

NGHIÊN CỨU HÒA TÁCH QUẶNG URANI CHƯA PHONG HÓA BẰNG PHƯƠNG PHÁP TRỘN Ủ VỚI QUY MÔ 30 KG/MẺ

Đến tòa soạn 15 - 3 - 2016

Thân Văn Liên

Viện Công nghệ xạ hiếm

SUMMARY

STUDY ON TREATMENT OF NON-WEATHERED URANIUM ORE BY MIXING - CURING METHOD WITH CAPACITY OF 30 KG/BATCH

Uranium ore in Pa Lua area is sandstone with different levels of weathering. In this study, a technique of mixing and curing with strong acids was used and followed by washing to recover uranium from non-weathering ores. The effects of main leaching conditions on uranium leaching efficiency were investigated. The experiment results showed that suitable parameters of leaching process have been the following: uranium ores size $\leq 1\text{cm}$, sulfuric acid addition 31,5kg/ton of ore, adding oxidant 4 kg MnO_2 /ton of ore, curing duration of 2 days, washing flow rates of 5ml/min. The recovery was 83,33% that would be comparable with those obtained in the field scale heap leaching tests in the world. Uranium products at technical grade were thus obtained with high quality.

Keywords: *urani, uranium ore processing, mixing, curing duration*

1. MỞ ĐẦU

Thực hiện kế hoạch ứng dụng năng lượng nguyên tử vì mục đích hoà bình, từ năm 2010 Tổng cục Địa chất và khoáng sản đã tiến hành Đề án thăm dò đánh giá quặng urani vùng Thành Mỹ tỉnh Quảng Nam với mục đích giai đoạn 1 đạt 5500 tấn U_3O_8 cấp 122. Nhiệm

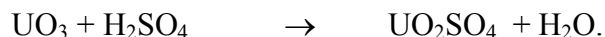
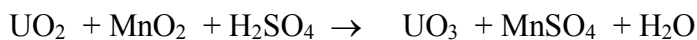
vụ: “Xử lý mẫu công nghệ thu nhận urani”, là một phần công việc của Đề án này mà nội dung chủ yếu của nó là phải đưa ra được công nghệ thích hợp để xử lý quặng thu nhận urani kỹ thuật với hiệu suất cao và giá thành hạ [2]. Trong công nghệ xử lý quặng urani để thu nhận urani kỹ thuật, hòa tách là một

khâu chủ yếu. Để xử lý quặng urani có thể sử dụng các phương pháp hòa tách như hòa tách khuấy trộn, hòa tách trộn ủ, hòa tách đông,... Việc lựa chọn phương pháp nào là tùy thuộc vào nhiều yếu tố, trong đó có yếu tố về đặc điểm của loại quặng hòa tách. Trong khuôn khổ của bài báo này xin trình bày kết quả hòa tách quặng urani chưa phong hóa bằng phương pháp trộn ủ với quy mô phòng thí nghiệm 30 kg/mẻ.

2. CƠ SỞ LÝ THUYẾT

Hoà tách là một trong những công đoạn quan trọng nhất trong quy trình công nghệ xử lý quặng urani. Mục tiêu chủ yếu của quá trình hoà tách urani là tách chọn lọc và triệt để urani ra khỏi quặng. Hiện nay thường áp dụng 5 kỹ thuật hòa tách [1,3-5] :

- 1) Hoà tách khuấy trộn (axit và kiềm)
- 2) Hoà tách dưới áp lực (axit và kiềm)
- 3) Hoà tách trộn ủ
- 4) Hoà tách đông (axit)
- 5) Hoà tách tại chỗ (chủ yếu là dùng tác nhân kiềm).



3. THỰC NGHIỆM

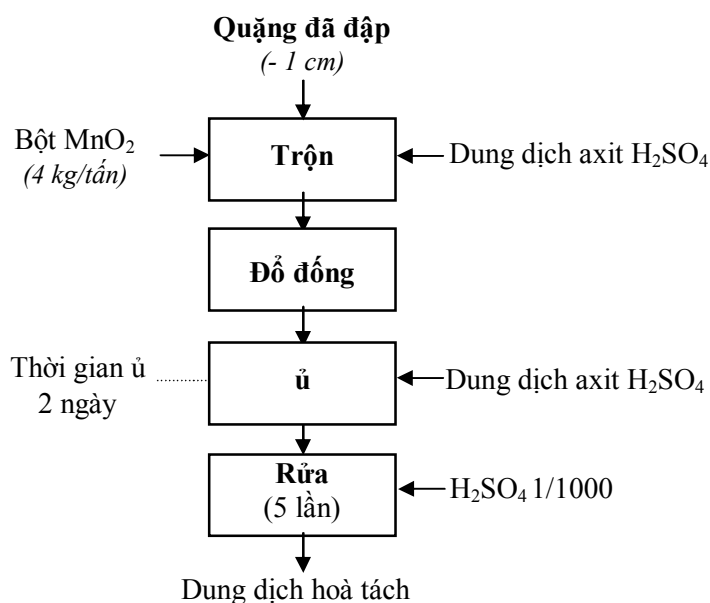
Quặng, hóa chất và các thiết bị sử dụng gồm:

- Quặng urani chưa phong hóa có hàm lượng urani 0,04%
- Hóa chất: H_2SO_4 , MnO_2 công nghiệp và nước sinh hoạt
- Cột hòa tách bằng nhựa có đường kính 0,3 m và chiều cao 6 mét.

Có nhiều yếu tố ảnh hưởng tới việc lựa chọn hệ hoà tách trong đó có các yếu tố như quy mô, cấu trúc địa chất mỏ và hàm lượng urani, đặc điểm thành phần và cấu trúc khoáng vật quặng,... Theo kinh nghiệm của thế giới thì đối với quặng urani giàu sẽ sử dụng phương pháp hòa tách khuấy trộn còn đối với quặng urani nghèo thường sử dụng phương pháp hòa tách tĩnh (hòa tách đông và hòa tách ngấm - hòa tách tại chỗ). Đối với loại quặng khó hòa tách như quặng urani chưa phong hóa có thể sử dụng phương pháp hòa tách trộn ủ [1]. Trong kỹ thuật này, người ta trộn ủ quặng urani với axit mạnh sau đó rửa quặng rồi ủ để thu nhận dung dịch hòa tách. Ưu điểm của phương pháp này là cho hiệu suất hòa tách cao và hạn chế của nó là dung dịch sau hòa tách chứa nhiều tạp chất và điều này sẽ gây khó khăn cho các công đoạn xử lý tiếp theo để thu nhận urani kỹ thuật. Quá trình hòa tách urani xảy ra theo các phản ứng như sau [3] :

- Máy trộn: 200 kg/mẻ
- Bơm định lượng: max 1 lit/phút
- Thùng nhựa các loại

Quy trình công nghệ hòa tách quặng theo phương pháp trộn ủ được chỉ ra ở hình 1[2] dưới đây:



Mô tả thực nghiệm: Quặng urani được gia công tới cỡ hạt ≤ 1 cm, lấy 30 kg quặng trộn với một lượng axit H_2SO_4 và chất oxy hóa (MnO_2) cho trước, ủ quặng đã được gia công trong những khoảng thời gian nhất định sau đó cho một lượng nước đã axit hóa chảy qua khối quặng thu dung dịch và lấy mẫu đem phân tích để xác định hàm lượng urani. Hiệu suất hòa tách được tính theo công thức: $H = (m_1/m_0) \times 100\%$

Trong đó: m_0 là khối lượng urani có trong quặng hòa tách, m_1 là khối lượng urani thu được trong dung dịch hòa tách.

Urani được xác định bằng phương pháp ICP-MS tại phòng thí nghiệm VILAS 524 thuộc Trung tâm phân tích, Viện Công nghệ xạ hiếm.

4. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

4.1. Xác định cấp hạt của quá trình gia công quặng

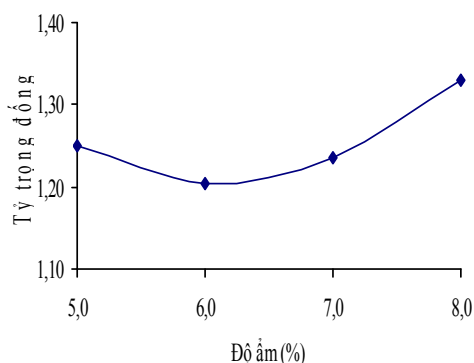
Đối tượng nghiên cứu, thử nghiệm trong nghiên cứu này là quặng thuộc nhóm có hàm lượng urani 0,04% U_3O_8 . Kết quả nghiên cứu cho thấy các mẫu quặng khu vực Pà Lừa trước đây, quặng được đập đến cỡ hạt -1 cm. Áp dụng quy trình gia công này cho đối tượng quặng nghiên cứu, tỷ lệ khối lượng các cấp hạt sau khi đập được đưa ra trong bảng 1.

Bảng 1. Tỷ lệ khối lượng các cấp hạt quặng nguyên liệu sau khi đập

TT	Cấp hạt (mm)	Tỷ lệ khối lượng (%)
1	+10	3,1
2	10 - 5	22,3
3	5-2	25,4
4	2-1	6,3
5	1-0,6	11,6
6	-0,6	31,3

4.2. Xác định sơ bộ độ ẩm trong quá trình trộn quặng

Mục tiêu của việc xác định độ ẩm khi trộn là để sau khi trộn khối quặng càng xốp càng tốt nhằm giảm thiểu sự nén ép quặng trong quá trình tạo đồng tiếp theo. Vì vậy, cần khảo sát sự biến đổi của tỷ trọng đồng của lớp quặng theo độ ẩm của lớp quặng. Giá trị độ ẩm thích hợp chính là giá trị mà ứng với nó lớp quặng có tỷ trọng đồng nhỏ nhất.



Hình 1. Ảnh hưởng của độ ẩm tới tỷ trọng đồng của lớp quặng sau khi trộn (mẫu I)

Việc xác định được tiến hành như sau: cân chính xác 1 lượng quặng (khoảng 3 - 4 kg) có thành phần cấp hạt như trong bảng 1 và lượng nước (biết thể tích) chính xác (tương ứng với độ ẩm 5; 6; 7 và 8%). Tưới dần nước vào quặng và trộn đều sao cho khối quặng thấm đều nước và thành một khối xốp, nạp vào cột có vạch định mức rồi xác định thể tích chính xác của lớp quặng. Xác định tỷ trọng đồng của các mẫu (bằng tỷ số khối lượng/thể tích) rồi vẽ đồ thị biểu diễn mối quan hệ giữa tỷ trọng đồng và độ ẩm. Độ ẩm thích hợp là độ ẩm khi tỷ trọng đồng đạt cực tiểu (có độ xốp lớn nhất).

4.3. Xác định sơ bộ mức độ giữ nước của đồng quặng trong quá trình ủ

Theo quy trình trộn ủ dự kiến, sau khi quặng được trộn với dung dịch axit và tạo đồng (ở quy mô thí nghiệm là nạp vào cột), phần còn lại của dung dịch axit sẽ được tưới vào lớp quặng. Để dung dịch axit được giữ lại hoàn toàn trong lớp quặng, cần xác định sơ bộ được độ ẩm của đồng quặng này.

Cách tiến hành như sau: trước hết, trộn quặng với nước như phần 3.2 và nạp vào cột rồi khoá van ở đáy. Sau đó bơm nước với lưu lượng tương đối nhỏ (5 ml/phút khi sử dụng cột có đường kính 76 mm) cho tới khi ngập lớp quặng và xác định thể tích bơm vào. Để yên khoảng 1 giờ. Sau đó mở van xả kiệt nước. Đong thể tích ra khỏi cột. Mức độ giữ nước được tính bằng công thức:

$$100 \cdot (V_{\text{nước đầu}} - V_{\text{nước ra}}) / KL_{\text{quặng}}$$

trong đó $V_{\text{nước đầu}}$ là tổng thể tích nước sử dụng khi trộn và bơm vào, $V_{\text{nước ra}}$ là tổng thể tích nước ra khỏi cột, $KL_{\text{quặng}}$ là khối lượng quặng.

Sau khi thí nghiệm với 6 kg quặng, tổng lượng nước cấp vào (cả 2 giai đoạn) là 1,52 lít và thể tích nước chảy ra khỏi cột là 0,68 lít. Thay vào công thức trên, đã tính được độ giữ nước của lớp quặng là 14%. Từ số liệu này, có thể tính được tổng thể tích dung dịch axit cần thiết cho cả giai đoạn trộn và bơm sau khi nạp quặng vào cột.

4.4. Khảo sát ảnh hưởng của thời gian ủ tới hiệu suất hoà tách urani

Trong quá trình trộn ủ quặng với axit mạnh hầu như urani đã được hoà tan hoàn toàn. Trong giai đoạn rửa tiếp theo việc sử dụng nước (được axit hoá) chỉ để rửa urani ra khỏi bã quặng để thu dung dịch hoà tách. Chính vì vậy, thời gian ủ có ý nghĩa quan trọng đến hiệu suất thu hồi urani. Thời gian ủ thích hợp

Bảng 2. Ảnh hưởng của thời gian ủ tới hiệu suất hoà tách urani

Thời gian ủ	1 ngày	2 ngày	3 ngày
Hiệu suất thu hồi U (%)	75,37	77,65	71,96
Hàm lượng U trong bã (%U)	0,0091	0,0088	0,0097

Các số liệu ở bảng 2 cho thấy tăng thời gian ủ từ 1 lên 2 ngày, hiệu suất hoà tách urani tăng lên, hiệu suất hoà tách urani đạt cực đại khi ủ quặng với axit trong thời gian 2 ngày (đạt 77,65%) và hàm lượng urani trong bã đạt cực tiểu - 0,0088%. Nếu tăng thời gian ủ nữa thì hiệu suất hòa tách có xu thế giảm đi đáng kể, điều này là do phần urani đã hòa tan kết tủa trở lại bởi nhiều tạp chất khác cũng hòa tan làm giảm độ tan của các chất tan. Vì thế trong các nghiên cứu tiếp theo cho mẫu quặng này cần ủ trong 2 ngày.

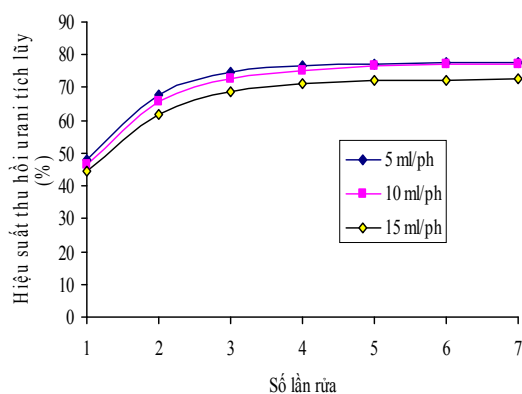
4.5. Khảo sát ảnh hưởng của tốc độ tưới khi rửa quặng (sau khi trộn, ủ) tới hiệu suất thu hồi urani

Sau giai đoạn trộn và ủ với axit, khối quặng sẽ được rửa bằng dung dịch axit loãng (1/1000 theo thể tích) theo phương pháp gián đoạn để thu dung dịch hòa tách. Sự phân bố dung dịch trong lớp quặng phụ thuộc nhiều vào

phụ thuộc vào nhiều yếu tố như thành phần khoáng vật, hoá học, nồng độ axit và cỡ cấp hạt,... Do đó cần thiết phải có sự kiểm tra thực tế đối với mỗi đối tượng quặng và thành phần cấp hạt. Khảo sát các thời gian ủ là 1, 2 và 3 ngày và kết quả được chỉ ra ở bảng 2.

tốc độ tưới dung dịch trong quá trình rửa.

Đã tiến hành khảo sát ảnh hưởng của tốc độ tưới ở 3 giá trị khác nhau 5, 10 và 15 ml/phút (tính cho cột có đường kính 110 mm).



Hình 2. Hiệu suất thu hồi urani theo số lần rửa và tốc độ tưới và số lần rửa (mẫu quặng cấp I)

Kết quả thử nghiệm được đưa ra trong hình 2. Về cơ bản, sau lần rửa đầu tiên, gần 50% urani đã được tách ra khỏi bã quặng và sau khoảng 3 lần rửa nữa thì gần như để tách hết. Tuy nhiên, trên đồ thị cho thấy, với cấp hạt quặng đã thử nghiệm, với tốc độ tưới là 5 ml/ph thì

đường cong rửa sẽ gọn hơn (hiệu suất thu hồi nhanh đạt cực đại - 77,62%), với tốc độ 10 ml/ph thì cũng chỉ đạt được giá trị này. Riêng với tốc độ 15 ml/ph thì đường cong rửa luôn nằm dưới cùng và hiệu suất thu hồi urani không thể đạt được giá trị cực đại. Vì vậy, để đạt hiệu quả cao nhất, nên tiến hành rửa với tốc độ 5 ml/ph (cho cột có đường kính 110 mm) và tiến hành 6-7 lần rửa.

4.6. Khảo sát ảnh hưởng của axit sunfuric tới hiệu suất thu hồi urani

Lượng axit phụ thuộc nhiều vào thành phần khoáng vật, hóa học và độ hạt của quặng. Chỉ tiêu này là thông số rất quan trọng trong việc đánh giá giá trị kinh tế của quặng và sẽ áp dụng thử nghiệm cho các quy mô lớn hơn, vì vậy việc khảo sát để xác định chi phí axit thích hợp cần thực hiện với mẫu quặng đại diện cho từng cấp quặng. Theo khảo sát sơ bộ bằng phương pháp hòa tách khuấy trộn (phương pháp truyền thống với mẫu có độ hạt quặng -100 μ m) với mẫu quặng đại diện loại quặng này thì chi phí axit là 35 kg/tấn (do phần lớn là loại đá tươi). Kỹ thuật hòa tách trộn ủ sử

dụng quặng thô hơn nên có thể coi đây là giá trị chi phí axit cực đại, vì vậy trong phần này sẽ chỉ khảo sát ảnh hưởng của chi phí axit có các giá trị thấp hơn giá trị cực đại này. Thực tế đã khảo sát với các giá trị: 28, 29,8, 31,5 và 33,3 kg/tấn quặng (tương ứng với 80, 85, 90 và 95% giá trị chi phí axit cực đại).

Kết quả thí nghiệm được đưa ra trong bảng 3. Số liệu cho thấy, so với kết quả thu được ở các mục trên, hiệu suất hòa tách urani ở đây cao hơn một chút. Điều này có thể do trong thí nghiệm này, lượng quặng sử dụng lớn hơn (30 kg) nên trong quá trình trộn và ủ, nhiệt sinh ra do pha loãng axit và phản ứng được duy trì lâu hơn nên đã làm tăng tốc độ hòa tan urani. Ngoài ra số liệu cũng chỉ ra rằng, chi phí axit đã ảnh hưởng tới hiệu suất thu hồi urani và hiệu suất đạt cực đại (83,33%) tại giá trị chi phí axit là 31,5 kg/tấn quặng. Với điều kiện này, pH dung dịch hòa tách thu được đạt 1,33 tương đối thuận lợi cho việc trung hòa lên giá trị 1,6 phục vụ công đoạn trao đổi ion.

Bảng 3. Bảng tổng hợp kết quả khảo sát ảnh hưởng của chi phí axit

Chi phí axit (kg/T)	28	29,8	31,5	33,3
Hiệu suất thu hồi U (%)	70,12	79,77	83,33	83,35
pH dung dịch	1,54	1,43	1,33	1,22

5. KẾT LUẬN

Đã tiến hành nghiên cứu xử lý quặng urani chưa phong hóa với quy mô 30kg/mẻ bằng phương pháp trộn ủ. Từ

kết quả thực nghiệm đã lựa chọn được các thông số phù hợp cho quá trình hòa tách bằng phương pháp trộn ủ, đó là kích thước hạt quặng phải được gia

công đến cỡ hạt $\leq 1\text{cm}$, độ ẩm thích hợp cho quá trình trộn là khoảng 5%, thời gian ủ 2 ngày, tốc độ rửa 5 ml/ph, chi phí axit là 31,5 kg/tấn quặng. Với các thông số đã lựa chọn này, hiệu suất hòa tách đạt 83,33%.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] Cao Hùng Thái (2003), “*Nghiên cứu xử lý quặng cát kết khu vực Pà Lừa với quy mô 2 tấn quặng/mẻ để thu sản phẩm urani kỹ thuật*”, Báo cáo tổng kết đề tài KHCN cấp Bộ năm 2001-2002 mã số BO/01/03/02.
- [2] Thân Văn Liên (2013), Báo cáo Tổng kết đề tài nghiên cứu khoa học cấp Nhà nước: “*Xử lý mẫu công*

nghệ thu nhận urani”, Bộ Tài nguyên và Môi trường, Hà Nội.

- [3] Durupt Nicolas (2007), *Heap leaching of low grade uranium ores at Somair*, Technical Meeting on Uranium Small-Scale and Special mining and Processing Technologies, Vienna, 19-22 June.
- [4] IAEA, *Development of Projects for Production of Uranium Concentrates*, Vienna, 1987.
- [5] IAEA (1980), *Significance of Mineralogy in the Development of Flowsheets for Processing Uranium Ores*, Technical reports series No. 196, p. 74-82; 90-100, Vienna.

TỔNG HỢP PHỨC CHẤT RUTHENI(II) (tiếp theo trang 119)

- [8] Hartshorn, R.M. and J.K. Barton (1992), *J. Am. Chem. Soc.*, 114, p. 5919.
- [9] Satish, S.B., et al. (2010), *Inorganic Chemistry*, 49, p. 4843-4853.
- [10] Satish, S.B., et al. (2011), *Chem. Commun.*, 47, p. 11068–11070.
- [11] Satish, S.B., et al. (2012), *Chem. Eur. J.*, 18, p. 16383 – 16392.

- [12] Y. He, C. Zhong, Y. Zhou, H. Zhang (2009), *J. Chem. Sci.*, 121, p. 407-412.
- [13] J. A. A. W. Elemans, A. E. Rowan, R. J. M. Nolte (2002), *J. Am. Chem. Soc.*, 124, p. 1532-1540.
- [14] J. G. Collins, A. D. Sleeman, J. R. Aldrich-Wright, I. Greguric, T. W. Hambley (1998), *Inorg. Chem.*, 37, p. 3133-3141.