

doi:10.3969/j.issn.1007-7545.2021.08.004

铀矿区放射性污染土壤修复技术研究进展

高柏^{1,2}, 高杨², 蒋文波², 张海阳², 史天成², 刘圣锋², 方正², 丁燕²

(1. 东华理工大学 核资源与环境国家重点实验室, 南昌 330013;

2. 东华理工大学 水资源与环境工程学院, 南昌 330013)

摘要:放射性核素导致的土壤污染受到人们的日益关注,铀矿山生产引起的矿区生态环境污染治理与修复已成为环保行业研究热点。铀矿区核素污染土壤修复技术包括物理修复技术、化学修复技术和生物修复等。土壤挖掘、覆盖和清洗是应对突发事件的首选方法,可发挥拓展污染场地的实际利用功能。对复杂的污染场地应当根据实际情况,发挥多学科交叉的作用,制定具有成本效益和环境友好的不同的修复技术方案,成为铀矿区放射性污染土壤修复技术的主流选择。系统总结了物理修复技术、化学修复技术和生物修复技术的基础理论、作用机制和发展现状,探讨对不同场地修复需求制定特定的修复方案路径,展望铀矿区核素污染土壤修复标准制定方向,为铀矿区放射性核素污染土壤修复提供理论支撑和指导依据。

关键词:铀矿区;放射性核素;物理技术;化学技术;生物技术

中图分类号:X52

文献标志码:A

文章编号:1007-7545(2021)08-0028-09

Research Progress on Remediation Technology of Radioactive Contaminated Soil in Uranium Mining Area

GAO Bai^{1,2}, GAO Yang², JIANG Wen-bo², ZHANG Hai-yang²,
SHI Tian-cheng², LIU Sheng-feng², FANG Zheng², DING Yan²

(1. State Key Laboratory of Nuclear Resources and Environment, East China University of Technology, Nanchang 330013, China;

2. School of Water Resources and Environmental Engineering, East China University of Technology, Nanchang 330013, China)

Abstract: Soil pollution caused by radionuclides has been increasingly concerned by government and public. Treatment and remediation of ecological environmental pollution in mining areas caused by uranium mine production has become a research hotspot in environmental protection industry. Remediation of radionuclide contaminated soil in uranium ore area includes physical remediation, chemical remediation and bioremediation. Soil excavation, mulching and cleaning are the first choice to deal with emergencies, which can play a role in expanding practical use of contaminated sites. For complex contaminated site, it is necessary to develop different remediation technology schemes with cost benefit and environment friendly according to actual situation, which will become mainstream choice of remediation technology of radioactive contaminated soil in uranium mining area. Basic theory, function mechanism and development current situation of physical repair technology, chemical remediation and bioremediation technology are systemly summarized. Study according to different field repair needs to formulate specific fix path is

收稿日期:2021-05-31

基金项目:国家自然科学基金资助项目(41162007,41362011)

作者简介:高柏(1964-),男,江西九江人,教授

discussed. District standards development direction of uranium ore is prospected. Direction of setting standards for remediation of radionuclide contaminated soil in uranium mining area is prospected. It can provide theoretical support and guiding basis for bioremediation of uranium ore district radioactive nuclide uranium contaminated soil.

Key words: uranium mining area; radionuclides; physical technology; chemical technology; biotechnology

环境中的放射性核素是指火山活动、侵蚀、风化等自然过程产生的放射性物质,主要包括铀(U)、钍(Th)、镭(Ra)、氡(Rn)、铅(Pb)和钋(Po)等同位素。人为活动导致自然产生的放射性物质泄漏到环境中,包括核武器试验、矿山采选冶、核电站运营、核废料处置、核事故、磷肥生产、化石燃料燃烧以及医用或研究用放射性同位素的生产和应用^[1]。未受人类活动影响的地区,铀的流入主要与其溶解或胶体物种有关,矿山附近,其运输以铀矿物颗粒的形式发生^[2]。铀矿尤其是低品位铀矿的开发利用,必然会产生大量废石和铀尾矿,如我国铀矿床以中低品位为主,品位为0.1%~0.3%,占总储量的60%。由于铀具有放射性和化学毒性,大量且连续的生产势必会导致环境污染,并对人类造成严重和长期的威胁^[3]。铀矿山受到放射性核素土壤污染的场地,经过长时间的自然淋滤、人工搬运等自然和人为因素作用下,可能进一步形成地下水的污染源,对铀矿区的居民造成潜在的危害。土壤重金属及放射性核素污染是公认的难去除的污染物,但科学工作者持续关注并积极寻求突破土壤修复技术,根据污染土壤实际情况,探索不同技术实践应用的适宜性,为铀矿区放射性污染土壤修复发展提供理论和技术依据。

1 铀矿区土壤中核素来源及形态特征

1.1 铀矿区土壤铀污染

地壳中铀的平均浓度估计为2.7 mg/kg^[4],部分国家土壤中铀的背景值超过2.7 mg/kg,其中中国土壤中铀的背景值为3.13 mg/kg,铀矿开采是矿山土壤中铀污染的主要来源。世界铀矿生产主要来自于14个国家,全球的铀产量为54 752 t,其中哈萨克斯坦的铀产量最高,占据41.66%,其次为加拿大(12.67%)和澳大利亚(12.08%)。然而,我国2019年的铀产量占全球总产量的3.44%,共计1 885 t,排名第八位,2025年国内需求预计可达到1.85万t,到2030年将达到2.01万t~2.40万t,国内铀资源需求将持续增加。

铀矿的开采会给土壤环境带来一定污染问题,国外关于铀矿区及其周边的污染调查有不同程度的

研究。GONGALSKY等^[5]研究表明,铀矿区周边草原土壤铀的富集率高达600倍;FERNANDO等^[6]发现,西班牙西部土壤部分采样点铀的浓度远远高于平均水平,通过计算污染因子和地质累积指数,表明了大多数样品的土壤受到了铀的中度污染;姚高杨等^[7]对我国南方某铀尾矿区周边农田土壤中放射性核素污染进行了调查研究,运用内梅罗综合污染指数得出研究区土壤中,放射性核素污染指数远超出了重度污染的临界值;刘平辉等^[8]分析评价了华东某铀矿区的水稻土中铀污染情况,得出研究区水稻土中铀的平均含量是全国土壤铀背景值的8.82倍。因此,铀矿山开采后带来土壤环境中铀污染的环境污染问题不可忽视。不同国家土壤中铀的背景值见表1。

表1 不同国家(地区)土壤中铀的背景值

Table 1 Background values of uranium in soils of different countries

国家(地区)	铀含量/(mg·kg ⁻¹)	参考文献
智利	0.79	[9]
德国	1.9	[10]
瑞士	2.25(耕地土壤)/1.93(草地)	[11]
英国	2.6	[12]
西班牙	13.5	[6]
日本	1.74	[13]
美国	3.5	[14]
葡萄牙	25.1	[15]
印度	11	[12]
波兰	0.79	[12]
欧洲	2.46(底土)/2.37(表土)	[16]
加拿大	1.2	[12]
中国	3.13	[17]

1.2 铀矿区土壤铀的来源分析

我国核工业有60多年的发展历史,由于铀矿开采的历史和技术等原因,铀矿区放射性污染较为普遍,局部较为严重^[18]。在生产铀的任何一个环节,包括铀矿山投入开采、含铀矿石运输、矿石或废渣堆积、近地冶炼、资源枯竭退役等,都会对铀矿区产生污染^[19-20]。

铀矿区的污染来源有多种(见图1)。含铀的放射性废水未经处理或处理不彻底排放到地面或者直

接打入地下,造成铀矿区周围水体污染。矿物开采时,钻孔、爆破产生的粉尘颗粒难以控制,随空气流通落在铀矿区周围,污染环境的同时还易被人体吸入。在矿物的运输和装卸车的过程中,会产生扬尘与矿物遗落,使铀矿区周围道路附近铀含量升高。铀矿石水冶、堆浸过程中产生的酸性排水,会使矿区周围水体、土壤 pH 降低,铀含量增高,在氧的参与下核素氧化并与其他金属发生反应,迁移性变高^[21]。冶炼

加入适当的试剂,如防垢剂、助渗剂等^[22],使得矿物废渣含铀量较小,但数量巨大。如果含铀尾矿废渣长期露天堆放,经过风化、雨水与地表径流冲刷与浸泡等,矿物废渣中的放射性元素会被淋出^[23]。铀在堆积底部的土壤中的含量与分布状态会出现改变,并被植物吸收造成污染。某些铀废矿在遗弃时并没有进行治理或者彻底治理,仍存在废弃矿石乱堆乱弃等现象,使得矿区铀污染范围与浓度进一步扩大。

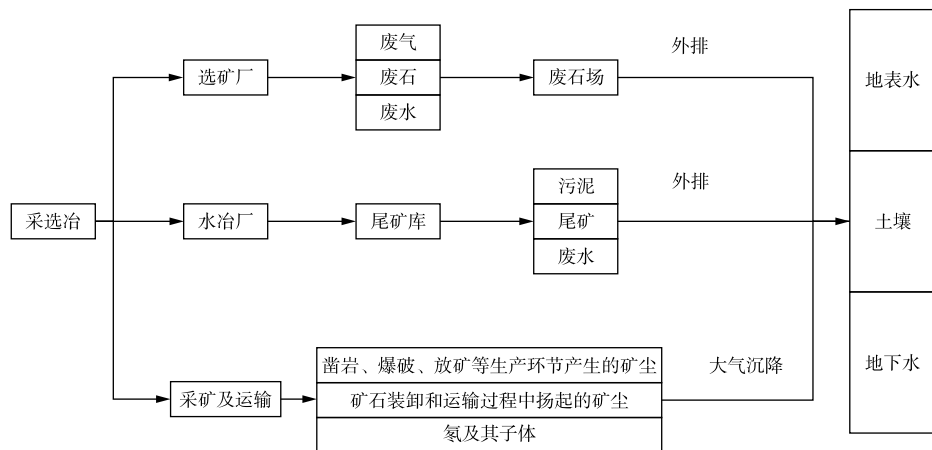


图1 铀矿区土壤放射性核素来源

Fig. 1 Sources of soil radionuclides in uranium mining areas

1.3 铀矿区土壤中铀的形态特征

土壤中铀的形态主要为+4价和+6价,其中 U^{4+} 毒性较高,对人体健康危害较大^[24],故分析土壤中铀的化学形态变化十分必要。铀是一种相对活泼的放射性核素,其形态变化易受外部因素影响。氧化还原条件对铀在土壤环境中的形态变化发挥重要作用^[25-26]。氧化条件下,铀酰(UO_2^{2+})形成高流动性的化合物,而 U^{4+} 还原条件下被氧化成稳定的氧化铀酰(UO_2)。同时土壤环境中,铀形态的变化与土壤有机质有一定关系,在存在有机化合物的电子供体下,铀(VI)很容易还原为铀(IV)^[12]。因此,氧化还原条件对土壤中铀的形态变化有影响作用。

土壤酸碱度对铀形态也存在影响,酸碱度控制土壤中溶解度、吸附和解吸之间的平衡^[27],表明土壤酸碱度是控制土壤中铀形态变化的因素之一。铀在碱性土壤中的迁移率高于在酸性土壤中,随着酸碱度的增加,铀被迁移并释放到土壤溶液中^[28]。碱性环境下,促进含铀矿物溶解, $U(IV)$ 向 $U(VI)$ 的氧化增强。微生物主要通过其产生的还原酶、蛋白质以及发生电子传递条件,进而使土壤中铀的形态 $U(VI)$ 还原为 $U(IV)$ ^[29-30]。微生物还有可能通过磷

酸化酶过程与磷酸盐等无机配体络合沉淀铀(VI),并形成不溶于水的铀的磷酸沉淀物,铀发生沉淀作用也可能与微生物细胞壁的面积及组成有关^[31]。土壤有机质可吸附大量的铀离子,其表面各种官能团决定了有机质与铀离子的结合能力^[32]。土壤有机质的含量还会影响土壤中的 Eh ,有机质含量的增加可以改变土壤 Eh 以促进 $U(VI)$ 的减少。

氧化还原条件、酸碱度、微生物和有机质的变化与铀离子的相互作用,如:还原、吸附和沉淀,从而导致了铀形态的变化^[33]。

2 铀矿区放射性污染土壤修复技术

2.1 物理修复技术

物理修复方法主要以改变土壤物理性质来对铀污染土壤进行修复。常用的方法主要为客土法、热处理法、电动修复法和稳定固化法等。

2.1.1 工程修复技术

工程修复技术又分为客土法和换土法,主要是通过放射性核素污染的搬运、覆盖填埋等手段,隔绝其接触地下水和植物,阻滞其进入生态圈的速率^[34]。客土法具有修复周期短,性能强等优点。但客土法工程量较大,投资高,仅限于污染浓度低、污染

范围较小的场地,并不能阻止污染物侵染地下水^[35]。

2.1.2 电动修复

电动修复技术是指是通过将电极插入土壤中,利用土壤中的电解质溶液形成电流,从而达到去除重金属及放射性核素污染的目的。电极必须是惰性材料且廉价,石墨、不锈钢、钛或导电塑料是合适的材料,从而有效去除土壤中重金属及放射性核素污染物^[36]。电动修复技术适用于小范围黏质污染土壤的修复,具有不扰动土层、简易方便和环保可再生等优势,主要影响因素为土壤中的导电介质、电荷数量、粒径、酸碱性、含水量及地下水位等^[37]。

2.1.3 热处理法

热处理法是指利用外界辅助方式加热土壤,导致土壤颗粒表面放射性污染物以晶体的形态进入土壤内部结构中,从而降低放射性物质的迁移性能和生物有效性。但热处理法在处理过程当中改变土壤理化性质,主要适用于土壤中含挥发性的污染物等,而重金属和放射性核素等效果不明显,且处理成本较高。

2.1.4 固化稳化法

固化稳化法通常分为固化和稳化,主要通过改变废物的物理和化学性质来减少其溶解度或化学反应性,通过将金属转化为不溶的沉淀,或通过金属离子与水泥水化产物(如钙矾石和硅酸钙)之间的相互作用(如吸附和离子替代)来实现的,以实现低危害化和低风险^[38]。但固化稳化法的主要缺陷表现为土壤结构发生改变,导致土壤肥力下降,且难以将放射性核素完全稳定,固定化的产物也无法应用于其他工业生产,修复成本较高。同时修复后产物中的放射性物质含量并未降低,修复效果持久性有待考究^[39]。

2.1.5 隔离修复法

土壤隔离指利用防渗材料将放射性污染土壤区域进行分割、隔离的一种物理方法,仅仅局限于暂时性的危害隔离和防治污染环境。如李鹏峰等^[40]运用熟石灰、坡缕石、细沙等按比例混合配置隔离层对某矿区重金属污染土壤进行隔离修复研究,研究表明,隔离层可有效降低其上植土层中种植作物内的汞、铅和镉等含量,且适当提高熟石灰含量可有效阻止污染因子向上迁移。

2.1.6 玻璃化修复

原位玻璃化修复技术是将石墨电极插入放射性土壤当中,将受污染的土壤加热至熔融后,再断开电极电流使土壤缓慢冷却,使放射性物质固定在玻璃

体中,最终形成玻璃态物质。曹骥等^[41]针对放射性岩棉进行玻璃固化参数优化,发现优化后配方工艺制备的玻璃体均匀性好,玻璃化程度高,表明放射性岩棉的玻璃固化工程应用的实用性。但玻璃化技术其成本高、土壤不能重复利用,仅适用于小面积污染土壤,且在实际应用中导电材料难以使土壤均匀熔融。

2.2 化学修复技术

2.2.1 化学清洗技术

土壤放射性核素污染程度较高时,特别是多重重金属污染时,会导致土壤质量的不可控变化,为此必须将受污染的土壤排除在农业用途限制之外,以免造成地下水污染的危险,其中较为适宜的修复技术为化学清洗修复技术。土壤化学清洗修复技术是一个物理或化学过程,旨在有效地去除高含量的多种重金属和放射性核素污染土壤。土壤清洗通常以物理分离、化学清洗、物理分离后化学清洗的方式进行^[42]。

国际上该技术目前研究较为成熟,但国内针对性的研究和实际生产相对不足。1994年,美国北卡罗来纳州海军陆战队勒琼营进行了土壤含水层修复示范项目,主要采用表面活性剂加强的原位土壤淋洗系统,土壤淋洗系统包括3个注射井、6个提取井和2个液压控制井。韩国研发的土壤清洗—电动去污设备是一种用于短时间内从大量土壤中去除铀且去除效率高的设备,由土壤清洗设备、电动分离设备和去除铀的废液处理设备组成。另外,废液处理设备由沉淀设备、浓缩设备和压滤机组成。

2.2.2 磁清洗技术

磁清洗技术是利用磁性纳米颗粒作为吸附剂材料去除放射性核素污染土壤中的铀、钍、镭等污染元素的处理方法。FAN等^[43]研究表明,利用磁性螯合基功能材料对土壤中重金属有较好的去除效果;翁仁贵等^[44]研究了球形磁性活性炭处理土壤含水率、磁性活性炭投加量和停留时间对土壤铅去除效率的影响,结果表明,磁性活性炭对模拟土壤中的铅吸附能力可达3.5 mg/g左右;BOENTE等^[45]研究表明,纳米零价铁结合高梯度磁分离能够将砷、铜、汞、铅、镉等重金属高效富集在有磁部分进而与土壤分离。上述研究工作表明,利用微纳米磁性功能材料可清洗土壤中重金属,对比化学清洗技术具有一定的优势,主要体现在(整体技术层面):易于实现与土壤分离,大幅减少铁、钙等元素流失,同时提高放射性核素的去除率,可反复使用,且容易再生,

进而降低成本,有利于实现铀的资源化利用,避免二次污染;但也有局限性(选用材料层面):土壤中伴生金属的相互作用机制不明确,选择性、稳定性、粒径分布范围等均可能存在特殊要求,土壤固液体系相比复杂于水环境,铀酰离子的竞争吸附性能影响清洗效率。

2.2.3 超声/微波加热法

超声/微波加热法是指利用超声波对污染物进行辅助处理,在这个过程中也会产生热能、物理机械能,这样会对污染物进行物理解析、沉淀以及化学氧化的作用,可以将污染物转化成小分子的化合物以方便去除。与传统化学淋洗技术相比,超声强化辅助可产生巨大空化、机械震荡及热效应,具有良好的改进性能,与传统淋洗相比具有较好的经济效益且省时高效^[46]。超声波能够通过积极地搅动溶液来破坏粒子,通过对液体或泥浆施加高强度和高频的声波,可以实现亲密的混合和强大的物理和化学反应,颗粒破坏暴露了新鲜的表面,从而使清洗剂能够穿透颗粒。

综上所述,国内外在超声波辅助淋洗方面进行大量研究,但大多应用于化工厂及水体领域,对象多为重金属和有机物,关于铀尾矿库周边放射性核素污染土壤超声强化淋洗的研究相对较少,该类技术相比其他手段,工艺更为简单成熟,对于实现产业转化而言,操作性和实用性更强。

2.3 生物修复技术

2.3.1 植物修复技术

植物修复法是指运用植物降解、提取或遏制土壤或水中的外源性物质^[47]。目前许多植物可用来修复放射性核素污染土壤,印度芥菜、向日葵、贝母、亚麻、蕨类等,其主要修复过程见图2。植物修复技术的优点在于其处理成本低、修复更便捷、能最大限度地降低污染物浓度、能够改善生态环境、美化环境;但也存在修复周期长、修复效果单一、深层土壤修复能力差等缺点。为此,许多学者在超富集植物筛选和植物提取强化等方面进行了大量研究,优化和完善植物修复技术。

2.3.2 微生物修复技术

土壤微生物指土壤中形体微小、结构简单的生物,主要包括细菌、真菌、藻类等,是土壤生命活体的主要组成部分^[48-49]。微生物修复技术利用土壤中的某些微生物与放射性重金属通过络合、螯合、氧化还原等化学反应,使放射性核素被氧化、还原、沉淀、价态转换等,从而降低土壤中重金属的毒性和生物

有效性。有研究表明,细菌表面含有的硫酸盐、氨基和羧基等官能团通过吸附作用,可去除放射性核素,真菌能够通过细胞内隔离和细胞外隔离作用,从环境中去除放射性核素,藻类可以有效地去除受污染水域中的放射性核素,失活藻细胞比活性藻细胞积聚更多的放射性核素。

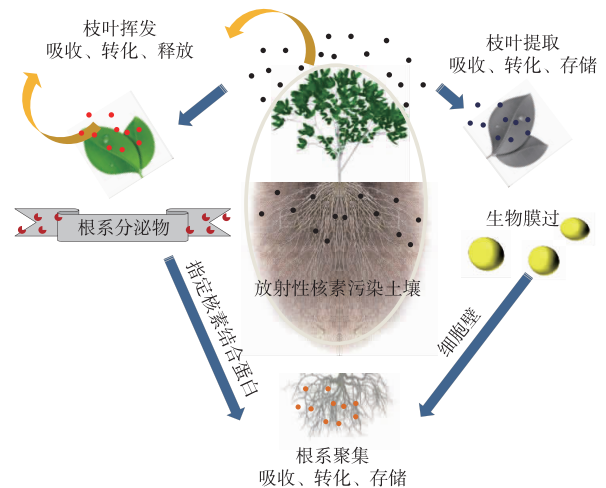


图2 植物修复过程

Fig. 2 Phytoremediation process

2.3.3 动物修复技术

动物修复主要是指动物在污染水体、土壤中生长活动时,对环境中污染物质进行富集从而起到修复土壤作用。目前针对放射性土壤动物修复技术中,研究最多的就是蚯蚓,蚯蚓可以通过摄食放射性土壤等方式^[50],对放射性核素进行累积,也可以和土壤中的重金属进行络合反应,改变重金属的存在形态,同时也可以促进植物修复过程中对重金属的吸收^[51]。但目前动物修复技术相对植物修复和微生物修复技术来说应用得比较少,主要原因在于动物修复技术虽然具备成本低、富集量高等特点,但在实际应用中生物体的控制相对比较复杂,对生长环境的要求也比较多,生物体内作用机制尚未明确,难以得到广泛应用。

3 问题与探讨

3.1 放射性污染土壤修复技术适宜性

对比国内外污染土壤修复技术的基本理论、研究方向和技术方法,目前针对铀矿区放射性污染土壤修复技术较常规重金属污染土壤修复技术相对落后,相关基础研究和应用基础研究主要借鉴重金属的处理方法,尤其放射性污染土壤的危害本就不同于重金属污染土壤,需要引起更多的关注。现行的

铀矿区放射性污染土壤修复技术分为物理修复技术、化学修复技术和生物修复技术三大类型,三种方法各有优缺点,针对的场地实际需求选择相应的修复手段,进而制定唯一的修复方案视为合理科学的前提条件。需要进一步了解更多的组合方式,来更好地了解联合修复技术的作用机制和途径,应当作为发展铀矿区放射性污染土壤修复技术的热门。

邹兆庄等^[52]通过建立矩阵进行计算,经层次分析可以看出采用化学方法对铀矿山污染场地进行修复要明显优于使用物理方法,适用于铀矿山污染场地的修复技术依次为:土壤清洗、堆浸去污、高梯度分离、原位玻璃固化;谢广智等^[53]制作了现有放射性污染土壤修复方法的综合评价矩阵,以期为相关工作的推进提供参考。通过场地污染程度、污染面积进而筛选较为合适的修复技术分类如表 2 所示。

表 2 放射性污染土壤修复技术适宜性
Table 2 Suitability of remediation technology for radioactive contaminated soil

场地污染程度		污染面积	适宜修复技术
较重	较小	异位土壤淋洗法或工程法	
较轻	较大	原位土壤淋洗、工程法和植物修复相结合	
极轻	巨大	植物修复为主,工程法配合	

综合所述,尽管目前尚未出现一种最优方法对放射性污染土壤进行修复,单一技术修复放射性土壤效果不十分理想,联合修复技术应用是必然选择。研究尺度逐步由实验室—中试—地块尺度—矿山,这种模式将是铀矿山放射性污染土壤发展的主要路线和途径,完善整体试验的作用机制和工艺包技术。地质学、生态学、农学、林学、环境科学、材料科学、公共卫生等多学科交叉研究是未来发展趋势。主要的治理模式应采取末端治理—清洁生产—绿色矿山为宜。

3.2 修复规范和修复效果评价标准

修复依据的判定和评价技术的导则作为科研工作者主要参考和衡量的标准,对制定修复方案计划和开展科研问题探讨起到至关重要的作用。目前我国已颁布多项国家土壤环境保护标准、有关核与辐射安全监督与执法的管理要求、铀矿冶环境辐射防护标准、核设施安全审评和行政审批流程等标准规范,但其中均不包含铀矿山放射性核素污染土壤的修复标准,故可见相关标准规范制定的问题亟待解决。

4 结语

尽管目前尚未出现一种最优方法对放射性污染

土壤进行修复,单一技术修复放射性土壤效果不十分理想,联合修复技术应用是必然选择,主要治理模式应采取末端治理—清洁生产—绿色矿山为宜。地质学、生态学、农学、林学、环境科学、材料科学、公共卫生等多学科交叉研究是未来发展趋势。同时,国家应抓紧铀矿山放射性核素污染土壤的修复规范和修复效果评价标准的制定与应用。

参考文献

[1] YAN L J, LE QUYET V, SONNE C, et al. Phytoremediation of radionuclides in soil, sediments and water[J]. Journal of Hazardous Materials, 2020, 407:124771. DOI:10.1016/j.jhazmat.2020.124771.

[2] MARTIN A, HASSAN-LONI Y, FICHTNER A, et al. An integrated approach combining soil profile, records and tree ring analysis to identify the origin of environmental contamination in a former uranium mine (Rophin, France) [J]. Science of the Total Environment, 2020, 747: 141295. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2020.141295.

[3] YIN M L, ZHOU Y T, TSANG D C W, et al. Emergent thallium exposure from uranium mill tailings[J]. Journal of Hazardous Materials, 2020, 407(1): 124402. DOI: 10.1016/j.jhazmat.2020.124402.

[4] TAYLOR S R. Trace element abundances and the chondritic earth model[J]. Pergamon, 1964, 28(12). [https://doi.org/10.1016/0016-7037\(64\)9014](https://doi.org/10.1016/0016-7037(64)9014).

[5] GONGALSKY K B. Impact of pollution caused by uranium production on soil macrofauna[J]. Environmental Monitoring and Assessment, 2003, 89(2):197-219.

[6] FERNANDO S, ELENA G P, ANTONIO M, et al. Concentration of uranium in the soils of the west of Spain[J]. Environmental Pollution, 2018, 236:1-11.

[7] 姚高扬, 华恩祥, 高柏, 等. 南方某铀尾矿区周边农田土壤中放射性核素的分布特征[J]. 生态与农村环境学报, 2015, 31(6):963-966.

YAO G Y, HUA E X, GAO B, et al. Distribution characteristics of radionuclides in farmland soil around a uranium tailings mine in southern China[J]. Journal of Ecology and Rural Environment, 2015, 31(6): 963-966.

[8] 刘平辉, 魏长帅, 张淑梅, 等. 华东某铀矿区水稻土放射性核素铀污染评价[J]. 土壤通报, 2014, 45(6): 1517-1521.

LIU P H, WEI C S, ZHANG S M, et al. Evaluation of radionuclide uranium pollution in paddy soil of a uranium mine area in East China[J]. Soil Bulletin,

- 2014,45(6):1517-1521.
- [9] PINTO M C, FERREIRA D, SILVA M, et al. Estimated background values maps of uranium in Santiago Island topsoil and stream sediments [J]. *Procedia Earth and Planetary Science*, 2014, 8: 23-27.
- [10] SUN Y, WU B, AMELUNG W, et al. Non-critical uranium accumulation in soils of German and Danish long-term fertilizer experiments [J]. *Geoderma*, 2020, 370: 114336. DOI: 10.1016/j.geoderma.2020.114336.
- [11] BIGALKE M, ULRICH A, REHMUS A, et al. Accumulation of cadmium and uranium in arable soils in Switzerland [J]. *Environmental Pollution*, 2017, 221: 85-93.
- [12] VODYANITSKII Y N. Chemical aspects of uranium behavior in soils: A review [J]. *Eurasian Soil Science*, 2011, 44(8): 862-873.
- [13] SAHOO S K, HOSODA M, KAMAGATA S, et al. Thorium, uranium and rare earth elements concentration in weathered Japanese soil samples [J]. *Nuclear Science and Technology*, 2011: 416-419.
- [14] BERN C R, WALTON-DAY K, NAFTZ D L. Improved enrichment factor calculations through principal component analysis: Examples from soils near breccia pipe uranium mines, Arizona, USA [J]. *Environmental Pollution*, 2019, 248: 90-100.
- [15] NEIVA A, CARVALHO P, ANTUNES I, et al. Contaminated water, stream sediments and soils close to the abandoned Pinhal do Souto uranium mine, central Portugal [J]. *Journal of Geochemical Exploration*, 2014, 136(1): 102-117.
- [16] SALMINEN P R. The distribution of uranium over Europe: geological and environmental significance [J]. *Applied Earth Science*, 2003, 112: 3.
- [17] XU N, WEI F S, TEN E J, et al. Evaluation of indigenous concentrations of uranium and thorium in soils of China [J]. *Communications in Soil Science and Plant Analysis*, 1993, 24: 15-16.
- [18] 敏玉. 世界铀矿开采现状及发展前景 [J]. *国土资源情报*, 2009(5): 27-31.
- MIN Y. Present situation and development prospect of uranium mining in the world [J]. *Land and Resources Information*, 2009(5): 27-31.
- [19] FOULKES M, MILLWARD G, HENDERSON S, et al. Bioaccessibility of U, Th and Pb in solid wastes and soils from an abandoned uranium mine [J]. *Journal of environmental radioactivity*, 2017, 173: 85-96.
- [20] HARIBALA, HU B T, WANG C G, et al. Assessment of radioactive materials and heavy metals in the surface soil around uranium mining area of Tongliao, China [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2016, 130: 185-192.
- [21] JORGE H P, CARLOS E E, AMAURI A M, et al. In situ speciation of uranium in treated acid mine drainage using the diffusion gradients in thin films technique (DGT) [J]. *Chemosphere*, 2017, 169(1): 249-256.
- [22] 吴沅陶, 孟晋, 陈梅安, 等. 铀矿堆浸工艺中助渗剂应用的研究 [J]. *铀矿冶*, 2007, 26(2): 72-78.
- WU Y T, MENG J, CHEN M A, et al. Study on permeation-promoter application in heap leaching process of uranium ores [J]. *Uranium Mining and Metallurgy*, 2007, 26(2): 72-78.
- [23] 刘娟, 李红春, 王津, 等. 华南某铀矿开采利用对地表水环境质量的影响 [J]. *环境化学*, 2012, 31(7): 981-989.
- LIU J, LI H C, WANG J, et al. Influence of uranium mining and utilization on surface water environmental quality in South China [J]. *Journal of Environmental Chemistry*, 2012, 31(7): 981-989.
- [24] GAO N, HUANG Z, LIU H, et al. Advances on the toxicity of uranium to different organisms [J]. *Chemosphere*, 2019, 237: 124548. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2019.124548.
- [25] RINKLEBE J, SHAHEEN S M, EL-NAGGAR A, et al. Redox-induced mobilization of Ag, Sb, Sn, and Tl in the dissolved, colloidal and solid phase of a biochar-treated and un-treated mining soil [J]. *Environment International*, 2020, 140: 105754. DOI: 10.1016/j.envint.2020.105754. DOI: 10.1016/j.envint.2020.105754.
- [26] RINKLEBE J, SHAHEEN S M. Redox chemistry of nickel in soils and sediments: A review [J]. *Chemosphere*, 2017, 179: 265-278.
- [27] SHAHEEN S M, ALESSI D S, TACK F M G, et al. Redox chemistry of vanadium in soils and sediments: Interactions with colloidal materials, mobilization, speciation, and relevant environmental implications: A review [J]. *Advances in Colloid and Interface Science*, 2019, 265: 1-13.
- [28] SELVAKUMAR R, RAMADOSS G, MENON M P, et al. Challenges and complexities in remediation of uranium contaminated soils: A review [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2018, 192: 592-603.
- [29] 鲁霞. 环境微生物与铀和汞的相互作用和机理 [D]. 兰州: 兰州大学, 2016.
- LU X. Interaction and mechanism of environmental microbes with uranium and mercury [D]. Lanzhou: Lanzhou University, 2016.

- [30] 刘小红. 异化铁还原对 *Shewanella oneidensis* MR-1 降解磺胺类抗生素和还原 Cr(VI) 的影响[D]. 合肥: 安徽农业大学, 2018.
- LIU X H. Effect of dissimilated iron reduction on degradation of sulfonamides and reduction of Cr(VI) by *Shewanella oneidensis* MR-1 [D]. Hefei: Anhui Agricultural University, 2018.
- [31] BANALA U K, INDRADYUMNA D N P, TOLETI S R. Uranium sequestration abilities of *Bacillus bacterium* isolated from an alkaline mining region[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2021, 411: 125053. DOI: 10. 1016/j. jhazmat. 2021. 125053.
- [32] CUMBERLAND S A, DOUGLAS G, GRICE K, et al. Uranium mobility in organic matter-rich sediments: A review of geological and geochemical processes [J]. *Earth-Science Reviews*, 2016, 159: 160-185.
- [33] CHEN L, LIU J R, ZHANG W X, et al. Uranium(U) source, speciation, uptake, toxicity and bioremediation strategies in soil-plant system: A review[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2021, 413. DOI: 10. 1016/j. jhazmat. 2021. 125319.
- [34] 串丽敏, 赵同科, 郑怀国, 等. 土壤重金属污染修复技术研究进展[J]. *环境科学与技术*, 2014, 37(增刊 2): 213-222.
- CHUAN L M, ZHAO T K, ZHENG H G, et al. Research progress on remediation technology of heavy metal pollution in soil[J]. *Environmental Science and Technology*, 2014, 37(S2): 213-222.
- [35] 张淑娟. 镉铅污染钙质土化学淋洗修复研究[D]. 长沙: 中南大学, 2013.
- ZHANG S J. Study on chemical leaching remediation of calcareous soil polluted by cadmium and lead [D]. Changsha: Central South University, 2013.
- [36] 储陆平, 周书葵, 荣丽杉, 等. 电动修复重金属污染土壤的研究进展[J]. *应用化工*, 2020, 49(11): 2853-2858.
- CHU L P, ZHOU S K, RONG L S, et al. Research progress of electro-remediation of heavy metal contaminated soil[J]. *Applied Chemical Engineering*, 2020, 49(11): 2853-2858.
- [37] 李智东. nZVI/nHAP 复合材料固定铀尾矿库区土壤中铀(VI)的机理研究[D]. 湖南 衡阳: 南华大学, 2019.
- LI Z D. Study on the mechanism of fixing uranium(VI) in soil of uranium tailings pond area with nZVI/nHAP composite material[D]. Hengyang: Nanhua University, 2019.
- [38] 王锋, 张顺力, 王宏杰, 等. 河道污染底泥重金属稳定化药剂研究进展[J]. *净水技术*, 2020, 39(7): 92-100.
- WANG F, ZHANG S L, WANG H J, et al. Research progress of stabilizing agents for heavy metals in river polluted sediment[J]. *Water Purification Technology*, 2020, 39(7): 92-100.
- [39] 刘仕业, 岳昌盛, 彭彝, 等. 铬污染毒性土壤清洁修复研究进展与综合评价[J]. *工程科学学报*, 2018, 40(11): 1275-1287.
- LIU S Y, YUE C S, PENG B, et al. Research progress on remediation technologies of chromium-contaminated soil: A review [J]. *Chinese Journal of Engineering*, 2018, 40(11): 1275-1287.
- [40] 李鹏锋, 王曙光. 矿区重金属复合污染土壤隔离修复实验研究[J]. *西部大开发(土地开发工程研究)*, 2019, 4(8): 29-35.
- LI P F, WANG S G. Experimental study on isolation and remediation of soil contaminated by heavy metals in mining area [J]. *Western Development (Land Development Engineering Research)*, 2019, 4(8): 29-35.
- [41] 曹骥, 陈云明, 张劲松, 等. 放射性岩棉玻璃固化过程中的关键工艺参数[J]. *核化学与放射化学*, 2017, 39(6): 437-441.
- CAO Q, CHEN Y M, ZHANG J S, et al. Key technological parameters in the curing process of radioactive rock wool glass[J]. *Nuclear Chemistry and Radiochemistry*, 2017, 39(6): 437-441.
- [42] 沈威, 高柏, 章艳红, 等. 化学淋洗法对铀污染土壤的修复效果研究[J]. *有色金属(冶炼部分)*, 2019(11): 81-86.
- SHEN W, GAO B, ZHANG Y H, et al. Study on remediation effect of uranium contaminated soil by chemical elution [J]. *Nonferrous Metals (Extractive Metallurgy)*, 2019(11): 81-86.
- [43] FAN L R, SONG J Q, BAI W B, et al. Chelating capture and magnetic removal of non-magnetic heavy metal substances from soil [J]. *Scientific Reports*, 2016, 6. DOI: 10. 1038/srep21027.
- [44] 翁仁贵, 刘惠萍. 球形磁性活性炭制备及对土壤重金属 Pb 的吸附研究[J]. *安全与环境学报*, 2016, 16(5): 285-289.
- WENG R G, LIU H P. Preparation of spherical magnetic activated carbon and its adsorption of Pb in soil[J]. *Chinese Journal of Safety and Environment*, 2016, 16(5): 285-289.
- [45] BOENTE C, SIERRA C, MARTINEZ-BLANCO D, et al. Nanoscale zero-valent iron-assisted soil washing for the removal of potentially toxic elements [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2018, 350: 55-65.
- [46] LIAO T Q, FENG T Y, LI J, et al. Pilot-scale removal

- of uranium from uranium plant wastewater using industrial iron powder in the ultrasonic field[J]. *Annals of Nuclear Energy*, 2021, 150:107876. DOI:10.1016/j.anucene.2020.107876.
- [47] SHARMA P, PANDEY A K, UDAYAN A, et al. Role of microbial community and metal-binding proteins in phytoremediation of heavy metals from industrial wastewater [J]. *Bioresource Technology*, 2021 (7): 124750. DOI:10.1016/j.biortech.2021.124750.
- [48] 张紫彦, 葛高飞. 土壤微生物响应和修复铅污染研究进展[C]//中国环境科学学会. 2020 中国环境科学学会科学技术年会论文集(第三卷), 南京, 2020.
- ZHANG Z Y, GE G F. Research progress of soil microbial response and remediation of lead pollution[C]//Chinese Society of Environmental Sciences. 2020 Science and Technology Annual Meeting of Chinese Society of Environmental Sciences: Volume 3, Nanjing, 2020.
- [49] 张仕奇, 杨洪英, 佟琳琳, 等. 硫化矿细菌浸出机理及协同作用研究现状[J]. *有色金属(冶炼部分)*, 2021(4): 1-10.
- ZHANG S Q, YANG H Y, TONG L L, et al. Research status of bacterial leaching mechanism and synergy of sulfide ore[J]. *Nonferrous Metals(Extractive Metallurgy)*, 2021(4):1-10.
- [50] 史岩, 斯琴图雅, 赵弘韬. 蚯蚓在放射性土壤修复中的应用研究进展[J]. *辐射研究与辐射工艺学报*, 2020, 38(4):17-26.
- SHI Y, SIQIN T Y, ZHAO H T. Research progress of application of earthworms in radioactive soil remediation[J]. *Journal of Radiation Research and Radiation Technology*, 2020, 38(4):17-26.
- [51] 黎昀昀. 土壤微生物对镉的吸附特性研究[D]. 北京: 中国矿业大学, 2019.
- LI Y Y. Study on the adsorption characteristics of cadmium by soil microorganisms [D]. Beijing: China University of Mining and Technology, 2019.
- [52] 邹兆庄. 铀矿山放射性污染场地修复技术方法研究[D]. 北京: 核工业北京地质研究院, 2015.
- ZOU Z Z. Study on remediation technology of radioactive contaminated sites in uranium mines [D]. Beijing: Beijing Institute of Geology, Nuclear Industry, 2015.
- [53] 谢广智, 骆枫, 林力, 等. 放射性污染土壤修复方法概述及评价[J]. *四川环境*, 2018, 37(1):164-168.
- XIE G Z, LUO F, LIN L, et al. Overview and evaluation of remediation methods for radioactive contaminated soil [J]. *Sichuan Environment*, 2018, 37(1):164-168.