

## Fe 함유 우라늄폐기물의 산용해 및 침전법에 의한 U/Fe 상호분리

양한범, 이일희, 정동용, 최은경, 김광욱  
 한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045  
 nhbyang@kaeri.re.kr

## 1. 서론

본 연구에서는 Fe 함유 우라늄폐기물을 산 용해할 경우 U와 동반 공용해 되는 Fe 등 기타 원소들로부터 U를 분리할 수 있는 U 분리기술 확보를 위한 연구로서 U와 공용해 되는 불순성분 원소인 Fe와 기타 원소들은 탄산용액에서 용해도가 작아 침전되는 특성을 이용하여 산 용액에 U와 동반 공용해 되는 Fe 및 기타 원소들로부터 우라늄만을 선택적으로 분리하는 방법을 사용하여 U와 Fe의 질산용액과 탄산용액에서의 용해 및 침전특성 규명과 탄산용액에 용해되어 있는 U의 산성화(acidification) 침전특성에 대해 고찰하였다.

## 2. 실험방법

우라늄 용액은 U 430ppm/(0.1 M HNO<sub>3</sub>) 용액과 U 5(g/l)/(0.5 M Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>-1.0M H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) 용액, Fe 용액은 Fe 100ppm 0.1 M HNO<sub>3</sub> 용액을 사용하여 실온에서 실험조건에 따라 Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 분말 시약을 첨가하여 pH 미터를 사용하여 용액의 pH 연속 측정하면서 조정하였다. U와 Fe 농도는 실험 용액을 주사기 필터 (syringe filter, Advantec Co, pore size 0.2 μm)로 침전물을 여과하여 만든 시료를 분광 광도계(HIP 8453)로 분석하였다.

침전물 입자크기 분포도는 Microtrac사의 습식 입도분석기로 분석하였다. U 침전물의 XRD 분석은 X-ray diffractometer (Rigaku)로 측정하였다. 전기오븐은 대흥과학 (모델: DCF-150L), pH 측정기는 Orion (모델: EA 940), 모든 실험은 Milli-Q plus로 제조한 18MΩ의 2차 증류수를 사용하였다.

U의 농도는 U가 함유된 실험용액의 일정량을 취하여 발색제 Arsenazo III를 사용하여 652nm에서 비색분석법으로 분석하였다. Fe 농도는 Fe가 함유된 실험용액의 일정량을 취하여 발색제 1,10-Phenanthroline을 사용하여 510nm에서 흡광도를 측정하여 분석하였다.

U 침전물의 건조는 전기오븐에서 실험조건에 따라 25°C 및 90°C에서 4시간 동안 건조시켰다.

## 3. 결과 및 고찰

## 3.1 U와 Fe의 침전 및 상호분리 특성

0.5 M Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>-1 M H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 매질의 U 용액 (5 g/L)을 대상으로 질산용액을 첨가하여 U 용액을 탈탄산 산성화하여 pH를 감소시킨 용액에 대한 U 침전율(%)의 측정결과와 0.1 M HNO<sub>3</sub> 용액에 Fe를 용해시켜 만든 실험용액을 Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 시약 분말 첨가하여 용액의 pH를 증가시킨 용액에 대한 Fe 침전율(%) 측정결과는 Table 1과 같다.

Table 1. Precipitation of U &amp; Fe as a function of pH

pH	3.5	5	6	9	10
U 침전율, %	99.9	96.7	85.5	0	0
pH	2.0	3.0	5.0	9.1	10.3
Fe 침전율, %	0	74.8	100	100	100

그리고 0.1 M HNO<sub>3</sub> 용액에 U와 Fe를 혼합시켜 만든 실험용액을 Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 시약 분말 첨가하여 용액의 pH를 9.0으로 조정된 후 상등액을 주사기 필터 (syringe filter)로 여과하여 만든 분석시료를 분광 광도계로 Fe 농도를 분석하여 계산한 Fe의 침전율은 100% 이었다. 그리고 Fe 침전물을 고액 분리로 제거한 다음 U 함유 분리여액에 H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>를 첨가한 후 질산용액으로 분리여액의 pH를 3.5로 조정하여 4시간 우라늄침전 생성시킨 후 상등액의 U 농도를 분석하여 UO<sub>4</sub> 침전율을 계산한 결과 99.9% 이상 침전되었으므로, 침전법에 의한 U와 Fe 상호분리 가능성을 확인하였다.

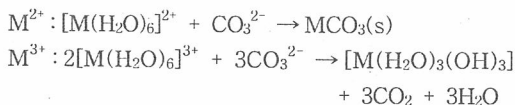
## 3.2 U 및 Fe 침전물 특성

UO<sub>2</sub>를 0.5 M Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>-1.0M H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 매질의 U 용액 (5 g/L)에 HNO<sub>3</sub> 용액을 첨가하여 산성화시키면 U 용액의 pH가 3.5일 때 U 침전율은 최대가 되었다. U 침전반응은 uranyl peroxocarbonato 착물이 HNO<sub>3</sub> 용액으로 탈탄산 산성화되면서 carbonate 성분은 CO<sub>2</sub>로 방출되고, U는 침전된다. U 침전물의 XRD를 측정하여 U 침전물이 UO<sub>4</sub>·4H<sub>2</sub>O임을 확인하였다. U 침전물은 25°C에서 건

조시키면  $UO_4 \cdot 4H_2O$  이며,  $90^\circ C$ 에서 건조시키면  $UO_4 \cdot 2H_2O$ 로 분석되었다. pH 3.5에서 생성시킨 U 침전물의 입자크기는  $< 1\mu m$  이고, pH 9.0에서 생성된 Fe 침전물 평균 입자크기는  $10\mu m$ 로 분석되었다.

### 3.3 산용액중 U와 불순물원소의 분리 가능성

그리고  $Fe^{3+}$  이온 용액에  $Na_2CO_3$  용액을 첨가하면 NaOH 용액 또는  $NH_4$  용액을 첨가한 것과 마찬가지로 똑같은 Fe 침전물이 생성되며, 이때  $Fe^{3+}$  이온은 carbonate 이온과 반응하여  $CO_2$  가스를 방출하고 metal hydroxide 침전을 만든다. 일반적인 금속(M)이온과  $CO_3^{2-}$  반응 다음과 같다.



질산용액에서 U와 공용해 되는 불순물 원소들 중  $M^{2+}$  (Fe, Ni, Ca, 등)와  $M^{3+}$  (Fe, Ni, Ca, 등) 원소들은  $CO_3^{2-}$ 와 반응하여  $MCO_3(s)$  또는 metal hydroxide를 형성하므로 침전법으로 U와 공용해 불순물 원소의 분리가 가능하다고 판단되어 이와 관련된 실험을 진행중에 있다.

## 4. 결론

Fe 함유 우라늄폐기물을 질산용액으로 용해한 용해액을 대상으로  $Na_2CO_3$ 를 첨가하여 용해액의 pH를 9.0 이상으로 조정하여 침전된 Fe를 고-액 분리하여 제거하고 분리 여액에 존재하는 U 용액에 과산화수소 첨가한 다음 질산용액으로 pH 3.5까지 산성화시켜 U를 침전시키는 방법으로 용액의 pH 변화에 따른 U 및 Fe의 침전특성을 이용하여 U와 Fe의 상호분리 가능성을 확인하였다. 그리고 침전법으로 U와 공용해 되는 Fe를 포함한 불순물 성분원소들로부터 우라늄만의 선택적 분리 가능성을 고찰하였다.

## 5. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국과학재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

## 6. 참고문헌

- [1] Kyung-Chai Jeong, Tae-Joon Kim, Jong-Hyun Choi, Jin-Ho Park, Seong-Tae Hwang, J. Of Korean Ind. & Eng. Chem. Vol.7, No.6, 1164-1173, 1996.
- [2] K. W. Kim, D. Y. Chung, E. H. Lee H. B. Yang, 우라늄혼합물 위해도 저감화 기술개발 과제 2010년 연차 실적서 2010.
- [3] 서인석 등, 핵연료주기 화학분석 편람, 한국에너지연구소, KAERI/GP-64/86, 1986.