

희토류 원소 분리조건 선정을 위한 대용산화물 이용 자성분리

이재원, 양문상, 박근일, 이정원

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

njwlee@kaeri.re.kr

1. 서론

희토류 원소가 고용된 $(U_{1-x}RE_x)_2O_3$ 소결체를 $500^\circ C$ 에서 $(U_{1-x}RE_x)_3O_8$ 상의 분말로 만든 후 $1,150^\circ C$ 이상으로 고온 산화열처리를 하면, RE 농도가 높은 $(U_{1-y}RE_y)_4O_9$ 상과 RE 함량이 매우 낮은 U_3O_8 형태 상으로 분리된다. 상분리된 입자들은 화학적으로 결합된 상태로 존재하며 이들은 저온 환원산화반응에 의해 상당량의 입자들이 화학적으로 분리되며 밀링에 의해 완전히 분리된다, 이러한 혼합상 분말을 오존처리를 할 경우에 U_3O_8 만이 선택적으로 반응하여 자화율이 매우 낮은 UO_3 로 상변화가 일어나므로 자화율 차이가 매우 큰 혼합상의 분말을 얻을 수 있다. 밀도, 입도, 자성차를 이용 기계적 분리방법을 분석한 결과에 의하면 자성분리가 가장 우수함을 보였다. 따라서 본 연구에서는 희토류 원소의 분리조건 선정을 위해 대용산화물을 이용하여 자성분리를 수행하였다.

2. 실험

실험에 필요한 대용산화물 분말로는 우라늄산화물과 자화율이 거의 동일한 산화물을 Handbook of Chemistry and Physics를 참고하여 선정하였다(표 1). 실험에 사용된 자성분리 장치는 그림 2와 같다. 영구자석(Nd-Fe-B)의 자장은 10,000 Gauss(1 Tesla)로 하였으며 분리조작은 분산매로서 에탄올을 사용하여 회분식으로 하였다. 필터하우징은 비자성의 SUS316 재질, 크기는 W60 x D7 x H120 mm, 내용적은 50 mL로 하여 제작하였다. Gerber의 필터 포집효율 지수법칙에서 자장, 자성필터 재질 및 선경등과 같은 장치변수를 제외하고 자성필터 충전율, 분산매 유속, 입자의 농도를 변수로 선정하여 단일 성분 및 혼합성분 분말의 포집율 및 분리효율을 측정하였다. 대용 혼합성분 분말의 혼합량은 고온산화 상분리 분말의 조성중 금속성분의 몰비를 기준으로 하였다.

3. 결과 및 토론

그림 2는 분산매 유속 1.9 cm/sec, 산화물 농도 2 wt.%로 하여 필터충전율에 따른 단일 성분의 포집율을 나타낸 것이다. 필터충전율이 1.4에서 2.8 vol.% 증가함에 따라 포집율은 1.7~3.5배로 증가하였다. 그림 3은 산화물 농도 2 wt.%, 필터충전율 2.8 vol.%로 하여 분산매 유속에 따른 단일 성분의 포집율을 나타낸 것이다. 분산매 유속이 0.73에서 1.9 cm/sec로 증가함에 따라서 포집율은 지수함수적으로 감소함을 보였다. NiO 분말은 유속 0.73 cm/sec에서 필터 상단의 막힘 현상에 의해서 측정할 수 없었다. 그림 4는 NiO의 포집율이 가장 높은 0.73 cm/sec의 분산매 유속조건에서 농도에 따른 단일 성분의 포집율을 나타낸 것이다. 농도가 1에서 2 wt.%로 증가함에 따라서 포집율은 감소하나 포집무게 관점에서 보면 농도에 의존하지 않음을 알 수 있었다.

NiO/Ti₂O₃=5.3/94.7 wt.%와 NiO/Y₂O₃=3.5/96.5 wt.%의 혼합물에 대한 분리실험은 분산매 유속 0.73 cm/sec, 산화물 농도 1~2 wt.%, 필터충전율 2.8 vol.% 조건에서 수행하였다. 포집율 및 분리효율은 표 2 및 3에 각각 나타내었다. 혼합물의 총포집율도 산화물 농도가 증가함에 따라 감소하나 포집무게는 증가하였다. 단일성분일 때와 달리 NiO의 포집율의 증가는 혼합물중 NiO 농도가 낮음에 의한 것으로 여겨지며, Ti₂O₃와 Y₂O₃의 포집을 감소는 자화율이 높은 NiO의 경쟁적 포집에 의한 것으로 여겨진다. 혼합물중 NiO의 포집율은 88%이상으로 매우 높고, Ti₂O₃보다 자화율이 낮은 Y₂O₃가 포집율이 낮음을 알 수 있었다. 자화율 차가 큰 NiO/Y₂O₃ 혼합물의 경우에 포집물 및 투과물 관점에서 NiO 및 Y₂O₃의 분리효율은 각각 93 wt.%로 높은 분리효율을 보였다(표 3). 최대 분리효율을 보이는 투과물의 금속성분의 조성을 고온 상분리 분말의 조성으로 환산하면 U_{0.645}RE_{0.355}((U_{0.645}RE_{0.355})₄O₉)의 함량비는 0.2 wt.%로 고온 상분리 분말의 4.4 wt.% 보다는 매우 낮으나 포집물에서 U(UO₃)의 함량비는 69.9 wt.%로 높았다. 따라서 자성필터에 UO₃ 포집율을 낮추는 분리조건에 대한 추가 연구가 필요하다.

사 사

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

표 1. 우라늄산화물과 대용산화물의 자화율

| 우라늄산화물 | 우라늄산화물자화율(emu/g) | 대용산화물 | 대용산화물 자화율(emu/g) |
|-------------------------|-----------------------|-----------|-----------------------|
| $(U_{1-y}RE_y)O_{2.1z}$ | 9.49×10^{-6} | NiO | 8.66×10^{-6} |
| U_3O_8 | 1.75×10^{-6} | Ti_2O_3 | 8.70×10^{-7} |
| UO_3 | 1.00×10^{-7} | Y_2O_3 | 1.96×10^{-7} |

표 2. 혼합물중 각 성분의 포집율(wt.%)

| 혼합물 농도 (wt.%) | 단일 성분 농도(wt.%) | | | | 총포집율 | | 단일 성분 포집율 | | | |
|---------------------|----------------|-----------|---------------|----------|-------------------|------------------|----------------|-----------|---------------|----------|
| | NiO/ Ti_2O_3 | | NiO/ Y_2O_3 | | NiO/ Ti_2O_3 | NiO/ Y_2O_3 | NiO/ Ti_2O_3 | | NiO/ Y_2O_3 | |
| | NiO | Ti_2O_3 | NiO | Y_2O_3 | | | NiO | Ti_2O_3 | NiO | Y_2O_3 |
| 1 | 0.053 | 0.947 | 0.035 | 0.965 | 62.1 | 11.9 | 87.6 | 53.2 | 89.7 | 9.4 |
| 2 | 0.106 | 1.894 | 0.07 | 1.93 | 55.6 | 9.8 | 89.3 | 54.8 | 93.2 | 6.8 |

표 3. 분리효율(Es) 및 총괄분리효율 (Es_Total)

| 혼합물 | 농도(wt.%) | 포집율, Es_NiO | 투과율, Es_ Ti_2O_3 또는 Y_2O_3 | Es_Total |
|----------------|----------|-------------|--------------------------------|----------|
| NiO/ Ti_2O_3 | 1 | 80.6 | 38.9 | 31.4 |
| | 2 | 89.3 | 45.2 | 40.4 |
| NiO/ Y_2O_3 | 1 | 81.5 | 90.7 | 73.9 |
| | 2 | 93.2 | 93.2 | 86.8 |

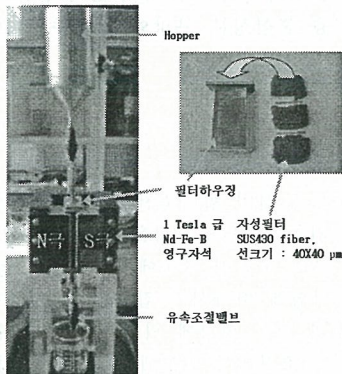


그림 1. 자성분리 장치

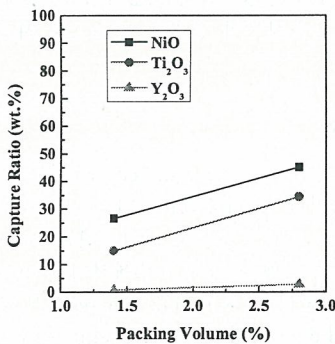


그림 2. 필터충전율에 따른 포집율

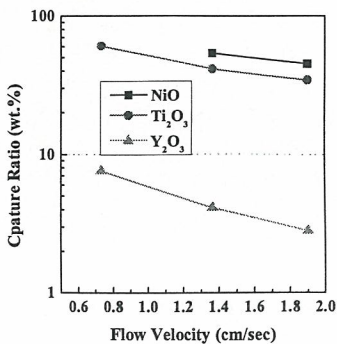


그림 3. 분산매 유속에 따른 포집율

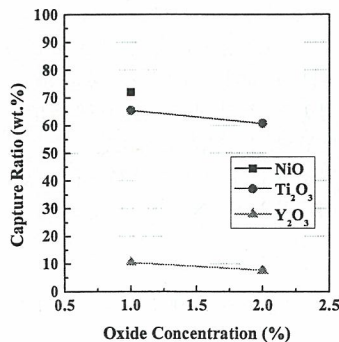


그림 4. 산화물 농도에 따른 포집율