

전해추출법에 의한 린규세리움광에서 희토류원소들의 분리

봉철용, 김광국

경애하는 최고령도자 김정은동지께서는 다음과 같이 말씀하시였다.

《마그네사이트와 흑연, 규석과 희토류광물을 비롯하여 우리 나라에 풍부한 자원과 우리의 기술로 세계적인 패권을 쥘수 있는 경제분야를 개척하고 발전시키는데 커다란 힘을 넣어야 합니다.》(《조선로동당 제7차대회에서 한 중앙위원회사업총화보고》 단행본 47페이지)

린규세리움광에서 희토류를 추출하는 방법은 이미 발표되었지만[3-6] 그 방법들은 모나즈석과 불탄산세리움광으로부터 희토류를 추출하는 전통적인 가성소다법이나 류산법에서 벗어나지 못하고있으며 원가가 많이 드는것과 관련하여 아직까지 도입되지 못하고 있다. 또한 린규세리움광을 전해추출법으로 처리하여 희토류를 분리한 연구자료는 알려진 것이 없다.

우리는 지지구의 희토류자원에서 기본을 이루고있는 린규세리움광으로부터 혼합희토류 산화물을 생산할수 있는 전해추출조건을 연구하고 합리적인 전해추출방법을 확립하였다.

실 험 방 법

지지구의 린규세리움광의 리용에서 기본은 저품위원광(0.2~0.3%)을 낮은 원가로 처리하여 희토류를 생산하는것이다.

지지구의 린규세리움광에 들어있는 개별적인 희토류원소들의 조성은 표 1과 같다.[1]

표 1. 지지구의 린규세리움광에서 희토류원소들의 조성

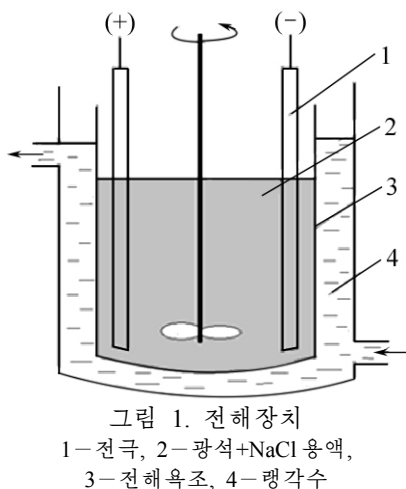
희토류산화물	함량/질량%	희토류산화물	함량/질량%
La ₂ O ₃	26.23	Dy ₂ O ₃	0.35
CeO ₂	27.02	Ho ₂ O ₃	흔적
Pr ₂ O ₁₁	5.31	Er ₂ O ₃	0.28
Nd ₂ O ₃	15.92	Tm ₂ O ₃	흔적
Sm ₂ O ₃	1.09	Yb ₂ O ₃	흔적
Eu ₂ O ₃	0.35	Lu ₂ O ₃	흔적
Gd ₂ O ₃	1.74	Y ₂ O ₃	1.59
Tb ₄ O ₇	흔적		

실험에 리용한 전해장치는 그림 1과 같으며 시약은 20% 염산(공업순)과 염화나트륨이다. 전해탱크의 용적은 정광처리량에 따라 규정되며 양극과 음극재질은 흑연이다.

희토류광석을 200메쉬이하로 분쇄하고 중력선별을 진행하여 각섬석과 석영, 장석을 비롯한 맥석광물을 제거한다.[2]

다음 희토류광석을 자력선별기에 통과시켜 티탄철광을 갈라낸다.

선광공정에서 얻어진 정광의 품위는 5%이다.



정광을 250메쉬이하로 재분쇄하고 고액비 1 : 3의 비율로 염화나트륨용액과 혼합한다.

정광을 전해추출한 용액에서 린과 알루미늄, 철, 토리움이 온은 가성소다용액으로, 칼슘과 마그네슘이 온은 암모니아수로 pH를 조절하여 침전물형태로 분리한 다음 용액에 일정한 량의 싱아산을 첨가하여 희토류이온들을 싱아산염형태로 침전시킨다. 침전물을 흡인려과하여 용액으로부터 갈라내고 증류수로 3회 세척한 다음 그것을 작열건조시킨다. 정광에서 희토류의 추출률은 추출 후 정광속에 남아있는 희토류는 X선형광분석기(《ZSX Primus III+》)로, 추출용액에서의 희토류는 화학분석법으로 결정한 값들을 가지고 계산하였다.

실험결과 및 해석

기초실험자료에 기초하여 광액의 pH 1~2, 전류밀도 400A/m^2 에서 추출률에 미치는 전해시간과 전해액농도, 전해온도의 영향을 고찰하였다.

전해시간의 영향 정광에서 희토류의 추출률에 미치는 전해시간의 영향을 검토한 결과는 그림 2와 같다.

그림 2에서 보는바와 같이 전해를 시작하여 3h 후에는 희토류총량의 90%이상이 추출된다. 따라서 전해조건에서 전해시간은 3h로 선정하였다.

전해액농도의 영향 전해시간을 고정하고 전해액의 농도를 변화시키면서 정광의 추출률을 검토한 결과는 그림 3과 같다.

그림 3에서 보는바와 같이 전해액의 농도가 5% 이상에서는 정광에서 희토류가 거의 90%이상 추출되지만 그 이상의 농도에서는 거의 변화가 없다. 따라서 전해조건에서 전해액의 농도는 5%로 선

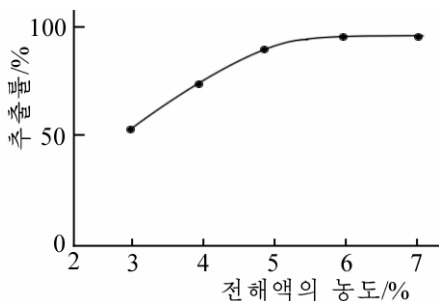


그림 3. 전해액의 농도에 따른 희토류의 추출률 변화

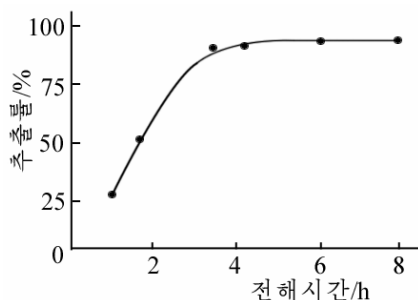


그림 2. 전해시간에 따른 희토류의 추출률 변화

정하였다.

전해온도의 영향 전해과정이 발열과정이므로 온도의 영향은 따로 측정하지 않고 랭각시키면서 40°C 를 보장하였다. 그것은 40°C 이상의 온도에서는 전해과정에 생성된 염소기체가 정광속의 희토류원소와 반응하기 전에 대기중으로 방출되는 것과 관련된다.

혼합희토류산화물에서 희토류원소들의 조성 최종적으로 얻은 제품의 X선형광분석결과는 표 2와 같다.

표 2에서 보는바와 같이 린구세리움광의 전해추출액으로부터 최종적으로 얻어진 제품은 란타나 세리움, 네오딤을 주성분으로 하고 약간의 량의 중희토류를 포함하는 혼합희토류산화물이다.

표 2. 최종적으로 얻은 제품의 X선형광분석결과

희토류산화물	함량/질량%	희토류산화물	함량/질량%
La ₂ O ₃	23.31	Dy ₂ O ₃	0.44
CeO ₂	58.23	Ho ₂ O ₃	<0.10
Pr ₂ O ₁₁	3.44	Er ₂ O ₃	0.19
Nd ₂ O ₃	9.67	Tm ₂ O ₃	<0.10
Sm ₂ O ₃	1.00	Yb ₂ O ₃	0.15
Eu ₂ O ₃	0.18	Lu ₂ O ₃	<0.10
Gd ₂ O ₃	0.62	Y ₂ O ₃	2.65
Tb ₄ O ₇	<0.10		

맺는 말

염화나트륨을 전해액으로 하여 린규세리움광으로부터 희토류원소들을 분리하는 전해추출방법을 확립하였다. 합리적인 전해조건은 광액의 pH 1~2, 전류밀도 400A/m²에서 전해시간 3h, 전해액의 농도 5%, 전해온도 40℃이다.

참고 문헌

- [1] 강만식 등; 희토류통보, 3, 7, 주체97(2008).
- [2] 김창식 등; 광업, 4, 27, 주체99(2010).
- [3] 김수룡 등; 화학과 화학공학, 3, 36, 주체100(2011).
- [4] 채수중; 외국과학기술통보, 7, 23, 1987.
- [5] David Debruyne et al.; Ore Geology Reviews, 72, 232, 2016.
- [6] Z. Hubicki et al.; Hydrometallurgy, 50, 3, 261, 1998.

주체107(2018)년 1월 5일 원고접수

Separation of Rare Earth Elements from Britholite by Electrolytic Extraction Method

Pong Chol Ung, Kim Kwang Guk

We established the electrolytic method for extracting rare earth elements from britholite using sodium chloride solution as the electrolyte.

The optimum condition of electrolytic extraction is as follows: the density of electric current is 400A/m², the pH of electrolyte is 1~2, the concentration of electrolyte is 5%, the electrolytic temperature is 40℃ and the electrolytic time is 3h.

Key words: electrolytic extraction, rare earth elements, britholite