

핵주기 공정에서의 이온성 액체 활용 기술 개요

김기섭 · 박병흥*

한국교통대학교 화공생명공학과

Overview on Ionic Liquid Application Technologies for Back-end Fuel Cycle Processes

Ki-Sub Kim · Byung Heung Park*

Department of Chemical and Biological Engineering, Korea National University of Transportation,
50 Daehak-ro, Chungju-Si, Chungbuk, 380-702, Korea

(Received 2013. 10. 14 / Accepted 2013. 11. 12)

Abstract : The ionic liquids are known to potential alternative solvents capable of replacing the commercial solvents in various processes including those in nuclear fuel cycle. As to the material, a number of studies have already reviewed the interesting results and addressed the spectroscopic as well as electrochemical behaviors of metal elements included in spent nuclear fuels. It has found that the important properties of metal ions in TBP dissolved ILs have led the development of alternative technologies to traditional solvent extraction processes. On the other hand, the electrochemical deposition of metal ions in ILs have been investigated for the application of the solvents to aqueous as well as to non-aqueous processes. In this work, a review on the application of ILs in nuclear fuel cycle is briefly presented to understand the notable researches on ILs focusing on aqueous processes.

Key words : Ionic liquids, Solvent, Fuel cycle, Extraction, Electrochemical properties

1. 서론

원자로에서 배출되는 사용후핵연료 처리를 위해 현재 상업적으로 활용되고 있는 유일한 후행핵연료 주기 공정은 습식공정인 PUREX이다. 액-액 추출원리 활용한 PUREX 공정에는 다양한 변형이 존재하나 일반적으로는 1차 정제 사이클로부터 공정을 시작한다. PUREX 공정에서 사용후핵연료는 1차적으로 강산인 질산 용액에 용해된다. 우라늄과 플루토늄은 사용후 핵연료를 용해시킨 질산 용액으로부터 추출제를 사용하여 분리되어야 한다. 이때 추출제의 점도, 비중 등의 물성 조절을 위해 희석제가 사용된다. 이에 따라 우라늄과 플루토늄은 n-dodecane (n-DD) 또는 등유(kerosene)와 같은 불활성 지방족 희석제에 의해 용해된 30%(v/v) (약 1.1 M) 농도의 tri-butyl phosphate(TBP)

유기상으로 추출 분리 된다. 첫 추출 공정에서 우라늄과 플루토늄을 제외한 분열생성물들은 질산의 수용액 상에 잔류하게 되고 유기상의 Pu⁺⁴는 NH₂OH에 의해 Pu⁺³로 환원되어 6 M 질산 수용액으로 역추출 된다. 이러한 2차 공정 후 유기상에 잔존하게 된 우라늄은 희석 질산에 의해 역추출 되어 회수된다.

최근에는 PUREX 공정에서 n-DD나 등유와 같은 유기 용매는 휘발성 성질과 환경 오염을 유발시킬수 있기 때문에 이를 대체할 수 있는 친환경 매질로 사용되는 이온성 액체의 적용이 시도되고 있다¹⁻³⁾. 이러한 기술들은 그 적용 가능성에 비해 사용후핵연료 처리 여건이 마련되지 않은 국내에서는 연구가 미진한 분야이다. 그러나, 기술적 측면에서 여러 다른 국가 기술에 뒤처지지 않기 위해서는 시급히 기술 개발이 시도되어야 하는 분야이기도 하다. 본 연구에서는 연구자들이 이온성 액체를 활용한 후행핵연료 주기 공정 개발

*Corresponding author. E-mail: b.h.park@ut.ac.kr

단계로 진입을 원활하게하기 위해 기존 연구들의 접근 방법들과 주요 결과들을 정리하였으며 현황과 주요 이슈들을 검토하였다. 이를 위해 이온성 액체 연구자들에 초점을 둔 검토 논문¹⁻³⁾을 벗어나 사용후핵연료 공정에 관심 있는 연구자들을 위해 이온성 액체의 설명을 강화하였으며 앞선 검토 논문들이 담지 못한 최근 연구들을 포함하였다.

2. 이온성 액체 개요

이온성 액체(IL, Ionic Liquid)는 양이온과 음이온으로 구성되어 일반적으로 상온에서 액체 상태를 나타내는 유기염을 일컫는 용어로 사용된다. 순수한 물질의 액체 상태가 이온들로 구성되었다는 측면에서 국내에서 활발히 연구되고 있는 건식공정인 파이로 공정(pyroprocessing)에서 사용되는 용융염과 개념적으로는 동일하여 이온성 액체를 용융염의 일종으로 분류할 수도 있으나 무기염들인 용융염과 달리 낮은 온도에서 액체 상태를 나타내는 특징으로 인해 일반적으로는 용융염과 분리하여 정의한다. 이렇게 낮은 용융점을 갖는 특징이 나타나는 이유는 음이온과 양이온의 크기 차이로 설명된다. 보편적으로 사용되는 이온성 액체들의 양이온들은 크기에서 음이온들과 큰 차이를 보이고 있으며 이로 인해 이온들의 결합에 입체장애(steric hindrance)가 발생하기 때문에 상온에서도 양이온-음이온 사이에 강한 결합이 발생하지 않고 액체상태를 유지하는 것으로 알려져 있다.

이온성 액체가 지닌, 일반적인 유기 용매와 대비되는 대표적인 물성들은 비휘발성, 고전도성, 불연성 성질을 들 수 있으며 이를 활용하면 휘발성유기화합물(VOC)을 배출하지 않는 친환경 공정을 개발할 수 있다. 기존 유기 용매가 사용되던 금속이온 추출에 적용되는 대체 용매로서 이온성 액체의 활용은 1990년대 후반부터 주목 받기 시작했다⁴⁻⁶⁾.

추출 공정에 활용되기 위해서는 수용액에 존재하는 금속이온을 추출한 후 액-액 상분리를 유발시켜야 하므로 이온성 액체는 소수성을 지녀야 한다. 이러한 소수성 환경은 이온성 액체에 의해 만들어지며 실제 금속 이온 추출은 추출제를 사용하여 얻게 된다. 따라서 금속 이온의 특징에 따라 다양한 추출제가 소수성 성질을 지닌 1-alkyl-3-methylimidazolium hexafluorophosphate([C_nmim][PF₆]) 희석제에서 시도되어 분배율

향상을 보였으며⁵⁾ 이를 활용하여 목적에 맞도록 이온성 액체의 종류를 변화시킬 수 있었다⁶⁾. 그러나, 일부 연구에서는 이온성 액체의 활용성은 용해 손실과 추출된 금속 이온들의 회수에서의 어려움에 의해 제한될 수 있음이 지적되었다⁷⁾.

금속 추출제의 희석제로서의 역할과 함께 이온성 액체에서 주목해야할 물성은 전기화학적 성질로, 이온성 액체는 넓은 전기화학창을 지니고 있어 전기화학 반응에서 안정적인 전해질로 사용될 수 있다⁸⁾. 다양한 양이온-음이온 조합에 의해 전기화학창의 범위가 의존하며 일반적으로 이온성 액체는 3에서 6 V까지 넓은 전위창을 보이고 있다⁹⁾. 또한, 전극을 금, 백금, 탄탈륨, 글래시 카본으로 다양하게 변화시키면 전기화학창을 1 V 정도는 변화시킬 수 있음이 밝혀졌으며¹⁰⁾ 용액의 산도(acidity)를 조절함으로써도 전기화학창을 변화시킬 수 있는 것으로 나타났다¹¹⁾. 이온성 액체 매질에서 전기화학적 방법으로 금속 이온을 전착시킬 수 있기 때문에 습식공정에서 추출 기술을 적용하였을 경우에는 추출 후 금속 이온을 전기화학적으로 회수할 수 있으며 건식공정에서는 직접 금속 이온을 전착시킬 수 있게 되었다¹²⁻¹³⁾.

3. 습식 후행핵주기 공정에서의 활용 기술

이온성 액체를 사용하여 우라늄을 포함하는 f-궤도 원소들을 추출하기 위한 연구는 2000년대 초반부터 진행되었다¹⁴⁻¹⁵⁾. Visser와 Rogers는¹⁴⁾ 1-alkyl-3-butylimidazolium 양이온에 두 종류의 음이온을 결합시키는 한편 알킬기의 길이를 변화시켜 수용액 상으로부터 악티나이드를 추출하여 이온성 액체의 추출 공정 적용 가능성을 제시하였다. 이러한 연구들을 바탕으로 최근 Kolarik¹⁵⁾은 f-궤도 원소 추출의 희석제로서 이온성 액체의 주요 물성들인 용점, 밀도, 물과의 상호 용해도, 점도 등을 정리하였으며 분자 희석제와 비교하여 효율과 메카니즘을 설명하였다.

PUREX 공정에 사용되는 유기용매(n-DD 또는 등유)를 대체하여 TBP를 용해시키기 위한 희석제로서의 이온성 액체의 적용 가능여부는 우라늄 추출을 중심으로 연구되었다¹⁶⁻¹⁹⁾. 질산에 용해된 우라늄 추출을 위해 1.1 M TBP를 [bmim][PF₆] 이온성 액체에 희석시켜 두 용액을 접촉시킨 결과 우라늄의 분배율은 질산 농도 0.01에서 4 M 범위에서는 1.1 M TBP/n-DD 시스

템과 유사한 수치로 나타났으며 질산 농도가 4 M을 넘어서는 범위에서도 분배율이 증가하여 n-DD를 사용한 경우보다 우수한 것으로 결과가 발표되었다¹⁶⁾. 동일한 연구에서 추출제를 첨가하지 않고 이온성 액체만을 접촉시켰을 때에는 단지 소량의 우라늄만이 추출되는 결과도 함께 제시되었다¹⁶⁾. 1-alkyl-3-methylimidazolium의 알킬기를 변경하여 가지가 좀 더 긴 octyl기를 연결한 [omim][PF₆]를 희석제로 사용한 비교 연구에서는 1.1 M TBP/[omim][PF₆]에서 우라늄의 분배율이 모든 질산 농도 범위에서 [bmim][PF₆] 보다 다소 낮았으나 [omim][PF₆]의 질산에 대한 용해도는 [bmim][PF₆]에 비해 두세 배 낮은 것으로 관찰되었다¹⁷⁾. 후속 연구로 1.1M TBP/[bmim][NTf₂]를 사용하여 질산에 용해된 우라늄을 추출하여 분배율이 1.1 M TBP/[bmim][PF₆]와 1.1 M TBP/n-DD 시스템의 결과와 비교되었으며 더 나아가 추출된 우라늄을 포함하고 있는 이온성 액체 상으로부터 전기화학적 방법으로 우라늄 산화물을 전착시켰다¹⁸⁾. 우라늄 이온을 전착시키는 연구는 PUREX 공정에 이온성 액체를 적용시키기 위해서는 필수적으로 연구되어야 하는 분야이며 최근에는 우라늄 이온의 이온성 액체에서의 전기화학적 물성이 측정되어 [bmim][Cl]계에서 U(VI)의 확산계수와 활성화 에너지가 보고되기도 했다¹⁹⁾. 유기상인 이온성 액체에서 금속을 전기화학적으로 얻게 되면 다량의 액체 폐기물을 발생시키는 탈거공정(stripping)이 필요 없게 되므로 공정 효율이 크게 향상될 것이 예상된다. 한편, 상업규모 액-액 추출에 사용되기 위해 필요한 밀도, 용해도, 점도 등의 물성을 TBP를 용해시킨 1-alkyl-3-methylimidazolium 계를 대상으로 검토한 결과 실제 재처리 공정에서 적용에는 한계가 있을 수 있다는 것이 지적되기도 하였다²⁰⁾.

수용성 공정에 대해서는 이와 같이 TBP를 사용한 분배율 측정 연구가 가장 활발히 진행되고 있으며 우라늄 추출의 경우 이러한 시스템의 메카니즘 규명과 새로운 이온성 액체의 활용 또한 모색되고 있다. 이온성 액체는 분자 희석제인 유기용매와는 달리 양이온과 음이온이 존재하므로 추출된 우라늄 이온의 배위 환경이 기존 용매계와는 전혀 다른 형태로 나타나게 된다. 이를 밝히기 위해 분광학적 방법이 사용되었으며²¹⁻²²⁾ 이와 함께 TBP를 사용한 추출 메카니즘이 연구되어 수용액의 nitrate 농도가 증가함에 따라 이온 교환 과정에서 중성의 uranyl-TBP-nitrato 복합물의 추출로

전환되는 것으로 제시되었다²³⁾. 1-alkyl-3-methylimidazolium 계는 이온성 액체들 중에서 가장 많이 알려진 물질들이다. 그러나, 앞서 언급한 것과 같이 이온성 액체의 가장 큰 장점은 목적에 맞도록 이온성 액체를 구성할 수 있다는 것이다. 이러한 시도로 우라늄 추출을 위해 새로운 phosphoryl 그룹이 포함된 이온성 액체가 합성되어 적용되기도 하였으며²⁴⁾ 암모늄 계열의 이온성 액체가 합성되어 TBP를 이용한 질산 수용액 내의 우라늄 추출에 사용되어 질산 농도의 변화에 따른 추출 성능이 측정된 결과로 높은 질산 농도(> 0.1 M)에서 소수성 이온성 액체 시스템의 추출율이 증가하는 것이 관찰되었다²⁵⁾. 사용후핵연료 처리 공정을 위해 개발된 것은 아니지만 환경 우라늄 추출을 위해 새롭게 적용된 tricaprylmethylammonium thiosalicylate 역시 우라늄 추출을 위한 새로운 이온성 액체의 개발로서 언급될 수 있다²⁶⁾.

우라늄을 제외한 악티나이드들의 추출 연구는 란타나이드와 함께 존재하는 계를 대상으로 연구되고 있다. 이러한 연구들은 PUREX 공정을 염두해 둔 것은 아니며 따라서 TBP를 추출제로 사용하지는 않고 있다. Pyridine 계열의 이온성 액체를 사용하여 Eu(III)과 Am(III)가 용해되어 있는 산 용액(≤ 1 M HNO₃)으로부터 선택적으로 Am(III)을 추출할 수 있었으며 높은 분리율을(≤ 150) 얻을 수 있었다²⁷⁾. 최근에는 추출제를 사용하지 않고 [omim][PF₆]로 Ce(IV)을 Th(IV)과 란타나이드(III)들의 혼합 용액에서 성공적으로 분리한 연구가 발표되기도 했다²⁸⁾. 란타나이드 시스템에서는 추출을 위해서 이온성 액체에 TODGA를 추출제로 사용하여 La(III), Eu(III), Lu(III)에 대해 희석제로 iso-octane을 사용한 경우에 비해 우수한 결과를 얻은 연구²⁹⁾와 organophosphorous 추출제를 사용하여 imidazolium 계열 이온성 액체에서 란타나이드를 추출한 연구³⁰⁾를 주목할 수 있을 것이다. Senguta 등³¹⁾은 tripodal diglycolamide(T-DGA)를 imidazolium 계열의 이온성 액체에 용해시킨 용액을 사용하여 Am(III)를 추출하였으며 T-DGA의 배위 속도가 늦기 때문에 TODGA 시스템과 비교하여 평형시간이 길어진다는 결과를 발표하였다.

사용후핵연료에 존재하는 핵종 중에서 란타나이드와 함께 주요 관심이 되는 분열생성물들은 Cs과 Sr이다. 이들은 고방열성 특성이 있기 때문에 폐기물에서 제거되어 별도로 관리된다면 폐기물의 열 및 방사성

부하를 크게 낮출 수 있게 된다. 수용액 상에서부터 Cs와 Sr의 추출은 crown ether 계열의 추출제를 사용하여 연구되어왔다^{32,36)}. 1990년대 후반 crown ether를 추출제로 하였을 때 이온성 액체의 매질로서의 사용가능성이 제시³²⁾된 이후에 crown ether 계열의 18-crown-6(18C6), dicyclohexano-18-crown-6(DCH18C6), 4,4'-(5')-di-(tert-butylcyclohexano)-18-crown-6 (Dtb18C6)가 [C_nmim][PF₄] 이온성 액체에 용해되어 Na⁺, Cs⁺, Sr²⁺ 이온의 추출에 사용되어 추출제 없이는 추출 성능이 나타나지 않으며 추출 성능은 crown ether의 소수성에 의존함이 밝혀졌다³³⁾. 또한, 높은 HNO₃ 농도에서는 PF₆가 분해되어 이온성 액체 내 포함된 물의 함량이 증가되는 것으로 나타났다³³⁾. DCH18C6를 사용하여 imidazolium 계열의 이온성 액체에서 Sr²⁺를 추출한 연구에서는 추출이 양이온 교환을 통해 진행되며 crown ether에 복합체로 추출되는 것이 보고되었으며³⁴⁾ 알칼리 염화물 용액에서는 이온성 액체의 알킬기의 크기가 증가함에 따라 추출 효율이 저하되는 것으로 나타난 반면 알칼리 금속 이온의 추출 선택도와 효율은 수용액 상의 음이온이 chloride, nitrate, sulfate 여부에 영향을 받지 않는 것으로 분석되었다³⁵⁾. 최근에는 기능성 이온성 액체의 특성을 살려 여러 분야에 적용되어 온 imidazolium 계열이 아닌 아미드 계열의 이온성 액체가 합성되어 Cs⁺와 Sr²⁺ 추출에 적용되었다³⁶⁾.

우라늄의 전기화학적 거동 연구에서와 동일하게, 추출된 Cs과 Sr 이온들 역시 이온성 액체의 전기 전도성 특징을 활용하면 전기화학적 방법으로 회수할 수 있다. Crown ether 계열의 추출제를 사용하여 수용액 상에서 이온성 액체 상으로 추출된 Cs과 Sr의 전기화학적 거동이 수은을 작업전극으로 하여 실험적으로 연구되었으며 추출제와 복합체를 형성한 각 이온들의 환원 전위가 측정되었다. 수은 풀(pool)을 전극으로 사용하여 90% 정도의 금속을 회수할 수 있음이 밝혀졌으며³⁷⁾ 수은 전극에서는 아멜감을 형성하는 것으로 나타났다³⁸⁾.

4. 결론

본 연구에서는 최근 다양한 화학 공정에서 친환경 용매로 주목 받고 있는 이온성 액체가 어떻게 방사성 폐기물 처리 공정에 적용될 수 있는지 판단하기 위하여 현재까지의 주요 연구 결과들을 정리하여 제시하

였다. 이온성 액체는 그 자체가 금속 이온을 추출할 수 있는 추출제로 사용되는 것은 아니며 추출제를 희석하여 수용액 상과 상분리를 발생시키기 위한 소수성 용액으로 사용된다. 한편, 이온성 액체로 추출된 금속 원소들은 전기화학적으로 회수될 수 있기 때문에 이온성 액체에서 활용되는 주목할만한 특성으로는 추출제를 용해시키는 소수성 성질과 전해반응 매질로서 넓은 전기화학 창을 들 수 있다.

사용후핵연료 처리 공정을 수용성 공정과 비수용성 공정으로 구분한다면 추출-전해회수 방법은 수용성 공정으로 이해할 수 있으며 용해-전해회수 방법은 비수용성 공정으로 분류할 수 있다. 본 논문에서는 이와 같은 분류를 기준으로 우라늄, 악티나이드, 란타나이드 및 주요 분열생성물을 대상으로 연구된 결과들을 정리하였다.

이온성 액체는 다양한 양이온과 음이온 조합으로 원하는 물성을 갖춘 용매를 만들 수 있다는 측면에서 매력적인 물질이긴 하지만 다소 복잡한 구조에 의해 추출 또는 용해되어 있는 금속 원소들의 배위 환경에 대한 이해가 선행되어야 한다. 따라서, 현재까지의 연구는 화학적 접근으로 분광학적 분석과 전기화학적 물성 측정에 집중되어 있는 것으로 볼 수 있다. 사용후핵연료 및 방사성 폐기물 처리 공정에 적용을 위한 실제적인 접근으로 우라늄 및 여타 금속 원소들을 포함하고 있는 다성분 계에서 추출 성능과 전기화학 거동이 이온성 액체를 이용한 공정 개발을 위해서 필요한 것으로 판단된다. 이에 더불어 핵확산 저항성 측면에서 Pu이 어떻게 독자적으로 분리되지 않을지에 대한 과학적, 기술적 연구 또한 병행되어야 할 것으로 보인다. 이온성 액체가 다양한 양이온-음이온 조합이 가능하므로 이에 대한 연구 범위는 상당히 넓게 되며 만약 성공적으로 이러한 목적에 맞는 이온성 액체와 공정이 개발된다면 PUREX 공정에 비해 친환경적이며 폐기물이 저감된 공정으로, 파이로 공정에 비해 보다 온화한 조건에서 운전되어 반응기 재질 등에서 안정성이 향상된 공정으로 개발될 수 있을 것으로 기대된다.

Acknowledgement

이 논문은 2013년도 한국교통대학교 교내학술연구비의 지원을 받아 수행한 연구임

References

- 1) K.A. Venkatesan, T.G. Srinivasan, and P.R. Vasudeva Rao, "A Review on the Electrochemical Applications of Room Temperature Ionic Liquids in Nuclear Fuel Cycle", *J. Nucl. Radiochem. Sci.*, 10, R1-R6 (2009).
- 2) S.H. Ha, R.N. Menchavez, and Y.-M. Koo, "Reprocessing of Spent Nuclear Waste Using Ionic Liquids", *Korean J. Chem. Eng.*, 27, pp. 1360-1365 (2010).
- 3) P.R. Vasudeva Rao, K.A. Venkatesan, A. Rout, T.G. Srinivasan, and K. Nagarajan, "Potential Applications of Room Temperature Ionic Liquids for Fission Products and Actinide Separation". *Sep. Sci. Technol.*, 47, pp. 204-222 (2012).
- 4) J.G. Huddleston and R.D. Rogers, "Room Temperature Ionic Liquids as Novel Media for 'Clean' Liquid-Liquid Extraction", *Chem. Commun.*, Issue 16, pp. 1765-1766 (1998).
- 5) A.E. Visser, R.P. Swatloski, S.T. Griffin, D.H. Hartman, and R.D. Rogers, "Liquid/Liquid Extraction of Metal Ions in Room Temperature Ionic Liquids", *Sep. Sci. Technol.*, 36, pp. 785-804 (2001).
- 6) A.E. Visser, R.P. Swatloski, W.M. Reichert, R. Mayton, S. Sheff, A. Wierzbicki, J.H. Davis Jr., and R.D. Rogers, "Task-specific Ionic Liquids for the Extraction of Metal Ions from Aqueous Solutions", *Chem. Commun.*, Issue 1, pp. 135-136 (2001).
- 7) M.L. Dietz, "Ionic Liquids as Extraction Solvents: Where do We Stand?", *Sep. Sci. Technol.*, 41, pp. 2047-2063 (2006).
- 8) M. Galiński, A. Lewandowski, and I. Stepniak, "Ionic Liquids as Electrolytes", *Electrochim. Acta*, 51, pp. 5567-5580 (2006).
- 9) M. Hayyan, F.S. Mjalli, M.A. Hashim, I.M. AlNashef, and T.X. Mei, "Investigation the Electrochemical Windows of Ionic Liquids", *J. Ind. Eng. Chem.*, 19, pp. 106-112 (2013).
- 10) S.S. Moganty, R.E. Baltus, and D. Roy, "Electrochemical Windows and Impedance Characteristics of [Bmim⁺][BF₄⁻] and [Bdmim⁺][BF₄⁻] Ionic Liquids at the Surfaces of Au, Pt, Ta and Glassy Carbon Electrodes", *Chem. Phys. Lett.*, 483, pp. 90-94 (2009).
- 11) F. Endres, "Ionic Liquids: Solvents for the Electrodeposition of Metals and Semiconductors", *Chemphyschem*, 3, pp. 144-154 (2002).
- 12) W. Simka, D. Puszczczyk, and G. Nawrat, "Electrodeposition of Metals from Non-aqueous Solutions", *Electrochim. Acta*, 54, pp. 5307-5319 (2009).
- 13) A.P. Abbott and K.J. McKenzie, "Application of Ionic Liquids to the Electrodeposition of Metals", *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 8, pp. 4265-4279 (2006).
- 14) A.E. Visser and R.D. Rogers, "Room-temperature Ionic Liquids: New Solvents for F-element Separations and Associated Solution Chemistry", *J. Solid State Chem*, 171, pp. 109-113 (2003).
- 15) Z. Kolarik, "Ionic Liquids: How Far Do they Extend the Potential of Solvent Extraction of f-Elements?", *Solvent Extr. Ion Exch.*, 31, pp. 24-60 (2013).
- 16) P. Giridhar, K.A. Venkatesan, T.G. Srinivasa, and P.R. Vasudeva Rao, "Extraction of Uranium(VI) from Nitric Acid Medium by 1.1 M Tri-n-butylphosphate in Ionic Liquid Diluent", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 265, pp. 31-38 (2005).
- 17) P. Giridhar, K.A. Venkatesan, T.G. Srinivasan, and P.R. Vasudeva Rao, "Effect of Alkyl Group in 1-Alkyl-3-methylimidazolium Hexafluorophosphate Ionic Liquids on the Extraction of Uranium by Tri-n-butylphosphate Diluted with Ionic Liquids", *J. Nucl. Radiochem. Sci.*, 5, pp. 21-26 (2004).
- 18) P. Giridhar, K.A. Venkatesan, S. Subramaniam, T.G. Srinivasan, and P.R. Vasudeva Rao, "Extraction of Uranium(VI) by 1.1 M Tri-n-butylphosphate/Ionic Liquid and the Feasibility of Recovery by Direct Electrodeposition from Organic Phase", *J. Alloys Compd*, 448, pp. 104-108 (2008).
- 19) P. Giridhar, K.A. Venkatesan, T.G. Srinivasan, and P.R. Vasudeva Rao, "Electrochemical Behavior of Uranium(VI) in 1-butyl-3-methylimidazolium Chloride and Thermal Characterization of Uranium Oxide Deposit", *Electrochim. Acta*, 52, pp. 3006-3012 (2007).
- 20) P. Giridhar, K.A. Venkatesan, T.G. Srinivasan, and P.R. Vasudeva Rao, "Comparison of Diluent Characteristics of Imidazolium Hexafluorophosphate Ionic Liquid with n-Dodecane", *J. Nucl. Radiochem. Sci.*, 5, pp. 17-20 (2004).
- 21) A.E. Visser, M.P. Jensen, I. Laszak, K.L. Nash, G.R. Choppin, and R.D. Rogers, "Uranyl Coordination Environment in Hydrophobic Ionic Liquids: An in Situ Investigation", *Inorg. Chem.*, 42, pp. 2197-2199 (2003).
- 22) C. Gaillard, O. Klimchuk, A. Ouadi, I. Billard, and C. Hennig, "Evidence for the formation of UO₂(NO₃)₄²⁻ in an ionic liquid by EXAFS", *Dalton Trans.*, 41, pp. 5476-5479 (2012).
- 23) M.L. Dietz and D.C. Stepinski, "Anion Concentration-dependent Partitioning Mechanism in the Extraction of Uranium into Room-temperature Ionic Liquids", *Talanta*, 75, pp. 598-603 (2008).
- 24) A. Ouadi, O. Klimchuk, C. Gaillard, and I. Billard,

- “Solvent Extraction of U(VI) by Task Specific Ionic Liquids Bearing Phosphoryl Groups”, *Green Chem.*, 9, pp. 1160-1162 (2007).
- 25) T.J. Bell and Y. Ikeda, “The Application of Novel Hydrophobic Ionic Liquids to the Extraction of Uranium(VI) from Nitric Acid Medium and a Determination of the Uranyl Complexes Formed”, *Dalton Trans.*, 40, pp. 10125-10130 (2011).
- 26) M. Srncik, D. Kogelnig, A. Stojanovic, W. Körner, R. Krachler, and G. Wallner, “Uranium Extraction from Aqueous Solutions by Ionic Liquids”, *Appl. Radiat. Isot.*, 67, pp. 2146-2149 (2009).
- 27) Z. Kolarik, U. Müllich, and F. Gassner, “Selective Extraction of Am(III) over Eu(III) BY 2,6-ditriazolyl- and 2,6-ditriazinylpyridines”, *Solvent Extr. Ion Exch.*, 17, pp. 23-32 (1999).
- 28) Y. Zuo, Y. Liu, J. Chen, and D.Q. Li, “The Separation of Cerium(IV) from Nitric Acid Solutions Containing Thorium(IV) and Lanthanides(III) Using Pure [C₈mim]PF₆ as Extracting Phase”, *Ind. Eng. Chem. Res.*, 47, pp. 2349-2355 (2008).
- 29) K. Shimojo, K. Kurahashi, and H. Naganawa, “Extraction Behavior of Lanthanides using a Diglycolamide Derivative TODGA in Ionic Liquids”, *Dalton Trans.*, 37, pp. 5083-5088 (2008).
- 30) F. Kubota, Y. Koyanagi, K. Nakashima, K. Shimojo, N. Kamiya, and M. Goto, “Extraction of Lanthanide Ions an Organophosphorous Extractant into Ionic Liquids”, *Solvent Extr. Res. Dev. Jpn.*, 15, pp. 81-87 (2008).
- 31) A. Sengupta, P.K. Mohapatra, M. Iqbal, W. Verboom, J. Huskens, and S.V. Godbole, “Extraction of Am(III) Using Novel Solvent Systems Containing a Tripodal Diglycolamide Ligand in Room Temperature Ionic Liquids: a ‘Green’ Approach for Radioactive Waste Pprocessing”, *RSC Adv.*, 2, pp. 7492-7500 (2012).
- 32) S. Dai, Y.H. Ju, and C.E. Barnes, “Solvent Extraction of Strontium Nitrate by a Crown Ether using Room-temperature Ionic Liquids”, *J. Chem. Soc. Dalton Trans.*, Issue 8, pp. 1201 - 1202 (1999).
- 33) A.E. Visser, R.P. Swatloski, W.M. Reichert, S.T. Griffin, and R.D. Rogers, “Traditional Extractants in Nontraditional Solvents: Groups 1 and 2 Extraction by Crown Ethers in Room-Temperature Ionic Liquids”, *Ind. Eng. Chem. Res.*, 39, pp. 3596-3604 (2000).
- 34) M.L. Dietz and J.A. Dzielawa, “Ion-exchange as a Mode of Cation Transfer into Room-temperature Ionic Liquids Containing Crown Ethers: Implications for the ‘Greenness’ of Ionic Liquids as Diluents in Liquid-Liquid Extraction”, *Chem. Commun. Issue 20*, pp. 2124-2125 (2001).
- 35) S. Chun, S.V. Dzyuba, and R.A. Bartsch, “Influence of Structural Variation in Room-temperature Ionic Liquids on the Selectivity and Efficiency of Competitive Alkali Metal Salt Extraction by a Crown Ether”, *Anal. Chem.*, 73, pp. 3737-3741 (2001).
- 36) H. Luo, J.-F. Huang, and S. Dai, “Solvent Extraction of Sr²⁺ and Cs⁺ using Protic Amide-Based Ionic Liquids”, *Sep. Sci. Technol.*, 45, pp. 1679-1688 (2010).
- 37) P.-Y. Chen and C.L. Hussey, “Electrochemistry of Ionophore-coordinated Cs and Sr Ions in the Tri-1-butylmethylammonium Bis((trifluoromethyl) sulfonyl) imide Ionic Liquid”, *Electrochim. Acta*, 50, pp. 2533-2540 (2005).
- 38) P.-Y. Chen, “The Assessment of Removing Strontium and Cesium Cations from Aqueous Solutions Based on the Combined Methods of Ionic Liquid Extraction and Electrodeposition”, *Electrochim. Acta*, 52, pp. 5484-5492 (2007).