การศึกษาเปรียบเทียบการสกัดธอเรียมจากทรายโมนาไซท์ของประเทศไทย โดยการใช้กรดและด่าง

นางสาวสมบูรณ์ แก้วปิ่นทอง

005217

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิทยาศาสตรมหาบัณฑิต
แผนกวิชาเคมี
บัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
พ.ศ. 2517

I 17716202

A COMPARATIVE STUDY ON THE USE OF ACID AND ALKALINE METHODS IN THE EXTRACTION OF THORIUM FROM THAI MONAZITE SAND

Miss Somboon Kheawpintong

A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements

for the Degree of Master of Science

Department of Chemistry

Graduate School

Chulalongkorn University

1974

Accepted by Graduate School, Chulalongkorn University in partial fulfillment of the requirements for Degree of Master of Science.

B. Tamthai

.....

Dean of the Graduate School

Thesis Committee ..... Chairman

.....

.....

Thesis Supervisor : Dr. Kantikar Chayawatanangkur

หัวข้อวิทยานิพนธ์ การศึกษาเปรียบเทียบการสกัดซอเรียมจากทรายโมนาไซท์ของประเทศไทยโดยการใช้กรดและด่าง

ชื่อ นางสาวสมบูรณ์ แก้วปิ่นทอง

แผนกวิชา เคมี

ปีการศึกษา 2516

บทคัดย่อ

การทดลองนี้มีจุดประสงค์เพื่อศึกษาวิธีสกัดซอเรียมจากทรายโมนาไซท์ของประเทศไทย โดยการใช้กรดซัลฟุริคและโซเดียมไฮดรอกไซด์ และทำให้ซอเรียมที่ได้บริสุทธิ์โดยการสกัดด้วยตัวทำละลาย พร้อมทั้งดูผลของขนาดของเม็ดทราย อุณหภูมิ อัตราส่วนของรีเอเจนต์ต่อทราย และความเข้มข้นของรีเอเจนต์ที่มีต่อการสกัดซอเรียมทั้ง 2 วิธี

จากการทดลองพบว่ากรดซัลฟุริคที่มีความเข้มข้น 96.5 เปอร์เซนต์ 3 ส่วนต่อทราย 1 ส่วนโดยน้ำหนัก สกัดซอเรียมจากทรายได้เกือบหมดที่อุณหภูมิ 210 องศาเซนติเกรด ส่วนโซเดียมไฮดรอกไซด์นั้นต้องทำที่อุณหภูมิ 140 องศาเซนติเกรดและใช้โซเดียมไฮดรอกไซด์ที่มีความเข้มข้น 40 เปอร์เซนต์ 2 ส่วนต่อทราย1ส่วนโดยน้ำหนัก ปฏิกิริยาของกรดต่อทรายจะเร็วและสกัดซอเรียมได้มากกว่าปฏิกิริยาของด่าง แต่มีข้อเสียตรงที่อนุมูลซัลเฟตและฟอสเฟตซึ่งทำให้ยุ่งยากในขั้นที่ทำให้บริสุทธิ์ด้วยตัวทำละลายของ 40 เปอร์เซนต์ TBP ในน้ำมันก๊าดและไม่มีไตรโซเดียมฟอสเฟตเป็นผลพลอยได้ซึ่งต่างจากกรณีที่ใช้ด่าง

เมื่อทำการสกัดโดยใช้ตัวทำละลาย 40 เปอร์เซนต์ของ TBP ในน้ำมันก๊าด 4 ครั้งและแยกเอาสิ่งเจือปนออกจากซอเรียมด้วยกรดไนตริกที่มีความเข้มข้น 0.02 สมมูลย์ 4 ครั้ง พบว่าจะได้ซอเรียมออกไซด์ออกมา 100 เปอร์เซนต์เมื่อใช้กรดและ 60 เปอร์เซนต์เมื่อใช้ด่าง ซึ่งซอเรียมออกไซด์ที่ได้มีความบริสุทธิ์มากกว่า 90 เปอร์เซนต์

Thesis Title: A Comparative Study on the Use of Acid and Alkaline Methods in the Extraction of Thorium from Thai Monazite Sand.

Name: Miss Somboon Kheawpintong

Department: Chemistry

Academic Year: 1973

ABSTRACT

The effects of particle size, temperature of reaction, reagent-to-sand ratio and reagent concentration on the completeness of digestion of their monazite with sulphuric acid and sodium hydroxide were studied. At 210°C, a fairly complete digestion was obtained by dissolving 200 mesh monazite for 2 hours in 96.5 per cent sulphuric with an acid-to-sand ratio of 3 : 1. The digestion of monazite at 140°C in 40 per cent sodium hydroxide with an alkaline-to-sand ratio of 2 : 1 for a period of 4 hours gave a 80 per cent digestion yield. The acid process was more rapid and gave a higher yield of dissolution, whereas the feed solution from the soda digestion was more suitable for the later purification of thorium by solvent extraction since sulphate and phosphate ions were eliminated. Trisodium phosphate could only be obtained from the alkaline process as a by product. Thorium was purified by solvent extraction using 40 per cent TBP in kerosene as extractants. High purity thorium (90 per cent) was obtained after 4 extractions and 4 scrubbing stages. An overall

(digestion and purification) 100 per cent thorium extraction yield was obtained from the acid processing whereas a 60 per cent yield was obtained from the alkaline processing.

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

ACKNOWLEDGEMENTS

This work was supported by the Office of the Atomic Energy for Peace and was performed during April 1973 to April 1974. The author wishes to express her sincere gratitude to Dr. Kantikar Chayawatanangkur, whose guidance and patient assistance during this work were very invaluable. She would also like to express her thanks for the experimental assistance of Miss Kanchana Sarinyawachana and other friends whose names are not mentioned here. Finally, she is indebted to the University Development Commission for financial support.

CONTENTS

PAGE

ABSTRACT (in Thai) IV

ABSTRACT V

ACKNOWLEDGEMENTS VII

LIST OF TABLES X

LIST OF FIGURES XI

CHAPTER

I INTRODUCTION 1

II EXTRACTION OF THORIUM FROM MONAZITE 4

2.1. Acid method 4

2.2. Alkaline method 6

2.3. Purification of thorium concentrates 8

III EXPERIMENTS 13

3.1. Samples and their preparations 13

3.2. Alkaline treatment of monazite 14

3.3. Acid treatment of monazite 17

3.4. Solvent extraction of thorium nitrate solution 18

3.5. Quantitative analysis of thorium 23

3.6. Radiation measurements 28

3.7. Chemical reagents 28

IV RESULTS AND DISCUSSIONS 31

4.1. Alkaline digestion of monazite 31

4.1.1. Effect of temperature and effect of alkaline-to-sand weight ratio on the decomposition of monazite 31
4.1.2. Effect of digestion time on the decomposition of monazite 37
4.1.3. Effect of sodium hydroxide concentration on the decomposition of monazite 39
4.1.4. Effect of particle size on the decomposition of monazite 43
4.2. Acid digestion of monazite 47
4.2.1. Effect of temperature and effect of acid-to-sand ratio on the decomposition of monazite 47
4.2.2. Effect of acid concentration on the decomposition of monazite 51
4.2.3. Effect of time of reaction on the decomposition of monazite 52
4.3. Chemical yield and purity of the extracted thorium 56
4.4. Monazite processing for thorium in scale of 50 g per batch 59
V CONCLUSIONS 65
REFERENCE 66
BIOGRAPHY 69

LIST OF TABLES

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

TABLE		PAGE
3-1	Compositions(%) of the samples of monazite used as analysed by X-ray fluorescence.....	14
3-2	Operating conditions for the purification of thorium by solvent extraction.....	22
3-3	Half-life, photopeaks and counting schedule of nuclides of rare earth elements used in NAA determination.....	27
4-1	Effect of temperature and effect of alkaline-to-sand weight ratio on the amount of sand decomposed.....	32
4-2	Effect of digestion time on the decomposition of monazite	38
4-3	Effect of sodium hydroxide concentration on the decomposition of monazite.....	39
4-4	Effect of particle size on the decomposition of monazite	45
4-5	Effect of temperature and effect of acid-to-sand ratio on the decomposition of monazite.....	49
4-6	Effect of acid concentration on the decomposition of monazite.....	51
4-7	Effect of time of reaction on the decomposition of monazite.....	54
4-8	Optimum conditions for the decomposition of monazite	57
4-9	Chemical yield and purity of the extracted thorium from each processing step.....	58
4-10	Chemical yield and purity of thorium from each processing step.....	60

LIST OF FIGURES

FIGURE		PAGE
2-1	Simplified schematic diagram of sulphuric acid digestion of monazite sand and recovery of thorium	11
2-2	Simplified schematic diagram of caustic soda digestion of monazite sand and recovery of thorium	12
3-1	Schematical diagram of the apparatus	16
3-2	Effect of acid concentration on distribution coefficients of thorium in a TBP-Xylene solvent extraction system	19
3-3	Effect of equilibrium time on per cent thorium extracted in a TBP-Xylene system and a TBP-Kerosene system	21
3-4	Gamma spectrum of monazite NBL 7A by neutron activation analysis	25
3-5	Half-life of thorium-233	26
3-6	Calibration curve of Si (Li) detector	29
4-1	Effect of temperature and effect of sodium hydroxide to sand weight ratio on the decomposition of monazite	35
4-2	Effect of feed ratio at various temperature on the decomposition of monazite	36
4-3	Effect of time of reaction upon the decomposition of monazite	40
4-4	Effect of the concentration of sodium hydroxide on the decomposition of monazite	42

FIGURE PAGE

4-5 Dühring lines for the NaOH-H_2O system..... 44

4-6 Effect of particle size of monazite on the completeness of the reaction with sodium hydroxide..... 46

4-7 Effect of temperature and acid-to-sand weight ratio in the digestion of monazite..... 50

4-8 Effect of acid concentration on the decomposition of monazite..... 53

4-9 Effect of digestion time on the decomposition of monazite..... 55

4-10 Gamma spectra of monazite, crude thorium nitrate solution, extracted thorium oxide and standard thorium oxide by neutron activation analysis.... 63

4-11 Gamma spectra of standard thorium oxide and extracted thorium oxide by neutron activation analysis..... 64