

## УТИЛИЗАЦИЯ ЖИДКИХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ НА ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОМ РЕАКТОРЕ ВВР-М

В. И. Слисенко<sup>1</sup>, Н. И. Вальковская<sup>1</sup>, Т. В. Кармазина<sup>2</sup>, В. Н. Макаровский<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Институт ядерных исследований НАН Украины, Киев

<sup>2</sup>Институт коллоидной химии и химии воды НАН Украины, Киев

Рассмотрена технология очистки жидких радиоактивных отходов на исследовательском реакторе ВВР-М. Приведены физико-химические характеристики растворов до и после очистки жидких радиоактивных отходов. Обосновано использование воды после очистки жидких радиоактивных отходов во втором контуре реактора.

### Введение

В связи с увеличением объемов радиоактивных отходов (РАО), образующихся при эксплуатации ядерных установок, актуальной является задача их утилизации, как основного компонента комплексной стратегии обращения с РАО. Утилизация считается наиболее эффективной, когда в результате отделения радиоактивной части отходов от нерадиоактивной некоторые компоненты можно повторно использовать. На исследовательском ядерном реакторе ВВР-М сложилась ситуация, когда резервуары для временного хранения жидких радиоактивных отходов (ЖРО) практически полностью заполнены. Кроме того, по современным требованиям РАО должны захораниваться только в твердой фазе в специально предназначенных для этого местах. Поэтому для обращения с ЖРО в рамках современных норм и правил радиационной безопасности на реакторе ВВР-М была реконструирована установка по переработке ЖРО и изменена технология очистки жидких отходов.

### ЖРО на исследовательском реакторе ВВР-М

ЖРО образуются в процессе эксплуатации реактора и включают в себя как штатные, так и ремонтные технологические сливы.

К штатным технологическим сливам относятся: перелив теплоносителя из бака реактора при доливке дистиллированной воды для восстановления уровня теплоносителя в баке; технологические протечки уплотнений насосов первого контура; сливы, образующиеся при периодическом взрыхлении ионообменных фильтров; сливы из систем контроля протечек.

К ремонтным сливам относятся: слив теплоносителя с целью частичной или полной его замены; сливы при гидроиспытаниях; сливы из оборудования и отдельных участков трубопровода при ремонте; сливы продуктов дезактивации.

Сливаемые ЖРО по системе специальной канализации поступают и накапливаются в сбросных резервуарах (два резервуара по 330 м<sup>3</sup>). Среднестатистическое годовое поступление жидких отходов составляет 18–20 м<sup>3</sup>. Отходы, накапливающиеся в сбросных резервуарах, относятся к категории низкоактивных (концентрация радионуклидов не выше 10<sup>-6</sup> Ки/л).

### Переработка ЖРО

Переработка ЖРО на реакторе ВВР-М основана на экологически чистом методе упаривания до получения концентрата. Выпаренная влага (дистиллированная вода) после ионообменной очистки, химического и гамма-спектрометрического анализа используется для технических нужд реактора, а концентрат, содержащий радиоактивные элементы, удаляется из аппарата на иммобилизацию и после обработки вывозится в виде твердых низкоактивных отходов на спецкомбинат «Радон». Технология переработки ЖРО



которая включает в себя систему технологических и дренажных сливов. К коллектору технологических сливов подключены переливные трубы аппарата-концентратора, конденсатного бака, бака для дистиллированной воды, газоочистителя, бака подпитки и трубопроводы осушения бака подпитки. В коллектор дренажных сливов поступают: слив из поддона аппарата-концентратора, слив из уравнивателя давления системы пробоотбора, слив взрыхляющей воды от термоксидного фильтра. Пол помещения, где размещается специальное оборудование, практически является поддоном – все протечки, которые достигают его, удаляются через трубопровод трапных сливов в коллектор дренажных сливов. Система дренажных сливов оборудована приборами контроля наличия протечек. Имеется также специальная система канализация - сливы из мастерской и душевой.

Для предотвращения протечки радионуклидов исходного раствора в продукты сгорания применяется очистка в сепараторах, газоочистителе и сборнике вентиляционного конденсата, где происходит осушение газов и снижение удельной активности уносимой влаги с дальнейшим радиационным контролем. В случае выхода радионуклидов при аварийной ситуации в конденсат или продукты сгорания технологическая защита автоматически за время не более 1 с останавливает установку. Процесс парообразования в этой установке имеет очень незначительную тепловую инерцию и прекращается практически сразу после прекращения подачи топлива. Специальная вытяжка из установки обеспечивается как штатными вентиляционными системами здания установки, так и вентиляционной системой специальной вытяжки самого реактора. При этом воздух проходит через основной элемент системы очистки вентиляционных выбросов – газоочиститель и сборник вентиляционного конденсата с дальнейшим радиационным контролем.

Таким образом, утечка ЖРО за пределы установки исключается благодаря ее конструктивным особенностям, а содержание радиоактивных веществ в вентиляционных выбросах находится в пределах допустимых норм ввиду эффективной системы очистки.

#### Физико-химические характеристики растворов до и после очистки

Как результат отсутствия объемного кипения в аппарате-концентраторе при прямой теплопередаче от продуктов сгорания к жидкости достигается высокое качество очистки.

С точки зрения химического процесса бикарбонаты раствора не переходят в карбонаты, так как содержание углекислоты в нем выше равновесной концентрации. Другими словами, отложения накипи на внутренних поверхностях испарителя не происходит. Поставщиком избыточной углекислоты являются продукты сгорания.

В табл. 1 приведен химический состав растворов до и после переработки ЖРО.

Таблица 1. Характеристики растворов до и после переработки ЖРО

Наименование	Размерность	До очистки	После очистки
рН	-	7,3 ÷ 7,5	6,5 ÷ 7,0
Щелочность	мг · экв./л	6,0	0
Жесткость	мг · экв./л	4,0 ÷ 5,5	0
Железо	мг/л	40,0	0,05
Хлор	мг/л	80,0	0,01
Алюминий	мг/л	10,0	0
Концентрат	мг/л	≤ 1000,0	2 ÷ 4
ПАВ	мг/л	100,0	0,1
Щавелевая кислота	мг/л	80,0	0
Взвешенные вещества	мг/л	400,0	0

В табл. 2 приведен радионуклидный состав ЖРО и их концентрация в растворах до и после очистки, определенные с помощью спектрометрической системы компании Canberra на базе детектора из сверхчистого германия модели GC 6020 с предусилителем TRP-типа модели 2101 P/SL, цифрового сигнального процессора DSP 9660, модуля счета без потерь

LFC 599, интерфейсного модуля AIM556Ф и программного обеспечения Genie-2000. Относительная эффективность регистрации детектора  $\varepsilon_r = 61,5 \%$  для  $E_\gamma = 1332$  кэВ, а энергетическое разрешение для этой энергии составляет 1,82 кэВ.

Таблица 2. Гамма-спектрометрический анализ растворов до и после очистки ЖРО

Радионуклид	Концентрация радионуклидов, Ки/л		Допустимая концентрация радионуклидов, Ки/л
	до очистки	после очистки	
$^{60}\text{Co}$	$(6,39 \pm 0,007) \cdot 10^{-8}$	$(4,1 \pm 0,4) \cdot 10^{-10}$	$9 \cdot 10^{-8}$
$^{134}\text{Cs}$	$(2,27 \pm 1,4) \cdot 10^{-9}$	$(3,78 \pm 0,2) \cdot 10^{-11}$	$8,6 \cdot 10^{-9}$
$^{137}\text{Cs}$	$(9,26 \pm 0,01) \cdot 10^{-7}$	$(1,34 \pm 0,03) \cdot 10^{-9}$	$1,5 \cdot 10^{-8}$
$^{152}\text{Eu}$	$(2,06 \pm 2,8) \cdot 10^{-9}$	$< 1,72 \cdot 10^{-10}$	$7,6 \cdot 10^{-8}$
$^{154}\text{Eu}$	$(4,08 \pm 0,03) \cdot 10^{-9}$	$< 1,16 \cdot 10^{-10}$	$2,3 \cdot 10^{-8}$
Тритий	$(8,3 \pm 0,3) \cdot 10^{-6}$	$(7,6 \pm 0,3) \cdot 10^{-6}$	$4,0 \cdot 10^{-6}$

Как видно из табл. 2, очистка ЖРО от  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$  очень эффективна. Для удаления трития эта технология не пригодна.

Для исследования состояния воды и процессов, происходящих в ней под влиянием молекул  $\text{T}_2\text{O}$ , использовали метод квазиупругого рассеяния медленных нейтронов (КРМН), который позволяет определять такие характеристики, как общий коэффициент самодиффузии ( $D$ ), вклады в него от коллективных ( $D_l$ ) и одночастичных ( $D_f$ ) движений молекул, время жизни молекул ( $\tau_0$ ) в колебательном состоянии возле одного из центров равновесия, а также длины прыжка молекул ( $l$ ) от одного центра равновесия к другому. Коэффициент  $D_l$  отражает наличие связанных молекул в системе, а коэффициент  $D_f$  – свободных.

Спектры квазиупругого рассеяния медленных нейтронов были получены с помощью многодетекторного нейтронного спектрометра на реакторе ВВР-М ИЯИ НАН Украины. В спектрометре монохроматический импульсный пучок нейтронов после рассеяния на исследуемом образце регистрируется восемью детекторами в диапазоне углов от 9 до 116°. Энергия рассеянных нейтронов определяется методом времени пролета. Получаемые спектры представляют собой зависимость числа зарегистрированных рассеянных нейтронов от времени регистрации. Возникновение квазиупругих пиков в спектрах рассеяния обусловлено взаимодействием нейтронов с трансляционными движениями частиц растворов. Основная информация об этих движениях содержится в зависимости энергетического уширения квазиупругих пиков от квадрата переданного импульса  $\Delta E(\chi^2)$  при рассеянии нейтронов на исследуемом образце [5, 6].

Полученные спектры квазиупругого рассеяния медленных нейтронов системами  $\text{H}_2\text{O}$  (система 1),  $\text{H}_2\text{O} + \text{T}_2\text{O}$  (система 2, концентрация трития 0,76 мкКи/л) и  $\text{H}_2\text{O} + \text{T}_2\text{O}$  (система 3, концентрация трития 7,6 мкКи/л) представлены на рис. 2. Система 3 представляет собой водный раствор после переработки ЖРО, система 2 – десятикратное разбавление дистиллированной водой системы 3. Зависимость уширения  $\Delta E$  квазиупругого пика от квадрата переданного импульса для исследованных систем представлена на рис. 3.

Исследования показали, что присутствие трития в воде для исследуемых концентраций практически не изменяет механизм самодиффузии молекул воды. Молекулы воды в составе временных образований (лагранжевых частиц) колеблются возле одного из центров равновесия в течение времени  $\tau_0$ , затем прыжком переходят к другому центру равновесия (диффузия прыжком) и продолжают колебаться, процесс повторяется. При этом лагранжевы частицы непрерывно перемещаются по объему (классическая диффузия). Для системы 1 (дистиллированная вода) и системы 2 (водный раствор с концентрацией трития 0,76 мкКи/л) характеристики процессов самодиффузии молекул практически одинаковы и равны:  $D = (2,23 \pm 0,17) \cdot 10^{-9} \text{ м}^2\text{с}^{-1}$ ;  $D_l = (0,46 \pm 0,02) \cdot 10^{-9} \text{ м}^2\text{с}^{-1}$ ;  $D_f = (1,77 \pm 0,13) \cdot 10^{-9} \text{ м}^2\text{с}^{-1}$ ;

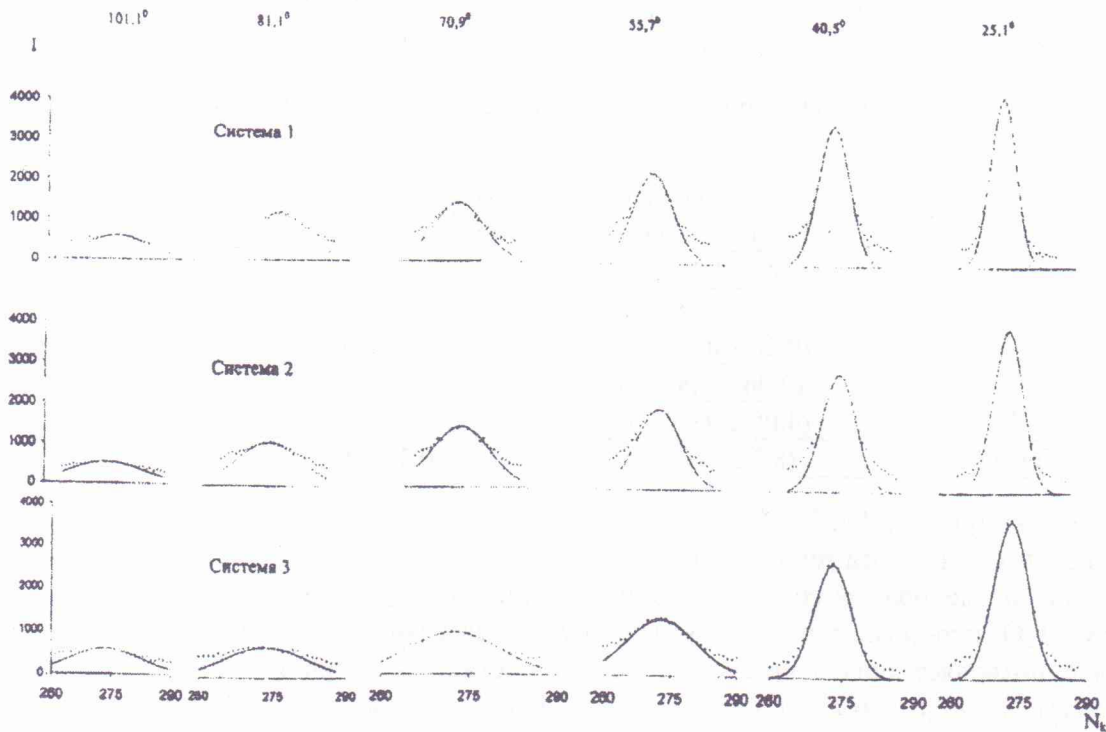


Рис. 2. Спектры квазиупругого рассеяния медленных нейтронов исследуемыми системами. Точки – экспериментальные значения, сплошные линии – аппроксимация гауссианом.

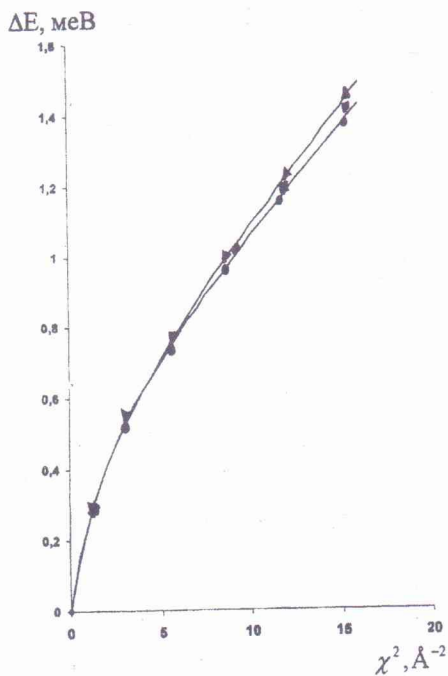


Рис. 3. Зависимость уширения квазиупругого пика  $\Delta E$  от квадрата переданного импульса  $\chi^2$  для исследованных систем. Точки – экспериментальные значения, сплошные линии – расчет по формуле (11).  $\blacktriangle$  - система 1;  $\blacksquare$  - система 2;  $\bullet$  - система 3.

$\tau_0 = (2,80 \pm 0,21) \cdot 10^{-12} \text{с}$ ;  $l = 0,17 \cdot 10^{-9} \text{м}$ . Небольшое отличие от дистиллированной воды, а именно перераспределение между вкладами одночастичных и коллективных движений  $D_1 = (0,49 \pm 0,02) \cdot 10^{-9} \text{м}^2 \text{с}^{-1}$ ;  $D_f = (1,74 \pm 0,13) \cdot 10^{-9} \text{м}^2 \text{с}^{-1}$  при совпадении всех остальных характеристик динамического состояния исследуемых растворов, наблюдается для системы 3, где концентрация трития в 10 раз больше, чем для системы 2. Такое поведение характерно для систем, где размеры атомов примеси больше размеров атомов основной составляющей.

## Выводы

Установка по переработке ЖРО эффективно очищает воду от радиоактивных и химических примесей за исключением трития. Однако уже 10-кратное разбавление после очистки раствора ЖРО водой приводит к отсутствию влияния трития на динамику молекул  $H_2O$  и воду можно использовать во втором контуре реактора. Объем воды во втором контуре реактора  $500\text{ м}^3$ , а производство дистиллированной воды в сутки на установке по переработке ЖРО до  $10\text{ м}^3$ , т.е. происходит 50-кратное разбавление, и концентрация трития в воде второго контура составляет  $0,16\text{ мкКи/л}$ . Среднесуточная потеря воды второго контура около  $150\text{ м}^3$  и такое же количество воды ежедневно добавляется во второй контур реактора. Это приводит к тому, что за 10 - 15 лет работы реактора вероятность накопления трития в системе второго контура до граничной допустимой концентрации минимальна, а использование воды после переработки ЖРО для технических нужд реактора делает эту установку эффективной как в экономическом, так и экологическом смысле.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Макаровский В.Н., Луференко Е.Д., Вальковская Н.И. и др. Технология очистки жидких радиоактивных отходов на реакторе ВВР-М. - Киев, 2004. - 15 с.
2. Андронов О.Б., Близнюкова В.А., Остапенко В.И. Устройство для концентрирования жидких радиоактивных отходов // А. с. № 1760888 от 06.12.90.
3. Макаровский В.Н., Луференко Е.Д., Вальковская Н.И. и др. Установка переработки жидких радиоактивных отходов исследовательского реактора ВВР-М: Отчет по анализу безопасности. - Киев, 2004. - 33 с.
4. Савчук В.І., Макаровський В.М., Вальковська Н.І. та ін. Інструкція з радіаційної безпеки при виконанні робіт на установці з переробки рідких радіоактивних відходів № 23 ВВР дослідницького ядерного реактора. - Київ, 2004. - 9 с.
5. Слисенко В.И., Иваницкий П.Г., Кармазина Т.В. и др. Квазиупругое рассеяние нейтронов в исследованиях динамики молекул растворов. - Киев, 1993. - 20 с. - (Препр. / НАН Украины. Ин-т ядерных исслед.; КИЯИ-93-13).
6. Кармазина Т.В., Клименко Н.А., Слисенко В.И. и др. // Коллоид. журнал. - 1991. - Т. 53, № 2. - С. 356 - 360.

i

## УТИЛІЗАЦІЯ РІДКИХ РАДІОАКТИВНИХ ВІДХОДІВ НА ДОСЛІДНИЦЬКОМУ РЕАКТОРІ ВВР-М

**В. І. Слісенко, Н. І. Вальковська, Т. В. Кармазіна, В. М. Макаровський**

Розглянуто технологію очищення рідких радіоактивних відходів на дослідницькому реакторі ВВР-М. Наведено фізико-хімічні характеристики розчинів до й після очищення рідких радіоактивних відходів. Обґрунтовано використання води після очищення рідких радіоактивних відходів у другому контурі реактора.

## UTILIZATION OF LIQUID RADIOACTIVE WASTES AT WWR-M RESEARCH REACTOR

**V. I. Slisenko, N. I. Valkovska, T. V. Karmazina, V. M. Makarovsky**

Technology of liquid radioactive waste cleaning at the WWR-M research reactor is considered. Physic-chemical parameters of solutions before an after liquid radioactive waste cleaning are presented. Utilization of water in secondary reactor circuit after liquid radioactive waste cleaning is proved.

Поступила в редакцію 13.04.04,  
после доработки – 27.05.04.