DOI: 10.25283/2587-9707-2025-1-6-13 УДК 544.72; 544.58; 621.039.7

ИЗУЧЕНИЕ ЭФФЕКТИВНОСТИ ОЧИСТКИ МОДЕЛЬНЫХ ЖИДКИХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ ОТ РАДИОНУКЛИДОВ РУТЕНИЯ СОРБЦИОННЫМИ, МЕМБРАННЫМИ И ОСАДИТЕЛЬНЫМИ МЕТОДАМИ

О. Б. Коренькова, А. В. Радкевич, В. В. Торопова

Государственное научное учреждение «Объединённый институт энергетических и ядерных исследований — Сосны» Национальной академии наук Беларуси, Минск, Республика Беларусь

Статья поступила в редакцию 18 октября 2024 г.

В данной статье рассматривается влияние гидроксоформ Fe(III) в концентрации 1 мг/дм^3 на эффективность очистки модельных жидких радиоактивных отходов (ЖРО), содержащих борную кислоту в концентрации 5 г/дм^3, от радионуклидов рутения методами ионного обмена и ультрафильтрации. Показано, что присутствие в исследуемых растворах гидроксоформ Fe(III) приводит к снижению эффективности извлечения ^{106}Ru из водных растворов первым способом, при этом эффективность очистки при помощи ультрафильтрации с применением мембран 1 и 10 кДа зависит от значения pH раствора. Кроме того, в работе оценивается возможность использования сорбционных, мембранных и осадительных методов для очистки модельных ЖРО, содержащих борную кислоту, а также органические комплексообразователи, от радионуклидов рутения. Применяемые в работе ионообменные смолы не позволили за одну стадию удалить ^{106}Ru из исследуемых растворов, как и ультрафильтрация. В свою очередь, метод соосаждения позволяет очистить исследуемые растворы от ^{106}Ru до уровня ниже критерия отнесения отходов к ЖРО, но присутствие в растворах органических комплексонов значительно снижает эффективность очистки данным способом.

Ключевые слова: *жидкие радиоактивные отходы, радионуклиды рутения, ионный обмен, ультрафильтрация, соосаждение, радиоактивные отходы.*

Введение

Образование жидких радиоактивных сред (ЖРС) и ЖРО сопровождает деятельность практически всех объектов использования атомной энергии. Особое место занимают ЖРС и ЖРО, образующиеся на атомных электростанциях (АЭС), поскольку их количество существенно и они требуют высокого уровня технологического обеспечения при обращении с ними [1]. Источниками образования ЖРО являются организованные и неорганизованные протечки из первого контура и бассейна выдержки отработавшего ядерного топлива, растворы, которые образуются в результате дезактивации оборудования и трубопроводов, регенераты ионообменных смол, сточные воды спецпрачечных, трапные воды АЭС [2].

Образующиеся ЖРО направляются на установку выпаривания, в результате которого возникает кубовый остаток, имеющий солесодержание до 400 г/дм^3 [2], [3]. Кубовый остаток подвергают цементированию (Ростовская АЭС), битумированию (Ленинградская и Калининская АЭС) или

глубокому упариванию (Нововоронежская и Балаковская АЭС) [4], [5]. Следует отметить, что данные способы кондиционирования нельзя назвать достаточно эффективными, поскольку в результате глубокого упаривания образуются радиоактивные солевые плавы, солесодержание в которых превышает 1 500 г/дм^3 и их форма не обеспечивает фиксацию содержащихся в них радионуклидов [6], [7]. При битумировании возрастает пожароопасность отвержденных ЖРО, а при цементировании происходит увеличение их объема [8], [9].

Также на АЭС с реакторами типа ВВЭР широко применяются сорбционные методы очистки. Для ЖРС низкого и среднего уровня активности применяют метод ионного обмена с использованием органических ионитов. Данный метод очистки имеет один существенный недостаток: образование большого количества вторичных отходов на стадии регенерации ионообменных материалов. Помимо извлеченных солей и радионуклидов, в регенерационные растворы переходят и соли, образовавшиеся в результате нейтрализации избыточных количеств кислоты и щелочи, что приводит к увеличению массы солей, отправляемых на захоронение [10]. Альтернативой является направление отработавших ионообменных смол в ЖРО без регенерации.

Ионоселективная очистка с применением неорганических сорбентов была успешно внедрена в процесс переработки кубового остатка на Кольской АЭС [4], [11].

В настоящее время большое внимание уделяется таким перспективным методам переработки ЖРО, как мембранные. К ним относят способы очистки с использованием мембран различной природы, с каналами или порами разного размера и вида. Один из таких часто используемых методов — нанофильтрация, поскольку она включает в себя диффузионный, конвективный и электростатический варианты разделения [12]. Мембранные методы в настоящее время не используются на АЭС для очистки ЖРС и ЖРО. Однако они являются перспективными методами для извлечения радионуклидов из технологических сред различного происхождения [5], [12].

Также в радиохимии выделяют реагентные методы очистки, которые включают в себя осадительные методы. Данные методы характеризуются образованием малорастворимой твердой фазы, на поверхности или внутри которой задерживаются радионуклиды в коллоидной или растворенной форме [2]. Одним из относительно простых и дешевых методов очистки ЖРО является химическое осаждение, в результате которого радионуклиды переходят в твердую фазу (осадок) и далее их кондиционируют до твердых РАО. В работе [13] показано, что при помощи фосфатного осаждения можно очистить дренажные и грунтовые воды, загрязненные β-излучающими радионуклидами. Недостатком данного метода также является образование большого количества вторичных отходов.

Информация о формах нахождения радионуклидов или их физико-химическом состоянии в ЖРО важна при выборе метода очистки, однако она зачастую отсутствует. В этой связи стоит задача разработки метода (или комплекса методов), которые могли бы эффективно удалить радионуклиды из ЖРО с учетом их физико-химического состояния [14].

Радионуклиды рутения являются продуктами деления урана и плутония и вносят вклад в активность технологических сред АЭС, радиоактивных отходов и отработанного ядерного топлива [1], [2], [15]. Кроме того, химические свойства рутения и многообразие форм существования в растворах обуславливают относительно низкую эффективность его извлечения из ЖРО традиционными методами ионного обмена.

Результаты, полученные ранее [16], показали, что в интервале pH от 1,1 до 4,4 ^{106}Ru в водных растворах находится в ионной форме, поэтому ЖРС с таким показателем кислотности целесообразно очищать при помощи сильнокислотной катионообменной смолы. Наибольшее значение коэффициента распределения было получено при pH 1,5 и составляло 4,5·10^3 см^3/г. Ионные формы рутения легко проходят через мембрану с пределом отсечения 1 кДа, поэтому такой метод очистки ЖРО, как ультрафильтрация, будет неэффективен в интервале pH 1,1—4,4.

Присутствие сторонних катионов может снизить эффективность очистки ЖРО, содержащих ^{106}Ru, методом ионного обмена [17]. В присутствии гидроксоформ Fe(III) в концентрации 1 мг/дм^3 значение коэффициента распределения уменьшается в ~3 раза до значения 1,5·10^3 см^3/г (при pH 1,4), что можно объяснить конкуренцией двух металл-ионов за ионообменные центры на зернах смолы.

В водных растворах при pH > 4,4 ^{106}Ru находится в неионном (псевдоколлоидном) состоянии, и такие ЖРС целесообразно очищать методом ультрафильтрации [16].

В водных растворах, содержащих борную кислоту в концентрации 5—16 г/дм^3, в интервале pH от 1,1 до 3,2 ^{106}Ru находится в ионной форме, поэтому, так же как и в отсутствие борной кислоты, подобные ЖРС целесообразно очищать при помощи ионного обмена [18]. Присутствие в водных растворах, содержащих ^{106}Ru, борной

кислоты и гидроксоформ Fe(III) в концентрации 1 мг/дм^3 также приводит к уменьшению значения коэффициента распределения ^{106}Ru за счет конкуренции металл-ионов рутения и железа [17].

В тех же растворах в интервале pH 3,2—6,5 ^{106}Ru переходит в псевдоколлоидное состояние, а с дальнейшим ростом pH до 10,0 он образует комплексные соединения с полиборатными ионами, которые не поглощаются ионообменной смолой. Как показали экспериментальные данные [18], в качестве метода очистки таких растворов может выступать ультрафильтрация на мембране с пределом отсечения 1 кДа.

Такой способ с пределом отсечения 10 кДа не эффективен для очистки ЖРС, содержащих борную кислоту в концентрации 5—16 г/дм^3, от радионуклидов рутения в интервале pH от 6,5 до 11,0, поскольку в данном диапазоне происходит уменьшение размера псевдоколлоидных частиц из-за образования комплексных соединений с полиборатными ионами [18]. Однако модельные ЖРО, содержащие борную кислоту в концентрации 5—10 г/дм^3 и гидроксоформы железа (III), потенциально могут быть очищены на мембране с пределом отсечения 10 кДа [17].

Ультрафильтрационная мембрана с пределом отсечения 10 кДа также применима для модельных ЖРС и ЖРО, содержащих борную кислоту в концентрации 16 г/дм^3 и гидроксоформы железа (III), но только в интервале pH от 4,5 до 7,6.

Цель данной работы заключается в определении влияния продуктов коррозии — гидроксоформ Fe(III) — на эффективность извлечения радионуклидов рутения из модельных (в том числе борсодержащих) ЖРО методами ионного обмена и ультрафильтрации, а также в изучении возможности использования сорбционных, мембранных и осадительных методов для очистки таких ЖРО от радионуклидов рутения.

Экспериментальная часть

Для приготовления рабочих растворов использовали радионуклид ^{106}Ru в химической форме хлорид рутения (III, IV). В ходе исследования применялись водные растворы ^{106}Ru в 0,1 моль/дм^3 азотной кислоты с объемной активностью 20—200 кБк/дм^3 (содержание рутения ~ 10^{-10}—10^{-9} моль/дм^3) в присутствии гидроксоформ Fe(III) в концентрации 1 мг/дм^3 и (или) борной кислоты в концентрации 5 г/дм^3 в интервале pH от 1,1 до 11,0. В экспериментах по ионному обмену и ультрафильтрации время выдержки растворов после приготовления при 20 °C составляло 1 сут, соосаждения — 1 и 7 сут.

Для ионного обмена использовали сильнокислотный катионит Resinex KW-8 в K^+-форме. К навеске смолы приливали 50 см^3 рабочего раствора, перемешивали на лабораторном встряхивателе в течение 1 сут со скоростью 200 об/мин, после чего проводили измерение активности аликвоты. Соотношение V/m составляло ~ 3000 см^3/г. Для характеризации количества радионуклида, сорбировавшегося на ионообменной смоле, применялся коэффициент распределения (K_d, см^3/г), который рассчитывали по уравнению (1):

$$K_d = \frac{(A_0 - A_i)}{A_i} \cdot \frac{V}{m}, \quad (1)$$

где A_0 и A_i — активности аликвот начального и i-го раствора, Бк; V — объем раствора, см^3; m — масса ионита, г.

В экспериментах по ультрафильтрации использовали ячейку Millipore 8200 с мембранами из регенерированной целлюлозы. Предел их отсечения составляет 1 и 10 кДа (~ 1 и ~ 2,6 нм соответственно [19]). Исследуемый раствор объемом 125 см^3 фильтровали при давлении 0,3 МПа, после чего проводили измерение его активности.

Эксперимент по осаждению включал в себя следующие операции:

1) подкисление раствора до pH ⩽ 3;

2) добавление раствора сульфата железа (II) концентрацией 1 моль/дм^3 из расчета 10 мл на 2,2 дм^3 модельных растворов, перемешивание;

3) корректировка pH раствора до значения ⩾ 8 раствором гидроксида калия, перемешивание;

4) выдерживание в течение 1 сут и фильтрация на бумажном фильтре «синяя лента».

Оценку эффективности дезактивации модельных ЖРО от радионуклидов рутения проводили при помощи коэффициента очистки, рассчитываемого по уравнению (2):

$$K_{\text{оч.}} = A_{\text{нач.}}/A_{\text{конеч.}}, \quad (2)$$

где $A_{\text{нач.}}$ и $A_{\text{конеч.}}$ — активности аликвот начального и конечного растворов, Бк (Бк/дм^3).

Также в ходе работы была изучена эффективность очистки модельных ЖРО, содержащих борную кислоту, оксалат калия и ЭДТА в концентрации 1,0, 0,5 и 0,1 г/дм^3, (pH 8) от радионуклидов рутения методом соосаждения.

Измерение активности ^{106}Ru в изучаемых растворах проводили при помощи гамма-бета-спектрометра МКС АТ-1315 по γ-линии его дочернего изотопа ^{106}Rh (E_γ = 511 кэВ, квантовый выход — 20,4 %), время установления изотопного равновесия — 5 мин.

Результаты, представленные в работе, являются средними величинами 3—5 измерений. Для

оценки истинного значения измеряемой величины использовали распределение Стьюдента. Неопределенности рассчитывали в виде стандартного отклонения с доверительной вероятностью 0,95.

Результаты и обсуждение

В табл. 1 представлены значения коэффициентов распределения ^{106}Ru на катионите в изучаемых модельных ЖРО при различных значениях pH растворов. Значение A_0 в эксперименте по ионному обмену составило около 200 кБк/дм^3.

Таблица 1. Значения коэффициентов распределения ^{106}Ru на катионите в модельных ЖРО при различных значениях pH растворов

Состав раствора	Коэффициент распределения ^{106}Ru			
	pH 4	pH 6	pH 8	pH 10
^{106}Ru	2413±452	2474±573	1803±251	1537±301
^{106}Ru, Fe(III) в концентрации 1 мг/дм^3	1442±70	785±71	717±103	330±130
^{106}Ru, борная кислота в концентрации 5 г/дм^3	634±50	1494±114	661±106	1647±46
^{106}Ru, Fe(III) в концентрации 1 мг/дм^3, борная кислота в концентрации 5 г/дм^3	329±92	152±48	220±67	610±56

Представленные в табл. 1 данные позволяют сделать вывод, что присутствие продуктов коррозии во всех модельных ЖРО приводит к уменьшению коэффициента распределения ^{106}Ru на используемом катионите во всем исследуемом диапазоне pH в 2—5 раз.

В табл. 2 и 3 представлены значения коэффициентов очистки изучаемых растворов от ^{106}Ru методом ультрафильтрации с применением мембран с пределом отсечения 1 и 10 кДа. Значение A_0 в экспериментах по ультрафильтрации составило ~ 200 кБк/дм^3.

Таблица 2. Значения коэффициентов очистки модельных ЖРО от ^{106}Ru методом ультрафильтрации на мембране с пределом отсечения 1 кДа при различных значениях pH растворов

Состав раствора	Коэффициент очистки			
	pH 4	pH 6	pH 8	pH 10
^{106}Ru	1,4±0,1	4,6±0,6	10,4±2,5	6,6±1,3
^{106}Ru, Fe(III) в концентрации 1 мг/дм^3	2,4±0,1	4,0±0,1	4,4±0,4	4,5±0,4
^{106}Ru, борная кислота в концентрации 5 г/дм^3	1,3±0,1	2,5±0,3	4,5±0,3	3,1±0,2
^{106}Ru, Fe(III) в концентрации 1 мг/дм^3, борная кислота в концентрации 5 г/дм^3	2,2±0,1	2,4±0,1	2,7±0,1	3,2±0,3

Таблица 3. Значения коэффициентов очистки модельных ЖРО от ^{106}Ru методом ультрафильтрации на мембране с пределом отсечения 10 кДа при различных значениях pH растворов

Состав раствора	Коэффициент очистки			
	pH 4	pH 6	pH 8	pH 10
^{106}Ru	1,1±0,1	1,4±0,1	2,2±0,1	4,5±0,4
^{106}Ru, Fe(III) в концентрации 1 мг/дм^3	1,6±0,2	1,7±0,1	1,7±0,1	1,7±0,1
^{106}Ru, борная кислота в концентрации 5 г/дм^3	1,1±0,1	2,6±0,4	1,6±0,1	1,6±0,1
^{106}Ru, Fe(III) в концентрации 1 мг/дм^3, борная кислота в концентрации 5 г/дм^3	2,1±0,2	2,7±0,6	2,7±0,5	2,8±0,3

Данные, представленные в табл. 2 и 3, показывают, что присутствие гидроксоформ Fe(III) во всех исследуемых растворах, имеющих pH 4, приводит к небольшому увеличению коэффициента очистки от радионуклидов рутения мембранами 1 и 10 кДа, в то время как в растворах с pH 6 их наличие не вызывает каких-либо существенных изменений в значении $K_{оч}$. В случае растворов, имеющих pH 8—10 и не содержащих борную кислоту, присутствие продуктов коррозии приводит к уменьшению коэффициентов очистки от ^{106}Ru обеими мембранами. В растворах с борной кислотой и при pH 8 в присутствии гидроксоформ Fe(III) наблюдается уменьшение $K_{оч.}$ на мембране с пределом отсечения 1 кДа, в то время как на мембране 10 кДа наблюдается его увеличение. В борсодержащих растворах, имеющих pH 10, добавление продуктов коррозии не приводит к изменению $K_{оч.}$ на мембране 1 кДа, однако на мембране 10 кДа наблюдается рост коэффициента очистки исследуемых растворов от ^{106}Ru.

При помощи ионного обмена или ультрафильтрации не удалось за одну стадию очистить модельные ЖРО, содержащие борную кислоту и продукты коррозии, до значения ниже критерия отнесения отходов к ЖРО (A_v(^{106}Ru) < 100 Бк/дм^3) [20].

В табл. 4 приведены результаты очистки модельных ЖРО от радионуклидов рутения методом соосаждения, а также состав, значение pH и время выдержки осаждаемых растворов. Значение A_0 в эксперименте по соосаждению составило ~ 20 кБк/дм^3.

Данные, представленные в табл. 4, позволяют сделать вывод, что метод соосаждения является перспективным способом очистки ЖРО, содержащих борную кислоту и продукты коррозии: объемная активность ^{106}Ru в очищенных растворах составила менее 100 Бк/дм^3, степень очистки

исследуемых растворов ⩾ 99,5 %. Однако данный метод неэффективен для очистки ЖРО, содержащих органические комплексообразователи.

Таблица 4. Результаты очистки модельных ЖРО от радионуклидов рутения методом соосаждения

Состав раствора	Время выдержки растворов, сут	Значение pH	$K_{оч}$
^{106}Ru, Fe(III) в концентрации 1 мг/дм^3	1	3	267 ± 36
		8	299 ± 97
	7	3	331 ± 73
		8	271 ± 65
^{106}Ru, Fe(III) в концентрации 1 мг/дм^3, борная кислота в концентрации 5 г/дм^3	1	3	289 ± 13
	1	8	295 ± 48
	7	3	260 ± 52
	7	8	298 ± 11
^{106}Ru, борная кислота в концентрации 1 г/дм^3, оксалат калия и ЭДТА в концентрации 0,5 и 0,1 г/дм^3	1	8	9 ± 1

Заключение

В ходе работы было определено влияние гидроксоформ Fe(III) в концентрации 1 мг/дм^3 на эффективность очистки модельных ЖРО, в том числе борсодержащих, от радионуклидов рутения методами ионного обмена и ультрафильтрации (мембраны с пределом отсечения 1 и 10 кДа). При наличии гидроксоформ железа (III) эффективность извлечения ^{106}Ru используемым катионитом (Resinex KW-8 в K^+-форме) уменьшается от 2 до 5 раз в зависимости от pH раствора (для борсодержащих модельных ЖРО при pH 6 — до 10 раз).

В случае дезактивации растворов методом ультрафильтрации наблюдаются следующие процессы:

- при pH 4 увеличивается коэффициент очистки всех модельных ЖРО от ^{106}Ru в присутствии гидроксоформ Fe(III) мембраной с пределом отсечения как 1 кДа, так и 10 кДа;
- при значении pH 6 во всех модельных ЖРО наличие продуктов коррозии не приводит к изменению значений коэффициента очистки от ^{106}Ru используемыми мембранами;
- в интервале pH 8—10 в растворах, не содержащих борную кислоту, в присутствии гидроксоформ Fe(III) происходит уменьшение коэффициента очистки от ^{106}Ru мембранами 1 и 10 кДа;
- при pH 8 в растворах, содержащих борную кислоту, в присутствии гидроксоформ Fe(III) наблюдается небольшое увеличение коэффициента очистки от ^{106}Ru мембраной 10 кДа, в то время как значение $K_{оч.}$ для мембраны с пределом отсечения 1 кДа уменьшается.
- при pH 10 в растворах, содержащих борную кислоту, присутствие продуктов коррозии не приводит к изменениям в значении $K_{оч.}$ от ^{106}Ru мембраной 1 кДа, однако на мембране 10 кДа наблюдается увеличение коэффициента очистки данных растворов.

Ультрафильтрация с использованием мембран с пределом отсечения 1 и 10 кДа не позволила очистить модельные ЖРО от ^{106}Ru ниже значения критерия отнесения отходов к ЖРО за одну стадию. Для увеличения степени дезактивации исследуемых растворов от ^{106}Ru может быть применен метод многоступенчатой ультрафильтрации.

В качестве эффективного метода очистки ЖРО от радионуклидов рутения может выступать метод соосаждения. Экспериментальные данные показали, что при помощи соосаждения с сульфатом железа (II) можно очистить ЖРО, содержащие гидроксоформы железа (III) в концентрации 1 мг/дм^3 и борную кислоту в концентрации 5 г/дм^3, ниже значения критерия отнесения отходов к ЖРО. Следует отметить, что присутствие в них органических комплексонов значительно снижает эффективность дезактивации от радионуклидов рутения данным методом.

Литература

1. *Акимов А. М., Котельникова С. А., Филатова В. Э.* Пути совершенствования технологии переработки жидких радиоактивных отходов // Энергетические установки и технологии. 2020. Т. 6. № 2. С. 92—97.
2. *Рябчиков Б. Е.* Очистка жидких радиоактивных отходов. — М. : ДеЛи принт, 2008. 512 с.
3. *Акобян М. Т., Авагян Н. Р., Ксенофонтов А. И.* Специфика обращения с радиоактивными отходами на энергоблоке № 2 Армянской атомной электростанции // Известия вузов. Ядерная энергетика. 2024. № 1. С. 28—41. DOI: 10.26583/npe.2024.1.03.
4. *Савкин А. Е., Осташкина Е. Е., Сластенников Ю. Т.* Разработка рецептуры цементного компаунда для отверждения кубового остатка АЭС нового поколения с реактором ВВЭР-1200 // Радиоактивные отходы. 2023. № 1 (22). С. 17—22. DOI: 10.25283/2587-9707-2023-1-17-22.
5. *Шульга Н. А., Соколова И. Д.* Обработка жидких радиоактивных отходов на АЭС // Атомная техника за рубежом. 2008. № 9. С. 3—19.
6. *Крапивина М. К., Варлаков А. В., Маряхин М. А.* Цементирование радиоактивных отходов в виде солевого плава АЭС с реакторами типа ВВЭР методом горячего изостатического прессования //

Вопросы атомной науки и техники. Серия: Материаловедение и новые материалы. 2023. № 2 (118). С. 54—62.

7. *Дмитриев М. С., Лебедев В. В., Коляскин А. Д. и др.* Обезвоживание солевых плавов радиоактивных отходов для обеспечения длительного хранения // Ядерная физика и инжиниринг. 2013. Т. 4. № 4. С. 308—312. DOI: 10.1134/S2079562913040040.

8. *Пензин Р. А., Свитцов А. А.* Развитие технологий обращения с жидкими радиоактивными отходами АЭС // Радиоактивные отходы. 2020. № 4 (13). С. 90—98. DOI: 10.25283/2587-9707-2020-4-90-98.

9. *Сорокин В. Т., Павлов Д. И., Кащеев В. А. и др.* Научные и проектные аспекты остекловывания жидких радиоактивных отходов АЭС с ВВЭР-1200 // Радиоактивные отходы. 2020. № 2 (11). С. 56—65. DOI: 10.25283/2587-9707-2020-2-56-65.

10. *Корзина Ю. Е., Рябчиков Б. Е., Ларионов С. Ю.* Совместное использование слабокислотного и сильнокислотного катионитов — эффективный способ сокращения расхода реагентов и объема отходов // Вопросы радиационной безопасности. 2009. № 4 (56). С. 3—12.

11. *Авезниязов С. Р., Стахив М. Р.* Опыт работы по обращению с ЖРО на Кольской АЭС // Радиоактивные отходы. 2018. № 4 (5). С. 49—54.

12. *Слюнчев О. М.* Баромембранные методы очистки ЖРО // Вопросы радиационной безопасности. 2013. № 3 (71). С. 49—64.

13. *Бобров П. А., Слюнчев О. М., Семенова Т. А.* Удаление радионуклидов из радиоактивно-загрязненных дренажных и грунтовых вод осадительными и сорбционными методами // Радиохимия. 2015. Т. 57. № 5. С. 459—462.

14. *Епимахов В. Н., Москвин Л. Н., Прохоркин С. В. и др.* Мембранно-сорбционная технология переработки жидких радиоактивных отходов ядерных реакторов // Радиохимия. 2016. Т. 58. № 1. С. 67—70.

15. *Устинов О. А, Якунин С. А., Воскресенская Ю. А.* Рутений в технологии остекловывания радиоактивных отходов (обзор научно-технической информации) // Радиохимия. 2021. Т. 63. № 3. С. 213—219. DOI: 10.31857/S0033831121010023.

16. *Коренькова О. Б., Радкевич А. В., Воронік Н. И.* Поведение радионуклида ^{106}Ru в водных растворах при центрифугировании, ультрафильтрации и ионном обмене // Весці Нацыянальнай акадэміі навук Беларусі. Серыя хімічных навук. 2021. Т. 57. № 3. С. 331—339. DOI: 10.29235/1561-8331-2021-57-3-331-339.

17. *Karankova V., Radkevich A., Torapava V. et al.* Influence of Iron(III) Hydroxo Forms and Boric Acid on the State of Ruthenium-106 in Aqueous Solutions // Radiochemistry. 2024. Vol. 66. No. 4. Pp. 416—424.

18. *Karankova V., Radkevich A., Varonik N.* Effect of boric acid on ^{106}Ru radionuclide speciation in aqueous solution // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2023. Vol. 332. No. 11. Pp. 4561—4566. DOI: 10.1007/s10967-023-09158-y.

19. *Schäfer A. I., Mauch R., Waite T. D. et al.* Charge Effects in the Fractionation of Natural Organics Using Ultrafiltration // Environ. Sci. Technol. 2002. No. 36. Pp. 2572—2580. DOI: 10.1021/es0016708.

20. Гигиенический норматив «Критерии оценки радиационного воздействия» : Постановление Совета Министров Республики Беларусь № 37 от 25.01.2021 (в редакции постановления Совета Министров Республики Беларусь № 829 от 29.11.2022). — URL: https://pravo.by/document/?guid=12551&p0=C2 (дата обращения: 08.10.2024).

Информация об авторах

Коренькова Ольга Борисовна, научный сотрудник, Государственное научное учреждение «Объединённый институт энергетических и ядерных исследований — Сосны» Национальной академии наук Беларуси (220109, Республика Беларусь, Минск, а/я 119), e-mail: korenkova_olya@mail.ru.

Радкевич Артем Валерьянович, заведующий лабораторией «Формы радионуклидов (металл-ионов) в растворах», Государственное научное учреждение «Объединённый институт энергетических и ядерных исследований — Сосны» Национальной академии наук Беларуси (220109, Республика Беларусь, Минск, а/я 119), e-mail: radkevich@sosny.bas-net.by.

Торопова Валентина Владимировна, старший научный сотрудник, Государственное научное учреждение «Объединённый институт энергетических и ядерных исследований — Сосны» Национальной академии наук Беларуси (220109, Республика Беларусь, Минск, а/я 119), e-mail: vtoropova@sosny.bas-net.by.

Библиографическое описание статьи

Коренькова О. Б., Радкевич А. В., Торопова В. В. Изучение эффективности очистки модельных жидких радиоактивных отходов от радионуклидов рутения сорбционными, мембранными и осадительными методами // Радиоактивные отходы. 2025. № 1 (30). С. 6—13. DOI: 10.25283/2587-9707-2025-1-6-13.

STUDYING THE EFFICIENCY OF MODEL LIQUID RADIOACTIVE WASTE TREATMENT FROM RUTHENIUM RADIONUCLIDES BY SORPTION, MEMBRANE AND PRECIPITATION METHODS

Korenkova O. B., Radkevich A. V., Toropova V. V.

The State Scientific Institution "The Joint Institute for Power and Nuclear Research — Sosny" of the National Academy of Sciences of Belarus, Minsk, Republic of Belarus

Article received on October 18, 2024

This article discusses the effect of Fe(III) hydroxoforms at a concentration of 1 mg/dm^3 on the treatment efficiency of model liquid radioactive waste (LRW) containing boric acid at a concentration of 5 g/dm^3 from ruthenium radionuclides by ion exchange and ultrafiltration methods. The study shows that the presence of Fe(III) hydroxoforms in the studied solutions decreases the efficiency of ^{106}Ru extraction from aqueous solutions by the ion exchange method, while the treatment efficiency in case of ultrafiltration with membranes at a cut off limit 1 and 10 kDa depends on the pH of the solution. The study also evaluates possible application of sorption, membrane and precipitation methods in treating model LRW containing boric acid, as well as organic complexing agents from ruthenium radionuclides. ^{106}Ru could not be removed from the studied solutions in one stage by ion exchange resins applied in the study, as did ultrafiltration. Yet, the coprecipitation method was applied successfully to treat the studied solutions from ^{106}Ru to a level below the threshold established to refer waste to the LRW category. However, organic complexones present in the solutions decrease considerably the treatment efficiency provided by this method.

Keywords: *liquid radioactive waste, ruthenium radionuclides, ion exchange, ultrafiltration, chemical coprecipitation, radioactive waste.*

References

1. Akimov A. M., Kotelnikova S. A., Filatova V. E. Puti sovershenstvovaniya tekhnologii pererabotki zhidkikh radioaktivnykh otkhodov [Ways to Improve Technology for Processing Liquid Radioactive Waste]. *Energeticheskiye ustanovki i tekhnologii — Power plants and technologies*, 2020, vol. 6, no. 2, pp. 92—97.

2. Ryabchikov B. E. *Ochistka zhidkikh radioaktivnykh otkhodov* [Treatment of liquid radioactive waste]. Moscow, DeLi print Publ., 2008. 512 p.

3. Akobyan M. T., Avagyan N. R., Ksenofontov A. I. Spetsifika obrashcheniya s radioaktivnymi otkhodami na energobloke No. 2 Armyanskoy atomnoy elektrostantsii [Specific aspects associated with radioactive waste management at power unit No. 2 of the Armenian Nuclear Power Plant]. *Izvestiya vuzov. Yadernaya energetika — News of universities. Nuclear energy,* 2024, no. 1, pp. 28—41.

4. Savkin A. E., Ostashkina E. E., Slastennikov Yu. T. Razrabotka retseptury tsementnogo kompaunda dlya otverzhdeniya kubovogo ostatka AES novogo pokoleniya s reaktorom VVER-1200 [Development of a Cement Compound Formulation for the Solidification of Evaporation Residues from a New Generation Nuclear Power Plant with a VVER-1200 Reactor Unit]. *Radioaktivnye otkhody — Radioactive Waste,* 2023, no. 1 (22), pp. 17—22. DOI: 10.25283/2587-9707-2023-1-17-22.

5. Shulga N. A., Sokolova I. D. Obrabotka zhidkikh radioaktivnykh otkhodov na AES [Processing of liquid radioactive waste at NPP]. *Atomnaya tekhnika za rubezhom — Atomic Engineering Abroad,* 2008, no. 9, pp. 3—19.

6. Krapivina M. K., Varlakov A. V., Maryakhin M. A. Tsementirovaniye radioaktivnykh otkhodov v vide solevogo plava AES s reaktorami tipa VVER metodom goryachego izostaticheskogo pressovaniya [Cementation of radioactive waste in the form of salt melt at NPPs with WWER-type reactors by the hot isostatic pressing method]. *Voprosy atomnoy nauki i tekhniki. Seriya: Materialovedeniye i novyye materialy — Issues of Atomic Science and Technology. Series: Materials Science and New Materials,* 2023, no. 2 (118), pp. 54—62.

7. Dmitriyev M. S., Lebedev V. V., Kolyaskin A. D. et al. Obezvozhivaniye solevykh plavov radioaktivnykh otkhodov dlya obespecheniya dlitel'nogo khraneniya [Dehydration of radioactive waste salt melts providing their long-term storage]. *Yadernaya fizika i inzhiniring — Nuclear Physics and Engineering,* 2013, vol. 4, no. 4, pp. 308—312. DOI: 10.1134/S2079562913040040.

8. Penzin R. A, Svitsov A. A. Razvitie tekhnologiy obrashcheniya s zhidkimi radioaktivnymi otkhodami AES [Development of Technologies for Handling Liquid Radioactive Waste of Nuclear Power Plants]. *Radioaktivnye otkhody — Radioactive Waste,* 2020, no. 4 (13), pp. 90 — 98. DOI: 10.25283/2587-9707-2020-4-90-98.

9. Sorokin V. T., Pavlov D. I., Kashcheev V. A., Musatov N. D., Barinov A. S. Nauchnye i proektnye aspekty

osteklovyvaniya zhidkikh radioaktivnykh otkhodov AES s VVER-1200 [Scientific and Design Aspects of Liquid Radioactive Waste Vitrification from Nuclear Power Plants with WWER-1200 Reactor Units]. *Radioaktivnye otkhody — Radioactive Waste,* 2020, no. 2 (11), pp. 56—65. DOI: 10.25283/2587-9707-2020-2-56-65.
10. Korzina Y. E., Ryabchikov B. E., Larionov S. Y. Sovmestnoye ispol'zovaniye slabokislotnogo i sil'nokislotnogo kationitov — effektivnyy sposob sokrashcheniya raskhoda reagentov i ob"yema otkhodov [Simultaneous Use of Weak-Acid and Strong-Acid Cationites as an Effective Method for Reduction of Consumption of Reagents and the Amounts of Generated Wastes]. *Voprosy radiatsionnoy bezopasnosti — Radiation Safety Issues,* 2009, no. 4 (56), pp. 3—12.
11. Avezniyazov S. R., Stakhiv M. R. Opyt raboty po obrashcheniyu s ZHRO na Kol'skoy AES [Experience of recycling the liquid radioactive waste at the Kola NPP]. *Radioaktivnye otkhody — Radioactive Waste,* 2018, no. 4 (5), pp. 49—54.
12. Slyunchev O. M. Baromembrannyye metody ochistki ZHRO [Baromembrane methods of liquid radwaste purification]. *Voprosy radiatsionnoy bezopasnosti — Radiation Safety Issues,* 2013, no. 3, pp. 49—64.
13. Bobrov P. A., Slyunchev O. M., Semenova T. A. Udaleniye radionuklidov iz radioaktivno-zagryaznennykh drenazhnykh i gruntovykh vod osaditel'nymi i sorbtsionnymi metodami [Radionuclide Removal from Radioactively Contaminated Drainage Water and Groundwater by Precipitation and Sorption Methods]. *Radiokhimiya — Radiochemistry,* 2015, vol. 57, no. 5, pp. 459—462. DOI: 10.1134/S106636221505015X.
14. Epimakhov V. N., Moskvin L. N., Prokhorkin S. V. et al. Membranno-sorbtsionnaya tekhnologiya pererabotki zhidkikh radioaktivnykh otkhodov yadernykh reaktorov [Membrane-Sorption Technology for Reprocessing Liquid Radioactive Waste from Nuclear Reactors]. *Radiokhimiya — Radiochemistry,* 2016, vol. 58, no. 1, pp. 67—70. DOI: 10.1134/S1066362216010112.
15. Ustinov O. A., Yaknin S. A., Voskresenskaya Y. A. Rutenij v tekhnologii osteklovyvaniya radioaktivnyh othodov (obzor nauchno-tekhnicheskoj informacii) [Ruthenium in radioactive waste vitrification technology (scientific and technical information overview)]. *Radiokhimiya — Radiochemistry,* 2021, vol. 63, no. 3, pp. 213—219. DOI: 10.31857/S0033831121010023.
16. Karankova V. B., Radkevich A. V., Voronik N. I. Povedeniye radionuklida ^{106}Ru v vodnykh rastvorakh pri tsentrifugirovanii, ul'trafil'tratsii i ionnom obmene [Radionuclide ^{106}Ru behavior in aqueous solutions by ion exchange, ultrafiltration, and centrifugation methods]. *Vestsi Natsyyanal'nay akadehmii navuk Belarusi. Seryya khimichnykh navuk — Proceedings of the National Academy of Sciences of Belarus, Chemical Series,* 2021, vol. 57, no. 3, pp. 331—339. DOI: 10.29235/1561-8331-2021-57-3-331-339.
17. Karankova V., Radkevich A., Torapava V. et al. Influence of Iron(III) Hydroxo Forms and Boric Acid on the State of Ruthenium-106 in Aqueous Solutions. *Radiochemistry,* 2024, vol. 66, no. 4, pp. 416—424.
18. Karankova V., Radkevich A., Varonik N. Effect of boric acid on 106Ru radionuclide speciation in aqueous solution. *J. Radioanal. Nucl. Chem.,* 2023, vol. 332, no. 11, pp. 4561—4566. DOI: 10.1007/s10967-023-09158-y.
19. Schäfer A. I., Mauch R., Waite T. D. et al. Charge Effects in the Fractionation of Natural Organics Using Ultrafiltration. *Environ. Sci. Technol.,* 2002, no. 36, pp. 2572—2580. DOI: 10.1021/es0016708.
20. Gigiyenicheskiy normativ "Kriterii otsenki radiatsionnogo vozdeystviya" [Hygienic standard Criteria for Radiation Exposure Assessment] : Resolution of the Council of Ministers of the Republic of Belarus No. 37 of January 25, 2021 (as amended by the Resolution of the Council of Ministers of the Republic of Belarus No. 829 of November 29, 2022). — URL: https://pravo.by/document/?guid=12551&p0=C22200829 (accessed on: 08.10.2024).

Information about the authors

Korenkova Olga Borisovna, Research Associate, the State Scientific Institution "The Joint Institute for Power and Nuclear Research — Sosny" of the National Academy of Sciences of Belarus (P.O. Box 119, Minsk, 220109, Republic of Belarus), e-mail: korenkova_olya@mail.ru.

Radkevich Artyom Valeryanovich, Head of the laboratory of "Forms of radionuclides (metal ions) in solutions", the State Scientific Institution "The Joint Institute for Power and Nuclear Research — Sosny" of the National Academy of Sciences of Belarus (P.O. Box 119, Minsk, 220109, Republic of Belarus), e-mail: radkevich@sosny.bas-net.by.

Toropova Valentina Vladimirovna, Senior Researcher, the State Scientific Institution "The Joint Institute for Power and Nuclear Research — Sosny" of the National Academy of Sciences of Belarus (P.O. Box 119, Minsk, 220109, Republic of Belarus), e-mail: vtoropova@sosny.bas-net.by.

Bibliographic description

Korenkova O. B., Radkevich A. V., Toropova V. V. Studying the Efficiency of Model Liquid Radioactive Waste Treatment from Ruthenium Radionuclides by Sorption, Membrane and Precipitation Methods. *Radioactive Waste,* 2025, no. 1 (30), pp. 6—13. DOI: 10.25283/2587-9707-2025-1-6-13. (In Russian).