

## ОПЫТ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ БАРОМЕМБРАННЫХ ПРОЦЕССОВ ДЛЯ ОЧИСТКИ ЖИДКИХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

О. М. Слюнчев, П. А. Бобров, А. С. Акинцев, Е. Н. Зубриловский  
ФГУП «ПО «Маяк», г. Озерск Челябинской области

Статья поступила в редакцию 17 января 2018 г.

*В статье приведен краткий обзор применения различных баромембранных процессов для очистки жидких радиоактивных отходов. Представлена информация об аппаратурно-технологических особенностях комплексных схем переработки жидких радиоактивных отходов.*

**Ключевые слова:** микрофильтрация, ультрафильтрация, нанофильтрация, обратный осмос, жидкие радиоактивные отходы.

С самого начала развития мембранных процессов в конце 60-х гг. прошлого века они рассматривались как перспективные технологии для очистки жидких радиоактивных отходов (ЖРО). Наиболее широко данные исследования проводились в США и Западной Европе, где работы в этом направлении были инициированы. Первые работы в СССР по использованию мембранных технологий для целей очистки ЖРО начаты в МХТИ им. Д. И. Менделеева (ныне РХТУ) и Московской станции переработки ЖРО во ВНИИНМ им. А. А. Бочвара в начале 70-х гг.

Через 20 лет баромембранные процессы получили широкое распространение не только практически во всех традиционных отраслях промышленности, но и в атомной отрасли, включая АЭС, ядерные исследовательские центры, центры переработки ОЯТ и т. п.

Последние 10–15 лет мембранные технологии начали активно внедряться для переработки ЖРО низкого уровня активности, и прежде всего на АЭС. Основными причинами этого стало ужесточение экологических требований и прогресс в области мембранных технологий. На большинстве АЭС ЖРО перерабатывали методами выпарки, ионного обмена, традиционной фильтрацией или комбинацией этих способов. Однако поскольку ионный обмен приводит к увеличению в 2–3 раза количества отходов, традиционная фильтрация не обеспечивает задержание коллоидов  $^{58/60}\text{Co}$ ,  $^{54}\text{Mg}$ ,  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{125}\text{Sb}$ , а выпарка имеет высокие операционные расходы и при

этом не всегда обеспечивает качество очистки, позволяющее разгрузить конденсат в окружающую среду, от этих способов очистки стали постепенно отказываться.

В настоящее время мембранные технологии активно используются на десятках объектов атомной отрасли, и на многих из них накоплен положительный опыт применения (табл. 1) [1].

### Центр переработки отходов в Chalk River National Laboratories

В Канаде в Chalk River National Laboratories (CRNL) в результате многолетних исследований по очистке ЖРО разработан ряд мембранных систем как для очистки, так и для рециклинга полезных компонентов отходов, например, борной кислоты.

В 1971 г. в CRNL был разработан процесс BARC (boric acid recycle) обратноосмотического извлечения борной кислоты из жидких отходов с целью ее повторного использования [2–4]. Исходный раствор борной кислоты поступал на первую ступень обратного осмоса (ОО1). При pH менее 7 борная кислота находится в недиссоциируемой форме и проходит через обратноосмотическую мембрану; при этом радионуклиды, находящиеся в растворе, на 99% задерживаются. Концентрат после первой ступени ОО1 поступал на установку обратного осмоса третьей ступени (ОО3) для дополнительного концентрирования отходов с радионуклидами. Вместе с ними в

Таблица 1. Примеры применения мембранных технологий в атомной отрасли

Объект	Отходы
Обратный осмос (нанофильтрация)	
AECL Chalk River Laboratory (Канада)	Охлаждающие воды реактора, воды рецикла бора
Обратный осмос с традиционной предварительной подготовкой	
АЭС Nine Mile Point (США)	Дренажные воды BWR реактора и другие отходы
АЭС Pilgrim (США)	
Обратный осмос с предварительной подготовкой методом ультрафильтрации	
АЭС Wolf Creek (США)	Дренажные воды PWR реактора, промывные воды ионообменных смол
АЭС Comanche Peak (США)	Дренажные воды реактора, промывные воды ионообменных смол, воды рецикла бора
АЭС Dresden nuclear (США)	Дренажные воды реактора
АЭС Bruce (Канада)	Воды химической отмывки парогенератора
Обратный осмос с предварительной подготовкой микрофильтрацией	
Savannah River Site (SRS) (США)	Отходы оружейного комплекса
AECL ChalkRiver Laboratory (Канада)	Отходы исследовательского центра
Ультрафильтрация	
АЭС Diablo Canyon(США)	Транспортные воды
АЭС River Bend (США)	Дренажные воды BWR реактора
АЭС Salem (США)	Дренажные воды PWR реактора, воды протечки оборудования и емкости хранения отработанных ионообменных смол
АЭС Seabrook (США)	
АЭС Callaway (США)	Дренажные воды PWR реактора, протечки оборудования, воды охлаждающего контура
Mound Laboratory (США)	Жидкие отходы от переработки топлива
Enhance Actinide Removal Plant, (Великобритания)	Отходы оружейного комплекса
Микрофильтрация	
AECL Chalk River Laboratory (Канада)	Загрязненные грунтовые воды
RockyFlats (США)	

отходы попадало около 10% от исходного количества борной кислоты.

Пермеат ОО1 содержал около 90% борной кислоты, поступившей с исходными ЖРО. Борная кислота концентрировалась на второй ступени обратного осмоса (ОО2). Для того, чтобы сконцентрировать борную кислоту, рН раствора повышали до 9,5. В этих условия борная кислота с эффективностью 99,9% задерживалась на тонкопленочных полиамидных мембранах. Концентрат борной кислоты возвращали для повторного использования в реакторе, а пермеат по показателям объемной активности сбрасывали в дренажные воды.

Другим результатом исследований стала мембранная система для очистки ЖРО производительностью около 5000 м<sup>3</sup>/год [5–11]. Схема переработки ЖРО включала микрофильтрацию, обратноосмотическую очистку и концентрирование отходов с окончательным сгущением отходов в тонкопленочном испарителе.

Микрофильтрация исходных ЖРО удаляла взвешенные частицы размером более 0,2 мкм. Для удаления растворимых соединений,

присутствующих в исходных ЖРО, применяли химическую обработку отходов и введение порошковых сорбентов и адсорбентов. При микрофильтрации из исходных ЖРО удалялось около 45% β- и γ-излучающих радионуклидов и около 70% α-излучающих радионуклидов. Остаточная активность β-излучающих нуклидов в пермеате микрофильтрации на 60% определялась <sup>137</sup>Cs. Очищенный таким образом раствор поступал на стадию обратного осмоса. В качестве мембран использовали тонкопленочные полиамидные мембраны, которые позволяли снизить давление процесса до 2,8 МПа. В результате ультрафильтрационной и обратноосмотической очистки удалялось 99,9% α-излучающих и 99,6% β-излучающих радионуклидов. Концентрирование отходов проводили с использованием элементов обратного осмоса рулонной и трубчатой конструкций, что позволило сократить объем ЖРО в 30–100 раз от исходных и получить концентрат с минерализацией 30–50 г/л. Концентрат после трубчатой обратноосмотической установки поступал в тонкопленочный испаритель, где получали кубовый остаток с

минерализацией около 200 г/л, который подвергали битумированию. Конечный продукт (битумный компаунд) имел наполнение по солям 25–35%.

**Центр переработки отходов площадок F/Н в Savannah River Site**

Для очистки ЖРО с производственных площадок F Area и H Area Savannah River National Laboratory (SRNL) был создан центр переработки отходов F and H Effluent Treatment Facility (F/Н ETF) [12–27]. Центр переработки ЖРО стоимостью в \$50 млн был запущен в октябре 1988 г. [19]. Ежедневно F/Н ETF перерабатывает от 380 до 1000 м<sup>3</sup> ЖРО, а его максимальная производительность составляет 1600 м<sup>3</sup>/сут. Жидкие отходы, поступающие на переработку, состоят из охлаждающей воды каньонов, протечек емкостей ЖРО и конденсатов испарителей радиохимического производства [5]. Солеосодержание растворов определяется преимущественно нитратом натрия и достигает 2 г/л. Кроме нитрата натрия растворы содержат тяжелые металлы и органические вещества. Объемная активность ЖРО составляет около 10<sup>4</sup> Бк/л [24].

Ранее существовавшая технология переработки отходов предполагала ионообменную очистку. Однако проблемы, присущие ионообменной технологии (невозможность удалить нерастворимые и неионные компоненты, низкие коэффициенты очистки от радионуклидов, ограниченная емкость ионитов и большой объем регенератов), заставили перейти на новую технологию переработки ЖРО [17].

Новая схема переработки включала сбор, корректировку pH, микрофильтрацию (рейтинг 0,2 мкм), сорбцию на активированном угле, обратный осмос с последующей упаркой

концентратов и финишную очистку очищенных вод на катионитах. По предварительным оценкам энергопотребление такой схемы переработки ЖРО составило около 28% от затрат на переработку упариванием [15]. Для оценки новой технологии были проведены опытные работы на пилотных установках разной производительности [13–16].

Испытания новой схемы переработки ЖРО на установке производительностью около 2 м<sup>3</sup>/ч показали, что при применении обратного осмоса образуется в 2 раза меньше вторичных отходов, чем при ионном обмене. При этом объем очищенной воды составляет до 94% от исходного объема ЖРО, поступающих на переработку. [21].

После микрофильтрации и обратного осмоса для доочистки от токсичных элементов, катионов тяжелых металлов и радионуклидов использовали ионный обмен. Тяжелые металлы, ртуть и другие токсичные элементы удаляли с использованием ионообменных смол, которые после использования не регенерировали, а направляли в хранилище. Радионуклиды стронция и цезия удаляли на сульфокатионитах, которые затем регенерировали [20], а регенераты цементировали [18].

В процессе эксплуатации выяснилось, что керамические микрофильтры склонны к сильному загрязнению, что приводило к снижению производительности системы в целом. Эксплуатация показала, что производительность керамических фильтров падает в 5–7 раз с проектных 100 галл./мин. (378 л/мин) до 15–20 (57–77 л/мин.) (рис. 1). Было установлено, что главной причиной этого явилось бактериальное загрязнение поверхности фильтров [22]. Сильное биозагрязнение микрофильтров наблюдалось уже при небольшом превышении уровня содержания

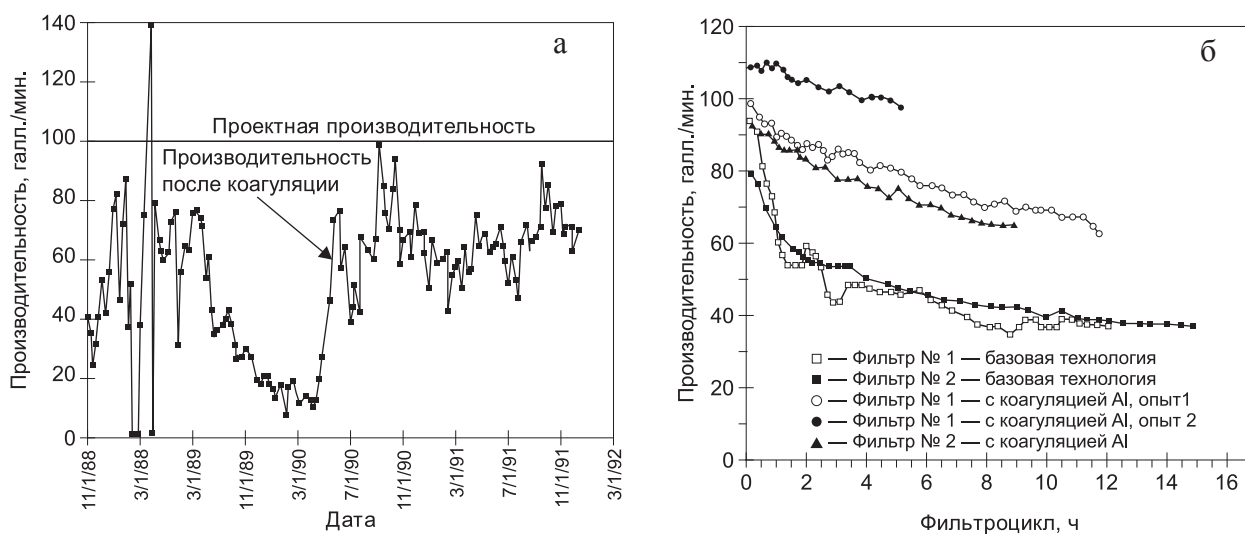


Рис. 1. а – изменение производительности микрофильтрации после введения коагуляции; б – результаты испытаний различных микрофильтров

бактерий, который имеется в обычных поверхностных водах. Для оптимизации условий фильтрации опробовали ряд способов, но в итоге была предложена коагуляция солями алюминия. Анализ ЖРО показал наличие в отходах трибутилфосфата (ТБФ) и парафиновых углеводородов, причем концентрация ТБФ достигала 100 мг/л, а концентрация парафинов — 4 мг/л [26].

Вследствие растворимости ТБФ (400 мг/л при 25 °С) органические вещества после микрофильтрации попадают на стадию обратного осмоса, что приводит к загрязнению обратноосмотических мембран. Это, в свою очередь, является фактором, провоцирующим их бактериальное загрязнение. [25] Для предотвращения загрязнения обратноосмотических мембран ТБФ и парафинами в технологическую схему между микрофильтрацией и обратным осмосом была добавлена колонна с активированным углем [23], которую после использования направляли в хранилище ТРО.

Однако даже после всех предпринятых мер с началом эксплуатации системы было отмечено загрязнение обратноосмотического оборудования неорганическими веществами (Al, Fe, Si) и бактериями, которые присутствовали в растворе в концентрации  $10^5$ — $10^7$  бактерий/мл. Установлено, что бактерии попадали в раствор из фильтров с ионообменными смолами и активированным углем, а на стадию обратного осмоса бактерии переносились на неорганических коллоидах, размер которых позволял проникать через микрофильтры. В результате бактериальное и коллоидное загрязнение приводило к отложениям на мембранах и необходимости более частых процедур их отмычки [27].

### Центр переработки альфа-содержащих отходов в Селлафильде

В Великобритании реализован один из крупнейших проектов в области применения мембранной технологии для переработки ЖРО — завод EARP (Enhance Actinide Removal Plant) фирмы BNFL в Селлафильде [5, 26—29]. Завод стоимостью около 200 млн фунтов был пущен в 1994 г. и предназначен для переработки 1 тыс. м<sup>3</sup>/год среднеактивных отходов (САО) и около 90 тыс. м<sup>3</sup>/год низкоактивных отходов (НАО), содержащих в основном актиниды, а также некоторое количество β-излучающих радионуклидов.

На заводе EARP реализована схема ультрафильтрации с предварительной коагуляцией и сорбцией на неорганических ионитах. Предварительные испытания показали, что лучшие результаты получаются при отдельной переработке средне- и низкоактивных отходов. При этом САО перерабатывают по периодической схеме, а низкоактивные — по непрерывной (рис. 2).

Большинство поступающих на переработку ЖРО имеют кислый состав (рН около 0,5), а содержание железа в них достигает 400 мг/л (до 40 т/год). На первой стадии проводится нейтрализация ЖРО гидроксидом натрия (до рН 9,5—10,5), сопровождаемая коагуляцией гидроксидом железа (III). После нейтрализации в раствор вводится ферроцианид никеля в количестве от 10 до 200 мг/л для удаления β-излучающих радионуклидов, и полученная суспензия подается на ультрафильтрацию. Для ультрафильтрации используется аппарат с трубчатыми мембранными элементами, специально разработанный

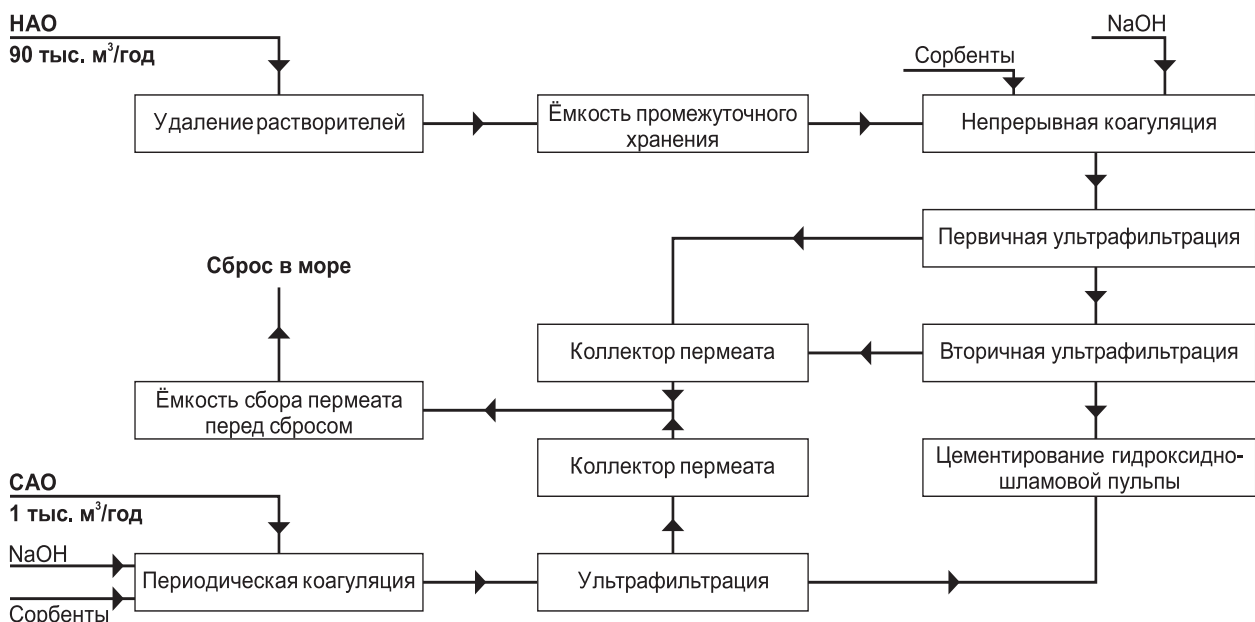


Рис. 2. Схема переработки ЖРО в Enhance Actinide Removal Plant

для данного процесса. Ультрафильтрационный элемент представляет собой пучок из 770 графитовых трубок, каждая из которых покрыта слоем оксида циркония. Исходная суспензия подается внутрь трубок. Высокая линейная скорость потока (4–5 м/с) предотвращает отложение загрязнений на поверхности мембран. Диаметр пор ультрафильтрационных мембран составляет сотые доли микрона. Химические способы регенерации (отмывка азотной кислотой) совместно с промывкой противотоком обеспечивают срок службы мембран около 3 лет.

Концентрирование суспензии, состоящей из гидроксидов железа и неорганических сорбентов, проводится в две стадии. На первой ступени суспензия концентрируется до 5–10 г/л по железу, а на второй она обезвоживается до концентрации по железу около 100 г/л, после чего направляется на цементирование. Пермеат ультрафильтрации сбрасывается без доочистки в Ирландское море или направляется в голову процесса на стадию коагуляции, если качество пермеата не удовлетворяет требованиям на сброс. Однако технология EARP не позволяет удалить из ЖРО ряд долгоживущих радионуклидов, таких как  $^{99}\text{Tc}$  и  $^{129}\text{I}$  и, по оценкам экологической организации Bellona, в начале 2000-х гг. ежегодно в Ирландское море сбрасывалось до 90 ТБк активности.

### Центр переработки отходов в Los Alamos National Laboratory

В Национальной лаборатории Лос-Аламос (Los Alamos National Laboratory (LANL) на площадке 50 с 1963 г. действовал участок переработки ЖРО (Radioactive Liquid Waste Treatment Facility — RLWTF). В связи с ужесточением требований к очищенной воде, в 1999 г. старый участок был закрыт и вместо него внедрена новая установка для очистки образующихся отходов [30–32]. Она включала ультрафильтрацию и обратный осмос. Производительность установки около 14 м<sup>3</sup>/ч. При внедрении новой технологии столкнулись с рядом существенных проблем в пусковой период, которые привели к необходимости проведения нескольких дополнительных мероприятий. Прежде всего, эксплуатация в начальный период показала недостаточное качество предварительной очистки поступающих на установку отходов, что уже в первые месяцы эксплуатации привело к выходу из строя ультрафильтрационных мембран.

Для устранения этих ошибок на стадии предварительной очистки ввели химическую обработку растворов с использованием сульфата железа, соды и гидроксида натрия. При проведении химической обработки pH раствора повышали до 10,5 и проводили осаждение гидроксида железа с последующим отстаиванием в течение суток. Затем раствор фильтровали через

насыпные фильтры с песчаной и антрацитовой загрузкой, что обеспечивало удаление частиц размером более 10 мкм. Осветленный раствор пропускали через фильтр грубой очистки для удаления частиц размером 5–10 мкм. После этого раствор поступал на ультрафильтрацию. Ультрафильтрационные мембраны с диаметром пор 0,08 мкм позволяли задерживать молекулярные соединения с массой до 10<sup>5</sup>. На стадии обратного осмоса использовали тонкопленочные высокоселективные полиамидные мембраны с задержанием по хлориду натрия более 99%.

Поскольку в результате переработки ЖРО образовывались вторичные отходы, объем переработки вырос на 50% по сравнению с исходным объемом отходов. Для сокращения объема концентратов обратного осмоса использовали комбинацию методов электродиализа и выпарки, что позволило снизить объем концентратов в 10–12 раз. В качестве электродиализного использовали аппарат реверсивного электродиализа (electrodialysis reversal — EDR). Дилуат электродиализа (около 80% от объема концентрата обратного осмоса) возвращали в голову процесса, а концентрат направляли на выпарку. В результате глубокого концентрирования в кубовых остатках происходило выпадение осадков.

В качестве испарителя использовали мобильную систему, смонтированную на прицепе. В состав системы глубокого концентрирования входил испаритель мгновенного вскипания производительностью 2 м<sup>3</sup>/ч. Кубовый остаток направлялся на установку барабанной суши. Кубовый остаток порциями по 150 л загружали в специальный барабан и оставляли на сушку при температуре примерно 300 °С (600 °F) в течение 8–12 ч. Сухой остаток в виде ТРО направляли на цементирование. В результате переработки объем отходов сокращался примерно в 17 раз.

### Комплекс переработки отходов в 200 Area Effluent Treatment Facility (Hanford)

Для переработки ЖРО на площадке 200 в Ханфорде был создан комплекс из двух объектов (рис. 3): комплекса сбора ЖРО (Liquid Effluent Retention Facility — LERF) и комплекса переработки ЖРО (Effluent Treatment Facility — ETF) [33–39]. Основные источники ЖРО: воды охлаждения емкостей с жидкими ВАО, воды бассейна выдержки ОТВС, грунтовые и дренажные воды, протечки могильников, воды лабораторий и растворы дезактивации.

Комплекс LERF состоит из трех бассейнов объемом 29,5 тыс. м<sup>3</sup> каждый. Бассейны снабжены системами пробоотбора и контрольно-измерительных приборов (датчики уровня, контроля pH и т. п.).

Производительность комплекса ETF позволяет перерабатывать ежегодно более 130 тыс. м<sup>3</sup>.

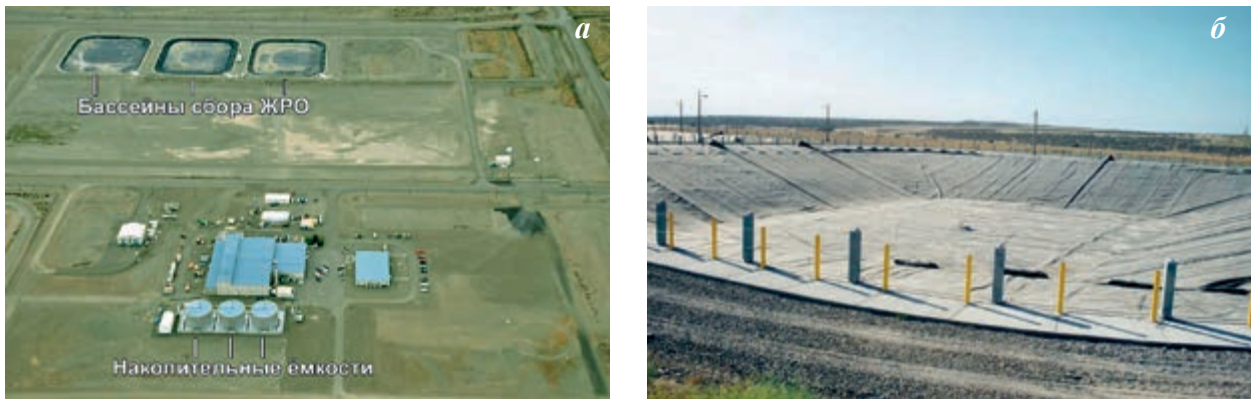


Рис. 3. Комплекс переработки жидких НАО в Хэнфорде ETF:  
а – общий вид; б – бассейн для сбора и усреднения ЖРО

В комплексе используются два участка: для переработки ЖРО и для переработки вторичных отходов.

В состав участка переработки ЖРО входят емкость-накопитель, фильтр грубой очистки, блок ультрафиолетового окисления органических веществ, блок корректировки pH растворов, блок деструкции остаточного перманганата, фильтр тонкой очистки, блок дегазации, блок обратного осмоса, блок ионообменной очистки и блок контроля и корректировки pH очищенной воды. Участок переработки вторичных ЖРО состоит из емкости сбора концентратов, испарителя (выпарного аппарата), емкости кубового остатка, тонкопленочной сушилки и узла загрузки сухих солей в контейнеры.

Из емкости-накопителя ЖРО проходят через блок фильтров грубой очистки для удаления крупных взвесей и осадков и направляются на блок окисления органических веществ. Для разрушения органических веществ используется процесс их окисления пероксидом водорода, совмещенный с ультрафиолетовым облучением. После этого раствор поступает в блок корректировки pH и затем через фильтр тонкой очистки в блок каталитического разложения остаточного пероксида водорода, так как последний не полностью разлагается в процессе окисления органики. Необходимость разрушения пероксида водорода вызвана его негативным влиянием на селективный слой обратноосмотических мембран. Для разрушения остаточного количества пероксида водорода используется колонна с активированным углем. Затем раствор поступает в колонну дегазации, где удаляется диоксид углерода, образовавшийся в процессе окисления органики.

Отходы, прошедшие предварительную подготовку, поступают на двухступенчатый блок обратного осмоса, где происходит основная очистка. На первой ступени происходит очистка ЖРО с получением пермеата, который направляется для дополнительной очистки на вторую ступень обратного осмоса, а после нее — на блок ионного

обмена. Очищенная вода поступает в емкости, где производится контроль качества очистки и выдается разрешение на ее сброс в открытую гидрографическую сеть. Часть очищенной воды используется в технологических целях на других площадках Хэнфорда.

#### Комплекс переработки отходов на АЭС Wolf Creek (США)

На АЭС Wolf Creek в 1998 г. была введена в эксплуатацию установка для переработки ЖРО (рис. 4), состоящих из дренажных вод, транспортных вод отработанных ионообменных смол, дезактивационных растворов, образующихся при проведении ремонтных работ и других смешанных видов ЖРО. Система включала в себя трубчатую ультрафильтрацию, рулонный обратный осмос, ионообменный блок и барабанную сушилку концентратов [1].

Все виды ЖРО собирали в емкость для накопления и усреднения отходов. Из емкости усреднения они передавались в блок ультрафильтрации для очистки от осадков и взвешенных веществ. Пермеат для глубокой очистки от растворенных компонентов направляли на стадию обратного осмоса, а концентрат возвращали в голову процесса. Блок обратного осмоса состоял из трех частей, где пермеат после I ступени обратного осмоса для доочистки направляли на II ступень обратного осмоса. В свою очередь пермеат со II ступени для заключительной очистки поступал на стадию ионного обмена, а концентрат II ступени возвращался на I ступень обратного осмоса. Очищенная после ионного обмена вода накапливалась в контрольной емкости для анализа и последующей разгрузки в окружающую среду.

Дополнительное концентрирование концентрата с I ступени обратного осмоса для большего сокращения его объема проводилось также с использованием обратного осмоса (III ступень). Образующийся при этом пермеат направляли в голову процесса — на I ступень обратного осмоса, а концентрат — на выпарку.

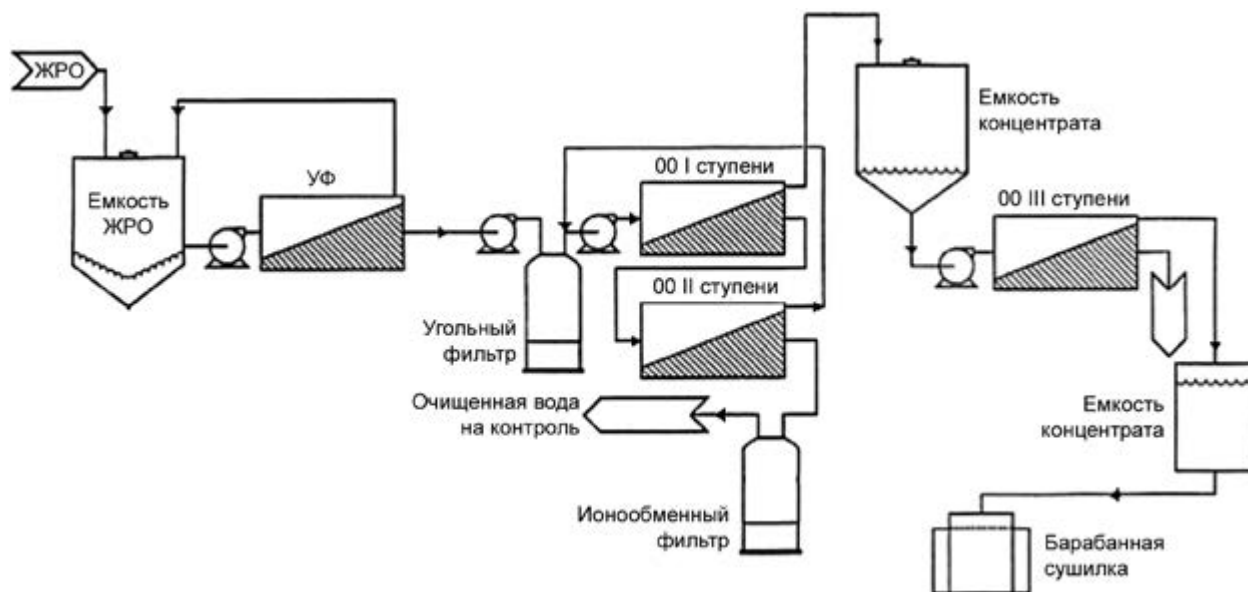


Рис. 4. Принципиальная схема очистки ЖРО на АЭС Wolf Creek

При использовании этой схемы переработки ЖРО, фактор концентрирования на мембранных ступенях переработки составил от 10 до 20 в зависимости от состава отходов.

### Опытная установка переработки трапных вод радиохимического производства на ФГУП «ПО «Маяк» (Россия)

В результате работы радиохимического производства ФГУП «ПО «Маяк» ежегодно образуется до 100 тыс. м<sup>3</sup> ЖРО низкого уровня активности. В настоящее время очистка этих отходов производится с использованием ионного обмена. Существующая схема переработки ЖРО приводит, во-первых, к увеличению количества солей во вторичных отходах примерно в 2–3 раза, что в свою очередь приводит к пропорциональному росту объема отвержденных РАО. Во-вторых, ионообменная технология не позволяет очищать отходы от неионных форм радионуклидов.

Для сокращения объема вторичных отходов и повышения качества очистки ЖРО на ФГУП «ПО «Маяк» разработана мембранно-сорбционная технология очистки жидких радиоактивных отходов [40–41]. Для проверки технологии в рамках федеральной целевой программы «Ядерная и радиационная безопасность России на 2008 год и на период до 2015 года» была создана опытно-промышленная установка. Технология предусматривала предварительную очистку ЖРО от радионуклидов на стадии ультрафильтрации и основную очистку на двух последовательных стадиях обратного осмоса. Финишная очистка ЖРО осуществлялась на блоке ионного обмена.

Особенностью процесса является двухступенчатая ультрафильтрация ЖРО. Задача первой ступени ультрафильтрации — обеспечить стабильный по объему поток осветленной воды на стадию обратного осмоса, а второй — сконцентрировать

загрязнения в минимальном объеме. Такое техническое решение позволяет обеспечить глубокое (в 200–1000 раз) концентрирование осадков и взвешенных веществ. При этом объем образующегося шлама составляет 0,1–0,5% от исходного объема ЖРО. За счет выделения на стадии ультрафильтрации радионуклидов цезия на последующие ступени очистки поступают преимущественно бета-излучающие нуклиды, что обеспечивает снижение дозовой нагрузки на персонал.

Концентрат обратного осмоса I ступени поступает для дополнительного сокращения объема в блок обратного осмоса III ступени. Образующийся на II ступени обратного осмоса пермеат направляется в голову процесса — на I ступень обратного осмоса, а концентрат — на выпарку. За счет двухступенчатого обратноосмотического концентрирования ЖРО объем жидких отходов, поступающих на выпарной блок, сокращается до 3–5% от исходного объема отходов. В результате последующего упаривания концентратов обратного осмоса II ступени на роторно-пленочном испарителе, получают кубовые остатки с минерализацией 120–400 г/л и высоким (20–100 г/л) содержанием осадков. Установка эксплуатируется в опытном режиме с 2009 года. За время опытных испытаний переработано более 110 тыс. м<sup>3</sup> ЖРО.

### Опытная установка очистки радиоактивно загрязненных вод специальных промышленных водоемов ФГУП «ПО «Маяк» (Россия)

В процессе выполнения Государственной оборонной программы в период 50–60 гг. XX века на ПО «Маяк» была создана гидротехническая система, которая получила название Теченского каскада водоемов (ТКВ). В настоящее время

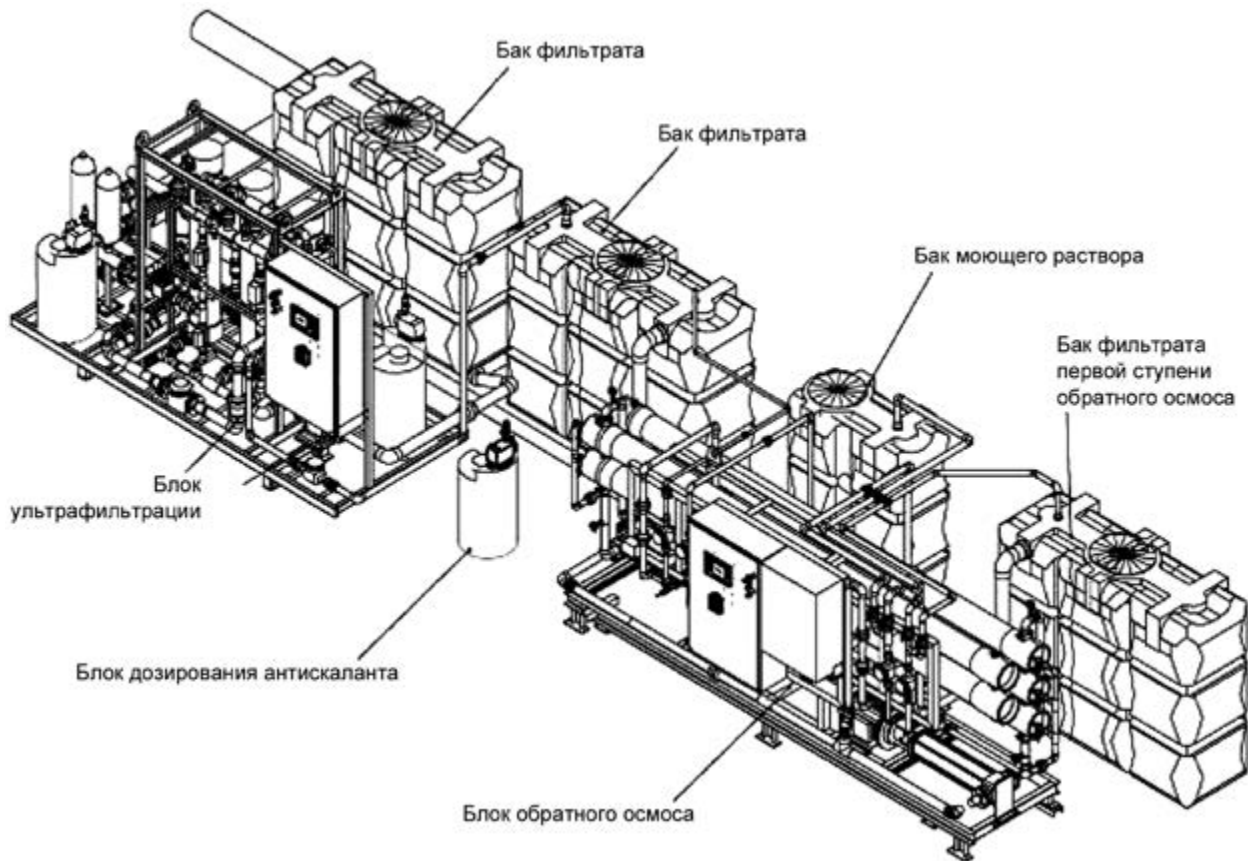


Рис. 5. Установка очистки дебалансных вод ТКВ

в водоемах каскада площадью 70 км<sup>2</sup> накоплено более 320 млн м<sup>3</sup> воды, загрязненной техногенными радионуклидами. На протяжении последних лет эксплуатации ТКВ на фоне сезонных колебаний сформировалась тенденция к росту уровня воды в конечном водоеме каскада. Основной причиной этого является изменение метеорологических условий в районе расположения предприятия.

Для устранения угрозы переполнения каскада и обеспечения его безопасной эксплуатации, на предприятии был разработан комплекс мероприятий, одним из направлений которого была разработка технологии очистки дебалансных вод ТКВ. В результате была разработана и испытана установка на базе мембранных технологий, которая позволила получить очищенную воду питьевого качества [42, 43].

Технология включает последовательную очистку воды ультраfiltrацией и двумя ступенями обратного осмоса. Принципиальное отличие данной схемы от традиционных решений заключается в том, что она ориентирована на минимизацию количества вторичных отходов. Это достигается тем, что вода ТКВ циркулирует через установку и возвращается в водоем, а очищенная вода отводится из установки в открытую гидрографическую сеть

Установка была сконструирована в мобильном модульном исполнении (рис. 5) и размещалась

в двух стандартных контейнерах: в одном — технологическое оборудование и система управления, а в другом — емкостное оборудование.

Такое техническое решение позволило расположить установку непосредственно на берегу водоема, удаленного от предприятия на расстоянии 30 км, а автоматизация процессов позволила эксплуатировать установку в автономном режиме без постоянного присутствия персонала.

### Заключение

Прогресс в области мембранных и цифровых технологий делает доступным и экономически эффективным их использование в различных отраслях промышленности. В настоящее время имеются многочисленные примеры успешного применения мембранных технологий в составе комплексных схем переработки ЖРО на атомных станциях, ядерных центрах и радиохимических производствах. В России в рамках федеральной целевой программы «Обеспечение ядерной и радиационной безопасности России» создается современная и эффективная система обращения с радиоактивными отходами, поэтому практический опыт применения мембранных технологий будет востребован специалистами в области обращения с РАО.



Литература

1. Application of Membrane Technologies for Liquid Radioactive Waste Processing. — IAEA Technical Reports Series № 431-International Atomic Energy Agency, 2004, p. 143.
2. Processing of Nuclear Power Plant Waste Streams Containing Boric Acid, IAEA-TECDOC-911, IAEA, Vienna (1996).
3. Greenaway W. R., Klein W. J., Markind J., Stana R. R. Treatment of radioactive steam-generator blowdown, Industrial Water Engineering, March/April 1973, pp 22—24.
4. Свитцов А. А. Использование обратного осмоса для обработки жидких радиоактивных отходов // Атомная техника за рубежом. — 1974. — № 11. — С. 40—44.
5. Advances in Technologies for Treatment of Low and Intermediate Level Radioactive Liquid Wastes, Technical Report Series No. 370, IAEA, Vienna, 1994, p. 145.
6. Bourns W. T. Reverse osmosis plant to process CRNL low level radioactive liquid wastes. II annual conference of Canadian Nuclear Society, Toronto, 1981, pp 406—407.
7. Bourns W. T., Buckley L. P., Burrill K. A. Development of Techniques for Radwaste Systems in CANDU Power Stations. Symposium on the On-Site Management of Power Reactor Wastes, Zurich, Switzerland, 26—30 March 1979, AECL-6534, 21 p.
8. Buckley L. P., Sen-Gupta S. K., Slade J. A. Treatment of Low-Level Radioactive Waste Liquid by Reverse Osmosis. International Conference on radioactive waste Management and Environmental Remediation. Volume 2: Management of Low-Level Waste and Remediation of Contaminated Sites and facilities, New York, 1995, p. 1015—1019.
9. Sen-Gupta S. K., Slade J. A., Tulk W. S. Liquid Radwaste Processing with crossflow Microfiltration and Spiral Wound Reverse Osmosis. Waste Management 95, Tucson, 26 February — 2 March 1995, AECL-11270, p. 13.
10. Sen-Gupta S. K., Buckley L. P., Rimpelainen S., Tremblay A. Y. Liquid Radwaste Processing with spiral wound reverse osmosis. Waste Management 96, Tucson, 1996, AECL-11542, p. 23.
11. Sen-Gupta S. K., Buckley L. P. Bitumen immobilization of Aqueous Radwaste by Thin-Film Evaporation. Waste Management 96, Tucson, 1996, AECL-11541, p. 25.
12. Ryan J. P. F and H Area Effluent Treatment Facility (F/H ETF): Ultrafiltration and Hyperfiltration Systems Testing at Carre, Inc. With Simulated F and H area effluents. Savannah River Lab., Aiken, SC (USA), DPST-84-537, 23 May 1984. 69 p.
13. Swindlehurst D. Design and Fabrication of a 40 gpm ultrafiltration system for Savannah River Plant. Waste Management 86, Volume 3: Low level waste, Tucson, 1986, p. 279—282.
14. Kessler J. L. Pilot-Scale Ultrafiltration Testing for the F and H Area Effluent Treatment Facility. Savannah River Lab. DPST-84-783, 1984. 8 p.
15. Bibler J. P., Wallace R. M. Ebra M. A. Mercury Removal from SRP Radioactive Waste Proceedings of the Symposium on Waste Management, Waste Management '86, Tucson, AZ (USA), 2—6 March 1986, Volume 2, p. 471—473.
16. Ebra M. A., Piper D. G., Poy F. L., Siler J. L. Decontamination of Low-Level Process Effluents by Reverse Osmosis. American Institute of Chemical Engineers Summer National Meeting, Minneapolis, MN(USA), 1987, Technical Paper 43D, 3 p.
17. Bibler J. P., Wallace R. M. Ion Exchange Processes for Clean-up of dilute waste Streams by the F/H Effluent Treatment Facility at the Savannah River Plant. International Conference on Ion Exchange Processes (ION-EX '87), Wrexham (UK), 1987, DP-MS-86-187, p.173—179.
18. Kessler J. L. Pilot-Scale Reverse Osmosis Testing for the F and H Area Effluent Treatment Facility. Savannah River Lab., 1984, DPST-84-791, 15 p.
19. McCabe D. J., Wiggins A. W., Poirier M. R., Hazen T. C. Biofouling of Microfilters at the Savannah River Site F/H-Area Effluent Treatment Facility. Waste Management 92, Tucson, 1992, WSRC-MS-91-407, 10 p.
20. Oblath S. B., Georgeton G. K. Behavior and Removal of Organic Species in the Savannah River Plant Effluent Treatment Facility. Spectrum 88: International Topical Meeting on Nuclear and Hazardous Waste Management. Pasco, USA, 1988, p. 319—322.
21. Poy F. L. Fouling Effects of Tri-N-Butylphosphate on Reverse Osmosis Performance and Techniques for Performance Recovery. Savannah River Lab., Aiken, SC (USA), 1987, DPST-87-387, 24 p.
22. Miles W. C., Poirier M. R., Brown D. F. F/H Effluent Treatment Facility — Filtration Upgrade Alternative Evaluations Overview. Westinghouse Savannah River Company, Savannah River Site, WSRC-MS-92-056, p. 9.
23. Siler J. L. The Influence of Bacteria on Reverse Osmosis Performance at the F/H Effluent Treatment Facility — A Preliminary Investigation, WSRC-RP-91-431, 1991.
24. Siler J. L. The Effect of Bacteria and Low Concentrations of Sparingly-Soluble Inorganics on Reverse Osmosis Performance at the F/H Effluent Treatment Facility, WSRC-RP-91-780, 1991.
25. Siler J. L. Remediating Biofouling of Reverse Osmosis Membranes; WSRC-RP-91-1059, October 22, 1991, p.10.
26. Howden M. Britain's Enhanced Actinide Removal Plant. Nuclear Europe, 1989, № 3—4, p. 25.
27. Chemical Precipitation Process for the Treatment of Aqueous Radioactive Waste. IAEA, 1992, Technical reports series No 337, p. 82.
28. Howden M., Moulding T. L. J. Progress in the Reduction of Liquid Radioactive Discharges from the Sellafield Site. International Conference on nuclear fuel Reprocessing and Waste Management. Paris (France). 1987. Vol. 3, p. 1045—1054.

29. *Fellingham L. R., Knibbs R. H., Hudson B. C.* The Pretreatment of Intermediate Level Sludge and Floc Wastes. International Conference on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management. Paris (France). 23-27 Aug 1987. Volume 2. p. 765–768.
30. *Del Signore J. C., David Moss W., Worland V. P., McLenahan R. L.* Challenges in the Treatment of Radioactive Liquid Wastes at Los Alamos National Laboratory, LA-UR- 00-5567, Los Alamos, NM, p. 21.
31. *Del Signore, J. C. et al*, August 2000. Radioactive Liquid Waste Treatment Facility Plant Test Conducted May 2000, LA-UR-OO-4333, Los Alamos, NM.
32. *Del Signore, J. C. et al*, September 2000. Radioactive Liquid Waste Treatment Facility Secondary Stream Study, LA-UR-00-4332, Los Alamos, NM.
33. *Halgren D. L.* Peroxide Destruction Testing for the 200 Area Effluent Treatment Facility. CH2M HILL, Technical Report HNF-45613, March 2010, p.47.
34. *Halgren D. L.* Effluent Treatment Facility Peroxide Destruction Catalyst Testing. Fluor Hanford, Inc., Technical Report HNF-38408, July 2008, p. 22.
35. *Crane A. F.* 200 Area ETF Operational Test Report. Technical Report WHC-SD-ETF-OTR-001, REV 0, p. 408.
36. *McDonald F. N.* Filtration Engineering Study to Upgrade the ETF. Technical Report WHC-SO-ETF-ES-002, October 1995, p.44.
37. *Ambre P. T.* 200 Area Effluent Treatment Facilities Configuration Management Plan. Technical Report WHC-SO-ETF-CM-001, REV 0, October 1995, p. 33.
38. *Bowman R. C.* Request for Modification of 200 Area Effluent Treatment Facility Final Delisting. Technical Report DOE/RL-98-62, November 1998, p. 120.
39. *May T. H., Gehner Ph. D., Stegen G. et al.* Secondary Waste – ETF Pre-Conceptual Engineering Study. LLC, Technical Report RPP-RPT-43588, 2009, p. 101.
40. *Слюнчев О. М., Кичик В. А., Бобров П. А., Старииков Е. Н.* Разработка и опытно-промышленные испытания технологии очистки жидких низкоактивных отходов // Атомная энергия. — 2012. — т. 112, вып. 4. — С. 206–210.
41. *Бобров П. А., Слюнчев О. М., Акинцев А. С. и др.* Применение мембранной фильтрации для переработки жидких низкоактивных отходов радиохимического производства // Вопросы радиационной безопасности. — 2017. — № 3. — С. 38–45.
42. *Слюнчев О. М., Иванов И. А., Мокров Ю. Г.* Разработка технологий очистки воды Теченского каскада водоемов // Российский химический журнал. — 2010. — Т. LIV, № 3. — С.144–152
43. *Бобров П. А., Слюнчев О. М.* Испытания модульной установки для очистки дебалансной воды открытых бассейнов-хранилищ жидких радиоактивных отходов // Экология и промышленность России. — 2017. — Т. 21, № 4. — С. 8–12.

### Информация об авторах

*Слюнчев Олег Михайлович*, кандидат технических наук, руководитель группы центральной заводской лаборатории (ЦЗЛ), ФГУП «ПО «Маяк» (456780, Челябинская обл., г. Озерск, ул. Ермолаева, 18), e-mail: cpl@po-mayak.ru;

*Бобров Павел Александрович*, инженер-технолог-химик-исследователь ЦЗЛ, ФГУП «ПО «Маяк», (456780, Челябинская обл., г. Озерск, ул. Ермолаева, 18) e-mail: cpl@po-mayak.ru;

*Акинцев Александр Сергеевич*, начальник отделения завода РТ-1, ФГУП «ПО «Маяк», (456780, Челябинская обл., г. Озерск, пр. Ленина, 31).

*Зубриловский Евгений Николаевич*, начальник цеха завода РТ-1, ФГУП «ПО «Маяк», (456780, Челябинская обл., г. Озерск, пр. Ленина, 31).

### Библиографическое описание данной статьи

*Слюнчев О. М., Бобров П. А., Акинцев А. С., Зубриловский Е. Н.* Опыт использования баромембранных процессов для очистки жидких радиоактивных отходов // Радиоактивные отходы. — 2018. — № 1 (2). — С. 42–53.

## EXPERIENCE GAINED IN BARO-MEMBRANE PROCESS APPLICATION FOR LIQUID RADWASTE TREATMENT

**O. M. Slyunchev, P. A. Bobrov, A. S. Akintsev, E. N. Zubrilovskij**

**FSUE Mayak PA, Ozyorsk, Chelyabinsk region, Russian Federation**

Article received 17 January 2018

*The article summarizes options of baro-membrane applications for liquid radioactive waste purification. Information is represented on the features of the hardware and the processes of the complete schemes for liquid radwaste treatment.*

**Keywords:** *microfiltration, ultrafiltration, nanofiltration, reverse osmosis, liquid radioactive waste.*

References

1. Application of Membrane Technologies for Liquid Radioactive Waste Processing. – IAEA Technical Reports Series № 431-International Atomic Energy Agency, 2004, p 143.
2. Processing of Nuclear Power Plant Waste Streams Containing Boric Acid, IAEA-TECDOC-911, IAEA, Vienna (1996).
3. Greenaway W. R., Klein W. J., Markind J., Stana R. R. Treatment of radioactive steam-generator blow-down, Industrial Water Engineering, March/April 1973, pp 22–24.
4. Svitsov A. A. Ispol'zovanie obratnogo osmosa dl'a obrabotki zhidkih radioaktivnyh othodov Atomnaya tehnika za rubezhom, 1974, No 11, pp 40–44.
5. Advances in Technologies for Treatment of Low and Intermediate Level Radioactive Liquid Wastes, Technical Report Series No. 370, IAEA, Vienna, 1994, p. 145.
6. Bourns W. T. Reverse osmosis plant to process CRNL low level radioactive liquid wastes. II annual conference of Canadian Nuclear Society, Toronto, 1981, pp 406–407.
7. Bourns W. T., Buckley L. P., Burrill K. A. Development of Techniques for Radwaste Systems in CANDU Power Stations. Symposium on the On-Site Management of Power Reactor Wastes, Zurich, Switzerland, 26-30 March 1979, AECL-6534, 21 p.
8. Buckley L. P.; Sen-Gupta S. K.; Slade J. A. Treatment of Low-Level Radioactive Waste Liquid by Reverse Osmosis. International Conference on radioactive waste Management and Environmental Remediation. Volume 2: Management of Low-Level Waste and Remediation of Contaminated Sites and facilities, New York, 1995, p. 1015–1019.
9. Sen-Gupta S. K.; Slade J. A., Tulk W. S. Liquid Radwaste Processing with crossflow Microfiltration and Spiral Wound Reverse Osmosis. Waste Management 95, Tucson, 26 February-2 March 1995, AECL-11270, p. 13.
10. Sen-Gupta S. K., Buckley L. P., Rimpelainen S., Tremblay A. Y. Liquid Radwaste Processing with spiral wound reverse osmosis. Waste Management 96, Tucson, 1996, AECL-11542, p. 23.
11. Sen-Gupta S. K., Buckley L. P. Bitumen immobilization of Aqueous Radwaste by Thin-Film Evaporation. Waste Management 96, Tucson, 1996, AECL-11541, p. 25.
12. Ryan J. P. F and H Area Effluent Treatment Facility (F/H ETF): Ultrafiltration and Hyperfiltration Systems Testing at Carre, Inc. With Simulated F and H area effluents. Savannah River Lab., Aiken, SC (USA), DPST-84-537, 23 May 1984. 69 p.
13. Swindlehurst D. Design and Fabrication of a 40 gpm ultrafiltration system for Savannah River Plant. Waste Management 86, Volume 3: Low level waste, Tucson, 1986, p. 279–282.
14. Kessler J. L. Pilot-Scale Ultrafiltration Testing for the F and H Area Effluent Treatment Facility. Savannah River Lab. DPST-84-783, 1984. 8 p.
15. Bibler J. P., Wallace R. M. Ebra M. A. Mercury Removal from SRP Radioactive Waste Proceedings of the Symposium on Waste Management, Waste Management '86, Tucson, AZ (USA), 2-6 March 1986, Volume 2, p. 471–473.
16. Ebra M. A., Piper D. G., Poy F. L., Siler J. L. Decontamination of Low-Level Process Effluents by Reverse Osmosis. American Institute of Chemical Engineers Summer National Meeting, Minneapolis, MN(USA), 1987, Technical Paper 43D, 3 p.
17. Bibler J. P., Wallace R. M. Ion Exchange Processes for Clean-up of dilute waste Streams by the F/H Effluent Treatment Facility at the Savannah River Plant. International Conference on Ion Exchange Processes (ION-EX '87), Wrexham (UK), 1987, DP-MS-86-187, p. 173–179.
18. Kessler J. L. Pilot-Scale Reverse Osmosis Testing for the F and H Area Effluent Treatment Facility. Savannah River Lab., 1984, DPST-84-791, 15 p.
19. McCabe D. J., Wiggins A. W., Poirier M. R., Hazen T. C. Biofouling of Microfilters at the Savannah River Site F/H-Area Effluent Treatment Facility. Waste Management 92, Tucson, 1992, WSRC-MS-91-407, 10 p.
20. Oblath S. B., Georgeton G.K. Behavior and Removal of Organic Species in the Savannah River Plant Effluent Treatment Facility. Spectrum 88: International Topical Meeting on Nuclear and Hazardous Waste Management. Pasco, USA, 1988, p. 319–322.
21. Poy F. L. Fouling Effects of Tri-N-Butylphosphate on Reverse Osmosis Performance and Techniques for Performance Recovery. Savannah River Lab., Aiken, SC (USA), 1987, DPST-87-387, 24 p.
22. Miles W. C., Poirier M. R., Brown D. F. F/H Effluent Treatment Facility – Filtration Upgrade Alternative Evaluations Overview. Westinghouse Savannah River Company, Savannah River Site, WSRC-MS-92-056, p. 9.
23. Siler J. L. The Influence of Bacteria on Reverse Osmosis Performance at the F/H Effluent Treatment Facility – A Preliminary Investigation, WSRC-RP-91-431, 1991.
24. Siler J. L. The Effect of Bacteria and Low Concentrations of Sparingly-Soluble Inorganics on Reverse Osmosis Performance at the F/H Effluent Treatment Facility, WSRC-RP-91-780, 1991.
25. Siler J. L. Remediating Biofouling of Reverse Osmosis Membranes; WSRC-RP-91-1059, October 22, 1991, p.10.
26. Howden M. Britain's Enhanced Actinide Removal Plant. Nuclear Europe, 1989, № 3-4, p. 25.
27. Chemical Precipitation Process for the Treatment of Aqueous Radioactive Waste. IAEA, 1992, Technical reports series No 337, p. 82.
28. Howden M., Moulding T. L. J. Progress in the Reduction of Liquid Radioactive Discharges from the Sellafield Site. International Conference on nuclear fuel Reprocessing and Waste Management. Paris (France). 1987. Vol. 3, p. 1045–1054.

29. *Fellingham L. R., Knibbs R. H., Hudson B. C.* The Pretreatment of Intermediate Level Sludge and Floc Wastes. International Conference on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management. Paris (France). 23-27 Aug 1987. Volume 2. p. 765–768.
30. *Del Signore J. C., David Moss W., Worland V. P., McLenahan R. L.* Challenges in the Treatment of Radioactive Liquid Wastes at Los Alamos National Laboratory, LA-UR-00-5567, Los Alamos, NM, p. 21.
31. *Del Signore, J. C. et al* August 2000. Radioactive Liquid Waste Treatment Facility Plant Test Conducted May 2000, LA-UR-OO-4333, Los Alamos, NM.
32. *Del Signore J. C. et al* September 2000. Radioactive Liquid Waste Treatment Facility Secondary Stream Study, LA-UR-00-4332, Los Alamos, NM.
33. *Halgren D. L.* Peroxide Destruction Testing for the 200 Area Effluent Treatment Facility. CH2M HILL, Technical Report HNF-45613, March 2010, p. 47.
34. *Halgren D. L.* Effluent Treatment Facility Peroxide Destruction Catalyst Testing. Fluor Hanford, Inc., Technical Report HNF-38408, July 2008, p. 22.
35. *Crane A. F.* 200 Area ETF Operational Test Report. Technical Report WNC-SD-ETF-OTR-001, REV 0, p. 408.
36. *McDonald F. N.* Filtration Engineering Study to Upgrade the ETF. Technical Report WHC-SO-ETF-ES-002, October 1995, p. 44.
37. *Ambre P. T.* 200 Area Effluent Treatment Facilities Configuration Management Plan. Technical Report WHC-SO-ETF-CM-001, REV 0, October 1995, p. 33.
38. *Bowman R. C.* Request for Modification of 200 Area Effluent Treatment Facility Final Delisting. Technical Report DOE/RL-98-62, November 1998, p. 120.
39. *May T. H., Gehner Ph. D., Stegen G. et al.* Secondary Waste — ETF Pre-Conceptual Engineering Study. LLC, Technical Report RPP-RPT-43588, 2009, p. 101
40. *Slyunchev O. M., Kichik V. A., Bobrov P. A., Starikov E. N.* Razrabotka i opytno-promyshlennye ispytaniya tekhnologii oчитki zhidkih nizkoaktivnyh othodov // Atomnaya ehnergiya. — 2012. — T. 112, vyp. 4. — p. 206–210.
41. *Bobrov P. A., Slyunchev O. M., Akincev A. S. i dr.* Primenenie membrannoj fil'tracii dlya pererabotki zhidkih nizkoaktivnyh othodov radiohimicheskogo proizvodstva // Voprosy radiacionnoj bezopasnosti. — 2017. — no 3. — S. 38–45.
42. *Slyunchev O. M., Ivanov I. A., Mokrov Yu. G.* Razrabotka tekhnologij oчитki vody Techenskogo kaskada vodoyomov // Rossijskij himicheskij zhurnal. — 2010. — T. LIV, no 3. — S. 144–152.
43. *Bobrov P. A., Slyunchev O. M.* Ispytaniya modul'noj ustanovki dlya oчитki debalansnoj vody otkrytyh bassejnov-hranilishch zhidkih radioaktivnyh othodov // Ehkologiya i promyshlennost' Rossii. — 2017. — T. 21, no 4. — S. 8–12.

### Information about the authors

*Slyunchev Oleg Mihajlovich*, Ph.D., team leader, Central Plant Laboratory, FSUE Mayak PA (18, Yermolayev st., Ozyorsk, Chelyabinsk region, Russia, 456780), e-mail: cpl@po-mayak.ru.

*Bobrov Pavel Alexandrovich*, research engineer, Central Plant Laboratory, FSUE Mayak PA (18, Yermolayev st., Ozyorsk, Chelyabinsk region, Russia, 456780), e-mail: cpl@po-mayak.ru.

*Akintsev Alexandr Sergeevich*, division head, RT-1 Plant, FSUE Mayak PA (31, Lenin prosp., Ozyorsk, Chelyabinsk region, Russia, 456780).

*Zubrilovskij Evgenij Nikolaevich*, workshop chief, RT-1 Plant, FSUE Mayak PA, (31, Lenin prosp., Ozyorsk, Chelyabinsk region, Russia, 456780).

### Bibliographic description

*Slyunchev O. M., Bobrov P. A., Akintsev A. S., Zubrilovskij E. N.* Experience Gained in Baro-Membrane Process Application for Liquid Radwaste Treatment. *Radioactive Waste*, 2018, no 1 (2), pp. 42–53 (In Russian).