



ФЕДЕРАЛЬНАЯ СЛУЖБА  
ПО ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ,  
ПАТЕНТАМ И ТОВАРНЫМ ЗНАКАМ

**(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ**

(21), (22) Заявка: 2008124546/06, 16.06.2008

(24) Дата начала отсчета срока действия патента:  
16.06.2008

(43) Дата публикации заявки: 27.12.2009

(45) Опубликовано: 10.05.2010 Бюл. № 13

(56) Список документов, цитированных в отчете о  
поиске: RU 2297275 C2, 20.04.2007. RU 2292305 C1,  
27.01.2007. RU 2080174 C1, 27.05.1997. RU  
2223143 C2, 10.02.2004.

Адрес для переписки:

456770, Челябинская обл., г. Снежинск,  
а/я 245, ул. Васильева, 13, ФГПУ "РФЯЦ-  
ВНИИТФ им. академ. Е.И. Забабахина"

(72) Автор(ы):

Овчинников Николай Александрович (RU),  
Грехова Ирина Николаевна (RU),  
Докичев Владимир Анатольевич (RU),  
Ахмадуллин Камиль Рамазанович (RU),  
Томилов Юрий Васильевич (RU),  
Нефедов Олег Матвеевич (RU)

(73) Патентообладатель(и):

Федеральное государственное унитарное  
предприятие "РОССИЙСКИЙ  
ФЕДЕРАЛЬНЫЙ ЯДЕРНЫЙ ЦЕНТР-  
ВСЕРОССИЙСКИЙ НАУЧНО-  
ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ИНСТИТУТ  
ТЕХНИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ ИМЕНИ  
АКАДЕМИКА Е.И. Забабахина" (ФГУП  
"РФЯЦ-ВНИИТФ имени академика Е.И.  
Забабахина") (RU),  
ИНСТИТУТ ОРГАНИЧЕСКОЙ ХИМИИ  
УФИМСКОГО НАУЧНОГО ЦЕНТРА  
РОССИЙСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК (RU),  
ИНСТИТУТ ОРГАНИЧЕСКОЙ ХИМИИ  
ИМЕНИ Н.Д. ЗЕЛИНСКОГО  
РОССИЙСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК (RU)**(54) СПОСОБ ДЕЗАКТИВАЦИИ РАДИОАКТИВНЫХ СРЕД**

(57) Реферат:

Изобретение относится к охране окружающей среды, к области экологии, а именно к области сорбционной технологии, и может быть использовано для дезактивации водных, паводковых, ливневых, техногенных растворов путем извлечения из них  $\alpha$ -,  $\beta$ -,  $\gamma$ -радионуклидов. Сущность изобретения: извлечение ионов металлов из растворов путем сорбции с использованием в качестве сорбента неорганического углеродсодержащего силиката состава  $C\cdot SiO_2$ , причем процесс

осуществляют при значениях pH 3÷10. Техническим результатом изобретения является упрощение технологии дезактивации радиоактивных сред, основанное на использовании сорбента, который является отходом нефтяной промышленности, способного одновременно с высокой эффективностью извлекать из загрязненных сред радиоизотопы Th, U, Pu, Am, Y, Sr, Cs, лантаноидов за счет прочной фиксации извлекаемых радионуклидов в структуре сорбента. 2 табл.



FEDERAL SERVICE  
FOR INTELLECTUAL PROPERTY,  
PATENTS AND TRADEMARKS

**(12) ABSTRACT OF INVENTION**(21), (22) Application: **2008124546/06, 16.06.2008**(24) Effective date for property rights:  
**16.06.2008**(43) Application published: **27.12.2009**(45) Date of publication: **10.05.2010 Bull. 13**

Mail address:

**456770, Cheljabinskaja obl., g. Snezhinsk, a/ja  
245, ul. Vasil'eva, 13, FGUP "RFJaTs-VNIITF im.  
akadem. E.I. Zababakhina"**

(72) Inventor(s):

**Ovchinnikov Nikolaj Aleksandrovich (RU),  
Grekhova Irina Nikolaevna (RU),  
Dokichev Vladimir Anatol'evich (RU),  
Akhmadullin Kamil' Ramazanovich (RU),  
Tomilov Jurij Vasil'evich (RU),  
Nefedov Oleg Matveevich (RU)**

(73) Proprietor(s):

**Federal'noe gosudarstvennoe unitarnoe  
predpriyatie "ROSSIJSKIJ FEDERAL'NYJ  
JaDERNYJ TsENTR-VSEROSSIJSKIJ  
NAUChNO-ISSLEDOVATEL'SKIJ INSTITUT  
TEKhNICHESKOJ FIZIKI IMENI AKADEMIKA  
E.I. Zababakhina" (FGUP "RFJaTs-VNIITF imeni  
akademika E.I. Zababakhina") (RU),  
INSTITUT ORGANICHESKOJ KhIMII  
UFIMSKOGO NAUChNOGO TsENTRA  
ROSSIJSKOJ AKADEMII NAUK (RU),  
INSTITUT ORGANICHESKOJ KhIMII IMENI  
N.D. ZELINSKOGO ROSSIJSKOJ AKADEMII  
NAUK (RU)**

**(54) METHOD FOR DECONTAMINATION OF RADIOACTIVE MEDIUMS**

(57) Abstract:

FIELD: ecology.

SUBSTANCE: invention may be used for decontamination of water, flood, storm, anthropogenic solutions, by means of extraction of  $\alpha$ -,  $\beta$ -,  $\gamma$ - radionuclides. Concept of the invention is as follows: extraction of metal ions from solutions by means of sorption with application of inorganic carbon-bearing silicate as a sorbent having

composition  $C-SiO_2$ , besides process is carried out at values of pH equal to  $3 \div 10$ .

EFFECT: simplified technology of radioactive mediums decontamination, based on usage of sorbent, which is a waste of oil industry, able to simultaneously and efficiently extract radioisotopes Th, U, Pu, Am, Y, Sr, Cs, lanthanides from contaminated medium due to strong fixation of extracted radionuclides in sorbent structure.

Изобретение относится к охране окружающей среды, к области экологии, а именно к области сорбционной технологии, и может быть использовано для дезактивации водных, паводковых, ливневых, техногенных растворов путем извлечения из них  $\alpha$ -,  $\beta$ -,  $\gamma$ -радионуклидов.

Известны следующие способы дезактивации радиоактивных сред:

- физические - выпаривание или вымораживание растворов с последующей иммобилизацией и захоронением шламов (например, см. заявку на изобретение №2003103213, МПК<sup>7</sup> G21F 9/16, 2004 г.; патент RU №2171509, МПК<sup>7</sup> G21F 9/06, 2006 г.);

- химические (реагентные) способы, осуществляющиеся путем соосаждения радионуклидов из растворов на осадках, образующихся в результате химического взаимодействия реагентов различной природы (например, см. патент РФ №2200354, МПК<sup>7</sup> G21F 9/06, 2003 г., патент РФ №2217823, МПК<sup>7</sup> G21F 9/04, 2003 г.);

- физико-химические:

а) экстракция радионуклидов из растворов селективными реагентами с доочисткой растворов (например, см. патент РФ №2234549, МПК<sup>7</sup> C22B 60/02, 2004 г.);

б) сорбция радиоактивных ионов природными и синтетическими сорбентами с последующим обессоливанием и концентрированием электромембранным способом или обратным осмосом (например, см. патенты РФ №2101235, МПК<sup>7</sup> C02F 9/00, 1998 г., №2118945, МПК<sup>7</sup> C02F 1/28, 1999 г.);

в) дезактивация растворов электродиализаторами (например, А.А.Хоникевич «Дезактивация сбросных вод». М.: Атомиздат, 1966 г., стр.148).

Недостатками указанных способов дезактивации радиоактивных сред являются для:

- физических - высокие энергозатраты на упарку и вымораживание растворов;

- химических - большие объемы отходов, подлежащих захоронению, многооперационность, трудоемкость обезвоживания пульпового осадка;

- физико-химических - высокая стоимость экстрагентов и сорбентов, образование вторичных отходов при их производстве, многооперационность при технологическом оформлении способов, жесткие требования к автоматизации производства.

Общим недостатком перечисленных способов является практическая невозможность их использования при радиоактивном загрязнении больших акваторий и низкая удельная производительность.

Наиболее близким и выбранным в качестве прототипа является способ, описанный в патенте РФ №22297275С, МПК<sup>7</sup> B01J 20/02, C02F 1/28 от 15.06.2005 г. под названием «Способ извлечения ионов металлов из водных растворов».

Согласно способу, заявленному в прототипе, извлечение ионов металлов из водных растворов осуществляют путем сорбции с использованием в качестве сорбента неорганического силиката. Недостатками способа являются:

- низкие кинетические характеристики процесса сорбции, т.к. динамическое равновесие в системе сорбент / сорбат достигается в течение 6 часов;

- высокая дисперсность сорбента (менее 0,1 мм), обуславливающая применение для разделения фаз после осуществления процесса сорбции дополнительного оборудования;

- изменение природного (естественного) химического качества очищаемого водного раствора в результате растворения сорбента;

- десорбция сорбированных ионов ввиду отсутствия их прочной фиксации в структуре сорбента и, как следствие, невозможность его длительной консервации в объектах окружающей среды;

- низкая удельная производительность.

Таким образом, заявляемое изобретение направлено на решение задачи по повышению эффективности способа дезактивации радиоактивных сред, улучшению и расширению его эксплуатационных возможностей.

Технический результат, который позволяет решить поставленную задачу, заключается в упрощении технологии дезактивации радиоактивных сред, основанный на использовании сорбента, являющегося отходом нефтяной промышленности, способного одновременно с высокой эффективностью извлекать из загрязненных сред радиоизотопы Th, U, Pu, Am, Y, Sr, Cs, лантаноиды за счет прочной фиксации извлекаемых радионуклидов в структуре сорбента.

Это достигается тем, что в способе дезактивации радиоактивных сред, включающем извлечение ионов металлов из растворов путем сорбции с использованием в качестве сорбента неорганического силиката, согласно изобретению используют углеродсодержащий силикат состава  $C \cdot SiO_2$ , причем процесс осуществляют при значениях pH 3÷10.

В основе процесса сорбции лежит физико-химический механизм гетеровалентного изоморфизма на сколах граней углеродсодержащего силиката, несущих нескомпенсированный заряд на контактной поверхности сорбента с раствором. Установленный механизм сорбции определяет высокую эффективность и кинетику процесса сорбции, прочную фиксацию извлекаемых из растворов радионуклидов, неизменность природного (естественного) химического состава дезактивированных сред.

Наличие в заявляемом изобретении признаков, отличающих его от прототипа, позволяет считать его соответствующим условию «новизна».

Новые признаки способа (проведение дезактивации с использованием в качестве сорбента углеродсодержащего силиката состава  $C \cdot SiO_2$ , при этом процесс осуществляют при значениях pH 3÷10) не выявлены в технических решениях аналогичного назначения. На этом основании можно сделать вывод о соответствии заявляемого изобретения условию «изобретательский уровень».

Предлагаемый способ осуществляют следующим образом.

В емкость с водным раствором, содержащим металлы природного и техногенного состава, помещают предлагаемый сорбент. Производят перемешивание. Кислотность процесса сорбции варьируется в диапазоне pH 3÷10, температура 20-22°C. По окончании эксперимента определяют коэффициент распределения Kd используемого сорбента путем измерения исходной  $C_0$  (до сорбции), равновесной C (после сорбции) концентрации контролируемых радиоизотопов. Вычисления коэффициента распределения производят по формуле:

$$Kd = (V_p / m_c)(C_0 - C) / C, \quad (1)$$

где: Kd - коэффициент распределения;

$V_p$  - объем исследуемого раствора, л;

$m_c$  - масса сорбента, кг;

$C_0$  - исходная объемная концентрация внесенного радионуклида в исследуемую среду, Бк;

C - равновесная объемная концентрация радиоизотопа в водном или почвенном растворе после сорбции, Бк.

Предлагаемое техническое решение иллюстрируется следующим примером.

Пример 1

В емкость вносят 100 мл раствора природной воды с общим солесодержанием 1÷5

г/л. Кислотность раствора варьируют 5% растворами  $\text{HNO}_3$  или  $\text{NaOH}$  в диапазоне рН 3÷10. Концентрацию радиоизотопов в растворе создают внесением расчетного количества стандартных радиоактивных источников на уровне ~4500 Бк / л. Затем добавляют сорбент в количестве, необходимом для создания в растворе концентрации его 3÷4,5 г / л. Геометрический размер сорбента составляет 0,2÷0,3 мм. Раствор при  $t^\circ=20\div22^\circ\text{C}$  перемешивают в течение 10 мин. По окончании перемешивания раствор центрифугируют, определяют в аликвоте раствора конечную концентрацию контролируемых радионуклидов спектрометрическим методом. Рассчитывают величины  $K_d$  для каждого радионуклида по приведенной формуле (1).

В таблице 1 приведены результаты сравнения сорбционных свойств материала состава прототипа и предлагаемого состава  $\text{C}\cdot\text{SiO}_2$ .

Таблица 1		
Извлекаемый из среды загрязнитель	Прототип	Предлагаемый сорбент
	Коэффициент распределения $K_d$	Коэффициент распределения $K_d$
Th	$>6,5\cdot 10^4$	$>4,8\cdot 10^5$
U	$1,4\cdot 10^4$	$>2\cdot 10^4$
Pu	нет данных	$>5,1\cdot 10^4$
Sr	нет данных	145
Cs	$>2,4\cdot 10^3$	$>3\cdot 10^4$
Y	нет данных	$>1\cdot 10^5$
La-Lu	$>1,8\cdot 10^5$	$>2,3\cdot 10^3$

### Пример 2

Используемый (в примере 1) сорбент количественно выделяют, промывают дистиллированной водой и переносят в три емкости V-150 мл. В каждую емкость соответственно вносят свой дезактивирующий раствор, который периодически подвергают перемешиванию. После 45 дней контакта отбирают аликвоту раствора и определяют в ней концентрацию контролируемых радионуклидов спектрометрическим методом. Результаты величины концентрации десорбированных радионуклидов приведены в таблице 2.

Таблица 2			
Десорбируемый радионуклид	Десорбирующая среда		
	Природная вода	Раствор $\text{NaOH}$ (рН 12)	Раствор $\text{HNO}_3$ (рН 2)
Th	не обнаружено**	не обнаружено	не обнаружено
U	-	-	-
Pu	-	-	-
Sr	-	-	-
Cs	-	-	-
Y, La-Lu	-	-	-

\* - контакт в течение 45 дней;  
 \*\* - минимально измеряемая активность за время измерения 3600 с для погрешности 20% доверительного интервала 0,95 при измерении  $\alpha$ -излучающих нуклидов - 0,006 Бк;  $\beta$ -излучающих нуклидов - 0,01 Бк;  $\gamma$ -излучающих нуклидов - 0,02 Бк.

Положительным эффектом предлагаемого технического решения является увеличение коэффициента распределения сравниваемых ионов металлов. Эффективность сорбента практически не изменяется при его применении в диапазоне рН дезактивируемого раствора, равном 3÷10. Динамическое равновесие в системе сорбент / сорбат наступает в течение 10 минут, при этом происходит прочная фиксация исследуемых радионуклидов в структуре сорбента.

Использование настоящего изобретения позволило повысить производительность и

5 эффективностью способа, сократить многооперационность при разделении фаз жидкое-  
твердое, повысить кинетические характеристики сорбции, увеличить скорость и  
удельную производительность процесса сорбции, уменьшив время наступления  
динамического равновесия в системе сорбент / сорбат до 10 минут (в прототипе 6  
10 часов); снизить дисперсность сорбента, облегчающую разделение фаз после  
осуществления процесса сорбции, а также не только эффективно решить  
технологические задачи удаления большого числа металлов из природных,  
паводковых и техногенных вод, но и отверждать, иммобилизовать сорбционный  
15 продукт в составе геоцемента.

Для заявленного изобретения в том виде, как оно охарактеризовано в формуле  
изобретения, подтверждена возможность осуществления способа дезактивации  
радиоактивных сред и способность обеспечения достижения усматриваемого  
заявителем технического результата.

15 Следовательно, заявленное изобретение соответствует условию "промышленная  
применимость".

#### Формула изобретения

20 Способ дезактивации радиоактивных сред, включающий извлечение ионов  
металлов из растворов путем сорбции с использованием в качестве сорбента  
неорганического силиката, отличающийся тем, что используют углеродсодержащий  
силикат состава  $C \cdot SiO_2$ , причем процесс осуществляют при значениях pH 3÷10.

25

30

35

40

45

50