

Л.Ю. Юрлова

Институт коллоидной химии и химии воды им. А.В. Думанского НАН Украины, г. Киев

УЛЬТРАФИЛЬТРАЦИОННАЯ ОЧИСТКА ВОД ОТ U(VI) С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ ДИНАМИЧЕСКИХ МЕМБРАН ИЗ МОНТМОРИЛЛОНИТА И СЛОИСТОГО ДВОЙНОГО ГИДРОКСИДА Zn-Al-ЭДТА

Проведены длительные исследования по использованию сорбентов в качестве добавок в ультрафильтрационном (УФ) процессе очистки вод от U(VI). В качестве сорбентов использовали природный глинистый минерал монтмориллонит Черкасского месторождения и синтезированный функционализированный сорбент – слоистый двойной гидроксид, интеркалированный этилендиаминтетрауксусной кислотой (Zn-Al-ЭДТА). Показано, что коэффициент задерживания урана мембраной УПМ-20 с использованием монтмориллонита составляет 0,88 – 0,91, Zn-Al-ЭДТА – 0,99 – 0,999, тогда как без сорбентов аналогичный показатель ниже (0,85 – 0,89). Выявлено, что объемный поток при УФ-очистке урансодержащих вод в отсутствие сорбентов находился на уровне 82 – 86 $\text{дм}^3/(\text{м}^2 \cdot \text{ч})$, а в их присутствии этот показатель уменьшался для обоих сорбентов до 40 – 50 $\text{дм}^3/(\text{м}^2 \cdot \text{ч})$. Был определен вклад сорбентов в процесс УФ-очистки растворов, содержащих уран. Установлено, что сорбенты успешно выполняют роль динамической мембраны, но их вклад в основном зависит от природы и структуры самих сорбентов, а не их емкости. Динамическая мембрана, которая образуется при использовании Zn-Al-ЭДТА, более плотная и стойкая, чем таковая, образованная из монтмориллонита, поэтому и применение Zn-Al-ЭДТА в УФ-очистке урансодержащих вод дает существенно лучшие и стабильные результаты. Также одновременно с извлечением было изучено концентрирование урана. Показано, что в течение всей УФ-очистки наблюдалось существенное повышение содержания урана в сравнительно небольшом объеме концентрата. Установлено, что применение сорбентов-добавок способствует значительному улучшению показателей ультрафильтрационной очистки вод от U(VI) и позволяет концентрировать уран(VI) с возможностью его дальнейшей переработки.

Ключевые слова: концентрирование, монтмориллонит, сорбенты, уран(VI), ультрафильтрация, Zn-Al-ЭДТА.

ВВЕДЕНИЕ

В шахтных водах горнорудной промышленности кроме большого количества солей содержатся повышенные концентрации ес-

тественных радионуклидов, в том числе урана – одного из наиболее опасных экотоксикантов. Для удаления урана применяют различные методы, в том числе сорбцию на разнообразных природных (торфе, опилках, глинах, мергелях, смектитах, гетите, гематите, цеолите [1 – 4]) и синтетических (ионооб-

* Для листування: yurlovs@ukr.net

10. Montaña M., Camacho A., Serrano I., Devesa R., Matia L., Vallés I. Removal of radionuclides in drinking water by membrane treatment using ultrafiltration, reverse osmosis and electro dialysis reversal. *J. Environ. Radioact.* 2013. 125. P. 86–92.
11. Pantelev A.A., Ryabchikov B.Ye., Khoruzhiy O.V. i dr. *Tekhnologii membrannogo razdeleniya v promyshlennoy vodo-podgotovke.* Moskva. 2012. 429 p.
12. Mulder M. *Vvedenie v membrannuyu tekhnologiyu.* Moskva. 1999. 514 p.
13. Svitsov A.A. *Vvedenie v membrannuyu tekhnologiyu.* Moskva. 2007. 208 p.
14. Bryk M.T., Tsapyuk Ye.A. *Ultrafiltratsiya.* Kiev. 1989. 288 p.
15. Ho W.S.W., Sirkar K.K. *Membrane Handbook.* New-York. 1992. 954 p.
16. Geckeler K.E., Volchek K. Removal of hazardous substances from water using ultrafiltration in conjunction with soluble polymers. *Environ. Sci. and Technol.* 1996. 30. P. 725–734.
17. Misra S.K., Mahatele A.K., Tripathi S.C., Dakshinamoorthy A. Studies on the simultaneous removal of dissolved DBP and TBP as well as uranyl ions from aqueous solutions by using Micellar-Enhanced Ultrafiltration Technique. *Hydrometallurgy.* 2009. 96, N1/2. P. 47–51.
18. Kryvoruchko A.P., Yurlova L.Yu., Atamanenko I.D., Kornilovich B.Yu. Ultrafiltration removal of U(VI) from contaminated water. *Desalination.* 2004. 162. P. 229–236.
19. Roach J.D., Zapfen J.H. Inorganic ligand-modified, colloid-enhanced ultrafiltration: A novel method for removing uranium from aqueous solution. *Water Res.* 2009. 43, N18. P. 4751–4759.
20. Villalobos-Rodríguez R., Montero-Cabrera M.E., Esparza-Ponce H.E., Herrera-Peraza E.F., Ballinas-Casarrubias M.L. Uranium removal from water using cellulose triacetate membranes added with activated carbon. *Appl. Radiat. and Isotopes.* 2012. 70, N5. P. 872–881.
21. Kryvoruchko A.P., Atamanenko I.D. The effect of dispersed materials on baromembrane treatment of uranium-containing waters. *Desalination.* 2007. 204. P. 307–315.
22. Kryvoruchko A.P., Yurlova L.Yu. Impact of montmorillonate on the process of purification of waters containing uranium by ultra- and nanofiltration. *J. Water Chem. and Technol.* 2016. 38, N2. C. 96–101.
23. Nemodruk A.A., Glukhova L.P. Vzaimodeystvie shestivalentnogo urana s arsenazo III v silnokislykh rastvorakh. *Zhurn. Analit. Khimii.* 1963. 18, N1. S. 93–97.
24. Tarasevich Yu.I., Ovcharenko F.D. *Adsorbtsiya na glinistykh mineralakh.* Kiev. 1975. 352 p.
25. Pshinko G.N., Kosorukov A.A., Puzyrnaya L.N., Goncharuk V.V. Layered double hydroxides intercalated with EDTA as effective sorbents for U(VI) recovery from wastewater. *Radiochem.* 2011. 53, N3. P. 303–307.
26. Tsapiuk E.A. Calculation of the product composition and the retention coefficient by pressure driven membrane separation of solutions containing one and two solute. *J. Membrane Sci.* 1997. 124. P. 107–117.
27. Kobets S.A., Pshinko G.N., Puzyrnaya L.N. Uranium (VI) in natural waters: Study of occurrence forms. *J. Water Chem. and Technol.* 2012. 34, N6. C. 277–283.

Received 07.11.2019

Revised 24.12.2019

Accepted 27.01.2020

Л.Ю. Юрлова

Інститут колоїдної хімії та хімії води ім. А.В. Думанського НАН України, м. Київ

yurlovs@ukr.net

УЛЬТРАФІЛЬТРАЦІЙНЕ ОЧИЩЕННЯ ВОД ВІД U(VI) З ВИКОРИСТАННЯМ ДИНАМІЧНИХ МЕМБРАН ІЗ МОНТМОРИЛОНІТУ ТА ШАРУВАТОГО ПОДВІЙНОГО ГІДРОКСИДУ Zn-Al-ЕДТА

Проведено довготривалі дослідження щодо використання сорбентів у якості добавок в ультрафільтраційному (УФ) процесі очищення вод від U(VI). Як сорбенти використовували природний глинистий мінерал монтморилоніт Черкаського родовища та синтезований функціоналізований сорбент – шаруватий подвійний гідроксид, інтеркальований етилендіамінтетраоцтовою кислотою (Zn-Al-ЕДТА). Показано, що коефіцієнт

затримування урану мембраною УПМ-20 з використанням монтморилоніту становить 0,88 – 0,91, Zn-Al-ЕДТА – 0,99 – 0,999, тоді як без сорбентів аналогічний показник нижчий (0,85 – 0,89). Виявлено, що об'ємний потік при УФ-очищенні уранвмісних вод за відсутності сорбентів знаходився на рівні 82 – 86 $\text{dm}^3/(\text{m}^2\cdot\text{год})$, а в їх присутності цей показник зменшувався для обох сорбентів до 40 – 50 $\text{dm}^3/(\text{m}^2\cdot\text{год})$. Було визначено вклад сорбентів у процес УФ-очищення розчинів, які містять уран. Встановлено, що сорбенти успішно виконують роль динамічної мембрани (ДМ), але їх вклад у процес очищення здебільшого залежить від природи та структури самих сорбентів, а не їх ємності. Динамічна мембрана, яка утворюється при застосуванні Zn-Al-ЕДТА, є більш щільною та стійкою, ніж ДМ, утворена з монтморилоніту, тому і використання Zn-Al-ЕДТА в УФ-очищення уранвмісних вод дає суттєво кращі і стабільні результати. Також одночасно з вилученням було вивчено концентрування урану. Показано, що протягом всього УФ-очищення спостерігалось суттєве підвищення вмісту урану у порівняно невеликому об'ємі концентрату. Встановлено, що застосування сорбентів-добавок сприяє значному покращенню показників ультрафільтраційного очищення води від U(VI) та дозволяє концентрувати уран(VI) з можливістю його подальшої переробки.

Ключові слова: концентрування, монтморилоніт, сорбенти, уран(VI), ультрафільтрація, Zn-Al-ЕДТА.

L. Yu. Yurlova

A.V. Dumansky Institute of Colloid Chemistry and Water Chemistry of NAS of Ukraine, Kyiv
yurlovs@ukr.net

ULTRAFILTRATION PURIFICATION OF WATER FROM U(VI) WITH APPLICATION OF DYNAMIC MEMBRANE FORMED FROM MONTMORILLONITE AND LAYERED DOUBLE HYDROXIDE Zn-Al-EDTA

Long-term studies have been carried out on the use of sorbents as additive in the ultrafiltration (UF) purification process of uranium-containing water. As sorbents were used natural clay mineral montmorillonite of Cherkasy deposit and synthesized functionalized sorbent – layered double hydroxide, intercalated with ethylenediaminetetraacetic acid (Zn-Al-EDTA). It was shown the uranium retention coefficient by the UPM-20 membrane using montmorillonite is 0.88 – 0.91, with the use of Zn-Al-EDTA – 0.99 – 0.999, whereas in sorbents absence it is lower (0.85 – 0.89). It was determined the volume flux in the process of UF purification of uranium-containing water in the absence of sorbents was at the level of 82 – 86 $\text{dm}^3/(\text{m}^2\cdot\text{h})$, and in their presence this index decreased for both sorbents to 40 – 50 $\text{dm}^3/(\text{m}^2\cdot\text{h})$. The contribution of sorbents into the UF purification process of uranium-containing solutions was determined. It was established sorbents successfully perform the role of dynamic membrane (DM), but their contribution into the purification process depends largely on the nature and structure of these sorbents, rather than their capacity. The dynamic membrane formed from Zn-Al-EDTA was more dense and resistant than the DM formed from montmorillonite, so the use of Zn-Al-EDTA in the UF purification process of uranium-containing water gives significantly better and stable results. The process of uranium concentration was also studied simultaneously with the uranium removal. It was shown that during the entire UF process of uranium-containing solution purification, there was a significant concentration of uranium in a relatively small volume of concentrate. It has been found that the use of sorbents as additive contributes to a significant improvement of U(VI) water purification indexes and allows the concentration of uranium (VI) with the possibility of its further processing.

Keywords: concentration, montmorillonite, sorbents, uranium(VI), ultrafiltration, Zn-Al-EDTA.