doi:10. 3969/j. issn. 1007-7545. 2023. 06. 016

# 基于渗流-化学-应力多场耦合的砂岩型铀矿 CO<sub>2</sub>+O<sub>2</sub>地浸开采的数值模拟

牛庆合<sup>1,2,3</sup>,何佳彬<sup>1,2,3</sup>,王伟<sup>1,2,3</sup>,苏学斌<sup>4</sup>,周根茂<sup>5</sup>,赵利信<sup>4</sup>, 袁维<sup>1,2,3</sup>,常江芳<sup>1,2,3</sup>,胡明伟<sup>1,2,3</sup>

- (1. 道路与铁道工程安全保障教育部重点实验室(石家庄铁道大学),石家庄 050043;
  - 2. 省部共建交通工程结构力学行为与系统安全国家重点实验室,石家庄 050043;
    - 3. 河北省金属矿山安全高效开采技术创新中心,石家庄 050043;
      - 4. 核工业北京化工冶金研究院,北京 101149;
      - 5. 新疆中核天山铀业有限公司,新疆 伊宁 835000)

摘要:为探明不同影响因素对  $CO_2 + O_2$  地浸采铀效果的影响规律和影响机理,首先建立了适合  $CO_2 + O_2$  地浸的渗流-化学-应力多场耦合数值模型,其次,结合实际现场工况,开展了注液速率、渗透率、 $O_2$  配加浓度、 $HCO_3$  一配加浓度和铀矿石平均品位对  $CO_2 + O_2$  地浸采铀影响的数值模拟研究。研究表明: $CO_2 + O_2$  地浸过程中,抽液井铀浓度呈现"缓慢上升-快速上升-缓慢下降-趋于稳定"的阶段性变化趋势;矿层渗透率、铀矿石平均品位、 $O_2$  配加浓度、 $HCO_3$  一配加浓度与抽液井铀浓度呈现线性正相关关系,溶浸液的注入速率与抽液井铀浓度呈现线性负相关关系; $CO_2 + O_2$  地浸过程中应该选择初始渗透率大且铀品位高的矿层,同时应该适当加大  $O_2$  和  $HCO_3$  一的配加浓度,并控制好溶浸液注入速率,可实现铀资源的高效开采。本研究对  $CO_2 + O_2$  地浸矿层的选择和地浸工艺的优化具有重要的指导意义。

关键词:CO2+O2;地浸采铀;多场耦合;数值模拟

中图分类号:TL212.1+2 文献标志码:A

文章编号:1007-7545(2023)06-0144-09

# Numerical Simulation of CO<sub>2</sub>+O<sub>2</sub> In-situ Leaching of Sandstone Type Uranium Deposit Based on Multifield Coupling of Seepage-Chemistry-Stress

NIU Qing-he<sup>1,2,3</sup>, HE Jia-bin<sup>1,2,3</sup>, WANG Wei<sup>1,2,3</sup>, SU Xue-bin<sup>4</sup>, ZHOU Gen-mao<sup>5</sup>, ZHAO Li-xin<sup>4</sup>, YUAN Wei<sup>1,2,3</sup>, CHANG Jiang-fang<sup>1,2,3</sup>, HU Ming-wei<sup>1,2,3</sup>

- (1. Key Laboratory of Roads and Railway Engineering Safety Control (Shijiazhuang Tiedao University), Ministry of Education, Shijiazhuang 050043, China;
- 2. State Key Laboratory of Mechanical Behavior and System Safety of Traffic Engineering Structures, Shijiazhuang Tiedao University, Shijiazhuang 050043, China;
- 3. Hebei Technology and Innovation Center on Safe and Efficient Mining of Metal Mines, Shijiazhuang 050043, China;
  - 4. Beijing Research Institute of Chemical Engineering and Metallurgy, Beijing 101149, China;
    - 5. Xinjiang Tianshan Uranium Co., Ltd., CNNC, Yi'ning 835000, China)

**Abstract:** In order to explore the influence law and mechanism of different influencing factors on  $CO_2 + O_2$ 

收稿日期:2023-03-29

**基金项目:**国家自然科学基金-核技术创新联合基金资助项目(U1967208);国家自然科学基金面上项目(51979170);河北省自然科学基金资助项目(E2021210128)

作者简介: 牛庆合(1990-), 男, 博士, 讲师

in-situ leaching effect of uranium deposits, firstly, a multi-field coupling numerical model of seepage-chemistry-stress suitable for  $CO_2 + O_2$  in-situ leaching was established, and then, combined with the actual site conditions, the numerical simulation study of the influences of liquid injection rate, permeability,  $O_2$  addition concentration,  $HCO_3^-$  addition concentration, and uranium ore average grade on  $CO_2 + O_2$  in-situ leaching uranium were carried out. The results show that during the  $CO_2 + O_2$  in-situ leaching process, uranium concentration in pumped well indicates a phased change trend of "slow rise, rapid rise, slow decline, and stabilize". The permeability of ore seam, average grade of uranium ore,  $O_2$  addition concentration, and  $HCO_3^-$  addition concentration show a positive linear correlation with uranium concentration of pumping well, and the injection rate of leaching solution shows a negative linear correlation with uranium concentration of pumping well. During the  $CO_2 + O_2$  in-situ leaching process, uranium deposits with large initial permeability and high uranium grade should be selected, the concentration of  $O_2$  and  $HCO_3^-$  should be appropriately increased, and the injection rate of leaching solution should be controlled to achieve efficient exploitation of uranium resources. This study has important guiding significance for site selection and parameter optimization of  $CO_2 + O_2$  in-situ leaching process.

Key words: CO<sub>2</sub> + O<sub>2</sub>; in-situ leaching of uranium mine; multi-field coupling; numerical simulation

天然铀资源在国家经济发展和军事发展中具有举足轻重的地位。和传统的露天开采和地下开采相比,地浸采铀具有生产成本低、劳动强度小、环境保护好、资源利用高等优势,已成为世界范围内最主要的铀矿开采方式,目前,我国地浸采铀产量已占全国天然铀总产量的 90% 以上。地浸工艺主要有酸性浸出、碱性浸出和  $CO_2 + O_2$  中性浸出<sup>[1]</sup>, $CO_2 + O_2$  中性地浸不易造成矿层淤堵,已在我国松辽、鄂尔多斯、伊犁等地得到了应用,目前其产能已达全国天然铀总产能的 63%。

原位地层条件下 CO<sub>2</sub> +O<sub>2</sub>地浸过程中,溶浸液中的氧化剂首先将四价铀氧化成六价铀,然后和 SO<sub>4</sub><sup>2</sup>、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>和 CO<sub>3</sub><sup>2</sup>等离子形成络合物,实现溶浸开采,这一系列化学反应会影响矿层渗流能力,其中涉及到渗流-化学-应力多场耦合问题。针对该问题,前人主要通过现场试验和数值模拟开展相关研究。

在现场试验方面,针对不同铀矿的储层条件,采用的  $CO_2+O_2$ 地浸工艺也需要不断优化,以实现最优的地浸开采效果。现场试验中通过补加碳酸氢铵或调整溶浸液 pH 来优化地浸工艺,张青林等[2] 和 陶峰等[3] 研究发现,通过补加碳酸氢铵可以实现铀资源强化浸出,增加碳酸氢铵可将单孔铀浓度提升 1.73~44.3 mg/L、集合样铀浓度提升 8 mg/L<sup>[2]</sup>。要保证抽液孔稳定的铀浸出浓度,还需通过调整  $CO_2$ 注入量来调节溶液的 pH,降低溶浸过程中沉淀的发生。张青林等[4] 开展了某砂岩铀矿石 $CO_2+O_2$ 

浸出工艺的柱浸试验,发现保持 HCO。 浓度不低于 800 mg/L,可取得较好的铀浸出效果,同时将pH 控制在 6.5 以内,可避免方解石和白云石等矿物沉淀<sup>[5]</sup>,确保地浸过程顺利进行。除此之外, ZHAO 等<sup>[6]</sup>开展浸出试验时,通过对砂岩样品施加低频振动,来提高低渗砂岩型铀矿的浸出效率,认为低频振动显著提高了砂岩样品的浸出性能和渗透率。

在数值模拟研究方面,QIU等[7]建立了三维多 组分反应运输模型,以评估化学反应对铀原地浸出 的影响。研究表明:碳酸氢盐加速了含铀矿物的溶 解,促进了铀的浸出。由于碳酸盐和溶液的反应导 致 Ca<sup>2+</sup>和 Mg<sup>2+</sup>的浓度升高,引发了二次白云石矿 物沉淀,造成铀的浸出率降低。贾明涛等[8]基于 COMSOL-PHREEQC 耦合模型对新疆某铀矿的两 个采区进行了 CO2+O2地浸数值模拟,分析了渗透 性能对浸出性能的影响;张文等[9]基于溶质渗流运 移机理建立了铀矿溶质迁移的对流扩散模型,并对 我国西部某铀矿进行了数值模拟,验证了模型有效 性。张建华等[10]研究了原地浸出采铀中井型及井 距选择的优化方法,运用 Visual Modflow 软件对某 矿山不同井距下的井型进行了数值模拟,得出了最 合理的井型为七点型,为类似的铀矿地浸开采提供 了参考。

目前,关于铀矿  $CO_2 + O_2$  地浸的研究主要侧重于室内和现场试验分析,虽可一定程度揭示地浸开采机理,但对现场工艺优化的指导尚不够。开展

 $CO_2 + O_2$  地浸多场耦合数值模拟,可进一步分析  $CO_2 + O_2$  地浸的影响因素,有助于地浸工艺水平的持续提升。于此,本文通过构建  $CO_2 + O_2$  地浸的渗流-化学-应力耦合数值模拟,以四注一抽井组为研究对象开展现场数值模拟,分析了注液速率、渗透率、 $O_2$  配加浓度、 $HCO_3$  一配加浓度和铀矿石平均品位对铀浸出浓度的影响规律和影响程度,为  $CO_2 + O_2$  地浸工艺优化提供理论依据。

### 1 渗流-化学-应力耦合数学模型

本文对渗流-化学-应力耦合数学模型做出如下假设:1)铀矿层为饱和多孔弹性介质,岩石骨架变形属于小变形;2)考虑到物质浓度、孔隙度等参数是随着时间改变的,整个过程设置为瞬态;3)铀矿层中溶浸液的渗流符合达西定律;4)矿层孔隙度和渗透率假设为各向同性。

#### 1.1 饱和多孔介质的渗流方程

溶浸液在矿层中的运移过程属于饱和多孔介质 的渗流,可参考达西定律:

$$\nabla \left(\rho u\right) = Q_{\rm m} \tag{1}$$

$$u = -\frac{\kappa}{\mu} \nabla p \tag{2}$$

式中, $\rho$  为流体的密度(kg/m³);u 为多孔介质中流体的渗流速度(m/s); $Q_m$  为质量源项(kg・s<sup>-1</sup>・m<sup>-3</sup>); $\kappa$  为渗透率(m²); $\mu$  为流体的动力黏度(Pa・s);p 为孔隙水压力(Pa)。

#### 1.2 溶质运移方程

溶浸液中离子运移符合饱和多孔介质中稀物质 传递规律,满足如下方程:

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} + \nabla J_i + u \nabla C_i = R_i \tag{3}$$

$$J_i = -D_i \nabla C_i \tag{4}$$

式中, $C_i$  为孔隙水中溶质的浓度  $(\text{mol/m}^3)$ ; $R_i$  为质量源项  $(\text{kg} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-3})$ ; $D_i$  为溶质的扩散系数  $(\text{m}^2/\text{s})$ ; $J_i$ 为溶质的通量  $(\text{mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1})$ 。

#### 1.3 孔隙度控制方程

运用偏微分方程来定义岩层中孔隙度的变化<sup>[11]</sup>,H<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>对岩层孔隙度的影响满足以下公式:

$$\frac{\partial \varphi}{\partial t} = R_i \exp\left(-\frac{E_i}{RT}\right) C_{\text{H}_2\text{CO}_3} C_{\text{M}} \frac{\beta_i}{\rho_i}$$
 (5)

式中, $R_i$  矿物的反应速率常数(mol·m<sup>-2</sup>·s); $\varphi$  为岩石的孔隙度,无量纲; $E_i$  为矿物的活化能(kJ/mol); R 为气体常数(J·mol<sup>-1</sup>·K<sup>-1</sup>));T 为地层温度(K);  $C_{H_i,CO_i}$  为碳酸浓度(mol/m³); $C_M$  为参与反应矿物的

质量分数,无量纲; $\beta$ ,为碳酸对反应矿物的溶解能力,无量纲; $\rho$ ,为矿物的密度(kg/m³)。

孔隙度与渗透性的关系满足[12]:

$$k = k_0 \left(\frac{1 - \epsilon_0}{1 - \epsilon}\right)^2 \left(\frac{\epsilon}{\epsilon_0}\right) \tag{6}$$

式中 $,k_0$ 为初始渗透率 $(\mu m^2); \varepsilon_0$ 为初始孔隙度,无量纲。

#### 1.4 物质的反应速率方程

矿物的反应速率与矿物的比表面积和酸液的浓度等因素有关[11],具体的反应速率方程如下:

$$r_i = A_i R_i \exp\left(-\frac{E_i}{RT}\right) C_{\text{H}_2\text{CO}_3} C_{\text{M}} \lambda_i \tag{7}$$

式中, $r_i$ 为矿物的反应速率 $(\text{mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1})$ ; $A_i$ 为矿物的比反应表面积 $(\text{cm}^2/\text{g})$ ; $\lambda_i$ 为反应产率,无量纲。

#### 1.5 应力场方程

根据达西定律,可以用渗流过程中流过单元体 三个表面的流量变化之和来表示单元体的变形量<sup>[13]</sup>,因此得到以下比奥固结方程<sup>[13]</sup>:

$$\frac{\partial}{\partial t} \left( \frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} + \frac{\partial w}{\partial z} \right) = \frac{k}{\mu} \nabla^2 p \tag{8}$$

$$(\lambda + G) \frac{\partial \varepsilon_v}{\partial x_i} - G \nabla^2 u_i + \alpha \frac{\partial p}{\partial x_i} = 0$$
 (9)

$$\lambda = \frac{E\nu}{(1+\nu)(1-2\nu)} \tag{10}$$

$$G = \frac{E}{2(1+\nu)} \tag{11}$$

式中,u,v,w分别为单元体在x,y,z三个方向上的位移(m); $\lambda$  为拉梅常数(Pa);G 为切变模量(Pa); $\varepsilon$ 。为固体骨架的体应变,无量纲。 $\alpha$  为Biot 系数,无量纲;E 为弹性模量(Pa); $\nu$  为泊松比,无量纲。

#### 1.6 渗流-化学-应力耦合关系

地浸过程中,溶浸液的渗流、岩石骨架以及溶浸液与岩石的反应三者之间会产生耦合。渗流场通过孔隙压力来改变铀矿层的有效应力,使其发生变形和位移,进而对应力场产生影响。渗流场与化学场之间双向耦合,溶浸液渗流控制了溶质运移过程,对地浸化学反应产生影响,溶浸液-岩石的化学反应改变了孔隙度,进而对渗流场产生影响。化学场通过改变矿层的孔隙结构来影响局部应力分布,对应力场产生控制作用。

#### 2 模型验证

本文运用 COMSOL 软件进行数值模拟的耦合

计算。首先,依据陶峰等<sup>[3]</sup>的现场试验工况,构建四个注液井、一个抽液井形成的"四注一抽"井组。考虑到区域地质构造简单、矿产岩性一致,岩层初始孔隙度假设均匀分布,建立如图 1 所示的二维模型。

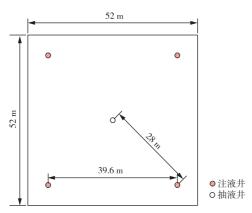


图 1 二维几何模型

Fig. 1 Two-dimensional geometric model

现场试验中矿层平均埋深为  $250 \text{ m}^{[3]}$ ,初始温度为 303.15 K。根据现场试验测试数据,多孔介质的导水系数为  $5.31 \text{ m}^2/\text{d}$ ,储水系数为  $1.11 \times 10^{-4}$ ,渗透系数为  $0.19 \text{ m/d}^{[3]}$ ,模拟所用其余参数借鉴前人研究数据 $^{[3.11-14]}$ ,具体见表 1.60 m

表 1 模拟参数取值

Table	1	Simul	ate	parameters
-------	---	-------	-----	------------

Table 1	Simulate paramet	CIS
参数	数值	单位
地层温度(T)	303. 15	K
初始渗透率 $(k_0)$	0.000 20	$ m \mu m^2$
初始孔隙度 $(\epsilon_0)$	0.05	无量纲
扩散系数 $(D_i)$	$3 \times 10^{-8}$	$m^2/s$
流体密度(ρ)	$1 \times 10^{3}$	${ m kg/m^3}$
比奥系数(α)	1.0	无量纲
弹性模量(E)	$5 \times 10^{9}$	Pa
泊松比(ν)	0.25	无量纲
流体动力黏度(μ)	$2.98 \times 10^{-3}$	Pa•s
白云石速率常数 $(R_1)$	$2.95 \times 10^{-8}$	$mol/(m^2 \cdot s)$
方解石速率常数(R <sub>2</sub>	1. $55 \times 10^{-9}$	$mol/(m^2 \cdot s)$
白云石活化能( $E_1$ )	52.2	kJ/mol
方解石活化能(E <sub>2</sub> )	23.5	kJ/mol
白云石比表面积 $(A_1)$	10	$\mathrm{cm^2/g}$
方解石比表面积(A2	) 152	$\mathrm{cm^2/g}$
白云石密度( $\rho_1$ )	2 860	$kg/m^3$
方解石密度(ρ2)	2715	$kg/m^3$
气体常数(R)	8.314	$J/(mol \cdot K)$
碳酸对白云石溶解能力	$(\beta_1)$ 0.65	无量纲
碳酸对方解石溶解能力	$(\beta_2)$ 0.5	无量纲
白云石反应产率(λ1)	0.54	无量纲
方解石反应产率(λ2	0.4	无量纲

现场试验中进行的  $O_2$  氧化浸出和  $CO_2 + O_2$  浸出两个阶段未能取得理想的浸出液铀浓度,因此,本

模采用 CO<sub>2</sub> +O<sub>2</sub> +NH<sub>4</sub> HCO<sub>3</sub> 强化浸出阶段作为模型验证(图 2)。试验和数值模拟铀浓度曲线误差分析见图 3。地浸初期试验值和模拟值的误差较大,这是因为溶浸液与岩石还未充分反应,且模拟初始阶段流体渗流需要一定时间。整体上,试验与数值模拟所得铀浓度曲线形态基本一致,数据误差在2.00%~17.68%,证明了本文所建模型是合理的,可以进行现场尺度的 CO<sub>2</sub> +O<sub>3</sub> 地浸开采模拟。

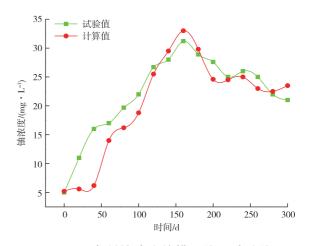


图 2 浸出剂铀浓度的模拟值和试验值 Fig. 2 Simulated and experimental values of uranium concentration of leaching agent

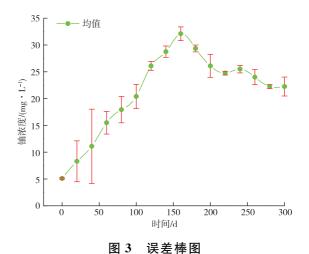


Fig. 3 Error bar chart

本文主要考虑注液速率、渗透率、 $O_2$ 配加浓度、 $HCO_3$ 一配加浓度和铀矿石平均品位等因素的影响,为了进行归一化分析,选取注液速率、渗透率、 $O_2$ 配加浓度、 $HCO_3$ 一配加浓度和铀矿石平均品位的基准值分别为 0.2%、0.000 99  $\mu$ m²、373 mg/L、1 321 mg/L、0.5 kg/s,研究在基准值  $0.2\sim1.0$  倍情况下的地浸开采效果,具体变量值见表 2.6

#### 表 2 归一化参数对应不同因素下的变量值

Table 2 Normalization parameters correspond to variable values under different factors

影响因素 -	归一化参数						
影响囚系	0.2	0.4	0.6	0.8	1.0		
铀矿石平均品位/%	0.04	0.08	0.12	0.16	0.2		
渗透率/μm²	0.000 20	0.000 40	0.000 60	0.000 79	0.000 99		
$O_2$ 浓度/(mg • $L^{-1}$ )	75	149	224	298	373		
HCO <sub>3</sub> -浓度/(mg·L <sup>-1</sup> )	264	528	793	1 057	1 321		
注入速率/(kg·s <sup>-1</sup> )	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5		

#### 3 分析与讨论

依据  $CO_2 + O_2$  原地浸出原理,采用渗流-应力-化学多场耦合的方法,结合实际工况,对地浸过程进行数值模拟计算,得到了岩石内部的孔隙压力与岩石内部位移变化云图,孔隙度和渗透率变化云图以及  $HCO_3$  和铀浓度变化云图。

#### 3.1 CO2+O2地浸地化反应模式

 $CO_2 + O_2$  原地浸出采铀工艺中,首先将  $CO_2$  和  $O_2$  配加到尾液中形成浸出剂。 $CO_2$  溶于水中形成碳酸,然后碳酸与矿层中的碳酸盐反应形成  $HCO_3$  一,浸出剂中溶解的  $O_2$  与四价铀反应形成六价铀,并且六价铀在  $HCO_3$  一 充足的情况下从固态转为液态,形成  $UO_2$  <sup>2+</sup>。  $UO_2$  <sup>2+</sup> 通过配位反应形成碳酸铀酰络合离子,从而实现铀的浸出。

$$CO_2 + H_2 O \rightarrow H_2 CO_3$$
 (12)

$$H_2CO_3 + CaCO_3 \rightarrow Ca^{2+} + 2HCO_3^-$$
 (13)

$$H_2CO_3 + MgCO_3 \rightarrow Mg^{2+} + 2HCO_3$$
 (14)

$$2UO_2 + O_2 \rightarrow 2UO_3 \tag{15}$$

$$UO_3 + H_2O \rightarrow UO_2^{2+} + 2OH^-$$
 (16)

$$UO_2^{2+} + HCO_3^{-} \rightarrow UO_2CO_3 + H^+$$
 (17)

(18)

$$UO_2^{2+} + 2HCO_3^{-} \rightarrow [UO_2(CO_3)_2]^{2-} + 2H^{+}$$

 $[UO_2 (CO_3)_2]^{2-} + HCO_3^{-} \rightarrow [UO_2 (CO_3)_3]^{4-} +$ 

 $H^{+} \tag{19}$ 

#### 3.2 数值模拟结果

图 4a 和图 4b 分别为孔隙压力以及岩层位移变化云图。可以看出,CO<sub>2</sub>+O<sub>2</sub>地浸过程中,从注液井到抽液井孔隙压力逐渐降低,造成了铀矿层应力场的变化,使其发生位移,这是因为增大孔隙压力导致铀矿层的有效应力减小,引起了铀矿层的变形,导致位移增加。

图 4c 和图 4d 分别为渗透率和孔隙度的变化云

图。可以看出,CO<sub>2</sub>+O<sub>2</sub>地浸过程中,溶浸液渗流范 围内孔隙度和渗透率增大,这是因为矿层中溶浸液 与碳酸盐矿物发生溶蚀反应,提升了原始矿层的孔 隙度,从而增强了铀矿层的渗流能力。

图 4e 和图 4f 分别为 HCO<sub>3</sub> 一浓度和铀浓度的变化云图。可以看出,随着 HCO<sub>3</sub> 一浓度增加,铀浓度逐渐减小,这是因为六价铀与 HCO<sub>3</sub> 一反应实现了铀的浸出,导致矿层中的铀浓度减小。但是在溶浸液未能到达的区域,铀矿石未能参与反应,从而形成了溶浸死角,导致铀浓度值偏高。

#### 3.3 渗透率对铀浸出浓度的影响

不同渗透率下浸出剂中铀浓度变化规律见图 5。在地浸开采 50 天以前,铀浓度上升较为缓慢,这是因为溶浸液在矿层中从注液井到抽液井渗流需要一定时间,抽液井铀浓度变化不大。地浸开采第 50 天时,铀浓度开始急剧增加,在第 150 天左右达到峰值,随后铀浓度快速下并趋于稳定。不同矿层渗透率时铀浓度峰值在 33~39.8 mg/L,趋于稳定时铀浓度在 23.5~30.2 mg/L。铀储层渗透性增加后,溶浸液在矿层中的渗流阻力减小,这对地浸铀浓度的提升具有积极的作用,所以选择渗透性高的铀矿层对铀资源的开采十分有利。

#### 3.4 O<sub>2</sub>配加浓度对铀浸出浓度的影响

不同  $O_2$ 配加浓度下浸出剂中铀浓度变化规律 见图 6。在 50 天以前铀浓度值上升比较缓慢,随后 急剧上升,在 160 天左右达到峰值,随后进入快速下降阶段,最后铀浓度峰值趋于稳定。不同  $O_2$  配加浓度时,铀浓度峰值在  $18.69 \sim 41$  mg/L,趋于稳定时的铀浓度在  $8.46 \sim 32$  mg/L。随着  $O_2$  配加浓度的升高,矿层中更多的四价铀被氧化为六价铀,导致矿层中的六价铀增多,提高了浸出剂中铀的浓度。所以适当加大  $O_2$  配加浓度对铀的浸出具有积极作用。

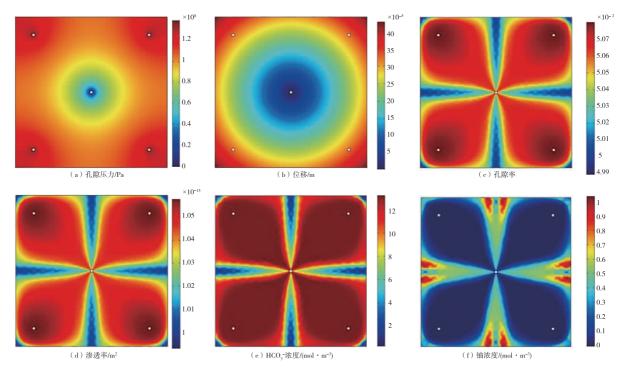


图 4 模拟云图

Fig. 4 Simulated cloud

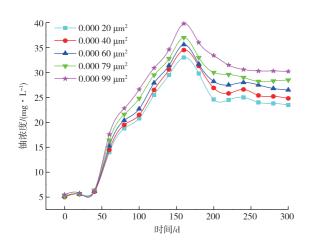


图 5 不同初始渗透率下铀浓度变化
Fig. 5 Variation of granium concentration

Fig. 5 Variation of uranium concentration at different permeability rates

#### 3.5 HCO<sub>3</sub> 型加浓度对于铀浸出浓度的影响

不同  $HCO_3$  的配加浓度下浸出剂中铀浓度的变化规律见图 7。在 50 天以前铀浓度值上升比较缓慢,随后进入快速上升阶段,在第 150 天左右达到峰值,随后快速下降,最后进入稳定阶段。不同  $HCO_3$  配加浓度时,铀浓度峰值在  $19\sim42$  mg/L,

趋于稳定时的铀浓度在  $9.4 \sim 28.2 \text{ mg/L}$ 。 $HCO_3^-$ 浓度增加导致更多的六价铀从固相转为液相,且  $HCO_3^-$ 增加会提高溶液中氢离子的数量加快溶浸液与碳酸盐的反应,增加矿层的孔隙度。所以提高  $HCO_3^-$ 浓度有利于铀资源的开采。

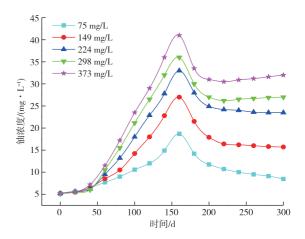


图 6 不同 O<sub>2</sub>配加浓度下 铀浓度变化

Fig. 6 Variation of uranium concentration at different O<sub>2</sub> addition concentrations

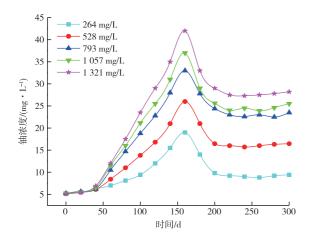


图 7 不同 HCO<sub>3</sub> <sup>-</sup> 配加浓度下铀浓度变化 Fig. 7 Variation of uranium concentration under different HCO<sub>3</sub> <sup>-</sup> addition concentrations

#### 3.6 溶浸剂的注入速率对于铀浸出浓度的影响

不同溶浸剂注入速率下浸出剂中铀浓度的变化规律见图 8。在 50 天以前铀浓度的上升比较缓慢,在第 50 天左右铀的浓度进入快速上升阶段,达到峰值的时间为 250 天左右,随后进入快速下降阶段,最后趋于稳定。不同溶浸液的注入速率时,进入快速上升阶段的时间在 30 至 60 天,铀浓度的峰值出现的时间在 60 天至 250 天,铀浓度的峰值在 11.3~42 mg/L,趋于稳定时的铀浓度值在 3.5~23.5 mg/L,注入速率为 0.5 kg/s 时的铀浓度值在 300 天还未达到稳定阶段。

注入速率提高增加了矿层的孔隙压力,提高了溶液的流动速度,提前了铀浓度值的上升阶段和峰值的出现时间,但是溶浸液渗流速度太快导致溶浸液与岩石的反应不充分,降低了铀浓度值。所以溶浸液注入速率太高不利于铀资源的开采。

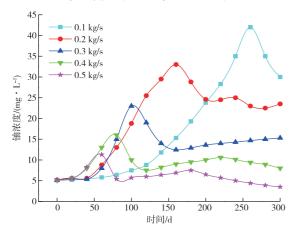


图 8 不同溶浸剂注入速率下铀浓度变化 Fig. 8 Variation of uranium concentration at different infusion agent injection rates

#### 3.7 铀矿石品位对于铀浸出浓度的影响

不同铀矿石品位下浸出剂中铀浓度的变化规律见图 9。在 50 天以前铀浓度值上升比较缓慢,随后进入快速上升阶段,在第 160 天左右达到峰值,随后快速下降,最后进入稳定阶段。不同铀矿石的平均品位时,铀浓度峰值在 12.3~38 mg/L,趋于稳定时的铀浓度在 6.23~23.5 mg/L。增加铀矿石品位提高了储层中铀资源的初始含量。所以选择铀矿石品位高的矿藏对铀资源的开采十分有益。

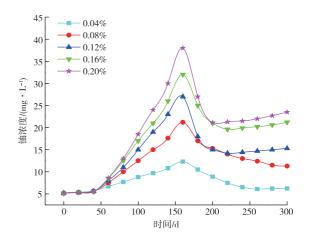


图 9 不同铀矿石品位下铀浓度的变化 lig. 9 Variation of uranium concentration at different uranium ore grades

## 4 敏感性分析

为了比较各因素对浸出液铀浓度变化的影响大小,将地浸 300 天后,各影响因素进行了归一化处理,进行多因素分析,并且将其与抽液井铀浓度的关系进行拟合,结果见图 10。

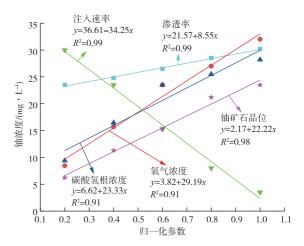


图 10 敏感性分析图 Fig. 10 Multivariate analysis figure

从图 10 可以看出,注液速率、渗透率、 $O_2$  配加浓度、 $HCO_3$  配加浓度和铀矿石平均品位与归一化参数之间均符合线性关系,拟合相关系数  $R^2$  均大于 0.9,表明拟合匹配度较高,可以用来预测各影响因素作用下抽液并的铀浓度。

其中,渗透率、O<sub>2</sub>浓度、HCO<sub>3</sub> 一浓度、铀矿石平均品位与铀浓度呈正相关关系,而注入速率与铀浓度呈负相关关系。提升铀矿石平均品位、渗透率增加了矿层原始铀含量和渗流能力,在储层条件方面利于铀资源的浸出;提高 O<sub>2</sub>浓度、HCO<sub>3</sub> 一浓度实际上是加快了溶浸过程,在地浸工艺方面有利于铀资源的浸出;过高的注入速率导致部分溶浸液尚未与铀矿层发生充分的反应即从抽液并排出,显然不利于铀资源浸出。图 10 拟合方程的斜率实际上反应了各影响因素的重要性程度,斜率的绝对值越大,该因素对抽液并铀浓度的影响越显著。从拟合方程的斜率可以看出,各种因素对铀浓度影响的程度大小依次为:注入速率>O<sub>2</sub>浓度>HCO<sub>3</sub> 一浓度>铀矿石平均品位>渗透率。

基于上述分析,在  $CO_2 + O_2$  地浸过程中,地浸工 艺参数对地浸效果具有显著的控制作用,其次,选择 有利于地浸开采的铀矿层亦可取得较好的地浸效果。

#### 5 结论

1) CO<sub>2</sub> +O<sub>2</sub> 地浸过程中,抽液井铀浓度呈现阶段性变化趋势。在地浸初始阶段,铀矿层和溶浸液还没有反应完全,导致抽液井铀浓度上升比较缓慢,随后进入快速上升阶段,铀浓度迅速达到峰值。随着地浸过程的进行,矿层中的铀含量降低,之后进入缓慢下降阶段,直至趋于稳定。

2) 矿层渗透率、O<sub>2</sub> 配加浓度、HCO<sub>3</sub> <sup>-</sup> 配加浓度和铀矿石平均品位与抽液井铀浓度呈正相关关系;溶浸液的注入速率与抽液井铀浓度呈负相关关系。各种因素对铀浓度值影响大小排名依次为注入速率>O<sub>2</sub>浓度>HCO<sub>3</sub> <sup>-</sup> 浓度>铀矿石平均品位>渗透率。

3)在铀资源的  $CO_2 + O_2$  地浸开采选址上应该首选渗透率大并且铀含量高的矿层,其次在  $CO_2 + O_2$  地浸开采工艺上应该适当加大  $O_2$  和  $HCO_3$  的浓度,同时控制好溶浸液的注入速率,通过合理选址和地浸工艺的优化,可促进铀资源的高效开采。

#### 参考文献

[1] KUHAR L L, BUNNEY K, JACKSON M, et al.

Assessment of amenability of sandstone-hosted uranium

- deposit for in-situ recovery [J]. Hydrometallurgy, 2018,179:157-166.
- [2] 张青林,周义朋,穆志军,等. CO<sub>2</sub>+O<sub>2</sub>地浸采铀强化浸出试验[J]. 有色金属(冶炼部分),2020(12):48-53. ZHANG Q L,ZHOU Y P,MU Z J,et al. Field trial on enhanced in-situ leaching of uranium by CO<sub>2</sub> + O<sub>2</sub> leaching[J]. Nonferrous Metals (Extractive Metallurgy), 2020(12):48-53.
- [3] 陶峰,张传飞,冯国平,等. 某砂岩型铀矿 CO<sub>2</sub> + O<sub>2</sub> 地 浸采铀试验[J]. 有色金属(冶炼部分),2022(6):56-61.

  TAO F,ZHANG C F,FENG G P,et al. CO<sub>2</sub> + O<sub>2</sub> insitu leaching of uranium from a sandstone type uranium deposit[J]. Nonferrous Metals (Extractive Metallurgy),
- [4] 张青林,丁德馨.某砂岩铀矿石 CO<sub>2</sub>+O<sub>2</sub>柱浸实验[J]. 有色金属(冶炼部分),2017(8):35-39. ZHANG Q L, DING D X. CO<sub>2</sub> + O<sub>2</sub> column leaching test of sandstone type uranium ore [J]. Nonferrous Metals (Extractive Metallurgy),2017(8):35-40.

2022(6):56-61.

- [5] Fiaz Asghar,周义朋,孙占学,等.新疆蒙其古尔矿床铀 矿石 CO<sub>2</sub>+O<sub>2</sub>中性浸出试验[J].有色金属(冶炼部分), 2021(8):46-55.

  ASGHAR F, ZHOU Y P, SUN Z X, et al. CO<sub>2</sub> + O<sub>2</sub> neutral leaching experiment of uranium ore from Mengqiguer deposit in Xinjiang[J]. Nonferrous Metals (Extractive Metallurgy), 2021(8):46-55.
- [6] ZHAO Y,GAO Y,LUO C W,et al. Improved uranium leaching efficiency from low-permeability sandstone using low-frequency vibration in the CO<sub>2</sub> +O<sub>2</sub> leaching process[J]. Journal of Rock Mechanics and Geotechnical Engineering, 2022(14):770-780.
- [7] QIU W J, YANG Y, SONG J, et al. What chemical reaction dominates the CO<sub>2</sub> and O<sub>2</sub> in-situ uranium leaching? insights from a three-dimensional multicomponent reactive transport model at the field scale [J/OL]. Applied Geochemistry, 2023, 148: 105522. https://doi.org/10.1016/j.apgeochem. 2022. 105522.
- [8] 贾明涛,金家聪,陈梅芳,等.基于 COMSOL-PHREEQC 的砂岩型铀矿浸出性能模拟分析技术[J].铀矿地质,2021,37(4):745-754.

  JIA M T,JIN J C,CHEN M F, et al. Simulation and analysis technology of leaching performance of sandstone-type uranium deposit based on COMSOL-PHREEQC [J]. Uranium Geology, 2021, 37 (4): 745-754.
- [9] 张文,丁子荣,沈启,等.砂岩型铀矿溶质迁移的数学模型及数值算法[J].东华理工大学学报(自然科学版),

2022,45(3):253-260.

ZHANG W, DING Z R, SHEN Q, et al. Mathematical model and numerical algorithm of solute migration in sandstone-type uranium deposits [J]. Journal of East China University of Technology (Natural Science), 2022, 45(3):253-260.

- [10] 张建华,朱新铖,史骥. 某原地浸出铀矿井型及井距优化数值模拟[J]. 金属矿山,2017,46(3):25-30.
  ZHANG J H,ZHU X C,SHI J. Optimization numerical
  - simulation on well pattern and well spacing of an in-situ leaching uranium mine[J]. Metal Mine, 2017, 46(3):25-30.
- [11] 王帅. 干热岩储层化学激发机理及其物理力学演变规律研究[D]. 太原:太原理工大学,2019.
  - WANG S. Research on mechanism and physics mechanics evolution law under chemical stimulation in

- hot dry rock [D]. Taiyuan: Taiyuan University of Technology, 2019.
- [12] ZHANG R L, YIN X L, PHILIP H W, et al. A fully coupled thermal-hydrological-mechanical-chemical model for CO<sub>2</sub> geological sequestration[J]. Journal of Natural Gas Science and Engineering, 2016(28): 280-304.
- [13] 郑训臻. 化学-应力-渗流作用下尾矿坝变形耦合模型研究[D]. 阜新:辽宁工程技术大学,2013.

  ZHENG X Z. Research of tail deformation coupling model under the action of chemistry-stress-seepage[D].

  Fuxin: Liaoning Technical University, 2013.
- [14] 张德平. 化学-渗流-应力作用下 CO<sub>2</sub> 埋存地层完整性研究[D]. 大庆:东北石油大学,2020.

  ZHANG D P. Study on the integrity of CO<sub>2</sub> storage formation under chemical-seepage-stress action [D].

  Daqing:Northeast Petroleum University,2020.

#### (上接第137页)

- [5] 谢锴,米沙. 闪速熔炼精矿喷嘴下料偏析仿真与试验研究[J]. 矿冶工程,2015,35(4):75-79,83.
  - XIE K, MI S. Numerical simulation and experimental verification for feed maldistribution in concentrate burner of flash smelting furnace [J]. Mining and Metallurgical Engineering, 2015, 35(4):75-79,83.
- [6] 孙彦文,艾元方,陈红荣.中央扩散式精矿喷嘴气粒混合特性数值模拟[J].中南大学学报(自然科学版), 2014,45(11):3727-3732.
  - SUN Y W, AI Y F, CHEN H R. Numerical simulation on gas-particle mixing characters of CJD burner[J]. Journal of Central South University (Science and Technology), 2014, 45(11); 3727-3732.
- [7] 艾元方,汤才铄,孙彦文,等. 精矿喷嘴粒子分散特性研究[J]. 有色金属(冶炼部分),2014(10):5-10.
  - AI Y F, TANG C S, SUN Y W, et al. Study of particles dispersing characteristics of concentrate burner [J]. Nonferrous Metals (Extractive Metallurgy), 2014 (10):

5-10.

- [8] 汤才铄.中央扩散型精矿喷嘴空气动力学特性冷模实验研究[D].长沙:中南大学,2014.
  - YANG C S. Cold model experimental study on the aerodynamic characteristics of a central diffusion type concentrator jet[D]. Changsha: Central South University, 2014
- [9] 陈卓,王云霄,宋修明,等. 高投料量下炼铜闪速炉内熔炼过程的数值模拟[J]. 中国有色金属学报,2011,21(11):2916-2921.
  - CHEN Z, WANG Y X, SONG X M, et al. Numerical simulation of smelting process in copper flash smelters at high loading rate [J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2011, 21(11): 2916-2921.
- [10] 马永明. 铜冶炼闪速炉精矿喷嘴优化与改造的生产实践[J]. 世界有色金属,2022(21):16-18.
  - MA Y M. Modification of concentrate burner of flash furnace[J]. World Nonferrous Metals, 2022(21):16-18.