

탈탄산-산성화에 의한 저품위우라늄 혼합물 내 U과 불순물의 침전 거동

이일희, 소지양, 박민성, 현준택, 이근영, 김광욱, 정동용, 이근우, 문제권
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
nehlee@kaeri.re.kr

1. 서론

우라늄 함유 물질은 U이 방사성 물질이기 때문에 대부분이 혼합물 형태로 저장하거나 석회 등으로 처리하여 관리하고 있다. 우리 연구원도 변환시설에서 발생한 다양한 형태의 U 함유 혼합물을 석회침전물(저품위우라늄 혼합물)로 저장하고 있다. 이의 성분 및 조성은 (8M 질산용액 20 mL로 석회침전물 1g 용해) 표 1과 같이 저장위치(K-1, K-2)에 따라 차이가 나며, U이 무시 못할 만큼 함유되어 있어 석회침전물로부터 U의 회수가 필요하다.

Table 1. 저품위우라늄혼합물의 성분 및 조성.

	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

이의 일환으로 본 연구에서는 저품위우라늄 혼합물의 탄산염 용해액을 대상으로 탈탄산-산성화 침전에 의한 U/불순물의 침전 거동을 고찰하였다.

2. 본론

2.1 실험

2.1.1. 탄산염 용해액

저품위우라늄 혼합물의 탄산염 용해액은 석회 침전물 1g을 25°C, 400rpm 및 0.5M NaCO₃-1.0M H₂O₂ 용액 100mL에서 2시간 동안 용해시켜 제조

하였으며, 이의 조성은 표 2와 같다.

2.1.2. 실험 방법

모든 실험은 회분식으로 25±1°C에서 수행하였으며, 미리 제조한 침전모액을 각각의 실험 조건에 맞추어 온도, 교반속도 및 시간조절이 가능한 다중 교반기를 이용하여 400 rpm에서 1시간 동안 침전시켜 완전히 평형이 이루어지도록 하였다. 그런 후 이를 원심 분리기로 고-액 분리하여 상등액에 존재하는 각각의 금속이온 농도를 분석하여 각 원소의 침전율을 추정한다.

Table 2. 탄산염용해액의 성분 및 조성.

석회침전물, 0.5M NaCO ₃ -1.0M H ₂ O ₂ 용해, [mg/L]											
Al	Ca	Cd	Cr	Fe	Mg	Mo	Ni	Si	Zn	U	
41	<1	<1	121	<1	<1	287	<1	31	<1	5,940	

2.1.3. 분석

U과 불순물인 Al, Ca, Cd, Cr, Fe, Mg, Mo, Ni, Si, Zn 등은 ICP를 이용하여 각각의 농도를 분석하였으며, 용액 내 pH는 pH meter 이용하여 측정하였다. 그리고 각 원소의 침전율은 $P(\%) = (C_{M,i} - C_{M,f}) / C_{M,i} \times 100$ 로 계산하였으며, 여기서 $C_{M,i}$ 및 $C_{M,f}$ 는 각각 탄산염 용해액 내 각 금속이온의 농도 및 탈탄산-산성화 침전여과 후 상등액에 존재하는 각 금속이온의 농도 (mg/L)를 나타낸다.

2.2 결과 및 토의

그림 1은 pH 변화에 따른 Al, Cr, Mo, Si 및 U의 탈탄산-산성화 침전율이며, 상기원소 이외의 원소는 탄산염 용액 내 농도가 매우 적어 (<1 mg/L) 고려하지 않았다. 이때 용액 내 H₂O₂의 농도는 5 mg/L 이하였다. Al, Cr, Mo, Si 등은 용액 내 pH가 증가함에 따라 침전율이 다소 감소하는 경향으로 pH 1에서 Al은 약 10%가 침전되고 Cr, Mo, Si 등은 5% 이하로 침전되지만, pH 4 이상에서는 거의 침전이 일어나지 않고 있다. 반

면에 U은 pH 증가에 따라 특히 pH 5 이상에서부터 침전율이 급격히 감소하다가 pH 8 이상에서는 침전이 일어나지 않고 있다. 이는 U 단일성분 계에서 수행한 그림 2에서 보는 바와 같이 pH 3~4 정도를 변곡점으로 pH 증가에 따라 침전 후 상등액의 농도가 감소하다가 (pH 3~4에서 상등액의 농도가 약 10 mg/L로 거의 100%의 U이 침전), pH 5 이상에서는 다시 증가하여 pH 8 이상에서는 상등액 농도가 초기 주입용액의 농도와 거의 같아 침전이 일어나지 않고 있기 때문이다. 그리고 pH 1 에서 상등액 농도가 크게 증가하였음에도 불구하고 U의 침전율이 거의 100 % 침전되는 것 같이 보이는 것은 침출액 내 U의 초기농도가 5,500 mg/L 인데 반하여 pH 1에서의 침전 후 상등액 내 U의 농도가 약 100 mg/L로 초기 농도에 비하여 매우 적은 값인데 기인한다. 그리고 pH 변화에 따른 carbonate 농도 변화 (C/Ci)는 U의 침전율과는 다르게 pH가 증가함에 따라 증가하고 있으며, pH 4 이하에서는 carbonate가 거의 존재하지 않아 탈탄산-산성화가 진행됨을 보여주고 있다. 여기서 Ci는 carbonate의 초기 농도를 의미한다.

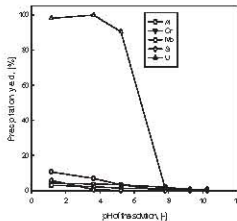


Fig. 1. 불순물/U 침전.

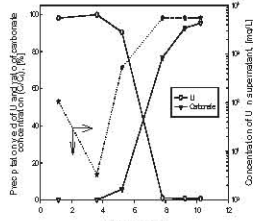


Fig. 2. U/Carbonate 변화.

그림 3은 25℃, 400 rpm, 최종 용액 내 pH 3.18에서 1시간 동안 침전한 U 침전물 (입자크기: 1μm 이하)의 SEM 및 건조 온도에 따른 XRD의 변화이다.

그림 4는 탈탄산-산성화 침전시간, 침전온도 및 교반속도에 따른 Al, Cr, Mo 및 Si의 침전 상등액 내 농도이며, 용액 내 최종 pH 변화는 3.15~3.22로 거의 일정하였다. 이때 Al, Cr, Mo, Si 등의 탈탄산-산성화 침전율은 각각 5% (상등액 내 농도43±1 mg/L), 4% (116.5±0.5 mg/L), 3% (280±2 mg/L), 1% (30.5±0.5 mg/L) 이하인데 반하여 U의 경우는 99% 이상 (10 mg/L 이하)이 침전되어 불순물로부터 U을 효과적으로 침전 회수할 수 있음을 알 수 있다. 그리고 온도를 50℃까

지, 교반속도를 1,000 rpm 까지 증가시켜도 침전 시간 30분 이내에서는 다소 차이가 나지만 30분이 경과된 후에는 별 영향이 없어 온도 및 교반속도가 탈탄산-산성화 침전에 미치는 영향은 미미한 것으로 보이며, 침전시간 또한 30분 이상이면 충분할 것 같다.

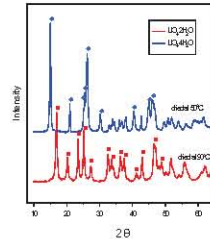


Fig. 3. 침전물 XRD.

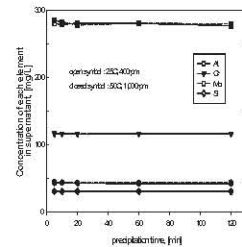


Fig. 4. 온도/교반속도 영향.

3. 결론

저품위우라늄 혼합물을 탄산염-H₂O₂ 용액으로 용해시킨 후 탈탄산-산성화 침전에 의해 U 만을 회수하고자 할 때는 즉, U은 최대 침전시키면서 불순물은 가능한 한 최소로 침전시키기 위해서는 침전용액 내 pH는 3~4 정도에서, 침전시간은 약 30분 정도, 온도는 25℃, 그리고 교반속도는 400 rpm 정도에서 수행하는 것이 효과적일 것으로 판단된다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발성장기 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).