

ДЕЗАКТИВАЦИЯ ГРУНТА, ЗАГРЯЗНЕННОГО УРАНОМ, С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ МЕТОДА ГИДРОСЕПАРАЦИИ С ПОСЛЕДУЮЩЕЙ РЕАГЕНТНОЙ ОБРАБОТКОЙ ФРАКЦИЙ

А. П. Варлаков¹, А. В. Германов¹, М. А. Маряхин¹, Г. А. Варлакова¹,
С. Н. Калмыков², В. Г. Петров², И. Э. Власова², А. Ю. Романчук²

¹АО «Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов имени академика А. А. Бочвара», Москва

²МГУ имени М. В. Ломоносова, Москва

Статья поступила в редакцию 10 июля 2019 г.

В статье изложены результаты разработки и испытания технологии дезактивации радиоактивно загрязненных грунтов АО «АЭХК» от урана, относящихся к категории ОНАО, образование которых ожидается при выводе из эксплуатации сублиматного производства. Представлены этапы испытаний технологии дезактивации радиоактивно загрязненного грунта на лабораторном стенде с использованием способа гидросепарации с последующей обработкой целевой фракции растворами реагентов. Результаты испытаний будут использованы для разработки установки очистки радиоактивно загрязненных грунтов АО «АЭХК» категории ОНАО.

Ключевые слова: радиоактивно загрязненный грунт, радиоактивные отходы, гидросепарация, реагентная обработка, целевая фракция, мелкодисперсная фракция, песчаная фракция, лабораторный стенд, коэффициент очистки.

После длительного функционирования объектов использования атомной энергии пришло время вывода их из эксплуатации. В АО «АЭХК», а также на других предприятиях атомной отрасли планируется вывод из эксплуатации (ВЭ) различных ядерно и радиационно опасных объектов (ЯРОО). Как правило, в результате реализации этих проектов появляются территории, площадки, требующие реабилитации. Например, специалисты АО «АЭХК» при демонтаже зданий и сооружений прогнозируют образование вторичных радиоактивных отходов в виде грунта в количестве до 100 тыс. м³ [1], в том числе потенциально загрязненного радионуклидами урана грунта категории ОНАО — до 30 тыс. м³. Исходя из этого, в АО «АЭХК» рассматривают возможности сокращения объема радиоактивно загрязненного грунта путем его

дезактивации с применением наиболее эффективной технологии.

Схожая задача была решена в АО «ВНИИНМ», где для сокращения объема радиоактивно загрязненных грунтов (РЗГ) создана и прошла опытно-промышленные испытания установка дезактивации грунта методом гидросепарации производительностью до 1 000 кг/ч [2–4]. С целью оценки эффективности технологии для дезактивации грунта площадки сублиматного производства (СП) АО «АЭХК» проведены испытания установки АО «ВНИИНМ» на партии грунта объемом около 15 м³ из АО «АЭХК», загрязненного ураном [2]. Эти испытания показали как работоспособность технологии — объем РЗГ был сокращен в 3,6 раза, так и более низкую эффективность в отношении грунта, загрязненного ураном.

По сравнению с данными по очистке от цезия-137 радиоактивно загрязненных грунтов АО «ВНИИНМ» показатели по коэффициентам очистки и сокращения объема оказались ниже, что обусловлено отличием физико-химического состояния радионуклидов в грунте СП АО «АЭХК».

В настоящей статье приводятся решения и результаты по совершенствованию технологии дезактивации грунта.

Испытание технологии дезактивации грунта категории ОНАО методом гидросепарации на лабораторном стенде

Для определения технологических параметров дезактивации грунта СП АО «АЭХК» категории ОНАО методом гидросепарации и оценки доли материала, не освобождаемого из-под радиационного контроля и после дезактивации, использовался лабораторный стенд, детальное описание которого представлено в [2]. Испытания проводились на партии грунта категории ОНАО, объем — около 40 дм³, радиоактивное загрязнение обусловлено изотопами урана-234, -235, -238.

Способом гидросепарации выделены фракции песка мелкодисперсного (0,1–0,7 мм) и крупнодисперсного (0,7–3,0 мм), фракции гравия (3–8 мм и более 8 мм), фрагменты растительного происхождения различного размера, как мелкодисперсной фракции (до 0,1 мм) и оборотная вода (рис. 1).

Объем исходного грунта, относящегося к ОНАО, с суммарной удельной активностью по урану 15,8 Бк/г в результате его дезактивации сократился. Как видно на диаграмме, в результате гидросепарации выделены фракции, по активности соответствующие ОНАО (как мелкодисперсной фракции (47 Бк/г) и растительные остатки (83 Бк/г)) в количестве 30% от исходного грунта. Таким образом, коэффициент сокращения объема ОНАО составил 3,4.

Результаты измерения удельной активности фракций гравия (2,6–8,4 Бк/г) и песка (3,7–5,5 Бк/г) свидетельствуют, что данные

материалы не относятся к РАО, но обращение с такими материалами ограничено в соответствии с ОСПОРБ-99/2010. В итоге, общий коэффициент очистки грунта ОНАО равен 3,6.

Доля фракции мелкодисперсного песка наиболее многочисленная — около 40%. Данная фракция была принята как целевая, подлежащая реагентной обработке для достижения более высокого коэффициента очистки грунта от радионуклидов.

В результате предварительных испытаний процесса дезактивации грунта, загрязненного радионуклидами урана, решено в технологическую цепочку ввести стадию реагентной обработки целевой фракции грунта СП АО «АЭХК».

Исследование физико-химического состояния радионуклидов во фракциях грунта. Определение режимов реагентной обработки целевой фракции

Форма нахождения радионуклидов в грунте является одним из факторов, который учитывался при разработке процесса реагентной обработки. Следует сказать, что в исследуемом грунте загрязнитель уран распределен крайне неравномерно.

Исследования методом последовательного выщелачивания показали [5], что уран во фракциях грунта находится как в легкоизвлекаемых (обменная и карбонатная формы, 50–70%), так и в трудноизвлекаемых формах (Fe/Mn оксиды, органическая и нерастворимая) в количестве, пропорциональном их удельной активности (рис. 2). Причем уран, связанный с более мобильной из последних трех форм, соответствующей Fe/Mn оксидам, составляет около 30% от общего содержания урана в образце грунта.

Прослеживается связь между содержанием урана во фракциях и минеральным и химическим составом фракций. В частности, в целевой фракции заметна корреляция между содержанием железа и долей урана в форме Fe/Mn оксидов. Низкому содержанию железа соответствует невысокая

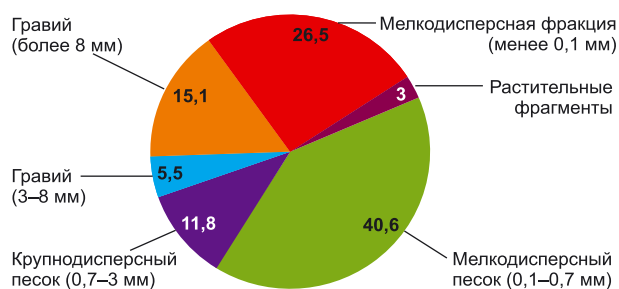


Рис. 1. Доли выделенных фракций после дезактивации грунта категории ОНАО

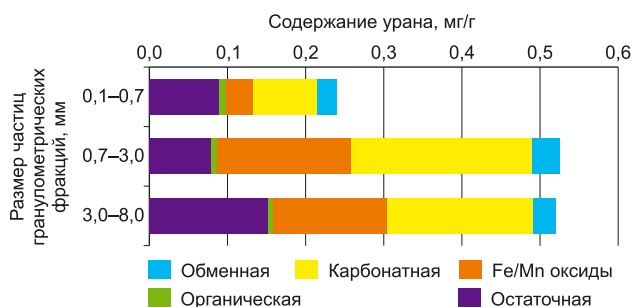


Рис. 2. Распределение форм нахождения урана по фракциям грунта

концентрация урана в форме Fe/Mn оксидов. Различным содержанием кальцита объясняется неравномерное распределение урана в форме, связанной с карбонатами. В отработанных реагентных растворах наблюдается корреляция между извлеченными из грунта гуминовыми веществами и ураном.

По данным спектроскопии рентгеновского поглощения (XANES/EXAFS) уран в исследованных пробах грунта находится в форме шестивалентного урана в виде катиона UO_2^{2+} . Известно, что шестивалентная форма урана является мобильной, способна образовывать комплексы, например, с карбонат- и сульфат-ионами, различными органическими комплексами. Это позволило предположить, что уран может быть извлечен из грунта путем обработки растворами простых и дешевых реагентов.

В результате сравнительных тестов по реагентной обработке целевой фракции растворами карбоната натрия, серной и азотной кислот, ЭДТА и дистиллированной водой определены технологические режимы стадии реагентной обработки, которые заключаются в последовательном перемешивании в течение 0,5–3 часов целевой фракции в растворе карбоната натрия и серной кислоты при содержании твердой фазы в растворах 20–50 % (масс.).

На основании результатов [5] исследования физико-химического состояния радионуклидов в целевой фракции грунта, выделенной в процессе гидросепарации, результатов по тестированию реагентов для обработки фракции грунта разработана стадия реагентной обработки и создан блок реагентной обработки лабораторного стенда (рис. 3). При разработке стадии реагентной обработки учитывались следующие требования:

- простота аппаратного оформления;
- возможность многократного использования растворов реагентов;
- минимальный объем вторичных отходов;
- безопасность реагентов для персонала и окружающей среды;
- низкая стоимость и минимальный расход реагентов. В состав блока реагентной обработки входят следующие узлы и оборудование:
- дозатор раствора реагентов;
- реактор с мешалкой для обработки грунта раствором реагента;
- емкости для накопления раствора реагентов и их регенерации соосаждением;
- узел разделения и промывки целевой фракции после обработки реагентами;
- узел вакуумного фильтрования для обезвоживания осадка после регенерации растворов реагентов.

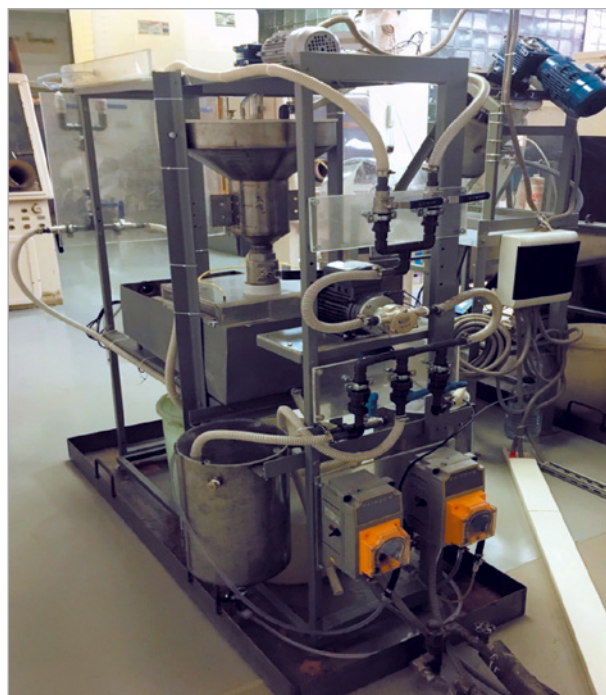


Рис. 3. Общий вид блока реагентной обработки лабораторного стенда

Таким образом, в блоке реагентной обработки проводятся операции по:

- приготовлению раствора реагента;
- обработке целевой фракции при перемешивании;
- отделению отработанного реагентного раствора;
- промывке фракции водой после обработки;
- осаждению примесей из отработанного раствора суспензией гидроксида кальция;
- приготовлению новых растворов на основе промывной воды и нейтрализованных растворов;
- отделению, сгущению, обезвоживанию осадка.

Испытание технологии деактивации с реагентной обработкой на лабораторном стенде

На лабораторном стенде проводились испытания стадии реагентной обработки целевой фракции грунта с целью уточнения и корректировки технологических режимов стадии. Отработка технологических режимов проводилась с использованием 20 проб целевой фракции, по 2 кг каждая, путем варьирования параметров:

- концентрации карбоната натрия в растворе от 5,2 до 21 г/л;
- концентрации серной кислоты в растворе от 5 до 25 г/л;
- времени обработки раствором карбоната натрия от 0,5 до 3 часов;
- времени обработки раствором серной кислоты от 0,5 до 3 часов;

Переработка, кондиционирование и транспортирование РАО

- количества циклов «обработка — регенерация раствора».

На рис. 4 показаны моменты обработки целевой фракции растворами карбоната натрия и серной кислоты путем перемешивания (рис. 4а, в) и отделения целевой фракции от отработанного раствора (рис. 4б, г).

В процессе реагентной обработки целевой фракции, загрязненной радионуклидами урана, образуются:

- кеки осадка, состоящего из мелкодисперсной фракции, отделяющейся после раствора карбоната натрия, осадка сульфата кальция, образовавшегося при взаимодействии песка с раствором серной кислоты, и смеси гидроксидов металлов и соединений урана после осаждения в щелочной среде;
- очищенная от радионуклидов и промытая водой песчаная фракция с суммарной удельной активностью урана менее 300 Бк/кг;
- отработанный нейтрализованный солевой раствор (10–20 г/л) с низкой удельной активностью урана в количестве равном массе очищенной фракции песка;
- промывные воды в количестве равном массе очищенной фракции песка.

В результате сравнительного анализа коэффициентов очистки целевой фракции грунта,

полученных при разных технологических режимах, благодаря которым удается добиться показателей по суммарной удельной активности урана ниже 300 Бк/кг, определены их оптимальные параметры:

- последовательная обработка в течение 0,5 часа песчаной фракции грунта с содержанием 50% масс. раствором карбоната натрия с концентрацией 5,2 г/л и серной кислоты с концентрацией 12,3 г/л;
- способ регенерации растворов реагентов — осаживание извлеченных радионуклидов урана гидроксидом кальция, отделение образовавшегося осадка и восстановление концентрации реагента в растворе (количество регенераций — не более четырех);
- многократное (до четырех раз) использование растворов реагентов после регенерации осаживанием гидроксидом кальция.

В общем, дезактивация грунта категории ОНАО методом гидросепарации со стадией реагентной обработки выделенной целевой фракции позволяет получить:

- 40% чистого грунта с коэффициентом очистки не менее 90;
- 30% грунта в виде материалов ограниченного использования с коэффициентом очистки не менее 3,6;

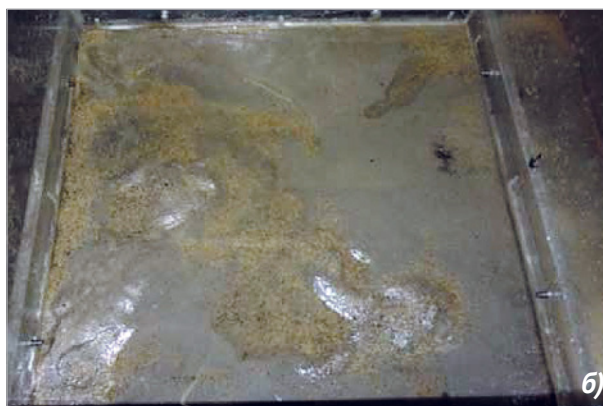


Рис. 4. Обработка целевой фракции перемешиванием в растворах карбоната натрия (а, б) и серной кислоты (в, г)

- 30% грунта в виде РАО категории ОНАО с коэффициентом сокращения объема 3,3 раза.

Количество вторичных ТРО в виде обезвоженного осадка после реагентной обработки целевой фракции составляет, примерно, 3% от массы исходного грунта.

По оценке, снижение расходов на обращение с грунтом категории ОНАО после его дезактивации, с учетом тарифов на транспортировку и захоронение РАО, эксплуатационных расходов и стоимости контейнеров, будет более чем в 2 раза по сравнению с вариантом захоронения грунта необработанного.

Заключение

Результаты разработки технологии очистки РЗГ методом гидросепарации с последующей реагентной обработкой выделенной фракции и установленные технологические параметры будут использованы при создании опытно-промышленной установки очистки для сокращения объема РЗГ на площадке СП АО «АЭХК», а также при ВЭ и реабилитации территорий сходных объектов.

Технология очистки РЗГ от радионуклидов урана методом гидросепарации со стадией реагентной обработки может быть применена для очистки РЗГ категории НАО и вывода большей части РЗГ из категории САО.

Литература

1. Бочаров К. Г., Михеев С. В., Ведерникова М. В. Перспективы работ по накопленным РАО в организациях Топливной компании АО «ТВЭЛ» // Радиоактивные отходы. 2017. № 1. С. 85—92.
2. Варлаков А. П., Германов А. В., Маряхин М. А., Варлакова Г. А. Разработка технологии дезактивации радиоактивно загрязненных грунтов и установки для ее реализации // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Материаловедение и новые материалы. 2017. Вып. 3 (90). С. 100—107.
3. Варлаков А. П., Германов А. В., Маряхин М. А., Варлакова Г. А., Удалая М. В. Создание в АО «ВНИИНМ» мобильной установки очистки радиоактивно загрязненного грунта на основе технологии водно-гравитационного отделения мелкодисперсной фракции // Радиоактивные отходы. 2018. № 1 (2). С. 62—67.
4. Варлаков А. П., Германов А. В., Маряхин М. А., Варлакова Г. А. Технология дезактивации радиоактивно загрязненного грунта // Аналитика. 2018. № 1 (38). С. 46—50.
5. Власова И. Э., Маряхин М. А., Ржевская А. В., Япаскурт В. О., Романчук А. Ю., Варлакова Г. А., Варлаков А. П. Формы нахождения урана в радиоактивно загрязненных грунтах на территории АО «АЭХК» // IX Российская конференция с международным участием «Радиохимия 2018»: Сборник тезисов. Санкт-Петербург, 17—21 сентября 2018 г. — Санкт-Петербург, 2018. — С. 10.

Информация об авторах

Варлаков Андрей Петрович, доктор технических наук, директор отделения, АО «Высокотехнологический научно-исследовательский институт им. академика А. А. Бочвара» (123098, Москва, Рогова, д. 5а), e-mail: APVarlakov@bochvar.ru.

Германов Александр Владимирович, кандидат технических наук, начальник отдела, АО «Высокотехнологический научно-исследовательский институт им. академика А. А. Бочвара» (123098, Москва, Рогова, д. 5а), e-mail: AVGermanov@bochvar.ru.

Маряхин Михаил Андреевич, ведущий эксперт, «Высокотехнологический научно-исследовательский институт им. академика А. А. Бочвара» (123098, Москва, Рогова, д. 5а 123060), e-mail: mmar82@mail.ru.

Варлакова Галина Андреевна, кандидат технических наук, главный специалист, АО «Высокотехнологический научно-исследовательский институт им. академика А. А. Бочвара» (123098, Москва, Рогова, д. 5а), e-mail: GAVarlakova@bochvar.ru.

Калмыков Степан Николаевич, доктор химических наук, и. о. декана химического факультета, МГУ им. М. В. Ломоносова (119991, Москва, ул. Ленинские горы, 1 стр. 3), e-mail: stepan@radio.chem.msu.ru.

Петров Владимир Геннадьевич, кандидат химических наук, доцент, МГУ им. М. В. Ломоносова (119991, Москва, ул. Ленинские горы, 1, стр. 3), e-mail: vladimir.g.petrov@gmail.com.

Власова Ирина Энгельсовна, кандидат химических наук, старший научный сотрудник, МГУ им. М. В. Ломоносова (119991, Москва, ул. Ленинские горы, 1, стр. 3), e-mail: ivlas@radio.chem.msu.ru.

Романчук Анна Юрьевна, кандидат химических наук, старший научный сотрудник, МГУ им. М. В. Ломоносова (119991, Москва, ул. Ленинские горы, 1, стр. 3), e-mail: romanchuk.anna@gmail.com.

Библиографическое описание данной статьи

Варлаков А. П., Германов А. В., Маряхин М. А., Варлакова Г. А., Калмыков С. Н., Петров В. Г., Власова И. Э., Романчук А. Ю. Дезактивация грунта, загрязненного ураном, с использованием метода гидросепарации с последующей реагентной обработкой фракций // Радиоактивные отходы. 2019. № 4 (9). С. 85—90. DOI: 10.25283/2587-9707-2019-4-85-90.

DECONTAMINATION OF SOIL CONTAMINATED BY URANIUM USING HYDROSEPARATION METHOD WITH FURTHER REAGENT TREATMENT OF FRACTIONS

Varlakov A. P.¹, Germanov A. V.¹, Mariakhin M. A.¹, Varlakova G. A.¹, Kalmykov S. N.², Petrov V.G.², Vlasova I. E.², Romanchuk A. Yu.²

¹JSC «High-technology scientific research institute of inorganic materials named after A. A. Bochvar», Moscow, Russian Federation

²Lomonosov Moscow State University, Moscow, Russian Federation

Article received on July 10, 2019

The article presents the decontamination technology used to remove uranium from radioactively contaminated soils at JSC AECC with the results of its development and testing being discussed as well. These soils, considered as VLLW, are expected to be generated during the decommissioning of sublimation production facility. The paper discusses testing stages of the decontamination technology with a laboratory installation in place applying hydroseparation method with further reagent treatment of the target fraction. The testing results will be used to develop an installation enabling to treat radioactively contaminated soils of VLLW category from JSC "AECC".

Keywords: radioactively contaminated soil, radioactive waste, hydroseparation, reagent treatment, target fraction, fine fraction, sand fraction, laboratory installation, decontamination factor.

References

1. Bocharov K. G., Mikheev S. V., Vedernikova M. V. Prospects of works on accumulated RW in the organizations of the Fuel Company JSC "TVEL". *Radioaktivnye othody – Radioactive Waste*, 2017, no. 1, pp. 85–92. (In Russian).

2. Varlakov A. P., Germanov A. V., Mariakhin M. A., Varlakova G. A. Development of technology for deactivation of radioactively contaminated soils and installation for its implementation. *Voprosy atomnoj nauki i tekhniki. Seriya: materialovedenie i novye materialy – Issues on atomic science and technology. Series: materials science and new materials*, 2017, no. 3 (90), pp. 100–107. (In Russian).

3. Varlakov A. P., Germanov A. V., Mariakhin M. A., Varlakova G. A., Udalya M. V. The Establishment

of Mobile Installation for Contaminated Soil Treatment Based on the Technology of Hydro-Gravity Separation of Fine Fraction in "VNIINM". *Radioaktivnye othody – Radioactive Waste*, 2018, no. 1 (2), pp. 62–67. (In Russian).

4. Varlakov A. P., Germanov A. V., Mariakhin M. A., Varlakova G. A. The decontamination technology of radioactively contaminated soil. *Analitika – Analytica*, 2018, no. 1 (38), pp. 46–50. (In Russian).

5. Vlasova I. E., Mariakhin M. A., Rzevskaia A. V., Yapaskurt V. O., Romanchuk A. Yu., Varlakova G. A., Varlakov A. P. Forms of uranium in radioactively contaminated soils on the territory of JSC "AECC". *IX Rossijskaya konferenciya s mezhdunarodnym uchastiem "Radiohimiya 2018" – IX Russian conference with international participation "Radiochemistry 2018"*, Saint Petersburg, 17–21 September 2018, p. 10. (In Russian).

Information about the authors

Varlakov Andrej Petrovich, Doctor of Sciences, Director of Department, JSC "VNIINM", (5a, Rogova St, Moscow, 123098, Russia), e-mail: APVarlakov@bochvar.ru.

Germanov Alexander Vladimirovich, PhD, Head of Department, JCS "VNIINM" (5a, Rogova St, Moscow, 123098, Russia), e-mail: AVGermanov@bochvar.ru.

Maryahin Mihail Andreevich, leading expert, JSC «VNIINM», (5a, Rogova St, Moscow, 123098, Russia), e-mail: mmar82@mail.ru.

Varlakova Galina Andreevna, PhD, Main Specialist, JSC "VNIINM", (5a, Rogova St, Moscow, 123098, Russia), e-mail: varlakova@inbox.ru.

Kalmykov Stepan Nikolaevich, Doctor of Sciences, Acting Dean of Chemical Faculty of MSU, Lomonosov Moscow State University (1/3, Leninskie Gory St., Moscow, 119991, Russia), e-mail: stepan@radio.chem.msu.ru.

Petrov Vladimir Gennadevich, PhD, Associate Professor, Lomonosov Moscow State University (1/3, Leninskie Gory St., Moscow, 119991, Russia), e-mail: vladimir.g.petrov@gmail.com.

Vlasova Irina Engelsovna, PhD, Senior Researcher, Lomonosov Moscow State University (1/3, Leninskie Gory St., Moscow, 119991, Russia), e-mail: ivlas@radio.chem.msu.ru.

Romanchuk Anna Yurevna, PhD, Senior Researcher, Lomonosov Moscow State University (1/3, Leninskie Gory St., Moscow, 119991, Russia), e-mail: romanchuk.anna@gmail.com.

Bibliographic description

Varlakov A. P., Germanov A. V., Mariakhin M. A., Varlakova G. A., Kalmykov S. N., Petrov V. G., Vlasova I. E., Romanchuk A. Yu. Decontamination of Soil Contaminated by Uranium Using Hydroseparation Method with Further Reagent Treatment of Fractions. *Radioactive Waste*, 2019, no.4(9), pp. 85–90. DOI: 10.25283/2587-9707-2019-4-85-90. (In Russian).