

25. Дегальцев Ю.Г., Пономарев-Степной Н.Н., Кузнецов В.Ф. Поведение высокотемпературного ядерного топлива при облучении. М.: Атомиздат, 1987.
26. Ластман Б. Радиационные явления в двуокиси урана. М.: Атомиздат, 1964.
27. Бахшт Ф.Г., Дюжев Г.А., Марциновский А.М. и др. Термоэмиссионные преобразователи и низкотемпературная плазма. М.: Наука, 1973.
28. Глестон С., Лейдлер К., Эйринг Г. Теория абсолютных скоростей реакций. М.: Изд-во иностр. лит., 1948.
29. Шуппе Г.Н. Эмиссионные параметры граней монокристаллов вольфрама, молибдена и тантала (чистых и загрязненных). — Известия АН СССР, сер. физ., 1966, т. 30, с. 1935—1940.
30. Ведула Ю.С., Гончар В.В., Наумов А.Г., Федорус А.Г. Влияние электронной структуры подложки на свойства металлопленочных систем. — Физика твердого тела, 1977, т. 19, вып. 9, с. 1569—1576.
31. Стаханов И.П., Пашенко В.П., Степанов А.С., Гуськов Ю.К. Физические основы термоэмиссионного преобразования энергии. М.: Атомиздат, 1973.
32. Cheetham A., Day P. Solid State Chemistry: Compounds. Oxford.: Clarendon Press, 1992.
33. Любимов Д.Ю., Смирнов Л.Г. Математическое описание процессов диффузии и конденсации щелочноземельных продуктов деления и их оксидов в ловушке и газоотводном тракте. — В сб.: Труды НИИ НПО «Луч» 2000—2002 гг. М., ЦНИИАтоминформ, 2003, с. 39—44.
34. Робертс М., Макки Ч. Химия поверхности раздела металл—газ. М.: Мир, 1981.
35. Davis P. The adsorption of Zr onto W(100) surfaces. — Surface Sci., 1980, v. 91, № 2—3, p. 385—399.
36. Hertel G. Surface ionization. I. Desorption of U + ions from W and Re surfaces. — J. Chem. Phys., 1967, v. 41, № 1, p. 133—137.
37. Фоменко В.С. Эмиссионные свойства материалов. Киев: Наукова думка, 1981.
38. Besocke K. Work function change of tungsten (110) planes as function of Mo coverage. — In: Proc. the 3rd Intern. Conf. on Therm. Electr. Power Gen. Juelich, FRG, 1972, v. 3, p. 1385—1396.
39. Ведула Ю.С., Коноплев Ю.М., Медведев В.К. и др. Работа выхода, термическая устойчивость и атомная структура адсорбированных электроположительных пленок на металлических монокристаллах. — Там же, с. 1353—1360.
40. Горбатый Н.А., Гарнов А.В., Карпачев Б.И. и др. Эмиссионно-адсорбционные характеристики пленок редкоземельных металлов на поверхности монокристалла вольфрама. — Известия АН СССР, сер. физ., 1974, т. 38, вып. 2, с. 260—264.
41. Kolaczkiwicz J., Bauer E. The adsorption of Eu, Gd and Tb on the W (110) surface. — Surface Sci., 1986, v. 175, № 3, p. 487—507.
42. Чернецов М.В., Козлов А.В., Скрябин Л.А. Результаты электронно-микроскопических исследований и элементного состава поверхностей вентилируемого высокотемпературного твэла после реакторных испытаний. Тезисы докл. 5-й Межд. конф. «Ядерная энергетика в космосе-1999». Подольск, НИИ НПО «Луч», 1999, с. 51.

Поступила в Редакцию 22.04.11

УДК 621.039.73

РЕАГЕНТНАЯ ОЧИСТКА ГРУНТОВ ОТ ТРАНСУРАНОВЫХ ЭЛЕМЕНТОВ

Николаевский В.Б., Склифасовская Ю.Г., Сабодина М.Н., Ключкова Н.В. (МосНПО «Радон», г. Москва)

Реабилитация территорий, загрязненных радионуклидами, требует разработки специальных технологий дезактивации почв и грунтов. Снятие и прямое размещение поверхностного слоя грунта в хранилище являются экономически неэффективными, так как загрязненный грунт в большинстве случаев относится к низкоактивным радиоактивным отходам. В связи с актуальностью реабилитации территорий и сокращения объема радиоактивных отходов, подлежащих долговременному хранению, разрабатывают и испытывают технологии дезактивации грунтов, основанные на физических и химических методах удаления радиоактивного загрязнения. Физический метод, основанный на удалении из грунта путем сепарации мелкой фракции, которая содержит основную массу ра-

дионуклидов, реализован в НИЦ «Курчатовский институт».

Химический метод заключается в десорбции радионуклидов при обработке загрязненного грунта раствором специально подобранного реагента. Реагентный способ, характеризующийся более высоким коэффициентом очистки (~20) по сравнению с сепарационным (~5), можно использовать как самостоятельно, так и для дополнительной более глубокой очистки грунта после сепарации мелкой фракции.

Основными задачами при разработке реагентной технологии являются подбор эффективного состава экстрагента и определение условий перевода радионуклидов в раствор. Ранее были определены реагенты и условия эффективной дезактивации грунтов, загрязненных

^{137}Cs и ^{226}Ra , со степенью очистки более 90% [1, 2]. В настоящей статье приведены результаты исследования реагентной дезактивации грунтов, загрязненных плутонием и америцием.

Экспериментальная часть. Исследования проводили на реальных образцах грунта, отобранных с поверхности загрязненного участка территории одного из предприятий атомной промышленности с глубины до 30 см. Для экспериментов использовали усредненные пробы воздушно-сухого грунта. Гранулометрический состав определяли пипеточным методом. Форму нахождения плутония и америция в грунте определяли методами, основанными на последовательной обработке проб растворами реагентов различного состава в порядке возрастания их химической активности [3].

Лабораторные эксперименты для выбора десорбирующих реагентов проводили в статических условиях путем контактирования навески воздушно-сухого грунта с водными растворами солей и минеральных кислот при 20 °С и соотношении контактирующих фаз Т:Ж = 1:5 в течение 24 ч. Затем жидкую и твердую фазы разделяли фильтрованием и анализировали на содержание плутония и америция. Степень очистки грунта рассчитывали по результатам радиометрического анализа проб по формуле

$$\alpha = \frac{m_{\text{исх}} A_{\text{исх}} - m_{\text{кон}} A_{\text{кон}}}{m_{\text{исх}} A_{\text{исх}}} \cdot 100\%,$$

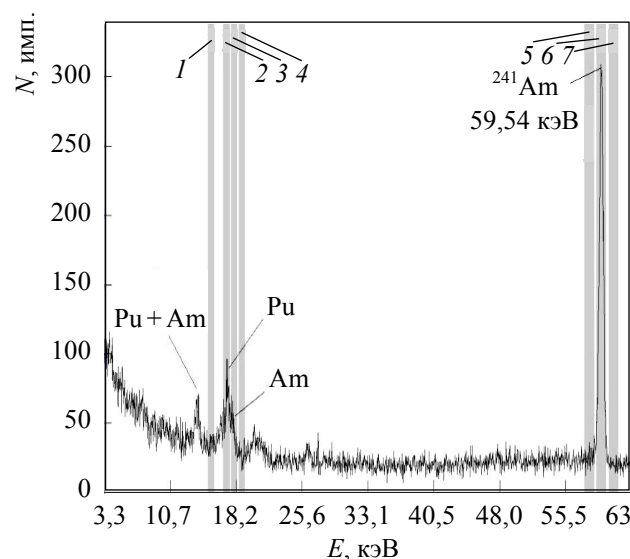
где $m_{\text{исх}}$, $m_{\text{кон}}$ — масса исходного грунта и после выщелачивания соответственно, кг; $A_{\text{исх}}$, $A_{\text{кон}}$ — исходная и остаточная удельная активность после выщелачивания соответственно, кБк/кг.

Для сокращения продолжительности анализа проб содержание трансурановых элементов в грунте до и после реагентной обработки определяли с помощью γ/X -спектрометрической методики, предназначенной для контроля загрязнения природных объектов ^{241}Am и Pu по предварительно найденному соотношению $\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ [4]. Основным достоинством этой методики является ее оперативность. В отличие от α -спектрометрического метода она не требует продолжительной предварительной радиохимической подготовки образца [5]. В основу экспресс-анализа [6] положены определение суммы изотопов плутония по испускаемому им рентгеновскому излучению (X -излучение) и γ -спектрометрическое измерение ^{241}Am [7, 8]. Для плуто-

ния в качестве аналитической использовали линию XL_{β} , соответствующую энергии характеристического излучения L -серии урана UL_{β} 17,2 кэВ, с наибольшим выходом излучения. ^{241}Am анализировали по γ -линии энергией 59,54 кэВ. Излучение плутония и америция детектировали и идентифицировали на полупроводниковом спектрометре с детектором на основе особо чистого германия. В состав спектрометра входят полупроводниковый детектор БДРГ-36-360 с площадью окна 1000 мм², разрешением 360 эВ по линии 5,9 кэВ, рабочим диапазоном регистрации 3—600 кэВ, спектрометрический тракт СУ-03П, плата АЦП, встроенная в компьютер типа IBM PC, программное обеспечение LSRM.

В качестве измерительной емкости применяли пластмассовую кювету внутренним диаметром 50, высотой 20 мм, с ложным днищем, которое выполнено из фторопластовой пленки толщиной 0,1 мм. Масса пробы составляла 10 г, что соответствует близкой к оптимальной поверхностной плотности 0,5 г/см².

Спектрометр настроен на регистрацию излучения в семи участках (зонах) спектра (рис. 1). Зоны 2, 3 предназначены для определения скорости счета XL_{β} в пике плутония (17,2 кэВ) и америция (17,7 кэВ). Зона 6 выделяет γ -линию плутония и ^{241}Am (59,54 кэВ). По скорости счета в 1-й и 4-й зонах рассчитывают фон под пиками XL_{β} -излучения, по зонам 5 и 7 находят фон под γ -линией америция. Для анализа использовали относительный способ измерения активности с предварительной калибровкой по твердым стан-



Р и с. 1. Спектр пробы грунта, содержащего Pu и ^{241}Am : 1—7 — зона регистрации спектра

дартным образцам сравнения плутония и америция.

Образцы сравнения готовили путем добавления аликвоты образцового радиоактивного раствора соответствующего радиоизотопа к рассчитанной навеске оксида алюминия с последующим высушиванием и перемешиванием. Минимально детектируемая активность плутония и ^{241}Am составляет 0,3 и 0,03 кБк/кг соответственно за время измерения 9600 с (2 ч 40 мин).

Сравнение экспресс-методики с α -спектрометрическим методом определения плутония и ^{241}Am в исходной пробе изучаемого грунта показало хорошую сходимость удельной активности. Содержание плутония и ^{241}Am в исходном грунте, определенное α -спектрометрическим методом, составило 17 ± 3 и $2,7 \pm 0,3$ кБк/кг соответственно, по экспресс-методике — 18 ± 4 и $2,7 \pm 0,3$ кБк/кг соответственно. Таким образом, γ/X -спектрометрическая методика приемлема для экспресс-анализа проб почв и грунтов с повышенным содержанием плутония от 0,3 кБк/кг и америция — от 0,03 кБк/кг. Погрешность анализа плутония составляла 20%, америция — 10%.

Результаты и обсуждение. По результатам определения гранулометрического состава исследуемый грунт относится к мелкозернистому песку с преобладанием (>51%) частиц размером 0,05—0,25 мм. Химический состав следующий, % по массе: Na_2O 0,6, MgO 0,53, Al_2O_3 6,52, SiO_2 82,76, K_2O 0,87, CaO 2,15, Fe_2O_3 3,67, TiO_2 0,32, MnO 0,059, P_2O_5 0,154, SO_3 0,45, Ba 0,042, другие 1,88. Радионуклидный состав приведен в табл. 1.

Т а б л и ц а 1. Радионуклидный состав грунта

Радионуклид	Удельная активность, Бк/кг	Минимально значимая удельная активность, Бк/кг [9]
^{241}Am	$2,7 \cdot 10^3$	10^3
^{239}Pu	$18 \cdot 10^3$	10^3
^{238}Pu	165	10^3
^{238}U	400	10^4
^{235}U	49	10^4
^{234}U	385	10^4
^{137}Cs	80	10^4
^{90}Sr	260	10^5

Анализ показывает, что содержание цезия 80 Бк/кг и стронция 260 Бк/кг в 100 раз, урана более чем в 10 раз ниже минимально значимой

удельной активности, по которой классифицируют объекты внешней среды как радиоактивные отходы. Грунт загрязнен в основном ^{241}Am и плутонием, что выше их минимального содержания примерно в 3 и 18 раз соответственно.

На выбор условий десорбции радионуклида влияние оказывают степень подвижности элемента, характер и прочность его связей с компонентами поглощающего комплекса грунта. Для их изучения использовали широко применяемый в геохимии и почвоведении метод определения форм нахождения, основанный на последовательном выщелачивании радионуклидов из образцов грунтов растворами $\text{H}_2\text{O}_{\text{дист}}$ (водорастворимая), 1М $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ (обменная), 1М HCl (подвижная), 6М HCl (связанная) [3]. Нерастворенный остаток относили к прочносвязанной форме. В водную вытяжку переходят растворимые в воде радионуклиды, закрепленные за счет физической адсорбции. Ацетатом аммония вытесняются обменные катионы, сорбированные за счет электростатических сил, и легкорастворимые соединения. Соляная кислота концентрацией 1 моль/л растворяет более прочные соединения, ассоциированные в грунтах с карбонатами, аморфными гидроксидами железа и марганца, а также внешне- и внутрисферными комплексами, закрепленными на дефектах кристаллических решеток минералов грунта. Концентрированная соляная кислота извлекает формы, связанные со слабоокристаллизованными оксидами железа и марганца, и другие труднорастворимые соединения.

Плутоний и америций аналогично другим искусственным радионуклидам вследствие очень низкой концентрации не образуют собственных соединений в биосфере, они включаются в состав соединений различных химических элементов, приобретая при этом их закономерности поведения в циклах миграции [3]. В почве плутоний и америций находятся главным образом в составе гумусовых низкомолекулярных кислот, их соединений с кальцием, железом и алюминием, в гидроксидах последних элементов. Формы нахождения этих радионуклидов определяются в первую очередь составом аморфных соединений на поверхности минеральных частиц. Исследование динамики изменения форм нахождения в почве показало, что радионуклиды поглощаются очень быстро. Связь с органическими веществами и гидроксидами отмечалась при загрязнении почвы как в

Таблица 2. Форма нахождения радионуклидов в грунте

Форма	Состав раствора	Удельная активность, кБк/л		Распределение активности, %	
		Pu	Am	Pu	Am
Водорастворимая	H ₂ O _{дист}	0,7	0,12	19	22
Обменная	1М CH ₃ COONH ₄	0,59	0,06	32	21
Подвижная	1М HCl	0,51	0,15	28	57
Необменная	6М HCl	0,4	—	21	—
Прочносвязанная	Остаток	—	—	—	—

лабораторных экспериментах, так и вследствие глобальных радиоактивных выпадений [10].

В результате последовательной обработки грунта различными реагентами установлено, что 22% америция находится в водорастворимой, 21% в обменной и 57% в подвижной форме (табл. 2). Доля плутония в водорастворимой форме составляет 19%, в подвижной — 28%, что в 2 раза ниже, чем америция. Кроме того, ~21% плутония закреплен в необменной форме. Таким образом, большая часть плутония (до 80%) и весь америций входят в состав подвижной формы, что свидетельствует о принципиальной возможности реагентной очистки этих грунтов.

На начальном этапе выбора типа и состава реагента для дезактивации грунта исследовали эффективность растворов, содержащих комплексообразующие агенты (анионы лимонной и этилендиаминтетрауксусной (ЭДТА) кислот), а также смешанных реагентов на их основе, рекомендованных в работе [11]. Из табл. 3 видно, что комплексообразующие среды обладают невысокой эффективностью. Степень очистки грунта от плутония и америция не превышает 40 и 50% соответственно. Лучшие показатели очистки были достигнуты при обработке одномолярными растворами кислот HCl, HNO₃ и 0,5М H₂SO₄, которые количественно извлекают америций из грунта со степенью очистки 99%. Плутоний из грунта извлекается хуже — на уровне 60%. Различия в поведении этих радионуклидов связано, очевидно, с наличием части плутония в степени окисления Pu⁴⁺ по сравнению с америцием, для которого наиболее устойчивым состоянием является Am³⁺. Четырехзарядный ион плутония наиболее прочно связан с матрицей грунта. Для его количественного извлечения необходимо использование окислительно-восстановительных процессов, с помощью которых можно перевести Pu⁴⁺ в более растворимые формы Pu⁴⁺, Pu⁵⁺, Pu⁶⁺.

Попытки использовать окислительную среду с введением персульфата аммония не дали положительных результатов. Введение в 0,5М

Таблица 3. Очистка грунта от плутония и америция различными реагентами

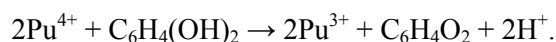
Выщелачивающий раствор	pH		Остаточная удельная активность, кБк/кг		Степень очистки, %	
	исходный	равновесный	²³⁹ Pu	²⁴¹ Am	²³⁹ Pu	²⁴¹ Am
Лимонная кислота:						
0,1М	1,9	2,8	14	2,02	26	28
0,5М	1	2,1	13,2	1,82	30	33
0,03М ЭДТА:						
pH 4,5	4,5	5,6	13,2	1,75	30	37
pH 10	10	11	10,1	1,7	47	39
0,03М ЭДТА + 0,06М Na ₂ CO ₃ + 0,02М H ₂ O ₂ + NaOH (pH 10)	10	11,3	11	1,3	40	52
0,5М лимонная кислота + 0,3М Na ₂ CO ₃ + 0,1М H ₂ O ₂	3,8	3,6	10,8	1,8	41	31
1М HCl	0	0,5	6,3	<0,03	66	99
1М HNO ₃	0	0,7	6,6	<0,03	65	99
0,5М H ₂ SO ₄	0	1	8	<0,03	58	99
0,5М H ₂ SO ₄ + 0,1М (NH ₄) ₂ S ₂ O ₈	0,6	0,7	9,4	<0,03	51	99
0,5М H ₂ SO ₄ + 0,1М (NH ₄) ₂ S ₂ O ₈ + 0,01М AgNO ₃	0,5	1	4,8	<0,03	75	99

раствор H_2SO_4 персульфата аммония, являющегося одним из сильнейших окислителей, не привело к росту степени очистки грунта от плутония. Увеличение степени очистки на 17% (с 58 до 75%) было отмечено при добавлении к серно-кислому раствору 0,1М $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ азотно-кислого серебра в качестве катализатора. Однако необходимой глубины очистки достигнуто не было, остаточное содержание плутония в грунте составило 4,8 кБк/кг, что в 5 раз выше минимально значимой удельной активности (см. табл. 1).

На следующем этапе исследований были рассмотрены варианты извлечения плутония из грунта с помощью восстановителей. Гидразин, гидрохинон, иодид калия и сульфита натрия имеют значения окислительно-восстановительных потенциалов $-0,23$, $+0,07$, $+0,536$, $+0,17$ В соответственно, достаточные для восстановления Pu^{4+} до Pu^{3+} . Эксперименты показали, что введение этих соединений в выщелачивающий раствор соляной, азотной кислот концентрацией 1 моль/л и серной концентрацией 0,5 моль/л позволило повысить степень очистки грунта от плутония с 60 до 80—90% (табл. 4). Причем наибольшей эффективностью обладают азотно- и соляно-кислые растворы при наличии восстановителей гидрохинона (84, 90%) и иодида калия (87, 92%) соответственно, наименьшей — серно-кислые растворы (73 и 77%), что, очевидно, связано с уменьшением окислительно-восстановительного потенциала пары ионов

$\text{Pu}^{4+}/\text{Pu}^{3+}$ в ряду одномолярных растворов HCl — HNO_3 — H_2SO_4 с $+0,97$ до $+0,75$ В [12]. Эффективность применения некоторых восстановителей, например, гидрохинона для извлечения полимеризованного плутония из гетерогенных пульп радиохимических производств была показана в работах [13, 14].

Для определения наиболее эффективного состава раствора реагента было изучено влияние концентрации кислоты и восстановителя гидрохинона на степень очистки грунта в соляно- и азотно-кислых средах. С ростом концентрации гидрохинона до 0,3М в одномолярном растворе HCl степень очистки грунта от плутония возросла с 60 до 90% при одинаковой степени очистки от америция 96—99% (рис. 2). Гидрохинон быстро переводит Pu^{4+} в Pu^{3+} , реакция протекает по уравнению

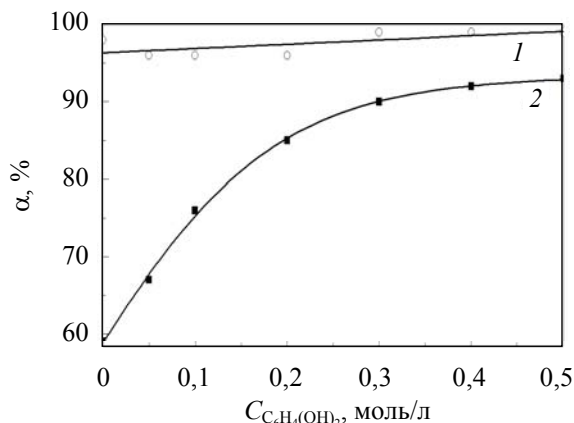


Продуктом окисления гидрохинона является хинон, окрашивающий раствор в темный цвет. Дальнейшее увеличение концентрации гидрохинона до 0,5М не приводит к повышению степени очистки грунта.

При постоянном содержании гидрохинона 0,3 моль/л показано, что степень очистки грунта от америция растет с увеличением кислотности, достигая максимального значения 96—99% в 1М HCl , и не зависит от добавок гидрохинона (рис. 3, а, кривые 1, 2). Для плутония этот пока-

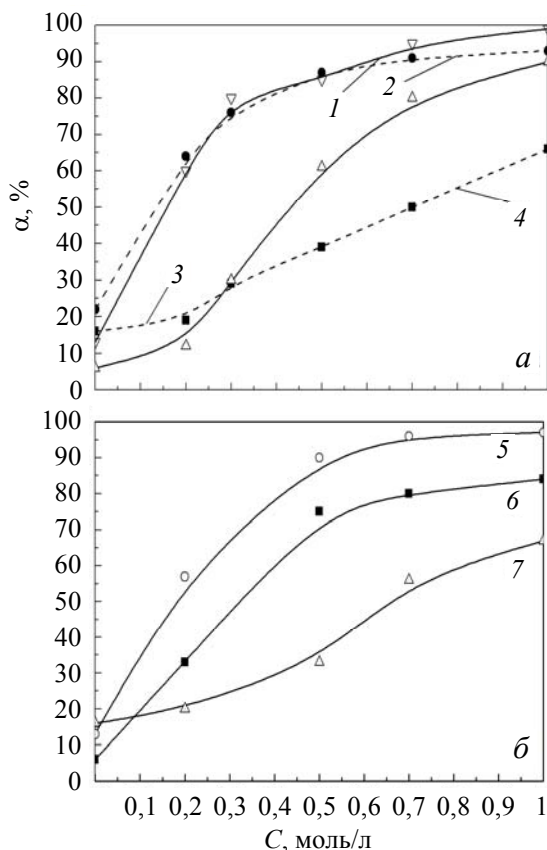
Т а б л и ц а 4. Очистка грунта от плутония и америция растворами кислот при наличии восстановителей

Выщелачивающий раствор	рН		Остаточная удельная активность, кБк/кг		Степень очистки, %	
	исходный	равновесный	^{239}Pu	^{241}Am	^{239}Pu	^{241}Am
1М HCl + 0,3М $\text{N}_2\text{H}_4 \cdot 2\text{HCl}$	-0,1	0,1	2,5	<0,03	86	99
1М HNO_3 + 0,3М $\text{N}_2\text{H}_4 \cdot 2\text{HCl}$	-0,1	0,55	2,2	<0,03	88	99
0,5М H_2SO_4 + 0,3М $\text{N}_2\text{H}_4 \cdot 2\text{HCl}$	0,3	0,6	3,6	<0,03	80	99
1М HCl + 0,3М $\text{C}_6\text{H}_4(\text{OH})_2$	0	0,2	1,1	<0,03	90	99
1М HNO_3 + 0,3М $\text{C}_6\text{H}_4(\text{OH})_2$	0,05	0,2	1,3	<0,03	84	99
0,5М H_2SO_4 + 0,3М $\text{C}_6\text{H}_4(\text{OH})_2$	0,3	1	4,2	0,23	77	92
1М HCl + 0,3М KI	0,15	0,35	1,3	<0,03	92	99
1М HNO_3 + 0,3М KI	0,1	0,4	2,4	0,21	87	92
0,5М H_2SO_4 + 0,3М KI	0,7	1,1	4,9	0,24	74	91
1М HCl + 0,3М Na_2SO_3	0,8	1	3	0,09	84	97
1М HNO_3 + 0,3М Na_2SO_3	0	0,3	3,5	0,16	81	94
0,5М H_2SO_4 + 0,3М Na_2SO_3	0,8	1,1	4,4	0,17	76	94



Р и с. 2. Влияние концентрации гидрохинона в 1М НСl на степень очистки грунта от плутония (1) и америция (2)

затель возрастает с 15 до 65% без восстановителя (кривая 3) и до 90% при наличии гидрохинона (кривая 4). Аналогичная картина наблюдается и при использовании азотно-кислых сред (рис. 3, б). Наибольшая степень очистки грунта от плутония (84%) достигается при концентрации гидрохинона 0,3 моль/л и азотной кислоты 1 моль/л.



Р и с. 3. Влияние концентрации кислот НСl (а) и ННО₃ (б) на степень очистки грунта от плутония и америция: 1, 3 — Am и Pu с добавкой 0,3 моль/л гидрохинона соответственно; 2, 4 — Am и Pu без гидрохинона соответственно; 5, 6 — Am и Pu при наличии 0,3 моль/л гидрохинона соответственно; 7 — Pu без гидрохинона

Таким образом, исследованиями показана эффективность реагентной дезактивации грунта, загрязненного трансурановыми элементами — плутонием и америцием. Применение одномолярных растворов минеральных кислот позволяет достигать степени очистки от америция на 99%. Для наиболее полного извлечения плутония необходимо использовать восстановительную среду. Введение в раствор различных восстановителей, таких, как гидрохинон и иодид калия, повысит степень очистки грунта от плутония с 65 до 90%. Расход реагентов составляет 50 кг/т. Образующиеся вторичные жидкие радиоактивные отходы поступают на очистку сорбционным или осадительным способом для концентрирования извлеченных из грунта радионуклидов в малом объеме. Отделенный от раствора радиоактивный концентрат цементируется и направляется на длительное хранение. Очищенный раствор после корректировки состава реагента возвращается на обработку новой партии загрязненного грунта, что позволяет осуществлять реагентную дезактивацию в замкнутом цикле.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Prozorov L.B., Nikolaevsky V.B., Tkachenko A.V. et al. Deactivation of ground contaminated as a result of Chernobyl accident. — In: Proc. of the 34-th Intern. Conf. SSCHE. Slovakia, May 21—25, 2007, p. 214—215.
2. Николаевский В.Б., Склифасовская Ю.Г. Изучение возможности выделения радиоактивного загрязнения из грунтов с использованием физико-химических методов. — В сб.: 4-я молодежная научно-практич. конф. «Ядерно-промышленный комплекс Урала: проблемы и перспективы». Озерск, 18—20 апреля 2007 г., с. 146—147.
3. Павлоцкая Ф.И. Миграция радиоактивных продуктов глобальных выпадений в почвах. М.: Атомиздат, 1974. 215 с.
4. Бахур А.Е., Мануилова Л.И., Зуев Д.М. и др. Методы определения изотопов плутония в радиозологии. — АНРИ, 2003, № 2, с. 2—8.
5. Методика выполнения измерений объемной активности изотопов плутония (239+240, 238) в пробах природных вод альфа-спектрометрическим методом с радиохимическим выделением. Инструкция НСАМ № 407-ЯФ/ВИМС. М., 1999.

6. Егоров А.В., Ключкова Н.В. Экспресс-анализ америция и плутония в почвах. — Гигиена и санитария, 2009, № 3, с. 64—66.
7. Бушуев А.В. Развитие γ /X-спектрометрической методики для контроля загрязненности почв ^{241}Am и Pu : Препринт МИФИ 013-96, 1996. 88 с.
8. Коренков И.П., Прозоров Л.Б., Шатохин А.М., Егоров А.В. X-спектрометрический метод определения плутония в почвах, грунтах и донных отложениях. — Гигиена и санитария, 2006, № 2, с. 72—76.
9. Нормы радиационной безопасности (НРБ-99/2009): Санитарно-эпидем. правила и нормативы. М.: Фед. центр гигиены и эпидемиологии Роспотребнадзора, 2009. 100 с.
10. Горяченкова Т.А., Нгуен Тхань Бинь, Павлючая Ф.И. Формы нахождения плутония в почвах. — Радиохимия, 1990, № 2, с. 47—54.
11. Дани М., Бредбери Д., Элдер Д. Способ очистки материала, содержащего радиоактивные загрязнения. Патент RU № 2122249 C1 G21F9/28. — Бюл. «Изобретения, полезные модели», 1998, № 32, с. 459.
12. Вайгель Ф., Кац Дж., Сиборг Г. Химия актиноидов. Т. 2. М.: Мир, 1997, с. 333—335.
13. Ермолаев В.М. Физико-химические основы переработки гетерогенных отходов (пульп) радиохимических производств. Автореф. дис. на соискание ученой степени канд. хим. наук. М., 2007.
14. Никитина Г.П., Иванов Ю.Е., Листопадов А.А., Шпунт Л.Б. Существующие методы растворения диоксида плутония. Ч. II. Окислительно-восстановительное растворение диоксида плутония с использованием гомогенного катализатора. — Радиохимия, 1997, т. 39, № 2, с. 112—126.

Поступила в Редакцию 4.05.11

УДК 621.039.7+546.36

ПОЭТАПНАЯ ДЕЗАКТИВАЦИЯ ПЕСЧАНОГО ГРУНТА, ЗАГРЯЗНЕННОГО ^{137}Cs

Дмитриев С.А., Баринев А.С., Купцов В.М. (МосНПО «Радон», г. Москва)

Разработка эффективных методов дезактивации радиоактивного грунта особенно актуальна в связи с запретом его утилизации. Стоимость хранения радиоактивных отходов высока, поэтому средне- и низкоактивные отходы целесообразно дезактивировать до уровня, определяемого санитарными нормами [1].

В соответствии с нормами [2] основные пределы дозы облучения в среднем за год составляют для персонала группы А 20 мЗв (1700 рабочих часов), группы Б — 5 мЗв (2000 рабочих часов), населения — 1 мЗв (8800 ч). Подобные уровни дозы обеспечиваются на поверхности полубесконечного пространства, в котором равномерно распределен ^{137}Cs концентрацией 60, 12,6 и 0,57 кБк/кг соответственно [3]. Эти значения можно рассматривать как контрольные при дезактивации.

Простейшим методом дезактивации песчаного грунта является отделение мелкодисперсной фракции (<0,1 мм), с которой обычно связано до 90—95% радионуклидов их исходного количества [1]. Высокая влагоемкость фракции и широко развитая поверхность контакта жидкой и твердой фазы обеспечивают доминирование загрязняющих примесей именно в этой фракции.

Мелкодисперсную фракцию отделяют на установке производительностью 4—5 т/ч при коэффициенте дезактивации 4—5. Метод обладает высокой производительностью, но имеет и недостатки: неполное извлечение, низкий коэффициент дезактивации, часть мелкодисперсного вещества связана с отдельными фрагментами и гидроксидными пленками, и для их разрушения требуется реагентная обработка [4], мелкодисперсное вещество поступает в хранилище, и если его содержание велико, эффективность дезактивации снижается.

Коэффициент дезактивации можно увеличить только реагентной обработкой. Рассмотрим наиболее простой метод — агитационное выщелачивание, при котором во вращающемся реакторе проводится совместная обработка смеси загрязненного грунта и раствора с дезактивирующими реагентами, на примере загрязненного ^{137}Cs песчаного грунта [1].

Методика дезактивации. Оптимальная схема поэтапной дезактивации песчаного грунта приведена на рисунке. Первый этап водно-гравитационного выделения песчаной фракции проводили сотрудники НИЦ «Курчатовский институт». Отделенную мелкодисперсную фрак-