

고온 열처리를 이용한 희토류원소 상분리 조건 평가

이재원, 김청한, 박근일, 이정원
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 niwlee@kaeri.re.kr

1. 서론

희토류 원소(RE)가 고용된 $(U_{1-x}RE_x)O_2$ 소결체를 500°C에서 $(U_{1-x}RE_x)_3O_8$ 상의 분말로 만든 후 1,150°C 이상으로 고온 산화열처리를 하면, RE 농도가 높은 $(U_{1-y}RE_y)_4O_9$ 상과 RE 농도가 매우 낮은 U_3O_8 형태의 상으로 분리된다. 고온 열처리에 의한 희토류 원소 상분리 기술은 3개의 단위기술로 구성된다. 첫 번째는 고온 열처리 온도에 따른 희토류 원소의 농도제어를 하는 상분리 기술, 두 번째는 상분리된 입자들은 서로 화학적으로 결합된 상태로 존재하므로 두 상의 입자들을 분리하는 기술, 그리고 희토류 원소 입자를 제거분리하는 기술로 구성된다. 본 연구에서는 단위 상분리 기술별로 실험을 통해 얻은 자료를 통해 희토류원소 상분리 조건을 평가하였다.

2. 상분리 조건 평가

그림 1은 열처리 온도에 따른 상분리 효율을 나타낸 것으로 SIMFUEL의 연소도, 즉 초기 희토류원소의 농도에 따른 차이가 있지만 온도증가에 따라서 거의 차이가 없었다. 열처리 온도증가에 따라서 $(U_{1-y}RE_y)_4O_9$ 입자크기는 0.5에서 2 μm까지 증가하였다(그림 2(a)).

결합입자를 분리하는 방법으로 분쇄와 같은 물리적 방법과 저온환원·산화에 의한 화학적으로 분리하는 방법이 있는데, 분쇄에 의해서는 결합입자가 쉽게 분리되지 않았다. 저온환원(700°C)·산화(500°C)에서 열처리를 할 경우에 U_3O_8 입자가 증상으로 파쇄됨에 따라서 분리되지 않는 입자들이 많이 관찰되었다. 증상으로 파쇄될 경우에는 결합단면적이 큰 1400°C에서 열처리를 하여 상분리를 하는 것이 바람직함을 알 수 있었다. 저온환원(700°C)·산화(320°C)에서 열처리시에는 U_3O_8 입자가 대부분 파쇄형태로 파쇄되어 결합입자가 보다 높게 분리됨을 보였다. 저온환원·산화처리를 반복함에 따라서 U_3O_8 입자의 반복파쇄에 의해서 결합입자의 분리가 증가하였다(그림 2(b)). 또한 소결성이 좋은 분말 형태를 보였다. 저온환원·산화를 1회만 하고 밀링을 할 경우에 결합입자는 완전히 분리됨을 보였다(그림 2(c)).

밀도, 입도, 자성차를 이용한 기계적 분리방법을 분석한 결과에 의하면 자성분리가 가장 우수함을 보였다. 자화율을 측정한 결과, $(U_{1-y}RE_y)_4O_9$ 의 자화율은 U_3O_8 자화율 보다 약 5배 높았다. 오존처리시에는 U_3O_8 만 UO_3 으로 전환되며 자화율이 약 90배 차이로 증가되는 분말을 제조할 수 있었다(그림 3). 고구배 자성분리효율에 미치는 영향을 자화율이 거의 동일한 대용산화물($NiO : (U_{1-y}RE_y)_4O_9, Y_2O_3 : UO_3$)을 이용하여 고구배자성분리 실험을 한 결과, NiO 및 Y_2O_3 의 분리효율은 각각 93%였다.

3. 공정조건 설정

상분리 조건을 평가한 결과, 공정조건은 2개로 압축할 수 있다(그림 4). 공정 I는 결합입자를 완전히 분리되나, 응집(agglomerate)분말이 형성되므로 자성분리에 앞서 전처리가 요구된다. 공정 II는 결합입자는 완전히 분리되지 않으나 응집분말이 형성되지 않는 장점이 있다.

사 사

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

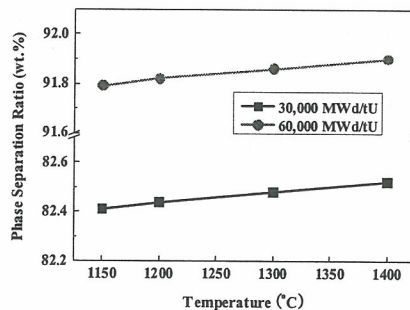
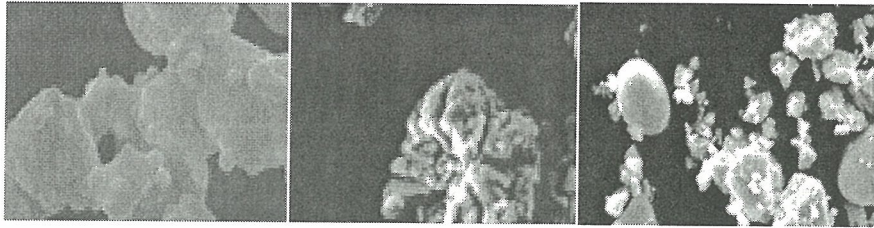


그림 1. 열처리 온도에 따른 상분리율



(a) 상분리 분말

(b) 반복 열처리

(c) 열처리후 밀링

그림 2. 결합입자 분리

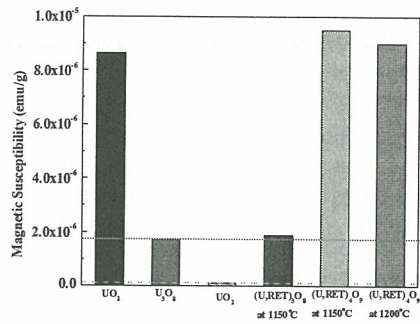


그림 3. 상분리 분말의 자화율

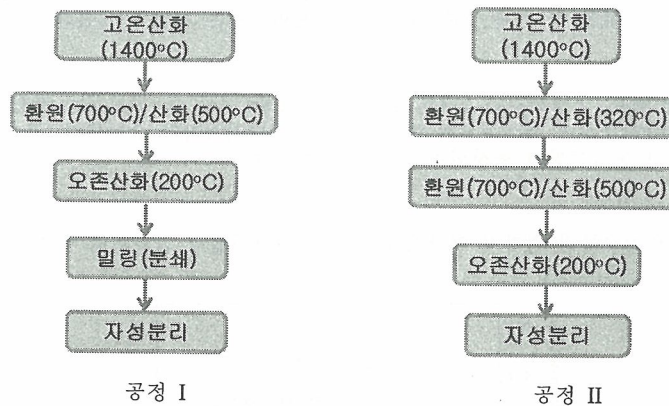


그림 4. 고온 열처리 희토류원소 상분리 공정