



بررسی پارامترهای مؤثر بر فرایند عریان سازی اورانیوم از محلول فروشویی با استفاده از ستون ضربه‌ای پر شده

رفیعی، وحید^(۱) - صفدری، سید جابر^(۲) - ملاح، محمد حسن^(۲) - میرمحمدی، سیده لیلا^(۱)

(۱) شرکت فناوری‌های پیشرفته ایران

(۲) سازمان انرژی اتمی، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده مواد و سوخت هسته‌ای

چکیده:

در این مقاله تأثیر پارامترهای مؤثر بر فرایند عریان سازی اورانیوم از محلول فروشویی به روش استخراج حلالی مورد مطالعه قرار گرفته است. از محلول کربنات سدیم به عنوان عامل عریان ساز استفاده شده است. آزمایش‌ها بر روی یک دستگاه ستون ضربه‌ای پر شده در مقیاس نیمه صنعتی انجام شده است. اثر پارامترهای مؤثر نظیر نسبت فاز آلی به آبی و شدت ضربان دستگاه و همچنین غلظت عریان ساز مورد بررسی قرار گرفته و مقادیر بهینه آن‌ها به دست آمده است. نتایج نشان داد که غلظت بهینه عریان ساز صد گرم بر لیتر و بهترین نسبت بهینه فاز آلی به آبی برابر چهار و شدت ضربان ۳ سانتی متر بر ثانیه می‌باشد.

کلیدواژه‌ها: عریان سازی، سدیم کربنات، اورانیوم، ستون ضربه‌ای پر شده

Investigating the Parameters of the Uranium Stripping Process from the Leach Liquor Solution Using the Pulsed Packed Column

Rafiei, Vahid¹; Safdari, Jaber²; Mallah, Mohammad H²; Mirmohammadi, Sayede Leila²

¹ Advanced Technologies Company of Iran

² Materials and Nuclear Fuel Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute,

Abstract:

In this paper, the effect of the parameters affecting the process of uranium stripping from the leach liquor by solvent extraction has been investigated. Sodium carbonate solution has been used as a stripper. The experiments have been carried out on a pulsed packed column. The effect of organic to aqueous phase ratio and the pulsation intensity, as well as the stripper concentration, have been evaluated and their optimal values have been obtained. The results showed that the optimal stripper concentration is 100 g/L and the optimal ratio of the organic to aqueous phase is equal to 4 and the pulsation intensity rate is 3 cm/s.

Keywords: Stripping, Sodium carbonate, Uranium, Pulsed packed column



مقدمه:

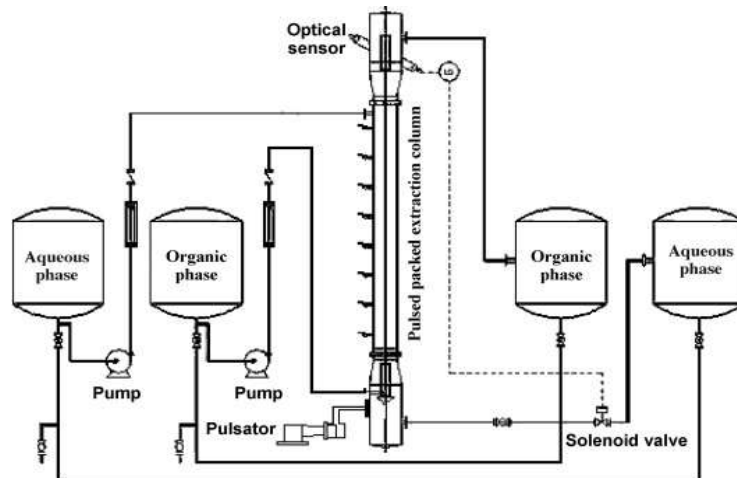
ستون‌های ضربه‌ای از سال ۱۹۵۰ در مقیاس صنعتی در صنایع هسته‌ای استفاده شده است. به دلیل بازده بالا و ایمنی بالا، از این نوع ستون‌ها به‌طور وسیع در صنایع هسته‌ای استفاده می‌شود [۱]. ستون‌های ضربه‌ای معمولاً برای استخراج اورانیوم، پلوتونیوم و توریم در صنعت هسته‌ای و کارخانه‌های بازآوری فلز و همچنین در فرایندهای بیوتکنولوژی استفاده می‌شود [۳ و ۲].

مزایای ستون‌های ضربه‌ای عبارت‌اند از:

- اختلاط محوری آن‌ها کم است.
- توزیع فاز پراکنده در طول سطح مقطع یکسان است.
- عملیات استخراج در این برج‌ها اقتصادی‌تر است [۵ و ۴].

دستگاه آزمایش:

آزمایش‌ها بر روی یک دستگاه ستون ضربه‌ای پر شده انجام گردید. طول ناحیه فعال ستون ۱۴۰ سانتی‌متر، قطر ناحیه فعال ستون ۵/۵ سانتی‌متر و نوع آکنه آن راشیگ سرامیکی می‌باشد. در این دستگاه توسط یک پیستون مکانیکی، عملیات ضربه زدن انجام می‌شود. دستگاه دارای چهار مخزن شیشه‌ای مشابه می‌باشد که دو عدد آن‌ها جهت نگهداری خوراک و حلال و دو عدد دیگر جهت جمع‌آوری محصولات بالا و پایین برج می‌باشد. فاز پیوسته از بالای برج و فاز پراکنده از پایین برج توسط پمپ وارد ستون می‌شوند. شکل (۱) نمودار شماتیکی از ستون مورد استفاده در آزمایش را نشان می‌دهد.



شکل (۱) نمودار شماتیک ستون ضربه‌ای پرشده [۴]

فرایند عریان سازی

کیک زرد در واقع خاک معدنی اورانیوم است که پس از گذراندن مراحل تصفیه و پردازش‌های لازم از سنگ معدنی آن تهیه می‌شود. به‌طور معمول فرایند تولید کیک زرد از سنگ معدن شامل آماده‌سازی سنگ معدن، فروشویی (اسیدی یا قلیایی)، جداسازی جامد از مایع، استخراج، عریان سازی و در نهایت رسوب‌گیری، خشک‌کردن و کلسیناسیون و تبدیل کیک زرد به اکسید اورانیوم طبیعی می‌باشد. فرایند عریان سازی عکس عمل استخراج است به این معنی که اورانیوم از فاز آلی به فاز آبی منتقل می‌شود. این عمل با تماس ماده استخراج‌کننده با محلولی از یک ماده شیمیایی مناسب انجام می‌گیرد. محلول حاصل برای رسوب‌گیری مستقیم کنسانتره (کیک زرد) مورد استفاده قرار می‌گیرد [۵]. از سدیم کربنات، آب، آمونیم سولفات، سدیم کلرید و بسیاری محلول‌های دیگر می‌توان در عریان کردن اورانیوم استفاده کرد؛ که البته انتخاب آن‌ها بستگی به میزان راندمان عریان سازی خواهد داشت. برخی از فرایندهای عریان سازی اورانیوم منجر به ایجاد فاز سوم، لجن، رسوب و یا امولسیون می‌گردد که تا حد امکان باید از تشکیل آن‌ها اجتناب نموده و یا میزان آن را تقلیل داد [۶].

در فرایند عریان سازی دو هدف پیگیری می‌شود:

۱. بازیابی فلزات با ارزش از فاز آلی باردار
۲. تولید مجدد استخراج‌کننده و بازیافت آن



زمانی که از محلول سدیم کربنات به عنوان عامل عریان ساز استفاده شود، محصول آمونیوم دی اورانات (ADU) حاصل می گردد. فرمول عریان کردن اورانیوم با سدیم کربنات به صورت زیر می باشد.



در اثر مجاورت حلال آلی با کربنات سدیم یون اورانیل آزاد شده و یون سدیم جانشین آن می گردد. طبق واکنش فوق تری اکتیل آمین به سیستم برگشت داده شده و اورانیوم صورت $Na_4UO_2(CO_3)_3$ به وجود می آید [۷].

شرح آزمایش و نتایج

استخراج اورانیوم

خوراک (فاز آبی) مورد استفاده فروشویی بندرعباس می باشد و فاز آلی شامل محلولی از تری اکتیل آمین به عنوان حلال، کروزین به عنوان رقیق کننده و دکانول در نقش اصلاح کننده می باشد. هدف از این فرایند انتقال اورانیم از فاز آبی (محلول فروشویی) به فاز آلی می باشد.

جدول (۱) شرایط بهینه آزمایش ها فرایند استخراج

| pH | دما | غلظت تری اکتیل آمین | نسبت فازی | غلظت اصلاح کننده | غلظت رقیق کننده |
|----|-----------|---------------------|-----------|------------------|-----------------|
| ۱ | دمای محیط | ۴ درصد حجمی | ۱ | ۲ درصد حجمی | ۹۴ درصد حجمی |

عریان سازی اورانیوم

خوراک (فاز آبی) مورد استفاده محلول سدیم کربنات می باشد و فاز آلی شامل حلال تری اکتیل آمین حاوی اورانیوم (محصول فرایند استخراج) می باشد. هدف از این فرایند انتقال اورانیم از فاز آلی به فاز آبی می باشد.

جدول (۲) محدوده آزمایش ها فرایند عریان سازی

| pH | دما | نسبت فازی | غلظت عریان ساز (g/L) | شدت ضربان (cm/s) | دبی فازها (l/L) |
|----|-----------|-----------|----------------------|------------------|-----------------|
| ۹ | دمای محیط | ۳-۵ | ۸۰-۱۲۰ | ۱-۳ | ۱-۶ |



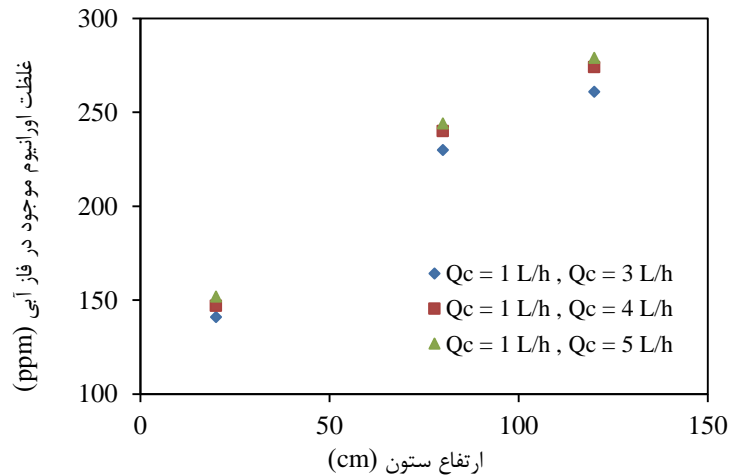
غلظت اورانیوم موجود در خوراک برابر ۲۸۴ppm می باشد. در هر آزمایش ۴ نمونه گیری (شیرهای یک، چهار، هفت و خروجی فاز پیوسته) در زمانی که ستون حالت پایدار دارد، گرفته شد و با استفاده از آنالیز UV غلظت اورانیوم موجود در نمونه ها (فاز آبی) به دست آمد. دمای آزمایش ثابت در نظر گرفته شده است (دمای محیط) و با توجه به آزمایش های انجام شده pH محلول سدیم کربنات برابر ۹ فرض شده است.

اثر نسبت فازی بر فرایند عریان سازی

نتایج حاصل از آنالیز UV در نسبت های فازی متفاوت در جدول (۳) مشاهده می شود. کم بودن نسبت فازی ممکن است منجر به افت زیاد حلال شود و از طرف دیگر بالا بودن نسبت فاز آلی به آبی نیازمند حجم زیادی از حلال است که ممکن است بار مالی اضافی داشته باشد. نتایج نشان می دهد مقدار نسبت بهینه فاز آلی به فاز آبی (O/A) برابر چهار می باشد. این موضوع در شکل (۲) قابل مشاهده می باشد.

جدول (۳) نتایج حاصل از آنالیز UV در نسبت های فازی متفاوت

| غلظت عریان ساز (g/L) | شدت ضربه (cm/s) | دبی فاز پیوسته (L/h) | دبی فاز پراکنده (L/h) | شیر یک (ppm) | شیر چهار (ppm) | شیر هفت (ppm) | خروجی پیوسته (ppm) |
|----------------------|-----------------|----------------------|-----------------------|--------------|----------------|---------------|--------------------|
| ۱۰۰ | ۳ | ۱ | ۳ | ۱۴۱ | ۲۳۰ | ۲۶۱ | ۲۷۸ |
| ۱۰۰ | ۳ | ۱ | ۴ | ۱۴۷ | ۲۴۰ | ۲۷۴ | ۲۸۱ |
| ۱۰۰ | ۳ | ۱ | ۵ | ۱۵۲ | ۲۴۴ | ۲۷۹ | ۲۸۲ |



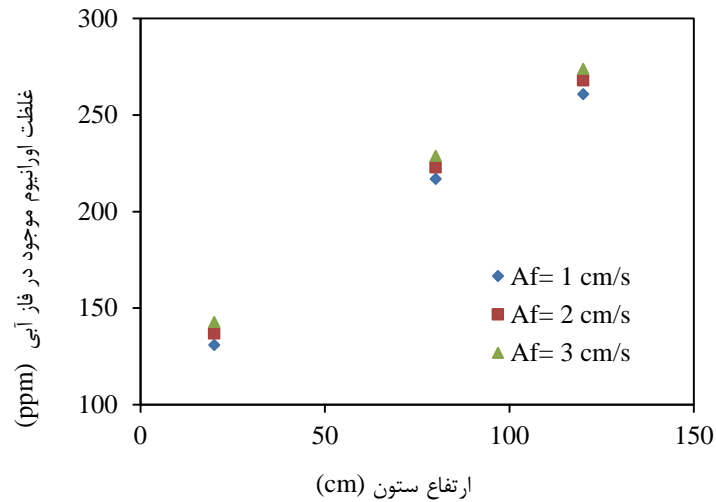
شکل (۲) اثر نسبت فازی بر غلظت اورانیوم موجود در فاز آبی در $Af=3 \text{ cm/s}$

اثر شدت ضربان بر فرایند عربان سازی

نتایج حاصل از آنالیز UV در شدت ضربان‌های متفاوت در جدول (۴) مشاهده می‌شود. با افزایش شدت ضربه غلظت اورانیوم موجود در فاز آبی افزایش می‌یابد. زیرا افزایش شدت ضربه باعث بهبود انتقال جرم، افزایش آشفتگی در سطح مشترک و ایجاد قطره‌هایی با اندازه کوچک‌تر می‌شود. شکل (۳) اثر شدت ضربه را بر غلظت اورانیوم موجود در فاز آبی نشان می‌دهد.

جدول (۴) نتایج حاصل از آنالیز UV در شدت ضربان‌های متفاوت

| غلظت عربان ساز (g/L) | شدت ضربه (cm/s) | دبی فاز پیوسته (L/h) | دبی فاز پراکنده (L/h) | شیر یک (ppm) | شیر چهار (ppm) | شیر هفت (ppm) | خروجی پیوسته (ppm) |
|----------------------|-----------------|----------------------|-----------------------|--------------|----------------|---------------|--------------------|
| ۱۰۰ | ۱ | ۱/۵ | ۴/۵ | ۱۳۱ | ۲۱۷ | ۲۶۱ | ۲۸۰ |
| ۱۰۰ | ۲ | ۱/۵ | ۴/۵ | ۱۳۷ | ۲۲۳ | ۲۶۸ | ۲۸۲ |
| ۱۰۰ | ۳ | ۱/۵ | ۴/۵ | ۱۴۳ | ۲۲۹ | ۲۷۴ | ۲۸۲ |



شکل (۳) اثر شدت ضربه بر غلظت اورانیوم موجود در فاز آبی

اثر غلظت محلول سدیم کربنات بر فرایند جریان سازی

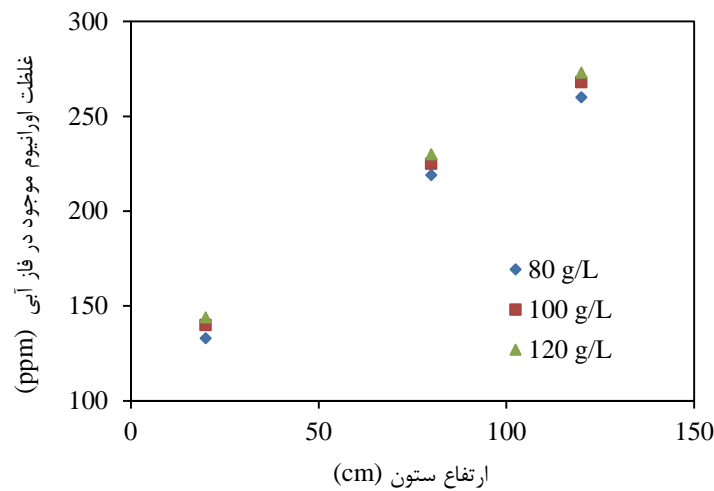
نتایج حاصل از آنالیز UV در غلظت‌های متفاوت جریان ساز در جدول (۵) مشاهده می‌شود. با افزایش غلظت حجمی محلول سدیم کربنات غلظت اورانیوم در فاز آبی افزایش می‌یابد تا جایی که افزایش آن دیگر اثری بر جریان سازی ندارد. این موضوع در شکل (۴) قابل مشاهده است.

جدول (۵) نتایج حاصل از آنالیز UV در غلظت‌های متفاوت جریان ساز

| غلظت جریان ساز (g/L) | شدت ضربه (cm/s) | دبی فاز پیوسته (L/h) | دبی فاز پراکنده (L/h) | شیر یک (ppm) | شیر چهار (ppm) | شیر هفت (ppm) | خروجی پیوسته (ppm) |
|----------------------|-----------------|----------------------|-----------------------|--------------|----------------|---------------|--------------------|
| ۸۰ | ۲ | ۱ | ۴ | ۱۳۳ | ۲۱۹ | ۲۶۰ | ۲۷۹ |
| ۱۰۰ | ۲ | ۱ | ۴ | ۱۴۰ | ۲۲۵ | ۲۶۸ | ۲۸۰ |
| ۱۲۰ | ۲ | ۱ | ۴ | ۱۴۴ | ۲۳۰ | ۲۷۳ | ۲۸۲ |



با توجه به نتایج به دست آمده غلظت حجمی بهینه محلول سدیم کربنات مقدار صد گرم بر لیتر در نظر گرفته می شود.



شکل (۴) اثر غلظت محلول سدیم کربنات بر غلظت اورانیوم موجود در فاز آبی

نتیجه گیری

در این مقاله فرایند عریان سازی اورانیوم از محلول فروشویی (محصول فرایند استخراج) با استفاده از عریان ساز سدیم کربنات در یک ستون استخراج ضربه ای پر شده مورد بررسی قرار گرفت. نتایج به دست آمده نشان داد که شرایط بهینه این فرایند غلظت صد گرم بر لیتر محلول سدیم کربنات و نسبت فاز آلی به آبی چهار و شدت ضربان ۳ سانتی متر بر ثانیه می باشد. همچنین میزان بالای درصد عریان سازی به دست آمده در آزمایش های انجام شده نشان داد که سدیم کربنات یک عریان ساز بسیار مناسب برای عریان سازی اورانیوم از محلول های آمینی می باشد.



بیست و پنجمین کنفرانس هشتای ایران

۲۰۱ اسفندماه ۱۳۹۷- دانشگاه آزاد اسلامی (واحد بوشهر)



مراجع

- [1] Rafiei, V., Safdari, J., Moradi, S., Amani, P., & Mallah, M. H. "Investigation of mass transfer performance in an L-shaped pulsed sieve plate extraction column using axial dispersion model." *Chemical Engineering Research and Design* 128 (2017): 130-145.
- [2] Jie, Y. and Weiyang, F. "Hydrodynamics and mass transfer in a pulsed packed column." *The Canadian Journal of Chemical Engineering* 78.6 (2000): 1040-1045.
- [3] Chantry, W.A., Berg, R.V. and Wiegandt, H.F. "Application of pulsation to liquid-liquid extraction." *Industrial & Engineering Chemistry* 47.6 (1955): 1153-1159.
- [4] Ladha, G.S., "Transport phenomena in liquid-liquid extraction" Mc Graw-Hill, (1976).
- [5] Morais, C.A. and Gomiero, L.A. "Uranium stripping from tertiary amine loaded solution by ammonium sulfate." *Minerals Engineering* 18 (2005): 1331-1333.
- [6] Hurst, F.J. and Crouse, D.J. "Recovery of Uranium from Amine Extractants with Ammonium Carbonate." Oak Ridge National Lab (1961).
- [7] Ramadevi, G., Sreenivas, T., Navale, A.S. "Solvent extraction of uranium from lean grade acidic sulfate leach liquor with alamine 336 reagent." *Journal of Radio analytical and Nuclear Chemistry* 294.1 (2012): 1318.