

ČESKOSLOVENSKÁ  
SOCIALISTICKÁ  
REPUBLIKA  
(19)



ÚŘAD PRO VYNÁLEZY  
A OBJEVY

# POPIS VYNÁLEZU K AUTORSKÉMU OSVĚDČENÍ

243548

(11) (B1)

(51) Int. Cl.<sup>4</sup>

C 01 G 43/00

/22/ Přihlášeno 12 05 85

/21/ PV 3355-85

(40) Zveřejněno 31 08 85

(45) Vydáno 15 12 87

(75)

Autor vynálezu

BOŠINA BOHUŠ ing. CSc.; KŘEPELKA JAN ing., ČESKÉ BUDĚJOVICE;  
URBAN PAVEL ing., ZLIV; KROPÁČEK JAROSLAV, PROTIVÍN; STRÁNSKÝ JIŘÍ,  
ČESKÉ BUDĚJOVICE

## (54) Způsob postupného kyselého loužení uranových rud silikátového a alumosilikátového charakteru

Řeší se způsob postupného kyselého loužení uranových rud silikátového a alumosilikátového charakteru, obsahujících těžko loužitelné uranové minerály, pyrit a redukující látky. Rmut uranové rudy se nejdříve podrobí první fázi loužení, která probíhá bez přídavku loužicího činidla při zvýšeném tlaku 0,4 až 2,5 MPa a teplotě 100 až 200 °C a při provzdušňování rmutu po dobu 1 až 8 hodin. Potom se rmut uranové rudy podrobí druhé fázi loužení, při níž se do rmutu přidává kyselina sírová v množství 50 až 1 000 kg na tunu rudy. Rmut se dále louží některým ze známých způsobů.

Vynález se týká způsobu postupného kyselého loužení uranových rud silikátového a aluminosilikátového charakteru, obsahujících těžko loužitelné uranové minerály, pyrit a redukující látky.

Podle dosud známých způsobů kyselého loužení uranových rud silikátového a aluminosilikátového charakteru, obsahujících těžko loužitelné uranové minerály a redukující látky, se za účelem vysokého stupně vyloužení uranu používá extrémních technologických podmínek loužení v jedноступňovém uspořádání.

Tyto podmínky loužicího procesu lze charakterizovat vysokými teplotami rmutu v rozsahu 100 až 150 °C, vysokými zbytkovými koncentracemi kyseliny sírové v kapalně fázi rmutu v rozsahu 200 až 1 000 g/l, tlakem v rozsahu 0,1 až 2,0 MPa, dobou zdržení rmutu od 4 do 20 hodin, redox potenciálem v rozsahu 450 až 800 mV v porovnání s kalomelovou elektrodou.

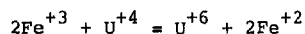
Vlastní loužicí proces se uskutečňuje buď v mechanicky míchaných aparátech, v záměsových aparátech, v tlakových aparátech - autoklávech apod. Pro výše uvedené rozsahy technologických parametrů jsou aparáty a jejich součásti chráněny proti silně působícím korozním jevům tím, že jsou zhotoveny nebo vyloženy korozně odolnými materiály, např. nerezovými ocelmi, titanem apod., při současném zajišťování redox potenciálu v hodnotě -500 až -800 mV.

Uspořádání uvedených technologických procesů je následující: do připraveného rúdneho rmutu je dávkována kyselina sírová a oxidační činidlo, např. burel -  $MnO_2$ , rmut s těmito parametry je ohříván a čerpán do vlastní loužicí linky nebo je loužicí a oxidační činidlo dávkováno do prvního aparátu loužicí linky.

Pro takto vedené loužicí procesy je charakteristická vysoká spotřeba loužicího činidla - kyseliny sírové - v rozmezí 150 až 1 000 kg/tunu rudy, vysoká spotřeba oxidačního činidla burelu v rozmezí 25 až 100 kg/tunu rudy; tyto vysoké spotřeby významně ovlivňují výši zpracovatelských nákladů na loužicí proces.

V některých případech dokonce znemožňují praktické vedení procesu kyselého loužení v autoklávech, které mají řadu výhod proti beztlakovému procesu, zejména pro obtížnost praktického dosažení požadovaných vysokých hodnot redox potenciálu při použití burelu nebo vyžadují použití náročné kombinace oxidačních činidel apod.

Použitá oxidační činidla hrají současně pozitivní roli při loužení uranu, protože umožňují oxidaci čtyřmocného uranu na šestimocný. Má se zato, že při použití burelu, obsahujícího  $MnO_2$ , proces oxidace probíhá podle následujícího modelu:



Charakteristickým znakem vytvoření vhodného oxidačního prostředí vůbec i pro loužení uranu, je poměr  $Fe^{+3}/Fe^{+2} > 1$ , to znamená, že redox potenciál je vyšší než 450 mV. Při použití burelu jako oxidačního činidla se současně zvyšuje spotřeba kyseliny sírové v důsledku rozpuštění příměsí burelu a převodu  $Mn^{+4}$  do kapalně fáze.

V uvedených podmínkách dochází při autoklávovém loužení při míchání vzduchem k postupné oxidaci pyritu a redukujících látek; nízké hodnotě redox potenciálu se na počátku loužení čelí dávkováním burelu na začátku loužení.

Uvedené nedostatky do značné míry odstraňuje způsob postupného loužení uranových rud silikátového a aluminosilikátového charakteru, obsahujících těžko loužitelné uranové minerály, pyrit a redukující látky podle vynálezu, jehož podstata spočívá v tom, že se rmut uranové rudy

nejdříve podrobí první fázi loužení, která probíhá bez přídavku loužicího činidla při zvýšeném tlaku 0,4 až 2,5 MPa a teplotě 100 až 200 °C a při provzdušňování rmutu po dobu 1 až 8 hodin. Potom se rmut uranové rudy podrobí druhé fázi loužení, při níž se do rmutu přidá kyselina sírová v množství 50 až 1 000 kg na tunu rudy.

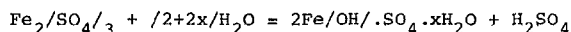
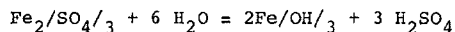
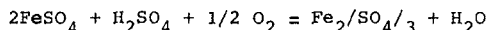
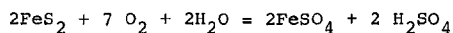
Rmut se dále louží některým ze známých způsobů. Výhodným provedením vynálezu je, že se ve druhé fázi loužení do rmutu uranové rudy přidá oxidovadlo v množství 10 až 250 kg na tunu rudy.

Výhodou způsobu postupného loužení uranových rud podle vynálezu je, že předložený rmut vstupuje do vlastní operace loužení rudy, druhé fáze loužení, která se uskutečňuje při současném dávkování kyseliny sírové, s volnou kyselinou sírovou, vzniklou oxidací pyritu a redukujících látek, a se zvýšeným obsahem rozpustných solí železa. To vede k tomu, že od samého počátku procesu kyselého loužení při vysokých koncentracích volné kyseliny sírové je v důsledku vysokého poměru trojmocného a dvojmocného železa vytvořen vysoký redox potenciál, jehož hodnota je větší než 450 mV.

Daší výhodou způsobu je, že při jeho druhé fázi je možné snížit dávku kyseliny sírové a oxidačního činidla, burelu, pro docílení žádoucí výše redox potenciálu nejen pro oxidaci čtyřmocného uranu, ale i pro zabezpečení ochrany zařízení před korozí, např. titanových částí aparátů.

Rovněž je výhodou způsobu to, že umožňuje využít technologie tlakového loužení pro zpracování silikátových a alumosilikátových rud, obsahujících těžko rozpustné uranové minerály, pyrit a redukující látky.

Způsob předloužení rmutu, první fáze postupného loužení rudy, spočívá v tom, že se vytvoří vhodné podmínky pro oxidaci pyritu, obsaženého v pevné fázi rmutu, kterou lze popsat následovně:



Na podporu průběhu uvedených chemických reakcí ve rmutu je možné s výhodou použít ohřevu rmutu na teplotu 130 až 200 °C při současném míchání rmutu přebytkem vzduchu po dobu 1 až 6 hodin.

Na průběh oxidace pyritu má významný vliv parciální tlak kyslíku, který je možné výhodně zvýšit použitím autoklávů pracujících při tlaku parovzdušné směsi v rozsahu 1,0 až 2,0 MPa.

Způsob vedení vlastního loužení rmutu, druhá fáze postupného loužení rudy, je možné volit libovolně v závislosti na podmínkách, dostupnosti technologických parametrů a strojně-technologických zařízení.

Tak například může být předloužený rmut dávkován do linky tlakového kyselého loužení nebo může být předloužený rmut po expanzi a ochlazení dávkován do linky atmosférického kyselého loužení anebo může být předloužený rmut po expanzi, ochlazení a zahuštění dávkován do loužicího zařízení záměsového typu.

## P ř í k l a d 1

K loužení bylo použito rudy obsahující 2,3 % síry a ruda byla loužena kyselinou sírovou při koncentraci 500 g/l a teplotě 105 °C po dobu 15 hodin. Ruda byla loužena nejdříve bez přídavku oxidačního činidla a po 2 hodinách loužení bylo ve výluhu dosaženo redox potenciálu /470 mV proti kalomelové elektrodě, měřeno za chladu, a bylo dosaženo poměru koncentrací trojmocného a dvojmocného železa 0,65 a spotřeby kyseliny sírové 180 kg/t rudy.

Potom byla stejná ruda loužena za týchž podmínek s přidáním 50 kg oxidovadla /burelu/ na tunu a po 5 hodinách bylo ve výluhu dosaženo redox potenciálu -450 mV, poměru koncentrace trojmocného a dvojmocného železa 0,46 a spotřeby kyseliny sírové 246 kg/t.

Za stejných podmínek byla ruda loužena s přidáním 25 kg oxidu železitého na tunu po dobu 15 hodin a ve výluhu bylo dosaženo redox potenciálu -420 mV, poměru trojmocného a dvojmocného železa 0,2 a spotřeba kyseliny sírové činila 346 kg/t. Výsledky jsou přehledně uvedeny v tabulkách č. 1 až 3.

T a b u l k a 1

Číslo pokusu	mV	délka pokusu 2 hodiny		Fe <sup>+3</sup> /Fe <sup>+2</sup>	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> kg/t
		Fe <sup>+3</sup> g/l	Fe <sup>+2</sup> g/l		
1	390	0,36	4,56	0,08	102
2	450	2,71	5,06	0,54	138
3	470	4,81	7,38	0,65	180

T a b u l k a 2

Číslo pokusu	mV	délka pokusu 5 hodin		Fe <sup>+3</sup> /Fe <sup>+2</sup>	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> kg/t
		Fe <sup>+3</sup> g/l	Fe <sup>+2</sup> g/l		
1	390	0,36	5,12	0,07	164
2	430	1,14	6,95	0,16	196
3	450	5,08	11,10	0,46	246

T a b u l k a 3

Číslo pokusu	mV	délka pokusu 15 hodin		Fe <sup>+3</sup> /Fe <sup>+2</sup>	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> kg/t
		Fe <sup>+3</sup> g/l	Fe <sup>+2</sup> g/l		
1	390	0,36	6,32	0,06	258
2	390	0,64	8,29	0,08	270
3	420	3,10	15,45	0,20	346

P ř í k l a d 2

Stejná ruda jako v příkladu 1 byla předloužena vodou v autoklávu za tlaku 1,5 MPa, teploty 140 °C a za intenzivního provzdušňování 100 l vzduchu za hodinu po dobu 4 hodin. Ve výluhu bylo dosaženo hodnoty redox potenciálu -410 mV proti kalomelové elektrodě a poměru trojmocného a dvojmocného železa 0,42, přičemž obsah síry v rudě klesl na 0,68 % a síra byla zoxidována na kyselinu sírovou, jejíž koncentrace po ukončení loužení dosahovala v kapalně fázi 17 g/l.

Potom byla do rmutu přidána kyselina sírová v dávce 307 ml 96 procentní kyseliny sírové a bylo pokračováno v tlakovém loužení po dobu 5 hodin. Po pěti hodinách byl ve výluhu stanoven redox potenciál -510 mV, poměr trojmocného a dvojmocného železa 8,86, obsah síry 0,16 a koncentrace kyseliny sírové ve výluhu byla 182 g/l.

Výsledky jsou uvedeny v tabulce č. 4.

Současné byla tlakově loužena stejná ruda za stejných podmínek, avšak bez předloužení. Po pěti hodinách bylo ve výluhu dosaženo redox potenciálu -480 mV, poměru trojmocného a dvojmocného železa 3,99, obsahu síry 0,56 % a koncentrace kyseliny sírové ve výluhu byla 169 g/l.

Výsledky jsou přehledně uvedeny v tabulce č. 5.

T a b u l k a 5

Čas	redox	Fe <sup>+3</sup>	Fe <sup>+2</sup>	předloužení vodou		C <sub>S</sub>	spotřeba H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	C <sub>H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub></sub>
				Fe <sup>+3</sup> /Fe <sup>+2</sup>	C <sub>S</sub>			
hod	mV	g/l	g/l		%	kg/t	g/l	
0	370	0	0	-	2,2	-	-	
4	410	0,66	1,57	0,42	0,68	-	17,0	
0	410	0,52	1,24	0,42	0,68	-	383	
1	490	10,76	3,32	3,24	0,32	271	259	
2	500	12,15	2,64	4,60	0,24	347	224	
5	510	13,91	1,57	8,86	0,16	439	182	
9	-	-	-	-	-	-	-	

T a b u l k a 5

Čas	redox	Fe <sup>+3</sup>	Fe <sup>+2</sup>	bez předloužení vodou		C <sub>S</sub>	spotřeba H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	C <sub>H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub></sub>
				Fe <sup>+3</sup> /Fe <sup>+2</sup>	C <sub>S</sub>			
hod	mV	g/l	g/l		%	kg/t	g/l	
0	-	-	-	-	-	-	-	
4	-	-	-	-	-	-	-	
0	-	-	-	-	2,2	-	370	
1	340	2,76	6,10	0,45	1,90	266	248	
2	455	5,76	5,76	1,00	1,35	349	210	
5	480	11,77	2,95	3,99	0,56	438	169	
9	505	14,22	1,63	8,72	0,33	492	144	

P ř í k l a d 3

Ruda s obsahem síry 2,2 % byla loužena při teplotě 20, 90 a 140 °C za podmínek tlakového loužení 1,5 MPa a intenzivního provzdušňování po dobu 4 hodin. Při teplotě 20 °C byl stanoven obsah kyseliny sírové ve výluhu 0,3 g/l, při 90 °C 3,9 g/l a při 140 °C 14,8 g/l.

Potom byla dále ruda loužena tlakovým způsobem po dobu 2 hodin při počáteční koncentraci kyseliny sírové 250 g/l. Dosažené výsledky jsou přehledně uvedeny v tabulce č. 6.

T a b u l k a 6

teplota °C	předloužení vodou					loužení			
	redox mV	pH	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> g/l	Fe <sup>+3</sup> g/l	Fe <sup>+2</sup> g/l	redox mV	Fe <sup>+3</sup> g/l	Fe <sup>+2</sup> g/l	Fe <sup>+3</sup> /Fe <sup>+2</sup>
20	400	2,24	0,3	0,19	0,26	450	5,54	5,76	0,96
90	390	1,27	3,9	0,19	1,40	470	7,31	4,27	1,71
140	415	0,8	14,8	0,90	1,75	490	13,15	3,37	3,90

## P ř í k l a d 4

Ruda s obsahem 2,3 % síry byly tlakově loužena vodou při tlaku 1,5 MPa a teplotě 140 °C a za intenzivního provzdušňování 100 l vzduchu za hodinu po dobu 5 hodin. Po pěti hodinách byl stanoven zbytkový obsah síry v louženci 0,69 %, obsah volné kyseliny sírové ve výluhu činil 12,5 g/l a v louženci byly patrné hnědé sraženiny hydroxidů železa. Výsledky jsou přehledně uvedeny v tabulce č. 7.

V následující operaci byl louženec promyt vodou, vysušen při teplotě 105 °C a loužen kyselinou sírovou o koncentraci 500 g/l po dobu 5 hodin a při teplotě 105 °C.

Dosažené výsledky jsou uvedeny v tabulce č. 8.

T a b u l k a 7

Čas hod	redoxpot. mV	pH	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> g/l	Fe <sup>+3</sup> g/l	Fe <sup>+2</sup> g/l
1	380	1,50	4,2	0,24	0,34
2	385	1,16	8,5	0,35	0,96
5	390	0,97	12,5	0,49	1,24

T a b u l k a 8

Čas hod	redoxpot. mV	Fe <sup>+3</sup> g/l	Fe <sup>+2</sup> g/l	Fe <sup>+3</sup> /Fe <sup>+2</sup> -	spotřeba H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> kg/t
2	500	8,02	2,39	3,36	100
5	495	6,73	3,79	1,78	175

## P Ř E D M Ě T V Y N Á L E Z U

1. Způsob postupného kyselého loužení uranových rud silikátového a alumosilikátového charakteru, obsahující těžko loužitelné uranové minerály, pyrit a redukující látky, vyznačený tím, že se rmut uranové rudy nejdříve podrobí první fázi loužení, která probíhá bez přídavku loužicího činidla při zvýšeném tlaku 0,4 až 2,5 MPa a teplotě 100 až 200 °C a při provzdušňování rmutu po dobu 1 až 8 hodin, načež se rmut uranové rudy podrobí druhé fázi loužení, při níž se do rmutu přidá kyselina sírová v množství 50 až 1 000 kg na tunu rudy a rmut se dále louží některým ze známých způsobů.

2. Způsob podle bodu 1, vyznačený tím, že se ve druhé fázi loužení do rmutu uranové rudy přidá oxidovadlo v množství 10 až 250 kg na tunu rudy.