RD 固化剂对铀尾渣固化体力学及氡屏蔽性能的影响研究

陈 刚，干雨杭，康剑翘，胡鹏华

（核工业北京化工冶金研究院，北京 101149）

摘要：选用市场常用的 RD 固化剂，配合水泥对河北省某铀矿的铀尾渣进行固化，研究了固化试块的力学性能和氡屏蔽性能，推导得出了最优氡屏蔽层计算公式；并对制作的屏蔽层开展了耐候性测试，分析了固化试块的微观机理。结果表明，在 RD 固化剂掺量 0.08%、水泥掺量 15%条件下形成的铀尾渣固化试块，其抗压强度可达 3.0 MPa，氡析出率为 0.39 Bq/(m^2 · s)；在氡屏蔽固化层厚度为 10 cm 时，铀尾渣堆表面的氡析出率下降了 81.2%。在模拟环境试验中，屏蔽层表面氡析出率未出现较大波动，稳定性好。

关键词：铀尾渣；固化；抗压强度；氡屏蔽

中图分类号：P641.2 **文献标志码**：A **文章编号**：1000-8063(2023)01-0055-06

DOI：10.13426/j.cnki.yky.2022.06.03

目前，铀尾矿库退役主要采用压实土壤层(CSL)方式进行氡屏蔽[1]，国内使用的材料以夯实黏土为主；但压实土壤层基质易产生裂隙和薄弱部位，且压实土壤层在环境影响下的渗透性高于实验室预测[2-3]，存在环境隐患。另外，黏土层的作业施工量大，取土作业对当地环境也会造成一定破坏。国家提倡“保护生态环境”“建设绿色矿山”和“废物最小化”，因此，有必要进行新型氡屏蔽层覆盖工艺研究，探究利用其他材料替代压实黏土的可能性。

降氡材料主要有聚氨酯、偏氯乙烯共聚液、沥青、水泥砂浆、三合土等[4-6]，偏氯乙烯共聚液仅适用于表面喷涂，水泥砂浆降氡效果不理想，三合土获取困难，因此在铀尾矿退役覆盖中偏氯乙烯共聚液、水泥砂浆、三合土均未得到推广使用。近年来，为了克服水泥和石灰等改良土体在公路工程施工中存在的缺陷，离子型固化剂作为 1 种新型的土壤固化材料得到了快速发展，在道路工程路基施工中取得了良好的成效[7]。考虑到铀尾渣氡屏蔽层施工与道路路基相似，因此，笔者选择市场常用的离子型固化剂(RD 固化剂)，研究以 RD 固化剂制作氡屏蔽层的可行性。

1 试验材料及固化体制备

1.1 试验材料准备

1.1.1 铀尾渣取样

选择河北省某铀尾矿(渣)库中的铀尾渣开展试验。铀尾渣粒径分布见表 1，铀尾渣最佳含水率为 6.2%，最大干密度为 2.01 g/m^3。

表 1 铀尾渣粒径分布

Table 1 Uranium tailings particle size distribution

粒径/mm	质量占比/%	筛孔粒径/mm	筛孔通过率/%
<1	5.46	1	5.46
≥1～5	11.66	5	17.12
≥5～10	47.46	10	64.58
≥10～20	31.41	20	95.99
≥20	4.01		100.00
合计	100.00		

1.1.2 固化剂选择

市场中常用的固化剂可划分为无机化合物类、有机化合物类、生物酶类和离子型(有机无机

收稿日期：2022-06-24

第一作者简介：陈刚(1989—)，男，内蒙古乌兰察布人，硕士，高级工程师，主要从事辐射防护和安全评价研究工作。

复合)4 类。相比于其他 3 类固化剂,离子型固化剂适用范围广,对酸碱性要求低,形成的固化体性能稳定[8]。本次试验选取了离子型固化剂(RD 固化剂)开展固化试验。

1.2 固化试块制备

参照《公路工程无机结合料稳定材料试验规程》(JTG E51—2009)[9]中的击实试验方法(T 0804—1994)(丙法)进行试块的制备和筛选。

1.2.1 最佳级配的确定

通过试验找到铀尾渣的最佳级配,在该级配下开展后续试验。将铀尾渣的级配划分成自然级配和人工级配,具体见表 2。

表 2 材料级配比例

Table 2 Material gradation ratio

级配/mm	自然级配/%	级配 1/%	级配 2/%	级配 3/%
≥10～20	40	30	10	10
≥5～10	40	50	70	50
≥1～5	13	10	10	30
<1	7	10	10	10

对于每种级配,参考 JTG E51—2009 的要求,采用静压法(压实度为 97%)成型试件后测定其无侧限抗压强度。试件固化剂添加量 0.02%,耐酸水泥添加量 8%。自然级配、级配 1、级配 2、级配 3 试件的抗压强度分别为 0.4、1.4、1.8、1.6 MPa。

随着试件从自然级配、级配 1、级配 2 到级配 3 的由粗变细变化,其抗压强度呈现先增高后降低的变化趋势;级配 2 是铀尾渣固化的最佳配比。在后续试验中,按级配 2 来制作混合料。

1.2.2 最佳含水率和最大干密度分析

通过击实试验获得了不同级配下的最佳含水率和最大干密度,见表 3。

表 3 击实试验结果

Table 3 Results of compaction test

级配	最佳含水率/%	最大干密度/(g·cm^{-3})
级配 1	6.3	1.98
级配 2	6.7	1.97
级配 3	6.9	1.95
自然级配	6.2	2.01

从表 3 可看出,最佳含水率和最大干密度随级配的变化幅度较小。另外,固化剂的技术要求中未对最佳含水率和最大干密度提出具体限值,该变化不会对固化剂的固化效果造成显著影响。

2 力学性能测试分析

2.1 力学性能指标的确定

在中国铀尾矿库退役工程中,通常包括氡屏蔽层和植被生长层。一般在平整场地后,先进行氡屏蔽层施工,待屏蔽层施工完毕后在其基础上铺设过渡层、覆盖植被生长层等,施工期间屏蔽层不可避免会遭受渣土车、挖掘机等施工车辆的碾压。因此,配加 RD 固化剂制作的氡屏蔽层,除了氡析出率需满足《铀矿冶设施退役治理环境管理规定》(GB 14586—1993)中退役治理要求的 0.74 Bq/(m^2·s)外,其抗压强度也需满足一定的要求。在本研究中,考虑施工常用设备,将载重 15 t 自卸渣土车轮胎的对地压强(3 MPa)作为抗压强度参考值[10]。

2.2 最优材料配比

选择固化剂掺量分别为 0.02%、0.08%、0.14%、0.20%和 0.24%,耐酸水泥掺量分别为 5%、15%和 20%,利用排列组合方式制备 16 种固化试块,对其进行抗压强度测试(均养护 7 d 后测试),并与单纯水泥固化试块进行对比,测试结果见表 4。

表 4 不同级配下固化试块的抗压强度

Table 4 Compressive strength of curing test blocks at different levels

耐酸水泥掺量/%	不同固化剂掺量下的抗压强度/MPa					
	0	0.02%	0.08%	0.14%	0.20%	0.24%
5	1.2	1.5	1.6	1.9	2.0	2.1
15	1.9	2.5	3.2	2.9	3.0	2.9
20	2.1	2.8	3.1	2.9	2.9	2.8

从表 4 可看出,单纯水泥固化试块的抗压强度较添加固化剂试块的抗压强度低,满足抗压强度大于 3 MPa 要求的有 3 种组合。固化剂和水泥的使用存在最大量;而且水泥在超过最大量后,其试块抗压强度会呈指数下降[11],一般水泥使用最大量在 20%左右。因此,在考虑用量最优化后,最终确定试块最优材料配比为:固化剂掺量

0.08%，水泥掺量 15%。

3　氡屏蔽效果分析

3.1　固化体氡析出率测量

为了掌握固化体自身的氡析出能力，根据氡在岩体内的扩散-渗流规律[12-13]，采用密闭腔体氡测量法[14]，对固化试块单面裸露下的氡析出率进行测量，结果见表 5。

表 5　固化试块单面氡析出率测量结果

Table 5　Measurement results of radon exhalation rate on one side of curing test blocks

	固化试块编号	氡析出率/(Bq·m^{-2}·s^{-1})
RD 固化剂固化	1	0.41
	2	0.33
	3	0.43
	平均值	0.39
水泥固化	4	0.66
	5	0.58
	6	0.64
	平均值	0.63

从表 5 可看出，使用 RD 固化剂固化后的铀尾渣，其氡析出率较单纯水泥固化试块的低；且形成的固化体氡析出率低于退役治理要求的 0.74 Bq/(m^2·s)。

3.2　屏蔽层抑氡效果测试

利用自主研发的氡析出装置模拟射气介质在不同厚度、不同压力梯度下的氡扩散渗流情况，该装置内表面做糙化处理，可有效避免边壁沟流效应。利用该装置构建了可以模拟铀尾矿表面氡析出的模型(图 1a)，该模型的表面氡析出率为 1.81 Bq/(m^2·s)。按固化剂掺量 0.08%、水泥掺量 15%，在铀尾矿模型表面分别制作固化层(图 1b)，固化层厚度分别为 1、5、10 cm，并对固化层表面氡析出率进行测量，结果如图 2 所示。可以看出，最佳配比下形成的固化层在厚度达到 10 cm 时，其表面的氡析出率从无固化层时的 1.81 Bq/(m^2·s)降到了 0.34 Bq/(m^2·s)。利用 Origin 软件对固化层厚度与表面氡析出率关系进行拟合，可以看出固化层厚度与表面氡析出率呈指数关系(图 2)。

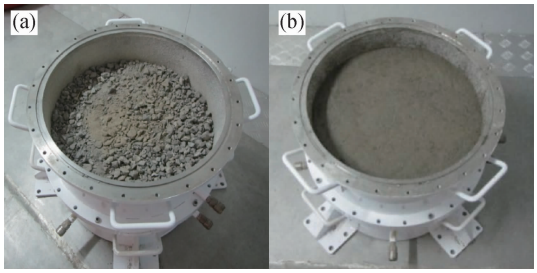


图 1　铀尾矿模型表层增加固化层前后

Fig. 1　Before and after curing the surface of uranium tailings model

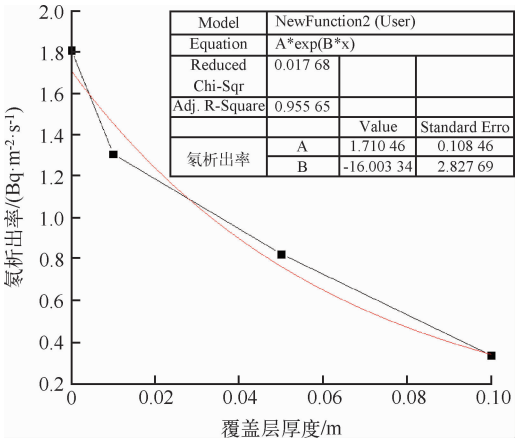


图 2　不同固化层厚度与氡析出率关系

Fig. 2　Relationship between radon exhalation rate and curing layer thickness

3.3　最优屏蔽层厚度计算

3.3.1　氡扩散运移数学模型

铀尾矿堆是破碎多孔介质，可建立稳态铀尾矿单层覆盖氡浓度变化数学模型对其研究(图 3)。



图 3　铀尾矿覆盖氡浓度变化数学模型

Fig. 3　Mathematical model of radon concentration change in uranium tailings

图 3 中：C_0、C_1、C_a分别为稳定状态下尾矿堆中、覆盖层中、空气中的氡活度浓度；D_0、D_1、D_a分别为氡在尾矿堆、覆盖层、空气中的扩散系数；h_0、h_1分别为尾矿堆、覆盖层厚度。以地面为坐标原点，沿覆盖层法线方向为 z 轴，建立坐标系。

在实际环境中，尾矿堆氡的扩散作用远大于渗流作用。因此，以氡扩散作用为主建立方程。在氡受到浓度梯度的影响时，氡从浓度高的地方向浓度低的地方扩散，遵循菲克定律；当氡浓度在空间中达到稳定平衡状态后，氡在尾矿堆和覆盖层中的扩散微分方程为

$$\begin{cases} D_0\dfrac{\mathrm{d}^2C_0}{\mathrm{d}z^2}-\lambda C_0+Q_0=0 \\ D_1\dfrac{\mathrm{d}^2C_1}{\mathrm{d}z^2}-\lambda C_1+Q_1=0 \end{cases}, \tag{1}$$

式中：D_0、D_1—尾矿堆、覆盖层中的扩散系数，m^2/s；C_0、C_1—尾矿堆、覆盖层中的氡活度浓度，Bq/m^3；λ—氡衰变系数，$2.1\times10^{-6}/s$；Q_0、Q_1—尾矿堆、覆盖层中产生氡的能力，$Bq/(s\cdot m^3)$；由于本试验覆盖材料为铀尾矿和水泥等材料的混合材料，因此不能忽略覆盖层中产生的氡。

式(1)为二阶非齐次线性微分方程，其解为

$$\begin{cases} C_0=a_1e^{\sqrt{\frac{\lambda}{D_0}}z}+a_2e^{-\sqrt{\frac{\lambda}{D_0}}z}+\dfrac{Q_0}{\lambda} \\ C_1=a_3e^{\sqrt{\frac{\lambda}{D_0}}(z-h_0)}+a_4e^{-\sqrt{\frac{\lambda}{D_0}}(z-h_0)}+\dfrac{Q_1}{\lambda} \end{cases}。 \tag{2}$$

设定边界条件：1)近似认为在地表($z=0$)附近的氡活度浓度 $C_0=0$；2)在尾矿堆与覆盖层交界处($z=h_0$)，尾矿堆与覆盖层的孔隙氡浓度相等，即$\dfrac{C_0}{\eta_0}=\dfrac{C_1}{\eta_1}$，$\eta$ 为孔隙率；3)在尾矿堆与覆盖层交界处($z=h_0$)，尾矿堆与覆盖层的氡通量相等，即 $D_0\dfrac{\mathrm{d}^2C_0}{\mathrm{d}z^2}=D_1\dfrac{\mathrm{d}^2C_1}{\mathrm{d}z^2}$；4)当 $z\to\infty$时，C_1 有界。通过 4 个边界条件，可以得到待定系数方程组：

$$\begin{cases} a_1+a_2=-\dfrac{Q_0}{\lambda} \\ \dfrac{a_1}{\eta_0}e^{\sqrt{\frac{\lambda}{D_0}}h_0}+\dfrac{a_2}{\eta_0}e^{-\sqrt{\frac{\lambda}{D_0}}h_0}+\dfrac{Q_0}{\lambda\eta_0}=\dfrac{a_3}{\eta_1}+\dfrac{a_4}{\eta_1}+\dfrac{Q_1}{\lambda\eta_1} \\ D_0a_1e^{\sqrt{\frac{\lambda}{D_0}}h_0}-D_0a_2e^{-\sqrt{\frac{\lambda}{D_0}}h_0}=D_1a_3-D_1a_4 \\ a_3=0 \end{cases}, \tag{3}$$

解得各待定系数为

$$\begin{cases} a_1=-\dfrac{(D_0\eta_0+D_1\eta_1)bQ_0+D_1(Q_1\eta_0-Q_0\eta_1)}{\lambda[D_1\eta_1\left(\frac{1}{b}-b\right)-D_0\eta_0(\frac{1}{b}+b)]}-\dfrac{Q_0}{\lambda} \\ a_2=\dfrac{(D_0\eta_0+D_1\eta_1)bQ_0+D_1(Q_1\eta_0-Q_0\eta_1)}{\lambda[D_1\eta_1\left(\frac{1}{b}-b\right)-D_0\eta_0(\frac{1}{b}+b)]} \\ a_3=0 \\ a_4=\dfrac{(D_0\eta_0+D_1\eta_1)bQ_0+D_1(Q_1\eta_0-Q_0\eta_1)}{\lambda[D_1\eta_1-D_0\eta_0(\frac{1}{b^2}-b^2)]}\times \\ \qquad\dfrac{\eta_1}{\eta_0}-\dfrac{\eta_1Q_0(b-1)}{\lambda\eta_0}-\dfrac{Q_1}{\lambda} \end{cases}, \tag{4}$$

式(4)中

$$b=\mathrm{e}\sqrt{\frac{\lambda}{D_0}}h_0。 \tag{5}$$

在不考虑氡渗流情况下，半无限大介质表面的氡析出率为[15]

$$J=D\frac{\mathrm{d}C}{\mathrm{d}z}\Big|_{z=h_1}, \tag{6}$$

将 C_1带入式(5)，得出铀尾渣与水泥混合覆盖层表面氡析出率 J_s 为

$$J_s=D_1\frac{\mathrm{d}C_1}{\mathrm{d}z}\Big|_{z=h_1}=-D_1\sqrt{\frac{\lambda}{D_0}}a_4e^{-\sqrt{\frac{\lambda}{D_0}}(h_1-h_0)}。 \tag{7}$$

由此可以得出，尾矿渣与水泥混合覆盖层表面氡析出率 J_s与覆盖层厚度 H_1之间的关系为

$$J_s=Be^{AH_1}; \tag{8}$$

式(8)变形得：

$$H_1=A\ln(BJ_s), \tag{9}$$

式(9)中：

$$\begin{cases} A=-\sqrt{\dfrac{D_0}{\lambda}} \\ B=-\dfrac{e^{-\sqrt{\frac{\lambda}{D_0}}h_0}}{D_1\sqrt{\frac{\lambda}{D_0}}a_4} \end{cases}。 \tag{10}$$

尾矿堆、覆盖层产生氡的能力 Q_0、Q_1可由公式(11)得出

$$Q=\lambda R_{\mathrm{Ra}}\rho_{\mathrm{b}}(1-\eta)E, \tag{11}$$

式中：E—铀尾矿中氡的射气系数；R_{Ra}—铀尾矿中镭比活度，Bq/kg；ρ_{b}—铀尾矿的密度，kg/m^3。

利用公式(9)，带入实际铀尾矿的扩散系数、孔隙度、表面氡析出率等参数，即可得到最优的固化层厚度。

3.3.2 模型验证计算

为了对上述理论推导结果进行验证，通过查

阅资料和测试[16-17]获得了铀尾渣的相关物理和放射性计算参数，见表 6。将表 6 参数代入式(9)得

$$H=-0.062\ 5\ln(0.584J_s)。\qquad(12)$$

表 6　铀尾渣和覆盖层相关参数

Table 6　Related parameters of uranium tailings and curing layer

项目	氡射气系数	密度/(g·cm^{-3})	镭比活度/(Bq·kg^{-1})	氡扩散系数/(m^2·s^{-1})	孔隙率/%
尾矿堆	0.2	1.4	3 500	2.32×10^{-6}	26.9
覆盖层	0.2	2.8	1 958	1.2×10^{-6}	3.5

将 $J_s=0.74$ Bq/(m^2·s)作为表面氡析出率控制值，利用式(12)计算得到固化层厚度 $H=0.059$ m。利用图 3 拟合公式计算得出的固化层厚度为 0.052 m。2 种方式计算得出的固化层厚度相近，说明推导得出的计算公式与实际相符，式(12)可用于固化层厚度计算。

4　屏蔽层稳定性和微观机理分析

4.1　模拟环境下的稳定性测试

为了进一步评价屏蔽层的稳定性，利用恒温恒湿舱，模拟在高温高湿(35 ℃，90%RH)和低温干燥(5 ℃，30%RH)情况下屏蔽层氡析出率的变化情况。固化层厚为 10 cm，分别在 3 种环境中各放置 10 d，以实际自然环境下的氡析出率为对比，试验结果见表 7。可以看出，在不同的温度、湿度环境下，屏蔽层均能够维持相对稳定的氡析出率。说明该固化方法在铀尾矿退役降氡覆盖施工中具有一定的可行性。

表 7　不同温湿度环境下的氡析出率变化

Table 7　Variation of radon exhalation rate under different temperature and humidity

条件	氡析出率/(Bq·m^{-2}·s^{-1})
实际自然环境(9 月，28 ℃，46%RH)	0.416
高温高湿(35 ℃，90%RH)	0.341
低温干燥(5 ℃，30%RH)	0.429

4.2　基于 SEM 的微观结构分析

铀尾渣固化前后 SEM 微观形貌如图 4 所示。

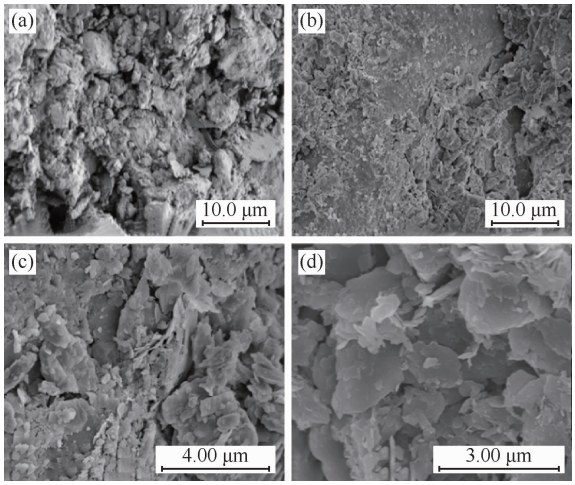


图 4　铀尾渣固化前后 SEM 微观形貌

Fig. 4　SEM morphology of uranium tailing before and after curing

由图 4 可知：对比原样铀尾渣(图 4a)和固化铀尾渣(图 4b)在 3 000 倍的 SEM 照片，固化后的铀尾渣表面出现了胶结物特征，松散的颗粒被胶结在一块，孔隙明显减少。图 4c 和图 4d 分别是固化铀尾渣在 12 000 倍和18 000倍下的 SEM 照片，颗粒单元体表面胶结物胶结特征更加明显，尾渣片状颗粒以面-面形式接触紧密。

固化体的微观结构是决定其工程性质的基础。RD 固化剂对铀尾渣结构的改变很明显，固化体微观结构以团聚体结构为主，团聚体明显增大，孔隙减少，结构变得更加紧密。这从微观上反映了铀尾渣经添加固化剂处理后，其强度提高，表面氡析出率明显降低的原因。

5　结论

利用 RD 固化剂制作的固化试块，在最佳配比下(固化剂掺量 0.08%，水泥掺量 15%)，其无侧限抗压强度大于 3 MPa，在一定厚度下能够承受 15 t 自卸渣土车的碾压；固化试块单面氡析出率为 0.39 Bq/(m^2·s)，低于退役治理要求的 0.74 Bq/(m^2·s)。利用 RD 固化剂和铀尾渣制作的氡屏蔽层，在固化层厚度为 10 cm 时，铀尾渣堆表面的氡析出率下降了 81.2%。

利用氡扩散基本理论，推导得出了氡屏蔽层厚度的计算公式；其计算结果与实测值相符。在人工模拟环境试验中，固化屏蔽层表面氡析出率未出现较大波动，稳定性好。

参考文献：

[1] 吴慧. 基于 CFD 扩散模型铀尾矿库氡扩散规律及防护措施研究[D]. 衡阳：南华大学，2020.

[2] 国家环境保护局. 铀矿冶设施退役治理环境管理规定：GB 14586—1993[S]. 北京：中国标准出版社，1993.

[3] 赵瑜隆. SG-1 型土壤固化剂稳定碎石土配合比设计及路用性能研究[D]. 西安：长安大学，2014.

[4] 邓慧娟. 废石堆及尾矿库覆盖降氡治理用土壤的改良研究[D]. 衡阳：南华大学，2017.

[5] 谭凯旋，胡寒桥，刘泽华，等. 不同覆盖物抑制铀尾矿氡析出的效果[J]. 矿物学报，2012，32(2)：233-237.

[6] 康剑翘，胡鹏华，陈刚，等. 酸性铀尾渣包裹技术与氡析出控制研究[J]. 铀矿冶，2020，39(2)：127-132.

[7] 胡浪，陈建. 无机固化剂与离子型固化外加剂在道路工程中的应用[J]. 建材世界，2022，43(3)：10-13.

[8] 朱坤垅. 淤泥质土固化及路用性能试验研究[D]. 杭州：浙江大学，2021.

[9] 交通部公路科学研究所. 公路工程无机结合料稳定材料试验规程[M]. 北京：人民交通出版社，1994.

[10] 汤万钧，才庆祥，周伟. 基于卡车对地比压实验的路面固化剂技术指标研究[J]. 煤炭技术，2017，36(12)：303-305.

[11] 田冠飞，安雪晖，沈乔楠，等. 水泥用量对混凝土抗压强度影响的试验研究[J]. 混凝土，2007，4(5)：1-5.

[12] 田亚坤，张志军，郭要辉，等. 温度-压力耦合作用下尾矿堆中氡的迁移扩散规律研究[J]. 黄金，2020，41(12)：81-85.

[13] GUTIÉRREZ-ÁLVAREZ I，GUERRERO J L，MARTÍN J E，et al. Influence of the accumulation chamber insertion depth to measure surface radon exhalation rates[J]. Journal of Hazardous Materials，2020，393：122-344.

[14] 雷兴，张磊，郭秋菊. 密闭腔体法准确测量建材氡析出率比较研究[J]. 辐射防护，2011，31(1)：13-16+22.

[15] 周星火. 铀矿通风与辐射安全[M]. 哈尔滨：哈尔滨工程大学出版社，2009：122-124.

[16] 蒋复量，黎明，李向阳，等. 类铀矿岩材料制备及氡扩散系数测定的实验研究[J]. 辐射防护，2018，38(2)：110-118.

[17] 中华人民共和国国家卫生建康委员会. 建筑材料氡射气系数的测量方法：WS/T 676—2020[S]. 北京：中国标准出版社，2020.

Effect of RD Curing Agent on Curing Properties and Radon Shielding Performance of Uranium Tailings

CHEN Gang，GAN Yuhang，KANG Jianqiao，HU Penghua

(Beijing Research Institute of Chemical Engineering and Metallurgy，CNNC，Beijing 101149，China)

Abstract：The uranium tailings from a uranium mine in Hebei province were cured with cement and RD curing agent commonly used in the market. The mechanical properties and radon shielding properties of curing test blocks were studied，and the calculation formula for the optimal radon shielding layer was derived. The weathe rability test of the shielding layer was also carried out，and the microscopic mechanism of the curing test blocks was analyzed. The results show that the optimal mass ratio of uranium tailings curing is 0.08% RD curing agent and 15% cement. Under the optimal ratio，the compressive strength of the curing test blocks can reach 3.0 MPa，and the radon exhalation rate is 0.39 Bq/(m^2 · s). When the thickness of the solidified layer is 10 cm，the radon exhalation rate on the surface of uranium tailings decreases by 81.2%，and the radon shielding effect is obvious. At the same time，the radon exhalation rate on the shielding layer surface did not fluctuate greatly in the artificial simulated environment test，and the stability is good.

Key words：uranium tailings；curing；compressive strength；radon shielding