

탄산염용액에서 우라늄산화물 용해에 미치는 산화제 영향

정동용, 서희승, 양한범, 김광욱

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동 150-1)

ndychung@kaeri.re.kr

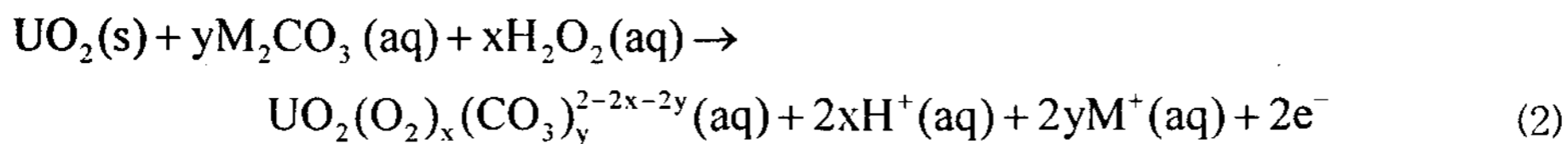
본 연구실에서는 탄산염 매질에서의 SF 용해 및 침전 기술만을 사용하여, SF의 대부분을 차지하는 U만을 선택적으로 분리하여 C-class화합으로써, 고준위 폐기물 처분장 능을 증대시킬 수 있고, 핵확산저항성과 친환경적성을 동시에 가지는 한국 실정에 적합한 습식공정 개발의 가능성을 연구하고 있다. SF의 처리를 위해 제시되는 이러한 기술은 최근에 태동되는 기술이어서[1] 자료도 많지 않은 상태이므로 학문적, 기술적 개발 가치를 갖고 있다. 이러한 공정이 핵확산 저항성을 갖게 하기 위해서는 SF의 용해 시 U만의 선택적 용해와 동시에 기타 핵종은 미용해 또는 침전 혼합상이 유지되어야하고, 처분 부지능 증대를 위해서는 U의 고순도 분리, 그리고 친환경성을 위해서는 폐기물 발생의 최소화라는 기술적 조건이 만족되어야 한다. 탄산염에서 우라늄산화물을 용해시키는 경우 용해도는 NaHCO₃ 0.5M 용액에서 U 농도 10 g/l를 넘지 못하고 UO_{2.00}의 경우 용해는 1 g/l 이하의 매우 낮은 용해도를 갖는 것으로 나타났다. 주로 산화물내의 U 산화상태가 4가로 낮은 경우 용해가 잘 되지 않고 산화수가 높은 상태인 경우 용해가 잘 일어나기 때문이다. 낮은 용해도는 SF 처리공정 개발에서 제한적인 측면이 될 수 있다. 이를 극복하기 위한 방법의 하나로 U의 산화가를 증가시킬 수 있는 산화제 첨가를 고려할 수 있다. 따라서 본 연구에서는 여러 가지 산화제에 대하여 탄산염에서 우라늄산화물의 용해에 미치는 영향을 살펴보았다.

실험에 사용된 우라늄산화물은 분말을 사용하였고, 탄산염 용액은 시약급 Na₂CO₃, NaHCO₃를 물에 녹여 제조하였다. pH 조절을 위해 10M 짜리 NaOH와 HCl 용액을 사용하였다. 용액중 우라늄 농도는 Arsenazo III 시약을 사용하는 비색법을 사용하여 분석하였다. 선정된 산화제는 과산화수소와 sodium hypochlorite(NaOCl) 그리고 sodium persulfate(Na₂S₂O₈)의 3가지를 선정하였다.

탄산염용액에서 우라늄산화물을 용해시킬 때 농도에 상관없이 대략 pH 7에서 pH 10의 범위에서 용해도가 크게 변화하지 않았으나 pH가 더 증가하는 경우 용해도가 급격히 감소하는 경향을 나타냈다.[2] 우라늄산화물은 산화물 표면에서 우라늄이 산화수 4가에서 6가로 산화가 일어나면서 용액으로 확산되면서 탄산이온과 반응하여 uranyl carbonate 착물로 용해가 일어나는 것으로 알려져 있다.[3] 이때 용해액에서 uranyl carbonate 착물은 UV-스펙트럼을 통해 확인할 수 있었다.



한편 산화제 첨가는 산화물 표면에서 우라늄 4가를 6가로 산화를 촉진시키게 된다. 산화제 첨가시에도 pH 10 부근에서 용해도가 급격히 감소하는 경향을 나타냈다. NaOCl과 Na₂S₂O₈ 을 산화제로 사용하는 경우 Fig.1에서 보는 바와 같이 uranyl carbonate로 용해가 일어남을 확인할 수 있었다. 그러나 과산화수소의 경우 용해시킨 용액의 UV-스펙트럼을 Fig. 2에 나타냈는데 이는 과산화수소의 경우 아래와 같은 반응에 의해 용해되기 때문이다.[4]



산화제 중 과산화수소에 의한 우라늄산화물의 용해가 가장 커 2M 과산화수소 농도에서 약 70 gU/l 까지 용해되었다. NaOCl의 경우가 가장 적게 용해되었다.

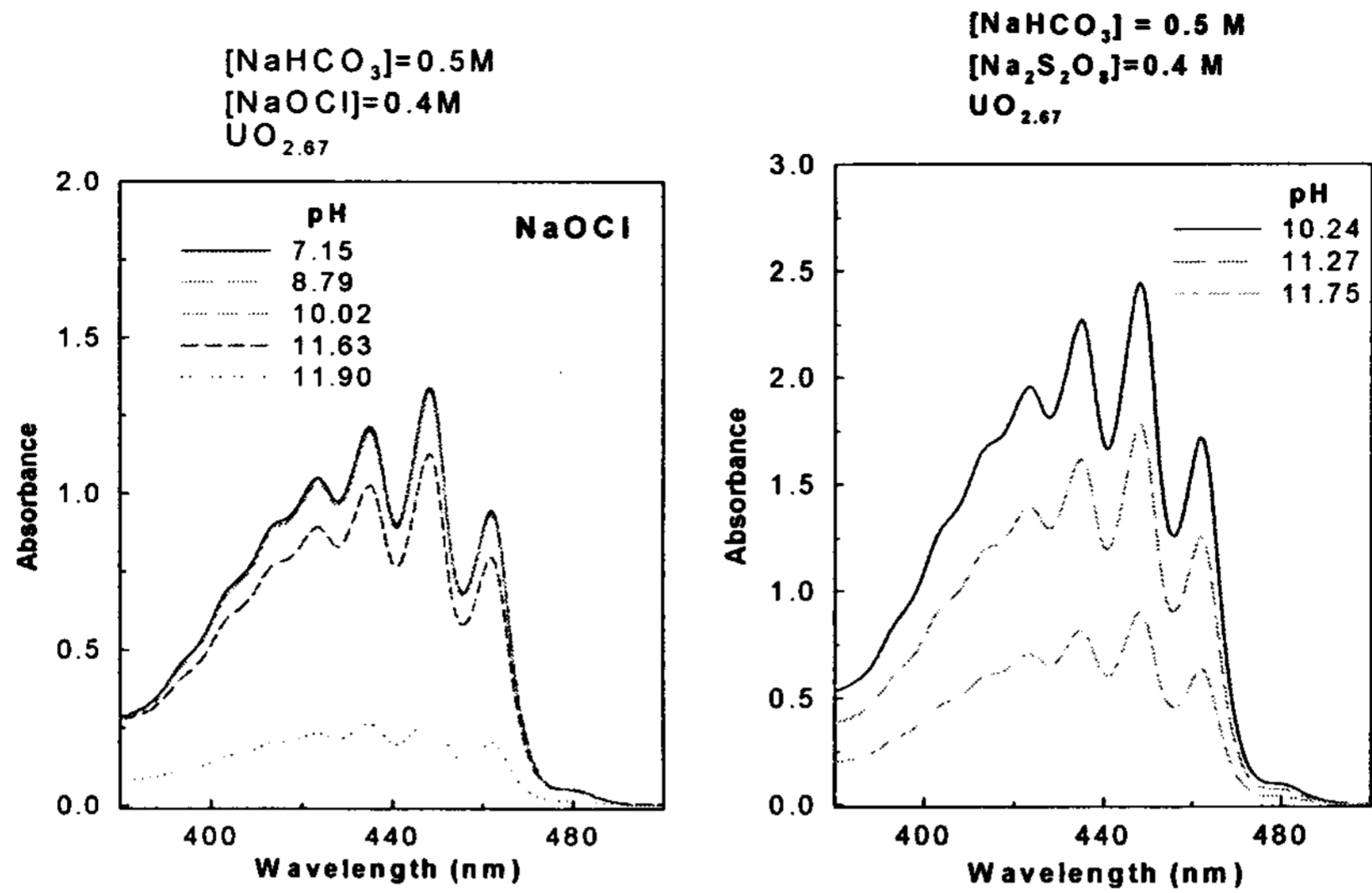


그림 1. 산화제 첨가(NaOCl, Na₂S₂O₈) 우라늄산화물 용해액의 흡수 스펙트럼

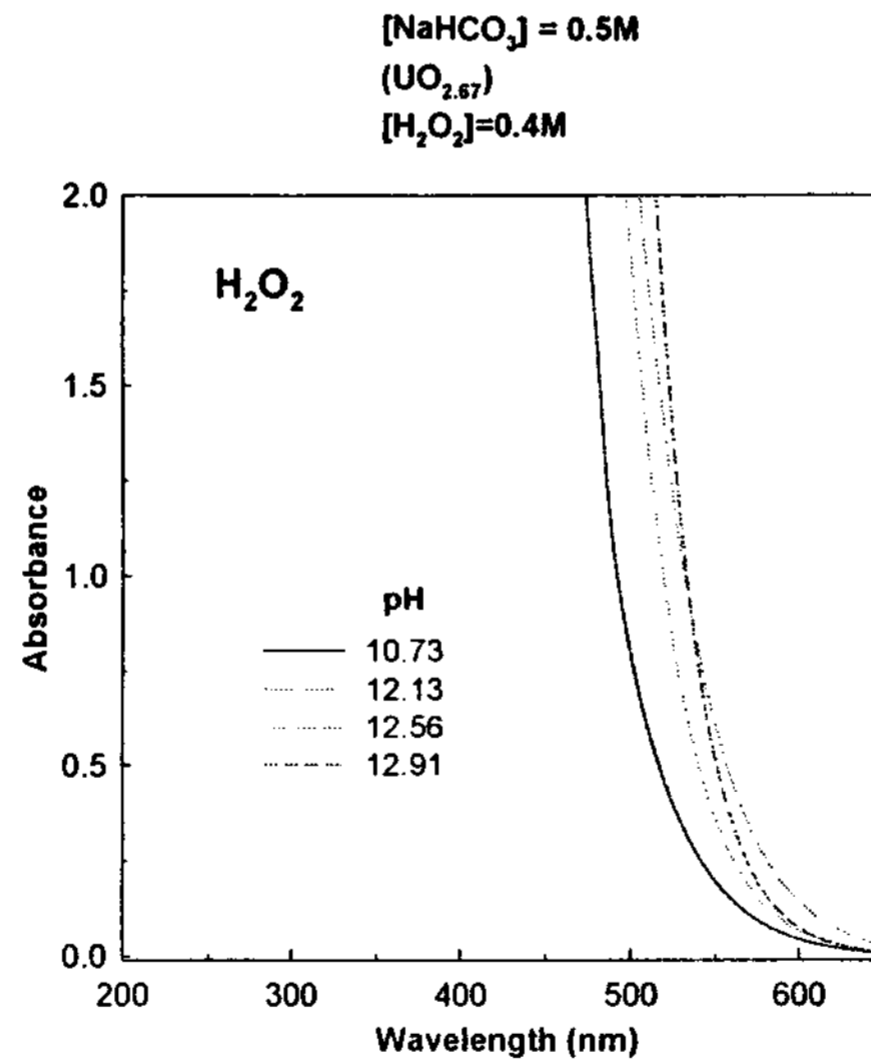


그림 2. 과산화수소 첨가 우라늄산화물 용해액의 흡수 스펙트럼

참고문헌

[1] N. Asanuma, M. Harada, Y. Ikeda and H. Tomiyasu, *J. Nucl. Sci. Tech.*, 38, 866 (2001).
 [2] D.W. Shoesmith, *J. Nucl. Mater.*, 282, 1 (2000).
 [3] Grenthe, I., Fuger, J., Konings, R. J. M., Lemire, R. J., Muller, A. B., Nguyen-Trung, C., Wanner, H., *Chemical Thermodynamics of Uranium*, NEA-OECD, Eds., North Holland Elsevier Science Publishers B. V., Amsterdam, The Netherlands, (1992).
 [4] S.M. Peper, et al., *Ind. Eng. Chem. Res.*, 43, 8188 (2004).