

저품위우라늄 혼합물의 용해 특성

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

1. 서론

우라늄 함유 물질은 원광 처리, 정련, 변환 및 핵연료 가공 등과 같은 선행핵연료 주기나, 사용 후핵연료(SF) 처리, 처분 등의 후행핵연료 주기에서 다양하게 발생한다. 그리고 U이 방사성 물질이기 때문에 대부분이 발생 장소에서 혼합물 형태로 저장하거나 석회 등으로 처리하여 저장관리하고 있다. 우리 연구원도 변환시설에서 발생한 다양한 형태의 우라늄 함유 혼합물을 석회침전물로 저장하고 있다. 이에 함유되어 있는 각 원소의 성분 및 조성은 (8M 질산용액으로 석회침전물 1g을 20 mL 용액에 용해) 아래와 같이 저장위치(K-1, K-2)에 따라 차이가 나며, 우라늄이 무시할 만큼 함유되어 있어 석회침전물로부터 U의 용해 및 제거/회수가 필요하다.

	K-1 (ppm)	K-2 (ppm)	석회침전물	
			평균(ppm)	wt %
Al	393	396	395	0.8
Ca	8,150	2,000	5,075	10.2
Cr	7.3	5.2	6.3	0.01
Fe	3,390	2,490	2940	5.9
Mg	280	87.2	184	0.37
Mo	3.6	3.1	3.4	0.01
Ni	0.48	4	2.3	<0.01
P	79.6	143	112	0.22
Si	6.7	11.2	9	0.02
Zn	8	34.2	21	0.04
Na	73	144	109	0.22
U	4,190	6,930	5,560	11.1

2. 본론

2.1 실험

2.1.1 저품위우라늄 혼합물 조성 및 제조

모의 저품위우라늄 혼합물은 Al, Cd, Cr, Fe, Mg, Mo, Ni, Si, Zn과 U 등이 함유된 10성분 계로 구성하였다. 석회침전물의 제조는 각각의 질산염 화합물을 화학저울로 정확히 칭량하여 0.1M 질산용액 1,000 mL에 주입한다. 그런 후 이를 온도, 교반속도 및 시간조절이 가능한 다중교반기를

이용하여 400rpm에서 1시간 동안 용해한 후 여과한 용해액에 석회를 첨가하여 금속이온들을 모두 침전시킨다. 그런 다음 이를 고-액 분리 여과하여 건조기에서 80~90℃로 약 4주간 건조시켜 파쇄하고 체질하여 저품위우라늄 혼합물인 석회침전물을 제조하였다.

2.1.2 실험 방법

모든 실험은 회분식으로 25±1℃에서 수행하였다. 미리 제조한 석회침전물을 화학저울을 이용하여 1g 씩 칭량하여 각각 실험조건에 맞추어 준비한 100mL 탄산염이나 질산용액에 첨가한다. 그런 후 이를 온도, 교반속도, 시간조절이 가능한 다중교반기를 이용하여 ① 탄산염 용액에서는 400rpm으로 2시간 침출하고, ② 질산용액에서는 400rpm에서 1시간 동안 용해한다. 그런 다음 각각 원심분리기로 고-액 분리하여 침출액/용해액에 존재하는 금속이온의 농도를 분석하여 각 원소의 침출율 및 용해율을 측정하였다.

2.1.3 분석

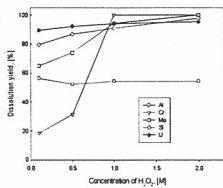
저품위우라늄 혼합물 내 함유 불순물인 Al, Ca, Cd, Cr, Fe, Mg, Mo, Ni, Si Zn과 U을 모두 ICP를 이용하여 각각의 농도를 분석하였으며, 용해/침출 및 침전 전후의 용액 내 pH는 pH meter로 측정하였다. 용액 내 과산화수소 농도는 MERCK사의 RQflex 10을 이용하여, 탄산염 농도는 TOC로 측정하여 분석하였다. 그리고 각 원소의 용해/침출율은 $D(\%) = W_M / W_{M,i} \times 100$ 으로 계산하였으며, $W_{M,i}$ 및 W_M 는 각각 금속이온의 초기 량 (g) 및 침출액/용해액 내 함유된 금속이온의 량 (g)를 의미한다.

2.2 결과 및 토의

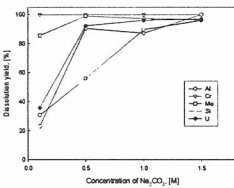
Fig. 1은 0.5M $\text{Na}_2\text{CO}_3 + x\text{M H}_2\text{O}_2$ 계에서 H_2O_2 농도 변화에 따른 석회침전물에서 용해/침출되는 불순물과 U의 침출율이다. 침출용액의 pH는 11~11.2로 거의 변화가 없었다. 침출원소로는 Al, Cr, Mo, Si, U 등 있으며, 기타 Ca, Cd, Fe, Mg, Ni,

Zn 등은 침출량이 2 mg/L 이하로 거의 침출되지 않고 있다. 이런 불용해성은 석회침전물 내에서 이들이 수산화물 형태로 존재하여 탄산염 용액에서 이들의 용해도가 낮은 데 기인한다.

Fig. 2는 xM Na₂CO₃+1M H₂O₂ 계에서 Na₂CO₃ 농도 변화에 따른 각 원소의 용해/침출율이다. 침출용액의 pH는 10.3~11.1 였다. 침출원소로는 Al, Cr, Mo, Si, U 등이 있으며, 기타 Ca, Mg, Ni, Zn 등은 1 mg/L 이하, Cd와 Fe는 2 mg/L 이하로 거의 침출되지 않고 있다.



(Fig. 1.)

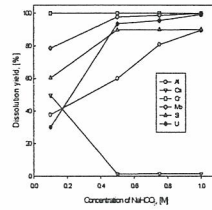


(Fig. 2.)

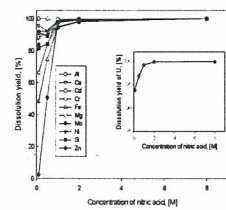
Fig. 3은 xM NaHCO₃+1M H₂O₂에서 NaHCO₃ 농도 변화에 따른 각 원소의 용해/침출율이다. NaHCO₃의 농도는 불용해성으로 인하여 1M 까지 수행하였으며, 침출용액 내 pH 변화는 7.32~9.19 이었다. NaHCO₃의 경우 Na₂CO₃ 보다 용액 내 pH가 다소 감소된다는 것을 제외하고는 Na₂CO₃와 거의 비슷한 용해/침출 거동을 보여주고 있다. Al, Cr, Mo, Si, U 등이 침출되었으며, 기타 Cd, Fe, Mg, Ni, Zn 등은 거의 침출되지 않고 있다. 특징으로는 0.1M Na₂CO₃ +1M H₂O₂ 용액에서는 Ca이 침출되지 않았는데, 0.1M NaHCO₃+1.0M H₂O₂ 용액에서는 상기 침출원소 이외에 Ca가 더 침출되었다는 점이다. 이는 0.1M Na₂CO₃에서의 용액 내 pH가 10.2인 데 반하여 0.1M NaHCO₃의 경우 7.32로 pH가 낮은 데 기인한다.

Fig. 4는 질산농도 변화에 따른 석회침전물로부터 용해된 각 원소의 용해율이다. 질산농도 증가에 따라 용해량이 증가하고 있으며, 질산농도 2M 이상에는 Al, Ca, Cd, Cr, Fe, Mg, Mo, Ni, Si, Zn 등 (98~99%)과 U (>99%)이 거의 용해되고 있다. 그러므로 U의 최대 용해를 위해서는 질산농도 2M 이상에서 수행한 것이 바람직하지만 이 조건에서는 불순물 원소 또한 최대로 용해되고 있다. U의 경우 궁극적으로는 함께 공용해된 U으로부터 이를 다시 회수하거나 제거하여야 하는 데 이 경우 공존 불순물의 양이 많을 경우 U를 분리하는 데 어려움이 크다. 그러므로 용해액의 질산

농도 결정은 용해되는 U과 불순물의 공용해량을 적절히 고려하여 결정되어야 한다.



(Fig. 3.)



(Fig. 4.)

3. 결론

저품위우라늄 혼합물의 탄산염 산화침출 (0.5M Na₂CO₃+1.0M H₂O₂) 경우 침출원소로는 Al, Cr, Mo, Si 등이 있으며, 기타 핵종은 1 mg/L 이하로 거의 용해/침출되지 않고 있다. U의 경우 99% 이상이 용해/침출되고 있다. 반면에 질산 용해 (1M HNO₃)의 경우 Al, Ca, Cd, Cr, Fe, Mg, Mo, Ni, Si, Zn 등 모든 불순물이 94~99% 이상 용해되고 있으며, U 또한 99% 이상이 용해되고 있다. U의 용해 차원에서 탄산염이나 질산 모두 만족시키나, 불순물의 최소 용해/침출 차원에서는 탄산염 용해/침출이 질산용해 보다 효과적이다. 그러나 질산 용해에서도 후속 U의 침전회수 공정에서 공용해된 불순물을 충분히 제거할 수 있다면 이의 용해법도 효과적일 수 있다.

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] E. H. Lee, J. K. Lim, D. Y. Chung, H. B. Yang, and K. W. Kim, J. Korean Radioactive waste Soc., 7(2). 93-100(2009).