

## 고품위우라늄 혼합물의 탄산염 산화침출 거동

이일희, 임재관, 성새름, 최은경, 현준택, 정동용, 양한범, 김광욱

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

nehlee@kaeri.re.kr

### 1. 서론

고품위우라늄 혼합물은 핵연료 제조에서 발생하는  $UO_2$  쪼가리 (대부분 산화물) 및 연삭 등에서 발생하는 찌꺼기 (금속물질, SiC) 등의 U 함량이 높은 U-스크랩 등을 의미한다. 본 연구는 고품위우라늄 혼합물 내 존재하는 불순물의 탄산염 산화침출 거동 및 불순물/U의 산화 공침출을 평가하여 U을 고수율로 회수하는 기술개발을 목적으로 한다. 전제조건으로는 실온에서의 조업이 가능해야 하며, U은 최대한 많이 침출시켜야 하고, 불순물은 최소로 침출시킬 수 있거나 또는 다량으로 침출될 경우는 최종 U의 회수 단계에서 불순물을 효과적으로 제거할 수가 있어야 한다.

### 2. 본론

#### 2.1 실험

##### 2.1.1. 고품위우라늄 혼합물 조성 및 제조

아래 Table은 U-스크랩 내 불순물원소의 성분 및 조성의 일례이며, 본연구는 Al, B, Ca, Cd, Fe

원소 (ppm)	전식 연삭 찌꺼기	우라늄 스크랩	우라늄 스크랩
F	2	12	87
C	259	58	46
P	21.8	19.1	23.7
Na	14.5	12.2	12.1
K	11.9	10.6	14.7
Si	2.9	4.6	14
Ca	3.1	3.7	104.4
Cu	1.2	2.3	9.6
Fe	18	9.5	113.2
Cd	0.27	0.27	0.33
Mg	5.2	5	15.1
B	0.45	0.29	-
Ni	20.4	1.7	82.8
Cr	2	4.4	108.9
Al	20.6	3.6	114
Mn	1.5	2	11.3
Mo	6.2	2.9	113.8
Dy	0.1	0.05	-
Gd	0.14	0.1	-
Th	4.7	5.1	-

Cd, Fe, Gd, Mg, Mo, Ni, Si Zn과 U 등의 12성분 산화물계와 기타 Al-금속,  $Ca(OH)_2$ ,  $FeO(OH)$ , SiC 등의 4성분 비산화물 계로 구분하여 수행하였다.

##### 2.1.2. 실험 방법

모든 실험은 회분식으로  $25 \pm 1^\circ C$ 에서 수행하였다. 12성분의 산화물계 및 4성분의 비산화물 계를 구성하는 각각의 원소를 화학저울로 0.1 g씩, U은  $UO_2$  2.2 g을 칭량하여 100 mL 탄산염 용액에 넣는다. 그리고 온도, 교반속도 및 시간조절이 가능한 다중 교반기를 이용하여, 400 rpm으로 2시간 동안 산화 침출한다. 그런 다음 원심분리기로 고액 분리한 후 침출액에 존재하는 금속이온의 농도를 분석하여 각 원소의 침출율을 측정한다.

##### 2.1.3. 분석

불순물인 Al, B, Ca, Cd, Fe, Gd, Mg, Mo, Ni, Si, Zn 등과 U은 ICP를 이용하여 각각의 농도를 분석하였으며, 용액 내 pH,  $H_2O_2$  및 탄산염 농도는 각각 pH meter, RQflex 10 및 TOC를 이용하여 분석하였다. 그리고 각 원소의 침출율은  $D(\%) = W_M / W_{M,i} \times 100$  식으로 계산하였으며, 여기서  $W_{M,i}$  및  $W_M$ 는 각각 금속이온의 초기량(g) 및 침출액 내 함유된 금속이온의 양(g)를 의미한다.

### 2.2 결과 및 토의

Fig. 1은 각각 0.5M  $Na_2CO_3$ -xM  $H_2O_2$  계에서  $H_2O_2$  농도 변화에 따른 10성분 산화물 계 및 4성분 비산화물 계에서의 각 원소의 침출율이다. 용액의 pH는 산화물 계에서는 10.4~11.0로 거의 변화가 없지만, 비산화물 계에서는 10.3~12.4로 다소 증가하고 있다. 침출원소로는  $H_2O_2$  농도 증가에 따라 B, Ca, Mo, Si 등의 산화물과 Al-금속, SiC 등이 침출되며, 기타 Al, Cd, Fe, Gd, Mg, Ni, Zn 등의 산화물과  $Ca(OH)_2$ ,  $FeO(OH)$  수산화물은 1 ppm 이하로 거의 침출되지 않고 있다. 이는 탄산염 계에서의 이들 원소의 용해도가 낮아 데 기인한다. 한편 U은  $H_2O_2$  농도 증가에 따라

증가하는 경향이지만 0.5M 이상에서는 거의 영향이 없다. 그리고 탄산염이 함유되지 않은, 1.0M H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 단독용액의 경우 탄산염 용액에서의 침출원소 중 B와 Ca는 각각 일부만이 침출되는 데 반하여, Mo, Si, U 및 기타 불침출 원소는 모두 침출되지 않았다.

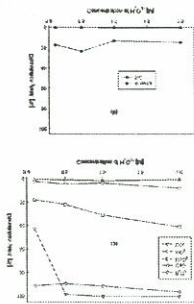


Fig. 1

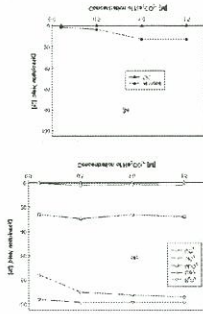


Fig. 2

Fig. 2는 각각 xM Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>-1.0M H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 계에서 Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 농도 변화에 따른 각 원소의 침출율이다. 산화물 계 및 비산화물 계의 침출용액 내 pH 변화는 모두 10.4~11.0로 거의 비슷하였다. Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 농도 증가에 따라 B, Ca, Mo, Si, U 등의 산화물과 Al-금속, SiC 등이 침출되며, 기타 Al, Cd, Fe, Gd, Mg, Ni, Zn 등의 산화물과 FeO(OH), Ca(OH)<sub>2</sub>는 1 ppm 이하로 거의 침출되지 않고 있다. 특이점으로는 Mo의 경우 2M H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>에서는 최대 310 mg/L 까지 침출된데 반하여, Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 농도 변화에 대해서는 210±10 mg/L로 거의 변화가 없었다. 이는 탄산염 용액 내 H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>의 농도가 일정한데 기인하며 Mo가 산화침출되고 있음을 보여주는 것이다. Fig. 3은 0.5M Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>-1.0M H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 계에서 침출시간에 따른 각 원소의 침출율과 이때 분해 소모되는 H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>의 농도비이다. 침출시간은 약 1시간 정도면 충분할 것 같고, B의 경우 1시간 경과 후 거의 대부분이 침출되고 있음을 알 수 있다. 침출시간 변화에 따른 산화물 계의 pH 변화는 10.6~10.9 이었고, 비산화물 계에서는 10.6~11.4 이었다. 한편 침출시간에 따른 H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>의 농도 변화는 침출시간 증가에 따라 급격히 감소하며 4시간이 경과된 후에는 0.104 M 까지 감소된다. 이와 같은 H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 농도의 감소원인은 알카리 용액에서의 자체분해 및 탄산염 용액에서의 U (또는 Mo 등)의 산화제로서의 소모 등에 기인한다. Fig. 4는 온도 및 교반속도 변화에 따른 침출 불순물 원소인 B, Mo, Si 등의 산화물과 Al-금속의

침출농도이다. 온도를 50℃까지, 교반속도를 1,000 rpm 까지 증가시켜도 침출액의 농도변화 폭이 크지 않은 것으로 보아 온도 및 교반속도가 Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 탄산염 용액에 의한 침출에 미치는 영향은 미미한 것으로 보인다.

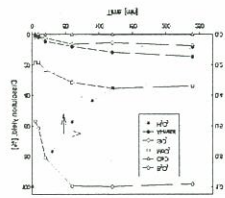


Fig. 3

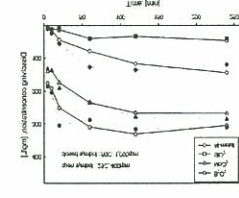


Fig. 4

### 3. 결론

고품위우라늄 혼합물 내 함유되어 있는 불순물 원소와 U과의 효과적인 추출을 위해서는 탄산염 용액의 농도 및 산화제 (H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>)의 농도는 각각 0.5M 이상, 1.0M 정도가 좋을 것으로 보이며, 침출시간은 1시간 정도, 온도 및 교반속도는 각각 상온, 약 400 rpm 정도에서 그리고 용액 내 pH는 질산첨가 등의 전처리 과정 없이 약 pH 10~11 에서 수행하는 것이 적당할 것으로 보인다. 그리고 U 과 불순물 원소와의 공침출을 감소하기 위해서는 NaHCO<sub>3</sub> 용액보다는 Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 용액을, 불순물의 침출량을 고려하지 않고 오로지 U의 침출시간 단축 및 침출량을 증가시키기 위해서는 NaHCO<sub>3</sub> 용액을 적용하는 것이 보다 효과적이다.

### 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).