

이미다졸륨계 이온성 액체의 우라늄 용해특성

권수민*, 김익수, 정동용, 최종원

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*sumin@kaeri.re.kr

1. 서론

저농축 우라늄 핵연료를 사용하는 경수로에서 얻어지는 사용후 핵연료에는 약 96%의 우라늄(95%의 U^{238} 과 1%의 연소되지 않은 U^{235})이 포함되어 있으므로[1] 사용후 핵연료 재처리에서 U_3O_8 의 용해특성에 대한 자료는 매우 중요하다. U_3O_8 은 물에 녹지 않으나 질산 용액에는 잘 용해되며, 질산의 농도, 온도 및 교반속도를 증가시키면 U_3O_8 의 용해정도가 향상된다는 것은 이미 잘 알려져 있다.[2] 이온성 액체는 낮은 휘발성, 열적 안정성 등과 같은 독특한 물리화학적 특성을 가지고 있어서 전기화학, 분리, 합성, 효소반응, 촉매 등 다양한 분야에서 이에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다. 이온성 액체를 사용후 핵연료 재처리에 도입할 여지는 충분하지만 연구는 아직 미비한 실정으므로 이온성 액체에서 U_3O_8 의 용해특성을 알아보기 위한 실험을 수행하고 평가하였다.

2. 본론

2.1 실험

이온성 액체(ionic liquid, IL)는 이미다졸륨계 이온성 액체인 1-alkyl-3-methylimidazolium trifluoromethanesulfonate ($[C_n\text{mim}][\text{TfO}]$)와 1-alkyl-3-methylimidazolium tetrafluoroborate ($[C_n\text{mim}][\text{BF}_4]$) (Aldrich, USA), ($n=2, 4$)를 사용하였으며 별도의 정제과정 없이 그대로 사용하였다. 이온성 액체와 U_3O_8 파우더 (20 g/L as U)를 유리 바이알(Wheaton, USA)에 넣은 뒤 vortex로 잘 섞어, 25°C, 250 rpm에서 24 시간 동안 교반하였다. 이온성 액체에서 U_3O_8 의 용해정도를 비교하기 위하여 동일한 조건에서 UNH ($\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, Uranyl nitrate hexahydrate)를 이온성 액체에 용해시키는 실험을 수행하였다. 또한, U_3O_8 의 용해정도를 향상시키기 위하여 이온성 액체의 질산농도가 0.1, 0.3, 0.5 M이 되도록 5 M의 질산용액을 이온성 액체에 첨가한 뒤, U_3O_8 파우더를 넣고 25°C, 250 rpm에서 24 시간 동안 교반하였다. 교반 후 시료를 원심분리(25°C, 4500 rpm)하여서 이온성

액체와 용해되지 않은 U_3O_8 (또는 UNH) 파우더를 분리하였다. 우라늄화합물을 용해시킨 이온성 액체의 U 농도는 UV-Vis spectrometer (Agilent, USA)를 이용하여 흡광광도법으로 분석하였다.

2.2 결과 및 고찰

질산의 농도가 0, 0.1, 0.3, 0.5 M인 이온성 액체에 U_3O_8 용해시켰을 때 U의 농도 및 질산을 첨가하지 않은 이온성 액체에 UNH를 용해시켰을 때 U의 농도를 Fig. 1에 나타내었다. 이온성 액체 $[C_2\text{mim}][\text{TfO}]$, $[C_4\text{mim}][\text{TfO}]$, $[C_4\text{mim}][\text{BF}_4]$, $[C_4\text{mim}][\text{BF}_4]$ 에 U_3O_8 을 용해시킨 시료의 U 농도는 질산의 농도가 0 M일 때 각각 302, 88, 232, 334 ppm이고, 질산의 농도가 0.1 M일 때는 870, 2534, 3007, 3202 ppm, 질산의 농도가 0.3 M일 때는 16401, 9131, 8528, 11324 ppm, 질산의 농도가 0.5 M일 때는 50763, 15922, 15089, 12351 ppm으로 나타났다. 이온성 액체의 질산 농도가 증가함에 따라 용해된 우라늄의 농도가 증가하였으며, 질산의 농도가 0.5 M일 때는 4 종의 이온성 액체 중 친수성이 가장 큰 $[C_2\text{mim}][\text{TfO}]$ 에 용해된 U의 농도가 50763 ppm으로 가장 높게 나타났다.

본 실험에서 사용한 이온성 액체는 친수성이며 모두 UNH를 잘 용해시키는 것으로 나타났다.

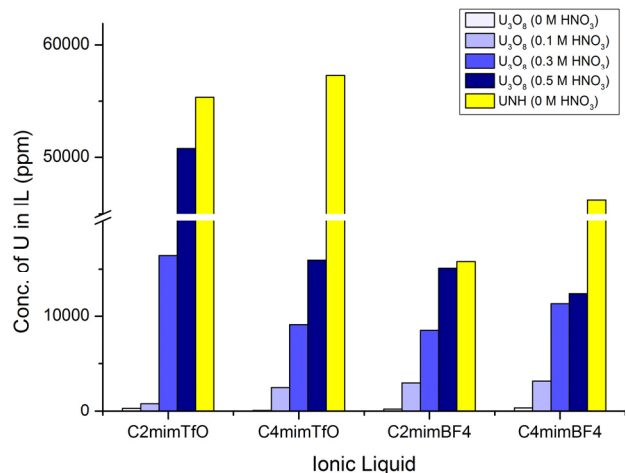


Fig. 1. Concentrations of U in ionic liquids after dissolving U_3O_8 in ionic liquids with 0.1, 0.3 and 0.5 M of nitric acid, and UNH in ionic liquids without nitric acid.

질산을 첨가하지 않은 이온성 액체에 UNH를 용해시켰을 때, [C₂mim][TfO]와 [C₄mim][TfO]에 용해된 U의 농도는 각 57300과 57273 ppm으로 나타났으나 초기에 이온성 액체에 넣어준 UNH가 모두 녹았으므로 그 이상의 U이 녹을 것으로 사료된다. 따라서 [C₂mim][TfO]와 [C₄mim][TfO]에는 57300 ppm 이상의 U이 용해되고, [C₄mim][BF₄]와 [C₄mim][BF₄]에는 각각 15794와 46300 ppm의 U이 용해되는 것으로 나타났다. UNH는 [TfO]가 음이온인 이온성 액체에서 더 많은 양이 용해되는데, 이는 [TfO]의 친수성이 [BF₄]⁻보다 더 크기 때문인 것으로 추론된다.

U₃O₈을 이온성 액체에 용해시킬 때, 질산의 농도를 달리하기 위하여 이온성 액체에 5 M의 질산을 첨가하면 이온성 액체의 수분함량도 증가하게 된다. 이온성 액체에 금속이온을 녹이는데 수분함량이 큰 영향을 미칠 수 있으므로 첨가한 5 M 질산의 양에 근거하여 이온성 액체, 질산, 수분의 함량을 계산하여 중량백분율(weight percent, wt.%)로 Table 1에 나타내었다. 질산의 농도가 0.1, 0.3, 0.5 M으로 증가함에 따라 이온성 액체계의 질산과 수분의 함량이 증가하기는 하나, 이온성 액체의 양이 모두 90% 이상으로 지배적인 것으로 나타난다. 질산을 첨가함으로써 이온성 액체 내의 수분함량은 증가하였으나, 용액 내 이온성 액체의 양이 여전히 지배적이고 U₃O₈은 물에서 불용성이기 때문에 5 M 질산의 첨가에 따른 U₃O₈의 용해정도 증가는 수분함량으로 인한 영향으로 보기는 어렵고, 질산 농도의 증가에 따른 것으로 사료된다.

Table 1. Contents of IL, HNO₃ and water in solution for U₃O₈ dissolution

Conc. HNO ₃ (M)	Contents (wt.%)		
	IL	HNO ₃	Water
0.1	98.25	0.53	1.22
0.3	94.73	1.59	3.68
0.5	91.17	2.66	6.17

3. 결론

4 종류의 친수성 이온성 액체에 UNH와 U₃O₈을 용해시키는 실험을 통하여 UNH와 U₃O₈의 용해정도 및 이온성 액체에서 질산의 농도가 U₃O₈의 용해에 미치는 영향을 확인하였다.

4. 감사의 글

이 논문은 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(원자력연구개발사업, No. NRF-2012M2A8A5025658, NRF-2012M2B2B1055500).

5. 참고문헌

- [1] 김시환, 알기쉬운 원자력공학, 한국원전수출산업협회.
- [2] A. Inoue and T. Tsujino, "Dissolution Rates of U₃O₈ Powders in Nitric Acid", Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev., 23, 122-125 (1984).