

空气中 CO₂ 对酸性废渣中和过程中 U 稳定性的影响

高扬, 孙娟, 刘晓超, 安毅夫, 武旭阳, 任丽江

(中核第四研究设计工程有限公司, 河北 石家庄 050021)

摘要: 采用碱性材料对酸性废渣进行中和处理, 设置敞开、封闭试验环境, 以及不同投加比和 pH 等条件, 通过监测中和渣上清液中 pH、U、HCO₃⁻ 变化, 并借助 XRD 分析中和渣的矿物组成, 研究 CO₂ 对酸性废渣中和过程中 U 稳定性的影响。结果表明, 中和处理时周围空气中的 CO₂ 会影响中和渣 pH 与 U 的稳定性, 中和渣在碱性条件下对 CO₂ 的固定是个酸化过程, 随着中和渣 pH 下降, 在空气中固定的 CO₂ 向 HCO₃⁻ 转变, HCO₃⁻ 逐渐累积, 使中和渣中已稳定的 U 重新浸出。U 与 pH 无明显相关性, U 大量浸出的 pH 区间为 7.68~8.41, 此区间 HCO₃⁻ 大量积累; U 与 HCO₃⁻ 成正相关关系, 相关系数 (R^2) 为 0.95, HCO₃⁻ 的产生是影响中和渣中 U 稳定性的关键因素。Ca(OH)₂ 投加过量时, 中和渣中会有次生矿物 CaCO₃ 生成; 随着 CO₂ 固定, 中和渣 pH 下降, CaCO₃ 会部分溶解转变为 HCO₃⁻。敞开试验环境中, 仅有 2.5% Ca(OH)₂ 试验组和 2.5% Mg(OH)₂ 试验组维持极低的 U 浸出水平, 中和处理后中和渣 pH 较低, 在空气中固定的 CO₂ 极少, 影响 U 稳定的 HCO₃⁻ 基本不产生。

关键词: CO₂; HCO₃⁻; 酸性废渣; 中和; U 稳定性

中图分类号: X591; TD926.4; TL942 **文献标志码:** A **文章编号:** 1000-8063(2025)03-0068-08

DOI: 10.13426/j.cnki.yky.2025.02.04

铀矿及伴生放射性矿经过酸法采冶后, 会产生大量含铀酸性废渣 (pH=1.5~3.0)^[1-2], 对其安全处置前须先进行中和处理^[3-4]。中和过程不仅能调节废渣酸度, 还可促进铀的稳定化。

石灰是酸性废渣常用的碱性中和材料, 但经石灰处理的铀矿冶废渣堆存几十年后, 陆续出现 U 反溶问题^[5]。U 反溶过程受多种因素共同影响: 1) 化学因素。主要包括废渣中和不完全导致的残余酸释放^[6] 以及黄铁矿氧化等产酸矿物的氧化产酸作用^[7]。2) 环境因素。在中碱性条件下废渣中 U 仍存在一定的浸出风险^[8], 表明 pH 不是控制 U 稳定性的唯一因素。3) 微生物因素。好氧型微生物氧化可促进 U 反溶^[9-10], 还原性微生物可对 U 进行原位固定^[11-13]。

目前, 针对 U 稳定性的研究多集中在酸性废渣中和后铀的形态以及铀的价态等方面^[14-16], 没有考虑中和处理过程中空气中 CO₂ 对 U 稳定性的影响。笔者通过选择不同投加比的碱性材料对

酸性废渣进行中和处理, 研究在不同 pH 条件下, 空气中 CO₂ 对中和渣中 U 稳定性的影响, 以期为含 U 酸性废渣的安全处置提供技术支持。

1 试验部分

1.1 试验材料

试验用酸性废渣为伴生 U 的独居石酸溶渣, 将酸溶渣自然风干、除杂、混匀、磨碎后过 10 目 (2 mm) 尼龙筛备用。酸溶渣 pH 为 1.9, U 质量分数为 0.10%。碱性材料 Ca(OH)₂ 和 Mg(OH)₂, 辅助材料 CaCl₂, 均为分析纯; 试验用水为去离子水, 电导率 ≤ 10⁻⁶ S/cm。

1.2 试验方法

酸性废渣的中和处理采用静态试验方式进行, 将酸性废渣与碱性材料在搅拌器 (300 r/min) 中固固混匀 10 min 后, 添加去离子水在搅拌器 (100 r/min) 中继续混匀 5 min, 最终控制液固体积质量比 (简称液固比) 为 1:1 (mL/g), 得到中和

收稿日期: 2025-02-21; 修回日期: 2025-03-16

基金项目: 中国铀业有限公司-东华理工大学核资源与环境国家重点实验室联合创新基金 (2023NRE-LH-02)。

第一作者简介: 高扬 (1991—), 男, 河北保定人, 硕士, 工程师, 主要从事辐射防护与环境保护相关研究。

渣混合溶液。

设置敞开、封闭2种试验环境。封闭环境采用橡胶塞和铝塑盖隔绝空气,Ca(OH)₂投加比分别为2.5%、5.0%、7.5%、10.0%,在整个试验周期内定期监测中和渣上清液中的pH与ρ(U)、ρ(HCO₃⁻)变化;试验结束后进行固液分离将固体样品进行干燥处理,测试矿物组成。选择敞开环境中Ca(OH)₂投加比为2.5%和10.0%的中和处理后的中和渣固体样品进行pH调节,pH调节材

料为Ca(OH)₂和CaCl₂,材料投加比分别为1.5%、3.0%、4.5%、6.0%、7.5%,液固比为1:1(mL/g),120 d后测试上清液中pH、ρ(U)、ρ(HCO₃⁻)。此外,在敞开环境下进行酸性废渣与Mg(OH)₂的中和试验,Mg(OH)₂投加比同样设置为2.5%、5.0%、7.5%、10.0%,定期监测上清液中的pH与ρ(U)、ρ(HCO₃⁻)变化。为减少长期试验水分流失,试验置于恒温恒湿箱(温度25℃,相对湿度96%)中进行。试验设计见表1。

表1 试验条件汇总

Table 1 Summary of experimental condition

组别	废渣属性	废渣量/g	试验环境	材料	投加比
1#	原废渣	50.0	敞开	Ca(OH) ₂	2.5%、5.0%、7.5%、10.0%
	原废渣	50.0	封闭	Ca(OH) ₂	2.5%、5.0%、7.5%、10.0%
2#	2.5% Ca(OH) ₂ 中和后的废渣	50.0	敞开	Ca(OH) ₂	1.5%、3.0%、4.5%、6.0%、7.5%
	10.0% Ca(OH) ₂ 中和后的废渣	50.0	敞开	CaCl ₂	1.5%、3.0%、4.5%、6.0%、7.5%
3#	原废渣	50.0	敞开	Mg(OH) ₂	2.5%、5.0%、7.5%、10.0%

1.3 分析方法

中和渣上清液pH采用酸度计(ST3100/F, OHAUS, USA)测定;ρ(U)采用电感耦合等离子体发射光谱仪(iCAP 7200, Thermo Fisher Scientific, USA)测定;ρ(HCO₃⁻)采用酸碱滴定法测定;中和渣矿物组成采用XRD(Smartlab3, Rigaku, Japan)测试分析。

采用Microsoft Excel 2016进行数据统计分析,采用Jade 6.5进行XRD图谱解析,采用Origin Pro 9.0进行绘图。

2 结果与讨论

2.1 中和渣上清液中的pH与ρ(U)

在敞开与封闭试验环境条件下,Ca(OH)₂投加量对中和渣上清液pH与ρ(U)影响见图1。可以看出,在敞开体系中,投加Ca(OH)₂后,中和渣上清液的pH随着时间推移存在明显下降趋势,其中2.5%试验组在40 d内先下降后升高,40 d后又缓慢下降至6.0左右;ρ(U)在整个试验周期内一直维持在较低水平。5.0%试验组的pH在40 d内下降趋势最为明显,从11.17快速下降至8.91,40 d后又缓慢下降至8.0左右;而且U在40 d后快速浸出,试验结束时上清液中ρ(U)为

1.18 mg/L,仍未达到平衡状态。7.5%试验组的pH在20 d内下降较快,20 d后缓慢下降至9.43;ρ(U)在120 d内一直维持在较低水平,120 d后U开始浸出,试验结束时ρ(U)从0.08 mg/L升至0.31 mg/L。10.0%试验组的pH在整个试验周期内缓慢下降至10.32,ρ(U)始终维持在极低水平。与敞开体系相比,封闭体系的中和渣上清液pH随时间推移下降趋势更为平缓,最终pH更高,各试验组ρ(U)始终处于极低水平。因此认为,在中和处理时周围空气会影响中和渣上清液的pH与ρ(U)变化。

2.2 中和渣体系的理化特征

从中和处理后中和渣的XRD谱图(图2)可以看出,除2.5%试验组外,敞开体系中中和渣的矿物组成包括ZrSiO₄、SiO₂、Al₂Ca₃(SiO₄)₃、CaCO₃、Mg₃Al₂(SiO₄)₃等,未有U矿物相衍射峰出露,其中硅酸盐矿物均为酸性废渣的原生矿物;敞开体系2.5%试验组和封闭体系所有试验组中和渣的XRD谱图未见CaCO₃衍射峰,这与文献[17-18]的结果一致。CaCO₃为次生矿物,来源于中和渣中多余的碱对空气中CO₂的固定,其过程见反应式(1)~式(2),中和渣中多余的碱消耗H⁺会促进反应(1)和(2)的发生。图2(a)显示,Ca(OH)₂

投加比越大, CaCO_3 衍射峰的峰强越强; 这是由于材料碱性越强消耗 H^+ 能力越强, 通过溶解 CO_2 生成的 CO_3^{2-} 越多, 生成的次生矿物 CaCO_3 也

越多。

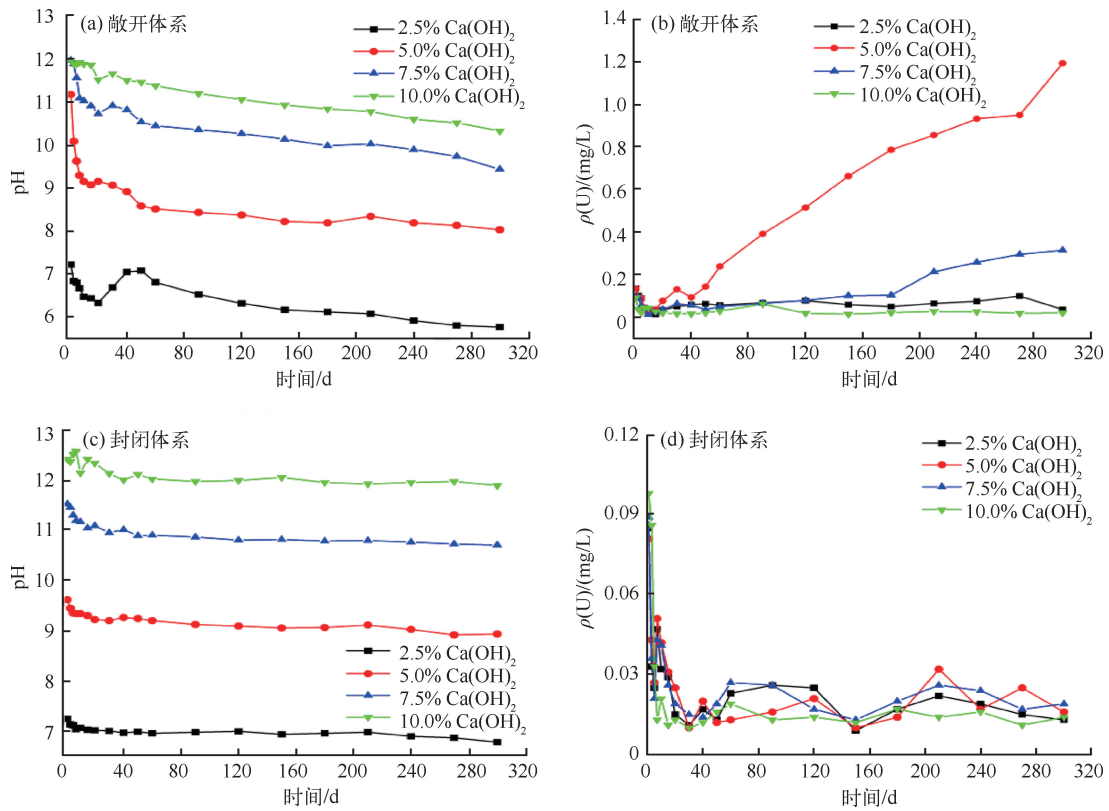
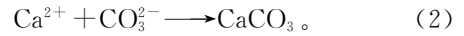
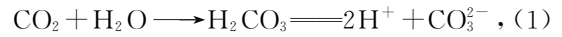


图1 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 中和过程中上清液 pH 和 $\rho(\text{U})$ 随时间的变化

Fig. 1 Variation of pH and $\rho(\text{U})$ in the supernatant over time during the neutralization process of $\text{Ca}(\text{OH})_2$

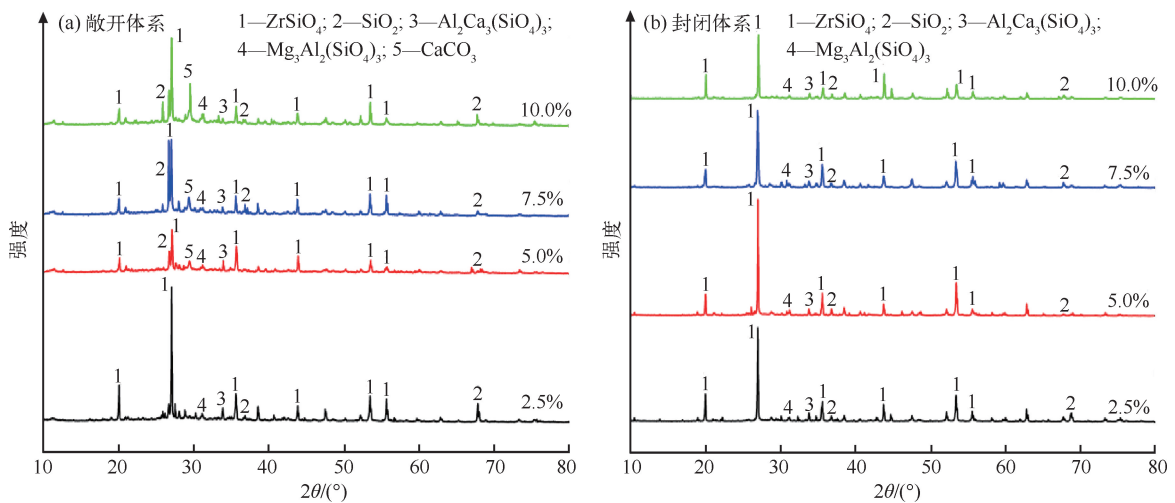


图2 中和渣的 XRD 谱图

Fig. 2 XRD spectrum of neutralization residue

封闭体系上清液中未检测到 HCO₃⁻, 敞开体系中 $\rho(\text{HCO}_3^-)$ 变化见图 3。可以看出, 2.5% Ca(OH)₂ 和 10.0% Ca(OH)₂ 试验组在整个试验周期内 $\rho(\text{HCO}_3^-)$ 均处于极低水平; 5.0% Ca(OH)₂ 试验组在 20 d 后 HCO₃⁻ 快速浸出, 至 120 d 时浸出速率变慢, 逐渐达到平衡状态, 试验结束时上清液中 $\rho(\text{HCO}_3^-)$ 为 2.66 g/L; 7.5% Ca(OH)₂ 试验组在 150 d 后才开始浸出, 试验结束时仍维持上升趋势, $\rho(\text{HCO}_3^-)$ 为 0.72 g/L。5.0% Ca(OH)₂ 和 7.5% Ca(OH)₂ 试验组中 HCO₃⁻ 浸出主要与中和渣 pH 下降相关, pH 下降时中和渣对空气中 CO₂ 的固定过程见反应式(3), 中和渣 pH 下降导致消耗 H⁺ 能力降低, CO₂ 向 HCO₃⁻ 转变, 而且已经生成的次生矿物 CaCO₃ 也会随着 pH 下降而部分溶解, 见反应式(4)。在 5.0% Ca(OH)₂ 和 7.5% Ca(OH)₂ 试验组中, $\rho(\text{HCO}_3^-)$ 变化趋势与图 1(b) 中 $\rho(\text{U})$ 变化接近。因此得出, HCO₃⁻ 是控制中和渣中 U 浸出的关键因素, 这与文献[19-20]结果一致。

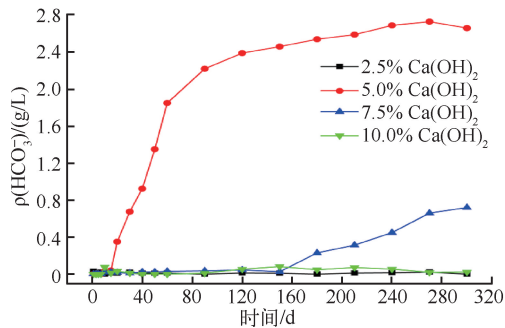
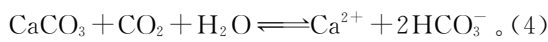
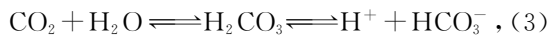


图3 敞开体系中和过程中上清液 $\rho(\text{HCO}_3^-)$ 随时间的变化

Fig. 3 Variation of $\rho(\text{HCO}_3^-)$ in the supernatant during the neutralization process over time in an open system

由图 1~图 3 可知, 在对酸性废渣进行中和处理时, 空气中 CO₂ 是影响 U 稳定性的主要因素。相较于封闭体系, 敞开体系中和渣上清液 pH 下降幅度较大, 主要因为其不仅受到酸性废渣中残余酸释放的影响, 还受到空气中 CO₂ 的影响, 中和渣在碱性条件下对 CO₂ 的固定是个酸化过程。当中和渣处于强碱性条件时, 生成次生矿

物 CaCO₃, 无 HCO₃⁻; 随着 CO₂ 固定, 中和渣 pH 下降, 当 pH 下降至弱碱性条件时, 固定的 CO₂ 主要以 HCO₃⁻ 形式存在, 同时, 次生矿物 CaCO₃ 也会发生部分溶解, 增加上清液中 $\rho(\text{HCO}_3^-)$, 进而促进 U 浸出。因此, 空气中 CO₂ 对中和处理的酸性废渣的影响主要有 2 个阶段: 一是在碱性条件下固定生成 CaCO₃; 二是弱碱性至中性条件 (pH 7~9) 下生成 HCO₃⁻, HCO₃⁻ 与 U 化学配合生成游离的碳酸铀酰 (如: UO₂(HCO₃)₃⁻), 促进 U 浸出。

2.3 pH 调节后中和渣上清液中 pH 与 $\rho(\text{U})$ 、 $\rho(\text{HCO}_3^-)$

对敞开体系中反应 300 d 的 Ca(OH)₂ 投加比分别为 2.5% 和 10.0% 的中和渣固相进行 pH 调节, 120 d 后上清液中 $\rho(\text{U})$ 、 $\rho(\text{HCO}_3^-)$ 及 pH 见表 2。随着 pH 调节, 中和处理时已稳定的 2.5% Ca(OH)₂ 和 10.0% Ca(OH)₂ 试验组中和渣出现 U 重新浸出现象。2.5% 试验组中和渣再次投加 Ca(OH)₂ 后, 各试验组 pH 升高, 3.0% Ca(OH)₂ 试验组 $\rho(\text{U})$ 、 $\rho(\text{HCO}_3^-)$ 最高, $\rho(\text{U})$ 为 1.89 mg/L, $\rho(\text{HCO}_3^-)$ 为 2.38 g/L, HCO₃⁻ 来源于 pH 升高时中和渣对空气中 CO₂ 的固定。10.0% Ca(OH)₂ 试验组中和渣投加 CaCl₂ 后, 各试验组 pH 降低, 1.5% CaCl₂ 试验组 $\rho(\text{U})$ 、 $\rho(\text{HCO}_3^-)$ 最高, $\rho(\text{U})$ 为 1.26 mg/L, $\rho(\text{HCO}_3^-)$ 为 2.14 g/L, HCO₃⁻ 来源于 pH 下降时 CaCO₃ 的部分溶解。

上清液中 $\rho(\text{U})$ 与 pH、 $\rho(\text{HCO}_3^-)$ 的相关性见图 4。 $\rho(\text{U})$ 与 pH 无明显相关性, U 大量浸出的 pH 区间为 7.68~8.41, 此区间 HCO₃⁻ 大量积累; $\rho(\text{U})$ 与 $\rho(\text{HCO}_3^-)$ 成正相关, 相关系数 (R^2) 为 0.95。因此, 在 pH 调节过程中 HCO₃⁻ 的产生是 U 浸出的主要因素。

2.4 Mg(OH)₂ 中和过程中中和渣上清液中 pH 与 $\rho(\text{U})$ 、 $\rho(\text{HCO}_3^-)$

Mg(OH)₂ 投加比对中和渣上清液 pH、 $\rho(\text{U})$ 、 $\rho(\text{HCO}_3^-)$ 影响见图 5~图 6。与 Ca(OH)₂ 不同, Mg(OH)₂ 具有缓释特性, 各试验组 pH 呈现先上升后下降的变化趋势, 至 50 d 时 pH 最高, 各试验组最高 pH 分别为 8.58、9.04、9.25、9.53; 50 d 后 pH 逐渐下降, 试验结束时 pH 分别为 7.15、8.08、8.47、8.54, 且仍存在一定下降趋势。Mg(OH)₂ 投加量越多, U 浸出越快, $\rho(\text{U})$ 也越高, 2.5% Mg(OH)₂ 试验组在整个试验周期内

浸出 $\rho(\text{U})$ 极低; 5.0% $\text{Mg}(\text{OH})_2$ 试验组在 240 d 内无明显 U 浸出现象, 240 d 后开始浸出, 至试验结束 $\rho(\text{U})$ 为 0.36 mg/L; 7.5% $\text{Mg}(\text{OH})_2$ 试验组在 50 d 后 U 开始浸出, 试验结束 $\rho(\text{U})$ 为 7.81 mg/L; 10.0% 试验组在 40 d 后开始浸出, 试验结束时 $\rho(\text{U})$ 为 8.58 mg/L。 $\rho(\text{HCO}_3^-)$ 变化趋势与 $\rho(\text{U})$ 类似, 试验结束时各试验组均保持着较快的上升趋势。 7.5% $\text{Mg}(\text{OH})_2$ 和 10.0% $\text{Mg}(\text{OH})_2$

试验组在 pH 上升时, 中和渣对空气中 CO_2 的固定过程见反应式(3)。 $\text{Mg}(\text{OH})_2$ 为弱碱且具有缓释特征, 消耗 H^+ 能力低于 $\text{Ca}(\text{OH})_2$, 其对 CO_2 的固定受反应式(1)影响较小; 5.0% $\text{Mg}(\text{OH})_2$ 试验组由于 pH 相对较低, 对 CO_2 的固定量较少, 上清液中 $\rho(\text{HCO}_3^-)$ 累积速率低于 7.5% $\text{Mg}(\text{OH})_2$ 和 10.0% $\text{Mg}(\text{OH})_2$ 试验组, 因此 U 重新浸出具有较强的滞后性。

表 2 上清液中 $\rho(\text{U})$ 、 $\rho(\text{HCO}_3^-)$ 及 pH

Table 2 $\rho(\text{U})$, $\rho(\text{HCO}_3^-)$, and pH in the supernatant

2.5% $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 试验组中和渣				10.0% $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 试验组中和渣			
$\text{Ca}(\text{OH})_2$ 投加比/%	pH	$\rho(\text{U})/(\text{mg/L})$	$\rho(\text{HCO}_3^-)/(g/L)$	CaCl_2 投加比/%	pH	$\rho(\text{U})/(\text{mg/L})$	$\rho(\text{HCO}_3^-)/(g/L)$
0	6.34	0.06	0.12	0	8.62	0.04	0.21
1.5	7.63	0.02	0.11	1.5	8.13	1.26	2.14
3.0	8.02	1.89	2.38	3.0	7.68	0.98	1.78
4.5	8.18	0.54	0.67	4.5	7.14	0.23	0.45
6.0	8.41	0.30	0.33	6.0	6.94	0.03	0.03
7.5	9.15	0.21	0.20	7.5	6.53	0.07	0.03

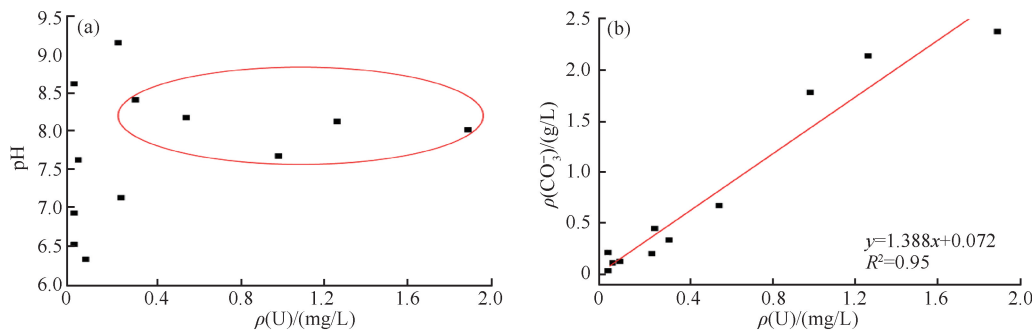


图 4 $\rho(\text{U})$ 与 pH、 $\rho(\text{HCO}_3^-)$ 的相关性

Fig. 4 The correlation between $\rho(\text{U})$ and pH, $\rho(\text{HCO}_3^-)$

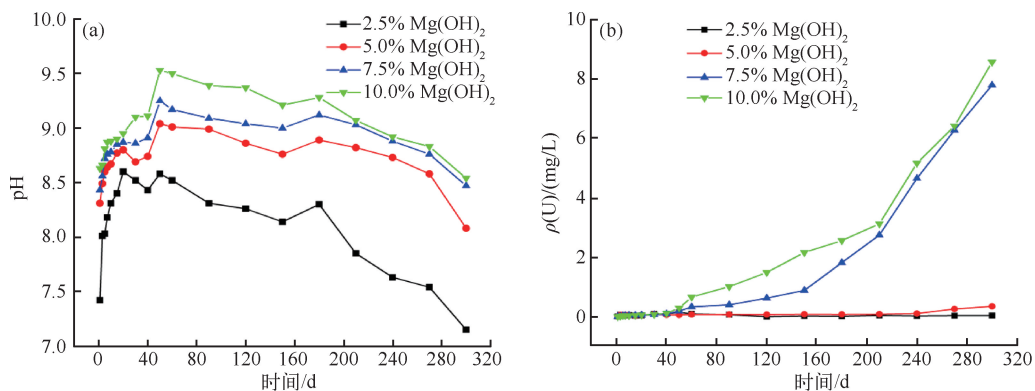


图 5 $\text{Mg}(\text{OH})_2$ 中和过程中上清液 pH 和 $\rho(\text{U})$ 随时间的变化

Fig. 5 Variation of pH and $\rho(\text{U})$ in the supernatant over time during the neutralization process of $\text{Mg}(\text{OH})_2$

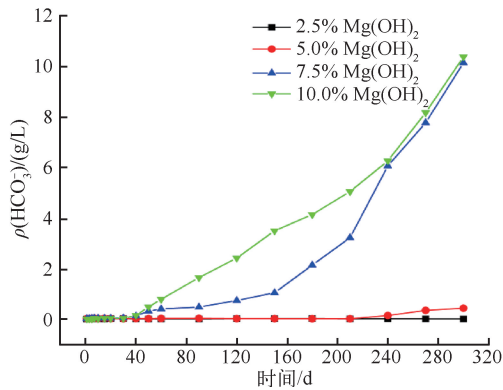


图6 $\text{Mg}(\text{OH})_2$ 中和过程中上清液 $\rho(\text{HCO}_3^-)$ 随时间的变化

Fig. 6 Variation of $\rho(\text{HCO}_3^-)$ in the supernatant over time during the neutralization process of $\text{Mg}(\text{OH})_2$

2.5 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 、 $\text{Mg}(\text{OH})_2$ 中和过程对比分析

$\text{Ca}(\text{OH})_2$ 和 $\text{Mg}(\text{OH})_2$ 对酸性废渣中和处理时,2.5%试验组在整个试验周期内都维持极低的 $\rho(\text{U})$,U稳定性显著高于其他试验组。2.5%试验组中和处理后中和渣pH较低,在空气中固定的 CO_2 极少,基本不产生影响U稳定的 HCO_3^- ;其他试验组由于碱过量,在空气中固定的 CO_2 较多,随着中和渣pH变化, HCO_3^- 大量累积,U稳定性遭到破坏而逐渐被浸出。10.0% $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 试验组在整个试验周期内维持着较高pH, CaCO_3 向 HCO_3^- 转化较少,中和渣中U维持着较强的稳定性,试验结束时其pH仍呈下降趋势;随着 CO_2 固定增多, HCO_3^- 逐渐生成,U存在较强的浸出风险。

3 结论

1)在对酸性废渣进行中和处理时,周围空气中的 CO_2 会影响中和渣pH与U的稳定性。中和渣在碱性条件下对 CO_2 的固定是个酸化过程,中和渣pH下降,空气中固定的 CO_2 转变为 HCO_3^- , HCO_3^- 逐渐累积会促进U浸出。U与 HCO_3^- 浸出成正相关关系, HCO_3^- 是影响中和渣中U稳定性的关键因素。

2) $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 投加过量时,中和渣中会有次生矿物 CaCO_3 生成;随着 CO_2 固定,中和渣pH下降, CaCO_3 会部分溶解转变为 HCO_3^- 。

3)敞开试验环境中,仅有2.5% $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 试验组和2.5% $\text{Mg}(\text{OH})_2$ 试验组可以维持极低的

U浸出水平,中和处理后中和渣pH较低,在空气中固定的 CO_2 极少,影响U稳定的 HCO_3^- 基本不产生。

参考文献:

- [1] 孙占学, Fiaz Asghar, 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.
SUN Zhanxue, ASGHAR Fiaz, ZHAO Kai, et al. Review and prospect of uranium mining and metallurgy in China [J]. Nonferrous Metals (Extractive Metallurgy), 2021(8):1-8(in Chinese).
- [2] 笪宗扬, 马莹, 郭咏梅, 等. 稀土精矿冶炼过程放射性元素迁移分布规律[J]. 中国稀土学报, 2021, 39(5):711-722.
DA Zongyang, MA Ying, GUO Yongmei, et al. Migration and distribution of radioactive elements in rare earth smelting process [J]. Journal of the Chinese Society of Rare Earths, 2021, 39(5):711-722 (in Chinese).
- [3] 铀矿冶辐射防护和辐射环境保护规定:GB 23727—2020[S]. 北京:中国环境出版集团, 2020.
- [4] 刘晓超, 杜娟, 柏学凯. 《伴生放射性物料贮存及固体废物填埋辐射环境保护技术规范(试行)》(HJ 1114—2020)的解读[J]. 铀矿冶, 2020, 39(3):238-242.
LIU Xiaochao, DU Juan, BAI Xuekai. Interpretation of Technical Specifications of Radiation Environmental Protection for Other Radioactive Material Storage and Solid Waste Landfill(Trial)(HJ 1114—2020) [J]. Uranium Mining and Metallurgy, 2020, 39(3):238-242(in Chinese).
- [5] 常哲. 铀尾矿库中核素铀的固定方法试验研究[D]. 衡阳:南华大学, 2017.
- [6] 刘玉龙. 强风强化氧化型砂岩铀矿工艺矿物学及高效绿色水冶技术研究[D]. 衡阳:南华大学, 2022.
- [7] 张瑶, 房琦, 吕俊文, 等. 巴氏芽孢杆菌对黄铁矿氧化产酸的抑制作用与重金属固定效果实验研究[J]. 广东化工, 2024, 51(2):11-14.
ZHANG Yao, FANG Qi, LYU Junwen, et al. Experimental study on inhibitory effect of sporosarcina pasteurii on oxidative acid production from pyrite and the fixation effect of heavy metals [J]. Guangdong Chemical Industry, 2024, 51(2):11-14 (in Chinese).
- [8] 高扬, 孙娟, 苏学斌, 等. 碱性材料对独居石废渣中U、Th的稳定化效应[J]. 铀矿冶, 2024, 43(1):50-57.

- GAO Yang, SUN Juan, SU Xuebin, et al. Stabilization effect of alkaline materials on U and Th in monazite waste residue[J]. Uranium Mining and Metallurgy, 2024, 43(1):50-57(in Chinese).
- [9] 卢林鹤. 硫酸盐还原菌及硫杆菌与铀的氧化还原作用[D]. 西安:西北大学, 2012.
- [10] 夏庆银, 刘龙成, 牛玉清. 铀元素微生物地球化学循环研究进展[J]. 湿法冶金, 2024, 43(5):483-488.
- XIA Qingyin, LIU Longcheng, NIU Yuqing. Research advances in microbial biogeochemical cycling of uranium[J]. Hydrometallurgy of China, 2024, 43(5):483-488(in Chinese).
- [11] 孙娟, 安毅夫, 连国玺, 等. 基于微生物还原的铀尾渣修复技术实验研究[J]. 辐射防护, 2024, 44(3):282-289.
- SUN Juan, AN Yifu, LIAN Guoxi, et al. Experimental study on the microbial remediation technology of uranium tailings based on biological reduction[J]. Radiation Protection, 2024, 44(3):282-289(in Chinese).
- [12] 吴唯民, Jack Carley, David Watson, 等. 地下水铀污染的原位微生物还原与固定:在美国能源部田纳西橡树岭放射物污染现场的试验[J]. 环境科学学报, 2011, 31(3):449-459.
- WU Weimin, CARLEY Jack, WATSON David, et al. Bioreduction and immobilization of uranium in situ: A case study at a USA department of energy radioactive waste site, Oak Ridge, Tennessee[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2011, 31(3):449-459(in Chinese).
- [13] 曾微, 王强, 江湘婷, 等. 磁性纳米功能材料 MFC 对镉污染稻田土壤微生物和酶活性的影响[J]. 西南大学学报(自然科学版), 2025, 47(2):122-132.
- ZENG Wei, WANG Qiang, JIANG Xiangting, et al. Effects of superparamagnetic nano-functional material MFC on soil microorganisms and enzyme activities in cadmium-contaminated paddy fields[J]. Journal of Southwest University(Natural Science Edition), 2025, 47(2):122-132(in Chinese).
- [14] 徐志良. 铀(VI)在合成黄铁矿和羟基磷灰石的作用机理研究[D]. 抚州:东华理工大学, 2017.
- [15] 王祥学, 王敏, 段恩喆, 等. 纳米零价铁材料对放射性核素铀的去除行为研究[J]. 中国科学:化学, 2023, 53(6):921-931.
- WANG Xiangxue, WANG Min, DUAN Enzhe, et al. Study on the removal behavior of radionuclide uranium by nanoscale zero valent iron materials[J]. Scientia Sinica:Chemistry, 2023, 53(6):921-931(in Chinese).
- [16] 谢龙悦, 郑志勤, 翟帆帆, 等. 希瓦氏菌协同铁氧化物/蒙脱石复合体对铀酰离子的去除研究[J]. 西南科技大学学报, 2023, 38(3):48-57.
- XIE Longyue, ZHENG Zhiqin, ZHAI Fanfan, et al. Removal of uranyl ions by iron oxide/montmorillonite complex in cooperation with *Shewanella oneidensis* MR-1[J]. Journal of Southwest University of Science and Technology, 2023, 38(3):48-57(in Chinese).
- [17] 王日伟, 周宏仓, 何都良, 等. 低浓度碱强化钢渣固定 CO₂ [J]. 科学技术与工程, 2017, 17(27):333-337.
- WANG Riwei, ZHOU Hongcang, HE Duliang, et al. Dilute alkali enhance steelmaking slag direct CO₂ sequestration[J]. Science Technology and Engineering, 2017, 17(27):333-337(in Chinese).
- [18] 李取超, 殷国栋, 姚国栋, 等. EDTA 间接滴定法快速检测 CO₂ 吸收液中碳酸氢根与碳酸根总量的研究[J]. 低碳化学与化工, 2024, 49(2):89-95.
- LI Quchao, YIN Guodong, YAO Guodong, et al. Research on rapid determination of total bicarbonate and carbonate in CO₂ absorption solution by EDTA indirect titration[J]. Low-Carbon Chemistry and Chemical Engineering, 2024, 49(2):89-95(in Chinese).
- [19] 高柏, 史维浚, 邢拥国, 等. 新疆某铀矿床淡化地下水碱法地浸试验研究[J]. 铀矿冶, 2011, 30(3):130-134.
- GAO Bai, SHI Weijun, XING Yongguo, et al. Alkaline in-situ leaching simulation test of a uranium deposit in Xinjiang under condition of diluting groundwater[J]. Uranium Mining and Metallurgy, 2011, 30(3):130-134(in Chinese).
- [20] 阳晓宇, 陈国贞, 易志刚, 等. 砂岩型铀矿 CO₂ + O₂ 地浸过程中浸出铀浓度与 HCO₃⁻ 浓度关系分析[J]. 铀矿冶, 2020, 39(1):11-16.
- YANG Xiaoyu, CHEN Guozhen, YI Zhigang, et al. Discussion on relationship between uranium leaching and HCO₃⁻ concentration by CO₂ + O₂ in-situ leaching sandstone type uranium deposit[J]. Uranium Mining and Metallurgy, 2020, 39(1):11-16(in Chinese).

Effect of CO₂ in Air on U Stability during the Neutralization Process of Acidic Waste Residue

GAO Yang, SUN Juan, LIU Xiaochao, AN Yifu, WU Xuyang, REN Lijiang

(The Fourth Research and Design Engineering Corporation, CNNC, Shijiazhuang 050021, China)

Abstract: Alkaline materials were used to neutralize acidic waste residue. Open and closed experimental environments were set up with different dosing ratios and pH conditions. By monitoring the changes in pH, U, and HCO₃⁻ in the supernatant of the neutralization residue, and analyzing the mineral composition of the neutralization residue using XRD, the effect of CO₂ on U stability during the neutralization process of acidic waste residue was studied. The results show that CO₂ in the surrounding air during neutralization treatment affects the stability of pH and U in the neutralization residue. The fixation of CO₂ by the neutralization residue under alkaline conditions is an acidification process. As the pH of the neutralization residue decreases, the CO₂ fixed in the air transforms into HCO₃⁻, which gradually accumulates and causes the already stabilized U in the neutralization residue is leached out again. The pH adjustment experiment shows that there is no significant correlation between U and pH. The pH range for U leaching is 7.68~8.41, and HCO₃⁻ accumulates significantly in this range. There is a positive correlation between U and HCO₃⁻, with a correlation coefficient of 0.95. The production of HCO₃⁻ is a key factor affecting the stability of U in neutralization residue. When Ca(OH)₂ is added excessively, secondary mineral CaCO₃ will be generated in the neutralization residue. As CO₂ is fixed, the pH of the neutralization residue decreases, and CaCO₃ will partially dissolve and transform into HCO₃⁻. In the open experimental environment, only the 2.5% Ca(OH)₂ experimental group and the 2.5% Mg(OH)₂ experimental group maintain extremely low U leaching levels. After neutralization treatment, the pH of the neutralization residue is low, and very little CO₂ is fixed in the air. HCO₃⁻ which affects U stability is hardly produced.

Key words: CO₂; HCO₃⁻; acidic waste residue; neutralization; U stability