

## Оценка эффективности использования фильтрационного выщелачивания для извлечения урана из урановой руды

Сатыбалдиев Б.С.\*, Уралбеков Б.М.,  
Бүркітбаев М.М.

Казахский национальный университет  
имени аль-Фараби, г. Алматы, Казахстан  
\*E-mail: bagdat\_satybaldiev@mail.ru

С привлечением современных физико-химических методов (РФА, сканирующая электронная спектроскопия, электронно-зондовый микроанализ, оптическая эмиссионная спектроскопия) исследованы физико-химические процессы, имеющие место при фильтрационном выщелачивании урана из образца урановой руды раствором серной кислоты. Показано, что уран переходит в фильтрат как посредством растворения минералов кальция и магния, так и, собственно, минералов урана. Обнаружено снижение коэффициента фильтрации со значения 0,099 м/сутки до значения 0,082 м/сутки, что объясняется наличием механической и химической коагуляции. Неполное (85%) извлечение урана из руды связано с медленной диффузией серной кислоты в трещины и прожилки силикатных минералов, где расположены урановые минералы. Было установлено, что степень извлечения вполне приемлемая для производственных работ. Уровень эффективности может быть повышен за счет регулирования плотности выщелачивающего раствора и стабилизации фильтрационных условий выщелачивания, снижающих риск химической и механической коагуляции порового пространства.

**Ключевые слова:** урановая руда; фильтрационное выщелачивание; извлечение урана; коэффициент фильтрации

## Урандық кеннен фильтрациялық шаймалау әдісімен уранды өндіру тиімдігін бағалау

Сатыбалдиев Б.С.\*, Уралбеков Б.М.,  
Бүркітбаев М.М.

Әл-Фараби атындағы Қазақ ұлттық  
университеті, Алматы қ., Қазақстан  
\*E-mail: bagdat\_satybaldiev@mail.ru

Заманауи физика-химиялық зерттеу әдістерін (РФА, сканерлеуші электрондық спектроскопия, электрондық-зондтық микроанализ, оптикалық эмиссиялық спектроскопия) қолдана отырып, урандық кеннен күкірт қышқылы ерітіндісімен уранды фильтрациялық шаймалау кезінде орын алатын физика-химиялық үрдістер зерттеу жүзеге асырылды. Уранның өнімдік ерітіндіге кальций мен магний карбонаттарының еруі және урандық минералдардың еруі арқылы өтетіндігі көрсетілді. Механикалық және химиялық коагуляция нәтижесінде сүзілу коэффициенті шамасының 0,099 м/тәуліктен 0,082 м/тәулікке дейін төмендеуі анықталды. Кеннен уранның толық шаймаланбауы (85%) күкірт қышқылының силикаттық минералдар сызаттары мен жарықшақтарында орналасқан урандық минералдарға қарай диффузия жылдамғының төмендігімен байланысын көрсетілді. Берілген кеннің геотехнологиялық қасиеттерінің нашарлығы себебінен уранды фильтрациялық шаймалау үдерісіне тиімсіз екендігі тұжырымдалды.

**Түйін сөздер:** урандық кен; фильтрациялық шаймалау; уран шығымы; сүзілу коэффициенті.

## Evaluation of the effectiveness of the filtration leaching for uranium recovery from uranium ore

Satybaldiyev B.S.\*, Uralbekov B.M.,  
Burkitbayev M.M.

Al-Farabi Kazakh National University,  
Almaty, Kazakhstan  
\*E-mail: bagdat\_satybaldiev@mail.ru

The physical and chemical processes taking place in filtration leaching of uranium from uranium ore sample by sulphuric acid solution have been studied by modern physico-chemical methods (X-ray diffraction, scanning electron spectroscopy, electron probe microanalysis, optical emission spectroscopy, ICP OES). Column leaching test was carried out for ore samples obtained from a uranium in-situ leaching (ISL) mining site using deluted sulphuric acid to study the evolution of various elements concentration in the pregnant leach solution. It has been shown that the uranium in pregnant solutions appears by dissolution of calcium and magnesium carbonates and uranium minerals as well. It was found the decreasing of filtration coefficient from 0.099 m day<sup>-1</sup> to 0.082 m day<sup>-1</sup>, due to the presence of mechanical and chemical mudding. Partial extraction of uranium (85%) from the ore has been explained by the slow diffusion of sulfuric acid to the uranium minerals locates in the cracks of silicate minerals. It was concluded that the studied uranium ore sample according to adverse geotechnical parameters is not suitable for uranium extraction by filtration leaching.

**Keywords:** uranium ore; filtration leaching; uranium extraction; filtration coefficient.



## Оценка эффективности использования фильтрационного выщелачивания для извлечения урана из урановой руды

Сатыбалдиев Б.С.\*, Уралбеков Б.М., Буркитбаев М.М.

Казахский национальный университет имени аль-Фараби, г. Алматы, Казахстан

\*E-mail: bagdat\_satybalдиев@mail.ru

### 1. Введение

Неуклонный рост численности населения в мире требует наличия адекватного количества энергетических ресурсов. Особая роль здесь отводится атомной энергетике, которая в обозримом будущем безальтернативна. Топливом для атомных электростанций является радиоактивный металл уран. Казахстан занимает ведущие позиции в мире как по запасам урана, так и по его годовой добыче. Подземное скважинное выщелачивание (ПСВ) является эффективным и экологически наиболее безопасным способом добычи урана. Через рудный горизонт прокачивается растворитель (чаще всего, разбавленный раствор серной кислоты в присутствии ионов железа (III)), который переводит соединения урана в растворимое состояние и позволяет производить его добычу путем откачки урансодержащих продуктивных растворов.

К числу основных параметров, определяющих эффективность ПСВ в частности, и фильтрационного выщелачивания в целом, применительно к конкретной руде, относятся степень извлечения урана из руды, расход растворителя (то есть соотношение Т:Ж), а также коэффициент фильтрации. В свою очередь, указанные параметры напрямую связаны с физико-химическими процессами, имеющими место при взаимодействии растворителя с компонентами руды. Различия в минералогическом составе

урановых руд приводят к тому, что в каждом конкретном случае оценку целесообразности (или рентабельности) применения фильтрационного выщелачивания к извлечению урана из руды приходится производить отдельно, с применением современных физико-химических методов. В настоящей статье она осуществлена применительно к образцу урановой руды, отобранного из инфильтрационного месторождения Центральной части Созакского рудного пояса.

### 2. Методы исследования

Гранулометрический состав образца, определенный ситовым анализом, приведен в таблице 1. Исследуемый образец был представлен разнозернистым песком, доля грубозернистого песка в котором составляла 10,20 %. В образце выявлено большое количество тонкозернистой фракции < 0,1 мм, которая составляет 28,84 % от общей массы, в том числе, алеврит-глинистой фракции – 22,36 %.

Химический состав руды найден методом атомно-эмиссионной спектроскопии с индуктивно-связанной плазмой (ИСП АЕ) с предварительным переводом образца в раствор с использованием прибора для микроволнового разложения проб «Минотавр».

Рентгенофазовый анализ осуществлялся на приборе Philips PW3020. Сканирующая электронная микроскопия

Таблица 1 – Гранулометрический состав образца руды

Гранулометрический состав, %								
2,0-1,0 мм	1,0-0,5 мм	0,5-0,25 мм	0,25-0,1 мм	0,1-0,05 мм	0,05-0,01 мм	0,01-0,005 мм	0,005-0,001 мм	Менее 0,001 мм
10,20	5,82	26,89	28,25	6,48	7,83	3,00	6,35	5,18

проводилась на приборе *Hitachi S-4800 FESEM*, электронно-зондовый микроанализ – на приборе *Cameca SX100*.

Динамическое выщелачивание образца руды было проведено с использованием фильтрационной колонки для моделирования процессов подземного скважинного выщелачивания урана в лабораторных условиях согласно инструкции МАГАТЭ [1]. Эксперимент включал в себя подготовку образца руды путем отмывания урана, окисленного в ходе длительного хранения, и, собственно, сернокислотное выщелачивание урана. Детали эксперимента описаны нами ранее в работе [2].

### 3. Результаты и обсуждение

Представленные на рисунке 1 результаты рентгенофазового анализа образца руды показывают, что он состоит из полевого шпата и кварцевого песка, которые содержат обломки пород и алеврито-глинистые агрегатные стяжения.

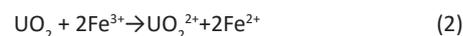
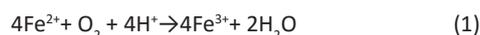
В незначительном количестве присутствуют слюдяные и хлоритовые минералы (мусковит, гидробитит). Глинистые минералы в основном представлены каолинитом (Ка), монтмориллонитом (ММ), также отмечается палыгорскит. Пески содержали дисперсно – коллоидную взвесь, в составе которой преобладали дисперсные глинистые минералы (Ка > ММ) и коллоидный гидроксид алюминия. Данные тонкозернистые фракции, как правило, являются причиной возникновения механической кольматации фильтрационных сред путем закупоривания водопроницаемых пор обломочными структурами глинистых минералов.

Результаты сканирующей электронной микроскопии и электронно-зондового микроанализа показали, что урановая минерализация исследуемого образца представлена в основном уранинитом и коффинитом, с небольшими количествами браннерита и монацита. Данные урановые минералы образуют тонкие налеты, гнезда, микропрожилки в составе ураносодержащего глинистого материала на поверхности обломочных зерен.

Результаты химического анализа образца руды, показанные в таблице 2, свидетельствуют о рентабельности подземного скважинного выщелачивания урана из исследуемой руды (содержание урана более 0,2 %).

Относительно низкое содержание карбонатов делает пригодным использование для выщелачивания серной кислоты; в противном случае (при содержании карбонатов в руде 5 % и более от массы рудного тела) применение серной кислоты нецелесообразно ввиду возникновения химической кольматации за счет образования гипса [3-4].

Как известно, для перевода урана из руды в продуктивный раствор необходимо наличие в растворе каталитических окислителей, таких, как ионы железа (III). Указанные окислители переводят четырехвалентный уран в его растворимую шестивалентную форму [5]:



Расчеты показали, что содержащегося в руде железа достаточно для полного окисления имеющегося урана (при

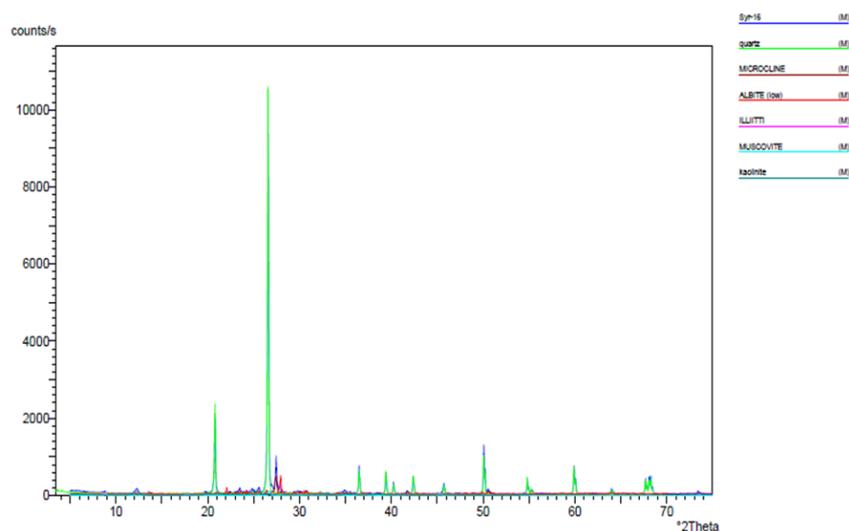


Рисунок 1 – Рентгено-диффрактограмма исследуемого образца руды

Таблица 2 – Химический состав образца руды

U, %	Fe <sub>общ.</sub> , %	Fe <sup>2+</sup> , %	Fe <sup>3+</sup> , %	S <sub>общ.</sub> , %	S <sub>сульфат</sub> , %	S <sub>сульфид</sub> , %	CO <sub>2</sub> , %	C <sub>орг.</sub> , %
0,225	1,20	0,69	0,51	0,28	< 0,20	0,28	< 0,10	0,043

этом принималось, что происходит окисление двухвалентного железа, содержащего в образце руды, кислородом воздуха до трехвалентного).

Коэффициент фильтрации является одним из наиболее значимых параметров, определяющих эффективность процесса фильтрационного выщелачивания. Зависимость коэффициента фильтрации от соотношения Ж:Т приведена на рисунке 2.

Значение коэффициента фильтрации 0,080 м/сутки соответствует пропусканию через колонку дистиллированной воды; при использовании раствора серной кислоты (25 г/л) значение коэффициента фильтрации несколько увеличилось (до 0,099 м/сутки). По мере продвижения выщелачивающего раствора по рудному слою наблюдалось ухудшение фильтрационных свойств, коэффициент фильтрации на стадии закисления уменьшался с 0,099 до 0,082 м/сутки (то есть на 17%). Причиной этого являются механическая и химическая коагуляции, поскольку в составе руды присутствует значительное

количество дисперсных глинистых минералов (каолинита и монтмориллонита), которые при взаимодействии с растворами серной кислоты, разрушаясь до коллоидного состояния, вызывают ухудшение фильтрационных свойств породы. Дополнительным аргументом в пользу растворения алюмосиликатов является увеличение содержания алюминия в пробах фильтра продуктивного раствора (рисунок 2).

В ходе опыта визуально было определено отсутствие газовой коагуляции в фильтрационной колонке. В целом, можно заключить, что исследуемый образец урановой руды по рассчитанному коэффициенту фильтрации обладает неблагоприятными геотехнологическими свойствами в связи со слабой проницаемостью руды, исключающей техническую возможность осуществления фильтрации растворителя [6]. Следует заметить, что используемая в опыте концентрация кислоты в реальных технологических условиях применяется только на начальной стадии процесса выщелачивания, а затем снижается более, чем в 3 раза.

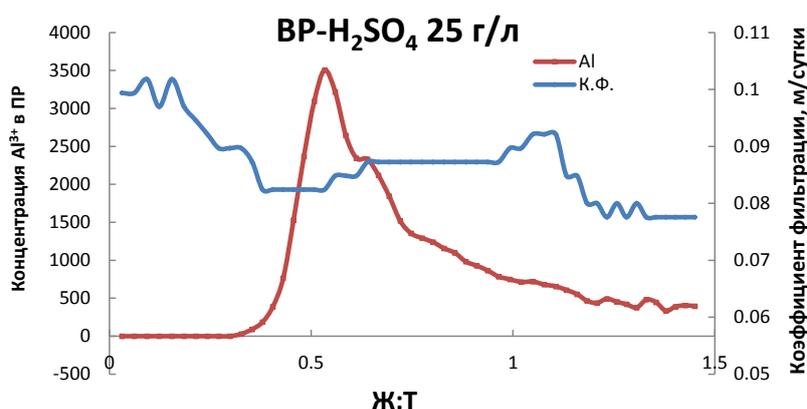


Рисунок 2 – Зависимость концентрации алюминия в продуктивных растворах и коэффициента фильтрации от соотношения Ж:Т

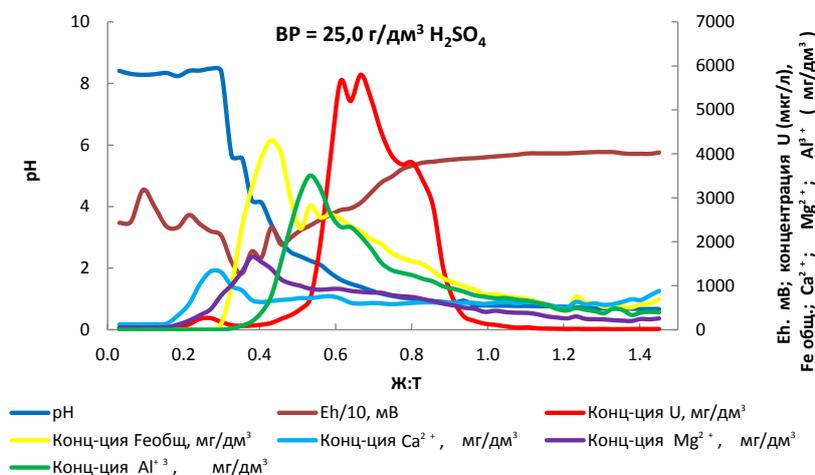
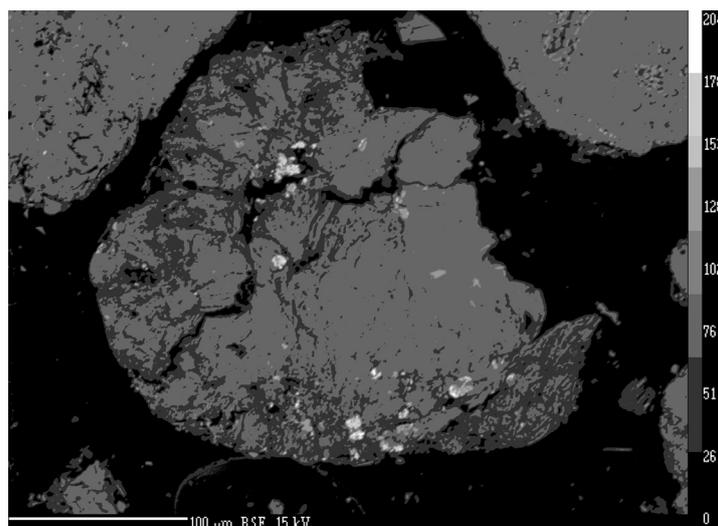


Рисунок 3 – Зависимости pH, Eh, концентраций кальция, магния, урана, алюминия, железа в образцах фильтрата продуктивного раствора от соотношения Ж:Т



**Рисунок 4** – Снимок среза частицы алюмосиликатной породы с вкраплениями уранинита, полученный на электронно – зондовом анализаторе

**Таблица 2** – Химический состав образца руды

U, %	Fe <sub>общ.</sub> , %	Fe <sup>2+</sup> , %	Fe <sup>3+</sup> , %	S <sub>общ.</sub> , %	S <sub>сульфат</sub> , %	S <sub>сульфид</sub> , %	CO <sub>2</sub> , %	C <sub>орг.</sub> , %
0,225	1,20	0,69	0,51	0,28	< 0,20	0,28	< 0,10	0,043

На рисунке 3 приведена зависимость влияния соотношения Ж:Т на окислительный потенциал (Eh), pH, а также на концентрации ряда металлов в растворе.

Концентрация урана в образцах фильтрата в первых порциях продуктивного раствора находилась на уровне 30 мкг/дм<sup>3</sup>, так как эффективный поровый объем заполнен пластовой водой, и объем фильтрата 230-250 мл продуктивного раствора можно считать продолжением стадии отмывки водорастворимой формы урана.

Стабильность значения pH фильтрата в интервале соотношения Ж:Т от 0 до 0,3 объясняется нейтрализацией первых порций серной кислоты растворением карбонатных минералов. Пик, соответствующий максимальной концентрации ионов кальция в растворе, совпадает по значению Т:Ж (2,5) с небольшим пиком на кривой, характеризующей концентрацию урана. Указанные результаты согласуются с известным утверждением о том, что уран хорошо сорбируется и сокристаллизуется в карбонатных минералах кальция в результате сродства уранил-иона с карбонат-анионом [7]. Иными словами, при растворении кальция в раствор переходит и находящийся в карбонатных минералах кальция уран.

Снижение pH выщелачивающего раствора приводит к растворению железосодержащих минералов, что, в свою очередь, увеличивает растворимость четырехвалентного урана, катализируя процесс окисления его до легко растворимого шестивалентного [8]. Значения Eh продуктивных растворов начинают уве-

личиваться начиная от Ж:Т = 0,35 до 0,8. Медленное повышение окислительно-восстановительного потенциала обуславливается потерей окислительной силы раствора на окисление четырехвалентного урана, что доказывается достижением максимума значения Eh только при достижении стабильной концентрации урана в продуктивных растворах.

После прохождения первого пика с максимальной концентрацией урана 264 мкг/дм<sup>3</sup> и по мере снижения pH растворов фильтрата до значения 5,57, концентрация урана снизилась до 85 мкг/дм<sup>3</sup> (минимальное снижение). При дальнейшем снижении pH фильтратов со значения 5,57 до значения 2 концентрация урана увеличивалась и на момент появления в фильтрате свободной серной кислоты (pH = 1,85) достигла значения 3868 мкг/дм<sup>3</sup> (соответствует степени извлечения урана из образца руды 13,47%). Далее, концентрация урана продолжала расти, вплоть до 5637 мкг/дм<sup>3</sup>. Начиная со значения Т:Ж=7 и далее, концентрация урана в растворе начинала снижаться, что обусловлено уменьшением количества урана в руде.

Расчет показал, что всего было выщелочено около 85% урана (без учета забалансового урана из стадии отмывки), оставшаяся часть урана, несмотря на высокое значение Eh (более 400 мВ), осталась невыщелоченной, возможно, из-за медленной скорости диффузии серной кислоты в трещины и прожилки силикатных минералов, где расположены урановые минералы (рисунок 4).

#### 4. Заключение

На основании проведенного исследования процессов, протекающих при фильтрационном выщелачивании образца урановой руды раствором серной кислоты, с привлечением современных физико-химических методов, можно отметить следующее. Уран переходит в фильтрат как посредством растворения минералов кальция и магния, так и собственно минералов урана. Наличие в составе руды дисперсных глинистых материалов приводит к механической и химической коагуляции при фильтрационном выщелачивании, что выражается в снижении коэффициента фильтрации руды (до 17%). Степень извлечения урана из руды достигает 85%; наличие невыщелоченной фракции урана связано, по-видимому, с диффузионными ограничениями. Было установлено, что степень извлечения приемлема для производственных работ по добыче урана методом ПСВ. Уровень эффективности может быть повышен за счет регулирования

плотности выщелачивающего раствора и стабилизации фильтрационных условий выщелачивания, снижающих риск химической и механической коагуляции порового пространства.

#### Благодарности

Настоящая публикация осуществлена в рамках Подпроекта «Практическое применение изотопных отношений природных радионуклидов в гидрометаллургии урана и радиозеологии», финансируемого в рамках Проекта Коммерциализации Технологий, поддерживаемого Всемирным Банком и Правительством Республики Казахстан. Заявления могут не отражать официальной позиции Всемирного банка и Правительства Республики Казахстан». Авторы благодарны профессору Юкка Лехто за помощь в проведении экспериментов в лаборатории радиохимии Университета Хельсинки.

#### Список литературы

- 1 Benes V., Boitsov A.V., Fuzlullin M., Hunter J., Mays W., Novak J., Underhill D.H. Manual of acid in situ leach uranium mining technology. – Vienna: International Atomic Energy Agency, 2001. – P.283.
- 2 Satybaldiyev B., Lehto J., Suksi J. et al. Understanding sulphuric acid leaching of uranium from ore by means of 234 U/238 U activity ratio as an indicator // Hydrometallurgy. – 2015. – Vol.155. – P.125-131.
- 3 Мамилов В.А., Петров Р.П., Новик-Качан В.П. Добыча урана методом подземного выщелачивания. – Алма-Ата: Атомиздат, 1980. – 248с.
- 4 Бровин К.Г., Грабовников В.А., Шумилин М.В., Язиков В.Г. Прогноз, поиски, разведка и промышленная оценка месторождений урана для отработки подземным выщелачиванием. – Алматы: Гылым, 1997. – 384с.
- 5 Ding D.X., Fu H.Y., Ye Y.J. et al. A fractal kinetic model for heap leaching of uranium ore with fractal dimension of varied particle size distribution // Hydrometallurgy. – 2013. – Vol.136. – P.85-92.
- 6 Белецкий В.И., Богатков Л.К., Волков Н.И., Скороваров Д.И. Справочник по геотехнологии урана. – М.: Энергоатомиздат, 1997. – 651с.
- 7 Reeder R.J., Nugent M., Tait et al. Coprecipitation of uranium (VI) with calcite: XAFS, micro-XAS, and luminescence characterization // Geochimica et Cosmochimica Acta. – 2001. – Vol.65, Is.20. – P.3491-3503.
- 8 Lottering M.J., Lorenzen L., Phala e al. Mineralogy and uranium leaching response of low grade South African ores // Minerals Engineering. – 2008. – Vol.21, Is.1. – P.16-22.

#### References

- 1 Benes V, Boitsov AV, Fuzlullin M et al (2001) Manual of acid in situ leach uranium mining technology. International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria. P.294. ISSN 1011-4289
- 2 Satybaldiyev B, Lehto J, Suksi J et al (2015) Hydrometallurgy 155:125-131. <http://dx.doi.org/10.1016/j.hydromet.2015.04.017>
- 3 Mamilov VA, Petrov RP, Novik-Kachan VP (1980) Uranium mining by in-situ leaching technology [Dobyicha urana metodom podzemnogo vyischelachivaniya]. Atomizdat, Alma-Ata, Kazakhstan. 248pp. (In Russian)
- 4 Brovin KG, Grabovnikov VA, Shumilin MV, Yazikov VG (1997) Prediction, prospecting, exploration and commercial evaluation of uranium deposits for in-situ leaching [Prognoz, poiski, razvedka i promyshlennaya otsenka mestorozhdeniy urana dlya otrabotki podzemnyim vyischelachivaniem]. Gyilyim, Almaty, Kazakhstan. 384pp. (In Russian) ISBN: 5-628-02175-X.
- 5 Ding DX, Fu HY, Ye YJ et al (2013) Hydrometallurgy 136:85-92. <http://dx.doi.org/10.1016/j.hydromet.2013.03.009>
- 6 Beletskiy VI, Bogatkov LK, Volkov NI, Skorovarov DI (1997) Handbook on uranium geotechnology [Spravochnik po geotehnologii urana]. Energoatomizdat, Moscow, Russia. 651 pp. (In Russian). ISBN 5-283-02917-4
- 7 Reeder RJ, Nugent M, Tait CD et al (2001) Geochim Cosmochim Ac 65:3491-3503. [http://dx.doi.org/10.1016/S0016-7037\(01\)00647-0](http://dx.doi.org/10.1016/S0016-7037(01)00647-0)
- 8 Lottering MJ, Lorenzen L, Phala NS et al (2008) Miner Eng 21:16-22. <http://dx.doi.org/10.1016/j.mineng.2007.06.006>