



## جداسازی و تخلیص اورانیم از محلول فروشویی قلیایی حاصل از انحلال ته‌ماند استخر تبخیری کارخانه فرآوری اورانیم (C۳۶) با استفاده از ترسیب قلیایی

رامین یآوری<sup>۱\*</sup>، رضا داورخواه<sup>۱</sup>، شانلی نظامی<sup>۲</sup>، سید محمود موسوی<sup>۳</sup>، مسعود جوهری<sup>۴</sup>، ناظم ذکریا پور<sup>۴</sup>، طاهر یوسفی<sup>۱</sup>  
۱. پژوهشکده چرخه سوخت هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۱۱۳۶۵-۸۴۸۶، تهران- ایران  
۲. پژوهشکده مهندسی شیمی، نفت و گاز، دانشگاه علم و صنعت ایران، صندوق پستی ۱۶۸۴۶، تهران- ایران  
۳. سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی ۱۱۳۶۵-۸۴۸۶، تهران- ایران  
۴. شرکت سوخت راکتورهای هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۱۹۵۷-۸۱۴۶۵، اصفهان- ایران

\*Email: ryavari@aeoi.org.ir

### مقاله پژوهشی

تاریخ دریافت مقاله: ۱۴۰۱/۱۲/۱۳ تاریخ پذیرش مقاله: ۱۴۰۲/۳/۲۴

### چکیده

در کار تحقیقاتی حاضر، از روش ترسیب قلیایی برای جداسازی و تخلیص اولیه‌ی اورانیم موجود در محلول حاصل از انحلال ته‌ماند C۳۶ استخرهای تبخیری کارخانه فرآوری اورانیم استفاده شده است. در این روش اثر پارامترهای مختلفی چون pH، دما، سرعت هم‌زدن، بذریزی، زمان پیرسازی بر راندمان ترسیب اورانیم به صورت سدیم دی‌اورانات و میزان ناخالصی‌های چون سدیم و فلوئورید در آن مورد ارزیابی قرار گرفت. نتایج حاصل نشان می‌دهند که با افزایش pH محلول تا ۱۴، راندمان جداسازی تا ۹۸٫۱ درصد افزایش می‌یابد. با این وجود، مقدار pH با استفاده از روش بذریزی تا ۱۲ کاهش داده شده و راندمان جداسازی به ۹۹ درصد افزایش می‌یابد. همچنین نتایج نشان می‌دهند که افزایش زمان پیرسازی و سرعت هم‌زدن باعث افزایش راندمان جداسازی و کاهش میزان ناخالصی‌های سدیم و فلوئورید در رسوب می‌شود، در حالی که افزایش دما منجر به افزایش راندمان جداسازی و ناخالصی‌ها می‌گردد. در مجموع، با اعمال فرایند بذریزی، تنظیم pH تا محدوده‌ی ۱۲، زمان پیرسازی ۱۲ ساعت، دمای ۵۰ °C و سرعت هم‌زدن ۲۵۰ دور در دقیقه بهترین شرایط برای جداسازی اولیه‌ی اورانیم به صورت سدیم دی‌اورانات با راندمان بالای ۹۹ درصد و با حداقل مقدار ناخالصی‌های در آن به دست آمد.

**کلیدواژه‌ها:** اورانیم، ته‌ماند C۳۶، ترسیب قلیایی، فلوئورید، سدیم

## Separation and purification of uranium from the alkaline leaching solution obtained from the dissolution of the evaporation pool scrap (C36) of the uranium processing plant using alkaline precipitation

R. Yavari<sup>\*1</sup>, R. Davarkhoh<sup>1</sup>, Sh. Nezami<sup>2</sup>, S.M. Mousavi<sup>3</sup>, M. Johari<sup>4</sup>, N. Zakariapour<sup>4</sup>, T. Yousefi<sup>1</sup>

1. Nuclear Fuel Cycle Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOL, P.O.Box: 11365-8486, Tehran – Iran

2. Research Institute of Chemical, Oil and Gas Engineering, Iran University of Science and Technology, P.O.Box: 16846, Tehran - Iran

3. AEOL, P.O.Box: 11365-8486, Tehran - Iran

4. Nuclear Reactor Fuel Company, AEOL, P.O.Box: 81465-1957, Isfahan - Iran

### Research Article

Received 4.3.2023, Accepted 14.6.2023

### Abstract

In the current research work, the alkaline precipitation method was used for the primary separation and purification of uranium in the solution obtained from the dissolution of the evaporation pool scrap (C36) of the uranium processing plant. In this method, the effect of various parameters such as pH, temperature, stirring speed, aging time, and seeding on the uranium precipitation yielded sodium diuranate. In addition, the amount of impurities such as sodium and fluoride in the precipitate was evaluated. The results show that by raising the pH of the solution to 14, the separation yield increases to 98.1%. Nonetheless, using the seeding method, the pH value is reduced to 12 and the separation efficiency increases to 99%. Also, the results show that increasing the aging time and stirring speed improves the separation percentage. It decreases the amount of sodium and fluoride impurities in the precipitation. In contrast, reducing the temperature leads to an increase in uranium and impurities separation percentage. In general, by applying the seeding process, pH adjustment up to 12, aging time of 12 hours, temperature of 50°C and stirring speed of 250 rpm, the best conditions for primary uranium separation as sodium diuranate with the minimum amount of major impurities in the precipitation were obtained.

**Keywords:** Uranium, C36 Scrap, Alkaline precipitation, Fluoride, Sodium

Journal of Nuclear Science and Technology

Vol. 45 (3), Serial Number 108, 2024, P 38-44

مجله علوم و فنون هسته‌ای

دوره ۴۵، شماره ۲، جلد ۱۰۸، تابستان ۱۴۰۳، ص ۳۸-۴۴



## ۱. مقدمه

اورانیم عنصر بسیار مهمی است که عمدتاً در برنامه‌های انرژی هسته‌ای مورد استفاده قرار می‌گیرد. از آن‌جا که منابع اورانیم در جهان محدود است. بنابراین بازیابی این عنصر از منابع ثانویه حاوی اورانیم خصوصاً پسماندهای حاصل از مراحل مختلف چرخه سوخت اورانیم، غنی‌سازی و ساخت قرص امری ضروری به شمار می‌آید. همچنین بازیابی اورانیم از پسماندها به منظور به حداقل رساندن میزان تخلیه آن به محیط زیست از نقطه‌نظر ایمنی، اقتصادی، غیرقابل برگشت‌بودن و کاهش آسیب‌های جدی زیست‌محیطی و زیست‌شناختی اهمیت بازیابی آن را صد چندان می‌کند [۱]. مضاف بر آن که اورانیم به عنوان عامل ایجاد اثرات سمی حاد در پستانداران شناخته شده و ترکیبات آن عامل سرطان‌زای بالقوه‌ای هستند [۲]. بنا بر توصیه آژانس بین‌المللی انرژی اتمی و سازمان بهداشت جهانی حداکثر میزان اورانیم موجود جهت تخلیه در آب آشامیدنی ppm ۰/۰۳ است [۳-۴]. از این‌رو با توجه به کمبود منابع اورانیم و اثرات زیست‌محیطی سوء اورانیم، جداسازی و حذف آن از پسماندها توجه اندیشمندان جهان را به‌شدت به خود معطوف کرده است.

یکی از منابع بالقوه‌ی اورانیم، حضور آن در ته‌ماندهای حاصل از استخرهای تبخیر واحدهای مختلف کارخانه‌ی فرآوری اورانیم نظیر واحدهای ۱۰۱A، ۱۰۱B، ۱۰۱C و ۱۰۱D که به ترتیب واحدهای تخلیص اورانیم، تولید  $UF_6$  و  $UF_4$  و تصفیه پساب‌ها هستند، می‌باشد. که به‌واسطه‌ی عملکرد پایین و خطاهای فرایندی این واحدها، اورانیم به‌صورت محلول از واحدهای فرایندی خارج شده و وارد این استخرها می‌گردد و در آن‌جا پس از تبخیر و تبدیل به مواد جامد به‌صورت ته‌ماند از کف استخرها جداسازی شده و در انبارهای خاص با اسامی مشخص نگهداری می‌شوند. میزان اورانیم در این ته‌ماندها بسیار متفاوت است و گاه مقدار آن‌ها به ۲۰ درصد وزنی نیز می‌رسد. اصولاً در فرایند بازیابی و جداسازی اورانیم از ته‌ماندها، این ته‌ماندهای جامد در محلول‌های اسیدی (سولفوریک اسید) یا قلیایی (سدیم کربنات) حل شده و با توجه به نوع فرایند انتخابی انحلال، محلول‌های پسماند حاوی اورانیم اسیدی یا قلیایی خواهند بود که بسته به غلظت اورانیم، مقدار و غلظت ناخالصی‌ها و همچنین میزان خلوص اورانیم در محصول نهایی از روش‌های مختلفی چون رسوب‌گیری مستقیم، رسوب‌گیری کاهشی، تبادل یون، غشا و استخراج حلالی برای تخلیص و جداسازی اولیه‌ی اورانیم استفاده می‌شود [۵-۹]. که در میان آن‌ها، روش رسوب‌گیری به‌دلیل غلظت بالای یون اورانیم موجود

در محلول‌های حاصل از فروشویی این ته‌ماندها و در نتیجه راندمان بالای جداسازی، کم‌هزینه بودن نسبت به روش‌های یونی و استخراج حلالی و همچنین استفاده از امکانات موجود در واحدهای صنعتی کارخانه فرآوری اورانیم اصفهان، روشی مناسب و منطقی است. همچنین با توجه به این‌که در استحصال و بازیابی اورانیم از ته‌ماندهای مذکور که در کار تحقیقاتی حاضر انحصاراً ته‌ماند با کد C۳۶ مدنظر است از روش انحلال قلیایی با ترکیب سدیم کربنات (۰/۵ M) در pH برابر ۱۰/۳، به منظور افزایش راندمان انحلال و کاهش سایر مزاحمت‌های کاتیونی استفاده شده است و از آن‌جایی که به‌واسطه‌ی حضور مقادیر مازاد ناخالصی‌های آنیونی چون فلوراید (ppm ۹۰۰۰  $\geq$ ), کربنات (ppm ۳۰۰۰  $\geq$ ), نیترات و سولفات امکان استفاده از روش تبادل یونی وجود ندارد [۱۰]. بنابراین استفاده از روش‌های رسوب‌گیری که عمدتاً شامل خنثی‌سازی [۱۱]، ترسیب قلیایی [۱۲] و رسوب‌گیری از طریق کاهش با هیدروژن [۱۳] است، عملی‌ترین، مناسب‌ترین و اقتصادی‌ترین شیوه‌ی جداسازی است. از بین شیوه‌های ترسیب نیز، ترسیب قلیایی به‌دلیل سادگی، عدم تخریب کربنات و قابلیت استفاده‌ی مجدد از آن [۱۴] و با توجه به ماهیت کربناته محلول حاصل از انحلال ته‌ماندها و pH بالای محلول فروشویی، مناسب‌ترین روش برای تخلیص اولیه‌ی اورانیم است [۱۵].

مطالعه مقالات علمی نشان می‌دهد که با توجه به ماهیت و ماتریس محلول فروشویی حاصل از انحلال ته‌ماندهای C۳۶ که حاوی غلظت بالایی از یون‌های فلئوئورید، سدیم، کربنات و نیترات است دارای تفاوت‌هایی قابل ملاحظه‌ای با مقالات ارایه شده توسط سایر محققین است. بنابراین هدف در کار تحقیقاتی حاضر جداسازی و تخلیص اولیه‌ی اورانیم از محلول حاصل از انحلال ته‌ماندهای C۳۶ با استفاده از فرایند رسوب‌گیری قلیایی توسط سدیم هیدروکسید است. در نهایت به بررسی پارامترهای تأثیرگذار بر راندمان ترسیب و حذف ناخالصی‌های عمده‌ی محلول (سدیم و فلئوئورید) نظیر عواملی چون pH، دما، زمان پیرسازی، هم‌زدن و بذریز (seeding) خواهیم پرداخت. در نهایت برای تخلیص کامل اورانیم از فرایند رسوب‌گیری با هیدروژن پراکسید به منظور تهیه‌ی اورانیم پراکسید آبدار  $UO_4 \cdot xH_2O$  استفاده خواهد شد که در حیطه‌ی کار حاضر نیست.



## ۲. مواد و روش‌ها

## ۱۰۲ دستگاه‌وری

تمام مواد شیمیایی مورد استفاده در کار تحقیقاتی حاضر با درجه خلوص ۹۹ درصد از شرکت مرک یا فلوکا تهیه شده است. تعیین مقدار کمی عناصر اورانیم و سدیم به ترتیب با استفاده از دستگاه آنالیز پلاسما جفت شده القایی- طیفسنجی نشر نوری (ICP-OES) و طیفسنجی جذب اتمی (AAS) انجام شد هم‌چنین مقدار فلئورید نیز با استفاده از الکتروود یون‌گزین فلئورید ساخت شرکت مترواهم (Metrohm) ایالات‌متحده اندازه‌گیری شد و برای آنالیز سایر آنیون‌های موجود از کروماتوگرافی یونی شرکت Metrohm مدل ۷۶۲ ساخت کشور سوئیس استفاده گردید. برای تنظیم pH محلول نیز از دستگاه Schott CG۸۴۱ ساخت کشور آلمان بهره گرفته شد.

## ۲۰۲ روش کار

برای انجام فرایند رسوب‌گیری، حجم مشخصی از محلول حاصل از انحلال ته‌مانده‌های C۳۶ را که شرایط بهینه حاصل از انحلال آن عبارت بود از: شوینده کربنات سدیم ۰/۵ مولار، pH برابر ۱۰/۳، دمای ۷۰ درجه سانتی‌گراد، نسبت محلول فروشویی به ته‌ماند برابر ۱۲، سرعت هم‌زدن ۴۵۰ دور بر دقیقه و زمان هم‌زدن ۱ ساعت به یک راکتور دو جداره‌ی رسوب‌گیری که امکان تنظیم دما برای فرایند ترسیب را دارد منتقل کرده و سپس درحالی‌که محلول توسط یک هم‌زن فوقانی و با سرعت‌های مشخصی هم‌زده می‌شود، pH محلول را با افزایش مقادیر مشخصی از سدیم هیدروکسید و در دمای معین تنظیم کرده که منجر به تشکیل رسوب سدیم دی‌اورانات می‌شود. رسوب حاصله پس از ته‌نشینی با استفاده از سانتریفیوژ جداسازی و چندین بار با آب مقطر شستشو داده شد و سپس به منظور ارزیابی و بررسی میزان ناخالصی، این رسوب در اسید نیتریک حل و مورد آنالیز قرار گرفت. برای تعیین درصد اورانیم، ابتدا میزان اورانیم در محلول حاصل از انحلال ته‌ماند اولیه (محلول فروشویی) اندازه‌گیری شده (جدول ۱) و پس از ترسیب اورانیم از محلول فروشویی و انحلال نمونه راسب شده در اسید نیتریک میزان اورانیم موجود در محلول اندازه‌گیری می‌شود سپس با استفاده از معادله ۱ درصد اورانیم ترسیب شده مشخص می‌شود.

$$R = (U_f - U_i) \times 100 / U_i \quad (1)$$

که در آن  $U_f$  و  $U_i$  به ترتیب میزان اورانیم در محلول حاصل از انحلال ته‌ماند اولیه (محلول فروشویی) و پس از ترسیب آن از محلول فروشویی است.

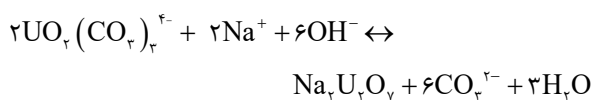
## ۳. نتایج و بحث

## ۱۰۳ بررسی اثر pH

یکی از مهم‌ترین پارامترهای تأثیرگذار در فرایند رسوب‌گیری pH محلول است. بنابراین به محلول فروشویی ته‌ماند C۳۶ که آنالیز آن در جدول ۱ آورده شده است، در حالی‌که محلول در دمای ۲۵ °C، زمان پیرسازی ۲۴ ساعت، با سرعت ۲۵۰ rpm به مدت ۳۰ min هم‌زده می‌شود به میزان کافی سدیم هیدروکسید (۹/۵ g/L) افزوده می‌گردد.

بررسی منابع نشان می‌دهد رسوباتی که در ابتدا تشکیل می‌شوند بسته به میزان قلبایی افزوده‌شده، نمک‌های بازی با ترکیب متغیری هستند [۱۶]. با افزایش بیشتر غلظت هیدروکسید، این رسوبات به هیدروکسید اورانیل تبدیل شده و سرانجام در غلظت‌های بالاتر از آن، منجر به ترسیب کمی اورانیم به صورت مخلوطی از سدیم اورانات، دی‌اورانات و پلی‌اورانات‌ها با ترکیب پیچیده‌ی  $Na_xU_xO_{3x+1}$  می‌گردد. که فرایند تشکیل رسوب سدیم دی‌اورانات از محلول فروشویی که فرایند غالبی است در معادله‌ی ۲ آورده شده است. رسوب حاصل پس از انحلال در اسید نیتریک مورد تجزیه و تحلیل قرار گرفت و با توجه به این‌که مقادیر اکثر کاتیون‌ها و آنیون‌های موجود در آن ناچیز بود از ارایه مقادیر آن‌ها خودداری گردید و تنها به ارایه نتایج مربوط به عناصری چون سدیم و فلئورید که عمده ناخالصی موجود در محلول حاصل از فروشویی ته‌ماند C۳۶ است و در محلول حاصل از انحلال رسوب حاصله قابل اندازه‌گیری است اکتفا نموده‌ایم. این مقادیر در جدول ۲ آورده شده است.

(۲)



جدول ۱. آنالیز شیمیایی محلول حاصل از انحلال ته‌ماند C۳۶

عناصر	غلظت بر حسب میلی‌گرم بر لیتر
U	۹۸۰/۵
Fe	۳/۷
Ca	۷/۲
Al	۰/۰۱
Cu	۵/۶۷
Ni	۱۰/۶۵
Na	۱۳۲۴۳/۲
K	۹/۲
F <sup>-</sup>	≥ ۹۰۰۰
NO <sub>۳</sub> <sup>-</sup>	۱۹۵۰۰
SO <sub>۴</sub> <sup>۲-</sup>	۳۰۰
CO <sub>۳</sub> <sup>۲-</sup>	≥ ۳۰۰۰۰
Cl <sup>-</sup>	≥ ۶۰



**جدول ۴.** بررسی اثر زمان پیرسازی بر ترسیب اورانیم از محلول فروشویی

تعماند C<sup>۳۶</sup> و ناخالصی‌های سدیم و فلوئورید در رسوب دی‌اورانات سدیم

زمان پیرسازی (ساعت)	درصد بازایی U	درصد حذف یون F <sup>-</sup>	درصد حذف یون Na <sup>+</sup>
۰	۸۹٫۹	۳٫۲۳	۳۴٫۷۶
۳	۹۹٫۴	۳٫۰۷	۳۲٫۱۶
۶	۹۹٫۴	۲٫۹۶	۳۱٫۰۶
۹	۹۹٫۴	۲٫۶۵	۳۰٫۶۸
۱۲	۹۹٫۴	۲٫۲۵	۲۸٫۷۹
۲۴	۹۹٫۴	۲٫۲۵	۲۸٫۷۹

باید توجه داشت که بر اساس مرجع [۱۸]، غلظت قلیا و نیز طول مدت پیرسازی با محلول سدیم هیدروکسید بر ترکیب رسوب و همچنین مقدار حضور سایر عناصری که در طی رسوب‌گیری قلیایی اورانیم وارد ساختار آن می‌شوند تأثیرگذار است. بر این اساس همان‌گونه که نتایج در جدول ۵ نشان می‌دهند با افزایش مدت زمان پیرسازی رسوب، نه تنها میزان بازایی اورانیم، بلکه میزان حضور ناخالصی‌های سدیم و فلوئورید در ساختار رسوب تحت‌تأثیر قرار می‌گیرند. نتایج نشان می‌دهند که میزان بازایی اورانیم در طی ۳ ساعت زمان پیرسازی رسوب به مقدار ماکزیمم خود می‌رسد. این در حالی است که میزان حذف یون‌های سدیم و فلوئورید از محلول‌های فروشویی و ورود آن‌ها به ساختار رسوب دی‌اورانات سدیم با افزایش زمان پیرسازی تقلیل یافته و در طی زمان ۱۲ ساعت به حداقل خود می‌رسد. به این ترتیب بیشینه میزان بازایی اورانیم و در عین حال حداقل میزان حضور مزاحمت‌های سدیم و فلوئورید در ساختار رسوب در طی زمان پیرسازی ۱۲ ساعت میسر گردید. لذا این مدت زمان به عنوان مدت بهینه برای فرایند پیرسازی رسوب دی‌اورانات سدیم در نظر گرفته شد.

#### ۴.۳ بررسی اثر دما

دما یکی از متغیرهای مهم دیگری در فرایند ترسیب است، که در این خصوص بازایی اورانیم از محلول و مشخصات فیزیکی محصول را تحت تأثیر قرار می‌دهد. به‌علاوه در دماهای پایین محصول رسوب‌گیری فوق‌العاده ریز بوده و صاف کردن یا فیلتراسیون آن بسیار دشوار خواهد بود. بنابراین تأثیر متغیر دما بر میزان بازایی اورانیم و همچنین درصد حذف یون‌های فلوئورید و سدیم از محلول و ورود آن‌ها به عنوان ناخالصی در رسوبات دی‌اورانات در محدوده‌ی دمایی ۲۵ تا ۷۵ °C و در شرایط بهینه حاصل از مراحل قبل مورد مطالعه قرار گرفت.

**جدول ۲.** بررسی اثر pH بر ترسیب اورانیم از محلول فروشویی ته ماند C<sup>۳۶</sup>

pH	درصد ترسیب U	درصد حذف یون F <sup>-</sup>	درصد حذف یون Na <sup>+</sup>
۱۲	۲٫۷۷	-	-
۱۳	۹۶٫۹۵	۱٫۶۸	۲۰٫۳۴
۱۴	۹۸٫۱	۲٫۲۵	۲۸٫۷۹

#### ۲.۳ بررسی اثر سرعت هم‌زدن

تأثیر هم‌زدن و سرعت اختلاط در طی تنظیم pH بر میزان درصد ترسیب اورانیم و حذف یون‌های فلوئورید و سدیم از محلول و ورود آن‌ها به عنوان ناخالصی در رسوبات سدیم دی‌اورانات حاصله در گستره‌ی ۸۰ تا ۳۵۰ rpm مورد مطالعه قرار گرفت و نتایج حاصله در جدول ۳ آورده شد. همان‌گونه که در جدول ۳ نشان داده شده است سرعت هم‌زدن اثر ناچیزی بر میزان بازایی اورانیم از محلول‌های فروشویی ته ماندهای C<sup>۳۶</sup> داشته است. اما یون فلوئورید به دلیل تمایل و برهم‌کنش با یون اورانیل می‌تواند به عنوان ناخالصی در رسوب سدیم دی‌اورانات وجود داشته باشد. با این حال همان‌گونه که نتایج نشان می‌دهند، در سرعت‌های هم‌زدن ۲۵۰ rpm و بالاتر، احتمال حضور یون فلوئورید و سدیم به عنوان ناخالصی در فرایند تبلور رسوب دی‌اورانات سدیم کاهش می‌یابد. زیرا انرژی اختلاط کافی در این گستره از سرعت‌های هم‌زدن، پتانسیل تبلور رسوب دی‌اورانات خالص‌تر و همچنین رشد آن را تقویت خواهد کرد. پدیده‌های مشابه از کاهش مزاحمت یون فلوئورید در شدت اختلاط‌های بالا، در فرایند تبلور رسوبات دیگری نظیر منیزیم آمونیم فسفات معروف به استروویت، پیش از این گزارش شده است [۱۷].

**جدول ۳.** بررسی اثر سرعت اختلاط بر ترسیب اورانیم از محلول فروشویی ته ماند C<sup>۳۶</sup> و ناخالصی‌های سدیم و فلوئورید در رسوب دی‌اورانات سدیم

سرعت اختلاط (rpm)	درصد بازایی U	درصد حذف یون F <sup>-</sup>	درصد حذف یون Na <sup>+</sup>
۸۰	۹۷٫۹	۴٫۵۱	۳۴٫۵۱
۱۵۰	۹۸٫۲۷	۳٫۸۱	۲۸٫۷۹
۲۵۰	۹۸٫۲۷	۲٫۲۵	۲۸٫۷۹
۳۵۰	۹۸٫۲۷	۱٫۹	۲۸٫۷۹

#### ۳.۳ بررسی اثر زمان پیرسازی

اثر زمان پیرسازی رسوب دی‌اورانات سدیم بر میزان بازایی اورانیم و همچنین درصد حذف یون‌های فلوئورید و سدیم از محلول و ورود آن‌ها به عنوان ناخالصی در فرایند ترسیب قلیایی و در شرایط بهینه‌ی حاصل از آزمایش‌های قبل مورد مطالعه قرار گرفت و نتایج آن در جدول ۴ آورده شده است.



اورانیم موجود در محلول فروشویی حاصل از انحلال ته‌ماند C۳۶ باشد به رآکتور رسوب‌گیری منتقل گردید. سپس محلول فروشویی تا دمای  $80^{\circ}\text{C}$  حرارت داده شد و به رآکتور رسوب‌گیری منتقل گردید. محتویات درون رآکتور به مدت ۵ ساعت هم‌زده شد و پس از آن رسوب‌گیری در pH تقریباً برابر ۱۲ با افزودن سدیم هیدروکسید در سایر شرایط بهینه‌شده‌ی قبلی انجام گرفت.

- نتایج به دست‌آمده نشان می‌دهد که بازده فرایند ترسیب قلیایی اورانیم در pH تقریباً برابر با ۱۲ بزرگ‌تر از ۹۹٪ بوده است. بازگرداندن اورانیم در رآکتور انحلال، قطعاً موجب افزایش میزان اورانیم محلول به صورت کمپلکس کربناته خواهد شد. افزایش میزان کمپلکس اورانیل-کربنات از یک سو و کاهش میزان غلظت کربنات آزاد در محلول از سوی دیگر، برخلاف نتیجه حاصل از بررسی اثر pH بر ترسیب (جدول ۲) منجر به کاهش pH ترسیب قلیایی، از ۱۴ به ۱۲ می‌گردد. به عبارت دیگر، در اثر فرایند بذریزی تعادل تشکیل رسوب دی‌اورانات هر چه بیش‌تر به سمت راست هدایت شده و فرایند ترسیب قلیایی تسهیل می‌گردد. هم‌چنین قبلاً نشان داده شده است [۲۰] که تقلیل pH رسوب‌گیری در مورد سایر دی‌اورانات‌ها منجر به افزایش اندازه ذرات بلور خواهد شد. به طور کلی فرض می‌شود که فرایند بذریزی، تبلور رسوب را به واسطه فراهم‌ساختن سطح واکنشی مناسب افزایش می‌دهد. علاوه بر این، بذر اولیه می‌بایست موجب اندازه مناسب ذرات رسوب و ساختار بلورینی گردد که مواد راسب‌شده جدید از آن الگوبرداری می‌کنند [۲۱]. بنابراین، قطعاً تهیه‌ی بذر اولیه‌ی رسوب دی‌اورانات سدیم در شرایط ایده‌ال به لحاظ رشد اندازه‌ی ذرات بلور و واردنمودن آن در رآکتور انحلال، نه تنها فرایند ترسیب را در مراحل بعدی تسهیل خواهد نمود، بلکه منجر به ایجاد بلورهای درشت‌تری خواهد شد، که صاف‌کردن یا فیلترنمودن آن‌ها را آسان‌تر می‌کند.

#### ۴. نتیجه‌گیری

با مد نظر قراردادن ترکیب محلول حاصل از انحلال ته‌ماند C۳۶، مسائل اقتصادی و تجهیزات مورد استفاده در فاز صنعتی، در نخستین گام به منظور تخلیص اورانیم از محلول‌های کربناته، شیوه رسوب‌گیری قلیایی با استفاده از سدیم هیدروکسید برگزیده شد.

پارامترهای تأثیرگذار بر فرایند ترسیب قلیایی نظیر اثر pH، اثر هم‌زدن، اثر زمان پیرسازی رسوب، اثر دما و اثر بذریزی بر

جدول ۵. اثر دما بر ترسیب اورانیم از محلول فروشویی ته‌ماند C۳۶ و ناخالصی‌های سدیم و فلوئورید در رسوب دی‌اورانات سدیم

زمان پیرسازی (ساعت)	درصد بازبایی U	درصد حذف یون $\text{F}^-$	درصد حذف یون $\text{Na}^+$
۲۵	۹۹٫۴	۲٫۲۵	۲۸٫۷۹
۴۵	۹۹٫۴	۲٫۲۵	۳۲٫۰۸
۶۵	۹۹٫۴	۳٫۳۵	۳۱٫۲۶
۷۵	۹۹٫۶۷	۳٫۶۴	۴۵٫۱۶

همان‌گونه که نتایج به دست آمده در جدول ۶ نشان می‌دهند، افزایش دما نه تنها در طی فرایند ترسیب قلیایی بر میزان بازبایی اورانیم تأثیر منفی نداشته، بلکه حتی در برخی موارد به طور جزئی باعث افزایش بازدهی در گستره‌ی دمایی مورد مطالعه شده است. علت این امر می‌تواند به دلیل استفاده از غلظت بالایی از یون‌های آزاد  $\text{OH}^-$ ،  $\text{Na}^+$  در فرایند ترسیب قلیایی و پایین‌بودن غلظت اورانیم در محلول‌های حاصل از فرایند فروشویی باشد. با این حال، به استناد نتایج اخذشده، افزایش دما بر میزان حذف یون‌های سدیم و فلوئورید از محلول فروشویی و ورود آن‌ها به ساختار رسوب دی‌اورانات دارای تأثیر منفی است. به عبارت دیگر میزان سدیم و فلوئورید واردشده در ساختار رسوب دی‌اورانات سدیم با ازدیاد دما افزایش می‌یابد، ظاهراً کاهش میزان انحلال‌پذیری سدیم کربنات با افزایش دما و ته‌نشینی هم‌زمان مقداری از سدیم و فلوئورید با آن علت این پدیده است. با این حال به نظر می‌رسد که تأثیر منفی ناشی از افزایش دما از ناحیه‌ی مزاحمت یون‌های سدیم و فلوئورید به خاطر تأثیر مثبت آن بر رشد اندازه‌ی ذرات رسوب و فیلتراسیون آسان‌تر، حداقل تا دمای  $50^{\circ}\text{C}$  قابل تحمل باشد.

جدول ۶. اثر دما بر ترسیب اورانیم از محلول فروشویی ته‌ماند C۳۶ و ناخالصی‌های سدیم و فلوئورید در رسوب دی‌اورانات سدیم

زمان پیرسازی (ساعت)	درصد بازبایی U	درصد حذف یون $\text{F}^-$	درصد حذف یون $\text{Na}^+$
۲۵	۹۹٫۴	۲٫۲۵	۲۸٫۷۹
۴۵	۹۹٫۴	۲٫۲۵	۳۲٫۰۸
۶۵	۹۹٫۴	۳٫۳۵	۳۱٫۲۶
۷۵	۹۹٫۶۷	۳٫۶۴	۴۵٫۱۶

#### ۵.۳ بررسی اثر بذریزی (Seeding effect)

برای بررسی اثر بذریزی بر فرایند ترسیب قلیایی، آزمایشی با شرایط زیر ترتیب داده شد [۱۹]:

- ابتدا رسوب دی‌اورانات سدیم جمع‌آوری شده از مراحل قبل به میزانی که مقدار اورانیم موجود در آن تقریباً ۷-۵ برابر میزان



## مراجع

- Jain R, Peräniemi S, Jordan N, Vogel M, Weiss S, Foerstendorf H, Lakaniemi A.M. Removal and recovery of uranium(VI) by waste digested activated sludge in fed-batch stirred tank reactor. *Wat. Res.* 2018;142:167.
  - Brugge D, De Lemos J.L, Oldmixon B. Exposure pathways and health effects associated with chemical and radiological toxicity of natural uranium. *A review. Rev. Environ. Health.* 2005;20:177.
  - IAEA, Various, Treatment of liquid effluent from uranium mines and mills. *IAEA62.* 2004.
  - WHO, 2012. Uranium in drinking water. background document for development of WHO guidelines for drinking water quality. *TECDOC-1419*, ISBN 92-2-112304-3.
  - IAEA, 1993. Uranium Extraction Technology, Technical Reports Series. *359 183*, ISBN 92-0-631-103593-4.
  - Parvizinejad Z, Maleki Farsani A, Heydari A. Uranium Removal from Liquid Waste using Reductive Precipitation. *J. of Nucl Sci. and Tech.* 2014(3);68:89-93 [In Persian].
  - Zaheri P, Davarkhah R, Zahakifar F. Extraction of uranium from the sulfuric acid solution using a polymer inclusion membrane containing alamine336. *J. of Nucl Sci. and Tech.* 2021(4);42:28-36 [In Persian].
  - Sadeghi M.H, Outokesh M, Habibi Zare M. Production of high quality ammonium uranyl carbonate from "uranyl nitrate β carbonate" precursor solution. *Prog. Nucl. Ene.* 2020;122:103270.
  - Paik S, Satpati S.K, Gupta S.K, Sahu M.L, Singh D.K. Study on the effects of sonication on reactive precipitation of ammonium uranyl carbonate from pure uranyl nitrate solution. *J. Nucl. Mat.* 2021;557:153222.
  - Santos E.A, Laderia A.C.Q. Recovery of uranium from mine waste by leaching with carbonate-based reagents. *Environ. Sci. Technol.* 2011;45:3591.
  - Gupta R, Pandey V.M, Pranesh S.R, Chakravarty A.B. Study of an improved technique for precipitation of uranium from eluted solution. *Hydrometallurgy.* 2004;71:429.
  - Katz J.J, Rabinowitch E. The Chemistry of Uranium. Part I. (New York. McGraw-Hill Book Co. 1951).
  - Bunji B, Zogovic B, Crnojevic R, Pacovic N, Secerov M. Industrial Application of Catalytic Precipitation of Uranium, Third International Conference on Peaceful Uses of Atomic Energy. *Geneva.* 1958;250-254.
  - Kim K.W, Hyun J.T, Lee K.Y, Lee E.H, Chung D.Y, Moon J.K. Recycling of acidic and alkaline solutions by electrodialysis in a treatment process for uranium oxide waste using a carbonate solution with hydrogen peroxide. *Ind. Eng. Chem. Res.* 2012;51:6275.
- روی محلول حاصل از فروشویی C۳۶ مورد مطالعه قرار گرفت. و بهینه‌سازی این شرایط بر روی محلول فروشویی انجام پذیرفت. بدین ترتیب در یک جمع‌بندی کلی، شرایط بهینه‌ی به دست‌آمده برای ترسیب قلیایی از محلول‌های فروشویی عبارتست از: pH برابر با ۱۴، با وارد نمودن آن مقدار از بذر اولیه رسوب دی‌اورانات سدیم به داخل رآکتور رسوب‌گیری، به گونه‌ای که مقدار اورانیم موجود در آن تقریباً ۷-۵ برابر میزان اورانیم موجود در محلول فروشویی به دست آمده از تماند باشد، منجر به کاهش pH رسوب‌گیری تا مقدار برابر با ۱۲ می‌گردد)، مدت زمان تنظیم pH یا سرعت ترسیب برابر با ۳۰ دقیقه، سرعت هم‌زدن در طی تنظیم pH برابر با ۲۵۰ دور بر دقیقه، دما برابر با ۵۰ °C، و مدت زمان پیرسازی رسوب برابر با ۱۲ ساعت بوده است که در این شرایط میزان ناخالصی‌های سدیم و فلورئورید که بیش‌ترین ناخالصی‌ها در محلول حاصل از انحلال تماند بوده است در کم‌ترین مقدار ممکن قرار دارد. تجزیه شیمیایی محلول حاصل از انحلال رسوب تهیه شده در جدول ۷ آورد شده است.

جدول ۷. تجزیه شیمیایی محلول حاصل از انحلال سدیم دی اورانات

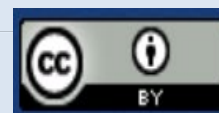
عناصر	غلظت بر حسب میلی‌گرم بر لیتر
U	۲۲۵۵٫۲
Ca	۳٫۹
Al	۰٫۰۳
Mn	۴٫۶۶
Ni	۱۲
Co	۱٫۱۵
Cr	۳٫۵
Cu	۴٫۲
Mg	۵٫۱۱
Cd	۰٫۰۲
Fe	۸٫۱
Ba	۰٫۴۵
V	۰٫۰۸
Mo	۰٫۶
Na	۴۵۲۰٫۱
K	۴۵٫۹
F	۱۹۲٫۹۶
NO <sub>۳</sub> <sup>-</sup>	-



15. Santos A, Laderia A.C.Q. Recovery of uranium from mine waste by leaching with carbonate-based reagents. *Environ. Sci. Technol.* 2011;45:3591.
16. Hillebrand W.F, Lundell G.E.F, Bright G.A, Hoffman J.I. In: *Applied Inorganic Analysis* 2nd Ed. (Wiley, New York. 1953).
17. Kim D, Kim J, Ryu H.D, Lee S.I. Effect of mixing on spontaneous struvite precipitation from semiconductor wastewater. *Bioresource Technol.* 2009;100:74-78.
18. Nikol'skii B.N, Paramonova V.I, Morachevskaya M.D. Investigation of the interaction of solution of uranium salts with sodium hydroxide. *Zh. Neorg. Khim.* 1957;5:1194.
19. Skiff K.E, Turner J.P. A Report On Alkaline Carbonate Leaching At Homestake Mining Company. 1981.
20. Woolfrey J.L. The Preparation and Calcination of Ammonium Uranates-A Literature Survey. *Australian Atomic Energy Commission Research Establishment Lucas Heights.* 1968.
21. Rahaman M.S, Ellis N, Mavinic D.S. Effects of various process parameters on struvite precipitation kinetics and subsequent determination of rate constants. *Wat. Sci. Technol.* 2008;57:647.

**COPYRIGHTS**

©2021 The author(s). This is an open access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution (CC BY 4.0), which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any medium, as long as the original authors and source are cited. No permission is required from the authors or the publishers.

**استناد به این مقاله**

یاوری، رامین، داورخواه، رضا، نظامی، شانلی، موسوی، سید محمود، جوهری، مسعود، ذکریاپور، ناظم، یوسفی، طاهر. (۱۴۰۳). جداسازی و تخلیص اورانیم از محلول فروشویی قلیایی حاصل از انحلال تهماند استخر تیخیری کارخانه فرآوری اورانیم (C۳۶) با استفاده از ترسیب قلیایی. *مجله علوم و فنون هسته‌ای*, ۱۰۸(۲), ۳۸-۴۴.

DOI: <https://doi.org/10.24200/nst.2024.1576>

Url: [https://jonsat.nstri.ir/article\\_1576.html](https://jonsat.nstri.ir/article_1576.html)

