

Г.Г. НАЛБАНДЯН, Г.А. МАРТОЯН, **А.В. ЗАРАНЦЯН**

ПРИМЕНЕНИЕ НОВОГО ЭЛЕКТРОЛИТИЧЕСКОГО МЕТОДА В ПЕРВОМ КОНТУРЕ РЕАКТОРОВ ТИПА PWR

Развитие ядерной энергетики требует создания экономически обоснованных и экологически безопасных технологий переработки радиоактивных отходов. В НП ЗАО “Арев” разработан новый электролитический метод [1], применение которого в системе спецводоочистки первого контура реакторов типа PWR позволяет создать новую технологию переработки жидких радиоактивных отходов (ЖРО) [2], тем самым существенно уменьшая количество образующихся радиоактивных отходов (РО).

В настоящей статье представлены некоторые технико-экономические показатели при внедрении данного электролитического метода в системах спецводоочистки первого контура реакторов типа PWR.

Ключевые слова: радиоактивные отходы, новый электролитический метод, первый контур, реактор.

В системах действующих реакторов типа PWR ионообменные фильтры спецводоочистки теплоносителя первого контура частично или полностью насыщаются реагентами, регулирующими реактивность и водно-химический режим. При этом расходуется значительное количество дорогостоящих реагентов (${}^7\text{LiOH}$, обогащенный изотопом ${}^7\text{Li}$ [3], и H_3BO_3 , обогащенный изотопом ${}^{10}\text{B}$, в частности, в реакторе типа EPR), ионообменных смол и образуется большое количество твердых радиоактивных отходов.

Целью исследования является создание на основе нового электролитического метода систем регенерации и многократной рециркуляции ${}^7\text{LiOH}$ и H_3BO_3 , а также переработки ЖРО, обеспечивая при этом эффективное выделение из них долгоживучих радиоактивных изотопов и, тем самым, существенно уменьшая объем РО для последующего хранения.

Предложенные установки регенерации реагентов ${}^7\text{LiOH}$ и H_3BO_3 и переработки ЖРО внедрены в НП ЗАО “Арев” и Армянской АЭС.

В процессе эксплуатации АЭС образуется большое количество ЖРО среднего и низкого уровня активности. В настоящее время на практике с целью уменьшения объемов ЖРО широко применяются методы упаривания, ионообмена и электролиза. Не останавливаясь на преимуществах, отметим лишь недостатки этих методов:

1. Метод упаривания. Основным недостатком этого метода является то, что все радионуклиды остаются в продукте упаривания, являющемся твердым радиоактивным отходом, в результате чего возникает проблема их дальнейшего длительного хранения.

Метод упаривания воды с последующим глубоким упариванием, применяемый часто на практике, является не только дорогим способом очистки с экономической точки зрения, но и источником образования

значительного количества твердых радиоактивных отходов (60 т/год) со средним уровнем активности по данным АрмАЭС. Радиоактивность продукта установки глубокого упаривания (УГУ) обусловлена наличием в его составе радионуклидов Cs¹³⁴, Cs¹³⁷, Mn⁵⁴, Co⁶⁰, Na²⁴. В табл. 1 приведены данные по активности этих изотопов в составе продукта УГУ и их время распада.

Таблица 1

Активность основных радиоактивных изотопов в продукте УГУ

Радионуклид	Активность, Бк/л	Время полураспада
Cs ¹³⁴	6,6 · 10 ⁵	2,07 года
Cs ¹³⁷	1,4 · 10 ⁶	30 лет
Mn ⁵⁴	2,9 · 10 ⁴	312,3 сут.
Co ⁶⁰	3,8 · 10 ⁴	5,3 года
Na ²⁴	1,9 · 10 ⁴	14,9 час

2. Метод ионообмена. Основными недостатками этого метода является то, что:

- его применяют для ЖРО с содержанием не более 1 г/л;
- применяемые ионообменные смолы превращаются в радиоактивные отходы;
- он практически не обеспечивает необходимой глубины очистки, поэтому его применяют только при закрытых циклах работы.

3. Метод электролиза с применением диафрагмы, ртутного катода и образованием амальгама. Основные недостатки этого метода:

- требуется дальнейшая переработка амальгама, в ходе которой ввиду образования новых объемов ЖРО эффективность переработки ухудшается;
- производительность переработки ЖРО ограничена малой скоростью образования амальгама.

Ранее используемые электролизные установки не нашли дальнейшего применения, так как не давали существенного уменьшения объемов ЖРО по сравнению с методом упаривания и не обеспечивали необходимой глубины очистки.

В методах электролиза глубина выделения радиоактивных изотопов лимитируется обратной диффузией из электродных отсеков этих изотопов, как только их концентрация в этих отсеках начинает расти. Таким образом, для увеличения глубины выделения нужно уменьшить концентрацию изотопов в электродных отсеках. Этого можно достичь, например, увеличением объема воды в этих отсеках, что приводит к ухудшению общей эффективности.

В НП ЗАО “Арв” разработан новый электролитический метод, позволяющий с высокой эффективностью (табл. 2) выделить изотопы в виде твердой фазы [4], тем самым существенно уменьшая объем ЖРО (см. рис.).

В рабочую камеру электролизатора с целью очистки подавалась трапная вода активностью 2,2 · 10⁴ Бк/л. В процессе электролиза под влиянием постоянного тока происходит перенос катионов через катионообменную мембрану в катодный отсек и перенос анионов через

анионообменную мембрану в анодный отсек электродиализатора. Об окончании процесса очистки можно судить по ходу изменения тока через ячейки электродиализатора. Объем ЖРО, образующихся в анодном и катодном отсеках, определяет эффективность уменьшения объемов для метода электродиализа.

Таблица 2

Эффективность выделения радиоактивных изотопов из ЖРО

Радионуклид	Активность, Бк/л	Активность изотопов после переработки, Бк/л	Эффективность выделения изотопов из ЖРО
¹³⁷ Cs	15000	1,70	8820 : 1
⁹⁰ Sr	6000	1,30	4620 : 1
¹³⁴ Cs	5000	0,60	8330 : 1
⁶⁰ Co	1200	0,70	1710 : 1
⁵⁴ Mn	600	-	-
²⁴ Na	200	-	-
Суммарная активность, Бк/л	28000	4,30	6500 : 1

Новый электролитический метод был использован именно с целью концентрирования анолита и католита. В Армянской АЭС аналогичная схема установки была внедрена для переработки ЖРО [5]. Технические характеристики данной установки представлены в табл. 3.

Как показывают технико-экономические расчеты, сделанные на примере Армянской АЭС, переработка ЖРО с помощью данной установки обходится гораздо дешевле по сравнению с выпарной установкой. Это обусловлено следующими факторами:

- переработка ЖРО выпарным методом в 15 раз превышает затраты по сравнению с предлагаемым методом;
- объем продукта УГУ уменьшается больше чем на порядок, что существенно уменьшает расходы на консервацию твердых отходов.

Таблица 3

Технические характеристики установки, построенной в Армянской АЭС, для переработки ЖРО

Вес	10 т
Площадь размещения	100 м ²
Содержание солей в первоначальных ЖРО	не более 5 г/л
Производительность установки	10 т/ч
Электрическая мощность	50 кВт
Выделение изотопов С _с	более 99,9 %
Степень радиоактивности в очищенной воде	менее 10 ⁻¹¹ Ки/л

В табл. 4 представлены преимущества нового электролитического метода по сравнению с существующими методами переработки ЖРО.

При операциях водообмена теплоноситель в действующих реакторах типа PWR для очистки подается в ионообменные фильтры, где все количество лития задерживается в ионообменных смолах. В связи с этим предлагается внедрить систему полной регенерации и рециркуляции лития и бора, которая достигается с помощью новой установки для выделения лития и бора из теплоносителя [6]. Предложенная установка работает по принципу нового электролитического метода.

Таблица 4

Преимущества нового электролитического метода по сравнению с существующими методами переработки ЖРО

Характеристики	Переработка ЖРО с использованием выпарной установки	Метод электролиза с образованием амальгама	Предложенный электролитический метод
Степень очистки ЖРО, %	99,99	99,99	99,99
Уменьшение объема ЖРО	160:1	~ 2:1	>2000:1
Необходимый срок хранения ЖРО после переработки	186 лет	~ 6 лет	~ 6 лет
Борная кислота	не выделяется	выделяется	выделяется

С этой целью в исследовательской лаборатории НП ЗАО «Арев» создана физическая модель электролитической установки, на которой имитируются физико-химические процессы, проходящие в первом контуре PWR. На созданной лабораторной установке (см. рис.) осуществлен следующий эксперимент: 10 л раствора концентрацией H_3BO_3 8 г/л и LiOH 6,5 мг/л из бака обрабатываемого раствора 1 подается в бак для воды 2 с расходом 20 мл/с, а из него по линии рециркуляции 7 подается в камеру переработки электродиализатора-сепаратора 4. Электродиализатор-сепаратор имеет четыре рабочих отсека с эффективной поверхностью мембран 1000 см². В процессе электродиализа анионы по контуру циркуляции анионов 6 накапливаются в баке анолита 3, а катионы по контуру циркуляции катионов 5 – в баке католита 8. После сепарации щелочной раствор по контуру рециркуляции католита 9 подается в камеру переработки электролитического концентратора 10, где в баке 11 происходит концентрирование LiOH. Количество извлеченного и концентрированного лития зависит от величины тока, проходящего через электролитический концентратор. По окончании операции переработки водного раствора величина тока в электролитическом концентраторе падает с 5 до 0,007 А. В результате проведенного эксперимента получен концентрированный раствор бора по линиям 12, 13, 14 и лития. По указанной технологии эффективность выделения и концентрирования составляет 99%.

Система полной рециркуляции лития и бора при внедрении установки для выделения лития и бора из теплоносителя имеет следующие преимущества:

- полное выделение лития и бора из теплоносителя в виде концентрата;

- уменьшается количество расходуемых ионообменных смол;
- уменьшается количество твердых радиоактивных отходов;
- возможность рециркуляции ${}^7\text{LiOH}$ и H_3BO_3 ;
- значительно снижается радиоактивность теплоносителя.

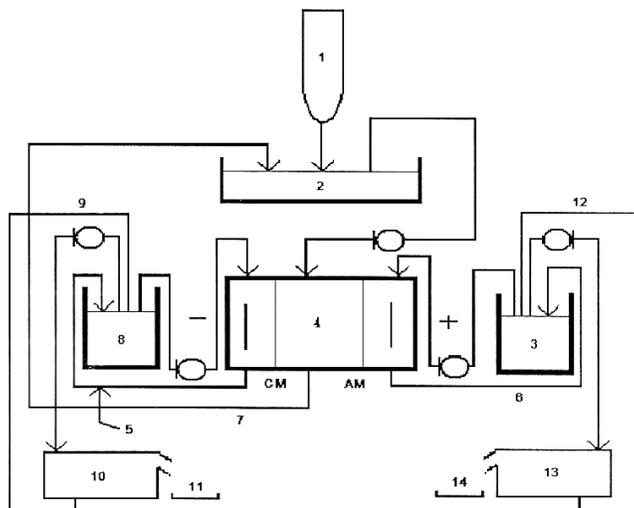


Рис. Принципиальная схема установок по переработке ЖРО и регенерации и многократной рециркуляции ${}^7\text{LiOH}$ и H_3BO_3 на основе нового электролитического метода, разработанная в НП ЗАО “Арев”

Таким образом, можно сделать следующие выводы:

1. В НП ЗАО “Арев” разработан новый электролитический метод, позволяющий с высокой эффективностью выделить радиоактивные изотопы в виде твердой фазы, тем самым существенно уменьшая объем ЖРО.
2. Внедрение установки полной рециркуляции лития и бора в первом контуре реакторов типа PWR позволит значительно уменьшить расходы на переработку теплоносителя первого контура.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. International Patent No. PST/AM03/00002 (Patent Cooperation Treaty–PST, World Intellectual Property Organization–WIPO, Geneva), “Electrolytic Method for the Extraction of Metals” /**Gagik Martoyan, Sahak Intsheyan, Sukias Tonikyan, Manuk Demirchyan and Zaven Guiragossian**, 2003.
2. **Guiragossian Z.G., Martoyan G.A., Intsheyan S.G., Tonikyan S.G. and Nalbandyan G.G.** The extraction of Heavy Metals by Means of a New Electrolytic Method //

Proceedings of the 29th Waste Management Symposium WM03.-February 23–27, 2003.-Tucson, Arizona, USA. 2003, www.x-sd.com/wm03/html/prof217html.

3. **Налбандян Г.Г.** Выбор экономически выгодного химического элемента для регулирования pH теплоносителя в водо-водяных энергетических реакторах // Сборник материалов годичной научной конференции ГИУА.- Ереван, 2002.- Т. 1.-С. 185-186.
4. **Guiragossian Z.G., Martoyan G.A., Demirghyan M., Intsheyan S.G., Nalbandyan G.G., Tonikyan S.G.** New hydrometallurgical method to partition & separate actinides & fission fragments for ADS // International Workshop of P&T and ADS 2003.- 7 October 2003. "AREV" Scientific-Industrial Institute cjsc. www.sckcen.be/sckcen_en/activities/conf/-conferences/2003/006/index.html.
5. **Guiragossian Z.G., Martoyan G.A., Intsheyan S.G., Nalbandyan G.G. and Tonikyan S.G.** Innovative mobile high-volume liquid radioactive waste processing system // Proceedings of the 30th Waste Management Symposium WM04.-February 29 – March 4, 2004.-Tucson, Arizona, USA.
6. **Заранцян А.В., Налбандян Г.Г.** Исследование систем водоподготовки первого контура водо-водяных энергетических реакторов с учетом новых решений // Изв. НАН РА и ГИУА. Сер. ТН.-2003.-Т. 56, № 3.-С. 432 - 436.

ГИУА. Материал поступил в редакцию 05.07.2004.

Գ.Գ. ՆԱԼԲԱՆԴՅԱՆ, Գ.Ա. ՄԱՐՏՈՅԱՆ, Ա.Վ.ԶԱՐԱՆՅՅԱՆ

ՆՈՐ ԷԼԵԿՏՐՈԼԻՏԻԿ ՄԵԹՈԴԻ ԿԻՐԱՌՈՒՄԸ PWR ՏԵՄԱԿԻ ՌԵԱԿՏՈՐՆԵՐԻ ԱՌԱՋՆԱՅԻՆ ԵԶՐԱԳՕՈՒՄ

Միջուկային էներգետիկայի զարգացումը պահանջում է ռադիոակտիվ թափոնների մշակման տնտեսապես շահավետ և էկոլոգիապես անվտանգ տեխնոլոգիաների ստեղծում: «Արև» ԳԱ ՓԲԸ-ում մշակվել է նոր էլեկտրոլիտիկ մեթոդ, որի կիրառումը PWR տեսակի ռեակտորների առաջնային եզրագծի հատուկ ջրամաքրման համակարգում թույլ է տալիս ստեղծել հեղուկ ռադիոակտիվ թափոնների մաքրման նոր տեխնոլոգիա՝ էապես նվազեցնելով առաջացող ռադիոակտիվ թափոնների քանակը:

Առանցքային բաներ. ռադիոակտիվ թափոն, նոր էլեկտրոլիտիկ մեթոդ, ռեակտիվ առաջնային եզրագիծ:

G.G. NALBANDYAN, G.A. MARTOYAN, A.V. ZARANTSYAN

NEW ELECTROLYTIC METHOD APPLICATION IN THE FIRST CIRCUIT OF PWR TYPE REACTORS

Some technical economical factors in implementing the given electrolytic method in special water treatment systems of the first circuit of PWR type reactors are given.

Keywords: radioactive wastes, new electrolytic method, first circuit, reactor.