

‘2001 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

연속 다단추출장치를 이용한 Zr-DEHPA에 의한 모의 방사성폐액에서의
Am과 희토류원소의 상호분리

Mutual separation of Am and rare earths from simulated nuclear
liquid waste solution by mixer-settler with Zr-DEHPA

양한범, 임재관, 김도양, 이일희, 유제형

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

방사성 폐액에 존재하는 악티늄족과 희토류원소의 대표원소로 Am과 Eu를 비롯한 주요 핵종 11 원소를 선정하여 만든 모의 방사성폐액으로부터 Zr-1M DEHPA (Zr=15g/L)로 16단 mixer-settler(cyrano type)를 사용하여 Am과 RE 상호분리 실험을 하였다. mixer-settler 운전결과, 추출(MX-1)은 약 200분이 경과하면 평형에 도달하였고, 이때 Am과 Eu는 99% 이상 공추출되었으며, 추출단수는 6단 정도면 가능한 것으로 판단된다. 그리고 Am의 선택적 역추출을 위한 제1 역추출(MX-2)은 pH 3.6인 0.05M DTPA/1M lactic acid의 혼합용액으로 역추출한 결과, 운전시간이 경과함에 따라 역추출되는 Am의 양은 증가하여 약 250분이 경과하면 평형에 도달하였고 이때 Am은 수용상으로 99.5% 역추출되었으며 Am에 대한 RE의 상호분리 계수가 100 이상 되었다.

Abstract

This study was carried out to confirm the optimum condition of mutual separation for Am and RE(rare earth elements) from the simulated radioactive waste solution with Zr-1M DEHPA (di-(2-ethylhexyl) phosphoric acid) using a mixer-settler (cyrano type, 16 stages) extractor. As results, more than 99.6% of Am and Eu were coextracted with Zr-1M DEHPA/dodecane(Zr = 15g/L) at 1M HNO₃ in the extraction step(MX-1). In the first stripping step for the selective separation of Am(MX-2), 99.5% of Am was stripped with the mixed solution of 0.05M DTPA and 1M lactic acid (pH=3.6). At that time, the separation factor of RE with respect to Am was over 100.

1. 서 론

장수명핵종을 함유하고 있는 방사성 폐기물을 유리고화 및 심지층 처분할 시 자연붕괴에 의한 방사성 독성지수가 안전한 수준까지 감소하기를 기다릴 경우 수십 만년간의 관리가 필요하다. 그러나 장수명핵종을 액금로, 전용 TRU 연소로, 또는 가속기/미임계로 복합시스템 등을 이용하여 단수명 핵종 또는 안정한 핵종으로 핵종변환시키는 소멸처리 기술을 활용할 경우 방사성폐기물의 관리기간을 획기적으로 감소시킬 수 있으므로 이에 대한 연구가 미국, 일본, 프랑스 등 원자력 선진국을 중심으로 진행되고 있다. 현재의 기술로는 장수명핵종을

함유하고 있는 사용후핵연료나 고준위 방사성액체폐기물(HLLW)을 직접 소멸처리가 불가능하므로 소멸처리에 앞서 반감기가 긴 장수명 핵종인 초 우라늄원소(TRU), ^{99}Tc 및 ^{129}I 군, 고방사선 및 고발열량의 ^{137}Cs , ^{90}Sr 군, 그리고 귀금속에 속하는 백금족 원소 등의 화학적 성질이 유사한 몇 개의 그룹으로 분리하는 군분리기술개발이 선행되어야 한다. 군분리기술은 습식법과 건식법으로 대별되며, 습식법은 이온교환법, 침전법, 용매추출법 등이 제시되고 있으며, 그 중에서도 용매추출법에 대한 연구가 많이 수행되고 있다. 본 연구팀 또한 유기인산 계열의 추출제인 DEHPA (di-(2-ethylhexyl) phosphoric acid), CMPO (octyl (phenyl)-N, N-diisobutylcarbamoylmethyl phosphine oxide) 및 DIDPA (di-iso decyl phosphoric acid)를 사용하여 군분리 연구를 수행한 바 있다[1~8]. DEHPA는 질산농도에 따른 추출성이 CMPO와는 서로 상반된 성질을 가진 산성 추출제로서 질산농도가 낮을수록 분배계수가 더 증가하는 특성을 나타낸다. 그러므로 DEHPA로 실제의 HLLW를 대상으로 Am과 RE(rare earth elements) 원소를 함께 추출하여 상호분리하기 위해서는 질산농도를 0.1M까지 탈질해야 하는 문제점이 있다. 이와같은 문제점을 개선할 수 있는 가능성을 가진 추출제로서 금속 이온이 함유된 유기인산 추출제가 최근에 주목받고 있다. Weaver[9]가 유기인산 추출제에다가 원소인 Zr, Hf이 존재할 때 알카리 토금속원소, 3가의 Am과 RE원소에 대한 분배계수가 증가하는 현상을 처음 발표 이래 최근에는 군분리의 용매추출 공정에 대한 적용 가능성에 대한 실험결과 Zr 염의 DEHPA(이하 Zr-DEHPA로 표기)가 대체 추출제로 사용 가능하다고 제시한 바 있다 [6, 10]. Zr-DEHPA으로 Am 및 RE를 추출할 경우 질산농도가 1M에서도 가능하다는 점이 밝혀졌으며, 이때 Am과 RE의 상호분리도 DEHPA와 비슷한 성질을 나타냈으며 질산, DTPA 등 사용시약에 대해서도 화학적 안전성이 큰 것으로 나타났다.

본 연구에서는 Zr-DEHPA를 사용하여 구한 Am과 RE의 회분식의 실험으로부터 상호분리를 위한 구한 최적조건으로 11 성분의 모의 방사성폐액을 대상으로 혼합정치조(mixer-settler)를 이용 연속 다단 향류(counter-current) 추출로 Am과 RE의 상호분리 실험결과를 확인하고 장수명핵종군 분리공정 개발에 활용하고자 한다.

2. 실험

2.1 시약

DEHPA, n-dodecane, NH_3 , HNO_3 는 Merck 시약, zirconium sulphate, di-ethylene triaminepentaaceticacid (DTPA)는 Aldrich 시약, lactic acid는 TEDIA 시약, H_2SO_4 , $(\text{CH}_2\text{OH})_2(\text{CHOH})_4$ 는 Showa 시약, 그리고 LSC용 cocktail 용매는 Packard사의 Ultima Gold를 사용하였다. ^{241}Am 은 미국의 IPL사에서 구입하여 사용하였다.

2.2 기기 및 분석

추출실험은 자체 제작한 16단의 mixer-settler를 사용하였으며, 용액의 pH 측정은 Orion model 940 pH 미터로 측정하였다. 그리고 방사성 동위원소 ^{241}Am 핵종은 액체섬광계수기(liquid scintillation analyzer; Packard model 2500TR/AB)와 다중과고 분석기(Oxford, MCA, Ge(Li) detector), Cs는 원자 흡광분석기(Varian model B470)로 분석하고 그밖의 금속원소의 농도는 유도쌍결합 플라즈마 분광기(Jobinyvon model JY 38 plus)로 분석하였다. 회전수는 Shimpo사의 digital tachometer(model: DT-205B)로 측정하였다.

2.3. Zr-DEHPA 제조 및 전처리

DEHPA와 회석제 dodecane으로 1M DEHPA/dodecane을 만들고 일정량의 $\text{Zr}(\text{SO}_4)_2$ 를 1M

H₂SO₄에 용해시켜 1M H₂SO₄의 Zr 용액을 만든다. 그리고 이들 두 용액을 1:1 부피비로 비이커에 취한 후 자석젓개로 30분간 Zr을 유기상으로 추출한 후 유기상만을 분리하여 1:1 부피비의 1M H₂SO₄ 용액으로 1회 세척하여 Zr-DEHPA를 만들었다. 그리고 Zr-DEHPA의 질산추출이 실험에 미치는 영향을 배제시키는 전처리과정으로 Zr-DEHPA 유기상을 1M HNO₃ 용액과 1:1의 부피비로 1회 세척한 후 유기상을 여과지(watman, IPS)로 여과하여 잔유 수분을 제거한 다음 사용하였다. 그리고 Zr-1M DEHPA의 Zr 함침농도는 1M H₂SO₄의 Zr 용액과 Zr을 1M DEHA로 추출한 수용액, 유기상을 세척한 1M H₂SO₄ 용액 및 유기상을 전처리한 1M HNO₃ 세척용액의 Zr 함량의 분석결과로부터 계산하였다.

2. 4. 0.05M DTPA/1M lactic acid (pH=3.6) 혼합용액

0.05M DTPA/1M lactic acid (pH=3.6)의 혼합용액의 제조는 일정량의 DTPA를 평칭하여 비이커에 취한 후 증류수를 가하고 진한 암모니아수를 서서히 적가하면서 교반시켜 완전히 용해시킨다. 용해된 0.05M DTPA 용액에 1M lactic acid를 가하여 균일하게 혼합시킨 다음 증류수를 가하여 1L 부피플라스크를 사용하여 용액의 부피를 최대한 1L에 가깝게 조정 후 암모니아수로 pH가 3.6이 되도록 조절하면서 최종부피가 1L가 되도록 증류수를 가하여 만든다.

2. 5. 모의 방사성 폐액 제조

모의 방사성 폐액은 실제의 HLLW [5]에 존재하는 주요 금속원소의 대표원소를 선정하여 제조하였다. 본 연구의 관심 대상 핵종인 Am에 RE의 대표원소로 Nd, Eu, Ce, Y 그리고 Am과 RE 분리공정에서 문제 원소로 알려진 Zr, Fe, Mo, 핵분열생성 원소인 Sr, Cs의 11성분을 선정하여 1M 질산용액에 용해시켜 제조하였다. 그리고 용액 제조에 사용된 모든 시약은 특급시약을 그대로 사용하였으며, 모의 방사성폐액의 화학조성은 Table 1과 같다.

Table 1. Chemical compositions of the simulated HLLW solution

	Element	Estimated HLLW, (mol/L)	Simulated HLLW, (mol/L)	Reagent
TRU	²⁴¹ Am	1.20×10^{-4} M	trace amount	RI
RE	Nd	4.34×10^{-2} M	5.07×10^{-2} M	Nd(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O
	Ce	3.30×10^{-2} M	3.47×10^{-2} M	Ce(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O
	Y	8.40×10^{-3} M	7.90×10^{-3} M	Y(NO ₃) ₃ · 4H ₂ O
	Dy	1.11×10^{-3} M	1.11×10^{-3} M	Dy(NO ₃) ₃ · 5H ₂ O
	Eu	1.90×10^{-3} M	1.05×10^{-3} M	Eu(NO ₃) ₃ · 5H ₂ O
FP	Zr	6.90×10^{-2} M	4.82×10^{-3} M	ZrO(NO ₃) ₂ · xH ₂ O
	Fe	3.80×10^{-2} M	2.02×10^{-2} M	Fe(NO ₃) ₃ · 9H ₂ O
	Mo	6.90×10^{-2} M	6.90×10^{-5} M	(NH ₄) ₆ Mo ₇ O ₂₄ · 4H ₂ O
	Sr	1.65×10^{-2} M	2.08×10^{-2} M	Sr(NO ₃) ₂
	Cs	3.71×10^{-2} M	3.48×10^{-2} M	CsNO ₃
Medium	HNO ₃	2~3M	1M	HNO ₃

2.6. 추출장치 및 펌프

본 실험에 사용한 cyrano type의 혼합정치조(16단)는 소형의 compact type (390mm(L) x 90 mm(W) x 90 mm(H))으로서 혼합조는 기계적 혼합으로 두 상을 잘 혼합하여 물질전달이 쉽게 일어나도록 하였으며, 혼합된 두 상을 일정유량을 유지하면서 정치조로 보낼 수 있도록 설계하여 만들었다. 몸체 재질은 Altuglass로, impeller와 level controller는 Stainless steel 304L로 제작하였으며, 각 혼합정치조의 혼합조(mixer)와 정치조(settler)의 부피는 각각 6ml와 17ml로 만들었다. 그리고 혼합정치조의 수용상과 유기상은 서로 향류로 흐르게 하였으며, 정치조는 연속상에 분산된 유기상 입자들을 정치시켜 밀도차에 의하여 유기상과 수용액상의 분리가 일어나게 하였다. 각 정치조에는 screw type의 계면조절장치가 있어서 각 단에서 계면조절이 가능하게 제작하였다. 혼합조에서 수용상과 유기상의 혼합을 효과적으로 하기 위해서 perforated single paddle 형태의 impeller를 사용하였다. Impeller는 모터(50V DC, 1/16 HP) 하나로 그 회전속도를 조절할 수 있도록 하나의 gear box에 연결되어 모터의 회전속도를 조절할 수 있도록 하였다. 그리고 용액공급 펌프는 유기용매는 Young-lin Model: M930 (solvent delivery pump)를 사용하였으며, 용액은 Pharmacia Biotec. Peristaltic pump (Model: P-1, 용량: 0.6~500 ml/hr)를 사용하였다.

2.7. 연속식 다단 용매추출 및 역추출 실험

연속식으로 공추출과 선택적 역추출을 하기 위하여 혼합정치조 2조(set)를 사용하였다. impeller의 회전속도는 digital tachometer로 측정하여 1800 rpm이 되도록 DC voltage regulator(1~3600 rpm, 조정가능)를 사용하여 조정하였다. 정치조에서 수용액상과 유기상의 계면은 screw type의 계면조절장치를 이용하여 각 단에서의 계면을 조절하였다.

실험은 우선 혼합정치조에 Zr-1M DEHPA와 1M 질산용액을 1:1의 부피비로 채운 다음 모의폐액을 공급하기전에 Zr-1M DEHPA와 1M 질산용액을 공급하면서 최적의 수력학적 운전조건을 맞추기 위하여 약 4시간 동안 공운전 (blank test) 하여 정치조내의 계면조절, 유량 및 impeller 회전수등 모든 실험조건을 조정한 다음 모의폐액을 공급하여 실험하였다. 혼합정치조를 이용한 연속 다단 향류용매추출의 조업조건은 Table 2 및 Fig. 1과 같다.

Table 2. Operation conditions of the banks

Bank No.	Feed	Feeding stage	Flow rate(ml/hr)
MX-1	① Simulated feed solution	9	60
	② Zr-1M DEHPA/dodecane	16	60
	③ 1M HNO ₃ (Scrub solution)	1	12
MX-2	④ Loaded Zr-DEHPA	8	60
	② 1M Zr-DEHPA/dodecane (Scrub solvent)	1	12
	⑤ 0.05M DTPA in 1M Lactic acid (pH=3.6)	16	72
MX-3	⑥ Loaded Zr-DEHPA	1	72
	⑦ 6M HNO ₃	8	30

3. 결과 및 고찰

3.1. 향류 다단 용매추출의 평형에 관한 이론적 계산

Mixer-settler에서 향류 다단 혼합정기조의 용매추출에서 분배계수 (D), 상비 (O/A) 및 추출단수를 입력하면 추출율과 역추출율을 계산할 수 있는 컴퓨터 프로그램을 사용하여 이론적 추출단수와 혼합정기조의 추출실험 결과를 검증하는데 활용하였다. Benedict [12]에 기술한 바와같은 물질수지식을 이용하여 프로그램을 구성하였다.

분배계수, D를 식(1)과 같이 정의하면,

$$D = \frac{y}{x} \quad (1)$$

임의의 단 n까지의 물질수지는

$$y_{n-1} - y_0 = \frac{F}{E} (x_n - x_1) \quad (2)$$

식 (2)에 (1)식의 분배계수 값을 이용해 정리하면,

$$y_n = \beta (y_{n-1} - y_0) + Dx_1 \quad (3)$$

(여기서, $\beta \equiv DE/F$)

각 단에 걸쳐 D 값이 일정하다고 가정하면, $y_1 \sim y_n$ 을 구해서 이를 N 단에 적용하여 정리하면,

$$y_N = \frac{\beta^N - 1}{\beta - 1} (Dx_1 - y_0) + y_0 \quad (4)$$

Raffinate(x_1)을 총괄 물질수지식을 이용해 소거하고, 추출율과 역추출율은 다음과 같다.

$$F(x^F - x_1) = E(y_N - y_0) \quad (5)$$

$$\frac{y_N - y_0}{Dx^F - y_0} = \frac{\beta^N - 1}{\beta^{N+1} - 1}$$

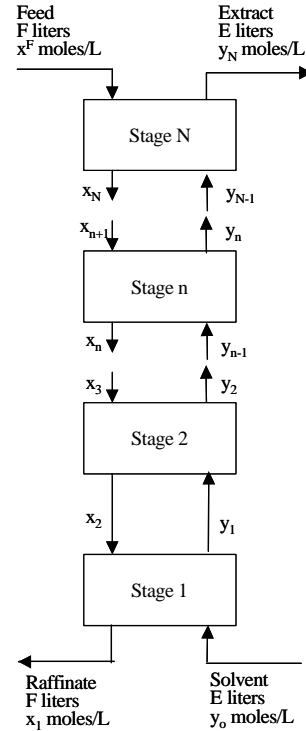
$$\text{추출율} = \frac{E}{F} \frac{y_N}{x^F}, \quad \text{역추출율} = \frac{x_1}{x^F}$$

(1) Am 및 RE 공추출

Zr-DEHPA 추출제의 Zr 함침농도는 15g/L를 선정하여 사용하였으며 [Fig. 2], O/A=1/1 이고, 1M HNO₃, 25°C, 회분식 실험에서 Am의 1회 추출율이 80.0%이고 이때 분배계수(D) 값이 4.0이었다 [Fig. 3] [8]. 회분식 실험결과를 가지고 향류 다단 용매추출의 평형에 관한 이론적계산으로 구한 추출단수에 대한 추출율은 Table 3과 같다. 추출단수가 3단이면 98.8% 이상 Am이 추출되었으며, 추출단수가 6단일 경우에는 99.98%가 추출되는 것을 알 수 있다.

Table 3. Calculated extraction yields of Am with stage number of mixer-settler

단수	1	2	3	4	5	6
추출율, %	80.00	95.24	98.82	99.71	99.93	99.98



Nomenclature for cascade of solvent extraction stage

(2) RE 역추출

Eu의 경우 O/A=1/1 이고, 1M HNO₃, 25℃에서 회분식 실험에서 1회 역추출율이 89.9% 이고 이때 분배계수(D) 값이 8.9이었다 [Fig. 4], [8]. 추출단수와 역추출율을 계산하면 역추출 단수가 2단이면 98.88%, 3단인 경우에는 99.87%의 Eu가 역추출되었다. 그리고 99% 이상 역추출하는데 요구되는 단수를 계산한 결과 Nd는 4단, Ce는 5단 Y는 7단 이상 필요하였다.

3.2. Am 및 RE 공추출

제 1 MX : 제 1 MX는 Am/RE 등의 금속원소를 공추출하는 공정으로 Fig. 1과 같이 16단의 혼합정치조(MX-1)을 사용하였으며, 모의 방사성폐액은 9단, 세정용액은 3단, 추출제 Zr-1M DEHPA는 1단에 주입하여 추출은 9단, 세정은 (scrubbing)은 7단, 유속비(O/A 비)는 1:1.2, 그리고 25℃에서 실험한 결과 운전시간에 따른 유기상의 Am과 Eu의 농도구배는 Fig. 5와 같다. 운전시간이 경과함에 따라 Am 및 Eu, Nd, Ce, Dy, Y 등의 추출량은 급격히 증가하여 약 200분이 경과하면 평형에 도달하였음을 알 수 있었다. 7시간 운전한 후 각 단의 수용상 내 Am과 Eu의 농도를 분석한 결과 Fig. 6과 같다. 그리고 추출단수는 9단 이면 Am과 Eu의 정량적 추출이 가능 할 것으로 판단되었으며, 본 실험결과는 이론적으로 계산한 추출단수 및 추출율과 유사한 결과를 얻었다.

각 원소의 추출율은 다음식 (1)의 정의에 의해 정상상태(steady-state)에서의 금액을 기준으로 상대 농도비(relative concentration ratio)로서 Zr-DEHPA의 유기상에 추출되는 각 원소의 추출율, 역추출율 및 분리계수(separatio factor : SF)는 다음과 같이 계산하였다.

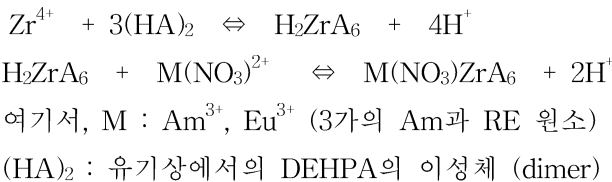
$$E (\%) = [Ci \times F]_{F(Org)} / [Ci \times F]_{F(Aq)} \times 100 \quad (6)$$

$$S (\%) = [Ci \times F]_{F(Aq)} / [Ci \times F]_{F(Org)} \times 100 \quad (7)$$

$$SF = [C_{FP,i} / C_j]_F / [C_{FP,i} / C_j]_P \quad (8)$$

여기서, F는 유량(mL/hr), Ci는 각 원소의 농도(Bq/L 또는 mole),
C_{FP,i} : 각 FP 원소의 농도 (mole), C_j : Am의 농도

그리고 아래첨자 F와 P는 각각 MX-1에 공급용액(feed)과 유기상 생성물(product)에서의 흐름을 나타낸다. Am과 Eu의 추출율은 각각 99.8%와 99.6%로서 혼합정치조 MX-1에서의 모든 Am과 Eu가 유기상으로 추출되었음을 알 수 있다. 또한 나머지 RE들도 Nd는 94.4%, Ce는 90.6%, Y는 99.9% 추출되었다. 그리고 DEHPA에 의한 Am과 RE의 추출은 다음과 같은 반응식으로 표현할 수 있다. [10, 11]



그리고 Fig. 8은 정상상태에서 MX-1에 주입되는 유기상에 추출된 원소농도를 기준으로 하여 Zr-DEHPA의 유기상으로 추출된 각 원소의 추출율을 나타내었다. Zr-DEHPA에 의한 Zr, Mo, Fe이 98% 이상 추출되어 Am 및 Eu와 같이 유기상으로 공추출 되고 있음을 알 수 있다. 그밖의 Sr, Cs, 등의 원소는 약 1~2% 범위에서 공추출되었으나 이는 용매추출공정에 미치는 영향은 미미한 수준이었다.

3. 3. Am 선택적 역추출 (1 단계 역추출)

제 2 MX : 제 2 MX는 혼합정치조 1 MX에서 Am, RE를 공추출하여 넘어온 유기상으로부터 Am 만을 선택적으로 역추출하기 위하여 Fig. 1과 같이 16단의 혼합정치조(MX-2)를 사용하였으며, MX-1에서 넘어온 유기상은 8단, 역추출용액인 pH가 3.6인 0.05M DTPA/1M 젖산의 혼합용액은 16단, 그리고 세정액은 1단에 주입하여 역추출은 8단, 세정(scrubbing) 8단, 유속비는 1:1, 그리고 25°C의 조건에서 실험한 결과, 운전시간에 따른 수용상의 Am과 Eu의 농도구배는 Fig. 7과 같았다. 운전시간이 경과함에 따라 역추출되는 Am의 양은 증가하여 약 250분이 경과하면 평형에 도달하였음을 알 수 있었으며 이때 Am은 수용상으로 99.5% 역추출되었다. Eu의 경우 Am과는 다른 양상을 보이고 있으나, 그 농도는 모두 10ppm 이하로서 분석 오차에 기인하는 것 같다.

Fig. 9는 정상상태에서 MX-2에 주입되는 유기상에 추출된 원소농도를 기준으로 하여 DTPA 역추출 수용상으로 역추출된 각 원소의 역추출율을 나타내었다. Am 만을 선택적으로 역추출하기 위한 MX-2에서는 99% 이상의 Am이 역추출되었으며, Eu는 약 5% Am과 동반 역추출되었다. 그 밖의 RE는 약 1~2%, Fe는 7.6%, Mo는 82%가 Am과 동반 역추출 되었다. 이 중에서 문제되는 원소는 Mo로서 Am 추출 및 역추출에 탈질공정과 같은 선행 단계에서 반드시 제거시켜야 된다고 판단되었다.

3. 4. RE 역추출 (2 단계 역추출)

제 3 MX : 제 3 MX는 제 2 MX에서 넘어온 유기상을 6M HNO₃으로 RE 만을 선택적으로 역추출하는 공정(역추출: 8단)이다. 전 연구[8] 결과에서, RE 원소의 역추출거동을 보면 높은 질산용액에서 Zr-DEHPA에 대한 RE 원소의 추출율은 매우 낮으므로 추출과는 반대로 유기상에 추출된 RE 원소는 6M의 질산용액으로 쉽게 역추출될 수 있음을 알 수 있었다. 따라서 본 실험에서는 방사성폐기물의 발생량을 줄이기 위하여 제 3 MX는 조업하지 않고 제 2 MX에서 배출된 유기상을 받아 6M HNO₃으로 5회 연속 접촉 역추출한 결과 Eu는 99% 이상이 역추출되었다. 이러한 실험결과는 앞에서 Eu에 대한 이론적 계산으로 구한 역추출단수 및 역추출율과 유사한 결과를 얻었다.

3. 5. Am/RE 분리계수 및 문제점

항류 다단 용매추출의 혼합정치조에서 구한 실험결과로부터 Am/RE 분리계수를 계산하면 Table 4와 같다.

Table 4. Separation factors of each element with respect to Am

Elements	Am	Eu	Nd	Ce	Y
Separation Factors(Am/RE)	1	167	807	377	10750

대부분의 RE들이 Am과 같이 공추출되었으며(제1 MX)(Fig. 8), Am의 선택적 역추출 시(제 2 MX)는 일부의 RE들이 Am과 같이 역추출되었으나(Fig. 9), Am 기준 RE에 대한 상호분리 계수가 모두 100 이상 얻어 상당히 만족할 만한 결과를 얻었다. 그리고 연속 조업시 상분리는 비교적 잘되었으나 운전시간(6시간 이상)이 경과함에 따라 제 3상이 생성되어, 이를 극복하기 위한 방안으로 유기상과 수용상의 비를 조절하든지 공급액의 금속농도를 낮춰

야 할 것으로 판단된다. 이외에도 Zr-DEHPA를 실제 방사성폐액의 균분리 공정에서 Am/RE 상호분리에 적용하기 위해서는 Zr-DEHPA에 대한 방사성 시험 평가를 통하여 DEHPA에 함침된 Zr이 방사선에 의한 분해 여부 및 방사선에 의한 분해생성물이 미치는 제반 영향에 대한 조사가 요구된다.

4. 결론

방사성 폐액에 존재하는 Am과 Eu을 비롯한 주요 핵종 11 원소를 선정하여 만든 모의폐액을 대상으로 Zr-DEHPA를 사용하여 16단의 혼합정치조를 사용하여 실험한 결과 대부분의 Am과 RE가 공추출되었으며, Am의 선택적 역추출시 일부의 RE들이 Am과 같이 공역추출되었으나, Am 기준 RE에 대한 상호분리 계수가 모두 100 이상 얻어 상당히 만족할 만한 결과를 얻었으나, 제 3상이 생성방지를 위한 혼합정치조의 조업조건에 대한 검토가 요구되었다. 그리고 이상의 실험결과 Zr-DEHPA에 의한 Am과 RE의 상호분리가 가능함을 알수 있었다.

감사

본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행되었으며 지원에 감사를 드립니다.

참고문헌

1. E. H. Lee, H. B. Yang, J. K. Lim, Y. J. Shin and J. H. Yoo, J of Korean Ind & Eng. Chem., 6(4), 529 (1995).
2. H. B. Yang, E. H. Lee, J. K. Lim, J. H. Yoo and H. S. Park, J of Korean Ind & Eng. Chem., 7(1), 153 (1996).
3. J. H. Yoo, et al, KAERI/RR-1632/95 (1996).
4. H. B. Yang, J. K. Lim and J. H. Yoo, "Partitioning of minor actinides from rare earths by solvent extraction with di-(2-ethyl hexyl) phosphoric acid", 4th OECD/NEA international exchange meeting on partitioning and transmutation technology, Sep. 11 - 14, Mito, Japan, (1996).
5. J. H. Yoo, et al, KAERI/RR-1717/96 (1997).
6. H. B. Yang, E. H. Lee, J. K. Lim, Jong-Gu Kim, Jung-suk Kim and J. H. Yoo, J of Korean Ind & Eng. Chem., 8(6), 1006 (1997).
7. E. H. Lee, et al, KAERI/TR-960/98 (1998).
8. H. B. Yang, E. H. Lee, G. C. Song, D. Y. Kim and J. H. Yoo, "Di-(2-ethyl hexyl) phosphoric acid의 Zr 염 추출제에 의한 모의 방사성폐액에서의 Am과 란타넘족원소의 상호분리" 2000 원자력학회 춘계학술발표회 논문집 (2000).
9. B. Weaver, J. Inorg. Nucl. Chem., 30, 2233 (1968)
10. O. A. Sinogribova, G. A. Yagodin, N. S. Kotsar, G. I. Semenov and L. I. Pukhonto, russian J. of Inorg. Chem., 20(1), 102 (1975)
11. E. S. Stoyanov, V. A. Mikhailov, O. M. Petrukhin, E. V. Shipulo and Yagodin, Solvent Extr. Ion Exch., 9, 787 (1991).
12. M. Benedict, T. H. Pigford and H. W. Levi, (2nd Ed), "Nuclear chemical engineering", McGraw-Hill Book Co., p. 173-178 (1981)

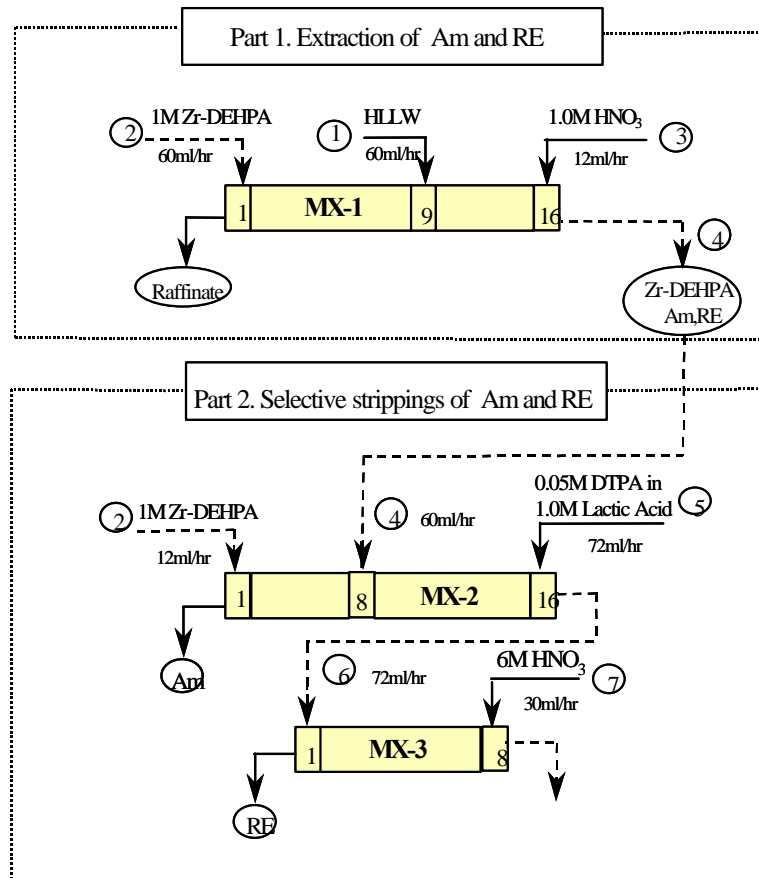


Fig. 1 Flowsheet for partitioning of Am and RE with Zr-DEHPA

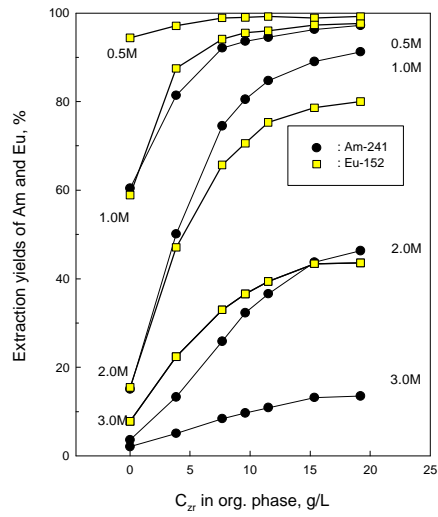


Fig. 2 Effect of Zr concentration in Zr-1M DEHPA on the extraction yields of Am and Eu

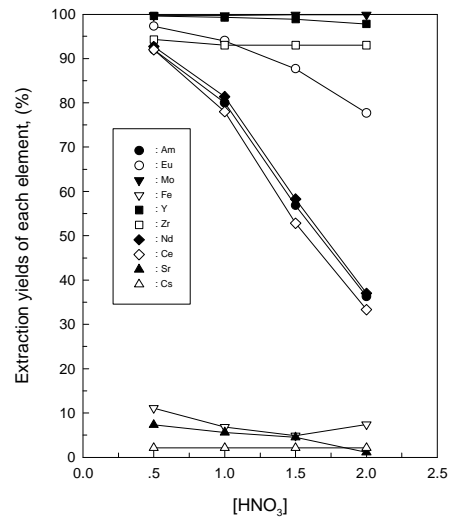


Fig. 3 Effect of HNO_3 concentration on extraction yields of each element at Zr-1M DEHPA ($Zr=15g/L$)

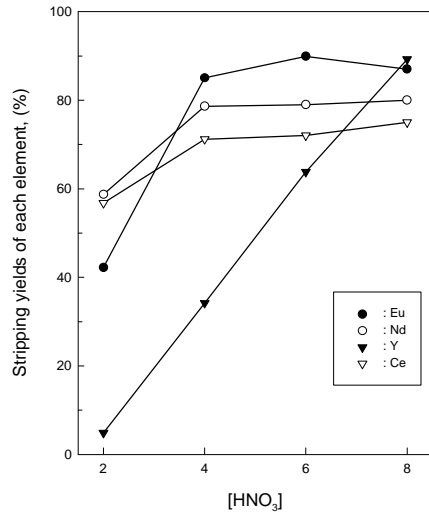


Fig. 4 Effect of HNO₃ concentration on the stripping yields of each element

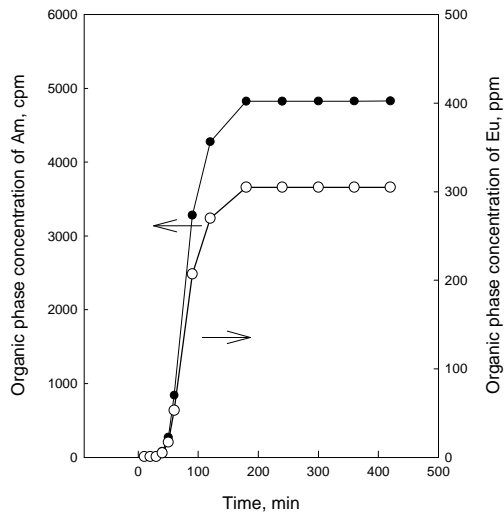


Fig. 5 Concentration profiles of Am and Eu in the organic phase with operation time of the first mixer-settler

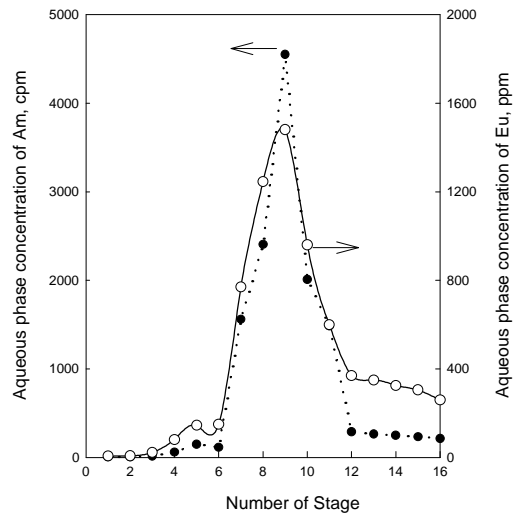


Fig. 6 Aqueous phase concentration profile of Am and Eu on the number of stage in the first mixer-settler

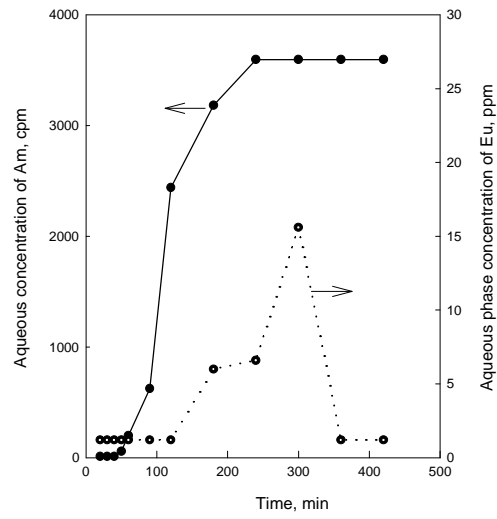


Fig. 7 Concentration profiles of Am and Eu in the aqueous phase with operation time of the second mixer-settler

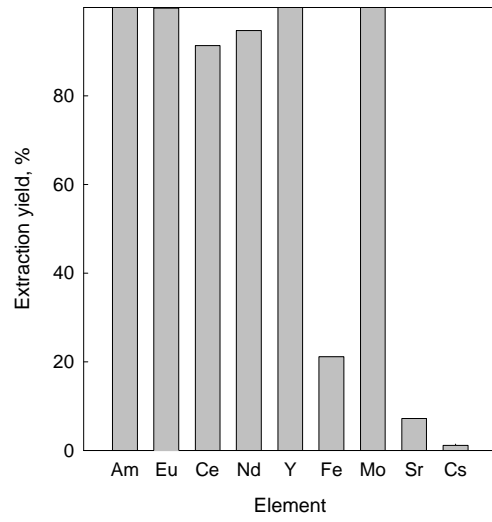


Fig. 8. Extraction yields of each element in the MX-1 at steady state

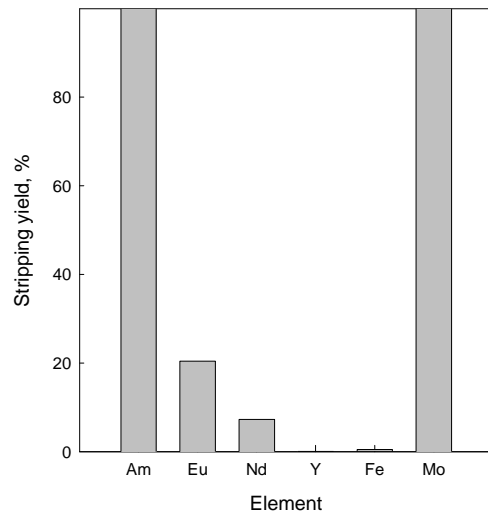


Fig. 9 Stripping yields of each element in the MX-2 at steady state