

Nghiên cứu phương pháp hòa tách khuấy trộn để xử lý quặng urani vùng Pà Lừa - Pà Rông, so sánh với phương pháp hòa tách đồng

Trần Thế Định*, Thân Văn Liên, Phạm Minh Tuấn, Lê Quang Thái, Vũ Khắc Tuấn, Phạm Thị Thủy Ngân, Nguyễn Hồng Hà, Lê Thị Hồng Hà, Trương Thị Ái, Nguyễn Quốc Hoàn, Hà Đình Khai

Viện Công nghệ xạ hiếm, Viện Năng lượng nguyên tử Việt Nam

Ngày nhận bài 4/10/2017; ngày chuyển phân biện 6/10/2017; ngày nhận phân biện 10/11/2017; ngày chấp nhận đăng 15/11/2017

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. Tuỳ thuộc vào từng đối tượng quặng và cấp hàm lượng urani mà người ta lựa chọn áp dụng các công nghệ hòa 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. 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, các tác giả trình bày kết quả khảo sát các yếu tố ảnh hưởng đến hiệu suất thu hồi urani từ quặng (U = 1,188%) vùng Pà Lừa - Pà Rông (tỉnh Quảng Nam) theo phương pháp hoà tách khuấy trộn bằng axit sunfuric. Các kết quả của nghiên cứu này đã được so sánh với các kết quả nghiên cứu xử lý quặng urani bằng phương pháp hòa tách đồng.

Từ khóa: Hoà tách đồng, hòa tách khuấy trộn, quặng urani.

Chỉ số phân loại: 2.4

Đặt vấn đề

Trong chu trình nhiên liệu hạt nhân, hoà tách quặng urani là một trong những công đoạn quan trọng nhất. Mục tiêu của quá trình hoà tách là chuyển hóa chọn lọc và triệt để urani từ quặng vào dung dịch [1-3]. Trong những năm qua, Viện Công nghệ xạ hiếm đã tiến hành các nghiên cứu công nghệ hoà tách quặng cát kết vùng Pà Lừa và đã đạt được những kết quả nhất định. Quặng cát kết vùng Pà Lừa - Pà Rông (tỉnh Quảng Nam) là loại quặng nghèo, hàm lượng urani trung bình chỉ nằm trong khoảng 0,03-0,08% U_3O_8 . Tuy nhiên, cũng có những điểm quặng có hàm lượng urani tương đối cao, do vậy cần lựa chọn phương pháp hoà tách thích hợp để xử lý quặng urani, có thể áp dụng vào thực tế sản xuất sao cho đảm bảo tính khả thi và kinh tế [3-5]. Quá trình hoà tan urani vào dung dịch phụ thuộc vào các yếu tố sau: Cỡ hạt quặng, nồng độ axit, lượng chất oxy hóa và thời gian hoà tách.

Bài báo trình bày kết quả nghiên cứu ảnh hưởng của các yếu tố chính như kích thước hạt, lượng chất oxy hóa, thời gian hoà tách, chi phí axit đến hiệu suất hoà tách quặng urani bằng phương pháp khuấy trộn để từ đó lựa chọn các thông số tối ưu cho quá trình hoà tách.

Phương pháp nghiên cứu

Mẫu quặng urani có hàm lượng U = 1,188%; Fe = 2,154%. Để 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, chúng tôi đã tiến hành các bước thực nghiệm như sau:

Ảnh hưởng của kích thước hạt đến hiệu suất thu hồi urani: Mẫu quặng được nghiền với độ mịn nghiền 95% (sử dụng bộ rây tiêu chuẩn Cole - Parmer USA) các cấp hạt -75 μm , -105 μm , -150 μm , -212 μm . Cân 500 g quặng cho vào cốc thủy tinh 1 lít, cho tiếp 500 ml nước vào cốc. Khuấy đều trên thiết bị khuấy với tốc độ 200 vòng/phút ở nhiệt độ phòng. Bổ sung từ từ axit sunfuric đặc (đã nạp trong buret với thể tích xác định và duy trì pH = 1,0 sao cho mức chi phí axit là 40 kg/tấn quặng). Sau khoảng 30 phút, dùng thìa rắc từ từ bột MnO_2 (85,2%, Trung Quốc) với chi phí 2 kg/tấn quặng. Tiếp tục khuấy thêm 12 h rồi tắt máy, lọc, rửa bã bằng axit H_2SO_4 loãng 0,1%. Thu và xác định thể tích toàn bộ dung dịch trong quá trình hoà tách. Phân tích nồng độ urani trong dung dịch để xác định hiệu suất thu hồi urani tương ứng với từng cấp hạt.

*Tác giả liên hệ: Tel: 0908422712

A research on processing PaLua - PaRong uranium ore by agitation leaching method, compared with heap leaching method

The Dinh Tran*, Van Lien Than, Minh Tuan Pham, Quang Thai Le,
Khac Tuan Vu, Thi Thuy Ngan Pham, Hong Ha Nguyen,
Thi Hong Ha Le, Thi Ai Truong, Quoc Hoan Nguyen, Dinh Khai Ha

Institute for Technology of Radioactive and Rare Elements, Vietnam Atomic Energy Institute

Received 4 October 2017; accepted 15 November 2017

Abstract:

Technologies for uranium ore processing have been studied and applied at industrial scale in many countries, yet being studied further to improve uranium recovery yield, assure economic effectiveness, and restrain hazardous effects on the environment. Depending on the kind of ores and uranium content, a suitable leaching technology would be selected. The Institute for Technology of Radioactive and Rare Elements (ITRRE) has been studying leaching methods to obtain the high recovery efficiency of uranium. Agitation leaching was the first selection to determine optimum conditions, i.e. acid consumption, amount of oxidant, etc to obtain the highest recovery efficiency. In this article, the optimum parameters for processing uranium ore (U = 1.188%) from the PaLua - PaRong area (Quang Nam province) by agitation leaching method using sulfuric acid were presented. The obtained data of the agitation leaching were compared with those of heap leaching technology.

Keywords: Agitation leaching, heap leaching, uranium ore.

Classification number: 2.4

Ảnh hưởng của chi phí chất oxy hoá đến hiệu suất thu hồi urani: Mẫu quặng được nghiền với độ mịn nghiền 95% cấp hạt -75 μm . Cân 500 g cho vào cốc thủy tinh 1 lít, cho tiếp 500 ml nước vào cốc. Khuấy đều trên thiết bị khuấy với tốc độ 200 vòng/phút ở nhiệt độ phòng. Bổ sung từ từ axit sunfuric đặc (đã nạp trong buret với thể tích xác định và duy trì pH = 1,0; chi phí axit 40 kg/tấn quặng). Sau khoảng 30 phút, dùng thìa rắc từ từ bột MnO_2 (85,2%, Trung Quốc) với chi phí 0, 1, 2, 3 kg/tấn quặng. Khuấy trong 12 h rồi tắt máy, lọc, rửa bã. Thu và xác định thể tích toàn bộ dung dịch trong quá trình. Xác định hiệu suất thu hồi urani tương ứng với từng mức chi phí chất oxy hóa.

Ảnh hưởng của thời gian hòa tách đến hiệu suất thu hồi urani: Mẫu quặng được nghiền với độ mịn nghiền 95% cấp hạt -75 μm . Cân 500 g cho vào cốc thủy tinh 1 lít, cho tiếp 500 ml nước vào cốc. Khuấy đều trên thiết bị khuấy với tốc độ 200 vòng/phút ở nhiệt độ phòng. Bổ sung từ từ axit sunfuric đặc (đã nạp trong buret với thể tích xác định và duy trì pH = 1,0; chi phí axit 40 kg/tấn quặng). Sau khoảng 30 phút, dùng thìa rắc từ từ bột MnO_2 (85,2%, Trung Quốc) với chi phí 2 kg/tấn. Sau các khoảng thời gian hóa tách 3, 6, 9, 12, 15, 18, 21, 24, 28 h thì tắt máy, lọc, rửa bã. Thu và xác định thể tích toàn bộ dung dịch trong quá trình. Xác định hiệu suất thu hồi urani tương ứng với từng thời gian hòa tách.

Ảnh hưởng của chi phí axit đến hiệu suất thu hồi urani: Mẫu quặng được nghiền với độ mịn nghiền 95% cấp hạt -75 μm . Cân 500 g cho vào cốc thủy tinh 1 lít, cho tiếp 500 ml nước vào cốc. Khuấy đều trên thiết bị khuấy với tốc độ 200 vòng/phút ở nhiệt độ phòng. Bổ sung từ từ axit sunfuric đặc (đã nạp trong buret với thể tích xác định và duy trì pH = 1,0; chi phí axit từ 20, 25, 30, 35, 40, 45, 50, 55 kg/tấn quặng). Sau khoảng 30 phút, dùng thìa rắc từ từ bột MnO_2 (85,2%, Trung Quốc) với chi phí 2 kg/tấn. Khuấy trong 18 h rồi tắt máy, lọc, rửa bã. Thu và xác định thể tích toàn bộ dung dịch trong quá trình. Xác định hiệu suất thu hồi urani tương ứng với từng mức chi phí axit.

Hàm lượng urani trong quặng, trong dung dịch và trong bã quặng sau hòa tách được phân tích bằng phương pháp ICP-MS Agilent USA 7500a tại Phòng thí nghiệm VILAS 524 thuộc Trung tâm Phân tích, Viện Công nghệ xạ hiếm.

Hiệu suất hòa tách urani được xác định 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.

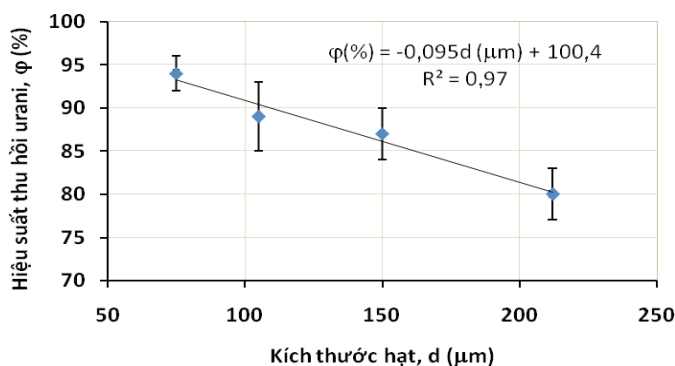
Kết quả và thảo luận

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

Thực tế các khoáng urani thường bị bao bọc bởi các khoáng đá không quặng, vì vậy việc gia công cơ học là nhằm giải phóng các khoáng urani khỏi vỏ bọc của đá không quặng, đồng thời giảm kích thước hạt quặng. Quá trình hòa tách quặng có thể được xem như tổ hợp của năm giai đoạn vật lý và hóa học như sau: Giai đoạn thứ nhất là ngoại khuếch tán tác nhân hòa tan urani (ion H^+) từ môi trường dung dịch đến lớp đúp là miền chuyển tiếp giữa dung dịch và bề mặt hạt quặng. Giai đoạn thứ hai là khuếch tán ion H^+ qua lớp đúp đến bề mặt hạt quặng. Giai đoạn thứ ba là khuếch tán ion H^+ vào bên trong hạt quặng. Giai đoạn thứ tư là quá trình hòa tan urani bằng ion H^+ . Giai đoạn thứ năm là khuếch tán ion uranyl đã hòa tan từ trong lòng hạt quặng qua lớp đúp vào dung dịch. Vì hòa tách được tiến hành bằng phương pháp khuấy trộn nên có thể khẳng định rằng, trong năm giai đoạn liên tiếp nêu trên thì giai đoạn nội khuếch tán ion uranyl từ bên trong hạt quặng (nội khuếch tán) ra dung dịch là có tốc độ thấp nhất, quyết định động học của cả quá trình hòa tách. Bởi vậy, trong công nghệ hòa tách khuấy trộn thì kích thước hạt quặng có ý nghĩa quan trọng quyết định hiệu suất của toàn bộ quá trình.

Việc xác định kích cỡ hạt quặng cần nghiên cứu có ý nghĩa rất quan trọng, nó quyết định khả năng tách urani ra khỏi quặng (như trình bày ở trên). Nếu nghiền quá mịn thì mặc dù hiệu suất hoà tách có thể tăng lên một chút nhưng vấn đề phân chia rắn - lỏng (bùn - dung dịch hòa tách) sẽ rất khó khăn, đồng thời chi phí cho việc nghiền cũng tăng lên rất nhiều. Vì vậy, cần lựa chọn được cỡ hạt thích hợp để tiến hành hòa tách sao cho vừa đảm bảo được hiệu suất thu hồi urani cao, vừa không gây ảnh hưởng đến các quá trình tiếp theo.

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

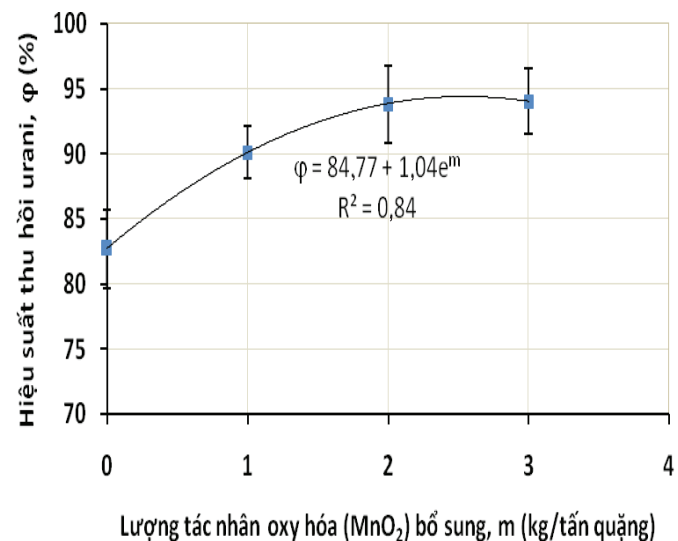


Hình 1. Ảnh hưởng của kích thước hạt đến hiệu suất thu hồi urani.

Từ kết quả thực nghiệm được chỉ ra ở hình 1 cho thấy, kích cỡ hạt quặng càng nhỏ thì hiệu suất thu hồi càng cao. Tuy nhiên thực tế cho thấy, khi kích thước hạt quá nhỏ thì hiệu suất tách sắt cũng tăng nhanh so với urani, tính chọn lọc của hòa tách giảm đi. Vì vậy, cỡ hạt quặng thích hợp cho quá trình hoà tách urani là $-75 \mu m$.

Ảnh hưởng của lượng chất oxy hoá đến hiệu suất thu hồi urani

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

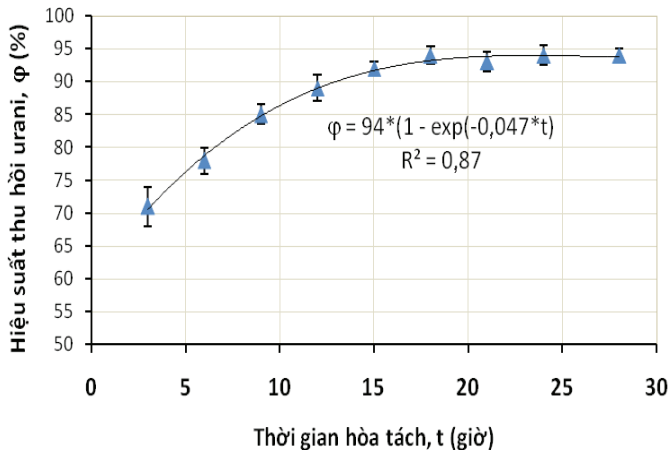


Hình 2. Ảnh hưởng của lượng chất oxy hoá đến hiệu suất thu hồi urani.

Từ kết quả thực nghiệm cho thấy: Trong khoảng thế oxy hóa khử 450-530 mV, tương đương mức chi phí chất oxy hóa (MnO_2) là 2 kg/tấn quặng, 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. Từ kết quả thực nghiệm cho thấy, chi phí chất oxy hoá được chọn là 2 kg/tấn quặng, vừa đạt hiệu suất thu hồi urani cao, vừa 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 trong công đoạn tinh chế urani bằng trao đổi ion và chiết.

Ảnh hưởng của thời gian hòa tách đến hiệu suất thu hồi urani

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

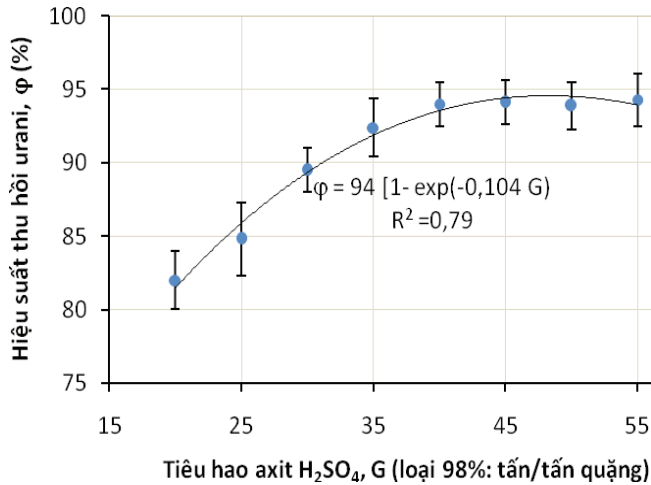


Hình 3. Ảnh hưởng của thời gian hòa tách đến hiệu suất thu hồi urani.

Từ kết quả khảo sát cho thấy, thời gian phản ứng là 18 h cho hiệu suất thu hồi urani đạt 94,0%.

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

Kết quả thực nghiệm về ảnh hưởng của chi phí axit đến hiệu suất thu hồi urani được chỉ ra ở hình 4.



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

Từ kết quả khảo sát cho thấy, chi phí axit thích hợp là 40 kg/tấn quặng cho hiệu suất thu hồi urani đạt 94,0%.

So sánh phương pháp hòa tách khuấy trộn với phương pháp hòa tách đồng

Nhóm tác giả đã tiến hành thử nghiệm hoà tách quặng urani vùng Pà Lừa - Pà Rông theo phương pháp hòa tách đồng để có thông số so sánh với kết quả hòa tách khuấy trộn ở trên. Thí nghiệm được tiến hành trên cột hoà tách bằng nhựa PVC (đường kính 0,105 m và chiều cao 1,2 m). Quặng urani (1,188% U) được đập, nghiền và sàng đến kích thước

< 1 cm. Nạp 10 kg quặng (cỡ hạt < 1 cm) đã agglomerat hóa vào cột. Dùng bơm định lượng tưới dung dịch axit sunfuric có nồng độ 50 g/l vào đỉnh cột với tốc độ 30 l/m²/h. Mốc tính thời gian hoà tách là thời điểm pha lỏng đi ra khỏi đầu dưới của cột. Tưới đến khi nào dung dịch ló ra ở đáy cột có pH < 1 thì dừng, để chảy hết qua 1 ngày thì tưới tiếp. Xác định thể tích tưới và thu, nồng độ urani trong mỗi lần tưới để tính hiệu suất thu hồi urani sau mỗi lần tưới (thể tích tưới là lượng dung dịch axit sunfuric tưới từ trên đỉnh cột quặng được tính từ lúc bắt đầu tưới đến khi kết thúc tưới, còn thể tích thu là lượng dung dịch thu được ở dưới đáy cột sau khi để cột chảy hết của mỗi lần tưới).

Tiến hành hòa tách khi bơm toàn bộ dung dịch axit đã chuẩn bị và thu dung dịch đã chảy qua cột làm dung dịch hòa tách. Rửa bằng dung dịch axit sunfuric loãng (0,1%). Xác định thể tích dung dịch hòa tách và dung dịch rửa, phân tích hàm lượng urani, sắt trong dung dịch và bã quặng để tính hiệu suất thu hồi urani. Kết quả so sánh các thông số của quá trình được chỉ ra ở bảng 1.

Bảng 1. So sánh các thông số của quá trình hoà tách quặng vùng Pà Lừa - Pà Rông bằng phương pháp hòa tách khuấy trộn và hòa tách đồng.

Các thông số	Hòa tách đồng	Hòa tách khuấy trộn
Kích thước quặng ban đầu	≤ 1 cm	≤ 75 μm
Tiêu hao axit H ₂ SO ₄ , kg/tấn quặng	45-50	40
Tiêu hao chất ô xy hoá MnO ₂ , kg/tấn quặng	4	2
Nồng độ U trong dung dịch hòa tách, g/l	1,0-1,6	5-8
Nồng độ Fe trong dung dịch hòa tách, g/l	8-11	1-2
Hiệu suất thu hồi urani, %	80,2	94,0

Do phương pháp hòa tách khuấy trộn yêu cầu kích thước hạt quặng nhỏ hơn rất nhiều, nên khi bổ sung axit, chất oxy hóa lại phải khống chế pH và thể oxy hóa khử ở mức độ nhất định. Vì vậy, phương pháp hòa tách khuấy trộn có ưu điểm là nồng độ urani trong dung dịch sau hòa tách và hiệu suất thu hồi urani cao hơn; tiêu hao axit, chất oxy hóa và nồng độ sắt thấp hơn khi so với phương pháp hòa tách đồng vì trong hòa tách đồng sử dụng axit sunfuric có nồng độ cao ngay từ ban đầu [3]. Chính vì nồng độ sắt trong dung dịch hòa tách thấp nên giai đoạn làm giàu, làm sạch dung dịch urani tiếp theo sẽ thuận lợi hơn. Tuy nhiên, hòa tách quặng có hàm lượng urani thấp, thấp hơn 1% theo U₃O₈, bằng công nghệ đánh đồng sẽ có hiệu quả hơn so với hòa tách khuấy trộn. Hòa tách khuấy trộn có hiệu quả cao khi xử lý quặng urani có hàm lượng cao nhưng phải nghiền mịn quặng dẫn đến tăng chi phí nghiền, phát sinh bụi nhiều và chi phí cho khâu lọc, rửa.

Như vậy, mỗi loại hình công nghệ, hoặc hòa tách đánh đồng, hoặc hòa tách khuấy trộn trong bình phản ứng đều có ưu điểm và nhược điểm riêng. Việc lựa chọn phương pháp hòa tách phù hợp phụ thuộc hoàn toàn vào thành phần khoáng vật, hóa học của quặng và mức độ yêu cầu tận thu urani từ quặng.

Kết luận

Trong nghiên cứu này, các yếu tố ảnh hưởng đến hiệu suất thu hồi urani từ quặng ($U = 1,188\%$) vùng Pà Lừa - Pà Rông (tỉnh Quảng Nam) bằng phương pháp hòa tách khuấy trộn đã được khảo sát kỹ. Các kết quả thực nghiệm cho thấy các thông số hòa tách tối ưu như sau:

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

+ Chi phí axit sunfuric thích hợp cho quá trình hòa tách: 40 kg/tấn quặng;

+ Chi phí tác nhân oxy hóa MnO_2 : 2 kg/tấn quặng;

+ Thời gian phản ứng: 18 h;

Với các điều kiện như trên hiệu suất thu hồi urani đạt $(94 \pm 3)\%$.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

[1] IAEA (1990), *Manual on Laboratory Testing for Uranium Ore Processing*, Vienna, Austria.

[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 KHCN cấp nhà nước 2011-2012*, Hà Nội, 2013.

[4] Cao Hùng Thái (2001), "Nghiên cứu lưu trình công nghệ điều chế urani kỹ thuật từ quặng Pà Lừa - An Đầm", *Báo cáo tổng kết đề tài KHCN cấp bộ*, Viện Công nghệ xạ hiếm - Viện Năng lượng nguyên tử Việt Nam, Hà Nội.

[5] Cao Đình Thanh (1995), "Hoàn thiện quy trình công nghệ thiết bị thủy luyện quặng urani", *Báo cáo tổng kết đề tài KHCN cấp bộ*, Viện Công nghệ xạ hiếm - Viện Năng lượng nguyên tử Việt Nam, Hà Nội.