

กระบวนการแปลงสำรุกรเรณิลไนเตรตให้เป็นโลหะธาตุเรเนียม

นายสมพงษ์ ไกรวุฒินันท์



วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิศวกรรมศาสตรมหาบัณฑิต

ภาควิชาวิศวกรรมเครื่องกลและเทคโนโลยี

บัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

พ.ศ. 2525

ISBN 974-561-191-3

ห้องสมุดคณะวิศวกรรมศาสตร์
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

A CONVERSION PROCESS OF URANYL NITRATE TO METALLIC URANIUM

Mr. Sompong Kraivutinundh



A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements

for the Degree of Master of Engineering

Department of Nuclear Technology

Graduate School

Chulalongkorn University

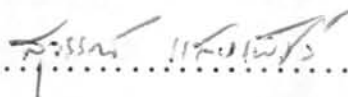
1982

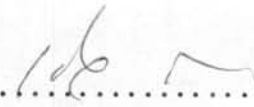
หัวข้อวิทยานิพนธ์ กระบวนการแปลงสำรूप เรณิสนิเตรตให้เป็นโลหะธาตุยูเรเนียม
โดย นายสมพงษ์ ไกรวุฒินันท์
ภาควิชา นิเวศศาสตร์เทคโนโลยี
อาจารย์ที่ปรึกษา อาจารย์ ชัยากริต ศิริอุปถัมภ์

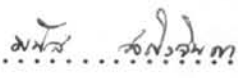
บัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย อนุมัติให้บัณฑิตวิทยาลัยฉบับนี้เป็นส่วนหนึ่ง
ของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิทยาศาสตรบัณฑิต


..... ๒๕๖๗ คณบดี บัณฑิตวิทยาลัย
(รองคณบดีตราจารย์ ดร.สุประดิษฐ์ บุญนาค)

คณะกรรมการสอบวิทยานิพนธ์

.....  ประธานกรรมการ
(คณบดีตราจารย์ สุวรรณ แสงเพชร)

.....  กรรมการ
(คณบดีตราจารย์ ดร.เพ็ช สิทธีสุนทร)

.....  กรรมการ
(รองคณบดีตราจารย์ มนัส สิทธีสุนทร)

.....  กรรมการ
(อาจารย์ ชัยากริต ศิริอุปถัมภ์)

ลิขสิทธิ์ของบัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

หัวข้อวิทยานิพนธ์	กระบวนการแปลงสารยูเรนิลไนเตรตให้เป็นโลหะธาตุยูเรเนียม
ชื่อนิสิต	นาย สัมพงษ์ ไกรวุฒิกนันท์
อาจารย์ที่ปรึกษา	อาจารย์ ชัยภกริต ศิริอุปถัมภ์
ภาควิชา	นิวเคลียร์เทคโนโลยี
ปีการศึกษา	2524

บทคัดย่อ

ได้ทดลองผลิตโลหะธาตุยูเรเนียมโดยเริ่มจากยูเรนิลไนเตรทบริสุทธิ์ ในกระบวนการใช้วิธีเปียก (wet method) คือเตรียมผ่าน แอมโมเนียม ไดยูเรเนต ยูเรนิลซัลเฟต และ ยูเรเนียมเตตระฟลูออไรด์ ตามลำดับ แล้วจึงรีดิวซ์ยูเรเนียมเตตระฟลูออไรด์ด้วยโลหะแคลเซียม เพื่อให้ได้โลหะธาตุยูเรเนียม จากการทดลอง ใช้ยูเรเนียมเตตระฟลูออไรด์ปริมาณ 100 กรัม ผสมกับผงโลหะแคลเซียมมากเกินพอ ร้อยละ 15 - 20 ฮัดเป็นแท่ง บรรจุในเบ้าเหล็กที่ใส่แร่ฟลูออรัลปาร์บริสุทธิ์รูปร่างใน แล้วเผาด้วยเตาไฟฟ้าที่อุณหภูมิ 900 องศาเซลเซียส จะได้โลหะธาตุยูเรเนียมที่เป็นเม็ดเล็ก ๆ ส่วนมากเป็นผงละเอียดฝังอยู่ในตะแกรง จากการวิเคราะห์โลหะธาตุยูเรเนียมที่ได้ พบว่ามีความบริสุทธิ์สูงร้อยละ 99.46 สิ่งเสียนปนปริมาณน้อยที่พบคือ เหล็กและแคลเซียมฟลูออไรด์ มีปริมาณ 91.4 และ 200 ส่วนในล้านส่วนตามลำดับ โลหะธาตุยูเรเนียมที่เป็นก้อนเล็ก ๆ และเป็นผง หลังจากแยกออกจากตะแกรง โดยการบดรวมกันและร่อน สามารถนำไปหลอมใหม่ให้เป็นก้อนโตได้ โดยใช้เปลวพลาสมาแบบนันทรานส์เฟอว์ ซึ่งจะได้ความหนาแน่นของโลหะธาตุยูเรเนียม 18.10 กรัมต่อลูกบาศก์เซนติเมตร

Thesis Title A Conversion Process of Uranyl Nitrate to Metallic
 Uranium
Name Mr. Sompong Kraivutinundh
Thesis Advisor Mr. Chyagrit Siri-Upathum
Department Nuclear Technology
Academic Year 1981

ABSTRACT

Production of uranium metal from pure uranyl nitrate hexahydrate was conducted. Wet method to produce UF_4 which include ammonium diuranate, uranous sulphate as intermediates was done. UF_4 obtained was reduced by 15 - 20 percent excess calcium metal granular in a steel bomb lined with pure fluorspar. Reduction was initiated by heating the loaded bomb in an electric furnace at about $900^\circ C$. Uranium metal product most of which was fine powder embeded in the slag only some found in granular form, has purify of 99.46 percent with trace of iron and calcium fluoride found as impurities, the contents were 91.4 and 200 ppm respectively. Granular and powder uranium metal which was removed from slag by grinding and sieving could be remelted by non transfer plasma flame. The uranium metal button obtained was found to have a density of greater than 18.10 g/cm^3 .

ห้องสมุดคณะวิทยาศาสตร์
มหาวิทยาลัยเทคโนโลยี

กิติกรรมประกาศ

ขอขอบพระคุณ คำลัดตราจารย์ สุวรรณ แสงเพ็ชร หัวหน้าภาควิชาวิศวกรรมเทคโนโลยี
ที่ริเริ่มและสนับสนุนให้มีการวิจัยในเรื่องนี้ และช่วยแนะนำทางแก้ปัญหาตลอดมา

ขอขอบพระคุณ อาจารย์ ชยากริต ศิริอุปถัมภ์ ที่กรุณาให้ความช่วยเหลือ แนะนำ แก้ปัญหา
จนการวิจัยครั้งนี้สำเร็จลุล่วงตามจุดประสงค์

ขอขอบคุณ อาจารย์วีระชัย ปัญชรเทวกุล อาจารย์ สุวิทย์ ภูผชัยยะ คุณไพฑูริย์ นวลนิล
ที่กรุณาให้ความช่วยเหลือจัดสร้างเครื่องมือ และอุปกรณ์ที่ใช้ในการทดลองจนการวิจัยนี้สำเร็จ

ขอขอบคุณ คุณคงศักดิ์ สุภาสุรีย์ คุณพิทักษ์ บันทอง ที่ช่วยจัดหาวัสดุที่ใช้ในการทดลอง
นางสาวมะลิวัลย์ แยมพราย ที่ช่วยจัดพิมพ์วิทยานิพนธ์นี้อย่างรวดเร็ว

ขอขอบคุณ อาจารย์ เบญจวรรณ ดิษฐชลอ ซึ่งเป็นกำลังใจในการทำวิทยานิพนธ์จนสำเร็จ
ลงด้วยดี

สุดท้ายนี้ ขอขอบคุณ บัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย ที่กรุณาให้ทุนอุดหนุนสำหรับ
การวิจัยนี้

สารบัญ

	หน้า
บทคัดย่อภาษาไทย	ง
บทคัดย่อภาษาอังกฤษ	ฉ
กิตติกรรมประกาศ	ค
รายการตารางประกอบ	ณ
รายการรูปประกอบ	ด
บทที่	
1. บทนำ	1
2. การผลิตเรณีย์มเตตระฟลูออไรด์	10
3. การผลิตโลหะธาตุเรณีย์	41
4. อุปกรณ์ และวิธีดำเนินการวิจัย	62
5. ผลการวิจัย	93
6. สรุปผลการวิจัย และข้อเสนอแนะ	126
เอกสารอ้างอิง	129
ประวัติผู้เขียน	131

รายการตารางประกอบ

ตารางที่		หน้า
1.1	แร่ยูเรเนียมที่แบ่งตามองค์ประกอบทางเคมี	3
1.2	แหล่งแร่ยูเรเนียมสำรอง	3
1.3	คุณสมบัติทางกายภาพของโลหะธาตุยูเรเนียม	4
1.4	ปฏิกิริยาทางเคมีของโลหะธาตุยูเรเนียม	6
1.5	เชื้อเพลิง วัสดุห่อหุ้ม ในเครื่องปฏิกรณ์	9
2.1	คุณสมบัติของยูเรเนียมไดออกไซด์ที่ผลิตจากสารตั้งต้นชนิดต่างๆ	14
2.2	ผลวิเคราะห์ยูเรเนียมไดออกไซด์	17
2.3	ผลวิเคราะห์ยูเรเนียมเตตระฟลูออไรด์ เกรดโลหะของUSAEC	25
2.4	คุณสมบัติของไฮดรอกไซด์ยูเรเนียม เตตระฟลูออไรด์	36
2.5	ขนาดผลึกของ $UF_4 \cdot \frac{3}{4} H_2O$	36
2.6	คุณสมบัติทาง fluidizing ของยูเรเนียมเตตระฟลูออไรด์	40
3.1	พียงขึ้นทางเทอร์โมไดนามิกของสารที่ใช้ในการรีดักชันยูเรเนียม	46
3.2	ความร้อนที่ต้องเติมเข้าไปเพื่อรีดิวซ์ยูเรเนียมเตตระฟลูออไรด์	47
3.3	ผลวิเคราะห์ขนาดของแมกเนเซียมฟลูออไรด์	58
3.4	รายละเอียดของแมกเนเซียม	59
3.5	ผลวิเคราะห์ยูเรเนียม ingot	61
5.1	ความแตกต่างของค่าความเป็นกรด-ด่างที่มีต่อการตกนอนกันของตะกอน	96
5.2	ความแตกต่างของค่าความเป็นกรด-ด่างที่มีต่อการกรองได้เร็ว	96
5.3	ผลของการล้างตะกอนที่มีต่อคุณสมบัติในการตกนอนกัน เมื่อตกตะกอนที่ ความเป็นกรด-ด่าง 3.2	97
5.4	ค่าความดูดกลืนแสงของสารละลายมาตรฐาน อัมโมเนียมไนเตรต เมื่อวัด ที่ความยาวคลื่น 220 นาโนเมตร	99

ตารางที่	หน้า
5.5 ปริมาตรอิมโมเนียมไนเตรตในสารละลายที่กรองได้จากการตกตะกอนอิมโมเนียมโดยเรเนต และในน้ำล้างตะกอน	10 1
5.6 ยึดของการตกตะกอนอิมโมเนียม โดยเรเนตที่สภาวะต่างๆ	10 2
5.7 พื้นที่ผิววาทิตมีผลต่อเวลาที่ใช้อิเล็กโตรไลติกรีดักชัน	10 3
5.8 พื้นที่ผิววาทิตมีผลต่อเวลาที่ใช้อิเล็กโตรไลติกรีดักชัน	10 5
5.9 ความเข้มข้นของสารละลายยูเรนิลไนเตรตมีผลต่อเวลาที่ใช้อิเล็กโตรไลติกรีดักชัน	10 7
5.10 อุณหภูมิมีผลต่อเวลาที่ใช้อิเล็กโตรไลติกรีดักชัน	10 9
5.11 สภาวะต่างๆที่ใช้อิเล็กโตรไลติกรีดักชัน ยูเรนิลไนเตรตปริมาณมาก	110
5.12 สภาวะที่ใช้ในการหาผลิตภัณฑ์ ในการทำอิเล็กโตรไลติกรีดักชัน สารละลายยูเรนิลซัลเฟต	111
5.13 อุณหภูมิที่ใช้อัดตะกอนมีผลต่อคุณสมบัติของตะกอนยูเรเนียมเตตระฟลูออไรด์	112
5.14 ความเข้มข้นของกรดมีผลต่อคุณสมบัติของตะกอนยูเรเนียมเตตระฟลูออไรด์	112
5.14 คุณสมบัติของยูเรเนียมเตตระฟลูออไรด์ ($UF_4 \cdot \frac{3}{4} H_2O$)	113
5.15 ปริมาณน้ำในผลึกยูเรเนียมเตตระฟลูออไรด์ที่ลดลงโดยขบวนการดีไฮเดรชัน	115
5.16 ยึดของการเตรียมยูเรเนียมเตตระฟลูออไรด์จากยูเรนิลไนเตรต	116
5.17 ขนาดของก้อนอัดยูเรเนียมเตตระฟลูออไรด์กับแคลเซียม	117
5.18 ค่าความดูดกลืนแสงของสารละลายมาตรฐานเหล็กที่ 510 นาโนเมตร	120
5.19 ปริมาณเหล็กในโลหะธาตุยูเรเนียมและยูเรเนียมเตตระฟลูออไรด์	123
5.20 ค่าความดูดกลืนแสงของสารละลายมาตรฐานปรอทที่ 495 นาโนเมตร	123

รายการรูปประกอบ

รูปที่	หน้า
1.1 การเปลี่ยนสถานะของยูเรเนียม	5
1.2 แบบแผนออกซีเดชัน-รีดักชัน ของยูเรเนียม	7
2.1 การสลายตัวของยูเรนิลไนเตรต เอกซ์ไฮเดรตที่อุณหภูมิต่าง ๆ	11
2.2 การสลายตัวของยูเรเนียมไตรออกไซด์ ไดไฮเดรตที่อุณหภูมิต่าง ๆ	11
2.3 การสลายตัวของยูเรเนียมเปอร์ออกไซด์ที่ความดันบรรยากาศ	13
2.4 ภาชนะสำหรับดีไนเตรชัน	16
2.5 การเผาอย่างต่อเนื่องในการแปลงยูเรนิลไนเตรต เอกซ์ไฮเดรต เป็นยูเรเนียมไตรออกไซด์	17
2.6 แนวทางการผลิตยูเรเนียมไดออกไซด์ จากยูเรเนียมไตรออกไซด์	18
2.7 Batch reactor สำหรับผลิตยูเรเนียมไดออกไซด์	19
2.8 Reactor สำหรับรีดักชันแบบต่อเนื่อง	21
2.9 Fluidized-bed reactor สำหรับผลิตยูเรเนียมไดออกไซด์	21
2.10 แบบระบบการผลิตยูเรเนียมเตตระฟลูออไรด์	22
2.11 กล้องไล่ฝ้าสำหรับผลิตยูเรเนียมเตตระฟลูออไรด์	22
2.12 Stirred-bed สำหรับไฮโดรฟลูออรีเนชัน แบบต่อเนื่อง	24
2.13 ขบวนการเอกเซอร์	27
2.14 เซลล์สำหรับอิเล็กโตรไลติก รีดักชัน และตกตะกอน	30
2.15 ดีไฮเดรชันของ $UF_4 \cdot \frac{3}{4} H_2O$ ในบรรยากาศของไฮโดรเจนฟลูออไรด์	32
2.16 ดีไฮเดรชันของยูเรเนียมเตตระฟลูออไรด์ในบรรยากาศของไนโตรเจน	32
2.17 ดีไฮเดรชันโดยค่อยเพิ่มอุณหภูมิจะไม่เกิดไฮโดรไลซิส	32
2.18 ไฮโดรฟลูออรีเนเตอร์ที่โรงงาน Ningyo-Toge	37
2.19 X-Ray powder patterns ของไฮเดรตและดีไฮเดรตยูเรเนียมเตตระฟลูออไรด์	37
2.20 ขบวนการดีไฮเดรชันเพื่อแปลง $UF_4 \cdot n H_2O$ ให้เป็น UF_6	39

รูปที่

หน้า

2.21	การเกิดยูเรเนียมไดออกไซด์ลดลงเมื่อเติมก๊าซ HF	40
3.1	เงื่อนไขของยูเรเนียม แคลเซียม แมกนีเซียม และฟลูออไรด์	46
3.2	ผลของอุณหภูมิเริ่มต้นของปฏิกิริยา $UF_4 + Ca$ ที่มีต่ออุณหภูมิสูงสุดของปฏิกิริยา	48
3.3	ผลของอุณหภูมิเริ่มต้นของ UF_4 และ Ca ที่มีต่ออุณหภูมิสูงสุดของปฏิกิริยารีดักชัน	52
3.4	ปฏิกิริยารีดักชันของ UF_4 ด้วยไฮแมกนีเซียม	54
3.5	ผลของการควบคุมอุณหภูมิของเตาเผาที่ต่อระยะเวลาที่ใช้จุดปฏิกิริยา	54
3.6	ผลของพื้นที่ผิวของแมกนีเซียมที่มีต่ออุณหภูมิที่ใช้จุดปฏิกิริยา	55
3.7	ความหนาของฟิล์มแมกนีเซียมฟลูออไรด์ขนาดต่าง ๆ ที่อุณหภูมิของการเกิดฟิล์ม	55
4.1	ชุดเครื่องมือสำหรับตกตะกอนยูเรเนียม	66
4.2	เครื่องมือสำหรับวัดคุณสมบัติตะกอนอัมโมเนียมไดยูเรเนต	66
4.3	เครื่องดับเบิลปีมส์เปคโตรโฟโตมิเตอร์	67
4.4	ชุดเครื่องมือสำหรับอิเล็กโตรไลติก รีดักชัน	67
4.5	Le Chaterlier's pycnometer และ Warden's pycnometer	68
4.6	ชุดเครื่องมือสำหรับชบวนการดีไฮเดรชัน	68
4.7	แบบอัดสำหรับอัดก้อน	69
4.8	เครื่องอัดไฮดรอลิก	69
4.9	รีดักชันบอมบ์	78
5.1	ความสัมพันธ์ระหว่างความเป็นกรด-ด่าง และปริมาตรต่างที่ใช้	94
5.2	ผลของการล้างตะกอนที่มีต่อคุณสมบัติในการตกนอนกันของตะกอน	98
5.3	กราฟละลายลายมาตรฐานอัมโมเนียมไนเตรต	100
5.4	ความสัมพันธ์ระหว่างพื้นที่ของขั้วคาโทด และเวลาที่ใช้อิเล็กโตรไลติก รีดักชัน	104
5.5	ความสัมพันธ์ระหว่างพื้นที่ของขั้วคาโทด และเวลาที่ใช้อิเล็กโตรไลติก รีดักชัน	
5.6	ความสัมพันธ์ระหว่างความเข้มข้นของยูเรนิลไนเตรต และเวลาที่ใช้อิเล็กโตรไลติก รีดักชัน	108

รูป

หน้า

5.7	ยูเรเนียมเตตระฟลูออไรด์	115
5.8	ก้อนอัด(briquette) ของยูเรเนียมเตตระฟลูออไรด์ และ แคลเซียม	118
5.9	โลหะธาตุยูเรเนียม	118
5.10	โลหะธาตุยูเรเนียมที่ได้จากการรีดักชัน และที่หลอมใหม่ด้วยสัฟฟาลัมมา	119
5.11	โลหะธาตุยูเรเนียมที่เกิดเป็นผง (powder)	119
5.12	โลหะธาตุยูเรเนียมที่เกิดเป็นแบบโลหะพรุน (Sponge)	121
5.13	กราฟมาตรฐานเหล็ก	122
5.14	กราฟมาตรฐานปรอท	124