

УДК 53.092; 538.93; 542.61

## МАТЕРИАЛЫ И ПРОБОПОДГОТОВКА ДЛЯ МОДЕЛИРОВАНИЯ СВЕРХКРИТИЧЕСКОЙ ФЛЮИДНОЙ ЭКСТРАКЦИИ УРАНА В СРЕДЕ ДИОКСИДА УГЛЕРОДА

Б.В. Борц<sup>1</sup>, И.Г. Гончаров<sup>1</sup>, А.В. Мазиллов<sup>1</sup>, С.Ф. Скоромная<sup>1</sup>, В.И. Ткаченко<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> ННЦ "Харьковский физико-технический институт"

Украина, г. Харьков, ул. Академическая, 1, 61108

E-mail: [borts@kipt.kharkov.ua](mailto:borts@kipt.kharkov.ua)

<sup>2</sup> Харьковский национальный университет имени В.Н. Каразина

Украина, г. Харьков, пл. Свободы, 4, 61022

E-mail: [tkachenko@kipt.kharkov.ua](mailto:tkachenko@kipt.kharkov.ua)

Received 19 October 2012, accepted 16 November 2012

Дано описание установки сверхкритической флюидной экстракции комплексов урана в среде диоксида углерода, а также измерительного оборудования для проведения анализа исследуемых материалов. Описан метод отбора гранитов, которые используются для моделирования материалов отвалов техногенных месторождений или отработавшего ядерного топлива атомных реакторов. Дано описание метода пробоподготовки и анализа экстракта на содержание урана. На примере марок гранитов с повышенным содержанием урана показано, что методы отбора образцов исходного материала и пробоподготовки могут быть использованы для моделирования сверхкритической флюидной экстракции диоксидом углерода комплексов урана из материалов атомной энергетики.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** установка сверхкритической флюидной экстракции, метод отбора гранитов, метод пробоподготовки, сверхкритическая флюидная экстракция.

## MATERIALS AND SAMPLE PREPARATION FOR SIMULATION OF SUPERCRITICAL FLUID EXTRACTION OF URANIUM IN CARBON DIOXIDE MEDIUM

B.V. Borts<sup>1</sup>, I.G. Goncharov<sup>1</sup>, A.V. Mazilov<sup>1</sup>, S.F. Skoromnaya<sup>1</sup>, V.I. Tkachenko<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> National Science Center "Kharkiv Institute of Physics and Technology"

1, Akademicheskaya St., Kharkov, Ukraine

<sup>2</sup> V.N. Karazin Kharkiv National University

4, Svobody Sq., Kharkov, Ukraine, 61022

A description of the installation for the supercritical fluid extraction of uranium complexes in the carbon dioxide medium, as well as instrumentation for the analysis of the test materials are presented. A method of selection of granites, which are used to modeling the material of technogen dumps of nuclear power or nuclear fuel of nuclear reactors are described. A description of the method of sample preparation and analysis of extracts on maintenance of the uranium are presented. On the example of the different kinds of granites with elevated content of the uranium it is shown that the methods of sampling and sample preparation of the starting material can be used for modeling of supercritical fluid extraction with carbon dioxide complexes of uranium from materials of nuclear power.

**KEY WORDS:** installation of supercritical fluid extraction, method for the selection of granites, sample preparation method, supercritical fluid extraction.

## МАТЕРІАЛИ І ПРОБОПІДГОТОВКА ДЛЯ МОДЕЛЮВАННЯ НАДКРИТИЧНОЇ ФЛЮІДНОЇ ЕКСТРАКЦІЇ УРАНУ В СЕРЕДОВИЩІ ДІОКСИДУ ВУГЛЕЦЮ

Б.В. Борц<sup>1</sup>, І.Г. Гончаров<sup>1</sup>, О.В. Мазілов<sup>1</sup>, С.Ф. Скоромна<sup>1</sup>, В.І. Ткаченко<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> ННЦ «Харківський фізико-технічний інститут»,

Україна, м. Харків, вул. Академічна, 1, 61108

<sup>2</sup> Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна,

Україна, м. Харків, пл. Свободи, 4, 61022

Дано опис установки надкритичної флюїдної екстракції комплексів урану в середовищі діоксиду вуглецю, а також вимірювального устаткування для проведення аналізу досліджуваних матеріалів. Описано метод відбору гранітів, які використовуються для моделювання матеріалів відвалів техногенних родовищ або відпрацьованого ядерного палива атомних реакторів. Дано опис методу пробопідготовки і аналізу екстракту на вміст урану. На прикладі марок гранітів з підвищеним вмістом урану показано, що методи відбору зразків вихідного матеріалу і пробопідготовки можуть бути використані для моделювання надкритичної флюїдної екстракції діоксидом вуглецю комплексів урану з матеріалів атомної енергетики.

**КЛЮЧОВІ СЛОВА:** установка надкритичної флюїдної екстракції, метод відбору гранітів, метод пробопідготовки, надкритична флюїдна екстракція

Неводные, "сухие" методы экстракции, создающие минимальное количество жидких отходов, являются в последнее время предметом пристального интереса исследователей. Одним из таких методов является сверхкритическая флюидная экстракция газами (CO<sub>2</sub>, метан, этан, пропан, этилен, пропилен, фреоны) и жидкостями (метанол, этанол, ацетон, аммиак), которые характеризуются приемлемыми критическими

температурой и давлением [1]. На фоне перечисленных сверхкритических флюидов особняком выделяется сверхкритическая вода, также являющаяся хорошим растворителем. Однако, ее критические параметры достаточно высоки (критическая температура 373,9 °С, критическое давление 220,6 МПа), и для реализации такой технологии необходимо решать сложные технические задачи.

Сверхкритическая флюидная экстракция — процесс перевода одного или нескольких предварительно подготовленных материалов в твердой или жидкой фазе в «сверхкритический газ» - флюид. Этот процесс происходит при контактировании смеси разделяемых материалов с растворителем (экстрагентом), который находится при температуре и давлении выше критических.

Использование в качестве экстрагента флюидов в сверхкритическом состоянии позволяет производить практически полную переработку исходного сырья в различных промышленных технологиях: фармацевтической, пищевой, парфюмерной, нефтехимической, и т.д.

В качестве экстрагентов наибольшее распространение получил CO<sub>2</sub> из-за его высокой растворяющей способности, дешевизны, доступности, нетоксичности и невысоких критических параметров (критическая температура 31,3 °С, критическое давление 7,36 МПа).

Поскольку CO<sub>2</sub> является составляющей атмосферного воздуха, то он может быть изъят, а затем возвращен в атмосферу без каких либо последствия для экологии. Таким образом, сверхкритический CO<sub>2</sub> можно считать экологически чистым растворителем.

Сверхкритический CO<sub>2</sub> (СК – CO<sub>2</sub>) характеризуется более низкой (на 1-2 порядка) вязкостью по сравнению с обычными жидкостями. Его коэффициент диффузии на 2-3 порядка больше, а плотность в несколько раз меньше, чем у обычной жидкости. Растворяющая способность СК – CO<sub>2</sub> сильно зависит от температуры и давления, что позволяет варьированием последних обеспечить селективную экстракцию, а также значительно сократить время экстракции.

В последнее время значительный интерес ученых прикован к исследованию СФЭ – CO<sub>2</sub> экстракции материалов атомной энергетики (МАЭ), куда следует отнести урансодержащие минералы, материалы, содержащиеся в хвостохранилищах урандобывающих производств, урановую руду, отработавшее ядерное топливо, радионуклиды, заражающие почву Чернобыльской зоны отчуждения (Украина) или зоны отчуждения АЭС Фукусима - 1 (Япония).

Поскольку работа с радиоактивными материалами сопряжена со значительными рисками, представляется интересным использовать в качестве материалов, моделирующих МАЭ, природные урансодержащие минералы. Как показано в работах [2-5], в качестве таковых возможно использовать различные марки гранитов, как наиболее доступные и характеризующиеся высокими уровнями концентрации урана. При этом необходимо из различных марок гранитов отбирать граниты, содержащие максимальное количество урана. В этой связи интересной представляется методика определения количества излучающих радионуклидов по гамма-спектрам. После отбора гранита ключевым элементом при проведении СФЭ – CO<sub>2</sub> экстракции является пробоподготовка, т.е. придание экстрагируемому материалу свойства растворяться в СК – CO<sub>2</sub>.

Поэтому целью настоящей работы является описание методики определения количества излучающих радионуклидов по гамма-спектрам в исходном материале, а также методики пробоподготовки.

### ОПИСАНИЕ, ОБЩИЙ ВИД И ПОРЯДОК РАБОТЫ УСТАНОВКИ СФЭ-CO<sub>2</sub>

СФЭ - CO<sub>2</sub> – экстракция комплексов урана проводилась на установке сверхкритической флюидной экстракции СФЭ - U, внешний вид которой и блок-схема приведен на рис. 1.2. соответственно. Установка позволяет поднимать давление СК - CO<sub>2</sub> до 20,0 МПа, и удерживать температуру СК - CO<sub>2</sub> до 50 °С. Основные параметры установки приведены в таблице 1. Регулирование температуры и давления в разных местах установки обеспечивается цифровыми термостатами и баростатами, которые позволяют регулировать параметры системы в автоматическом, полуавтоматическом и ручном режимах.

При проведении экстракций был использован углекислый газ, отвечающий требованиям ГОСТ 8050-85, с объемным содержанием CO<sub>2</sub> 99,8 %.

На установке СФЭ - U экстракция выполнялась таким образом.

Через перепускной клапан (27) диоксид углерода из баллона (1) поступает на компрессор КПВ1А (2) и далее через влагомаслоотделитель (3) и клапаны (22, 23) поступает в ресивер (5). С помощью нагревателя ресивера (6), управляемого цифровым регулятором давления (11) и температуры (14) создается рабочее давление диоксида углерода. Достигнув параметров сверхкритического состояния, СК - CO<sub>2</sub> поступает в реактор (17) (в котором расположено определенное количество вещества, которое экстрагируется), где происходит процесс сверхкритической экстракции. Температура флюида в экстракторе измеряется хромель-алюмелевой термопарой (14), которая введена непосредственно в объем вещества, которое исследуется, через корпус реактора с использованием специального уплотнителя. Давление СК - CO<sub>2</sub> в экстракторе измеряется образцовым манометром класса точности 0,2, а также цифровым баростатом, который управляет, с датчиком Honeywell (USA).

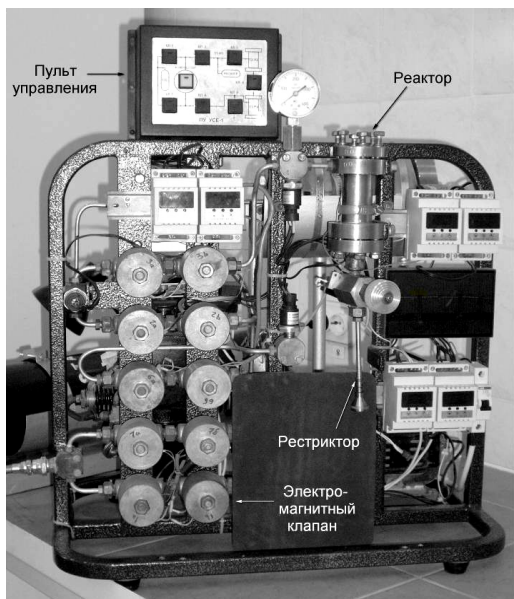


Рис. 1. Общий вид установки сверхкритической флюидной экстракции СФЭ – U

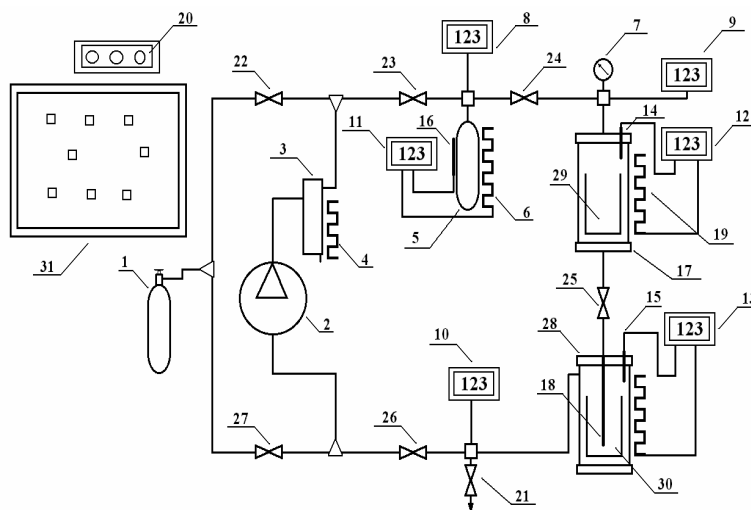


Рис. 2. Блок-схема установки СФЭ – U

1. Газовый баллон CO<sub>2</sub>;
2. Компрессор КПВ1А;
3. Влагомаслоотделитель;
4. Нагреватель масляного фильтра;
5. Ресивер;
6. Нагреватель ресивера;
7. Манометр контрольный, стрелочный;
- 8-10. Датчики давления, цифровые;
- 11-13. Датчики температуры, цифровые;
- 14-16. Термопары;
17. Реактор;
18. Капиллярный restrictor;
19. Нагреватель реактора;
20. Контрольный индикатор остаточного давления в системе;
21. Выпускной кран Маевского;
- 22-27. Перепускные клапаны;
28. Испаритель;
29. Проба;
30. Экстракт;
31. Блок управления.

Таблица 1.

Параметры установки

Параметр	Значение
Рабочее давление (компрессор КПВ-1А)	0,1 - 20 МПа (1 - 200 атм)
Максимальное рабочее давление	22 МПа
Коммутация газовых потоков	Электромагнитные клапаны
Объем реактора	10 - 100 мл
Температура реактора	20 – 60 °С
Температура restrictора	20 – 100 °С
Максимальная подача CO <sub>2</sub>	500 моль/мин
Температура ресивера	20 – 90 °С

Из экстрактора раствор вещества, который исследуется, в СК - CO<sub>2</sub> последовательно проходит через клапан (25), который обогревается, далее через капилляр, который обогревается, изготовленный из нержавеющей стали 12Х18Н10М, на выходном конце которого расположена форсунка с внутренним диаметром 50-200 мкм – restrictor (18), где имеет место падение давления и растворитель утрачивает свою растворяющую способность. Растворенный компонент (30) вместе с диоксидом углерода, который находится в обычном состоянии (не в СК - CO<sub>2</sub>), поступает в испаритель (28).

В зависимости от технологических заданий, оборудование позволяет, не нарушая герметичность системы, проводить неограниченное количество циклов экстракции. Для этого перекрывается доступ диоксида углерода, который поступает из испарителя, в баллон (1) за счет перекрытия электромагнитного клапана (26). В случае одноактного процесса экстракции клапан (26) перекрывается и через выпускной клапан Маевского (21) CO<sub>2</sub> выпускается из испарителя (18) в атмосферу.

Извлечение полученного элемента из испарителя выполняется после достижения атмосферного давления в испарителе, при этом срабатывает (гаснет) контрольный индикатор остаточного давления в системе (20). Этот же индикатор используется при промывании (вытеснения воздуха из системы) диоксидом углерода при избыточном давлении до 0,3 МПа – пороге срабатывания индикатора (20). Система температурного контроля обеспечивает точность удержания температуры ±1 °С.

Блок управления (31) позволяет проводить работы, как в ручном, так и в полуавтоматическом режимах.

Размещение образцов в реактор осуществлялось в специально изготовленном цилиндре – пробоприемнике из нержавеющей стали ( $\Phi = 20$  мм,  $h = 35$  мм). При смене образцов пробоприемник продувался очищенным сжатым воздухом с давлением до 0,6 МПа, или промывался специальными составами (в зависимости от химического состава исследуемого образца) с дальнейшей сушкой в потоке сжатого воздуха.

Таким образом, описанная выше установка СФЭ – У способна обеспечить режим сверхкритической флюидной экстракции урансодержащих исходных образцов в углекислом газе в диапазоне давлений 7,3 - 20 МПа и температур 20 – 60 °С, как в ручном, так и в полуавтоматическом режимах.

## АНАЛИТИЧЕСКОЕ ОБЕСПЕЧЕНИЕ

### Рентгеновский флуоресцентный анализатор КРАБ – ЗУМ

Определение химического состава проб целевых материалов после проведения СФЭ - CO<sub>2</sub> экстракции осуществлялось на рентгеновском бездифракционном анализаторе КРАБ – ЗУМ [6].

Метод рентгеновского флуоресцентного анализа широко используется для определения химического состава проб. Суть метода заключается в измерении интенсивности характеристического рентгеновского излучения атомов пробы, которые возбуждаются рентгеновским излучением с энергией, достаточной для эффективной ионизации К или L уровней исследуемых атомов. Поскольку проведение абсолютных измерений является крайне сложной задачей, обычно проводят относительные измерения, используя калибровочные зависимости, полученные для образцов с известными количествами исследуемых атомов. Употребление в качестве эталонных образцов, образцов той же геометрии и наполнения балластными соединениями позволяет уменьшить влияние этих факторов на точность определения количества исследуемых атомов.

Выбор рентгеновского флуоресцентного анализа для определения количества урана в исследуемых пробах связан с такими особенностями метода:

При проведении измерений использовался анализатор рентгеновский бездифракционный КРАБ - ЗУМ, который предназначен для возбуждения и регистрации рентгеновских спектров, а также для проведения рентгеноспектрального анализа дискретных проб твердых и порошковых материалов на заранее выбранных 6 химических элементах от кальция ( $z = 20$ ) до урана ( $z = 92$ ). Технические характеристики анализатора представлены в таблице. 2.

Принцип действия анализатора основан на возбуждении и регистрации характеристического излучения химических элементов, интенсивность которого находится в определенной зависимости от концентрации этих элементов в исследуемом образце.

### Спектрофотометр СФ – 2000

Для измерения спектральных коэффициентов направленного пропускания излучения жидкими и твердыми прозрачными образцами использовался спектрофотометр СФ – 2000 [7]. Прибор работает под управлением ЭВМ типа IBM PC. Полученная информация выводится на монитор и печатающее устройство.

С помощью спектрофотометра СФ - 2000 можно получать:

- Анализы индивидуальных веществ и многокомпонентных систем;
- Определение концентрации аналитов в биологических жидкостях;
- Контроль содержания неорганических соединений в воде;
- Контроль воздуха рабочей зоны;
- Контроль содержания химических веществ в почве;
- Контроль пищевых продуктов.

Для определения содержания урана в исходных образцах и элюенте на спектрофотометре СФ – 2000 используется органический окрашенный реагент Арсеназо III [8, 9], который характеризуется наибольшей чувствительностью к урану и имеет характерную цветную окраску.

### Основные химические реагенты и реактивы

Диоксид углерода. Для проведения СФЭ - CO<sub>2</sub> использовался диоксид углерода, удовлетворяющий требованиям ГОСТУ 4817: 2007.

Арсеназо III. - (3,6 – бис - [(2 - арсонофенил)азо] - 4,5 – дигидрокси - 2,7 - нафталиндисульфокислота), молекулярная масса - 776,35, специфический реагент на уран. Темно-красное вещество, умеренно растворимое в воде, хорошо растворимо в водных растворах NaHCO<sub>3</sub>.

При pH < 4 окраска водных растворов розовая или красно-малиновая, при pH > 5 - фиолетовая или синяя. Арсеназо III образует с металлами (М) очень прочные комплексы, что позволяет определять их в кислых средах: М(IV) и М(V) - в 6 - 10 н. HCl или H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, М(II) и М(III) - при pH 1 - 4. Реакции комплексообразования контрастны: реагента 540 нм, комплексов - 665 нм. Реагент применяют для фотометрического определения и концентрирования (в т.ч. экстракцией) Zr, Hf, Sc, актиноидов и лантаноидов, V, Ca, Ba, Be и некоторых других элементов. Фотометрические методы с использованием Арсеназо III характеризуются высокой избирательностью и чувствительностью (предел обнаружения 0,01 - 0,1 мкг/мл).



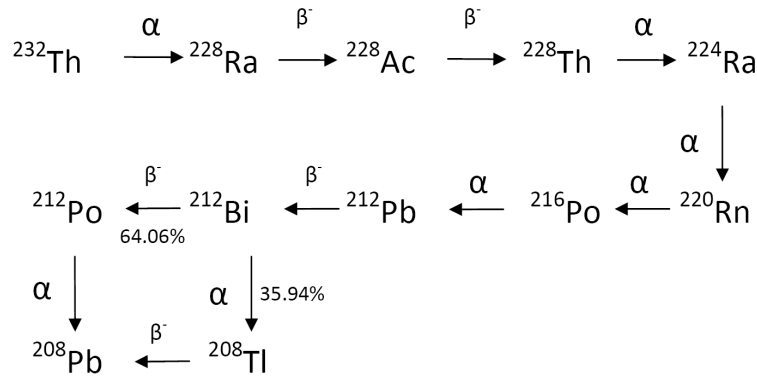
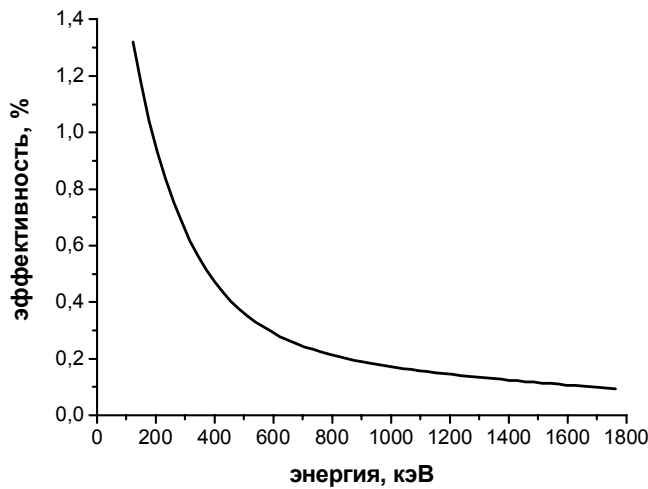


Рис. 4. Ториевый ряд

Рис. 5. Зависимость эффективности детектора ДГДК-60В от энергии фотонов для геометрии сосуда Маринелли объемом 1 дм<sup>3</sup>

С целью поиска других гамма-излучающих нуклидов и более точного определения обнаруженных радионуклидов были проведены измерения с экспозицией 25 часов. Предварительно пробы были выдержаны в закрытых сосудах Маринелли в течение трех недель для достижения в образцах радиоактивного равновесия  ${}^{226}\text{Ra}$  с его короткоживущими дочерними продуктами распада.

Калибровка по энергии и эффективности проводилась при помощи образцовых спектрометрических гамма-источников (ОСГИ) и аттестованных объемных мер активности специального назначения содержащих изотопы  ${}^{137}\text{Cs}$ ,  ${}^{40}\text{K}$ ,  ${}^{226}\text{Ra}$ ,  ${}^{232}\text{Th}$ ,  ${}^{152}\text{Eu}$ . На рис. 5. представлены результаты калибровки по эффективности детектора ДГДК-60В для геометрии сосуда Маринелли объемом 1 дм<sup>3</sup>.

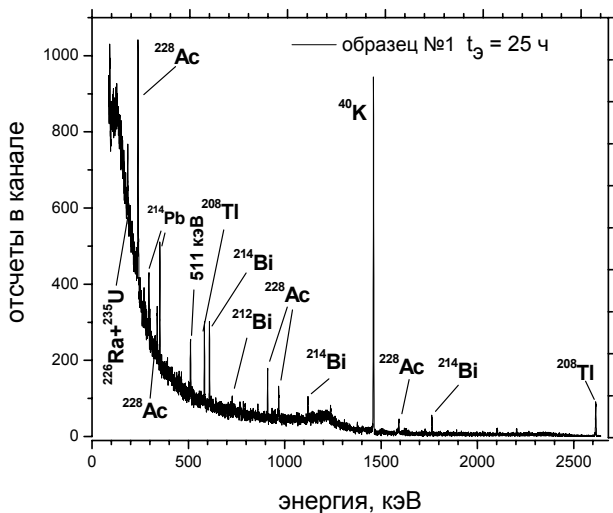


Рис. 6. Гамма-спектр образца №1

На рис. 6 – 8. представлены аппаратные спектры образцов материалов № 1 - 3.

Активность  ${}^{232}\text{Th}$  вычислялась по активности  ${}^{228}\text{Ac}$ , исходя из предположения их радиоактивного равновесия (цепочка распада  ${}^{232}\text{Th} \rightarrow {}^{228}\text{Ra} \rightarrow {}^{228}\text{Ac}$ ), активность. Активность  ${}^{226}\text{Ra}$  по активности изотопов  ${}^{214}\text{Pb}$  и  ${}^{214}\text{Bi}$  (цепочка распада  ${}^{226}\text{Ra} \rightarrow {}^{222}\text{Rn} \rightarrow {}^{218}\text{Po} \rightarrow {}^{214}\text{Pb} \rightarrow {}^{214}\text{Bi}$ ).

При условии сохранения векового радиоактивного равновесия между родоначальником ряда  ${}^{238}\text{U}$  и дочерним радионуклидом  ${}^{226}\text{Ra}$  их активности равны.

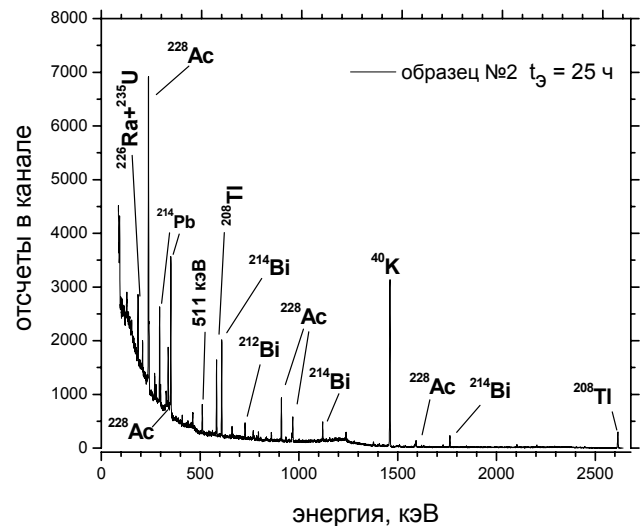


Рис. 7. Гамма-спектр образца №2

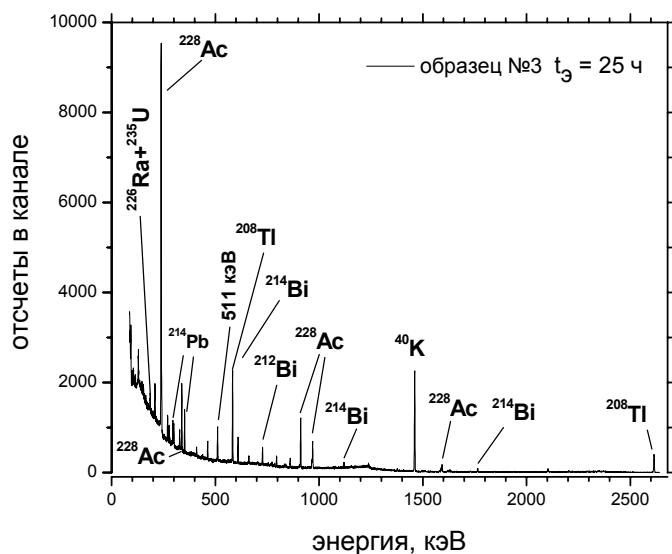


Рис. 8. Гамма-спектр образца №3

практически невозможно определить прямым инструментальным гамма - спектрометрическим методом из-за интерференции основной высокоинтенсивной гамма - линии 185,71 кэВ (57,2 %) с энергетической линией 186,21 кэВ (3,59 %) дочернего радионуклида  $^{226}\text{Ra}$  из ряда  $^{238}\text{U}$ .

Результаты измерений удельного содержания естественных радионуклидов в образцах материалов представлены в таблице 3.

Таблица 3.

Содержание изотопов в 1 г материалов по данным гамма - спектрометрии

Изотоп	$^{238}\text{U}$	$^{232}\text{Th}$	$^{40}\text{K}$
Активность изотопа, Бк/г	$1,246 \cdot 10^4$	$4,066 \cdot 10^3$	$2,589 \cdot 10^5$
образец №1 (базальт)	0,73 мкг	3,4 мкг	1,5 мкг
образец №2 (гранит, спуск Пассионарии)	5,5 мкг	18,0 мкг	5,4 мкг
образец №3 (красный гранит)	2,6 мкг	37,0 мкг	6,6 мкг
образец №4 (красный гранит)	3,1 мкг	44,0 мкг	5,8 мкг
образец №5 (черный гранит)	0,13 мкг	1,1 мкг	0,73 мкг
образец №6 (Бердянский песок)	48,0 мкг	1,3 мг	1,6 мкг
образец №7 (гранит, Желтые воды)	667,0 мкг	-	-

Описанная выше методика определения по гамма - спектрам содержания радионуклидов в исходных материалах позволяет определить количество целевого материала, и, на этой основе, провести отбор материалов (гранитов) с максимальным содержанием урана.

#### Методика пробоподготовки

Одним из основных этапов при проведении СФЭ –  $\text{CO}_2$  экстракции является пробоподготовка.

Для подготовки проб были использованы природные минералы, содержание урана в которых определялось с помощью гамма - спектрометра СЕГ-50 (П) с детектором ДГДК-60В. В результате измерений гамма - спектров было получено значение активности 8300 Бк/кг. Точность определения концентраций излучающих изотопов составила 20 %. Содержание урана, вычисленное по данным гамма - спектрометрии, составило 667,0 мкг/г.

Исходный образец минерала дробился и измельчался в порошок с размером зерна менее 50 мкм. Размер зерна определялся методом оптической микроскопии. Порошок массой 10 г заливался 20 мл 40 % азотной кислоты и выдерживался в течение суток. Полученный раствор фильтровался, осадок промывался 20 мл дистиллированной воды и снова фильтровался. Оба раствора смешивались с 6 мл 30 % раствора трибутилфосфата (ТБФ) в керосине и взбалтывались. После расслоения органическая фаза фильтровалась через бумажный фильтр. Таким образом, в предположении о 100 % эффективности всех процедур пробоподготовки, в 1 мл органического экстракта должно содержаться не менее 1,3 мг урана.

Для оценки состава полученного экстракта было проведено сравнение спектров поглощения красителя Арсенazo - III с раствором чистого уранилнитрата (см. рис. 9). Для измерения спектров поглощения в 2 мл  $5 \times 10^{-4}$  % раствора Арсенazo - III в 2 % азотной кислоте добавлялось 0,05 мл ТБФ с экстрактом гранита или уранилнитрата, взбалтывалось и выдерживалось 10 минут для формирования устойчивого цвета. После этого измерялся спектр поглощения относительно чистого раствора Арсенazo - III на спектрофотометре СФ - 2000.

Непосредственному определению активности  $^{238}\text{U}$  по линиям изотопов  $^{234}\text{Th}$  –  $\gamma$  - линии: 92,38 кэВ (2,81 %); 92,80 кэВ (2,77 %), X - линия: 92,282 кэВ (0,5 %) ( $\text{Pa K}\alpha 3$ ) (на аппаратном спектре они не разделяются) мешают  $\gamma$  - линии и X - линии семейств ЕРН, расположенные в этом диапазоне, в частности X - линия  $^{228}\text{Ac}$  93,35 (3,19 %) ( $\text{Th K}\alpha 1$ ). Измерения активности  $^{238}\text{U}$ , проведенные по  $\gamma$  - линии  $^{234\text{m}}\text{Pa}$  1001,03 кэВ (0,837 %) (цепочка распада  $^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{Th} \rightarrow ^{234\text{m}}\text{Pa}$ ) дали завышенные значения по сравнению с цифрами для активностей  $^{226}\text{Ra}$ . Это связано большой погрешностью определения площади соответствующих пиков на аппаратных спектрах, измеряемых проб.

В естественном уране содержится 99,27 %  $^{238}\text{U}$ , 0,72 %  $^{235}\text{U}$ ,  $5,5 \cdot 10^{-3}$  %  $^{234}\text{U}$ .

Уран-235 в объектах окружающей среды

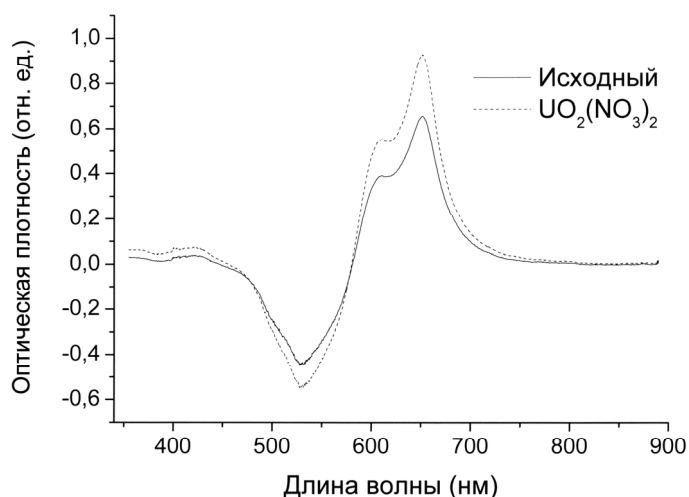


Рис. 9. Спектры оптического поглощения раствора Арсеназо - III с комплексом урана

быть использована для моделирования СФЭ -  $\text{CO}_2$  экстракции урана из МАЕ на примере марок гранитов с повышенным содержанием природного урана.

### ВЫВОДЫ

Таким образом, в данной работе показано, что изготовленная установка СФЭ – U способна обеспечить режим сверхкритической флюидной экстракции урансодержащих исходных образцов в углекислом газе в диапазоне давлений 7,3 - 20 МПа и температур 20 – 60 °С, как в ручном, так и в полуавтоматическом режимах.

Описанная методика определения по гамма - спектрам содержания радионуклидов в исходных материалах позволяет определить количество целевого материала, и, на этой основе, провести отбор гранитов с максимальным содержанием урана.

Приведенные методы отбора образцов исходного материала и пробоподготовки свидетельствует о том, что указанная методика может быть использована для моделирования СФЭ -  $\text{CO}_2$  извлечения урана из МАЕ на примере марок гранитов с повышенным содержанием природного урана.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Hugh M.A. Supercritical Fluid Extraction: Principles and Practice. 2nd ed. – Boston, 1994. – 512 p.
2. Borts B.V., Kazarinov Yu. G., Skoromnaya S.F., Tkachenko V.I. Modelirovanie ekstrakcii kompleksov urana sverhkriticheskim uglekislym gazom iz obedennyh uranovyh rud ekstrakciey iz granitov // Sb. nauchn. statey Mezhdunarodnoy shkoly molodyh uchenykh po yadernoy fizike i energetike. – Alushta (Kryim). – Ukraina, 8-14 iyunya 2009.
3. Borts B.V., Skoromnaya S.F., Tkachenko V.I. Ustanovka dlya sverhkriticheskoy flyuidnoy ekstrakcii kompleksov urana iz tehnogennyh mestorozhdeniy // Sb. nauchn. statey 7 Mejdunarodnoy konferencii "Sotrudnichestvo dlya resheniya problemy othodov", 7 - 8 aprelya 2010 g. – Kharkov. – Ukraina. - S. 28-30.
4. Borts B.V., Kazarinov Yu.G., Neklyudov I.M., Skoromnaya S.F., Tkachenko V.I. Sverhkriticheskaya  $\text{CO}_2$  ekstraktsiya kompleksov urana iz granitov // Fizika i himiya obrabotki materialov. – 2010. – № 3. – S. 94-96.
5. Borts B.V., Skoromnaya S.F., Tkachenko V.I. Izvlechenie urana iz materialov tehnogennyh mestorozhdeniy metodom sverhkriticheskoy flyuidnoy ekstraktsii // Yaderna ta radiatsiyna bezpeka. – 2012. – T. 1(53). – S. 61-63.
6. Analizator rentgenovskiy bezdifraktsionnyy KRAB – 3UM Yab1.211.046. Tehnicheskoe opisanie i instruktsiya po ekspluatatsii. «Krasnyy Oktyabr». – 1986. – 90 s.
7. Spektrofotometr SF – 2000. Rukovodstvo po ekspluatatsii. ZAO «OKB Spekr». – 2006. – 33 S.
8. Savin S.B. Arsenazo III. Metody fotometricheskogo opredeleniya redkih i aktinidnykh elementov. - M.: Atomizdat, 1966. – 256 s.
9. Himicheskaya entsiklopediya: V 5 tomakh. Tom 5. Triptofan – Yatrokhimiya / Redkol.: Knunyants I.L. (gl. red.) i dr. – M.: Sov. entsikl. – 1988. – 623 s.
10. Sinev N.M., Baturov B.B. Ekonomika atomnoy energetiki / Osnovy tehnologii i ekonomiki yadernogo topliva. – M.: Atomizdat, 1980. – 344 S.
11. Svidetelstvo ob attestatsii № 100 – 4158/2011, vydano 18.08.2011 g. GP «Harkovskiy regionalnyy nauchno-proizvodstvennyy tsentr standartizatsii, metrologii i sertifikatsii». Deystvitelno do 17.08.2014 g.
12. Aktivnost radionuklidov v ob'emnykh obraztsah. Metodika vyipolneniya izmereniy na gamma - spektrometre. Kharkov. NNTs HFTI. 2000.