



**ФЕДЕРАЛЬНАЯ СЛУЖБА
ПО ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ**

(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ

(21)(22) Заявка: 2013151307/07, 19.11.2013

(24) Дата начала отсчета срока действия патента:
19.11.2013

Приоритет(ы):

(22) Дата подачи заявки: 19.11.2013

(43) Дата публикации заявки: 27.05.2015 Бюл. № 15

(45) Опубликовано: 20.08.2015 Бюл. № 23

(56) Список документов, цитированных в отчете о поиске: RU2268513 C1, 20.01.2006. RU2467419 C1, 20.11.2012. DE 3634111 C, 07.01.1988 . WO2010047467 A1, 29.04.2010

Адрес для переписки:

105005, Москва, ул. 2-я Бауманская, 5, стр. 1,
МГТУ им. Н.Э. Баумана, ЦЗИС (для Архипова
В.П.)

(72) Автор(ы):

Аржаткин Владимир Геннадьевич (RU),
Архипов Владимир Павлович (RU),
Басиев Александр Гаврилович (RU),
Ершов Борис Григорьевич (RU),
Новиков Дмитрий Олегович (RU),
Калашников Валерий Георгиевич (RU),
Камруков Александр Семенович (RU),
Константинов Виталий Евгеньевич (RU),
Козлов Николай Павлович (RU),
Лагунова Юлия Олеговна (RU),
Матвеев Александр Валентинович (RU),
Малков Кирилл Ильич (RU),
Селиверстов Александр Федорович (RU),
Трофимова Мария Олеговна (RU),
Чечельницкий Геннадий Моисеевич (RU),
Шашковский Сергей Геннадьевич (RU),
Яловик Михаил Степанович (RU)

(73) Патентообладатель(и):

Российская Федерация, от имени которой
выступает Государственная корпорация по
атомной энергии "Росатом" (Госкорпорация
"Росатом") (RU),
федеральное государственное бюджетное
образовательное учреждение высшего
профессионального образования
"Московский государственный технический
университет имени Н.Э. Баумана" (МГТУ
им. Н.Э. Баумана) (RU)

(54) СПОСОБ ОЧИСТКИ ЖИДКИХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

(57) Реферат:

Изобретение относится к способу очистки жидких радиоактивных отходов (ЖРО). Заявленный способ предусматривает дозированное введение в кубовый остаток ЖРО перекиси водорода, обработку кубового остатка УФ-излучением ксеноновой лампы, микрофльтрацию с отделением шлама, содержащего радиоактивный кобальт, железо, марганец, и сорбцию для удаления радиоактивного цезия. При этом кубовый остаток ЖРО предварительно фильтруют на сетчатом

фильтрующем материале, затем озонируют в контактной камере противоточного типа, а обработку УФ-излучением ксеноновой лампы осуществляют импульсами длительностью 10...500 мкс, при этом используют УФ-излучение сплошного спектра с интегральной плотностью излучения на поверхности ксеноновой лампы в спектральном диапазоне 190...300 нм не менее $1 \cdot 10^7$ Вт/м². Техническим результатом является повышение эффективности и производительности процесса очистки ЖРО от радионуклидов и

активированных продуктов коррозии. 8 з.п. ф-лы, 1 ил., 4 табл.

R U 2 5 6 0 8 3 7 C 2

R U 2 5 6 0 8 3 7 C 2



FEDERAL SERVICE
FOR INTELLECTUAL PROPERTY

(12) **ABSTRACT OF INVENTION**

(21)(22) Application: 2013151307/07, 19.11.2013

(24) Effective date for property rights:
19.11.2013

Priority:

(22) Date of filing: 19.11.2013

(43) Application published: 27.05.2015 Bull. № 15

(45) Date of publication: 20.08.2015 Bull. № 23

Mail address:

105005, Moskva, ul. 2-ja Baumanskaja, 5, str. 1,
MGТУ im. N.Eh. Baumana, TsZIS (dlja Arkhipova
V.P.)

(72) Inventor(s):

Arzhatkin Vladimir Gennad'evich (RU),
Arkhipov Vladimir Pavlovich (RU),
Basiev Aleksandr Gavrilovich (RU),
Ershov Boris Grigor'evich (RU),
Novikov Dmitrij Olegovich (RU),
Kalashnikov Valerij Georgievich (RU),
Kamrukov Aleksandr Semenovich (RU),
Konstantinov Vitalij Evgen'evich (RU),
Kozlov Nikolaj Pavlovich (RU),
Lagunova Julija Olegovna (RU),
Matveenko Aleksandr Valentinovich (RU),
Malkov Kirill Il'ich (RU),
Seliverstov Aleksandr Fedorovich (RU),
Trofimova Marija Olegovna (RU),
Chechel'nitskij Gennadij Moiseevich (RU),
Shashkovskij Sergej Gennad'evich (RU),
Jalovik Mikhail Stepanovich (RU)

(73) Proprietor(s):

Rossijskaja Federatsija, ot imeni kotoroj
vystupaet Gosudarstvennaja korporatsija po
atomnoj ehnergii "Rosatom" (Goskorporatsija
"Rosatom") (RU),
federal'noe gosudarstvennoe bjudzhetnoe
obrazovatel'noe uchrezhdenie vysshego
professional'nogo obrazovanija "Moskovskij
gosudarstvennyj tekhnicheskij universitet imeni
N.Eh. Baumana" (MGТУ im. N.Eh. Baumana)
(RU)

(54) **METHOD FOR PURIFYING RADIOACTIVE WASTE LIQUID**

(57) Abstract:

FIELD: chemistry.

SUBSTANCE: invention relates to a method for radioactive waste liquid (RWL) treatment. A method comprising dosing of hydrogen peroxide into the distillation residue of RWL, exposure of the said residue to a xenon lamp UV radiation, microfiltration to separate radioactive cobalt, iron and manganese, and adsorption of the radioactive caesium. Prior to the above the RWL distillation residue was filtered through a

filtering mesh and ozonised in a contact chamber; the duration of UV pulses was 10...500 ms, wherein continuous UV radiation within the range of 190...300 nm with the intensity of at least $1 \cdot 10^7$ W/m² was used.

EFFECT: increase of RWL treatment process efficiency and performance in terms of radionuclides and activated corrosion products removal.

9 cl, 1 dwg, 4 tbl

Изобретение относится к области ядерной энергетики и касается, в частности, вопросов обращения с жидкими радиоактивными отходами (ЖРО), образующимися при работе атомных электростанций (АЭС), и может быть использовано для обработки загрязненных радиоактивными элементами растворов при дезактивации оборудования, при работе спецрачечных, при переработке кубовых остатков (КО) выпарных аппаратов установок переработки трапных вод АЭС.

В ходе эксплуатации АЭС образуется значительное количество жидких радиоактивных сред: протечки (трапные воды), отработавшие дезактивационные растворы, воды спецрачечной, вода санпропускников, регенерационные растворы ионообменных фильтров систем спецводоочисток и др., которые собираются, усредняются и концентрируются выпариванием. ЖРО гомогенного состава АЭС загрязнены продуктами деления, в основном $^{134,137}\text{Cs}$, а также активированными продуктами коррозии, в основном ^{60}Co . Образовавшиеся при упаривании кубовые остатки направляются на временное хранение в железобетонные облицованные емкости. При хранении малорастворимые соединения, захватывая часть радионуклидов, выпадают в осадок и собираются на дне в виде шлама, а осветленная часть КО постепенно декантируется и перерабатывается.

Локализация, концентрирование и переработка таких отходов значительно упрощается после удаления или разрушения содержащихся в них комплексонов (этилендиаминтетрауксусная кислота (ЭДТА), щавелевая, лимонная кислоты и др.), синтетических поверхностно-активных веществ (СПАВ), которые связывают радионуклиды и затрудняют их выделение традиционными физико-химическими методами.

В последние годы получило развитие направление переработки КО путем выделения из них радионуклидов в небольшом объеме шламов и ионоселективных сорбентов и получения нерадиоактивных или низкордиоактивных солей, относящихся к категории ОНАО (особонизкордиоактивные отходы), размещение которых возможно на полигоне промышленных отходов или в простых ангарах. Радиоактивные вещества в растворах кубового остатка ЖРО находятся в виде простых и комплексных ионов, а также коллоидных частиц. Основными радионуклидами являются ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{60}Co . Изотопы цезия находятся в растворе в ионном виде. Изотоп ^{60}Co - в форме комплексов с соединениями, используемыми для дезактивации оборудования, такими как щавелевая кислота, полифосфаты и др. Поэтому для выделения этого радионуклида из раствора необходимо разрушить эти комплексы.

Известен способ разрушения органических комплексов ^{60}Co озонированием (патент RU 2268513, МПК G21F 9/06, G21F 9/20, опубл. 20.01.2006). Процесс ведут при значении рН 12...13,5. Образующийся при этом радиоактивный шлам, состоящий в основном из гидроокисей железа и переходных металлов и содержащий основную часть ^{60}Co , отделяют фильтрацией. Фильтрат затем очищают от изотопов цезия, пропуская через фильтр с ионоселективным к цезию неорганическим сорбентом.

Недостатком известного способа являются: невысокая эффективность выделения в шлам активированных продуктов коррозии, обусловленная неспособностью озона разрушить оксалаты переходных металлов и полифосфатные комплексы, а также потенциальная опасность использования озона как сильнодействующего вещества и высокая себестоимость, обусловленная высоким расходом реагента (10 кг озона на 1 м³ кубового остатка) и электроэнергии.

Известен также способ очистки кубовых остатков жидких радиоактивных отходов от радиоактивного кобальта и цезия по патенту RU 2467419, МПК G21F 9/30, опубл. 20.11.2012, принятый за ближайший аналог - прототип, согласно которому предусмотрено дозированное введение в кубовый остаток ЖРО перекиси водорода, обработку кубового остатка УФ-излучением ксеноновой лампы при значении рН раствора 7...10 и температуре 45...98°C, микрофльтрацию с отделением шлама, содержащего радиоактивный кобальт, железо, марганец, и сорбцию для удаления радиоактивного цезия. Замена озонирования на дозированное введение в обрабатываемый раствор ЖРО перекиси водорода упрощает и удешевляет известный способ по отношению к аналогам.

Однако у известного способа очистки ЖРО недостатком является невысокая эффективность очистки. Указанный недостаток является совокупным следствием следующих причин:

1) пероксид водорода неэффективно окисляет органические вещества и комплексы при высокой концентрации их в обрабатываемых растворах;

2) в известном способе для инициирования фотохимических процессов используется жесткое УФ-излучение, вырабатываемое ксеноновой эксимерной лампой непрерывного режима работы. Излучение такой лампы обладает узкополосным (квазимонохроматическим) спектром и низкой интенсивностью, что обуславливает невысокую эффективность инициирования фотохимических реакций и очень ограниченное число возможных фотохимических реакций (реализуются лишь такие процессы, для которых энергия электронных связей между ионами в составе металлоорганических комплексов ЖРО совпадает или близка к энергии квантов генерируемого эксимерной лампой излучения);

3) разложение пероксида водорода на радикалы ОН, которое могло бы значительно повысить эффективность процессов окисления ЖРО вследствие высокой окислительной способности самих радикалов ОН, практически не происходит из-за сильного поглощения УФ-излучения содержащимися в высокой концентрации растворах ЖРО солями, в частности NaNO_3 .

Задача, решаемая настоящим изобретением, заключается в повышении эффективности выведения из растворов ЖРО радионуклидов и активированных продуктов коррозии, а также увеличение скорости и производительности процесса.

Техническим результатом от использования предлагаемого технического решения является повышение эффективности и производительности процесса очистки ЖРО от радионуклидов и активированных продуктов коррозии путем интенсификации комбинированной обработки, включающей окислительные и фотохимические механизмы воздействия, причем фотохимическое воздействие осуществляется мощным импульсным УФ-излучением широкого спектрального состава.

Указанный технический результат достигается за счет того, что кубовый остаток ЖРО предварительно фильтруют на сетчатом фильтрующем материале, затем озонируют в контактной камере противоточного типа, а обработку УФ-излучением ксеноновой лампы осуществляют импульсами длительностью 10...500 мкс, при этом используют УФ-излучение сплошного спектра с интегральной плотностью излучения на поверхности ксеноновой лампы в спектральном диапазоне 190...300 нм не менее $1 \cdot 10^7$ Вт/м².

Кроме того, технический результат достигается за счет того, что обработку УФ-излучением проводят с использованием ксеноновой импульсной трубчатой лампы с начальным давлением ксенона в колбе лампы 26...80 кПа (200...600 мм рт. столба) при

плотности импульсной электрической мощности на поверхности колбы лампы не менее $2 \cdot 10^8$ Вт/м².

Кроме того, технический результат достигается за счет того, что между операциями озонирования и дозированного введения в кубовый остаток перекиси водорода производят промежуточную фильтрацию.

В варианте применения микрофильтрацию осуществляют на фильтрах тангенциальной очистки из полимера пространственно-глобулярной структуры (ПГС-полимеры).

Еще в одном варианте применения сорбцию осуществляют на ферроцианидных или ионоселективных сорбентах.

В варианте применения для повышения степени очистки озонирование ведут в циркуляционном режиме или с помощью последовательно включенных однотипных контактных камер.

В другом варианте применения для повышения степени очистки обработку УФ-излучением ведут в циркуляционном режиме или с помощью последовательно включенных однотипных фотохимических реакторов.

В еще одном варианте применения для повышения степени очистки микрофильтрацию осуществляют в циркуляционном режиме или с помощью последовательно включенных однотипных фильтров тангенциальной очистки.

Микрофильтрация на фильтре тангенциальной очистки может быть осуществлена с помощью фильтроэлемента из ПГС-полимера, размещенного внутри многослойного рулонного фильтра из высокопористого ячеистого металла с нанесенными на поверхность пор специальными покрытиями с коалесцирующим действием.

Последовательность операций, составляющих техническую сущность изобретения, будет понятна из фиг. 1, на которой изображена блок-схема технологической установки для реализации предлагаемого технологического процесса очистки ЖРО.

Исходный кубовый остаток ЖРО поступает на предварительный фильтр 1 на основе сетчатого фильтрующего материала, где фильтруются балластные компоненты минеральной и органической природы во взвешенном состоянии.

После предварительной фильтрации раствор ЖРО подается в контактную камеру 2 противоточного типа, в которой направление движения газовых пузырьков с озоном противоположно направлению потока ЖРО. Для обеспечения противотока озон с помощью эжектора подают в нижнюю часть контактной камеры, отделенной от реакционной зоны мелкоячеистой сеткой, а поток ЖРО направляют сверху. При такой организации потоков по мере подъема пузырей с озоном по всей высоте камеры реализуются наилучшие условия для растворения озона, что обеспечивает высокую эффективность использования озона для окисления содержащихся в кубовом остатке ЖРО радиоактивных комплексов.

В соответствии с изобретением озонирование может осуществляться как в одном проходе ЖРО через контактную камеру противоточного типа, так и в процессе многократных проходов через камеру в циркуляционном режиме, а также при прохождении через цепочку последовательно включенных контактных камер.

После окислительной обработки озоном проводится промежуточная фильтрация - удаление образовавшихся шламов на промежуточном фильтре 3, в качестве которого могут быть использованы различные конструкции микрофильтров. На стадии предварительной фильтрации раствор ЖРО существенно очищается и осветляется, что создает предпосылки для эффективности последующих этапов обработки.

Далее в поток ЖРО дозированно вводят перекись водорода и направляют полученную смесь в фотохимический реактор 4 с импульсной ксеноновой лампой в

качестве источника УФ-излучения высокой интенсивности и широкого спектрального состава. Раствор ЖРО с содержанием H_2O_2 облучается импульсами длительностью 10...500 мкс, при этом интегральная плотность излучения на поверхности ксеноновой лампы в спектральном диапазоне 190...300 нм составляет не менее $1 \cdot 10^7$ Вт/м². Частота повторения импульсов выбирается в зависимости от состава и степени загрязнения раствора ЖРО, поступающего в фотохимический реактор 4, и от величины расхода потока ЖРО через реактор. Типовые значения частоты повторения импульсов УФ-излучения составляют 2...20 Гц.

В фотохимическом реакторе 4 за счет мощного и непрерывного по спектру УФ-излучения одновременно происходят несколько процессов:

1) непосредственная деструкция растворенных органических соединений и комплексов, при этом за счет широкого спектра излучения возбуждается множество фотохимических реакций разложения, резонансные частоты разрушаемых связей соответствуют длинам волн, лежащим в спектральном диапазоне по крайней мере 190...300 нм (реализуются все процессы с диапазоном энергий электронных связей между ионами в составе металлоорганических комплексов ЖРО, соответствующим диапазону энергий квантов с длиной волны по крайней мере от 190 до 300 нм), интенсивность инициированных мощными УФ-импульсами фотохимических реакций высока;

2) под действием мощного УФ-излучения в предварительно очищенном и осветленном растворе ЖРО перекись водорода H_2O_2 эффективно разлагается на радикалы ОН, обладающие высоким окислительным потенциалом;

3) радикалы ОН вступают в окислительную реакцию с остатками органических веществ и комплексов в составе ЖРО.

Аналогично стадии озонирования облучение мощным импульсным УФ-излучением широкого спектрального состава может осуществляться как в одном проходе ЖРО через фотохимический реактор 4, так и в процессе многократных проходов через реактор в циркуляционном режиме, а также при прохождении через цепочку последовательно включенных однотипных фотохимических реакторов.

После обработки высокоимпульсным УФ-излучением широкого спектрального состава поток ЖРО с продуктами химического и фотохимического окисления подвергают микрофльтрации на микрофилт্রে 5 тангенциальной очистки из полимера пространственно-глобулярной структуры. Фильтроэлемент микрофилт্রে 5 размещен внутри многослойного рулонного филт্রে из высокопористого ячеистого металла с нанесенными на поверхность пор специальными полимерными покрытиями с коалесцирующим действием.

Концентрат в виде шлама радиоактивных отходов выводится либо для захоронения, либо при необходимости повышения степени концентрации выводимого шлама и уменьшения его объема для повторного микрофилтрования в циркуляционном режиме или через последовательно установленные однотипные микрофилттры.

Отфилтрованный от продуктов фотохимического разложения раствор ЖРО в зависимости от особенностей исходного состава и концентрации загрязнений также может подвергаться повторному микрофилтрованию в циркуляционном режиме или через последовательно установленные однотипные микрофилттры.

Затем отфилтрованный поток ЖРО поступает на сорбционный филттр 6, выполненный по технологии ступенчатой противоточной сорбции на ферроцианиде никеля. Возможно также использование порошковых ионоселективных сорбентов.

Сгущенные пульпы и шламы подаются в емкости приема и временного хранения отработавших фильтроматериалов для их последующего совместного цементирования либо непосредственно в промежуточные емкости на установку цементирования ЖРО гетерогенного состава, сухие гранулированные соли в мешках можно направлять на хранение в хранилища ангарного типа либо на полигон промышленных отходов как химические отходы.

Таким образом, предложенный способ обеспечивает высокую эффективность и производительность процесса очистки ЖРО за счет использования комбинированной многооперационной технологии, обеспечивающей взаимную компенсацию отдельных элементарных протекающих процессов и получение синергетического результата. При этом предлагаемая технология обеспечивает значительную гибкость в части возможности использования многократного повторения основных воздействующих факторов (озонирование, обработка импульсным УФ-излучением сплошного спектра, микрофльтрация) в многопроходном циркуляционном режиме или через последовательно включенные однотипные компоненты технологической схемы.

Примеры реализации предложенного способа

Пример 1. Озонирование + УФ

Для экспериментов использовался раствор щавелевой кислоты с начальной концентрацией 50...70 мг/л. Обработка проводилась в проточном режиме посредством озонирования и облучением УФ-излучением сплошного спектра.

Озон подавался в раствор посредством специальной колонны, в которой газ подавался в нижнюю часть, а жидкость сверху, чем достигалось максимальная степень растворения озона в растворе. Максимальная концентрация озона на выходе из озонатора достигала 280 мг/л. Время контакта озона с обрабатываемым раствором составляло 3...4 с. Остаточная концентрация газа на выходе из колонны не превышала 20 мг/л. Расход обрабатываемого раствора составлял 75...80 л/ч. Обработка импульсным УФ-излучением широкого спектра проводилось в фотохимическом реакторе с толщиной обрабатываемого слоя 15 мм. Интегральная плотность излучения на поверхности ксеноновой лампы в спектральном диапазоне 190...300 нм составляла не менее 10^7 Вт/м². Частота следования импульсов 2 Гц.

Результаты приведены в таблице 1.

| Таблица 1 | | | |
|--------------------------------------|----------------|----|---------------------|
| Концентрация щавелевой кислоты, мг/л | | | |
| | О ₃ | УФ | О ₃ + УФ |
| Исходный | 70 | 50 | 50 |
| 1 проход | 68 | 47 | 10 |
| 2 проход | 62 | 45 | 3 |
| 3 проход | 67 | 44 | 0,5 |
| 4 проход | 62 | 41 | 0,09 |

Полученные результаты показывают, что эффективность комбинированной (О₃+УФ) обработки раствора щавелевой кислоты намного (более, чем на порядок) выше, чем монообработка только озоном или только УФ-излучением.

Пример 2. Озонирование + Н₂О₂ + УФ

Для экспериментов использовался раствор, содержащий комплекс Со + ЭДТА с начальной концентрацией 10 мг/л. Обработка проводилась в проточном режиме посредством озонирования и облучением УФ-излучением сплошного спектра в присутствии перекиси водорода. Постановка и проведение эксперимента аналогична

Примеру 1. Озонирование проводилось в тех же режимах, подача перекиси водорода производилась на входе фотохимического реактора. Результаты приведены в таблице 2.

5

| | Относительное изменение концентрации комплекса Со+ЭДТА | | |
|----------|--|---------------------|---|
| | О ₃ | О ₃ + УФ | О ₃ + Н ₂ О ₂ + УФ |
| Исходный | 100% | 100% | 100% |
| 1 проход | 45,4% | 35,3% | 34,2% |
| 2 проход | 37,3% | 19,0% | 16,5% |
| 3 проход | 34,2% | 3,6% | 1,3% |
| 4 проход | 30,9% | 0,2% | 0,07% |

10

Результаты в табл.2 показывают, что эффективность разрушения комплекса Со + ЭДТА существенно повышается при комбинированном воздействии 3-х факторов: О₃ + Н₂О₂ + УФ.

15

Пример 3. Сорбционная очистка

Для экспериментов использовались ЖРО низкого уровня активности с удельной активностью около 2×10^4 Бк/л. Основной вклад в общую активность продукта вносят радионуклиды ¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs (~90%) и ⁶⁰Со (~10%).

20

Очистку проводили путем внесения коллектора радионуклидов в виде мелкодисперсного селективного сорбента или осадка с последующим отделением твердой фазы на мембранном фильтре. В качестве коллекторов радионуклидов ¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs использовали мелкодисперсный ферроцианидный сорбент марки СФНС

25

(модификация ФН50Д50) на основе ферроцианида никеля-калия и природного диатомита и свежесажженный осадок ферроцианида никеля-калия (фоц Ni-K), получаемый при последовательном внесении в очищаемый продукт растворов нитрата никеля и желтой кровяной соли. В качестве коллектора радионуклида ⁶⁰Со использовали

30

свежесажженный осадок гидроксида железа, получаемый при внесении в очищаемый продукт раствора сульфата железа (II) при pH 9,5-10,5. Радионуклидный состав исходных и очищенных продуктов по операциям приведен в табл.3.

35

| № Оп | № пробы | Характеристика продукта | Радионуклидный состав исходных и очищенных продуктов по операциям | | | |
|------|---------|-------------------------|---|-------------------|-------------------|------------------|
| | | | Удельная активность, Бк/л | | | |
| | | | Σβ | ¹³⁷ Cs | ¹³⁴ Cs | ⁶⁰ Со |
| 1 | 1/0 | исходный продукт | 20600±2700 | 18900±2100 | 1010±120 | 1430±170 |
| | 1/1 | Фильтрат I ступени | 1380±190 | 380±70 | 20±4 | 660±80 |
| | 1/2 | Фильтрат II ступени | 194±28 | <2 | <2 | 440±50 |
| 2 | 2/0 | исходный продукт | 31900±2900 | 15800±1800 | 3300±400 | 3800±500 |
| | 2/1 | Фильтрат I ступени | 3400±500 | 1140±130 | 230±30 | 1460±180 |
| | 2/2 | Фильтрат II ступени | 380±40 | <2 | <2 | 890±100 |
| 3 | 3/1 | Фильтрат I ступени | 4000±500 | 1390±170 | 290±40 | 1460±180 |
| | 3/2 | Фильтрат II ступени | 410±40 | <2 | <2 | 910±110 |
| 4 | 4/0 | исходный продукт | 35000±4000 | 19800±2400 | 4300±500 | 1760±220 |
| | 4/1 | Фильтрат I ступени | 2400±300 | 1440±180 | 280±40 | 670±80 |
| | 4/2 | Фильтрат II ступени | 143±19 | <2 | <2 | 350±40 |
| 5 | 5/1 | Фильтрат I ступени | 4700±500 | 1720±210 | 340±40 | 880±200 |
| | 5/2 | Фильтрат II ступени | 215±26 | 8,5±1,3 | <2 | 610±70 |
| 6 | 6/1 | Фильтрат I ступени | 3500±500 | 1390±170 | 300±50 | 1030±120 |
| | 6/2 | Фильтрат II ступени | 244±29 | <2 | <2 | 760±90 |

45

По результатам, приведенным в табл.3, были рассчитаны величины коэффициентов очистки продукта по соответствующим радионуклидам на I и II ступени очистки, а также общий коэффициент очистки. Результаты приведены в табл.4.

| Таблица 4 | | | | |
|---|-----------|---|-------------------|------------------|
| Значения коэффициентов очистки продукта по радионуклидам на I и II ступени и общий коэффициент очистки по операциям | | | | |
| № оп | № ступени | Значения коэффициентов очистки по радионуклидам | | |
| | | $\Sigma\beta$ | ^{137}Cs | ^{60}Co |
| 1 (УФ) | I | 14,9 | 50 | 2,2 |
| | II | 7,1 | 190 | 1,5 |
| | I+II | 106 | 9450 | 3,3 |
| 2 | I | 9,4 | 14 | 2,6 |
| | II | 8,9 | 570 | 1,6 |
| | I+II | 84 | 7900 | 4,3 |
| 3 | I | 8,0 | 11 | 2,6 |
| | II | 9,8 | 695 | 1,6 |
| | I+II | 78 | 7900 | 4,2 |
| 4 (УФ) | I | 14,6 | 14 | 2,6 |
| | II | 16,8 | 720 | 1,9 |
| | I+II | 245 | 9900 | 5,0 |
| 5 | I | 7,4 | 12 | 2,0 |
| | II | 21,9 | 202 | 1,4 |
| | I+II | 163 | 2329 | 2,9 |
| 6 | I | 10,0 | 14 | 1,7 |
| | II | 14,3 | 695 | 1,4 |
| | I+II | 143 | 9900 | 2,3 |

Представленные в таблицах 3 и 4 результаты показывают, что наиболее эффективно протекает очистка исходного продукта от радионуклидов цезия. Значения коэффициентов очистки ($K_{\text{оч}}$) от ^{137}Cs на первой ступени составляют 50 (1 операция) и 12...14 (2...7 операции). На второй ступени $K_{\text{оч}}$ от ^{137}Cs составляет 190...720 во всех операциях. Высокие значения коэффициентов очистки позволили очистить исходный продукт от радионуклидов цезия до уровня ниже предела обнаружения (менее 2 Бк/л). Эффективными коллекторами цезия являются как мелкодисперсный ферроцианидный сорбент марки СФНС, так и свежесажженный осадок ферроцианида никеля-калия. Проведение ультрафиолетовой обработки практически не сказывается на эффективности очистки исходного продукта от цезия.

Значительно менее эффективно протекает очистка исходного продукта от радионуклида ^{60}Co . Значения $K_{\text{оч}}$ от кобальта на первой и второй ступени очистки составляют 1,4...2,6. Наилучшие результаты очистки от кобальта (общий $K_{\text{оч}}=5,0$) достигнуты в операции 4 при проведении ультрафиолетовой обработки раствора и использовании в качестве коллектора осадка гидроксида железа. Низкая эффективность удаления кобальта связана, по-видимому, с его нахождением в растворе в виде растворимых комплексных соединений с органическими лигандами, например с оксалат-ионами.

Приведенные примеры реализации доказывают промышленную применимость, высокую эффективность и производительность предложенного способа очистки ЖРО.

Формула изобретения

1. Способ очистки жидких радиоактивных отходов, предусматривающий дозированное введение в кубовый остаток жидких радиоактивных отходов перекиси

водорода, обработку кубового остатка ультрафиолетовым излучением ксеноновой лампы, микрофльтрацию с отделением шлама, содержащего радиоактивный кобальт, железо, марганец, и сорбцию для удаления радиоактивного цезия, отличающийся тем, что кубовый остаток жидких радиоактивных отходов предварительно фильтруют на сетчатом фильтрующем материале, затем озонируют в контактной камере противоточного типа, а обработку ультрафиолетовым излучением ксеноновой лампы осуществляют импульсами длительностью 10...500 мкс, при этом используют ультрафиолетовое излучение сплошного спектра с интегральной плотностью излучения на поверхности ксеноновой лампы в спектральном диапазоне 190...300 нм не менее $1 \cdot 10^7$ Вт/м².

2. Способ по п.1, отличающийся тем, что обработку ультрафиолетовым излучением проводят с использованием ксеноновой импульсной трубчатой лампы с начальным давлением ксенона в колбе лампы 26...80 кПа при плотности импульсной электрической мощности на поверхности колбы лампы не менее $2 \cdot 10^8$ Вт/м².

3. Способ по п.1, отличающийся тем, что между операциями озонирования и дозированного введения в кубовый остаток перекиси водорода производят промежуточную фильтрацию.

4. Способ по п.1, отличающийся тем, что микрофльтрацию осуществляют на фильтрах тангенциальной очистки из полимера пространственно-глобулярной структуры.

5. Способ по п.1, отличающийся тем, что сорбцию осуществляют на ферроцианидных или ионоселективных сорбентах.

6. Способ по п.1, отличающийся тем, что озонирование ведут в циркуляционном режиме или с помощью последовательно включенных однотипных контактных камер.

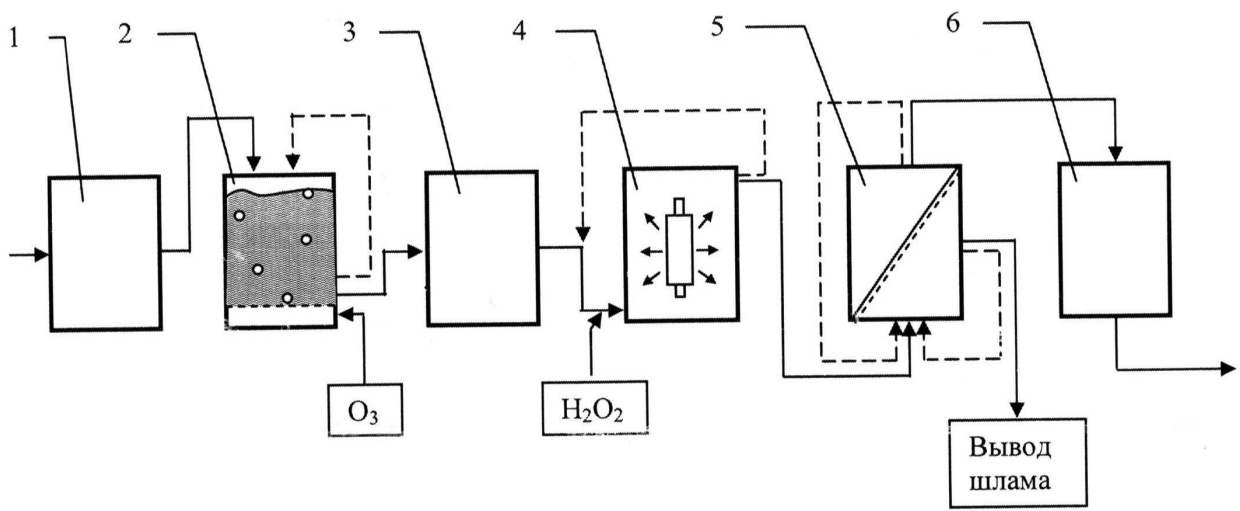
7. Способ по п.1 или 2, отличающийся тем, что обработку ультрафиолетовым излучением ведут в циркуляционном режиме или с помощью последовательно включенных однотипных фотохимических реакторов.

8. Способ по п.1 или 4, отличающийся тем, что микрофльтрацию осуществляют в циркуляционном режиме или с помощью последовательно включенных однотипных фильтров тангенциальной очистки.

9. Способ по п.4, отличающийся тем, что микрофльтрацию на фильтре тангенциальной очистки осуществляют с помощью фильтроэлемента из полимера пространственно-глобулярной структуры, размещенного внутри многослойного рулонного фильтра из высокопористого ячеистого металла с нанесенными на поверхность пор специальными покрытиями с коалесцирующим действием.

40

45



Фиг. 1