

# 微生物膜反应器修复地浸采铀退役采区地下水

王贤磊 孙玉素 王燕 罗丹 陈洪

重庆资源与环境保护职业学院

DOI:10.12238/eep.v7i8.2201

**[摘要]** 酸性强、硝酸盐以及铀离子浓度超标一直是酸法地浸采铀退役采区地下水存在的问题,因此需要对其进行合理解决。基于此,本文以西北某地浸采铀退役采区地下水为研究对象,先采用氧化钙中和法去除铀,然后添加不同碳源,再构建琼氏不动杆菌厌氧微生物膜反应器,探究碳源与进水流速去除 $\text{NO}_3^-$ 的影响。试验结果表明:中和每升地下水需0.167g,pH由3.0调至7.0左右,铀从0.4mg/L降至0.05mg/L(达到排放标准);中和处理后的地下水再经微生物膜反应器处理,乙醇为碳源,进水速度为1.0mL/min时,对 $\text{NO}_3^-$ 去除率达到最高,为99.48%。

**[关键词]** 地浸采铀;地下水;微生物膜反应器;琼氏不动杆菌; $\text{NO}_3^-$

中图分类号: X523 文献标识码: A

## Remediation of groundwater in acid in-situ leaching uranium mining area by microbial membrane reactor

Xianlei Wang Yusu Sun Yan Wang Dan Luo Hong Chen

Chongqing Vocational College of Resources and Environmental Protection

**[Abstract]** Strong acidity, nitrates, and excessive uranium ion concentrations have been problems with groundwater in the decommissioned mining areas of acidic ground leach uranium extraction and need to be addressed. Taking the groundwater in the decommissioning mining area of leach mining uranium in a place in Northwest China as the research object, the calcium oxide neutralization method was used to remove uranium, and then different carbon sources were added, and then an anaerobic microbial membrane reactor of *Acinetobacter junii* was constructed to investigate the effects of carbon sources and influent flow rate on  $\text{NO}_3^-$  removal. The test results showed that: 0.167g per liter of groundwater was needed for neutralization, pH was adjusted from 3.0 to about 7.0, and uranium was reduced from 0.4mg/L to 0.05mg/L (to meet the discharge standard); the neutralized treated groundwater was then treated in a microbial membrane reactor, with ethanol as the carbon source, and the highest  $\text{NO}_3^-$  removal rate of 99.48% was achieved at an inlet rate of 1.0mL/min.

**[Key words]** In situ leach uranium mining; groundwater; microbial membrane reactor; *Acinetobacter junii*;  $\text{NO}_3^-$

### 前言

酸法地浸采铀技术因其浸出效率高、浸出周期短等优势,曾是我国早期天然铀生产的主要技术<sup>[1]</sup>,该技术用硫酸浸出工艺,同时浸出液回收铀工艺中用硝酸淋洗,最后尾液用来配制溶液液,因此,退役后的采区地下水呈现出强酸性和强氧化性的厌氧环境,其中 $\text{NO}_3^-$ 、U(VI)及其他重金属离子污染问题严重<sup>[2]</sup>。若不对退役采区的地下水进行有效治理,将对周边的生态环境以及居民的生命健康构成严重威胁。因此,修复酸性地浸采铀退役采区的地下水污染问题成为一个亟待解决的挑战。

许多学者针对以上问题采用不同技术方法来修复,例如:抽出-再治理技术、自然净化修复技术、渗透反应墙技术等,优

点是易操作、设备少,缺点是无针对性且有造成次级污染等麻烦<sup>[3]</sup>;针对上述 $\text{NO}_3^-$ 的问题,一些学者采用多种方法进行修复,包含电渗析、离子交换等技术手段,优点是效果好,缺点是运行成本高且造成二次污染等问题,一些学者采用无次级污染且经济高效的微生物反硝化法去除 $\text{NO}_3^-$ 的方法,微生物反硝化包括自养反硝化和异养反硝化<sup>[4]</sup>,添加碳源的异养反硝化法较不添加碳源的自养反硝化具有高效的优点得到应用。

本研究先采用氧化钙中和去除地下水中的铀,再采用上流式厌氧微生物膜反应器去除地下水中的 $\text{NO}_3^-$ ,探讨了不同碳源与进水流速对 $\text{NO}_3^-$ 去除效果的影响。

### 1 材料与方法

1.1材料

(1)本实验菌种来自中国普通微生物菌种保藏中心, 菌种名称为琼氏不动杆菌, 英文名为Acinetobacter junii, 为兼性厌氧菌。

(2)研究对象为新疆某矿山酸法地浸采铀矿山退役采区地下水; 碳源有乙醇、葡萄糖、乙酸钠; 使用的仪器有ICP-MS、pH计、SEM等。

1.2方法

1.2.1中和

量取3 L摇匀的原始地下水于烧杯中, 向烧杯中少量多次加入氧化钙, 在磁力搅拌器和多功能测定仪下, 将地下水pH值至约7.0, 得到每升地下水所需氧化钙质量。将调节后的地下水用保鲜膜封口并静置24h, 再次检测pH值, 并记录, 然后进行抽滤, 保留滤液用于后续实验。

1.2.2配置COD

实验采用微生物异养反硝化的方法, 将2.2.1得到的滤液分为3组, 葡萄糖、乙醇和乙酸钠分别加入到一组滤液中, 葡萄糖、乙醇、乙酸钠以PTT、YC、YSN符号表示, 琼氏不动杆菌处理地下水, COD设置为380mg/L。

1.2.3微生物膜反应器修复

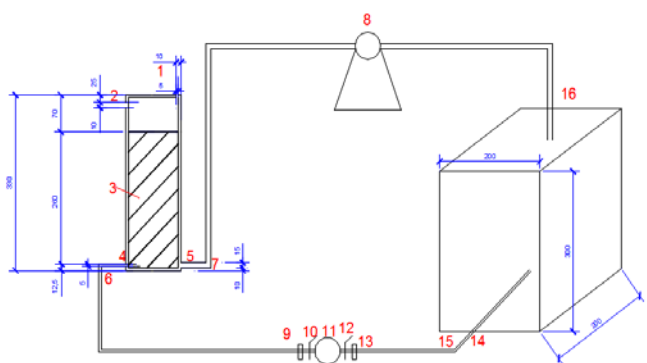


图1 实验装置图

1-排气口; 2-排水口; 3-重质陶粒; 4、14-进气口; 5-进水口; 6、7、15-连接头; 8-蠕动泵; 9、13-气体流量计; 10、12-阀门; 11-氮气; 16-10mm管孔

(1)实验装置如图1所示。左右两个容器的制作材料均为有机玻璃, 左边是内径100mm, 高330mm, 有效溶剂约1.3L, 内部装有高约260mm陶粒的圆柱形膜微生物反应器。

(2)挂膜及运行。将培养5h ( $OD_{600}=0.6-1.0$ ) 130mL的琼氏不动杆菌菌液与营养液(培养基)接种到膜生物反应器中,  $N_2$ 流量参数设置为10L/h, 24h, 再静置24h后排空, 重复以上过程2次, 再连续通入2.2.2所得地下水进行实验。

1.2.4分析方法

多功能参数测定仪检测pH值; COD用COD快速测定仪检测;  $NO_3^-$ 用离子色谱检测; 铀用ICP-MS检测。

2 结果与讨论

2.1地下水理化性质

表1 中和处理前后理化性质分析

| 成分  | pH值               | $\rho$ (U) (mg/L) | $\rho$ ( $Ca^{2+}$ ) (mg/L) | $\rho$ ( $Mg^{2+}$ ) (mg/L) | $\rho$ ( $Zn^{2+}$ ) (mg/L) | $\rho$ ( $Mn^{2+}$ ) (mg/L) | $\rho$ ( $Fe^{2+}$ ) (mg/L) | $\rho$ ( $NO_3^-$ ) (mg/L) | $\rho$ ( $SO_4^{2-}$ ) (mg/L) | $\rho$ (COD) (mg/L) |
|-----|-------------------|-------------------|-----------------------------|-----------------------------|-----------------------------|-----------------------------|-----------------------------|----------------------------|-------------------------------|---------------------|
| 原水  | 2.95<br>$\pm 0.5$ | 0.4               | 137                         | 52.8                        | 0.892                       | 1.361                       | 0.382                       | 82.1                       | 1349.2                        | 24.442              |
| 中和后 | 7.0<br>$\pm 0.5$  | <0.05             | 210                         | 48.9                        | 0.376                       | 1.16                        | 0.15                        | 80.1                       | 840.3                         | 23.431              |
| 配置后 | 7.0<br>$\pm 0.5$  | 0.04              | 210.2                       | 48.9                        | 0.376                       | 1.16                        | 0.15                        | 80.1                       | 840.3                         | 379.5               |

如表1所示, 氧化钙中和处理后, 地下水pH值约3.0调至约7.0, 在此条件下, 铀在非强酸性条件下形成沉淀, 浓度低于0.05mg/L, 此外,  $SO_4^{2-}$ 与钙、镁、铁、锰等离子由于pH值升高溶解度降低而析出产生沉淀。

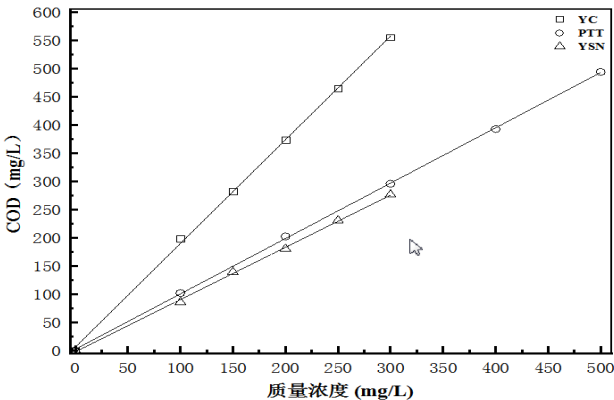


图2 碳源质量浓度与COD浓度的线性关系

2.2 COD浓度的配置

不同碳源质量浓度与COD关系, 如图2所示, COD设置为380mg/L, 所需碳源质量由图2计算得出, 配置前后的地下水的理化性质如表1所示。  $NO_3^-$  的浓度几乎不变, 需对地下水中  $NO_3^-$  进行微生物还原处理。

2.3  $NO_3^-$  浓度变化

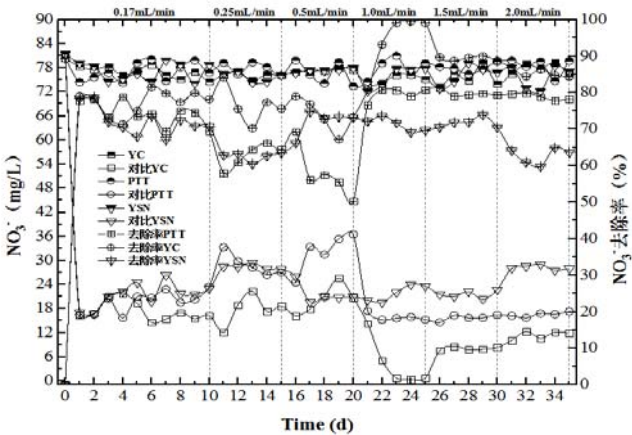


图3 膜生物反应器出水口 $NO_3^-$ 浓度变化

如图3所示, 地下水中 $\text{NO}_3^-$ 浓度约80mg/L, 在厌氧环境中, 琼氏不动杆菌以 $\text{NO}_3^-$ 为电子受体,  $\text{NO}_3^-$ 浓度变化。 $\text{NO}_3^-$ 浓度均出现上下波动的变化趋势, 其波动范围在72–81mg/L, 导致 $\text{NO}_3^-$ 浓度小幅度降低的原因可能是陶粒对 $\text{NO}_3^-$ 的吸附作用。由图3的反硝化实验可知, 在0–20d, 进水流速为0.17–0.5mL/min, 由于陶粒表面附着的生物膜较薄, 抗压力较小, 随着进水流速增加, 其结构易被破坏, 导致 $\text{NO}_3^-$ 浓度波动较大。挂膜时间和进水流速的增加, 陶粒表面附着的生物增厚, 膜结构越牢固, 在运行流速为1.0–2.0mL/min, 使出水 $\text{NO}_3^-$ 浓度较为稳定: 实验样PTT的 $\text{NO}_3^-$ 去除率在77%–81%, 实验样YC的 $\text{NO}_3^-$ 去除率在81%–99%, 实验样YSN的 $\text{NO}_3^-$ 去除率在60%–74%。

### 3 结论

(1) 每升地下水经0.167gCaO中和处理后, 铀由0.4mg/L降至0.05mg/L—达到铀排放标准, 此外, 其pH值由3.0调至7.0左右, 在此pH环境中, 琼氏不动杆菌可以去除 $\text{NO}_3^-$ 。

(2) 乙醇、葡萄糖、乙酸钠3种碳源对琼氏不动杆菌去除 $\text{NO}_3^-$ 均有良好的效果; 其中乙醇的效果最佳, 进水流速为1.0mL/min, 对琼氏不动杆菌对 $\text{NO}_3^-$ 的去除率达到99.48%。

### [参考文献]

[1] Zhou Y, Li G, Xu L, et al. Uranium recovery from sandstone-type uranium deposit by acid in-situ leaching—an example from the Kujieertai[J]. Hydrometallurgy, 2019, 191: 105209.

[2] 王聂颖, 张辉, 隋阳, 等. *Aspergillus tubingensis*介导植酸盐水解促进U(VI)- $\text{PO}_4^{3-}$ 生物矿化[J]. 中国环境科学, 2019, 39(05): 2161–2169.

[3] Luo X X, Peng C Y, Shao P H, et al. Enhancing nitrate removal from wastewater by integrating heterotrophic and autotrophic denitrification coupled manganese oxidation process (IHAD-MnO): Internal carbon utilization performance[J]. Environmental Research, 2021, 194: 110744.

[4] Vandekerckhove T G L, Boon N, Vlaeminck S E, et al. Pioneering on single-sludge nitrification/denitrification at 50 °C[J]. Chemosphere, 2020, 252: 126527.

### 作者简介:

王贤磊(1998—), 男, 汉族, 重庆大足人, 研究生, 研究方向: 辐射防护与环境保护。