



⑩ A **Terinzagelegging** ⑪ **8004221**

Nederland

⑱ NL

---

- ⑤④ **Werkwijze voor het winnen van een uraniumbevattend concentraat en gezuiverd fosforzuur, alsmede uraniumbevattend concentraat en gezuiverd fosforzuur verkregen volgens deze werkwijze.**
- ⑤① Int.Cl.<sup>3</sup>: C01B 25/46, C01G 43/00, C22B 60/02.
- ⑦① Aanvrager: Stamicarbon B.V. te Geleen.
- ⑦④ Gem.: Dr. H.B. van Leeuwen c.s.  
Octroobureau DSM  
Postbus 9  
6160 MA Geleen.

- 
- ②① Aanvraag Nr. 8004221.
- ②② Ingediend 23 juli 1980.
- ③② --
- ③③ --
- ③① --
- ⑥② --

- 
- ④③ Ter inzage gelegd 16 februari 1982.

De aan dit blad gehechte stukken zijn een afdruk van de oorspronkelijk ingediende beschrijving met conclusie(s) en eventuele tekening(en).

---

Uitvinders: Cornelis A.M. WETERINGS te Stein  
Johannes A. JANSSEN te Schinveld

1

WERKWIJZE VOOR HET WINNEN VAN EEN URANIUMBEVATTEND CONCENTRAAT EN  
GEZUIVERD FOSFORZUUR, ALSMEDE URANIUMBEVATTEND CONCENTRAAT EN GEZUIVERD  
FOSFORZUUR VERKREGEN VOLGENS DEZE WERKWIJZE

De uitvinding heeft betrekking op een werkwijze voor het winnen van een uraniumbevattend concentraat en gezuiverd fosforzuur uit natproces fosforzuur door dit te behandelen met een anorganische fluorverbinding en een alifatisch keton in tegenwoordigheid van een  
5 reductiemiddel, het hierbij gevormde uraniumbevattende precipitaat af te scheiden en uit het resterende mengsel van fosforzuur en alifatisch keton het fosforzuur af te scheiden.

Een dergelijke werkwijze is beschreven in de niet-voorgepubliceerde Nederlandse octrooiaanvraag 7.900.581. Bij de daarin  
10 beschreven werkwijze wordt aan het natproces fosforzuur eerst een anorganische fluorverbinding en vervolgens een organisch verdeelmiddel, bijvoorbeeld een alifatisch keton, toegevoegd. Hoewel hierbij een goed uraanprecipitatie-  
rendement verkregen wordt, heeft deze werkwijze het nadeel, dat voor het verkrijgen van een uraanprecipitatie-  
15 90 % nog vrij grote hoeveelheden keton benodigd zijn, bijvoorbeeld 150-450 gew.%, berekend ten opzichte van de gewichtshoeveelheid  $P_2O_5$  van het fosforzuur. Het keton dient, bijvoorbeeld door destilleren of rectificeren uit het fosforzuur teruggewonnen te worden, wat niet alleen een  
20 relatief grote hoeveelheid energie en grote apparatuur vereist, maar ook gepaard gaat met verliezen aan keton.

De uitvinding voorziet nu in een werkwijze, waarbij het mogelijk is het in natproces fosforzuur aanwezige uranium met een zeer hoog rendement af te scheiden en waarbij met een aanzienlijk geringere  
hoeveelheid alifatisch keton volstaan kan worden.

25 Dit wordt volgens de uitvinding hierdoor bereikt, dat men aan het natproces fosforzuur eerst het alifatisch keton en vervolgens de anorganische fluorverbinding toevoegt.

Als anorganische fluorverbinding kunnen diverse fluoriden en silicofluoriden worden toegepast. Bij voorkeur wordt ammoniumfluoride  
30 toegepast. Als alifatisch keton kan in de eerste plaats aceton worden toegepast, doch ook methylethylketon kan worden gebruikt.

8004221

De hoeveelheid fluorverbinding en alifatisch keton kunnen binnen ruime grenzen variëren. Voor het verkrijgen van een uraniumprecipitatie-rendement van meer dan 90 % past men bij een hoeveelheid van 1,5-5 gew.% fluorverbinding, berekend als fluor, 200-20 gew.% keton, berekend ten opzichte van de gewichtshoeveelheid  $P_2O_5$  van het fosforzuur, toe. Bij voorkeur wordt 2-4 gew.% fluorverbinding, berekend als fluor, en 100-25 gew.% keton, berekend ten opzichte van de gewichtshoeveelheid  $P_2O_5$  van het fosforzuur, toegepast.

Als reductiemiddel voor het reduceren van het uraan van de hexavalente tot de tetravalente staat kunnen onder meer poedervormig metallisch ijzer, zink of aluminium worden toegepast. Eventueel kan ook een electrolytische reductie worden toegepast.

De werkwijze volgens de uitvinding kan in principe op ieder soort natproces fosforzuur worden toegepast. Zowel het zogenaamde groen natproces fosforzuur (verkregen uit gecalcineerd ruwfosfaat) als het zogenaamde zwart natproces fosforzuur (dat een hoeveelheid organische verontreinigingen bevat) kunnen zonder verdere voorbehandeling met behulp van de werkwijze worden behandeld. Eveneens kan de werkwijze zonder meer worden toegepast zowel op verdund fosforzuur (het zogenaamd filterzuur) als op geconcentreerd fosforzuur, en zelfs op zogenaamde superfosforzuren.

Gebleden is, dat wanneer uitgegaan wordt van een fosforzuur met een laag sulfaatgehalte, met een nog geringere hoeveelheid anorganische fluorverbinding en/of keton kan worden volstaan voor het verkrijgen van een bepaald uraanprecipitatie-rendement. Bij voorkeur stelt men dan ook het sulfaatgehalte van het te behandelen natproces fosforzuur in op een waarde kleiner dan 0,6 gew.%, berekend ten opzichte van de hoeveelheid  $P_2O_5$  van het fosforzuur, door een verbinding toe te voegen, die met sulfaationen onder vorming van een in fosforzuur onoplosbare verbinding reageert, en het gevormde sulfaatbevattende neerslag af te scheiden. Voorbeelden van dergelijke verbindingen zijn oxiden en zouten, zoals carbonaten, sulfiden, nitraten, fosfaten en chloriden, van tweewaardige metalen, zoals calcium, magnesium of barium. Bij toepassing van een calciumverbinding is het van voordeel de precipitatie in tegenwoordigheid van een deel van het alifatisch keton uit te voeren, zoals is beschreven in de niet-voorgepubliceerde Nederlandse octrooiaanvraag 7.900.579.

Het bij de werkwijze gevormde uraniumbevattende precipitaat bevat tevens het grootste deel van het in het fosforzuur aanwezige

8004221

yttrium en zeldzame aardmetalen, zoals lanthanum, cerium, neodymium en ytterbium, alsmede een aanzienlijk deel van het vanadium. Dit precipitaat kan van het fosforzuur-keton mengsel worden gescheiden door bijvoorbeeld filtreren of centrifugeren. Het afgescheiden uraniumbevattende concentraat  
 5 kan desgewenst op diverse op zichzelf bekende wijzen opgewerkt worden.

Het na het afscheiden van het uraniumbevattende precipitaat resulterende mengsel van fosforzuur en keton en water kan op diverse wijzen worden gescheiden, bijvoorbeeld door destilleren, decanteren of extraheren, waarna het afgescheiden keton, eventueel na een verdere  
 10 behandeling, zoals rectificeren, weer naar de precipitatie stap gerecirculeerd kan worden.

Het resterende fosforzuur kan voor diverse doeleinden worden toegepast, bijvoorbeeld als grondstof voor de bereiding van hoogwaardige kunstmestprodukten, technische fosfaten en veevoederfosfaat.

15 De uitvinding wordt nader toegelicht in de volgende voorbeelden.

#### Voorbeeld 1

In een bekersglas werd 100 gram natproces fosforzuur, met de in onderstaande tabel aangegeven samenstelling geleid. Vervolgens werd 100  
 20 mg fijnverdeeld ijzerpoeder toegevoegd en het mengsel gedurende 30 minuten geroerd. Aan de vloeistof werd onder roeren 52 gram aceton toegevoegd en vervolgens 3,12 gram vast ammoniumfluoride. Na circa 10 minuten werd het mengsel gecentrifugeerd, de heldere bovenlaag afgescheiden van het neerslag en dit laatste gewassen met aceton.

25 Verkregen werd 5,2 gram vast produkt, dat 3340 ppm uranium bevatte. De heldere bovenlaag werd gemengd met de aceton bevattende wasvloeistof verkregen bij het uitwassen van het neerslag en onder vacuum gedestilleerd, waarbij als topprodukt aceton en als bodemprodukt een fosforzuuroplossing verkregen werd, waarvan de samenstelling eveneens in  
 30 onderstaande tabel is weergegeven.

	oorspronkelijk fosforzuur	produktfosforzuur
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	52 gew.%	53 gew.%
V	255 ppm	171 ppm
Y	46 ppm	2 ppm
35 La*	80 ppm	2 ppm
U	180 ppm	5 ppm

8004221

Onder La\* worden hier verstaan de zeldzame aardmetalen.

Uit deze analyseresultaten blijkt duidelijk, dat het grootste deel van het oorspronkelijk aanwezige uranium, yttrium en zeldzame aarden, alsmede een aanzienlijk deel van het vanadium uit het fosforzuur zijn neergeslagen. Het uraanprecipitatierendement bedroeg 97 %.

#### Voorbeeld 2 (vergelijkingsvoorbeeld)

De proef van voorbeeld 1 werd herhaald met dien verstande, dat eerst het ammoniumfluoride en vervolgens het aceton werd toegevoegd. Na centrifugeren werd 6,1 gram vast produkt verkregen met een uraniumgehalte van 1920 ppm. Het uraanprecipitatierendement bedroeg 65 %.

#### Voorbeeld 3

De proef van voorbeeld 1 werd herhaald met dien verstande, dat 78 gram aceton werd toegevoegd. Verkregen werd 6,7 gram vast produkt met een uraangehalte van 2890 ppm. Het uraanprecipitatierendement bedroeg 98 %.

#### Voorbeeld 4 (Vergelijkingsvoorbeeld)

De proef van voorbeeld 3 werd herhaald met dien verstande, dat eerst het ammoniumfluoride en vervolgens het aceton werd toegevoegd. Verkregen werd 7,35 gram vast produkt met een uraangehalte van 2350 ppm. Het uraanprecipitatierendement bedroeg 96 %.

#### Voorbeeld 5

De proef van voorbeeld 1 werd herhaald met dien verstande, dat 26 gram aceton werd toegevoegd. Verkregen werd 5,0 gram vast produkt met een uraangehalte van 3460 ppm. Het uraanprecipitatierendement bedroeg 96 %.

#### Voorbeeld 6 (Vergelijkingsvoorbeeld)

De proef van voorbeeld 5 werd herhaald met dien verstande, dat eerst het ammoniumfluoride en vervolgens het aceton werd toegevoegd. Het uraanprecipitatierendement bedroeg minder dan 40 %.

8004221

Voorbeeld 7

De proef van voorbeeld 1 werd herhaald met dien verstande, dat 78 gram aceton en 2,08 gram ammoniumfluoride werd toegevoegd.

Verkregen werd 5,25 gram vast produkt met een uraangehalte van 2950 ppm.

5 Het uraanprecipitatierendement bedroeg meer dan 86 %.

Voorbeeld 8 (Vergelijkingsvoorbeeld)

De proef van voorbeeld 7 werd herhaald met dien verstande, dat eerst het ammoniumfluoride en vervolgens het aceton werd toegevoegd.

Verkregen werd 5,2 gram neerslag met een uraangehalte van 2450 ppm.

10 Het uraanprecipitatierendement bedroeg 71 %.

Voorbeeld 9

In een bekerglas werd 100 gram natproces fosforzuur met de in de linker kolom van bovenstaande tabel aangegeven samenstelling en een sulfaatgehalte van 2,6 gew.% geleid. Vervolgens werd onder roeren 4,4 gram vast  $\text{BaCO}_3$  toegevoegd. Na een bezinktijd van 1 uur werd het gevormde neerslag afgefiltreerd.

Het filtraat werd op dezelfde wijze als in voorbeeld 1 behandeld met ijzerpoeder (100 mg), aceton (26 gram) en vervolgens ammoniumfluoride (2,6 gram). Na centrifugeren en wassen werd 3,1 gram vast produkt met een uraangehalte van 5570 ppm verkregen. Het uraanprecipitatierendement bedroeg 96 %.

## CONCLUSIES

1. Werkwijze voor het winnen van een uraniumbevattend concentraat en gezuiverd fosforzuur uit natproces fosforzuur door dit te behandelen met een anorganische fluorverbinding en een alifatisch keton in tegenwoordigheid van een reductiemiddel, het hierbij gevormde uraniumbevattende precipitaat af te scheiden en uit het resterende mengsel van fosforzuur en alifatisch keton het fosforzuur af te scheiden, met het kenmerk, dat men aan het natproces fosforzuur eerst het alifatisch keton en vervolgens de anorganische fluorverbinding toevoegt.
2. Werkwijze volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat men bij toepassing van 1,5-5 gew.% fluorverbinding, berekend als fluor, 200-20 gew.% alifatisch keton, berekend ten opzichte van de gewichtshoeveelheid  $P_2O_5$  van het fosforzuur, toepast.
3. Werkwijze volgens conclusie 1 of 2, met het kenmerk, dat men bij toepassing van 2-4 gew.% fluorverbinding, berekend als fluor, 100-25 gew.% alifatisch keton, berekend ten opzichte van de gewichtshoeveelheid  $P_2O_5$  van het fosforzuur, toepast.
4. Werkwijze volgens een der conclusies 1-3, met het kenmerk, dat men het sulfaatgehalte van het te behandelen natproces fosforzuur instelt op een waarde kleiner dan 0,6 gew.%, berekend ten opzichte van de gewichtshoeveelheid  $P_2O_5$  van het fosforzuur, door een verbinding toe te voegen, die met sulfaationen onder vorming van een in fosforzuur onoplosbare verbinding reageert, en het gevormde sulfaatbevattende neerslag af te scheiden.
5. Werkwijze volgens conclusie 1, in hoofdzaak zoals beschreven en in de voorbeelden nader toegelicht.
6. Uraniumbevattend concentraat verkregen onder toepassing van de werkwijze volgens een der conclusies 1-5.
7. Gezuiverd natproces fosforzuur verkregen onder toepassing van de werkwijze volgens een der conclusies 1-5.

JJM/WR

800 42 21