

На правах рукописи

Юрченко Андрей Юрьевич

ЭКСТРАГИРОВАНИЕ ИЗОТОПОВ РАДИЯ, УРАНА И ПЛУТОНИЯ  
ИЗ ИЗМЕЛЬЧЕННЫХ РАДИОАКТИВНЫХ СТРОИТЕЛЬНЫХ МАТЕРИАЛОВ

05.17.02 – Технология редких, рассеянных и радиоактивных элементов

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени кандидата технических наук

Москва 2012

Работа выполнена в Московском государственном предприятии – объединенном эколого-технологическом и научно-производственном центре по обезвреживанию РАО и охране окружающей среды (ГУП МосНПО «Радон»)

**Научный руководитель:** доктор химических наук,  
Карлин Юрий Викторович

**Официальные оппоненты:** доктор физико-математических наук, профессор,  
Полуэктов Павел Петрович,  
научный руководитель Центра по обращению с  
ОЯТ, РАО и ВЭ ЯРОО, предприятие  
Государственной корпорации Росатом  
ОАО «ВНИИНМ» им. А.А. Бочвара

кандидат технических наук,  
Титков Владимир Иванович,  
заведующий лабораторией № 25 НИЦГРТ,  
ГУП МосНПО «Радон»

**Ведущая организация:** МГУ им М.В. Ломоносова

Защита диссертации состоится 24 мая 2012 г. на заседании диссертационного совета Д 212.204.09 в РХТУ им. Д.И. Менделеева (125480, г. Москва, ул. Героев Панфиловцев, д. 20, корпус 1) в конференц-зале ИМСЭН-ИФХ в \_\_\_\_ часов.

С диссертацией можно ознакомиться в информационно-библиотечном центре РХТУ им. Д. И. Менделеева.

Автореферат разослан « \_\_\_\_ » апреля 2012 г.

Ученый секретарь диссертационного совета Д 212.204.09

Кандидат технических наук

Растунова И. Л.

**Актуальность темы.** Демонтаж объектов ядерной и радиохимической промышленности, исчерпавших проектный срок службы, сопряжен с образованием значительного количества радиоактивных отходов (РАО) строительных материалов, главным образом, бетонных изделий.

Особую опасность представляют отходы, загрязненные долгоживущими альфа-излучателями, поскольку они обладают значительной радиотоксичностью.

Дороговизна строительства и обслуживания хранилищ радиоактивных отходов, обуславливает актуальность разработки технологий, позволяющих сократить объем отходов, направляемых на долговременное контролируемое хранение в кондиционированной форме. Данная работа направлена на разработку технологии реагентной дезактивации отходов строительных материалов, таких как бетон и кирпич, от изотопов урана, радия и плутония.

**Цель работы.** Целью настоящей работы является получение исходных данных для разработки технологии дезактивации фрагментированных отходов минеральных строительных материалов от изотопов радия, урана и плутония. Эта цель достигается решением следующих задач:

1. Определение состава, структуры бетона и характера радиоактивного загрязнения методами рентгенофазового анализа, радиометрии, гамма-спектрометрии.
2. Нахождение оптимальных условий проведения дезактивации данных отходов от изотопов урана, радия и плутония.
3. Разработка и создание стендовой установки для отработки технологии дезактивации радиоактивных отходов строительных материалов.

**Научная новизна:**

1. Получены значения коэффициентов распределения урана между отходами тяжелого бетона и дезактивирующими растворами на основе комплексообразующих реагентов.
2. Изучено влияние концентрации раствора карбоната натрия, температуры раствора и соотношения фаз на величину коэффициента распределения урана между тяжелым бетоном и раствором карбоната натрия.
3. Изучена кинетика экстрагирования урана из тяжелого бетона раствором карбоната натрия в разных режимах.

4. Найдена предельная степень дезактивации бетона от плутония растворами на основе карбоната натрия, сульфата натрия и оксалата аммония. Установлен факт увеличения предельной степени дезактивации при добавлении к дезактивирующим растворам перманганата калия в концентрации до 0,05 М.

5. Установлена возможность практически полного экстрагирования радия из отходов красного кирпича с использованием разбавленных растворов азотной кислоты.

### **Практическая ценность работы**

1. Указанные дезактивирующие растворы пригодны для экстрагирования значительной доли радионуклидов U, Ra и Pu из реальных отходов бетона и красного кирпича.

2. Определены условия дезактивации, обеспечивающие минимальный расход дезактивирующих растворов.

3. Разработанная стендовая установка может служить прототипом для создания соответствующего промышленного оборудования.

**Апробация работы.** Материалы диссертации были доложены на следующих конференциях: Полярное сияние-2006, Вторая Российская школа по радиохимии и ядерным технологиям, Озерск, 2006 г., Complexing Agents between Science, Industry, Authorities and Users. 2007; March 11-16, Monte Verita, Ascona, Switzerland.

**Публикации.** По теме диссертации опубликовано 4 печатные работы, из них одна статья в журнале «Атомная энергия».

**Структура и объем диссертации.** Диссертация изложена на 102 страницах, включает 17 таблиц, 35 рисунков. Диссертация состоит из введения, 5 глав, выводов и списка литературы.

## **СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ**

**Введение.** Обоснована актуальность задачи, поставлены цели работы и намечены пути их достижения. Представленная работа выполнена в соответствии с планом НИР ГУП МосНПО «Радон» в рамках тем 2.13.02 «Разработка вариантов проведения дезактивации бетонных поверхностей в полевых условиях» и 7.01.02 «Разработка технологии дезактивации радиоактивных строительных материалов».

**В первой главе** литературного обзора представлен анализ современного

состояния проблемы радиоактивных отходов минеральных строительных материалов.

Во многих случаях вывод из эксплуатации объектов ядерной энергетики проводится в сжатые сроки. Отсрочка демонтажа не решает проблему загрязнения  $\alpha$ -излучающими радионуклидами, такими, как  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ , изотопы урана и трансурановых элементов. Одной из важных проблем при демонтаже подобного рода объектов является проблема обращения с большим количеством радиоактивных отходов, причем, объем низкоактивных отходов многократно превосходит объем отходов среднего и высокого уровня активности. Значительную долю твердых радиоактивных отходов от демонтажа радиационно-опасных объектов составляют отходы строительных материалов (в основном, бетона). Учитывая дороговизну сооружения и обслуживания пунктов захоронения/долговременного хранения радиоактивных отходов, представляется целесообразной дезактивация низкоактивных отходов строительных материалов с целью вывода их из категории радиоактивных материалов или даже с целью их повторного использования. Сложность химического состава и пористость структуры основных строительных материалов обуславливают трудность дезактивации этих материалов – большинство используемых методов дезактивации основано на удалении загрязненного слоя материала на определенную глубину. Рассмотренные методы и технологии дезактивации строительных материалов, в основном, предназначены для дезактивации поверхности цельных конструкций (полов, стен). Учитывая все вышесказанное, можно сделать вывод о целесообразности разработки технологии дезактивации отходов строительных материалов во фрагментированном виде, то есть в виде, в котором они образуются при демонтаже загрязненных сооружений и/или в результате применения механических методов дезактивации поверхностей. Технология дезактивации отходов строительных материалов, загрязненных долгоживущими  $\alpha$ -излучающими радионуклидами разработана недостаточно, поэтому ее разработка представляется особенно актуальной. При разработке технологии дезактивации фрагментированных отходов строительных материалов представляется целесообразным учитывать опыт создания подобных технологий для дезактивации грунтов, имеющих сходный агрегатный, и, отчасти, химический состав.

**В главе 2** описана методическая часть работы, рассмотрены различные виды реальных РАО строительных материалов, описаны основные методики их обработки и даны ссылки на методики анализа. Исследование исходных материалов (реальных радиоактивных отходов бетона), а также отработанных дезактивирующих растворов проводили методами рентгенофазового анализа (РФА),  $\gamma$ - и  $\alpha$ -спектрометрии,  $\alpha$ - и  $\beta$ -радиометрии, атомно-абсорбционной спектрофотометрии. Результаты радиохимических и гамма-спектрометрических анализов образцов реальных радиоактивных отходов различных строительных материалов представлены в таблицах 1–3.

Таблица 1.

Удельная активность (Бк/кг) различных проб бетона №1

Радионуклид	№ пробы			
	1	2	3	4
$^{137}\text{Cs}$	360	$7,78 \cdot 10^4$	$1,5 \cdot 10^7$	$1,75 \cdot 10^7$
$^{90}\text{Sr}$ (без $^{90}\text{Y}$ )	не обнаружен	$1,51 \cdot 10^4$	$8,1 \cdot 10^6$	$1,4 \cdot 10^7$
$^{238}\text{Pu}$	не обнаружен	29	$4,9 \cdot 10^3$	$6,6 \cdot 10^3$
$^{239}\text{Pu}$	не обнаружен	260	$1,8 \cdot 10^3$	$3,9 \cdot 10^3$
$^{234}\text{U}$	не обнаружен	18	860	760
$^{235}\text{U}$	не обнаружен	не обнаружен	18	не обнаружен
$^{238}\text{U}$	не обнаружен	16	97	не обнаружен

Таблица 2.

Удельная активность (Бк/кг) образцов бетона №2

Радионуклид	$^{137}\text{Cs}$	$^{90}\text{Sr}$	$^{234}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	$^{238}\text{U}$
Удельная активность, Бк/кг	120–380	$8,65 \cdot 10^3$ – $1,9 \cdot 10^4$	$(1,9$ – $3,7) \cdot 10^5$	$5,3 \cdot 10^3$ – $1,2 \cdot 10^4$	$(1,7$ – $5,5) \cdot 10^3$

Таблица 3.

Удельная активность (Бк/кг) разных видов строительных материалов

Материал	Радионуклид			
	$^{137}\text{Cs}$	$^{90}\text{Sr}$ (без $^{90}\text{Y}$ )	$^{226}\text{Ra}$	$^{210}\text{Po}$
Бетон №3	110	820–5400	$6,13 \cdot 10^3$ – $2,74 \cdot 10^4$	$1,9 \cdot 10^4$
Кирпич красный	30	0–1100	320–2250	не обнаружен
Кирпич шамотный	120	390	30–360	не обнаружен

Образцы реальных РАО измельчали до прохода через сито 2,5 мм и усредняли. Далее, этот материал использовали для проведения лабораторных экспериментов.

Экстрагирование радионуклидов из образцов реальных РАО проводили в статическом, динамическом или электрокинетическом режиме. В статическом режиме осуществляли контакт навески РАО с дезактивирующими растворами различного состава в сосудах из полипропилена, фторопласта или нержавеющей стали 12X18Н10Т при температуре от +20 до +95°C и соотношении фаз 1–200 мл/г. В динамическом режиме контакт навески РАО с дезактивирующим раствором осуществляли в колонке из нержавеющей стали 12x18н10т при расходе раствора 0,08–0,18 колоночных объема в час и температуре +20°C. В электрокинетическом режиме обработку РАО проводили в ячейке специальной конструкции при температуре от +20 до +100°C и плотности тока от 220 до 2000 А/м<sup>2</sup>.

**В главе 3** описаны условия проведения экспериментов с различными образцами реальных РАО и приведены полученные результаты.

В статическом режиме проводили:

- обработку РАО бетона, загрязненного изотопами урана, растворами Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, NaHCO<sub>3</sub>, Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, CH<sub>3</sub>COONa, (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>C<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>Na<sub>2</sub>ЭДТА, трилона-Б различной концентрации при соотношении фаз 10 мл/г и температуре 20°C. Также проводили обработку этих отходов растворами карбоната натрия с добавками окислителей – персульфата аммония, хромата калия, перманганата калия;

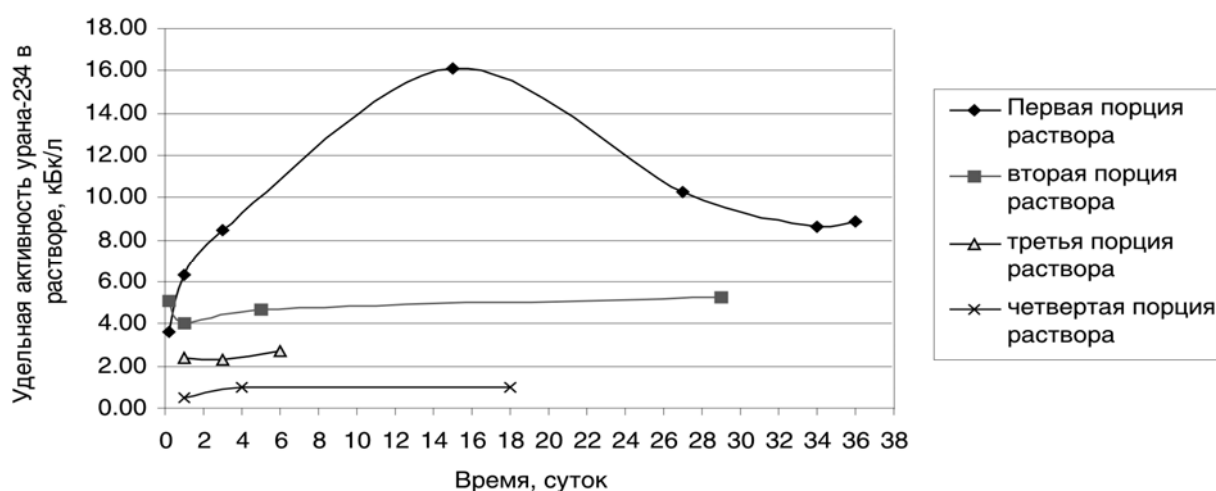
- обработку РАО бетона, загрязненного изотопами плутония, растворами Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, NaHCO<sub>3</sub>, Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, CH<sub>3</sub>COONa, (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>C<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>Na<sub>2</sub>ЭДТА, трилона-Б, (NH<sub>4</sub>)<sub>3</sub>Cit при 80°C и соотношении фаз 200 мл/г. Также проводили обработку этих отходов растворами гидрокарбоната натрия с добавками окислителей – (персульфата аммония, хромата калия, перманганата калия) или восстановителей – (йодида калия, гидразина, гидроксиламина);

- обработку РАО бетона и красного кирпича, загрязненного <sup>226</sup>Ra, растворами азотной кислоты при температуре 20°C и соотношении фаз 10 мл/г.

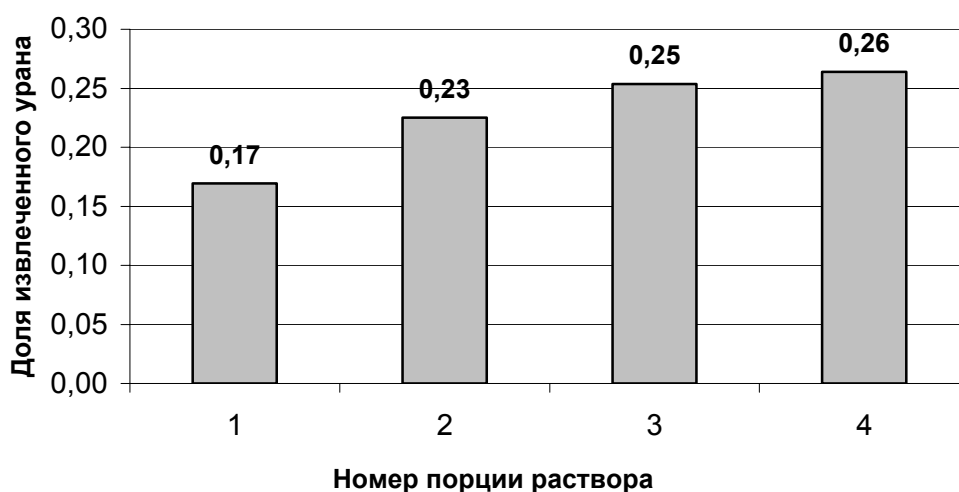
По результатам экспериментов были определены составы растворов, обеспечивающие наибольшую степень экстрагирования радионуклидов в данных условиях. Для бетона, загрязненного ураном, это 0,5 М раствор Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, для

красного кирпича, загрязненного радием, – 0,05–0,1 М раствор азотной кислоты, для бетона, загрязненного плутонием — смешанный раствор 0,35 М  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  + 0,15М  $\text{NaHCO}_3$  + 0,05 М  $\text{KMnO}_4$ . Степень экстрагирования изотопов урана из бетона составила до 95 %, изотопов плутония из бетона – до 83 %. В отходах красного кирпича радий после обработки не обнаружен на уровне чувствительности применявшейся методики  $\gamma$ -спектрометрии.

Была исследована кинетика экстрагирования урана из отходов бетона 0,2–0,5 М раствором карбоната натрия при +20 и +90°C и соотношении фаз 2 мл/г. Результаты представлены на рисунках 1–3.

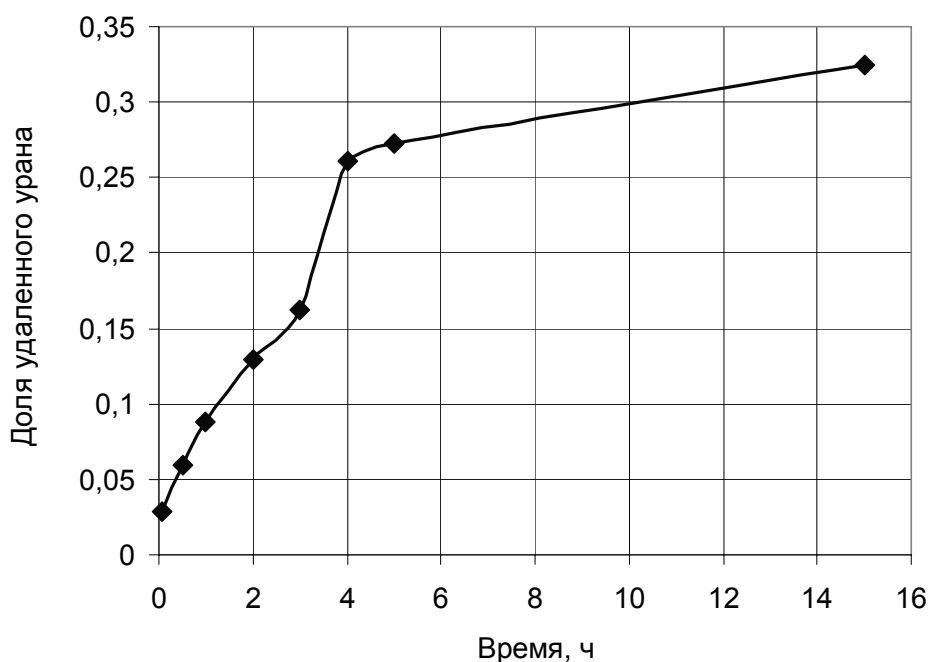


**Рис. 1.** Кинетика экстрагирования урана из бетона 0,5 М раствором карбоната натрия (4 порции раствора одинакового объема) при 20°C и соотношении фаз 2 мл/г



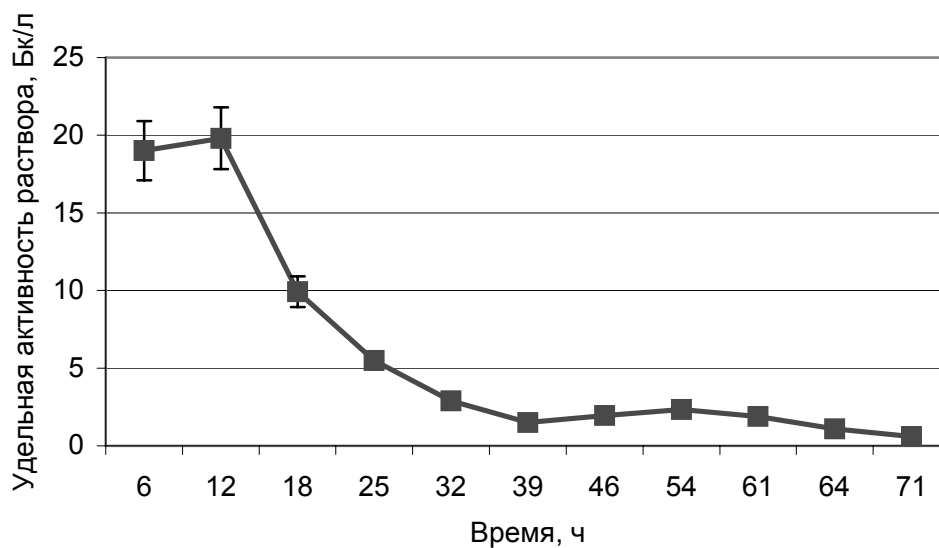
**Рис. 2.** Доля извлеченного урана из навески бетона с различными порциями 0,5 М раствора карбоната натрия (4 порции раствора одинакового объема) при 20°C и соотношении фаз 2 мл/г



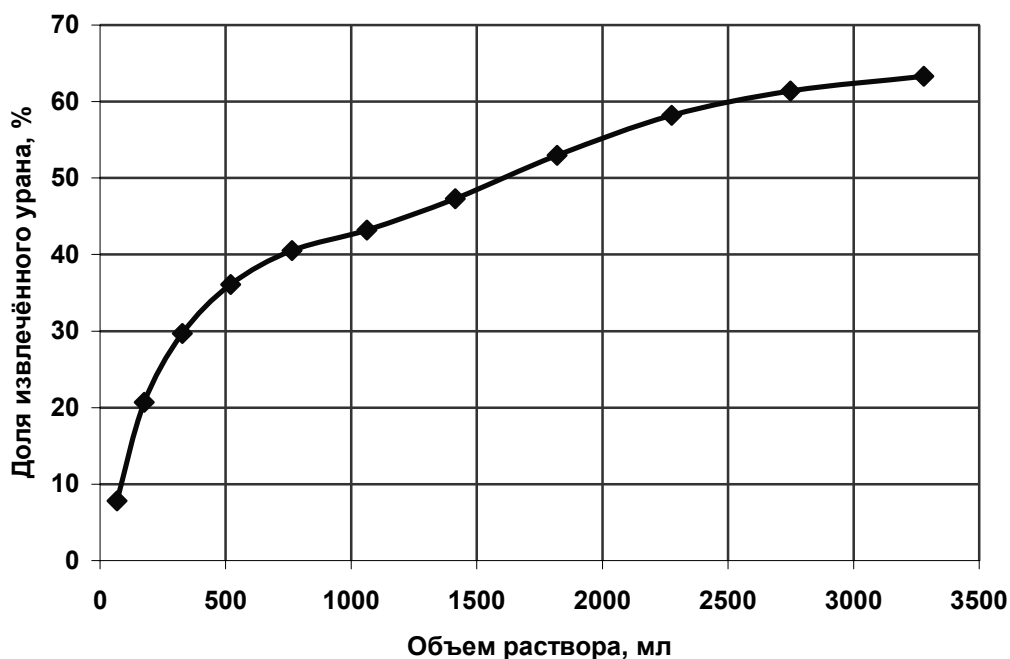


**Рис. 3.** Кинетика экстрагирования урана из бетона 0,2 М раствором карбоната натрия при +95°C и соотношении фаз 2 мл/г

Была исследована кинетика экстрагирования урана из отходов бетона в динамическом режиме 0,2 М раствором карбоната натрия от +80 до +90°C и расходе раствора 0,08–0,18 колоночных объема в час. Результаты представлены на рисунках 4–5.

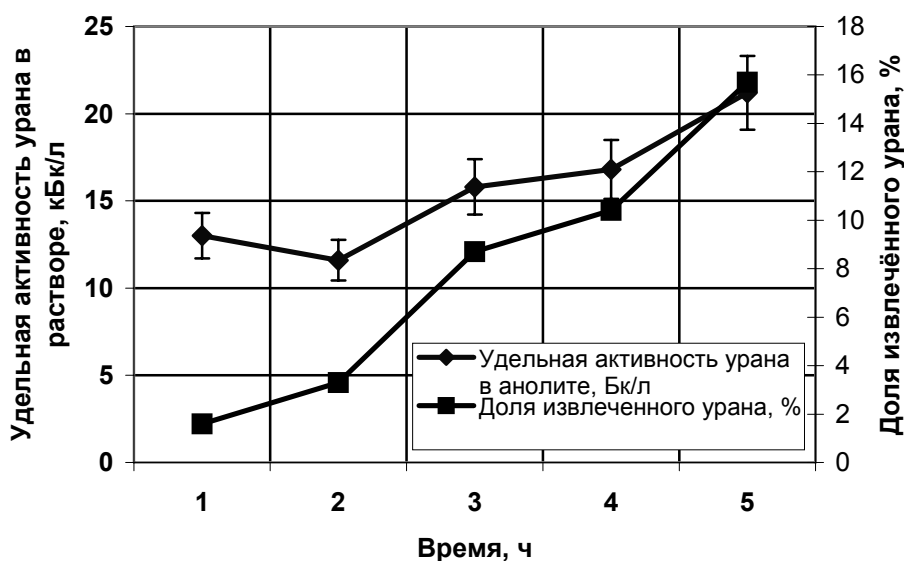


**Рис. 4.** Кинетика экстрагирования урана из бетона 0,2 М раствором карбоната натрия при +85°C в динамическом режиме



**Рис. 5.** Зависимость доли извлеченного урана из бетона 0,2 М раствором карбоната натрия при +85°C от объема пропущенного через колонку раствора (динамический режим)

Была исследована кинетика экстрагирования урана из отходов бетона в электрокинетическом режиме 0,2 М раствором карбоната натрия от +80 до +90°C и при плотности тока 254–754 А/м<sup>2</sup>. Динамика экстрагирования урана из бетона в указанных условиях представлена на рисунке 6.



**Рис. 6.** Динамика экстрагирования урана из бетона 0,2М раствором карбоната

натрия в электрокинетическом режиме при плотности тока 254–754 А/м<sup>2</sup>

**В главе 4** обсуждаются полученные экспериментальные данные. Из результатов радиометрического и радиохимического анализа исходных образцов РАО строительных материалов (таблицы 1–3) видно, что удельная активность материала даже в пределах одной партии отходов может изменяться весьма существенно. Также виден сложный радионуклидный состав загрязнения. Однако, в некоторых партиях отходов  $\alpha$ -излучатели являются преобладающими.

Для экстрагирования урана из тяжелого бетона использовали реагенты, способные образовывать с ураном прочные растворимые комплексы. При этом стремились, чтоб воздействие комплексообразователя на макроструктуру самого бетона было по возможности минимальным. Из представленных в диссертации данных по экстрагированию урана из тяжелого бетона можно сделать заключение, что наибольшую эффективность из исследованных растворов имеет раствор карбоната натрия с концентрацией 0,25–0,5 М. Дальнейшее повышение концентрации раствора не приводит к увеличению коэффициента распределения урана между раствором и твердой фазой отходов. Предположительно, уран экстрагируется этим раствором в форме трикарбонатного комплекса  $\text{Na}_4[\text{UO}_2(\text{CO}_4)_3]$ , что подтверждено результатами РФА сухого остатка после упаривания отработанного дезактивирующего раствора.

Для достижения максимальной степени экстрагирования урана из бетона, равной 95 %, необходим удельный расход 0,2–0,5 М раствора карбоната натрия в количестве 18–20 л/кг. Если возвращать в процесс низкоактивный отработанный дезактивирующий раствор (с объемной активностью 3 кБк/л и ниже) и использовать его для обработки новых порций отходов, удельный расход можно снизить в 2,7 раза.

Раствор азотной кислоты выбран в качестве экстрагента радия по причине удобства обращения со вторичными ЖРО. Результатами экспериментов показано, что 0,05 М раствор азотной кислоты является достаточно эффективным реагентом для экстрагирования радия из отходов красного кирпича.

Для экстрагирования плутония из всех испытанных растворов наиболее эффективны растворы сульфата натрия, смесь карбоната и гидрокарбоната натрия, оксалата аммония (таблица 4).

Таблица 4.

Сравнительная эффективность экстрагирования плутония из бетона № 1  
различными растворами

Состав дезактивирующего раствора	Степень извлечения Pu, %	Коэффициент дезактивации
Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> 0,5M	46	1,9
Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> 0,25M+ NaHCO <sub>3</sub> 0,25M	69	3,3
NaHCO <sub>3</sub> 1M	0	1
Трилон-Б 0,5M	78	4,5
Трилон-Б 0,5M+ NH <sub>3</sub> 1M	68	3,1
Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> 0,5M	53	2,13
CH <sub>3</sub> COONa 0,1M	0	1
(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> C <sub>2</sub> O <sub>4</sub> 0,5M	68	3,1
(NH <sub>4</sub> ) <sub>3</sub> Cit 0,1M	61	2,5
NaHCO <sub>3</sub> 1M+ (NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>8</sub> 0,05M	0	1
NaHCO <sub>3</sub> 1M+ KMnO <sub>4</sub> 0,05M	0	1
NaHCO <sub>3</sub> 1M+ K <sub>2</sub> CrO <sub>4</sub> 0,05M	0	1
NaHCO <sub>3</sub> 1M+ NaOCl	35	1,5
NaHCO <sub>3</sub> 1M+ N <sub>2</sub> H <sub>4</sub> 0,05M	0	1
NaHCO <sub>3</sub> 1M+ KI 0,05M	0	1
NaHCO <sub>3</sub> 1M+ NH <sub>2</sub> OH 0,1M	0	1

Введение окислителя (перманганата калия) увеличивает эффективность дезактивирующих растворов как на основе карбоната-гидрокарбоната натрия, так и на основе сульфата натрия. Введение в вышеуказанные растворы перманганата калия в концентрации 0,05 М позволяет увеличить степень извлечения плутония из бетона до 80–83 % по сравнению с 75 % – для тех же растворов без перманганата калия (таблица 5). Повышение концентрации перманганата калия до 0,15 М не привело к дальнейшему увеличению эффективности раствора.

Таблица 5.

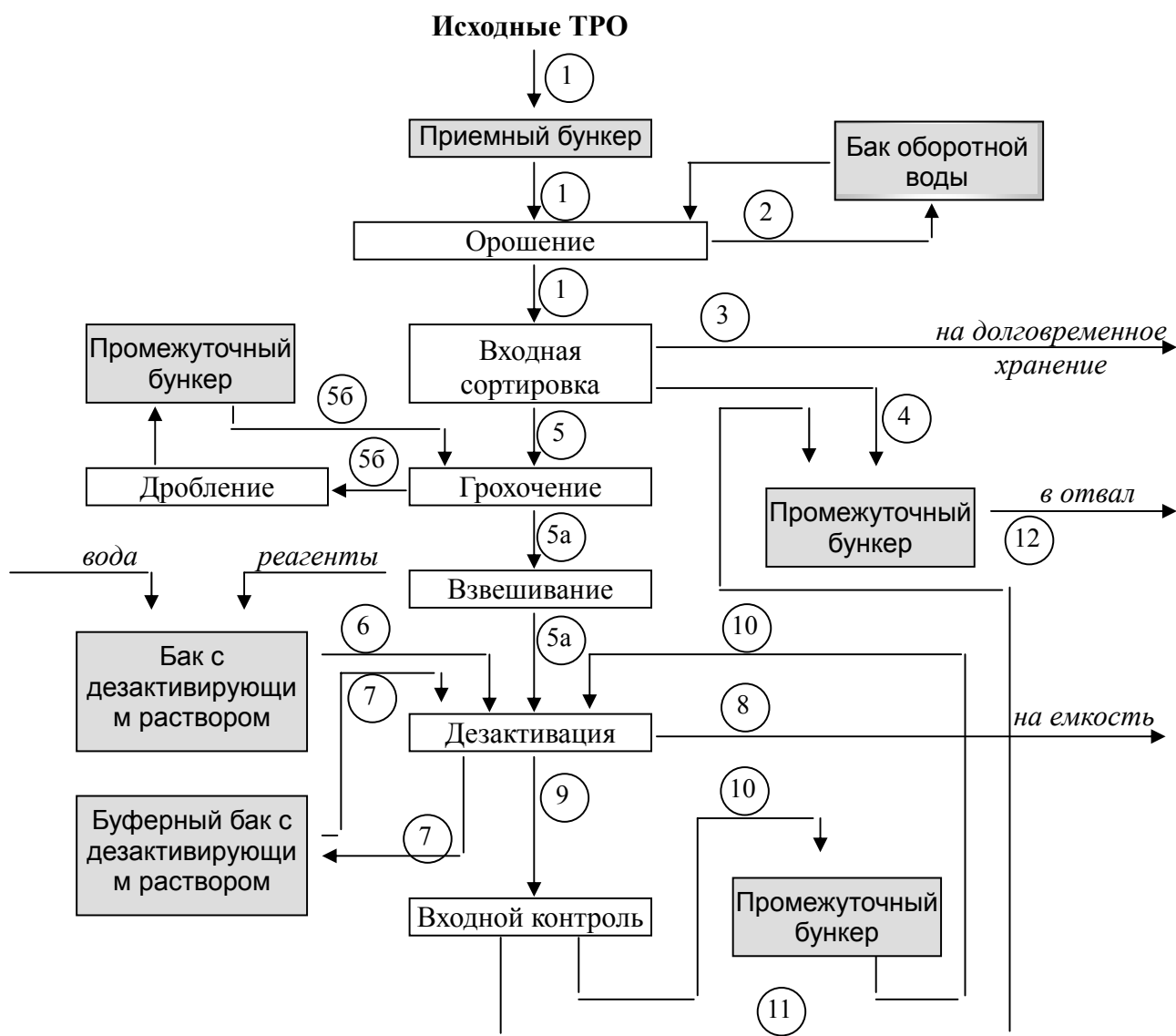
Эффективность экстрагирования плутония из бетона № 1 дезактивирующими растворами с добавками окислителей и восстановителей

Состав дезактивирующего раствора	Степень извлечения Pu, %	Коэффициент дезактивации
0,35M Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> + 0,15M NaHCO <sub>3</sub> + 0,05M KMnO <sub>4</sub>	83	6,1
0,35M Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> + 0,15M NaHCO <sub>3</sub> + 0,15M KMnO <sub>4</sub>	80	5,1
0,35M Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> + 0,15M NaHCO <sub>3</sub> + 0,05M K <sub>2</sub> CrO <sub>4</sub>	74	3,9
0,35M Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> + 0,15M NaHCO <sub>3</sub> + 0,05M (NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>8</sub>	77	4,4
0,5M Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> + 0,05M KMnO <sub>4</sub>	82	5,6
0,5M Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> + 0,05M K <sub>2</sub> CrO <sub>4</sub>	58	2,4
0,35M Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> + 0,15M NaHCO <sub>3</sub> + 0,05M KI	73	3,7
0,35M Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> + 0,15M NaHCO <sub>3</sub> + 0,05M NH <sub>2</sub> OH (в виде сульфата)	74	3,9
0,35M Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> + 0,15M NaHCO <sub>3</sub> + 0,05M N <sub>2</sub> H <sub>4</sub> (в виде сульфата)	67	3,0

Таким образом, исходя из полученных экспериментальных данных, для дезактивации бетона от плутония могут быть использованы растворы состава 0,35 М Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>+ 0,15 М NaHCO<sub>3</sub>+ 0,05 М KMnO<sub>4</sub>, и 0,5 М Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>+ 0,05 М KMnO<sub>4</sub>.

Продолжительность перехода изотопов урана из твердой фазы в жидкую может достигать 15 суток (до установления равновесного распределения), что, в свою очередь, может привести к низкой производительности процесса дезактивации строительных материалов в целом. Для ускорения процесса целесообразно воздействие различных физических факторов, например, повышенной температуры или постоянного электрического тока. Повышение температуры от +20 до +95°С увеличивает скорость перехода урана в жидкую фазу в 90–120 раз. Проведение дезактивации в электрокинетическом режиме позволяет ускорить процесс в 70–150 раз, в зависимости от плотности тока.

**В главе 5** предложена технологическая схема (рисунок 7) для реагентной дезактивации фрагментированных радиоактивных отходов строительных материалов.



**Рис. 7.** Схема технологической линии дезактивации радиоактивных отходов строительных материалов

Цифрами обозначены следующие потоки:

1 – исходный материал, 2 – оборотная вода, 3 – материал с высоким уровнем загрязнения, дезактивация которого экономически нецелесообразна, 4 – материал, не попадающий в категорию РАО, 5 – материал, подлежащий дезактивации (5а – тонкая фракция; 5б – грубая фракция), 6 – свежий дезактивирующий раствор, 7 – низкоактивный оборотный дезактивирующий раствор, 8 – отработанный дезактивирующий раствор, 9 – дезактивированный материал, 10 – дезактивированный материал, направляемый на повторную дезактивацию, 11 – дезактивированный материал, направляемый в отвал, 12 – материал, удаляемый в отвал, как нерадиоактивные отходы.

Исходный материал 1 из приемного бункера орошают оборотной водой 2 для подавления пылеобразования при дальнейшем обращении с ним. В результате входной сортировки по уровню активности исходный материал 1 разделяют на три потока: материал с большим уровнем загрязнения, дезактивация которого экономически нецелесообразна 3; материал, не попадающий в категорию радиоактивных отходов 4; материал с промежуточным уровнем активности, направляемый на дезактивацию 5. Перед дезактивацией материал 5 подвергают грохочению и дроблению кусков, не прошедших через грохот. После взвешивания материал 5 загружают в экстрактор и обрабатывают свежим 6 или низкоактивным оборотным 7 дезактивирующим раствором. Полностью отработанный дезактивирующий раствор 8 направляют на водоочистку. Дезактивированный материал 9 проходит выходной контроль, где разделяется на два потока: материал, выведенный из категории радиоактивных отходов 11; и материал, направляемый на повторную дезактивацию 10. Материал 12, полученный в результате входной сортировки исходного материала и дезактивации, и не попадающий в категорию радиоактивных отходов, удаляют в отвал.

В этой же главе представлена функциональная схема и описание стендовой установки, разработанной, изготовленной и использованной для масштабирования процесса, исследованного ранее в лабораторных условиях.

Были проведены испытания установки на реальных отходах железобетона, загрязненного ураном. Отходы представляли собой фрагменты тонкостенной железобетонной конструкции с поверхностным загрязнением. Масса отдельного фрагмента составляла до 3 кг. Содержание радионуклидов, Бк/кг:  $^{238}\text{U} - 3,75 \cdot 10^6$ ;  $^{235}\text{U} - 4,4 \cdot 10^5$ ;  $^{232}\text{Th} - 6,05 \cdot 10^4$ ; суммарная  $\alpha$ -активность  $9,75 \cdot 10^6$ .

В экстрактор загружали 98 кг этих отходов. Перед загрузкой выборочно на 100 фрагментах бетона измерили плотности потока  $\alpha$ -частиц.

В качестве дезактивирующего использовали смешанный раствор карбоната-гидрокарбоната натрия в различных соотношениях.

Было проведено 5 циклов реагентной дезактивации. Каждый цикл включал в себя приготовление порции дезактивирующего раствора, закачку его в экстрактор, циркуляцию раствора через экстрактор и нагреватель в течение определенного времени, слив отработанного дезактивирующего раствора в бак. Температура раствора в экстракторе в ходе дезактивации составляла  $80^\circ\text{C}$ .

В ходе 5 циклов дезактивации удалено  $\alpha$ -радионуклидов суммарной активностью  $8,2 \cdot 10^6$  Бк. Коэффициент дезактивации, определяемый по отношению уровней поверхностного загрязнения ста произвольно выбранных фрагментов до и после дезактивации, равен 1,6 (при удельном объеме вторичных ЖРО 3,8 л/кг). Эти данные близки к полученным в лабораторных условиях при дезактивации от урана отходов бетона 0,2–0,5 М карбонатом натрия: коэффициент дезактивации 1,5 при удельном объеме вторичных ЖРО 3,5. Удельные затраты электроэнергии – 1,4 кВт·ч/кг. Соотношение жидкой и твердой фаз при дезактивации железобетона от урана составляло 0,7–0,8 л/кг. Удельный объем вторичных жидких РАО составил 3,8 л/кг. Объемная  $\alpha$ -активность отработанного дезактивирующего расхода на разных этапах составляла  $(7,9–0,28) \cdot 10^4$  Бк/л.

#### ВЫВОДЫ:

1. Экспериментально показана возможность экстрагирования до 95 % урана из реальных отходов тяжелого бетона растворами карбоната натрия или оксалата аммония с концентрацией 0,2–0,5 М. Повышение температуры дезактивирующего раствора или пропускание через него постоянного электрического тока ускоряет переход урана в жидкую фазу. Установлено, что увеличение температуры от +20 до +90°C ускоряет процесс дезактивации бетона в 90 раз, а пропускание через реакционную среду постоянного электрического тока плотностью от 250 до 2170 А/м<sup>2</sup> – в 70–150 раз, соответственно.

2. Определены оптимальные условия проведения процесса дезактивации отходов бетона от урана: обработка бетона дезактивирующим раствором при соотношении твердой и жидкой фаз 1 кг/л, температуре +90 С в течение 5–7 часов.

3. Экспериментально показана возможность экстрагирования до 75 % изотопов плутония из реальных отходов тяжелого бетона 0,5 М раствором сульфата натрия, или смешанным раствором карбоната (0,35 М) и гидрокарбоната (0,15 М) натрия. Добавка к указанным растворам перманганата калия до концентрации 0,05 М увеличивает долю извлекаемого плутония до 83 %.

4. Экспериментально показана возможность практически полного экстрагирования радия из реальных отходов красного кирпича раствором азотной кислоты с концентрацией 0,05–0,1 М.



5. Разработана технологическая схема процесса дезактивации фрагментированных отходов минеральных строительных материалов. Разработана, изготовлена и испытана установка в виде стендового варианта с реактором для экстрагирования радионуклидов с загрузкой 100 кг по твердым отходам. Стендовая установка успешно прошла испытания на реальных отходах железобетона, загрязненных ураном и показала возможность масштабирования исследованного в лаборатории процесса.

**Основное содержание диссертации изложено в работах:**

1. Юрченко А.Ю., Карлин Ю.В., Николаев А.Н. Дезактивация радиоактивного бетона // Атомная энергия, 2009, Т.106, Вып. 3, – С.176–180.

2. Осташкина Е.Е., Юрченко А.Ю., Карлина О.К., Карлин Ю.В. Изучение локализации радионуклидов в бетонах. // IX Международная студенческая научная конференция "Полярное сияние-2006. Ядерное будущее: Безопасность, экономика и право": Сборник тезисов докладов. – М.: МИФИ, 2006. – С. 252–254.

3. Баринов А.С., Карлина О.К., Юрченко А.Ю., Николаев А.Н., Осташкина Е.Е., Карлин Ю.В. Дезактивация строительных отходов, образующихся при механической дезактивации строительных конструкций // Пятая Российская конференция по радиохимии. Радиохимия-2006: Тезисы докладов. Дубна, 23–27 октября 2006 г. – Озерск: ФГУП «ПО «Маяк», 2006. – С. 258.

4. К. Попов, I. Glazkova, A.Y. Yurchenko, V. Yachmenev, A.N. Nikolaev, A. Myagkov, A. Petrov. Chelating agent assisted electrokinetic remediation of concrete surface. //Complexing Agents between Science, Industry, Authorities and Users: Abstracts of International Conference , 2007; March 11-16, Monte Verita, Ascona, Switzerland.– P.8.



Формат 60×90 1/16. Тираж 100 шт. Заказ № 34

Отпечатано в ГУП МосНПО «Радон»