

용액 중 우라늄 농도는 652nm에서 peak 특성을 갖는 Arsenazo III 시약을 사용하는 비색법을 사용하여 분석하였다. 수용상의 Al, Ca, Cr, Fe, Mg, Mo, Ni, P, Zn 등의 농도는 ICP(Inductively

Coupled Plasma Spectrometer, Model: ISA Jobinyvon JY 38 Plus) 및 AAS(Atomic absorption spectrometer)를 이용하여 분석하였다.

2.2 결과

Table 1은 용해시 사용된 석회침전물내 주요 구성 원소들의 무게 함량비를 나타낸 것이다. Ca의 양이 가장 높아 약 16.3%의 무게비를 우라늄의 경우 약 13% 정도였다.

Table 1. Composition of lime precipitate.

Elements	wt (%)
U	12.96
Al	0.79
Ca	16.3
Cr	0.01
Fe	6.78
Mg	0.56
Mo	0.01
Ni	0.01
Zn	0.02
기타(C,H,O,등)	62.56
합계	100

Fig.1은 Table 1과 같은 조성을 갖는 석회침전물 33g을 0.5M NaHCO₃ 용액 500ml에 넣고 상온에서 24시간 용해시킨 결과를 나타낸 것이다. 용해 전 탄산용액의 pH는 8.2 였으나 석회침전물의 용해 후 용액의 pH는 8.6 정도로 증가하였다. Fig. 1 나타낸 바와 같이 용해된 우라늄의 농도는 약 5,500ppm 이었다. 우라늄을 제외한 다른 원소들의 용해는 Mg이 약 65ppm으로 약간 용해되었고 Al, Ca, Cr, Mo 등의 원소들은 5ppm 이하만이 용해되었다.

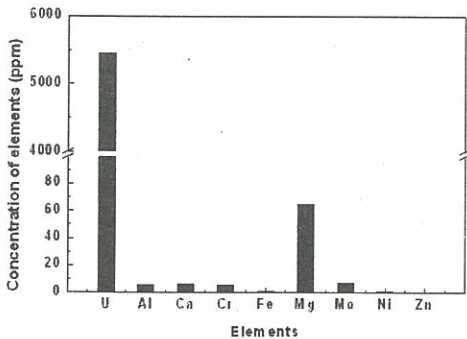


Fig. 1. Composition of dissolved elements in a carbonate solution

한편 용해된 U에 과산화수소를 넣고 질산을 사용하여 용액의 pH를 3.5로 조정하면 U의 99.9% 이상이 Uranium peroxide로 침전이 되는 것을 확인 할 수 있다. Fig. 2는 침전된 시료를 건조시킨 후에 얻어진 XRD 결과로 UO₄·2H₂O 형태의 Metastudtite로 추정된다.

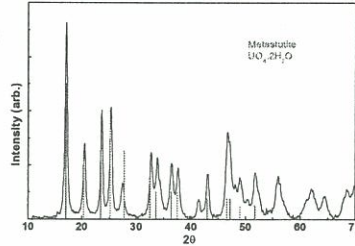


Fig. 2. XRD-data of uranium precipitate

3. 결론

본 연구는 불순물이 함유된 석회침전물을 탄산염 용액에 용해시킬때 우라늄과 여러 금속원소들의 용해도를 살펴보았다. 또한 용해액으로부터 과산화수소의 첨가와 pH 조절을 통해 우라늄의 99.9% 이상을 침전 회수할 수 있음을 확인하였다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

5. 참고문헌

[1] Kim, K. W., Chung, D. Y., Yang, H. B., Lim, J. K., Lee, E. H., Song, K. C. and Song, K. S.: *Nucl. Technol.* **166**, 170-179 (2009).