地浸采铀工艺数值模拟进展及电动地浸采铀工艺数值模型建立

柳 琪[1],李春光[1,2],刘龙成[2],刘振中[1],张 翀[3],孟 硕[2],王文吉[2]

(1.南华大学 资源环境与安全工程学院,湖南 衡阳 421001;
2.南华大学 放射性废物处理处置与数学模型研发中心,湖南 衡阳 421001;
3.核工业北京化工冶金研究院,北京 101149)

摘要:为了将电动原地浸出(EK-ISL)技术更好地应用于低渗透性铀矿开采,提高低渗透性铀矿的浸出效率,需要借助数值模拟技术对其进行研究。从地浸采铀过程的物理化学行为出发,介绍了数值模拟技术对地浸采铀的推动作用,总结了地浸采铀模型的基本方程和求解方法,结合电动修复领域的相关数值模型分析了 EK-ISL 模型需要描述的关键过程,并在此基础上提出了初步的电动原地浸出采铀数值模型。

关键词:原地浸出采铀;电动原地浸出;数值模拟;溶质迁移

中图分类号:P619.14;TD868 **文献标志码**:A **文章编号**:1000-8063(2023)01-0001-09

DOI:10.13426/j.cnki.yky.2022.08.03

作为核电燃料和国防资源,全球对铀资源的需求急剧增加[1]。原地浸出采铀(地浸采铀)技术环境污染小、投产成本低[2-3],特别适用于低品位深埋砂岩型铀矿,在世界范围内被广泛应用[4]。利用数值模拟方法对原地浸出采铀过程的研究,推动了该技术在溶浸范围、矿物溶解速率、溶质迁移等方面的发展[5]。

目前,在中国已探明的砂岩型铀矿资源中,有约 50%的资源的渗透系数低于 0.1 m/d,属低渗透性铀矿[6],无法利用常规原地浸出采铀技术对其进行经济高效地开采,亟需发展新的、更为经济高效的铀矿开采技术。电动(EK)技术对溶质迁移具有促进作用[7-9],通过将电动技术和原地浸出技术相结合,开发了电动原地浸出(EK-ISL)采金技术[10]。EK-ISL 技术在金矿石浸出方面的可行性已得到证实[11],但在铀矿浸出方面仅有初步探索,缺乏深入研究[12-13]。为了更好地应用数值模拟技术指导电动原地浸出采铀实践,在原地浸出模型及电动修复模型的基础上,提出了电动原地浸出采铀技术数值模拟方案。

1 原地浸出采铀物理化学行为

原地浸出采铀数值模拟是对铀迁移与铀矿物溶解反应的耦合模拟[14],即对原地浸出采铀的物理行为和化学行为进行模拟[15]。因此在进行数值模拟前,需先了解浸出过程发生的物理化学行为。

1.1 原地浸出采铀中的物理行为

原地浸出采铀中的物理行为主要表现在质量传递、热量传递、动量传递,以及流体性质等方面。质量传递、热量传递和动量传递是由于渗透液的浓度、温度、压力等因素的变化而发生的,这些传递会通过对流、扩散、弥散影响溶质的运移。

原地浸出采铀技术适用于具有一定渗透性的砂岩型铀矿[16],无法有效开采低渗透性铀矿,因此需要对该技术进行优化。仅对原地浸出采铀过程中的物理行为或化学行为进行单一的研究已无法满足需要,需对浸出过程物理行为和化学行为进行耦合研究,数学模型是此研究过程中不可或缺的重要工具[17]。

收稿日期:2022-08-27

基金项目:国家自然科学基金(52204139)

第一作者简介:柳琪(2000—),女,河北衡水人,在读硕士,主要从事地浸采铀及数值模拟研究工作。

通信作者简介:李春光(1983—),女,内蒙古赤峰人,博士,副教授,主要从事溶浸采铀研究工作。

1.2 原地浸出采铀中的化学行为

原地浸出采铀方法主要包括酸法浸出、碱法浸出及中性浸出[18]，发生的主要化学反应见表 1。

表 1 原地浸出采铀主要化学行为

Table 1 Main chemical behavior of in-situ leaching uranium

浸出方法	主要化学反应
酸法浸出	$UO_2+Fe_2(SO_4)_3=2FeSO_4+UO_2SO_4$
	$U_3O_8+1/2O_2+3H_2SO_4=3UO_2SO_4+3H_2O$
	$UO_3+H_2SO_4\rightleftharpoons UO_2SO_4+H_2O$
	$UO_2SO_4+SO_4^{2-}\rightleftharpoons[UO_2(SO_4)_2]^{2-}$
	$[UO_2(SO_4)_2]^{2-}+SO_4^{2-}\rightleftharpoons[UO_2(SO_4)_3]^{4-}$
碱法浸出	$UO_2+1/2O_2\longrightarrow UO_3$
	$U_3O_8+1/2O_2+9CO_3^{2-}+3H_2O=$ $3[UO_2(CO_3)_3]^{4-}+6OH^-$
	$UO_2+1/2O_2+3CO_3^{2-}+H_2O=$ $[UO_2(CO_3)_3]^{4-}+2OH^-$
	$UO_3+2HCO_3^-\longrightarrow[UO_2(CO_3)_2]^{2-}+H_2O$
	$UO_3+CO_3^{2-}+2HCO_3^-\longrightarrow$ $[UO_2(CO_3)_3]^{4-}+H_2O$
中性浸出（CO_2+O_2 浸出）	$UO_2+1/2O_2\longrightarrow UO_3$
	$UO_3+nHCO_3^-\longrightarrow[UO_2(CO_3)_n]^{2-2n}+nH_2O$
	$[UO_2(CO_3)_2]^{2-}+HCO_3^-\longrightarrow$ $[UO_2(CO_3)_3]^{4-}+H^+$
	$CO_2+H_2O\rightleftharpoons H_2CO_3$
	$H_2CO_3\rightleftharpoons H^++HCO_3^-$
	$HCO_3^-\rightleftharpoons H^++CO_3^{2-}$

2 原地浸出采铀数学模型研究

2.1 原地浸出采铀数值模拟基本方程及求解

反应动力学能够较好地揭示原地浸出采铀过程中溶质的迁移变化[19-22]，可以用反应性溶质运移模型来描述原地浸出采铀过程[23]。浸出剂首先会在铀矿表面发生氧化还原反应，之后会以质量传递的方式逐渐扩散到矿石内部进一步发生氧化还原反应。浸出剂与矿石中铀元素反应生成的配合物，会通过对流、弥散作用与外部溶液进行迁移运输。描述该过程通用的控制方程为[24]

$$\frac{\partial C_i}{\partial t}=-\nabla J_i+R_i\ ,$$

式中：C_i —液相浓度，mol/m^3；t —时间，s；J_i —物种总通量，mol/(m^2 · s)；R_i —源汇项，mol/(m^3 · s)。该方程描述了原地浸出采铀的物理行为（J_i，平流通量和弥散通量）和化学行为（R_i，化学平衡反应或动力学），其中流体流动速率可以用达西定律表示。在对不同浸出方法进行数值模拟时，发生不同的化学反应（表 1），会对 R_i 产生影响。

求解反应性溶质运移模型的方法，主要有直接一步法（DSA）、顺序迭代法（SIA）和顺序非迭代法（SNIA）[25]。反应性溶质运移数值模拟基本流程框架如图 1 所示。使用不同的求解方法可能会得到完全不同的结果，需结合具体模型来选择正确的求解方法。

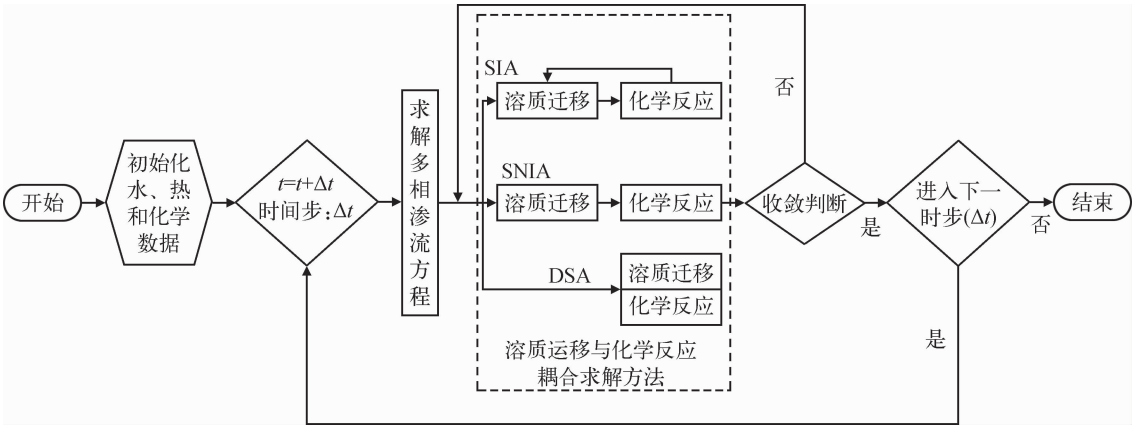


图 1 反应性溶质运移数值模拟基本流程[26]629

Fig. 1 Basic flow of reactive transport simulation

一些模拟软件中提供了模型求解方法,如PHT3D提供了多种模型求解方法,其中较为可靠的是修正特性方法(MMOC)和第三方(TVD)格式。TOUGHREACT程序一般使用顺序迭代法(SIA)对模型进行求解,先计算多相渗流方程,将得出的速度和饱和度结果代入溶质迁移方程,再将溶质迁移方程的结果代入到化学反应方程中,采用牛顿-拉普森法(Newton-Raphson)处理混合动力学平衡的化学反应系统方程。这些基本方程及求解方法是原地浸出采铀数值模拟的基础,可应用于电动原地浸出采铀数值模型的开发过程。

2.2　原地浸出采铀数值模拟的发展

上述控制方程是原地浸出采铀数学模型的基本方程,许多学者结合该方程进行了大量研究,包括利用实验对模型进行对比验证以及结合实验对模型和方程进行修正,原地浸出采铀数值模拟技术也随之不断发展。

阙为民[27]建立了酸法原地浸出采铀过程的地球化学动力学模型,并对浸出过程进行了溶浸范围等模拟预测分析。Simon等[28]在反应动力学、地球化学反应及流体动力学传递速率等基础上建立了一维数学模型,利用耦合了水动力学和地球化学的HYTEC代码模拟柱试验,成功模拟了渗滤液的化学趋势,并在实验室尺度上提出了酸法原地浸出过程的一维水文地球化学输运模型,该模型指出了影响原地浸出采铀的几个因素:1)矿石中的氧化铁能够提高铀的溶解度;2)矿石中存在的碳酸盐会降低矿石的孔隙度,并降低铀的浸出效率。

GMS数值模拟软件可以将各种模拟软件集合在同一环境下,同时借助其他辅助模块对原地浸出采铀过程进行数值模拟,赵贺永等[29]利用GMS软件进行二维模拟,将酸法浸出过程分为3个阶段:1)在酸化阶段,溶浸剂与矿石表面接触并发生相互作用;2)在生产阶段,铀元素被浸出;3)在浸出末期阶段,以扩散浸出为主。

三维反应运移模型更为真实,能够更加有效地指导原地浸出采铀过程。Regnault等[30]针对某原地浸出铀矿山建立了三维反应运移模型,并根据该模型对酸法原地浸出采铀的关键过程进行量化,从而提升了矿石溶解速率并减少了浸出剂的使用,该模型为预测性模拟开辟了道路。

在原地浸出采铀过程中,溶液流散后会进入地下水环境,并对地下水环境造成影响,因此需要在生产中控制溶浸范围,抽大于注是控制溶浸范围的主要手段。将GMS和PHREEQC软件耦合,可对铀元素迁移扩散距离及其浓度分布进行模拟[31-32],基于对模拟结果的分析可以确定生产中的抽大于注比例,有助于控制生产成本及保护地下水环境。

为了提高原地浸出采铀的开发效率,必须建立热力学模型来揭示原地浸出采铀的地球化学过程。Shen等[33]通过对酸法原地浸出采铀过程的酸化阶段进行了研究,建立了铀矿物-溶液-气体体系的热力学模型,该模型较好地再现了铀矿物在不同试验条件下的溶解度。为了进一步优化原地浸出采铀技术,贾明涛等[34]基于有限元理论构建的COMSOL-PHREEQC耦合模型对砂岩型铀矿CO_2+O_2原地浸出过程进行了数值模拟,对地浸过程中的地球化学反应进行了化学动力学计算,并基于MATLAB平台开发了COMSOL和PHREEQC的接口程序。

此外,为改善低渗性砂岩铀矿的渗透性,还可使用PHREEQC对原地浸出采铀过程中浸出剂与铀发生的化学反应以及浸出液在铀矿含水层中的水-岩相互作用进行模拟计算[35-36],建立溶蚀量与渗透性之间的关联关系。通过数值模拟对原地浸出采铀过程中的溶质迁移规律的研究[37-38],得出动力学模型与平衡模型中UO_2^{2+}浓度随时间的变化(图2)[39],原地浸出采铀过程中铀化学形态的分布(图3);与现场监测数据对比后发现,动力学模型较平衡模型更贴近实际,为原地浸出采铀技术的发展提供了指导。

3　电动数值模型

为了更好地理解电场作用下的原地浸出采铀过程,需要进行数学模型的开发。鉴于目前对电动原地浸出技术的数值模拟研究较少,可以从电动修复模型中吸取经验。在电动修复过程中,5种传输机制(电迁移、电渗透、电泳、扩散、平流)并存[40]。

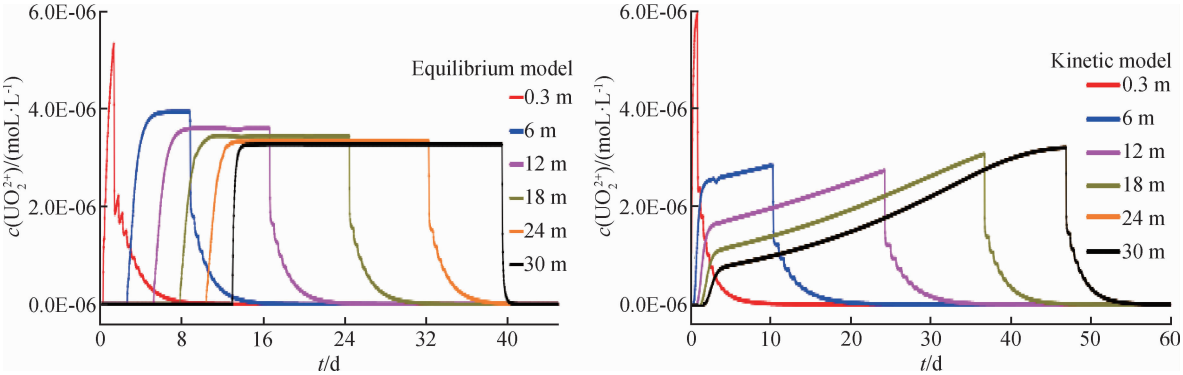


图 2 动力学模型与平衡模型中 UO_2^{2+} 浓度随时间变化

Fig. 2 UO_2^{2+} concentration change with time in equilibrium model and kinetic model

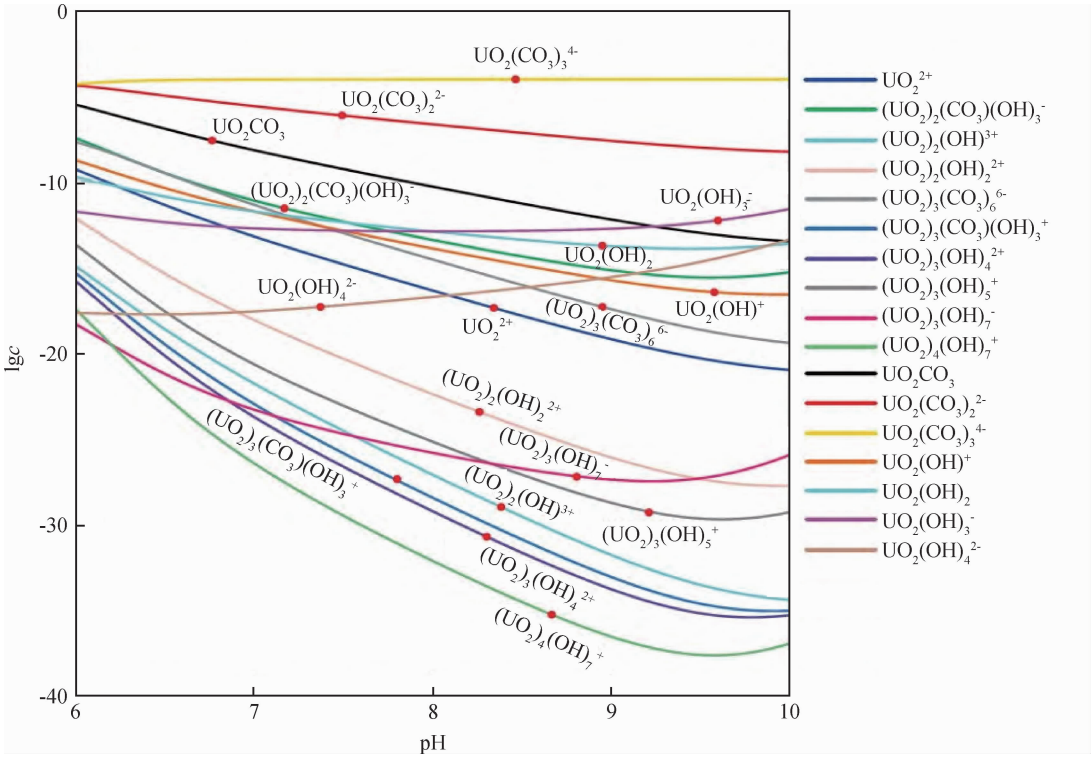


图 3 CO_2+O_2 地浸体系中铀化学形态分布[26]633

Fig. 3 Speciation of uranium in CO_2+O_2 in-situ leaching system

3.1 早期电动修复模型

最初的电动修复模型是一维电迁移模型，该模型的实现基于适用于完全饱和土壤的质量守恒方程[41]：

$$\frac{\partial C_i}{\partial t}=-\nabla J_i+R_i=$$

$$-\nabla(-u_iC_i\nabla\varphi-K_{EO}C_i\nabla\varphi-D_i\nabla C_i+C_iv)+R_i,$$

式中：右侧表达式括号中的项分别表示电迁移、电渗透、扩散和平流通量。其中，离子迁移率 $u_i=z_iD_iF/RT$，$m^2/(V\cdot s)$，z_i 为离子电荷数，F 为法拉第常数，R 为气体常数，T 为温度；K_{EO} —电渗透率，$m^2/(V\cdot s)$；D_i —第 i 个离子的有效扩散系数，m^2/s；v —孔隙水的平流速度，m/s；$\nabla\varphi$ —电压梯度，V/m。一维电迁移模型只考虑电迁移作用，方程可简化为

$$\frac{\partial C_i}{\partial t}=-\nabla J_i+R_i=-\nabla(-u_iC_i\nabla\varphi)+R_i。$$

Baraud 等[42]开发的数学模型认为电迁移和电渗透是主要的传输机制，该模型假定吸附是快速和可逆的。因此，可以假定吸附在固体表面的化学物种的浓度与相邻的液体处于平衡状态。固相浓度与液相浓度之间的线性关系以及带电离子的传输速度为

$$C_{is} = K_{di} \cdot C_i ,$$

$$v_i = v_{EM} + v_{EO} = \left(\frac{u_i}{\tau} + \frac{K_{EO}}{\theta}\right) \cdot \nabla\varphi ,$$

式中，C_{is} —固相浓度，mol/m^3；K_{di} —第 i 个组分的分配系数；v_i —带电离子的传输速度，m/s；v_{EM} —电迁移速度，m/s；v_{EO} —电渗透速度，m/s；τ —含水介质曲率系数；θ —孔隙率。

相较于上述电动修复模型，基于 Nernst-Planck-Poisson(NPP)系统开发的模型，其优势体现在计算电位梯度方面。离子以不同速率迁移时会产生局部电荷不平衡，进而引起感应电势。基于 NPP 的模型，使用泊松方程可获得该感应电势；而以前的模型使用电中性条件。Paz-García 等[43]提出了基于 NPP 系统的 EKR 输运现象模型，并通过有限元方法进行了整合。各个离子物种的浓度由能斯特-普朗克方程获得，电势由泊松方程计算。在该模型中，流体介质中每个化学物种的质量平衡方程将扩散和电迁移作为主要的传输机制。任何第 i 个化学物种的流动可定义为

$$J_i = (-u_i C_i \nabla\varphi - K_{EO} C_i \nabla\varphi - D_i \nabla C_i) 。$$

在电极限制的区域内，对每个离子物种的一维 Nernst-Planck 方程进行积分，可以获得给定边界条件下的浓度分布：

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial x}\left(-D_i \frac{\partial C_i}{\partial x} - u_i C_i \nabla\varphi - K_{EO} C_i \nabla\varphi\right) 。$$

3.2　结合模拟软件的综合模型

Ming 等[44]开发了一个综合反应电动修复模型(PHT3D-EK)，如图 4 所示。该模型增强和修改了反应性多组分传输模型 PHT3D，使用顺序非迭代分割算子技术求解流动、多物种溶质传输、地球化学反应和感应电势。多孔介质中由水力和电渗引起的流体流动为[45-46]

$$S_S \frac{\partial h}{\partial t} = K_h \nabla^2 h + K_{EO} \nabla^2 \Phi ,$$

式中：S_S—比储量，m^{-1}；K_h—水力传导率，m/s；h—水头，m；Φ—电压，V。

电迁移和电渗影响下的溶质运移可描述为[47]

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = D_i \nabla^2 C_i - \nabla\{C_i[(u_i + K_{EO}) \nabla\Phi + K_h \nabla h]\} + R_i 。$$

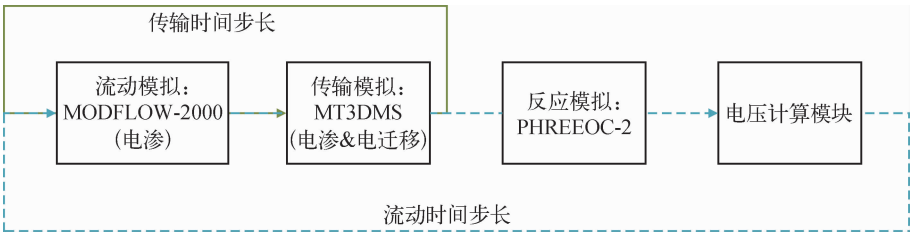


图 4　PHT3D-EK 模型结构示意图

Fig. 4　Schematic diagram of PHT3D-EK

对非均质多孔介质中关键的电动力学传输机制——电迁移和电渗透之间的相互作用进行了数值模拟研究，建立了 COMSOL 和 PHREEQCRM 耦合模型[48]，前者用于模拟基于 NPP 系统的流体流动、溶质运移，后者用于模拟地球化学反应。该模型包括流体流动方程和反应运移控制方程。饱和多孔介质中水流的控制方程为[49]

$$S_S \frac{\partial h}{\partial t} + \nabla \cdot (-K_h \nabla h + K_{EO} \nabla\Phi) = R_i 。$$

电动力学过程中，带电物质在饱和多孔介质中的传输由 Nernst-Planck 方程描述[50-51]：

$$J_i = \underbrace{-\theta D_i \nabla C_i}_{J_i^{\mathrm{Dif}}} \underbrace{-\theta D_i \frac{z_i F}{RT} C_i \nabla\Phi}_{J_i^{\mathrm{Mig}}} \underbrace{+\theta v C_i}_{J_i^{\mathrm{Adv}}} ,$$

式中：J_i —总通量，mol/(m^2 · s)；J_i^{Dif} —扩散通量，mol/(m^2 · s)；J_i^{Mig} —迁移通量，mol/(m^2 · s)；J_i^{Adv} —平流通量，mol/(m^2 · s)。

该模型的原理和主要特点如图 5 所示。

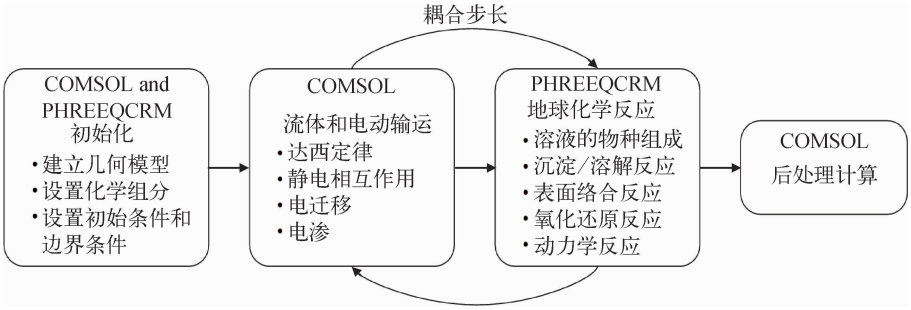


图 5 NP-PHREEQC-EK 模型结构示意图

Fig. 5 Schematic diagram of NP-PHREEQC-EK

Martens 等[52]首次提出 EK-ISL 技术并应用于完整矿石的浸出，对 EK-ISL 过程进行的数值模拟参考了 Sprocati 等[53-54]建立的模型，对完整矿石的电迁移过程以及影响矿物氧化溶解和溶质运移的关键地球化学过程进行了分析。溶液中电荷密度与电场的关系可用泊松方程描述：

$$\nabla^2\Phi = -\frac{F}{\varepsilon}\sum_{i=1}^{N} z_i C_i = -\frac{\rho_e}{\varepsilon},$$

式中：ε —介电常数，F/m；N —溶液中带电物质的数量；ρ_e —电荷密度，C/m^3。

溶浸液和溶解金属在储层中的浓度变化可用储层方程来模拟，解释特定时间的冲洗和再填充：

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = (\pm J_i)A/V - f_{\mathrm{flu}}Q_{\mathrm{flu}}C_i/V + f_{\mathrm{ref}}Q_{\mathrm{ref}}C_{i,\mathrm{ref}}/V,$$

式中：A —储层的截面积，m^2；V —储层的体积，m^3；$f_{\mathrm{flu}}/f_{\mathrm{ref}}$ —调节储层冲洗/补充电解质时间的阶梯式函数，$Q_{\mathrm{flu}}/Q_{\mathrm{ref}}$ —储层在规定时间内冲洗/重新补充的流量，m^3/s。

4 电动原地浸出采铀数值模拟

在电动原地浸出采铀数值模拟中，需要描述的关键过程包括流体流动、多组分溶质运移和地球化学反应，以及电渗项、水力项和孔隙水中带电物种之间的库伦相互作用。电动原地浸出采铀过程中发生的化学反应与原地浸出采铀十分相似，因此在原地浸出采铀数学模型的基础上建立电动原地浸出采铀数学模型，只需增加对电迁移及电渗透的描述。参考 Sprocati 等建立的电动修复模型，针对电动原地浸出采铀过程建立反应性溶质运移模型，需要考虑流动方程和反应输运方程。流动方程及反应输运方程包括：

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = -\nabla J_i + R_i,$$

$$J_i = \underbrace{-\theta D_i \nabla C_i}_{J_i^{\mathrm{Dif}}} \underbrace{-\theta D_i \frac{z_i F}{RT} C_i \nabla\Phi}_{J_i^{\mathrm{Mig}}} + \underbrace{\theta v C_i}_{J_i^{\mathrm{Adv}}},$$

$$\nabla^2\Phi = -\frac{F}{\varepsilon}\sum_{i=1}^{N} z_i C_i = -\frac{\rho_e}{\varepsilon},$$

式中各项物理量的含义及单位同前。

流动方程及反应输运方程对电动原地浸出采铀过程中的流体流动、多组分溶质运移和化学反应进行了描述。该模型需要借助 MATLAB 接口[55-56]实现 COMSOL 和 PHREEQC 的耦合[57]，其中 COMSOL 对物理场进行仿真计算，PHREEQC 对地球化学反应进行模拟，进而实现模型的求解。

除上述基于 Nernst-Planck-Poisson 方程描述的流体流动和反应输运外，电动原地浸出采铀数值模型还应考虑地球化学反应，其反应网络包括主要离子物种的反应平衡状态。

5 总结与展望

借助数值模拟技术对原地浸出采铀过程中的物理和化学行为进行研究，推动了原地浸出采铀技术的发展。提出的初步电动原地浸出采铀数值模拟方案结合了现有原地浸出采铀模型及电动修复模型，但电动原地浸出采铀过程涉及电迁移、电渗透等作用下的化学反应以及固液相互作用，其数学模型的设计和建立是一项复杂的任务。因此，在之后的工作中还需结合实验继续完善并验证模型，主要考虑以下问题：1)施加电场后会对浸出体系中铀的化学形态分布产生什么影响；2)模

型是否需要考虑化学平衡；3）浸出过程中起主导作用的是氧化动力学还是溶解动力学；4）如何结合实验获取模型所需数据。

参考文献：

[1] DENG Y，HOU W，WEI X H，et al. Mechanism analysis on synergistic leaching of uranium from pyrite oxidized by acidithiobacillus ferrivorans [J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry，2021，330(3)：951-961.

[2] WANG P，TAN K X，LI Y M，et al. Effect of pyrite on the leaching kinetics of pitchblende in the process of acid in situ leaching of uranium [J]. Minerals，2022，12(5)：570.

[3] 王艳. 原地浸出技术的优缺点分析和实践[J]. 世界有色金属，2012(7)：23-25.

[4] BHARGAVA S K，RAM R，POWNCEBY M，et al. A review of acid leaching of uraninite [J]. Hydrometallurgy，2015，151：10-24.

[5] SADYKOV M P. Development and evaluation of a mathematical model in an in situ uranium leaching technique[J]. Applied Earth Science，2019，128(4)：158-166. 查看文献详细信息

[6] 孙占学，ASGHAR F，赵凯，等. 中国铀矿采冶回顾与展望[J]. 有色金属(冶炼部分)，2021(8)：1-8.

[7] MARTIN L，IVARS N. Through-electromigration：a new method of investigating pore connectivity and obtaining formation factors[J]. Journal of Contaminant Hydrology，2006，87(3)：237-252.

[8] REYNOLDS D A，JONES E H，GILLEN M，et al. Electrokinetic migration of permanganate through low-permeability media[J]. Ground Water，2008，46(4)：629-37.

[9] ANDRÉ M，MALMSTRÖM M E，NERETNIEKS I. Determination of sorption properties of intact rock samples：new methods based on electromigration [J]. J Contam Hydrol，2008，103(3)：71-81.

[10] WEN D D，FU R B，LI Q. Removal of inorganic contaminants in soil by electrokinetic remediation technologies：a review [J]. Journal of Hazardous Materials，2021，401：123345.

[11] MARTENS E，PROMMER H，DAI X W，et al. Feasibility of electrokinetic in situ leaching of gold [J]. Hydrometallurgy，2018，175：70-78.

[12] 吴培生，张宝恩，齐静. 腐植酸对地电化学地浸采铀影响的探讨[J]. 铀矿冶，2010，29(3)：167-168.

[13] 樊兴，康绍辉，李大炳，等. 碱性铀矿石电化学浸出技术初步研究[J]. 原子能科学技术，2018，52(2)：235-239.

[14] 王兵，罗跃，李寻，等. 反应动力学在地浸采铀数值模拟中的应用研究[J]. 中国有色金属学报，2022，32(6)：1772-1781.

[15] 李金柱，曾晟，罗辉. 原地浸出采铀物理化学渗流实验及溶质运移模拟[D]. 衡阳：南华大学，2020.

[16] In situ leach mining (ISL) of uranium-world nuclear association [EB/OL]. [2022-09-20]. https：//www. world-nuclear. org/information-library/nuclear-fuel-cycle/mining-of-uranium/in-situ-leach-mining-of-uranium. aspx.

[17] SALDAÑA M，GÁLVEZ E，ROBLES P，et al. Copper mineral leaching mathematical models——a review[J]. Materials，2022，15(5)：1757.

[18] 李效萌，刘金辉，周义朋，等. 铀浸出水文地球化学作用研究进展[J]. 有色金属(冶炼部分)，2020(11)：71-78.

[19] LASAGA A C，LUTTGE A. Variation of crystal dissolution rate based on a dissolution stepwave model[J]. Science，2001，291(5512)：2400-2404.

[20] ALI，ABDUL-MEHDI S，LICHTNER，et al. Reactive transport of U and V from abandoned uranium mine wastes [J]. Environmental Science & Technology，2017，51(21)：12385-12393.

[21] TAVAKOLI H，MABDOLLAHY，SJAHMADI，et al. Enhancing recovery of uranium column bioleaching by process optimization and kinetic modeling[J]. Transactions of Nonferrous Metals Society of China，2017，27(12)：2691-2703.

[22] EMBILE R F，WALDER I F，MAHONEY J J. Multicomponent reactive transport modeling of effluent chemistry using locally obtained mineral dissolution rates of forsterite and pyrrhotite from a mine tailings deposit [J]. Advances in Water Resources，2019，128：87-96.

[23] MCMASTER S A，RAM R，FARIS N，et al. Uranium leaching from synthetic betafite：[$(Ca，U)_2(Ti，Nb，Ta)_2O_7$][J]. International Journal of Mineral Processing，2017，160：58-67.

[24] MERKEL B J，PLANER-FRIEDRICH B. 地下水地球化学模拟的原理及应用[M]. 朱义年，王焰新，译. 武汉：中国地质大学出版社，2005.

[25] YEH G T，TRIPATHI V S. A critical evaluation of recent developments in hydrogeochemical transport models of reactive multichemical components [J]. Water Resources Research，1989，25(1)：

93-108.

[26] 邱文杰,刘正邦,杨蕴,等.砂岩型铀矿 CO_2+O_2 地浸采铀的反应运移数值模拟[J].中国科学:技术科学,2022,52(4):627-638.

[27] 阙为民.原地浸出采铀地球化学动力学模型研究[J].铀矿冶,2004,23(1):1-8.

[28] SIMON R B, SCHMITT J M, LAGNEAU V, et al. Kinetic reactive transport modelling of column tests for uranium In Situ Recovery (ISR) mining [J]. Applied Geochemistry, 2014, 51: 116-129.

[29] 赵贺永,肖月华.某铀矿原地浸出 U 离子的 GMS 模拟研究[J].攀枝花学院学报,2015,32(2):22-24.

[30] REGNAULT O, LAGNEAU V, FIET N. 3D reactive transport simulations of uranium in situ leaching: forecast and process optimization[M]// Uranium-Past and Future Challenges. Cham: Springer International Publishing, 2015: 725-730.

[31] 连国玺,李梦姣,汤庆四,等.某地浸井场抽大于注比例与地下水环境影响关系的研究[J].铀矿冶,2017,36(2):144-150.

[32] 李衡,周义朋.地浸采铀溶质运移研究进展及展望[J].稀有金属,2019,43(3):319-330.

[33] SHEN N, LI J, GUO Y F, et al. Thermodynamic modeling of in situ leaching of sandstone-type uranium minerals[J]. Journal of Chemical & Engineering Data, 2020, 65(4): 2017-2031.

[34] 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.

[35] 林效宾,刘红旭,王志明,等.伊犁盆地蒙其古尔铀矿床水文地球化学模拟研究[J].铀矿地质,2017,33(6):346-355.

[36] 曹振,吉宏斌,邢拥国,等.PHREEQC 软件在改善低渗透砂岩铀矿含矿层渗透性中的应用[J].铀矿冶,2012,31(1):14-18.

[37] ROSENBOM A E, THERRIEN R, REFSGAARD J C, et al. Numerical analysis of water and solute transport in variably-saturated fractured clayey till [J]. Journal of Contaminant Hydrology, 2009, 104 (1/4): 137-152.

[38] DAVID, RUSSO, JACOB, et al. Stochastic analysis of solute transport in partially saturated heterogeneous soil: 1. numerical experiments[J]. Water Resources Research, 1994, 30(3): 769-779.

[39] 陈茜茜.基于反应性溶质运移的酸法地浸采铀数值模拟探讨[D].南昌:东华理工大学,2020.

[40] ACAR Y B, ALSHAWABKEH A N. Principles of electrokinetic remediation[J]. Environmental Science & Technology, 1993, 27(13): 2638-2647.

[41] VILLEN-GUZMAN M, CERRILLO-GONZALEZ M, PAZ-GARCIA J M, et al. An overview of the modeling of electrokinetic remediation[M]. New York: John Wiley & Sons, Ltd., 2021: 1-34.

[42] BARAUD F, FOURCADE M C, TELLIER S, et al. Modelling of decontamination rate in an electrokinetic soil processing[J]. International Journal of Environmental Analytical Chemistry, 1997, 68(2): 105-121.

[43] PAZ-GARCÍA J, JOHANNESSON B, OTTOSEN L M, et al. Modeling of electrokinetic processes by finite element integration of the Nernst-Planck-Poisson system of equations[J]. Separation & Purification Technology, 2011, 79(2): 183-192.

[44] MING Z W, REYNOLDS D A, PROMMER H, et al. Numerical evaluation of voltage gradient constraints on electrokinetic injection of amendments [J]. Advances in Water Resources, 2012, 38: 60-69.

[45] ALSHAWABKEH A N, ACAR Y B. Electrokinetic remediation Ⅱ: theoretical model[J]. Journal of Geotechnical Engineering, 1996, 122(3): 186-196.

[46] ANDREW P S, RONALD F P. Removal of contaminants from saturated clay by electroosmosis [J]. Environmental Science & Technology, 2002, 27(2): 283-291.

[47] ACAR Y B, ALSHAWABKEH A N, GALE R J. Fundamentals of extracting species from soils by electrokinetics[J]. Waste Management, 1993, 13 (2): 141-151.

[48] SPROCATI R, MASI M, MUNIRUZZAMAN M, et al. Modeling electrokinetic transport and biogeochemical reactions in porous media: a multidimensional Nernst-Planck-Poisson approach with PHREEQC coupling[J]. Advances in Water Resources, 2019, 127: 134-147.

[49] JACOB B. Hydraulics of groundwater[M]. New York: Dover Publications Inc., 2007.

[50] NEWMAN J, BALSARA N P. Electrochemical systems[M]. 4th ed. New York: Wiley, 2021.

[51] RASOULI P, STEEFEL C I, MAYER K U, et al. Benchmarks for multicomponent diffusion and electrochemical migration[J]. Computational Geosciences, 2015, 19(3): 523-533.

[52] MARTENS E,PROMMER H N,SPROCATI R, et al. Toward a more sustainable mining future with electrokinetic in situ leaching[J]. Science Advances,2021,7(18).

[53] SPROCATI R, ROLLE M. Charge interactions, reaction kinetics and dimensionality effects on electrokinetic remediation:a model-based analysis[J]. Journal of Contaminant Hydrology, 2019, 229(1):103567.

[54] SPROCATI R,ROLLE M. On the interplay between electromigration and electroosmosis during electrokinetic transport in heterogeneous porous media[J]. Water Research,2022,213:118161.

[55] ROLLE M, SPROCATI R, MASI M, et al. Nernst-planck-based description of transport, coulombic interactions, and geochemical reactions in porous media:modeling approach and benchmark experiments[J]. Water Resources Research,2018,54(4):3176-3195.

[56] MUNIRUZZAMAN M,ROLLE M. Multicomponent ionic transport modeling in physically and electrostatically heterogeneous porous media with PhreeqcRM coupling for geochemical reactions[J]. Water Resources Research, 2019, 55 (12):11121-11143.

[57] PARKHURST D L WISSMEIER L. PhreeqcRM:a reaction module for transport simulators based on the geochemical model PHREEQC[J]. Advances in Water Resources,2015,83:176-189.

Progress of Numerical Simulation for In-situ Leaching Uranium and Establishment of Numerical Model for Electrokinetic In-situ Leaching Uranium

LIU Qi[1], LI Chunguang[1,2], LIU Longcheng[2], LIU Zhenzhong[1],
ZHANG Chong[3], MENG Shuo[2], WANG Wenji[2]

(1. School of Resource Environment and Safety Engineering, University of South China, Hengyang 421001, China;
2. R&D Center of Radioactive Waste Treatment, Disposal and Modeling, University of South China, Hengyang 421001, China;
3. Beijing Research Institute of Chemical Engineering and Metallurgy, CNNC, Beijing 101149, China)

Abstract: In order to better apply the electrokinetic in-situ leaching(EK-ISL) technology to the mining of low permeability uranium ore and improve the leaching efficiency of low permeability uranium ore, it is necessary to study it with numerical simulation technology. Starting from the physical and chemical behaviors in the process of in-situ leaching of uranium, the promotion of numerical simulation technology to in-situ leaching uranium were reviewed, the basic equations and solving methods of the model of in-situ leaching uranium were summarized, the key processes that need to be described by EK-ISL model were analyzed based on this, a preliminary numerical simulation model of electrokinetic in-situ leaching uranium was proposed.

Key words: in-situ leaching uranium; electrokinetic in-situ leaching; numerical simulation; solute transport