

УДК 004.9+622.2

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/119

Т.С. ТЕРОВСКАЯ, А.Г. КЕСЛЕР, М.Д. НОСКОВ

МАТЕМАТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ ИЗМЕНЕНИЯ СОСТОЯНИЯ ПРОДУКТИВНОГО ГОРИЗОНТА ПРИ СЕРНО-КИСЛОТНОМ СКВАЖИННОМ ВЫЩЕЛАЧИВАНИИ УРАНА

Представлена математическая модель, описывающая основные гидродинамические и физико-химические процессы, происходящие при серно-кислотном скважинном подземном выщелачивании урана. Приведены результаты расчетов изменения состояния рудовмещающего горизонта при нагнетании выщелачивающего раствора в однородный проницаемый пласт.

Ключевые слова: добыча урана, скважинное подземное выщелачивание, геоэкология, миграция загрязняющих веществ, математическое моделирование.

Введение

Способом скважинного подземного выщелачивания (СПВ) разрабатывают экзогенные месторождения урана, в которых рудное тело находится в хорошо проницаемом подземном водоносном горизонте (продуктивном горизонте). Извлечение урана из рудного тела происходит с помощью системы (откачных и закачных) скважин, объединенных в технологические блоки [1]. Через нагнетательные скважины в продуктивный горизонт поступает выщелачивающий раствор, содержащий реагенты, способные растворять урановые минералы. В результате физико-химического взаимодействия урановых минералов и вмещающих пород с выщелачивающим реагентом в подземном водоносном горизонте образуется содержащий уран продуктивный раствор, который извлекается на поверхность с помощью откачных скважин. Разработка месторождений методом СПВ оказывает меньшее отрицательное влияние на окружающую среду по сравнению с традиционными горными способами. Отсутствуют оседания и нарушения земной поверхности, отвалы забалансовых руд и пустых пород, а также хвостохранилища. Однако при разработке месторождения методом СПВ в результате нагнетания технологических растворов происходит загрязнение продуктивного горизонта выщелачивающими реагентами и продуктами их взаимодействия с вмещающей породой [2]. Для обеспечения экологической безопасности добычи урана способом СПВ необходимо прогнозировать изменение состояния продуктивного горизонта и распространение загрязняющих веществ в процессе разработки месторождения и после его завершения. Количественный прогноз можно получить с помощью математического моделирования [3]. Однако в большинстве работ по математическому моделированию СПВ урана решаются задачи оптимизации работы эксплуатационных блоков [4–8]. Работ, посвященных моделированию миграции загрязняющих веществ в продуктивном горизонте после завершения разработки месторождения урана методом СПВ, достаточно мало, и они основаны на упрощенном подходе к описанию физико-химических процессов [1, 9], что снижает точность прогнозирования. В связи с этим разработка математической модели, адекватно описывающей изменение состояния продуктивного горизонта и поведение загрязняющих веществ в процессе добычи урана способом СПВ и после его завершения, является актуальной.

Описание математической модели

Представлена математическая модель, описывающая основные гидродинамические и физико-химические процессы, определяющие изменение состояния рудовмещающего горизонта и поведение компонентов технологических растворов при серно-кислотном СПВ урана. К гидродинамическим процессам относится изменение напора пластовых вод, конвективный массоперенос, гидродинамическая дисперсия. Физико-химические процессы включают в себя комплексообразование, гомогенные и гетерогенные кислотно-основные и окислительно-восстановительные процессы, сорбцию – десорбцию и растворение – осаждение минералов.

В рассматриваемой модели пористая среда описывается в приближении двойной пористости, согласно которому поровое пространство делится на содержащие мобильную жидкость проточные поры с пористостью m_1 и содержащие иммобильную жидкость застойные поры с пористостью m_2 [10]. Твердая фаза делится на породу, граничащую с мобильной и иммобильной частями жидкой

фазы. Предполагается, что объемные доли частей вмещающей породы, граничащие с мобильной и иммобильной частями жидкой фазы, пропорциональны проточной и застойной пористостям соответственно. Таким образом, система состоит из четырех частей Φ : мобильная часть жидкой фазы ($\Phi = 1$); иммобильная часть жидкой фазы ($\Phi = 2$); вмещающая порода, граничащая с мобильной частью жидкой фазы ($\Phi = 3$); вмещающая порода, граничащая с иммобильной частью жидкой фазы ($\Phi = 4$) (рис. 1).

Все минералы твердой фазы разделяются на растворимые и нерастворимые (инертные) [2]. К инертным минералам относятся минералы, изменением которых при взаимодействии с выщелачивающим раствором можно пренебречь. Они составляют нерастворимый скелет породы (основной объем твердой фазы). Растворимые минералы могут разделяться на подгруппы, различающиеся интенсивностью взаимодействия с раствором серной кислоты [2].

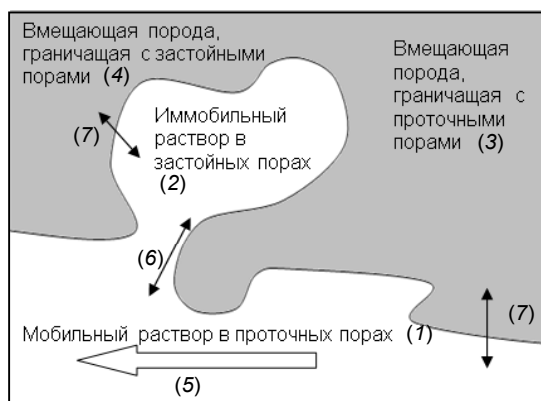


Рис. 1. Репрезентативный объем пористой среды: (1) — мобильная жидкость; (2) — иммобильная жидкость; (3) — порода, граничащая с мобильной жидкостью; (4) — порода, граничащая с иммобильной жидкостью; (5) — конвективный массоперенос; (6) — массообмен между мобильной и иммобильной жидкостями; (7) — массообмен между жидкой и твердой фазами

Концентрация компонентов в жидкой фазе описывается с помощью молярной концентрации C_{Φ}^i i -го компонента в части системы Φ :

$$C_{\Phi}^i = \frac{n_{\Phi}^i}{V_{\Phi}} \quad (\Phi = 1, 2), \quad (1)$$

где n_{Φ}^i — количество i -го компонента в части системы Φ ; V_{Φ} — объем части системы Φ . Концентрация сорбированных компонентов ($\tilde{C}_{\Phi}^i$) в твердой фазе описывается с помощью приведенной молярной концентрации:

$$\tilde{C}_{\Phi}^i = \frac{n_{\Phi}^i}{V}. \quad (2)$$

Здесь V — репрезентативный объем пористой среды.

Концентрация минералов ($\tilde{C}_{\Phi}^a$) в твердой фазе описывается с помощью приведенной молярной концентрации:

$$\tilde{C}_{\Phi}^a = \frac{n_{\Phi}^a}{V} \quad (\Phi = 3, 4), \quad (3)$$

где n_{Φ}^a — количество a -го минерала в части системы Φ .

Для расчета распределения напоров используется уравнение непрерывности потока жидкости для упругого режима фильтрации [3]:

$$\eta \frac{\partial H}{\partial t} = \nabla(U) + q_{\text{in}} - q_{\text{out}}. \quad (4)$$

Здесь H — напор, м; η — упругая емкость, 1/м; U — скорость фильтрации; q_{in} (q_{out}) — плотность мощности источников и стоков жидкости, связанная с работой закачных и откачных скважин.

Скорость конвективного потока жидкости определяется законом Дарси [3]:

$$U = -k \operatorname{grad}(H), \quad (5)$$

где k – коэффициент фильтрации, м/с.

Гидродинамическая дисперсия описывается как массообмен между мобильными и иммобильными частями жидкой фазы, при этом полагается, что поток концентрации i -го компонента $J_{1,2}^i$ (кмоль/(м³·с)) из проточных пор в застойные пропорционален разности молярных концентраций [11]:

$$J_{1,2}^i = \alpha_i (C_1^i - C_2^i), \quad (6)$$

Здесь α_i – параметр скорости массообмена i -го компонента, 1/с.

В настоящей модели полагается, что гомогенные физико-химические процессы (ассоциация-диссоциация кислот, комплексообразование, гомогенные окислительно-восстановительных реакции) протекают много быстрее гетерогенных и для описания можно использовать уравнения химического равновесия:

$$\prod_i (\gamma_{\Phi}^i C_{\Phi}^i)^{\nu_A^i} = K_A \quad (\Phi = 1, 2), \quad (7)$$

где K_A – константа химического равновесия A -й реакции; ν_A^i – стехиометрический коэффициент i -го компонента в A -й реакции; γ_{Φ}^i – коэффициент активности i -го компонента в части Φ .

Сорбция описывается в рамках приближения линейной кинетики, согласно которому поток концентрации i -го компонента из части системы Φ жидкой фазы в граничащую с ней часть системы Φ^* твердой фазы $E_{\Phi\Phi^*}^i$ задается уравнением

$$E_{\Phi\Phi^*}^i = d^i \left(C_{\Phi}^i - (C_{\Phi}^i)_{pc} \right) \quad (\Phi = 1, 2). \quad (8)$$

Здесь d^i – параметр скорости массообмена i -го компонента между раствором и породой при сорбционных процессах; $(C_{\Phi}^i)_{pc}$ – равновесная концентрация i -го компонента в части системы Φ жидкой фазы для сорбционных процессов.

Равновесная молярная концентрация $(C_{\Phi}^i)_{pc}$ в уравнении (8) описывается как функция от приведенных молярных концентраций сорбированного компонента и концентрации иона водорода:

$$(C_{\Phi}^i)_{pc} = f_c^i(\tilde{C}_{\Phi^*}^i, C_{\Phi}^{H+}) \quad (\Phi = 1, 2). \quad (9)$$

Для расчета гетерогенных кислотно-основных процессов и растворения-осаждения минералов также используется приближение линейной кинетики. Поток концентрации i -го компонента из части системы Φ жидкой фазы в граничащую с ней часть системы Φ^* твердой фазы вследствие осаждения i -го компонента в a -й минерал $G_{a,\Phi\Phi^*}^i$ полагается пропорциональным отклонению концентрации i -го компонента от равновесной:

$$G_{a,\Phi\Phi^*}^i = k_a^+ (S_{\Phi^*}^a)_{уд} \cdot \theta(-\Delta C_{\Phi,a}^i) \Delta C_{\Phi,a}^i + k_a^- \cdot \theta(\Delta C_{\Phi,a}^i) \Delta C_{\Phi,a}^i \quad (\Phi = 1, 2); \quad (10)$$

$$\Delta C_{\Phi,a}^i = C_{\Phi}^i - (C_{\Phi,a}^i)_p, \quad (\Phi = 1, 2), \quad (11)$$

где $(C_{\Phi,a}^i)_p$ – равновесная концентрация i -го компонента в части системы Φ ; $(S_{\Phi^*}^a)_{уд}$ – удельная площадь поверхности a -го минерала в части системы Φ^* ; k_a^+ (k_a^-) – константы скорости растворения (осаждения) a -го минерала; $\theta(\Delta C_{\Phi,a}^i)$ – функция Хевисайда, равная нулю для отрицательных значений $\Delta C_{\Phi,a}^i$ и единице – для положительных.

Равновесная молярная концентрация в уравнениях (10), (11) описывается как функция от молярных концентраций растворенных компонентов:

$$(C_{\Phi,a}^i)_P = f_a^i(C_{\Phi}^1 \dots C_{\Phi}^{N_K}) \quad (\Phi = 1, 2), \quad (12)$$

где $1 \dots N_K$ – номера компонентов, участвующих в определении равновесной концентрации.

Расчет гетерогенных окислительно-восстановительных процессов также осуществляется в рамках приближения линейной кинетики. Плотность потока концентрации восстановленной формы i -го компонента в части системы Φ жидкой фазы в результате восстановления b -го минерала в граничащей с ней части системы Φ^* твердой фазы $F_{b,\Phi\Phi^*}^i$ определяется уравнением

$$F_{b,\Phi\Phi^*}^i = (S_{\Phi^*}^b)_{уд} \cdot k_b^i (C_{\Phi}^{i,Red} - (C_{\Phi}^{i,Red})_P) \quad (\Phi = 1, 2), \quad (13)$$

где $C_{\Phi}^{i,Red}$ – молярная концентрация i -го компонента в восстановленной форме в части системы Φ ; $(S_{\Phi^*}^b)_{уд}$ – удельная площадь поверхности b -го минерала в части системы Φ^* ; k_b^i – константа скорости окисления (восстановления) i -го компонента b -м минералом; $(C_{\Phi}^{i,Red})_P$ – равновесная молярная концентрация i -го компонента в восстановленной форме в части системы Φ , определяемая уравнением Нернста.

С учетом используемых приближений изменение во времени концентраций компонентов и минералов в различных частях системы описывается системой уравнений:

$$\frac{\partial C_1^i}{\partial t} = -\nabla(C_1^i \cdot U) + q_{in} C_{in}^i - q_{out} C_1^i - J_{12}^i - E_{13}^i - \sum_a G_{a,13}^i - \sum_b F_{b,13}^i; \quad (14)$$

$$\frac{\partial C_2^i}{\partial t} = J_{12}^i - E_{24}^i - \sum_a G_{a,24}^i - \sum_b F_{b,24}^i; \quad (15)$$

$$\frac{\partial \tilde{C}_{\Phi}^a}{\partial t} = m_{\Phi^*} \frac{1}{k_a} \sum_{i=1}^{k_a} \frac{G_{a,\Phi^*\Phi}^i}{\mu_a^i} + m_{\Phi^*} \sum_j w_a^j F_{a,\Phi^*\Phi}^j \quad (\Phi = 3, 4); \quad (16)$$

$$\frac{\partial \tilde{C}_{\Phi}^i}{\partial t} = m_{\Phi^*} E_{\Phi\Phi^*}^i \quad (\Phi = 3, 4), \quad (17)$$

где C_{in}^i – концентрация i -го компонента в выщелачивающем растворе; k_a – число компонентов в a -м минерале; μ_a^i – число молей i -го компонента в одном моле a -го минерала; w_a^j – отношение разницы валентностей окисленной и восстановленной форм j -го компонента к разнице валентностей окисленной и восстановленной форм a -го минерала; m_{Φ^*} – проточная (застойная пористость). В уравнении (16) суммирование в первом слагаемом ведется по всем i -м компонентам, входящим в a -й минерал, суммирование во втором слагаемом ведется по всем поливалентным компонентам жидкой фазы в восстановленной форме, участвующим в гетерогенных окислительно-восстановительных процессах. Система уравнений массообмена и массопереноса (14) – (17) дополняется уравнениями (8), описывающими гомогенные процессы.

Результаты моделирования

В качестве примера применения разработанной математической модели представлены результаты расчетов изменения состояния рудовмещающего горизонта и поведения различных компонентов технологического раствора при нагнетании серно-кислотного выщелачивающего раствора в рудовмещающий горизонт через одну совершенную скважину. Проницаемый рудовмещающий горизонт был однородным по своим свойствам и имел следующие параметры: коэффициент фильтрации – 3 м/сут, пористость – 0.35, проточная пористость – 0.15, мощность – 5 м, содержанием урана – 0.5 кг/т. Нагнетание выщелачивающего раствора осуществлялось в течение 6 месяцев с постоянным расходом, равным 2.5 м³/ч, концентрация серной кислоты в выщелачивающем растворе составляла 10 г/л.

На рис. 2 представлено изменение концентраций сульфат-иона, серной кислоты и урана в растворе и породе в зависимости от расстояния до нагнетательной скважины для различных моментов времени. В процессе нагнетания в пласте образуется линза сульфатных технологических растворов. К моменту завершения нагнетания радиус области распространения растворов составляет около 60 м (рис. 2, а). В результате нейтрализации серной кислоты при взаимодействии с бы-

строрастворимыми минералами (кальцит, магнезит, сидерит и др.) область сернокислых растворов существенно меньше (около 30 м на момент завершения нагнетания (рис. 2, б)). После завершения нагнетания процесс нейтрализации серной кислоты при взаимодействии с медленно растворимыми минералами (каолинит, мусковит, иллит и др.) продолжается, и спустя 18 месяцев после начала нагнетания максимальная концентрация кислоты составляет менее 0.35 г/л (рис. 2, б).

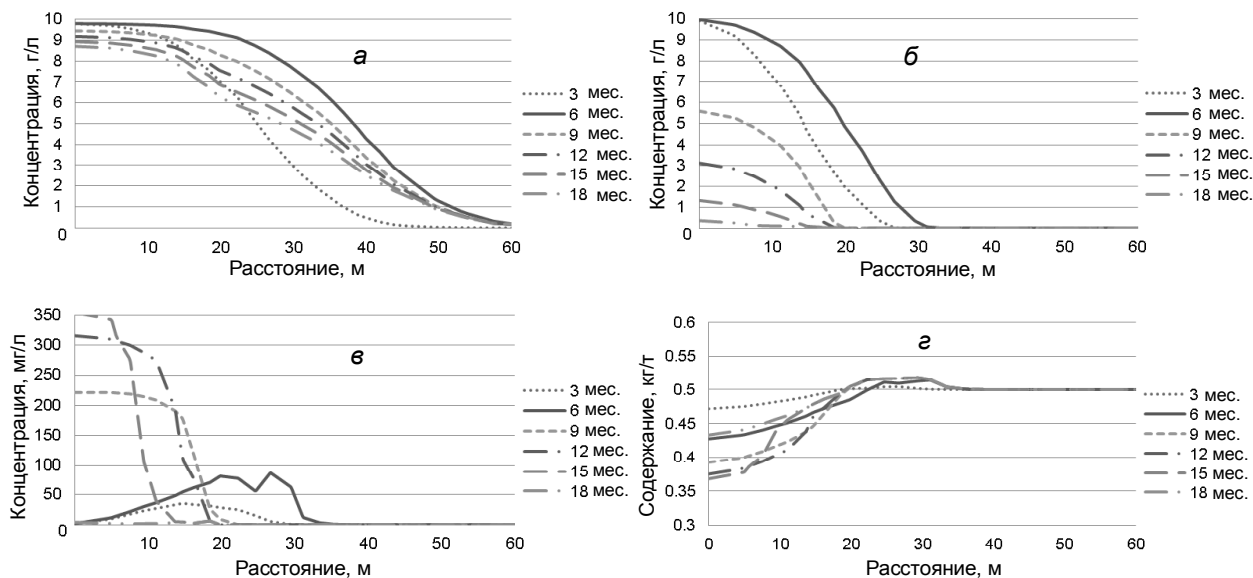


Рис. 2. Изменение концентраций сульфат-иона (а), серной кислоты (б), урана в жидкой (в) и твердой (г) фазах в сечении от нагнетательной скважины к контуру области моделирования

В процессе нагнетания выщелачивающего раствора происходит растворение урансодержащих минералов и формируется область с повышенной концентрацией урана в растворе, распространяющаяся вслед за фронтом продвижения кислоты (рис. 2, в). После завершения нагнетания в области с высокой концентрацией кислоты (прискважинная зона) уран продолжает выходить в раствор, а на фронте, где концентрация кислоты снижается быстрее, начинает осажаться с новообразованными минералами. По мере нейтрализации кислоты происходит переход урана в твердую фазу во всей области распространения технологических растворов (рис. 2, в, г), спустя 18 месяцев после начала нагнетания концентрация урана в растворе становится меньше 4 мг/л. При взаимодействии сернокислого выщелачивающего раствора с породообразующими минералами в раствор входят такие компоненты, как железо, алюминий, кальций и т.д. После завершения нагнетания начинает происходить процесс деминерализации остаточных сульфатных технологических растворов и новообразование минералов (рис. 3).

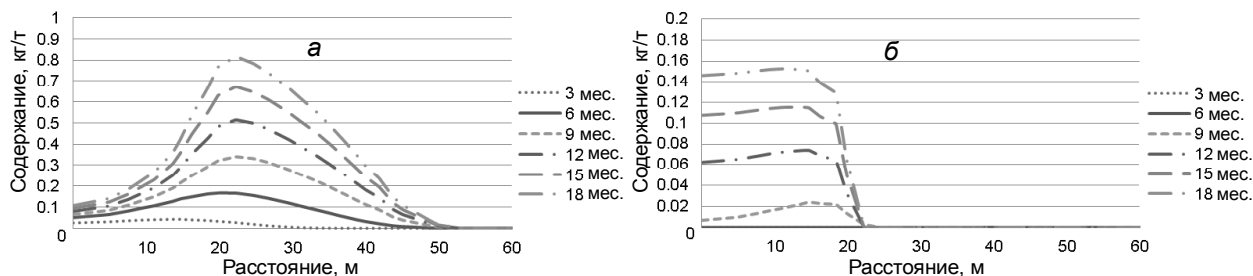


Рис. 3. Изменение содержаний в породе гипса (а) и пирита (б) в сечении от нагнетательной скважины к контуру области моделирования

В результате взаимодействия различных компонентов остаточных растворов (сульфат-ион, железо, кальций, калий, алюминий и др.), происходит образование новых минералов. В области с повышенным содержанием кальция образуется гипс (рис. 3, а). Одновременно с нейтрализацией содержащейся в остаточных технологических растворах кислоты протекают окислительно-

восстановительные процессы между остаточным раствором и содержащимся в породе органическим веществом (восстанавливающим минералом). Происходит восстановление сульфат-иона и наблюдается новообразование дисульфида железа (пирита) (рис. 3, б).

Выводы

Таким образом, представленная математическая модель описывает основные гидродинамические и физико-химические процессы, определяющие изменение состояния рудовмещающего горизонта и поведение различных компонентов технологических растворов при серно-кислотном СПВ урана. Математическая модель может быть использована для оценки экологических последствий добычи урана методом СПВ и прогнозирования миграции загрязняющих веществ в подземных водах в процессе разработки месторождения и после его завершения.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Акимов И.Д., Бабкин А.С., Воронцова О.М. и др. Геотехнология урана (российский опыт). – М.: КДУ, 2017. – 576 с.
2. Белецкий В.И., Богатков Л.К., Волков Н.И. и др. Справочник по геотехнологии урана. – М.: Энергatomиздат, 1997. – 672 с.
3. Румынин В.Г. Геомиграционные модели в гидрогеологии. – СПб.: Наука, 2011. – 1158 с.
4. Носков М.Д., Гуцул М.В., Истомин А.Д. и др. // Горный информационно-аналитический бюллетень. – 2012. – № 7. – С. 361–366.
5. Бабкин А.С., Гуцул М.В., Кеслер А.Г. и др. // Изв. вузов. Физика. – 2015. – Т. 58. – № 12/3. – С. 3–8.
6. Гусаров М.А., Носков М.Д. // Изв. вузов. Физика. – 2017. – Т. 60. – № 11/2. – С. 11–14.
7. Шрайнер А.Э., Носков М.Д., Носкова С.Н. // Изв. вузов. Физика. – 2018. – Т. 61. – № 12/2. – С. 140–144.
8. Разуваева Т.В., Мырзабек Г.А., Копбаева М.П. // Актуальные проблемы урановой промышленности: сб. трудов IX Междунар. науч.-практич. конф. – 2019. – С. 322–328.
9. Бураков М.М., Павличенко Л.М. // Актуальные проблемы урановой промышленности: сб. трудов VI Междуна. науч.-практич. конф. – 2010. – С. 335–345.
10. Голубев В.С. Динамика геохимических процессов. – М.: Недра, 1981. – 208 с.
11. Крайнов С.Р., Рыженко Б.Н., Швеи В.М. Геохимия подземных вод. Теоретические, прикладные и экологические аспекты. – М., 2012. – 672 с.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

Северский технологический институт Национального исследовательского ядерного университета «МИФИ», г. Северск, Россия

Теровская Татьяна Сергеевна, начальник научного отдела СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: tsterovskaya@mephi.ru;

Кеслер Аркадий Григорьевич, к.ф.-м.н., доцент каф. физики СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: arcanag@mail.ru;

Носков Михаил Дмитриевич, д.ф.-м.н., профессор СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: mdnoskov@mephi.ru.

T.S. TEROVSKAYA, A.G. KESLER, M.D. NOSKOV

MATHEMATICAL MODEL OF CHANGE IN THE STATE OF THE PRODUCTIVE HORIZON BY IN SITU LEACHING

A mathematical model describing the main hydrodynamic and physicochemical processes occurring at uranium mining by sulfuric acid in situ leaching method is presented. The calculations results of the ore-bearing horizon state change during the leaching solution injection into a homogeneous permeable formation are presented.

Keywords: *uranium mining, in situ leaching, geoecology, migration of pollutants, mathematical modeling.*

Seversk Technological Institute National Research Nuclear University «MEPHI», Seversk, Russia

Terovskaya Tatiana Sergeevna, Head of Scientific Department STI NRNU «MEPHI», e-mail: tsterovskaya@mephi.ru;

Kesler Arkadiy Grigorievich, Candidate of Physical and Mathematical Sciences, Associate Professor STI NRNU «MEPHI», e-mail: arcanag@mail.ru;

Noskov Mikhail Dmitrievich, Doctor of Physical and Mathematical Sciences, Professor STI NRNU «MEPHI», e-mail: mdnoskov@mephi.ru.