



کاهش مقدار مولیبدن در فرایند تولید اکسید اورانیم کارخانه‌ی بندرعباس به روش تهی‌سازی با محلول سدیم کلرید اسیدی

زهره مقدم‌فرد، سروژ وارطانیان، ژاله پورحسینی، نرگس پاکیزوند، احمد غدیری*

گروه پژوهشی اکتشاف و استخراج، پژوهشکده چرخه سوخت هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۱۱۳۶۵-۸۴۸۶، تهران - ایران

چکیده: یکی از معضلات موجود در برخی از کارخانه‌های تولید اکسید اورانیم جهان، وجود عنصر مولیبدن در محصول U_3O_8 تولید شده می‌باشد. روش‌های متعددی برای کاهش مولیبدن در فرایند تولید U_3O_8 ارائه شده است. از آن جایی که هدف این پژوهش، کاهش مقادیر مولیبدن در فرایند تولید اکسید اورانیم بندرعباس، با کم‌ترین تغییرات ممکن در خطوط فرایندی کارخانه بود، روش شستشوی فاز آلی باردار با محلول سدیم کلرید اسیدی انتخاب گردید. با انجام آزمایش‌های بهینه‌سازی، محلول شستشوی سدیم کلرید ۱٫۲ مولار به اضافه‌ی سولفوریک اسید ۰٫۰۲ مولار، جای‌گزین محلول سدیم کربنات ۱۰٪ (محلول شستشوی مورد استفاده در کارخانه‌ی بندرعباس) شد. با استفاده از محلول شستشوی فوق، میزان تهی‌سازی فاز آلی از مولیبدن از ۹۶٫۶۴٪ (سدیم کربنات ۱۰٪) به ۴٫۱۷٪ کاهش یافت. در نهایت میزان مولیبدن در U_3O_8 تولیدی از ۶٫۴٪ به ۰٫۱۴٪ تنزل پیدا کرد.

واژه‌های کلیدی: اورانیم، مولیبدن، اکسید اورانیم، سدیم کلرید، تهی‌سازی

Decreasing Molybdenum Content in U_3O_8 of Bandar Abbas Uranium Plant (BUP) by Stripping, Acidic Sodium Chloride Solution

Z. Moghaddam Fard, S. Vartanian, Zh. Pur Hoseini, N. Pakizvand, A. Ghadiri*

Exploration and Exploitation Department, Nuclear Fuel Cycle Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOI, P.O.Box: 11365-8486, Tehran - Iran

Abstract: Molybdenum (Mo) content in U_3O_8 is one of the difficulties in uranium oxide production plant, as contaminant. Several methods have been proposed for reducing Mo from U_3O_8 process circuit. As a few changes in the process circuit of BUP were aimed, the loaded organic solvent containing uranium and molybdenum were stripped with acidic sodium chloride solution. The current 10% Sodium carbonate solution was substituted by 1.2M NaCl + 0.02M H_2SO_4 as a new strip solution. This method decreases Mo contents from 96.94 to 4.17 percent. With the proceeding precipitation and the calcination stages, the Mo amounts in U_3O_8 was reduced from 6.4 to 0.14 percent.

Keywords: Uranium, Molybdenum, Uranium Oxide, Sodium Chloride, Stripping



در صنعت تولید سوخت هسته‌ای، تهیه اکسید اورانیم (U_3O_8) با شرایط استاندارد، امری مهم تلقی می‌گردد. وجود ترکیبات و ناخالصی‌های بالاتر از حد مجاز در محصول کیک زرد، عملاً ادامه‌ی فرایند تولید سوخت هسته‌ای را با مشکلاتی روبه‌رو می‌سازد. حتی در برخی از موارد، وجود برخی ناخالصی‌ها، منجر به غیرقابل استفاده شدن این محصول در فرایندهای بعدی سوخت هسته‌ای می‌گردد. بدیهی است که کاهش میزان این ترکیبات در محصول کیک زرد امری لازم و ضروری است. یکی از این ناخالصی‌ها، عنصر مزاحم مولیبدن می‌باشد. یکی از مشکلات اصلی این ماده در فرایند تولید سوخت هسته‌ای، نامتعادل ساختن سانتریفیوژها در حین تزریق گاز UF_6 می‌باشد. حد مجاز این عنصر براساس استاندارد ASTM C 967-02a، ۰/۱ تا ۰/۳ وزنی اورانیم در محصول کیک زرد می‌باشد.

براساس بررسی‌های صورت گرفته، یکی از معضلات موجود در برخی از کارخانه‌های تولید اکسید اورانیم جهان، وجود عنصر مولیبدن در محصول تولیدی می‌باشد. روش‌های متعددی برای حذف مولیبدن از فرایند تولید اکسید اورانیم پیشنهاد و استفاده شده است که در گزارش‌ها و مقالات متعددی به چاپ رسیده‌اند. روش استخراج با حلال [۱، ۲ و ۳]، تبادل یون [۴ و ۵]، جذب توسط زغال فعال [۶ تا ۱۰] و روش‌های شیمیایی نظیر تغییر pH، رسوب‌گیری و یا استفاده از روش‌های خاص در تهیه‌سازی^(۱) فاز آلی باردار [۱۱ تا ۱۵]، از آن جمله‌اند.

با توجه به محدودیت فضای کاری برای نصب تجهیزات اضافی به منظور کاهش مقادیر مولیبدن در فرایند تولید اکسید اورانیم بندرعباس، در این کار پژوهشی سعی گردید کاهش میزان مولیبدن در فرایند تولید اکسید اورانیم، با کم‌ترین تغییرات ممکن در خطوط فرایندی کارخانه انجام پذیرد. برای انجام این مهم، محلول شستشوی فاز آلی تغییر داده شد.

در مرحله‌ی استخراج اورانیم با آمین‌ها، مولیبدن همراه اورانیم به فاز آلی منتقل می‌گردد و سدیم کربنات که یکی از بهترین محلول‌های شستشو برای بازیابی اورانیم از فاز آلی محسوب می‌شود، مولیبدن را نیز همراه اورانیم به فاز آبی برمی‌گرداند. مولیبدن موجود در فاز آبی در مرحله‌ی رسوب‌گیری، به عنوان هم‌رسوب اورانیم رسوب کرده و در نهایت به صورت ناخالصی

در محصول آمونیم دی‌اورانات (ADU) وارد می‌شود. استفاده از چنین محصولی در فرایند تولید سوخت هسته‌ای عملاً مقدور نمی‌باشد. یک روش مناسب برای جداسازی اورانیم، استفاده از محلول‌های شستشویی است که اورانیم را به طور انتخابی از فاز آلی به فاز آبی برمی‌گرداند و مولیبدن را در آن باقی می‌گذارد. محلول اسیدی سدیم کلرید، یکی از محلول‌های مناسب برای شستشوی فاز آلی حاوی اورانیم است. در این کار پژوهشی، با استفاده از غلظت‌های مشخص سدیم کلرید و سولفوریک اسید، اورانیم به طور انتخابی از فاز آلی جدا گردید و در نهایت با انجام عملیات اسید زنی، رسوب‌گیری و کلسیناسیون، محصول U_3O_8 با خلوص مناسب و مطابق با شرایط استاندارد ASTM تهیه شد. پس از چندین مرحله استخراج، مولیبدن باقی‌مانده در حلال آلی توسط یک محلول کربناته‌ی حاوی فلز قلیایی، جداسازی شده و حلال مجدداً بازیابی گردید.

۲- روش کار

در این کار پژوهشی سعی شده است میزان مولیبدن همراه اورانیم در فرایند تولید U_3O_8 ، تا حد امکان کاهش یابد. برای این منظور از تهیه‌سازی فاز آلی باردار با محلول اسیدی سدیم کلرید استفاده شد. آزمایش‌های استخراج، تهیه‌سازی، اسیدزنی و رسوب‌گیری در داخل بشر آزمایشگاهی همراه با هم‌زنی مکانیکی انجام شد. در صورت نیاز به کار در شرایط دمای بالاتر از دمای محیط، آزمایش در داخل حمام آب گرم و با کنترل دما انجام پذیرفت.

جدول ۱، مشخصات محلول فروشویی ارسالی از کارخانه‌ی بندرعباس را که در آزمایش‌های کاهش مولیبدن مورد استفاده قرار گرفت، نشان می‌دهد.

برای تعیین میزان مولیبدن در محلول‌های آبی از دستگاه جذب اتمی مدل پرکین المر ۵۵۰۰ و برای تعیین میزان اورانیم از دستگاه پلاسمای جفت شده‌ی القایی (ICP) مدل پرکین المر DV۲۰۰۰ استفاده شد.

جدول ۱- تجزیه‌ی عنصری محلول فروشویی (pH=۱-۱٫۳)

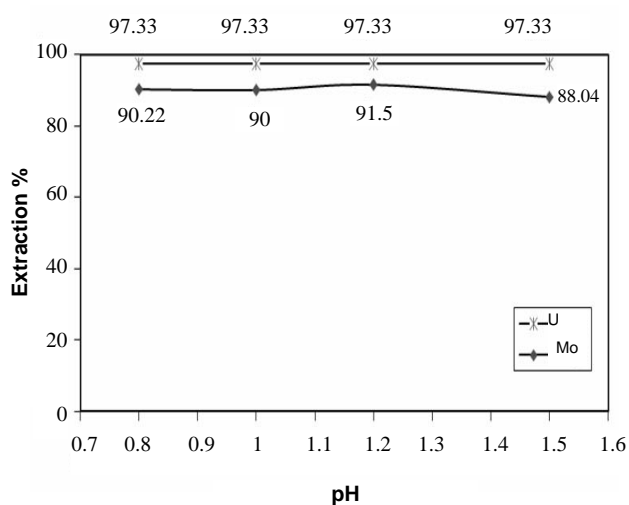
| U (mg.L ⁻¹) | Mo (mg.L ⁻¹) | Fe (mg.L ⁻¹) | Na (mg.L ⁻¹) | Cl ⁻ (mg.L ⁻¹) |
|-------------------------|--------------------------|--------------------------|--------------------------|---------------------------------------|
| ۶۳۴ | ۱۰۶ | ۵۸۶ | ۱۲۲۵ | ۷۹۷ |

۳- نتایج و بحث

۳-۱ تعیین pH بهینه برای استخراج

درصد استخراج اورانیم و مولیبدن در هر یک از این مراحل را نشان می‌دهد.

از جدول ۴، مشاهده می‌شود که میزان مولیبدن موجود در U_3O_8 به مراتب بالاتر و میزان اورانیم موجود کم‌تر از مقادیر استاندارد می‌باشد. به همین جهت، این محصول برای فرایندهای بعدی چرخه‌ی سوخت هسته‌ای مناسب نبوده و استفاده از روشی کارآ برای کاهش مقادیر مولیبدن در محصول تولیدی کارخانه‌ی بندرعباس با تکیه بر کم‌ترین میزان تغییرات در خطوط فرایندی لازم و ضروری به نظر می‌رسد.



شکل ۱- درصد استخراج اورانیم و مولیبدن در pHهای مختلف.

برای تعیین pH مناسب، استخراج اورانیم از محلول فروشویی در pHهای ۰٫۸، ۱، ۱٫۲، ۱٫۵ و ۱٫۸ توسط فاز آلی حاوی تری‌اکتیل‌آمین ۵٪، ۱- دکانول ۵٪ و کروزین ۹۰٪ با نسبت فاز آلی به آبی $O/A=1/1$ ، در دمای $40^{\circ}C$ و با زمان اختلاط ۵ دقیقه، مورد بررسی قرار گرفت. جدایش دو فاز در $pH=1.8$ بسیار به کندی انجام گرفت. بنابراین از ادامه‌ی آزمایش در این pH و pHهای بالاتر صرف‌نظر گردید. نتایج آزمایش در شکل ۱ نشان داده شده است.

با توجه به شکل ۱، در $pH=0.8-1.5$ ، تغییر درصد استخراج اورانیم و مولیبدن ناچیز بوده و حدود ۹۰٪ مولیبدن همراه با اورانیم به فاز آلی منتقل می‌گردد. بنابراین محدوده‌ی ۱ تا ۱٫۳ برای pH آزمایش‌های بعدی انتخاب شد.

۳-۲ آزمایش‌های استخراج، تهیه‌سازی و رسوب‌گیری تحت شرایط عملیاتی کارخانه

در این مرحله، تحت شرایط عملیاتی کارخانه، اورانیم از محلول فروشویی استخراج و عملیات تهیه‌سازی فاز آلی و رسوب‌گیری از فاز آبی برای تهیه‌ی آمونیم دی‌اورانات (ADU)، مشابه فرایند کارخانه انجام گرفت. جداول ۲، ۳ و ۴، به ترتیب، شرایط آزمایش‌های استخراج، تهیه‌سازی و رسوب‌گیری و هم‌چنین

جدول ۲- شرایط و نتایج آزمایش استخراج

| فاز آلی | اورانیم در محلول فروشویی (میلی گرم در لیتر) | مولیبدن در محلول فروشویی (میلی گرم در لیتر) | pH محلول فروشویی | فاز آلی / فاز آبی | دما (درجه‌ی سانتی‌گراد) | زمان تماس (دقیقه) | درصد استخراج اورانیم | درصد استخراج مولیبدن |
|---|---|---|------------------|-------------------|-------------------------|-------------------|----------------------|----------------------|
| تری‌اکتیل‌آمین ۵٪، ۱- دکانول ۵٪، کروزین ۹۰٪ | ۶۳۴ | ۱۰۶ | ۱ | ۱٫۱ | ۴۰ | ۵ | ۹۵٫۲۷ | ۹۲٫۷۴ |

جدول ۳- شرایط و نتایج آزمایش تهیه‌سازی

| محلول شستشو | اورانیم در فاز آلی (میلی گرم در لیتر) | مولیبدن در فاز آلی (میلی گرم در لیتر) | فاز آلی / فاز آبی | دما (درجه‌ی سانتی‌گراد) | زمان تماس (دقیقه) | درصد تهیه‌شدگی فاز آلی از اورانیم | درصد تهیه‌شدگی فاز آلی از مولیبدن |
|-----------------|---------------------------------------|---------------------------------------|-------------------|-------------------------|-------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|
| کربنات سدیم ۱۰٪ | ۶۰۴ | ۹۸۳ | ۴٫۱ | ۴۰ | ۵ | ۹۵٫۹۸ | ۹۶٫۶۴ |

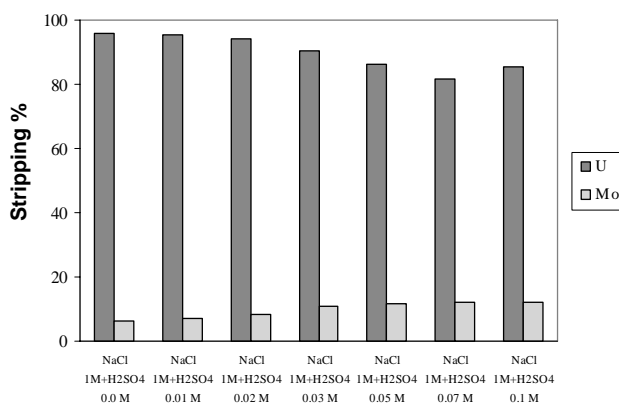
جدول ۴- شرایط و نتایج آزمایش رسوب‌گیری

| اورانیم در کربنات اورانیل (میلی گرم در لیتر) | مولیبدن در کربنات اورانیل (میلی گرم در لیتر) | عامل اسیدی‌کننده | pH نهایی | ماده رسوب‌دهنده | pH نهایی | دما (درجه‌ی سانتی‌گراد) | میزان (٪) اورانیم در U_3O_8 | میزان (٪) ناخالصی مولیبدن در U_3O_8 |
|--|--|------------------|----------|-------------------|----------|-------------------------|-------------------------------|---------------------------------------|
| ۲۳۱۹ | ۳۸۰ | سولفوریک اسید | ۱ | محلول آمونیاک ۲۰٪ | ۷٫۰۳ | ۶۰ | ۶۶٫۲۴ | ۶٫۴ |



از محلول فروشویی به کار گرفته شد. جدول ۶ و شکل ۲، درصد شویس اورانیم و مولیدن را نشان می‌دهند.

از جدول ۶ مشخص می‌شود که با افزایش میزان سولفوریک اسید در محلول شستشو سدیم کلرید، درصد تهی‌سازی فاز آلی از اورانیم و مولیدن، روند معکوسی را نسبت به یک‌دیگر از خود نشان می‌دهد، به طوری که با افزایش غلظت اسید، درصد تهی‌شدگی فاز آلی از اورانیم کاهش و از آن مولیدن افزایش می‌یابد. از آن جایی که هدف از استفاده از محلول سدیم کلرید، جداسازی اورانیم از فاز آلی و بازدارای مولیدن در فاز آلی است (به منظور جلوگیری از هم‌رسوبی اورانیم و مولیدن در مرحله رسوب‌گیری)، با توجه به نتایج بالا، محلول تهی‌سازی سدیم کلرید ۱ مولار (بدون اضافه کردن اسید) انتخاب گردید.



شکل ۲- مقایسه تهی‌سازی فاز آلی باردار توسط سدیم کلرید یک مولار به اضافه‌ی غلظت‌های مختلف سولفوریک اسید.

۳-۳ مقایسه‌ی دو محلول شستشو سدیم کلرید اسیدی و سدیم کربنات

استفاده از سدیم کلرید اسیدی به عنوان محلول شستشو یک روش مناسب برای کاهش مولیدن در فاز آلی باردار است. برای مقایسه از دو نوع محلول شستشو- سدیم کلرید یک مولار به اضافه‌ی سولفوریک اسید ۰/۰۵ مولار و کربنات سدیم ۱۰٪- استفاده شد. جدول ۵، نتایج تهی‌سازی فاز آلی باردار حاوی اورانیم و مولیدن با استفاده از این دو محلول شستشو را در شرایط $O/A=2/1$ ، دما $40^{\circ}C$ و زمان اختلاط ۵ دقیقه نشان می‌دهد.

نتایج به دست آمده حاکی از آن است که با وجود کاهش چند درصدی در میزان شویس اورانیم با استفاده از محلول سدیم کلرید اسیدی، مقادیر مولیدن شسته شده نیز به میزان قابل توجهی کاهش می‌یابد. برای افزایش میزان شستشوی اورانیم با محلول سدیم کلرید اسیدی، آزمایش‌های تکمیلی به منظور بهینه‌سازی پارامترهای مختلف انجام شد.

۴-۳ تعیین غلظت اسید همراه با سدیم کلرید

برای تعیین غلظت بهینه‌ی اسید، محلول سدیم کلرید همراه با سولفوریک اسید با غلظت‌های مختلف ۰، ۰/۰۲، ۰/۰۵، ۰/۰۷ مول بر لیتر تهیه و برای تهی‌سازی فاز آلی باردار حاصل از استخراج اورانیم ($O/A=2/1$ ، دما: $40^{\circ}C$ و زمان اختلاط ۵ دقیقه)

جدول ۵- مقایسه‌ی تهی‌سازی فاز آلی باردار با محلول‌های شستشو سدیم کلرید و سدیم کربنات

| محلول شستشو | اورانیم در فاز آلی (میلی‌گرم بر لیتر) | میزان مولیدن در فاز آلی (میلی‌گرم بر لیتر) | میزان اورانیم در محلول شستشو (میلی‌گرم بر لیتر) | میزان مولیدن در محلول شستشو (میلی‌گرم بر لیتر) | میزان تهی‌شدگی فاز آلی از اورانیم (%) | میزان تهی‌شدگی فاز آلی از مولیدن (%) |
|--|---------------------------------------|--|---|--|---------------------------------------|--------------------------------------|
| سدیم کربنات ۱۰٪ | ۶۳۷ | ۱۰۰ | ۱۲۷۰ | ۱۸۰ | ۹۹٫۶۸ | ۹۰ |
| سدیم کلرید یک مولار و سولفوریک اسید ۰/۰۵ مولار | ۶۳۷ | ۱۰۰ | ۱۰۷۰ | ۷ | ۸۳٫۹۹ | ۳٫۵ |

جدول ۶- نتایج تهی‌سازی فاز آلی باردار با سدیم کلرید یک مولار به اضافه‌ی غلظت‌های مختلف سولفوریک اسید

| محلول شستشو | pH | میزان تهی‌شدگی فاز آلی از اورانیم (%) | میزان تهی‌شدگی فاز آلی از مولیدن (%) |
|--|------|---------------------------------------|--------------------------------------|
| سدیم کلرید یک مولار بدون سولفوریک اسید | ۶٫۳۶ | ۹۵٫۶۹ | ۶٫۱ |
| سدیم کلرید یک مولار و سولفوریک اسید ۰/۰۲ مولار | ۱٫۲۹ | ۹۴٫۲۲ | ۸٫۴۵ |
| سدیم کلرید یک مولار و سولفوریک اسید ۰/۰۵ مولار | ۱٫۱۲ | ۸۶٫۲۱ | ۱۱٫۵۵ |
| سدیم کلرید یک مولار و سولفوریک اسید ۰/۰۷ مولار | ۱٫۰۵ | ۸۱٫۴۶ | ۱۲٫۲۵ |

با استفاده از محلول آمونیم هیدروکسید ۲۰٪، به صورت ADU رسوب داده شد. سپس با تکلیس رسوب کیک زرد در دمای 700°C در داخل کوره، U_2O_8 تشکیل گردید. جدول ۸، شرایط و نتایج آزمایش رسوب گیری را نشان می‌دهد. در این آزمایش، تبدیل کیک زرد به U_2O_8 به سهولت انجام پذیرفت و هیچ ذره‌ی ناخالصی در آن مشاهده نشد. با توجه به شرایط ظاهری U_2O_8 و هم‌چنین درصد اورانیم و مولیدن موجود در آن، محلول سدیم کلرید ۱ مولار و سولفوریک اسید ۰٫۰۲ مولار، محلول مناسبی برای استخراج معکوس اورانیم از فاز آلی باردار تشخیص داده شد.

۳-۲ استخراج معکوس اورانیم از فاز آلی با غلظت‌های مختلف سدیم کلرید

برای بررسی اثر غلظت سدیم کلرید بر میزان تهی‌سازی فاز آلی از اورانیم و مولیدن، آزمایش‌های تهی‌سازی فاز آلی باردار تری‌اکتیل آمین ۵٪، ۱- دکانول ۵٪ و کروزین ۹۰٪ با غلظت‌های مختلف ۱، ۱٫۲ و ۱٫۵ مولار انجام گرفت (O/A=۲٫۱)، سولفوریک اسید ۰٫۰۲ مولار، دما 40°C و زمان اختلاط ۵ دقیقه). جدول ۹ نتایج آزمایش‌ها در غلظت‌های مختلف سدیم کلرید را نشان می‌دهد.

بر اساس اطلاعات جدول ۹، بیش‌ترین میزان استخراج معکوس اورانیم با استفاده از محلول سدیم کلرید ۱٫۲ مولار به دست می‌آید و از آن جایی که اختلاف در میزان استخراج معکوس مولیدن در استفاده از محلول‌های ۱ و ۱٫۲ مولار سدیم کلرید ناچیز می‌باشد، آزمایش رسوب‌گیری بر روی محلول شستشوی سدیم کلرید ۱٫۲ مولار و سولفوریک اسید ۰٫۰۲ مولار انجام شد.

۳-۵ تولید U_2O_8 از محلول شستشوی کلرید سدیم ۱ مولار (فاز سولفوریک اسید)

برای این منظور، اورانیم از محلول شستشوی باردار سدیم کلرید ۱ مولار پس از اسیدی کردن آن توسط سولفوریک اسید، با استفاده از محلول آمونیم هیدروکسید ۲۰٪، به صورت ADU رسوب داده شد. سپس با تکلیس رسوب کیک زرد در دمای 700°C در داخل کوره، U_2O_8 تشکیل گردید. جدول ۷، شرایط و نتایج آزمایش رسوب‌گیری را نشان می‌دهد.

در فرایند تکلیس، تبدیل ADU به U_2O_8 به سختی انجام گرفت و ذرات ناخالصی نارنجی رنگی در U_2O_8 حاصل مشاهده گردید، در حالی که رنگ U_2O_8 در شرایط مناسب سبز تیره‌ی مایل به سیاه می‌باشد. از سوی دیگر، اگر چه درصد مولیدن در U_2O_8 در حد قابل‌قبولی بود ولی درصد پایین اورانیم در U_2O_8 (<۷۰٪)، نشانه‌ی وجود ناخالصی در اکسید اورانیم تولید شده بود. این مسئله ممکن است ناشی از pH بالای محلول شستشوی سدیم کلرید ۱ مولار (pH=۶٫۳۶؛ جدول ۶) بوده باشد که باعث هم‌واجب‌ی بسیاری از ترکیبات ناخواسته‌ی همراه اورانیم در مرحله‌ی تهی‌سازی شده و در نهایت منجر به تشکیل U_2O_8 همراه با ناخالصی‌ها شده است. با عنایت به این مسئله، تهیه‌ی ADU با استفاده از محلول سدیم کلرید ۱ مولار و سولفوریک اسید ۰٫۰۲ مولار در دستور کار قرار گرفت.

۳-۶ تهیه‌ی ADU از محلول شستشوی سدیم کلرید ۱ مولار به اضافه‌ی سولفوریک اسید ۰٫۰۲ مولار

در این مرحله، اورانیم از محلول شستشوی باردار سدیم کلرید ۱ مولار و سولفوریک اسید ۰٫۰۲ مولار، پس از اسیدی کردن،

جدول ۷- شرایط و نتایج آزمایش رسوب‌گیری از محلول شستشوی سدیم کلرید ۱ مولار

| میزان مولیدن موجود در U_2O_8 | میزان اورانیم موجود در U_2O_8 (%) | دما (درجه‌ی سانتی‌گراد) | pH نهایی رسوب‌گیری | عامل رسوب‌ساز | میزان مولیدن در محلول شستشو (میلی‌گرم بر لیتر) | میزان اورانیم در محلول شستشو (میلی‌گرم بر لیتر) |
|--|---|-------------------------|--------------------|---------------|--|---|
| ۰٫۱۶ | ۶۸٫۱۱ | ۶۰ | ۷٫۲۹ | آمونیاک (۲۰٪) | ۵ | ۱۱۱۰ |

جدول ۸- شرایط و نتایج آزمایش رسوب‌گیری از محلول شستشوی سدیم کلرید ۱ مولار به اضافه‌ی سولفوریک اسید ۰٫۰۲ مولار

| مقدار مولیدن در U_2O_8 (%) | مقدار اورانیم موجود در U_2O_8 (%) | دما (درجه‌ی سانتی‌گراد) | pH نهایی رسوب‌گیری | عامل رسوب‌ساز | میزان مولیدن در محلول شستشو (میلی‌گرم بر لیتر) | میزان اورانیم در محلول شستشو (میلی‌گرم بر لیتر) |
|--|---|-------------------------|--------------------|---------------|--|---|
| ۰٫۱۶ | ۷۲٫۹ | ۶۰ | ۷٫۳۴ | آمونیاک (۲۰٪) | ۲٫۷ | ۱۰۸۰ |

جدول ۹- اثر غلظت سدیم کلرید بر میزان تهی‌سازی فاز آلی از اورانیم و مولیدن

| میزان تهی‌شدگی فاز آلی از مولیدن (%) | میزان تهی‌شدگی فاز آلی از اورانیم (%) | محلول شستشو |
|--------------------------------------|---------------------------------------|---|
| ۳٫۴۱ | ۸۷٫۶ | سدیم کلرید ۱ مولار و سولفوریک اسید ۰٫۰۲ مولار |
| ۴٫۱۷ | ۹۵٫۷۳ | سدیم کلرید ۱٫۲ مولار و سولفوریک اسید ۰٫۰۲ مولار |
| ۳٫۹۸ | ۹۳٫۶۹ | سدیم کلرید ۱٫۵ مولار و سولفوریک اسید ۰٫۰۲ مولار |



۳-۸ تولید U_2O_8 از محلول شستشوی سدیم کلرید ۱/۲ مولار و سولفوریک اسید ۰/۰۲ مولار

جدول ۱۰ نتایج حاصل از آزمایش رسوب‌گیری از محلول شستشوی سدیم کلرید ۱/۲ مولار و سولفوریک اسید ۰/۰۲ مولار را نشان می‌دهد.

در فرایند تکلیس، تبدیل ADU به U_2O_8 با سهولت انجام پذیرفت و نه تنها هیچ ذره‌ی ناخالصی در آن مشاهده نشد، بلکه رنگ آن نیز سبز تیره‌ی مایل به سیاه بود. با توجه به جدول ۱۰، درصد اورانیم، مولیدن، کلر و سدیم در حد استاندارد و قابل قبول می‌باشد. بنابراین با توجه به نتایج به دست آمده می‌توان فاز آلی را پس از استخراج اورانیم محلول فروشویی با حلال آلی تری‌اکتیل‌آمین ۵٪، ۱- دکانول ۵٪ و کروزین ۹۰٪، با استفاده از محلول شستشوی سدیم کلرید ۱/۲ مولار و سولفوریک اسید ۰/۰۲ مولار (به جای محلول سدیم کربنات ۱۰٪) شستشوداد و در نهایت با انجام عملیات اسیدزنی، رسوب‌گیری و بالاخره تکلیس ADU حاصل، به U_2O_8 مطلوب، با مقادیر در حد استاندارد اورانیم و مولیدن دست یافت.

۴- نتیجه‌گیری

حلال آلی باردار تری‌اکتیل‌آمین ۵٪، ۱- دکانول ۵٪ و کروزین ۹۰٪ تحت شرایط یکسان توسط محلول‌های شستشوی سدیم کربنات ۱۰٪ و سدیم کلرید ۱ مولار به اضافه‌ی سولفوریک اسید ۰/۰۵ مولار تهی‌سازی گردید. میزان تهی‌شدگی آن از اورانیم توسط محلول‌های فوق، به ترتیب، ۹۹/۶۸٪ و ۸۳/۹۹٪ و درصد استخراج معکوس مولیدن، به ترتیب، ۹۰٪ و ۳/۵٪ تعیین شد. این نتایج نشان‌دهنده‌ی کاهش قابل توجه مولیدن در فرایند تهی‌سازی فاز آلی باردار توسط محلول شستشوی سدیم کلرید ۱ مولار به اضافه‌ی سولفوریک اسید ۰/۰۵ مولار و نهایتاً در U_2O_8 تولید شده هستند.

برای تعیین اثر غلظت سولفوریک اسید در فرایند تهی‌سازی، آزمایش‌هایی با محلول شستشوی سدیم کلرید ۱ مولار همراه با غلظت‌های مختلف ۰، ۰/۰۲، ۰/۰۵ و ۰/۰۷ مول در لیتر سولفوریک اسید انجام پذیرفت. بیش‌ترین درصد تهی‌شدگی فاز

آلی از اورانیم و کم‌ترین درصد تهی‌شدگی آن از مولیدن، توسط محلول شستشوی سدیم کلرید ۱ مولار (فاقد سولفوریک اسید) حاصل شد. در فرایند تکلیس ADU تولید شده از محلول شستشوی سدیم کلرید ۱ مولار به U_2O_8 ، ذران ناخالصی نارنجی رنگی در U_2O_8 مشاهده شد که با وجود درصد مطلوب مولیدن در U_2O_8 (۰/۱۶٪)، درصد اورانیم در U_2O_8 پایین بود (۶۸/۱۱٪) که این خود مؤید وجود ناخالصی در U_2O_8 تولید شده می‌باشد. علت این امر ممکن است pH بالای محلول شستشوی سدیم کلرید ۱ مولار (pH=۶/۳۶) بوده باشد که باعث استخراج معکوس بسیاری از ترکیبات ناخواسته‌ی همراه اورانیم در مرحله‌ی تهی‌سازی و نهایتاً باعث حضور آن‌ها در U_2O_8 تولیدی می‌گردد. به همین منظور فرایند تهی‌سازی با محلول شستشوی سدیم کلرید و سولفوریک اسید ۰/۰۲ مولار انجام پذیرفت.

به منظور تعیین غلظت بهینه‌ی سدیم کلرید، آزمایش‌های شستشو با غلظت‌های مختلف ۱، ۱/۲ و ۱/۵ مول در لیتر سدیم کلرید به اضافه‌ی سولفوریک اسید ۰/۰۲ مولار انجام شد. بیش‌ترین میزان شستشو با محلول شستشوی سدیم کلرید ۱/۲ مولار به اضافه‌ی سولفوریک اسید ۰/۰۲ مولار به دست آمد. درصد تهی‌شدگی فاز آلی از اورانیم و مولیدن، به ترتیب، ۹۵/۷۳٪ و ۴/۱۷٪ به دست آمد. درصد اورانیم، مولیدن، کلر و سدیم در U_2O_8 تولید شده از محلول شستشوی سدیم کلرید ۱/۲ مولار به اضافه‌ی سولفوریک اسید ۰/۰۲ مولار، به ترتیب، ۷۶/۱۶٪، ۰/۱۴٪، ۰/۱۳٪ و ۰/۰۷٪ تعیین شد. در نهایت محلول شستشوی سدیم کلرید ۱/۲ مولار به اضافه‌ی سولفوریک اسید ۰/۰۲ مولار به عنوان محلول شستشوی مطلوب برای تهی‌سازی حلال آلی باردار از اورانیم حاصل از محلول فروشویی بندرعباس انتخاب گردید.

تشکر و قدردانی

از جناب آقای مهندس تحویل‌داری و همکاران محترم گروه آنالیز به جهت تجزیه‌ی نمونه‌ها تشکر و قدردانی می‌شود.

جدول ۱۰- شرایط و نتایج آزمایش رسوب‌گیری از محلول شستشوی سدیم کلرید ۱/۲ مولار و سولفوریک اسید ۰/۰۲ مولار

| میزان (٪) سدیم در U_2O_8 | میزان (٪) کلر در U_2O_8 | میزان (٪) مولیدن در U_2O_8 | میزان (٪) اورانیم در U_2O_8 | دما (درجه‌ی سانتی‌گراد) | pH نهایی رسوب‌گیری | عامل رسوب‌ساز | میزان مولیدن در محلول شستشو (میلی‌گرم بر لیتر) | میزان اورانیم در محلول شستشو (میلی‌گرم بر لیتر) |
|----------------------------|---------------------------|------------------------------|-------------------------------|-------------------------|--------------------|---------------|--|---|
| ۰/۰۷ | ۰/۱۳ | ۰/۱۴ | ۷۶/۱۶ | ۶۰ | ۷/۳۵ | آمونیاک (۲۰٪) | ۴/۱ | ۱۷۰/۱ |

۱- Stripping

References:

1. A. Floreancing, J.P. Cuer, "Separation of Uranium and Molybdenum Using a Solvent," United States Patent, Patent Number: 4363788 (1982).
2. E.K. Lam, M.G. Neven, R.A. Steane, K.F. Ko, "Removal of Molybdenum from Uranium-Bearing Solutions," United States Patent, Patent Number: 5229086 (1993).
3. C. Brassier-Lecarme, P. Baron, J.L. Chevalier, C. Madic, "Acidic organophosphorus solvent extraction process for the purification of molybdenum in tailings from uranium ore treatment," Hydrometallurgy, Vol 47, 57-67 (1997).
4. R.J. Jan, A.H. Montgomery, "Process for the Separation and Recovery of Molybdenum and Uranium from Leach Solution Using Ion Exchange," United States Patent, Patent Number: 4375452 (1983).
5. D. Hietkamp, K. Wagener, "Method for the Recovery of Uranium Dissolved in Sea Water," United States Patent, Patent Number: 4277345 (1981).
6. E.T. Hollis, H.E. Dixon, "Removal of molybdenum from acid leach liquors by activated carbon," WIN-53, July 29 (1958).
7. Laferty, John M., Johnson, L., Burwell, "Recovery of molybdenum and uranium from activated charcoal containing molybdenum and residual uranium," United States Patent, Patent Number: 4199551 (1980).
8. Merritt; Robert C., "The extractive metallurgy of uranium," Johnson Publishing Company (1971).
9. A. Mellah, S. Chegrouche, M. Barkat, "The removal of uranium (VI) from aqueous solutions onto activated carbon: kinetic and thermodynamic investigations," Journal of Colloid and Interface Science, Vol 296, 434-441 (2006).
10. Ceren Kütahyalı, Meral Eral, "Selective adsorption of uranium from aqueous solutions using activated carbon prepared from charcoal by chemical activation," Separation and Purification Technology, Vol 40, 109-114 (2004).
11. G.H. Kuehl, S.H. Sherry, "Method of controlling the molybdenum content of uranium yellowcake," United States Patent, Patent Number: 4304757 (1981).
12. H.E. Gardner, "Removal of molybdenum from uranium solutions," United States Patent, Patent Number: 4366126 (1982).
13. T.J. Crossley, "Method of removing uranium from a slurry containing molybdenum," United States Patent, Patent Number: 4393028 (1983).
14. D.R. Weir, R.M. Berezowsky, "Removal of uranium from sulphate solutions containing molybdenum," United States Patent, Patent Number: 4405566 (1983).
15. T.Y. Yan, "Method of precipitating contaminants in a uranium leachate using ferri ions, complexing agent and pH control," United States Patent, Patent Number: 4464345 (1984).