



تولید آمونیم اورانیل کربنات از آمونیم دی‌اورانات تولید شده از محلول اورانیل فلورید

کازم فاطمی*، محمدرضا رضوانیانزاده، حیدر پاشائی، مهدی ترکش اصفهانی
شرکت سوخت رآکتورهای اتمی، صندوق پستی: ۱۴۳۷۶-۴۳۵۵۱، اصفهان - ایران

چکیده: روشی ساده برای تولید آمونیم اورانیل کربنات (AUC) از محلول اورانیل فلورید، اما مؤثر برای بازیابی اورانیم از پس‌آب آمونیم اورانیل کربنات ارایه شد. در این روش، ابتدا اورانیم محلول به شکل آمونیم دی‌اورانات (ADU) با بازده ۹۹٫۹۹٪ با آمونیاک رسوب داده شد. سپس بخش اعظم یون‌های فلئوئور با سرریز کردن محلول از روی رسوب از اورانیم جدا شد. آن‌گاه با افزودن محلول آمونیم کربنات به دوغاب این رسوب، ترکیب آمونیم اورانیل کربنات با بازده بالا تهیه شد. در ادامه اورانیم موجود در پس‌آب آمونیم اورانیل کربنات نیز به شکل آمونیم دی‌اورانات با بازده بالا بازیابی شد، به طوری که غلظت اورانیم در پس‌آب به زیر ۱ میلی‌گرم بر لیتر کاهش یافت. دوغاب آمونیم دی‌اورانات حاصل در این مرحله به ظرف واکنش برگشت داده شد و چرخه‌ی بعد برای تولید آمونیم اورانیل کربنات آغاز شد. در این بررسی اثر غلظت NH_4^+ ، نسبت مولی $\text{CO}_3^{2-}/\text{UO}_2^{2+}$ ، دما و غلظت اورانیم در دوغاب آمونیم دی‌اورانات بر بازده رسوب‌گیری و خواص پودر آمونیم اورانیل کربنات مطالعه شد. نتایج نشان‌گر آن است که یون‌های NH_4^+ تنها بر میزان جداسازی یون‌های فلئوئور و بر بازده تأثیرگذار بود. در مقابل، اثر افزایش غلظت اورانیم در دوغاب آمونیم دی‌اورانات بر بازده رسوب آمونیم اورانیل کربنات، و نیز اثر افزایش غلظت اورانیم در پس‌آب آمونیم اورانیل کربنات بر بازیابی اورانیم از این پس‌آب از مهم‌ترین عامل‌های تأثیرگذار تشخیص داده شدند. در نسبت مولی برابر ۸ برای $\text{CO}_3^{2-}/\text{UO}_2^{2+}$ ، افزایش اندازه‌ی ذرات بلورهای آمونیم اورانیل کربنات با میانگین ۱۲۱ میکرون بیشینه بود. الگوی پراش پرتو ایکس و ریزنگار الکترونی پودر آمونیم اورانیل کربنات تولید شده مشخصه‌ی تشکیل ترکیب استوکیومتری آمونیم اورانیل کربنات و پدیده‌ی بلورینگی بود.

کلیدواژه‌ها: آمونیم اورانیل کربنات، آمونیم دی‌اورانات، اورانیل فلورید، پس‌آب

AUC Preparation from ADU Precipitated from Uranyl Fluoride Solution

K. Fatemi*, M.R. Rezvanianzadeh, H. Pashae, M. Tarkash Esfahani
Nuclear Reactors Fuel Company, P.O.Box: 14376-43551, Esfahan - Iran

Abstract: In this study, a simple method for the AUC powder preparation from uranyl fluoride solution, which is more effective for uranium recovery from AUC effluent is presented. At first, the uranium was precipitated in the form of ADU with more than 99.99 percent efficiency by ammonia solution. Then, through overflowing the solution, most of the fluoride ions were removed from the precipitated uranium. By adding ammonium carbonate solution to the ADU slurry, the AUC with stoichiometry formula with high efficiency was prepared. The remained uranium in the AUC liquid waste was recovered by ADU precipitation in 99.99 percent. In this step, the uranium concentration in the final waste solution was decreased to less than 1ppm, where it is an important factor for enriched uranium. The ADU slurry was recycled to the next cycle of the AUC production. In this study, the NH_4^+ concentration, $\text{CO}_3^{2-}/\text{UO}_2^{2+}$ molar ratio and temperature effects were studied on the properties of the AUC powder and the precipitation efficiency. The results show that the NH_4^+ concentration is only effective on the fluoride separation and precipitation efficiency. The AUC precipitation efficiency depends on the uranium concentration in the ADU slurry. Also, the uranium recovery depends on the uranium concentration in the AUC waste. Decreasing the $\text{CO}_3^{2-}/\text{UO}_2^{2+}$ ratio to a minimum value caused the maximum particle size of the AUC crystals to be on an average value of 121 microns. The results of the XRD and SEM for the AUC powder are also presented.

Keywords: Ammonium Uranyl Carbonate, Ammonium Diuranate, Uranyl Fluoride, Waste

*email: Kazemfatemi33@yahoo.com

تاریخ دریافت مقاله: ۹۱/۸/۳۰ تاریخ پذیرش مقاله: ۹۲/۹/۱۷

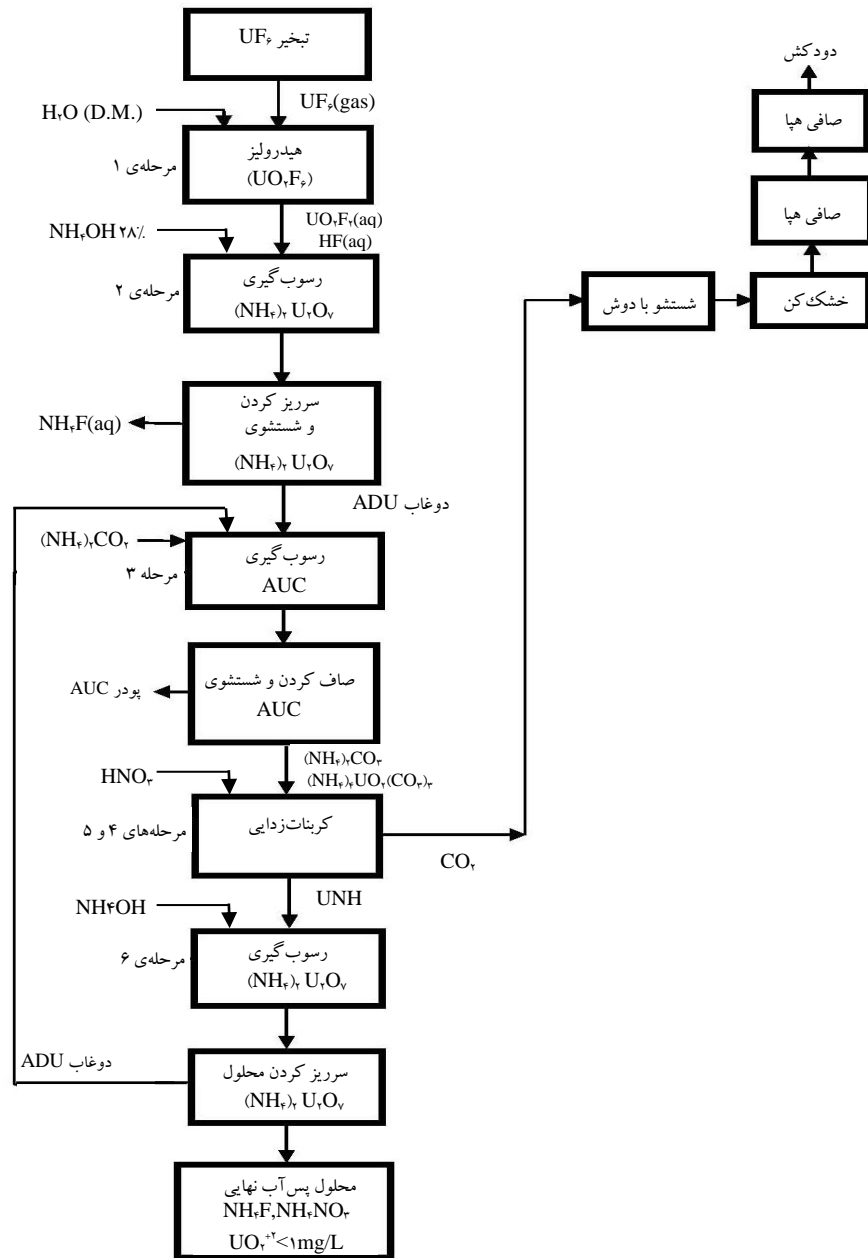


۱. مقدمه

روش جدیدی پیشنهاد شده است. در بررسی منابع، روش ساده‌ای برای حذف اورانیم از پس‌آب آمونیم اورانیل کربنات مشاهده نشد. برخی از روش‌های پیشنهاد شده در منابع علمی برای بازیابی اورانیم از این گونه پس‌آب‌ها مشتمل بر رسوب‌گیری اورانیم با آب اکسیژنه [۱۶، ۱۷]، کاهش، رسوب‌گیری اورانیم و انحلال آن در اسید و تخلیص از طریق فرایند استخراج حلالی [۱۸] و جذب اورانیم با رزین آنیونی [۱۹] است که با بررسی آن‌ها معلوم شد بازیابی اورانیم از پس‌آب آمونیم اورانیل کربنات به دلیل مزاحمت یون‌های فلئوئور اساساً مشکل و غالباً نیازمند مرحله‌های متعدد و یا مصرف مواد متنوع است. مقایسه‌ی مزایای این دو روش رسوب‌گیری و بهره‌گیری از مزایای هر دو، ما را به تلفیق این دو روش و در نهایت، استفاده از خواص ویژه‌ی آمونیم اورانیل کربنات برای بازیابی اورانیم از پس‌آب آمونیم اورانیل کربنات با بازده بسیار بالا رهنمون شد. بدین ترتیب که ابتدا با رسوب‌گیری اورانیم به شکل آمونیم دی اورانات و سرریز کردن محلول حاوی یون فلئوئور، مزاحمت این یون برای فرایند رسوب‌گیری آمونیم اورانیل کربنات برطرف، و شرایط و امکان بازیابی اورانیم از پس‌آب آمونیم اورانیل کربنات به شکل آمونیم دی اورانات با بازده بالا فراهم شد به طوری که غلظت اورانیم در پس‌آب نهایی به شش برابر کم‌تر از میانگین غلظت آن در پوسته‌ی زمین (۲ ppm) کاهش یافت. شکل ۱ مرحله‌های فرایندی چرخه‌ی کامل تولید آمونیم اورانیل کربنات به روش تلفیقی را نشان می‌دهد. این مرحله‌ها شامل سه مرحله‌ی اصلی مشتمل بر رسوب‌گیری اورانیم با آمونیم هیدروکسید، تولید آمونیم اورانیل کربنات با محلول‌های آمونیم کربنات از دوغاب آمونیم دی اورانات و بازیابی اورانیم از پس‌آب آمونیم اورانیل کربنات به شکل آمونیم دی اورانات است. واکنش‌های شیمیایی هر مرحله و مشخصه‌های خوراک و خروجی هر مرحله از یک چرخه‌ی کامل تولید آمونیم اورانیل کربنات (شکل ۱) به شرح زیر است:

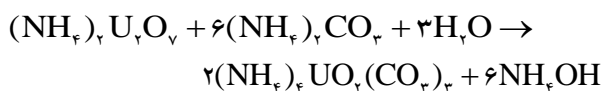
خواص قرص سوخت اورانیم دی اکسید و تهیه‌ی آن از محلول‌های اورانیل فلورید (UO_2F_2) و اورانیل نترات (UNH) غالباً با شرایط رسوب‌گیری و خواص ترکیب‌های آمونیم دی اورانات و آمونیم اورانیل کربنات تهیه شده از این محلول‌ها ارتباط دارد. استفاده از آمونیم دی اورانات برای تهیه‌ی سوخت رآکتورهای هسته‌ای از سابقه‌ی طولانی‌تری نسبت به آمونیم اورانیل کربنات برخوردار است. پودر آمونیم اورانیل کربنات برای اولین بار در دهه‌ی شصت توسط یک شرکت آلمانی از تبخیر اورانیم هگزا فلورید (UF_6) و هیدرولیز آن در حضور گازهای NH_3 و CO_2 تهیه و بعداً به تولید صنعتی رسید. برتری روش تولید و خواص مناسب پودر آمونیم اورانیل کربنات نسبت به آمونیم دی اورانات سبب شد پژوهش گسترده‌ای برای تولید آن در مقیاس آزمایشگاهی [۱، ۲، ۳، ۴، ۵، ۶، ۷، ۸، ۹، ۱۰] و نیمه‌صنعتی و صنعتی [۱۱، ۱۲، ۱۳، ۱۴] انجام شود. یکی از تفاوت‌های بارز ترکیب‌های آمونیم دی اورانات و آمونیم اورانیل کربنات این است که رسوب آمونیم اورانیل کربنات ساختار بلوری دارد و برخلاف آمونیم دی اورانات به راحتی قابل صاف و شسته شدن است، درصد فلورید کم‌تری نسبت به آمونیم دی اورانات دارد [۱۵] و در حالت خشک نیز دارای قابلیت ریزش مناسب، درهم‌جوشی^(۱) مطلوب و تبدیل به قرص اورانیم دی اکسید است، در حالی که آمونیم دی اورانات برای تبدیل شدن به قرص اورانیم دی اکسید نیازمند پودر شدن است [۱، ۲، ۶].

دلیل عمده‌ای که از برتری آمونیم اورانیل کربنات نسبت به آمونیم دی اورانات می‌کاهد این است که غلظت اورانیم در پس‌آب آمونیم اورانیل کربنات (به علت انحلال‌پذیری بالای آن) نسبت به پس‌آب آمونیم دی اورانات بیش‌تر است. هم‌چنین رسوب‌گیری آمونیم دی اورانات بسیار آسان‌تر است. به طور معمول بازیابی اورانیم از پس‌آب مهم‌ترین و آخرین مرحله از چرخه‌ی تولید محصول‌های اورانیم است. این مهم در تولید آمونیم اورانیل کربنات به روش تلفیقی مورد توجه قرار گرفته و

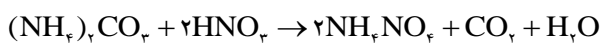


شکل ۱. چرخه‌ی کامل تولید آمونیم اورانیل کربنات با استفاده از آمونیم دی اورانات تولیدی از محلول اورانیل فلورید.

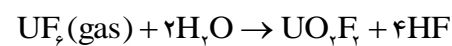
۳. تولید رسوب آمونیم اورانیل کربنات از دوغاب آمونیم دی اورانات به وسیله‌ی محلول آمونیم کربنات



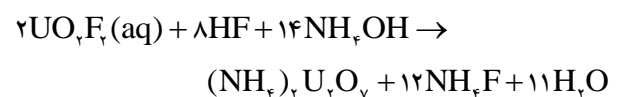
۴. تجزیه‌ی کربنات آزاد در محلول به وسیله‌ی محلول نیتریک اسید



۱. واکنش ترکیب گاز اورانیم هگزا فلورید با آب یونزدایی شده (آب کافت) برای تولید محلول اورانیل فلورید



۲. رسوب‌گیری اورانیم از محلول اورانیل فلورید در حضور HF اضافی به شکل آمونیم دی اورانات به وسیله‌ی محلول آمونیم هیدروکسید





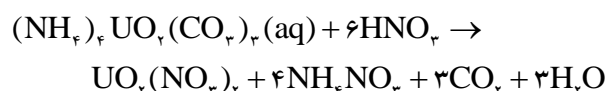
۳.۲ رسوب‌گیری اورانیم به شکل آمونیم دی اورانات از محلول اورانیل فلورید

با افزودن محلول آمونیم هیدروکسید ۲۸٪ در دمای محیط به محلول اورانیل فلورید با آهنک ۶۰ میلی‌لیتر بر دقیقه، و با هم‌زدن با سرعت ۴۰۰ دور بر دقیقه تا رسیدن pH به حدود ده، رسوب تشکیل شد. ۱ تا ۱٫۵ ساعت بعد از ته‌نشین شدن رسوب، حداکثر حجم محلول روی آن سرریز شد. رسوب آمونیم دی اورانات با محلول آمونیم هیدروکسید ۳٪ با حجم دو برابر حجم محلول اولیه شسته شد. این محلول‌ها پس از ته‌نشین شدن رسوب نیز سرریز و حجم آن‌ها اندازه‌گیری شد. غلظت اورانیم در محلول‌های سرریز شده با استفاده از پلاسما یون جفت شده‌ی القایی (ICP) و غلظت یون فلورور با دستگاه یون‌گزين مدل ۶۹۲ متروهم اندازه‌گیری شد براساس حجم محلول‌های سرریز شده، و غلظت اورانیم و یون فلورور در آن‌ها درصد اتلاف اورانیم و درصد جداسازی فلورور محاسبه شد.

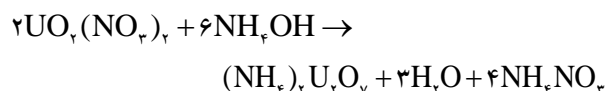
۴.۲ رسوب‌گیری آمونیم اورانیل کربنات از دوغاب آمونیم دی اورانات به ظرف محتوی دوغاب رسوب آمونیم دی اورانات، محلول‌های ۴۰ و ۵۰٪ آمونیم کربنات اضافه شد. این کار در شرایط هم‌زدن با هم‌زن مغناطیسی به مدت ۱٫۵ ساعت، در دمای محیط و در آزمایش دیگری در دمای ۵۵ درجه‌ی سانتی‌گراد انجام شد. بعد از ۳ ساعت محلول با استفاده از پمپ خلا از رسوب آمونیم اورانیل کربنات جدا و براساس غلظت اورانیم محلول در آن، بازده رسوب‌گیری محاسبه شد. رسوب حاصل دو بار با محلول آمونیم کربنات ۶٫۵٪ و دو بار با متانول به حالت غوطه‌وری شسته، و در آن در دمای ۵۰ درجه‌ی سانتی‌گراد خشک و به مدت ۳ ساعت در دمای ۷۰۰ درجه‌ی سانتی‌گراد در کوره تکلیس، و محصول U_3O_8 از آن‌ها تهیه شد. مقدار کربنات و اورانیم در محلول‌های کربنات و در محصول آمونیم اورانیل کربنات، به ترتیب، به روش عیارسنجی اسید و باز و واندیم‌سنجی اندازه‌یابی شد؛ غلظت یون‌های آمونیم و فلورور در محلول‌های کربنات و محصول اورانیل کربنات، به ترتیب، به روش کج‌جدال و با بهره‌گیری از دستگاه یون‌گزين اندازه‌گیری شد.

در این بررسی از پراش پرتو ایکس برای تعیین ساختار و از لیزر برای اندازه‌یابی ذرات پودرهای آمونیم اورانیل کربنات و محصول U_3O_8 تولیدی استفاده شد.

۵. تجزیه‌ی اورانیل کربنات محلول به وسیله‌ی محلول نیتریک اسید برای تولید اورانیل نیترات



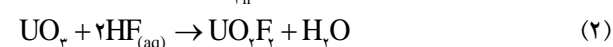
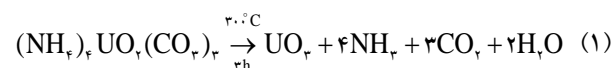
۶. رسوب‌گیری اورانیم به شکل آمونیم دی اورانات از اورانیل نیترات حاصل از تجزیه‌ی پس‌آب آمونیم اورانیل کربنات به وسیله‌ی آمونیم هیدروکسید



۲. روش کار و مواد

۱.۲ تهیه‌ی محلول اورانیل فلورید

برای تهیه‌ی این محلول مطابق با واکنش‌های زیر، از تکلیس آمونیم اورانیل کربنات خالص در کوره برای تهیه‌ی اکسید UO_3 و انحلال آن در محلول HF استفاده شد.



آمونیم اورانیل کربنات کلسینه شده در واکنش (۱) در یک فرایند صنعتی با خلوص بالا تهیه شده بود.

۲.۲ تهیه‌ی محلول‌های آمونیم کربنات

برای تهیه‌ی این محلول‌ها ابتدا به مقدار معینی از آمونیم بی‌کربنات (مرک) با خلوص تجزیه‌ی آب لازم اضافه و مدتی هم زده شد. سپس به میزان لازم از محلول آمونیاک ۲۵-۲۸٪ به آن اضافه و هم زده شد. از این محلول‌ها به تناسب درصد یون کربناتشان (۴۰ و ۵۰٪) برای عملیات رسوب‌گیری و برای عملیات شستشوی رسوب‌های آمونیم اورانیل کربنات از آب یون‌زدایی شده و از محلول‌های آمونیم کربنات ۲٫۵، ۶٫۵، ۱۰ و ۲۵ درصد استفاده شد. در حالت ۴۰٪، محلول شفاف آمونیم کربنات و در حالت ۵۰٪، دوغاب آمونیم کربنات حاصل شد که از هر دو حالت در فرایند تشکیل رسوب آمونیم اورانیل کربنات استفاده شد. به علت حضور یون فلورور کلیه‌ی آزمایش‌ها در ظروف پلی‌اتیلنی انجام شد.



۵.۲ بازیابی اورانیم به شکل آمونیم دی اورانات از پس آب آمونیم اورانیل کربنات

ابتدا غلظت اورانیم، کربنات و فلئوئور موجود در پس آب‌های حاصل از فرایند تولید آمونیم اورانیل کربنات به جز متانول تعیین و تا رسیدن pH محلول به ۲ و عاری شدن محلول از CO₂ محلول نیتریک اسید ۶۵٪ به آن اضافه شد. در این مرحله غلظت اورانیم و فلئوئور در اورانیل نیترات حاصل تعیین و به آن تا رسیدن pH به بالاتر از ۹٫۷، محلول آمونیم هیدروکسید اضافه شد. پس از ته‌نشین شدن رسوب، محلول از روی آن سرریز و مقدار U و F در محلول‌های سرریز شده اندازه‌گیری و بازده رسوب‌گیری در این مرحله تعیین شد. دوغاب آمونیم دی اورانات حاصل در این مرحله بدون شستشو برای تولید آمونیم اورانیل کربنات به چرخه‌ی بعد انتقال داده شد.

۳. نتایج و بحث

۱.۳ تولید آمونیم دی اورانات از محلول اورانیل فلورید

یکی از اهداف رسوب دادن اورانیم از محلول اورانیل فلورید با استفاده از محلول آمونیم هیدروکسید در واقع ایجاد شرایط برای جداسازی بخش اعظم یون‌های فلئوئور از اورانیم و کاهش اثر مزاحمت آن برای مرحله‌های بعد و نه بررسی عامل‌های مؤثر بر ساختار و بازده رسوب حاصل بوده است. اساساً برای رسوب‌گیری کامل اورانیم از محلول حاوی فلئوئور، از محلول آمونیاک به میزان بیش از حد لازم استفاده می‌شود. درصد آمونیاک اضافی در این حالت، همان‌گونه که در جدول ۱ نیز دیده می‌شود، شدیداً به درصد یون فلئوئور محلول بستگی دارد و

با افزایش غلظت یون فلئوئور افزایش می‌یابد، که در این حالت رسوب آمونیم دی اورانات با خاصیت صاف شدن نامطلوب تولید می‌شود. براساس نظر پژوهش‌گران اندازه‌ی دانه‌بندی رسوب آمونیم دی اورانات حاصل از محلول‌های فلئوئوردار به شرایط رسوب‌گیری و عمدتاً به pH محیط رسوب‌گیری وابسته است. چنان‌چه رسوب‌گیری در pH برابر ۳٫۵ انجام شود، ذراتی با دانه‌بندی ۲۰ تا ۲۴ میکرون و در pH بالای ۷٫۲ با دانه‌بندی تا ۳ میکرون حاصل می‌شود. برای اجتناب از این مشکل تبدیل، رسیدن به یک رسوب آمونیم اورانیل کربنات با فلئوئور کم و خاصیت صاف شدن خوب یکی از اهداف اصلی این مقاله است. برای این منظور برای رسوب هر مول اورانیم از محلول اورانیل فلورید از ۲۱ تا ۳۸ مول آمونیاک در دمای محیط استفاده شد. براساس اطلاعات جدول ۱، ۳۴٫۹ مول آمونیاک برای رسوب دادن یک مول اورانیم در محدوده‌ی pH=۹٫۸-۱۰ به شکل آمونیم دی اورانات کافی بود. به نظر می‌رسد افزایش بیش از این مقدار آمونیاک سبب افزایش جزئی اتلاف غلظت اورانیم در محلول‌های سرریز شده از رسوب می‌شود. در این بررسی نتایج آزمایش‌ها نشان داد که فلئوئور تا مقدار ۲۴ گرم بر لیتر و اورانیم تا مقدار ۵۰ گرم بر لیتر در محلول اورانیل فلورید اثر منفی بر بازده جداسازی اورانیم به شکل آمونیم دی اورانات نشان نداد و اتلاف اورانیم بسیار ناچیز بود.

سانگ و همکاران، مقدار فلئوئور در رسوب آمونیم دی اورانات را در حد ۱۰۰۰۰ تا ۴۵۰۰۰ ppm گزارش نموده و معتقدند که حتی با عمل شستشو هم غیرقابل جداسازی است [۱۵].

جدول ۱. شرایط رسوب‌گیری اورانیم از محلول اورانیل فلورید با استفاده از محلول آمونیاک و روند جداسازی یون‌های فلئوئور و اتلاف اورانیم در مرحله‌های مختلف

شماره‌ی آزمایش	NH ₄ ⁺ (مول)	pH نهایی	میزان اتلاف اورانیم			میزان جدایش یون‌های فلئوئور از دوغاب آمونیم دی اورانات			فلئوئور باقی‌مانده در دوغاب آمونیم دی اورانات برای مرحله‌ی تولید آمونیم اورانیل کربنات (%)
			در سرریز شده (%)	در اولین محلول شستشو (%)	در دومین محلول شستشو (%)	در اولین محلول شستشو (%)	در اولین محلول شستشو (%)	در دومین محلول شستشو (%)	
۱	۲۰٫۹۵	۱۰	۰٫۰۰۴۳	۰٫۰۰۲	>۰٫۰۰۰۹	—	—	۹۹٫۹۹	
۲	۲۶٫۱۹	۹٫۹	۰٫۰۰۷۶	>۰٫۰۰۰۹	>۰٫۰۰۰۹	۷۷٫۶	۱۴٫۸	۳٫۸۷	
۳	۳۰٫۴۸	۹٫۹	۰٫۰۰۳۶	>۰٫۰۰۰۹	۰٫۰۰۴	۷۳٫۷	۱۸٫۶	۴٫۴	
۴	۳۴٫۹	۱۰٫۲	۰٫۰۰۶	>۰٫۰۰۰۹	>۰٫۰۰۰۹	۷۷٫۳	۱۵٫۹	۳٫۹	
۵	۳۴٫۹	۱۰	۰٫۰۰۳۴	>۰٫۰۰۰۹	>۰٫۰۰۰۸	۸۰٫۰	۱۲٫۷	۲٫۹	
۶	۳۴٫۹	۱۰٫۲	۰٫۰۰۲۹	>۰٫۰۰۰۹	>۰٫۰۰۰۹	۸۲٫۵	۱۲٫۹	۳٫۱	
۷	۳۹٫۰۵	۹٫۹	۰٫۰۰۵	۰٫۰۱۱	>۰٫۰۰۰۹	—	—	—	
۸	۳۹٫۰۵	۱۰٫۱	۰٫۰۱۹	۰٫۰۱۲	۰٫۰۰۳	—	—	—	
۹	۳۹٫۰۵	۹٫۹	۰٫۰۰۴	۰٫۰۰۲	>۰٫۰۰۰۹	—	—	—	



استنباط می‌شود که فلئوئور به شکل NH_4F محلول از دوغاب آمونیم دی اورانات تا ۹۸ درصد جداسازی می‌شود. براساس اطلاعات جدول ۱، طی سه مرحله شستشو بخشی از اورانیم حل و محلول شستشو کلونیدی می‌شود. لذا، شستشوی رسوب بیش از دو مرحله و به ویژه از مرحله‌های ۳ به بعد به صلاح نیست.

غلظت بسیار کم اورانیم در محلول روی رسوب‌ها، ۱ تا ۱٫۵ ساعت بعد از ته‌نشینی رسوب، نشان‌گر کافی بودن زمان ته‌نشینی است و امکان جداسازی بخش اعظم اتم‌های فلئوئور از اورانیم، از طریق سرریز کردن این محلول‌ها فراهم می‌شود.

۲.۳ تولید آمونیم اورانیل کربنات از دوغاب آمونیم دی اورانات

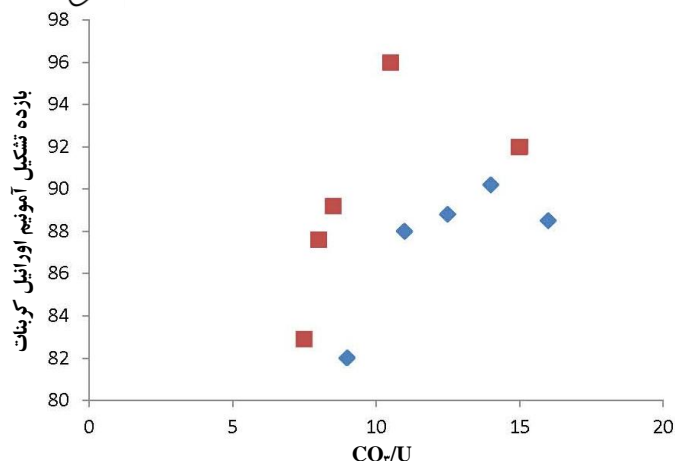
پس از جداسازی بخش اعظم یون‌های فلئوئور از دوغاب آمونیم دی اورانات، واکنش میان این دوغاب قلیایی و محلول آمونیم کربنات ابتدا منجر به حل شدن ترکیب آمونیم دی اورانات و تشکیل محلول کمپلکس آنیونی اورانیل کربنات شد که با افزایش بیش‌تر غلظت یون کربنات، رسوب آمونیم اورانیل کربنات تشکیل شد. شرایط عملیاتی ۱۳ آزمایش در دمای محیط برای تهیه‌ی آمونیم اورانیل کربنات از دوغاب آمونیم دی اورانات در جدول ۲ داده شده است.

از طرفی بنا به گزارش گانه [۲۰] اتم‌های فلئوئور در رسوب آمونیم دی اورانات به شکل کمپلکس $UO_2F_2 \cdot 3NH_4F$ و طبق گزارش دپتولا [۲۱] به شکل کمپلکس $(NH_4)_{0.72}UO_2 \cdot (OH)_{0.44} \cdot YH_2O$ است. البته درصد فلئوئور در رسوب آمونیم دی اورانات نه تنها به درجه‌ی حرارت بلکه به سرعت رسوب‌گیری نیز بستگی دارد. در منابع علمی برای کاهش مقدار فلئوئور رسوب آمونیم دی اورانات تا حد ۲٪، عملیات شستشو و عبور از صافی پیشنهاد شده است [۲۲]، در حالی که در روش مورد بحث از سرریز کردن استفاده شده است [۲۳].

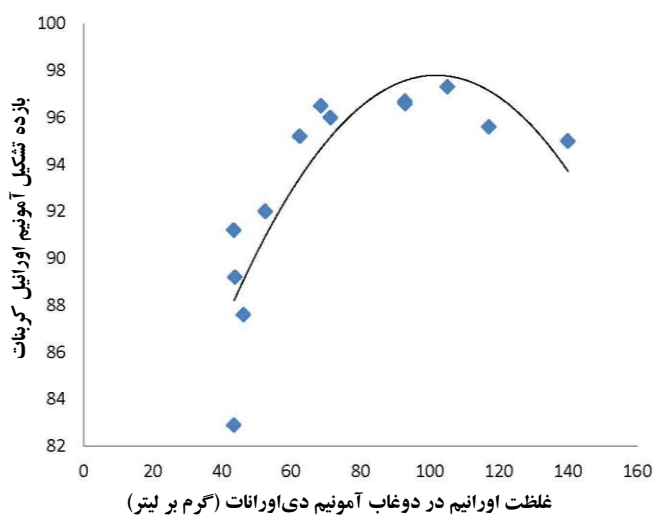
جدول ۱، شرایط رسوب‌گیری اورانیم و روند جداسازی یون‌های فلئوئور از رسوب آمونیم دی اورانات در مرحله‌های مختلف را نشان می‌دهد. همان‌طور که از جدول ۱ پیدا است، افزایش پیوسته‌ی یون آمونیم در عمل رسوب‌گیری سبب افزایش درصد حذف یون‌های فلئوئور از رسوب ته‌نشین شده‌ی آمونیم دی اورانات می‌شود. این ارتباط از روی اندازه‌گیری غلظت یون‌های فلئوئور در اولین محلول سرریز شده در هر آزمایش قابل استنتاج است. از نتایج حذف یون‌های فلئوئور و هم‌چنین از غلظت فوق‌العاده ناچیز اورانیم در محلول‌های سرریز شده در جدول ۱

جدول ۲. شرایط و نتایج آزمایش تولید آمونیم اورانیل کربنات از دوغاب آمونیم دی اورانات دردمای محیط

شماره‌ی آزمایش	دوغاب آمونیم دی اورانات		pH	C/U	غلظت اورانیم قبل از شستشوی رسوب در پس‌آب آمونیم اورانیل کربنات (میلی‌گرم بر لیتر)	فلئوئور باقی‌مانده در دوغاب آمونیم دی اورانات برای مرحله‌ی رسوب‌گیری آمونیم اورانیل کربنات (٪)	بازده رسوب آمونیم اورانیل کربنات (٪)
	حجم (میلی لیتر)	غلظت اورانیم (گرم بر لیتر)					
۱	۷۰	۷۱٫۴۲	۹٫۶	۹٫۵	۲۳۱۷	-	۹۶
۲	۷۵	۶۸٫۶۶	۹٫۸	۸	۱۷۷۸	-	۹۶٫۵
۳	۸۰	۶۲٫۴۹	۹٫۶	۹٫۵	۲۴۴۰	-	۹۵٫۲
۴	۹۵	۵۲٫۶	-	۱۴٫۵	۳۱۵۲	-	۹۲
۵	۱۰۸	۴۶٫۲۹	۱۰	۷٫۵	۴۵۴۰	-	۸۷٫۶
۶	۱۱۴	۴۳٫۸۵	۱۰	۸	۳۶۰۹	-	۸۹٫۲
۷	۱۱۵	۴۳٫۴۷	-	۷	۶۲۸۸	-	۸۲٫۹
۸	۱۱۵	۴۳٫۴۷	۱۰٫۷	۹٫۵	۳۴۵۱	-	۹۱٫۲
۹	۱۹۰	۱۰۵٫۲۵	۱۰٫۲	۹٫۵	۱۷۷۶	۳٫۷۳	۹۷٫۳
۱۰	۲۱۵	۹۳٫۰۱	۱۰٫۲	۸	۱۸۸۳	۳٫۰۷	۹۶٫۷
۱۱	۲۱۵	۹۳٫۰۱	-	۹	۱۸۷۹	۲٫۹	۹۶٫۶
۱۲	۳۰۰	۱۴۰	۹٫۱۸	۹	۳۴۳۳	۳٫۳	۹۵
۱۳	۶۴۰	۱۱۷٫۲	۹٫۴	۹	۳۲۲۴	۱٫۵	۹۵٫۶



شکل ۲. تأثیر نسبت مولی $\text{CO}_3^{2-}/\text{U}$ بر بازده تشکیل آمونیم اورانیل کربنات؛ از محلول اورانیل فلورید در قبل از حذف فلئوئور، \blacksquare پس از حذف فلئوئور.



شکل ۳. رابطه‌ی بازده تشکیل آمونیم اورانیل کربنات و غلظت اورانیم دوغاب آمونیم دی اورانات.

۳.۳ عوامل مؤثر بر تولید و ساختار آمونیم اورانیل کربنات

نتایج جدول ۲ نشان می‌دهد که کاهش غلظت اورانیم، که به میزان افزایش حجم دوغاب آمونیم دی اورانات وابسته است، منجر به کاهش بازده رسوب آمونیم اورانیل کربنات می‌شود. البته این کاهش بازده با افزایش نسبت C/U و غلظت اورانیم در دوغاب آمونیم دی اورانات جبران می‌شود (نتایج آزمایش‌های ۱ تا ۷). از بین عامل‌های حجم دوغاب آمونیم دی اورانات، غلظت اورانیم در دوغاب آمونیم دی اورانات و نسبت C/U ، عامل غلظت در محدوده‌ی مشخص تأثیر بیشتری بر افزایش بازده رسوب آمونیم اورانیل کربنات نشان می‌دهد (نتایج آزمایش‌های ۹ تا ۱۱). بالاتر بودن بازده تولید آمونیم اورانیل کربنات از دوغاب آمونیم دی اورانات نسبت به بازده تولید آن از افزایش دوغاب

جدول ۲ تأثیر غلظت اورانیم دوغاب آمونیم دی اورانات، حجم آن و نسبت مولی کربنات به اورانیم (C/U) در دمای محیط و دمای 55°C بر فرایند تولید رسوب آمونیم اورانیل کربنات از دوغاب آمونیم دی اورانات را (در یک آزمایش) نشان می‌دهد. نتایج آزمایش‌های ۱ تا ۸ در جدول ۲ نشان‌دهنده‌ی آن است که با افزایش حجم دوغاب آمونیم دی اورانات، بازده تولید آمونیم اورانیل کربنات به دلیل کاهش غلظت اورانیم کاهش یافت. در آزمایش‌های ۶، ۷ و ۸ تأثیر نسبت C/U و در آزمایش‌های ۹، ۱۰ و ۱۱ و به ویژه در آزمایش ۹ تأثیر غلظت اورانیم دوغاب آمونیم دی اورانات بر بازده تشکیل آمونیم اورانیل کربنات کاملاً مشهود است. منحنی‌های شکل‌های ۲ و ۳ بازده تشکیل آمونیم اورانیل کربنات از دوغاب آمونیم دی اورانات محتوی ۱۰۰ گرم بر لیتر اورانیم با C/U برابر ۱۰/۵ را نشان می‌دهد. چو و همکاران، تشکیل ترکیب حد واسط $(\text{NH}_4)_3\text{UO}_2\text{F}_6$ در فرایند رسوب‌گیری آمونیم اورانیل کربنات را بررسی کرده و بخشی از فلئوئور موجود در ترکیب آمونیم اورانیل کربنات را مربوط به این حد واسط گزارش نمودند [۱]. در بررسی حاضر، در رسوب آمونیم اورانیل کربنات تولید شده از دوغاب آمونیم دی اورانات، این ترکیب حد واسط مشاهده نشد. سانگک و همکاران [۱۵] مقدار فلئوئور در پودر آمونیم اورانیل کربنات تهیه شده از محلول اورانیل فلورید را ۰/۸٪ گزارش کردند که با شستشو به ۰/۲٪ و با عمل گرما-آب کافت به حد استاندارد هسته‌ای رسید [۲۰]. از آنجا که پودر آمونیم اورانیل کربنات در روش تلفیقی، از دوغابی از آمونیم دی اورانات تهیه می‌شود که فلئوئور آن در مرحله‌ی قبل (بخش ۳-۲) تا ۹۸٪ حذف شده است، از این رو مقدار فلئوئور این پودر کم و در حدود ۲۶-۱۳۰ ppm گزارش شده است. بنابراین جداسازی باقی‌مانده‌ی مقدار فلئوئور در آمونیم اورانیل کربنات‌های تولیدی در مرحله‌ی گرما-آب کافت راحت‌تر خواهد بود.



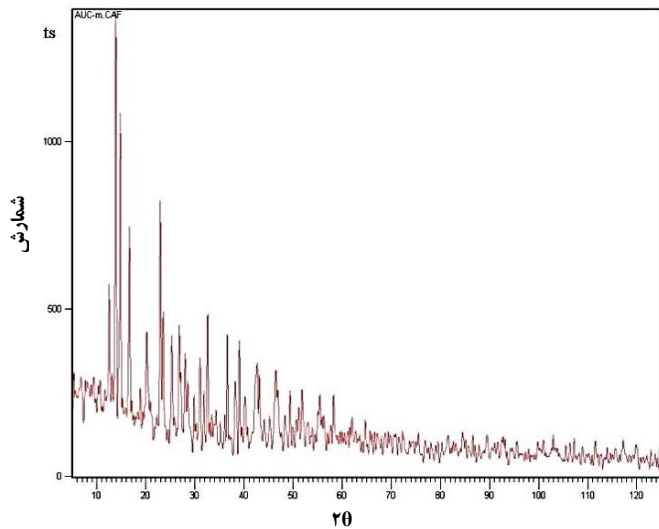
تبدیل می‌شود. حداقل نسبت C/U برابر ۷ برای تشکیل ترکیب استوکیومتری $(\text{NH}_4)_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3$ ضروری است. نسبت C/U برابر ۹ در دمای 55°C علاوه بر این که سبب تشکیل ترکیب استوکیومتری آمونیم اورانیل کربنات شد، مطابق نتایج جدول‌های ۲، ۴ و شکل ۲ نیز سبب افزایش بازده تشکیل آمونیم اورانیل کربنات و ذرات نسبتاً درشت آن شد. البته با درشت شدن دانه‌بندی آمونیم اورانیل کربنات، فلئوئور آزاد از آن به راحتی شسته می‌شود و درصد فلئوئور در پودر آمونیم اورانیل کربنات کمینه می‌شود.

۴.۳ خواص پودر آمونیم اورانیل کربنات تولید شده از دوغاب آمونیم دی اورانات

توزیع دانه‌بندی ذرات پودر آمونیم اورانیل کربنات تهیه شده در دمای محیط از رسوب‌های آمونیم دی اورانات، در جدول ۴ نشان داده شده است. نتایج جدول ۴ مؤید آن است که افزایش C/U، سبب کاهش اندازه‌ی ذرات آمونیم اورانیل کربنات می‌شود. از طرفی افزایش غلظت اورانیم در دوغاب آمونیم دی اورانات و دمای 55°C این کاهش را تا حدودی جبران نموده‌اند، که البته مشخص نیست کدام یک از این دو، تأثیر بیشتری داشته است. اما با توجه به بررسی انجام شده به وسیله‌ی تل و همکاران [۴] که کاهش اندازه‌ی ذرات پودر آمونیم اورانیل کربنات را متأثر از افزایش غلظت اورانیم می‌دانند، می‌توان گفت دما یکی از عامل‌هایی است که سبب افزایش اندازه‌ی ذرات آمونیم اورانیل کربنات شده است. با توجه به این که رسوب آمونیم اورانیل کربنات در این مقاله از آمونیم دی اورانات تولید شد، به سختی می‌توان عامل‌های تأثیرگذار بر اندازه‌ی دانه‌بندی رسوب آمونیم اورانیل کربنات را به جز از طریق نتایج تجربی مشخص کرد. از نتایج تجربی جدول ۴ استنباط می‌شود که اندازه دانه‌بندی آمونیم اورانیل کربنات تولیدی از آمونیم دی اورانات صرف‌نظر از عامل دما تابع نسبت C/U نیز است. بنابراین در نسبت C/U معین امکان تولید آمونیم اورانیل کربنات با دانه‌بندی متوسط مشخص امکان‌پذیر است که این یک مزیت محسوب می‌شود.

آمونیم کربنات به محلول اورانیل فلورید (بدون جداسازی) برتری این روش را نسبت به روش مستقیم نشان می‌دهد (شکل ۲). این افزایش بازده در واقع یکی دیگر از ویژگی‌های این روش است و علت اصلی آن جداسازی تا ۹۸٪ یون‌های فلئوئور از دوغاب آمونیم دی اورانات است (بخش ۲.۳). درصدی از این افزایش بازده می‌تواند متأثر از وجود یون‌های NH_4^+ کافی در مرحله‌ی رسوب‌گیری اورانیم به شکل آمونیم دی اورانات باشد. بررسی منابع نشان می‌دهد برای دست‌یابی به این بازده (۹۷٪)، طولانی کردن زمان افزایش محلول آمونیم کربنات به محیط واکنش، مؤثر است [۱]. اما روند منحنی‌ها در شکل ۲ نشان‌گر آن است که بازده رسوب‌گیری آمونیم اورانیل کربنات در هر دو حالت، به نسبت C/U بستگی دارد و زمانی که رسوب‌گیری مستقیم آمونیم اورانیل کربنات از محلول اورانیل فلورید موردنظر باشد، بیش‌تر در جهت کاهش بازده تولید این محصول نمایان می‌شود. نتایج جدول ۲ و شکل ۳ نیز نشان می‌دهد که بازده رسوب‌گیری آمونیم اورانیل کربنات به غلظت اورانیم در دوغاب آمونیم دی اورانات وابسته است. یعنی، این که هر چه حجم این دوغاب کم‌تر و یا غلظت اورانیم (تا حد ۱۰۰ گرم بر لیتر) بیش‌تر و نسبت C/U (نیز تا حدی) بیش‌تر باشد بازده تولید آمونیم اورانیل کربنات بیش‌تر خواهد بود. (در حالت جداسازی یون‌های فلئوئور)، براساس روند شکل ۲ استنباط می‌شود که در حداقل نسبت $C/U (=7/5)$ ، بیش‌ترین مقدار ترکیب دوغاب آمونیم دی اورانات به بیش‌ترین مقدار رسوب آمونیم اورانیل کربنات (حدود ۸۳٪) تبدیل می‌شود. از این به بعد افزایش نسبت C/U سبب افزایش مقدار رسوب آمونیم اورانیل کربنات خواهد شد و در نسبت ۱۰/۴، بازده به بیشینه مقدار خود (۹۷٪) می‌رسد. آن سوتر، افزایش بیش‌تر نسبت C/U، بی‌تأثیر خواهد بود، چرا که افزایش نسبت C/U سبب بالا رفتن حجم محیط رسوب‌گیری و افزایش بیش‌تر انحلال‌پذیری ذاتی رسوب آمونیم اورانیل کربنات خواهد شد؛ از این‌رو روند افت منحنی بازده رسوب آمونیم اورانیل کربنات، با نسبت C/U قابل توجیه خواهد بود.

جدول ۳ رابطه‌ی نسبت C/U و ترکیب شیمیایی آمونیم اورانیل کربنات را نشان می‌دهد. براساس اندازه‌گیری، در محدوده‌ی نسبت C/U برابر ۷ تا ۸، ترکیب آمونیم دی اورانات در دمای محیط به ترکیب استوکیومتری آمونیم اورانیل کربنات



شکل ۴. الگوی پراش پرتو ایکس پودر آمونیم اورانیل کربنات تولید شده از دوغاب آمونیم دی اورانات در دمای محیط.

۵.۳ ریزساختار پودرهای آمونیم اورانیل کربنات تولیدی از دوغاب آمونیم دی اورانات

در شکل ۵ ریزنگارهای الکترونی ذرات پودر آمونیم اورانیل کربنات تولید شده در نسبت‌های مختلف C/U و در دمای محیط و دمای ۵۵ درجه‌ی سانتی‌گراد نشان داده شده است. همان‌گونه که مشاهده می‌شود در هر دو شرایط، پدیده‌ی کلوخه شدن، به هم آمیختگی ذرات و هم‌جوشی مشاهده نمی‌شود؛ پدیده‌ی بلورینگی رخ داده و بلورها با لبه‌های شکسته نیز مشاهده می‌شوند. تصویر سمت چپ با بزرگ‌نمایی بالا، تعدادی از ذرات آمونیم اورانیل کربنات تولید شده در دمای محیط با نسبت C/U برابر ۸ و تصویر سمت راست، اندازه‌ی ذرات آمونیم اورانیل کربنات تولید شده در دمای ۵۵°C با نسبت C/U برابر ۹ را نشان می‌دهد. به طور کلی می‌توان گفت شرایط هم‌زنی و افزایش نسبت C/U و دما سه عامل مهم و تأثیرگذار بر اندازه و شکل ذرات آمونیم اورانیل کربنات هستند. اندازه‌ی ذرات U_2O_8 تولید شده از این آمونیم اورانیل کربنات که به مدت ۳ ساعت در کوره در دمای ۷۰۰ درجه سانتی‌گراد کلسینه شدند ۸۰٪ زیر ۴۵ میکرون بود.

جدول ۳. رابطه‌ی نسبت C/U و ترکیب شیمیایی آمونیم اورانیل کربنات

C/U	درصد U	درصد CO_3^{2-}	درصد NH_4^+
۷	۴۵٫۵	۳۴٫۳	۱۳٫۵
۸	۴۵٫۲	۳۴٫۳	۱۳٫۳
*۹	۴۴٫۹	۳۴٫۱	۱۳
۹٫۵	۴۴٫۵	۳۳٫۹	۱۳
۹٫۵	۴۴٫۴	۳۴٫۳	۱۲٫۵

° دما ۵۵

جدول ۴. رابطه بین نسبت C/U و غلظت اورانیم با مشخصات فیزیکی پودرهای آمونیم اورانیل کربنات

غلظت اورانیم در دوغاب آمونیم دی اورانات (g/L)	C/U	سطح ویژه (g/m ²)	اندازه‌ی متوسط ذرات (میکرون)
۹۷	۸	۰٫۱۳	۱۲۱
۱۱۷	*۹	۱٫۶۹	۷۹
۹۷	۹	۲٫۵۴	۳۰
۹۷	۹٫۵	۰٫۰۸	۲۴

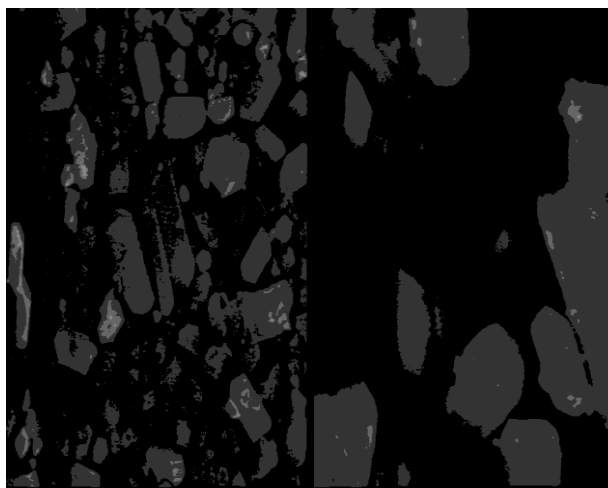
° دما ۵۵

میانگین اندازه‌ی ذرات ۴ نمونه از پودر آمونیم اورانیل کربنات تولید شده از ۳ نمونه دوغاب آمونیم دی اورانات با غلظت اورانیم حدود ۱۰۰ گرم بر لیتر و یک نمونه با ۱۱۷ گرم اورانیم بر لیتر در محدوده‌ی ۲۴ تا ۱۲۱ میکرون به دست آمد که با افزایش اندازه‌ی ذرات، مساحت سطح ویژه‌ی آن‌ها نیز در گستره‌ی ۰٫۰۸ تا ۲٫۵۴ گرم بر متر مربع محاسبه شد.

نتایج تجزیه‌ی پراش پرتو ایکس در شکل ۴، ساختار بلور پودر آمونیم اورانیل کربنات تولید شده از دوغاب آمونیم دی اورانات را نشان می‌دهد. این الگو نشان می‌دهد که فقط قله‌های مشخصه‌ی ترکیب آمونیم اورانیل کربنات و نه آمونیم دی اورانات به خوبی ظاهر شده‌اند و با ترکیب استوکیومتری آمونیم اورانیل تری کربنات با کد استاندارد JCPDFILE و شماره‌ی ۰۱-۰۷۳-۰۰۴۰ مطابقت دارد. در شکل ۴ قله‌های مربوط به آمونیم دی اورانات مشاهده نمی‌شود، ترکیب $(NH_4)_3(UO_2)_2F_5$ (AUF)، که می‌تواند میزان فلوئور را به عنوان ناخالصی همراه ترکیب آمونیم اورانیل کربنات در حد قابل توجه افزایش دهد، نیز تشکیل نشده است.

برای روشن شدن اثر این عامل‌ها از جمله غلظت اورانیم در پس‌آب، در آزمایش‌های ۵ به بعد برای شستشوی رسوب‌های آمونیم اورانیل کربنات از محلول آمونیم کربنات ۶/۵٪ (به جای ۲۵٪ توصیه شده در مقاله‌ها) استفاده شد. در نتیجه، به علت افزایش انحلال‌پذیری رسوب‌های آمونیم اورانیل کربنات، غلظت اورانیم در پس‌آب به اندازه‌ی کافی افزایش یافت و شرایط بازیابی اورانیم از پس‌آب آمونیم اورانیل کربنات به شکل آمونیم دی اورانات با بازده‌ای در حد ۹۹/۹۹٪ فراهم شد (نتایج آزمایش‌های ۷ تا ۱۳). اما در مورد تأثیر بازده تولید آمونیم اورانیل کربنات باید گفت که وقتی آمونیم اورانیل کربنات کم - بازده تولید شده باشد، این به تنهایی شرایط بازیابی اورانیم از پس‌آب آمونیم اورانیل کربنات را فراهم می‌نماید. اما در مرحله‌ای که بازده تشکیل آمونیم اورانیل کربنات بالا باشد، فرایند شستشوی رسوب (با آمونیم کربنات ۶/۵٪) می‌تواند عامل مؤثر در بازیابی کامل اورانیم از پس‌آب محسوب شود.

با توجه به تأثیر نسبت C/U کم‌تر از ۸ بر کاهش بازده تشکیل آمونیم اورانیل کربنات، ارتباط بازیابی کامل اورانیم از پس‌آب آمونیم اورانیل کربنات در آزمایش‌های ۴، ۵ و ۶ با نسبت C/U کم‌تر از ۸ توجیه‌پذیر است و این نیز به تنهایی قادر است شرایط تشکیل آمونیم دی اورانات با بازده‌ای در حد ۹۹/۹۸٪ از پس‌آب آمونیم اورانیل کربنات را فراهم نماید. البته اگر نسبت $C/U < 8$ برای کاهش بازده تشکیل آمونیم اورانیل کربنات یک نکته‌ی منفی به حساب می‌آید، در عوض برای بازیابی کامل اورانیم از پس‌آب آمونیم اورانیل کربنات یک نکته‌ی مثبت تلقی می‌شود. البته کاهش غلظت یون‌های فلئوئور در پس‌آب آمونیم اورانیل کربنات است که در بازیابی اورانیم از پس‌آب آمونیم اورانیل کربنات نقش اساسی دارد. نتایج یک کار جداگانه نشان داد که در نسبت مولی فلئوئور به اورانیم ۶، تشکیل آمونیم دی اورانات با این بازده میسر نخواهد بود (نتایج گزارش نشده‌اند).



شکل ۵. ریزنگارهای (SEM) بلورهای پودر آمونیم اورانیل کربنات تولید شده از دوغاب آمونیم دی اورانات.

۶.۳ بازیابی اورانیم به شکل آمونیم دی اورانات از پس‌آب آمونیم اورانیل کربنات

در این مقاله برای بازیابی اورانیم از پس‌آب‌های کربناته‌ی تولید شده در عملیات تولید آزمایشگاهی رسوب‌های آمونیم اورانیل کربنات، روش رسوب‌گیری آمونیم دی اورانات پیشنهاد شد. این پس‌آب‌ها بعد از شستشوی رسوب‌های آمونیم اورانیل کربنات حاوی ۰/۰۰۸ الی ۰/۰۱۹ مول بر لیتر اورانیم، ۲/۱ مول بر لیتر یون کربنات، ۲/۸۸ مول بر لیتر یون آمونیم و ۰/۰۲ مول بر لیتر یون فلئوئور بود. با توجه به این که یون کربنات در تولید رسوب آمونیم دی اورانات مزاحمت ایجاد می‌کند، این پس‌آب‌ها ابتدا با استفاده از محلول نیتریک اسید غلیظ، عاری از یون کربنات شدند، سپس عملیات بازیابی انجام شد. نتایج آزمایش‌های ۱ تا ۴ در جدول ۵ نشان‌دهنده‌ی آن است که هر چه بازدهی تشکیل آمونیم اورانیل کربنات بالا باشد، بازیابی اورانیم به شکل آمونیم دی اورانات از پس‌آب آمونیم اورانیل کربنات پایین خواهد بود و بالعکس.

نتایج به دست آمده برای بازیابی اورانیم از پس‌آب‌های آمونیم اورانیل کربنات علاوه بر این که به غلظت اورانیم در پس‌آب وابسته است به علل و عامل‌های دیگری که بازده تولید آمونیم اورانیل کربنات را تحت تأثیر قرار می‌دهند نیز ارتباط دارد (جدول ۵).

**جدول ۵.** رابطه بین بازده رسوب گیری آمونیم اورانیل کربنات و بازده رسوب گیری اورانیم به شکل آمونیم دی اورانات از پس آب آمونیم اورانیل کربنات

شماره آزمایش	درصد محلول آمونیم کربنات برای شستشوی رسوب های آمونیم اورانیل کربنات	C/U	بازده (%) تشکیل آمونیم اورانیل کربنات از دوغاب آمونیم دی اورانات	بازده (%) تشکیل آمونیم اورانیل کربنات از پس آب آمونیم اورانیل کربنات	غلظت (mg/L) اورانیم در پس آب آمونیم اورانیل کربنات برای مرحله بازیابی	غلظت (mg/L) یون های فلئور در پس آب آمونیم اورانیل کربنات برای مرحله بازیابی
۱	۲۵	۹،۵	۹۵،۲	۹۴،۲	۷۸۵	۴۱۴
۲	۲۵	۹،۵	۹۱،۲	۹۹،۹۸	۲۹۵۰	۶۳۰
۳	۲۵	۹،۵	۹۶	۹۴،۴	۱۴۰۵	۳۲۰
۴	۲۵	۱۴،۵	۹۲	۹۹،۹۷	۱۹۳۲	۳۶۵
۵	۱۰	۷،۵	۸۷،۶	۹۹،۹۸	۴۳۹۴	۶۱۰
۶	۲،۵	۷	۸۲،۹	۹۹،۹۸	۹۱۰۹	-
۷	۶،۵	۸	۸۹،۲	۹۷،۵۶	۴۱۷۳	-
۸	۶،۵	۹،۵	۹۷،۳	۹۹،۰۱	۳۸۰۳	۶۳۰
۹	۶،۵	۸	۹۶،۷	۹۹،۹۹	۳۱۴۹	۵۶۹
۱۰	۶،۵	۹	۹۶،۶	۹۹،۹۸	۳۹۲۰	۱۶۰۳
۱۱	۶،۵	۹	۹۵	۹۹،۹۸	۳۹۴۰	۶۸۴
۱۲	۶،۵	۹	۹۵،۶	۹۹،۹۷	۴۵۰۰	۱۳۴۰
۱۳	آب یون زدایی شده	۸	۹۶،۵	۹۹،۹۵	۱۲۰۷۸	۲۷۰

جدول ۶. رابطه ی بین میزان اتلاف اورانیم و مقدار اولیه ی آن

شماره ی آزمایش	مقدار اولیه ی اورانیم (g)	میزان اتلاف اورانیم طی سه فرایند (mg)	اتلاف اورانیم طی سه فرایند (%)
۱	۵	۳	۰،۰۶
۲	۵	۳،۶	۰،۰۷
۳	۵	۱،۲۶	۰،۰۲۵
۴	۲۰	۱،۹	۰،۰۰۹
۵	۲۰	۲	۰،۰۱
۶	۴۲،۵	۳	۰،۰۰۷
۷	۷۵	۵،۹	۰،۰۰۸

البته میزان اتلاف اورانیم عمدتاً بستگی به حجم پس آب های تولید شده و غلظت اورانیم آن ها دارد. نتایج نشان دادند که بیشترین میزان اتلاف اورانیم به اولین محلول سرریز شده از رسوب آمونیم دی اورانات در جدول ۱ و مرحله ی بازیابی اورانیم از پس آب آمونیم اورانیل کربنات مربوط است.

۴. نتیجه گیری

تلفیق دو روش رسوب گیری آمونیم اورانیل کربنات و آمونیم دی اورانات برای تهیه ی پودر آمونیم اورانیل کربنات از محلول اورانیل فلورید فکر خوبی است. خصوصیات پودر آمونیم اورانیل کربنات حاصل، نتیجه ی تعامل ویژه ی هر یک از این دو روش است. در این روش ترکیب استوکیومتری آمونیم اورانیل کربنات با بازده مطلوب (۹۷٪) تهیه شد. علاوه بر بازده بالای تولید آمونیم اورانیل کربنات، اورانیم موجود در پس آب این رسوب

از نتایج به دست آمده چنین استنباط می شود که نسبت C/U برابر ۹، غلظت حدود ۱۰۰ گرم بر لیتر اورانیم در دوغاب آمونیم دی اورانات، شستشوی رسوب های آمونیم اورانیل کربنات با محلول آمونیم کربنات ۶،۵٪ و کاهش غلظت یون های فلئور به حد مطلوب بهترین شرایطی هستند که امکان تشکیل رسوب آمونیم اورانیل کربنات با بازده بالا و امکان بازیابی کامل اورانیم به شکل آمونیم دی اورانات از پس آب آمونیم اورانیل کربنات را فراهم می نمایند. در یک بررسی انجام شده در غلظت بالای از فلئور و غلظت پایینی از اورانیم، جداسازی کامل اورانیم به وسیله ی رزین آنیونی گزارش شده است [۲۴].

چون دوغاب آمونیم دی اورانات به دست آمده از مرحله ی بازیابی اورانیم از پس آب آمونیم اورانیل کربنات حاوی ۱۳ الی ۲۰ گرم بر لیتر اورانیم با مقدار پایین فلئور است، لذا می تواند به مرحله ی تولید آمونیم اورانیل کربنات در چرخه ی بعدی انتقال یابد. محلول دور ریز نهایی حاصل از مرحله ی تولید آمونیم دی اورانات دوم (مرحله بازیابی) حاوی مقدار متناهی آمونیم نترات و مقدار جزئی فلئور و کم تر از ۰،۳ppm اورانیم است. نتایج ۷ آزمایش در جدول ۶ نشان می دهد هر اندازه مقدار اولیه ی اورانیم در فرایند تهیه ی آمونیم اورانیل کربنات بیشتر باشد، در اغلب موارد میزان اتلاف آن به همان اندازه کم تر خواهد بود. میانگین میزان اتلاف اورانیم در ۱۳ آزمایش انجام شده بر روی ۵ تا ۷۵ گرم اورانیم کم تر از ۰،۱٪ محاسبه شد که نتیجه ی بسیار مطلوبی است.



مرجع‌ها

1. Ken-Sen CHOU, Ding-Yi LIN, Precipitation Studies of Ammonium Uranyl Carbonate from UO_2F_2 Solutions, J. Nuc. Materials, 165 (1989) 171-178.
2. P. Govindan, Development of a reconversion method for uranyl nitrate to oxide in the reconversion step of reprocessing of irradiated fuel, J. Radioanal. & Nuc. Chem. 254, 1 (2002) 65-70.
3. Birsan Ayaz A. Nezihi Bilge, The possible usage of ex-ADU uranium dioxide fuel pellets with low-temperature sintering, J. Nuc. Materials, 280 (2000) 45-50.
4. H. Tel, M. Eral, Investigation of production condition and powder properties of AUC, J. Nuc. Materials, 231 (1996) 165-169.
5. A. Marajofsky, L. Perez, J. Celora, On the dependence of characteristics of powders on the AUC process parameters, J. Nuc. Materials, 178 (1991) 143-151.
6. Yi-Ming Pan, The conversion of UO_2 via ammonium uranyl carbonate: study of precipitation chemical variation and powder properties, J. Nuc. Materials, 99 (1981) 135-147.
7. F. Ploger, H. Vietzke, German Patent DT 1 592477 (1967).
8. H. Pirk, H. Vietzke, K. Wagner, German Patent DT 1 592478 (1920).
9. H. Pirk, H.F. Ploger, H. Vietzke, German Patent DT 1 920301 (1920).
10. H. Vietzke, F. Ploger, K. WEGNER, H. Pirk, Canadian Patent DT 933 336 (1965).
11. T. Joon Kim, Crystallization characteristics of ammonium uranyl carbonate (AUC) in ammonium carbonate solutions journal of nuclear materials, 209 (1994) 306-314.
12. Maw-Chwain Lee, Chung-Jyi Wu, J. Nuc. Materials, 185 (1991) 190-200.
13. E. Brandau, W. Dorr, In: Proc. Meeting Europ. Nuclear Society, Hamburg, Germany, May 6-11 (1979) 149.

نیز با بازده بسیار بالا (۹۹/۹۸٪) به شیوه‌ای آسان‌تر از دیگر روش‌ها بازیابی شد. این بازده‌ها در تمام موارد رسوب‌گیری اورانیم به ویژه در مورد تشکیل آمونیم دی اورانات از پس‌آب آمونیم اورانیل کربنات مرهون حذف مزاحمت فلوتور از اورانیم است. البته میزان بازده این رسوب‌ها تنها به این عامل وابسته نیست، بلکه حجم دوغاب آمونیم دی اورانات و شرایط رسوب‌گیری آن و همچنین غلظت اورانیم آن‌ها و نسبت C/U در تولید آمونیم اورانیل کربنات عامل‌های مؤثر دیگری هستند. نتایج آزمایشگاهی نشان داد که میزان اتلاف اورانیم در یک چرخه‌ی کامل تولید آمونیم اورانیل کربنات تابع وزن اورانیم اولیه است. یعنی، این که هر چه مقدار اورانیم اولیه بالا باشد، اتلاف اورانیم، نسبت به وزن‌های کم‌تر ناچیزتر خواهد بود. چنانچه رسوب آمونیم اورانیل کربنات با محلول آمونیم کربنات ۲۵٪ شسته شود بازده رسوب‌گیری اورانیم از پس‌آب آمونیم اورانیل کربنات به شکل آمونیم دی اورانات پایین خواهد بود. بنابراین بازیابی اورانیم از پس‌آب آمونیم اورانیل کربنات با بازده رسوب‌گیری آمونیم اورانیل کربنات نسبت معکوس دارد. اورانیم بازیابی شده به شکل آمونیم دی اورانات در حالت دوغاب قابل انتقال به چرخه‌ی تولید آمونیم اورانیل کربنات است و چون برخلاف روش‌های دیگر نیاز به عملیات عبور از صافی، شستشو و تکلیس ندارد یک مزیت محسوب می‌شود.

تشکر و قدردانی

از سرکار خانم ناز رنگریزی که زحمت تایپ و تنظیم مقاله را به عهده داشته‌اند سپاسگزاری می‌شود.

پی‌نوشت

۱. Sintering



- 14.H. Assman, M. Becker, In: Proc. Meeting Europ. Nuclear Society, Hamburg, Germany, May 6-11 (1979) 147.
- 15.Z.X. Song, Defluorination behavior and mechanism of uranium dioxide, J. of radioanalytical, and Nuclear chemistry, 237, Nos 1-2 (1998) 81-84.
- 16.H.G. Bachmann, Preparation Characterization and X-RAY powder diffraction data of compound $UO_4 \cdot 2NH_3 \cdot 2HF$, J. Inorg. Nucl. Chem, 36 (1974) 795-798.
- 17.H.Z. Dokuzoguz, Lynchburg, Va, Process for uranium separation and preparation of $UO_4 \cdot 2NH_3 \cdot 2HF$. US patent 3, 980, 757 (1976).
- 18.Richard A. Hermens, Jack B. Kendall, Jerry A. Partridge, US Patent No. 4668482 (1987).
- 19.J. A. Seneda, J. Alloy & Compounds, 323-324 (2001) 838-841.
- 20.Wu Uanhe, Lilifang, Chen Yunji, Nucl. Ener. Eng .9 (1988).
- 21.A. Deptul, Y. Rebandel, W. Drozda, Nukleonika. 20 (1975).
- 22.Gmelin Handbook of inorganic chemistry uranium dioxide « UO_2 » preparation and crystallography properties, 1, (1984) 55.
- 23.Gmelin handbuch der anorganischenchemie uranium ergänzungsband A technologie verwendung, (1981) 99-100.
- 24.J.A. Senda, Recovery of Uranium from the filtrate of ammonium diuranate prepared from uranium hexafluoride, Journal of Alloys and Compounds, 323-324 (2001) 838-841.