การศึกษาวิธีสะกัดธาตุยูเรเนียมจากหินทรายในประเทศ

นางสาว วันทนีย์ พูลแย้ม

004590

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิทยาศาสตรมหาบัณฑิต

แผนกวิชาเคมี

บัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

พ.ศ. ๒๕๒๑

I 17310623

STUDY ON THE LEACHING OF URANIUM FROM SOME LOCAL SANDSTONES

Miss Wantanee Poolyam

A Thesis Submitted in Partial Fulfilment of the Requirements

for the Degree of Master of Science

Department of Chemistry

Graduate School

Chulalongkorn University

1978

Thesis Title	Study on the Leaching of Uranium from Some Local Sandstones.
By	Miss Wantanee Poolyam
Department	Chemistry
Thesis Advisor	Kantika Sirisena, Ph.D.

Accepted by the Graduate School, Chulalongkorn University in partial fulfilment of the requirements for the Master's degree.

S. Bunnag ..... Acting Dean of Graduate School

(Assistant Professor Supradit Bunnag, Ph.D.)

Thesis Committee

Pirawan Banthumnavin ..... Chairman

(Assistant Professor Pirawan Banthumnavin, Ph.D.)

Salag Dhabanandana ..... Member

(Associate Professor Salag Dhabanandana, Ph.D.)

Siri Varothai ..... Member

(Assistant Professor Siri Varothai, Ph.D.)

Kantika Sirisena ..... Member

(Kantika Sirisena, Ph.D.)

Copyright of the Graduate School, Chulalongkorn University

หัวข้อวิทยานิพนธ์	การศึกษาวิธีสะกัดธาตุยูเรเนียมจากหินทรายในประเทศ
ชื่อนิสิต	นางสาว วันทนีย์ พูลแย้ม
อาจารย์ที่ปรึกษา	ดร. กรรติกา สิริเสนา
แผนกวิชา	เคมี
ปีการศึกษา	๒๕๒๑

หอสมุดกลาง จุฬาลงกรณมหาวิทยาลัย

บทคัดย่อ

การทดลองนี้มีจุดประสงค์เพื่อจะศึกษาวิธีสะกัดยูเรเนียมในหินทราย จากภาคตะวันออกเฉียงเหนือของประเทศไทย โดยการใช้กรดซัลฟุริคเป็นสารสะกัด เพื่อดูผลของ ขนาดเม็ดแร่หลังจากบดแล้ว ความเข้มของกรด ปริมาณของตัวเร่งปฏิกิริยา อุณหภูมิ และ เวลา ที่มีต่อการสะกัดยูเรเนียม

จากการทดลองพบว่า การสะกัดที่ให้ยูเรเนียมออกมามากที่สุดถึงร้อยละ ๙๒ นั้นได้จากการใช้หินทรายที่บดละเอียดขนาด ๒๐๐ mesh ทำปฏิกิริยากับกรดซัลฟุริค จำนวน ๒๗๐ กรัมต่อ ๑ กิโลกรัมของน้ำหนักแร่ และใช้แมงกานีสไดออกไซด์ ปริมาณ ๑๑.๒๕ กรัม ต่อ ๑ กิโลกรัมของน้ำหนักแร่ เป็นตัวออกซิไดส์ โดยเติมน้ำบริสุทธิ์ลงไปเพื่อให้ปริมาณของเหลวกับแร่ เท่ากันในอัตราส่วน ๑ : ๑ ในการสะกัดใช้วิธีกวนแรกับของผสมดังกล่าวในภาชนะปิดเป็นเวลา ๘ ชั่วโมงที่อุณหภูมิ ๘๐ ± ๕ °ซ หลังจากนั้นยูเรเนียมจะถูกทำให้บริสุทธิ์ขึ้นอีก โดยการสะกัดด้วย tertiary amine ซึ่งให้ผลการสะกัด (extraction yield) ๘๖ % ในขั้นสุดท้าย สารละลายที่มียูเรเนียมบริสุทธิ์นี้จะถูกปรับให้มีความเป็นกรดด่างที่ ๗.๕ จะได้ตะกอนสีเหลืองของ ammonium uranyl tricarbonate ซึ่งมียูเรเนียมบริสุทธิ์มาก

Thesis Title	Study on the Leaching of Uranium from Some Local Sandstones
Name	Miss Wantanee Poolyam
Thesis Advisor	Dr. Kantika Sirisena
Department	Chemistry
Academic Year	1978

ABSTRACT

The effects of particle size, reagent concentration, amount of oxidant, reaction temperature and reaction time on the leaching of some local sandstone were studied. A leaching yield of 92 % was achieved by leaching −200 mesh sandstone with sulphuric acid at concentration of 270 g / kg of ore in the presence of 11.25 g manganese dioxide per 1 kg of ore and a solid to liquid ratio of 1 : 1. The leaching temperature was 80 ± 5 ^{o}C whereas the leaching time was allowed to 8 hours. Uranium from the leach liquor was purified by amine extraction. High purity uranium was obtained after a single extraction and two scrubbing stages. A total extraction yield of 86% was achieved by the two stages of stripping.

หอสมุดกลาง
จุฬาลงกรณมหาวิทยาลัย

ACKNOWLEDGEMENTS

This work was supported by the Office of Atomic Energy for Peace and was performed during May, 1977 to July, 1978.

The author wishes to express her sincere appreciation to Dr. Kantika Sirisena, who has offered her valuable advice, pointed out the experimental error and read carefully and critically many chapters of the manuscript. Special thanks go to Miss Sirinart Muangnoicharoen and Mr. Somporn Chongkum, for their guidance and assistance on the nuclear techniques of analysis. She would also like to express her thanks for the experimental assistance of Mr. Chouvana Rodthongkom. Finally, she is indebted to the University Development Commission for financial support.

CONTENTS

PAGE

ABSTRACT (IN THAI) iv

ABSTRACT v

ACKNOWLEDGEMENTS vi

LIST OF TABLES x

LIST OF FIGURES xii

CHAPTER

I. INTRODUCTION 1

II. THEORY 3

2.1 Acid Leaching 4

2.1.1 Acid Concentration 5

2.1.2 Effect of Temperature 7

2.1.3 Effect of Grinding 7

2.1.4 Effect of Oxidants 8

2.2 Alkaline Leaching 9

2.3 Amine Solvent Extraction 10

2.3.1 The Extraction Section 11

2.3.2 The Scrubbing Section 12

2.3.3 The Stripping Section 13

III. EXPERIMENTS 15

3.1 Sample Preparation 15

3.2 Quantitative Analysis of Sandstone 15

PAGE

3.2.1 Chemical and Spectrophotometric Analysis .. 15

3.2.2 X– Ray Fluorescence Analysis 16

3.2.3 Instrumental Neutron Activation Analysis .. 21

3.3 Ore Leaching 29

3.3.1 Procedure 29

3.3.2 Equipments for Batch Agitation 29

3.4 Amine Extraction of Sulphuric Leach Liquor 30

IV. RESULTS AND DISCUSSIONS 32

4.1 Analysis of Sandstone 32

4.1.1 Chemical and Spectrophotometric Analysis .. 32

4.1.2 X–Ray Fluorescence Analysis 33

4.1.3 Neutron Activation Analysis 34

4.2 Acid Leaching of Sandstone 37

4.2.1 Effect of Acid Concentration on the Leaching of Uranium from Sandstone..... 37

4.2.2 Effect of Time on the Leaching of Uranium from Sandstone 39

4.2.3 Effect of Temperature on the Leaching of Uranium from Sandstone 40

4.2.4 Effect of Oxidant on Acid Leaching of Uranium from Sandstone 42

4.2.5 Effect of Particle Size on the Leaching of Uranium from Sandstone 43

4.2.6 Effect of time on the Leaching of Uranium at Ambient Temperature 45

PAGE

4.2.7 Process Precision Evaluation of Acid Leaching 47

4.2.8 Acid Leaching of Uranium from Sandstone in Scale of 1 kilogram Per Batch 54

4.3 Alkaline Leaching of Sandstone 55

4.4 Recovery of Uranium from Leach Liquor by Amine Solvent Extraction..... 56

4.5 Precipitation of Uranium as Yellow Cake 57

V. CONCLUSION 60

REFERENCE 61

BIOGRAPHY 64

LIST OF TABLES

TABLE		PAGE
3.1	The Variable Energy X-Ray Source for the calibration of Si (Li) Detector at gain 50/1.0	16
3.2	Conditions of sample irradiation for uranium analysed by neutron activation analysis	22
4.1	Sandstone analysis by chemical and spectrophotometric method	32
4.2	Compositions of the sandstone sample analysed by X-ray fluorescence.....	33
4.3	Analysis of uranium in sandstone by neutron activation	34
4.4	Analysis of uranium in acid leach liquors by neutron activation	35
4.5	Analysis of vanadium in sandstone and leach liquor by neutron activation	36
4.6	Effect of acid concentration on the leaching of sandstone ..	38
4.7	Effect of leaching time on the leaching uranium from sandstone	40
4.8	Effect of temperature on acid leaching of sandstone	41
4.9	Effect of MnO_2 on acid leaching of sandstone	42
4.10	Effect of particle size on the leaching of uranium from sandstone	44
4.11	Effect of time on the leaching of uranium from sandstone at ambient temperature	46

TABLE		PAGE
4.12	Replicate leaching yield at similar leaching conditions....	47
4.13	Compositions of leach liquor from large scale processing...	54
4.14	Results of alkaline leaching of sandstone	56
4.15	Results of amine solvent extraction in the recovery of uranium from leach liquor	57

หอสมุดกลาง จุฬาลงกรณมหาวิทยาลัย

LIST OF FIGURES

FIGURE		PAGE
2.1	Simplified flow diagram of sulphuric acid leaching and recovery of uranium by amine solvent extraction	14
3.1	Block diagram of X-ray fluorescence instruments	17
3.2	The set-up of X-ray fluorescence instruments	18
3.3	Calibration curve of X-ray fluorescence	19
3.4	X-ray spectrum of standard and sandstone	20
3.5	Gamma spectrum of sandstone and standard 0.01 % U	24
3.6	Gamma spectrum of solid leached residue and leach liquor .	25
3.7	Decay curve of U^{239}	26
3.8	Block diagram of gamma rays measurement instruments	27
3.9	The set of gamma rays measurement instruments	28
3.10	Schematic diagram of the batch agitation apparatus	30
3.11	Effect of pH on the extraction of uranium with tertiary amine	31
4.1	Effect of acid concentration on leaching yield	48
4.2	Effect of time on leaching yield	49
4.3	Effect of temperature on leaching yield	50
4.4	Effect of MnO_2 on leaching yield	51
4.5	Effect of particle size on leaching yield	52
4.6	Effect of time on ambient temperature leaching	53
4.7	Comparison of X-ray fluorescence spectra of the solutions in solvent extraction	58
4.8	Gamma spectrum of U_3O_8 and $(NH_4)_4UO_2(CO_3)_3$ precipitate ...	59