

TBP에 의한 Re 추출 특성과 AHA의 영향

정동용, 이일희, 김광욱

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동 150-1)

ndvchung@kaeri.re.kr

미국, 프랑스, 일본 등 원자력 선진국에서는 고속로 또는 ABR(Advanced Burner Reactor) 등을 이용하여 SF를 재순환시키기 위해 핵확산 저항성을 유지하며 U 고순도 분리 및 TRU를 공분리하는 기술과 이 과정에서 발생하는 고준위폐기물내 함유된 U과 고방사성 독성의 TRU, Cs, Sr과 같은 고방열성 핵종 및 Tc등의 처분 환경 저해 핵종 등을 고효율/고순도로 제거하여 방사성 위해도의 극저감화 및 고준위폐기물의 저준위화를 목표하는 사용후핵연료 관리를 위한 다양한 습식분리 고도화 공정(AAP:Advanced Aqueous Process)을 개발하고 있으며, 궁극적으로는 고준위폐기물의 발생량 감소로 고준위폐기물의 처분 부지 이용을 극대화 및 이로 인한 처분 비용의 저감화를 통한 원자력 에너지의 안정적 공급 시스템 구축을 목적으로 하고 있다. 이들 원자력 선진국들에서는 각국의 원자력 환경에 맞게 다양한 습식 분리 공정이 개발되고 있으며 기본적으로 여러 형태의 유기 추출제를 사용하는 용매추출 기술을 기반으로 하고 있다.

미국은 2003년 이전까지는 사용후핵연료 처분만을 고려하였지만, 지구 환경 및 에너지의 수급 환경의 변화에 따라 2003년 DOE에 의한 AFCI(Advanced Fuel Cycle Initiative)과 2006년 GNEP(Global Nuclear Energy Partnership) 개념을 통한 차세대 핵연료 주기 개념이 도입되고 있다. 여기서는 HLW의 방사성 독성 제거 및 자연 환경/인간 생태계 누출에 방사능 제거 등을 통한 고준위폐기물의 부피 감용으로 처분 비용의 감소와 SF에 들어있는 에너지 자원의 회수/활용 및 자연 친화적 핵비확산성 공정 개발(TRU 공분리) 등을 목적으로 AFCI Phase 0 ~ 4의 계획을 발표하였다. 공정은 당초 SF로부터 U, Tc만을 분리하는 UREX에서 UREX+(Uranium Extraction plus) series로 발전하여 UREX+1a에서 UREX+4 까지 확대되고 있는 데 이러한 UREX 공정은 기본적으로 용매추출을 근간으로 하고 있다.

질산 매질의 고준위폐기물에서 Tc은 TcO_4^- 즉, Tc(VII)로 존재하고 있다. Tc의 분리법으로는 용매 추출법, 침전법, 흡착법, 이온 교환법 등 여러 가지 방법이 제시되고 있으나 UREX 공정에서는 TBP에 의해 U 추출시 Tc을 같이 추출하는 것에 초점이 모아지고 있다. TBP에 의한 Tc의 추출은 Tc 자체의 추출능이 낮으나, U이 함유된 상태에서는 Tc 단독으로 있는 경우 보다 추출능이 상승되는 것으로 알려져 있다.

본 연구에서는 Tc의 경우 방사성 물질인 Tc-99로 존재하는 데 이를 직접 사용하지 않고 Tc과 화학적 성질이 유사하고 Tc의 방사화학적 실험 수행에 가장 보편적인 대체물로서 활용되고 있는 Re(Rhenium: 질산 매질에서 Tc와 같이 ReO_4^- 로 존재)을 사용하여 간접적으로 Tc의 용매추출 특성을 살펴보았다. Fig. 1에는 30% TEP에서 질산농도 변화에 따른 Re의 분배비를 나타낸 것이다. 질산농도 0.7~1.0M 부근에서 최대 값을 갖으며 질산농도가 감소하는 경우 약간의 감소를 나타내나 1.0M 이상에서는 농도가 증가함에 따라 급격히 감소하는 결과를 보여주고 있다. 지금까지 연구된 다른 사람들의 결과과 매우 유사한 경향성을 확인할 수 있다. AHA(Aceto-hydroxamic acid)는 악티나이드 원소인 Np(IV)와 Pu(IV)에 대해 매우 높은 안정도상수 값을 갖는 착화제로서 U 추출시 이들 원소들의 공추출을 억제하기 위해 UREX 공정에서 사용하는 착화제이다. TBP에 의해 U과 Re이 추출될 때 AHA(Hydroxamic acid) 첨가 영향을 살펴

본 결과 Fig. 2와 같이 나타났다. AHA 농도를 0.5M 까지 증가시켜도 Re과 U의 추출에 미치는 AHA 영향은 나타나지 않았다. 한편 Tc이나 Re이 U과 같이 TBP에 추출되는 경우 단독으로 있을 때와 다른 추출 특성을 보이는 것으로 알려져 있음에 따라 본 연구에서도 U에 따른 Re 분배비 변화를 알아보았다.

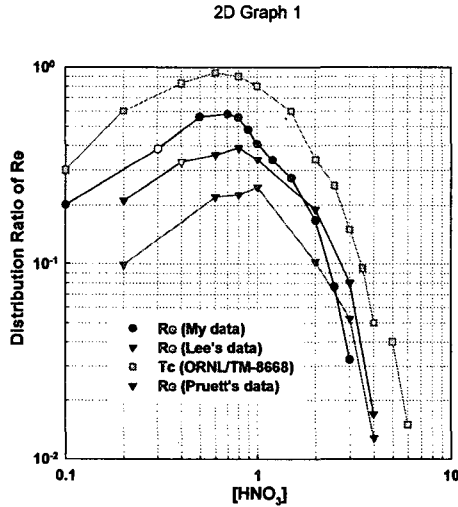


Fig.1 Distribution ratio of Re as a function of nitric acid concentration at 30%TBP, $[ReO_4^-]=0.015M$ and $25^\circ C$.

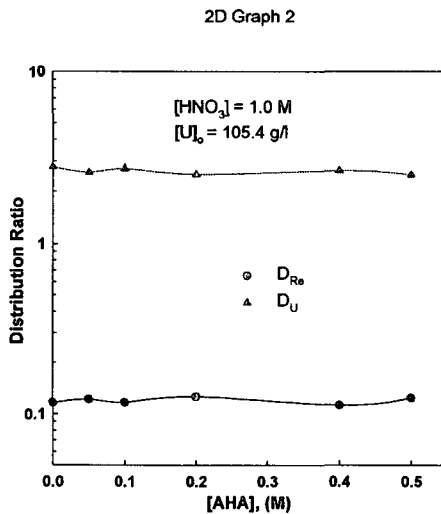


Fig.2 Distribution ratio of Re and U as a function of AHA concentration at $25^\circ C$.

References

1. Pruett, D.J. and Mctaggart, D.R., *J. Inorg. Nucl. Chem.* 43, 2109 (1981).
2. Pruett, D.J., ORNL/TM-8668 (1984).
3. Lee, E.H. et. al, KAERI/TR-1558/2000 (2000).