

## АННОТАЦИЯ

Диссертации на соискание степени доктора философии (Ph.D.) по специальности «6D072000- Химическая технология неорганических веществ»

**ЕСИМКАНОВА УМИТ МУСАБЕКОВНА**

### **Разработка технологии извлечения сопутствующих редкоземельных металлов при подземном выщелачивании урана**

**Актуальность темы исследования.** Урановые месторождения Казахстана могут служить источниками для извлечения многих редких и редкоземельных металлов (РЗМ), в том числе и таких как рений, скандий, ванадий, селен, иттрий и лантаноиды, использующихся в производстве высокотехнологичных материалов для авиакосмической и электронной промышленности. Урановое месторождение относится к разряду полиэлементных, в руде которого может содержаться в среднем (г/т): 0,25 Re, 3,3 Sc, 106  $\Sigma$ РЗМ. За счет большого объема циркуляционного раствора подземного скажинного выщелачивания (ПСВ) извлечение скандия, рения и РЗМ может представлять промышленный интерес.

25 октября 2021 года была принята Дорожная карта по научно-исследовательским работам по расширению ресурсной базы и организации производства РиРЗМ на 2021- 2025 года. В ней выбрано целое направление по поисковым работам извлечения технологии РЗМ. Отечественное предприятие ТОО «Институт высоких технологий», являющееся дочерним зависимым обществом АО «НАК «Казатомпром», выступало в роли ответственного исполнителя этого направления.

В связи с этим актуальным представляется разработка селективных методов извлечения и концентрирования РЗМ для выделения их из выбранного объекта исследования: разбавленных радиоактивных сернокислых растворов, образующихся после сорбции урана из продуктивных ПСВ руд Казахстана.

**Целью диссертационной работы является** выбор наиболее перспективного с экономической точки зрения попутного полезного компонента (ППК). Разработка высокоэффективной и экономически приемлемой технологии попутного извлечения выбранного ППК из маточных растворов сорбции урана при подземном выщелачивании урана на месторождениях АО НАК «Казатомпром».

#### **Задачи диссертационной работы:**

1. Определить текущие содержания попутных компонентов в технологических растворах 8 рудников АО «НАК «Казатомпром» с выбором наиболее привлекательного с точки зрения эффективного извлечения РМ и РЗМ месторождения. Определить наиболее перспективный с экономической точки зрения ППК для его извлечения из маточных растворов сорбции урана;

2. Осуществить подбор наиболее эффективных сорбентов для извлечения ППК из маточника сорбции урана;

3. Изучить статику, кинетику и динамику сорбции ППК с применением различных катионитов;

4. Разработать способ эффективной десорбции ППК из выбранного сорбента;
5. Разработать второй этап концентрирования ППК из десорбата;
6. Разработать технологию извлечения ППК из МСУ до получения конечной продукции в промышленном масштабе. Рассчитать материальный баланс движения ППК в разработанной технологии;
7. Провести технико-экономическую оценку разработанной технологии извлечения ППК.

**Объектом диссертационной работы являются** РЗМ, катионообменные смолы, скандий.

**Предмет исследования:** выщелачивание, сорбция, десорбция скандия, РЗМ из маточника сорбции урана.

**Новизна исследования заключается в следующем:**

1. Впервые изучены процессы сорбции скандия и других РЗМ на фосфорсодержащем катионите Purolite MTS 9580 применительно к реальным технологическим растворам ПСВ урановых руд Казахстана.
2. Впервые исследованы и установлены кинетические и динамические характеристики процесса сорбции, определены коэффициенты разделения, распределения, кинетический коэффициент и коэффициент диффузии.
3. Впервые описана технологическая схема получения оксида скандия с их удельными нормами расходов, годовым потреблением реагентов, характеристики всех колонн, потоков, перегрузов.

**Практическая значимость работы.**

1. Показана возможность извлечения скандия из растворов ПСВ урана без существенных изменений основной технологии, применяющейся на месторождении «б» для извлечения урана. Разработанную технологию извлечения скандия можно внедрить в опытно-промышленном масштабе на других уранодобывающих предприятиях.
2. Получен патент на способ извлечения скандия из маточных растворов сорбции урана ионообменной смолой Purolite MTS 9580.
3. Выполнен предварительный расчет технико-экономических показателей к технологической схеме, который показал умеренную доходность извлечения скандия из промышленных растворов ПСВ урана. Прогнозируется ежегодное получение средней чистой прибыли в размере 557 000 \$/год.

**Основные положения, выносимые на защиту:**

- подкисление исходного МСУ до концентрации  $\text{H}_2\text{SO}_4$  15 г/дм<sup>3</sup> увеличивает обменную емкость катионита Purolite MTS9580 по скандию до 200 мг/дм<sup>3</sup>;
- применение дробной десорбции позволяет разделить скандий и основные примеси с получением богатого по содержанию скандия десорбата;
- повторная сорбция скандия на анионите Ambersep 920U с насыщением до 0,4 кг/м<sup>3</sup> и последующая десорбция скандия нитратными растворами позволяют получить более богатый (220 мг/дм<sup>3</sup>) и чистый товарный десорбат для последующего прямого осаждения скандия;

• технологическая схема сорбционно-десорбционного извлечения скандия из возвратных растворов подземного скважинного выщелачивания урана рудника «б» обеспечивает производительность 0,101 кг/час оксида скандия.

### **Описание основных результатов**

1. На основании данных изучения геологических материалов, исследования состава урановой руды и продуктивных растворов ПСВ, а также анализа мирового рынка металлов показано, что в качестве перспективного компонента для попутного извлечения из промышленных растворов может рассматриваться скандий.

- Стоимость товарной продукции на мировом рынке, \$ /кг: оксид скандия - 2000-4200; перренат аммония – 900-1200;  $\Sigma$  РЗМ - 20-25.

Наиболее привлекательным по содержанию скандия в МСУ является месторождение «б»;

2. Установлено, что ионит Purolite MTS9580 обладает самой высокой селективностью по отношению к скандию, чем другие сорбенты. СОЕ сорбента Purolite MTS9580 максимальна – 0,049 мг/см<sup>3</sup>, соответственно, коэффициент разделения ( $\beta_{Sc/Э}$ ) и коэффициент распределения ( $D_{Э}$ ) скандия для MTS 9580 больше относительно других смол. Условие предварительного подкисления исходного МСУ до содержания H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>–15 г/дм<sup>3</sup> позволило увеличить обменную емкость Purolite MTS9580 по скандию в 3 раза (200 мг/дм<sup>3</sup>) по сравнению с TP260, при этом по РЗМ и вредным примесям обменная емкость Purolite MTS9580 существенно ниже, чем у TP260;

3 На основании изучения кинетики сорбции скандия ионитом Purolite MTS9580 из МСУ установлено, что механизм сорбционного процесса имеет сложный характер. Процесс сорбции скандия ионитом Purolite MTS9580 лимитируется гелевой диффузией. Химическая стадия процесса сорбции скандия на катионите Purolite MTS9580 описывается моделью псевдвторого порядка ( $R^2 = 0,999$ );

4. Предложен механизм сорбции скандия из сернокислых растворов на Purolite MTS9580. Методом ИК-спектроскопии было подтверждено формирование координационной связи между ионами скандия и функциональной группой MTS9580;

5. Выбранный состав десорбирующего раствора (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> – 110 г/дм<sup>3</sup>, Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> – 150 г/дм<sup>3</sup>) подтвердил свою эффективность при десорбции скандия с ионита MTS9580. Содержание скандия ~ 40 мг/дм<sup>3</sup> в карбонатном десорбате с MTS9580 усредненного состава против 10 мг/дм<sup>3</sup>, полученных в десорбате с TP 260; низкое содержание вредных примесей и РЗМ в карбонатном десорбате;

6. Для второго концентрирования применяли анионообменную смолу Ambersep 920U. ПДОЕ достигалась после пропускания 110 уд. объемов раствора, содержание скандия в смоле составляло 420 мг/дм<sup>3</sup>. Степень концентрирования скандия составила - 5,5. Состав товарного десорбата после второго сорбционного концентрирования: Sc - 220 мг/дм<sup>3</sup>, Al - 0,03 мг/дм<sup>3</sup>, Fe - 0,07 мг/дм<sup>3</sup>, Ca - 0,03 мг/дм<sup>3</sup>, Th – 2,7 мг/дм<sup>3</sup>, NO<sub>3</sub> - 80 г/дм<sup>3</sup>;

7. Впервые разработана детальная схема получения  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  с полным материальным балансом, удельными нормами расходов, годовым потреблением реагентов, характеристики всех колонн, потоков, перегрузов. Техно-экономический расчет разработанной технологической схемы извлечения скандия из маточных растворов сорбции урана рудника месторождения «б» с учетом внесенных изменений показал умеренную доходность: ожидается получение средней чистой прибыли в размере – 557 000 \$ в год.

#### **Связь диссертации с исследовательскими и государственными программами**

Диссертационная работа выполнялась в рамках Дорожной карты по научно-исследовательским работам по расширению ресурсной базы и организации производства РиРЗМ.

#### **Описание вклада докторанта в подготовку каждой публикации.**

Докторант принимал непосредственное участие в работах по сорбции, десорбции, получению экспериментальных данных, обработке и интерпретации экспериментальных результатов, а также принимал участие в выполнении физико-химических исследований для оформления статьи «The study of the kinetic characteristics of sorption of scandium of ion exchanger Purolite MTS9580 from return circulating solutions of underground leaching of uranium ores» в журнале «Eurasian Chemico-Technological Journal» (2020. -Vol. 22. –P. 135-140. IF 0.871 Quartile Q3 <https://doi.org/10.18321/ectj961>).

Докторант принимал непосредственное участие в работах по поиску литературного обзора, сорбции, получению экспериментальных данных, обработке и интерпретации экспериментальных результатов, а также принимал участие в выполнении физико-химических исследований для оформления патента на изобретение «Способ извлечения скандия из маточных растворов сорбции урана» (№34597).

Докторант принимал непосредственное участие в работах по выщелачиванию, получению экспериментальных данных, обработке и интерпретации экспериментальных результатов, а также принимал участие в выполнении физико-химических исследований для оформления статьи «Изучение процесса выщелачивания скандия из урановой руды фильтрационным методом» в журнале «Успехи в химии и химической технологии» (сб. науч. тр. Том XXXIII, № 1 (211). – М.: РХТУ им. Д. И. Менделеева, У78. 2019.– С. 74).

Докторант принимал непосредственное участие в работах по выщелачиванию, получению экспериментальных данных, обработке и интерпретации экспериментальных результатов, а также принимал участие в выполнении физико-химических исследований для оформления статьи «Изучение процесса выщелачивания скандия из урановой руды агитационным методом» в журнале «Химическая промышленность сегодня» (№1, 2020г. – С. 24-27).

Докторант принимал непосредственное участие в работах по десорбции, получению экспериментальных данных, обработке и интерпретации экспериментальных результатов, а также принимал участие в выполнении

физико-химических исследований для оформления статьи «Раздельная десорбция скандия и примесей» в журнале «Химический журнал Казахстана» (№1, УДК 546.63. 2020г. – С. 169-182.).

Докторант принимал непосредственное участие в работах сорбции, десорбции, получению экспериментальных данных, обработке и интерпретации экспериментальных результатов, а также принимал участие в выполнении физико-химических исследований для оформления статьи «Выбор сорбента для концентрирования скандия из растворов многокомпонентного состава» в журнале «Химический журнал Казахстана» (№1, УДК 546.63. 2020г.–С. 189-197.).

Докторант принимал непосредственное участие в работах по сорбции, десорбции, получению экспериментальных данных, обработке и интерпретации экспериментальных результатов, а также принимал участие в выполнении физико-химических исследований для оформления тезиса «Повышение емкости слабокислотного катионита по скандию за счет увеличения кислотности исходного раствора» в сборнике докладов Международной Инновационной Школы «Перспективы и технологии для диверсификации деятельности АО «НАК «Казатомпром» (2018 г.).

Докторант принимал непосредственное участие в работах по сбору данных, сорбции, десорбции, обработке и интерпретации экспериментальных результатов, а также принимал участие в выполнении физико-химических исследований для оформления тезиса «Изучение содержания редкоземельных металлов в растворах подземного выщелачивания атомной промышленности Казахстана» в сборнике трудов V международной научной конференции «Современные проблемы физики конденсированного состояния нанотехнологии и наноматериалов (2018 г.).

**Объем и структура диссертации.** Диссертационная работа состоит из введения, семи глав, заключения и списка использованной литературы. Работа представлена на 149 страницах, содержит 58 рисунков, 39 таблиц, 102 библиографические ссылки.