

NaTPB 및 TPPCI에 의한 Cs과 Tc(/Re)의 순차침전 특성

이일희, 임재관, 김연화, 서희승, 이세윤, 정동용, 양한범, 김광욱
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

nehlee@kaeri.re.kr

1. 서론

본 연구는 탄산염 계에서 SF를 용해할 때 U과 함께 용해되는 Cs 및 Tc(/Re)을 NaTPB 및 TPPCI에 의해 전량 침전 제거시키기 위한 순차침전 분리로 첫 번째는 현탁액 이송으로 1 단계 침전에서 NaTPB(/TPPCI)로 Cs(/Re)을 침전시킨 다음 이 현탁액을 2 단계로 이송한 후 TPPCI (/NaTPB)를 첨가하여 Re(/Cs)을 침전시키는 방법이고, 두 번째는 침전 여과여액 이송으로 1 단계 침전에서 NaTPB (/TPPCI)로 Cs(/Re) 침전 여과시킨 후 이 여액을 2 단계로 이송하여 TPPCI (/NaTPB)를 첨가하여 Re(/Cs)을 침전시키는 방법으로 나누어 고찰하였다.

2. 결과 및 토의

그림 1-(a), (b)는 NaTPB의 농도 0.005M(S-N1), 0.0075M(S-N2), 0.01M(S-N3) 및 0.015M (S-N4)에서 Cs을 각각 침전시킨 현탁액을 대상으로 TPPCI의 농도변화에 따른 Re과 Cs의 침전율이다. 이때 현탁액에는 NaTPB의 농도 0.005M ($[NaTPB]/[Cs]=0.72$)을 제외하고는 0.0075M ($[NaTPB]/[Cs]=1.09$) 이상에서는 Cs이 거의 100% 침전되어 CsTPB 침전물로 존재하는데 반하여, Re은 모두 이온 상태로 존재하고 있다. TPPCI의 농도 증가에 따라 Re의 침전율은 증가하고 있으며, 현탁액 내 NaTPB가 상당량 존재하고 있는 S-N3 및 S-N4의 경우 TPPCI을 0.005M 까지 증가시켜 $[TPPCI]/[Re]=2.94$ 로 증가시켰음에도 불구하고 NaTPB-TPPCI 간의 상호반응으로 Re의 침전에 소요될 TPPCI가 감소되어 현탁액 내 NaTPB가 미량 존재하는 S-N1 및 S-N2의 경우 보다 매우 감소하였다. Cs은 S-N1 및 S-N2의 경우 TPPCI의 농도 0.002M 까지는 침전물이 재용해 되었다가 이 이상에서는 다시 증가하여 0.005M TPPCI에서는 TPPCI이 첨가되지 않을 때의 Cs의 침전율에 거의 접근하고 있다. 그리고 NaTPB-Cs의 침전물이 재용해될 시 용해되어 나오는 NaTPB로 현탁액 내 NaTPB의 농도가 증가되어 TPPCI의 농도 0.002M 이하에서는 NaTPB- TPPCI의 상호반응으로 TPPCI가 소모되어 Re이 거의 침전되지 않고 있다. 반면에 현탁액 내 NaTPB가 상당량 존재하는 S-N3 및 S-N4의 경우는 TPPCI의 농도가 증가할 수록 NaTPB- TPPCI 간의 상호반응으로 좀 더 많은 NaTPB가 소모되어 Cs의 침전이 급격히 감소하는 경향이지만 S-N4는 NaTPB- TPPCI 간의 상호반응에도 여전히 NaTPB가 많이 존재하여 Cs의 거의 100% 침전되고 있다.

그림 2-(a), (b)는 Fig. 1과는 반대로 TPPCI의 농도 0.001M (S-T1), 0.002M (S-T2), 0.003M (S-T3), 0.005M(S-T4)에서 Re을 침전시킨 각각의 현탁액을 대상으로 NaTPB의 농도변화에 따른 Cs과 Re의 침전율이다. 이때 현탁액에는 TPPCI의 농도 0.001M ($[TPPCI]/[Re]=0.59$)을 제외하고 0.002M ($[TPPCI]/[Re]=1.18$) 이상에서는 Re이 거의 100% 침전되어 TPPReO₄ 침전물로, Cs은 거의 이온상태로 존재하고 있었다. NaTPB의 농도 증가에 따라 Cs의 침전율은 증가하고 있으며, 현탁액 내 TPPCI의 농도가 증가할 수록 NaTPB-TPPCI 간의 상호반응으로 Cs의 침전에 소요될 NaTPB의 농도가 감소되어 Cs의 침전율은 감소하고 있으나, 0.015M NaTPB에서는 NaTPB-TPPCI 간의 상호반응에 의한 감소에도 불구하고 여전히 NaTPB의 상당량이 존재하여 거의 100%가 침전되었다. 반면에 Re은 NaTPB 첨가에 따라 TPPCI-Re의 침전물이 재용해 되었다가 NaTPB의 농도를 증가시키면 다시 증가하여 0.015M의 NaTPB에서는 NaTPB가 첨가되지 않 때 즉, TPPCI에 의한 Re의 침전율과 거의 접근하고 있다.

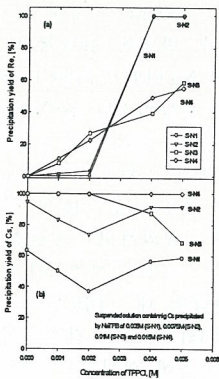
그림 3-(a), (b)는 NaTPB의 농도 0.005M (F-N1), 0.0075M (F-N2), 0.01M (F-N3) 및 0.015M (F-N4)에 의해 1단계 침전을 시킨 후 여과한 각각의 여과여액을 대상으로 2단계 침전제인 TPPCI의 농도 변화에 따른 Cs과 Re의 침전율이다. NaTPB 농도 변화에 따른 1단계 침전은 그림 3-(a)와 같이 Cs은 NaTPB의 농도 0.005M ($[NaTPB]/[Cs]=0.72$)을 제외하고는 0.0075M ($[NaTPB]/[Cs]=1.09$) 이상에서 거의 100% 침전되었으나, Re은 NaTPB의 농도에 무관하게 거의 침전되지 않았다. 반면에 2단계 침전은 그림 3-(b)와 같으며 TPPCI의 농도 증가에 따라 Re의 침전율이 증가하고 있다. F-N1과 F-N2의 경우 여액 내 NaTPB가 0.001M 이하로 Re을 완전히 침전시키기 위해서는 0.002M 이상의 TPPCI이 요구되며, F-N4의 경우에는 과도한 NaTPB의 존재로 0.005M의 TPPCI ($[TPPCI]/[Re]=2.94$)에서도 Re을 완전히

침전제거할 수 없었다. 이는 1 단계 침전 여과여액 내 잔존하는 NaTPB와 2단계 침전에서 주입하는 TPPCI과 상호반응 하여 즉, Re의 침전에 사용되어야 할 TPPCI이 NaTPB와 반응하여 TPPCI의 농도가 급격히 감소된 데 기인하는 것으로 판단된다.

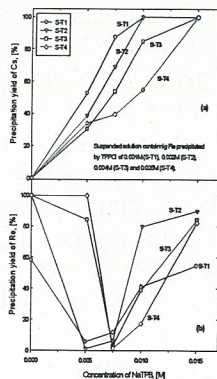
그림 4-(a), (b)는 각각 TPPCI 농도 0.001M (F-T1), 0.002M (F-T2), 0.004M (F-T3), 0.005M (F-T4)에 의해 1단계 침전을 거친 후 여과한 여과여액을 대상으로 2단계 침전제인 NaTPB의 농도 변화에 따른 Cs과 Re의 침전율이다. TPPCI 농도 변화에 따른 1 단계 침전은 그림 4-(a)와 같이 Cs은 TPPCI에 의해 거의 침전되지 않고 있으며, Re은 TPPCI의 농도 0.005M ([TPPCI]/[Re]= 0.59)을 제외하고는 0.002M ([TPPCI]/[Re]=1.18) 이상에서 거의 100% 침전되었다. 2단계 침전은 그림 4-(b)와 같으며 F-T1, F-T2 및 F-T3의 경우 NaTPB의 농도 0.01M 이상에서는 Cs을 거의 100% 침전 제거할 수 있으며, 상당량의 TPPCI을 함유하고 있는 F-T4의 경우도 0.015M의 NaTPB에 의해 Cs을 효과적으로 침전 분리할 수 있었다.

3. 결론

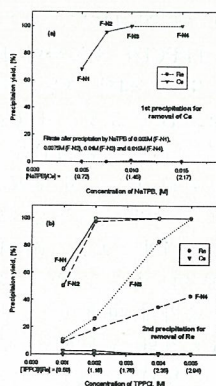
NaTPB 및 TPPCI에 의한 순차 침전분리 즉, ① 1 단계 침전에서 Cs(또는 Re)을 먼저 침전시킨 다음 이 현탁액을 2 단계 침전으로 이송하여 Re(또는 Cs)을 1 단계 침전물과 함께 공침시키는 방법은 1 단계 침전 시 [NaTPB]/[Cs] (또는 [TPPCI]/[Re])의 몰 비를 1 이상 유지하면 별 문제가 없으나 2 단계 침전에서는 1 단계에서 침전시킨 현탁액 내 침전물이 재용해 되어 2 단계 침전 시 침전제를 과량으로 첨가하여야 한다는 등의 문제가 있다. ② 1 단계 침전에서 Cs(또는 Re)을 먼저 침전 여과시킨 다음 이 여과액을 2 단계로 이송하여 다시 Re(또는 Cs)을 침전시키는 방법은 매우 효과적으로 Cs과 Re을 거의 100% 침전 제거시킬 수 있었다. 이때 Cs과 Re의 제거 순서는 TPPCI로 Re을 침전시킨 후 NaTPB로 Cs을 침전시키는 것이 보다 효과적이다. 이는 Re의 농도가 Cs 보다 적어 ([Re]/[Cs]=0.25) 1 단계에서 TPPCI-Re 침전을 수행할 시 낮은 농도의 TPPCI로 Re을 침전제거할 수 있으며, 이로 인하여 1 단계 침전 여과여액 내 TPPCI의 함량을 줄일 수 있다. 즉, 2 단계에서 NaTPB에 의한 Cs을 침전시킬 시 1 단계에서 오는 여과여액 내 잔유 TPPCI의 농도가 낮아 2 단계 침전에 미치는 영향이 적기 때문이다.



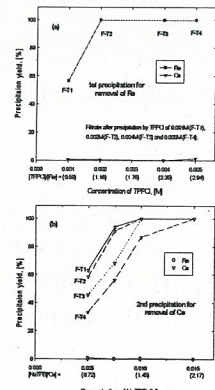
(그림. 1)



(그림. 2)



(그림. 3)



(그림. 4)