从铀铍浮选尾矿中回收铀的工艺研究

叶开凯[1]，苏学斌[2]，梁耕宇[1]，张佳宇[1]，马 嘉[1]，舒祖骏[1]，
康绍辉[1]，周志全[1]，任 燕[1]

（1. 核工业北京化工冶金研究院，北京 101149；
2. 中国铀业有限公司，北京 100013）

摘要：为了回收铀铍浮选尾矿中的铀，同时降低铀产品中铍的含量，采用工艺矿物学方法分析了某铀铍浮选尾矿中铀、铍的赋存状态，采用硫酸浸出工艺浸出尾矿中的铀，考察了酸浓度、浸出时间、浸出温度以及液固体积质量比对铀、铍浸出率的影响，并采用阴离子交换树脂探索了从浸出液中回收铀的可行性。研究表明，铀铍浮选尾矿中的铀较易被硫酸浸出，铍不易被浸出，采用离子交换法能够回收铀并实现铀铍分离。

关键词：浮选尾矿；铍；铀；浸出；离子交换

中图分类号：TL212.5 **文献标志码**：A **文章编号**：1000-8063(2023)02-0034-05

DOI：10.13426/j.cnki.yky.2022.10.05

随着核电快速发展，天然铀消耗量快速增长，从非传统资源中综合回收铀成为保证天然铀供应的有效途径之一[1-2]。非传统铀资源是指低品位铀资源或作为次要副产品回收的铀资源，铀铍伴生矿即是一种重要的非传统铀资源。

通常采用“浮选—浸出—铍回收”工艺从铀铍伴生矿提取铍[3-7]；但现阶段铍浮选过程对铀的富集效果不明显，铍尾矿中的铀含量较高，尾矿放射性超标。在铀铍矿提取工艺流程中接入从浮选尾矿中提取铀的环节，可以回收铀组分，且能有效降低尾矿的放射性物质含量，实现有价组分的综合回收。

针对常规铀矿的浸出研究较多[8-11]，但对于铀铍矿中铀的回收研究主要集中在铀的浸出研究方面[12-15]，对铀铍分离的研究较少。为此，针对新疆某铀铍浮选尾矿进行铀浸出条件和回收工艺研究，在高效浸出铀的同时，减少铍的浸出；同时研究浸出液中的铀铍分离问题，为从铀铍尾矿中回收铀提供支撑。

1 试验部分

1.1 试验原料及试剂

试验原料取自新疆某矿床铀铍浮选尾矿，是铀铍原矿经破磨至－0.045 mm＞93%，并进行铍矿物浮选后得到的铍尾矿样品，其主要化学组成见表 1。铍尾矿中 U 质量分数为 0.18%，BeO 质量分数为 0.07%。

试验试剂：硫酸、NaCl，均为分析纯；试验用水为蒸馏水。

表 1 试验原料主要化学组成

Table 1 Main chemical composition of raw material %

组分	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	Na_2O	K_2O	MgO	CaO	TiO_2	U	MnO	BeO	F
质量分数	71.10	15.00	4.11	4.43	3.43	0.54	0.51	0.23	0.18	0.18	0.07	0.07

收稿日期：2022-10-10

基金项目：中国核工业集团有限公司核心能力提升项目（中核科发〔2021〕144 号）

第一作者简介：叶开凯（1993—），男，江西赣州人，硕士，工程师，主要研究方向为铀水冶和铀纯化转化。

通信作者简介：苏学斌（1968—），男，湖南常德人，硕士，教授级高级工程师，主要研究方向为铀矿采冶。

1.2　试验设备

场发射扫描电子显微镜（德国 ZEISS），Quantax 200 Xflash 能谱仪（德国 Bruker），IKEA 电磁搅拌器（德国 IKEA），雷氟 BT100S 型蠕动泵（保定雷氟），伊尔姆 MPC-1201E 型真空泵（德国伊尔姆），干燥箱（上海林频），离子交换柱（北京欣维尔玻璃仪器，ϕ10 mm）。

1.3　试验方法

对浮选铍尾矿进行工艺矿物学研究，以工艺矿物学研究结果指导浸出过程。根据尾矿中铀的性质，采用硫酸浸出，在浸出试验中考察加酸量、浸出时间、浸出温度以及液固体积质量比对铀浸出率的影响。试验中分别取 50 g 尾矿，加入不同浓度的硫酸溶液，机械搅拌后通过抽滤进行固液分离，获得浸出液；采用 10 g/L 硫酸溶液盘洗滤饼后，得到浸出渣。

采用离子交换法回收浸出液中的铀。以该浸出液作为吸附原液，将 50 mL 201×7 树脂装入离子交换柱中，控制接触时间 30 min，每 BV 吸附尾液取样 1 次，分析并制作铀吸附曲线。对铀饱和树脂，采用传统淋洗工艺参数进行淋洗验证试验，淋洗剂为 10 g/L H_2SO_4 + 1 mol/L NaCl 溶液，接触时间 30 min，每 BV 淋洗液取样 1 次，分析并制作铀淋洗曲线。

2　试验结果与讨论

2.1　铍尾矿工艺矿物学研究

采用 Bruker Quantax 200 Xflash 能谱仪对铍尾矿的矿物类型进行观察（图 1）。利用 AM-ICS-Mining 矿物参数自动定量分析系统对具体矿物组成进行分析（表 2）。

铍尾矿中的羟硅铍石质量分数约 0.17%，铀矿物以硅钙铀矿为主，其次为沥青铀矿；脉石矿物以长石、石英为主，含少量伊利石和绿泥石等黏土矿物。

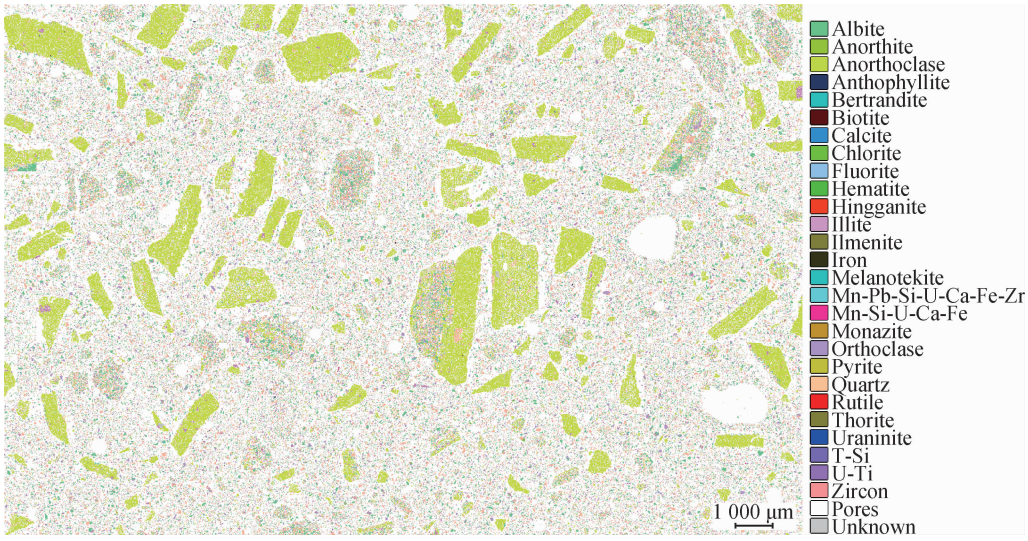


图 1　铍尾矿矿物类型分布

Fig. 1　Mineral type distribution of beryllium tailings

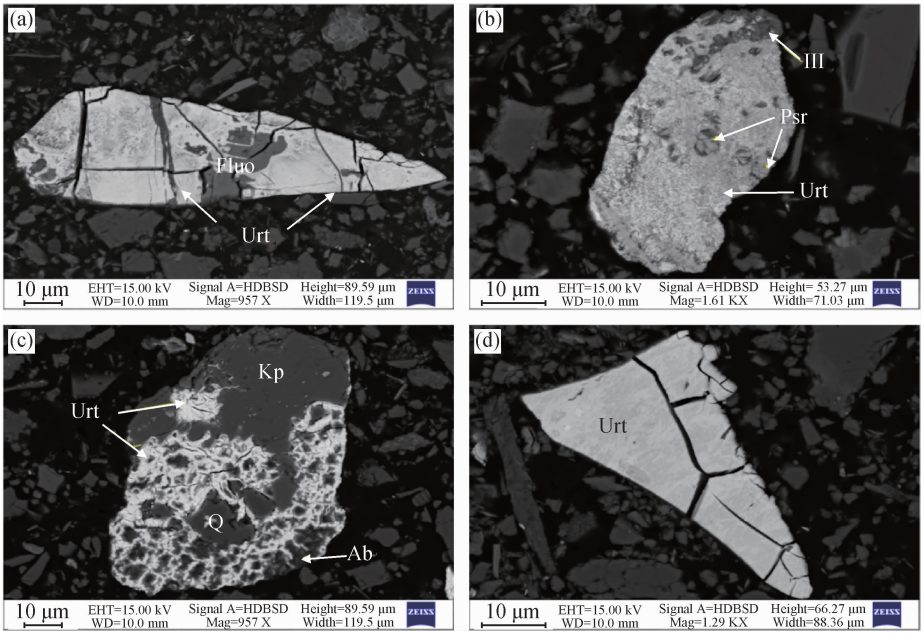
表 2　铍尾矿矿物组成

Table 2　Mineral composition of beryllium tailings　　%

矿物组成	羟硅铍石	硅钙铀矿	沥青铀矿	长石类	石英	伊利石	绿泥石	赤铁矿	金红石
质量分数	0.17	0.08	0.02	67.25	25.47	4.13	0.91	0.13	0.07

2.1.1 硅钙铀矿

硅钙铀矿($CaH_2(UO_2)(SiO_3OH)_2 \cdot 5H_2O$)是铍尾矿中的主要铀矿物,在铍尾矿中硅钙铀矿多呈不规则粒状、浸染状、针状集合体分布,粒径多在 10～40 μm(图 2)。其单体解离度接近 30%,其余多与长石或黏土矿物共生,少量与石英、硬锰矿及羟硅铍石共生。



(a)硅钙铀矿(Urt)颗粒裂缝充填萤石脉(Fluo);(b)硅钙铀矿(Urt)包裹硬锰矿(Psr),裂缝充填伊利石(Ill);(c)浸染状硅钙铀矿(Urt)嵌布于钾长石(Kp)、石英(Q)、钠长石(Ab)等脉石矿物中;(d)硅钙铀矿(Urt)单颗粒。

图 2 硅钙铀矿背散射图像

Fig. 2 Backscatter image of uranotile(Urt)

2.1.2 沥青铀矿

沥青铀矿粒径多为 10～40 mm,其单体解离度约 35%,多呈不规则粒状分布(图 3),部分与长石、石英以及黏土矿物共生,关系密切。

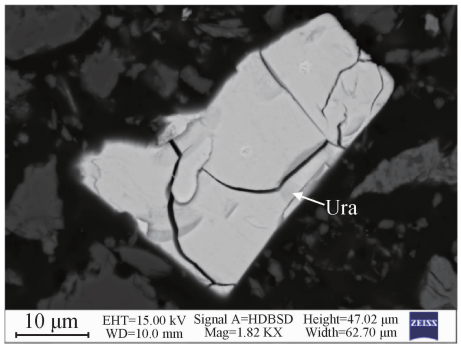


图 3 沥青铀矿(Ura)背散射图像

Fig. 3 Backscatter image of uraninite(Ura)

铍尾矿工艺矿物学分析结果表明,铀主要以独立铀矿物形式存在,易被硫酸浸出;尾矿中含有少量铍,铍以羟铍硅石存在,不易被浸出。

2.2 铀浸出条件试验

2.2.1 浸出酸浓度的影响

采用常规酸法搅拌浸出方法,在浸出温度 20 ℃、液固体积质量比为 1.5 L/kg、浸出时间4 h 条件下,考察了酸浓度为 1.63%～15.00%时,酸浓度对铍尾矿铀浸出效果的影响,结果见表 3。可以看出,随酸浓度增高,铀浸出率增高,浸出液 pH 降低;当酸浓度达到 5.00%时,铀浸出率达 94%以上;当酸浓度为 10.00%以上时,铀浸出率能稳定达到 95%。在酸浓度为 15.00%时,铍浸出率仅有 7.14%,采用常规酸法浸出铀时铍的浸出率较低。综合浸出液余酸及浸出率,浸出酸浓度以 5.00%为宜。

表 3　酸浓度对铍尾矿铀浸出效果的影响

Table 3　Effect of acid concentration on uranium leaching from beryllium tailings

酸浓度/%	铍浸出率/%	铀浸出率/%	浸出液 pH
1.63		86.92	2.97
2.72		92.52	1.38
3.00		93.55	1.15
4.35		93.53	0.80
5.00	6.42	94.02	0.59
8.00		94.59	0.21
10.00		95.05	0.10
12.00		95.11	
15.00	7.14	95.06	

2.2.2　浸出时间的影响

在浸出温度 20 ℃、液固体积质量比为 1.5 L/kg、酸浓度 5.00% 条件下，考察了浸出时间为 2、4、8 h 时，浸出时间对铀浸出率的影响，结果见表 4。可以看出，浸出时间对尾矿中铀的浸出率影响不大，浸出时间为 4 h 时，浸出率已达 94.02%；增加浸出时间并不能明显提升铀浸出率，且铍浸出率较稳定。因此，浸出时间以 4 h 为宜。

表 4　浸出时间对铍尾矿铀浸出效果的影响

Table 4　Effect of leaching time on uranium leaching from beryllium tailings

浸出时间/h	浸出渣 w(U)/%	铀浸出率/%	铍浸出率/%
2	0.014	93.01	
4	0.012	94.02	6.42
8	0.013	93.67	6.28

2.2.3　浸出温度的影响

在液固体积质量比为 1.5 L/kg、酸浓度 5.00%、浸出时间 4 h 条件下，考察了浸出温度为 20、60、95 ℃时，浸出温度对铀浸出率的影响，结果见表 5。可以看出，浸出温度对尾矿中铀的浸出率影响不大，浸出温度为 20 ℃时，浸出率已达 94.02%；增加浸出温度虽然能够提高浸出率，但提升幅度并不大，而且铍浸出率随浸出温度升高有所提升。因此，浸出温度以 20 ℃为宜。

表 5　浸出温度对铍尾矿铀浸出效果的影响

Table 5　Effect of leaching temperature on uranium leaching from beryllium tailings

浸出温度/℃	浸出渣 w(U)/%	铀浸出率/%	铍浸出率/%
20	0.012	94.02	6.42
60	0.011	94.44	7.57
95	0.011	94.48	11.67

2.2.4　液固体积质量比的影响

在浸出温度 20 ℃、酸浓度 5.00%、浸出时间 4 h 条件下，考察了液固体积质量比分别为 1.5、3.0 L/kg 时，液固体积质量比对铀浸出率的影响，结果见表 6。可以看出液固体积质量比对尾矿中铀的浸出率影响不大。为了得到高铀浓度的浸出液，液固体积质量比以 1.5 L/kg 为宜。

表 6　液固体积质量比对铍尾矿浸铀的影响

Table 6　Effect of liquid-solid ratio on uranium leaching

液固体积质量比/(L·kg^{-1})	浸出渣 w(U)/%	铀浸出率/%
1.5	0.012	94.02
3.0	0.013	93.68

综上所述，采用浓度为 5.00% 的硫酸溶液对铍尾矿进行常规酸法搅拌浸出，在液固体积质量比1.5 L/kg、浸出温度 20 ℃、浸出时间 4 h 条件下，铀的浸出率达 94.02%，铍的浸出率只有 6.42%，可初步实现铀铍分离。

2.3　离子交换提铀试验

2.3.1　吸附试验

上述浸出条件得到的铀浸出液澄清透明，其中铀质量浓度为 1.32 g/L，铍质量浓度为 13.5 mg/L。以该浸出液为吸附原液，以 201×7 树脂为吸附树脂，进行吸附提铀试验，接触时间为 30 min，试验结果见图 4。可以看出，201×7 树脂吸附铀的效果好，吸附饱和体积为 41 BV；以吸附尾液铀质量浓度10 mg/L为穿透点，穿透体积为 15 BV，饱穿比为 2.7。饱和树脂中 w(U) 为 53.5 mg/g干树脂，w(Be)为 203 μg/g 干树脂，饱和树脂中铍含量非常低。

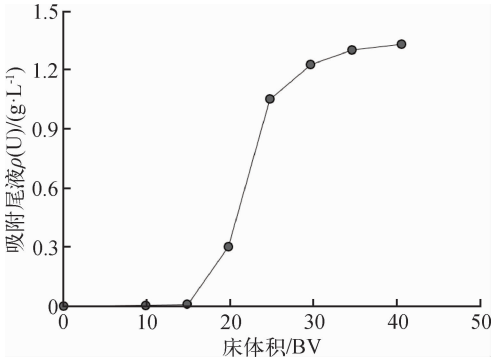


图 4 201×7 树脂铀吸附曲线

Fig. 4 Adsorption curve of uranium with 201×7 resin

2.3.2 淋洗试验

将 2.3.1 得到的铀饱和树脂，用 10 g/L H_2SO_4 + 1 mol/L NaCl 溶液淋洗，接触时间 30 min。淋洗结果见图 5。

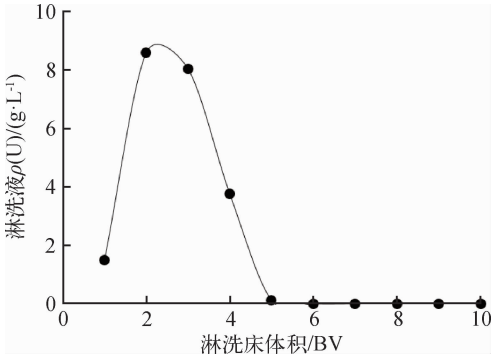


图 5 201×7 饱和树脂铀淋洗曲线

Fig. 5 Elution curve for uranium of 201×7 resin

从图 5 可知，第 2、3 BV 淋洗液中的铀质量浓度分别为 8.58、8.03 g/L，5 BV 淋洗液可实现全部淋洗。淋洗后贫树脂中 $w(U)$为 0.07 mg/g 干树脂。若取前 4 BV 淋洗液作为合格液，合格液铀质量浓度为 5.46 g/L；若取第 2～4 BV 淋洗液作为合格液，合格液铀质量浓度达 6.79 g/L，铍质量浓度仅为 89.3 μg/L。

研究表明，通过离子交换可实现铀的回收，同时达到铀铍进一步分离的效果。

3 结论

在铀铍伴生矿的铍浮选尾矿中，铀主要以独立铀矿物形式存在，易被硫酸溶液浸出；而铍以羟铍硅石存在，不易被浸出。在浸出酸浓度 5.00%、液固体积质量比 1.5 L/kg、浸出温度 20 ℃、浸出时间 4 h 条件下，尾矿中铀的浸出率达 94.02%。采用 201×7 树脂吸附、10 g/L H_2SO_4 + 1 mol/L NaCl 溶液淋洗，可从浸出液中回收铀，同时实现铀铍分离。

参考文献：

[1] 梁飞，赵汀，王登红. 中国铍资源供需预测与发展战略[J]. 中国矿业，2018，27(11)：6-10.

[2] 李爱民，蒋进光，王晖. 含铍矿物浮选研究现状与展望[J]. 稀有金属与硬质合金，2008，36(3)：56-59.

[3] 王谋，李晓峰，王果，等. 新疆雪米斯坦火山岩带白杨河铍铀矿床地质特征[J]. 矿产勘查，2012，3(1)：34-40.

[4] 王晨雪. 浅述铍冶炼技术[J]. 新疆有色金属，2017，40(5)：72-73.

[5] MATYASOVA V E，TRUBAKOV Y M，LAVRENT'EV A V. Technologies for the beryllium concentrate and beryllium hydroxide production from phenakite-bertrandite mineral raw material[J]. Journal of Mining Science，2018，54(5)：831-839.

[6] KORKISCH J，AHLUWALIA S S. Anion-exchange separation of beryllium，vanadium and other elements from large amounts of uranium[J]. Talanta，1964，11(12)：1627-1631.

[7] 郑元泽，王国全. 新疆杨庄羟硅铍石的浮选试验研究[J]. 新疆有色金属，2012，35(1)：66-68.

[8] 刘康，张亚红，杨志平，等. 某铀钼伴生矿赋存状态与浸出性能研究[J]. 铀矿冶，2017，36(2)：93-98.

[9] 支梅峰，张永明，王皓，等. 优溶渣中铀的硫酸浸出试验研究[J]. 铀矿冶，2018，37(4)：241-246.

[10] 黄来法，张利芳，张光荣. 硫酸分解钾长石磷矿萤石混矿的试验研究[J]. 无机盐工业，1985(4)：28-31.

[11] WANG P W，HU E M，WANG Q L. Selective extraction of uranium from uranium-beryllium ore by acid leaching[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry，2020，322(2)：597-604.

[12] 王培闻. 某铀铍矿中铀和铍的浸出和提取工艺研究[D]. 衡阳：南华大学，2020.

[13] 刘勇，刘牡丹，刘珍珍，等. 低品位铍精矿冶金处理新工艺的实验研究[J]. 稀有金属与硬质合金，2014，42(2)：13-15.

[14] 赵笑益，齐建云. 某羟硅铍石矿石选冶试验研究[J]. 现代矿业，2015(10)：85-88.

[15] 刘晓文，毛小西，刘庄. 羟硅铍石型铍矿的工艺矿物学研究[J]. 矿物学报，2010(S1)：61-63.

(下转第 45 页)

Analysis of the Main Material Handling System of Uranium Enrichment Factory

SUN Dan, HAO Chanchan, GUAN Chengming, TANG Jian
(CNNC Shaanxi Uranium Enrichment Co., Ltd., Hanzhong 723312, China)

Abstract: The special material handling system of the uranium enrichment factory was systematicly analyzed, the characteristics of special materials were analyzed in detail, the handling lines and logistics conditions were defined, the influencing factors and practical handling methods were distinguished, and a viable overall scheme of the special material handling was obtained. The economic and intangible factors of the handling scheme were analyzed and evaluated. The SHA provides theoretical supports for improving the special material handling, and provides a logical handling scheme for the rebuilding and expanding plan. It improves the handling efficiency and reduces the labor intensity. It also provides a certain reference for reducing the production cost.

Key words: material flow; SHA; handling scheme

(Continued from page 38)

Study on Recovery Uranium From Uranium-beryllium Flotation Tailings

YE Kaikai[1], SU Xuebin[2], LIANG Gengyu[1], ZHANG Jiayu[1], MA Jia[1], SHU Zujun[1], KANG Shaohui[1], ZHOU Zhiquan[1], REN Yan[1]
(1. Beijing Research Institute of Chemical Engineering and Metallurgy, CNNC, Beijing 101149, China;
2. China National Uranium Co., Ltd., CNNC, Beijing 100013, China)

Abstract: In order to recover uranium from uranium-beryllium flotation tailings and reduce the content of beryllium in uranium products, the occurrence state of uranium and beryllium in uranium-beryllium flotation tailings was analyzed by process mineralogy, and uranium was leached by sulfuric acid leaching process. The effects of acid concentration, leaching time, leaching temperature and liquid-solid ratio on the leaching rate of uranium and beryllium were investigated, and the feasibility of recovering uranium from leaching solution was studied by anion exchange resin. The results show that the uranium in the uranium-beryllium flotation tailings is more easily leached by sulfuric acid, but the beryllium is not easily leached, the uranium can be recovered and the uranium-beryllium can be separated by ion exchange method.

Key words: flotation tailings; beryllium; uranium; leaching; ion exchange