

## 모의 방사성폐액에서의 개미산 탈질속도 연구

이 일 희 · 황 두 성 · 김 광 욱 · 권 선 길 · 유 재 형

한국원자력연구소

(1996년 11월 7일 접수, 1997년 1월 8일 채택)

### Denitration Kinetics by Formic Acid in the Simulated Radwaste Solution

E. H. Lee, D. S. Whang, K. W. Kim, S. G. Kwon, and J. H. Yoo

Korea Atomic Energy Research Institute, Yusung P. O. Box 105, Taejeon 305-600, Korea

(Received November 7, 1996, Accepted January 8, 1997)

**요 약 :** 본 연구는 Nd, Pd, Ru, Zr, Mo 및 Fe 이 함유된 6성분계의 모의 방사성폐액을 대상으로 개미산 탈질에 의한 질산과 개미산의 분해속도 및 탈질 반응기구(mechanism)의 규명에 주안점을 두었다. 모든 실험은 반응온도 90℃, 희분식계로 고정하여 수행하였으며, 초기 질산농도 1, 2, 3, 5M 및  $[HCOOH]/[HNO_3]=1.25, 1.5, 1.75, 2.0$ 에서 각각 탈질 시간을 330분까지 변화시켰다. 질산 및 개미산의 분해속도식은 각각 다음과 같으며,

$$\frac{d[HNO_3]}{dt} = -4.842 \times 10^{-2} [HNO_3][HCOOH], \quad \frac{d[HCOOH]}{dt} = -8.911 \times 10^{-2} [HNO_3][HCOOH]$$

본 연구에서 제안한 반응기구는 초기 질산농도 2~5M 및  $[HCOOH]/[HNO_3]=1.25\sim 2.0$ 의 범위에서 비교적 실험치와 이론치가 잘 일치하여, 이의 적용 타당성을 확인할 수 있었으나, 초기 질산농도 1M에서는 본 모델식에서 벗어나 다른 반응기구에 의해 분해됨을 추측할 수 있었다.

**Abstract:** This study was carried out to examine the kinetics and reaction mechanism of denitration with formic acid in the simulated radwaste solution containing 6 components such as Nd, Pd, Ru, Zr, Mo and Fe. All experiments were performed with the changes of initial nitric acid concentration, molar ratio of formic acid to nitric acid, and denitration time at 90℃ and a batch system. As results, destruction rate of nitric acid and formic acid was obtained as follows, respectively.

$$\frac{d[HNO_3]}{dt} = -4.842 \times 10^{-2} [HNO_3][HCOOH], \quad \frac{d[HCOOH]}{dt} = -8.911 \times 10^{-2} [HNO_3][HCOOH]$$

It was confirmed that denitration with formic acid was controlled by reaction mechanism suggested this study in the range of the initial nitric acid of 2~5M and  $[HCOOH]/[HNO_3]$  of 1.5~2.0. In the 1M initial nitric acid, however, it was found that the nitric acid and the formic acid were decomposed by a different reaction mechanism.

#### 1. 서 론

고준위 방사성 액체폐기물(high-level radioactive liquid waste : HLLW)의 처분안전성 향상과 원자력

에 대한 대국민 이해증진 및 원자력의 평화적 이용기술 개발 차원에서 균분리/소멸처리(partitioning and transmutation : P-T) 연구가 원자력 선진국을 중심으로 활발하게 수행되고 있다[1, 2]. HLLW에는 약

티나이드원소(minor actinides : MA), 희토류원소 (rare earths elements : RE), 부식생성물 및 기타 핵분열생성물(fission product : FP) 등이 함유되어 있다. 이들 화학적 특성이 유사한 핵종군(group), 즉, MA군, Cs 및 Sr군, 백금족 원소군(platinum group metals : PGM) 및 기타 원소군 등의 군으로 묶어 분리하는 것을 군분리라고 하며, 일반적으로 이온교환법, 침전/결정화법 및 용매추출법 등의 다양한 단위공정(unit process)들을 서로 조합하여 수행하고 있다.

개미산(formic acid)에 의한 탈질(denitration)은 군분리공정의 전처리 과정으로 산도의 저감화와 MA 및 MA와 거의 화학적 성질이 같은 RE 원소군의 침전을 피하면서 공정 전반에서 문제 핵종으로 작용하는 Zr, Mo와 일부분의 Fe를 공침전하여 제거하는 것을 주 목적으로 하고 있다. 이는 HLLW의 질산농도가 재처리의 조업조건에 따라 2~7M까지 다양하게 발생되므로, MA군 및 RE군을 분리하기 위한 후속공정 즉, 용매추출시 추출제(유기인산 계열)의 추출능이 최대로 작용하는 0.5M 이하의 질산농도로 감소시키는 것과 추출장치(mixer settler 등)에 의한 연속 운전시 조업상에서 문제점을 야기시키는 제3상(third phase) 형성 및 유상화(emulsification) 등에 직·간접으로 영향을 미치는 핵종을 미리 제거하는 것이다[3-5].

개미산 탈질에 대한 연구로는 질산 및 개미산의 농도를 각각 구분하지 않고 탈질 후 용액내 총 산도 관점에서의 산도 감소화 경향, 탈질시 가수분해에 의한 각 원소의 침전지동, 반응계에 따르는 침전물의 여과 특성 규명 등 많은 연구가 수행되었으나[3-8], 탈질 장치의 설계 및 scale-up시 요구되는 탈질속도에 관한 연구는 거의 미미한 실정이며[9-14], 지금까지 발표된 연구 또한 실험에 의한 반경험식을 유도하는 수준이다. 특히 탈질 반응기구(reaction mechanism)의 규명에 대한 연구로는 실제 HLLW를 대상으로 수행한 Orebaugh[15]의 연구와 이를 근간으로 하여 Burrill[16]이 제시한 수학적 모델링 정도이다.

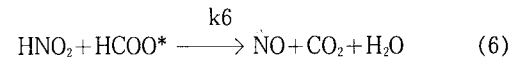
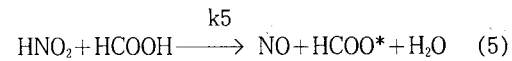
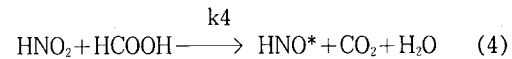
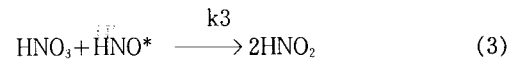
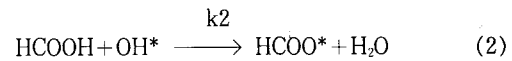
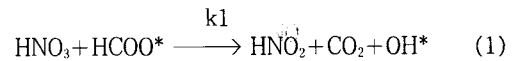
본 연구는 전 연구에서 얻어진 결과[6, 7]를 바탕으로, 탈질장치의 설계 및 scale-up시 요구되는 기본 자료를 확보하기 위하여, 질산 및 개미산의 분해속도와 탈질 반응기구를 규명하는데 주안점을 두었다. 실험은 초기 질산농도 1~5M 범위에서 각각 제조된 6성분계의 모의 방사성폐액을 대상으로, 개미산과 질

산의 몰비(molar ratio)를 변화시키면서 수행하였다.

## 2. 이론적 고찰

본 연구에서 설정한 개미산 탈질반응 기구는 질산을 분해하기 위해서 아질산(HNO<sub>2</sub>)의 생성과 이의 분해반응이 필요하다는 Orebaugh[15]가 제시한 반응을 근간으로 하였다.

고산도 영역에서는 식(1)과 (2)와 같은 Formate radical 반응에 의해, 탈질이 진행됨에 따라 산도가 감소되는 저산도 영역에서는 식(3)과 같은 HNO\* radical 반응에 의해 아질산이 생성되고, 식(4), (5) 및 (6)에 의해 아질산이 분해된다고 가정하였다.



탈질장치내 용액의 부피는 일정하다고 가정하면, 상기식의 각 화학종(species)에 따르는 물질수지는 다음과 같다.

$$\frac{d[\text{HNO}_3]}{dt} = -k_1[\text{HNO}_3][\text{HCOO}^*] - k_3[\text{HNO}_3][\text{HNO}^*] \quad (7)$$

$$\frac{d[\text{HCOOH}]}{dt} = -k_2[\text{HCOOH}][\text{OH}^*] - k_4[\text{HNO}_2][\text{HCOOH}] - k_5[\text{HNO}_2][\text{HCOOH}] \quad (8)$$

$$\frac{d[\text{HNO}_2]}{dt} = k_1[\text{HNO}_3][\text{HCOO}^*] + 2k_3[\text{HNO}_3][\text{HNO}^*] - k_4[\text{HNO}_2][\text{HCOOH}] - k_5[\text{HNO}_2][\text{HCOOH}] - k_6[\text{HNO}_2][\text{HCOO}^*] \quad (9)$$

$$\frac{d[\text{HCOO}^*]}{dt} = -k_1[\text{HNO}_3][\text{HCOO}^*] + k_2[\text{HCOOH}][\text{OH}^*] + k_3[\text{HNO}_2][\text{HCOOH}] - k_6[\text{HNO}_2][\text{HCOO}^*] \quad (10)$$

$$\frac{d[\text{HNO}_3]}{dt} = -k_3[\text{HNO}_3][\text{HNO}^*] + k_4[\text{HNO}_2][\text{HCOOH}] \quad (11)$$

$$\frac{d[\text{OH}^*]}{dt} = -k_1[\text{HNO}_3][\text{HCOO}^*] - k_2[\text{HCOOH}][\text{OH}^*] \quad (12)$$

그리고 중간생성물 즉, free radical의 농도는 매우 작고, free radical 및 아질산이 정상 상태(steady-state)에 매우 빨리 도달한다고 가정하면,

$$\frac{d[\text{HCOO}^*]}{dt} \approx 0, \quad \frac{d[\text{HNO}^*]}{dt} \approx 0, \quad \frac{d[\text{OH}^*]}{dt} \approx 0, \quad \frac{d[\text{HNO}_2]}{dt} \approx 0 \quad (13)$$

식(9), (10), (11), (12)으로부터,  $[\text{OH}^*]$ ,  $[\text{HCOO}^*]$ ,  $[\text{HNO}^*]$  및  $[\text{HNO}_2]$ 가 얻어진다.

$$\begin{aligned} [\text{OH}^*] &= \frac{k_1 k_5}{k_2 k_6} [\text{HNO}_3], \quad [\text{HCOO}^*] = \frac{k_5}{k_6} [\text{HCOOH}] \\ [\text{HNO}^*] &= \frac{k_4}{k_3} \frac{[\text{HNO}_2][\text{HCOOH}]}{[\text{HNO}_3]} \\ [\text{HNO}_2] &= \frac{k_1 k_5}{k_6(2k_5 - k_4)} [\text{HNO}_3] \end{aligned} \quad (14)$$

식(14)를 식(7) 및 식(8)에 각각 대입하여 정리하면 다음과 같다.

$$\frac{d[\text{HNO}_3]}{dt} = -A[\text{HNO}_3][\text{HCOOH}] \quad (15)$$

$$\frac{d[\text{HCOOH}]}{dt} = -B[\text{HNO}_3][\text{HCOOH}] \quad (16)$$

$$\text{여기서 } A = \frac{k_1 k_5}{k_6} \left\{ 1 + \frac{k_4}{(2k_5 - k_4)} \right\},$$

$$B = \frac{k_1 k_5}{k_6} \left\{ 1 + \frac{(k_4 + k_5)}{(2k_5 - k_4)} \right\}$$

질산과 개미산의 분해 속도식이 각 화학종의 반응 속도 상수 항으로만 표현된다. 식 (15)를 식(16)으로 나누어 재정리하면 다음과 같다.

$$\frac{d[\text{HNO}_3]}{d[\text{HCOOH}]} = \frac{A}{B} \quad (17)$$

식(17)을  $[\text{HNO}_3]_0 \rightarrow [\text{HNO}_3]$ ,  $[\text{HCOOH}]_0 \rightarrow [\text{HCOOH}]$  영역까지 적분하면 다음과 같이  $[\text{HNO}_3]$ 가 구해진다.

$$[\text{HNO}_3] = \frac{A}{B} \{ [\text{HCOOH}] - [\text{HCOOH}]_0 \} + [\text{HNO}_3]_0 \quad (18)$$

여기서  $[\text{HNO}_3]_0$ ,  $[\text{HCOOH}]_0$ : 각각 질산과 개미산의 초기 농도

식(18)을 식(16)에 대입하여 정리하면 다음과 같은 미분식으로 표현된다.

$$\frac{d[\text{HCOOH}]}{dt} = -A[\text{HCOOH}]^2 - C[\text{HCOOH}] \quad (19)$$

여기서  $C = B[\text{HNO}_3]_0 - A[\text{HCOOH}]_0$

식(19)에 경계조건 즉,  $t=0$ ,  $[\text{HCOOH}] = [\text{HCOOH}]_0$ 를 적용하여 적분하면, 다음과 같이  $[\text{HCOOH}]$ 가 얻어진다.

$$[\text{HCOOH}] = \frac{DC}{\text{Exp}(Ct) - DA} \quad (20)$$

$$\text{여기서 } D = \frac{[\text{HCOOH}]_0}{A[\text{HCOOH}]_0 + C}$$

## 2. 실험

### 2.1. 모의용액 제조 및 실험방법

모의용액은 전 연구[6, 7]와 같이 MA/RE의 대표 원소로 Nd, 백금족 원소로 Pd 및 Ru 그리고 탈질시 주요 제거대상 핵종인 Zr과 Mo 외에 후속 용매추출 공정에서 문제 핵종으로 작용하는 Fe 등이 함유된 6 성분계로 구성되어 제조하였다. 그리고 용액제조 시 사용된 시약은 특급 시약으로 기타의 정제과정 없이 직접 이용하였으며, 모든 실험은 반응온도 90°C 및 회분식계에서 전 연구와 동일하게 수행하였다. 모의용액의 화학적 조성 및 실험조건은 각각 Table 1과 Table 2와 같다.

### 2.2. 분석

탈질 용액내 질산과 개미산의 농도는 0.1N NaOH를 적정용액으로 이용하여, 자동 적정 분석기(model: Metrohm 716 DMS Titrino)로 각각의 수소이온( $\text{H}^+$ ) 농도를 분석하여 측정하였다. 강산과 약산이 같이 함유된 혼합산의 경우 강산이 먼저 적정된 후,

Table 1. Chemical Compositions of Simulated Solution

Element		Compound	Composition, (M)*
MA/RE	Nd	Nd(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> ·9H <sub>2</sub> O	0.127
PGM	Pd	Pd(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	0.018
	Ru	Ru(NO)(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	0.034
FP	Zr	ZrO(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> ·2H <sub>2</sub> O	0.069
	Mo	(NH <sub>4</sub> ) <sub>6</sub> Mo <sub>7</sub> O <sub>24</sub> ·4H <sub>2</sub> O	0.069
	Fe	Fe(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> ·9H <sub>2</sub> O	0.038

\*: this values were based on the assumption that LWR fuel burned up to 28,000MWD/tU was processed.

Table 2. Experimental Parameters and Their Ranges

Parameter	Range
Initial concentration of HNO <sub>3</sub> (M)	1, 2, 3, 5
[HCOOH]/[HNO <sub>3</sub> ], (-)	1.25, 1.5, 1.75, 2.0
Sampling time, (min)	10, 20, 30, 60, 90, 150, 210, 330

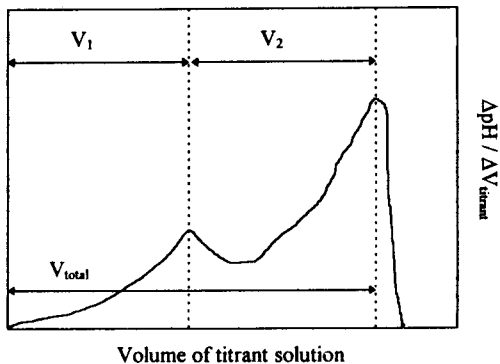


Fig. 1. The typical derivative curve of titration displayed in this study.

약산이 그후에 적정되는데, 통상 질산의 종말점은 pH 2~3이고, 개미산의 경우는 pH 3~5의 범위이다. Fig. 1은 적정용액에 따른 ΔpH/ΔV<sub>titrant</sub>를 나타낸 하나의 예로서, 곡선의 peak는 각각 질산과 개미산의 당량점을 나타내며, 다음식에 의해 질산과 개미산의 농도를 계산하였다.

질산 농도 (N) :

$$0.1 \times V_1 = N \times \text{채취시료 부피} \quad (21)$$

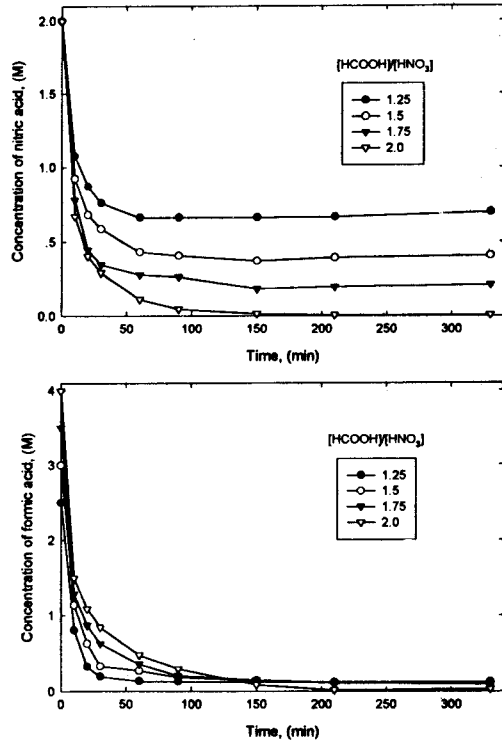


Fig. 2. Concentrations of [HNO<sub>3</sub>] and [HCOOH] with denitration time for different molar ratios of [HCOOH]/[HNO<sub>3</sub>] at [HNO<sub>3</sub>]<sub>0</sub>=2M.

개미산 농도 (F) :

$$0.1 \times (V_{\text{total}} - V_1) = F \times \text{채취시료 부피} \quad (22)$$

### 3. 결과 및 고찰

#### 3. 1. 질산 및 개미산 분해

일반적으로 개미산 탈질시 질산 및 개미산의 분해율(destruction yield)은 [HCOOH]/[HNO<sub>3</sub>]의 비가 증가함에 따라 질산은 완전히 분해되나, 개미산은 과잉(excess)으로 첨가되어 탈질 후에도 상당량이 용액내에 잔존하고 있는 경향이다. Fig. 2는 초기 질산 농도 2M, [HCOOH]/[HNO<sub>3</sub>]=1.25, 1.5, 1.75, 2.0에서 탈질시간 변화에 따르는 질산과 개미산의 농도 변화를 나타낸 것으로, 질산의 경우 [HCOOH]/[HNO<sub>3</sub>]의 비가 증가함에 따라 분해가 증가하며, [HCOOH]/[HNO<sub>3</sub>]=2에서는 완전히 분해되고 있다. 이는 [HCOOH]/[HNO<sub>3</sub>]의 비가 증가함에 따라 개미산이 과잉으로 첨가되어 질산이 완전히 분해되는데 기

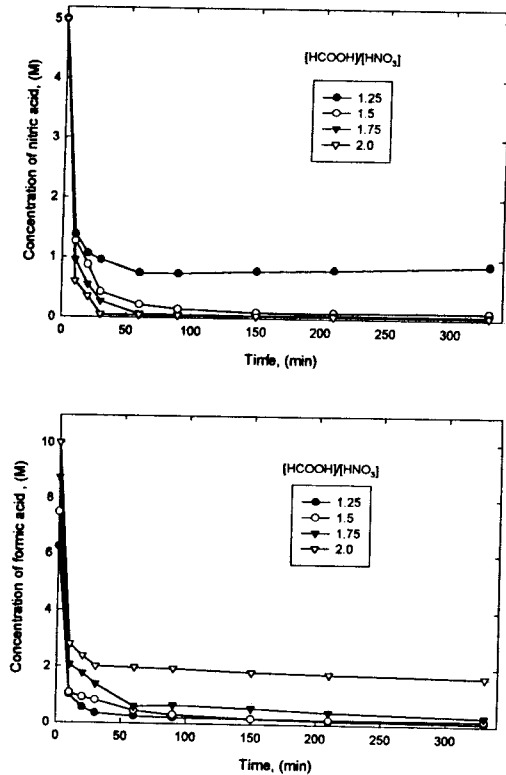


Fig. 3. Concentrations of  $[HNO_3]$  and  $[HCOOH]$  with denitration time for different molar ratios of  $[HCOOH]/[HNO_3]$  at  $[HNO_3]=5M$ .

인한다. 반면에 개미산은 탈질시간 100분 이내에는 상기 개미산 분해의 일반적인 경향을 보여주고 있으나, 150분 이상에서는  $[HCOOH]/[HNO_3]$ 의 비에 무관하게 거의 일정하게 나타나고 있다. 특히  $[HCOOH]/[HNO_3]=2$ 의 경우 과잉의 개미산이 첨가됨에도 불구하고,  $[HCOOH]/[HNO_3]=1.25$ 보다 개미산의 농도가 적게 나타난 것은 실험오차에 기인하는 것 같으며,  $[HCOOH]/[HNO_3]=1.25, 1.5, 1.75$ 의 경우는 각각의 농도 차이가 극히 미세하여 상기와 같이 나타난 것 같다.

Fig. 3은 초기 질산농도 5M,  $[HCOOH]/[HNO_3]=1.25, 1.5, 1.75, 2.0$ 에서 탈질시간 변화에 따르는 질산과 개미산의 농도 변화를 나타낸 것이다. 질산은 2M의 경우와 같은 경향을 보여주고 있으며,  $[HCOOH]/[HNO_3]>1.5$ 에서 완전히 분해되고 있다. 개미산의 경우는  $[HCOOH]/[HNO_3]$ 의 비가 증가함에 따라, 탈질용액 내에 존재하는 개미산의 양이 증가하는 일

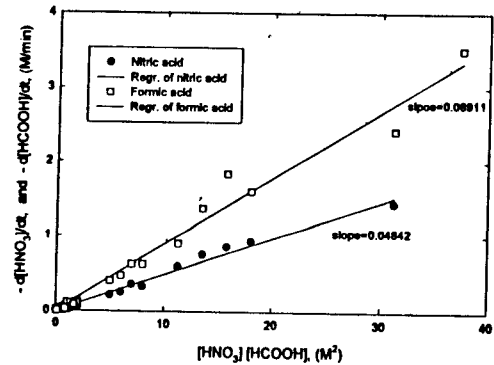


Fig. 4. Destruction rate of  $[HNO_3]$  and  $[HCOOH]$  versus concentration product of  $[HNO_3]$  and  $[HCOOH]$ .

반적인 경향을 보여주고 있는데, 이는  $[HCOOH]/[HNO_3]$ 의 비가 증가함에 따라 개미산이 과잉으로 첨가되어, 질산이 분해된 후에도 개미산이 용액내에 존재하는데 기인한다.

그리고 탈질반응은 탈질시간 30분 이내에 급격히 일어나며, 150분 이상에서는 질산 및 개미산의 농도가 거의 변화하지 않고 있음을 알 수 있다. 이와 같은 결과로부터 본 연구의 탈질 기준인 MA 및 MA와 거의 화학적 성질이 같은 RE 원소군의 공침전을 피하면서 총 산도를 0.5M 이하로 감소시켜 주고, MA와 RE의 상호분리시 나쁜 영향을 미치는 Zr, Mo 및 일부분의 Fe을 공침전하여 제거하는 조건으로 설정한  $[HCOOH]/[HNO_3]=1.5$ , 탈질시간=2.5시간을 만족시켜 주고 있음을 재확인할 수 있다[6, 7].

Fig. 4는 초기 질산농도 1, 2, 3, 5M 및  $[HCOOH]/[HNO_3]=1.25, 1.5, 1.75, 2.0$ 에서 탈질 시간 변화에 따라 Fig. 2와 Fig. 3과 같이 얻어진 각각의 질산 및 개미산의 농도를 미세시간 간격(small time interval)으로 나누어 질산과 개미산의 분해속도를 계산한 후, 이를 질산과 개미산의 농도적(concentration product)의 함수로서 나타낸 것이다. 이들의 기울기로부터 각각의 분해속도 상수를 구하여 다음과 같은 질산과 개미산의 분해 속도식을 얻었다.

$$\frac{d[HNO_3]}{dt} = -4.842 \times 10^{-2} [HNO_3][HCOOH]$$

$$\frac{d[HCOOH]}{dt} = -8.911 \times 10^{-2} [HNO_3][HCOOH]$$

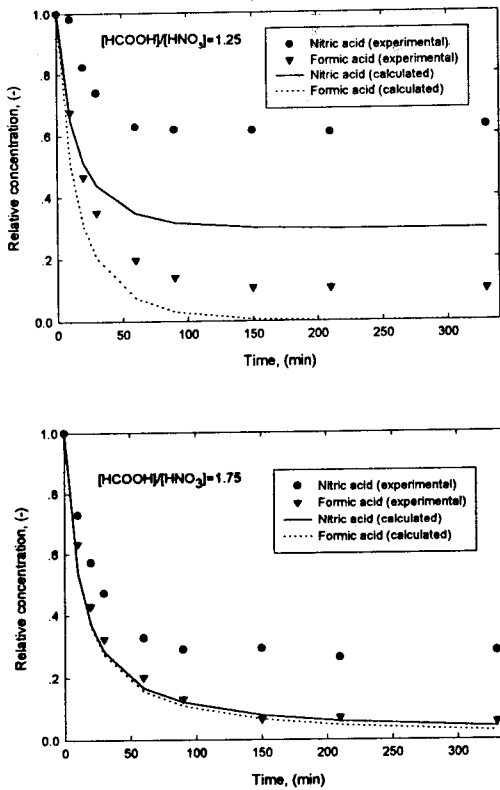


Fig. 5. Comparison of the relative concentration of [HNO<sub>3</sub>] and [HCOOH] calculated by theoretical model with the experimental data at [HNO<sub>3</sub>]<sub>0</sub>=1M.

3. 2. 모델식과의 비교

Fig. 5는 초기 질산농도 1M 및 [HCOOH]/[HNO<sub>3</sub>]=1.25, 1.75에서 얻어진 질산과 개미산의 농도 변화를 상대농도(relative concentration,  $R=C/C_0$ )로 표현하여, 실험치와 이론치를 상호 비교한 것이다. 비록 개미산의 경우는 이론치를 거의 따라가고 있으나, 질산의 경우 이론치와 많은 차이가 나고 있다. 이로 부터 1M의 질산 용액을 대상으로 한 탈질반응은 본 연구에서 설정한 모델식을 만족하지 못하며, 다른 반응기구에 의해 분해되고 있음을 알 수 있다. 이는 질산을 분해하기 위하여 필요한 아질산을 생성하기 위한 반응으로 가정된 식(1)과 식(2)의 반응이 초기질산농도가 낮아 일어나지 못한다에 기인하는 것 같다. 추후 이에 대한 원인 규명이 요구된다.

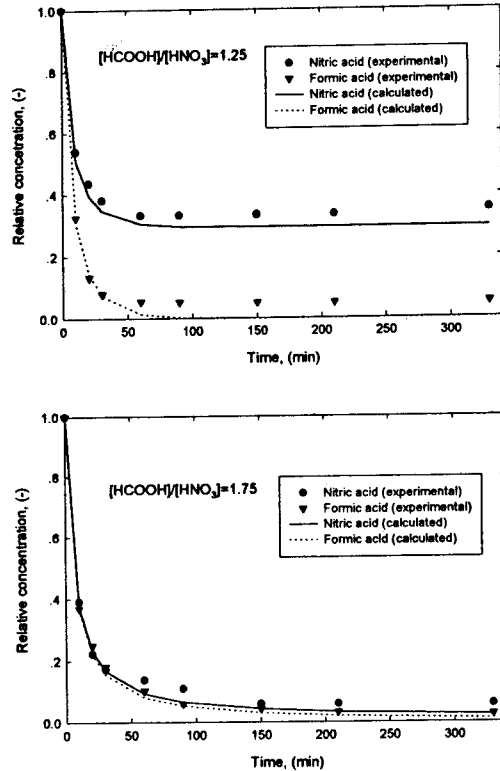


Fig. 6. Comparison of the relative concentration of [HNO<sub>3</sub>] and [HCOOH] calculated by theoretical model with the experimental data at [HNO<sub>3</sub>]<sub>0</sub>=2M.

Fig. 6, 7, 8은 초기 질산농도 2~5M 및 [HCOOH]/[HNO<sub>3</sub>]=1.25~2.0에서 얻어진 각각의 개미산 및 질산농도 변화를 상대농도로 표현하여 실험치와 이론치를 서로 비교한 것으로, 비교적 만족스러운 결과를 얻어 상기 범위에서는 본 연구에서 제시한 탈질 반응기구에 의해 반응이 제어되고 있음과 이의 적용 타당성을 확인할 수 있었다. 비록 상기 모델식이 한정된 범위에서 적용 가능하지만, 고산도(>5M), 중산도(1M~5M) 및 저산도 영역(<1M)으로 나누어 탈질속도식을 표현한 지금까지의 연구결과[9-11]를 한 단계 발전시킨 것으로서, 초기농도 2M의 질산용액을 대상으로 균분리공정의 개발을 추진하고 있는 본 연구팀에서는 HLLW의 전처리 과정인 탈질공정의 장치 설계시 필요한 기본자료 생산에 직접 활용할 수 있을 것으로 판단된다.

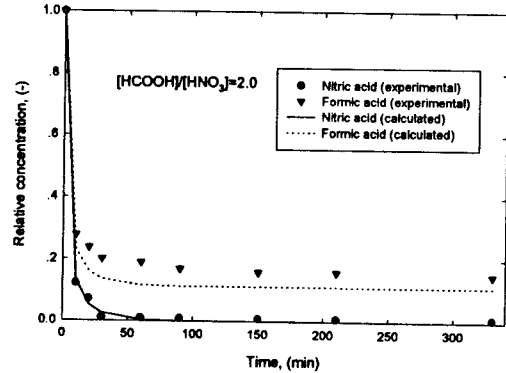
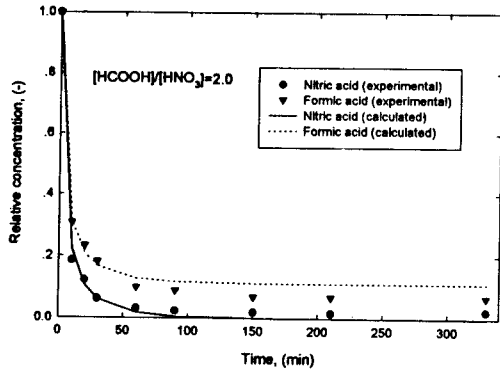
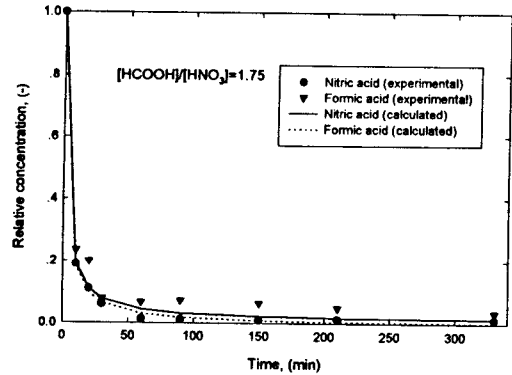
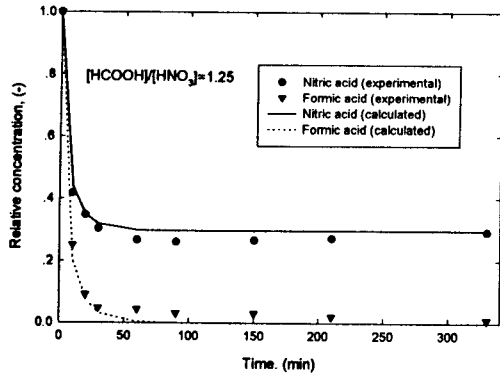


Fig. 7. Comparison of the relative concentration of  $[\text{HNO}_3]$  and  $[\text{HCOOH}]$  calculated by theoretical model with the experimental data at  $[\text{HNO}_3]_0 = 3\text{M}$ .

Fig. 8. Comparison of the relative concentration of  $[\text{HNO}_3]$  and  $[\text{HCOOH}]$  calculated by theoretical model with the experimental data at  $[\text{HNO}_3]_0 = 5\text{M}$ .

#### 4. 결 론

모의 방사성폐액을 대상으로 한 개미산 탈질속도에 관한 연구를 통하여, 질산 및 개미산의 분해속도를 다음과 같이 얻었다.

$$\frac{d[\text{HNO}_3]}{dt} = -4.842 \times 10^{-2} [\text{HNO}_3][\text{HCOOH}]$$

$$\frac{d[\text{HCOOH}]}{dt} = -8.911 \times 10^{-2} [\text{HNO}_3][\text{HCOOH}]$$

또한 초기 질산농도 2~5M 및  $[\text{HCOOH}]/[\text{HNO}_3] = 1.25 \sim 2.0$ 의 범위에서는 실험치와 이론치가 비교적 잘 일치하여, 본 연구에서 제안한 반응기구에 의해 탈질 반응이 제어되고 있으며 이의 적용 타당성을 확인할 수 있었으나, 초기 질산농도 1M에서는 본 모델

식과는 다른 반응기구에 의해 분해되고 있음을 알 수 있었다.

#### 참고문헌

1. C. Apostolidis, J. P. Glatz, and R. Molinet, et al., "Recovery of MA from irradiated SUPERFACT fuels", Global 1995, Versailles, France, 2, 1027(1995).
2. A. Facchin, A. Moccia, and R. Nannicim, et al., "Evaluation of a process flowsheet for long-lived radionuclide partitioning", Global 1995, Versailles, France, 2, 1032(1995).
3. Y. Kondo and M. Kubota, *J. Nucl. Sci. & Technol.*, 29, 140(1992).
4. K. Shirahashi and M. Kubota, *J. Nucl. Sci. &*

- Technol.*, **29**, 559(1992).
5. J. H. Yoo and E. H. Lee, et al., "Development of long-lived radionuclide partitioning technology", KAERI/RR-1632/95(1996).
  6. E. H. Lee, D. S. Hwang, K. W. Kim, Y. J. Shin, and J. H. Yoo, *J. of Korean Ind. & Eng. Chem.*, **6**, 404(1995).
  7. E. H. Lee, D. S. Hwang, K. W. Kim, Y. J. Shin, and J. H. Yoo, *J. of Korean Ind. & Eng. Chem.*, **6**, 882(1995).
  8. R. F. Bradley and C. B. Goodlett, "Denitration of nitric acid solutions by formic acid", DP-1299(1972).
  9. C. J. Saum, L. H. Ford, and N. Blatts, "The denitration of simulated fast reactor high active liquor waste", ND-R-658(1981).
  10. T. V. Healy, *J. Appl. Chem.*, **8**, 553(1958).
  11. J. V. L. Longstaff and K. Singer, *J. Chem. Soc.*, 2610(1954).
  12. H. Nakamura, I. Yamaguchi, and M. Kubota, *J. Nucl. Sci. & Technol.*, **15**, 760(1978).
  13. H. Nakamura, I. Yamaguchi, and M. Kubota, *J. Nucl. Sci. & Technol.*, **16**, 426(1979).
  14. M. Kelm, et al., *Nucl. Tech.*, **51**, 27(1980).
  15. E. G. Orebaugh, "Denitration of Savannah River Plant waste streams", DP-1417(1976).
  16. K. A. Burrill, "Chemical denitration of aqueous nitrate solutions", AECL-9500(1987).