การพัฒนากระบวนการผลิตเค้กเหลืองจากแร่ยูซีไนต์โดยวิธีแอซิดพักกิง

นางสาว ตรุณี ชนะวรรณ์

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิศวกรรมศาสตรมหาบัณฑิต

ภาควิชานิวเคลียร์เทคโนโลยี

บัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

พ.ศ. 2529

ISBN - 974 - 567 - 040 - 5

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

012020

I 10298551

DEVELOPMENT OF A PROCESS FOR YELLOW CAKE PRODUCTION FROM EUXENITE BY ACID PUGGING METHOD

Miss Darunee Chanawan

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements

for the Degree of Master of Engineering

Department of Nuclear Technology

Graduate School

Chulalongkorn University

1986

หัวข้อวิทยานิพนธ์ การพัฒนากระบวนการผลิตเค้กเหลืองจากแร่ยูซีไนต์โดยวิธีแอซิดพักกิ้ง

โดย นางสาว ตรุณี ชนะวรรณ์

ภาควิชา นิวเคลียร์เทคโนโลยี

อาจารย์ที่ปรึกษา ผู้ช่วยศาสตราจารย์ ชยากริต ศิริอุปถัมภ์

บัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย อนุมัติให้นับวิทยานิพนธ์ฉบับนี้ เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญามหาบัณฑิต

..... คณบดี บัณฑิตวิทยาลัย

(ศาสตราจารย์ ดร. ถาวร วัชราภัย)

คณะกรรมการสอบวิทยานิพนธ์

..... ประธานกรรมการ

(ศาสตราจารย์ สุวรรณ์ แสงเพ็ชร์)

..... กรรมการ

(ศาสตราจารย์ ดร. เผด็จ สิทธิสุนทร)

..... กรรมการ

(ผู้ช่วยศาสตราจารย์ ชยากริต ศิริอุปถัมภ์)

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

หัวข้อวิทยานิพนธ์ การพัฒนากระบวนการผลิตเค้กเหลืองจากแร่ยูซีไนต์โดยวิธีแอซิดพักกิง

ชื่อนิสิต นางสาว ดรุณี ชนะวรรณ์

อาจารย์ที่ปรึกษา ผู้ช่วยศาสตราจารย์ ชยากริต ศิริอุปถัมภ์

ภาควิชา นิวเคลียร์เทคโนโลยี

ปีการศึกษา 2529

บทคัดย่อ

ได้ทดลองพัฒนากระบวนการผลิตเค้กเหลืองจากแร่ยูซีไนต์ด้วยวิธีแอซิดพักกิง และเคียวริง โดยกวนแร่ที่บดแล้วกับกรดซัลฟูริกเข้มข้น ให้มีลักษณะเป็นโคลน (pugging) แล้วจึงบ่ม (curing) หลังจากนั้นจึงละลายยูเรเนียมออกมาโดยเทของผสม หลังจากการเคียวริงลงในน้ำ พบว่า การย่อยแร่ขนาด -200 เมช ด้วยกรดซัลฟูริก 98% ใช้แร่ร้อยละ 32 ในกรด ในขั้นพักกิงใช้แร่ผสมกรดซัลฟูริกใช้เวลา 30 นาที ที่อุณหภูมิห้อง ในขั้นเคียวริงใช้อุณหภูมิ 150°ซ เวลา 2 ชั่วโมง จากนั้นเจือจางด้วยน้ำจนได้ความเข้มข้นกรดซัลฟูริก 3.4 N จะสามารถสกัดยูเรเนียมออกมาได้ 97.30% การทำยูเรเนียมให้บริสุทธิ์ด้วยวิธีการแลกเปลี่ยนอิออนโดยใช้เรซินแอมเบอร์ไลต์ไอออร์เอ-400 และใช้สารละลายไนเตรตเป็นอีลูแอนต์ นำสารละลายยูเรเนียมบริสุทธิ์มาตกตะกอนเป็นแอมโมเนียมไดยูเรเนต ด้วยสารละลายแอมโมเนียมไฮดรอกไซด์ที่ pH 6.5-8.0 แล้วนำไปอบให้แห้งและเผาจะได้เป็นเค้กเหลืองที่มีความบริสุทธิ์ตามกำหนดมาตรฐานของ USAEC โดยจะมียูเรเนียมเข้มข้นถึง 79.14%

Thesis Title DEVELOPMENT OF A PROCESS FOR YELLOW CAKE PRODUCTION FROM EUXENITE BY ACID PUGGING METHOD

Name Miss. Darunee Chanawan

Thesis Advisor Assistant Professor Chyagrit Siri-Upathum

Department Nuclear Technology

Academic Year 1986

ABSTRACT

A process for yellow cake production from Euxenite by acid pugging and curing method was developed by mixing ore with concentrate sulfuric acid to become heavy paste. Then it was heated up and finally dissolved uranium from the mixture by agitation in hot water. It was found in the experiment that uranium extraction could reach 97.30% by digestion -200 mesh ore with 98% sulfuric acid with 32% solid. As for pugging step it was done at room temperature for ½ hrs. In curing step, temperature was kept at 150°C for 2 hours. Then the paste was diluted so that by water sulfuric acid concentration was 3.5 N. Purification of uranium was done by using anion-exchange method with Amberlite IRA-400 resin. Elution showed the highest efficiency when nitrate solution was used as eluant. Ammonium diuranated could subsequently be precipitated from the uranium eluate as ammonium diuranate by ammonium hydroxide solution at pH 6.5-8.0. Calcined yellow cake products meet the USAEC specification with uranium content 79.14% U

กิตติกรรมประกาศ

ขอขอบพระคุณ ศาสตราจารย์ สุวรรณ แสงเพ็ชร์ ที่ริเริ่มและสนับสนุนให้มีการวิจัยในเรื่องนี้มาตลอด

ขอขอบพระคุณ ผู้ช่วยศาสตราจารย์ ชยากริต ศิริอุปถัมภ์ ที่กรุณาให้ความช่วยเหลือ แนะนำ แก้ปัญหาทั้งทางด้านวิชาการและทางด้านปฏิบัติจนการวิจัยครั้งนี้สำเร็จลุล่วงตามจุดประสงค์

ขอขอบพระคุณ รองศาสตราจารย์ ดร. อัชชัย สุมิตร หัวหน้าภาควิชาปิโตรเคมีและวิทยาศาสตร์พอลิเมอร์ ที่ให้การสนับสนุนในการวิจัยเรื่องนี้

ขอขอบคุณ คุณพิทักษ์ ทองคง และคุณแสวง เกิดประทุม ที่ให้คำแนะนำบางประการและเอกสารประกอบในการทำวิจัยครั้งนี้

ขอขอบคุณ อาจารย์ ไตรภพ ผ่องสุวรรณ ที่ช่วยเหลือในด้านการวิเคราะห์

ขอขอบคุณ มูลนิธินิสิตเก่าจุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย ที่กรุณาให้ทุนอุดหนุนสำหรับการวิจัยนี้

ขอขอบคุณ บัณฑิตวิทยาลัย ที่ให้ทุนอุดหนุนในการทำวิจัยนี้

สุดท้ายนี้ขอขอบพระคุณ บิดา มารดา ที่เป็นกำลังใจในการทำวิทยานิพนธ์จนสำเร็จลงด้วยดี

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

สารบัญ

หน้า

บทคัดย่อภาษาไทย ..... ง

บทคัดย่อภาษาอังกฤษ ..... จ

กิตติกรรมประกาศ ..... ฉ

สารบัญ ตาราง ..... ช

สารบัญ รูป ..... ช

บทที่ 1 บทนำ .....

1.1 คำนำ 1

1.2 ปัญหาและความสำคัญของการวิจัย 1

1.3 วัตถุประสงค์ของการวิจัย 2

1.4 ขอบเขตของการวิจัย 2

บทที่ 2 หฤษฎี

2.1 เรื่องทั่วไปเกี่ยวกับยูเรเนียม 3

2.2 คุณสมบัติของยูเรเนียม 6

2.3 องค์ประกอบของแร่ ยูซีไนต์ 9

2.4 เทคนิคการย่อยแร่โดยวิธี แอซิค พักกิง เดียวริง 10

บทที่ 3 กระบวนการผลิตเค้กเหลือง

3.1 เชื้อเพลิงนิวเคลียร์ 15

3.1.1 ประเภทของเชื้อเพลิงนิวเคลียร์ 15

3.1.2 การผลิตเชื้อเพลิงนิวเคลียร์ 15

3.2 การผลิตเค้กเหลือง 15

3.2.1 การแต่งแร่ให้มีความเข้มข้นยูเรเนียม 16

3.2.2 การย่อยสลายแร่ 16

หน้า

3.2.2.1 การย่อยสลายด้วยด่าง 16

3.2.2.2 การย่อยสลายด้วยกรด 18

3.2.3 การทำให้เข้มข้นและทำให้บริสุทธิ์ 25

3.2.3.1 การแลกเปลี่ยนอิออน 27

ก) ปฏิกริยาการแลกเปลี่ยนอิออน 29

ข) คุณสมบัติทางฟิสิกส์ของเรซิน 29

ค) หลักการแลกเปลี่ยนอิออน 30

ง) อีลูชัน 33

3.2.3.2 การสกัดด้วยตัวทำละลาย 37

3.2.4 การตกตะกอน 40

3.2.4.1 การสะเทินด้วยด่าง 40

3.2.4.2 การตกตะกอนด้วยไฮโดรเจนเปอร์ออกไซด์ . 41

3.2.5 การเตรียมเค้กเหลือง 42

บทที่ 4 วิธีดำเนินการวิจัย

4.1 อุปกรณ์และเคมีภัณฑ์ที่ใช้ในการวิจัย 44

4.1.1 เครื่องมือและอุปกรณ์ 44

4.1.2 สารเคมี 45

4.2 การเตรียมแร่ 50

4.3 การหาปริมาณยูเรเนียมในแร่ 50

4.4 การหาปริมาณธาตุต่าง ๆ ในแร่ 51

4.5 การสกัดแร่ 51

4.5.1 การย่อยแร่ 51

หน้า

4.6 การทำให้บริสุทธิ์ โดยกระบวนการแลกเปลี่ยนอิออน 54

4.7 การเตรียมเค้กเหลือง 56

4.8 การวิเคราะห์ความบริสุทธิ์ของเค้กเหลือง 56

บทที่ 5 ผลการวิจัย

5.1 ผลการวิเคราะห์ปริมาณยูเรเนียมในแร่ยูซีไนต์ 57

5.2 ผลการย่อยแร่ที่สภาวะต่าง ๆ 57

5.2.1 การวิเคราะห์ยูเรเนียมในสารละลายโดยวิธี WDX 57

5.2.2 ผลของขนาดเม็ดแร่ต่อการย่อยเพื่อสกัดยูเรเนียม 59

5.2.3 ผลของเวลาในขั้นเดียวต่อการย่อย
เพื่อสกัดยูเรเนียม 61

5.2.4 ผลของอุณหภูมิในขั้นเดียวต่อการย่อย
เพื่อสกัดยูเรเนียม 63

5.2.5 ผลของสัดส่วนของแร่ในกรดต่อการย่อย
เพื่อสกัดยูเรเนียม 65

5.2.6 ผลของความเข้มข้นของกรดต่อการ
ทำให้ยูเรเนียมออกมาหลังพักกิง 67

5.2.7 ผลของอุณหภูมิในขั้นการทำละลาย 69

5.2.8 ผลของเวลาในขั้นการทำละลาย 71

5.2.9 ผลการเพิ่มสัดส่วนของแร่ในกรด 73

5.2.10 ผลของปริมาณกรดที่ใช้ในขั้นเดียวริง 75

5.2.11 ผลของความเข้มข้นของกรดในขั้นการทำละลาย
ด้วยน้ำ 77

หน้า

5.3 ผลการวิเคราะห์เด็กเหลือง 76

บทที่ 6 สรุปผลการวิจัยและข้อเสนอแนะ

6.1 สรุปผลการวิจัย 80

6.2 ข้อเสนอแนะ 83

เอกสารอ้างอิง 84

ประวัติผู้เขียน 87

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

สารบัญรูป

รูปที่ หน้า

2.1 การสลายตัวของ U^{238} 4

2.2 การสลายตัวของ U^{235} 5

2.3 การเปลี่ยนสถานะของยูเรเนียม 7

2.4 ไพเทนเชียลไดอะแกรมของยูเรเนียมใน 1.0 N $HClO_4$ 8

2.5 แสดงกระบวนการย่อยสลายแร่โดยวิธีพักกึ่งเดียวริง 14

3.1 แสดงกระบวนการย่อยสลายแร่ด้วยด่าง 18

3.2- แสดงผลอันเกิดเนื่องจากความเข้มข้นของกรดในการย่อย

3.3 สลายแร่พิตช์เบลนด์ 22

3.4 แสดงขนาดของเม็ดแร่ที่มีผลต่ออัตราการย่อยสลายยูเรเนียม

จากการย่อยสลายด้วยด่าง 23

3.5 ผลของ Fe^{+3} ต่อการสกัดยูเรเนียม 24

3.6 แสดงผลของความเข้มข้นของ H_2SO_4 ต่อการย่อยสลายยูเรเนียม ... 25

3.7 โครงสร้างของควอเตอร์นารี-แอมโมเนียม ซึ่งเป็นเรซิน

แลกเปลี่ยนอิออนลบ 29

3.8 จุดเบรคทรูและจุดอิ่มตัวของการดูดซับยูเรเนียมด้วยเรซิน 31

3.9 แสดงการ Elution จากเรซินที่ดีและไม่ดี 34

3.10 แสดงการอีลูตยูเรเนียมออกจากเรซินโดยใช้อีลูแอนต์ชนิดต่าง ๆ 35

3.11 ระบบการสกัดด้วยตัวทำละลาย 38

3.12 แสดงกระบวนการสกัดด้วยตัวทำละลายแบบต่าง ๆ

ในการแยกยูเรเนียมออกจากสารละลายซัลเฟต 39

3.13 อุณหภูมิที่ใช้ในการเผาสลายแอมโมเนียมไดยูเรเนต 42

4.1 แสดงลักษณะทั่วไปของเครื่องอัตโนมัติ 46

สารบัญตาราง

ตารางที่		หน้า
2.1	ครึ่งชีวิตและค่าคงที่ของการสลายตัวของไอโซโทปตามธรรมชาติของธาตุยูเรเนียม	3
2.2	การสลายตัวของผลิตผลของ U^{238}	4
2.3	การสลายตัวของผลิตผลของ U^{235}	5
2.4	การชะล้างแร่ยูซีไนต์และไพรไอไรต์ที่เงื่อนไขต่าง ๆ	9
2.5	แสดงการย่อยยูเรเนียมจากหินทรายด้วยวิธีต่าง ๆ	10
3.1	แสดงช่วง pH ที่ยูเรนิลและยูเรนัสอิออนตกตะกอนกับอิออนบวกชนิดต่าง ๆ ในสารละลาย	21
3.2	แสดงมาตรฐานความบริสุทธิ์ของเค้กเหลือง	26
3.3	เรซินแลกเปลี่ยนอิออนบวกชนิดต่าง ๆ	27
3.4	เรซินแลกเปลี่ยนอิออนลบชนิดต่าง ๆ	28
3.5	แสดงความจุของการจับยูเรนิลอิออนเชิงซ้อนต่าง ๆ กัน	31
3.6	สารที่ใช้ในการสกัดยูเรเนียมด้วยตัวทำละลายจากสารละลายน้ำ	39
5.1	ปริมาณยูเรเนียมในแร่ยูซีไนต์ที่บดขนาดเม็ดแร่ต่าง ๆ กัน	57
5.2	องค์ประกอบของแร่ยูซีไนต์	58
5.3	ค่าความเข้มของรังสีเอกซ์เรืองของสารละลายมาตรฐานยูเรนิลซัลเฟตเมื่อวัดฉายอยู่ในรูปสารละลาย	59
5.4	ผลของขนาดเม็ดแร่ต่อการย่อยเพื่อสกัดยูเรเนียม	61
5.5	ผลของเวลาในขั้นเดียววิงต่อการย่อยเพื่อสกัดยูเรเนียม	63
5.6	ผลของอุณหภูมิในขั้นเดียววิงต่อการย่อยเพื่อสกัดยูเรเนียม	65
5.7	ผลของสัดส่วนของแร่ในกรดต่อการย่อยเพื่อสกัดยูเรเนียม	67

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

สารบัญตาราง (ต่อ)

ตารางที่ หน้า

5.8 ผลของการละลายต่อการย่อยเพื่อสกัดยูเรเนียม 69

5.9 ผลของอุณหภูมิในขั้น dissolution ต่อการย่อย เพื่อสกัดยูเรเนียม 71

5.10 ผลของเวลาในขั้นทำการละลายยูเรเนียมต่อการย่อย เพื่อสกัดยูเรเนียม 73

5.11 ผลของการเพิ่มสัดส่วนของแร่ในกรดต่อการย่อย เพื่อสกัดยูเรเนียม 75

5.12 ปริมาณกรดที่ใช้ไปขณะย่อยแร่ 77

5.13 แสดงผลของปริมาณกรดที่ใช้ในขั้นตอนการทำละลายยูเรเนียม.. 78

5.14 แสดงผลการวิเคราะห์เค้กเหลืองโดยใช้เครื่อง ICPS-50 ... 79

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

สารบัญรูป

รูปที่ หน้า

2.1 การสลายตัวของ U^{238} 4

2.2 การสลายตัวของ U^{235} 5

2.3 การเปลี่ยนสถานะของยูเรเนียม 7

2.4 โพเทนเชียลไดอะแกรมของยูเรเนียมใน 1.0 N $HClO_4$ 8

2.5 แสดงกระบวนการย่อยสลายแร่โดยวิธีพักกึ่งเดียวริง 14

3.1 แสดงกระบวนการย่อยสลายแร่ด้วยด่าง 18

3.2- แสดงผลอันเกิดเนื่องจากความเข้มข้นของกรดในการย่อย

3.3 สลายแร่พิตช์เบลนด์ 22

3.4 แสดงขนาดของเม็ดแร่ที่มีผลต่ออัตราการย่อยสลายยูเรเนียม

จากการย่อยสลายด้วยด่าง 23

3.5 ผลของ Fe^{+3} ต่อการสกัดยูเรเนียม 24

3.6 แสดงผลของความเข้มข้นของ H_2SO_4 ต่อการย่อยสลายยูเรเนียม ... 25

3.7 โครงสร้างของควอเตอร์นารี-แอมโมเนียม ซึ่งเป็นเรซิน

แลกเปลี่ยนอิออนลบ 29

3.8 จุดเบรคทรูและจุดอิ่มตัวของการดูดซับยูเรเนียมด้วยเรซิน 31

3.9 แสดงการ Elution จากเรซินที่ดีและไม่ดี 34

3.10 แสดงการอีลูตยูเรเนียมออกจากเรซินโดยใช้อีลูแอนต์ชนิดต่าง ๆ 35

3.11 ระบบการสกัดด้วยตัวทำละลาย 38

3.12 แสดงกระบวนการสกัดด้วยตัวทำละลายแบบต่าง ๆ

ในการแยกยูเรเนียมออกจากสารละลายซัลเฟต 39

3.13 อุณหภูมิที่ใช้ในการเผาสลายแอมโมเนียมไดยูเรเนต 42

4.1 แสดงลักษณะทั่วไปของเครื่องอัตโซตรอลิก 46

สารบัญรูป (ต่อ)

รูปที่ หน้า

4.2 แสดงลักษณะของตัวหม้อบดชนิดแท่งกระบอก 47

4.3 แสดงลักษณะแท่งบดชนิดทรงกระบอก 47

4.4 เครื่องวิเคราะห์ระบบ WDX ของ JEOL model JSX-60 PA 48

4.5 เครื่องวิเคราะห์ระบบ EDX แบบใช้หัวอัด HPGe 48

4.6 หัววัด NaI (Tl) แบบหลุม 49

4.7 เครื่อง ซู-Spectrometer 49

4.8 ชุดเครื่องมือย่อยแร่ 50

5.1 กราฟสารละลายมาตรฐานยูเรเนียมโดยเครื่องมือ WDX 60

5.2 ผลของขนาดเม็ดแร่ต่อการสกัดยูเรเนียม 62

5.3 แสดงเวลาในขั้นเดียวริงต่อการย่อยเพื่อสกัดยูเรเนียม 64

5.4 แสดงอุณหภูมิในขั้นเดียวริงต่อการย่อยเพื่อสกัดยูเรเนียม 66

5.5 แสดงผลของสัดส่วนของแร่ในกรดต่อการย่อยเพื่อสกัดยูเรเนียม 68

5.6 แสดงผลของความเข้มข้นกรดต่อการทำให้ยูเรเนียมละลายออกมา
หลังพักกิง 70

5.7 แสดงผลของอุณหภูมิในการทำให้ยูเรเนียมละลายออกมา 72

5.8 แสดงเวลาในขั้นชะล้างด้วยน้ำต่อการย่อยเพื่อสกัดยูเรเนียม 74

5.9 แสดงการชะล้างยูเรเนียมต่อ * Solid เมื่อเจือจางด้วยน้ำ
100 ml และน้ำล้างตะกอน 100 ml 76