(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2017년07월26일
(11) 등록번호 10-1761621
(24) 등록일자 2017년07월20일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
*C25C 7/00* (2006.01) *C25C 3/34* (2006.01)
*C25C 7/02* (2006.01) *G21C 19/42* (2006.01)
(52) CPC특허분류
*C25C 7/005* (2013.01)
*C25C 3/34* (2013.01)
(21) 출원번호 10-2016-0132579
(22) 출원일자 2016년10월13일
심사청구일자 2016년10월13일
(56) 선행기술조사문헌
KR1020080097138 A*
JP10236896 A*
KR1020140027841 A*
*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자
**충남대학교산학협력단**
대전광역시 유성구 대학로 99 (궁동, 충남대학교)
(72) 발명자
**이종현**
세종특별자치시 장군면 전원마을2길 64
**김대영**
세종특별자치시 조치원읍 도장말길 45, 506호 삼정하이츠
**황일순**
서울특별시 서초구 서초중앙로2길 48 햄튼코트 501호
(74) 대리인
**특허법인 플러스**

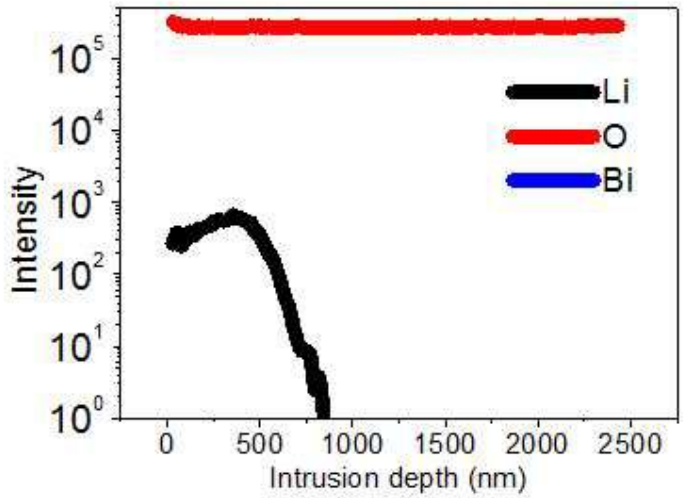
전체 청구항 수 : 총 5 항 심사관 : 김대영

(54) 발명의 명칭 **전해제련 공정의 액체금속 음극용 도가니 및 이를 이용한 전해 제련 방법**

## (57) 요 약

본 발명은 사용후핵연료의 파이로공정 중, 액체금속 음극을 담지하거나 액체금속 음극을 이송하는 파이로 공정의 액체금속 음극용 도가니에 관한 것으로, 본 발명에 따른 액체금속 음극용 도가니는, 적어도, 액체금속 음극과 접촉하는 내측 표면이 산화스칸듐 표면인 특징이 있다.

*대 표 도* - 도4



(52) CPC특허분류
*C25C 7/02* (2013.01)
*G21C 19/42* (2013.01)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업
과제고유번호 2011-0031846
부처명 미래창조과학부
연구관리전문기관 한국연구재단
연구사업명 원자력연구개발사업
연구과제명 파이로 반응 용기 재료 신뢰성 연구
기 여 율 1/1
주관기관 서울대학교
연구기간 2014.06.01 ~ 2015.05.31
공지예외적용 : 있음

# 명 세 서

## 청구범위

### 청구항 1

비스무스를 함유하는 액체금속 음극을 담지하는 도가니이며, 산화스칸듐으로 이루어지고, 소결 밀도가 산화스칸듐 이론 밀도의 95%이상이며, 열린 기공률이 3%이하인 파이로공정의 액체금속 음극용 도가니.

### 청구항 2

제 1항에 있어서,

상기 도가니는 상부가 개방된 함체 형상인 액체금속 음극용 도가니.

### 청구항 3

삭제

### 청구항 4

삭제

### 청구항 5

삭제

### 청구항 6

제 1항 또는 제 2항에 따른 도가니를 액체금속 음극의 이송수단으로 사용하는 액체금속 음극의 이송방법.

### 청구항 7

삭제

### 청구항 8

평균 입자크기가 10 내지 300nm인 산화스칸듐 분말을 상부가 개방된 함체 형상으로 가압 성형한 후, 성형된 성형체를 소결하여, 산화스칸듐으로 이루어지고, 소결 밀도가 산화스칸듐 이론 밀도의 95%이상이며, 열린 기공률이 3%이하인 도가니를 제조하는 단계를 포함하는 파이로공정의 액체금속 음극용 도가니의 제조방법.

### 청구항 9

제 8항에 있어서,

상기 소결은 산화스칸듐의 녹는점인 Tm(℃)을 기준으로, 0.6 내지 0.9 Tm에서 수행되는 파이로공정의 액체금속 음극용 도가니의 제조방법.

## 발명의 설명

### 기 술 분 야

[0001] 본 발명은 사용후 핵연료의 건식 처리 공정인 파이로공정(Pyroprocessing)의 전해 제련 공정에 사용되는 액체금속 음극용 도가니 및 이를 이용한 파이로 공정의 전해 제련 방법에 관한 것으로, 상세하게, 액체금속 음극 물질과의 반응성이 낮아, 안정성이 높고, 장기간 사용할 수 있으며, 사용후 핵연료의 처리시 연속 공정을 가능하게 하고, 핵 폐기물의 발생을 억제할 수 있는 전해제련 공정의 액체금속 음극용 도가니 및 이를 이용한 전해 제련

방법에 관한 것이다.

## 배 경 기 술

[0002] 미국, 프랑스, 일본, 러시아와 같은 나라들은 원자력 발전소에서 사용한 사용후 핵연료를 습식법인 질산과 용매 추출법을 이용해 재활용하고 있다. 순수한 플루토늄을 추출할 수 있는 습식법의 대체방법인 파이로공정은 물질의 전기화학성질을 이용한 세계적으로 이미 잘 알려진 핵확산 저항성을 가진 방법이다.

[0003] 파이로공정중에서 전해제련공정은 액체금속 음극을 사용하여 사용후 핵연료 원소중의 초우라늄 및 희토류물질을 회수하는 방법이다. 액체금속 음극을 사용하여 초우라늄물질을 회수하기 때문에 도가니 재료는 전기적으로 절연되어야 한다. 또한 용융염과의 화학적 안정성은 물론 환원추출시 액체금속의 영향도 고려해야 한다.

[0004] 전기적으로 절연된 세라믹 용기인 도가니는 초우라늄, 희토류 물질을 포함하고 있는 액체금속 음극물질을 담지하고 있다. 액체금속 음극물질은 도가니 재료와 화학적으로 반응성이 커, 도가니는 액체금속 음극물질 및 란타나이드, 악티나이드 물질과의 반응에 의해 손상되고, 이러한 물질들은 도가니 내부로 지속적으로 침투하여 화학적 반응을 가속시킨다. 도가니 내부로 침투된 물질은 도가니를 파괴시키게 되어 연속공정에 문제를 줄 뿐만 아니라 매 공정 마다 핵폐기물의 양을 증가시킨다.

[0005] 그러나, 대한민국 공개특허 제2014-0027841호와 같이, 종래의 전해제련 공정 관련 연구는, 전해제련 장치의 처리용량 증대, 처리효율 증진 및 공정운전의 연속성과 같은 공정의 개발이 주가 되고 있으며, 실질적인 연속 공정을 가능하게 하는 저 반응성의 도가니 재료에 대한 연구는 거의 이루어지지 않은 실정이다.

## 선행기술문헌

### 특허문헌

[0006] (특허문헌 0001) 대한민국 공개특허 제2014-0027841호

## 발명의 내용

### 해결하려는 과제

[0007] 본 발명의 목적은 액체금속 음극과의 반응성이 억제된 파이로공정의 액체금속 음극용 도가니 및 이의 제조방법을 제공하는 것이며, 이를 이용한 파이로 공정의 전해 제련 방법 및 이를 이용한 액체금속 음극의 이송방법을 제공하는 것이다.

### 과제의 해결 수단

[0008] 본 발명에 따른 도가니는, 파이로공정의 액체금속 음극용 도가니이며, 적어도, 액체금속 음극과 접촉하는 내측 표면이 산화스칸듐 표면인 특징이 있다.

[0009] 본 발명의 일 실시예에 있어, 도가니는 상부가 개방된 함체 형상의 본체; 및 적어도 본체의 내측 표면을 덮는 산화스칸듐 표면층;을 포함할 수 있다.

[0010] 본 발명의 일 실시예에 있어, 상기 도가니는 산화스칸듐일 수 있다.

[0011] 본 발명의 일 실시예에 있어, 산화스칸듐 표면(도가니 내측 표면)을 형성하는 산화스칸듐은 소결 밀도가 95%이상이며, 열린 기공률이 3%이하일 수 있다.

[0012] 본 발명의 일 실시예에 있어, 도가니는 산화스칸듐 소결체일 수 있다.

[0013] 본 발명의 일 실시예에 있어, 액체금속 음극은 비스무스를 포함할 수 있다.

[0014] 본 발명은 상술한 도가니를 액체금속 음극의 도가니로 이용하는 파이로공정의 전해제련 방법을 포함한다.

[0015] 본 발명은 상술한 도가니를 액체금속 음극의 이송수단으로 사용하는 액체금속 음극의 이송방법을 포함한다.

[0016] 본 발명은 상술한 파이로공정의 액체금속 음극용 도가니의 제조방법을 포함한다.

[0017] 본 발명에 따른 파이로공정의 액체금속 음극용 도가니의 제조방법은, 산화스칸듐 분말을 소결하여 도가니를 제

조하는 단계를 포함한다.

[0018] 본 발명의 일 실시예에 따른 제조방법은, 평균 입자크기가 10 내지 300㎚인 산화스칸듐 입자를 상부가 개방된 함체 형상으로 가압 성형한 후, 성형된 성형체를 소결하는 단계를 포함할 수 있다.

[0019] 본 발명의 일 실시예에 따른 제조방법에 있어, 소결은 산화스칸듐의 녹는점인 Tm(℃)을 기준으로, 0.6 내지 0.9 Tm에서 수행될 수 있다.

[0020] 본 발명의 일 실시예에 따른 제조방법에 있어, 소결은 산소가 존재하는 분위기 하에서 수행될 수 있다.

## 발명의 효과

[0021] 본 발명에 따른 파이로공정의 액체금속 음극용 도가니는 액체금속과의 반응성이 현저히 낮아 연속적인 사용이 가능하며, 장기간 사용 가능하고, 이에 따라 2차 핵폐기물을 감소시킬 수 있는 장점이 있다. 본 발명의 일 실시예에 따른 파이로공정의 액체금속 음극용 도가니는 액체금속 자체와의 반응성이 낮을 뿐만 아니라 도가니 표면에 존재하는 열린 기공이 현저하게 감소되어, 연속적인 전해제련공정이 가능해지며, 액체금속의 이송장치로 사용 가능하며, 초우라늄 물질의 손실을 줄일 수 있는 장점이 있다.

## 도면의 간단한 설명

[0022] 도 1은 성형제 제조에 사용된 산화스칸듐 분말의 입도분포를 측정 도시한 도면이며,

도 2는 제조된 성형체를 관찰한 광학사진이며,

도 3은 소결에 의해 제조된 산화스칸듐 도가니를 관찰한 광학사진이며,

도 4는 리튬함유 비스무스와의 반응성 테스트 후 도가니의 깊이별 성분 분석 결과를 측정 도시한 도면이며,

도 5는 리튬과의 반응성 테스트 후 도가니의 X-선 회절 측정 결과를 도시한 도면이다.

## 발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0023] 이하 첨부한 도면들을 참조하여 본 발명에 따른 파이로공정의 액체금속 음극용 도가니 및 이의 제조방법을 상세히 설명한다. 다음에 소개되는 도면들은 당업자에게 본 발명의 사상이 충분히 전달될 수 있도록 하기 위해 예로서 제공되는 것이다. 따라서, 본 발명은 이하 제시되는 도면들에 한정되지 않고 다른 형태로 구체화될 수도 있으며, 이하 제시되는 도면들은 본 발명의 사상을 명확히 하기 위해 과장되어 도시될 수 있다. 이때, 사용되는 기술 용어 및 과학 용어에 있어서 다른 정의가 없다면, 이 발명이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자가 통상적으로 이해하고 있는 의미를 가지며, 하기의 설명 및 첨부 도면에서 본 발명의 요지를 불필요하게 흐릴 수 있는 공지 기능 및 구성에 대한 설명은 생략한다.

[0024] 본 출원인은 파이로 공정의 액체 금속을 담지하는 도가니의 반응성에 의해, 연속적인 전해 제련 공정이 이루어지기 어려울 뿐만 아니라, 초우라늄 물질의 손실 및 2차 핵폐기물의 양이 불필요하게 증가하는 것에 주목하고, 파이로 공정의 액체 금속에 낮은 반응성을 갖는 도가니를 개발하고자, 장기간 다양한 소재에 대해 연구를 수행하였으며, 연구 결과, 놀랍게도 초우라늄 및 희토류물질을 함유하는 액체금속 음극물질에 대해 산화스칸듐($Sc_2O_3$)이 현저하게 낮은 반응성을 가짐을 발견하여, 본 발명을 출원하기에 이르렀다.

[0025] 상술한 발견에 기반한 본 발명에 따른 파이로공정의 액체금속 음극용 도가니는 적어도, 액체금속 음극과 접촉하는 내측 표면이 산화스칸듐 표면인 특징을 갖는다.

[0026] 구체적으로, 본 발명의 도가니는 사용후핵연료의 파이로공정 중, 액체 금속(음극)을 이용한 전해제련 공정 도중 또는 공정 후, 액체 금속을 담지하거나 및/또는 액체 금속을 이송하는 도가니일 수 있다. 액체 금속은 사용후핵연료의 전해제련 공정에 음극으로 통상적으로 사용되는 모든 음극물질을 포함한다. 비한정적이며 구체적인 일예로, 액체금속 음극은 비스무스를 포함할 수 있으며, 비스무스와 함께, Ce, La, Nd, Pr 및 Li에서 하나 또는 둘 이상 선택되는 원소를 더 함유할 수 있다.

[0027] 본 발명의 일 양태에 따른 도가니에 있어, 도가니는 본체; 및 적어도 액체금속 음극과 접촉하는 본체의 내측 표면을 덮는 산화스칸듐 표면층;을 포함할 수 있다. 본체는 액체금속 음극이 수용되는 내부공간이 마련된 형상일 수 있으며, 일 예로, 상부가 개방된 함체 형상일 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.

[0028] 본체는 내화물로 이루어질 수 있다. 도가니 본체를 이루는 내화물은 알루미나, 질화알루미늄, 지르코니아 또는

베리아일 수 있으며, 좋게는 알루미나일 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.

[0029] 산화스칸듐 표면층은 액체금속 음극과 현저하게 낮은 반응성을 가져, 도가니의 안정성을 담보하는 층이다. 안정성을 최대화하기 위해, 산화스칸듐 표면층은 산화스칸듐으로 이루어진 표면층일 수 있으며, 이때, 표면층이 산화스칸듐으로 이루어졌다 함은, 의도적으로 첨가된 이종 물질을 함유하지 않는 것으로 해석되어야 하며, 불가피한 불순물 또한 배제하는 것으로 해석되어서는 안 된다. 일 예로, 산화스칸듐은 그 순도가 99.5% 이상일 수 있으며, 보다 실질적으로 99.9% 이상일 수 있다.

[0030] 산화스칸듐 표면층은 적어도 액체금속 음극과 접촉하는 본체의 내측 표면을 덮도록 위치할 수 있으며, 일 예로, 본체의 내측 표면 전 영역에 산화스칸듐 표면층이 위치할 수 있다. 그러나, 본체의 개방된 상부의 외측 면 또한 산화스칸듐 표면층으로 덮일 수 있으며, 본체의 모든 표면이 산화스칸듐 표면층으로 덮일 수도 있음은 물론이다.

[0031] 산화스칸듐 표면층의 두께는 파이로 공정 중, 도가니의 안정성이 담보될 수 있는 정도면 무방하다. 구체적인 일 예로, 산화스칸듐 표면층의 두께는 수 마이크로미터 오더(order)의 두께이면 족하며, 실질적인 일 예로, 산화스칸듐 표면층의 두께는 1㎛ 내지 1㎜, 보다 실질적인 일 예로, 5㎛ 내지 1㎜, 보다 더 실질적인 일 예로, 10㎛ 내지 1㎜일 수 있다.

[0032] 산화스칸듐 표면층은 그 밀도가 이론 밀도의 95% 이상이며, 열린 기공률이 3%이하, 구체적으로 1 내지 2.5% 이하일 수 있는데, 이러한 높은 밀도 및 낮은 열린 기공률은 산화스칸듐의 낮은 반응성과 함께 도가니의 안정성을 더욱 향상시킬 수 있다.

[0033] 본 발명의 다른 일 양태에 따른 도가니에 있어, 도가니는 산화스칸듐일 수 있다. 이는 도가니가 산화스칸듐으로 이루어진 것을 의미하며, 도가니가 의도적으로 첨가된 이종 물질을 함유하지 않는 산화스칸듐으로 이루어진 것을 의미한다. 이때, 이종 물질을 함유하지 않는다는 의미가 불가피한 불순물 또한 배제하는 것으로 해석되어서는 안 된다. 일 예로, 산화스칸듐은 그 순도가 99.5% 이상일 수 있으며, 보다 실질적으로 99.9% 이상일 수 있다.

[0034] 도가니가 산화스칸듐으로 이루어진 경우 또한, 도가니는 액체금속 음극이 수용되는 내부공간이 마련된 형상일 수 있으며, 일 예로, 상부가 개방된 함체 형상일 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.

[0035] 도가니가 산화스칸듐으로 이루어진 경우, 산화스칸듐의 표면층이 구비되는 도가니 대비, 도가니가 가열과 냉각에 의한 열 응력으로부터 보다 자유로워, 보다 유리하다. 즉, 도가니가 산화스칸듐의 단일 물질로 이루어진 경우, 장시간 동안 반복적으로 도가니를 사용하는 경우에도, 물질간 열 팽창율(또는 열 수축율)의 차이에 의해 발생하는 열 응력으로부터 자유로움에 따라, 그 안정성 및 수명을 더욱 향상시킬 수 있다.

[0036] 도가니를 이루는 산화스칸듐은 그 밀도가 이론 밀도의 95% 이상이며, 열린 기공률이 3%이하, 구체적으로 1 내지 2.5% 이하일 수 있다. 본 발명의 일 실시예에 따른 도가니는, 도가니를 이루는 물질 자체가 산화스칸듐으로 액체금속 음극과의 반응성이 현저히 낮아 도가니의 안정성 및 수명을 현저하게 향상시키며, 밀도가 이론 밀도의 95% 이상으로 매우 높고 열린 기공률이 3% 이하로 매우 낮아, 도가니의 안정성 및 수명을 보다 더 향상시키면서도 초우라늄 물질의 손실을 줄일 수 있다.

[0037] 상술한 바와 같이, 본 발명의 일 실시예에 따른 도가니는 적어도 액체금속 음극과 접촉하는 내측 표면이 액체금속 음극과의 반응성이 현저하게 낮은 산화스칸듐 표면임에 따라, 도가니의 내구성, 내부식성 및 안정성을 현저하게 향상되어 도가니의 수명을 향상시킬 수 있으며, 파이로 공정에서 발생하는 2차 방사성 폐기물의 양을 줄일 수 있고, 연속적으로 전해제련 공정을 수행하면서도, 초우라늄 물질의 손실을 방지할 수 있는 장점이 있다.

[0038] 구체적으로, 본 발명의 일 실시예에 따른 도가니는, 비스무스를 담지하고 500℃에서 168시간동안 유지하는 반응성 실험시, 도가니의 내측 표면을 기준(0)으로 비스무스의 침투깊이가 10㎚ 이하, 구체적으로는 1㎚ 이하, 보다 더 구체적으로는 비스무스가 도가니 내측으로 침투하지 않아 그 침투깊이가 실질적으로 0에 이르는 현저하게 낮은 반응성을 갖는다. 다른 예로, 본 발명의 일 실시예에 따른 도가니는, 1.5wt%의 리튬을 함유하는 비스무스를 담지하고 500℃에서 168시간동안 유지하는 반응성 실험시, 도가니의 내측 표면을 기준(0)으로 리튬의 침투깊이가 1000㎚ 이하, 보다 실질적으로는 900㎚ 이하인 현저하게 낮은 반응성을 갖는다.

[0039] 본 발명은 파이로공정의 액체금속 음극용 도가니의 제조방법을 포함한다.

[0040] 본 발명에 따른 파이로공정의 액체금속 음극용 도가니의 제조방법은, 산화스칸듐 분말을 소결하여 도가니를 제조하는 단계를 포함한다. 구체적으로, 본 발명의 일 실시예 따른 제조방법은, 도가니 본체에 산화스칸듐 입자층

을 형성한 후 이를 소결하거나, 산화스칸듐 분말을 가압 성형한 후 이를 소결하는 단계를 포함한다.

[0041] 본 발명의 일 양태에 따른 제조방법에 있어, 도가니의 제조방법은, 상부가 개방된 함체 형상의 본체의 적어도 액체금속 음극과 접촉하는 내측 표면에 산화스칸듐 입자층을 형성하는 단계; 및 산화스칸듐 입자층이 형성된 본체를 소결하는 단계;를 포함할 수 있다. 산화스칸듐 입자층의 형성은, 산화스칸듐 슬러리를 도포하거나 산화스칸듐 분말을 본체의 산화스칸듐 표면층이 위치하는 영역에 압착시켜 형성할 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다. 산화스칸듐 입자층의 두께는 1㎛이상인 것이 유리하며, 실질적으로 1㎛ 내지 1mm, 보다 실질적인 일 예로, 5㎛ 내지 1mm, 보다 더 실질적인 일 예로, 10㎛ 내지 1mm일 수 있다.

[0042] 본 발명의 다른 일 양태에 따른 제조방법에 있어, 도가니의 제조방법은 산화스칸듐 입자를 상부가 개방된 함체 형상으로 가압 성형하는 단계; 및 성형된 성형체를 소결하는 단계를 포함할 수 있다. 가압 성형은 일축 가압 성형 또는 등방 가압 성형(Cold Isostatic Pressing; CIP를 포함함)을 포함할 수 있으며, 가압 성형시 인가되는 압력은 50 내지 200MPa일 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.

[0043] 본 발명의 일 실시예에 따른 제조방법에 있어, 산화스칸듐 입자층 또는 산화스칸듐 성형체 제조시 산화스칸듐 분말은 평균 입자크기가 10 내지 300nm인 초미세 입자인 것이 유리하다. 이러한 초미세 입자는 매우 큰 소결 구동력을 가져 보다 치밀한 소결체(또는 소결층)가 제조될 수 있어 유리하다. 또한, 평균 입자크기가 10 내지 300nm인 초미세 산화스칸듐 분말은 산화스칸듐의 기계적 분쇄에 의해 수득되는 분쇄 분말일 수 있다. 이러한 기계적 분쇄에 의해 수득되는 초미세 산화스칸듐 분말은 물리적 충격에 의해 분말 자체에 다량의 내부 결함이 생성될 수 있고, 이러한 다량의 결함은 소결 시 치밀화 및 성장 구동력을 제공할 수 있어, 보다 치밀한 소결체(또는 소결층)의 제조가 가능하다.

[0044] 본 발명의 일 실시예에 따른 제조방법에 있어, 산화스칸듐 입자층이 형성된 본체 또는 산화스칸듐 성형체의 소결은 산화스칸듐의 녹는점인 Tm(℃)을 기준으로, 0.6 내지 0.9 Tm, 보다 좋게는 0.6 내지 0.8Tm에서 수행될 수 있다. 소결 온도가 0.6Tm 미만으로 너무 낮은 경우 물질 이동 속도가 너무 느려 입자 성장 및 치밀화가 잘 이루어지지 않을 위험이 있으며, 소결 온도가 0.9Tm을 넘어 과도하게 높은 경우 매우 빠른 입자성장에 의해 그레인(grain) 내부에 기공들이 트랩(trap)되며 밀도가 감소될 위험이 있을 뿐만 아니라, 매우 높은 열처리 온도에 의해 제조단가가 불필요하게 상승할 위험이 있다. 소결은 산소가 존재하는 분위기 하에서 수행되면 무방하여, 실질적인 일 예로, 공기중에서 수행될 수 있다. 소결 시간은 산화스칸듐 입자층 또는 산화스칸듐 성형체가 치밀하게 소결되는 정도이면 무방하며, 성형체의 크기등을 고려하여 적절히 조절될 수 있다. 구체적인 일 예로, 30분 내지 5시간동안 소결이 수행될 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.

[0045] 상술한 제조방법을 통해, 밀도가 이론 밀도의 95% 이상이며, 열린 기공률이 3%이하, 구체적으로 1 내지 2.5% 이하의 산화스칸듐 소결체인 도가니 또는 산화스칸듐 표면층을 갖는 도가니가 제조될 수 있다.

[0046] 본 발명은 상술한 도가니를 이용한 파이로 공정을 포함한다. 상세하게, 본 발명은 상술한 도가니를 이용한 사용후핵연료의 전해제련 공정을 포함한다. 전해제련 공정은 액체금속을 음극으로 사용하여 사용후핵연료 원소중의 초우라늄 및 희토류물질을 회수하는데 사용되는 통상적인 전해제련 공정을 모두 포함하며, 액체금속 음극은 사용후핵연료의 전해제련 공정에 음극으로 통상적으로 사용되는 모든 음극물질을 포함한다. 비한정적이며 구체적인 일 예로, 액체금속 음극은 비스무스를 포함할 수 있으며, 비스무스와 함께, Ce, La, Nd, Pr 및 Li에서 하나 또는 둘 이상 선택되는 원소를 더 함유할 수 있다.

[0047] 본 발명은 상술한 도가니를 이용한 연속적인 전해제련 공정을 포함한다. 전해제련 공정 후, 전해제련 공정에 사용된 액체금속을 회수하는 과정에서, 상술한 도가니(전해제련 공정에 사용된 액체금속이 담긴 본 발명에 따른 도가니)는 전해제련 공정과 동일 내지 유사한 온도로 유지되는 열자켓에 싸여 이동될 수 있다. 도가니는 사용후 액체금속 보관용기 상부로 이동되고, 사용후 액체금속 보관용기에 기 사용된 액체금속을 투입한 후, 다시 전해제련 공정에 사용될 수 있다. 이때, 도가니의 이동시 도가니는 항상 열자켓에 의해 보호될 수 있음은 물론이다. 열자켓은 도가니의 온도를 전해제련 공정과 동일 내지 유사한 온도로 유지할 수 있는 어떠한 가열 수단이라도 가능하다. 구체적인 일 예로, 열자켓은 도가니를 내부에 담지하거나 감쌀 수 있는 단열체이거나, 줄열을 발생시키는 히팅 수단이 구비된 단열체일 수 있다. 구체적이며, 비 한정적인 일 예로, 열자켓은 상술한 도가니 자체를 담지할 수 있는 보온용 도가니일 수 있다. 상술한 열자켓은 도가니의 냉각에 의해 발생할 수 있는 열응력에 의해 도가니가 파손되는 것을 방지하기 위한 것임에 따라, 열자켓에 의해 도가니의 온도가 전해제련 공정과 동일 내지 유사한 온도로 유지되는 정도이면 무방하다. 구체적인 일 예로, 열자켓에 의해 도가니의 온도는 전해제련 공정이 수행되는 온도(T1)를 기준으로 0.7 내지 1배의 온도(0.7T1~T1)로 유지될 수 있다.

[0048] (실시예 1)

[0049] 초미세 산화스칸듐 분말을 제조하기 위해, 산화스칸듐 분말(99.9%)을 48시간 동안 볼밀하였다. 도 1은 레이저 회절 입도 분석기를 이용하여 볼밀에 의해 제조된 산화스칸듐 분말의 입도분포를 측정 도시한 것으로, 평균 입자크기가 126nm인 유니모달 분포의 산화스칸듐 초미세 분말이 제조됨을 알 수 있다.

[0050] 성형 몰드에 제조된 초미세 산화스칸듐 분말을 투입하고 100MPa로 가압하여 도 2와 같이 상부가 개방된 원통형태로 성형체를 제조하였다. 제조된 성형체를 대기중 1650 ℃에서 3시간동안 소결하여 산화스칸듐 도가니를 제조하였다. 도 3은 소결에 의해 제조된 산화스칸듐 도가니의 광학사진을 도시한 도면이다. 소결된 도가니의 밀도를 측정한 결과, 도가니는 이론밀도의 95.15%에 이르는 소결 밀도는 가지며, 2.45%의 열린 기공률(open porosity)과 2.4%의 닫힌 기공률을 가짐을 확인하였다.

[0051] 제조된 도가니에 1.5 중량% 리튬을 함유하는 비스무스를 담지한 후, 500℃에서 168시간동안 유지하여, 반응성 실험을 수행하였으며, 이후 SIMS(secondary ion mass spectroscopy)를 이용하여 깊이별 성분 분석(depth profile)을 수행하였다. 도 4는 반응성 실험 후 도가니의 깊이별 원소 성분을 분석한 SIMS 결과로, 도 4에서 알 수 있듯이 산화스칸듐이 액체금속인 비스무스와의 반응성이 극히 낮아 비스무스가 도가니 내부로 침투하지 못한 것을 확인할 수 있다. 또한 산화스칸듐의 낮은 반응성으로 인해 리튬 또한 820nm 정도로 그 침투 깊이가 매우 낮은 것을 알 수 있다.

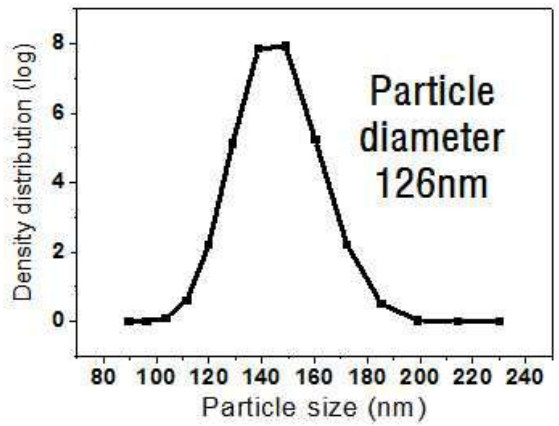
[0052] 제조된 도가니에 리튬을 담지한 후, 500℃에서 168시간동안 유지하여, 반응성 실험을 수행하였으며, 이후 X-선 회절 분석을 통해 도가니 내부 표면 성분을 분석하였다. 도 5는 리튬과의 반응성 실험 후 도가니 내부 표면 성분을 분석한 X-선 회절 측정 결과를 도시한 도면으로, 도 5에서 알 수 있듯이, 제조된 도가니에 미약하게나마 리튬이 침투하나, 반응성이 낮은 산화스칸듐이 리튬반응성과 반응하지 않아, 순수한 산화스칸듐만이 검출되는 것을 알 수 있다.

[0053] 이상과 같이 본 발명에서는 특정된 사항들과 한정된 실시예 및 도면에 의해 설명되었으나 이는 본 발명의 보다 전반적인 이해를 돕기 위해서 제공된 것일 뿐, 본 발명은 상기의 실시예에 한정되는 것은 아니며, 본 발명이 속하는 분야에서 통상의 지식을 가진 자라면 이러한 기재로부터 다양한 수정 및 변형이 가능하다.

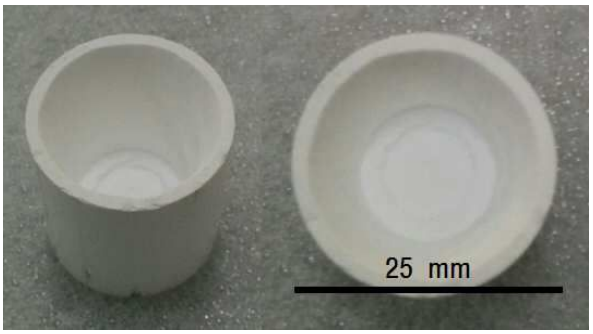
[0054] 따라서, 본 발명의 사상은 설명된 실시예에 국한되어 정해져서는 아니되며, 후술하는 특허청구범위뿐 아니라 이 특허청구범위와 균등하거나 등가적 변형이 있는 모든 것들은 본 발명 사상의 범주에 속한다고 할 것이다.

## 도면

### 도면1



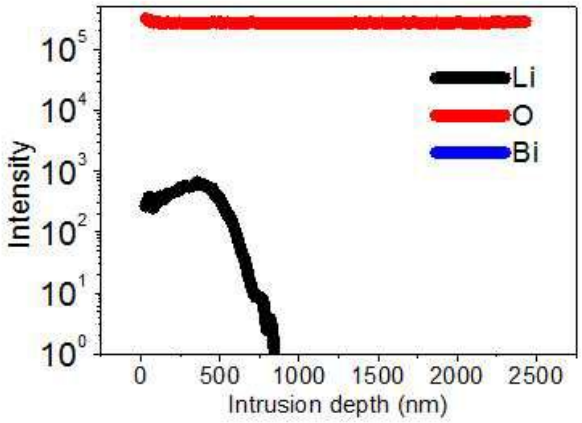
도면2


25 mm

도면3


0 inch
1
0 cm 1 2 3

도면4


Intensity
$10^5$
$10^4$
$10^3$
$10^2$
$10^1$
$10^0$
Li
O
Bi
0
500
1000
1500
2000
2500
Intrusion depth (nm)

도면5

