

황산용액을 이용한 오염된 콘크리트 폐기물로부터 우라늄 제염

김승수, 김완석, 박혜민, 박옥량, 김계남

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 989번길 111

nsskim@kaeri.re.kr

1. 서론

핵연료 공정에 사용한 원자력시설의 해체시 70%이상을 차지하는 콘크리트 폐기물의 처리에 대해 각 국가들이 중요한 관심을 갖고 있다. 한국 원자력연구원에서도 우라늄 변환시설을 복원하는 과정에서 1500 드럼이상의 콘크리트 폐기물이 발생하였다. 이 콘크리트 폐기물을 아무 처리없이 경주 중저준위폐기물처분장에 모두 처분된다면, 막대한 처분비용 뿐 아니라 처분장의 효율성도 저하되게 된다. 따라서 이들의 부피를 줄이는 처리과정이 요구된다.

우라늄으로 오염된 콘크리트의 제염연구는 지금까지 거의 수행되지 않았다. 다만, 콘크리트 산업폐기물을 가열하여 시멘트 분말을 골재로부터 분리시키는 방법을 응용하여 방사성 콘크리트 폐기물로부터 방사성핵종을 많이 포함한 시멘트를 골재와 분리하여 콘크리트 폐기물의 부피를 줄이는 연구가 진행된 바 있다 [1]. 그러나 자갈과 같이 매우 큰 골재를 제외한 작은 골재는 콘크리트의 오염도에 따라 세척이 필요하다.

본 연구에서는 우라늄으로 오염된 콘크리트 폐기물로부터 우라늄을 제거하기 위해 세척액으로 고려되고 있는 질산 대신 황산을 사용하여 제염율과 발생된 세척액의 처리방법 및 발생슬러지의 양 등을 구하여 질산에 의한 세척의 경우와 비교하였다.

2. 실험

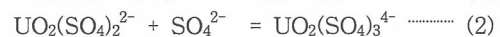
콘크리트 폐기물을 죠크레셔로 파쇄한 다음, 체로 쳐서 크기가 1.0~5.6 mm인 입자만을 실험에 사용하였다. 폐기물 세척액으로는 폐기물 1.0 M 황산과 질산을 각각 사용하였다. 실험후 세척액의 침전을 위해서는 마그네트와 명반(alum)을 사용하였으며, 흡착수지로서 Amberlite, IRA 910을 사용하였다. 모든 실험은 2회반복 실시하였다. 용액 중 우라늄의 농도는 HPGe Gamma-ray Spectrometry를 이용하여 딸핵종인 Th-234 혹은

Pa-234m을 측정하여 간접적으로 구하였다.

1.0~5.6 mm 크기의 콘크리트 입자 50 g을 1.0 M 황산과 질산 용액에 넣고, 상온에서 120 rpm으로 2시간동안 교반하였다. 교반후 상등액 40 mL를 취해 용액중 Th-234와 Pa-234m을 측정하였다. 용매를 최대한 제거한 다음, 남은 콘크리트를 전과 동일한 조건으로 재세척하였다. 재세척후 상등액을 취해 방사선량을 측정하였으며, 용액제거후 남은 콘크리트 시료를 건조하여 고체의 방사선량도 측정하였다.

세척액에 함유된 우라늄을 침전시키기 위하여 NaOH를 첨가하여 pH를 11로 조절한 다음, 0.1 g의 마그네사이트와 명반을 각각 용액에 첨가하였다. 침전후 상등액의 방사능 농도와 건조후 침전물의 무게를 측정하였다.

A. Rahmati 등[2]은 0.02~9.0 M의 황산용액에서 우라늄이 아래 반응에 의해 uranyl sulfate 음이온이 형성되어 강음이온 흡착제인 IRA 910에 70~80% 흡착한다고 발표하였다.



따라서 본 실험에서 콘크리트 폐기물로부터 우라늄을 세척하기 위하여 사용한 황산의 농도가 1.0 M 이므로, IRA 910으로 세척액에 용해되어있는 우라늄을 제거하고 황산은 재사용할 목적으로 IRA 910을 사용하여 회분식실험을 실시하였다. 이를 위해 콘크리트 세척액 혹은 우라늄 용액 50 mL에 IRA 910을 각각 0.2, 0.5, 1.0 g씩 넣고, 2시간이상 교반하면서 반응시켰다. 반응후 용액의 상등액을 40 mL를 취하여 방사선량을 측정하였다.

3. 결과 및 토의

콘크리트 입자를 황산과 질산 용액에 넣고, 2시간씩 2차례 교반후 취한 상등액과 세척후 남은 콘크리트의 Pa-234m 농도를 측정한 결과, Table

1을 얻었다. 이 표로부터 콘크리트에 대한 우라늄 세척정도는 1.0M 황산과 질산에서 비슷한 것으로 나타났다. 그러나 세척액에 함유된 우라늄 침전 실험결과, 침전후 슬러지의 양이 질산과 황산 세척에서 각각 5.03, 3.58 g으로 황산용액에서 조금 적게 생성되었다. 침전후 용액중 Th-234와 Pa-234m의 방사선량은 50,000초 동안 측정하여도 검출되지 않았다. 질산 세척의 경우에 비해, 작은 양의 슬러지 발생과 상대적으로 가격이 낮은 황산의 사용은 경제적으로 유리하게 작용할 것으로 판단된다.

Table 1. The activities of Pa-234m in the supernatant and washed concrete.

	Activity (Bq/g)	
	1.0 M nitric acid	1.0 M sulfuric acid
Unwashed concrete	0.80	
Supernatant from 1 st washing	0.12	0.16
Supernatant from 2nd washing	0.07	0.04
Washed concrete	0.35	0.34

황산 세척액에 용해되어있는 우라늄만을 IRA 910을 사용하여 제거할 목적으로 실시한 회분식 실험 결과는 A. Rahmati 등이 주장한 것과 달리 우라늄이 선택적으로 제거되지 않았다. 이는 $UO_2SO_4(aq)$ 의 생성반응은 잘 진행되나, 상기 반응식 (1)과 (2)에서 $UO_2(SO_4)_2^{2-}$ 와 $UO_2(SO_4)_3^{4-}$ 의 형성반응 평형상수가 매우 낮아 이들 이온이 잘 형성되지 않거나, pH 1.3 이하에서의 산성용액에서 황산이 SO_4^{2-} 보다 HSO_4^- 의 양을 더 많이 형성하기 때문으로 생각된다 [3].

4. 결론

콘크리트폐기물에 포함된 우라늄을 1.0 M 황산과 질산으로 세척한 경우, 세척정도는 비슷하였으나 침전후 슬러지의 양이 황산용액에서 조금 적게 나타났다. 황산 세척액중에 용해되어있는 우라늄만을 Amberlite, IRA 910을 사용하여 제거할 목적으로 실시한 회분식실험 결과는 우라늄이 선택적으로 제거되지 않았다.

5. 참고문헌

- [1] Byung-Youn Min, Wang-Kyu Choi, Kune-Woo Lee, Separation of clean aggregates from contaminated concrete waste by thermal and mechanical treatment, *Annals of Nuclear Energy*, Vol.37, pp.16 - 21, 2010.
- [2] A. Rahmati, A. Ghaemi, M.Samadfam, Kinetic and thermodynamic studies of uranium(VI) adsorption using Amberlite IRA-910 resin, *Annals of Nuclear Energy*, Vol.39, pp.42 - 48, 2012.
- [3] A. Burneau, M. Tazi, G. Bouzat, Raman spectroscopic determination of equilibrium constants of uranyl sulphate complexes in aqueous solutions, *Talanta*, Vol.39, pp.747-748, 1992.