

- ти АЭС с ВВЭР». Т. 2. Подольск, ОКБ «Гидропресс», 29 мая — 1 июня 2007 г., с. 303—308.
4. Пискунов В.Н. Теоретические модели кинетики формирования аэрозолей. Саров, 2000.
 5. Василенко В.А., Мигров Ю.А., Засуха В.К. и др. Значение и место крупномасштабного стенда КМС в решении проблем безопасности АЭС с ВВЭР. — Атомная энергия, 2013, т. 115, вып. 4, с. 189—192.
 6. Безлепкин В.В., Затевахин М.А., Кректунов О.П. и др. Экспериментальное исследование системы отвода тепла из объема защитной оболочки на СМК. — Там же, с. 197—201.
 7. Фиськов А.А., Безлепкин В.В., Погребенков В.М. и др. Исследование осаждения нерастворимых аэрозолей на теплообменных поверхностях системы пассивного отвода тепла от защитной оболочки при авариях на АЭС. — Технологии техносферной безопасности, 2019, вып. 1(83), с. 24—33.
 8. Bolshov L., Strizhov V. SOCRAT — the system of codes for realistic analysis of severe accidents. — In: Proc. of ICAPP'06. USA, 4—8 June, 2006, Paper 6439.
 9. Ульянов Б.А. Процессы и аппараты химической технологии. Учебное пос. Ангарск: Изд-во АГТА, 2006. 754 с.

Поступила в Редакцию 25.06.19

УДК 66.067.1:621.039.59

ПРИМЕНЕНИЕ ДИНАМИЧЕСКОЙ ТАНГЕНЦИАЛЬНОЙ ФИЛЬТРАЦИИ ДЛЯ РЕШЕНИЯ ТЕХНОЛОГИЧЕСКИХ ЗАДАЧ ПРОЕКТА «ПРОРЫВ»

*Самарина Н.С., Машкин А.Н., Маркова Д.В., Кадочигов К.А., Лукин С.А., Мелентьев А.Б., Харлова Е.Д.
(ПО «Маяк», г. Озерск), Шадрин А.Ю., Двоглазов К.Н. (АО «ВНИИНМ» г. Москва),
Милютин В.В. (ИФХЭ РАН, г. Москва)
e-mail: cpl@po-mayak.ru*

В соответствии с концепцией проекта «Прорыв» в качестве топлива для быстрых реакторов планируется использовать плотное топливо — смешанное нитридное уран-плутониевое [1]. Его переработка окончательно не отработана, поэтому в настоящее время рассматриваются альтернативные варианты. Из них наиболее проработанными и перспективными следует признать комбинированную и гидрометаллургическую технологии.

В основу комбинированной технологии заложена схема, предполагающая использование в голове процесса пирохимических операций снятия оболочек растворением в цинке и электрорафинирования ценных элементов в расплаве солей [2]. Основным продуктом пирохимических операций является полученный после отгонки кадмия и разложения интерметаллидов порошок металлов U—Pu—Np с массовой долей америция не более 10% его исходного содержания. Технология предусматривает его последующее растворение в азотной кислоте, осветление полученного раствора и дальнейший гидрометаллургический аффинаж. Гидрометаллургическая технология предусматривает растворение окисленного (волоксидированного) отработавшего нитридного ядерного топлива в азотной кислоте. В обоих случаях при переработке образуются содержащие твердую фазу

растворы, которые перед экстракционным переделом должны быть осветлены. В зависимости от применяемого метода переработки состав твердой фазы может существенно отличаться. В комбинированной схеме переработки основная доля твердой фазы будет представлена гидратированными диоксидами плутония и нептуния, в гидрометаллургической — металлической фракцией благородных металлов и осадков на основе циркония.

В практике осветления растворов отработавшего ядерного топлива обычно используются методы тупиковой фильтрации на насыпных или патронных фильтрах и центрифужного осветления [3]. Кроме того, хорошо известен и применяется в радиохимической промышленности для осветления жидких радиоактивных отходов метод динамической тангенциальной фильтрации [4—7]. Тангенциальная фильтрация — это баромембранное разделение, при котором не пропускаются частицы и растворенные макромолекулы. Размер пор в мембранах составляет 0,05—0,001 мкм. Обычно ультрафильтрацию проводят при сравнительно невысоком давлении 0,3—1 МПа. Основным преимуществом тангенциальной фильтрации для радиохимии является возможность использования обратной промывки для регенерации мембран без образования значительного объема промывных растворов.

В настоящей работе проверен метод динамической тангенциальной фильтрации на имитационных растворах отработавшего нитридного ядерного топлива.

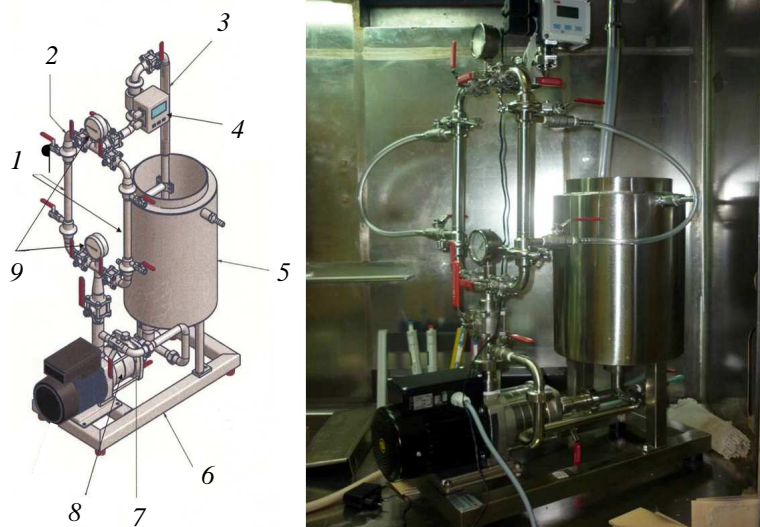
Еще одна задача, которая была решена в рамках настоящей работы, — очистка жидких радиоактивных отходов от трансурановых элементов, предложенная в работе [8]. В схемах переработки жидких средне- и низкоактивных отходов данная технология уже была опробована на химико-металлургическом производстве ПО «Маяк». Полученные положительные результаты позволили рассмотреть возможность использования динамической тангенциальной фильтрации для очистки жидких радиоактивных отходов в других процессах. Экспериментальные работы были выполнены на заводе РТ-1 с использованием лабораторной установки и полномасштабных стендов.

Осветление растворов отработавшего смешанного нитридного уран-плутониевого топлива. Способы осветления и дезактивации растворов проверяли на установках динамической тангенциальной фильтрации с использованием имитационных систем. Осадки-имитаторы и имитационные суспензии отработавшего нитридного топлива готовили из разных компонентов в соответствии с предполагаемым составом растворов и осадков, получаемых по той или иной технологии (табл. 1). Методика приготовления каждой суспензии состояла из нескольких стадий. Суспензии получали из предварительно подготовленной жидкой фазы, в которую вводили растворимые компоненты, и концентратов — углеродной составляющей, предварительно выдержанной в среде 3 моль/дм³ азотной кислоты, полимеризованной кремниевой кислоты, концентратов диоксида марганца или молибдата циркония. Объем каждой порции составлял 12—14 дм³ для лабораторной установки и 1,5—3 м³ для полномасштабных стендов. Аттестацию суспензий, концентратов и пермеатов проводили по общепринятым методикам. Размеры частиц твердой фазы определяли с помощью лазерного анализатора частиц Analysette 22 MicroTec Plus (Германия). Анализируемую суспензию в количестве 50—100 см³ заливали в ультразвуковую ванну диспергирующего устройства, проводили сканирование в установленных режимах. Результаты измерений обрабатывали с помощью программы MaScontrol с использованием теории Фраунгофера.

Т а б л и ц а 1. Состав имитационных суспензий

Компонент	Концентрация	Имитируемый компонент
Раствор:		
азотная кислота, моль/дм ³	2,8—3,2	—
Al(NO ₃) ₃ , г/дм ³ (по алюминию)	29,5—30,5	Солевой фон ядерных материалов
Осадок от комбинированной технологии:		
углерод технический (сажа), г/дм ³	1,8—2,2	Углеродная составляющая
кремний, мг/дм ³	20—80	Кремниевая кислота в γ-форме
молибденовая кислота, г/дм ³ (по молибдену)	0,01—0,03	Полимеры молибденовой кислоты
металлический цирконий, г/дм ³	0,2—0,4	Благородные металлы
диоксид марганца, г/дм ³	11,8—12,2	Гидратированные диоксиды плутония и нептуния
Осадок от гидрометаллургической технологии:		
углерод технический (сажа), г/дм ³	1,8—2,2	Углеродная составляющая
кремний, мг/дм ³	20—80	Полимеризованная кремниевая кислота (γ-форма)
молибденовая кислота, г/дм ³ (по молибдену)*	4,2—5,2	Молибден
азотно-кислый цирконий (цирконил), г/дм ³ (по цирконии)*	4,5—5,5	Цирконий в нерастворимых солях
металлический цирконий (порошок), г/дм ³	4,5—5,5	Благородные металлы и металлический цирконий
*Для приготовления молибдата циркония.		

Лабораторные эксперименты проводили на установке динамической тангенциальной фильтрации Membra-Flow Pilot Mono (Германия) (рис. 1). В ее состав входят микрофильтрационные модули, емкость для концентрата, центробежный насос для циркулирования раствора, трубопроводы с запорной арматурой, контрольно-измерительные приборы. Фильтрующим элементом является керамическая мембрана площадью 55 см², представляющая собой полый цилиндр длиной 250 мм, внутренним диаметром канала 6 мм. Корпус моноканала изготовлен из α-Al₂O₃, мембранный слой, нанесенный на внутреннюю поверхность, — из ZrO₂. В настоя-



Р и с. 1. Лабораторная установка динамической тангенциальной фильтрации: 1 — фильтрующий модуль; 2 — верх фильтрационного контура; 3 — трубопровод возврата продукта в рабочую емкость; 4 — индукционный расходомер; 5 — рабочая емкость; 6 — станина; 7 — байпас для регулировки расхода через фильтрационные модули; 8 — насос с электродвигателем; 9 — манометры

щей работе использовали мембраны с размером пор 50 и 200 нм.

При работе установки в режиме фильтрации исходный раствор под давлением циркулирует по замкнутому контуру: из рабочей емкости поступает снизу во внутреннюю полость патрона, пермеат при этом отводится с наружной поверхности патронов в мерную емкость. Концентрат (часть жидкости, не прошедшая через фильтрующую перегородку, содержащая твердую фазу) снова поступает в емкость для исходного раствора. В результате постоянного отведения из системы пермеата происходит уменьшение объема раствора с его концентрированием по твердой фазе. При оптимальном скоростном режиме твердая фаза потоком раствора смывается с поверхности фильтрующего элемента, забивания пор не происходит, т.е. мембрана работает в режиме самоочищения, производительность остается почти на постоянном уровне.

Первоначально эффективность осветления растворов отработавшего нитридного топлива методом динамической тангенциальной фильтрации проверяли на фильтрующем элементе с размером пор 50 нм. В ходе лабораторных работ по осветлению имитаторов растворов, образующихся при комбинированной технологии, было проведено два эксперимента. Для первого эксперимента готовили суспензию, содержащую

все компоненты, кроме порошка металлического циркония, для второго — суспензию с порошком металлического циркония. Эксперименты позволили оценить влияние порошка металлического циркония на фильтруемость суспензии и сохранность мембраны при контакте с металлической фазой.

Размеры частиц твердой фазы в готовом имитаторе (без металлического циркония) составляли 0,2—100 мкм. Согласно полученным данным при наличии в системе кремниевой кислоты в γ -форме твердые частицы осадка покрыты хорошо деформируемым слоем гидрофильных коллоидных частиц, за счет чего происходит их коагуляция. Размеры частиц суспензии с порошком металлического циркония составляли 0,12—10 мкм, что свидетельствует о низкой агрегации частиц диоксида марганца с полимеризованной кремниевой кислотой при наличии порошка металлического циркония. При циркуляции раствора по замкнутому контуру наблюдается повышение температуры фильтруемой среды с 25 до 50 °С.

Экспериментами установлено влияние порошка металлического циркония на фильтруемость суспензии — осветление имитационной суспензии с порошком металлического циркония, образующейся при комбинированной технологии, стабильное, средняя производительность по пермеату 55 $\text{дм}^3/(\text{м}^2 \cdot \text{ч})$. Резкого снижения производительности установки, несмотря на возрастание общей концентрации твердой фазы в суспензии, не наблюдается, видимо, вследствие очистки мембраны частицами металлического циркония при циркуляции. За 50 ч работы установки в режиме фильтрации проницаемость мембраны не ухудшилась.

Для осветления имитаторов растворов нитридного топлива с осадком, образующимся при переработке по гидрометаллургической технологии, также были приготовлены две порции суспензии — без порошка металлического циркония и с металлическим цирконием. Производительность по пермеату при осветлении суспензии с металлическим цирконием в среднем составила 160 $\text{дм}^3/(\text{м}^2 \cdot \text{ч})$, что значительно выше производительности установки на суспензии без порошка циркония 60 $\text{дм}^3/(\text{м}^2 \cdot \text{ч})$. Причиной это-

го может быть очистка мембраны частицами металлического циркония при циркуляции концентрата.

Для суспензии, образующейся в комбинированной технологии, степень концентрирования составила 8,8 раза. Получен концентрат с содержанием твердой фазы $117,7 \text{ г/дм}^3$. Для суспензии, образующейся в гидрометаллургической технологии, достигнута степень концентрирования 6 раз. Получен концентрат с содержанием твердой фазы 78 г/дм^3 . Концентраты представляют собой суспензии, которые могут транспортироваться по технологическим трубопроводам (табл. 2). Эксперименты показали высокое качество осветления. Полученные пермеаты представляли собой прозрачные жидкости, полностью очищенные от твердой фазы (сажи, диоксида марганца, молибдата циркония, металлического циркония). Пермеат также очищен от кремниевой кислоты в γ -форме (табл. 3). Общая концентрация кремния в составе кремниевой кислоты в растворимой α -форме в пермеатах составляла в среднем 18 мг/дм^3 для суспензии, образующейся в комбинированной технологии, и 15 мг/дм^3 в гидрометаллургической

технологии, пермеаты также содержат около 2 мг/дм^3 кремния в составе кремниевой кислоты в β -форме при концентрации кремния в каждой исходной суспензии 50 мг/дм^3 . Кремниевая кислота в γ -форме не обнаружена.

Результаты, полученные при лабораторных исследованиях, были экспериментально подтверждены при испытаниях на полномасштабном фильтрационном стенде.

Смонтированный стенд предназначен для проверки на растворах-имитаторах технических решений, обеспечивающих эффективное осветление растворов отработавшего ядерного топлива от нерастворимых взвесей и концентрирование твердой фазы в условиях перерабатывающего производства ПО «Маяк». Стенд включает в себя два последовательно установленных фильтрующих модуля, циркуляционный насос, емкостные аппараты и другое вспомогательное технологическое оборудование. Модуль состоит из двух вертикально расположенных мембранных фильтров. Выход верхнего фильтрующего элемента соединен с входом нижнего фильтрующего элемента. Фильтрующий элемент представляет собой цилиндрическую основу диаметром $42,5 \text{ мм}$, длиной 1200 мм , вдоль оси которой по концентрическим окружностям выполнены 19 параллельных продольных прямолинейных каналов диаметром 6 мм . На внутреннюю поверхность каналов нанесен мембранный слой с определенным размером пор.

Основа фильтрующего элемента выполнена из $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$, средний размер пор составляет $1\text{—}2 \text{ мкм}$. Мембранный слой выполнен из ZrO_2 . Концентрическое расположение продольных каналов по сечению обеспечивает равномерное распределение протекающей жидкости и механических напряжений. На первом этапе испытания проводили на фильтрующих элементах с размером пор мембраны 50 нм , на втором — 200 нм . Состав осадков и суспензий был аналогичен ранее приведенному (см. табл. 1).

В составе стенда были испытаны насосы в радиохимическом исполнении: ГЦВН-10/30-800 и ЦНСП-15/32. Первый насос был спроектирован и изготовлен специалистами АО «СвердНИИХиммаш». Изначально он не был предназначен для перекачки сред с концентрацией твердой фазы более 20 г/дм^3 . Невысокая степень концентрирования суспензий по твер-

Т а б л и ц а 2. Основные характеристики концентратов

Параметр	Осадок от технологии	
	комбинированной	гидрометаллургической
Степень концентрирования по твердой фазе	8,8	6
Концентрация твердой фазы, г/дм^3	117	78
Плотность, г/см^3	1,24	1,19
Вязкость, $10^{-6} \text{ м}^2/\text{с}$	2,02	1,83

Т а б л и ц а 3. Основные характеристики пермеатов

Параметр	Осадок от технологии	
	комбинированной	гидрометаллургической
Светопроницаемость по воде, %	96	98
Плотность, г/см^3	1,22	1,18
Кремниевая кислота в α -форме, мг/дм^3 (по кремнию)	18	15
Примечание. Твердая фаза не обнаружена.		

дой фазе в испытаниях на первом этапе была обусловлена ограничениями в его работе — при превышении концентрации твердой фазы более 20 г/дм^3 нарушалась работа магнитной муфты, поскольку она охлаждалась потоком концентрата, проходящего по тонкому каналу. При превышении предельной концентрации по твердой фазе канал забивался, и охлаждение муфты прекращалось.

При работе установки на имитаторе суспензии, образующейся в комбинированной технологии, расход пермеата составлял $75\text{—}85 \text{ дм}^3/\text{ч}$, всего было наработано 12 м^3 . Полученный пермеат был очищен от твердой фазы. Коэффициент светопропускания по дистиллированной воде на длине волны 440 нм составил $98,9\%$. Плотность и кинематическая вязкость изменялись в диапазоне $1,18\text{—}1,11 \text{ г/см}^3$ и $(2,42\text{—}2,14)10^{-6} \text{ м}^2/\text{с}$ соответственно. Содержание твердой фазы в концентрате суспензии, образующейся в комбинированной технологии, составляло 20 г/дм^3 , объемная доля твердой фазы $26,7\%$. Плотность концентрата составила в среднем $1,15 \text{ г/см}^3$, вязкость при $22 \text{ }^\circ\text{C}$ изменялась в пределах $(1,89\text{—}2,29)10^{-6} \text{ м}^2/\text{с}$.

При работе установки на имитаторе раствора, образующегося в гидрометаллургической технологии, также был получен пермеат, очищенный от твердой фазы. Производительность составляла $65\text{—}80 \text{ дм}^3/\text{ч}$, наработано 8 м^3 . Коэффициент светопропускания по дистиллированной воде на длине волны 440 нм достиг $95,6\%$. Плотность почти не изменялась и составляла $1,23 \text{ г/см}^3$. Кинематическая вязкость изменялась в интервале $(2,34\text{—}2,71)10^{-6} \text{ м}^2/\text{с}$. Концентрат от осветления растворов представлял собой суспензию черного цвета с содержанием твердой фазы 19 г/дм^3 . Объемная доля твердой фазы 8% , плотность концентрата и динамическая вязкость при $23 \text{ }^\circ\text{C}$ — $1,25 \text{ г/см}^3$ и $2,34 \text{ мПа}\cdot\text{с}$ соответственно. Полученные данные свидетельствуют о высоком качестве осветления растворов обоих типов.

По испытаниям была выпущена конструкторская документация на модернизацию насоса для работы с пульпой при концентрации твердой фазы не менее 100 г/см^3 , предусматривающая защиту подшипников скольжения и ведомой магнитной полумуфты от перекачиваемой суспензии путем создания автономного контура внутри рабочей головки насоса. На основании

конструкторской документации были изготовлены детали и сборочные единицы, насос ГЦВН-10/30-800 доработан, после доработки ограничение концентрации твердой фазы в перекачиваемых суспензиях составило 100 г/дм^3 , что затем было подтверждено экспериментально. Длительные ресурсные испытания не проводили.

В качестве альтернативы этому насосу был спроектирован и изготовлен опытный образец ЦНСП-15/32, способный перекачивать суспензии с содержанием твердой фазы до 120 г/дм^3 (рис. 2). Он также был изготовлен в АО «СвердНИИхиммаш» и предназначен для перекачивания радиоактивных, органических или азотно-кислых растворов плотностью $800\text{—}1300 \text{ кг/м}^3$, кинематической вязкостью не более $0,3\cdot 10^{-4} \text{ м}^2/\text{с}$ при $5\text{—}60 \text{ }^\circ\text{C}$. Перекачиваемые среды могут содержать твердые неабразивные включения размером не более 1 мм , массовой долей не более 12% (концентрация твердой фазы не должна превышать 120 г/дм^3). Во время работы насоса обеспечивается подача затворной жидкости (воды) в контур смазки подшипников и охлаждения экрана магнитной муфты.

Установку с этим насосом перенесли в другое производственное здание. Технологическая схема обвязки аппаратов соответствовала ранее применяемой, в качестве фильтров использовали мембранные элементы, аналогичные описанным, но с размером пор 200 нм . Для приготовления имитационных суспензий использовали ранее приведенные методики. Установка отработала в режиме фильтрации 205 ч с использованием имитатора раствора отработавшего топ-



Р и с. 2. Насос ЦНСП-15/32

лива комбинированной технологии, содержащего повышенное количество металлической фазы имитатора соединений благородных металлов до 24 г/дм^3 по порошку мелкодисперсного циркония в концентрате суспензии. Температура фильтруемой суспензии составляла $24\text{—}35 \text{ }^\circ\text{C}$, принудительное охлаждение отсутствовало.

В процессе испытаний в течение пяти циклов работы достигнута концентрация твердой фазы в концентрате не менее 100 г/дм^3 . Максимальное содержание твердой фазы составило 103 г/дм^3 . Выполнена многократная регенерация фильтрующих элементов при подаче осветленного раствора обратным током под давлением до $0,27 \text{ МПа}$ для поддержания проницаемости мембран. Подтверждена эффективность данного способа регенерации.

Выход осветленного раствора через мембраны при работе с концентратом суспензии, характеризовавшейся максимальной концентрацией твердой фазы, был стабилен и составлял $192\text{—}209 \text{ дм}^3/\text{ч}$ при использовании фильтрующих элементов с размером пор мембраны 200 нм . Подтверждено отсутствие ухудшения качества осветленного раствора в режиме повторяющихся фильтроциклов. Содержание твердой фазы в осветленном растворе составляло менее $0,1 \text{ г/дм}^3$ в течение всего времени работы установки — осветленные растворы сохраняли прозрачность во всех режимах работы.

Комплексная проверка технологии осветления показала устойчивую непрерывную работу полномасштабного макета установки осветления, оснащенного насосом ЦНСП-15/32.

Очистка жидких радиоактивных отходов от актиноидов методом динамической тангенциальной фильтрации. Экспериментальная проверка эффективности такого метода очистки жидких радиоактивных отходов опытно-демонстрационного энергокомплекса проводилась в 2017 г. Очистка отходов необходима для их перевода из категории среднеактивных в низкоактивные с концентрацией в растворах плутония до 15 мкг/дм^3 , америция $1,8 \text{ мкг/дм}^3$.

Методика проведения работы заключалась в подборе способа обработки исходного раствора (нейтрализации в определенном режиме с получением осадков трансурановых элементов) с последующим отделением твердой фазы методом фильтрации. Осветление проводили на ла-

бораторной установке динамической тангенциальной фильтрации Membra-Flow Pilot Mono через моноканальный керамический элемент с размером пор мембраны 50 нм (см. рис. 1). Полученные осветленные растворы анализировали на содержание урана, плутония, америция и другие показатели.

В качестве исходных использовали имитационные растворы жидких радиоактивных отходов, которые содержали 1 г/дм^3 урана, 608 мкг/дм^3 плутония и $35,5 \text{ мкг/дм}^3$ америция. В экспериментах варьировали концентрацию NaNO_3 (солевой фон растворов 10 и 100 г/дм^3), содержание железа и продуктов озонолиза поверхностно-активных веществ (имитировали добавлением растворов щавелевой $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4$ и масляной $\text{C}_4\text{H}_8\text{O}_2$ кислот) в исходных растворах для изучения их влияния на фильтрацию. Суммарная α -активность исходных растворов составляла 10 МБк/дм^3 [8].

Были проверены следующие режимы осаждения трансурановых элементов из имитационных растворов с фильтрацией на установке динамической тангенциальной фильтрации:

режим I — осаждение при $\text{pH } 8$, декантация раствора с последующим осветлением на установке динамической тангенциальной фильтрации;

режим II — осаждение при $\text{pH } 8$, осветление полученной суспензии на установке динамической тангенциальной фильтрации;

режим III — осаждение при $\text{pH } 8$, фильтрация полученной суспензии через патронный фильтр с размером пор 1 мкм , введение в фильтр железа (III) из расчета 100 мг/дм^3 , доведение pH до 11 , осветление суспензии на установке динамической тангенциальной фильтрации;

режим IV — доведение pH до 11 (железо в количестве 100 мг/дм^3 уже входило в состав исходного раствора), осветление суспензии на установке динамической тангенциальной фильтрации.

Осаждение проводили следующим образом: в исходный раствор порционно при постоянном перемешивании сжатым воздухом добавляли концентрированный раствор NaOH до создания требуемого $\text{pH } 8\text{—}11$, затем суспензию выдерживали при перемешивании в течение $3\text{—}4 \text{ ч}$, осадок отстаивали в растворе в течение $15\text{—}17 \text{ ч}$. После этого действовали согласно проводимому режиму осаждения. Конечным этапом

каждого эксперимента являлось отделение твердой фазы на установке динамической тангенциальной фильтрации. В режимах I и II проверяли эффективность очистки от трансурановых элементов за счет задержки мембраной гидролизованых форм — коллоидов, в режимах III и IV — за счет отделения осадка гидроксида железа с сорбированными на нем трансурановыми элементами.

Осветление каждой порции раствора проводили без перерывов в работе фильтрационной установки. Объем каждой порции исходного раствора составлял 10,5—14 дм³. Исходный раствор подавали насосом в емкость фильтрационной установки и прогоняли по контуру установки в течение 10 мин для перемешивания суспензии и смачивания поверхности мембраны. Выход пермеата при этом был закрыт. Устанавливали начальные параметры процесса: скорость потока 11,1—13,1 дм³/мин, давление на входе в модуль 0,3 МПа, давление на выходе из модуля 0,24 МПа. Затем проводили осветление, пермеат собирали в мерную емкость. Измеряли время, за которое выводится определенный объем пермеата 1—2 дм³, рассчитывали производительность, измеряли температуру фильтруемой суспензии. Фильтрацию прекращали, когда в емкости оставалось 1,5—2,2 дм³ концентрата (табл. 4). Пермеат анализировали на содержание урана, определяли плотность, вязкость, светопропускание по дистиллированной воде, объемную α -активность, снимали α -, γ -спектры.

Т а б л и ц а 4. Объемная α -активность пермеатов, содержание в них урана, плутония и америция

Тип раствора	Объемная α -активность, Бк/дм ³	U, мг/дм ³	Pu, мкг/дм ³	Am, мкг/дм ³
Исходный	10 ⁷	870	608	35
Пермеат, режим:				
I	(0,5—4,2)10 ⁵	3,1	45,6	<0,2
II	(1,1—1,6)10 ⁵	4,1—13	60	<0,6
III	(2,3—6)10 ²	1,2—8,9	<0,07	<0,2
IV	2,7·10 ³	6	<0,2	<0,03
	1,6·10 ^{3*}	7*	<0,2*	<0,2*

*При наличии имитаторов продуктов озонлиза поверхностно-активных веществ.

Объемную активность ²⁴¹Am устанавливали гамма-спектрометрическим, изотопов плутония — альфа-спектрометрическим методом. При этом объемную активность ²³⁸Pu определяли по результатам альфа-спектрометрических измерений с учетом объемной активности ²⁴¹Am, установленной при гамма-спектрометрических измерениях. Массовую концентрацию плутония в анализируемых веществах рассчитывали по альфа-спектрометрическим измерениям объемной активности ²³⁸Pu, ²³⁹Pu и ²⁴⁰Pu, используя справочные данные об их удельной активности, и по данным о массовой доле ²³⁹Pu и ²⁴⁰Pu в исходном растворе плутония (для экспериментов использовали плутоний от переработки отработавшего топлива ВВЭР-440).

По результатам экспериментов эффективными оказались режимы соосаждения трансурановых элементов с носителем (трехвалентным железом) при pH 11. Пермеат после осветления на установке динамической тангенциальной фильтрации представлял собой прозрачную бесцветную жидкость. Осаждение трансурановых элементов в режимах III и IV с последующим осветлением методом динамической тангенциальной фильтрации позволяет получить низкоактивные отходы 10²—10³ Бк/дм³ с концентрацией плутония менее 1 мкг/дм³, америция — менее 0,2 мкг/дм³. При этом достаточно введения в раствор не более 100 мг/дм³ железа. Кроме того, предполагается, что в реальных нетехнологических жидких радиоактивных отходах будет содержаться железо в небольшом количестве от коррозии аппаратов и трубопроводов и, возможно, дополнительное введение железа не потребуется.

Характеристики концентратов после операции осветления на установке динамической тангенциальной фильтрации для режимов осаждения III и IV приведены в табл. 5. Твердая фаза в концентратах до отстаивания равномерно распределена по объему раствора. Концентраты могут быть транспортированы по технологическим трубопроводам.

Динамика осветления концентратов показана на рис. 3. Объемная доля твердой фазы в концентратах, определенная после отстаивания, составляет 11—25%. Для полного отстаивания концентрата требуется около 2 сут. Достигнутая степень концентрирования 6,5—8,5 раза не яв-

Т а б л и ц а 5. Основные характеристики концентратов

Индекс состава раствора (см. рис. 3)	Компоненты раствора (кроме трансурановых элементов)	Режим осаждения	Степень концентрации	Объемная доля твердой фазы, %	Плотность, г/см ³
1	NaNO ₃ — 10 г/дм ³	III	6,5	8	1,01
2	NaNO ₃ — 100 г/дм ³	III	6	11	1,05
3	NaNO ₃ — 10 г/дм ³ Fe ³⁺ — 100 мг/дм ³	IV	6,5	14	1,01
4	NaNO ₃ — 10 г/дм ³ Fe ³⁺ — 100 мг/дм ³ H ₂ C ₂ O ₄ — 100 мг/дм ³ C ₄ H ₈ O ₂ — 200 мг/дм ³	IV	8,5	25	1,01

ляется максимальной, дальнейшее концентрирование по твердой фазе можно увеличивать без потери качества осветления и очистки от α-излучающих нуклидов. Солевой фон раствора и наличие продуктов озонолиза не влияют на производительность установки и степень очистки от трансурановых элементов.

Выводы. Исследования показали принципиальную возможность применения динамической тангенциальной фильтрации для осветления растворов смешанного нитридного уран-плутониевого топлива. Экспериментально подтверждены его преимущества перед тупиковой фильтрацией — предложенный метод обеспечивает высокое качество осветления суспензий без флокулянтов и вспомогательных фильтрующих материалов.

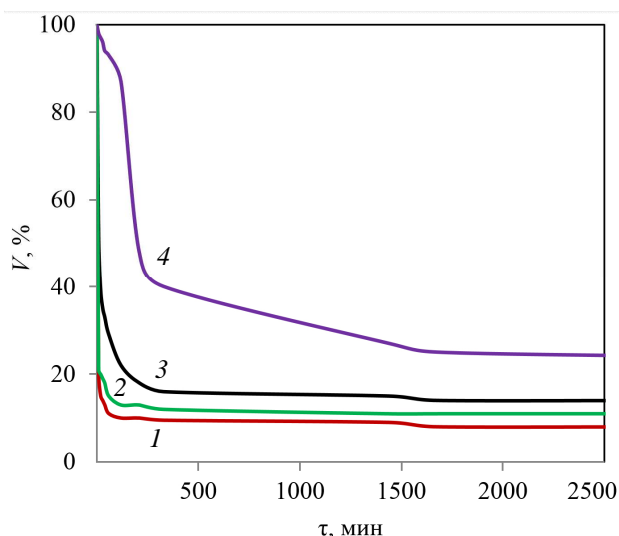
Испытанные для перекачки концентрированных суспензий (до 100 г/дм³ по твердой фа-

зе) два насоса в радиохимическом исполнении ГЦВН-10/30-800 и ЦНСП-15/32 показали свою работоспособность.

Подтверждена эффективность метода динамической тангенциальной фильтрации для очистки жидких радиоактивных отходов от трансурановых элементов. После их соосаждения с носителем — трехвалентным железом полученные пермеаты согласно критериям ОСПОРБ-99/2010 относятся к категории низкоактивных отходов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Троянов В.М., Грачев А.Ф., Забудько Л.М., Скупов М.В. Перспективы использования нитридного топлива в быстрых реакторах с замкнутым топливным циклом. — Атомная энергия, 2014, т. 117, вып. 2, с. 69—75.
2. Шадрин А.Ю., Двоглазов К.Н., Масленникова А.Г. и др. РН-процесс — технология переработки смешанного уран-плутониевого топлива реактора БРЕСТ-ОД-300. — Радиохимия, 2016, т. 58, № 3, с. 234—241.
3. Балакин И.М., Рошин А.Н., Никулин С.Л. и др. Разработка и совершенствование фильтрационного и экстракционного оборудования завода РТ-1. — Вопросы радиационной безопасности, 1997, № 2, с. 13—26.
4. Дыгнерский Ю.И. Мембранные процессы разделения жидких смесей. М.: Химия, 1975.
5. Дыгнерский Ю.И., Каграманов Г.Г. Моделирование процесса фильтрации с помощью керамических мембран. Учебное пос. М., РХТУ им. Д.И. Менделеева, 2001.
6. 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.
7. Самарина Н.С., Харлова Е.Д., Вербицкий К.В. и др. Осветление имитационных растворов различных видов ОЯТ методом проточной фильтрации. Тезисы докл. 2-й Межд. научно-техн. конф. «Актуальные проблемы



Р и с. 3. Динамика осветления концентратов при отстаивании состава: 1 — состав 1, режим III; 2 — состав 2, режим III; 3 — состав 3, режим IV; 4 — состав 4, режим IV

радиохимии и радиэкологии». Екатеринбург, 10—14 ноября 2014 г., с. 63—67.

8. **Шадрин А.Ю., Кащеев В.А., Кадочигов К.А. и др.** Очистка жидких радиоактивных отходов от трансуранических элементов методом щелочного осаждения. —

Вопросы атомной науки и техники. Сер. Материаловедение и новые материалы, 2018, вып. 3(94), с. 85—91.

Поступила 6.06.18

В окончательной редакции 11.10.19

УДК 539.125.5: 539.125

УСОВЕРШЕНСТВОВАННЫЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ ПЕРВИЧНЫЙ СПЕЦИАЛЬНЫЙ ЭТАЛОН ЕДИНИЦ ПЛОТНОСТИ ПОТОКА И ФЛЮЕНСА НЕЙТРОНОВ ДЛЯ ЯДЕРНО-ФИЗИЧЕСКИХ УСТАНОВОК

Севастьянов В.Д., Янушевич А.В., Коваленко О.И., Шубаев Р.М. (ФГУП «ВНИИФТРИ», Менделеево)
e-mail: sevast@vniiftri.ru

В 2015—2016 гг. проведены работы по совершенствованию Государственного первичного специального эталона единиц плотности потока нейтронов и флюенса нейтронов для ядерно-физических установок ГЭТ 51—80 для предприятий ядерного энергетического, оружейного комплекса, атомного флота, ядерной медицины, научно-исследовательских институтов прикладных и фундаментальных исследований. В 2017 г. эталон был утвержден Росстандартом, в 2018 г. утверждена актуализированная поверочная схема.

Эталон единиц плотности потока и флюенса нейтронов для ядерно-физических установок предназначен для воспроизведения и хранения единиц плотности потока нейтронов — $\text{с}^{-1} \cdot \text{м}^{-2}$ и флюенса нейтронов — м^{-2} и передачи размера единиц рабочим эталонам и средствам измерений для обеспечения единства измерений. Он включает комплекс технических средств, вспомогательных устройств и специальных инженерных сооружений:

источники быстрых моноэнергетических и тепловых нейтронов на основе генератора НГ-10М, реализующего реакцию $T(d, n)^4\text{He}$, и замедляющей сборки;

канал мониторинга нейтронного излучения, состоящий из трактов канала для низко- и высокоинтенсивных полей нейтронного излучения (первый, второй канал) — системы детектирования на основе ДКД-Пм-2,5-3А с цифровым спектрометрическим трактом ЦСУ-В-1К и радиометра-монитора с пороговой камерой деления с ^{238}U соответственно;

канал мониторинга сопутствующих частиц — система детектирования протонного

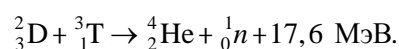
излучения на основе ДКД-Пм-0,8-1А и цифрового спектрометрического тракта ЦСУ-В-1К;

радиометрический комплекс в составе эталонной установки УОР-1-а и эталонного комплекса КРОНА-1-ЭТАЛОН;

техническую инфраструктуру.

В качестве источника нейтронов энергией 14 МэВ используется модернизированный серийный генератор НГ-10М с двумя ионопроводами: прямым и отклоненным. На каждом из них установлен свой блок с тритиевой мишенью диаметром 14,3 и 45 мм соответственно для генерации нейтронов. На отклоненном ионопроводе мишень большого диаметра вращается, что обеспечивает эффективное охлаждение водой. Это, в свою очередь, позволяет ее облучать пучком ускоренных до энергии 150 кэВ дейтронов и генерировать в тритиевой мишени интенсивный поток нейтронов $\sim 10^{11} \text{с}^{-1}$. Энергия ускоряемых дейтронов до 200 кэВ, ток пучка до 5 мА.

На генераторе установлен высокоэкономичный сверхвысокочастотный ионный источник дейтронов, обеспечивающий получение в ускоренном пучке до 95% атомарных дейтронов. Для фокусировки ускоренного пучка ионов на тритиевую мишень на каждом ионопроводе установлены квадрупольные линзы и отдельные вакуумные системы, обеспечивающие быструю безаварийную смену мишеней в каждом мишенном блоке. Нейтроны в тритиевых мишенях рождаются в реакции



На прямом ионопроводе поток нейтронов составляет $\sim 10^{10} \text{с}^{-1}$, на отклоненном $10^{11}—5 \cdot 10^{11} \text{с}^{-1}$.