

Ce(III)의 산화 및 선택적 용매추출에 의한 Ce과 Eu의 상호분리

Valence control of Ce(III) and mutual separation of Ce and Eu by solvent extraction

양한범, 정동용, 이일희, 박용준, 김도양, 유재형

한국원자력연구소
대전 광역시 유성구 덕진동 150

요 약

방사성 액체폐기물에 함유되어 있는 란탄족원소중에서 Ce(III)과 Eu(III)를 선택하여 Ce(III)→Ce(IV)의 산화 조건과 추출제 DEHPA, Zr 함침 DEHPA 및 TBP를 사용하여 Ce(IV)의 선택적 추출에 의한 Eu(III)와의 상호분리에 대해 HNO₃ 용액에서 Ce(III)의 산화제로 (NH₄)₂S₂O₈을 사용하고 촉매제로 AgNO₃를 사용하여 실험하였다. HNO₃ 농도가 1M에서 8M로 증가할수록 Ce(IV)의 생성율은 감소하였으며, 산화제 (NH₄)₂S₂O₈의 경우 농도가 0.1M 이상 되면 Ce(IV)의 생성율이 최대가 된다. 그러나 촉매 AgNO₃의 농도에 대한 영향은 1×10^{-2} M 일때 Ce(IV)의 생성율이 최대값을 나타냈다. 추출제에 대한 Ce(III)/(IV)의 추출율은 Zr 함침 DEHPA ≥ DEHPA > TBP 순서였으며, 2M HNO₃ 이하에서 Ce(III)을 Ce(IV)으로 산화시킨 다음 5M HNO₃ 이상에서 DEHPA, Zr 함침 DEHPA 또는 TBP로 추출하고 H₂O₂와 같은 환원제를 사용하여 역추출하면 Ce과 Eu의 효과적인 상호분리가 가능하다고 판단된다. 방사성 액체폐기물에 함유되어 있는 란탄족 및 Am의 산화상태 조절에 의한 상호분리연구에 기초자료로 활용될 수 있다.

Abstract

Fundamental investigations on preparation of Ce(IV) in nitric acid solutions were carried out in order to selective extraction of Ce(IV) as a first step the Am/lanthanide separation. Ce(III) is oxidized into Ce(IV) in the presence of oxidant, (NH₄)₂S₂O₈, and with a catalyst, AgNO₃, in nitric acid solution. The yield of Ce(IV) decreased with increased HNO₃ concentrations and (NH₄)₂S₂O₈ concentration up to 0.1M. The maximum yield of Ce(IV) was found in the 0.01M concentration of AgNO₃. The sequence of effective extractants for the Ce extraction yields were Zr-DEHPA ≥ DEHPA > TBP. Oxidation of Ce(III) to Ce(IV) was performed below the 2M HNO₃ and Ce(III)/Ce(IV) extracted with 1M DEHPA, Zr-1M DEHPA and 1M TBP in above the 5M HNO₃. Finally, extracted Ce(III)/Ce(IV) in organic solvent was stripped with reductant H₂O₂/HNO₃ solution. These results could be use in the development of mutual separation process of Am and lanthanide elements contained in the radioactive liquid waste solution.