

ПЕРСПЕКТИВЫ РАЗВИТИЯ ТЕХНОЛОГИИ ДЕЗАКТИВАЦИИ ГРУНТОВ



PROSPECTIVE SOILS DECONTAMINATION TECHNOLOGY



В.Б. НИКОЛАЕВСКИЙ, к.х.н. (ГУП МосНПО «Радон»),
П.П. ПОЛУЭКТОВ, д.ф.-м.н. (ВНИИИМ им. академика А.А. Бочвара),
А.Э. АРУСТАМОВ, к.т.н. (ИП «Научно-исследовательский институт
инженерной экологии»)

V.B. NIKOLAYEVSKY, Candidate of Chemical Science (SUE SIA Radon Moscow),
P.P. POLUEKTOV, Doctor of Physics and Mathematical Science (A.A. Bochvar
High-technology Research Institute of Inorganic Materials (VNIINM)),
A.E. ARUSTAMOV, Candidate of Technical Science (Science and Research
Institute of Engineering Ecology)

В связи с актуальностью проблем реабилитации территорий и сокращения объемов радиоактивных отходов, подлежащих долговременному хранению, на ГУП МосНПО «Радон» разрабатывается и проходит испытания новая технология дезактивации грунтов, сочетающая физические и химические методы очистки.

Физический метод удаления из грунта мелкой, наиболее загрязненной фракции путем гидросепарации был реализован на опытно-промышленной установке дезактивации грунтов в НИЦ «Курчатовский институт» [1]. Опыт ее эксплуатации показал, что из-за невысокого коэффициента очистки этот способ позволяет дезактивировать грунты только с низким содержанием радионуклидов. Для более глубокой очистки на ГУП МосНПО «Радон» разработана технология реагентной дезактивации.

РЕАГЕНТНАЯ ОБРАБОТКА

Реагентная дезактивация предполагает обработку грунтов специально подобранным раствором с последующим выделением радиоактивных концентратов из технологических растворов. В результате исследований были определены тип реагента и состав дезактивирующего раствора для очистки почвы, загрязненной радионуклидами цезия, радия, плутония и америция. Степень очистки грунтов составляет 90-99% за одну стадию дезактивации [2, 3]. Важным фактором является температура процесса; при сильнофиксированном загрязнении радионуклидами можно использовать автоклав, позволяющий проводить процесс реагентной обработки при температуре ~160°C.

Эффективность технологии реагентной дезактивации была продемонстрирована при проведении испытаний на опытной установке дезактивации грунтов с вращающимся реактором-смесителем с рабочим объемом 1,5 м³ и электрообогревом (рис. 1). Было дезактивировано 8 т грунта с территории НИЦ «Курчатовский институт», загрязненного ¹³⁷Cs, с исходной удельной активностью 30-150 кБк/кг, партиями по 500-800 кг. В результате очистки остаточная удельная активность снизилась до 0,6-3 кБк/кг, что в несколько раз ниже минимально значимой удельной активности (МЗУА). Максимальная степень извлечения радионуклида состави-

As concerns associated with land remediation and reduction of scopes of radioactive waste that require long-term storage are becoming ever more pressing, Radon Moscow has been developing and testing new technology for soil decontamination, which combines physical and chemical treatment methods.

The physical hydroseparation method for removal of the most contaminated fine fraction was implemented on a pilot soil decontamination plant at the Kurchatov Institute [1]. Operational experience has demonstrated that its relatively low decontamination factor makes this method only suitable for decontamination of soils with low radionuclide content. In order to provide for more advanced soil cleaning, Radon Moscow has developed a decontamination technology whereby treatment is performed using a chemical reagent.

REAGENT TREATMENT

Reagent-aided decontamination implies treatment of soil by a specifically-selected solution with subsequent separation of concentrated radioactive brines from the solutions. As a result of research, the needed type of reagent was identified along with the composition of the decontaminating solution to clean the soil contaminated with radioactive isotopes of caesium, radium, plutonium and americium. The purification factor for soils can be as high as 90-99% after a single stage of decontamination [2, 3]. An important factor is temperature of the process; when treating to remove strongly fixed radionuclides, an autoclave may be used that can perform the reagent-aided process at temperatures around 160°C.

Effectiveness of the reagent-aided decontamination technology was demonstrated through trials performed using a pilot soil decontamination plant with a rotating reactor-mixer with 1.5 m³ active volume and electrical heating (fig. 1). Eight tonnes of ¹³⁷Cs-contaminated radioactive soil extracted from the Kurchatov Institute site were treated, with initial radioactivity ranging within 30-150 kBq/kg, divided into batches of 500-800 kg. As a result of the treatment, residual specific activity levels measured 0.6-3 kBq/kg, several times less than the minimum significant specific activity (MSSA). The maximum radionuclide extraction factor was registered to be 98%. The volume of the waste was reduced 20-fold.

ла 98%. Объем РАО был сокращен в 20 раз.

Таким образом, реагентный способ характеризуется более высоким коэффициентом очистки (~40) по сравнению с сепарационным (~5).

В ходе испытаний определены значения основных технологических параметров реагентной дезактивации грунта и осуществлена проверка работоспособности отдельных аппаратов и узлов установки.

Агитационный режим дезактивации с постоянным перемешиванием во вращающемся реакторе-смесителе дает возможность обработки широкого спектра грунтовых материалов различного гранулометрического состава с крупными включениями. Стендовые испытания показали, что загрязненные грунты более однородного состава, обладающие высокими фильтрационными характеристиками, целесообразней перерабатывать в фильтрационном режиме в аппарате колонного типа. Такой режим, основанный на фильтрации выщелачивающего раствора через слой загрязненного материала, позволяет повысить глубину очистки грунтов и достичь требуемых нормативами значений при более высоком уровне исходного загрязнения. В отличие от агитационного режима, отсутствует необходимость последующего разделения фаз. Были определены основные параметры процесса: концентрация реагента, скорость фильтрации, соотношение контактирующих фаз.

Оба способа реагентной обработки предполагают последующую переработку технологических растворов.

Развитие технологии дезактивации грунтов осуществляется по двум направлениям: создание мобильных установок для снижения транспортных расходов на перевозку загрязненных грунтов к пунктам хранения и разработка более эффективных способов и схем очистки, включая аппаратное оформление процессов.

МОБИЛЬНАЯ УСТАНОВКА

В настоящее время на ГУП МосНПО «Радон» проводятся испытания мобильной установки гидросепарационной дезактивации грунтов производительностью 250 кг/ч (рис. 2). Она состоит из четырех модулей – дезинтеграции, классификации, сгущения и фильтрации, перевозимых на платформе автомобиля. Каждый модуль размещен в силовом транспортном каркасе, сваренном из швеллеров. Для транспортирования может использоваться любое транспортное средство, предназначенное для перевозки стандартных контейнеров.

Использование мобильной установки позволит снизить затраты на транспортировку загрязненного грунта к месту хранения. Очищенный на загрязненном участке территории грунт может быть возвращен на место изъятия, а выделенная мелкодисперсная фракция, составляющая ~15% от исходного объема, подлежит перевозке в пункт долговременного хранения РАО.



Рис. 1. Испытания на опытной установке дезактивации грунтов с вращающимся реактором-смесителем / Fig. 1. Tests on a pilot soil decontamination plant fitted with a rotating reactor-mixer

Therefore, the reagent-aided method provides a far more advanced decontamination factor (~40) as compared to the separation method (~5).

During testing, key technological parameters of the chemical soil decontamination process were established and operability of individual components and assemblies of the plant were verified.

The agitation mode of decontamination, including mixing in the rotating reactor-mixer, enables treatment of a wide range of soils and soil-like materials of various granulometric compositions with large foreign inclusions. Rig tests have demonstrated that contaminated soils of more uniform compositions with higher filtration properties are better treated using the filtration mode in column-type units. This mode, which is based on filtration of the leaching solution through a layer of contaminated material, can help improve the extent of soil purification and assure the required regulatory levels while loading a more contaminated original material. Unlike the agitation mode, there is no need for subsequent phase separation. Key parameters of the process were identified such as reagent concentration, filtration rate, ratio between contacting phases.

Both these methods of reagent-aided treatment demand subsequent treatment of process solutions.

This soil decontamination technology is being further improved in two areas: development of mobile decontamination plants to reduce transport costs associated with contaminated soil delivery to the storage locations, and development of more efficient treatment processes and sequences, including design of specific equipment.

MOBILE PLANT

Radon Moscow is currently testing a mobile hydros separation plant for soil decontamination with a 250 kg/hour production capacity (fig. 2). It consists of four modules used for successive disintegration, classification, concentration and filtration, which can be hauled by a truck. Each module is enclosed within a frame made of welded channel bars. Any transport vehicle suitable for standard overpacks can be used for transportation of the modules.

ГИБРИДНАЯ ТЕХНОЛОГИЯ

Реагентный способ дезактивации может быть использован как самостоятельно, так и для дополнительной более глубокой очистки грунта после сепарации мелкой фракции. Обработка химическими реагентами песчаной фракции грунта позволит существенно повысить общий коэффициент очистки (см. таблицу) и снизить расход реагентов.

Перспективность сочетания двух методов была экспериментально показана на стендовой установке при проведении очистки грунта в режиме фильтрационного выщелачивания в аппарате колонного типа, позволяющем осуществлять гидросепарацию и реагентную обработку грунта в одном аппарате. Такая организация процесса очистки позволит также уменьшить количество необходимого оборудования (отказаться от гидроциклона и классификатора).

Для повышения эффективности дезактивации грунтов проводятся также работы по использованию ультразвука для интенсификации процесса дезинтеграции.

Наиболее эффективным устройством для совмещения двух операций в одном аппарате представляется пульсационная колонна. Такие аппараты используются в гидрометаллургии урана, редких и цветных металлов для процессов классификации пульп с одновременным выщелачиванием ценного компонента [4].

Использование колонн с пульсационным перемешиванием во взвешенном слое очень эффективно. Внутри аппарата может размещаться насадка; для выщелачивания наиболее пригодна насадка КРИМЗ, которая создает упорядоченную гидродинамическую структуру потоков, интенсифицирует перемешивание и придает частицам сложную траекторию движения. В таком аппарате можно осуществлять и гидросепарацию, и выщелачивание с высокой эффективностью, при изменении гранулометрического состава твердого материала в довольно широком диапазоне без существенного изменения скорости подачи раствора, что значительно упрощает эксплуатацию и повышает надежность работы колонны.

Возможность использования пульсационных колонн для гидросепарационной очистки грунта, загрязненного ^{137}Cs , была продемонстрирована во ВНИИНМ им. академика А.А. Бочвара на полупромышленной установке [5]. При производительности до 0,5 т/ч колонна диаметром 0,4 м и высотой 3,5 м обеспечивала очистку до 90% исходного материала. Вес загрязненной радионуклидами мелкой фракции с размером частиц менее 50 мкм не превышал 10% от исходного.

На рисунке 3 показана принципиальная технологическая схема, совмещающая два метода дезактивации – гидросепарацию и обработку химическими реагентами.

Загрязненный грунт сначала поступает на гидросепарацию, где происходит отделение мелкодисперсной, наиболее загрязненной фракции. На этой стадии обработки уровень радиоактивного загрязнения снижается в пять раз. В зависимости от исходного уровня загрязнения, грунт может быть очищен до нормативных значений и отправлен в

ПОКАЗАТЕЛИ ОЧИСТКИ ГРУНТОВ ОТ ^{137}Cs РАЗЛИЧНЫМИ СПОСОБАМИ PARAMETERS OF ^{137}Cs REMOVAL FROM SOIL USING VARIOUS METHODS

Способ дезактивации <i>Decontamination method</i>	Коэффициент очистки грунтов <i>Soil decontamination factor</i>	Коэффициент снижения объема РАО <i>Waste volume reduction factor</i>
Гидросепарация <i>Hydroseparation</i>	5	8
Реагентная обработка <i>Reagent treatment</i>	40	50
Комбинированный <i>Combined</i>	200	20

Mobile plant will help reduce transport costs that would otherwise be required to deliver contaminated soil to the storage location. Treated in-situ formerly contaminated soil can be returned to its place of excavation, while the separated-out fine fraction that accounts for only ~15% of the initial volume will be transported to a long-term radwaste storage location.

HYBRID TECHNOLOGY

The reagent treatment decontamination method can be applied both as a stand-alone process and as an additional stage of deeper soil purification after separation of the fine phase. Treatment of the sand fraction by chemical reagents allows for a much superior overall decontamination factor (see table) and reduced consumption of reagents.

Effectiveness of combining the two methods was demonstrated experimentally on a test rig through filtration-mode treatment of a soil batch using a column unit capable of performing both hydroseparation and reagent treatment of soil within a single vessel. It also helps reduce the amount of equipment required (i.e. leave out the hydrocyclone and classifier).

In order to further advance the efficiency of soil decontamination, work is also on-going to use ultrasound for intensification of the disintegration process.

The pulse column appears to be the most effective device to combine the two operations within the same unit. Such plants are being used in uranium, rare and non-ferrous metals hydrometallurgy for classification of pulps with concurrent extraction of the valuable component [4].

Columns that use pulsation mixing within the suspended layer are very efficient. Inside the vessel, an agitator may be placed; for leaching purposes, the KRIMZ agitator appears to be the most suitable as it provides an orderly hydrodynamic flow structure, intensifies the mixing process and gives the particles a complex

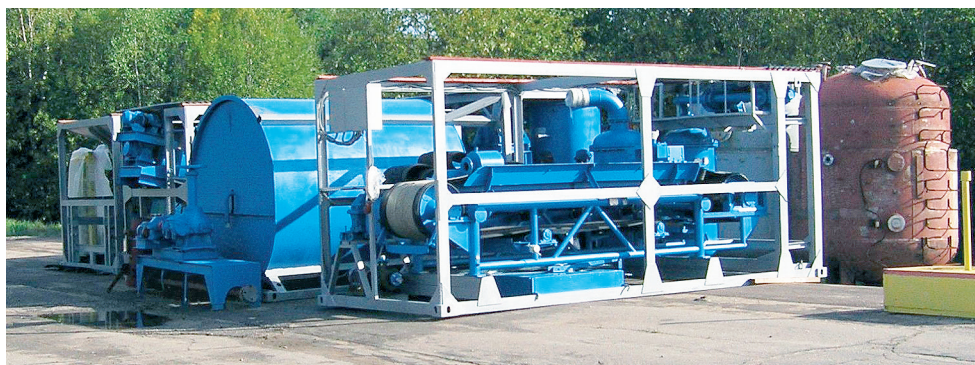


Рис. 2. Мобильная установка для дезактивации грунтов путем гидросепарации
Fig. 2. Mobile plant for decontamination of soil by hydroseparation

отвал. В случае превышения допустимого уровня грунт направляется на стадию реагентной обработки, которая позволяет снизить содержание радионуклидов в десятки раз. После реагентной дезактивации и водной промывки очищенный грунт направляется в отвал, а образующиеся в процессе выщелачивания вторичные ЖРО – на обработку сорбционным или осадительным способом. Выделенный из технологических растворов концентрат РАО объединяют с грязной шламовой фракцией узла гидро-сепарации и направляют на цементирование, а затем на хранение. Очищенный технологический раствор после корректировки состава поступает на реагентную обработку новой партии грунта.

Для реализации совмещенной схемы дезактивации грунтов необходимо решить следующие задачи: разработать и изготовить аппарат для очистки грунта с использованием двух способов очистки; провести его испытание и отработать режимы гидро-сепарации и реагентной обработки грунта; определить оптимальные условия проведения совмещенного процесса очистки; разработать аппаратно-технологическую схему комбинированной установки.

Реализация разработанной схемы позволит значительно повысить коэффициент очистки по сравнению с каждым из них и даст возможность очистки грунта с более высокой исходной удельной активностью и тем самым расширить спектр перерабатываемых материалов. При этом объем РАО, поступающих на хранение, может быть сокращен в 20 раз при коэффициенте очистки около 200.

Литература / References:

1. Волков В.Г. Дезактивация радиоактивно загрязненного грунта в РНЦ «Курчатовский институт» / В.Г. Волков, Ю.А. Зверков, О.П. Иванов и др. // *Атомная энергия*. – 2007. – Т. 103, вып.6. – С. 381-387.
2. Склифасовская Ю.Г. Реагентная очистка грунтов, загрязненных ^{226}Ra , в динамических условиях / Ю.Г. Склифасовская, В.Б. Николаевский, Л.Б. Прозоров // *Радиохимия*. – 2009. – Т. 51, №4. – С. 369-371.
3. Николаевский В.Б. Реагентная очистка грунтов от трансуранных элементов / В.Б. Николаевский, Ю.Г. Склифасовская, М.Н. Сабодина, Н.В. Ключкова // *Атомная энергия*. – 2011. – Т. 111, вып.1. – С. 23-29.
4. Толкачев В.А. Использование взвешенного слоя осадка для разделительных процессов в гидрометаллургии урана и других металлов / В.А. Толкачев // *Цветные металлы*. – 2003. – №4. – С. 48-52.
5. Поляков А.С. Пульсационная техника: функциональность, эффективность, безопасность / А.С. Поляков, Н.А. Науменко, П.П. Полуэктов и др. // *Безопасность окружающей среды*. – 2006. – №1. – С. 32-35.

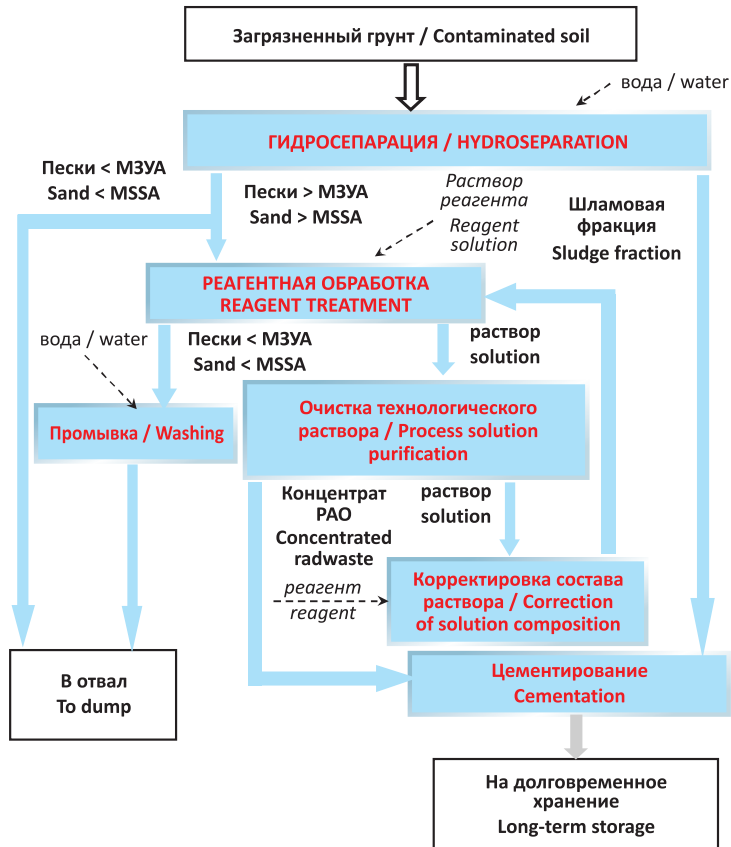


Рис. 3. Принципиальная технологическая схема совмещенного способа дезактивации грунтов / Fig. 3. Basic flow diagram for the combined soil decontamination process

movement trajectory. The unit provides high efficiency of both hydroseparation and leaching within a fairly large range of granulometric compositions of the solid material while maintaining a relatively stable solution feed rate, making column operation significantly simpler and improving its reliability.

The feasibility of pulse columns for hydroseparation treatment of ^{137}Cs contaminated soil was demonstrated by Bochvar VNIINM using a semi-industrial-scale pilot facility [5]. With the production rate of up to 0.5 tonne/hour, a column 0.4 m in diameter and 3.5 m in height provided decontamination up to 90% of the original material. The weight of the contaminated fine fraction with particle size less than $50\ \mu\text{m}$ did not exceed 10% of the original volume.

Figure 3 illustrates the basic process diagram that combines the two methods of decontamination, i.e. hydroseparation and treatment with chemical reagents.

Contaminated soil is first fed to hydroseparation, where the fine – most heavily contaminated

fraction is separated out. During this stage of processing, the levels of radioactive contamination decrease five-fold. Depending on the original level of contamination, the soil may be cleaned all the way to regulatory levels at this stage and sent to a clean soil dump. If the prescribed levels are still exceeded, the soil is supplied to the reagent treatment stage, which ensures that the radionuclide content can be reduced dozens of times. After reagent-aided decontamination and water-washing, the cleaned soil is dumped, while the secondary radwaste resulting from the leaching process is further treated by sorption or sedimentation. The concentrated radwaste separated from the process solutions is then further mixed with the contaminated sludge fraction from the hydroseparation unit and sent to cementation, and therefrom to disposal. The cleaned solution is further chemically corrected and is re-supplied to be used in the reagent-aided treatment of a new batch of soil.

In order to implement the combined soil decontamination process, the following must be completed: develop and make a dual-process soil decontamination unit; test it and refine the hydroseparation and chemical treatment of soil; determine the optimum conditions for the combined decontamination process; develop the detailed flow and specific equipment for the combined-process plant.

Implementation of the developed dual process will help vastly improve the decontamination factor as compared to those that they provide separately, and will enable cleaning of soils with higher levels of initial specific radioactivity, thus expanding the range of materials that can be processed. The volume of the radwaste that will need to be stored may be reduced 20-fold, with the decontamination factor being around 200.