

## 다성분계 모의폐액에서 DMBTDMA에 의한 $\text{Ans}^{(+3)}/\text{Lns}^{(+3)}$ 의 공추출 및 역추출 거동

양한범, 임재관, 문제권, 이일희

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

방사성폐기물에 존재하는 악티나이드(minor actinide)와 희토류(rare earth) 원소들은 독성을 가지고 있을 뿐만 아니라 대부분 반감기가 긴 핵종들로서 장기간 방사선을 방출하여 사람이 살아가는데 막대한 영향을 미치므로 안전한 처분 EH는 장수명 핵종을 단수명 핵종 또는 안정핵종으로 바꾸어 주는 핵종변환과 같은 방법을 사용하여 인간 생활환경에 격리시킬 필요가 있다. 이와 같은 과정에서 사용되는 처리기술로서 핵종의 독성 또는 화학적 성질이 유사한 핵종끼리 군(group)으로 분리하여 처리하는 기술이 사용된다. 일반적으로 MA(minor actinide) 원소군, Cs/Sr 원소군, 백금족 원소군, 기타 원소 군으로 나누어 분리하는 것이다. 분리방법으로 여러가지 기술이 사용되고 있는데 이온교환수지를 이용하여 분리하는 방법, 침전분리법, 용매추출법, 전해정제법, 용융염 침출법과 같은 분리방법이 연구되어 왔다. 이들 분리 방법중에서 가장 대표적인 방법으로 용매추출법이라 할 수 있는데, TRUEX, TALSPEAK, Reverse-TALSPEAK, CTH, 그리고 JAERI 공정이 연구개발 되고 있으며 최근에 연구되고 있는 방법으로는 악티늄 및 란타늄 금속의 공추출제로 아미드 화합물을 사용하는 DIAMEX 공정이 개발되고 현재도 계속 연구중에 있으나 기존의 연구개발된 공정보다 뛰어난 연구결과는 발표되어 있지 않은 상태이다. 현재까지 발표된 자료에 의하면 Diamide 추출제는 악티늄과 란타늄 원소를 공추출한 후 picolinamide 계열의 화합물을 사용하여 악티늄 원소만을 쉽게 분리할 수 있다고 알려져 있는데 이러한 연구들은 프랑스를 비롯한 외국에서 연구된 결과들이며, 국내에서는 고준위 방사성폐기물의 처리기술에서 악티늄과 란타늄 원소를 선택적으로 공추출 할 수 있는 추출제의 합성 및 연구가 원자력연구소에서 일부 시도되고 있는 실정이다. 그리고 추출제 diamide 화합물의 구조적인 특이성은 아미드기의 질소에 서로 다른 알킬사슬이 치환되어 있다는 점이다. 이러한 비대칭적인 N-Alkyl 아미드는 일반적인 축합반응을 통해서 쉽게 합성되지 않기 때문에 외국에서도 실험실규모로 합성하여 사용하고 있으며 아직 상용화되지 못하고 있는 상황이다. 본 연구에서는 이러한 비대칭 Diamide 계열의 화합물중의 하나인 N,N'-dimethyl-N,N'-dibutyl(tetradecyl) malondiamide(DMBTDMA)을 합성하여 3가의 악티늄( $\text{Ans}^{(3+)}$ )과 란타늄( $\text{Lns}^{(3+)}$ ) 원소에 대한 공추출 거동에 대한 연구를 수행하였다. 3가의 악티늄( $\text{Ans}^{(3+)}$ )과 란타늄( $\text{Lns}^{(3+)}$ ) 원소를 공추출할 수 있는 DMBTDMA를 합성하였으며 합성경로는 Fig. 1과 같다. 합성물의 수득율은 65%이고 DMBTDMA 최종 생성물에 대한  $^1\text{H-NMR}$ ,  $^{13}\text{C-NMR}$ , IR의 분석결과로부터 구조분석 및 합성물에 대해 확인하였으며, 열적안정성 시험은 DMBTDMA를 25-100°C에서 60분간 열처리 한 후 GC-MS로 분석한 결과 25 - 80°C 영역에서는 안정하였으나 80°C부터 열분해하기 시작하여 100°C에서 7.5%가 열분해 되었다. 그리고 25-100°C에서 열분해된 DMBTDMA 각각을 회색계 n-dodecane(NDD)를 사용하여 0.5M로 만들어 3.5M  $\text{HNO}_3$ 에서  $^{241}\text{Am}$ 과  $^{152}\text{Eu}$  추출한 결과 추출율이 6%까지 감소하였다. DMBTDMA의 GC-MS로 분석한 열분해 결과와  $^{241}\text{Am}$ 과  $^{152}\text{Eu}$  추출결과를 비교해 보면 Fig. 2와 같이 두 결과의 경향이 일치하고 있음을 알 수 있다. 다성분계 모의폐액에서 추출제로 0.5M DMBTDMA /NDD, 방사성 동위원소  $^{241}\text{Am}$ 과  $^{152}\text{Eu}$ 과 비방사성원소인 Eu, Nd, Ce, Y, Cs, Sr

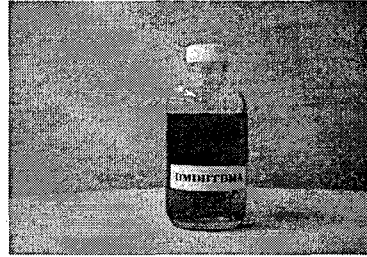
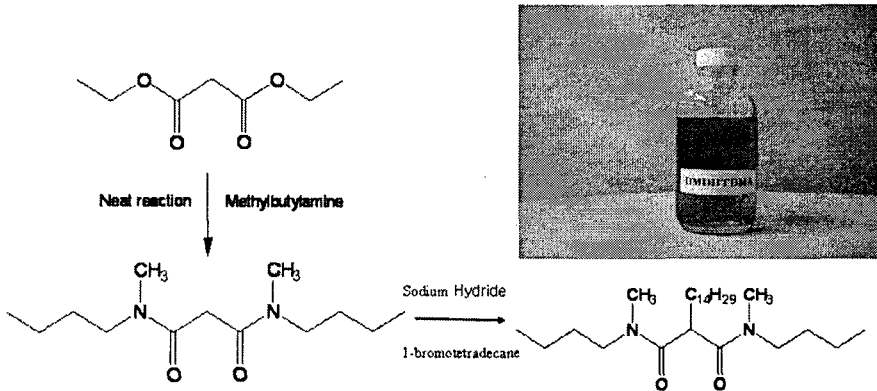


Fig. 1 Synthesis scheme of DMBTDMA and product compound

모의용액을 사용하여 질산매질에서 회분식 추출실험 결과는 Fig. 3과 같으며 질산농도가 증가할수록  $^{241}\text{Am} > \text{Ce} > \text{Nd} > ^{152}\text{Eu} > \text{Y} > \text{Cs}, \text{Sr}$ 의 순서로 추출율이 증가하였다. DMBTDMA에 대한 악틴족(III)과 란탄족(III) 원소의 친화도는 비슷한 경향을 나타내었으며 란탄족(III) 계열 원소간에는 원자번호가 증가할수록 DMBTDMA에 대한 친화도가 감소하는 경향을 나타내었다. 추출계의 온도를 25, 30, 35, 40°C로 변화시켜 실험한 결과 추출온도가 증가할수록 추출율이 감소하였다.  $^{241}\text{Am}$ 과  $^{152}\text{Eu}$  경우 40°C에서 추출율이 25°C에서의 추출율보다 각각 18%씩 감소하였다. ( $^{241}\text{Am}, ^{152}\text{Eu} - \text{Metal}$ ) - 3.5M  $\text{HNO}_3$  - 0.5M DMBTDMA/NDD 추출계에서 추출시간이 추출에 미치는 영향을 시험하였다. 추출시간 변화는 1분-15분으로 하였으며 추출시간이 10분 이상 영역에서  $^{241}\text{Am}$ 과  $^{152}\text{Eu}$ 의 추출율이 일정한 상태에 도달하였으며, 이 결과를 근거로 하여 회분식 실험에서 추출시간은 30분으로 결정하였으며, 향후 연속식공정에서 체류시간 결정도 활용 가능하다고 생각된다. ( $^{241}\text{Am}, ^{152}\text{Eu} - \text{Metal}$ ) - 3.5M  $\text{HNO}_3$  - 0.5M DMBTDMA/NDD 추출계에서 추출한 유기상을 사용하여 역추출 실험하였다. 역추출제로는  $\text{H}_2\text{O}$ 와 0.05M, 0.1M, 0.3M, 0.5M  $\text{HNO}_3$  용액을 사용하였으며, 악틴족 원소인  $^{241}\text{Am}$ 과 란탄족원소인  $^{152}\text{Eu}, \text{Ce}, \text{Nd}$ 등은 1회에 90%이상 역추출되었으며 Y도 악틴족, 란탄족원소의 역추출을 보다는 약간 작지만 0.05M-0.5M  $\text{HNO}_3$  용액에서 88% 이상 역추출되었다.

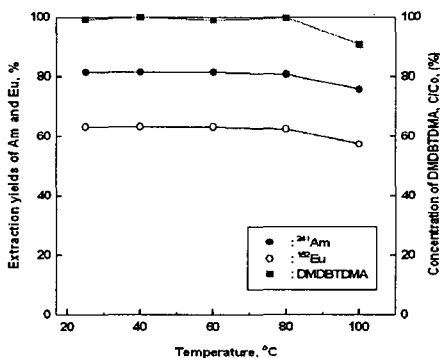


Fig. 2. Thermal Stability of DMBTDMA Ce, and extraction yields of Am, Eu DMBTDMA /NDD

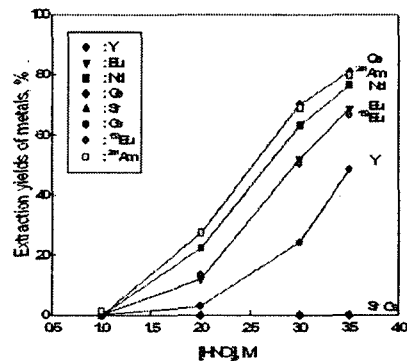


Fig. 3. Extraction yields of Am, Eu, Nd, Y, Cs and Sr with 0.5M