

УДК 65.01.12.8

**ПРИМЕНЕНИЕ АМОРФНОГО ДВУОКСИДА КРЕМНИЯ
($\text{SiO}_2 \text{ n } \text{H}_2\text{O}$) ДЛЯ ОЧИСТКИ ТЕХНОЛОГИЧЕСКИХ СБРОСОВ**

Канд. физ.-мат. наук К.Т. Тогжигитов
Доктор физ.-мат. наук Ж.С. Тулеубаев

В данной работе рассматривается эффективность применения силикагеля ($\text{SiO}_2 \text{ n } \text{H}_2\text{O}$) для дезактивизации жидких отходов как дешевый сорбент, имеющий большую удельную поверхность и высокую емкость.

Очистка технологических сбросов, как известно, является одной из важных и трудных задач в атомной, радиохимической промышленности непосредственно связанной с проблемой защиты и охраны окружающей среды /1-3/.

При переработке отходов атомных станций необходимо добиться извлечения до установленных норм долгоживущих α , β и γ -излучателей и высокотоксичных веществ. Среди ионов металлов наибольшее практическое значение в водных растворах имеют радионуклиды Th, Pa, U, Pu, P, и других актиноидов, а также Sr, Cs, Zr, Nb, Ru и Ce. На практике большинство этих элементов может быть сорбировано на силикагеле ($\text{SiO}_2 \text{ n } \text{H}_2\text{O}$) /1/.

Использование силикагеля, как адсорбента можно проводить следующими методами: 1) непосредственно осаждая гель в растворе, перемешивая готовый силикагель в растворе и затем отделяя его фильтрацией; 2) в динамическом режиме, пропуская очищаемый раствор через слой силикагеля.

Для очистки водных растворов от радионуклидов осаждением силикагеля применяли HCl, FeCl₃, CO₂, H₃PO₄ и NaH₂PO₄ /5/.

По данным работы /5/ для очистки растворов силикагелем необходимое время составляет при использовании динамического метода 0,5 минуты, статического 15 минут и при осаждении геля непосредственно в загрязненных радионуклидами растворах – от 1 до 24 ч /5/.

Особенно эффективно с помощью силикагеля можно удалить Cs¹³⁷ 1 г сорбента из 600 мл • 10⁻⁴ н. раствора поглощал 99,5% его активности /3/.

В оптимальных условиях из водных растворов удалялось до 100% активности.

Силикагель можно применять для дезактивации жидких отходов как дешевый сорбент, имеющий большую удельную поверхность и высокую обменную емкость /4/.

Поверхность сорбента для однородной пористой структуры равна:

$$S = \frac{3(1-\varepsilon)}{r}, \quad (1)$$

где: r – радиус частиц,
 ε – свободный объем сорбента.

Для учета частиц неправильной формы введен гидравлический радиус ρ :

$$\rho = \frac{\varepsilon r}{3(1-\varepsilon)}. \quad (2)$$

Тогда с учетом (2):

$$S = \frac{\varepsilon}{\rho}.$$

Внутренняя поверхность сорбента прямо пропорциональна свободному объему и обратно пропорциональна гидравлическому радиусу.

Скорость адсорбированного свойства реакции, отнесенная к единице объема зерна сорбента, равна:

$$W = v_{(c)} \frac{3(1-\varepsilon)}{r} \eta = v_{(c)} \frac{\varepsilon}{\rho} \eta; \quad (4)$$

$$W = v_{(c)} \frac{\varepsilon}{\rho} \eta; \quad (5)$$

$$W = v_{(c)} S \eta, \quad (5')$$

где: $v_{(c)}$ – скорость реакции;

η – степень использования внутренней поверхности.

Из (5) формулы видно, что скорость адсорбционного свойства тем меньше, чем больше падение концентрации внутри зерна сорбента.

Она определяется соотношением скорости реакции и скорости внутренней диффузии. Эта величина безразмерного параметра равна:

$$\psi = L \left(\frac{a(0)}{D \rho C_n} \right)^{0.5},$$

где: L - определяющий размер зерна;
 D - коэффициент диффузии;
 C_n - концентрация реагирующего вещества.
 Степень использования η зависит от соотношения:

$$\eta = \frac{W\rho}{\nu_{(C)}\varepsilon},$$

при $\rho < \varepsilon$ - определяемый размер сорбента мал,
 при $\rho \approx \varepsilon$ - определяемый размер должен быть максимальным.

Нами получены оптимальные показатели для исходного силикагеля КСК при температуре 550°C и флюенсе реакторного облучения равном 10^{14} нейтрон см^{-2} .

При этой же температуре отжига и флюенсе реакторного облучения радиус частиц достигает максимального значения.

С ростом температуры отжига и флюенса реакторного облучения наблюдали переход силикагеля в другую фазу: α -кristобалит с тетрагональной решеткой и параметрами $c=7,11\text{\AA}$, $a=4,95\text{\AA}$, $\frac{c}{a} = 1,44$, $d \approx 1,12 \dots 4,26\text{\AA}$.

Как указывалось в работе /6/ сорбция ^{233}Pa силикагелем зависит от размера пор сорбента (рис. 1). Крупнопористый силикагель марки КСК ($r_n=70\text{\AA}$; $S=350\text{ м}^2/\text{г}$) сорбирует ^{233}Pa лучше, чем силикагель КСМ ($r_n=11\text{\AA}$; $S=624\text{ м}^2/\text{г}$) силикагель МСА ($r_n=200\text{\AA}$; $S=72\text{ м}^2/\text{г}$).

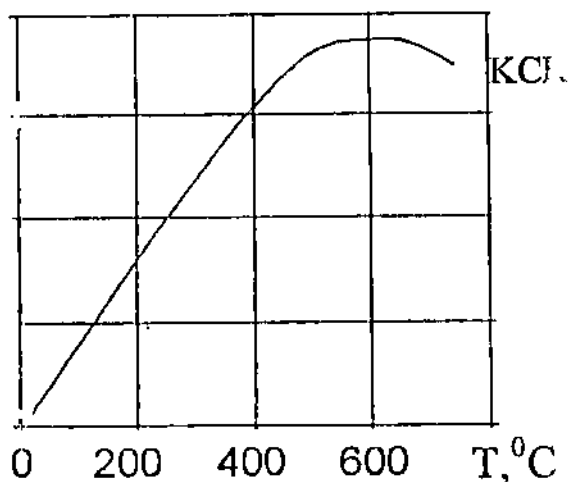


Рисунок 1

Это объясняется значительным уменьшением удельной поверхности и количества групп ОН на единицу массы сорбента /6/.

Для адсорбции радионуклидов из экспериментальных данных нами получены размеры оптимальной структуры силикагеля КСК(рис.2):

$$S=350 \text{ м}^2/\text{г}, v_n=0.8+1.19 \text{ см}^3/\text{г} \text{ и } r_n=70 \text{ \AA}.$$

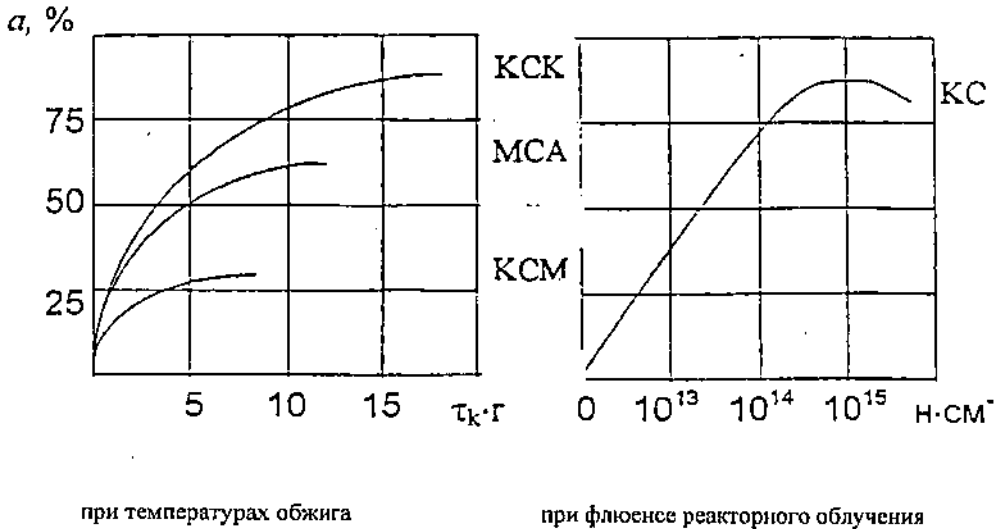


Рисунок 2

Увеличение или уменьшение эффективного радиуса пор и поверхности силикагелей приводит к заметному ухудшению сорбционной способности силикагеля.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Лаксорин Б.Н., Стрелко В.В., Денисов В.И. Сорбенты на основе силикагеля в радиохимии. Химические свойства. М., 1977, 304 с.
2. Krawszynski S.J. В Radioaktive Abtdlle. Aufbereitung - Lagerung - Beseitigung. Мюнхен, Verlag Karl Thiemig KG, 1967, S.252-253.
3. Кузнецов Ю.В., Щебетковский В.Н., Трусов А.Г. Очистка воды от радиационноактивных загрязнений. Изд. 2-е переработ. и доп. Под ред. В.М. Вдовенко - М. Атомиздат, 1974.

4. Милоне М., Четинел Д., Рикка Ф. Удаление следов радиоактивных элементов из водных растворов. Докл. на II Международной конференции по мирному использованию атомной энергии. Женева, 1959.
5. Horski J. Rept. № 636. Inst badan jadrom PAN, Warszawa, 1965.
6. Caletco R. Separacion of PaOH silicagel from solutions of HCl and H₂SO₄ – "Coll, Czech. Chem. Commun", 1972, №37, №4, p. 1267-1276.

Таразский государственный университет им. М.Х. Дулати

ТЕХНОЛОГИЯЛЫҚ СҰЙЫҚ ҚАЛДЫҚТАРДЫ ТАЗАЛАУҒА
АМОРФТЫ ҚОСТОТЫҚТЫ КРЕМНИЙДІ
(SiO₂ N H₂O) ҚОЛДАНУ

Физ.-мат.ғыл.канд,
Физ.-мат.ғыл.докторы

К.Т.Тоқжігітов
Ж.С.Тулеубаев

Сұйық қалдықтарды зиянсыздандыруға өзі арзан сорбент ретінде жоғары сымдылығы және бөлшекті жазықтығы көлемді силикагельді (SiO₂ N H₂O) пайдаланудың жоғары көрсеткіштілігі қарастырылған.