



**(19) 대한민국특허청(KR)**  
**(12) 등록특허공보(B1)**

(45) 공고일자 2012년08월31일  
(11) 등록번호 10-1178903  
(24) 등록일자 2012년08월27일

- |  |  |
|--|--|
| <p>(51) 국제특허분류(Int. Cl.)<br/>C22B 60/02 (2006.01) C22B 3/08 (2006.01)</p> <p>(21) 출원번호 10-2010-0060956</p> <p>(22) 출원일자 2010년06월28일<br/>심사청구일자 2010년06월28일</p> <p>(65) 공개번호 10-2012-0000617</p> <p>(43) 공개일자 2012년01월04일</p> <p>(56) 선행기술조사문헌<br/>비철제련공학, 문운당, 이승이 외 1, pp.124~125, 435~436, (1999.1.25.)*<br/>JP2004156123 A*<br/>연구보고서, 옥천계 흑색점판암에서 바나듐 회수 연구(II), (1991.12.)*<br/>JP2003073750 A<br/>*는 심사관에 의하여 인용된 문헌</p> | <p>(73) 특허권자<br/>한국지질자원연구원<br/>대전광역시 유성구 과학로 124 (가정동)</p> <p>(72) 발명자<br/>윤호성<br/>서울특별시 서초구 서운로 221, 102동 2105호 (서초동, 래미안 서초스위트)<br/>남철우<br/>대전광역시 서구 둔산북로 215, 1동 802호 (둔산동, 가람아파트)<br/>(74) 대리인<br/>박창희, 김종관, 권오식</p> |
|--|--|

전체 청구항 수 : 총 6 항

심사관 : 윤여분

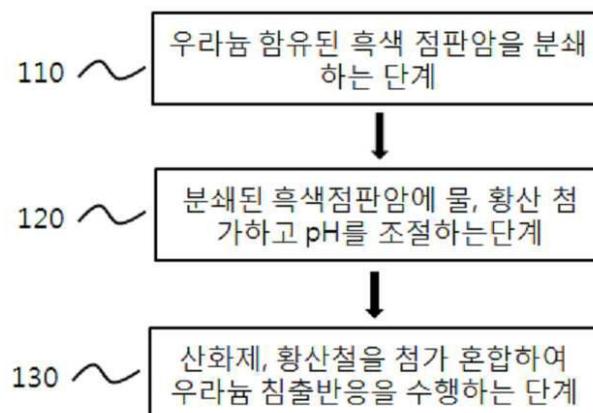
(54) 발명의 명칭 **우라늄이 함유된 흑색점판암 광석의 황산침출 시 황산철 첨가에 따른 고효율 우라늄 침출방법**

**(57) 요약**

우라늄을 함유한 광물에 물, 황산, 산화제, 황산철을 첨가 혼합하여 우라늄을 침출 반응을 시키되, 상기 침출 반응시 pH를 1~2로 제어하고, 산화환원전위를 400~550mV로 제어하는 것인 우라늄 침출방법에 관한 것이다. 보다 자세하게는 본 발명은 a)우라늄이 함유된 흑색점판암을 입자크기가 45~200메시가 되도록 분쇄하는 단계;b)상기 분쇄된 우라늄이 함유된 흑색점판암에 물, 황산, 황산철을 첨가하고 pH를 1~2로 조절하는 단계;c)상기 b)단계 후 산화제를 첨가 혼합하여 우라늄 침출반응을 수행하는 단계; 를 포함하되 상기 침출 반응 시 상기 pH는 1~2로 유지하고, 산화환원전위는 400~550mV로 유지하여 이루어지는 것을 특징으로 하는 우라늄 침출방법에 관한 것이다.

본 발명에 따른 우라늄이 함유된 흑색점판암 광석으로부터 우라늄의 침출방법은 종래 발명에 비하여 공정시간을 단축시킬 수 있으며 우라늄의 침출률을 향상시키는 장점을 가지고 있다. 보다 자세하게는 우라늄이 함유된 흑색점판암 광석이 첨가된 황산수용액의 pH와 산화환원전위를 일정하게 유지시키면서 우라늄을 침출시키는 과정에서 종래의 발명과는 달리 황산철을 첨가함으로써 우라늄의 침출시간 단축 및 침출률을 향상시키는 장점이 있다.

**대표도 - 도1**



(72) 발명자

**김성돈**

대전광역시 유성구 어은로 57, 201동 1206호 (어은동, 한빛아파트)

**김철주**

대전광역시 서구 청사로 269, 1001호 (둔산동, 은초롱아파트)

**김준수**

대전광역시 유성구 어은로 57, 111동 902호 (어은동, 한빛아파트)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호 GP2009-027-01

부처명 지식경제부

연구사업명 기본사업

연구과제명 국내/외 우라늄 확보 전주기 요소기술 개발

주관기관 한국지질자원연구원

연구기간 2009년 1월 1일~2011년 12월 31일

---

## 특허청구의 범위

### 청구항 1

입자크기가 45~200메쉬인 우라늄을 함유한 광물에 물, 황산, 산화제, 황산철을 첨가 혼합하여 우라늄을 pH 1~2, 30~60℃에서 침출 반응을 시키되, 상기 황산철은 우라늄을 함유한 광물 100중량부에 대하여 0.1 내지 1 중량부 첨가하고, 산화환원전위를 400~550mV로 제어하는 것을 특징으로 하는 우라늄 침출방법.

### 청구항 2

제1항에 있어서,

상기 침출 반응시 pH는 황산의 투입 양으로 제어하고, 산화환원전위는 산화제의 투입 양으로 제어하는 우라늄 침출방법.

### 청구항 3

삭제

### 청구항 4

삭제

### 청구항 5

삭제

### 청구항 6

제1항에 있어서,

상기 침출 반응은 0.5~4시간 이루어지는 것인 우라늄 침출방법.

### 청구항 7

제1항에 있어서,

상기 혼합은 200~500rpm으로 교반하여 이루어지는 것인 우라늄 침출방법.

### 청구항 8

제1항에 있어서,

상기 산화제는 이산화망간인 우라늄 침출방법.

### 청구항 9

제1항에 있어서,

상기 우라늄을 함유한 광물은 우라늄이 함유된 흑색점판암인 우라늄 침출방법.

### 청구항 10

삭제

## 명세서

### 기술분야

본 발명은 우라늄이 함유된 광물에 황산을 첨가하여 우라늄을 효율적으로 침출시키는 방법에 관한 것이다.

### 배경기술

[0001]

[0002] 우라늄광을 황산수용액에 침출시킬 경우, 우라늄광석에 함유되어 있는 산화우라늄( $UO_2$ )은 3가 철 이온( $Fe^{3+}$ )에 의하여 산화우라늄 양이온( $UO_2^{2+}$ )으로 산화되면서 수용액으로 침출된다.

[0003] 그러나 우라늄이 함유된 흑색점판암 광석 200g을 황산수용액 200ml에 첨가하여 침출반응을 진행시키면, 우라늄을 침출시키기 위해서는 흑색점판암 광석에 함유되어 있는 철성분이 우선적으로 황산수용액에 용해되어야 철성분이 우라늄을 산화시켜 우라늄이 수용액에 침출되는데, 이 과정이 매우 느리기 때문에 우라늄 침출시간이 매우 길어지는 단점이 있다.

**발명의 내용**

**해결하려는 과제**

[0004] 상기한 바와 같이 우라늄이 함유된 광물로부터 황산수용액을 이용한 우라늄을 침출하는 방법에 있어서, 광석에 함유되어 있는 철 성분을 이용하여 우라늄을 산화시키고 침출하는 과정은 시간이 많이 소요되고 또한 침출률이 낮은 한계가 있다. 또한 침출시간을 단축시키고 침출률을 높이기 위해서는 산화환원전위를 550 mV 이상 유지시켜야 하는데, 이 경우에는 산화제인 이산화망간과 수용액의 pH를 1-2로 유지하기 위한 황산의 소모량이 급격히 늘어나는 단점이 있다. 그러므로 본 발명은 우라늄이 함유된 흑색점판암 광석을 황산수용액에 첨가하여 효과적으로 우라늄을 침출시키는 방법을 제공하는데 목적이 있다.

[0005] 보다 구체적으로 본 발명은 우라늄이 함유된 흑색점판암 광석에 황산수용액을 첨가하여 우라늄 성분을 침출시킬 때 침출시간 단축과 침출률을 높이는데 목적이 있다.

**과제의 해결 수단**

[0006] 본 발명은 우라늄을 함유한 광물에 물, 황산, 산화제, 황산철을 첨가 혼합하여 우라늄을 침출 반응을 시키되, 상기 침출 반응시 pH를 1~2로 제어하고, 산화환원전이를 400~550mV로 제어하는 것을 특징으로 하는 우라늄 침출방법에 관한 것이다. 본 발명에 따른 우라늄 침출방법은 황산철을 첨가하지 않고 침출할 때와 비교하였을 때 침출시간을 획기적으로 단축시킬 수 있고 침출률이 높은 장점이 있다.

[0007] 또한 비교적 낮은 산화환원전위를 유지하여도 황산철을 첨가함으로써 침출률을 높일 수 있으며, pH와 산화환원전위를 유지하기 위한 산화제와 황산의 투입량을 줄일 수 있어서 효과적이다.

[0008] 본 발명은 상기 침출 반응시 pH는 황산의 투입 양으로 제어하고, 산화환원전이는 산화제의 투입 양으로 제어하는 것을 특징으로 한다. 상기 황산철은 우라늄을 함유한 광물 100중량부에 대하여 0.1~1중량부 첨가하는 것이 바람직하다.

[0009] 상기 침출 반응시 온도는 30~60°C인 것이 바람직하며, 상기 우라늄을 함유한 광물은 입자크기가 45~200메쉬가 되도록 분쇄된 것을 사용하는 것이 좋다.

[0010] 상기 침출 반응은 0.5~4시간 이루어지는 것이 바람직하고, 상기 혼합은 200~500rpm으로 교반하여 이루어지는 것이 침출반응에 효과적이다. 상기 산화제는 보다 바람직하게는 이산화망간을 사용하는 것이 좋으며, 보다 구체적으로 상기 우라늄을 함유한 광물은 우라늄을 함유한 흑색점판암인 것을 특징으로 한다.

[0011] 또한 본 발명은 a)우라늄이 함유된 흑색점판암을 입자크기가 45~200메시가 되도록 분쇄하는 단계;(110)

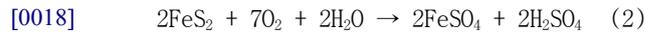
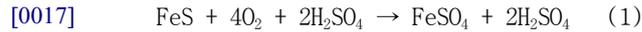
[0012] b)상기 분쇄된 우라늄이 함유된 흑색점판암에 물, 황산, 황산철을 첨가하고 pH를 1~2로 조절하는 단계;(120)

[0013] c)상기 b)단계 후 산화제를 첨가 혼합하여 우라늄 침출반응을 수행하는 단계;(130)를 포함하되 상기 침출반응시 상기 pH는 1~2로 유지하고, 산화환원전이는 400~550mV로 유지하여 이루어지는 것을 특징으로 하는 우라늄 침출방법을 제공한다.

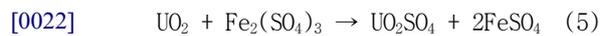
[0014] 이하 본 발명은 보다 상세히 설명하고자 한다.

[0015] 본 발명은 우라늄이 함유된 광물을 황산에 침출될 때  $Fe^{+3}$ 에 의해  $UO_2$ 가  $UO_2^{+2}$ 로 산화될 수 있다. 이때 광물 속에 포함된 3가 철이온이 침출반응에 참여할 수 있다. 그러나 본 발명은 상기 3가 철이온을 황산철을 첨가하여 공급하는 것을 특징으로 하며, 본 발명에 따라 황산철을 공급 하였을 때 우라늄 침출률을 획기적으로 높일 수 있다. 상기 황산철은 우라늄을 함유한 광물 100중량부에 대하여 0.1~1중량부 첨가하는 것이 바람직하다.

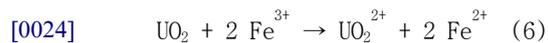
[0016] 본 발명에 따른 우라늄 침출방법은 우라늄을 함유한 광물에 물, 황산, 산화제, 황산철을 첨가 혼합한 혼합액에 공존하는 3가 철이온에 침출이 일어나는 것을 특징으로 하며, 공급된 황산철에 의해 하기와 같은 반응이 일어날 수 있다.



[0019] 상기 용해된 황산 제일철은 상기 산화제에 의하여 황산제이철이 되고 하기 반응이 일어날 수 있다.



[0023] 그리고 우라늄의 침출반응은 다음식(6)과 같다.



[0025] 상기 황산제이철은 우라늄을 용해하게 된다. 상기 침출반응시 pH는1~2인 것을 특징으로 하며, 상기 pH범위에서 최대 93%이상의 침출률을 보일 수 있다. 상기 pH가 2를 초과하게 되면, 침출반응이 원활하게 일어나지 않을 수 있다.

[0026] 본 발명은 상기 침출 반응 시 30~60℃에서 이루어지는 것이 바람직하며, 상기 반응범위에서 침출반응이 활발하게 일어나며 반응시간을 단축시킬 수 있다. 본 발명은 침출 반응시 산화환원전위가 400~550mV로 유지하여 반응하는 것을 특징으로 하며, 상기 범위에 있을 때 침출률이 최고치를 보일 수 있다. 보다 바람직하게는 400~500mV일 때 침출시간과 에너지 효율 면에서 우수하다. 본 발명에서 상기 우라늄을 함유한 광물은 입자크기가 45~200메시가 되도록 분쇄된 것을 사용하는 것이 침출효과가 우수하다.

**발명의 효과**

[0027] 본 발명에 따른 우라늄의 침출방법은 종래 발명에 비하여 공정시간을 단축시킬 수 있으며 우라늄의 침출률을 향상시키는 장점을 가지고 있다. 보다 자세하게는 우라늄이 함유된 흑색점판암 광석이 첨가된 황산수용액의 pH와 산화환원전위를 일정하게 유지시키면서 우라늄을 침출시키는 과정에서 종래의 발명과는 달리 황산철을 첨가함으로써 우라늄의 침출시간 단축 및 침출률을 향상시키는 장점이 있다.

[0028] 본 발명은 침출률을 높이기 위하여 산화환원전위를 높게 하고, 이에 따라 황산과 산화제의 사용량이 많은 단점을 개선하여, 황산철을 첨가함으로써 황산과 산화제의 사용량을 줄이면서, 높은 침출률을 가질 수 있는 효과가 있다.

**도면의 간단한 설명**

[0029] 도1은 본 발명에 따른 우라늄 침출방법을 도식화하여 나타낸 것이다.

도2는 실시예1 내지 4 및 비교예1 내지 2의 방법에 따라 침출반응을 하였을때 침출시간에 따른 우라늄 침출률을 나타낸 그래프이다.

**발명을 실시하기 위한 구체적인 내용**

[0030] 이하는 본 발명의 구체적인 설명을 위하여 일례를 들어 설명하는 바, 본 발명이 하기 실시예에 한정된 것은 아니다

[0031] 본 발명에서 사용한 우라늄을 포함한 흑색점판암은 금산의 옥천계 우라늄 광상 현장에서 2007, 2008년에 채취한 시추코아 시료 중 우라늄 및 바나듐 함량이 높은 부분을 선별하여 사용하였으며, 그 성분은 하기 표1과 같다.

[0032] -황산철 유무에 따른 침출물의 효과를 위한 비교-

[0033] [실시예1]

- [0034] 우라늄을 포함한 흑색점판암 500g을 분쇄하여 48메쉬가 되도록 준비하였다. 증류수 500g을 넣고 황산철( $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ ) 1.5g을 첨가하고, pH를 2.0로 조절하기 위해 황산을 첨가하여 혼합액A를 제조하였다. 상기 혼합액A에 우라늄을 포함한 흑색점판암을 500g을 투입하여 혼합액 B를 제조하고, 상기 혼합액B를 400rpm으로 교반하면서 4시간 동안 침출시켰다. 이때 침출을 수행하는 동안 반응온도는 30℃로 유지하고, 상기 혼합액B는 pH는 2.0, 산화환원전위가 450mV로 유지되도록 황산과 이산화망간을 첨가하였다. 총 침출반응은 4시간동안 수행하였으며, 30분마다 샘플을 채취하여 여과한 후 용액을 ICP/MS (Perkin Elmer, DRC-2)로 분석하여 우라늄 침출률을 얻었다, 상기 침출률을 개산하여 하기 도2에 나타내었다.
- [0035] [실시예2]
- [0036] 상기 실시예1과 동일하게 실시하되 황산철( $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ )을 0.5g을 투입한 것을 제외하고는 상기 실시예1과 동일하게 실시하였고, 총 침출반응은 4시간동안 수행하였으며, 30분마다 샘플을 채취하여 여과한 후 용액을 ICP/MS (Perkin Elmer, DRC-2)로 분석하여 우라늄 침출률을 얻었다, 상기 침출률을 개산하여 하기 도2에 나타내었다.
- [0037] [실시예3]
- [0038] 상기 실시예1과 동일하게 실시하되 황산철( $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ )을 1.0g을 투입한 것을 제외하고는 상기 실시예1과 동일하게 실시하였고, 총 침출반응은 4시간동안 수행하였으며, 30분마다 샘플을 채취하여 여과한 후 용액을 ICP/MS (Perkin Elmer, DRC-2)로 분석하여 우라늄 침출률을 얻었다, 상기 침출률을 개산하여 하기 도2에 나타내었다.
- [0039] [실시예4]
- [0040] 상기 실시예1과 동일하게 실시하되 황산철( $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ )을 2g을 투입한 것을 제외하고는 상기 실시예1과 동일하게 실시하였고, 총 침출반응은 4시간동안 수행하였으며, 30분마다 샘플을 채취하여 여과한 후 용액을 ICP/MS (Perkin Elmer, DRC-2)로 분석하여 우라늄 침출률을 얻었다, 상기 침출률을 개산하여 하기 도2에 나타내었다.
- [0041] [비교예1]
- [0042] 상기 실시예1과 동일하게 실시하되 황산철( $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ )을 투입하지 않은 것을 제외하고 상기 실시예1과 동일하게 실시하였고, 총 침출반응은 4시간동안 수행하였으며, 30분마다 샘플을 채취하여 여과한 후 용액을 ICP/MS (Perkin Elmer, DRC-2)로 분석하여 우라늄 침출률을 얻었다, 상기 침출률을 개산하여 하기 도2에 나타내었다.
- [0043] [비교예2]
- [0044] 상기 실시예1과 동일하게 실시하되 황산철( $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ )을 0.25g을 투입한 것을 제외하고는 상기 실시예1과 동일하게 실시하였고, 총 침출반응은 4시간동안 수행하였으며, 30분마다 샘플을 채취하여 여과한 후 용액을 ICP/MS (Perkin Elmer, DRC-2)로 분석하여 우라늄 침출률을 얻었다, 상기 침출률을 개산하여 하기 도2에 나타내었다.
- [0045] 도2는 실시예1 내지 4 및 비교예1 내지 2의 방법에 따라 침출반응을 하였을 때 침출시간에 따른 우라늄 침출률을 나타낸 그래프이다. 황산철을 첨가하지 않았을 경우에는 4시간의 침출에도 우라늄 침출률이 5% 정도이었으나, 황산철을 첨가함에 따라 침출률이 증가하였으며, 특히 황산철을 2.0g 첨가하였을 때 우라늄 침출률은 70%에 도달하였다. 이 결과에 의하면, 우라늄 침출에 사용된 우라늄 함유 흑색점판암 광석에는  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 로 환산하여 약 5.9%의 철분이 함유되어 있지만 수행된 침출조건에서 초기에 원활히 용해되지 않았거나 용해된 철 이온이 적절한 형태로 침출반응에 참여하지 못한 것이다.
- [0046] -황산철의 유무에 따라 산화환원전이를 유지하는데 소모되는 산화제와 황산의 양 비교-
- [0047] [비교예3]
- [0048] 우라늄을 포함한 흑색점판암 500g을 분쇄하여 48메쉬가 되도록 준비하였다. 증류수 500g을 넣고 황산철을 첨가하지 않고, pH를 2.0로 조절하기 위해 황산을 첨가하여 혼합액A를 제조하였다. 상기 혼합액A에 우라늄을 포함한 흑색점판암을 500g을 투입하여 혼합액 B를 제조하고, 상기 혼합액B를 400rpm으로 교반하면서 4시간 동안 침출시켰다. 이때 침출을 수행하는 동안 반응온도는 30℃로 유지하고, 상기 혼합액B는 pH는 2.0가 되고, 산화환원전위가 450mV로 유지되도록 황산과 이산화망간을 첨가하였다. 총 침출반응은 4시간동안 수행하였다. 4시

간동안 산화환원전위와 pH를 유지하기위해 사용한 이산화망간의 소모량은9.8kg/ton 이고, 첨가된 황산의 양은 36.8kg/ton이었다. 4시간동안의 침출률은 15%였다.

[0049] [비교예4]

상기 비교예3과 동일하게 실시하되, 산화환원전위가 500mV가 유지되도록 하는 것에 차이가 있으며, 나머지는 비교예3과 동일하게 실시하였다. 4시간동안 산화환원전위와 pH를 유지하기위해 사용한 이산화망간의 소모량은25.8kg/ton 이고, 첨가된 황산의 양은 62.6kg/ton이었다. 4시간동안의 침출률은 50%였다.

[0051] [비교예5]

상기 비교예3과 동일하게 실시하되, 산화환원전위가 550mV가 유지되도록 하는 것에 차이가 있으며, 나머지는 비교예3과 동일하게 실시하였다. 4시간동안 산화환원전위와 pH를 유지하기위해 사용한 이산화망간의 소모량은33.18kg/ton 이고, 첨가된 황산의 양은 73.7kg/ton이었다. 4시간동안의 침출률은 93%였다.

[0053] [실시예5]

우라늄을 포함한 흑색점판암 500g을 분쇄하여 48메쉬가 되도록 준비하였다. 증류수 500g을 넣고 황산철1.5g을 첨가하고, pH를 2.0로 조절하기 위해 황산을 첨가하여 혼합액A를 제조하였다. 상기 혼합액A에 우라늄을 포함한 흑색점판암을 500g을 투입하여 혼합액 B를 제조하고, 상기 혼합액B를 400rpm으로 교반하면서 4시간 동안 침출시켰다. 이때 침출을 수행하는 동안 반응온도는 30℃로 유지하고, 상기 혼합액B는 pH는 2.0이 되고, 산화환원전위가 450mV로 유지되도록 황산과 이산화망간을 첨가하였다. 총 침출반응은 4시간동안 수행하였다. 4시간동안 산화환원전위와 pH를 유지하기위해 사용한 이산화망간의 소모량은9.8kg/ton 이고, 첨가된 황산의 양은 36.8kg/ton이었다. 4시간동안의 침출률은 69.3%였다.

[0055] [실시예6]

상기 실시예5와 동일하게 실시하되, 산화환원전위가 500mV로 유지되도록 한 것에 차이가 있으며 나머지는 상기 실시예5와 동일하게 실시하였다. 4시간동안 산화환원전위와 pH를 유지하기 위해 사용한 이산화망간의 소모량은29.4kg/ton 이고, 첨가된 황산의 양은 77.34kg/ton이었다. 4시간동안의 침출률은 89.0%였다.

[0057] [실시예7]

상기 실시예5와 동일하게 실시하되, 산화환원전위가 550mV로 유지되도록 한 것에 차이가 있으며 나머지는 상기 실시예5와 동일하게 실시하였다. 4시간동안 산화환원전위와 pH를 유지하기 위해 사용한 이산화망간의 소모량은38.6kg/ton 이고, 첨가된 황산의 양은 92.02kg/ton이었다. 4시간동안의 침출률은 95.3%였다.

[0059] 상기 비교예3 내지 5와 실시예5 내지 7의 결과에 의해 다음을 알 수 있다.

[0060] 비교예5에서 볼수 있듯이 산화환원전위를 550mV로 하였을때 침출률을 높일 수 있으나, 이산화망간과 황산소모량이 급격히 늘어나는 단점이 있다. 그리고, 황산철을 첨가하였을때 황산철을 첨가하지 않았을 때에 비하여 같은 산화환원전위에서 침출률이 훨씬 높다는 것을 알 수 있다. 그리고 같은 비교적 낮은 산화환원전위 450mV에서도 황산철을 첨가하게 되면 첨가하지 않았을 때와 비교 하였을 때, 높은 침출률을 가지는 것을 알 수 있다. 따라서 황산철을 첨가하면 비교적 산화환원전위에서도 높은 침출률을 가질 수 있으며, 이산화망간과 황산의 소모량도 줄일 수 있는 장점이 있다.

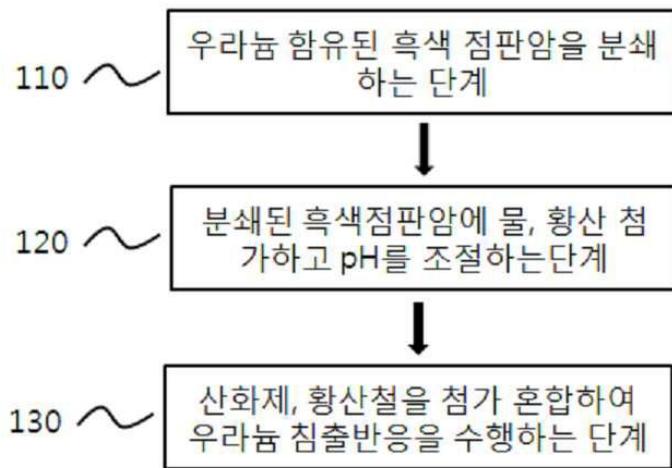
[0061] 표1 (단위 wt%)

구분	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	MgO	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	U (ppm)	V	Zn	Ni	S	F.C
흑색점판암	51.9	10.9	5.99	4.92	2.51	0.50	156.1	0.18	0.09	0.03	3.10	13.8

[0062]

도면

도면1



도면2

