

# 우라늄으로 오염된 액체 폐기물에서의 과산화우라늄 침전 특성

오맹교<sup>1,2</sup>, 이근영<sup>1\*</sup>, 김광욱<sup>1</sup>, 김지민<sup>1</sup>, 이일희<sup>1</sup>, 정동용<sup>1</sup>, 문제권<sup>1</sup>, 이창하<sup>2</sup>

<sup>1</sup>한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

<sup>2</sup>연세대학교, 서울특별시 서대문구 연세로 50

\*lky@kaeri.re.kr

## 1. 서론

많은 원자력 및 비원자력 산업분야에서 다양한 형태의 우라늄폐기물이 발생하고 있다. 하지만 국내의 경우 이를 처분하는데 있어서 방사성 폐기물 처분장의 공간은 한정 되어있으며, 폐기물을 처분하는데 많은 비용이 발생한다. 또한 우라늄으로 오염된 폐액은 우라늄폐기물의 처리 과정에서 다양한 형태로 발생하는 대표적인 2차 폐기물로서, 폐액에 함유된 우라늄의 농도 또한 다양한 범위를 보이고 이를 환경으로 배출이 가능한 수준으로 효과적으로 분리한다면 전체적으로 보았을 때 우라늄폐기물이 줄어들게 되는 효과를 갖게 된다.

폐액 내 우라늄을 제거하기 위해 여러 가지 방법들이 고려되어 질 수 있는데, 그 중 과산화우라늄(Uranyl peroxide;  $UO_4$ ) 침전반응은 매우 효율적인 침전기술로 알려져 있다. 우라늄이 녹아있는 용액에  $H_2O_2$ 를 과량 주입한 후 pH를 산으로 조절하면, 우라닐 이온이 용해도가 낮은  $UO_4$ 의 형태로 침전된다. 이 때  $UO_4$ 의 용해도는 pH에 영향을 받게 되며 pH 3-4 구간에서 최저 용해도를 갖는다.

본 연구는 우라늄으로 오염된 액체 폐기물을 대상으로  $UO_4$ 의 침전 특성을 평가하였으며, 이를 기반으로  $UO_4$ 의 침전효율 및 속도를 향상시키기 위한 연구를 수행하였다.

## 2. 본론

### 2.1 실험방법

실험을 위해 2M  $NaNO_3$  용액에  $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ 를 이용하여 우라늄 농도가 1000 ppm-10 ppm이 되도록 용해시켜 모의 폐액을 제조하였다. 만들어진 모의 폐액 40 ml에 30%  $H_2O_2$ 를 4 ml 첨가하여 혼합용액 내에서의  $H_2O_2$  농도를 약 1 M이 되도록 한 후 pH를 3-4로 맞추어 주었다. 용액 조건에 따라서 각각 실험을 진행 하였으며 반응시간에 따른 우라늄의 농도 변화를 관찰하였다. 또한, 우라늄으로 오염된 실제 폐액을 대상으로 침전효율을

평가 한 뒤, 두 실험 간의 차이를 관찰하였다.

우라늄의 농도 분석은 UV spectrophotometer를 이용한 비색분석과 ICP-MS를 이용하였고 침전된  $UO_4$  입자는 SEM과 EDS를 이용하여 입자의 형상과 성분을 분석하였다.

### 2.2 결과 및 토의

Fig. 1은 모의 폐액의 우라늄 초기농도를 1000, 100, 50, 10 ppm으로 설정하고 교반 유무에 따른 우라늄 농도의 변화를 관찰한 결과이다. 우라늄의 초기 농도가 높을수록 빠른 속도로  $UO_4$  입자가 침전하였고, 폐액의 우라늄 농도가 1 ppm 미만에 쉽게 도달함을 확인하였다. 10 ppm정도의 저 농도에서는 반응 초기에  $UO_4$  침전이 거의 일어나지 않는 것을 볼 수 있으며, 교반조건에서 정지조건과 비교하여 약 2배 정도 빠른 침전속도를 보였다.

이는 초기농도가 높거나 교반을 시켜 줄 경우 입자간의 충돌횟수를 늘려주어 핵이 생성되고 성장하는 시간을 짧게 줄여주는 것에 기인한다.

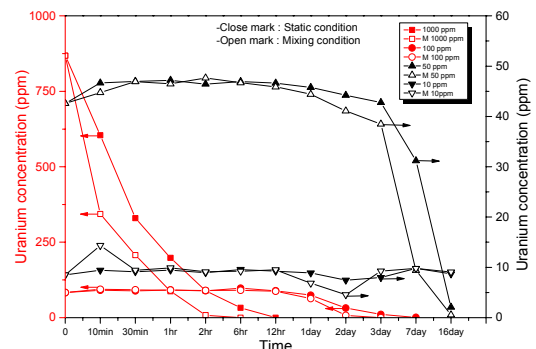


Fig. 1. Variation of residual uranium concentration with different initial concentrations.

실제 폐액의 우라늄 농도는 약 100 ppm 이고, Si, Sb, Fe등의 불순물이 수십 ppm 수준으로 섞여 있는 상태이다. 같은 우라늄 농도를 가진 모의 폐액과 비교하였을 때  $UO_4$ 의 침전 속도는 약 2-3배 정도 차이가 나는 것을 확인하였다. 침전된  $UO_4$  입자를 SEM과 EDS를 이용하여 분석하였다.

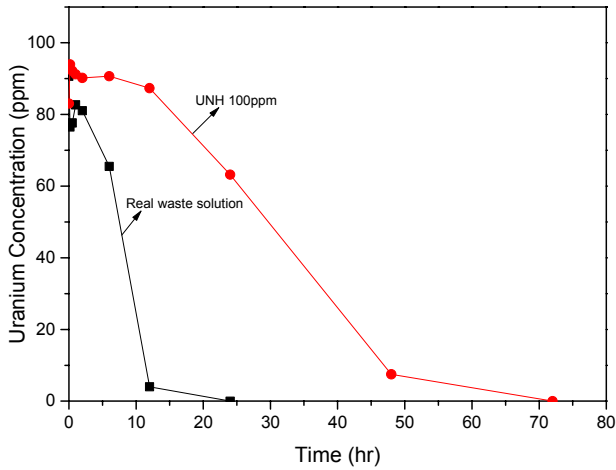


Fig. 2. Variation of residual uranium concentration with different solution conditions.

기존에 알려진  $UO_4$  입자는 빠르게 침전 될수록 구형의 매우 작은 입자가 형성되는 것으로 알려져 있다. 실제 폐액에서 침전된  $UO_4$  입자들은 기존에 알려진  $UO_4$  입자 보다 크고 완전한 구형이 아님을 Fig. 3에서 확인할 수 있었다. 또한 Table 1의 EDS 분석결과를 통해  $UO_4$  입자가 침전할 때 용액 상에 존재하던 불순물인 Si, Fe, Sb 등의 원소들이 같이 침전하며,  $UO_4$  입자의 크기와 침전속도에 영향을 주는 것을 확인 할 수 있었다.

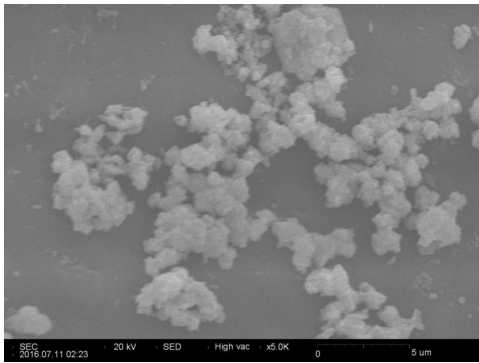


Fig. 3. SEM image of precipitated  $UO_4$  particles from real waste solution.

Table 1. EDS result of  $UO_4$  particle

$UO_4$ particle	
Element	Atomic wt%
U	43.19
Si	32.05
Fe	4.48
Sb	4.96

### 3. 결론

$UO_4$  입자는 선행 연구들을 통해서 입자의 형상과 기본 물성들이 이미 알려져 있다. 하지만 침전속도를 빠르게 하였을 시 그 입자의 크기가 매우 작게 형성되어 고액분리가 어려워지고, 입자크기를 크게 만들기 위해서는 침전시간이 매우 길어진다는 단점을 갖고 있다. 따라서 우라늄으로 오염된 방사성 액체 폐기물로부터 우라늄을  $UO_4$  입자로 침전 분리하는 방법을 공정에 적용하기 위해서는 합성된 입자의 생성속도와 크기를 동시에 향상시켜야 하는데, 본 연구를 통해서 초기 우라늄 농도와 교반 조건을 조절하는 것이 필요함을 확인하였고, 폐액 내 불순물의 영향 유무를 평가하는 것이 중요함을 확인하였다. 실제 폐액을 대상으로 확인하였듯이  $UO_4$ 와 함께 침전하는 원소들이 존재 할 경우, 빠른 시간 내에  $UO_4$  침전이 가능하게 하여 공정에 적용성을 향상시키는 것으로 사료된다. 더불어 이러한 방법을 적용할 시 우라늄 폐액을 환경배출기준 이하로 처리 할 수 있음을 확인하였다.

### 4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력 연구개발 중장기 계획 사업 일환으로 수행된 연구결과입니다.

### 5. 참고문헌

- [1] K.W. Kim, Y.H. Kim, S.Y. Lee, J.W. Lee, K.S. Joe, E.H. Lee, J.S. Kim, K.S. Song, and K.C. Song, "Precipitation characteristics of uranyl ions at different pHs depending on the presence of carbonate ions and hydrogen peroxide", Environ. Sci. Technol., 43, 2355-2361 (2009).
- [2] 김광욱, 이근우, 양한범, 이일희, 정동용, 최은경, 현준택, 성새롬, "우라늄-과산화수소 용액계 조건에 따른 동적  $UO_4$  침전 거동 특성 변화", 한국방사성폐기물학회 춘계학술대회, 2011.
- [3] 박민성, 이근영, 소지양, 백예지, 이일희, 김광욱, 정동용, 문제권, "우라늄 고체폐기물 처리를 위한 용해-침전 단계공정 개발", 한국방사성폐기물학회 추계학술대회, 2013.