Журнал прикладной химин. 2002. Т. 75. Вып. 6

УДК 541.183.5:661.184.23

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ СЕЛЕКТИВНЫХ СОРБЕНТОВ НА ОСНОВЕ ЦЕОЛИТА NaX И Cu₂[Fe(CN)₆] ДЛЯ КОНЦЕНТРИРОВАНИЯ РАДИОНУКЛИДОВ ЦЕЗИЯ

© А.С.Панасюгин, Н.Б.Голикова, Н.П.Ильиных, О.В.Струкова

Белорусская государственная политехническая академия, Минск Институт радиоэкологических проблем НАН Белорусски, Минск – Сосны Научно-исследовательский институт Белорусского государственного университета, Минск

Поступило в Редакцию 18 сентября 2001 г.; после исправления в январе 2002 г.

Изучены динамические характеристики процесса сорбции ^{137}Cs сорбентом на основе цеолита NaX и $Cu_5[Fe(CN)_6]$.

В результате катастрофы на Чернобыльской АЭС около 23% территории Белоруссии было загрязнено радионуклидами, в том числе и водосборы рек. Водные объекты являются основными артериями транспорта радиопуклидов. Данная ситуация привела к необходимости усиления контроля за загрязнением воды радиоактивными элементами, прежде всего 137 Cs.

Первым этапом любого метода определения активности воды является концентрирование пробы, которое проводят разными способами: выпариванием, соосаждением, диализом, применением сорбентов.

Наиболее перспективным способом концентрирования радионуклидов является использование сорбентов, особенно высокоселективных. С этой целью был синтезирован сорбент на основе цеолита NaX и $\text{Cu}_2[\text{Fe}(\text{CN})_6]$, способ получения которого аналогичен описанному в работе [1], и отработаны оптимальные режимы сорбции ¹³⁷Cs в динамических условиях.

Эксперименты по изучению динамических характеристик процесса сорбции ¹³⁷Сѕ проводили на стандартных колонках со следующими параметрами: диаметр 10 мм, высота 50 мм, объем сорбционного материала 5 мл, высота фильтрующего слоя 43–45 мм, размер гранул 1.5–2.2 мм.

Выбор оптимальных режимов работы сорбента проводили при пропускании раствора активностью $2\cdot10^5$ Бк·т $^{-1}$ по 137 Сѕ при разных скоростях. Исходной для приготовления радноактивных растворов была вода следующего химического состава (мг·л $^{-1}$): взвешенных веществ — 17.1 ± 1.7 , сухого остатка — 349.5 ± 8.3 , ионов натрия — 5.8 ± 0.15 , калия — 1.0 ± 0.1 , аммония — менее 0.1, кальция — 37.6 ± 3.9 , магиия — 6.4 ± 0.44 , железа общего — 0.2 ± 0.02 , хлорид-нонов — 8.1 ± 0.79 , сульфат-ионов — 4.1 ± 0.02 , нитрат-нонов — 2.2 ± 0.04 , гидрокарбонат-нонов — 164.7 ± 12.3 , бромиднонов — 0.1 ± 0.01 , фторид-нонов — 0.13 ± 0.01 , оксида креминя — 10.77 ± 1.05 ; общая жесткость — 2.47 ± 0.05 , карбонатная жесткость — 2.46 ± 0.06 мг-экв·л $^{-1}$; рН 8.3 ± 0.06 , что соответствует ГОСТ на питьевую воду.

Скорость пропускания раствора через колонки с сорбентом варьировали от 50 до 150 колоночных объемов в 1 ч. Отбор проб проводили после пропускания определенного количества колоночных объемов раствора. После окончания каждой серии экспериментов измеряли активность сорбента в верхиих и нижних частях колонок.

Анализ проб проводили на радиомстре РУБ-01П4С с блоком детектирования БДЖБ-06П1. Относительная погрешность измерения не превышала $\pm 7^{\circ}$ о.

На основании экспериментальных значений активности раствора до и после пропускания через сорбент по соответствующим формулам были рассчитаны коэффициент очистки $K_{\rm oq}$ и степень сорбции S (%):

$$K_{\text{oq}} = A_0 / A_{\text{f}}, \quad S = \frac{A_0 - A_{\text{f}}}{A_0} \cdot 100,$$

где A_0 и $A_{\rm f}$ – активности радионуклида в растворе до и после пропускания через сорбент соответственно.

Расчет сорбционных параметров проводили согласно методикам, приведенным в работах [2–5].

Как видно из рис. 1, а, эффективность извлечения 137Cs из высокоактивного раствора на колонке, заполненной цеолитом NaX, модифицированным Cu₂[Fe(CN)₆], сохраняется достаточно высокой при увеличении скорости фильтрации от 50 до 150 колоночных объемов в 1 ч. Хотя коэффициент очистки $K_{\rm ou}$ снижается от 513 до 85, степень сорбции S остается на уровне 98.5-99.8% (рис. 1, δ). При этом на начальном этапе в зависимости от скорости фильтрации происходит увеличение или снижение коэффициента очистки, а затем наступает последующая стабилизация работы фильтрующего элемента. Из рис. 1, а, б видно, что оптимальной скоростью для данного фильтрующего элемента является 75 колоночных объемов в 1 ч. Такая тенденция ранее была описана в работах [6-13].

Дальнейшее изучение сорбции ¹³⁷Cs на цеолите NaX-Cu при скорости фильтрации 75 колоночных

1048 Панасюгин А.С. и бр.

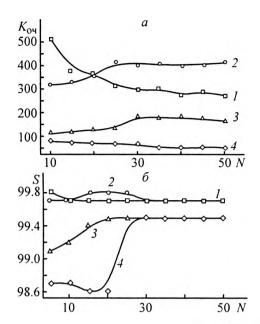


Рис. 1. Зависимости коэффициента очистки $K_{\text{оч}}$ (a) и степени сорбции S (%) (б) от количества пропущенных колоночных объемов N для различных скоростей фильтрации воды на образце цеолита NaX-Cu.

Скорость фильтрации воды V (q^{-1}): I = 50, 2 = 75, 3 = 100,I = 150.

объемов в 1 ч проводили при уменьшении удельной активности раствора $^{137}\mathrm{Cs}$ от $2\cdot10^5$ до $6.2~\mathrm{Бk\cdot n}^{-1}$ и увеличении количества пропущенного раствора от 50 до 6000 колоночных объемов. Сорбция в данном случае составила 96.0-98.0%.

В ходе исследований установлено, что при оптимальной скорости фильтрации исходная активность раствора не оказывает заметного влияния на место локализации цезия-137 в объеме колонки. Как видно из рис. 2, a, соотношение активностей сорбента в верхней и нижней частях колонки Y при изменении исходной активности раствора A_0 от $2.0 \cdot 10^5$ до 6.2 Бк· π^{-1} находится в пределах 14.3 - 14.4.

В процессе работы был проведен эксперимент, в ходе которого через колонку с цеолитом NaX–Cu пропускали раствор активностью $6.2~\rm Ke\cdot n^{-1}$ со скоростью 200 колоночных объемов в 1 ч. Сорбция в данных условиях составила 95.0–96.0%.

Увеличение скорости пропускания раствора от 50 до 200 колоночных объемов в 1 ч приводит к размыванию сорбщионного фронта, что выражается в уменьшении соотношения активностей сорбента в верхней и нижней частях колонки от 14.4 до 4 (рис. 2, δ).

Выводы

Проведенные исследования показали, что цеолит NaX, модифицированный $Cu_2[Fe(CN)_6]$, является ноноситовым сорбентом. Скорость пропускания ис-

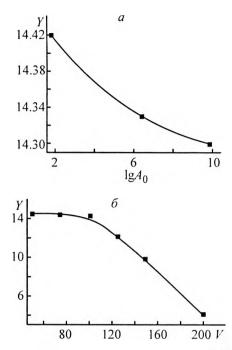


Рис. 2. Зависимости соотношения активностей сорбента в верхней и нижией частях колонки Y от исходной активности раствора A_0 (Бк·л $^{-1}$) (a) и объемной скорости пропускания радиоактивного раствора V (q^{-1}) (δ).

следуемого раствора 75 колоночных объемов в 1 ч оптимальна для извлечения ¹³⁷Cs из питьевой воды.

Синсок литературы

- [1] А.с. 330195 СССР, МКН В 01 J 20/00. Способ получения композиционного сорбента.
- [2] Нониты в химической технологии / Под ред. Б.П.Никольского и П.Г.Романкова. Л.: Химия. 1982. 415 с.
- [3] Салдадзе К.М., Копылова-Валова В.Д. Комплексообразующие пониты. М.: Химия, 1980. 336 с.
- [4] *Когановский А.М.* Адсорбция и понный обмен в процессах водоподготовки и очистки сточных вод. Киев: Наук. думка, 1983. 240 с.
- [5] Berry J.A. et al. // Radiochim. Acta. 1988. V. 44–45. P. 135–141.
- [6] Кудрявцев Г.В., Бернадюк С.З., Лисичкин Г.В. // Успехи химии. 1989. Т. 58. № 4. С. 684–709.
- [7] Бетенеков Н.Д., Губанова А.И., Егоров Ю.В. // Радиохимия. 1976. Т. 18. № 4. С. 622-627.
- [8] Ampflett C.B., McDonald Z.A., Redman M.I. // J. Inorg. Nucl. Chem. 1958. V. 6. N 3. P. 220–235.
- [9] Гельферих Ф. Иониты. М.: ИЛ, 1962. 490 с.
- [10] *Кузнецов Ю.В., Щебетковский В.Н., Трусов А.Г.* Основы очистки воды от радноактивных загрязнений. М.: Атомиздат, 1974. 360 с.
- [11] *Егоров Ю.В.* // Соосаждение и адсорбция радиоактивных элементов. М.; Л.: Наука. 1965. С. 113–117.
- [12] Del Deblio J.A. // Radiochim. Acta. 1991. V. 52–53. Pt 1. P. 181–186.
- [13] Никашина В.А., Заборская Е.Ю., Махалов Е.М. и др. // Радиохимия. 1974. Т. 16. № 6. С. 753–756.