

# NGHIÊN CỨU CÔNG NGHỆ XỬ LÝ QUẶNG URANI VÙNG THÀNH MỸ BẰNG PHƯƠNG PHÁP HOÀ TÁCH KHUẤY TRỘN

Phạm Thị Thủy Ngân, Thân Văn Liên, Trần Thế Định

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

*Email: thuyngan.bk.k54@gmail.com*

## **Tóm tắt**

Công nghệ xử lý quặng urani đã được nghiên cứu và đưa ra sản xuất với quy mô công nghiệp ở nhiều nước trên thế giới, hiện nay vẫn tiếp tục được nghiên cứu nhằm nâng cao hiệu suất thu hồi urani đảm bảo hiệu quả kinh tế và hạn chế tác động có hại tới môi trường. Tùy thuộc vào từng đối tượng quặng và cấp hàm lượng urani mà người ta lựa chọn áp các công nghệ hoà tách khác nhau.

Viện Công nghệ xạ hiếm đã và đang tiếp tục nghiên cứu các phương pháp hoà tách nhằm đạt hiệu suất thu hồi urani cao. Đối với quặng nghèo, trung bình, hoà tách khuấy trộn tuy không mang lại hiệu quả kinh tế nhưng có hiệu suất thu hồi urani cao hơn so với hoà tách tĩnh. Để lựa chọn kỹ thuật hoà tách thích hợp chúng ta cần tiến hành thí nghiệm nhằm đưa ra những thông số công nghệ và quy trình cho từng đối tượng quặng. Hoà tách khuấy trộn là lựa chọn đầu tiên nhằm đưa ra những điều kiện tối ưu về chi phí axit, chất oxy hoá,... để đạt hiệu suất thu hồi cao nhất.

Trong bài báo này chúng tôi trình bày kết quả khảo sát các yếu tố ảnh hưởng đến hiệu suất thu hồi urani từ quặng ( $U=0,1752\%$ ;  $Fe= 1,279 \%$ ) vùng Pà Lừa theo phương pháp hoà tách khuấy trộn bằng  $H_2SO_4$ .

**Từ khóa:** *Quặng urani, hoà tách khuấy trộn.*

## **I. MỞ ĐẦU**

Hoà tách là một công đoạn quan trọng trong quá trình xử lý quặng urani, khả năng tách urani ra khỏi quặng và chi phí cho quá trình hoà tách chiếm vai trò lớn trong dây chuyền công nghệ. Để tách urani có thể dùng các phương pháp là hoà tách tĩnh và động bằng tác nhân axit ( $H_2SO_4$ ) hoặc tác nhân kiềm.

Đối với quặng urani Việt Nam có hàm lượng urani trung bình, thấp và lượng khoáng tạp chất cao nên thích hợp với hoà tách động bằng axit  $H_2SO_4$ . Để có thể thực hiện kỹ thuật hoà tách động một cách có hiệu quả, thì việc đầu tiên là phải tiến hành các thí nghiệm hoà tách khuấy trộn để xác định một vài thông số cơ bản phục vụ cho kỹ thuật hoà tách động

Đây là phương pháp hoà tách phổ biến trên thế giới được áp dụng với loại quặng cát kết. Quá trình hoà tan urani vào dung dịch phụ thuộc vào các yếu tố sau: Kích cỡ hạt quặng, nồng độ axit, chi phí chất oxy hoá, nhiệt độ, thời gian hoà tách,...

Báo cáo trình bày sau đây chỉ là một phần tóm tắt trong nội dung nghiên cứu của Nhiệm vụ: "*Xử lý mẫu công nghệ thu nhận urani*" đã được Viện Công nghệ xạ hiếm thực hiện thực hiện trong năm 2012.

## **II. NỘI DUNG**

### **II.1. Đối tượng và Phương pháp**

Đối tượng nghiên cứu: quặng (U=0,1752%; Fe= 1,279 %) vùng Pà Lừa

Khảo sát ảnh hưởng của các yếu tố cơ bản như kích thước hạt quặng, nồng độ axit, thời gian hoà tách, thể oxy hóa đến hiệu suất thu hồi urani.

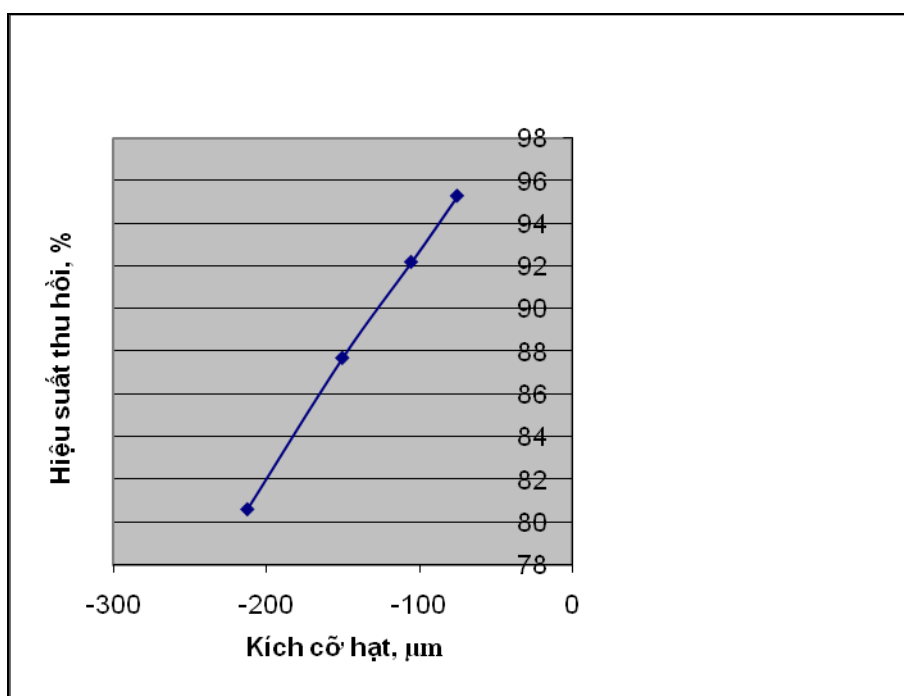
Phương pháp: Tiến hành làm thí nghiệm với 500g quặng/mẻ trong cốc thủy tinh dung tích 1lit, tỷ lệ rắn/lỏng là 1:1, thiết bị khuấy trộn có điều chỉnh tốc độ, đầu đo pH, đầu đo thể oxy hóa – khử, hệ thống làm việc trong điều kiện môi trường, thời gian hoà tách 24h.

### **II.2. Kết quả và bàn luận**

#### ***II.2.1. Khảo sát ảnh hưởng của kích thước hạt đến hiệu suất thu hồi urani***

Quặng được nghiền tới các cấp hạt lần lượt là -75 $\mu$ m, - 105 $\mu$ m, -150 $\mu$ m và -212 $\mu$ m. Thí nghiệm hoà tách urani được tiến hành với từng loại kích thước quặng trong cùng điều kiện: H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 0,9M; chi phí axit 60kg/tấn quặng; chất oxy hóa MnO<sub>2</sub> với chi phí 4kg/tấn; thời gian 24h. Sau khoảng thời gian hoà tách, lấy mẫu đi phân tích hàm lượng urani để tính hiệu suất thu hồi.

Kết quả khảo sát ảnh hưởng của của kích thước hạt đến hiệu suất thu hồi urani được chỉ ra ở hình 1.



Hình 1. Ảnh hưởng của của kích thước hạt đến hiệu suất thu hồi urani

Từ kết quả thực nghiệm được đưa ra trên hình 1 cho thấy, trong cùng điều kiện hòa tách như nhau, khi kích thước hạt quặng giảm (từ  $-212\mu\text{m}$  đến  $-75\mu\text{m}$ ) thì hiệu suất thu hồi urani tăng (từ 80,6% đến 95,3%).

Sự ảnh hưởng này được giải thích do các khoáng urani thường bị che khuất bởi các khoáng đá không quặng, vì vậy việc gia công cơ học làm giảm kích thước hạt quặng nhằm giải phóng các khoáng urani.

Việc xác định nghiền quặng đến cỡ hạt nào quyết định khả năng tách urani ra khỏi quặng. Nếu nghiền quá mịn, hiệu suất thu hồi urani có thể tăng, tuy nhiên vấn đề phân chia rắn – lỏng bùn sau hoà tách sẽ gặp khó khăn rất lớn, đồng thời chi phí cho việc nghiền quặng cũng tăng lên.

Mặt khác, nếu hạt quặng có kích thước lớn, diện tích tiếp xúc giữa bề mặt quặng và dung dịch hoà tách sẽ giảm. Ngoài ra, kích thước hạt quặng lớn làm cho quá trình khuếch tán trong của tác nhân vào sâu trong hạt khó khăn hơn, từ đó làm giảm hiệu suất quá trình.

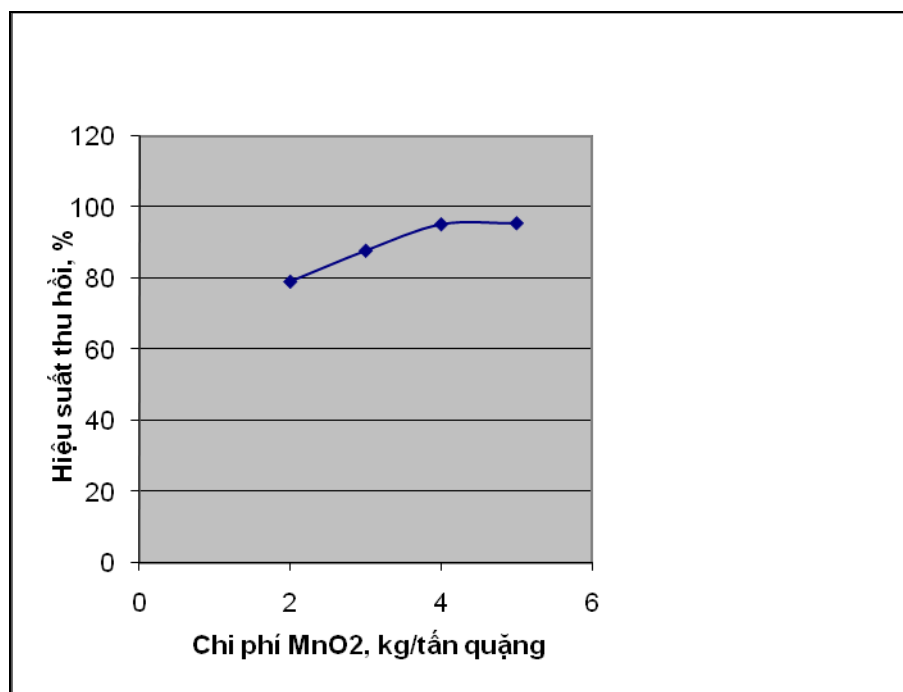
Vì vậy, trên thực tế cần lựa chọn kích thước hạt thích hợp đối với từng loại quặng cụ thể.

### II.2.2. Khảo sát ảnh hưởng của chất ôxy hoá đến hiệu suất thu hồi urani

Mẫu quặng được nghiền tới cấp hạt  $-75\mu\text{m}$ .

Tiến hành hòa tách các thí nghiệm trong cùng điều kiện:  $H_2SO_4$  0,9M; chi phí axit 60kg/tấn quặng. Chất oxy hoá là  $MnO_2$  dạng bột (85,2%, TQ) với các chi phí  $MnO_2$  lần lượt cho mỗi thí nghiệm là 2; 3; 4; 5 kg  $MnO_2$ /tấn quặng. Sau thời gian 24h hòa tách, lấy mẫu đi phân tích hàm lượng urani để tính hiệu suất thu hồi.

Kết quả khảo sát ảnh hưởng của chất oxy hoá đến hiệu suất thu hồi urani được chỉ ra ở hình 2.



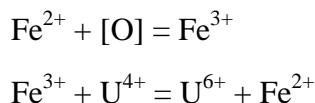
Hình 2. Ảnh hưởng của chất oxy hoá đến hiệu suất thu hồi urani

Từ kết quả thực nghiệm cho thấy: trong khoảng thế 450 – 530mV hiệu suất thu hồi urani tăng không đáng kể do lượng  $Fe^{2+}$  đã chuyển hoàn toàn thành  $Fe^{3+}$ , khi đó nếu tiếp tục tăng thế oxy hóa dung dịch thì chủ yếu sẽ làm tăng quá trình hòa tan tạp chất. Kết quả thực nghiệm cho thấy chi phí chất oxy hoá được chọn là 4kg/tấn quặng không chỉ cho hiệu suất thu hồi urani cao mà còn thu được dung dịch có thể oxy hoá khử trung bình, giảm được nồng độ của một số kim loại có khả năng cạnh tranh với urani khi trao đổi ion ở những bước tiếp theo.

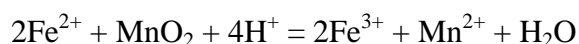
Urani ở trạng thái hoá trị VI hoà tan nhanh trong axit  $H_2SO_4$ , nhưng urani hoá trị IV phải được oxy hoá thành urani hóa trị VI thì quá trình hoà tan mới xảy ra. Chất oxy hoá tác dụng trực tiếp bằng cách chuyển  $Fe^{2+}$  tạo thành do hoà tan Fe có trong quặng hoặc Fe đi vào

quặng khi nghiền thành  $\text{Fe}^{3+}$ . Nồng độ  $\text{Fe}^{3+}$  thường nằm trong khoảng từ 1 đến 2g/l là phù hợp để hoà tan có hiệu quả uraninit.

Quá trình oxy hoá rất phức tạp, các tài liệu đã chỉ ra rằng chất oxy hoá thêm vào có phản ứng gián tiếp đối với urani và thực hiện thông qua sự có mặt của cặp  $\text{Fe}^{3+}/\text{Fe}^{2+}$ :



Trong phản ứng này không có vai trò của  $\text{H}^+$ , tuy nhiên theo nguyên lý chuyển dịch cân bằng Losactorie, để tăng quá trình hoà tan  $\text{U}^{4+}$  thì ta phải duy trì  $\text{H}^+$  thích hợp nhằm tạo ra phức bền của  $\text{U}^{6+}$ . Trong phản ứng oxy hoá  $\text{Fe}^{2+}$  thì vai trò  $\text{H}^+$  thể hiện rất rõ, với chất oxy hoá  $\text{MnO}_2$  ta có phản ứng:



Ion  $\text{Fe}^{3+}$  ở dạng phức sulfat ôxy  $\text{Fe}^{3+}$  ôxy hoá  $\text{U}^{4+}$  theo cơ chế điện hoá trong đó nồng độ ion  $\text{Fe}^{3+}$  nhưng dạng phụ thuộc được xác định bởi tỷ lệ  $\text{Fe}^{3+}/\text{Fe}^{2+}$ . Ion  $\text{Fe}^{2+}$  trong dung dịch hoà tách được không chế bằng cách điều chỉnh thế ôxy hoá khi thêm chất ôxy hoá. Đối với điều kiện hoà tách điển hình giữa thế ôxy hoá và nồng độ ion Fe tuân theo phương trình Nernst:

$$E_c = 397 + 0,1984.T.\lg ([\text{Fe}^{3+}] / [\text{Fe}^{2+}])$$

Trong đó:  $E_c$ : Thế ôxy hoá dung dịch (mV)

T: Nhiệt độ (K)

[ ] : Nồng độ mol

Phương trình chỉ rằng thế ôxy hoá ở 400mV khi 50% Fe ở trạng thái  $\text{Fe}^{3+}$  và thế ôxy hoá 500mV khi còn 2%  $\text{Fe}^{2+}$ . Thế ôxy hoá yêu cầu để ôxy hoá hoàn toàn không ảnh hưởng bởi loại quặng (cát kết hoặc vein) và loại khoáng đá. Thông thường việc nghiên cứu thế ôxy hoá là không cần thiết. Việc tách urani một cách thoả mãn thường đạt được đối với hầu hết các loại quặng bằng các duy trì thế ôxy hoá trong khoảng 450-500mV. Để đảm bảo thế dung dịch ta phải thêm tác nhân oxy hóa (thường dùng  $\text{MnO}_2$ ).

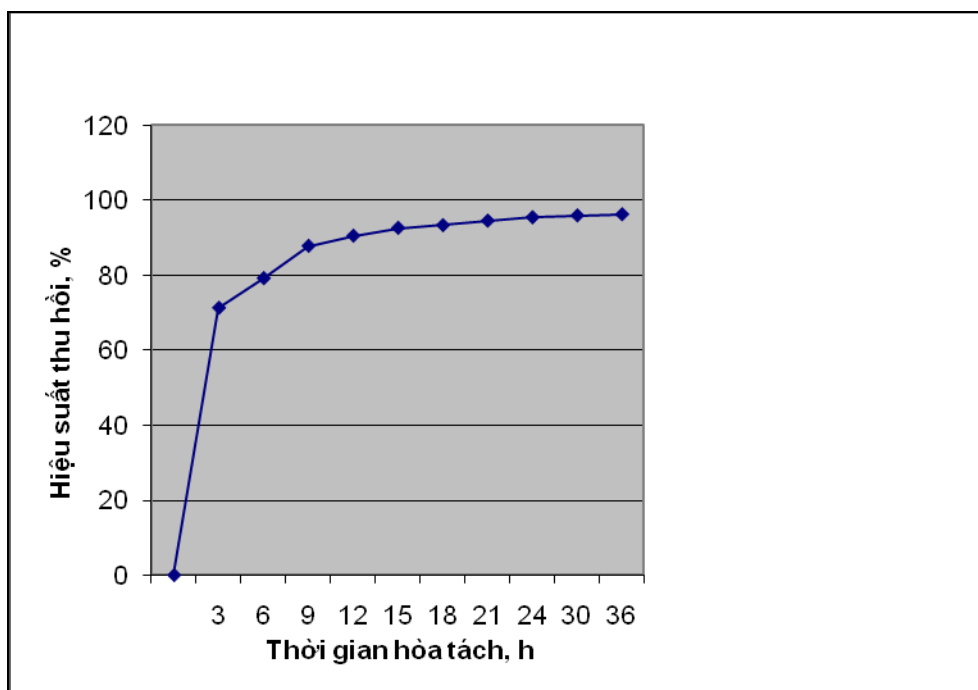
Các thí nghiệm quy mô phòng thí nghiệm cần được tiến hành ở thế ôxy hoá không đổi khoảng 500mV trong quá trình hoà tách. Đối với loại quặng cát kết, thường sau khi hoà tách được 1h mới bổ sung chất ôxy hoá, tránh hiện tượng tiêu tốn chất ôxy hoá không cần thiết.

### ***II.2.3. Khảo sát ảnh hưởng của thời gian đến hiệu suất thu hồi urani***

Quặng được nghiền tới kích thước  $-75\mu\text{m}$ .

Tiến hành thí nghiệm hoà tách trong cùng điều kiện  $H_2SO_4$  0,9M; chi phí axit 60kg/tấn quặng; tỷ lệ R/L = 1/1, thế oxy hoá dung dịch 450 -500mV, chất oxy hóa 4kg/tấn. Sau mỗi khoảng thời gian hoà tách nhất định, lấy mẫu dung dịch hoà tách đi phân tích xác định nồng độ urani để tính hiệu suất thu hồi.

Kết quả khảo sát ảnh hưởng của thời gian đến hiệu suất thu hồi urani được chỉ ra ở hình 3.



Hình 3. Ảnh hưởng của thời gian đến hiệu suất thu hồi urani

Kết quả khảo sát cho thấy, khi thời gian phản ứng tăng thì hiệu suất thu hồi urani cũng tăng. Tuy nhiên hiệu suất thu hồi chỉ tăng nhanh trong khoảng thời gian ban đầu, và tăng chậm dần nếu tiếp tục kéo dài thời gian hoà tách.

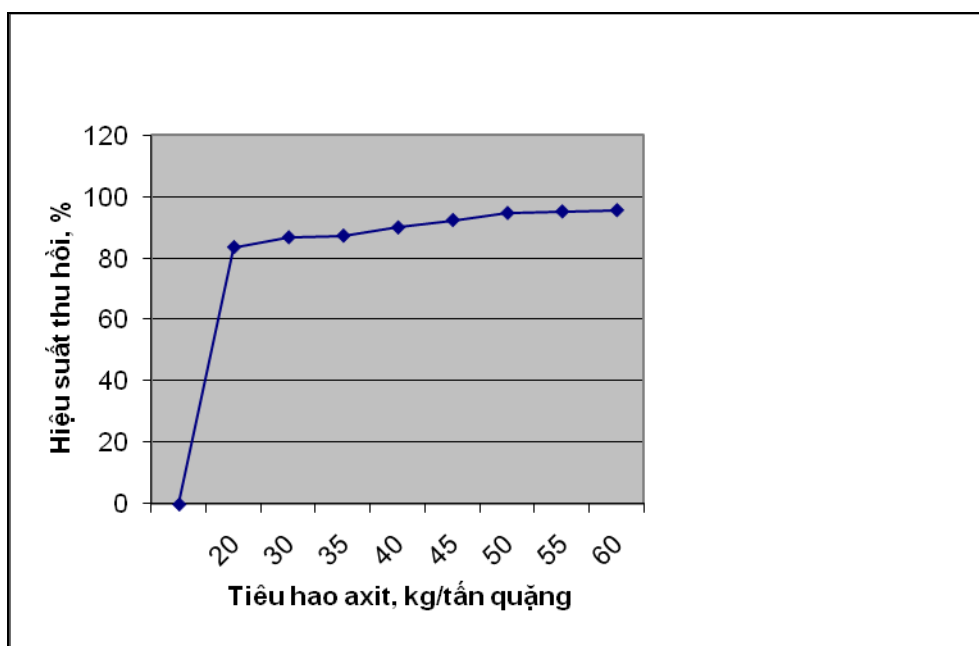
Thí nghiệm trên đạt hiệu suất thu hồi urani tới 95,3% trong khoảng thời gian hoà tách là 24h.

#### **II.2.4. Khảo sát ảnh hưởng của chi phí axit đến hiệu suất thu hồi urani**

Quặng nghiền tới kích thước  $-75\mu m$ .

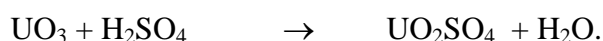
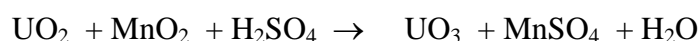
Các thí nghiệm được tiến hành hoà tách trong cùng điều kiện: tỷ lệ R/L = 1/1, thế oxy hoá dung dịch 450 - 500mV, chất oxy hóa 4 kg/tấn, thời gian: 24h. Nồng độ axit  $H_2SO_4$  đối với từng thí nghiệm là 30, 40, 50, 60 kg axit/tấn quặng. Sau 24h, mẫu dung dịch hoà tách được phân tích xác định nồng độ urani để tính hiệu suất thu hồi

Kết quả thực nghiệm về ảnh hưởng của chi phí axit đến hiệu suất thu hồi urani được chỉ ra ở hình 4. Từ kết quả khảo sát, ta thấy chi phí axit thích hợp là 40-45 kg/tấn quặng cho hiệu suất thu hồi urani gần 90%.



Hình 4. Ảnh hưởng của chi phí axit đến hiệu suất thu hồi urani

Trong quặng, urani tồn tại chủ yếu ở hai trạng thái hoá trị là  $UO_3$  và  $UO_2$ . ở trạng thái hoá trị 6 urani có thể tan dễ dàng trong môi trường axit sulfuric theo phản ứng:



Trong dung dịch, ion uranyl tạo thành các phức bền với ion sulfat theo dãy cân bằng động sau:



ở điều kiện hoà tách thông thường thì dung dịch chủ yếu tồn tại dạng  $UO_2(SO_4)_3^{4-}$  và nó chiếm đến 70%.

Hoà tách quặng urani là quá trình nhiều pha không đồng nhất và vận tốc của quá trình được xác định bởi vận tốc chuyển khối tác nhân phản ứng từ thể tích dung dịch tới bề mặt khoáng urani. Trong trường hợp này vận tốc của quá trình hoà tách được biểu diễn bởi phương trình:

$$dC/dx = (C_1 - C_2)/\partial$$

Ở đây:  $dC/dx$ -gradient nồng độ;  $C_1$  - nồng độ tác nhân phản ứng trong thể tích bùn quặng;  $C_2$  nồng độ tác nhân phản ứng trên bề mặt phía trong;  $\delta$  - độ dày lớp khuếch tán.

Như vậy vận tốc của quá trình hoà tách urani tỉ lệ thuận với hệ số chuyển khối, bề mặt tiếp xúc pha, nồng độ tác nhân phản ứng và tỉ lệ nghịch với tổng điện trở khuếch tán. Điều này giải thích vì sao khi tăng nồng độ axit, tăng thời gian hoà tách và giảm kích thước hạt quặng thì hiệu suất hoà tách quặng urani càng lớn.

### III. KẾT LUẬN

- Đã khảo sát ảnh hưởng của các yếu tố trong quá trình hoà tách mẫu quặng urani (U=0,1752%) vùng Pà Lừa bằng phương pháp khuấy trộn. Từ kết quả thực nghiệm cho ta các thông số hoà tách như sau:

+ Kích thước hạt quặng phù hợp cho quá trình hoà tách khuấy trộn khoảng 95% có cấp hạt  $-75\mu\text{m}$ .

+ Chi phí axit sulfuric thích hợp cho quá trình hoà tách: 50 - 55kg/tấn quặng.

+ Chi phí tác nhân oxi hóa  $\text{MnO}_2$ : 4kg/tấn quặng.

+ Thời gian phản ứng: 21 -24h.

sẽ cho hiệu suất thu hồi urani ~ 95%

- Các thông số của quá trình hoà tách khuấy trộn chính là những định hướng quan trọng để nghiên cứu lựa chọn các thông số thích hợp cho quá trình xử lý mẫu công nghệ bằng phương pháp hoà tách đồng.



## TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. IAEA (1990), *Manual on Laboratory Testing for Uranium Ore Processing*.
2. IAEA (1991), *Guidebook on the Development of Projects for Uranium Mining and Ore Processing*
3. Thân Văn Liên (2013), *Xử lý mẫu công nghệ thu nhận urani*, Báo cáo tổng kết Nhiệm vụ KH-CN cấp Nhà nước 2012, Hà Nội.
4. Cao Hùng Thái (2001), *Nghiên cứu lưu trình công nghệ điều chế urani kỹ thuật từ quặng Pà Lừa An Điem*, Báo cáo tổng kết Đề tài KH-CN cấp Bộ, Viện Công nghệ xạ hiêm - Viện Năng lượng nguyên tử Việt Nam, Hà Nội.
5. Cao Đình Thanh (1995), *Hoàn thiện qui trình công nghệ thiết bị thuỷ luyện quặng Urani*, Báo cáo tổng kết Đề tài KH-CN cấp Bộ, Viện Công nghệ xạ hiêm - Viện Năng lượng nguyên tử Việt Nam, Hà Nội.