



УКРАЇНА

(19) **UA** (11) **136062** (13) **U**
(51) МПК
G21F 9/04 (2006.01)
G21F 9/20 (2006.01)
B01D 39/14 (2006.01)

МІНІСТЕРСТВО
ЕКОНОМІЧНОГО
РОЗВИТКУ І ТОРГІВЛІ
УКРАЇНИ

(12) ОПИС ДО ПАТЕНТУ НА КОРИСНУ МОДЕЛЬ

<p>(21) Номер заявки: a 2017 07397</p> <p>(22) Дата подання заявки: 12.11.2015</p> <p>(24) Дата, з якої є чинними права на корисну модель: 12.08.2019</p> <p>(31) Номер попередньої заявки відповідно до Паризької конвенції: 2014153336</p> <p>(32) Дата подання попередньої заявки відповідно до Паризької конвенції: 29.12.2014</p> <p>(33) Код держави-учасниці Паризької конвенції, до якої подано попередню заявку: RU</p> <p>(41) Публікація відомостей про заявку: 25.09.2017, Бюл.№ 18</p> <p>(46) Публікація відомостей про видачу патенту: 12.08.2019, Бюл.№ 15</p> <p>(86) Номер та дата подання міжнародної заявки, поданої відповідно до Договору РСТ: PCT/RU2015/000768, 12.11.2015</p>	<p>(72) Винахідник(и): Ремез Віктор Павлович (RU)</p> <p>(73) Власник(и): ОБЩЕСТВО С ОГРАНИЧЕННОЙ ОТВЕТСТВЕННОСТЬЮ "НАУЧНО-ПРОИЗВОДСТВЕННОЕ ПРЕДПРИЯТИЕ "ЕКСОРБ", пер. Красный, 8Б-11, г. Екатеринбург, 620027, Российская Федерация (RU)</p> <p>(74) Представник: Бенатов Даніель Емілович, реєстр. №224</p> <p>(56) Перелік документів, взятих до уваги експертизою: US 8753518 B2, 17.06.2014 JP S58140696 A, 20.08.1983 RU 2473145 C1, 20.01.2013 US 2013153473 A1, 20.06.2013 RU 2268513 C1, 20.01.2006 RU 2066493 C1, 10.09.1996 UA 82581 C2, 25.04.2008 UA 107317 C2, 10.12.2014 UA 107312 C2, 10.12.2014</p>
---	---

UA 136062 U

(54) СПОСІБ ПЕРЕРОБКИ ТА УТИЛІЗАЦІЇ РІДКИХ РАДІОАКТИВНИХ ВІДХОДІВ

(57) Реферат:

Спосіб переробки рідких радіоактивних відходів (РРВ) та їх утилізації включає окислення відходів, видалення з розчину нерозчинних часток, а саме шламів, колоїдів, зважених часток, що містять радіонукліди для подальшої утилізації із застосуванням селективних сорбентів та фільтрів. Селективні сорбенти у вигляді порошоків додають під час перемішування до РРВ перед стадією виділення з розчину нерозчинних часток, а потім отриману суспензію фільтрують шляхом прокачування через принаймні одну ємність, призначену для утилізації відходів, що на виході містить принаймні один фільтрувальний елемент, що видалляє з розчину нерозчинні речовини, після чого отриманий фільтрат пропускають принаймні через одну ємність, призначену для утилізації відходів, з гранульованими селективними сорбентами, при цьому зазначені ємності розміщені в бетонних блоках.

Корисна модель належить до технології поводження з рідкими радіоактивними відходами ядерного паливно-енергетичного циклу та може бути використана в процесі переробки рідких радіоактивних відходів (РРВ) для максимального скорочення їх обсягів і видалення радіонуклідів з подальшим концентруванням у твердій фазі

5 Заявлений спосіб може бути використаний для переробки низько- і середньоактивних рідких радіоактивних відходів на різноманітних об'єктах атомної промисловості, в тому числі на атомних електростанціях; для переробки розчинів, що утворюються при дезактивації будівель, споруд, обладнання, транспорту тощо; для переробки природної води, забрудненої радіонуклідами.

10 Переробка рідких радіоактивних відходів спрямована на вирішення двох основних завдань: очищення основної маси відходів від радіонуклідів і концентрування останніх у мінімальному обсязі

Відомо рішення за патентом Ru 2066493, мпк g 21 f 9/08, 13.11.1995, «Спосіб обробки рідких радіоактивних відходів АЕС».

15 спосіб включає упарювання з отриманням конденсату та кубового залишку, обробку кубового залишку оксидом та/або діоксидом вуглецю, відокремлення утвореної кристалічної фази, озонування рідкої фази кубового залишку в присутності каталізатора та/або сорбенту для вилучення радіонуклідів з рідкої фази, відокремлення утвореного радіоактивного шламу та направлення рідкої фази на додаткове упарювання.

20 Недоліком вказаного способу є низький коефіцієнт очищення солей, що виділяються на стадії обробки кубового залишку оксидами вуглецю, оскільки поряд з утворенням малорозчинних карбонатів і бікарбонатів натрію і калію можуть утворюватися важкорозчинні карбонати радіоактивних ізотопів кобальту, нікелю, марганцю та заліза, що не дозволяє вважати солі, що виділились, нерадіоактивними.

25 Крім того, реалізація відомого способу передбачає додавання значної кількості хімічних реагентів (окису і двоокису вуглецю, каталізатора окислення, колектору), що призведе до збільшення кількості відходів, що підлягають зберіганню або захороненню.

Також відомо технічне рішення за патентом Ru 2226726, мпк g 21 f 9/08, g 21 f 9/12, 27.04.2002. «Спосіб переробки рідких радіоактивних відходів атомної електростанції»

30 Спосіб включає їх попереднє упарювання з одержанням конденсату та кубового залишку, озонування кубового залишку, відокремлення радіоактивного шламу, що утворюється, і концентрування фільтрату глибоким упарюванням. При цьому озонування кубового залишку здійснюють безпосередньо після попереднього упарювання розчину. Після відокремлення радіоактивного шламу фільтрат пропускають через фільтр-контейнер з селективним до цезію неорганічним сорбентом, після чого відпрацьований фільтр-контейнер направляють на зберігання або захоронення.

40 До недоліків відомого способу відносять низький ступінь очищення кубового залишку на стадіях озонування та відокремлення шламу, в наслідок чого до фільтру-контейнеру з селективним сорбентом надходить високоактивний розчин. Для очищення такого розчину потрібна велика кількість сорбенту, крім того, після використання, фільтр-контейнер створює високий радіаційний фон, тому поводження з ним вимагає застосування дорогих і технічно складних заходів радіаційної безпеки.

Найбільш аналогом до способу переробки та утилізації рідких радіоактивних відходів є спосіб, описаний у патенті США N 8753518, B01 D 35/00, опублікованому у 2014 р.

45 Спосіб переробки та утилізації рідких радіоактивних відходів включає окислення відходів, відокремлення шламів, колоїдів і зважених часток від рідкої фази, і видалення з рідкої фази радіонуклідів для подальшої утилізації із застосуванням селективних сорбентів і фільтрів.

Основні недоліки даного способу:

50 дуже складна і дорога система розподілу рідких і твердих компонентів. Устаткування вимагає точного регулювання та дистанційного обслуговування, оскільки не має захисту для персоналу від опромінення;

утворюються високоактивні відходи переробки (шлами з фільтрувальних апаратів, відпрацьовані сорбенти або ємності з відпрацьованими сорбентами, фільтрелементи). Поводження з цими відходами вимагає спеціальних дорогих заходів радіаційної безпеки та охорони, тому їх транспортування, утилізація та зберігання (захоронення) спричиняє значні економічні витрати.

60 Задача корисної моделі підвищення рівня радіаційного захисту обслуговуючого персоналу в процесі виробництва, а саме: зниження дозового навантаження на персонал під час переробки РРВ, спрощення технологічного процесу (виключення дорогої і складної в експлуатації установки цементування радіоактивних відходів, зменшення кількості інших апаратів, що

потребують спеціального обслуговування, зниження кількості вторинних відходів), отримання в процесі переробки РРВ кінцевого продукту (блока) безпечного для переміщення, зберігання та використання, що не потребують спеціальних заходів радіаційної безпеки.

5 Поставлена задача вирішується тим, що спосіб переробки та утилізації рідких радіоактивних відходів, що включає окислення відходів, відокремлення шламів, колоїдів і зважених часток від рідкої фази, видалення з рідкої фази радіонуклідів для подальшої утилізації із застосуванням суміші селективних сорбентів, згідно з корисною моделлю, перед стадією відокремлення радіоактивних відходів шламів, колоїдів і зважених часток від рідкої фази, у рідкі відходи додають при перемішуванні суміш селективних сорбентів у вигляді порошків, а потім отриману суспензію фільтрують, прокачуванням принаймні через одну ємність, призначену для утилізації відходів і що на виході містить принаймні один фільтрувальний елемент, що відокремлює нерозчинні речовини від рідкої фази, після чого фільтрат пропускають принаймні через одну ємність, призначену для утилізації відходів, з гранульованими селективними сорбентами, при цьому зазначені ємності розміщені в бетонних блоках.

15 У процесі переробки РРВ можуть використовувати один або кілька селективних сорбентів. Ємності, що їх застосовують для видалення з розчину шламів, колоїдів і зважених часток можуть містити два або більше фільтрелементів. Розчин, що підлягає очистці від нерозчинних часток, може бути пропущений через дві і більше з'єднаних послідовно ємностей, що містять фільтрелементи. Розчин, що підлягає очистці від радіонуклідів, може бути пропущений через 20 дві та більше з'єднаних послідовно ємностей, що містять гранульовані селективні сорбенти. Після використання ємності, що містять гранульовані селективні сорбенти і ємності, що містять видалені з рідкої фази нерозчинні речовини, заливають високопроникним цементним розчином. Перед цементуванням ємності вакуумують та/або прогрівають гарячим повітрям або інертним газом. Розмір гранул селективних сорбентів знаходиться в інтервалі від 1 до 3 мм. Розмір часток селективних сорбентів, що їх додають у вигляді порошку, знаходиться в інтервалі від 0,1 до 0,7 мм.

Бетонні блоки, всередині яких знаходяться ємності з відокремленими радіоактивними штамами або відпрацьованими сорбентами, є кінцевим продуктом переробки та утилізації РРВ. Вони не потребують подальшого кондиціонування і можуть бути відразу відправлені на захоронення або бути використані як конструкційні матеріали для будівництва сховищ

30 Суть корисної моделі пояснюється кресленням, на якому зображена схема реалізації способу.

На кресленні зображені:

- 35 1. Бак змішування РРВ з порошковим неорганічним селективним сорбентом
 2. Корбрік Ф з 2-ма фільтрелементами (50 мкм і 5 мкм),
 3. Вузол озонування
 4. Корбрік Ф з 2-ма фільтрелементами (5 мкм і 0,5 мкм)
 5. Корбрік С заповнений селективним сорбентом
 6. Корбрік С заповнений селективним сорбентом.
- 40 Корбрік Ф - бетонний блок, розміром 1500 × 1500 × 1500 мм, всередині якого знаходиться порожнина об'ємом 200 л, на виході з якої послідовно встановлені 2 фільтр елемента.

Корбрік С - бетонний блок, розміром 1500 × 1500 × 1500 мм, всередині якого знаходиться циліндрична ємність з селективним сорбентом об'ємом 40 л.

45 У заявленому способі використовують дрібнодисперсний порошок селективного сорбенту (або суміш порошків декількох сорбентів), що дозволяє вирішити кілька завдань: видалити з розчину, що підлягає очищенню, частини радіонуклідів і рівномірно розподілити активність за фільтраційними і сорбційними блокам, сформувати тверду фазу з суспензій і колоїдів, що легко відокремлюється та дозволяє спростити і здешевити процес розподілу твердих і рідких компонентів РРВ.

50 При реалізації способу використовують ємності з простими фільтрелементами (сітки, керамічні фільтри тощо), розміщені в бетонні кожухи, що по суті є бетонними блоками, що виключає опромінення обслуговуючого персоналу.

Відфільтровані високорадіоактивні опади залишають всередині бетонних блоків, а не виводяться при промиванні фільтрелементів у вигляді шламів, як це реалізовано у прототипі та в усіх відомих способах. Бетонні блоки безпечні для транспортування і зберігання, їх можна використовувати як елементи будівельних конструкцій спеціального призначення (наприклад для будівництва складів, сховищ радіоактивних відходів тощо).

60 Фільтрат пропускають через ємності з гранульованим сорбентом, оскільки для ефективної сорбції необхідна певна висота шару сорбенту (для створення оптимального часу контакту розчину з сорбентом). Якщо використовувати порошковий сорбент, то такий шар призведе до

високого гідродинамічного опору, при цьому швидкість фільтрації може знизитися і наблизитися до нуля.

Інтервал розмірів часток порошкових сорбентів 01, - 0,7 мм обґрунтований тим, що більші частинки (> 0,7 мм), мають меншу поверхню сорбційного матеріалу, і, відповідно, меншу ефективність сорбції, а більш дрібні частки сорбенту (< 0, 1 мм) важко відокремлювати від розчину.

Інтервал розміру часток гранульованих сорбентів від 1 до 3 мм обумовлений тим, що більші гранули, (> 3 мм) мають меншу сорбційну поверхню і менш сорбційно ефективні, а дрібні гранули (< 1мм) створюють високий гідралічний опір і можуть знижувати продуктивність процесу переробки РРВ.

Приклад реалізації 1.

Заявленим способом було здійснено переробку РРВ (рН 12,1), що містили:

сухий залишок (після сушіння при 105 °С) 285 г / л;

зважені речовини (що можуть бути відокремлені на фільтрі синя стрічка) 5,1 г / л;

Трилон Б 3,1 г/л;

питома активність цезій-137:1,1-10-3 Кі/л

питома активність кобальт-60:1,4 10-6 Кі/л

До баку (1) закачали 5 м³ РРВ вищевказаного складу і внесли при перемішуванні композицію, що складалась з 5 кг селективного сорбенту фероціаніду нікелю, нанесеного на порошок аморфного кремнезему Сухоложського родовища з розміром часток від 0,2 до 0,5 мм і 0,5 кг сульфату нікелю як коагулянту. Поєднання аморфного кремнезему і агломератів, що утворюються при взаємодії коагулянту на основі нікелю і зважених часток РРВ, дозволяє легко відокремлювати тверду фазу від рідкої всередині Корбріка Ф.

Після 2-годинного перемішування суспензії, що складалась з сорбенту, зважених часток, що перебували в РРВ, і коагулянту подали в Корбрік Ф (2) з двома фільтрелементами, а після нього очищений від суспензії розчин направили на озонування (3) для руйнування органічних сполук і комплексів. До щойно утвореної при окисненні суспензії додали 5 кг того ж сорбенту, що і в бак (1) і отриману суспензію направили в Корбрік Ф (4) з двома фільтрелементами. Очищений від суспензії розчин пропустили через послідовно з'єднані Корбріки С (5) і (6) з гранульованим селективним сорбентом на основі фероціаніду нікелю. Очищений розчин, що містить менше 10 Бк/л ³⁷Cs та ⁶⁰Co направили на упарювання та кристалізацію. Отриманий матеріал можна розмішувати на полігоні зберігання нерадіоактивних відходів.

До Корбріків Ф, що містять шлам, подали високопроникний цементний розчин для замонолічування внутрішнього обсягу. Корбріки С, що містять селективний сорбент, продули гарячим повітрям і також замонолітили високопроникним цементним розчином.

Активність, затримана у кожному з Корбріків Ф склала по 5 Кі, в Корбріках С: в першому - 9,8 Кі, в другому 0,2 Кі.

Приклад 2

До баку закачали 25 м³ РРВ, що складаються з морської води складу: загальний солевміст - 30г/л; рН = 7,9; питома активність цезію-137 2,4 * 10⁵ Бк/л.

При перемішуванні до РРВ внесли 50 кг селективного сорбенту на основі "берлінської лазури" (гексаціаноферат заліза-калію) у вигляді сухого порошку з розміром часток від 0,2 до 0,5 мм. Після 8-годинного перемішування РРВ з сорбентом подали до Корбріка Ф з одним фільтрелементом, що має розмір пор 0,1 мм. Відокремлений від сорбенту розчин пропустили через Корбрік С, що містить 100 кг гранульованого селективного сорбенту на основі фероціанцу заліза з розміром гранул 1-2 мм. Очищена від радіонуклідів цезію морська вода містить менше 5 Бк/л цезію-137 і може бути спрямована для скидання в море. Використані сорбенти, що знаходяться в Корбріках С і Ф замонолічуються високопроникним цементним розчином.

Приклад 3

Заявленим способом проведена переробка РРВ складу:

загальний солевміст - 228 г / л; рН = 10,9;

питома активність стронцію-90 4,2 * 10⁴ Бк / л;

питома активність кобальту-60 1,5 * 10⁴ Бк/л.

До баку закачали 12 м³ РРВ зазначеного складу та внесли до нього при перемішуванні спочатку 30 кг сухого порошку селективного сорбенту на основі двоокису марганцю, а потім 30 кг сухого порошку сорбенту на основі сульфіді міді. Розмір часток порошоків сорбентів не перевищував 0,5 мм. Після 3-годинного перемішування РРВ подали до Корбріку Ф з двома фільтрелементами, розмір пор яких становив 0,4 і 0,1 мм, а після нього розчин відокремлений від порошкових сорбентів профільтрували через Корбрік С, що містить 50 кг гранульованого

селективного сорбенту на основі двоокису марганцю. Сумарна питома активність ізотопів, що залишилася в РРВ, становила не більше 10 Бк/л.

Приклад 4

Заявленим способом були перероблені РРВ складу:

- 5 Борна кислота 10 г/л, рН = 4;
Cs-137 $5,2 \cdot 10^6$ Бк/л; Co-60 $3,1 \cdot 10^4$ Бк/л;
Ag-1 $10,8,1 \cdot 10^3$ Бк/л; Sr-90 $1,9 \cdot 10^5$ Бк/л.

10 До баку, що містить 10 м^3 РРВ, внесли послідовно при перемішуванні по 20 кг селективних сорбентів у вигляді сухих порошків (з розміром часток менше 0,3 мм) складу: фероціанід міді, фосфат магнію, гідроксид цирконію.

Після 5-годинного перемішування РРВ прокачали через два Корбіка Ф з розміром пор фільтр-елементів 0,2 мм у першому і 0,1 мм у другому, після чого розчин профільтрували через три послідовно з'єднаних Корбіка С, що містять по 60 л механічної суміші селективних сорбентів з розміром гранул 3 мм.

15 Механічна суміш складалася з однорідно перемішаних сорбентів: 20 л фероціаніду міді, 20 л фосфату магнію, 20 л гідроксиду цирконію.

Сумарна питома активність ізотопів в очищених РРВ становила не більше 10 Бк/л.

20 Використання запропонованого способу дозволяє знизити дозове навантаження на персонал під час переробки РРВ, спростити технологічний процес переробки РРВ кінцевого продукту (блока) безпечно для переміщення і використання, що не вимагає спеціальних заходів радіаційної безпеки.

ФОРМУЛА КОРИСНОЇ МОДЕЛІ

25 1. Спосіб переробки рідких радіоактивних відходів (РРВ) та їх утилізації, що включає окислення відходів, видалення з розчину нерозчинних часток, а саме шламів, колоїдів, зважених часток, що містять радіонукліди для подальшої утилізації із застосуванням селективних сорбентів та фільтрів, який **відрізняється** тим, що селективні сорбенти у вигляді порошків додають під час перемішування до РРВ перед стадією виділення з розчину нерозчинних часток, а потім отриману суспензію фільтрують шляхом прокачування через принаймні одну ємність, призначену для утилізації відходів, що на виході містить принаймні один фільтрувальний елемент, що видаляє з розчину нерозчинні речовини, після чого отриманий фільтрат пропускають принаймні через одну ємність, призначену для утилізації відходів, з гранульованими селективними сорбентами, при цьому зазначені ємності розміщені в бетонних блоках.

30 2. Спосіб за п. 1, який **відрізняється** тим, що в процесі переробки РРВ використовують один або кілька селективних сорбентів.

3. Спосіб за п. 1, який **відрізняється** тим, що ємності, що їх застосовують для видалення з розчину нерозчинних часток, містять два або більше фільтрелементів.

40 4. Спосіб за п. 1, який **відрізняється** тим, що розчин, що підлягає очистці від нерозчинних часток, пропускають через дві та більше з'єднаних послідовно ємностей, що містять фільтрелементи.

45 5. Спосіб за п. 1, який **відрізняється** тим, що розчин, що підлягає очистці від нерозчинних часток, може бути пропущений через дві і більше з'єднаних послідовно ємностей, що містять гранульовані селективні сорбенти.

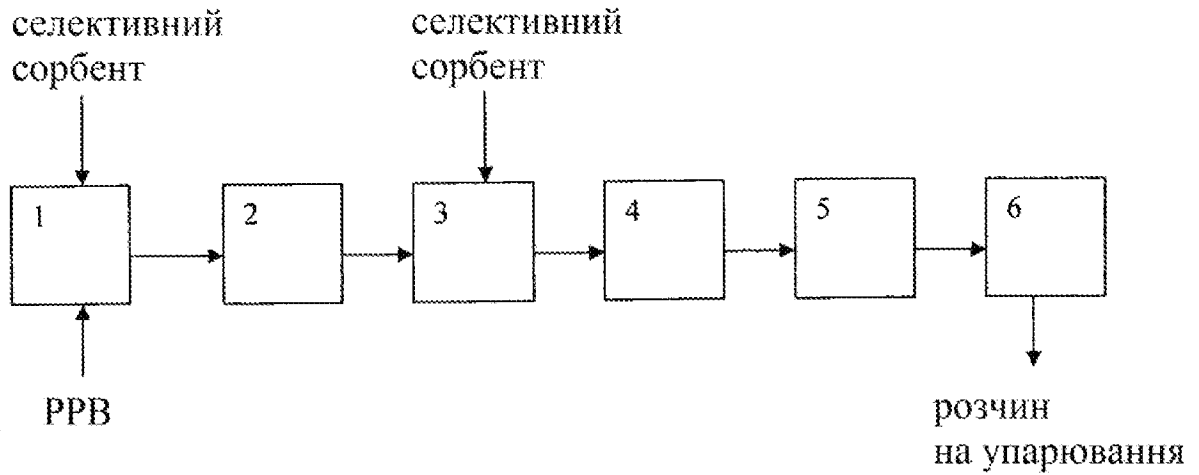
6. Спосіб за п. 1, який **відрізняється** тим, що після використання ємності, що містять гранульовані селективні сорбенти, заливають високопроникним цементним розчином.

7. Спосіб за п. 1, який **відрізняється** тим, що після використання ємності, що містять видалені з розчину нерозчинні речовини, заливають високопроникним цементним розчином.

50 8. Спосіб за пп. 6, 7, який **відрізняється** тим, що перед цементуванням ємності вакуумують та/або прогрівають гарячим повітрям або інертним газом.

9. Спосіб за п. 1, який **відрізняється** тим, що розмір гранул селективних сорбентів знаходиться в інтервалі від 1 до 3 мм.

55 10. Спосіб за п. 1, який **відрізняється** тим, що розмір часток селективних сорбентів, що їх додають у вигляді порошку, знаходиться в інтервалі від 0,1 до 0,7 мм.



Комп'ютерна верстка В. Юкін

Міністерство економічного розвитку і торгівлі України, вул. М. Грушевського, 12/2, м. Київ, 01008, Україна

ДП "Український інститут інтелектуальної власності", вул. Глазунова, 1, м. Київ – 42, 01601