

# NGHIÊN CỨU CÔNG NGHỆ XỬ LÝ QUẶNG URANI KHU VỰC PÀ LỪA

## STUDY ON TECHNOLOGY FOR PROCESSING URANIUM ORES IN PALUA AREA

LÊ QUANG THÁI, NGUYỄN HỒNG HÀ, PHẠM THỊ THỦY NGÂN, TRẦN THẾ ĐỊNH,  
TRẦN VĂN SƠN, LÊ THỊ HỒNG HÀ

*Viện Công nghệ xạ hiếm, 48 Láng Hạ, Hà Nội*

*leqthai62@yahoo.com*

### Tóm tắt

Khu vực Pà Lừa (huyện Nam Giang, tỉnh Quảng Nam) có khu mỏ cát kết chứa urani. Các khoáng vật chứa urani gồm nasturan và nasturan ngậm nước, coffinit, uranophan, soddyit, uranocircit-metauranocircit, autunit, metaautunit và metaautunit ngậm nước, phosphuranylit và bassetit. Có thể xếp các dị thường xạ vào 3 lớp đá chứa quặng. Trong các lớp đá này có các thân quặng và trong các thân quặng có các thấu kính quặng. Hàm lượng  $U_3O_8$  trung bình trong các thân quặng là từ 0,031 - 0,095%, cá biệt có một số mẫu có hàm lượng urani khá lớn. Đây là một trong những khu mỏ có triển vọng nhất của Việt Nam hiện nay. Trong đề án "Điều tra, đánh giá, thăm dò tài nguyên urani" với mục tiêu 8.000 tấn  $U_3O_8$  trữ lượng cấp 122, khu vực này là nơi được thăm dò đầu tiên.

Một số công trình nghiên cứu về công nghệ (gồm tất cả các công đoạn gia công, hòa tách quặng, làm giàu và làm sạch dung dịch, kết tủa sản phẩm) để thu nhận sản phẩm urani kỹ thuật từ các mẫu quặng cát kết khu vực Pà Lừa với các cấp hàm lượng urani khác nhau đã được thực hiện. Đặc biệt, do hòa tách quặng là công đoạn có tính quyết định tới hiệu suất thu hồi urani, hiệu quả kinh tế và tính phức tạp nên công đoạn này đã được nghiên cứu thử nghiệm với nhiều kỹ thuật khác nhau như hòa tách trộn ù với axit mạnh, hòa tách thấm và hòa tách thấm với quặng đã được agglomerat hóa trước với axit mạnh.

Các công đoạn chính cũng đã được thử nghiệm ở quy mô sau phòng thí nghiệm. Đã thử nghiệm xử lý dung dịch trên hệ trao đổi ion liên tục có năng suất xử lý 20 lit dung dịch/giờ, kết tủa sản phẩm trên thiết bị có dung tích 200 lít. Đặc biệt với công đoạn hòa tách trộn ù, thấm đã thử nghiệm với các quy mô 500 kg quặng/cột (cao 5 m) 3 tấn quặng/bể và 20 tấn quặng/bể và thu được kết quả rất tốt.

Trên cơ sở kết quả của các công trình nghiên cứu, công nghệ xử lý phù hợp nhất cho quặng cát kết khu vực Pà Lừa bao gồm các công đoạn chính là đập quặng, hòa tách thấm với quặng đã agglomerat hóa trước với axit sulfuric mạnh và nước, xử lý dung dịch hòa tách bằng phương pháp trao đổi ion với nhựa anion bazo mạnh và kết tủa sản phẩm urani kỹ thuật. Với quy trình này, hiệu suất thu hồi urani có thể đạt trên 80% và thu được sản phẩm urani có chất lượng đạt tiêu chuẩn ASTM của sản phẩm thương mại. Quy trình này cũng phù hợp với xu thế chung trên thế giới đối với loại quặng nghèo như ở khu vực Pà Lừa. Ngoài ra, để hoàn thiện quy trình, nhóm tác giả đã đưa ra đề xuất là nên áp dụng hòa tách nhiều bậc ngược chiều, tức là dung dịch hòa tách được tuần hoàn liên tục để tận dụng axit dư (khá nhiều), giảm chi phí tác nhân trung hòa axit dư trong dung dịch trước khi xử lý bằng trao đổi ion và nâng cao nồng độ urani trong dung dịch hòa tách.

Từ khóa: *urani, công nghệ xử lý quặng urani, quặng cát kết*

### Abstract

There is an area of sandstone deposit containing uranium in Pa Lua (Nam Giang district of Quang Nam province). Minerals containing uranium consist of nasturane and hydrated-nasturane, coffinite, uranophane, sodyite, uranocircit-metauranocircite, autunite, metaautunite and hydrated-metaautunite, phosphuranylite and bassetite. It is possible to

classify the radioactive abnormalities into 3 layers of ore-containing rocks. In those rock layers, there are ore bodies and in the deposit bodies there are ore lenses. Average  $U_3O_8$  content in the ore bodies are from 0,031 - 0,095%, especially there are several samples of ores containing relatively high content of uranium. This is one of the most potential deposit areas of Vietnam at present. In the project entitled "Survey, assessment and exploration of uranium reserve" with a target of 8,000 tones of  $U_3O_8$  with a reserve at 122 level this area was explored the first one in the Nong Son basin.

Some studies on technologies (including all stages such as ore separation, leaching, concentrating and purifying leached solution, precipitation of products) to obtain technical uranium product from sandstone samples from Pa Lua area with different uranium contents have been conducted. Especially, since ore leaching is an important stage affecting uranium recovery efficiency, economic effectiveness and complexity, this stage has been studied and tried with different techniques such as mixing and curing with strong acid, percolation leaching and percolation with ores agglomerated with strong acid before.

Main stages also were tried at the scale of post-laboratory. Leached solution was treated in the continuous ion exchange system with a capacity of 20 l per hour, yellowcake were precipitated in the equipment with 200 l capacity. Especially, for leach stage trials with a scale of 500 kg of ores/column (height of 5 m), 3 tones of ores/box and 20 tones of ores/box were conducted and relatively good results have been obtained.

Based on results of research works, the most appropriate processing technology for the sandstone ores in Pa Lua area includes main stages of ore crushing, percolation with ores agglomerated with strong acids and water before, concentration and purification of the leached solutions by ion exchange with strong base resins and precipitation of yellowcake. With this flowsheet, uranium recovery efficiency may reach over 80% and yellowcake may be obtained with a quality that meets ASTM standards for commercial products. This flowsheet is also appropriate to the common trend in the world for poor ores like the one in Pa Lua area. Besides, to improve the procedure, authors have proposed that multi-stage countercurrent leaching should be used, meaning that leaching solutions are circulated to maximize the use of a relatively large amount of residual acid, reduce the cost of neutralizing agent for free acid in the solution before treatment by ion exchange and increase uranium concentration in the leaching solution.

Key words: *uranium, technology for processing uranium ores, uranium, sandstone*

## 1. MỞ ĐẦU

Khu vực Pà Lừa (huyện Nam Giang, tỉnh Quảng Nam) có khu mỏ cát kết chứa urani. Hàm lượng  $U_3O_8$  trung bình trong các thân quặng là từ 0,031 - 0,095% [1, 2]. Theo số liệu công bố năm 2002, đã xác định được trữ lượng urani cấp  $C_2$  là 1.160 tấn và dự báo tài nguyên cấp  $P_1$  đạt 4.000 tấn và khẳng định đây là khu mỏ có triển vọng nhất ở Việt Nam tại thời điểm lúc bấy giờ và cần được đầu tư thăm dò [3]. Trong "*Kế hoạch tổng thể thực hiện Chiến lược ứng dụng năng lượng nguyên tử vì mục đích hoà bình đến năm 2020*" của Chính phủ có một đề án liên quan tới công nghệ xử lý quặng urani để thu nhận urani kỹ thuật là Đề án 15 "*Điều tra, đánh giá, thăm dò tài nguyên urani*" nhằm mục tiêu hoàn thành về cơ bản việc điều tra, đánh giá, thăm dò trữ lượng và hiệu quả kinh tế xã hội của việc khai thác và chế biến tài nguyên làm cơ sở cho hoạch định quốc gia về khai thác thương mại và với nội dung *điều tra để phát hiện các loại hình mỏ quặng urani có giá trị kinh tế, tập trung thăm dò urani vùng bồn trũng Nông Sơn (Quảng Nam) với mục tiêu 8.000 tấn  $U_3O_8$  trữ lượng cấp 122, thăm dò các diện tích khác đã được đánh giá để gia tăng thêm trữ lượng*. Để thực hiện đề án này, Liên đoàn Địa chất xạ hiếm đã triển khai thực hiện tại khu vực Pà Lừa - Pà Rồng.

Với nguồn quặng tiềm năng và được quan tâm như vậy, việc nghiên cứu công nghệ xử lý để thu nhận sản phẩm urani kỹ thuật là rất cần thiết và hợp lý nhằm góp phần cho việc đánh giá giá trị tài nguyên urani của Việt Nam và xây dựng được quy trình công nghệ xử lý có hiệu quả nhất. Vì vậy, gần như song song với công tác điều tra, thăm dò, việc nghiên cứu công

nghe xử lý quặng cát kết khu vực Pà Lừa đã được thực hiện tại Viện Công nghệ xạ hiếm thông qua các đề tài nghiên cứu khoa học và công nghệ các cấp như nghiên cứu thử nghiệm công nghệ hòa tách thấm, hòa tách trộn ù với axit mạnh, hòa tách thấm quặng đã được agglomerat hóa trước với axit mạnh, sử dụng phương pháp trao đổi ion với nhựa anion bazo mạnh và nghiên cứu kết tủa sản phẩm bằng tác nhân amoni hydroxit, magie oxyt. Đã xây dựng được một số quy trình công nghệ để xử lý loại quặng này. Một số công nghệ đã được thử nghiệm ở quy mô thí nghiệm lớn như hòa tách 500 kg quặng/mẻ (cột), 3 tấn quặng/bể và 20 tấn quặng/bể. Trên cơ sở các kết quả nghiên cứu này, nhóm tác giả sẽ đưa ra một công nghệ phù hợp nhất cho quặng cát kết khu vực Pà Lừa.

## **2. NỘI DUNG**

### **2.1. Đối tượng và phương pháp**

#### **2.1.1. Đối tượng nghiên cứu**

Quặng cát kết khu vực Pà Lừa, nằm ở hai thôn Pà Lừa và Pà Tồi thuộc xã Tabhinh, huyện Nam Giang, tỉnh Quảng Nam. Đây là khu vực có địa hình núi cao, bị phân cắt mạnh. Khu vực này tồn tại 3 lớp đá chứa quặng. Trong các lớp đá chứa quặng có các thân quặng và trong các thân quặng có các thấu kính quặng phân bố phức tạp, Chiều dày thay đổi từ 1 đến 3,5 m, rất không đồng đều, không ổn định [1, 2].

Thành phần khoáng vật quặng cát kết khu vực Pà Lừa gồm nhóm khoáng vật tạo đá chủ (thạch anh, fenspat, mica và khác khoáng vật phụ), nhóm khoáng vật chứa urani gồm khoáng nguyên sinh và khoáng thứ sinh. Khoáng nguyên sinh gồm nasturani, nasturani ngâm nước, coffinit. Khoáng thứ sinh gồm: phổ biến nhất là uranoxiakit-metauranoxiakit, gummite, nasturan, autunite (với canxi), saleeite (mangan), torbernite (với đồng); và urani silicat ngâm nước như coffinite, uranophane (với canxi) và sklodowskite (với magiê). Các khoáng nguyên sinh thường có màu đen, xám và nâu, còn các khoáng thứ sinh thường có dãy màu vàng sáng, da cam, xanh lá cây và sự kết hợp hay xen kẽ các màu này [1, 2, 3]. Ngoài ra còn có các khoáng vật đi kèm (khoáng vật sulfua, cacbonat, oxyt, hydroxyt).

Hàm lượng  $U_3O_8$  trung bình trong các thân quặng là từ 0,031 - 0,095%, biến đổi rất không đồng đều. Hàm lượng cacbonat khoáng 2 - 6% có thể làm tăng chi phí axit khi xử lý bằng phương pháp axit. Sắt là tạp chất đáng quan tâm nhất và có sự phân bố trong quặng tương tự urani. Trong quặng không chứa lượng đáng kể các nguyên tố quý, hiếm có giá trị cần đặt vấn đề thu hồi, vanadi và molybden chưa nằm trong vùng hàm lượng cần quan tâm, các tạp chất khác (Cu, Ni, Cr, Mn, Ti,...) không đáng kể và ít ảnh hưởng đến chất lượng sản phẩm [3].

#### **2.1.2. Phương pháp nghiên cứu**

Việc tổng quan tài liệu các kết quả nghiên cứu và sản xuất trên thế giới là bước thực hiện đầu tiên để nhận biết các công nghệ, kỹ thuật mới và những kinh nghiệm thực tiễn trên thế giới. Sau đó đánh giá kết quả nghiên cứu trong nước đã đạt được gì, còn thiếu hoặc còn thiếu sót gì để từ đó đề xuất vấn đề cần nghiên cứu và cách thức thực hiện phù hợp với đối tượng quặng trong nước. Việc nghiên cứu công nghệ được thực hiện bằng cách tiến hành thử nghiệm trên đối tượng quặng thực. Các phương pháp phân tích hiện đại và phù hợp đã được lựa chọn để phân tích urani và các tạp chất khác trong mẫu rắn và lỏng.

## **2.2. Kết quả**

### **2.2.1. Gia công quặng**

Trong các thử nghiệm hòa tách đồng, quặng dạng cục được đập xuống cỡ hạt -10 mm vì nếu giảm về cỡ hạt -5 mm (cỡ hạt để đạt hiệu suất hòa tan urani cao nhất - theo kết quả nghiên cứu trước đây [5]) thì có tỷ lệ phân mịn rất lớn, đặc biệt loại hình bán phong hóa lên tới trên

20%) làm cản trở quá trình thấm của dung dịch qua lớp quặng. Kích thước hạt này tương tự với kích thước hạt mà một số cơ sở trên thế giới đã sử dụng (-13 mm).

Với cỡ cục quặng khai thác (lấy mẫu) khoảng dưới 200 mm, quy trình đập quặng được lựa chọn thông qua 2 bước đập để hạn chế hiện tượng quá đập: quặng có kích thước lớn hơn 100 mm sẽ qua máy đập thứ nhất. Sau khi qua sàng, phần quặng lớn hơn 100 mm lại được đưa vào máy thứ nhất cùng với quặng đầu. Số quặng có kích thước -100 mm được đưa vào máy đập thứ hai. Phần quặng thô sẽ được quay lại máy để đạt 100% qua sàng 10 mm.

### 2.2.2. Hòa tách quặng

Do quặng cát kết khu vực Pà Lừa có hàm lượng urani thấp nên công đoạn hòa tách quặng đã được nghiên cứu khá kỹ lưỡng và chủ yếu sử dụng các kỹ thuật hòa tách tĩnh (trộn ủ với axit mạnh sau khi cải tiến, thấm và thấm quặng đã được agglomerat hóa với axit mạnh).

#### 2.2.2.1. Kỹ thuật trộn ủ với axit mạnh

Mẫu quặng sau khi đập xuống cỡ hạt -10 mm thì thành phần cấp hạt được đưa ra trong bảng dưới đây. Với cỡ hạt này, vùng cấp hạt có thể hòa tách tốt nhất, chiếm tới khoảng 85% còn phần hạt lớn chỉ chiếm 9,1% và phần mịn 4,6% là không đáng kể (bảng 1).

*Bảng 1. Phân bố cấp hạt quặng sau khi đập*

Cấp hạt (mm)	Tỷ lệ (%)
-10+5	9,1
-5+2,36	38,4
-2,36+1,18	31,8
-1,18+0,3	16,1
-0,3	4,6
Tổng	100,0

Bột MnO<sub>2</sub> được sử dụng làm tác nhân oxy hóa trong quá trình hòa tách urani thay cho tác nhân KClO<sub>3</sub> rất độc hại. Sau khi khảo sát ảnh hưởng của tiêu hao bột MnO<sub>2</sub> tới hiệu suất hòa tách urani đã xác định được tiêu hao MnO<sub>2</sub> thích hợp là 3 kg/tấn quặng. Ảnh hưởng của độ ẩm khi trộn quặng với axit tới hiệu suất hòa tách urani được đưa ra trong bảng 2 dưới đây. Số liệu cho thấy, độ ẩm khi trộn càng lớn thì hiệu suất hòa tách càng giảm. Trên thực tế, sau khi trộn, quặng tôi xộp chỉ với mẫu 1. Với các mẫu 2 và 3 (đặc biệt mẫu 3) thì sau khi trộn, quặng có hiện tượng “nhão” chính vì thế khi nạp vào cột chúng bị nén chặt lại làm cho dung dịch khó đi qua lớp quặng nên làm giảm hiệu suất rửa, mặc dù các giá trị độ ẩm đã thử nghiệm đều thấp hơn khả năng giữ nước của quặng có cỡ hạt như vậy.

Kết quả thử nghiệm với tiêu hao axit cho hòa tách khoảng 42 kg/tấn quặng, hiệu suất thu hồi urani đạt 87,3% sau 8 lần rửa. Hiệu suất này là rất tốt vì mẫu quặng chứa tới 1/3 loại hình phong hóa có hàm lượng rất thấp (0,016% U - hiệu suất thu hồi urani bằng khuấy trộn chỉ đạt 43%) và 1/3 loại chưa phong hóa (hiệu suất đạt 77%).

*Bảng 2. Ảnh hưởng của độ ẩm tới hiệu suất hòa tách bằng trộn ủ*

Mẫu	Độ ẩm (%)	Hiệu suất hòa tách U (%)	Hiệu suất hòa tách Fe (%)
1	6,6	87,3	25,4
2	8,7	79,2	22,7
3	9,8	68,6	17,1

Như vậy, để đảm bảo hiệu suất hòa tách urani, độ ẩm khi ủ thích hợp là khoảng 6,6%. Và do đó quy trình hòa tách trộn ủ sẽ được thực hiện theo các bước sau:

- Pha dung dịch axit cho giai đoạn trộn: lượng axit bằng 2/3 tiêu hao tổng cộng (tổng lượng axit cho trộn và ù là 40 kg/tấn) được pha loãng bằng lượng nước (được tính toán để đạt độ ẩm 6,6%);
- Cân quặng và MnO<sub>2</sub> (theo tỷ lệ 3 kg/tấn quặng) nạp vào máy và trộn khô;
- Bổ sung dung dịch axit vào máy và trộn với quặng đến khi dung dịch phân bố đều;
- Nạp khối quặng vào cột (đóng);
- Ủ trong 24 giờ thì tưới dung dịch axit (phần axit còn lại được tính cho giai đoạn trộn ù) vào bề mặt lớp quặng và ù tiếp 2 ngày nữa;
- Rửa gián đoạn bằng dung dịch axit loãng (1/1000 theo thể tích) để thu dung dịch hòa tách (7 lần), mỗi lần sử dụng thể tích dung dịch bằng 8,3% tổng khối lượng quặng (tỷ lệ thể tích/khối lượng), tương ứng với thời điểm dung dịch bắt đầu lọt ra khỏi cột;
- Lần rửa cuối cùng rửa bằng nước để tách axit dư khỏi bã quặng.

#### 2.2.2.2. Hòa tách thắm

Các thí nghiệm ở quy mô phòng thí nghiệm (10 kg quặng/cột) đã được tiến hành để khảo sát ảnh hưởng của độ hạt quặng, tiêu hao và nồng độ axit sulfuric và tốc độ tưới dung dịch tới hiệu suất hòa tách. Kết quả cho thấy, với các thông số công nghệ thích hợp cho mẫu quặng 0,0375% U như độ hạt -10 mm; tiêu hao axit 50 kg/tấn quặng, nồng độ axit 75 g/l và tốc độ tưới 10 - 30 l/m<sup>2</sup>.h cho hiệu suất thu hồi urani cao và hàm lượng urani trong bã thải rắn <0,01%.

Các thử nghiệm hòa tách thắm ở các quy mô 90 kg quặng/cột, 500 kg quặng/cột và 3.000 kg quặng/mẻ cũng đã được thực hiện trên cơ sở các thông số thu được ở quy mô phòng thí nghiệm.

Ở quy mô 90 kg/cột, đã tiến hành hòa tách thắm với điều kiện thời gian hòa tách 20 - 25 ngày, tiêu hao axit 35 - 42 kg/tấn quặng, tiêu hao chất oxy hóa 4 kg/tấn quặng và hiệu suất thu hồi urani từ 76 - 91% (phụ thuộc vào cấp hàm lượng quặng và loại hình quặng), hàm lượng urani trong bã thải còn 0,0085 - 0,0092%. Với quy mô 500 kg/cột, đã đạt được hiệu suất thu hồi từ 76 - 92% tùy theo cấp hàm lượng quặng và loại hình quặng) trong điều kiện thời gian hòa tách 25 - 30 ngày, tiêu hao axit 36 - 43 kg/tấn quặng, tiêu hao chất oxy hóa 4 kg/tấn quặng, hàm lượng urani trong bã thải dao động trong khoảng 0,0082% - 0,0094%. Với quy mô 3.000 kg/mẻ, đã đạt được hiệu suất thu hồi từ 76 - 92% (tùy theo cấp hàm lượng quặng và loại hình quặng), thời gian hòa tách 30 - 40 ngày, tiêu hao axit 36 - 44 kg/tấn quặng, tiêu hao chất oxy hóa 4 kg/tấn quặng, hàm lượng urani trong bã thải còn 0,0089 - 0,0093%. Ngoài ra, kỹ thuật hòa tách thắm đã được sử dụng để xử lý quặng ở quy mô 20 tấn quặng/mẻ tại mỏ và kết quả thu được tương đối tốt dù thời điểm ban đầu, dòng dung dịch có bị tắc nghẽn trong bể. Như vậy, các thông số thích hợp của quá trình hòa tách thắm là cấp hạt quặng <10 mm, tiêu hao axit từ 30 - 50 kg/tấn; tiêu hao chất oxy hóa 4 kg/tấn, tốc độ tưới dung dịch tác nhân hòa tách 10 - 30 l/m<sup>2</sup>.h. Kết quả hòa tách đối với loại quặng cấp 1 (hàm lượng urani 0,0375%) đạt hơn 75% và các cấp hàm lượng 2 và 3 đều đạt trên 80%. Hàm lượng urani trong bã thải của quá trình hòa tách <0,01% [7].

#### 2.2.2.3. Hòa tách thắm quặng đã được agglomerat hóa

Các thí nghiệm khảo sát ảnh hưởng của độ ẩm, tiêu hao tác nhân oxy hóa MnO<sub>2</sub>, tiêu hao axit sulfuric khi trộn, tốc độ tưới và tiêu hao và nồng độ axit sulfuric khi hòa tách thắm đã được khảo sát cho các mẫu quặng bán phong hóa (hàm lượng U = 0,0905% và quặng được đập xuống cỡ hạt -10 mm) và mẫu quặng phong hóa có hàm lượng U = 0,0309% (cho cả các trường hợp agglomerat phần hạt mịn và trường hợp agglomerat toàn bộ mẫu quặng). Kết quả thu được như sau: trong giai đoạn agglomerat thì độ ẩm khối quặng cần đạt 6 - 8%; tiêu hao axit sulfuric 15 - 20 kg/tấn quặng, tiêu hao chất oxy hóa MnO<sub>2</sub>: 4kg/tấn quặng (tốc độ quay của tùy theo đường kính của thùng quay); trong giai đoạn hòa tách thì nồng độ axit là 50g/l, tiêu hao axit là 18 - 20 kg/tấn quặng, tốc độ tưới dung dịch là 15-30 l/m<sup>2</sup>.h và thời gian hòa

tách là 10 - 30 ngày tùy theo chiều cao lớp quặng. Hiệu suất thu hồi urani đạt trên 85% cho các mẫu quặng.

### 2.2.3. Xử lý dung dịch hòa tách bằng phương pháp trao đổi ion

Phương pháp trao đổi ion là phương pháp chủ yếu được lựa chọn để xử lý dung dịch hòa tách quặng nghèo trên thế giới dù tính chọn lọc của nó kém phương pháp chiết dung môi (vì nếu sử dụng dung môi trong trường hợp này sẽ bị thất thoát dung môi và ảnh hưởng tới môi trường). Vì vậy, với quặng cát kết khu vực Pà Lừa thì việc lựa chọn trao đổi ion là phù hợp hơn cả.

Để làm sạch tạp chất và làm tăng nồng độ urani trong dung dịch hòa tách, nhựa anion bazo mạnh Amberlite IRA-420 (của Mỹ) đã được sử dụng để hấp thu chọn lọc urani và dung dịch chứa NaCl 1M + HCl 0,05M được sử dụng làm tác nhân rửa giải. Trước khi thử nghiệm xử lý dung dịch hòa tách thực, ảnh hưởng của nồng độ các ion sắt, sulfat, clo, nhôm và silic tới dung lượng hấp thu urani của nhựa đã được khảo sát chi tiết. Với các ion sắt, sulfat và clo đã xác định được phương trình biểu diễn mối quan hệ của dung lượng hấp thu urani và sắt của nhựa vào nồng độ của các ion này bằng quy hoạch thực nghiệm. Với nhôm, mặc dù không tham gia phản ứng trao đổi ion với nhựa nhưng khi nồng độ nhôm tăng thì dung lượng hấp thu urani giảm nhiều có thể do nhôm làm tăng độ nhớt của dung dịch làm cản trở sự khuếch tán của dung dịch trong các mao quản trong hạt nhựa. Còn với silic, nếu dung dịch có nồng độ 2 g Si/l trở lên sẽ làm giảm đáng kể dung lượng hấp thu urani của nhựa (tới khoảng 25%). Vì vậy, khi hòa tách quặng, cần lưu ý chế độ công nghệ để giảm thiểu sự hòa tan của các nguyên tố này.

Dung lượng hấp thu urani của nhựa Amberlite IRA-420 từ các dung dịch hòa tách thực tế thu được từ các thí nghiệm hòa tách trộn ủ các mẫu quặng có hàm lượng urani khác nhau đã được xác định. Cụ thể, đã sử dụng các mẫu dung dịch hòa tách có thành phần hóa học như trong bảng 3 dưới đây.

*Bảng 3. Thành phần hóa học của một số loại dung dịch hòa tách*

N.tố	M1	M2	M3	M4	M5	M6	M7	M8	M9
U	2,166	1,656	1,407	1,826	1,383	1,158	1,258	1,030	0,845
Fe	10,48	8,38	6,71	12,22	10,13	7,54	10,67	8,10	5,98
SO <sub>4</sub>	95	70	56	150	125	92	156	114	90
...									
Ti	0,015	0,010	0,008	0,158	0,131	0,103	0,082	0,052	0,040
Mn	2,82	2,12	1,72	4,46	3,66	2,98	3,05	2,07	1,67
P	0,232	0,161	0,134	0,345	0,275	0,216	0,193	0,137	0,110
Al	4,64	3,50	2,88	4,59	3,74	2,97	6,22	4,66	3,71
Sr	0,022	0,018	0,016	0,057	0,051	0,045	0,044	0,034	0,030
As	0,028	0,019	0,017	0,027	0,023	0,019	0,049	0,032	0,025
V	0,063	0,047	0,039	0,071	0,058	0,046	0,081	0,053	0,042

*Ghi chú: các mẫu M1, M2 và M3 là các dung dịch hoà tách với các mức tuần hoàn dung dịch rửa khác nhau khi trộn quặng có hàm lượng 0,103%U; M4, M5 và M6 là các dung dịch hoà tách thu được với các mức tuần hoàn dung dịch rửa khác nhau khi trộn quặng có hàm lượng 0,055%U và M7, M8 và M9 là các mẫu dung dịch thu được với các mức tuần hoàn dung dịch rửa khác nhau khi trộn quặng có hàm lượng 0,042%U.*

Thí nghiệm hấp thu được tiến hành trên cột nhựa tĩnh, dung dịch được dội qua cột với lưu lượng ứng với thời gian lưu trung bình 3,5 - 4,0 phút cho đến khi toàn bộ lớp nhựa bão hòa urani. Sau khi rửa hết dung dịch hòa tách dư trong cột, nhựa được rửa giải (bằng dung dịch tác nhân NaCl 1M + H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 0,05M với thời gian lưu 8 - 10 phút và thể tích bằng 20 lần thể tích lớp nhựa để tách toàn bộ urani ra khỏi nhựa, dung lượng hấp thu urani theo các mẫu dung dịch hòa tách được tính toán từ kết quả phân tích và kết quả được đưa ra trong bảng 4:

*Bảng 4. Dung lượng hấp thu một số kim loại của nhựa với các mẫu dung dịch hòa tách (g/lít nhựa ướt)*

N.tố	M1	M2	M3	M4	M5	M6	M7	M8	M91
U	62,14	60,85	58,88	56,70	53,61	48,22	43,13	45,90	49,31
Fe	7,76	8,19	9,08	10,13	8,96	7,72	11,41	8,49	6,52
Ti	0,01	0,01	0,01	0,20	0,18	0,11	0,11	0,10	0,07
Mn	0,07	0,10	0,07	0,15	0,14	0,10	0,12	0,11	0,26
P	0,08	0,10	0,09	0,14	0,14	0,12	0,04	0,05	0,06
Al	0,11	0,15	0,10	0,13	0,13	0,10	0,19	0,17	0,58
Sr	0,06	0,07	0,07	0,09	0,08	0,07	0,02	0,08	0,07
As	0,02	0,02	0,02	0,03	0,03	0,02	0,03	0,04	0,04
V	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01

Các kết quả này cho thấy, dung lượng hấp thu urani của nhựa từ dung dịch hoà tách quặng nghèo đều thấp đáng kể so với dung dịch urani sạch có nồng độ và pH tương ứng. Mặc dù vậy, hiệu quả làm sạch dung dịch vẫn thể hiện rất rõ. Với cùng một loại quặng, ảnh hưởng của mức độ tuần hoàn nước rửa tới dung lượng hấp thu urani là khá phức tạp. Với quặng “giàu urani hơn” thì dung lượng hấp thu urani có xu thế giảm đi khi dung dịch càng loãng, nhưng với quặng càng nghèo thì lại có xu thế ngược lại, nghĩa là dung dịch càng loãng thì dung lượng hấp thu urani càng tăng. Tuy nhiên, với cả 3 loại quặng đã khảo sát thì mức độ thay đổi dung lượng hấp thu urani vào mức độ đậm đặc của dung dịch là không lớn và không rõ rệt. Ngoài ra, mức độ suy thoái và việc tái sinh nhựa sau nhiều chu kỳ làm việc của nhựa cũng đã được nghiên cứu.

#### 2.2.4. Kết tủa sản phẩm

Việc sử dụng tác nhân MgO thường chỉ được sử dụng ở các mỏ urani nhỏ trên thế giới, ở đó họ chế biến sơ bộ để thu sản phẩm trung gian diuranat magie mang về cơ sở chế biến chính thức để giảm chi phí vận chuyển quặng và bã thải. Việc sử dụng MgO thường thu được sản phẩm có hàm lượng urani thấp và khó ổn định vì trong quá trình kết tủa sản phẩm được hình thành từ vỏ tác nhân làm giảm sự khuếch tán dung dịch vào vùng lõi của tác nhân. Việc sử dụng H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> thì thu được sản phẩm có độ sạch rất cao nhưng có chi phí cao hơn và phức tạp hơn nên sử dụng tác nhân NH<sub>4</sub>OH là phù hợp.

Với quặng cát kết khu vực Pà Lừa, tác nhân H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> được sử dụng trong quy trình kết tủa trực tiếp từ dung dịch hòa tách quặng (thu được từ hòa tách tĩnh bằng axit sulfuric) thông qua hai giai đoạn [4] và tác nhân MgO được sử dụng trong quy trình kết tủa sản phẩm urani từ dung dịch thu được ở công đoạn trao đổi ion [7]. Quy trình kết tủa trực tiếp từ dung dịch hòa tách quặng có nhược điểm lớn là dung dịch hòa tách quặng với axit sulfuric có nồng độ sắt và nhiều tạp chất khác nên khi kết tủa tạp chất sẽ thất thoát khá nhiều urani theo bã thải. Vì vậy, trong bài chỉ trình bày kết quả nghiên cứu kết tủa sản phẩm với tác nhân NH<sub>4</sub>OH.

Dung dịch rửa giải (sau trao đổi ion - có nồng độ 6,206 gU/l; 0,7447 gFe/l và các tạp chất khác) được sử dụng để nghiên cứu kết tủa sản phẩm bằng NH<sub>4</sub>OH. Dung dịch rửa giải có

nồng độ sắt còn lớn nên nếu kết tủa trực tiếp từ dung dịch này thì hàm lượng urani trong sản phẩm chỉ đạt 79,04%  $U_3O_8$  trong khi đó hàm lượng sắt lên tới 8,41% không đạt yêu cầu. Do đó, dung dịch này đã được trung hoà bằng sữa vôi đến pH = 3,8 để tách sắt. Sau khi lọc rửa, dung dịch thu được có nồng độ 5,669 gU/l; 0,008 gFe/l và các tạp chất khác. Nồng độ urani bị giảm đi so với ban đầu do một phần nhỏ mất mát vào bã và chủ yếu do pha loãng bởi sữa vôi và nước rửa. Gần 99% sắt bị tách khỏi dung dịch ở giai đoạn này mà mất mát urani chỉ hơn 1%.

Ảnh hưởng của nhiệt độ kết tủa, nồng độ urani trong dung dịch đầu và pH đến hiệu suất thu hồi urani và chất lượng sản phẩm urani kỹ thuật đã được khảo sát. Về ảnh hưởng của nhiệt độ, đã sử dụng cùng một lượng tác nhân đã thu được kết quả như trong bảng 5.

Kết quả cho thấy, hiệu suất thu hồi urani đều đạt rất cao và ít phụ thuộc vào nhiệt độ kết tủa. Hàm lượng urani trong sản phẩm đạt tương đối cao do sau quá trình trao đổi ion và kết tủa tạp chất dung dịch đã khá sạch tạp chất. Hàm lượng urani tăng lên khi tăng nhiệt độ kết tủa. Thực tế, khi kết tủa ở nhiệt độ cao (60 - 65°C) thì một phần  $NH_4OH$  bị bay hơi nên pH không tăng lên như ở nhiệt độ thường. Vì vậy, nếu kết tủa ở nhiệt độ thường thì cần giảm tiêu hao tác nhân để hạn chế sự kết tủa một số tạp chất khác làm giảm hàm lượng urani trong sản phẩm. Tuy nhiên, khi kết tủa ở nhiệt độ thấp (30°C) thì tạo ra sản phẩm vô định hình rất khó lọc (bảng 6). Do đó nhiệt độ kết tủa thích hợp là khoảng 60°C.

*Bảng 5. Thành phần của sản phẩm và hiệu suất thu hồi urani phụ thuộc vào nhiệt độ*

Nhiệt độ (°C)	Sản phẩm		Hiệu suất thu hồi U (%)
	$U_3O_8$ (%)	Fe (%)	
60-65	89,95	0,083	99,98
45-50	90,11	0,065	99,99
30	87,06	0,042	99,98

*Bảng 6. Tốc độ lọc sản phẩm phụ thuộc vào nhiệt độ kết tủa*

Nhiệt độ (°C)	Độ dày lớp lọc (mm)	Tốc độ lọc (lít/m <sup>2</sup> .giờ)
60	2	780
50	2	47
30	2,5	33

Về ảnh hưởng của pH (tương ứng với tiêu hao  $NH_4OH$ ), hàm lượng sắt trong sản phẩm càng tăng (từ 0,018 đến 0,109%) khi tăng pH kết tủa, vì vậy nếu trong dung dịch đầu không tách được triệt để sắt thì chỉ nên kết tủa đến pH = 7 (bảng 7).

*Bảng 7. Thành phần của sản phẩm và hiệu suất thu hồi urani phụ thuộc vào pH*

pH	Sản phẩm		Hiệu suất thu hồi U (%)
	$U_3O_8$ (%)	Fe (%)	
6,19	94,74	0,018	99,96
6,73	91,04	0,032	99,98
7,05	89,95	0,083	99,98
7,23	89,55	0,109	99,98



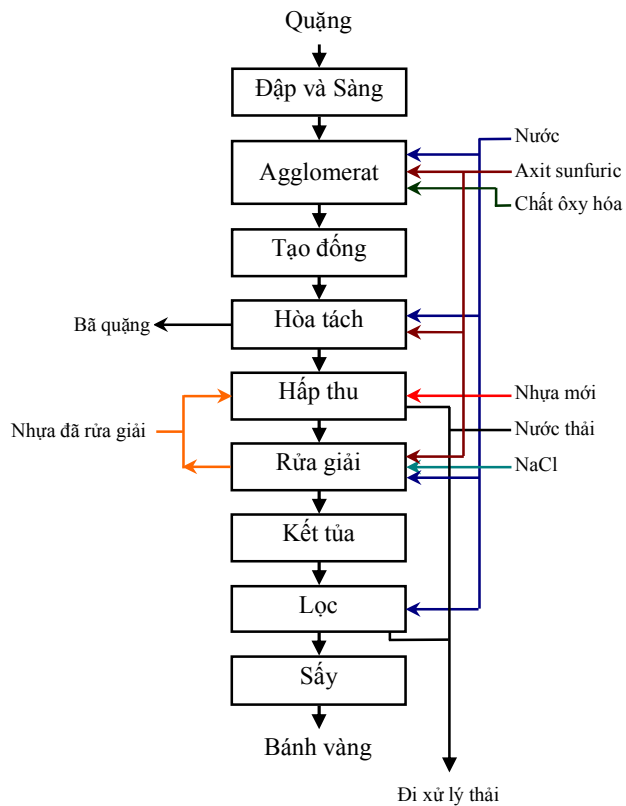
Còn với dung dịch chưa hoàn toàn sạch thì nếu dung dịch càng có nồng độ urani cao thì chất lượng sản phẩm càng có xu thế giảm đi do sự cộng kết tủa của các tạp trong quá trình kết tủa sản phẩm.

### 2.3. Đề xuất công nghệ xử lý quặng

Trên cơ sở kết quả thử nghiệm hòa tách bằng các kỹ thuật khác nhau với các mẫu quặng thực tế, ưu và nhược điểm của các kỹ thuật này đã được đánh giá, so sánh nhằm lựa chọn được kỹ thuật thích hợp nhất để xử lý quặng cát kết khu vực Pà Lừa. Về ưu điểm, tất cả các kỹ thuật đều có hiệu suất thu hồi urani cao. Hòa tách trộn ủ với axit mạnh có lợi thế hơn so với hòa tách thấm vì quặng được trộn với nước và axit mạnh trước nên axit phân bố đồng đều trong đồng quặng và phản ứng ngay với các khoáng dễ tan trong quặng, các cấp hạt quặng được phân bố đồng đều trong toàn khối, thời gian hòa tách ngắn, hiệu suất thu hồi urani cao và ổn định, tuy nhiên cần có khâu trộn quặng với axit cũng làm tăng chi phí (dù chi phí năng lượng không nhiều do thời gian trộn khá ngắn) và nồng độ tạp chất trong dung dịch hòa tách khá lớn làm giảm khả năng hấp thu urani của nhựa trao đổi ion. Hòa tách thấm có ưu điểm là không cần bước trộn quặng trước nhưng nhược điểm của nó là các cỡ hạt không phân bố đều dẫn đến dòng dung dịch (axit) không thấm đều trong khối quặng, hoặc tắc dòng (đặc biệt giai đoạn đầu tiên khi quặng có nhiều loại hình chưa phong hóa và có nhiều khoáng tạp dễ phản ứng với axit) dẫn đến hiệu suất hòa tách thấp và thiếu tính ổn định, việc sử dụng dung dịch axit 75 g/l từ đầu đến cuối mà không có phương án tuần hoàn cho các mẻ hòa tách tiếp theo làm tăng đáng kể tiêu hao axit và tác nhân trung hòa để điều chỉnh pH dung dịch hòa tách trước khi trao đổi ion. Kỹ thuật hòa tách thấm với quặng được agglomerat hóa trước với axit mạnh và nước là kỹ thuật dung hòa của kỹ thuật trộn ủ và hòa tách thấm. Ưu điểm của kỹ thuật này gần tương tự với hòa tách trộn ủ như axit được trộn đều với lượng đủ trong khối quặng để hòa tan cơ bản các khoáng tạp có trong quặng nhưng không dư để hòa tan nhiều tạp chất khác nên nồng độ tạp chất trong dung dịch hòa tách không lớn như hòa tách trộn ủ. Việc hòa tách thấm tiếp theo bằng dung dịch axit có nồng độ như trong hòa tách thấm để đạt hiệu suất thu hồi urani cao nhưng sẽ mất nhiều thời gian hơn hòa tách trộn ủ. Đây cũng là xu hướng xử lý hiện nay trên thế giới đối với loại quặng nghèo như quặng cát kết khu vực Pà Lừa (nhà máy ở mỏ Caetité của Brazil hay ở Somair của Niger,... cũng đã sử dụng hay nghiên cứu về công nghệ này).

Vì vậy, công nghệ xử lý phù hợp cho các mẫu quặng cát kết khu vực Pà Lừa được lựa chọn bao gồm các công đoạn (như trong sơ đồ) và một số thông số công nghệ quan trọng sau:

+ **Đập quặng** (đối với quặng cục): đập 2 cấp bằng hai máy đập xuống cỡ hạt -10 mm;



Sơ đồ công nghệ xử lý quặng cát kết khu vực Pà Lừa

- + Agglomerat hóa quặng bằng nước và axit sulfuric mạnh: độ ẩm 6 - 8%, tiêu hao axit H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 16 - 20 kg/tấn quặng, tiêu hao MnO<sub>2</sub> (loại kỹ thuật) 4 kg/tấn quặng, thời gian trộn 8 - 10 phút;
- + Hòa tách thấm: tốc độ tưới dung dịch axit 15 - 30 l/m<sup>2</sup>.h, nồng độ axit sulfuric trong dung dịch tưới: 50 g/l và tiêu hao axit cho giai đoạn này là 18 - 20 kg/tấn quặng.
- + Xử lý dung dịch bằng phương pháp trao đổi ion: sử dụng nhựa trao đổi anion bazơ mạnh như Amberlite IRA-420 (có thể sử dụng nhựa GS 300 của Ấn Độ,...), trong đó thời gian lưu trung bình của dung dịch trong giai đoạn hấp thụ là 3,5 - 4 phút còn giai đoạn rửa giải sử dụng tác nhân NaCl 1M + H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 0,05M (với thể tích bằng 20 lần thể tích lớp nhựa) và thời gian lưu 8 - 10 phút.
- + Kết tủa sản phẩm yellowcake: kết tủa thông qua 2 giai đoạn (giai đoạn đầu sử dụng Ca(OH)<sub>2</sub> trung hòa đến pH = 3,8 để tách sắt, giai đoạn thứ hai là kết tủa sản phẩm sử dụng dung dịch NH<sub>4</sub>OH để trung hòa đến pH = 7,0 và nhiệt độ khoảng 60°C để tạo sản phẩm dạng tinh thể dễ lọc rửa.

Tuy nhiên, để hoàn thiện được công nghệ này, nên tiến hành thử nghiệm hòa tách nhiều bậc ngược chiều để tận dụng axit dư, giảm chi phí tác nhân trung hòa axit dư trong dung dịch trước khi xử lý bằng trao đổi ion và nâng cao nồng độ urani trong dung dịch hòa tách. Ngoài ra, cần có sự tính toán chi phí cho công việc xử lý quặng để thu sản phẩm urani kỹ thuật (chưa tính tới công việc khai thác) để có thể lượng hóa trong việc so sánh các phương án công nghệ và làm cơ sở để đánh giá giá trị của mỏ.

### 3. KẾT LUẬN

- Các công đoạn chính trong công nghệ xử lý quặng cát kết khu vực Pà Lừa (gồm gia công quặng, hòa tách, trao đổi ion và kết tủa sản phẩm) đã được nghiên cứu chi tiết để tìm ra các thông số công nghệ thích hợp cho các mẫu quặng.
- Đã đề xuất được công nghệ xử lý phù hợp cho đối tượng quặng cát kết khu vực Pà Lừa đảm bảo hiệu suất thu hồi urani và hiệu quả kinh tế nhất. Công nghệ này bao gồm các công đoạn chính là đập quặng, agglomerat quặng bằng nước và axit đặc, hòa tách thấm, xử lý dung dịch bằng trao đổi ion, kết tủa sản phẩm và một số công đoạn khác. Với công nghệ này có thể đạt được hiệu suất thu hồi urani khoảng 85%.
- Để hoàn thiện công nghệ này, nên tiến hành thử nghiệm hòa tách nhiều bậc ngược chiều để tận dụng axit dư, giảm chi phí tác nhân trung hòa axit dư trong dung dịch trước khi xử lý bằng trao đổi ion và nâng cao nồng độ urani trong dung dịch hòa tách. Ngoài ra, cần có sự tính toán chi phí cho công việc xử lý quặng để thu sản phẩm urani kỹ thuật để có thể lượng hóa trong việc so sánh các phương án công nghệ và làm cơ sở để đánh giá giá trị của mỏ.

### TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. Nguyễn Quang Hưng, Nguyễn Phương, Bùi Tất Hợp, Quặng urani và khả năng đáp ứng cho phát triển điện hạt nhân ở Việt Nam, <http://www.idm.gov.vn/Data/TapChi/2008/A307/a11.htm>
2. Lê Khánh Phồn, Nghiên cứu các đặc điểm dị thường phóng xạ đối với quặng urani trong cát kết vùng cát trũng Nông Sơn, [http://www.idm.gov.vn/nguon\\_luc/Xuat\\_ban/2006/A293/a10.htm](http://www.idm.gov.vn/nguon_luc/Xuat_ban/2006/A293/a10.htm).
3. Đỗ Quý Sơn, “*Tổng kết và đánh giá kết quả các hoạt động R&D về nhiên liệu hạt nhân ở Việt Nam*”, Đề tài cấp Bộ 2004-2005 mã số BO/03/03-10;
4. Cao Hùng Thái, “*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*”, Đề tài cấp Bộ 2001-2002 mã số BO/01/03/02;
5. Lê Quang Thái, “*Xử lý quặng urani khu vực Pà Lừa bằng kỹ thuật trộn ủ ở quy mô 500 kg/mẻ để thu urani kỹ thuật*”, Đề tài cấp Bộ 2006-2007 mã số BO/06/03-01;

6. Lê Quang Thái, “Hoàn thiện quy trình thử nghiệm công nghệ và thiết bị thu nhận urani kỹ thuật từ quặng cát kết Pà Lừa bằng kỹ thuật trộn ủ và trao đổi ion”, Đề tài cấp Bộ 2008-2009 mã số ĐT/05-08/NLNT;
7. Thân Văn Liên, “Xử lý mẫu công nghệ thu nhận urani”, Nhiệm vụ thuộc Đề án cấp Nhà nước “Thăm dò urani khu Pà Lừa - Pà Rông, huyện Nam Giang, tỉnh Quảng Nam”;
8. Thân Văn Liên, “Nghiên cứu cải tiến công nghệ xử lý quặng urani nghèo bằng phương pháp hòa tách thấm sử dụng quá trình agglomerat hóa quặng đầu vào”, Đề tài cấp Bộ 2014-2015.