

۱۶ و ۱۷ اسفندماه ۱۳۹۴ دانشگاه یزد

بررسی پارامترهای تاثیرگذار در کیفیت پودر آمونیوم اورانیل کربنات تولیدی در فرآیند رسوب- گیری از محلول اورانیل فلوراید

محمدحسن صادقی*، امین زارعان

شرکت سوخت راکتورهای هسته‌ای

چکیده

هدف مطالعه حاضر، بررسی نحوه تولید رسوب آمونیوم اورانیل کربنات AUC از محلول اورانیل فلوراید و پارامترهای تاثیرگذار در کیفیت پودر تولیدی است. نتایج نشان داده است که، دمای ته‌نشینی تاثیر غالب را بر میزان فلوتور رسوب تشکیل شده دارد و افزایش آن باعث می‌شود درصد بازیابی اورانیوم کاهش یابد. رسوب‌گذاری AUC در غلظت‌های پایین محلول اورانیل فلوراید، کمتر از 50 gU/L ، به دلیل بازدهی پایین رسوب‌گذاری و تولید مقادیر بالای پسماند، غیر اقتصادی است. بازدهی رسوب‌گذاری با افزایش غلظت اورانیوم بیش از 150 gU/L ، افزایش نخواهد یافت. افزایش مقدار NH_4OH اضافی به محلول رسوب‌کننده انعطاف‌پذیری بیشتری به فرآیند رسوب‌گیری AUC می‌دهد.

کلید واژه‌ها: آمونیوم اورانیل کربنات، سوخت هسته‌ای، رسوب‌گیری، اورانیل فلوراید

۱. مقدمه

۱۶ و ۱۷ شهریور ماه ۱۳۹۴ دانشگاه یزد

اکسید اورانیوم مورد استفاده به عنوان سوخت هسته‌ای، از پودرهای آمونیوم اورانیل کربنات AUC و آمونیوم دی اورانات ADU تولید می‌شود. با توجه به حفظ ساختار کریستال AUC در اکسید اورانیوم مشتق شده از آن و نیز اهمیت کیفیت توزیع اندازه و مورفولوژی پودر اکسید اورانیوم تهیه شده در ساخت سوخت هسته‌ای، شناخت نحوه اثرگذاری هر کدام از پارامترهای فرآیند تولید AUC در کیفیت پودر تولیدی و تلاش برای بهینه کردن شرایط عملیاتی مورد استفاده، امری ضروری است [۱].

در مقایسه با فرآیند رسوب‌گیری ADU، فرآیند رسوب‌گیری AUC دارای دوغابی فیلترپذیرتر و محصولی ریزش‌پذیرتر است و پودر اکسید اورانیوم مشتق شده از آن را می‌توان مستقیماً و بدون انجام فرآیندهای اصلاحی، به صورت قرص متراکم کرد [۲]. اولین بار یک شرکت آلمانی رسوب AUC را با عبور بخار اورانیوم هگزا فلوراید و گازهای آمونیاک و دی‌اکسید کربن از آب بدون املاح، تولید کرده است. رسوب AUC را می‌توان از محلول‌های اورانیل فلوراید و اورانیل نیترات نیز تولید کرد [۳]. تقاضاهای اصلی از فناوری‌های رسوب‌گیری AUC بازیافت محصول با خلوص بالا، مشخصه فیلترپذیری بالا، سرعت نشسته قابل قبول، کنترل راحت، و توانایی رسیدن به مشخصات مطلوب صنایع سوخت هسته‌ای هستند [۴].

هدف از مطالعه حاضر بررسی فرآیند رسوب‌گیری AUC از محلول اورانیل فلوراید، بررسی تاثیرات پارامترهای فرآیندی مختلف و اهمیت نسبی آن‌ها بر مشخصات ذرات AUC تولیدی است. درک بهتر فرآیند سبب کنترل راحت‌تر آن نیز خواهد شد.

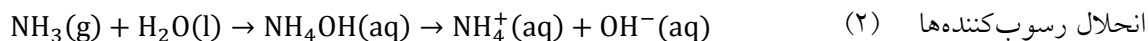
۲. روش کار

شکل ۱، شماتیک فرآیند تولید آمونیوم اورانیل کربنات AUC از محلول اورانیل فلوراید UO_2F_2 را نشان می‌دهد. در این فرآیند ابتدا محلول UO_2F_2 از تصعید UF_6 جامد و هیدرولیز UF_6 گازی تولیدی با آب بدون یون DM در تانک هیدرولیز تولید می‌شود. سپس محلول UO_2F_2 در تانک رسوب‌گیری با محلول آمونیوم کربنات واکنش داده و رسوب

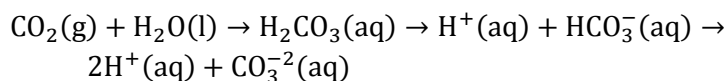
۵ و ۶ اسفندماه ۱۳۹۴ دانشگاه یزد

AUC تشکیل می شود. فیلتراسیون دوغاب AUC، شست و شو با محلول‌های آمونیوم کربنات و متانول و انتقال کیک AUC به مرحله خشک کردن مراحل بعدی هستند.

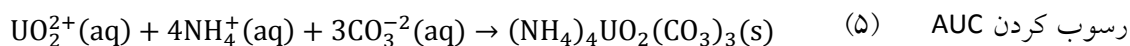
رسوب کننده مورد استفاده برای این فرآیند رسوب گیری می تواند گازهای $\text{CO}_2 + \text{NH}_3$ ، محلول $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$ ، و یا محلول $\text{NH}_4\text{CO}_2\text{NH}_2$ باشد. واکنش هایی که به طور کلی طی این فرآیند رخ می دهد در ادامه ذکر شده است [۲].



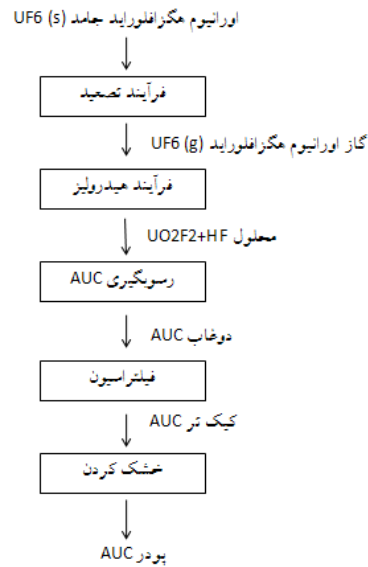
(۳)



(۵)



۱۶ و ۱۷ اسفندماه ۱۳۹۴ دانشگاه یزد



شکل ۱. شماتیک فرآیند تولید آمونیوم اورانیل کربنات AUC از محلول اورانیل فلوراید UO_2F_2

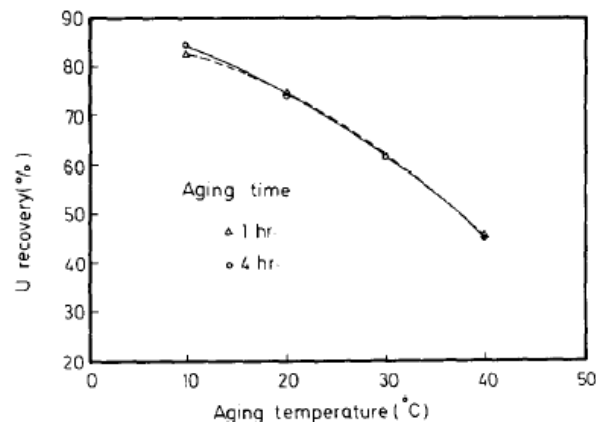
۳. نتایج

۳-۱. دمای رسوب‌گیری و ته‌نشینی

با بررسی همزمان دمای رسوب‌گیری، دمای ته‌نشینی، نرخ افزایش محلول آمونیوم کربنات، و نسبت مولی C/U محلول واکنش به روش طرح آزمایش دو سطحی، مشخص شده است که دمای واکنش و دمای ته‌نشینی در میان پارامترهای ذکر شده مهم‌ترین پارامترهای تاثیرگذار بر روی درصد بازیافت اورانیوم در محدوده بررسی شده است. نمودارهای نرمال این آزمایش‌ها نشان داده است که دمای ته‌نشینی تنها پارامتر مستقل تاثیرگذار بر درصد بازیابی اورانیوم است، هم‌چنین دمای ته‌نشینی تاثیر غالب را بر میزان فلوئور رسوب تشکیل شده دارد در حالی که دمای واکنش تنها در حالت ترکیبی آن با دمای ته‌نشینی اهمیت دارد [۵]. شکل ۲ تاثیر دمای ته‌نشینی بر روی بازیابی اورانیوم از محلول UO_2F_2 را نشان می‌دهد. کاهش درصد بازیابی اورانیوم با افزایش دمای ته‌نشینی با این مفهوم که این درصد بازیابی اورانیوم ابتدا بوسیله

۱۶ و ۱۷ اسفندماه ۱۳۹۴ دانشگاه یزد

انحلال پذیری AUC در دوغاب نهایی تعیین می‌شود، سازگار است. افزایش دمای ته‌نشینی به معنای افزایش انحلال‌پذیری AUC در دوغاب نهایی است که باعث شده درصد بازیابی اورانیوم کاهش یابد. در شکل ۲ مشاهده می‌شود که زمان ته‌نشینی تقریباً هیچ‌گونه تاثیری بر درصد بازیابی اورانیوم نداشته است.



شکل ۲. تاثیر دما و زمان ته‌نشینی بر درصد بازیابی اورانیوم (نسبت مولی C/U نهایی ۸، دمای رسوب‌گیری و ته‌نشینی ۲۰۰°C، و نرخ افزایش محلول آمونیوم کربنات ۰/۱ ml/min) [۵]

۲-۳. غلظت اورانیوم در محلول اورانیل فلوراید

تحقیقات نشان داده است که غلظت اورانیوم در محلول اورانیوم فلوراید خوراک فاکتور تاثیرگذار با اهمیتی بر ترکیب AUC و نیز دانسیته سینترشده قرص سوخت نهایی نیست [۶].

ترکیب UO_2F_2 -HF در محلول به صورت $UO_2F_n^{2-n}$ وجود دارد. بعد از واکنش این محلول با محلول آمونیوم کربنات، همراه با AUC احتمالاً بسته به روش رسوب‌گذاری، مجموعه‌ای از ترکیبات پایدار به فرم AUF مانند $(NH_4)_2UO_2F_4$ (با حلالیت ۰/۰۰۰۱۴ mol/L) و $(NH_4)_3UO_2F_5$ (با حلالیت ۰/۳۲۶ mol/L) نیز تشکیل می‌شوند. به دلیل تشکیل ترکیبات پایدار میان یون‌های U^{+6} و F^- و نیز انحلال اورانیوم در محلول کربنات رسوب‌گذاری AUC در غلظت‌های پایین محلول

۱۶ و ۱۷ شهریور ۱۳۹۴ دانشگاه یزد

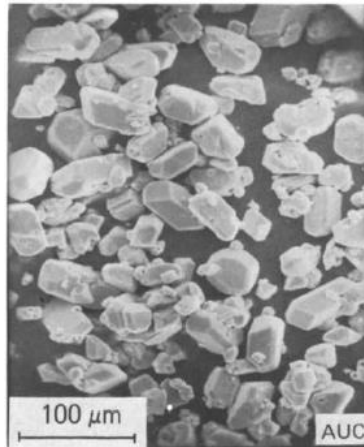
اورانیل فلوراید، کمتر از 50 gU/L ، به دلیل بازدهی پایین رسوب گذاری و تولید مقادیر بالای پسماند، غیر اقتصادی است. در غلظت‌های بالای محلول اورانیل فلوراید، بالاتر از 150 gU/L ، غلظت یون آزاد F^- در محلول مادر فرآیند رسوب گذاری افزایش خواهد یافت و سبب می‌شود غلظت تعادلی اورانیوم در محلول مادر افزایش یابد. بنابراین بازدهی رسوب گذاری با افزایش غلظت اورانیوم بیش از این حد، افزایش نخواهد یافت [۷].

نتایج نشان داده است که، بازدهی رسوب گذاری اورانیوم با افزایش غلظت محلول اورانیل فلوراید، افزایش می‌یابد. در غلظت‌های بالاتر از 100 gU/L ، بازدهی بالای ۸۰ درصد بدست آمده است.

۳-۳. مقدار NH_4OH اضافی در محلول رسوب کننده

افزایش مقدار NH_4OH اضافی به محلول رسوب کننده، آن را قلیایی تر می‌کند و انعطاف پذیری بیشتری به فرآیند رسوب-گیری AUC می‌دهد [۵]. آزمایش‌هایی با ۱۰ درصد NH_4OH اضافی در محلول $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$ ۱۰ درصد، افزایش مقدار pH از ۹/۱ به ۱۰/۳، انجام شده است. محصول تولیدی با فیلترپذیری کمتر، تخلخل بیشتر، و نیز جریان پذیری کمتر، افزایش قابل توجه بازیافت اورانیوم، و نیز افزایش مقدار فلوتور در رسوب از جمله نتایج مشاهده شده حاصل از افزایش مقدار NH_4OH اضافی به محلول رسوب کننده هستند. مورفولوژی یک نمونه از رسوب AUC تولیدی با ۱۰ درصد NH_4OH اضافی در شکل ۳ نشان داده شده است. تفاوت چشمگیری در مورفولوژی ذرات تولیدی با افزایش مقدار اضافی از NH_4OH رخ نداده است.

۱۳۹۴ و ۱۶ شماره ۱ و ۱۳۹۴ و ۱۶ شماره ۱



شکل ۳. تصویر SEM رسوب AUC تولیدی با ۱۰ درصد NH_4OH اضافی [۵]

۴- بحث و نتیجه گیری

در این مطالعه، تاثیرات پارامترهای فرآیندی مختلف و اهمیت نسبی آن‌ها بر مشخصات ذرات AUC تولیدی از محلول UO_2F_2 بررسی شده است. دمای ته‌نشینی تنها پارامتر مستقل تاثیرگذار بر درصد بازیابی اورانیوم است، هم‌چنین دمای ته‌نشینی تاثیر غالب را بر میزان فلوئور رسوب تشکیل شده دارد در حالی که دمای واکنش تنها در حالت ترکیبی آن با دمای ته‌نشینی اهمیت دارد. افزایش دمای ته‌نشینی به معنای افزایش انحلال‌پذیری AUC در دوغاب نهایی است که باعث می‌شود در صد بازیابی اورانیوم کاهش یابد. به دلیل تشکیل ترکیبات پایدار میان یون‌های U^{+6} و F^- و نیز انحلال اورانیوم در محلول کربنات، رسوب‌گذاری AUC در غلظت‌های پایین محلول اورانیل فلوراید، کمتر از 50 gU/L ، به دلیل بازدهی پایین رسوب‌گذاری و تولید مقادیر بالای پسماند، غیر اقتصادی است. در غلظت‌های بالای محلول اورانیل فلوراید، بالاتر از 150 gU/L ، غلظت یون آزاد F^- در محلول مادر فرآیند رسوب‌گذاری افزایش خواهد یافت و سبب می‌شود غلظت تعادلی اورانیوم در محلول مادر افزایش یابد. بنابراین بازدهی رسوب‌گذاری با افزایش غلظت اورانیوم بیش از این حد، افزایش نخواهد یافت. افزایش مقدار NH_4OH اضافی به محلول رسوب‌کننده، آن را قلیایی‌تر می‌کند و

۵ و ۶ اسفندماه ۱۳۹۴ دانشگاه یزد

انعطاف‌پذیری بیشتری به فرآیند رسوب‌گیری AUC می‌دهد. محصول تولیدی با فیلترپذیری کمتر، تخلخل بیشتر، و نیز جریان‌پذیری کمتر، افزایش قابل توجه بازیافت اورانیوم، و نیز افزایش مقدار فلوتور در رسوب از جمله نتایج مشاهده شده حاصل از افزایش مقدار NH_4OH اضافی به محلول رسوب‌کننده هستند.

۵- مراجع

- 1- Manna, S., Roy, S. B., Joshi, J. B. "Study of Crystallization and Morphology of Ammonium Diuranate and Uranium Oxide", *J. Nucl. Mater.*, **424** (2), pp. 94-100, (2012).
- 2- Mellah, A., Chegrouche, S., Barkat, M. "The Precipitation of Ammonium Uranyl Carbonate (AUC): Thermodynamic and Kinetic Investigations", *Hydrometallurgy*, **85** (3), pp. 163-171, (2007).
- 3- Tel, H., Eral, M. "Investigation of Production Conditions and Powder Properties of AUC", *J. Nucl. Mater.*, **231** (1), pp. 165-169, (1996).
- 4- Marajofsky, A., Perez, L., Celora, J. "On the Dependence of Characteristics of Powders on the AUC Process Parameters", *J. Nucl. Mater.*, **178** (2), pp. 143-151, (1991).
- 5- Kan-Sen, Ch., Ding-Yi, L., Mu-Chang, Sh. "Precipitation Studies of Ammonium Uranyl Carbonate From UO_2F_2 Solutions", *J. Nucl. Mater.*, **165** (4), pp. 171-178, (1989).
- 6- Maw-Chwain, L., Chung-Jyi, W. "Conversion of UF_6 to UO_2 : A Quasi-Optimization of the Ammonium Uranyl Carbonate Process", *J. Nucl. Mater.*, **185** (1), pp. 190-201, (1991).
- 7- Trang-Hong, N., Van-Khoai, D., Van-Duc, N., Duy-Minh, C. "Study on the Precipitation of Ammonium Preliminary Carbonate (Auc) from Uranulfluoride (UO_2F_2) Solution", *The Annual Report of Vietnam Atomic Energy Commission*, Vietnam, pp. 187-192, (2009).