

XÂY DỰNG QUY TRÌNH HOÀ TÁCH QUẶNG URANI VÙNG NÔNG SƠN BẰNG KỸ THUẬT TRỘN Ủ VỚI AXIT MẠNH

Trịnh Nguyên Quỳnh, Lê Quang Thái, Vũ Khắc Tuấn, Đoàn Thị Mơ, Thân Văn Liên,
Nguyễn Hồng Hà, Bùi Thị Bảy, Trần Văn Sơn, Lê Hồng Hà, Nguyễn Đình Văn

Viện công nghệ xạ hiếm

Email:tnq2007@gmail.com

Tóm tắt

Trong công nghệ chế biến quặng urani, hoà tách là công đoạn rất quan trọng có vai trò quyết định đến toàn bộ quá trình. Hoà tách tĩnh thường được áp dụng với loại quặng nghèo hoặc điểm mỏ nhỏ, bao gồm các kỹ thuật như trộn ủ, thấm tách, ngâm chiết... Ở Việt Nam, quặng urani vùng Nông Sơn là loại quặng nghèo chứa lượng đáng kể loại hình chưa phong hoá có cấu trúc rắn chắc và phong hoá có hàm lượng sét cao nên kỹ thuật trộn ủ quặng với axit mạnh được coi là giải pháp hiệu quả nhất do các đặc tính ưu việt của nó. Quá trình hoà tách gồm hai giai đoạn là trộn, ủ quặng với axit và rửa để thu dung dịch hoà tách. Trong bài báo này chúng tôi trình bày các kết quả nghiên cứu và quy trình hoà tách quặng bằng kỹ thuật trộn ủ với axit mạnh.

Abstract

Leaching is an important stage, which has determinate role over processing of uranium ores. Static leach is one of leaching methods including percolation technique, pugging and curing technique, soaking technique...It is usually applied to treat ore types like low grade or small reserves. In this method, strong acid and oxidant agent are pugged and cured, after that dissolvent salts of uranium is recovered by washing. In this paper, we present results of experiments and technical flowsheet built to treat Nong Son uranium ore.

Key words : Static leach, leachin, uranium.

I. Mở đầu

Quặng urani là nguồn tài nguyên có giá trị, đặc biệt là ứng dụng trong lĩnh vực khoa học và kỹ thuật hạt nhân. Trong những năm vừa qua, sản lượng urani thu được hàng năm trên thế giới đạt khoảng 35.000 tấn/năm, trong đó Canada và Úc chiếm 50% tổng sản lượng.

Công nghệ chế biến quặng urani luôn được quan tâm và phát triển nhằm nâng cao hiệu suất thu hồi đồng thời giảm chi phí sản xuất và giảm tác hại đối với môi trường. Tùy theo từng loại quặng và hàm lượng urani mà người ta lựa chọn áp dụng các quy trình hoà tách thích hợp.

Ở Việt Nam, quặng urani được phát hiện ở một số địa hình khác nhau với các độ tuổi khác nhau. Tập trung chủ yếu ở trung Trung Bộ và Tây Nguyên. Trong đó quan trọng và có giá trị nhất là quặng urani trong cát kết ở vùng trũng Nông Sơn (tỉnh Quảng Nam). Đặc điểm chung của loại quặng này là hàm lượng các nguyên tố quý, hiếm Vd, Mo... không đáng kể nên không cần đặt vấn đề thu hồi, đồng thời chứa lượng không đáng kể các tạp chất Cu, Ni, Mn, Cr..., bên cạnh đó hàm lượng cacbonat 3-6% nên thích hợp cho quá trình hòa tách bằng axit.

Trộn và ủ quặng với axit có nghĩa là trộn đều quặng với axit mạnh sau đó ủ trong một thời gian nhất định để axit phản ứng với các khoáng chứa urani sau đó rửa bã quặng bằng dung dịch axit loãng để thu uran ở dạng dung dịch hoà tách. Kỹ thuật này có một số ưu điểm như axit được phân bố đồng đều trong khối quặng, nhiệt độ sinh ra và nồng độ axit cao tạo điều kiện thuận lợi

cho phản ứng hòa tan, rút ngắn thời gian hòa tách so với kỹ thuật hòa tách thấm. Trong thời gian qua, chúng tôi đã thử nghiệm hòa tách mẫu quặng cát kết khu vực Pà Lừa (thuộc vùng bồn trũng Nông Sơn) bằng kỹ thuật trộn ủ. Sau khi khảo sát các yếu tố ảnh hưởng tới hiệu suất hòa tách urani, một quy trình công nghệ hòa tách hoàn chỉnh đã được xây dựng và hoàn thiện.

II. Đối tượng nghiên cứu [1,2]

Mẫu quặng được sử dụng để thử nghiệm phần lớn gồm loại quặng dạng đá cục (các loại hình chưa phong hóa và bán phong hóa) và một phần dạng bột (loại hình phong hóa). Phần đá cục trước khi đưa vào hòa tách cần được đập để giảm cỡ hạt đến kích thước nhất định.

Khoáng vật chủ yếu của quặng là quartz (SiO_2), albite ($\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$), glauconite ($(\text{K,Na})(\text{Fe}^{+3},\text{Al,Mg})_2(\text{Si,Al})_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2$), calcite (CaCO_3), kaolinite ($\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$), sericite ($\text{K}_2\text{O}.3\text{Al}_2\text{O}_3.6\text{SiO}_2.2\text{H}_2\text{O}$), illite ($(\text{KH}_3\text{O})\text{Al}_2\text{Si}_3\text{AlO}_{10}(\text{OH})_2$), siderite (FeCO_3), sphene ($\text{CaO.SiO}_2.\text{TiO}_2$). Khoáng chứa urani chủ yếu là nasturan ($(\text{U,Th})\text{O}_2.(0,5-3)\text{UO}_3.x\text{PbO}$).

Thành phần hóa học chính của quặng là silic, nhôm, sắt, các kim loại kiềm, kiềm thổ và nhiều tạp chất khác. Hàm lượng urani trung bình của quặng là 0,0422%, thuộc mức hàm lượng trung bình của khu vực Pà Lừa (xem bảng 1). Tuy nhiên, nếu phân tích riêng từng loại hình thì hàm lượng urani trong quặng chưa phong hóa là 0,0529%, bán phong hóa là 0,0578% và phong hóa chỉ có 0,016%

Bảng 1. Thành phần hoá học chính của mẫu quặng nghiên cứu

Số TT	Nguyên tố	Thành phần (%)
1	U	0,0422
2	SiO_2	75,63
3	Al	5,65
4	K	1,93
5	Fe	1,11
6	Ca	0,46

III. Kết quả nghiên cứu và thảo luận

1. Kết quả một số nghiên cứu khảo sát các yếu tố ảnh hưởng tới hiệu suất hòa tách urani [2]

Hòa tách quặng là một quá trình dị thể, do đó nó bao gồm các quá trình hóa học (phản ứng hòa tan của các khoáng) và các quá trình khuếch tán tác nhân và sản phẩm phản ứng (trong và ngoài). Các quá trình này đều có thể có tính quyết định toàn bộ quá trình hòa tách tùy thời điểm. Chính vì vậy, ngoài việc khảo sát các yếu tố ảnh hưởng tới phản ứng hóa học (chi phí axit, chất oxy hóa, độ âm, thời gian hòa tách,...) cần phải khảo sát các yếu tố ảnh hưởng tới sự khuếch tán (độ hạt, sự phân bố dung dịch trong lớp quặng,...). Trong khuôn khổ báo cáo này chúng tôi chỉ đưa ra một số kết quả về sự ảnh hưởng của một số yếu tố nổi bật.

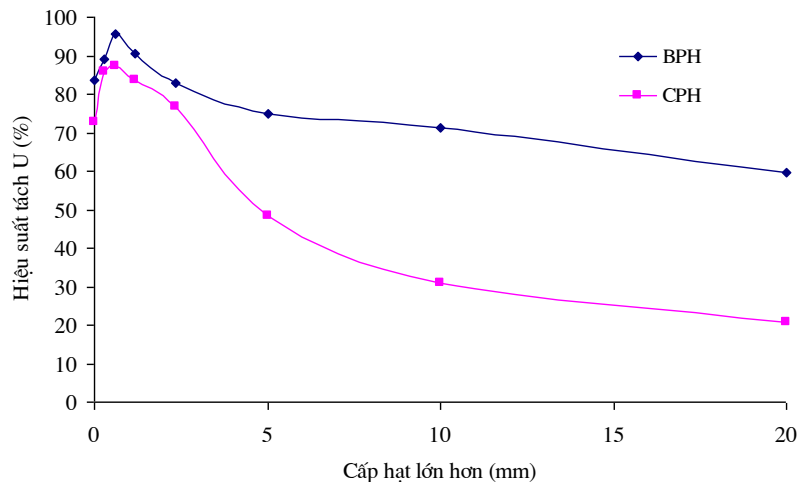
Với quặng dạng cục, đã khảo sát ảnh hưởng của cỡ hạt tới hiệu suất hòa tách urani để có thể lựa chọn cỡ hạt thích hợp. Các số liệu về hiệu suất hòa tách urani bằng trộn ủ với các cỡ hạt khác nhau thì rất khác nhau (hình 1). Nếu cỡ hạt càng lớn thì hiệu suất càng thấp, đặc biệt loại hình chưa phong hóa. Rõ ràng là kích thước hạt lớn đã làm giảm sự khuếch tán tác nhân và sản phẩm phản ứng ở các mao quản trong hạt quặng. Ngược lại, nếu quặng quá mịn thì hiệu suất hòa tách lại có xu hướng giảm đi. Điều này có thể do, ở các cấp này, nhiều khoáng chứa tạp dễ dàng

tan và tạo ra các sản phẩm dạng rắn có khả năng hấp phụ urani trở lại. Khoảng kích thước hạt phù hợp nhất để trộn ủ là 0,3 - 2,36 mm. Tuy nhiên, rất khó thu được quặng có cỡ hạt này vì nếu đập tới -2,36 mm sẽ có rất nhiều hạt quặng quá mịn nên quặng dạng cục được đập tới cấp -10 mm là chấp nhận được. Phần quặng bột (phong hóa) thì không cần qua công đoạn đập.

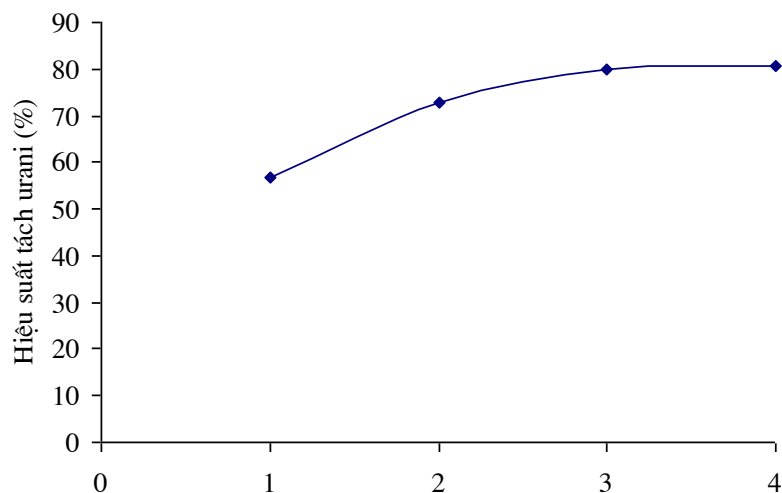
Trong các nghiên cứu quy mô phòng thí nghiệm trước đây, $KClO_3$ thường được sử dụng làm chất oxy hóa để chuyển U(IV) thành U(VI) do chúng là tác nhân rất tốt. Tuy nhiên, trong quá trình trộn quặng với axit mạnh nó sinh ra nhiều khí clo, rất độc ảnh hưởng trực tiếp cho người thực hiện và môi trường xung quanh nếu không tiến hành trong tủ hút. Vì vậy, chúng tôi đã chấp nhận sử dụng bột MnO_2 như khi hòa tách bằng khuấy trộn. Hình 2 đưa ra kết quả khảo sát ảnh hưởng của chi phí MnO_2 tới hiệu suất hòa tách urani với loại hình quặng chưa phong hóa (loại chứa nhiều U(IV) nhất) có cỡ hạt -10 mm. Số liệu cho thấy rằng, hòa tách trộn ủ cũng có thể sử dụng MnO_2 được do chúng có thể phân bố đều trong khối quặng khi trộn và chi phí MnO_2 thích hợp là 3 kg/tấn quặng.

Khi khảo sát ảnh hưởng của chi phí axit tới hiệu suất hòa tách urani đối với các loại hình khác nhau cho thấy chi phí axit lớn nhất thuộc về loại hình chưa phong hóa (lên tới 50 kg/tấn quặng) do loại hình này chứa nhiều khoáng cacbonat, tiếp theo là loại bán phong hóa (35 kg/tấn quặng) và thấp nhất là phong hóa (30 kg/tấn quặng). Tuy nhiên khi thử nghiệm với mẫu chung thì chi phí axit phù hợp là 40 kg/tấn quặng, cao hơn mức trung bình.

Một yếu tố quan trọng trong kỹ thuật trộn ủ là thời gian ủ. Cần phải có thời gian thích hợp để sau khi ủ, urani đã hòa tan hết vì sau đó khi rửa bã quặng chỉ sử dụng axit rất loãng (chủ yếu để duy trì môi trường axit tránh sự tái kết tủa urani). Theo số liệu ở bảng 2 đối với mẫu quặng chung gồm cả cục đã đập và bột có cỡ hạt -10 mm thì thấy rằng với cỡ hạt này thời gian ủ cần thiết là 3 ngày. Thời gian ủ càng nhiều thì hiệu suất hòa tách càng giảm do trong quá trình trộn và



Hình 1. Sự phụ thuộc hiệu suất thu hồi urani vào cỡ hạt của các loại quặng



Hình 2. Chi phí MnO_2 (kg/tấn quặng)

ủ, các hạt quặng vỡ ra nhiều nên tạo điều kiện cho các khoáng tan ra làm nồng độ các nguyên tố tăng đạt trạng thái quá bão hòa dẫn đến kết tinh làm tắc mao quản và khó rửa.

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

Thời gian ủ (ngày)	2	3	4	5	6
Hiệu suất hoà tách U (%)	72,4	80,1	74,8	67,2	65,8

Khi khảo sát ảnh hưởng của độ ẩm tới hiệu suất hòa tách urani đã thấy rằng, độ ẩm thích hợp cho giai đoạn trộn và ủ là 14,2%. Tuy nhiên, với độ ẩm này nếu tạo đồng ngay khối quặng sau khi trộn thì khối quặng (rất nhão) sẽ bị nén chặt và cứng lại rất khó khăn khi rửa làm giảm hiệu suất hòa tách nên một giải pháp đã đưa ra là sau khi trộn, quặng được đổ vào một đồng khác và khi ủ xong mới chuyển vào bể rửa, lúc đó khối quặng được đánh tơi trở lại thuận lợi cho quá trình rửa. Giải pháp này đảm bảo được hiệu suất hòa tách nhưng chi phí thêm nhân công vận chuyển và diện tích mặt bằng. Gần đây chúng tôi đã cải tiến thành công bằng cách khi trộn quặng, chỉ duy trì độ ẩm khoảng 8 - 9%, lúc đó khối quặng đủ tơi xốp để tạo đồng ngay (thực tế đã có cơ sở sản xuất urani trên thế giới áp dụng). Để đảm bảo độ ẩm cần thiết, sau khi ủ được 1 ngày thì tưới bổ sung dung dịch axit và ủ tiếp.

Ngoài ra, kết quả thực nghiệm cho thấy kỹ thuật trộn ủ có một số đặc điểm có thể sẽ chiếm lợi thế hơn so với hòa tách thấm. Đó là:

- Khi trộn, các cấp hạt quặng phân bố tương đối đồng đều trong toàn khối và khi đổ vào đồng chúng cũng không bị phân lớp do quặng đã ẩm trong khi đó nếu tạo đồng quặng khô như hòa tách thấm thì chắc chắn có khu vực chứa nhiều quặng thô và có khu vực nhiều quặng mịn dẫn đến sự phân bố dung dịch khi tưới dung dịch vào đồng sẽ không đồng đều làm giảm hiệu suất hòa tách;
- Khi trộn ủ với axit mạnh hầu như không sinh ra hạt mịn mặc dù các hạt quặng vỡ nhiều. Điều này có thể do các sản phẩm sinh ra trong quá trình hòa tan một số khoáng ở dạng rắn có vai trò như chất kết dính để liên kết các hạt mịn với các hạt khác. Điều này sẽ hạn chế được khả năng tắc dòng dung dịch khi rửa;
- Thể tích nước sử dụng cho 1 mẻ hoà tách nhỏ, 1 tấn quặng chỉ đòi hỏi khoảng 0,5 m³ nước và không cần tuần hoàn dung dịch vì thế giảm được số lượng bồn chứa dung dịch trung gian;
- Tổng thời gian hòa tách ngắn (chỉ khoảng 11 ngày bao gồm trộn, ủ và rửa).

2. Xây dựng quy trình hòa tách bằng kỹ thuật trộn ủ [1,2,3,4,5]

Sơ đồ công nghệ hoà tách quặng bằng kỹ thuật trộn ủ đã thử nghiệm để đưa ra quy trình được mô tả trong hình 3. Theo sơ đồ này, hoà tách gồm các công việc như trộn quặng với các tác nhân (axit, chất oxy hoá, nước), ủ và sau đó rửa để thu dung dịch hoà tách.

Dưới đây là một số thông số chính và trình tự các thao tác tiến hành khi hoà tách bằng kỹ thuật trộn ủ đối với mẫu quặng chung (không phân biệt loại hình).

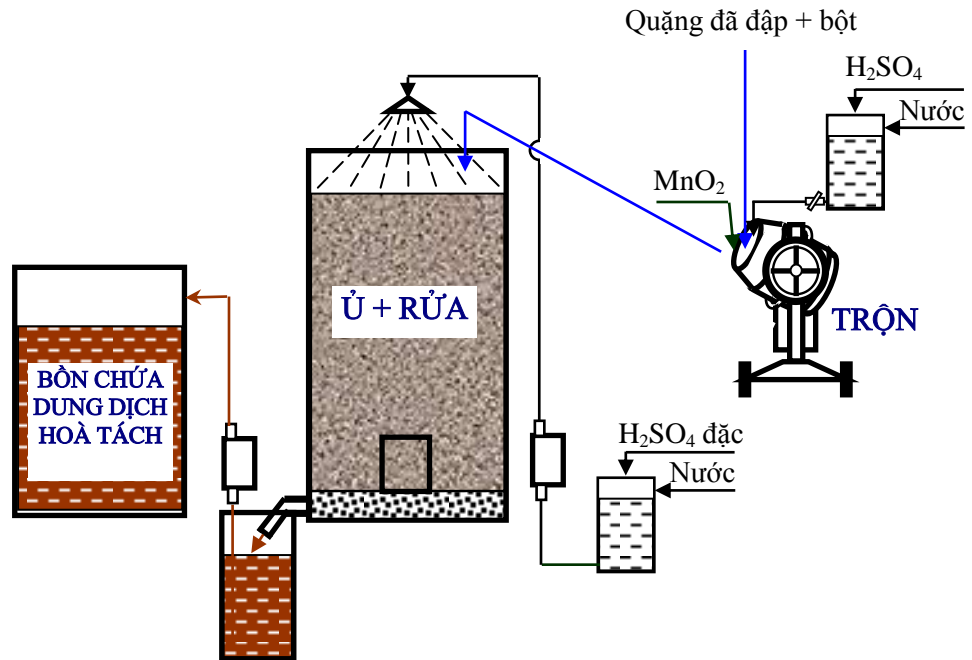
- Tổng khối lượng quặng/mẻ hoà tách: 3.008 kg;
- Khối lượng quặng/mẻ trộn: 188 kg (phù hợp với năng suất của máy trộn được sử dụng);
- Các nguyên liệu khác: axit sulfuric (KT, 96%), MnO₂ (KT, 75%) và nước sinh hoạt;
- Số mẻ trộn: 16 mẻ;

Quy trình thao tác gồm các bước:

- 1) Pha dung dịch axit sulfuric (pha chung cho 8 mẻ trộn): cho 110 lít nước vào thùng phuy (dung tích 220 lít). Sau đó cho thật từ từ 45 kg axit sulfuric đặc (kỹ thuật) vào và khuấy đều. Chia đều dung dịch cho 8 mẻ trộn. Khi hết dung dịch lại pha tiếp lần 2 cho đủ mẻ hoà tách.
- 2) Cân 62, 7 kg quặng cho vào máy trộn. Cân tiếp 0,75 kg MnO_2 (kỹ thuật 75%). Trong khi máy trộn được bật, rải đều bột MnO_2 vào bề mặt lớp quặng và trộn khô trong khoảng 4 phút.

- 3) Bổ sung từ từ dung dịch axit đã pha ở bước 1 (với thể tích đã được chia) vào máy trộn và trộn trong 8 phút thì dừng máy và đổ ra.

- 4) Chuyển khối quặng đã trộn vào bể hoà tách (chú ý khi đổ vào bể cần đồ nhẹ nhàng và không dẫm lên lớp quặng để tránh lớp quặng bị nén không đều).



Hình 3. Sơ đồ công nghệ hoà tách quặng bằng kỹ thuật trộn ủ

- 5) Tiến hành trộn như vậy với tổng số mẻ trộn là 16.
- 6) Sau khi ủ 24 giờ thì bơm dung dịch axit (dung dịch gồm 30 kg axit + 74 lít nước) vào lớp quặng trong bể để đảm bảo đủ độ ẩm và axit, sau đó ủ tiếp 2 ngày đêm nữa.
- 7) Rửa thu dung dịch hoà tách: bơm dung dịch axit vào bể, mỗi lần bơm 200 lít dung dịch). Sau khi dung dịch chảy hết khỏi bể (thường để 1 ngày đêm) thì thu dung dịch vào thùng chứa dung dịch hoà tách chung) và bắt đầu tiến hành rửa lần tiếp theo. Việc rửa bã được tiến hành đến khi nồng độ urani trong dung dịch chỉ khoảng vài phần nghìn gam/lít. Lần cuối cùng rửa bằng nước thường (số lần rửa là 8 lần).

Công việc cấp dung dịch vào bể đều được thực hiện bằng cách bơm với lưu lượng 2 lít/phút qua bộ phận phân phối dòng dạng phun mưa trên khắp bề mặt lớp quặng.

Tổng thời gian hoà tách cần thiết từ lúc trộn đến lần rửa cuối cùng là 11 ngày.

Thực hiện theo quy trình này trên hệ thiết bị hiện có đạt được hiệu suất thu hồi urani tới 78%, thấp hơn một chút so với kết quả từ các thí nghiệm nhỏ. Điều này cũng dễ hiểu vì khi tiến hành hoà tách trên thiết bị có tiết diện. bề mặt càng lớn thì vai trò của sự phân bố dòng dung dịch trong lớp quặng mới thể hiện rõ. Nếu sự phân bố các cấp hạt không đồng đều ở mọi điểm trong đồng quặng thì có hiện tượng khu vực quặng nào đó mà dung dịch đi qua nhiều thì rửa tốt, còn

khu vực khác thì không tốt làm giảm hiệu suất rửa. Các bước thao tác theo quy trình đơn giản, dễ thực hiện nên có thể áp dụng được ở quy mô lớn hơn.

IV. Kết luận và kiến nghị

- Đã khảo sát một số yếu tố quan trọng ảnh hưởng tới hiệu suất hoà tách urani như độ hạt, chi phí axit, chi phí chất ôxy hoá, thời gian ủ.
- Trên cơ sở các số liệu thực nghiệm đã xây dựng thành công quy trình công nghệ hoà tách quặng bằng kỹ thuật trộn ủ ở quy mô 3tấn/mẻ. Theo quy trình này có thể đạt được hiệu suất hoà tách urani khoảng 78%. Đây là một quy trình đơn giản, dễ thao tác nên có thể sử dụng được khi triển khai ở quy mô lớn hơn.
- Ngoài ra, đã rút ra được một số nhận xét về ưu điểm của kỹ thuật trộn ủ làm cơ sở trong việc lựa chọn kỹ thuật hoà tách trong thời gian tới.
- Thời gian tới chúng tôi tiếp tục nghiên cứu mở rộng và hoàn thiện quy mô lớn hơn nhằm nâng cao hiệu suất làm việc đồng thời giảm chi phí thực hiện.
- Trong quá trình tiến hành thực nghiệm cần chú ý đến một số thao khác như khi gia công mẫu để đạt kích thước phù hợp, trộn mẫu phải đồng đều, tránh làm nén chặt khối quặng trước khi tưới rửa. Bên cạnh đó, khi đập quặng cũng phát sinh nhiều bụi nguy hiểm nên cần có hệ thống xử lý bụi cũng như các biện pháp đảm bảo an toàn cho người làm việc.

Tài liệu tham khảo

- [1] 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*, Báo cáo tổng kết Đề tài KHCN cấp Bộ 2006-2007 mã số BO/06/03-01, 2008;
- [2] 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*, Các kết quả nghiên cứu Đề tài KHCN cấp Bộ 2008-2009 mã số ĐT/05-08/NLNT, 2010
- [3] IAEA (1980), *Significance of Mineralogy in the Development of Flowsheets for Processing Uranium Ores*, Technical reports series No. 196, Vienna.
- [4] IAEA (1990), *Manual on Laboratory Testing for Uranium Ore Processing*, Austria, pages 61 - 85.