



(19) **RU** ⁽¹¹⁾ **2 168 221** ⁽¹³⁾ **C2**
(51) МПК⁷ **G 21 F 9/04, G 21 C 19/307**

РОССИЙСКОЕ АГЕНТСТВО
ПО ПАТЕНТАМ И ТОВАРНЫМ ЗНАКАМ

(12) **ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ РОССИЙСКОЙ
ФЕДЕРАЦИИ**

(21), (22) Заявка: 99116754/06, 02.08.1999
(24) Дата начала действия патента: 02.08.1999
(46) Дата публикации: 27.05.2001
(56) Ссылки: НИКИФОРОВ А.С. и др.
Обезвреживание жидких радиоактивных
отходов. - М.: Энергоатомиздат, 1985,
с.46-60. SU 1271266 A, 07.12.1991. RU
2123732 C1, 20.12.1998. GB 2242778 A,
09.10.1991. GB 2037058 A, 02.07.1980. FR
2307342 A1, 10.12.1976. ДОЛЛЕЖАЛЬ Н.А. И
ДР. Ядерные энергетические установки. - М.:
Энергоатомиздат, 1982, с.426.
(98) Адрес для переписки:
188537, Ленинградская обл., г. Сосновый Бор,
ГП НИТИ им. А.П. Александрова

(71) Заявитель:
Государственное предприятие
Научно-исследовательский технологический
институт им. А.П. Александрова,
Министерство Российской Федерации по
атомной энергии
(72) Изобретатель: Епимахов В.Н.,
Панкина Е.Б., Олейник М.С., Епимахов Т.В.
(73) Патентообладатель:
Государственное предприятие
Научно-исследовательский технологический
институт им. А.П. Александрова,
Министерство Российской Федерации по
атомной энергии

(54) СПОСОБ ОБРАЩЕНИЯ С ТЕПЛОНОСИТЕЛЯМИ И ТЕХНИЧЕСКИМИ РАСТВОРАМИ ЯДЕРНЫХ
ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ УСТАНОВОК НАУЧНЫХ ЦЕНТРОВ

(57)
Изобретение относится к технологии
переработки жидких радиоактивных отходов
(ЖРО) методами концентрирования,
сорбционной доочистки и цементирования.
Технический результат: уменьшение объема
захораниваемых отвержденных отходов,
повышение их водостойкости и снижение
зарастания рабочих поверхностей аппаратов
при концентрировании ЖРО. Сущность
изобретения: производят концентрирование
отработанных радиоактивных теплоносителей
и технических растворов ядерных
энергетических установок научных центров

упариванием, электродиализом или обратным
осмосом до насыщения по солям. После
производят доочистку раствора
ионообменным обессоливанием на сорбентах,
отверждают концентрат ЖРО
цементированием и захоранивают.
Теплоносители и технические растворы могут
быть приготовлены на обессоленной воде, в
том числе получаемой при очистке
отработавших растворов. Данный способ
обеспечивает сокращение объема отходов в
10 раз и повышение их водостойкости до норм
безопасного захоронения.



RUSSIAN AGENCY
FOR PATENTS AND TRADEMARKS

(19) **RU** ⁽¹¹⁾ **2 168 221** ⁽¹³⁾ **C2**
(51) Int. Cl.⁷ **G 21 F 9/04, G 21 C 19/307**

(12) **ABSTRACT OF INVENTION**

(21), (22) Application: **99116754/06, 02.08.1999**
(24) Effective date for property rights: **02.08.1999**
(46) Date of publication: **27.05.2001**
(98) Mail address:
**188537, Leningradskaja obl., g. Sosnovyj
Bor, GP NITI im. A.P. Aleksandrova**

(71) Applicant:
**Gosudarstvennoe predpriyatie
Nauchno-issledovatel'skij tekhnologicheskij
institut im. A.P. Aleksandrova,
Ministerstvo Rossijskoj Federatsii po
atomnoj ehnergii**
(72) Inventor: **Epimakhov V.N.,
Pankina E.B., Olejnik M.S., Epimakhov T.V.**
(73) Proprietor:
**Gosudarstvennoe predpriyatie
Nauchno-issledovatel'skij tekhnologicheskij
institut im. A.P. Aleksandrova,
Ministerstvo Rossijskoj Federatsii po
atomnoj ehnergii**

(54) **METHOD FOR HANDLING COOLANTS AND TECHNICAL SOLUTIONS OF NUCLEAR POWER
INSTALLATIONS AT RESEARCH CENTERS**

(57) Abstract:
FIELD: recovery of liquid radioactive wastes by concentrating, sorbing, decontaminating, and case-hardening them. SUBSTANCE: spent radioactive coolants and solutions are concentrated by evaporation or reverse osmosis up to saturation with salts. Then solution is additionally decontaminated by ion-exchange demineralization with sorbents, concentrated wastes are solidified by case-hardening and disposed. Coolants and

solutions may be prepared using demineralized water including that obtained in decontaminating spent solutions. Proposed method provides for decreasing volume of wastes to be disposed by ten times and for reducing fouling of working surfaces of waste concentrating apparatuses. EFFECT: reduced volume of disposed wastes with their water-tightness brought down to safe burial standards.

Изобретение относится к технологии переработки жидких радиоактивных отходов (ЖРО) методами концентрирования, сорбционной доочистки и цементирования.

При работе ядерных научных центров ЖРО формируются отработанными теплоносителями ядерных энергетических установок (ЯЭУ), приготавливаемыми на обессоленной воде, и техническими (промывочными, реагентными и др.) растворами, приготавливаемыми на минерализованной воде природных источников. ЖРО собираются в спецканализацию и затем отправляются на переработку.

Макрокомпонентный солевой состав усредненных в спецканализации ЖРО ядерных научных центров с ЯЭУ определяется в основном минеральными солями природных вод (бикарбонатами, хлоридами и сульфатами щелочных и щелочноземельных металлов), незначительно загрязненных реагентными растворами, продуктами коррозии, нефтепродуктами и поверхностно-активными веществами (ПАВ), сухой остаток которых достигает 500 мг/л. Объемная активность этих ЖРО определяется в основном микрокомпонентами - стронцием-90, цезием-137 и, как правило, не превышает $1 \cdot 10^{-5}$ Ки/л.

Одним из самых простых способов обращения с ЖРО ЯЭУ научных центров является их сброс в крупные природные водоемы, в частности моря и океаны, для разбавления отработанных радиоактивных растворов до санитарных норм [1]. Основным недостатком этого способа является то, что радионуклиды, разбавляемые морскими водами, затем концентрируются в иловых отложениях, водорослях, моллюсках и рыбах до опасных уровней. Поэтому в России сброс ЖРО ЯЭУ в моря и океаны считается представляющим значительную экологическую опасность [2].

Известен способ обращения с усредненными ЖРО ядерных энергетических установок, включающий удаление макрокомпонентов - солей щелочных и щелочноземельных металлов и микрокомпонентов - радионуклидов: стронция-90, цезия-137 путем концентрирования (упариванием, электродиализом, обратным осмосом и др.) до насыщения по солям (около 200 г/л) с доочисткой раствора ионообменным обессоливанием (на ионообменных смолах (ИОС), сульфоглях, цеолитах и др.) и цементированием концентрата ЖРО с последующим направлением отвержденных продуктов на захоронение [3]. По своей технической сущности и достигаемому результату этот способ наиболее близок к заявляемому и выбран в качестве прототипа.

Основным недостатком данного способа является большой объем отвержденных отходов и их невысокая водостойкость (выщелачиваемость радионуклидов более $1 \cdot 10^{-3}$ г/см² •сут.), а также трудность концентрирования ЖРО до насыщения по солям из-за выделения на рабочих поверхностях концентрирующих аппаратов солей жесткости, которые составляют до 40% от солевого состава ЖРО ядерных научных центров с ЯЭУ. Высокое зарастание солями жесткости требует для отмывки аппаратов

проведения кислотных промывок (для выпарных аппаратов требуется ежемесячное упаривание в азотнокислой среде (рН не более 3) в течение суток).

Задача, решаемая данным изобретением, заключается в уменьшении объема захораниваемых отвержденных отходов, повышении их водостойкости и снижении зарастания рабочих поверхностей аппаратов (греющих поверхностей, ионообменных мембран, обратноосмотических мембран и др.) при концентрировании ЖРО.

Сущность изобретения заключается в том, что в способе обращения с теплоносителями и техническими растворами ЯЭУ научных центров, включающем удаление из них макрокомпонентов - солей щелочных и щелочноземельных металлов и микрокомпонентов - радионуклидов путем концентрирования их до насыщения по солям с доочисткой раствора на ионообменных сорбентах и цементированием радиоактивных концентратов с последующим захоронением, удаление макрокомпонентов из вод, используемых для приготовления теплоносителей и технических растворов производят до их контакта с радионуклидами, причем воду, полученную после очистки отработанных радиоактивных растворов, используют для приготовления теплоносителей и технических растворов.

Способ осуществляется следующим образом. При эксплуатации ЯЭУ научных центров воду, используемую для приготовления не только теплоносителей, но и всех технических (промывных, реагентных и др.) растворов, предварительно обессоливают, удаляя большую часть макрокомпонентов. При этом в процессе загрязнения этих вод радионуклидами образующиеся ЖРО имеют низкую минерализацию (не более 50 мг/л), причем соли жесткости практически отсутствуют, а объемная активность в основном не превышает $1 \cdot 10^{-5}$ Ки/л.

ЖРО концентрируют (упариванием, электродиализом, обратным осмосом и др.) до насыщения по солям и доочищают раствор ионообменным обессоливанием на сорбентах (ИОС, сульфоглях, цеолитах и др.) до санитарных норм по удельной активности. Радиоактивное накипеобразование или зарастание мембран в отсутствии солей жесткости практически исключается, что значительно повышает эффективность работы выпарных и мембранных аппаратов, а также ионообменных фильтров. При этом обессоленную воду, получаемую при очистке ЖРО, используют для приготовления теплоносителей и технических растворов ЯЭУ научных центров.

Кубовый концентрат ЖРО с солесодержанием около 200 г/л цементируют с водцементным отношением около 0,7 (объем отходов при отверждении увеличивается в среднем в 1,5 раза) с получением прочных (не менее 5 МПа) цементных компаундов (удельной активностью не более $1 \cdot 10^{-3}$ Ки/г по β - и γ -нуклидам) с выщелачиваемостью радионуклидов не более $1 \cdot 10^{-3}$ г/см² •сут., что обеспечивает их безопасное захоронение в бетонные могильники [4].

В целом объем отходов после переработки ЖРО уменьшается в 2500 и более раз в зависимости от исходного солесодержания и

химического состава ЖРО. В то же время концентраты солей, получаемые при предварительном обессоливании вод до их контакта с радионуклидами к ЖРО, не относятся и не подлежат отверждению и захоронению

По сравнению с известными способами обращения с ЖРО ядерных научных центров, включающими их концентрирование и доочистку раствора ионообменным обессоливанием на сорбентах, с цементированием концентратов ЖРО предлагаемый способ с предварительным удалением макрокомпонентов из вод, используемых для приготовления теплоносителей и технических растворов ЯЭУ ядерных научных центров обеспечивает не только снижение зарастания рабочих поверхностей аппаратов при концентрировании ЖРО и уменьшение объема захораниваемых отвержденных отходов в 10 раз, но и повышение их водостойкости, что не следует явным образом из уровня техники, т.е. соответствует критерию изобретательского уровня.

Примеры конкретного исполнения

Пример 1. (Прототип). Для приготовления теплоносителей и технических растворов ЯЭУ научных центров использовали маломинерализованную воду с солесодержанием менее 50 мг/л, природную пресную воду с солесодержанием до 300 мг/л, а также солоноватую морскую воду Финского залива с солесодержанием 5 г/л. Протечки и сливы этих вод попадали в спецканализацию. Усредненные ЖРО имели солесодержание 500 мг/л. ЖРО содержали 200 мг/л гидрокарбонатов, 150 мг/л хлоридов, 80 мг/л сульфатов, 5 мг/л нитратов, 3 мг/л фосфатов, 1 мг/л оксалатов, 60 мг/л кальция, 60 мг/л натрия, 40 мг/л калия, 20 мг/л железа и марганца, 15 мг/л магния, 10 мг/л аммония, 4 мг/л нефтепродуктов и 1 мг/л ПАВ. Объемная активность составляла $6 \cdot 10^{-6}$ Ки/л по цезию-137, $2,5 \cdot 10^{-6}$ Ки/л по стронцию-90 и $1,5 \cdot 10^{-6}$ Ки/л по кобальту-60. ЖРО концентрировали до 200 г/л методом упаривания (кратность упаривания около 400), а накипь с греющих поверхностей выпарного аппарата отмывали упариванием раствора HNO_3 при pH 3 с присоединением отработавшего отмывочного раствора к концентрату ЖРО. Конденсат доочищали на ИОС до объемной активности менее $1 \cdot 10^{-9}$ Ки/л. Кубовый концентрат ЖРО включали в портландцемент с водоцементным отношением 0,7 и увеличением объема отходов в 1,5 раза. Прочность цементного компаунда более 10 МПа, удельная активность $1,65 \cdot 10^{-6}$ Ки/кг, выщелачиваемость радиоцезия на 90 суток $4 \cdot 10^{-3}$ г/см²•сут. Суммарное снижение объема отходов после переработки ЖРО составляло 250 раз.

Пример 2. При предварительном удалении из вод, используемых для приготовления технических растворов ядерных научных центров макрокомпонентов - солей щелочных и щелочноземельных металлов до солесодержания 50 мг/л. При этом использование обессоленных растворов и в качестве охлаждающих снижало минерализацию теплоносителей, загрязняемых протечками охлаждающих растворов. ЖРО содержали 9 мг/л хлоридов, 5

мг/л сульфатов, 5 мг/л нитратов, 3 мг/л фосфатов, 1 мг/л оксалатов, 9 мг/л натрия, 4 мг/л калия, 1 мг/л железа и марганца, 10 мг/л аммония, 2 мг/л нефтепродуктов и 1 мг/л ПАВ. Объемная активность составляла $6 \cdot 10^{-6}$ Ки/л по цезию-137, $2,5 \cdot 10^{-6}$ Ки/л по стронцию-90 и $1,5 \cdot 10^{-6}$ Ки/л по кобальту-60. ЖРО упаривали до 200 г/л (кратность упаривания около 4000) при этом накипи практически не образовывалось, в растворе была только взвесь гидроксидов железа и марганца. Конденсат доочищали на ИОС до удельной активности $1 \cdot 10^{-9}$ Ки/л. Кубовый концентрат ЖРО включали в портландцемент с водоцементным отношением 0,7 и увеличением объема отходов в 1,5 раза. Прочность цементного компаунда более 10 МПа, удельная активность $1,65 \cdot 10^{-6}$ Ки/кг, выщелачиваемость радиоцезия на 90 суток $8 \cdot 10^{-4}$ г/см²•сут. Суммарное снижение объема отходов после переработки ЖРО составляло 2500 раз.

Предлагаемый способ облегчает эксплуатацию как аппаратов концентрирования, так и емкостей временного хранения и системы арматуры транспортирования ЖРО, так как предотвращает выделение в осадок слеживаемых и прикипаемых солей жесткости. Соответственно снижается и объем работ по промывке и дезактивации оборудования. В то же время предварительное выделение макрокомпонентов из вод, используемых для приготовления технических растворов, не требует доведения концентратов до насыщения по солям, что позволяет избежать выделения солей жесткости. Объем захораниваемых отходов по сравнению с прототипом снижается в 10 раз, а водостойкость отвержденных продуктов повышается до требуемых норм без введения специальных сорбционных добавок. Предлагаемый способ по сравнению с прототипом снижает выход радионуклидов из отвержденных продуктов в окружающую среду в 5 раз, тогда как по аналогу, предусматривающему сброс отработанных радиоактивных растворов в моря и океаны, этот выход составляет практически 100%.

Данный способ может осуществляться на действующем оборудовании переработки ЖРО без каких-либо технических изменений, т.е. является промышленно применимым. Использование обессоленных вод для приготовления технических растворов позволит снизить затраты на захоронение отвержденных отходов в 10 раз за счет уменьшения их объемов. Это оправдывает дополнительные затраты на повышенный расход обессоленной воды, тем более, что большая часть ее возвращается в эксплуатацию при переработке ЖРО. При использовании обессоленной воды повышается как надежность и ресурс работы оборудования ядерных энергетических установок, так и экологическая безопасность отвержденных радиоактивных отходов.

Источники информации.

1. Атомная техника за рубежом, 1964, N 8, с. 28.

2. Вдовенко В. М. и др. Доклад N 457 (СССР), представленный на IV международную конференцию по мирному использованию атомной энергии. Женева,

1971 г.

3. Никифоров А.С. и др. Обезвреживание жидких радиоактивных отходов. - М., Энергоатомиздат, 1985 г. с. 46-60.

4. Качество компаундов, образующихся при цементировании ЖРО низкого и среднего уровней активности. Технические требования. - Руководящий документ РД 9510497-93. - М., Минатом РФ, 1993 г.

Формула изобретения:

Способ обращения с теплоносителями и техническими растворами ядерных энергетических установок научных центров, включающий удаление из них

макрокомпонентов - солей щелочных и щелочноземельных металлов и микрокомпонентов - радионуклидов путем концентрирования до насыщения по солям с доочисткой раствора на ионообменных сорбентах и цементировании радиоактивных концентратов с последующим захоронением, отличающийся тем, что удаление макрокомпонентов из вод, используемых для приготовления теплоносителей и технических растворов, производят до их контакта с радионуклидами, причем воду, полученную после очистки отработанных радиоактивных растворов, используют для приготовления теплоносителей и технических растворов.

5

10

15

20

25

30

35

40

45

50

55

60