

TINH CHẾ URANI KỸ THUẬT VIỆT NAM ĐẠT ĐỘ SẠCH HẠT NHÂN BẰNG PHƯƠNG PHÁP CHIẾT VỚI DUNG MÔI TRIBUTYLPHOTPHAT

*TS. Nguyễn Trọng Hùng, PGS.TS. Lê Bá Thuận,
ThS. Nguyễn Duy Pháp
Viện Công nghệ Xạ Hiếm*

Trên cơ sở nghiên cứu sự phân bố của các thành phần của hệ chiết UN – TBP – HNO₃ trong các điều kiện chiết khác nhau và kết quả thu được theo chương trình mô phỏng URANIUM REFINING-I đã kiến nghị các thông số công nghệ để tinh chế uran kỹ thuật bằng phương pháp chiết nhiều bậc với dung môi TBP; đạt yêu cầu về độ sạch hạt nhân do ASTM quy định.

Mở đầu

Uranium được dùng làm nhiên liệu cho các lò phản ứng hạt nhân phải đạt độ sạch hạt nhân theo tiêu chuẩn ASTM quy định [1]. Do đó, tinh chế uranium là một giai đoạn quan trọng trong chu trình nhiên liệu hạt nhân [2, 3]. Hiện nay có nhiều phương pháp khác nhau để tinh chế uranium, trong đó chiết là phương pháp truyền thống và phổ biến [3]. Trong kỹ thuật này, dung môi tributylphosphat - (CH₃CH₂CH₂CH₂O)₃PO (TBP) được sử dụng cho giai đoạn tinh chế uranium [4]. Viện Công nghệ Xạ Hiếm thuộc Viện Năng lượng Nguyên tử Việt Nam là cơ quan chuyên ngành nghiên cứu về công nghệ thủy luyện quặng uranium và tinh chế uranium. Các nghiên cứu về tinh chế uranium đã đưa ra các thông số công nghệ chính cho quá trình chiết uranium [5]. Trong Báo cáo này, chúng tôi giới thiệu các kết quả nghiên cứu sâu có tính hệ thống và thiết lập quy trình công nghệ hoàn chỉnh chiết tinh chế uranium đạt độ sạch hạt nhân ở Việt Nam.

Thực nghiệm

Dung dịch uranyl nitrat – UO₂(NO₃)₂ (UN) kỹ thuật thu được khi hòa tan magie diuranat (sản phẩm của quá trình hòa tách quặng uranium dạng cát kết vùng Nông Sơn bằng axit sulphuric, được thực hiện tại Viện Công nghệ Xạ Hiếm) trong axit HNO₃, lọc loại tạp chất silic và bã rắn không tan. Các hóa chất HNO₃, TBP và các hóa chất khác là loại tinh khiết phân tích. Dung môi TBP 30% (V/V) được pha trong dầu hỏa hàng không được chưng cất ở phân đoạn 170 – 210°C.

Nồng độ UN ở pha nước được phân tích bằng phương pháp trắc quang tại bước sóng 475 nm sau khi tạo phức màu với H₂O₂ trong môi trường kiềm trên máy trắc quang UV-Vis - 1601 (Shimadzu). Hàm lượng các tạp chất ở hai pha được xác định bằng phương pháp phổ phát xạ nguyên tử plasma (ICP - AES) hoặc phổ hấp thụ nguyên tử (AAS) sau khi đã tách loại nền uranium bằng phương pháp chiết với dung môi TBP. Hàm lượng các nguyên tố đất hiếm được xác định bằng phương pháp kích hoạt neutron sau khi tách triệt để uranium bằng nhựa Chelex A-100 (Bio-rad) trong môi trường cacbonat.

Thí nghiệm chiết được tiến hành trên phễu chiết. Pha nước chứa UN được tiếp xúc pha với dung môi TBP 30% trong thời gian 10 phút ở nhiệt độ 30°C. Hàm lượng uranium và axit HNO₃ trong pha hữu cơ được phân tích sau khi đã giải chiết bốn lần bằng nước cất.

Phương pháp chiết mô phỏng trên hệ phễu chiết được áp dụng để đánh giá các thông số công nghệ của quá trình chiết trước khi sử dụng thiết bị chiết dạng khuấy lắng. Thiết bị chiết được sử dụng để tinh chế uranium là thiết bị chiết dạng khuấy lắng hình hộp. Mỗi bậc có dung tích 300 ml. Thiết bị chiết này được chế tạo tại Viện Công nghệ Xạ Hiếm theo mẫu của Trung tâm Nghiên cứu Nguyên tử Ấn Độ.

Kết quả và thảo luận

1. Khảo sát thực nghiệm một số đặc trưng của hệ chiết UN–TBP (30%)–HNO₃

Để xây dựng được quy trình chiết urani hoàn chỉnh và có hệ thống thì bước thực nghiệm cần thiết đầu tiên là khảo sát các đặc trưng của hệ chiết. Các kết quả nghiên cứu thu được sẽ là cơ sở bước đầu đưa ra một số thông số công nghệ cho quá trình chiết như: số bậc chiết, rửa chiết và giải chiết; tỷ lệ pha ở vùng chiết, rửa chiết; tốc độ dòng dung dịch nguyên liệu, dung dịch rửa, dung dịch giải chiết; nồng độ axit thích hợp cho vùng chiết, rửa chiết; nồng độ urani thích hợp trong dung dịch nguyên liệu đầu vào. Ngoài ra các khảo sát thực nghiệm này làm cơ sở cho sự mô phỏng quá trình chiết urani.

Các kết quả nghiên cứu hệ chiết UN–TBP– NO₃ chỉ ra rằng quá trình chiết đạt cân bằng chỉ sau 30 giây tiếp xúc pha. Quá trình giải chiết xảy ra chậm hơn, thời gian cần thiết là 3 phút. Tại vùng nồng độ HNO₃ ~ 4N, UN được chiết lên pha hữu cơ tốt nhất. Khi nồng độ axit tăng cao sẽ có hiện tượng chiết cạnh tranh của axit khiến hệ số phân bố D_U giảm. Sự phụ thuộc của D_U vào nồng độ axit càng kém rõ nét khi nồng độ ban đầu của urani ở pha nước càng cao. Những kết quả này rất quan trọng trong việc lựa chọn điều kiện tối ưu cho việc chiết tinh chế urani. Kết quả khảo sát đường đẳng nhiệt chiết urani cho thấy độ bão hòa urani của dung môi đạt giá trị 125 gU/l.

2. Mô hình hóa hệ chiết bằng phương pháp mạng nơ ron

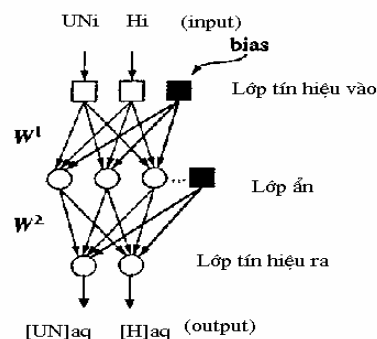
Giải pháp toán học mạng nơ ron nhân tạo mô tả số liệu cân bằng của hệ chiết UN – TBP – HNO₃ là thích hợp nhất với những lý do sau đây:

- Mạng nơ ron mô tả được sự phân bố của urani và axit HNO₃ ở hai pha ở các điều kiện rất khác nhau về nồng độ của các cấu tử này.
- Để mô hình hóa số liệu cân bằng của hệ chiết, không cần phải đưa vào mô hình các giá trị gần đúng của hệ số hoạt độ và một số thông số kinh nghiệm.
- Thực hiện tính toán sau khi mạng đã được xác định tương đối đơn giản.

Mạng nơ ron nhân tạo được xây dựng dựa trên bộ số liệu thực nghiệm về sự phụ thuộc của hệ số phân bố hoặc nồng độ cân bằng của urani và axit HNO₃ vào nồng độ ban đầu UN_i và H_i của chúng ở các khoảng nồng độ khác nhau trong hệ chiết UN – TBP(30%) – HNO₃. Có thể biểu diễn sự phụ thuộc này bằng hàm số mạng nơ ron như sau:

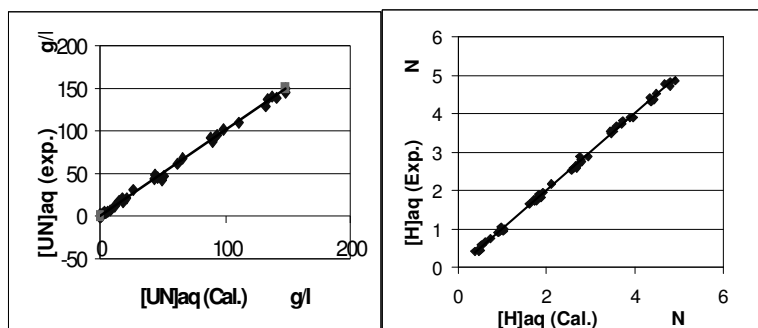
$$[UN]_{aq} = f(UN_i, H_i) \text{ và } [H]_{aq} = f(UN_i, H_i)$$

Cách biểu diễn cụ thể về mạng nơ ron của hệ chiết này được trình bày trong Hình 1. Trong nghiên cứu này, mạng một lớp ẩn đã được lựa chọn và như vậy cấu trúc của mạng là 2-X-2; ở đây X là số nơ ron ở lớp ẩn. Nếu như mạng nơ ron của hệ chiết này được xác định, ứng với một cặp giá trị thông số UN_i và H_i, mạng nơ ron có thể tính được các giá trị nồng độ cân bằng của UN ([UN]_{aq}) và HNO₃ ([H]_{aq}) ở pha nước và do đó ở cả pha hữu cơ.



Hình 1. Cấu trúc mạng nơ ron mô tả sự phân bố của cấu tử urani và HNO₃ trong hệ chiết UN – TBP – HNO₃

Để xác định cấu trúc và ma trận trọng số của mạng, một chương trình máy tính xác định thông số mạng nơ ron lan truyền ngược của sai số đã được xây dựng. Chương trình máy tính được thực hiện dựa trên việc hoàn thiện giải thuật tìm kiếm cực tiểu hàm mục tiêu. Giải thuật tìm kiếm hàm mục tiêu được hoàn thiện trên cơ sở giải thuật di truyền (Genetic algorithm) và phương pháp Deepest decent method. Trong quá trình "học" đã đưa vào hằng số thích nghi (adaptive constant) nhằm tăng tốc quá trình học của mạng nơ ron.



Hình 2. So sánh tương quan giữa giá trị tính toán (TT) và thực nghiệm (TN) đối với [UN]aq và [H]aq (đường liền là sự trùng nhau hoàn toàn giữa giá trị tính toán và thực nghiệm)

Hình 2 chỉ ra sự trùng hợp giữa giá trị tính toán theo mạng nơ ron và giá trị thực nghiệm của nồng độ cân bằng UN và HNO₃ trong pha nước. Từ hình 2 có thể nhận thấy rằng đa số giá trị tính toán trùng với giá trị thực nghiệm, như vậy mô hình mạng nơ ron hoàn toàn phù hợp để mô tả số liệu cân bằng của hệ chiết.

3. Sự phân bố của các tạp chất trong các hệ UN-Tạp chất-TBP-HNO₃

Trong urani kỹ thuật có nhiều tạp chất, trong đó các tạp chất có hàm lượng lớn như Mg, Ca, Fe, Al... và tạp chất có hàm lượng nhỏ nhưng có thiết diện bắt nơtron lớn như: nguyên tố đất hiếm, thori... Đặc điểm cơ bản của các tạp chất này là hệ số phân bố của chúng đều nhỏ hơn hệ số phân bố của urani trong hệ UN-Tạp chất-TBP-HNO₃.

Bảng 1 và Bảng 2 chỉ ra kết quả nghiên cứu sự phụ thuộc của hệ số phân bố của các tạp chất quan tâm có trong dung dịch UN kỹ thuật vào độ bão hòa urani của dung môi ở các nồng độ axit khác nhau. Kết quả thu được cho thấy:

- Hệ số phân bố của các tạp chất khảo sát rất nhỏ, nhỏ hơn nhiều hệ số phân bố của uranyl nitrat.
- Khi độ bão hòa urani của dung môi càng lớn, hệ số phân bố càng nhỏ.
- Hệ số phân bố ở độ bão hòa urani của dung môi > 75% gần như không sai khác nhiều và ít phụ thuộc vào nồng độ axit của pha nước.

Bảng 1. Hệ số phân bố của các tạp chất ở các độ bão hòa urani của dung môi khác nhau trong hệ: UN (dung dịch thực)-HNO₃ (2N)-TBP (30%)(R = 2)

Tạp chất	Độ bão hòa dung môi (%)				
	34	55	75	86	92
Ag	0,326	0,213	0,191	0,156	0,054
Al	0,011	0,004	0,003	0,004	0,002
B	0,015	0,013	0,01	0,01	0,01
Ba	0,071	0,021	0,024	0,025	0,014
Bi	0,056	0,016	0,010	0,008	0,018
Ca	0,069	0,033	0,026	0,020	0,016
Cd	0,041	0,028	0,019	0,027	0,012

Co	0,035	0,021	0,011	0,012	0,011
Cr	0,037	0,022	0,015	0,010	0,006
Cu	0,044	0,022	0,036	0,013	0,007
Fe	0,024	0,012	0,009	0,006	0,004
Gd	0,1	0,07	0,04	0,02	0,01
Hf	0,15	0,052	0,046	0,032	0,030
Li	0,005	0,006	0,004	0,006	0,004
Mg	0,010	0,005	0,003	0,004	0,002
Mn	0,014	0,007	0,005	0,006	0,003
Mo	0,021	0,008	0,005	0,006	0,003
Ni	0,030	0,014	0,010	0,010	0,005
Pd	0,031	0,015	0,019	0,012	0,007
Sb	0,013	0,005	0,006	0,005	0,003
Sn	0,055	0,028	0,022	0,023	0,011
Sr	0,017	0,008	0,006	0,006	0,004
Th	0,56	0,34	0,2	0,09	0,04
Ti	0,022	0,010	0,030	0,008	0,005
V	0,013	0,006	0,004	0,004	0,002
W	0,014	0,006	0,004	0,005	0,003
Zn	0,131	0,057	0,063	0,044	0,032
Zr	0,028	0,026	0,025	0,024	0,024

Bảng 2. Hệ số phân bố của một số tạp chất ở các nồng độ axit khác nhau (Dung dịch thực với hàm lượng U = 230g/l *)

Tạp chất	Giá trị D ở các nồng độ HNO ₃ khác nhau và ở R = 2			
	2,52N	3,14N	4,05N	5,24N
Al	0,003	0,002	0,005	0,003
B	0,008	0,004	$< 10^{-3}$	$< 10^{-3}$
Ca	0,034	0,023	0,033	0,031
Cd	0,015	0,006	0,014	0,007
Fe	0,006	0,005	0,008	0,010
Mg	0,003	0,002	0,005	0,003
Ni	0,015	0,006	0,012	0,027
Th	0,1	0,15	0,2	0,23
Zn	0,071	0,066	0,025	0,052
Zr	0,02	0,022	0,022	0,023

* Độ bão hòa urani của dung môi : ~ 80%

Một tạp chất khác cần được quan tâm đặc biệt là Gd. Kết quả nghiên cứu cho thấy D_{Gd} ở vùng nồng độ HNO₃ < 3 và ≥ 4N là nhỏ hơn so với vùng nồng độ HNO₃ trong khoảng 3 – 4N.

4. Mô phỏng quá trình chiết urani và các tạp chất

4.1. Mô phỏng quá trình chiết urani trên hệ thiết bị nhiều bậc ngược dòng

Mô hình toán học hệ chiết đơn bậc là giai đoạn rất quan trọng. Khi đã mô hình hóa được một hệ chiết ta có thể thu nhận được nhiều thông tin cần thiết từ mô hình này. Một giá trị quan trọng khác của mô hình là việc sử dụng nó cho quá trình mô phỏng, tức là một bước tiệm cận với thực tế tinh chế urani bằng phương pháp chiết.

Để thực hiện việc mô phỏng quá trình chiết urani trên hệ chiết nhiều bậc, cần giải quyết các vấn đề sau:

- Sự phân bố của urani và axit HNO₃, và mạng nơ ron ở $R \neq 1$.

- Tính toán sự phân bố của urani và HNO_3 ở các bậc chiết theo nguyên tắc ngược dòng.

Sự phân bố của urani ở $R \neq 1$ có thể được tính toán từ số liệu cân bằng của $R=1$ dựa trên nguyên tắc hai hệ chiết có R khác nhau nhưng có cùng một giá trị hệ số phân bố D_U và D_{HNO_3} , nồng độ ban đầu của UN và HNO_3 của hệ chiết $R \neq 1$ tiếp nhận giá trị được tính theo công thức sau đây:

$$\text{UN}_i^{(R \neq 1)} = \text{UN}_i^{(R=1)} + (R-1) \cdot ([\text{UN}]_{\text{hc}}^{(R=1)})$$

$$\text{Hi}^{(R \neq 1)} = \text{Hi}^{(R=1)} + (R-1) \cdot ([\text{H}]_{\text{hc}}^{(R=1)})$$

Dựa trên các công thức này có thể tính được nồng độ ban đầu UN_i và Hi của hệ chiết ở bất kỳ R nào và từ đó sẽ thu được bộ số liệu cho các R khác nhau. Các bộ số liệu này tiếp tục được xử lý và mô tả toán học theo giải pháp mạng nơ ron.

Nguyên tắc chiết ngược dòng nhiều bậc được mô tả như sau: pha hữu cơ và pha nước đi vào hệ thống chiết ngược dòng nhau. Tại bậc thứ n , pha hữu cơ được tiếp nhận từ bậc thứ $n-1$ và pha nước được tiếp nhận từ bậc thứ $n+1$. Khi hai pha này tiếp xúc với nhau do khuấy trộn, các cấu tử urani và axit HNO_3 được phân bố lại theo quy luật phân bố và sẽ đạt giá trị cân bằng nếu thời gian tiếp xúc pha đủ lớn. Sự phân bố tại bậc n lúc này được tính toán dựa trên mạng nơ ron đã thiết lập.

Trên cơ sở các nguyên tắc trên, một chương trình máy tính viết bằng ngôn ngữ VBA (Visual Basic for Application) trên nền của MS Excell đã được xây dựng. Chương trình này, có tên gọi là URANIUM REFINING-I, là sự tích hợp nguyên tắc chiết ngược dòng, sự tính toán lại nồng độ ban đầu của các cấu tử với các mô hình mạng nơ ron đã thiết lập ở các giá trị O/A khác nhau.

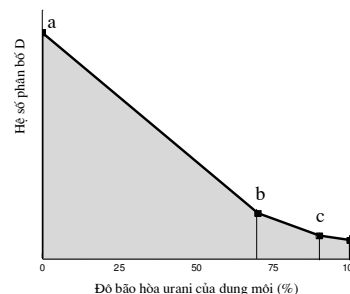
Chương trình này đã được kiểm chứng bằng phương pháp chiết ngược dòng gián đoạn trên hệ 7 phổ chiết. Kết quả kiểm chứng cho thấy số liệu thực nghiệm và tính toán khá phù hợp. Như vậy, có thể rút ra kết luận rằng chương trình mô phỏng này hoàn toàn có khả năng ứng dụng để khảo sát sự phân bố của urani trong quá trình chiết trên hệ thống chiết.

4.2. Mô phỏng sự phân bố của các tạp chất trên thiết bị chiết

Việc mô tả sự phân bố của urani trên toàn hệ thống chiết là quan trọng nhưng chưa đủ cho việc mô phỏng quá trình tinh chế urani. Một nội dung quan trọng cho quá trình mô phỏng là mô phỏng sự phân bố của các tạp chất. Đây là vấn đề khó do số tạp chất khá lớn và sự phân bố của các tạp chất này cũng khác nhau. Trên cơ sở các nghiên cứu thực nghiệm về quy luật phân bố của các tạp chất trong hệ chiết UN-Tạp chất-TBP- HNO_3 đã rút ra một số nhận xét sau:

- Hệ số phân bố của các tạp chất phụ thuộc vào độ bão hòa urani của dung môi.

- Mỗi nguyên tố tạp chất đều có đường phụ thuộc riêng được xác định bằng thực nghiệm. Dạng chung của đường phụ thuộc này được chỉ ra trên Hình 3.



Hình 3. Sự phụ thuộc đơn giản hóa giữa giá trị hệ số phân bố của tạp chất vào độ bão hòa urani của dung môi

Xuất phát từ các nhận xét này và để đơn giản hóa quá trình mô phỏng, các giả thiết gần đúng sau đây đã được sử dụng:

- Hệ số phân bố của các tạp chất phụ thuộc tuyến tính theo từng khoảng giá trị của độ bão hòa urani của dung môi. Nếu tăng số khoảng này lên sẽ tiệm cận với đường phụ thuộc xác định từ giá trị thực nghiệm. Mức độ giảm hệ số phân bố của các tạp chất trong các khoảng độ bão hòa urani của dung môi này ứng với các hệ số góc nhất định (Hình 3).

- Giá trị bằng số của hệ số góc này phụ thuộc vào từng nguyên tố cụ thể và vào điều kiện chiết được tiến hành.

Một cách gần đúng có thể nhận thấy: trong khoảng độ bão hòa của dung môi từ 0 đến 70%, hệ số phân bố của tạp chất giảm gần như tỷ lệ thuận với độ bão hòa của dung môi theo một hệ số góc xác định, trong khoảng độ bão hòa của dung môi từ 70% đến 90%, hệ số phân bố giảm theo hệ số góc có giá trị khác và đến khoảng độ bão hòa của dung môi từ 90% đến 100% thì hệ số phân bố hầu như không thay đổi nhiều. Khi xác định được các hệ số góc này, có thể tính được giá trị D ở bất kỳ giá trị độ bão hòa urani của dung môi. Như vậy ba điểm a, b và c ứng với ba khoảng độ bão hòa urani của dung môi là 0%, 70% và 90% đã được lựa chọn để mô phỏng sự phân bố của các tạp chất trong hệ chiết tinh chế urani.

Theo nguyên tắc trên, ở mỗi bậc chiết sự phân bố của urani cũng như độ bão hòa của pha hữu cơ được tính toán và từ đó tính toán lại hệ số phân bố của các tạp chất. Sau khi hệ số phân bố của các tạp chất đã được xác định, nồng độ của các tạp chất này ở các pha được tính toán và hiển thị trên màn hình máy tính khi chạy chương trình.

5. Tinh chế urani trên thiết bị chiết liên tục nhiều bậc

Dựa trên các nghiên cứu về hệ chiết UN-TBP-HNO₃ và chương trình URANIUM REFINING-I, đã tiến hành chiết thực tế urani trên thiết bị máy chiết liên tục dạng khuấy-lắng. Urani kỹ thuật do Trung tâm Công nghệ chế biến Quặng phóng xạ, Viện Công nghệ Xạ Hiếm cung cấp có hàm lượng urani ~ 70% được hòa tan trong dung dịch axit HNO₃ (tỷ lệ 1:2). Sau khi hòa tan, dung dịch UN được lọc, điều chỉnh nồng độ UN và HNO₃ để đưa vào hệ chiết. Hàm lượng các tạp chất của dung dịch nguyên liệu được trình bày ở Bảng 3.

Các thông số công nghệ cho quá trình chiết tinh chế urani với dung môi TBP 30% như sau:

Lựa chọn các điều kiện cho phần chiết

Số bậc chiết là 10 bậc

Tỷ lệ pha $R = 2$

Dung dịch nguyên liệu có nồng độ $[UN] \sim 230 \text{ gU/l}$ và $[HNO_3] \sim 2N$.

Tốc độ nạp dung dịch UN 15ml/phút và TBP 30ml/phút.

Lựa chọn các điều kiện cho phần rửa chiết

Số bậc rửa chiết là 10 bậc.

Tỷ lệ pha $R = 5$.

Dung dịch rửa chiết $[HNO_3]$ 2N hoặc 4N.

Tốc độ nạp dung dịch rửa chiết là 5ml/phút và dung môi là 25ml/phút.

Lựa chọn các điều kiện cho phần giải chiết

Số bậc giải chiết là 10 bậc.

Tỷ lệ pha R = 1.

Dung dịch giải chiết là nước hoặc dung dịch HNO₃ 0,05N.

Tốc độ nạp dung dịch giải chiết là 5ml/phút và dung môi là 5ml/phút.

Áp dụng các thông số công nghệ ở trên, đã tiến hành xử lý khoảng 10kg urani kỹ thuật và đã thu nhận một lượng dung dịch UN tinh chế có nồng độ urani 70 -80 gU/l. Hàm lượng một số tạp chất trong dung dịch UN sản phẩm được phân tích và thống kê ở Bảng 4. Kết quả đã chỉ ra rằng dung dịch UN đạt độ tinh khiết hạt nhân theo tiêu chuẩn ASTM quy định.

Bảng 3. Hàm lượng tạp chất (µg/g U) trong dung dịch UN

Tạp chất	Hàm lượng	Tạp chất	Hàm lượng	Tạp chất	Hàm lượng
Ag	14,3	Fe	2308,4	Si	54
Al	5936,7	Hg	5,47	Sn	162
As	1137,6	Mg	82207	Sr	40,1
B	3,45	Mn	809,5	Ta	8,5
Ba	5,05	Mo	8,8	Ti	37,27
Bi	12,4	Nb	9,7	Th	50
Ca	3239,7	Ni	28,7	V	219,4
Cd	1,8	Pb	1137,6	W	16,5
Co	4,7	REE	~2000	Zn	34,5
Cr	48,9	Sb	28,3	Zr	1,15
Cu	30,4				

6. Quy trình chiết tinh chế urani kỹ thuật Việt Nam đạt độ sạch hạt nhân

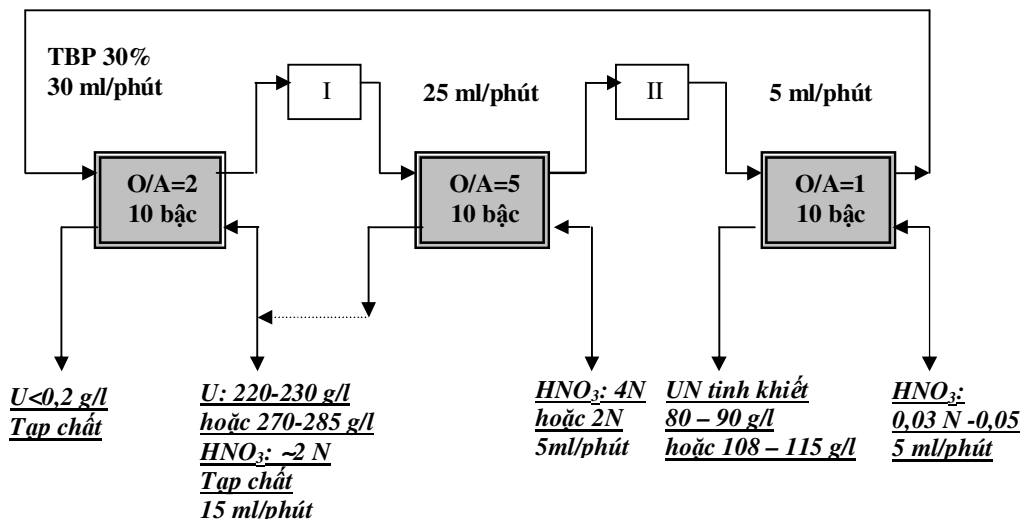
Trên cơ sở các kết quả nghiên cứu trên, một quy trình tinh chế urani Việt Nam đạt độ sạch hạt nhân bằng phương pháp chiết với dung môi TBP trên thiết bị chiết ngược dòng nhiều bậc đã được thiết lập. Các thông số công nghệ về tốc độ dòng dung môi và dung dịch áp dụng cho thiết bị chiết có dung tích buồng khuấy là 50 ml và dung tích buồng lắng là 300 ml. Với hệ thiết bị chiết dạng khuấy – lắng khác, tốc độ dòng dung môi và dung dịch có thể được tính toán dựa trên giá trị của dung tích buồng khuấy và buồng lắng.

Bảng 4. Hàm lượng một số tạp chất trong dung dịch UN tinh chế bằng TBP 30%

Tạp chất	Hàm lượng tạp chất (µg/gU)					Tiêu chuẩn ASTM
	Rửa chiết bằng HNO ₃ 4N (AAS)	Rửa chiết bằng HNO ₃ 2N (AAS)		Rửa chiết bằng HNO ₃ 4N (ICP-AES)	Kết quả phân tích so sánh (ICP-MS)	
		Lần 1	Lần 2			
Al	5,0	80	100	44,5	20,2	150
B	1,8	1,5	-	-	0,03	1
Ca	11,3	13,5	32,5	10,7	12,5	150
Cd	0,5	0,65	0,25	0,52	0,5	1
Co	-	-	-	8,2	12,5	80
Cr	-	-	-	7,5	10,2	150
Cu	6,1	0,5	0,45	10	6,1	200
Fe	9,4	2,1	10,5	25,88	20,0	200
Gd	0,05-0,06	<0,1	<0,12	0,06	0,06	1
Mg	21,0	30,5	50,0	24,63	18,0	150
Mn	-	-	-	0,06	0,05	200
Ni	0,15	0,5	0,45	3,81	20,5	150

Th	5,0	10	10	0,25	0,25	10
V	<1,0	<1,0	<1,0	6,73	<0,1	200
Zn	5,8	1,0	2,2	4,78	2,11	200

Ghi chú: AAS–Phổ hấp phụ nguyên tử; ICP-AES–Phổ phát xạ nguyên tử; ICP-MS–Phổ khối plasma



Hình 4. Sơ đồ công nghệ quá trình chiết urani đạt độ sạch hạt nhân. (I và II là thùng chứa trung gian để phân pha triệt để)

Kết luận

Kết quả nghiên cứu các thông số cơ bản của hệ chiết UN–TBP–HNO₃ như: đường đẳng nhiệt chiết, thời gian đạt cân bằng của quá trình chiết và giải chiết, sự phân bố của urani và axit ở các nồng độ ban đầu khác nhau của chúng, sự phân bố của một số tạp chất kim loại như Al³⁺, BO₃³⁻, Ca²⁺, Cd²⁺, Cu²⁺, Fe³⁺, Gd³⁺, Mg²⁺, Ni²⁺, Th⁴⁺, Zn²⁺, Zr⁴⁺ v. v. là cơ sở cho mô hình hóa số liệu cân bằng của hệ chiết bằng giải pháp mạng nơ ron và xây dựng chương trình mô phỏng quá trình chiết urani và tách loại tạp chất trên thiết bị chiết liên tục ngược dòng dạng khuấy–lắng. Trên cơ sở chương trình mô phỏng, đã khảo sát các thông số công nghệ và đã thực hiện tinh chế urani kỹ thuật Việt Nam trên hệ thiết bị chiết liên tục ngược dòng dung tích 300 ml/bậc với hệ chiết UN–TBP (30%)–HNO₃. Dung dịch sản phẩm UN thu được có nồng độ urani đạt từ 90–110 gU/l và hàm lượng tạp chất đạt yêu cầu về độ sạch hạt nhân do ASTM quy định./.

Tài liệu tham khảo

1. Standard specification for nuclear-grade uranyl nitrate solution, *Annual Book of ASTM Standards* (2001), c: 788-798.
2. Gromov B.B. “Đại cương công nghệ hóa học uran”, Moskva. 1978. (Tiếng Nga).
3. Ronald A. Knief (1992), *Nuclear Engineering: Theory and Technology of Commercial Nuclear Power*, Hemisphere Publishing Corporation.
4. *Gmelin Handbook of Inorganic Chemistry*. Uranium. Supplement Volume D 2: Solvent Extraction of Uranium. Springer-Verlag-NewYork, 1982.
5. Nguyễn Trọng Hùng, “Tinh chế urani Việt Nam đạt độ sạch hạt nhân bằng phương pháp chiết lỏng – lỏng với dung môi tributylphosphat”, Luận án tiến sỹ, Hà Nội – 2007.