

CHALMERS



Tvärströms membranfiltrering av radioaktivt avfallsvatten

- för separation av radioaktiva nuklider från bor

Examensarbete inom högskoleingenjörsprogrammet Kemiteknik

MALIN SELANDER

Institutionen för Kemi- och bioteknik
Avdelningen för Kemiteknik
CHALMERS TEKNISKA HÖGSKOLA
Göteborg, Sverige, 2013

Tvärströms membranfiltrering av radioaktivt avfallsvatten
- för separation av radioaktiva nuklider från bor

Malin Selander

© MALIN SELANDER, 2013.

Institutionen för Kemi- och bioteknik
Chalmers Tekniska Högskola
SE-412 96 Göteborg
Sverige
Telefon + 46 (0)31-772 1000

Institutionen för Kemi- och bioteknik
Göteborg, Sweden 2013

Förord

Denna uppsats är ett resultat av ett examensarbete som genomförts på uppdrag av Ringhals AB. Examensarbetet är sista delen på en utbildning i kemiteknik, om 120 poäng, vid Chalmers tekniska högskola. Arbetet genomfördes under Höst-/vårterminen 2009/2010 och omfattade 10 poäng.

Vill här ta tillfället i akt att tacka alla som hjälpt mig under arbetets gång. Ett stort tack till personalen vid Ringhals AB på avdelningarna för kemi, R2C, samt avfallsavdelningen.

Vill speciellt tacka några personer som gett mig möjlighet att göra detta examensarbete samt delat med sig av sina erfarenheter samt gett stöd under arbetsprocessen.

- Bernt Bengtsson
- Pernilla Svanberg
- Anna-Kajsa Andersson
- Anders Höglund
- Carl-Henrik Hansson, Nordcap Membrane Consulting

Vill även rikta ett tack till examiner Gunnar Eriksson för handledning vid rapportens utformande.

Sammanfattning

Ringhals kärnkraftverk producerar liksom alla kärnkraftverk en viss mängd aktivt spill vatten. Detta måste renas från radioaktivitet och andra föroreningar. På Ringhals sker detta bland annat med hjälp av genomflödesfilter och jonbytare. Ibland krävs även flockning och eventuellt kommer en indunstare att tas i drift. I detta examensarbete användes en pilotanläggning för tvärströms filtrering för att utvärdera fyra olika membraner, med avseende dess förmåga att separera radioaktivitet från borsyra i spill vattnet. Vid Ringhals har membranfiltrering har tidigare utprovats på ”kemiskt rent” processvatten från PWR. Då erhöles ett gott resultat vid separation mellan radioaktiva nuklider och borsyra. Andra typer av membran har utprovats i denna studie för vatten med mer varierande och högre halter av kemiska ämnen.

Testerna utfördes så att membranelement placerades i pilotanläggningen för filtrering och kopplades upp mot en feedtank med 200 liter testvattnen. Under varje test hölls fluxet omkring 15-16 LMH, koncentratet återfördes till feedtanken och permeatet spilldes. Under varje försök togs tre provomgångar togs ut. Totalt testades fyra membran med följande egenskaper. Det tätaste membranet var ett omvänd osmosmembran, det näst tätaste ett membran med god avskiljning för bivalenta salter och en porstorlek på 300-400 Da. Det tredje membranet verkade inom nanofiltreringsområdet och höll storleksordningen 1000 Da. Det membranet var ett ultramembran på 25000 Da. Som testvätska användes vid försöken två var olika avfallsvatten. Det ena höll en medelhög aktivitet omkring E3, en borhalt på över 250 ppm, en låg ledningsförmåga och låg TOC halt. Då detta vatten filtrerades över membranen åstadkoms, jämfört med de övriga försöken, den högsta total nuklid avskiljning. Det andra vattnet höll låg aktivitet, en borhalt under 20 ppm och hög ledningsförmåga och TOC halt. Vatten B var även synbart grumligt och skummade i feedtanken vid luftomblandning, något som kan tyda på att det fanns kolloider/tensider i lösningen. Av denna anledning testades vatten B först på varje membran.

Omvänd osmosmembranet hade en önskvärd hög aktivitetsavskiljning men tyvärr även en hög avskiljning för bor. Det motsvarade därför inte projektönskemålet. Det näst porösaste membranet på 300-400 Da respektive membranet på 1000 Da visade sig hålla en relativt hög total aktivitets avskiljning i förhållande till boravskiljningen, något som var önskvärt. Dock verkade membranet på 300-400 Da i dessa försök generera en avskiljning för nukliden Co-58 som varierade med vätskans sammansättning. Membranet kunde därför inte anses nå målet om varierande vattenkvalitet. Det näst porösaste membranet, i storleksordningen 1000 Da, uppvisade en något högre boravskiljning men en mellan nukliderna ganska jämn avskiljning. Detta membran uppvisar ungefär hälften så stor ytdosrat jämfört med föregående membran. Det fjärde testade membranet höll en porositet på ca 25000 Da och gav därmed en lägre nuklidavskiljning än övriga membran och samtidigt en relativt hög boravskiljning, vilket gjorde att det inte matchade projektönskemålet.

I denna studie var det egentligen inget av membranerna som gav önskad avskiljning för radioaktiva nuklider, och inte heller tillräckligt låg borhalt. Arbetet är att betrakta som en förstudie och en möjlig skulle kunna vara att mer ingående studera membran som storleksmässigt befinner sig i området 300-1000 Da.

Innehållsförteckning

1. Inledning.....	1
1.1. Bakgrund.....	1
1.2. Syfte.....	2
2. Teori	3
2.1. Kärnkraft.....	3
2.1.1. PWR, Tryckvattenreaktor	3
2.1.2. BWR, Kokvattenreaktor	4
2.1.3. Aktivt avfallsvatten	4
2.2. Membranfiltrering.....	5
2.2.1. Tvärströmsfiltrering.....	6
2.2.2. Membranmaterial	6
2.2.3. Spiral-Wound.....	6
2.2.4. Omvänd osmosfiltrering	7
2.2.5. Nanofiltrering.....	8
2.2.6. Ultrafiltrering.....	8
2.3. Transport i membran.....	9
2.3.1. Koncentrationspolarisation och fouling	9
3. Instrument.....	11
3.1. Membrananläggningen.....	11
3.1.1. Membranelement	11
3.2. Gammadetektor.....	11
3.3. Bortitrator.....	12
3.4. Konduktivitetsmätare.....	12
3.5. pH-mätare.....	12
3.6. TOC-analys.....	12
4. Metod	13
4.1. Fallbeskrivning.....	13
4.2. Filterbyte och start.....	13
4.3. Drift.....	14
4.4. Vattenföring.....	14
4.5. Tvätt.....	15
4.6. Provuttag.....	15
4.7. Analys.....	15
5. Resultat och diskussioner	16
5.1. Sammansättning på testvätskan.....	16
5.2. Utvärdering av membran.....	18
5.3. Jämförelse av filtrens avskiljning för vatten A och vatten B.....	19
5.4. Nuklider under detektionsgräns för något flöde – endast för vatten A.....	22
5.4.1. Sb-125.....	23
5.4.2. Cs-137.....	23
5.4.3. Ag-110m.....	25
5.5. Jämförelse mellan provomgång 1, 2 och 3.....	25
5.6. Massbalans.....	28
5.6.1. Ytdosrat för vatten A.....	31
5.7. Iakttagelser.....	33
5.8. Felkällor.....	34
6. Slutsatser	36
Referenser.....	37

BILAGOR

Bilaga 1. Beräkningar

Bilaga 2. Jämförelse mellan membranen med avseende på avskiljningen för vatten A.

Bilaga 3. Jämförelse mellan membranen med avseende på avskiljningen för vatten B

Bilaga 4. Jämförelse mellan provomgång 1, 2 och 3 för vatten A respektive vatten B.

Bilaga 5. Diagram och tabell över massbalansen för vatten A.

Bilaga 6. Diagram och tabell över massbalansen för vatten B.

Bilaga 7. Produktinformationen för de membran som användes i studien

1. Inledning

1.1. Bakgrund

Avfallsvatten från diverse utsläppsbackar, dräneringskärl och golvbrunnar i Ringhals kärnkraftsverk uppsamlas i avfallsvattentankar och processas idag via genomflödesfilter och jonbytesteknik med ett varierande resultat före utsläpp via kylvattenkanalen till havet. Filter och jonbytare gjuts för slutförvar in i betongkokiller. Ringhals planerar även att vid årsskiftet ta i drift en äldre indunstare efter krav från miljödomstolen för samma ändamål. Indunstning beräknas då ske till ett koncentrat med en torrhalt på 2-5% TS (torrhalt i viktprocent) som sedan direkt eller efter ytterligare avvattning gjuts in med betong eller torkas för slutförvaring.

Ett grundläggande problem med indunstningstekniken är att alla salter, komplexbildare och organiska ämnen som kan förekomma i avfallsvatten anrikas i koncentratet tillsammans med radioaktivitet, detta ger upphov till efterföljande problem vid ingjutning med betong för slutförvaring. Komplexbildare utgör ett hot som bärare av aktivitet till grundvattnet vid eventuella framtida läckage från slutförvaret (>100 00 år) och salter kan komma att försämra hållfastheten och livslängden för betongkonstruktionen. Ett specifikt problem är borsyra som är vanligt förekommande i avfallsvatten från de tre blocken med tryckvattenreaktorer (PWR) på Ringhals.

Ringhals planerar att använda en elektrokemisk cell som producerar fria radikaler för att bryta ner komplexbildare och organiska ämnen till NO_x och CO_x i indunstarkoncentratet innan det gjuts med betong medan separation av salter från aktiviteten i koncentratet är betydligt svårare att lösa.

Ringhals tror att tvärströms membranfiltrering skulle kunna ersätta och/eller effektivisera processen med genomflödesfilter och jonbytare men framförallt ersätta och komplettera indunstaren vid behandling av avfallsvatten från PWR, detta genom att anrika aktivitet i koncentrat med mindre innehåll av kemiska ämnen både effektivare/snabbare och med lägre energiförbrukning.

Membranfiltrering har tidigare utprovats på ”kemiskt rent” processvatten från PWR med gott resultat på separation mellan aktivitet och borsyra, andra typer av membran behöver nu utprovas för vatten med större och varierande innehåll av andra kemikalier.

Primära problemet för Ringhals är därför att separera mesta möjliga aktivitet från kemiskt smutsigt avfallsvatten och hitta mest lämpliga membranfilter för detta. Det renade vattnet kommer oberoende av separationsprocess att endera släppas ut till recipienten via Ringhals kylvattenkanal (kan innehålla salter etc.) eller återvinnas till processen (krav på rent från salter). Vid utsläpp eftersträvas på sikt att uppnå aktivitetsnivåer <10 Bq/kg.

En framtida membranläggning skall därför vara robust och flexibel i det avseendet att den kan hantera olika avfallsvatten med stora kemiska variationer vad gäller pH, ledningsförmåga, aktivitet och förekomst av salter och tvättmedel. Avvägning måste ske kontinuerligt vad gäller driftsätt för att anpassa avskiljningsgrad av aktivitet i förhållande till salter för att klara kraven på slutförvar.

1.2. Syfte

Syftet med examensarbetet är att i en pilotanläggning för tvärströmsfiltrering utvärdera några membranfilter med olika avskiljningsförmåga och porositet. Att utvärdera deras förmåga att separera radioaktiva ämnen från i vattnet förekommande kemikalier, med tonvikt på borsyra. Förhoppningen är att finna underlag till att tekniken klarar av att separera radioaktiva nuklider från bor i önskad omfattning samt att se om separationsgraden varierar med koncentrationen.

2. Teori

För att sätta in projektet i sitt sammanhang redovisas först lite bakgrunds teori om kärnkraft. Därefter behandlas teorin kring de membran som använts i studien.

2.1. Kärnkraft

I kärnkraftsverkets reaktor finns bränsle i form av urandioxid. Då atomerna i bränslet klyvs avges rörelseenergi i form av friktionsvärme som tas upp av det omgivande kyl-/reaktorvattnet som värms upp. Bränslet är inkapslat i bränslestavar för att hindra klyvningsprodukter från att komma ut i kylvattnet. Däremot tar sig neutroner och joniserande strålning förbi inkapslingen och kan aktivera korrosionsprodukter i vattnet. Från reaktorn förs det uppvärmda vattnet vidare till en ånggenerator eller direkt till turbinen, beroende på om det är en tryckvattenreaktor eller en kokvattenreaktor. I turbinen omvandlas värmeenergin ur vattenången till mekanisk energi och slutligen till elektricitet med hjälp av generatorer. Vattnet skickas till kondensorn för att kylas innan det cirkuleras tillbaka till reaktorn. I kondensorn är processvatten skilt från det kylande havsvattnet.

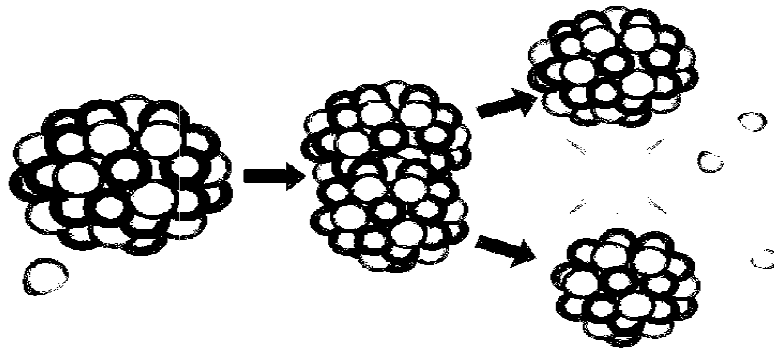


Fig 1. Kärnklyvning.

Figuren visar att då en neutron + en urankärna kolliderar bildas en ostabil uranisotop som endera sänder ut gammastrålning eller klyvs i två medeltunga kärnor. Bildas två medeltunga kärnor sänds det ut 2 till 3 nya neutroner samt energi. Detta möjliggör förutsättningarna för en nukleär kedjereaktion. [5]

2.1.1. PWR, Tryckvattenreaktor

Tryckvattenreaktorn har en aktiv primärsida som omfattar reaktorn och ånggeneratorernas tubsida. Sekundärsidan består av ånggeneratorns mantelsida, turbinen och kondensorn. I tryckvattenreaktorn hålls vattnet i reaktorsystemet under så stort tryck att det inte kan börja koka. Vattnet i reaktorn har flera funktioner; det fungerar som moderator och sänker neutronernas hastighet, det transporterar bort värmen och det innehåller kemikalier som reglerar effekten genom att absorbera neutroner. Till kylvattnet sätts även kemikalier som motverkar korrosion för att hålla nere mängden strålningsaktiverade produkter. [5]

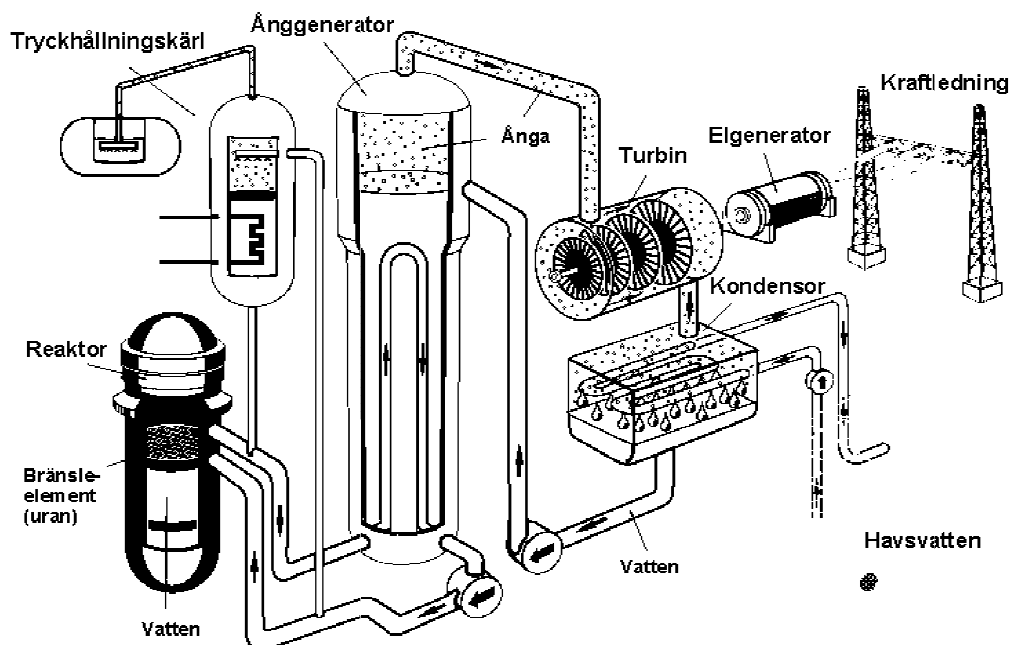


Fig 2. Schematisk bild av en tryckvattenreaktor med omgivande system. [5]

2.1.2. BWR, Kokvattenreaktor

Precis som namnet kokvattenreaktor antyder så kokas vattnet, till skillnad från i en PWR, direkt i reaktorn och ångan leds vidare genom turbinen och till kondensorn för att kylas. Innan vattnet cirkuleras tillbaka till reaktorn passerar det reaktorvattenreningen. [5]

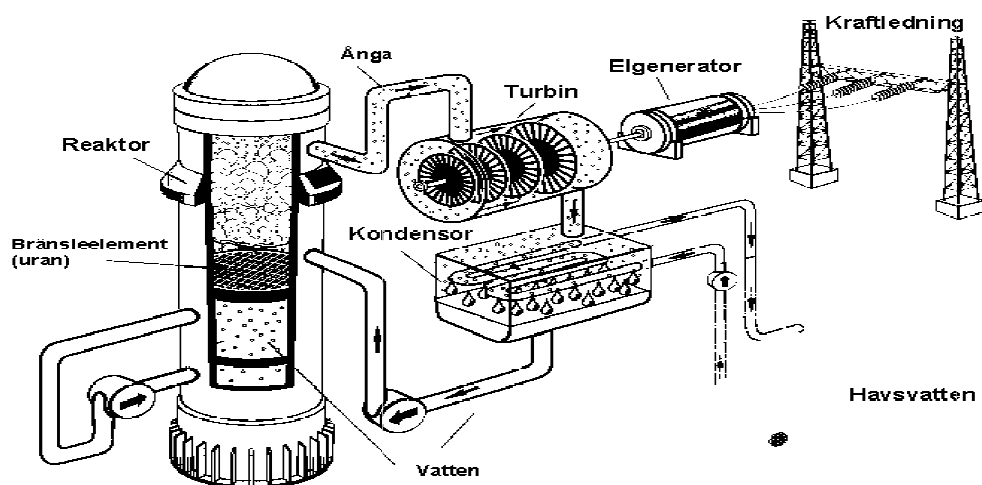


Fig 3. Schematisk bild av en kokvattenreaktor med omgivande system. [5]

2.1.3. Aktivt avfallsvatten

I kärnkraftsverkets aktiva delar, där processvattnet kommer i kontakt med reaktorn, är det av yttersta vikt att mängden korrosions- och erosionsprodukter hålls nere för att förhindra aktivitetssupplemang i processvattnet. När korrosionsprodukter transporteras med kylvattnet till reaktorn blir de oundvikligen bestrålade med neutroner och kan anta formen av instabila isotoper. För att göra sig av med överskottsenergin och bli stabilare sönderfaller isotopen och sänder ut joniserande strålning..

Nedanstående bild beskriver lite var i en BWR-anläggning aktiviteten byggs upp och var den så småningom hamnar. Reaktorvattenrening består vanligen av jonbytare och renar vattnet som cirkulerar i reaktorprocessen. [5]

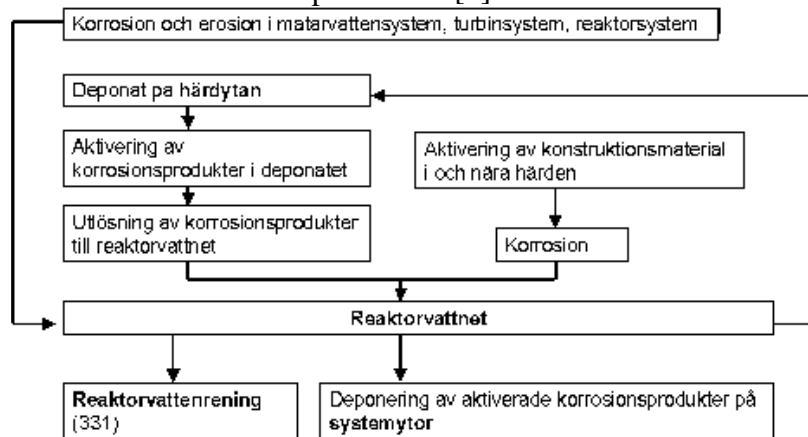


Fig 4. Visar var i anläggningen aktivitet byggs upp och var den hamnar så småningom. [5]
Uttag längs vägen ger aktivt spillvatten.

Längs det aktiva processvattnets väg kan punkter för uttag t.ex. provuttag och dränage av vatten finnas. Det aktiva vattnet som tas ut ur processen kallas spillvatten och sådant produceras på alla kärnkraftverk. Från verkets aktiva sida kommer spillvatten till exempel från vaskar och golvdränage vid provtagning eller andra arbeten. Det kan ha blandats med annan smuts från golv eller med kemikalier därför innehåller det för höga halter av föroreningar och kan inte återanvändas i processen. Istället leds spillvattnet till avfallstankar för att renas från aktivitet innan det släppas ut i recipienten. På Ringhals har man ett system 342 som tar hand om allt flytande och halvfast spillvatten från anläggningens aktiva delar.

2.2. Membranfiltrering

Membranfiltreringstekniken har varit känd i över hundra år. De allra tidigaste membranstudierna handlade om omvänd osmos där vattenmolekyler går från en lösning med låg saltkoncentration genom ett membran till lösningen med den högre saltkoncentrationen. Drivkraften är koncentrationsdifferensen, eller den osmotiska skillnaden som det även kallas. På 60- talet började omvänd osmosmembran användas till att dricksvatten [1], därefter följde användningen av ultramembranfilter. Till skillnad från osmos är den drivande kraften hos RO (omvänd osmosmembran), ultra- och mikromembran filtrering det pålagda tryck som krävs för att övervinna det osmotiska trycket [2].

Sedan 60- talet har utvecklingen av membranfiltreringstekniken gått stadigt framåt och tidigt sågs de fördelar som kan finnas i att byta ut traditionella separationsteknikerna mot membranteknik. Till exempel är de kompakta, kan vara lätta att hantera och kan bidra till kostnadsbesparingar. Men då krävs ett för ändamålet lämpligt membran och det är inte alltid så lätt att finna. Vid tiden för ultramembranens industriella genombrott var det många som trodde att detta var framtidens reningsprocess för industrins spillvatten, något som visade sig vara för kostsamt. Däremot används ultrafiltrering flitigt då det finns specifika reningsönskemål och det är mindre volymer ska renas. Några industrikategorier inom vilka membranteknik etablerat sig är bryggerier, petrokemin, miljöområdet, elektronik, pappers-, läkemedels- och livsmedelsindustri.

2.2.1. Tvärströmsfiltrering

Syftet med tvärströmsfiltrering är att förhindra bildandet av en filterkaka. Filtermediet är vanligen ett membran, men fluiden kan vara en vätska eller gas eller en blandning däremellan. Lösningen, feeden skickas över filtret med en hög hastighet, gärna ett turbulent flöde, för att på så sätt erhålla skjuvkrafter nära filtermediet som förhindrar att stora mängder partiklar avsätts på filtret. Skjuvkrafter åstadkoms även genom att utrustningen utformas så att en hastighetsdifferens bildas mellan lösningen och filtermediet. [3] Lösningens sammansättning påverkar dess tendens att bilda en filterkaka. Stora partiklar bildar lättare filterkakor än små partiklar och ju högre feedlösningens koncentration är desto lägre flux kan hållas och med ett lägre flux är risken för avsättning på filtret större. Vid tvärströmsfiltrering bildas ofta en koncentrationsgradient på feedsidan närmast membranet, men ingen på permeatsidan.

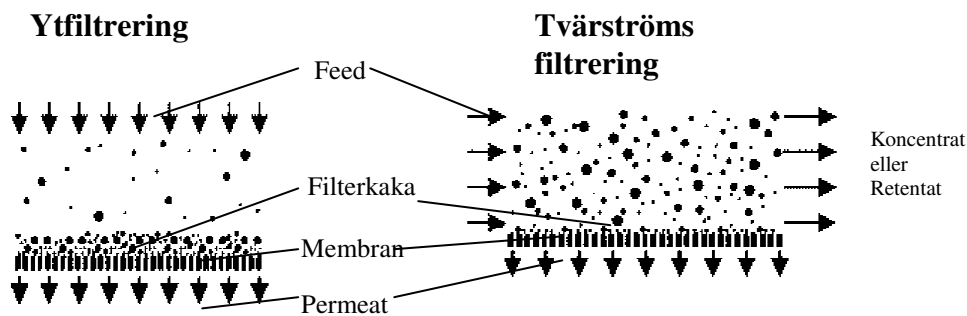


Fig 5. Figuren visar hur vätskan rör sig vid tvärströmsfiltrering jämfört med ytfiltrering.

2.2.2. Membranmaterial

Majoriteten av alla membran tillverkas av naturliga eller syntetiska polymerer, dessa kan vara organiska eller oorganiska. [2] Ett vanligt membranmaterial är tunnfilmkomposit ett annat är polysulfon. Båda uppkom på 60-70 talet men har med tiden fått sällskap av många andra material. Karaktäristiskt för kompositmembranen är att membran lagren är gjorda av olika polymerer och de kan hålla höga flux därför används de ofta till omvänd osmos- och ultrafilter membran.

Enligt Baker [1] kan membranen delas in i två olika grupper, anisotropa membran och isotropa membran. De anisotropa membranerna är oftast asymmetriska eller tunnfilmsmembran, alltså relativt tunna membran uppbyggda av ett tunt selektivt lager längst ut mot feeden och under det, mot permeatsidan, sitter ett tjockare stödlager med större porer och fungerar mest som mekanisk transport. Denna typ av uppbyggnad bidrar till att man hos tunnfilmsmembranen kan hålla ett högt flux. Omvänd osmos och ultra membran är ofta anisotropa. [1]

Isotropa membran kan vara mikroporösa eller icke porösa. De mikroporösa liknar vanliga filter i det avseendet att avskiljningen beror på partikelfördelningen och på att partiklar större än den största poren ska inte ta sig genom membranet. I de icke-porösa/täta membranerna beror, liksom för anisotropa och omvänd osmos membran, ett ämnes eller partikels separation på transporthastigheten genom membranet, som i sin tur beror på dess diffusivitet och löslighet i membranet [1].

2.2.3. Spiral-Wound

Det finns ett antal olika membran till exempel tunnfilm, tubulära, hollow fiber och monolitic. Dessa installeras i lämplig membranmodul som då bland annat kan få formen av tubulär, plate-and- frame eller spiral- wound. Spiral- wound är en av de moduler som används mest

vid omvänd osmos och ultrafiltrering. För att membranerna ska ta mindre plats rullar man ihop dem. Ofta föredras korta membranblad men att flera stycken membranblad rullas tillsammans, istället för ett långt membranblad rullat fler varv. På det sättet blir tryckfallet i permeatets samlingskanal mindre eftersom permeatet går en kortare väg, i jämförelse med om ett enda blad stod för samma yta. [1]. Då spiral-woundmodulens uppbyggnad består av flera tunnfilmers läggs membranbladen ihop men mellan dem sätts en spacer in. Sedan lindas alltihop runt en perforerad uppsamlingstub. Detta bildar membranmodulen som sätts in i tryckkapseln [2]. Spacern hjälper till att skapa ett turbulent flöde vilket minskar avsättningen på membranet. [7].

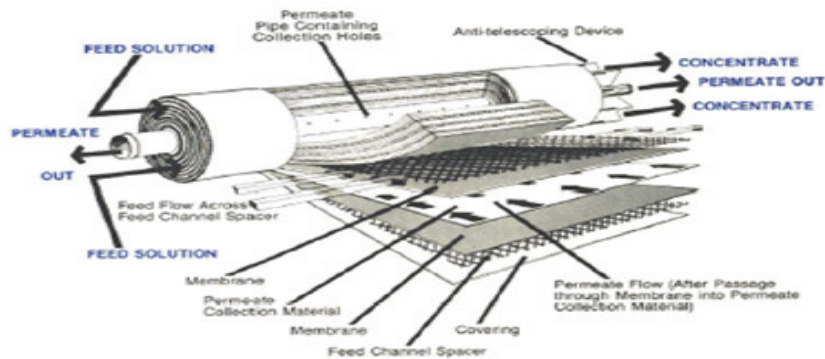


Fig 6. Figuren visar hur ett spiral-woundmembranelement i genomskärning och hur fluiden strömmar. [6]

Genom membranmodulen flödar feeden axiellt i kanaler som bildats av att den porösa spacern ligger mellan de båda membranfilterbladen. Permeatet vill gå mot centrum och tar sig in igenom membranet till den centrerade perforerade uppsamlingstuben, detta ger ett tryckfall [2]. Fördelar med spiral-wound är att de är kompakta, har liten flödeskanal vilket ger liten uppehållsvolym och är ganska billiga. Nackdelar är att de kan vara svårt att rengöra dem och sker ett membranbrott måste hela membranet bytas ut. [4]

2.2.4. Omvänd osmosfiltrering

En vanlig applikation för omvänd osmosmembran är avsaltning av havs- eller bräckt vatten, där membrantechniken är ett bra alternativ till indunstning. Man brukar dela in omvänd osmosmembran i tre kategorier där den ena är som den som nämnts ovan och hanterar 0,5-5 viktsprocent salt i lösningen. Den andra är lågtrycksnanofiltrering som brukar användas vid 200-5000 ppm salt och den tredje typen är så kallade hyperfiltreringsmembran som används för att separera lösta ämnen från organiska lösningsmedel eller lösningar. [1]

Omvänd osmosmembran har inga synliga porer, istället passerar molekylerna igenom membranet då det uppstår passager pga. termiska rörelser i membranmaterialet (vanligen polymerkedjor). Allt som har en temperatur har en viss rörelse, molekylär fluktuation. Omvänd osmosmembran sägas ha en pordiameter omkring 2-5 Å, tillräckligt små för att motsvara materialets termiska rörelse. För att realisera storleken till något kan nämnas att en vattenmolekyl har diametern 2 Å, natrium 3,7 Å och influensavirus ca 1000 Å [1]. Kategoriskt för omvänd osmos membran är dess goda förmåga att avskilja natriumklorid med en avskiljning på >90 % [4]. Det innebär ofta en lika eller högre avskiljning för andra salter. Förutom porernas storlek finns andra faktorer som kan påverka separationsresultatet. Så som

molekylformen, hur väl ett ämne löser sig i membranet och dess rörlighet i membranet, men även om det bildas filmer eller igensättning på eller i membranet [1].

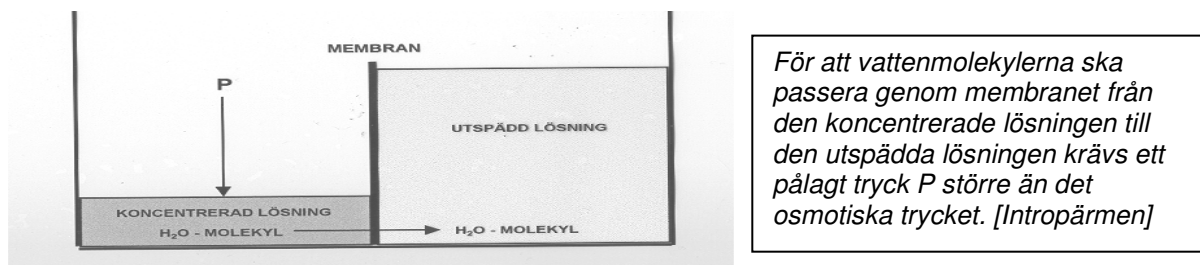


Fig 7. I figuren visas principen för omvänd osmos genom membran. [5]

Vid osmos får koncentrationsdifferensen mellan lösningarna på båda sidor membranet molekylerna att passera från sidan med den lägsta koncentration till sidan med den högsta koncentrationen. När omvänd osmos sker måste koncentrationsdifferensen (osmotiska trycket) övervinnas för att uppnå en differens över membranet som tvingar molekyler att passera från feedsidan till permeatsidan och inte tvärtom. För detta krävs ett pålagt tryck större än det osmotiska trycket. Inte bara omvänd osmos är en tryckdriven process utan även nano-, ultra- och mikromembranfiltreringsprocesser är tryckdrivna.[4]

2.2.5. Nanofiltrering

Nanofiltreringsmembran används ofta för att filtrera bort låga nivåer av ämnen i ett i övrigt ganska rent vatten, t.ex. för att filtrera bort jordbruks föroreningar ur dricksvatten. Precis som omvänd osmos är nanofiltreringsmembran tryckdrivna processer.

Nanofiltreringsmembran kan ses som en intermediär till omvänd osmos och ultrafiltreringsmembran och har en pordiameter på ca 5-10Å. Det finns nanomembran som är oladdade, för dessa är storleken på molekylerna avgörande för avskiljningen. Men det finns även nanofiltreringsmembran där separationen ser olika ut beroende på förekomsten av lösta salter. Dessa membran karaktäriseras av att de har en syra eller basgrupp på polymeren [1]. För dessa påverkar förekomsten av andra lösta salter hur separationen ser ut. Oladdade föreningar avskiljs beroende på storlek medan joner avskiljs förutom pga. storlek även med avseende på den elektrostatiske interaktionen mellan jon och membran. Ju högre valens jonen har desto större repulsion och desto större avskiljning [4]. Detta kallas Donnan exclusion effect och blir mer påtaglig om man har en mycket blandad saltlösning. [1]

En vanlig retention för natriumklorid med nanofiltreringsmembran är 20-80 % [1]. Det stora spannet beror bland annat på lösningens sammansättning och att när salt koncentrationen ökar, minskar avskiljningen för dessa membran. Retentionen är vanligen god till och med 1000-2000ppm natriumklorid [4]. Nanofiltreringsmembran har ofta hög retention för lösta organiska material och divalenta joner [1].

2.2.6. Ultrafiltrering

De första ultrafiltren användes under lång tid endast i laboratorier innan de på 70- talet, bland annat på grund av ekonomiska fördelar, fick industriellt fäste. Många av de membranmaterial som då utvecklades används än idag, även om nya till exempel värmetåliga keramiska material och membran som bättre hanterar fouling (tidsberoende beläggning) har kommit in på marknaden. Man trodde även att denna typ av membran skulle få stor genomslagskraft som reningsteknik för industrins spillvatten, men ultrafiltrering visade sig vara för kostsam för detta. Däremot används den då man har specifika reningsönskemål och mindre

vattenvolymer. Kostnaden varierar beroende på vad som ska filtreras och vilka volymer plus att i jämförelse med omvändosmosmembran är standardiseringen liten. [1]

Ultrafiltren, liksom mikrofiltren, har mycket små porer i membranet och separerar främst genom att stöta bort ämnen större än dess största por. Ämnen som i princip alltid håller hög avskiljning med ultramembranfilter är biomolekyler, polymerer, socker och kolloider. En vanlig pordiameter för dessa filter är 12-1000Å. Drivkraften för separationen är, liksom för ovan nämnda membran, en tryckdifferens mellan membranets båda sidor [1].

Ultrafiltrens filtreringsförmåga kategoriseras som Cutoff och anges i Dalton (Da). Det Cutoff-värdet har bestämts experimentellt vid specifika förhållanden vilka brukar anges på produktbladet. Cutoff definieras som den minsta molekyylvikten för vilken membranet åtminstone avskiljer 90 % [2]. I ett annat försök med andra driftparametrar och lösningar betyder detta INTE att alla molekyler med en molekylvikt högre än denna sällas bort. Cutoff är mer av ett riktvärde. Saker som påverkar cutoff-värdet, eller egentligen avskiljningen, kan till exempel vara molekylen form. En linjär molekyl har vanligen lättare att ta sig igenom ett membran[1]. Andra faktorer är i vilket media molekylen helst löser sig och dessutom kan lösningens pH påverka molekylen jonformen Neutrala molekyler är mer flexibla och påverkas mindre av repulsions- eller attraktionskrafter. Även bildandet av filmer eller igensättning på eller i membranet påverkar kvarhållningen av molekyler och partiklar.

2.3. Transport i membran

Transporten av ämnen genom membran kan hindras på olika sätt beroende på membranets uppbyggnad och den fluid som filtreras. Ett sätt som membranet kan påverka partikeln på är genom molekyllär sällning. Porerna i membranytan är för små för att partikeln ska kunna passera. Det är på detta sätt som vanlig filtrering fungerar. Andra sätt som molekylen kan hindras från att passera igenom membranet kan vara att den fastnar i membranet genom endera sällning eller adsorption. Membranmaterialet har även en viss laddning som kan interagera med molekylen potential [1]. Sätt som molekyler och partiklar kan ta sig igenom membranet på är förenklat sagt diffusion och tryckdrivet konvektionsflöde.

Retentionen det vill säga hur väl en molekyl hålls tillbaka av ett membran påverkas av lösningens pH, temperatur, differenstryck och laddningen som ofta beror på mängden kolloider och tensider. Vätskors generella sammansättning påverkar membranets retention [8].

2.3.1. Koncentrationspolarisation och fouling

Koncentrationspolarisering kan ge stor påverkan membranets prestation. Det kan drabba omvänd osmosmembran men är vanligen ett större problem för ultrafiltrering, där moduldesignen anpassas med avseende att kontrollera koncentrationspolariseringen. Koncentrationspolarisering sker vanligen vid de första sekunderna av membranets användning och märks genom att fluxet faller för en kort stund, några sekunder och sedan stabiliserar sig [1]. Vad som skett är att en beläggning bildats på membranet, som ett extra skinn där några ämnen ur lösningen ackumuleras på membranytan. Det är detta som får fluxet att minska vid starten och kan även bidra till fouling vilket kan påverka avskiljningen. För att minska koncentrationspolariseringen kan ett lägre vattenflux och högre massöverföringskoefficienter hjälpa [2].

Även fouling är en beläggning, men till skillnad från konzentrationsspolarisering, är den tidsberoende. Fouling kan även ske mellan membranets porer och är då vanligen irreversibel, medan ytfouling ofta kan tvättas bort [1]. Båda beläggningsfenomenen ger dock minskat flux, d.v.s. minskat permeatflöde. För att undvika fouling bör feeden alltid förbehandlas för att minska mängden igensättande ämnen och partiklar. En lämplig förbehandling kan vara flockning, filtrering med ett grövre filter eller att tillsätta en kemikalie, ett anti-foulingmedel som ökar salternas löslighet [2]. Inuti membranet mellan membranlagren sitter ofta en spacer som ska hjälpa till att skapa turbulens och skjuvkrafter vid membranytan, något som försvårar bildandet av en beläggning [7].

3. Instrument

3.1. Membrananläggningen

I arbetet med att testa membran användes en membrananläggningen bestående av en vertikal plats för membranelementet, en tvätttank, pump och en digital enhet som styrde pumpen och var kopplad till tryckvakter och andra sensorer. Membrananläggningen kopplades upp mot en rostfri feedtank till vilken koncentratet cirkulerades tillbaka. Omrörning i feedtanken åstadkoms genom att industriluft bubblades ned i vattnet. Permeatet fördes till en spilltank. På anläggningen fanns bestämda provtagningspunkter för feed, koncentrat och permeat.

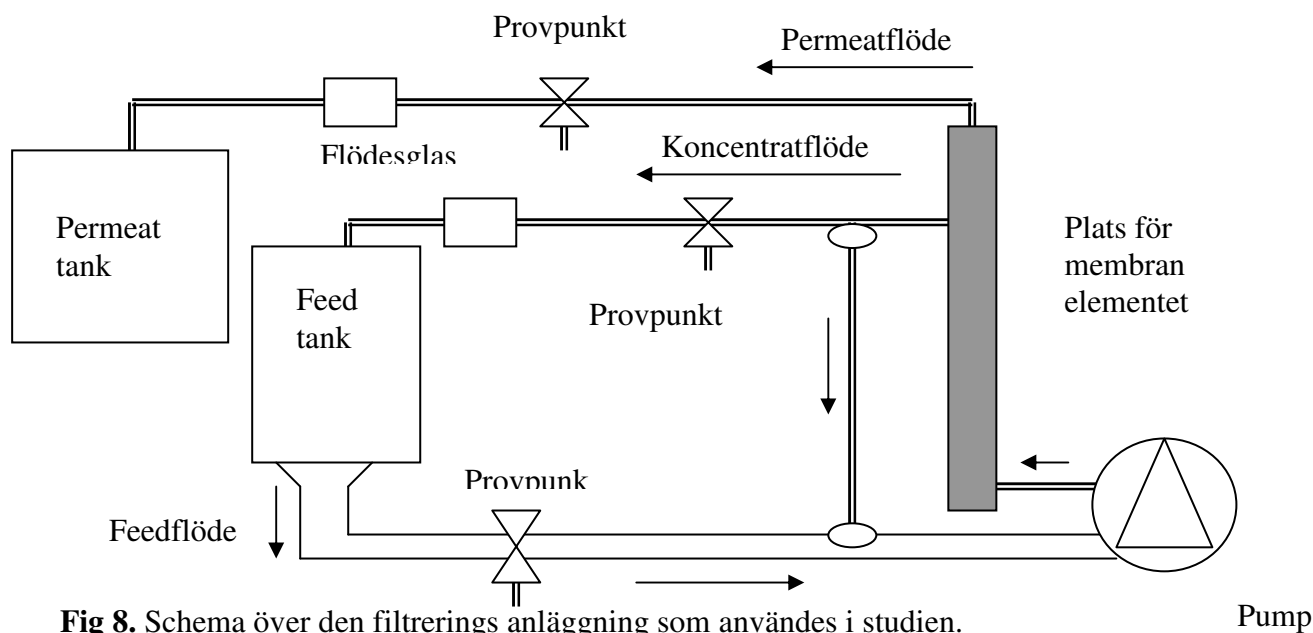


Fig 8. Schema över den filtrerings anläggning som användes i studien.

3.1.1. Membranelement

Fyra olika spiral-woundmembran De membran som i rapporten kallas F0 och F1 hade en membranarea på 2,5 m². Membranen som kallas F2 och F3 hade en membranarea på 1,6 m² och bestod av en annan typ av material än de två första.

Det membran som i rapporten kallas F0 är ett fluid systems TCF high rejection membran. Det är ett omvänt osmoselement med goda resultat för behandling av bräckt vatten. Den nominella natriumklorid rejektionen är vid specifika förhållanden 99,4%.

Membranet som kallas F1 är ett fluid systems TFC- SR 2 element, ett selektiv rejektions element med en magnesiumsulfat rejektion på 95 % vid specifika förhållanden. Membranet är utformat för separation av komponenter med en högre molekylvikt, (>300-400 Da) och flervalenta joner.

Det nanofiltrerings membran som här i rapporten kallas F2 är ett selRO, MPS-36 pH stabilt membran med god temperaturstabilitet. Elementet har en molekylvikts Cutoff på 1000 Da.

Det porösaste membranet i studien kallas F3 och är ett selRO, MPS-U20P- pH stabilt ultrafiltreringsmembran med god temperaturstabilitet. Elementet har en molekylvikts Cutoff på 25000 Da.

3.2. Gammadetektor

För analysen av radioaktivitet som förekomst av gammastrålande nuklider i proverna användes en gammadetektor av typen kvävekyld germaniumdetektor. Detektorn är en så kallad solid state halvledande detektor där det fasta ämnet germanium fungerar som

detektionsmedia för joniserande strålning. I detektorn finns förenklat beskrivet två poler. Den ena kallas valensband och representerar låga energinivåer, den andra kallas konduktionsbandet och omfattar höga energinivåer. Mellan dessa två band kan man tänka sig att det finns ett område utan energinivåer s.k. förbiden gap. [9]

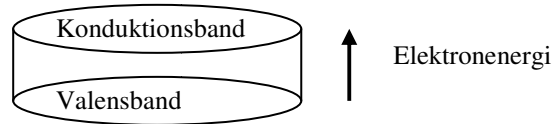


Fig 9. Visar hur elektronerna förflyttar sig i detektormaterialet då det bestrålas.

När strålningsenergi absorberas i detektionsmaterialet skapas ett elektronhålpar, ett positivt hål och en lösgjord exciterad elektron. Dessa rör sig genom detektorn mot vardera pol eller band [10]. Elektronerna flyttar sig från det s.k. valensbandet till konduktionsbandet vilket ger upphov till en ström som kan detekteras som en elektrisk signal vilken påvisar gammastrålning nuklider. För att hindra att elektroner förflyttar sig mellan banden på grund av termiskt genererad energi, kyles detektorn med flytande kväve till $-196\text{ }^{\circ}\text{C}$. [9]

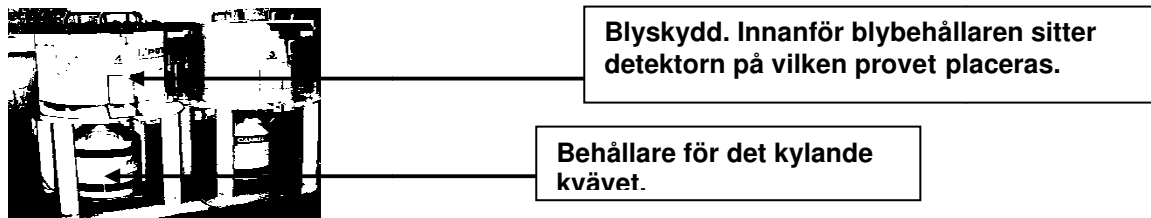


Fig 10. Detektor med sina kvävekärl och blyskydd.

3.3. Bortitrator

Förekomsten av bor analyserades med hjälp av en bortitrator av märket Mettler Toledo T70. Det är ett datorstyrt analysinstrument som utför ändpunkts-, ekvivalenspunkts- och pH-titreringar samt mäter pH/mV. Elektroden som användes var en pH elektrod DG 115-SC. Instrumentet hade säkra metoder för att mäta borhalter över 20 ppm.

3.4. Konduktivitetmätare

Ledningsförmågan mättes med en mobil konduktivitetmätare för området $0,01\text{--}500\text{ }\mu\text{S/cm}$, från ultrarent till naturliga vatten. Modell LWT LF 330

3.5. pH-mätare

Till pH mätning användes en Radiometer PHM 240

3.6. TOC-analys

Vid TOC-analys mäter man mängden totalt organiskt material. Beroende på lösningarnas TOC-halt användes i försöken två olika instrument. För $3\text{--}300\text{ mg/l}$ användes en spektrofotometer DR Lange XION 500, och för TOC-halter på $10\text{--}3000\text{ ppb}$ används en Wet oxidation TOC-analysator modell 1010..

4. Metod

Studien omfattar två olika testvätskor, två olika avfallsvatten. Dessa vätskor kallas för enkelhetens skull vatten A och vatten B. Vatten A kommer från Ringhals avdelning avfallets tank T47 och är aktivt men av relativt kemiskt ren natur. Detta vatten testades på 4 olika tvärströms membranfilter, läs mer om dessa under kapitel 3. Från Ringhals avdelning avfallets tank T31 kommer vatten B som just för detta fall höll ganska låg radioaktivitet och var kemiskt relativt smutsigt. Vatten B testades på 3 olika tvärströmsmembran.

4.1. Fallbeskrivning

Här anges de tvärströmsfiltermembran som testvätskorna filtrerades igenom. Testvätska A kom från T47 och vätska B från T31. Porstorleken (cutoff) redovisas enligt produktspecifikationen som Dalton-värden (Da). Utförligare information om filtren och dess klassifikation finns i avsnittet för Instrument.

F0A- står för omvänd osmosmembranet testat med vatten A

F1A- står för membranet på 300-400Da med bra retention för bivalenta salter, testat med vatten A

F2A- står för filtermembranet på 1000Da testat med vatten A

F3A- står för filtermembranet på 25000Da testat med vatten A

F1B- står för filtermembranet på 300-400Da med bra retention för bivalenta salter, testat med vatten B

F2B- står för filtermembranet på 1000Da testat med vatten B

F3B- står för filtermembranet på 25000Da testat med vatten B

Först installerades filter F1 i membranläggningen och testades med vatten B, därefter tvättades F1 med lut innan det testades med vatten A. Det andra membranet som testades var F0 men endast tillsammans med vatten A. Membran F2 testades med vatten B, tvättades och testades sedan med vatten A. Samma ordning användes för filter F3.

Att membranerna först testades med vatten B sedan med vatten A beror på att vatten B misstänktes innehålla ämnen med tvättmedelsfunktion. Om vattnen filtrerats i en annan ordning misstänktes att på filtret ansamlade ämnen skulle tvättas ur och kontaminera det lågaktiva testvattnet B.

4.2. Filterbyte och start

Det helt nya konserverade filtret monterades i membranläggningen. Därefter lakades membranet med 733-vatten* och tvättades med syra eller bas enligt produktspecifikationen.

Vid starten av ett test av ett membran med endera vätska A eller B tvättades anläggningen först med 733-vatten via tvättanken. Detta gjordes dels för att ställa in ungefärliga flöden och avlufta utan att behöva spilla med aktivt vatten. Därefter stoppades körningen, ventilen till tvättanken med 733-vatten stängdes och slangen från feedtanken kopplades upp mot anläggningen. Så skedde även för koncentratslangen genom vilken allt bildat koncentrat återfördes till feedtanken. Så var anläggningen driftsklar för testvatten A eller B. Just vid start krävdes en liten ändring av flöden och tryck eftersom vattnet i feedtanken hade annan temperatur och densitet än 733-vattnet.

*733-vatten är avjonat vatten

4.3. Drift

Det är svårt att ge några exakta driftparametrar eftersom under varje test ändrades parametrarna något över tiden.. Ändringarna var dock små och det går att ge övergripande driftparametrar. Flöde och tryck var bestämda att hållas inom vissa värden, se nedan. Om flödet eller trycket ändrade sig reglerades det till det önskvärda. Förändringar framförallt i flödet (men även i differentialtryck bl.a. som en följd av flödesregleringen) berodde troligen på t.ex. temperatur-, densitets- och viskositetsändring hos testvätskan samt beläggning på membranet.

För filter F0 och F1 hölls permeatflöde runt 40 l/h och konzentratflöde 50 l/h. Differentialtrycket över membranet låg omkring ca 350-375 mbar. Vid test av filter F2 och F3, hölls inställningarna i mesta möjliga mån omkring ett permeatflöde på 25 l/h. På så sätt höll alla fyra filtren ett flux på ca 15-16 LMH. Tyvärr verkade det vid manuella mätningar under en minut med mätglas och tidtagarur som om permeatflödet för körning F2 och F3 inte höll de 25 l/h som flödesmätaren visade. Istället verkade flödet ligga mellan 25 och 30 l/h. Detta skulle då ge ett flux mellan 15-19 LMH. Om denna manuella mätning stämmer påverkar det avskiljnings och massbalansberäkningarna. Obs: I rapportens resultat och diskussions avsnitt och i alla beräkningar användes de flöden som avlästes i flödesglasen.

Temperaturen på vattnet i anläggningen påverkar driftförhållandena. För de flesta av testerna låg temperaturen mellan 17 och 23 °C.

4.4. Vattenföring

De två vätskorna som användes till försöken var förfiltrerade genom ett 12 µ filter innan det fylldes på 1000 liters rostfria tankar utan omrörning och ställdes till anläggningens förfogande. Tidigast dagen innan ett filtreringstest skedde följande: Från den tank, vars vatten skulle testas, pumpades 200 liter upp på icke rostfria gamla oljefat. Från dessa fat pumpades vattnet över till feedtanken. För testet med filter F3 pumpades vattnet direkt från 1000 literstanken till feedtanken. Ändringen i metod berodde på att rost identifieras i anläggningen efter att filter F2 använts. Troligen fanns rosten redan vid de första testerna men ansamlades i anläggningen med tiden. Att smutsen var rost konstaterades eftersom den var magnetisk, att oljefatet som använts var rostigt och analys med ett svepelektronmikroskop visade på kol-stålsammansättning. Efter upptäckten tvättades anläggningen mekaniskt med vatten och där det inte gick att komma åt användes syra som tvättvätska.

För att få omrörning i feedtanken som är på 1000 liter men endast fylls med 200 liter, bubblades luft ned i vattnet vid varje test. Då ett test startades släpptes vattnet på från feedtanken till anläggningen. Under testet spilldes permeatet och konzentratet leddes tillbaka till feedtanken. Vilket innebar en uppkoncentrering i feedtanken av de ämnen som membranet bäst avskiljde. Återkoncentreringen gjordes bland annat för att se hur anläggningen och filter fungerade vid en högre koncentration av salter, TOC och radioaktiva isotoper. Vid starten av varje test höll feedtanken ca 200 liter testvätska varav totalt 180 liter permeat spilldes under körningen. Det sista provuttaget (provomgång 3) togs ut då omkring 20 liter vätska fanns kvar i feedtanken. Därefter stoppades körningen, resterna spilldes och anläggningen samt feedtanken dränerades och tvättades.

*733 vatten är avjonat vatten.

4.5. Tvätt

Efter varje test stoppades anläggningen, den resterande vätskan i feed tanken dränerades och tanken spolades ordentligt ren. Därefter rengjordes anläggningen och membranfilter. Beroende på vilket filter som använts dränerades anläggningen och blåstes ren med luft eller förträngningstvättades med 733-vatten. Sedan tvättades anläggningen med antingen lut kring pH 12 eller fosforsyra. Alla filter sköljdes med 733-vatten tills pH var neutralt och tvättvattnet ofärgat. Vanligen kom en plugg av brun smuts ur anläggningen.

4.6. Provuttag

Det första provuttaget (provomgång 1) gjordes ca 10 min efter att anläggningen startats mot feedtanken och driften var stabil. Det andra provuttaget (provomgång 2) gjordes då volymen i feedtanken minskat med ca 100 liter. Det sista provuttaget (provomgång 3) gjordes då ca 180 liter vätska tappats av och det var runt 20 liter kvar i feedtanken. Volymen i feedtanken var uppmätt mot en givare. Vid försöken motsvarade ett visst värde på givaren alltid en viss volym i feedtanken. Vid ett visst bestämt värde på givaren togs proverna ut i ventiler för provuttag. Vid provuttag spilldes först lite vatten. En liter vardera togs ut av utgående koncentrat och feed. Eftersom permeatet ändå spilldes togs två liter ut till analys.

4.7. Analys

Proverna togs omgående till labbet där de behandlades så som brukligt. För att mäta förekomsten av gammastrålande nuklider gjordes gammaanalys. Ytterligare analyser som gjordes var konduktivitetsmätning, bor- och TOC-analys. För att få representativa resultat vid TOC-mätningen frystes en delmängd ur proverna in samma dag som de togs ut.

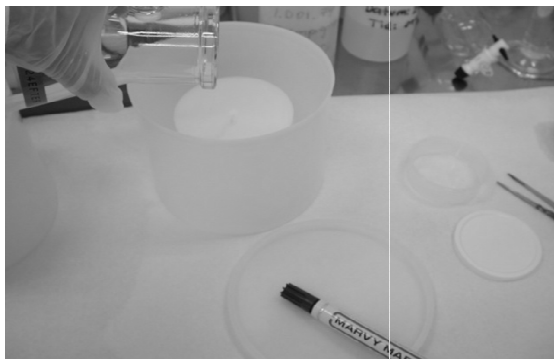


Fig 11. I bilden visas de burkar som användes vid gammaanalysen. En stor marinelliburk på en liter för permeatet och en liten cerboburk på femtio milliliter vardera för koncentrat och feed.

5. Resultat och diskussioner

Filtreringstester har gjorts med två olika avfallsvatten som här kallas A och B. De filter som användes vid testerna var fyra stycken tvärströms filtermembran av varierande storlek. Det tätaste var ett omvänd osmosmembran (RO) och det porösaste var ett ultramembran i storleksordningen på 10 000 Dalton. För testet namngavs det tätaste membranet som F0, det näst tätaste som F1 osv. Totalt genomfördes sju stycken fallstudier, sju tester med olika kombinationer av vatten och membran, vilka redovisas och diskuteras i följande text.

Vid test av ett filtermembran produceras ca 180 liter permeat som spills. Det koncentrat som bildas cirkuleras tillbaka till feedtanken. I och med det fås med tiden en uppkoncentrering i feeden av de partiklar och ämnen som membranet bäst avskiljer. För de ämnen som membranet uppvisar sämst avskiljning för fås en minskande koncentrationsgradient. Under varje fallstudie togs tre provomgångar ut, provomgång 1, 2 och 3. För varje provomgång insamlades data via gamma-, bor-, kappa- och TOC-analys. Avskiljningen för varje provuttag och analysparameter finns i tabellfört i bilaga 4. Detta datablad som ligger till grund för de tabeller och diagram som följer.

Diagrammet i Fig 12 respektive 13 visar den genomsnittliga avskiljningen för omgång 1, 2 och 3 vid varje membranfiltertest, d.v.s. den genomsnittliga avskiljningen som fås då avskiljningen för varje provomgång för ett visst filter läggs ihop och delas med antal hoplagda provomgångar. Detta visar vilka membran som ger bäst avskiljning utan att titta specifikt på omgången. Hur avskiljningen ser ut för varje provomgång kan ses i kapitel 5.5, Jämförelser mellan provomgång 1, 2 och 3. Dock togs för få omgångar, för att bygga någon större teori om vilket membran som kan vara bäst vid olika koncentrationer. För det bör riktade tester göras, denna rapport är att betrakta som en förstudie för att ha något att utgå ifrån..

De nukleider som ska studeras i projektet, men för vilka det fattas tillräcklig data för att genomföra en regelrätt avskiljningsberäkning, diskuteras separat. Dessa nuklider är Cs-137, Ag110m och Sb-125 och dessas nuklidavskiljning beräknas då med hjälp av MDA som är den minsta detektions area för ämnet vid gamma-analysen. Resultaten presenteras som diagram i Fig 14.

5.1. Sammansättning på testvätskan

Vid studier av Tabell 1 kan utläsas att avskiljningsgraden varierar för en och samma isotop beroende på om det är vätska A eller B som testas. Det verkar som om de studerade ämnena har olika lätt eller svårt att ta sig genom membranet beroende på testvätskans sammansättning. Detta beror troligen på vad de binder till och vilken form de befinner sig. Därigenom påverkas de olika av membranet. På så vis inverkar vattenkvaliteten på hur lätta eller svåra de blir att avskilja. Den som vill studera detta vidare kan studera och laborera med olika typer av membranmaterial för att eventuellt finna ett som fungerar generellt bättre.

Tabell 1: Medelvärde för avskiljningen från provomgång 1, 2 och 3 för vatten A och medelvärde för provomgång 2 och 3 för vatten B.

	gamma total	Sb-125	Co-57	Co-58	Co-60	Mn-54	Kappa	Bor	Toc	
F0A	100%		100%	100%	100%	100%	97%	73%	97%	F0A
F1A	98%	98%	82%	77%	98%	98%	66%	57%	97%	F1A
F1B	97%			99%	99%	87%	73%		75%	F1B
F2A	98%	93%	89%	88%	99%	98%	75%	67%	93%	F2A
F2B	93%			92%	94%	84%	70%		86%	F2B
F3A	97%	91%	83%	75%	97%	97%	68%	67%	97%	F3A
F3B	92%			91%	95%	81%	68%		85%	F3B

I Tabell 2 respektive Tabell 3 anges några halterna av de analyserade ämnen i feeden vid provomgång ett (ca 10 min efter starten) för varje studerat fall, detta sågs som utgångsläget. I slutändan visade det sig förenklat att testvätska A med hög aktivitet, låg TOC-halt och låg ledningsförmåga genererade högst total nuklidavskiljning. Vätska B däremot med låg aktivitet, hög ledningsförmåga och hög TOC-halt gav låg avskiljning. Vatten B var synbart grumligt och skummade i feedtanken då luftomblandningen startades. Det tyder på att det fanns kolloider och tensider i lösningen. Något som kunde ha påverkat bindingsformen på nukliderna.

Tabell 2: Testvätska A. Koncentration av ämnen i feeden vid provuttag 1.

Membran & vatten	F0A	F1A	F2A	F3A
Gamma total Bq/kg	8,65E4	9,10E4	5,93E4	4,64E4
Mn-54 Bq/kg	2,43E+03	2,83E+03	1,36E+03	8,77E+02
Co-57 Bq/kg	1,48E+02	1,13E+02	1,04E+02	1,08E+02
Co-58 Bq/kg	1,24E+03	1,24E+03	8,45E+02	8,24E+02
Co-60 Bq/kg	6,79E+04	7,24E+04	4,45E+04	3,42E+04
Cs-137 Bq/kg	Under detektionsgräns	Under detektionsgräns	1,89E+02	Under detektionsgräns
Sb-125 Bq/kg	2,61E+03	2,54E+03	2,11E+03	1,63E+03
Ag-110m Bq/kg	1,15E+04	1,10E+04	9,64E+03	8,76E+03
Bor ppm	261	251	251	252
Ledningsförmåga uS/cm	53	49	51	48
TOC ppm	1,1	2,7	1,1	1,4

Tabell 3: Testvätska B. Koncentration av ämnen i feeden vid provuttag 1.

Membran & vatten	F1B	F2B	F3B
Gamma total Bq/kg	2,00E+02	3,49E+02	1,75E+02
Mn-54 Bq/kg	1,99E+01	3,03E+01	2,79E+01
Co-58 Bq/kg	8,56E+01	7,53E+01	3,78E+01
Co-60 Bq/kg	6,54E+01	2,44E+02	5,47E+01
Cs-137 Bq/kg	9,38E+00	Under detektionsgräns	Under detektionsgräns
Ag-110m Bq/kg	1,99E+01	Under detektionsgräns	5,43E+01
Bor ppm	Under detektionsgräns	Under detektionsgräns	Under detektionsgräns
Ledningsförmåga uS/cm	226	256	265
TOC ppm	65,4	15,7	4,7

5.2. Utvärdering av membran

Studier av bland annat tabell 1 resulterar i följande diskussioner.

Det omvända osmosmembranet F0 har den klart bästa avskiljningen för vätska A. Omvänd osmosmembranet testades inte med vätska B. På grund av membranets uppbyggnad är det ändå mycket troligt att membranet skulle genererat god och jämn avskiljning. Vad som talar för detta är teorin gällande omvänd osmosmembran och produkt specifikationen. Samt den goda avskiljning som membranet uppvisade vid tester med vatten A. Varför är detta membran då inte det bästa valet? Jo det har även en hög avskiljning även för bor och andra salter. Det är därför sett till projektönskemålet inte det bästa membranet. Det höll även en hög ytdos efter användandet. Membranet är att rekommendera för att avskilja radioaktiva nuklider ur mindre vätskevolym eller lågaktiva vatten då även en hög uppkoncentrering av salter inte är ett hinder.

För membran F1 är det mellan vätskorna inte någon större skillnad i avskiljning. Den totala nuklid avskiljningen för vatten B är högst för detta filter. Vilket inte är konstigt då det är det tätaste membranet som vatten B testades mot. Utmärkande för membran F1, då det testades med vätska A, var den önskvärda och relativt låga avskiljningen för bor, ca 57 %. Tyvärr gav det även en låg respektive ganska låg avskiljning för Co-58 och Co-57. För vätska B däremot är avskiljningen för Co-58 hög. Differensen i avskiljning mellan vätska A och B för Co-58 är störst för detta membran. Precis som F0 samlade F1 på sig hög ytdosrat. En hög ansamling av aktivitet på filtret bör beaktas då stora mängder vatten filtreras eller då aktiviteten i vattnet är hög. Detta membran kan med fördel användas då det är acceptabelt med en sammansättningsberoende avskiljning av Co-58 och framförallt då det är viktigt att erhålla en förhållandevis låg uppkoncentrering av bor. Precis som F0 samlade F1 på sig en hög ytdos. En hög ansamling av radioaktiva nuklider i membranet bör beaktas då stora mängder vatten filtreras eller då vattnet håller en hög radioaktivitet.

Positivt med testerna av membran F2 var dess relativt jämna avskiljning för olika nuklider inom respektive vatten. För vatten A avskiljdes Co-57, Co-58 och Co-60 bäst med detta membran. Membran F2 gav på delad plats med F1 en hög total nuklid avskiljning (98 %) för vätska A. Membran F2 med vätska A gav en ganska låg boravskiljningen, 67 %. Se tabell 1. För vätska B uppvisade F2 en total nuklidavskiljning på 93 %, jämfört med F1B som höll en totalnuklidavskiljning på 97 %. Enligt denna studie samt membranteorin påverkas avskiljningen av membranets uppbyggnad och testvätskans sammansättning. Ytdosraten för detta membran F2 var efter provomgång 3 ungefär hälften av vad den var för membran F1. Alltså skulle membranet vara att föredra för att hålla ned ytdosraten men samtidigt få en förhållandevis jämn men något lägre nukliderna avskiljning.

Lägst avskiljning av radioaktiva nuklider har inte helt oväntat det mest porösa membranet F3. Intressant är att det inte uppvisar någon större differens för bor avskiljningen gentemot det 25 ggr tätare F2. Båda har en bor avskiljning för bor på ca 67 % och en jämförelsevis liten skillnad i ytdosrat. Därför borde F2 vara att föredra framför membran F3.

Variationerna mellan provomgångarna och mellan vätska A och B kan tolkas som att membranen har potential att leverera mycket goda resultat med rätt vatten. Hur mycket vätskans sammansättning påverkar avskiljningen verkar vara individuellt för respektive nuklid i testvätskan. Till exempel kan rekommenderas att sökandet av ett membran kan hålla sig kring samma porositet som F1 eller F2 men med andra material. Det vatten som kommer till avfallet har ofta väldigt olika sammansättning, och membranet ska helst hålla en god radionuklid avskiljning för dem alla samt låg saltavskiljning. Det går nog inte vänta sig en given avskiljning oberoende av vatten men förhoppningsvis kommer membranen som utvärderats i detta projekt att ge information om inom vilket område man bör arbeta vidare. Enklast torde vara om uppkoncentreringen av bor mest beror på membranets utformning och inte lösningens sammansättning, något som inte är utvärderat här.

5.3. Jämförelse av filtrens avskiljning för vatten A och vatten B

Fig 12 och Fig 13 visar den genomsnittliga avskiljningen för provomgång 1, 2 och 3 vid varje membranfiltertest, alltså den avskiljning som fås då avskiljningen för varje provomgång läggs ihop och delas med antal provomgångar. Detta visar vilka membran som ger bäst avskiljning utan att titta specifikt på provomgången som eventuellt påverkas av koncentrationsförändringen som sker under testerna.

När membranen testades med de två olika vattnen visade det sig att avskiljningen generellt var högre för vatten A än för vatten B. Med reservation för Co-58 som avskiljdes sämre från testvätska A, något som bör härledas till lösningarnas sammansättning samt membranens material och uppbyggnad. Testvätska B såg grumlig ut, det skummade i tanken då luftomblandningen startades och det höll högre halt TOC än vätska A. Mycket tyder på att det fanns kolloider och tensider i lösningen. Genom tensider och kolloiders närvaro i vätskan påverkas laddningar och därigenom avskiljningen[8]. Retentionen påverkas även av vätejonkoncentrationen. Vad som tydligt varierade mellan vattnen var ledningsförmågan, i diagram och tabeller kallat kappa. Vid start var ledningsförmågan för vatten A låg ca 50 $\mu\text{S}/\text{cm}$, för vatten B låg den omkring 260 $\mu\text{S}/\text{cm}$. Andra viktiga skillnader mellan vattnen var dess olika radioaktivt innehåll samt dess olika halt av Bor. Den totala aktiviteten för feeden vid start av de olika filtren var för vatten A mellan $4,6\text{--}9,1 \cdot 10^4$ Bq/kg och för vatten B omkring $1,7\text{--}3,5 \cdot 10^2$ Bq/kg. Ur fig 12 och Fig 13 kan följande slutsats dras. Vätska A med hög aktivitet, hög borhalt, låg TOC halt och låg ledningsförmåga genererade högst procentuell totalnuklid avskiljning. Vätska B med låg aktivitet, hög ledningsförmåga, jämförelsevis

mycket låg borhalt och hög TOC halt däremot gav en procentuellt låg total avskiljning. Hur Bor skiljs från gammastrålande nuklider vid test av de olika vätskorna går inte att jämföra. Detta pga. att Borhalten i vätska låg under analysmetodens detektionsgräns.

Förutom generella skillnader i avskiljning mellan vätska A och B uppträder skillnader inom vätska A beroende på vilket membran som används (se Fig 12). Skillnaderna illustreras tydligast för isotoperna Co-57 och Co-58. Dessa uppvisar även variationer mellan provomgångarna (läs mer i kapitel 5.5). Då membranen testas med vätska A håller membran F2 en ganska jämn avskiljningsgrad och dyker inte nedåt lika kraftigt vid avskiljningen av Co-57 och Co-58 som membran F1 och F3. Testerna visar som förväntat, sett till porstorleken, att F3 har en sämre avskiljning än F2. Att F2 som är porösare än F1 har en bättre avskiljning för Co-57 och Co-58 kräver däremot en diskussion.

Membran F1 ska ha en extra god avskiljning för bivalenta salter. I försöken visar F1 den lägsta avskiljningen för bor och ledningsförmågan vilket är önskvärt. Detta trots sin täthet. Därför kan paralleller dras till nanofiltreringsmembranens uppbyggnad. Även om alla membran är mer eller mindre laddade har Nanomembranen ofta en laddad grupp vilket gör att de gärna repellerar eller attraherar joner. På så vis fås en jonfördelning i permeatet som till viss del beror på feedens sammansättning. Det skulle till viss del kunna förklara att F1 har lägst avskiljning för bor och ledningsförmåga trots en porstorlek på bara 300-400 Da. Tydligare blir att jämföra med membran F3 vars porstorlek graderas till ca 25000 Da men som i dessa försök ändå släpper igenom mindre bor än membran F1.

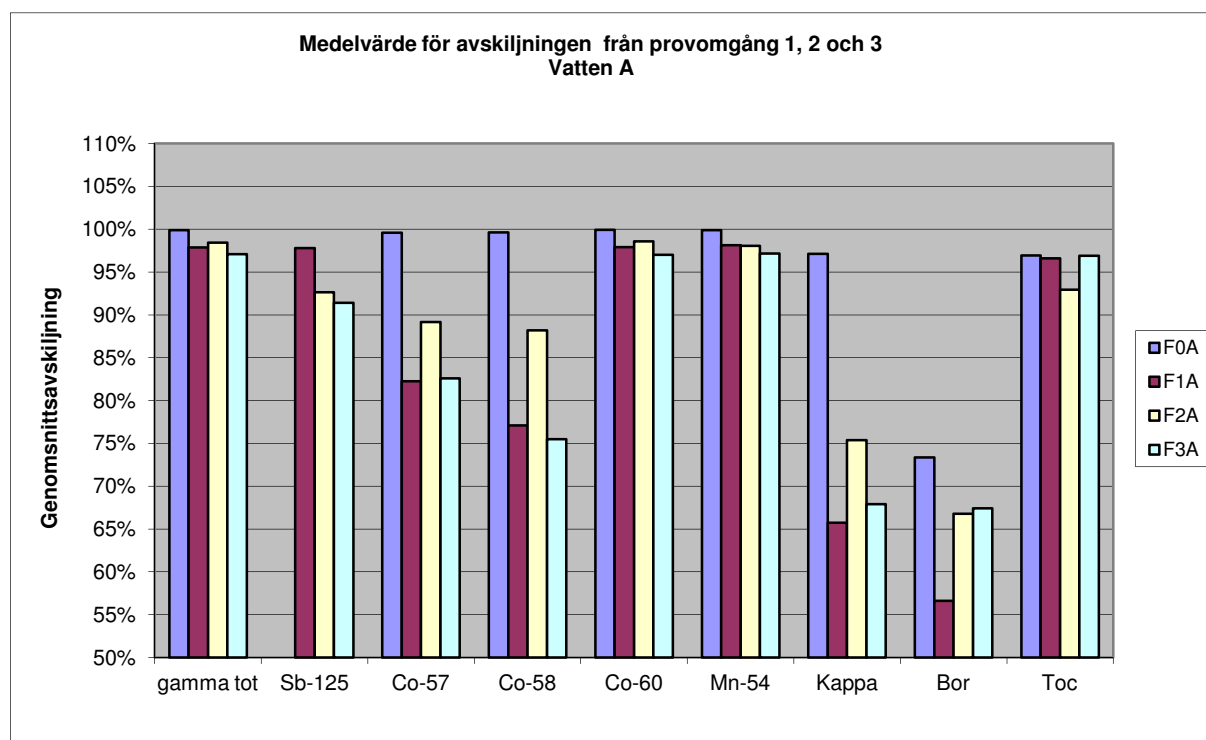


Fig 12. Diagrammet visar avskiljningen som ett medelvärde av provomgång 1, 2 och 3 då vatten A testas med filter F0, F1, F2 och F3.

Membran F2 har en porstorlek på ca 1000 Da och ligger även det i nanofiltreringsområdet. Jämförs bara membranens porstorlek borde membran F2 ha en lägre avskiljning än F1 men så är inte alltid fallet. För vätska A uppvisar membran F2(bortsett från F0) den högsta avskiljningen map Co-57 och Co-58 och ledningsförmåga. Det skulle kunna innebära att Co-

57 och Co-58 har en laddning eller sitter bunden till en partikel med laddning som repelleras av F2 membranet i större utsträckning än för F1-membranet, och därför lättare passerar igenom. Trots detta verkar det i studier av Fig 12 som att membranfilter F2 har den mellan nukliderna stabilaste och bästa avskiljningen.

För testvätska B och nuklid Co-58 är avskiljningen relativt hög jämfört med test av vätska A. Avskiljningsgraden följer för vätska B även teorin om att en mindre porstorlek på membranet ger högre avskiljning. Det skulle kunna vara så att i testvätska B är Co-58 och Co-60 båda partikelbundna eller på annat sätt påverkas av vätskans sammansättning till att hålls tillbaka från passage genom membranet (se fig 13). Vid Ringhals på avfallets avdelning har man erfarenhet av att Co-58 tenderar att vara jonogen och Co-60 partikulär. I denna studie för både vätska A och B, uppvisar Co-60 en hög avskiljning. Därför antas att Co-60 även här uppträda i partikulär form och den verkar mindre känslig för membran typ och vätskesammansättning. Resonemanget i styckena ovan indikerar att hur väl ett membran avskiljer Co-57 och Co-58 till stor del är beroende av sammansättningen på det vatten som filtreras. Detsamma skulle kunna gälla nukliden Mn-54 som har en hög avskiljningsgrad med testvätska A, men för vätska B en lägre avskiljning som inte följer membranens porstorlek. Det vill säga att vid filtrering av denna typen av vätskor beror resultatet både på membranets storlek och bland annat ämnenas och membranets laddning. Det kan alltså enligt denna studie vara svårt att finna ett membran som ger goda resultat för alla de typer av vatten som kan komma till avfallsavdelningen för rening.

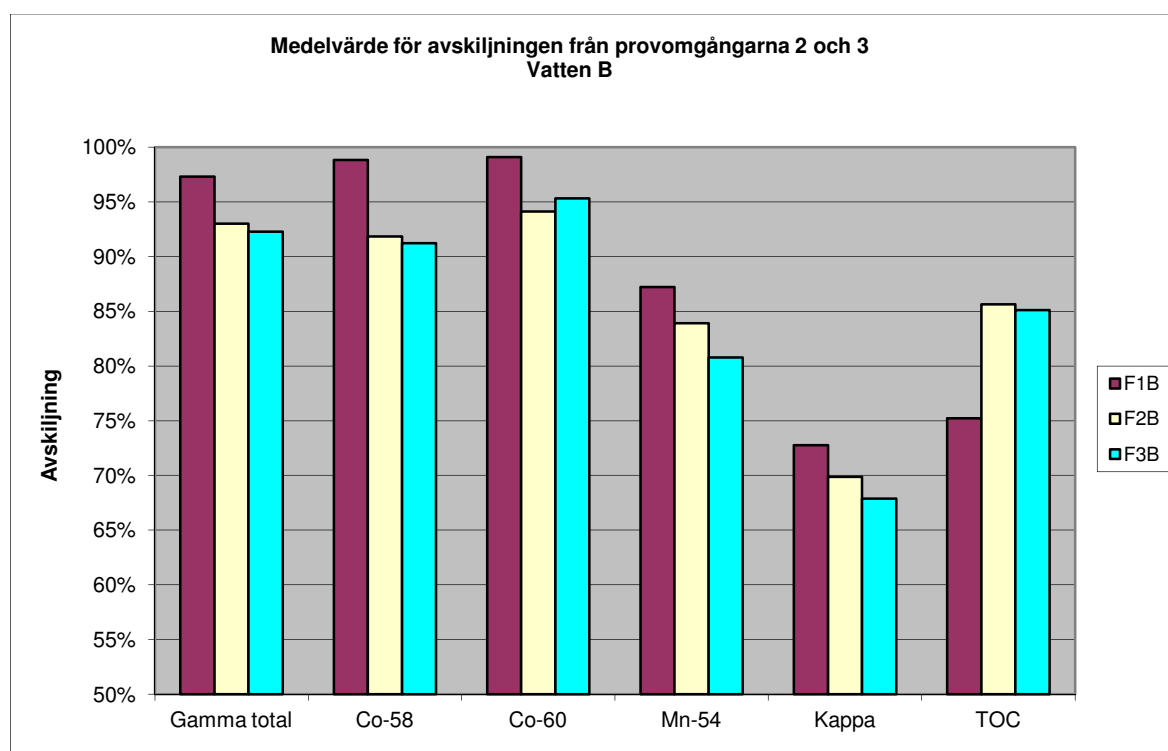


Fig 13. Diagrammet visar avskiljningen som ett medelvärde av provomgång 1 och 2 då vatten B testas med filter F1, F2 och F3.

Enlig produktinformationen för membran F1 har det en magnesiumsulfatretention på 95 %, vilket snarare betyder att den har en god retention för kalcium, magnesium och bivalenta salter. Med andra ord stämmer det väl in på teorin om nanomembran där avskiljningen påverkas av jonernas valens. Kobolt är vanligen två- eller tre-värd [11] och mangan tvåvärd [12]. Om de joner som finns i vattnet skulle vara en trevärd kobolt och en tvåvärd mangan

skulle kobolt vara den som avskildes bäst. Nu är det förstås fler ämnen inblandade och det är oklart i vilken form de verkligen befinner sig. Verkligheten är mer komplicerad än teorin, men det är en möjlig förklaring om man ser i Fig 13 för vatten B att Co-60 skulle vara i partikelform, Co-58 i jonform men mer valent än Mn-54. Man får dock inte glömma att storleken på membranets porer också spelar in.

Testvätska A höll vid försöksstarten små mängder TOC, omkring 1-3ppm, som avskiljdes väl. Vätska B däremot höll en högre halt TOC. Vid starterna höll feeden för test av membran F1 65ppm, F2 16 ppm och F3 5 ppm TOC. Vätska A uppvisar en procentuellt bättre avskiljning bättre än vätska B, däremot ökar avskiljningen med ökande provomgång. Det är svårt att säga om det beror på drifttiden eller koncentrationsförändringen i feeden på grund av återcirkulation av koncentratet. För TOC registrerades en massbalans på 100 % eller mer i vissa fall. Möjligen kan det vara så att all löst TOC från föregående körning inte sköljdes ur membranet och systemet och därmed visade sig i nästkommande test. För massbalansen se Bilaga 5.

5.4. Nuklider under detektionsgräns för något flöde – endast för vatten A

Under försökens gång var det vissa nuklider vars halt hamnade under detektionsgräns. Dessa uppskattades då med hjälp av MDA (minsta detektions area) för varje specifik nuklid från gamma analysen. Om det för en nuklid inte fanns ett detekterbart värde från gammaanalysen, för endera permeatet eller feeden, sattes MDA- värdet in i stället. Varpå avskiljningsberäkningarna utfördes som vanligt. Detta är endast gjort för vatten A och då för provomgång 2 och filter F0, F1 och F2. Resultatet kan ses i Tabell 4. Avskiljningen beräknad med MDA för Ag-110m, Cs-137 och Sb-125 kan ses i Fig 14. Avskiljningsberäkningar där MDA används är inte utfört på vätska B eftersom den hölls så få nuklider och låg aktivitet.

Då detekterbart resultat från gamma mätningen fanns både för koncentratet och för feeden men inte för permeatet användes MDA värdet vid avskiljningsberäkningen. Då den verkliga detektionen i permeatet ska vara samma eller mindre än MDA, bör alltså avskiljningen vara lika eller större än värdet på avskiljningsberäkningen.

De nuklider vars avskiljning beräknades med MDA värdet permeatet är Ag-110m och Sb-125, endast för filter F0.

Där en specifik nuklid inte detekterades i feed och koncentrat men inte återfanns i permeatet kan förklaras med att den varit lägre än de övriga i feed och koncentrat och därför överskuggades. För att få med den i mätningen hade man kunnat göra flera mätningar efter visst tidsintervall. Då en viss nuklid fanns detekterbar i permeatet men inte i koncentratet och feeden användes MDA för att ta fram ett värde på feeden för att beräkna avskiljningen. Då fås en avskiljning som är mindre än eller lika med det värdet som avskiljningsberäkningen med MDA genererar.

Den nuklid vars avskiljning beräknades med MDA värdet för halten i Feeden är Cs-137. Avskiljningsgrad för denna bör vara lika med eller lägre än den som anges i tabell 4.

Tabell 4: Tabellen visar avskiljningen vid provomgång 2 för de nuklider då minsta detektionsarea använts i avskiljningsberäkningen. Avrundat till närmaste heltal.

Avskiljning i %, Avrundat till närmaste heltal, Provomgång 2			
För beräkning användes MDA för halten i:	Permeatet	Permeatet	Feeden
Test, avskiljning	Ag-110m	Sb-125	Cs-137
F0A	100%	100%	< 79%
F1A	100%		< 80%
F2A	100%		< 84%

5.4.1. Sb-125

I grunddata (ej presenterat i rapporten) för membranet F0 finns Sb-125 registrerad både i feeden och i konzentratet för alla tre provomgångarna, men inte i permeatet. Det kan vara så att F0-membranet avskiljt antimon så effektivt att det inte kan urskiljas vid gammaanalysen för att det ligger under minsta detektionsarea. Är det ett korrekt antagande är avskiljningen mycket nära 100 %. Vid försök med membran F1 uppvisar Sb-125 en högre avskiljning än med de glesare membranerna. Det är därför troligt att även membran F0 har en mycket hög avskiljning för Sb-125. Vid test av membranet F0 tillsammans med vätska A detekterades Sb-125 både i feeden och i konzentratet, men inte i permeatet. Det pekar på att Sb-125 avskiljdes så effektivt att det vid gamma analysen ligger under minsta detektions area. Är det ett korrekt antagande är avskiljningen för mycket nära 100 %. Massbalansen tyder dessutom på att en stor andel nukliden följer med ut ur anläggningen. Se diagram 19 samt bilaga 5. Att massbalansen inte stämmer helt är inte önskvärt och beror troligen på en ansamling i anläggningen vilket kan vara ett problem vid längre drift.

5.4.2. Cs-137

För alla 12 försöken detekterades Cs-37 i permeatet, en detektion i konzentratet och ingen detektion i feeden. Det tyder på att Cs-137 låg under minsta detektionsarea i feeden.. För att göra det ordentligt får man då gå in i analysen av feeden och leta upp minsta detektionsarean för cesium-137. Detta har gjorts för Filter F0, F1 och F2 och för provomgång 2. I Fig 14 finns avskiljningen för cesium 137 beräknat med MDA-värdet. Den procentuella avskiljningen för Cs-137 är låg, troligen mellan 0 till 80 %.

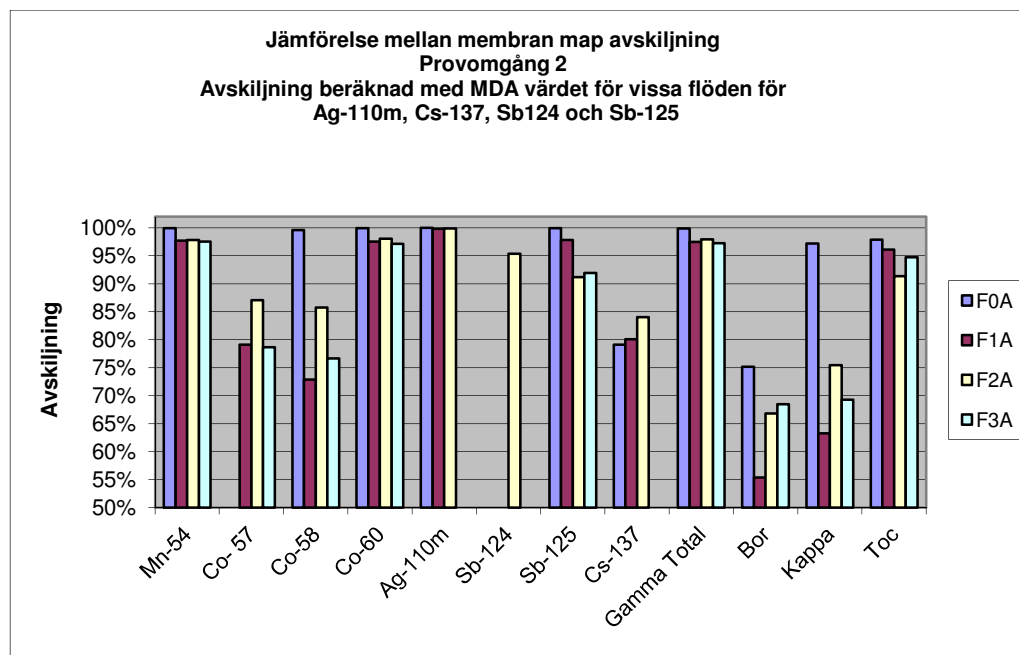


Fig 14. Illustrerar avskiljningen vid provomgång 2 för de membran som testats med vatten A.

Nedan finns Tabell 5 som visar halten Cs-137 (Bq/kg) från provuttagen av permeatet, utan att hänsyn tagits till flödet. För varje provomgång ökar halten i permeatet. En tolkning av Tabell 5 och 6 är att det sker en viss uppkoncentrering av Cesium 137, den avskiljs alltså. Frågan är bara hur mycket. Vid test av membran F1 tillsammans med vätska B finns Cs-137 detekterad i alla strömmar, med en avskiljning på 65-77% Troligen ligger avskiljningen däromkring även för vätska A.

Tabell 5: Halten Cs-137 i Permeatet (Bq/kg)

Membran, vatten, ca flöde l/h	Provomgång 1	Provomgång 2	Provomgång 3
F0A, 40 l/h	12	127	81
F1A, 40 l/h	90	109	120
F2A, 25 l/h	13	107	106

Tabell 6: Avskiljningen för Cs-137 beräknad på MDA värdet innebär i detta fall att avskiljningen är mindre än värdet i tabellen.

Membran och vatten	Provomgång 2
F0A	< 79 %
F1A	< 80 %
F2A	< 84 %

Cs-137 verkade relativt oberoende av de testade membranens porstorlek och typ. Så den är troligen svårfångad även med andra membran. Enligt kommunikation med personal på Ringhals, avdelning avfall, har de erfarenhet av att just denna nuklid är "svårfångad" eftersom den tenderar att vara löst i vatten[19]. Cs-137 är svår att komma åt även i Batman, en anläggning på Ringhals där man använder membranfilter i kombination med annan teknik för att avskilja radionuklider. Även flockning används för att ta bort cesium 137 ur vattenlösningar, den kan då fångas i flocken men går snabbt tillbaka i vattenfasen[19]. Låga

avskiljningsresultaten för Cs-137 från membranesterna är därför mycket troliga. För att söka ut ett membranfilter som avskiljer denna nuklid kan kanske studier göras med vatten innehållande färre ämnen.

5.4.3. Ag-110m

För de flesta analyser finns Ag-110m angivet med ett värde i koncentrat och feed men det finns inte med i analysen av permeatet. Troligen för att aktiviteten av just den nukliden ligger under dess detektionsgräns. I Fig 14 finns värden för Ag-110m beräknade med MDA värdet. Här kan det till och med då vara så att avskiljningen är något högre än den som diagrammet visar eftersom värdet på permeatet är mindre än minsta detektionsgränsen för Ag-110m.

Avskiljningsberäkningen med hjälp av MDA påvisar en mycket hög avskiljning för Ag-110m. Annat som talar för en hög avskiljning är att Ag-110m uppvisar ungefär samma halter och beteende som Co-60, om "avskiljningen" istället beräknas direkt på koncentratet dividerat med feeden. Något som skulle kunna tyda på att den är i partikulär form och då mindre känslig för membran typ Se Fig 15. Sett till massbalansen för test med vätska A överensstämmer balansen bättre ju grövre membranets porer är. För testvätska B ser det ut att vara tvärt om. Den gemensamma slutsatsen är att Ag-110m tenderar att ansamlas i systemet, vilket är negativt.

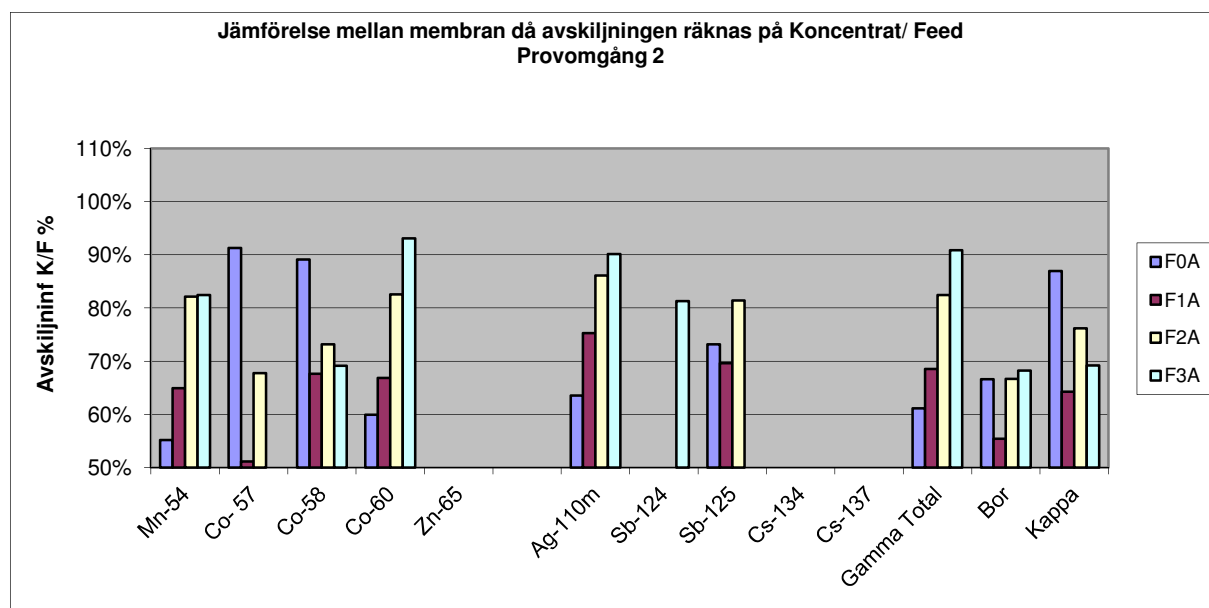


Fig 15. Avskiljningen för provomgång 2 då membranen testades med vatten A och avskiljningen räknas på koncentrat/ feed. Provomgång 2.

5.5. Jämförelse mellan provomgång 1, 2 och 3

Provomgång 1 togs ut ca 10 minuter efter att anläggningen startats med respektive testvätska. När stabila driftförhållanden infunnit sig togs provomgång 2. Då hade ca 100 liter permeat producerats. Då 180 liter permeat producerats togs provomgång 3. Koncentratet fördes tillbaka till feedtanken vilket ger en typ av koncentrationsgradient beroende på de olika vätskornas sammansättning och förhållande till membranet. Eftersom koncentratet fördes tillbaka till feedtanken bör där ha skett en koncentrerings av de ämnen membranet bäst avskiljde.

Att jämföra data från provomgång 1, 2 och 3 skulle kunna visa på en förändring som är beroende av koncentration eller drifttid. Tre diagram presenteras här, övriga diagram kan ses

i Bilaga 4b och 4c. Vid alla försöken varierar avskiljningen något mellan provomgångarna, enda undantaget var membran F0. Se Fig 16. Variationerna för de övriga membranen testade med vätska A är inte heller konsekventa på så vis att omgång 1 alltid är lägre än omgång 2 och så vidare. En del i förklaringen tros vara att koncentratet fördes tillbaka och gav en förändring i lösningens sammansättning. Detta bör förhålla sig så att en avskiljningsförändring inte säkert beror just på att det ämne man tittar på förändrats i form eller halt. Utan det kan vara så att lösningens totala sammansättning förändrats och att det påverkar avskiljningskapaciteten för det studerade ämnet. Att jämföra avskiljningen mellan provomgång 1, 2 och 3 visar för några ämnen en förändring som eventuellt kan tolkas som att en förändrad koncentration eller drifttid ger en ökad respektive minskad avskiljning. Hur spridningen i avskiljning ser ut för varje studerad nuklid, mellan de olika provomgångarna och membranen för testvätska A representeras ganska väl i Fig 17.

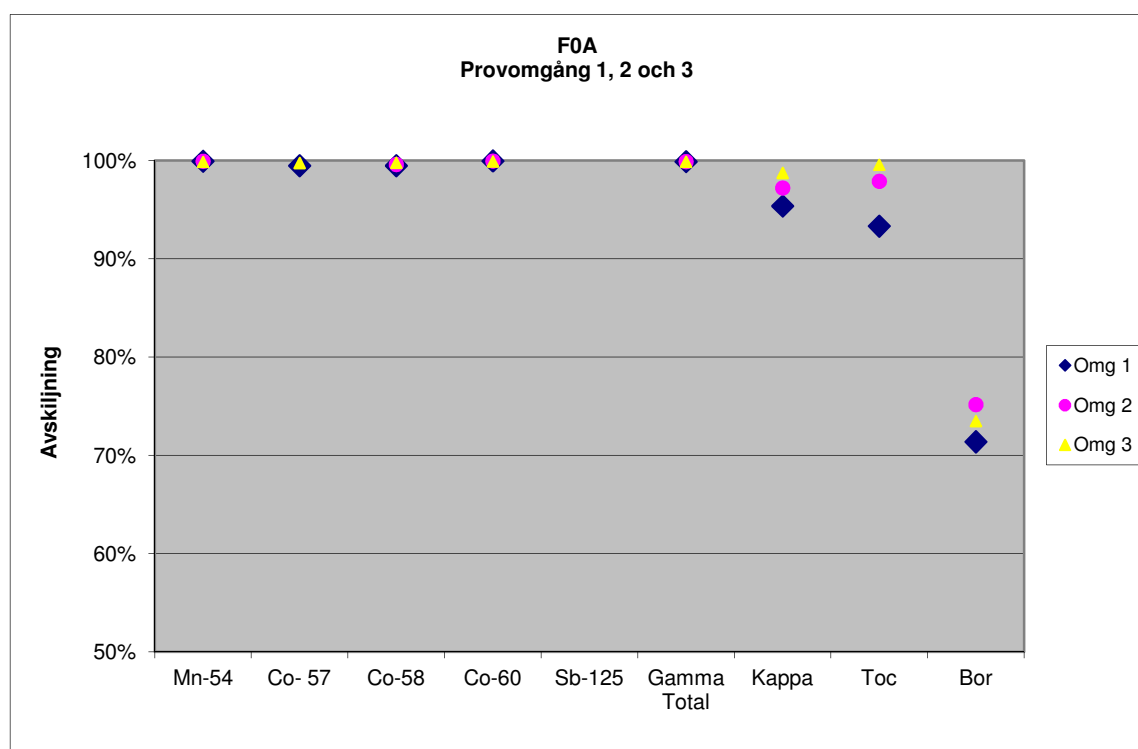


Fig 16. Avskiljningen för provomgång 1, 2 och 3 för membran F0 testat med vatten A.

För alla filtreringsmembranen, bortsett från F0, testade med endera vätska A eller B varierar avskiljningen något mellan provomgångarna. En lite skillnad är väntat. I diagrammet för F1B(Bilaga 4) är provomgång 2 och 3 ganska lika. Men omgång 1 håller en genomgående lägre avskiljning. Detta kan ses i kapitel felkälla.

Försöken har gett en svag indikation på att en förändrad vattensammansättning påverkar i vilken form som isotoperna Co-57 och Co-58 befinner sig i. För testvätska A och nuklid Co-57 samt Co-58 är membran F0 det enda där avskiljningen inte varierar för varje provomgång, möjligen för att det varför tätt för de flesta typer av Cobalt. För vatten B ser man i Bilaga 4c att Co-58 och Co-60 uppvisar ganska hög avskiljning. Men för Mn-54 är den låg, vilket skiljer sig från vatten A.

Avskiljningen av dessa nuklider är att ta i beaktande om ytterligare studier utförs för att finna ett membran med generellt hög nuklidavskiljning.

För vatten A jämförs Co-57 för provomgång 1, 2 och 3 och för filter F1, F2 och F3. Det visar sig att för provomgång 3 är avskiljningsgraden för de alla 3 membranen mer lika. För filter F1 och F3 har avskiljningen ökat och för F2 har den minskat. Utgångsläget för alla membran var ett vatten från en och samma tank, dock har det stått olika länge. Kanske kan det vara så att vid provomgång 3 har, pga. tillbaka förseln av koncentratet, fått ett vatten som passar membran 3 bättre än utgångsvattnet med avseende på Co-57. Även Sb-125 visar för membran F3, filtrerat med vatten A en uppåtgående trend mellan provomgångarna, se bilaga 4b . En ökning av ämnen i utgående strömmar kan även bero på att i anläggningen ansamlad aktivitet kommit lös till exempel vid en tryck eller flödes förändring. En liknande trend för membran F3 kan ses med vatten B för Mn-54. Med andra ord verkar prestationen från membran 3 vara beroende av vätskans sammansättning. Detta illustreras i Bilaga 4, diagrammen F3A och F3B

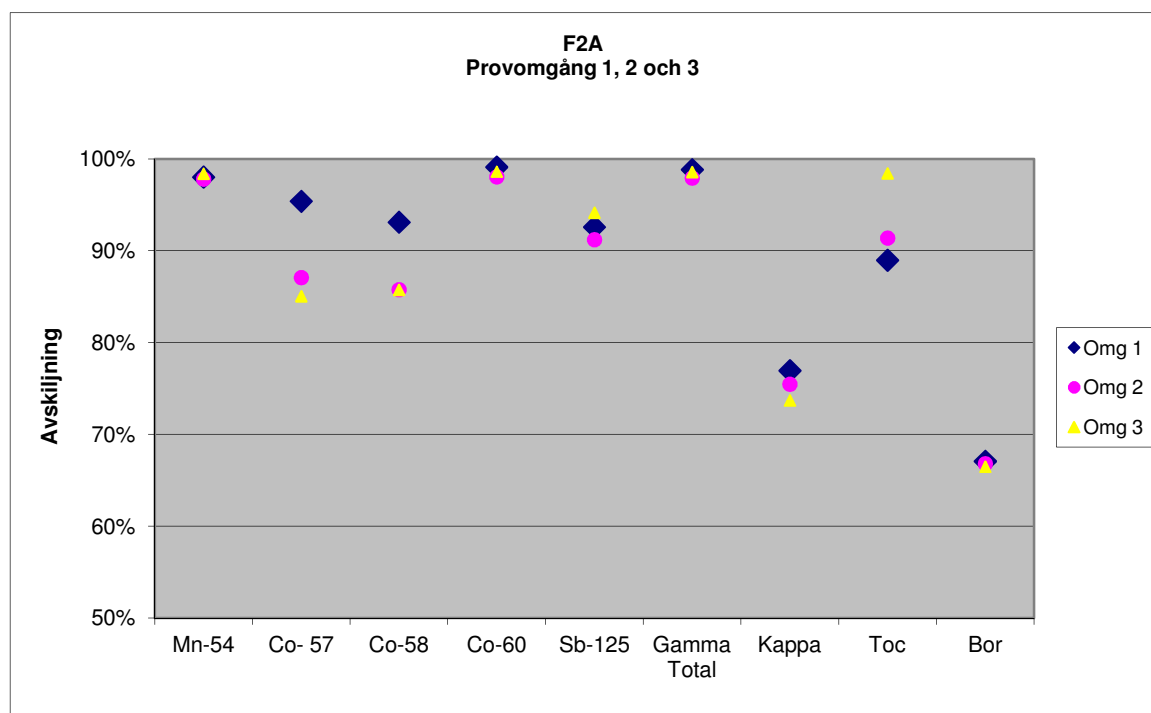


Fig 17. Avskiljningen för provomgång 1, 2 och 3 för membran F2 testat med vatten A.

I Fig 16, diagram F0A kan man se att TOC avskiljningen ökar för varje provomgång. Denna förändring iakttoogs vid alla försöken, mest påtagligt var det för vatten B med den högre TOC halten. Det är svårt att säga vad det beror på. Det skulle kunna beror på driftstiden eller koncentrationsförändringen i feeden pga. återcirkulation av koncentratet. Vatten A innehåller en låg halt TOC men har högre avskiljning än vatten B. Vid sista provomgången närmade sig vatten B den TOC avskiljning som registrerats för vatten A. Det är tänkbart att TOC får bättre avskiljningsgrad om det bildas ett litet skikt, fouling, på membranet som det fastnar på. Antagande om beläggning skulle kunna gälla eftersom det efter körningen kom ut en smutsplugg vid tvätten. Dessutom var koncentratet och feeden synbart smutsiga och smutsfärgen ökade med uppkoncentreringen. Kanske skulle det även kunna ske någon form av flockning i systemet. Tyvärr motsäger massbalansen för TOC detta. Då massbalansen för TOC är 100 % eller mer i alla försöken. Möjligen kan det vara så att all löst TOC från föregående körning inte sköljdes ur membranet och systemet och därmed visade sig i nästkommande test.

Diagrammen för fall F1A, F1B, F3A och F3B finns som bilaga 4.

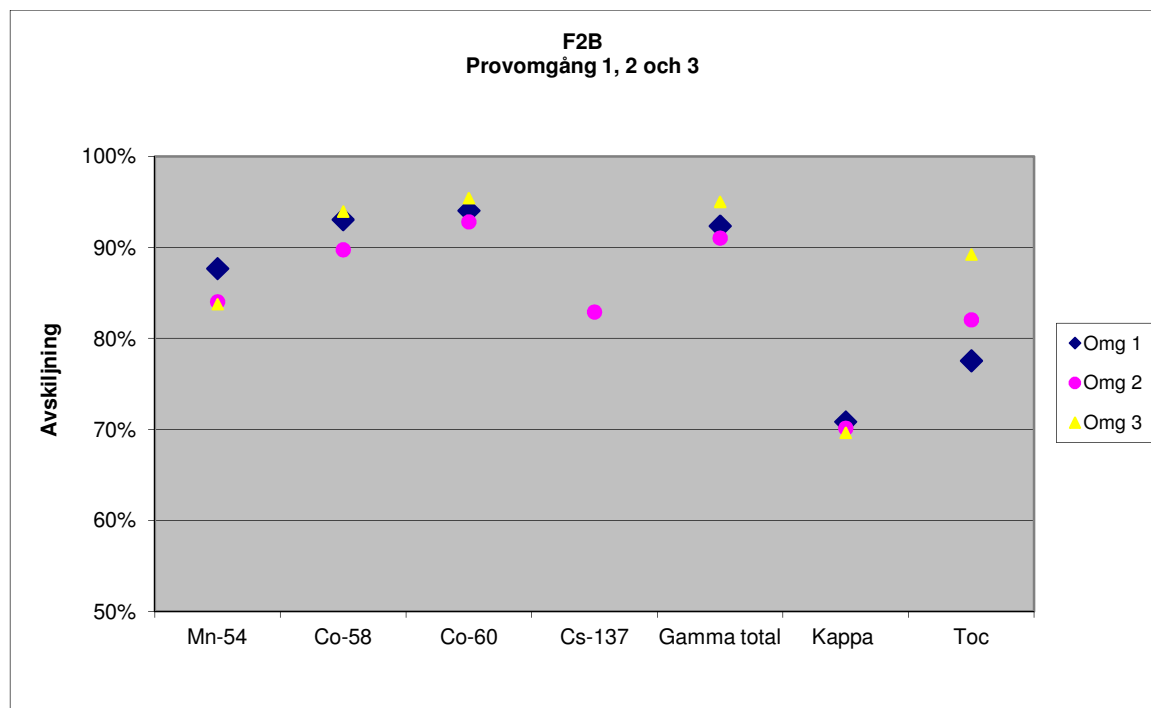


Fig 18. Avskiljningen för provomgång 1, 2 och 3 för membran F2 testat med vatten B.

5.6. Massbalans

Massbalansen beräknas som permeat plus koncentrat dividerat med feeden. I de fall där halten i ett flöde ligger under detektionsgräns eller fattas sätts det till noll, och beräkningen utförs ändå. Detta blir dock inte helt rättvisande, men att söka ut varje detektionsgräns och sätta massbalansen som större eller mindre än blir även det knepigt.

En massbalans på 100 % är önskvärt. Det säger att det som kommer in i anläggningen går ut igen samt att metod och resultaten är tillförlitliga. För membranfiltrering är dock en mycket liten ansamling av material på membranet väntad. Avskiljningsberäkningarna som behandlas i tidigare kapitel är oberoende av om ämnena fastnar i anläggningen eller avskiljs i koncentratet. Förändring i flöde och tryck kan tyda på beläggning i membranet. Tyvärr finns för dessa inte tillräckliga iakttagelser.

För testvätska A, provomgång 1 till 3, är massbalansen för de studerade ämnena varierande. Och i de allra flesta fall, undantaget bor och ledningsförmåga, under 100 %. En tolkning är att de studerade ämnena ansamlas i systemet eller att metoden för studie är otillräcklig. Troligen påverkar drifttid och driftinställningar ämnenas uppehållstid, fördelning och ansamling. Vid studie av den totala gamma detektionen vid försöken med testvätska A närmar sig massbalansen hundra procent som en funktion av porstorleken (Se fig 19). Det följer teoretiska förväntningar och tyder på att metoden som används är tillräcklig. Ytterligare resonemang kring detta följer i diskussionen nedan om ytdosrat.

Vid studie av testvätska A och nukliderna Co-60 och Mn-54 ses en hög och jämn avskiljning mellan provomgångarna samt massbalansen som funktion av porstorleken. Se bilaga 5. När massbalansen inte når upp till 100 procent och det syns ett mönster gentemot porstorleken är det troligen för att ett antal procent av de aktiva ämnena ansamlas i anläggningen, på membranet. För bor och ledningsförmåga uppgick massbalansen till nästan 100 % vid försök med alla membran utom det tätaste F0.

För ledningsförmågan (kappa) och bor är massbalansen nästan 100 % för alla membran utom F0. Massbalansen för TOC är mycket varierande, orsaken till detta är inte undersökt. Möjligen kan det vara så att all löst TOC inte sköljdes ut vid tvätten utan istället visade sig vid nästkommande test.

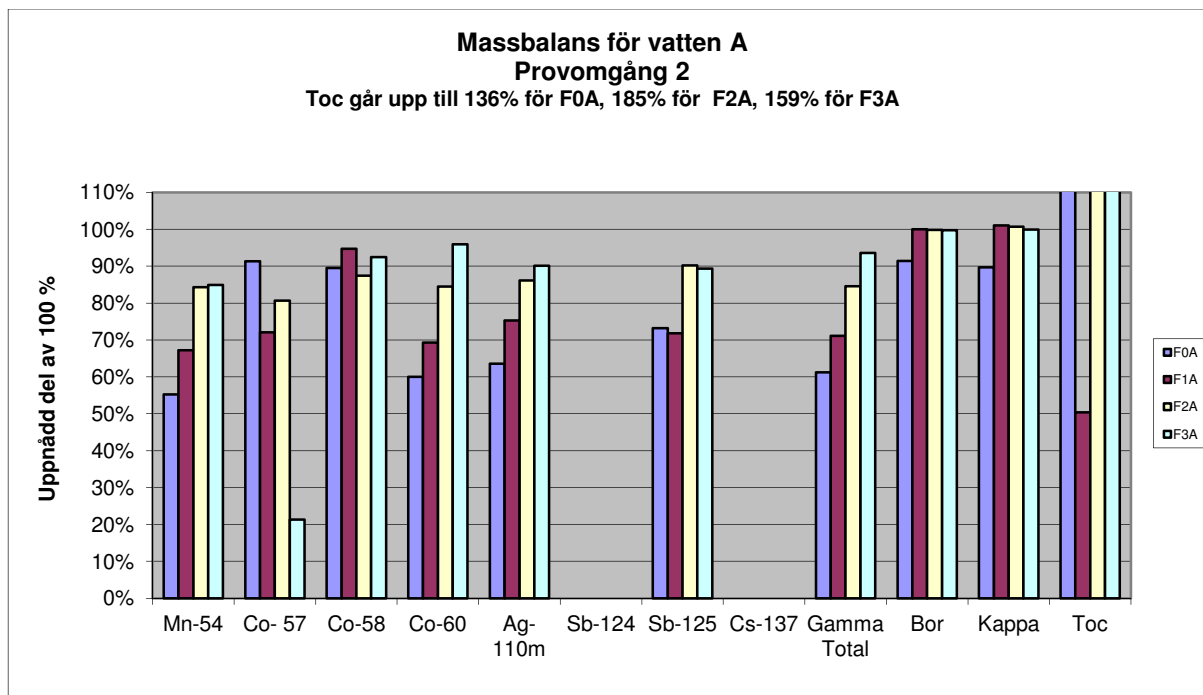


Fig 19. Massbalansen för provomgång 2 då membranen testas med vatten A.

Testvätska B var den vätska som testas först i varje membran, därefter gjordes försöken med test vätska A. Massbalansen för testvätska B är mer varierande än för vätska A. Vid vissa försök med testvätska B registrerades en massbalansen på över 100 %. Dessa fall är membran F3, testvätska B och nuklider är C-58 i provomgång 1, Mn-54 i provomgång 2 och gamma total i provomgång 3 (Se bilaga 6). Den totala gamma detektion är även högre i omgång 2 för membranet F3. Detta beror till viss på att Mn-54 hade ett värde högt över 100 % just i det fallet. För några försök kan massbalansen för Ag-110m inte beräknas eftersom nukliden inte var detekterbar i feeden. För F1 och vätska B är dock massbalansen för Ag-110m beräknad till över 100 %. Att massbalansen inte är jämn och nära 100 % innebär att trovärdigheten på resultaten för avskiljningen kan ifrågasättas. Dock diskuteras inte detta vidare.

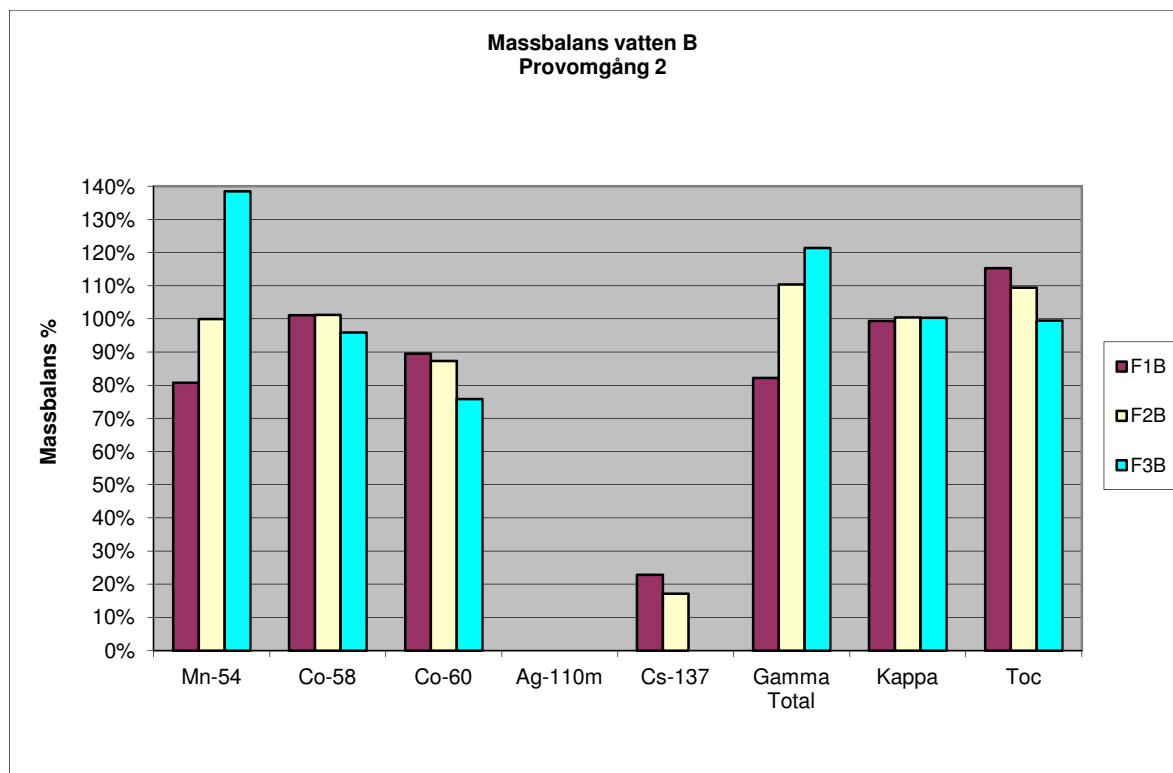


Fig 20. Massbalansen för provomgång 2 då membranen testas med vatten B.

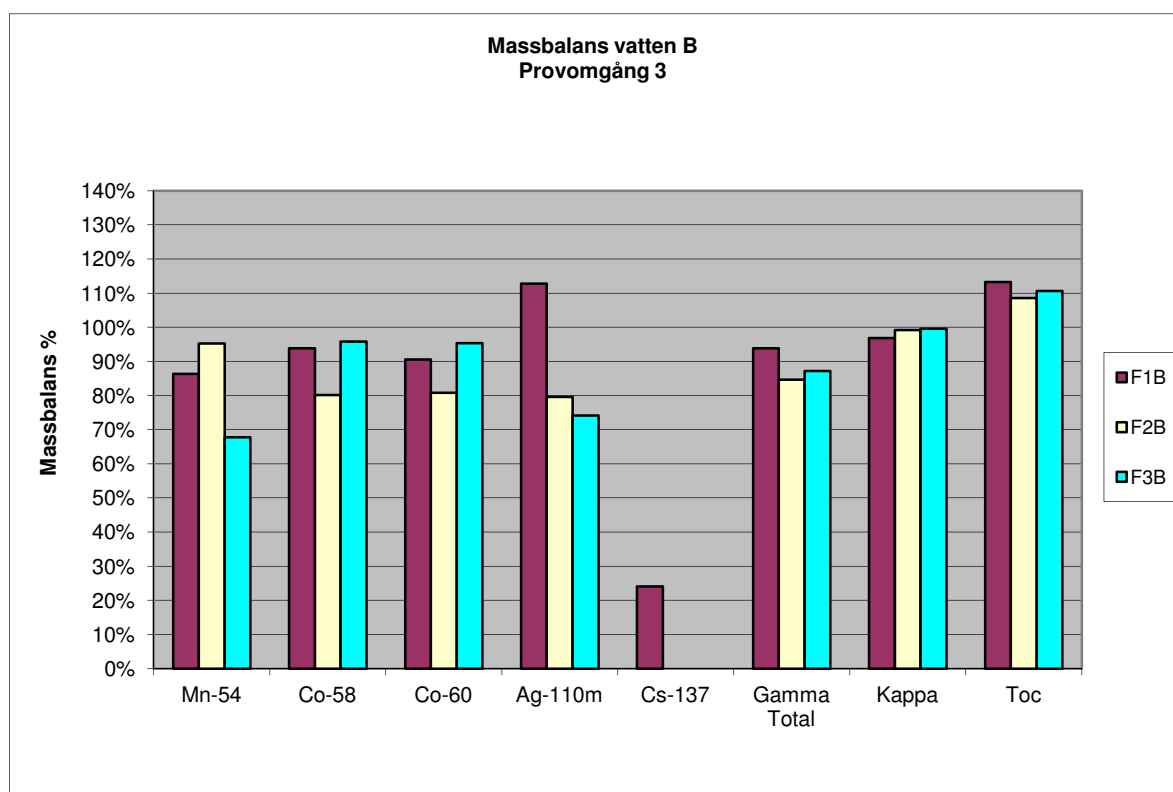


Fig 21. Massbalansen för provomgång 3 då membranen testas med vatten B.

5.6.1. Ytdosrat för vatten A

Vatten B har relativt låg aktivitet i jämförelse med vatten A. Därför redovisas ingen ytdosrat för membrantesterna utförda med vatten B.

Ansamlingen av radioaktiva nuklider och fouling i anläggningen är bra att tänka på när vid filtrering av radioaktivt vatten. Nu handlade inte detta projekt inte om fouling. Men det är bra att förbereda sig på att en ackumulering av aktivitet i anläggningen samt att under drift hålla uppsikt på mängden strålning som avges från anläggningen. Fig 22 illustrerar den ytdosrat som uppmättes upp på behållaren för membrankapseln efter att varje membran testats med vätska A. De olika filtren ger olika koncentrationsförändring i feeden vilket kanske påverkar ansamlingen av radioaktiva ämnen på filtren och därmed den dos som sänds till omgivningen.

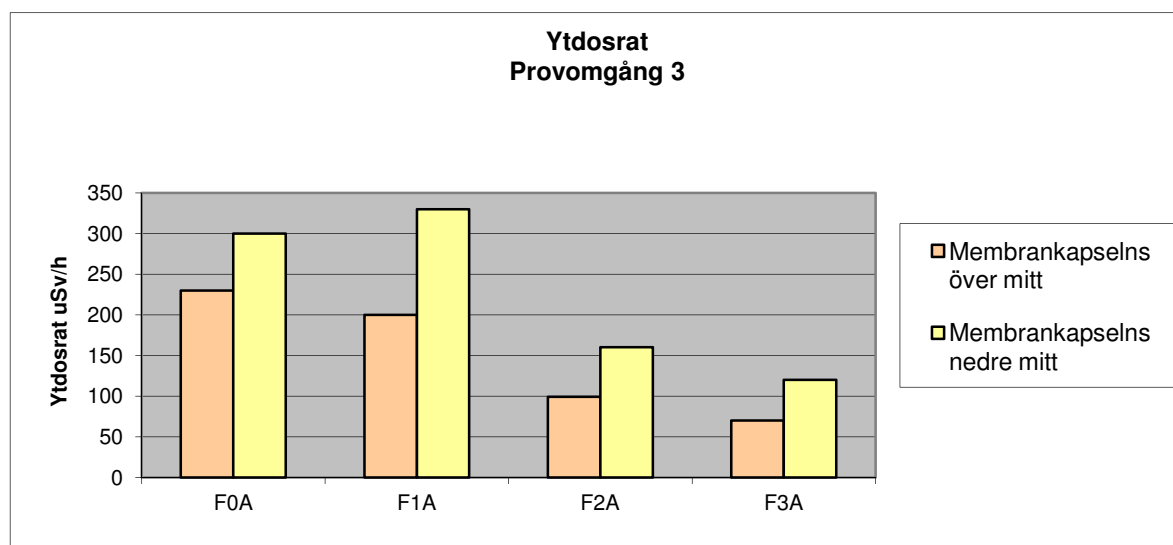


Fig 22. Ytdosrat pÅ membrankapseln behållare vid provomgång 3.

En liten avvikelse från 100 % i massbalans är troligen pga. handhavanden och standardavvikelse, dock inte så mycket som för massbalansen för gamma total i Tabell 7. Massbalansen för gamma total håller sig dessutom konsekvent under 100 % men ökar med ökande porstorlek. För membranF0, F1 och F2 försvinner alltså ett antal procent av de studerade aktiva ämnena mellan provtagningspunkten för feeden och för koncentratet och permeatet. PÅ membrankapseln uppmättes upp en ytdosrat högre än för lösningen och som även ökade med drifttiden. Det tyder pÅ en ansamling, beläggning pÅ membranet. Ökningen i dosrat med drifttid Illustreras i Fig 23 och 24.

Tabell 7: Tabellen visar gamma total i feeden för vatten vid anläggningens start och massbalansen vid provomgång 1 till3.

Filter, vatten	Gamma total i feeden vid provomgång 1 Bq/kg	Omg 1	Omg 2	Omg 3
F0A	8,65E4 Bq/kg	68%	61%	69%
F1A	9,10E4 Bq/ kg	69%	71%	73%
F2A	5,93E4 Bq/kg	80 %	85 %	83 %
F3A	4,64E4 Bq/kg	91 %	94 %	94 %

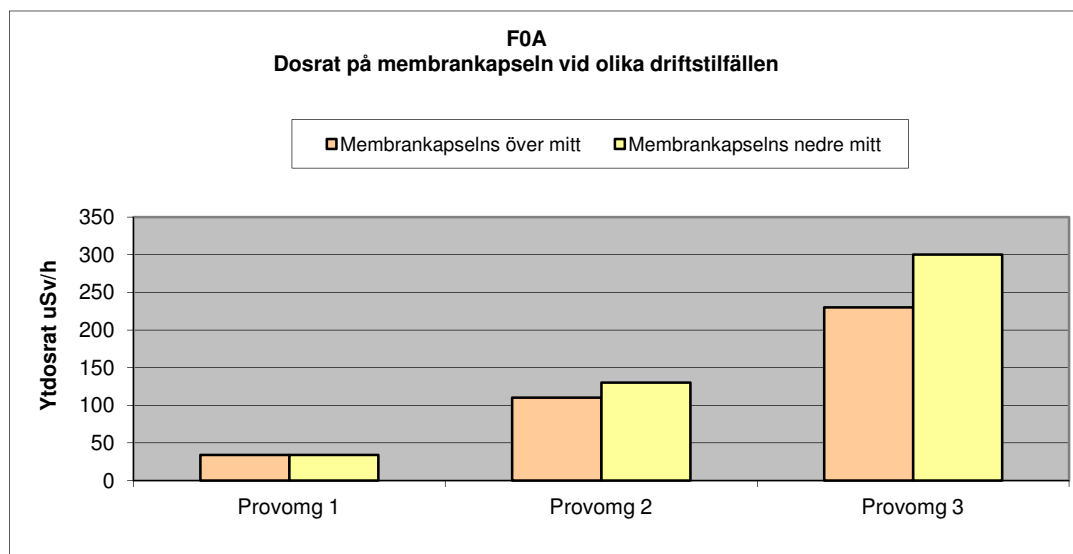


Fig 23. ”Dosrat på membrankapseln vid olika driftstillfällen” visar den ungefärliga dosraten ($\mu\text{Sv/h}$) på membrankapseln vid tillfället för de olika provomgångarna.

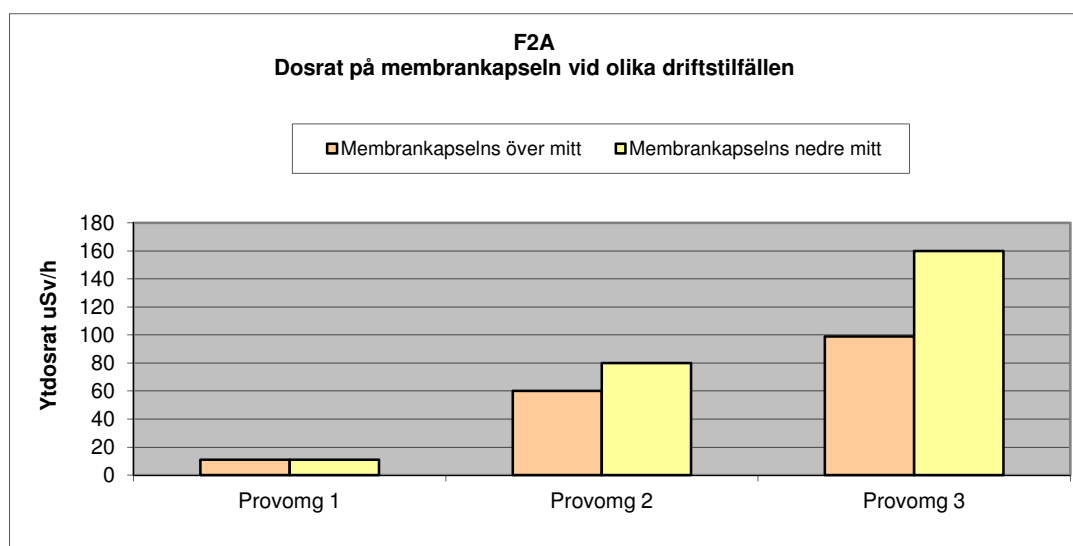


Fig 24. ”Dosrat på membrankapseln vid olika driftstillfällen” visar den ungefärliga dosraten ($\mu\text{Sv/h}$) på membrankapseln vid tillfället för de olika provomgångarna.

Membranen F0 och F1 testades med vatten A tvättades de med lut. Trots det förblev ytdosraten på ungefär samma värde som uppmättes vid provomgång 3. Med lut tvättas till organiskt material bort. Att inte aktiviteten tvättades bort skulle kunna betyda att större delen av nukleiderna som samlades på membranet inte var bundna i organiska föreningar. Det kan även betyda att tvätten misslyckades eller eventuellt att de aktiva ämnena satt fast inuti membranet, istället för som beläggning utanpå membranet. Ytdosraten borde ha mätts och därefter borde membranet tvättats med syra för att ta reda på hur lätt eller svårt det var att tvätta bort ansamlingen av radioaktiva partiklar i anläggningen och på membranet.

Jämförs massbalansen i Tabell 7 för provomgång tre med Fig 22 kan följande antagande göras. Med ökande porstorlek minskar ytdosraten och att den ”försvunna massan” troligast är beläggning på membranet. Ur strålningssynpunkt är det synnerligen viktigt att tänka på om man ska filtrera mycket och högaktivt vatten, och sedan hantera filtrat.

5.7. Iakttagelser

När testvätska B bubblades med luft för att få omrörning under försöken skummade vattnet. Det tyder på att det innehöll ämnen som kan fungera som ”tvättmedel”. Vattnet var även synbart smutsfärgat och luktade illa. Det visade tecken på att det innehöll kolloider och tensider.

Då sista omgången vatten skulle tas ut ur förvaringstanken för vardera vätska A och vätska B iaktogs att en skinnliknande yta hade bildats på vattnet. Efter försök med membran F0 och vatten A samt försök med membran F2 samt vatten A eller vatten B, fanns kakor av något ljusbrunt eller orangebrunt i botten på feedtanken. Det gick inte att undersöka dessa närmare pga. tankens utformning. Därför antog då att det var slam eller organiskt material som hade flockat och sedimenterat på botten. Just där luft bubblades ned för att få omrörningen fanns det inget brunt skikt på tankbotten. Senare upptäckts att det satt metall i flödesglaset, på den magnetiska flytkroppen. Det hade alltså det hade kommit in rost i systemet. Vad som tidigare hade antagits vara slam i botten av feedtanken kunde ha varit rost som tillförts utifrån. Eller en blandning av rost och organiskt material. Rosten identifierades genom sin färg, att den var magnetisk och undersökning i svepelektronmikroskop visade att den innehöll kolstål. Den härleddes till de tomma oljefat som användes för att flytta vattnet från sin förvaringstank till anläggningen. Detta skedde för alla membran utom F3.

För membran F2 testat med vätska A det fanns stora variationer i halt Co-57 och Co-58 mellan provomgångarna. Det skulle kunna bero på rosten men är inte troligen eftersom membran F3 uppvisar för liknande tendenser Co-57. Vid test av membran F3 var anläggningen helt fri från rost efter att sanering gjorts och tillförseln av rost stoppats.

5.8. Felkällor

Vid några tillfällen kontrollerades flödet genom manuella mätningar under en minut med tidtagarur och mätglas. Vid manuella mätningar under försök med membran F2 och F3 höll sig inte flödet på de 25 l/h som flödesmätaren visade. Istället erhöles vid manuella mätningar ett permeatflödet mellan 25 – 30 l/h. Detta skulle då ge ett flux mellan 15-19 LMH. För en lättare jämförande bedömning och enklare slutsatser var det meningen att flödet skulle vara inställt så att alla fyra filtren höll ett flux på ca 15-16 LMH. I rapportens resultat och diskussions avsnitt och i alla beräkningar användes de flöden som avlästes i flödesglasen. Om de på flödesglaset avlästa permeatflödet inte stämmer med det egentliga flödet påverkar det avskiljnings och massbalansberäkningarna. Görs avskiljningsberäkningarna med det manuellt uppmätta permeatflödet var den egentliga avskiljningen bara någon procent lägre. Däremot får det stor effekt på beräkningarna för massbalansen.

Vid testet av membran F2 med vatten B hade en minskning i temperatur skett innan provuttaget med minskat flöde och ökat differenstryck som följd. En kvart innan provuttag tre skulle ske upptäcktes detta och permeat och koncentrat flödet reglerades upp. Då steg permeatflödet över de önskade 25 l/h, till det mer svåravlästa området, och uppskattades vid provuttaget till 27 l/h. Koncentratflödet låg vid provuttaget något lågt ca 49 l/h. Osäkerheten i flödesavläsningen kan påverka avskiljningsberäkningen något, men bara någon procent. Skulle flödet istället ha varit 25 eller 27 l/h skulle avskiljningsgraden ha påverkats omkring plus minus 2 %. Hur mycket det påverkas beror på halten bequerel/kg i provet. Alltså är vatten B känsligare än vatten A för de fel som kan ha uppkommit vid flödesavläsning. Halten gammatrålande ämnen i proven anges vid analysen i Bq/kg avrundat på formen 1,99E1 2,34E3 osv. (motsvarar $1,99 \cdot 10^1$, $2,34 \cdot 10^3$, ...). Driftsreglering innan provuttaget och att temperaturen varierade mellan 18 till 21 grader Celsius är inget som ser ut att påverka avskiljningen.

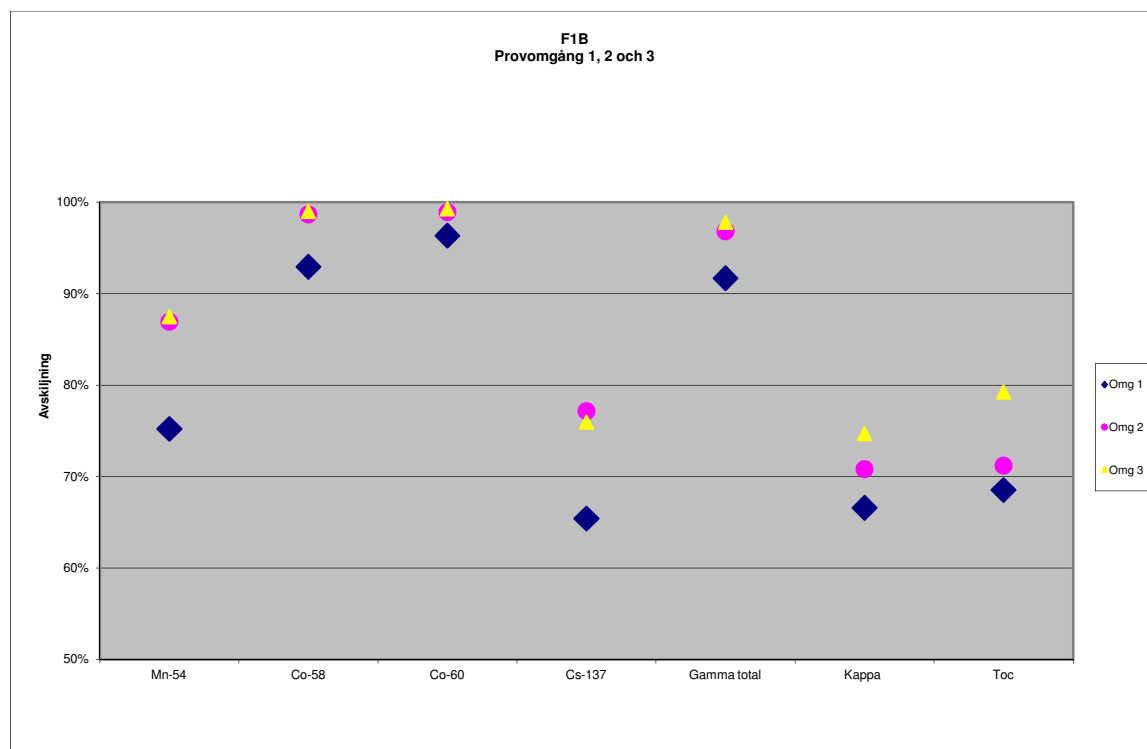


Fig 24. Avskiljningen för provomgång 1, 2 och 3 för membran F1 testat med vatten B.

I diagrammet Fig 25 är provomgång 2 och 3 ganska lika men provomgång 1 håller en genomgående lägre avskiljning än de övriga försöken med vätska B. Det borde inte bero på osäkerheten i flödesavläsningen (tex25 el 27 l/h) eftersom det påverkar avskiljningsberäkningen bara några procent. Den första gången membranet testades var det med vätska B. Innan test med vätska A kördes en tvättlösning genom membranet. Provomgång 1 togs ut ca 10 min efter start, kanske hade membranet inte hunnit få någon beläggning som kan hjälpa till vid avskiljningen. Å andra sidan brukar ultramembran som F2 och F3 direkt drabbas av så kallas koncentrationspolarisering som ger ett tunt lager på membranet. Möjligen kan skillnaden bero på att det var det första testet som gjordes och utförandet var inte helt bestämt bland annat med avseende på vilka volymer som skulle analyseras, provpunkterna spolades inte ordentligt innan uttag. Att mindre avvikelser och fel kan ha uppstått i samband med avläsning, då vattnet hanterades för analys och enligt standardavvikelser går inte att komma ifrån.

6. Slutsatser

I detta projekt är en hög avskiljning av radioaktiva nuklider ytterst önskvärt samtidigt som en strävan mot endast en låg uppkoncentrering av borhalten. Fyra olika membran (F0-F3) med olika täthet (upp till 25000 Da), testades med två olika vätskor med olika sammansättning. Testvätska A hade hög aktivitet, låg TOC-halt och låg ledningsförmåga, medan vätska B hade låg aktivitet, hög TOC-halt och hög ledningsförmåga. Vätska A var det enda vattnet med tillräckligt hög borhalt (> 20 ppm) för en säker boranalys från laboratoriet.

Avskiljningen varierar med sammansättningen. Generellt sett uppvisade alla membran testade med vätska A en högre total aktivitets avskiljning än då samma membran testas med vätska B, som var lågaktiv. För nukliden Mn-54 var differensen som störst, omkring en 15 % lägre avskiljning för vatten B än vatten A. Dock skiljer sig Co-58 från detta generella mönster och visar istället högst avskiljning vid försök med vätska B. En orsak till detta skulle kunna vara att Co-58 skiftar mellan jon- och partikelform vid de olika förhållandena i vätska A och B.

Denna studie omfattade främst frågeställningar kring vilken porstorlek på membranet som gav hög radioaktiv nukleidavskiljning samt låg boravskiljning. Studien tyder på att membran med porstorleken 300-1000 Da (motsvarande membran F1 och F2) var mest lämpade. Membran F1 uppvisade hög avskiljning av de flesta nukliderna, relativt låg avskiljning av bor men dock en hög ytdosrat. Membran F2 uppvisade lägre, men jämn avskiljning för alla studerade nuklider samt en ganska låg avskiljning av bor och låg ytdosrat. Membran F0 och F3 gav inte önskvärt resultat.

Membranen avskiljde olika radionuklider i olika stor utsträckning beroende på i vilken av de två vätskorna som användes vid testerna. Det visade sig även att ju tätare membranet var och ju mer vätska som passerade, desto större radioaktiv dos sände membranet till omgivningen. Något som berodde på en ansamling av radioaktiva ämnen på membranet, något som bör beaktas vid ytterligare studier.

För att kartlägga inom vilka ramar avskiljningen kan tänkas röra sig och för att finna ett membran med acceptabel avskiljning för huvuddelen av vattnen på avfallsavdelningen rekommenderas ytterligare tester med flera olika typer av membran och testvätskor av relevant kvalitet. En möjlig fortsättning på detta examensarbete skulle kunna vara att mer ingående studera membran med olika ytskikt och uppbyggnad för att ta reda på dess effekt för den önskade avskiljningen. Litteraturstudie och erfarenheter av detta projekt gör det troligt att en kombination av olika porösa membran och tekniker, så som jonbytare kommer att behövas för att särskilja boret och samtidigt komma ned till de önskvärda utsläppsmålen.

Referenser

- [1] W. Baker R., (2004), Membrane Technology and Application, West Sussex, England: John Wiley & Sons, 2:a upplagan
- [2] J.D Seader, Ernest J. Henly, (2006), Separation Process Principles, Kapitel 14, USA: John Wiley & Sons, 2:a upplagan
- [3] Urban Grén., Hans Theliander, (1998), Grundläggande kemisk apparatteknik, Kapitel 7, Landvetter Sverige: JSM Mac o Print AB, 4:de upplagan
- [4] Jönsson A-S., Jönsson B., (2000) Membranprocesser, Kursmaterial, LTH
- [5] Leif Klasson. et al., Internt utbildnings dokument Ringhals, Introduktionspärm PWR- Kemi. Sökdatum 26/1-2010
- [6] Hemsida: Kochmembrane systems, Besökt 2010-02-03. Tillgänglig på www.kochmembrane.com, http://www.kochmembrane.com/prod_spiral.html
- [7] Muntlig kommunikation, Carl- Henrik Hansson, Nordcap Membrane Consulting. Citerad i: Moa Eriksson Örtengren. Bachelor of Science Thesis at Chalmers university of technology, Separation av organiskt material, Framställning av ultrarent vatten med omvänd osmos utnyttjande membranteknik, (2009), Göteborg Sverige
- [8] Muntlig kommunikation, (2009), Carl- Henrik Hansson, Nordcap Membrane Consulting.
- [9] Syed Naeem Ahmed., (2007), Physics and energy of radiation detection, Kapitel 5, Great Britain, Elsevier, 1:a upplagan.
- [10] General theory and introduction to gamma spectroscopy, 1998-09-30, Canberra Packard.
- [11] Hemsida: Kemikalieinspektionen, Cobalt. Besökt 2010-02-09. Tillgänglig på http://apps.kemi.se/flodessok/floden/kemamne/oorganiska_koboltforeningar.htm
- [12] Hemsida: Wikipedia, Mangan. Besökt 2010-02-09. Tillgänglig på <http://sv.wikipedia.org/wiki/Mangan>
- [8] Muntlig kommunikation, (2009), Anders Höglund, Avfallets avdelning, Ringhals.

Bilaga 1.

Beräkningar

F= Feedflöde l/h

K= Koncentratflöde l/h

P= Permeatflöde l/h

f= halt av analyserat ämne i feed

k= halt av analyserat ämne i koncentrat

p= halt av analyserat ämne i permeatet

Vattnets densitet ansätts till 1 kg/l.

a. Flödesberäkningar

Flödet för det i feeden analyserade ämnet: $F*f$

Flödet för det i koncentratet analyserade ämnet: $K*k$

Flödet för det i permeatatet analyserade ämnet: $F*f$

För radioaktiva nuklider $F*f$ blir enheterna $\frac{l * Bq}{h * kg}$. Ansätts vattnets densitet till 1 kg/l fås enheten $\frac{Bq}{h}$

Analysresultatet för TOC och Bor anges i ppm. Då blir enheterna för $F*f$ följande $\frac{l * mg}{h * kg}$

Ansätts vattnets densitet till 1 kg/l fås enheten $\frac{mg}{h}$

För $F*f$ sett till ledningsförmågan är enheten $\frac{uS * l}{cm * h}$

b. Avskiljningsberäkning

Avskiljning beräknad mha permeatet. På detta sätt är avskiljningsberäkningarna gjorda om inget annat anges. Avskiljning i procent:

$$\frac{F * f - P * p}{F * f} * 100$$

Avskiljning beräknad mha koncentratet. Avskiljning i procent:

$$\frac{F * f - K * k}{F * f} * 100$$

Bilaga 1. (sid 2/2) Beräkningar

c. Massbalans

Massbalansen räknas som massa in dividerat med massa ut. Massbalans i procent:

$$\frac{P * p + K * k}{F * f} * 100$$

Massbalans i procent, då p är under detektionsgräns:

$$\frac{K * k}{F * f} * 100$$

Massbalans i procent, då k är under detektionsgräns:

$$\frac{P * p}{F * f} * 100$$

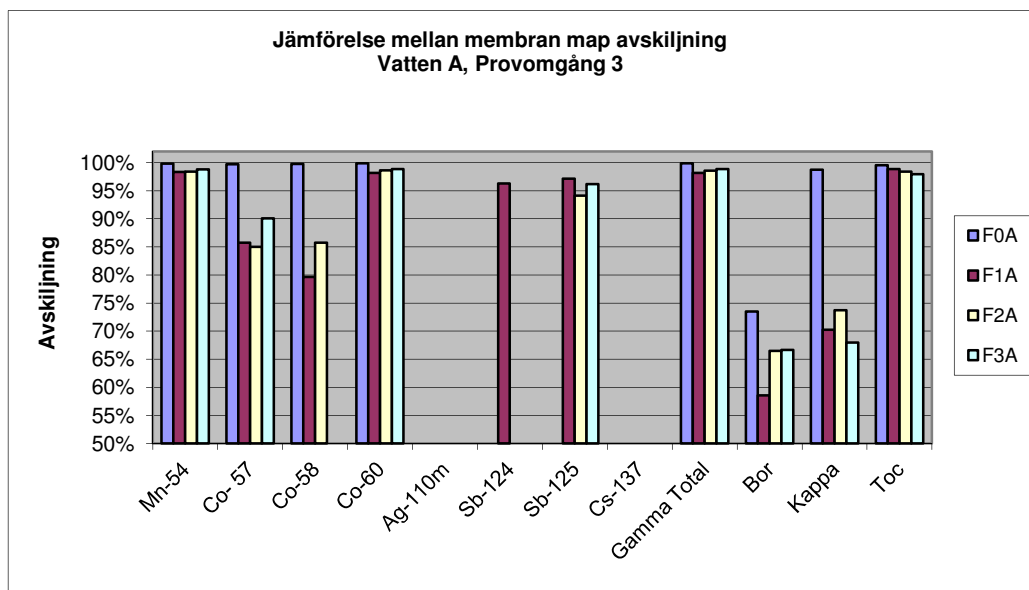
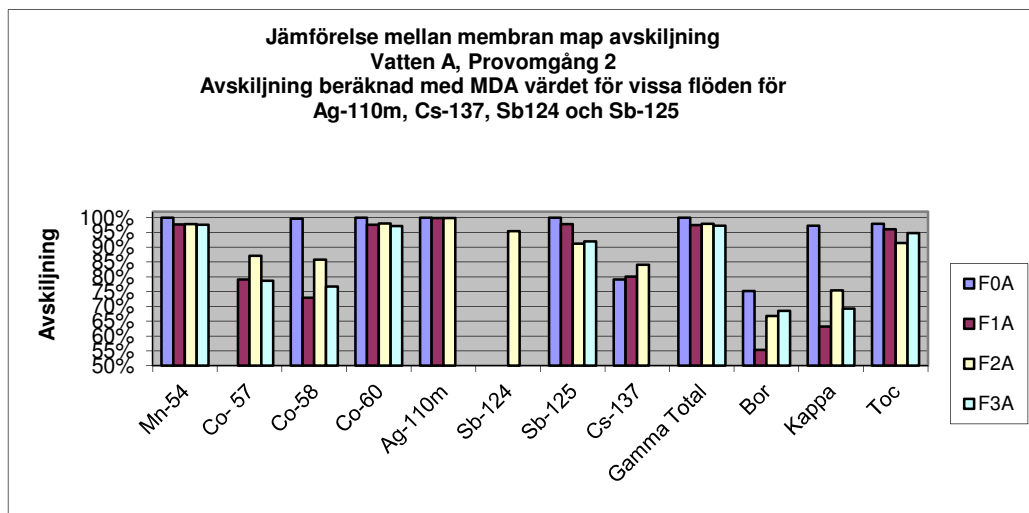
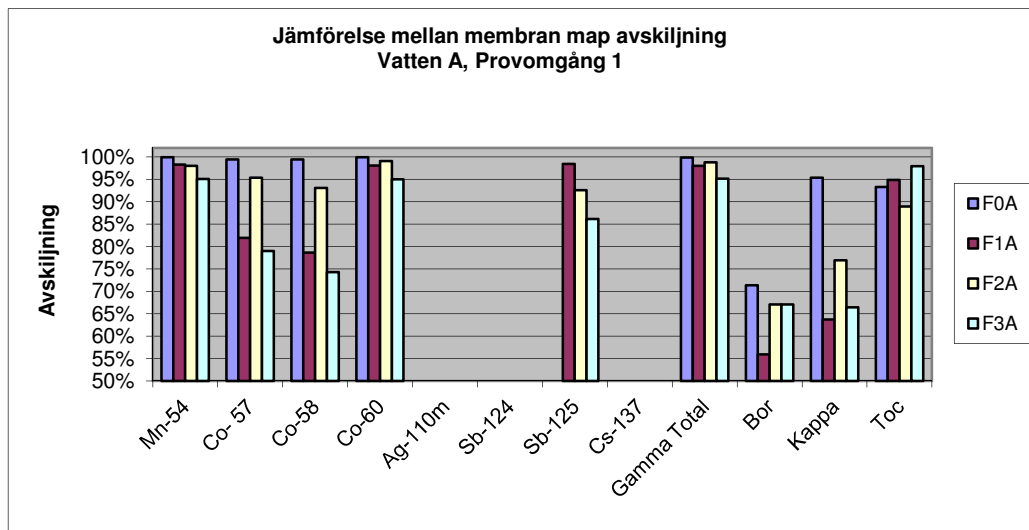
d. Medelvärde för avskiljningen för omgång 1, 2 och 3.

$$\frac{Avskiljningomgång_1 + Avskiljningomgång_2 + Avskiljningomgång_3}{3}$$

För ett av filtren: (Avskiljning omg 2 + Avskiljning omgång 3)/2= Medelvärde för avskiljningen.

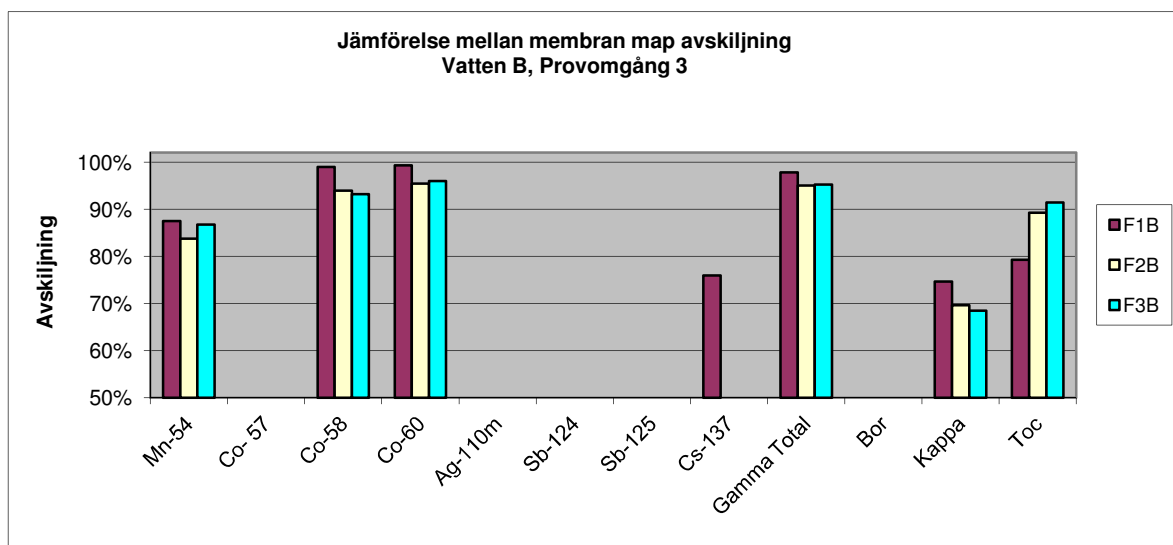
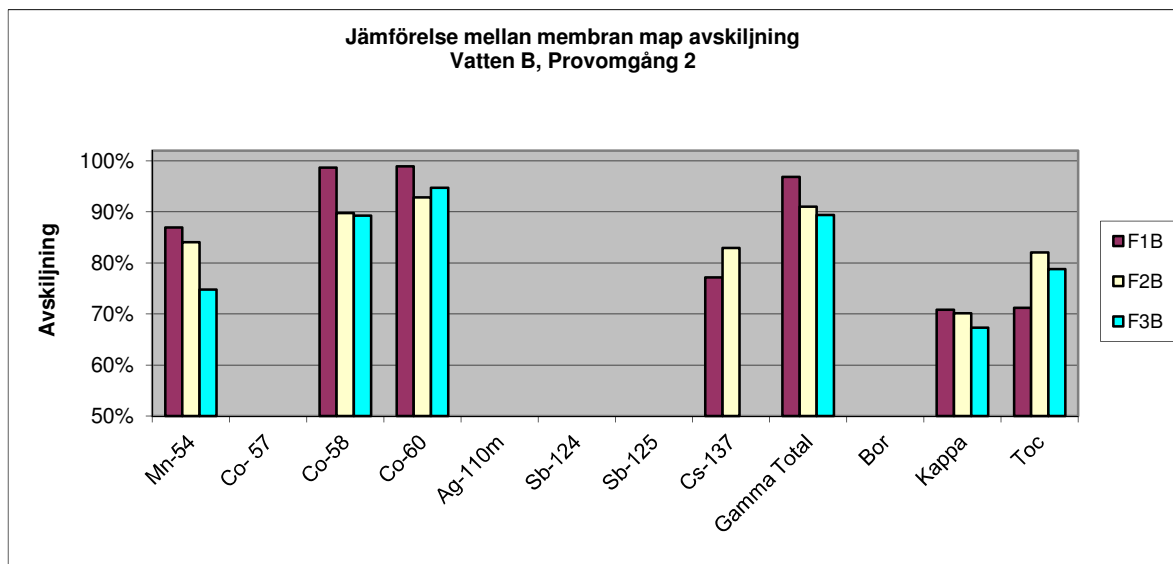
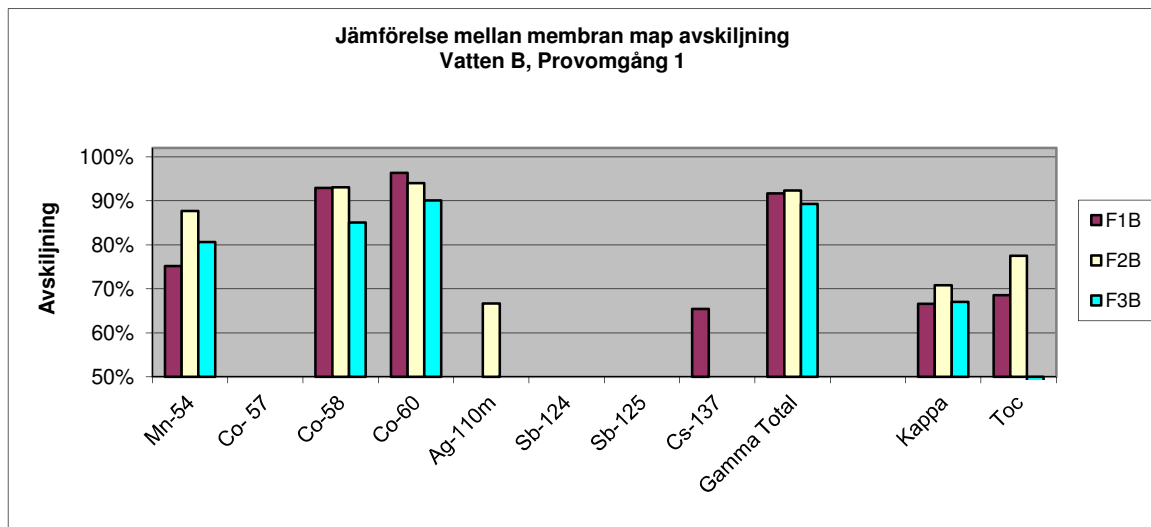
Bilaga 2.

Jämförelse mellan membranen med avseende på avskiljningen för vatten A.



Bilaga 3.

Jämförelse mellan membran med avseende på avskiljningen för vatten B



Bilaga 4.

Jämförelse mellan provomgång 1, 2 och 3 för vatten A respektive vatten B.

Illustrerat i form av en tabell över avskiljningen för varje provomgång inom varje fall, tex F0A är ett fall/ test.

Avskiljning vatten A

F0A

	Mn-54	Co- 57	Co-58	Co-60	Sb-125	Gamma Total	Kappa	Toc	Bor
Omg 1	0,9992	0,9947	0,9947	0,9995		0,9988	0,9536	0,9333	0,7138
Omg 2	0,999238		0,995979	0,999417		0,998895	0,972069	0,978845	0,751645
Omg 3	0,998563	0,997428	0,997733	0,999064		0,998853	0,987335	0,995737	0,734956

F1A

	Mn-54	Co- 57	Co-58	Co-60	Sb-125	Gamma Total	Kappa	Toc	Bor
Omg 1	0,9829	0,8195	0,7867	0,9808	0,9846	0,9800	0,6374	0,9490	0,5591
Omg 2	0,9772	0,7908	0,7290	0,9752	0,9782	0,9748	0,6324	0,9608	0,5535
Omg 3	0,9834	0,8576	0,7967	0,9816	0,9714	0,9816	0,7024	0,9884	0,5859

F2A

	Mn-54	Co- 57	Co-58	Co-60	Sb-125	Gamma Total	Kappa	Toc	Bor
Omg 1	0,9801	0,9538	0,9310	0,9910	0,9258	0,9883	0,7693	0,8896	0,6707
Omg 2	0,9780	0,8707	0,8575	0,9804	0,9119	0,9792	0,7546	0,9137	0,6680
Omg 3	0,9840	0,8503	0,8574	0,9861	0,9414	0,9857	0,7370	0,9842	0,6648

F3A

	Mn-54	Co- 57	Co-58	Co-60	Sb-125	Gamma Total	Kappa	Toc	Bor
Omg 1	0,9506	0,7898	0,7427	0,9500	0,8616	0,9515	0,6646	0,9798	0,6706
Omg 2	0,9755	0,7866	0,7667	0,9713	0,9195	0,9726	0,6928	0,9471	0,6849
Omg 3	0,9883	0,9011		0,9885	0,9616	0,9887	0,6798	0,9798	0,6667

Avskiljning vatten B

F1B

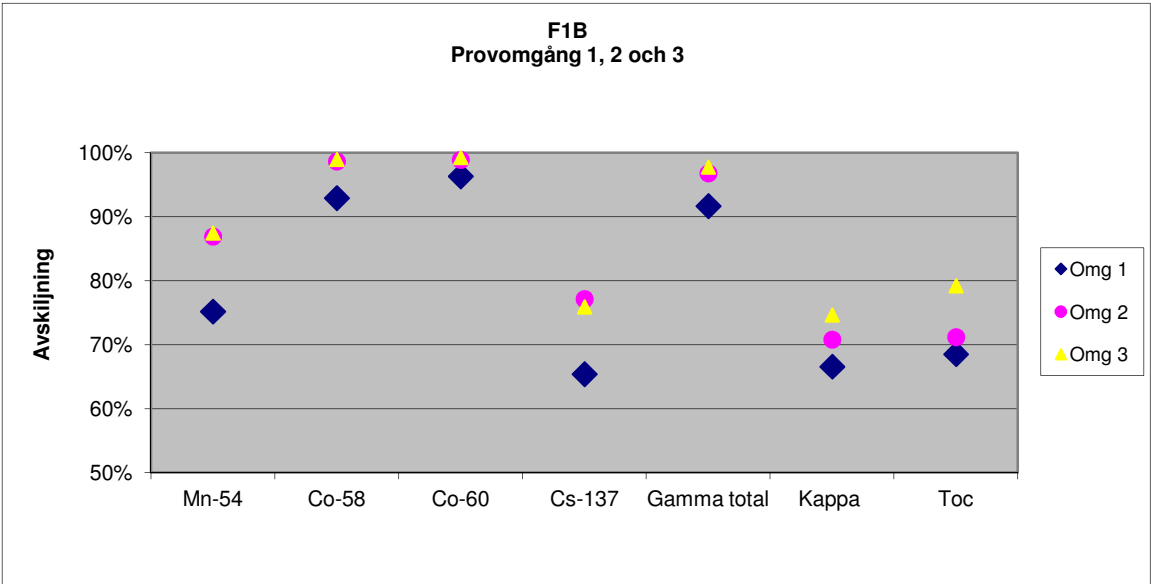
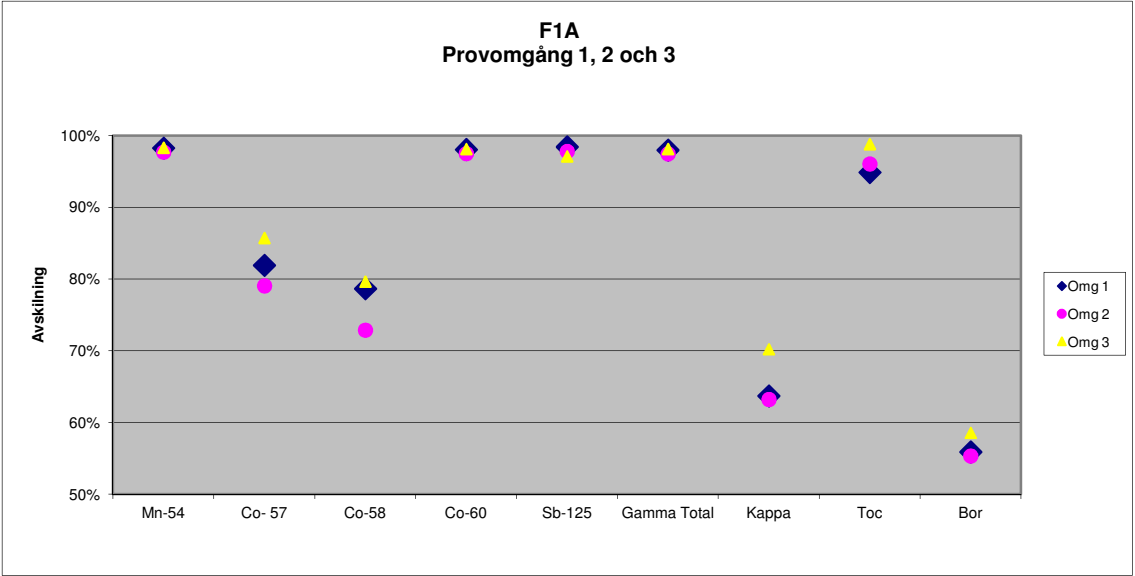
	Mn-54	Co-58	Co-60	Cs-137	Gamma total	Kappa	Toc
Omg 1	0,752094	0,929387	0,963439	0,65411	0,916889	0,665831	0,685355
Omg 2	0,869311	0,986757	0,989219	0,771578	0,968197	0,708207	0,712042
Omg 3	0,874868	0,989905	0,992845	0,759474	0,978061	0,746856	0,79253

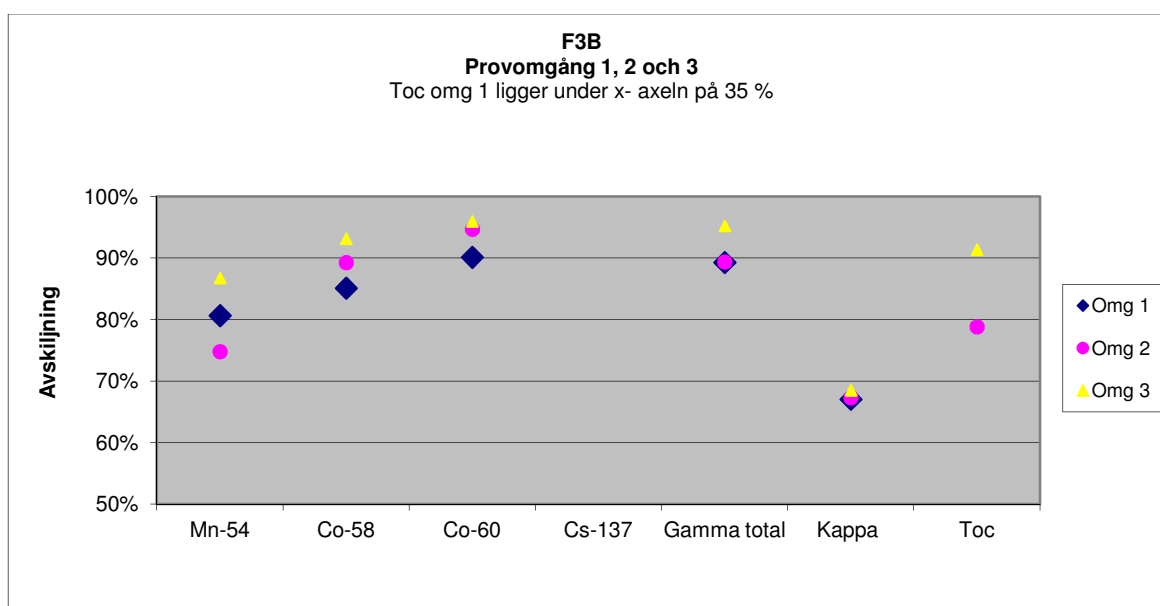
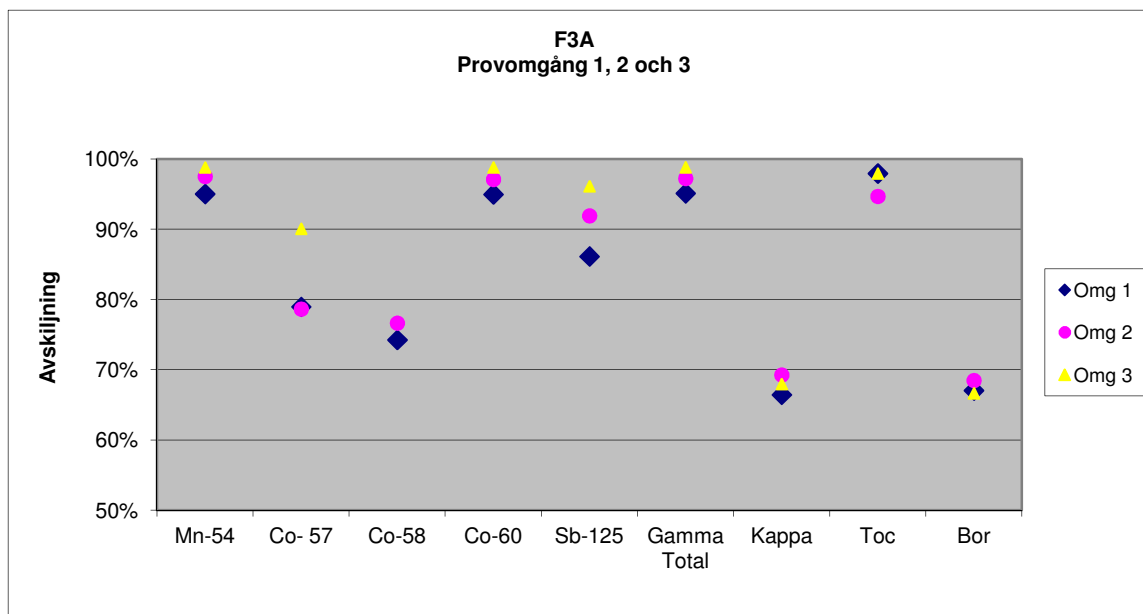
F2B

	Mn-54	Co-58	Co-60	Cs-137	Gamma total	Kappa	Toc
Omg 1	0,876788	0,9305	0,940437		0,923496	0,708333	0,775372
Omg 2	0,840239	0,897457	0,928077	0,829017	0,910287	0,701332	0,820449
Omg 3	0,837649	0,939406	0,954174		0,950032	0,696272	0,892263

F3B

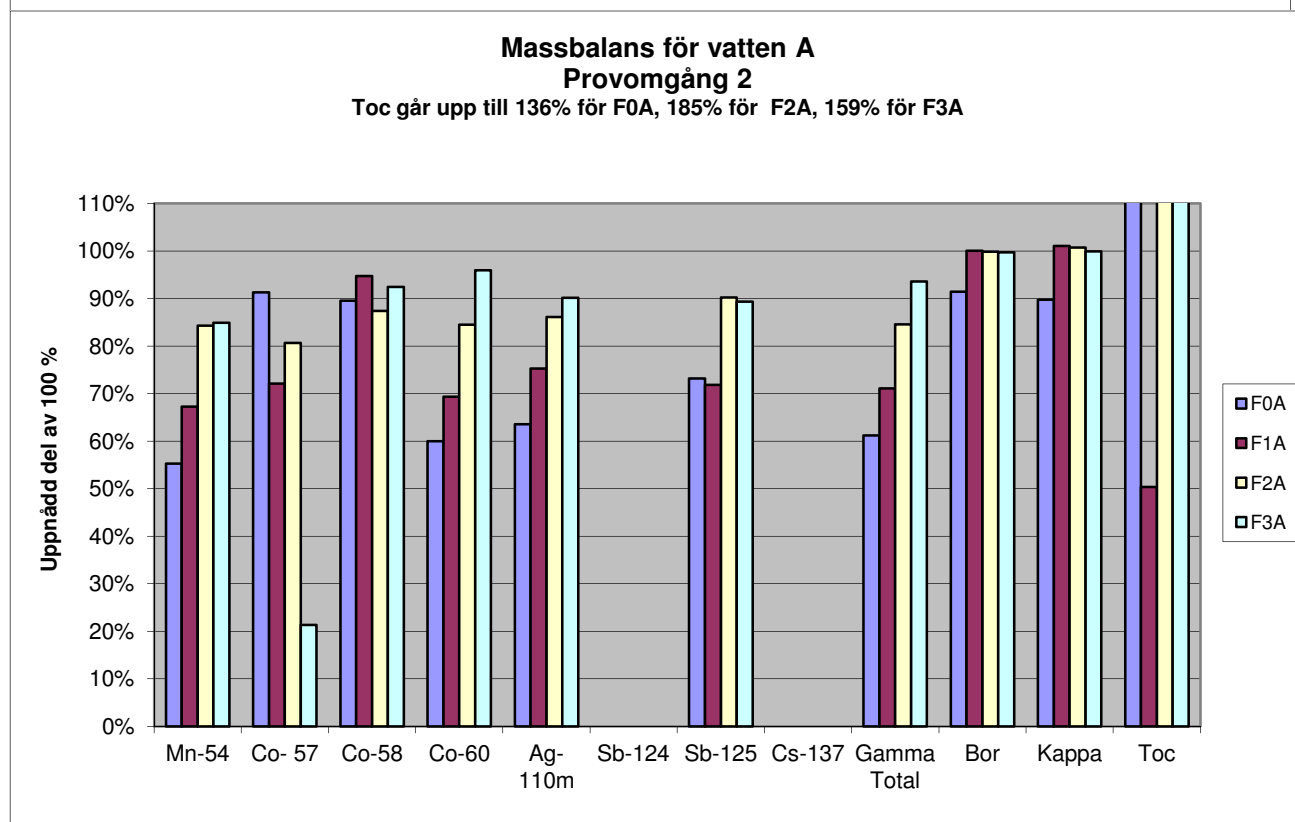
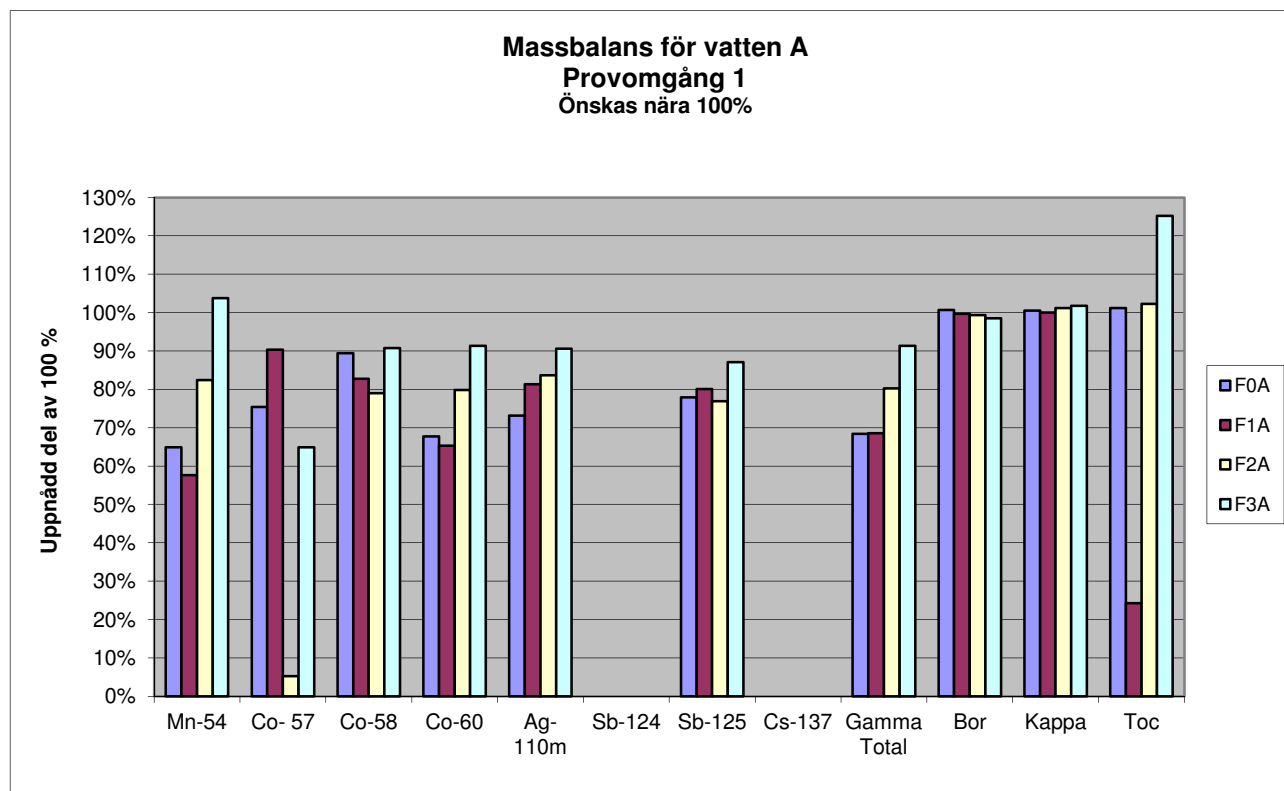
	Mn-54	Co-58	Co-60	Cs-137	Gamma total	Kappa	Toc
Omg 1	0,806452	0,85097	0,90128		0,892762	0,67044	0,34539
Omg 2	0,747795	0,892548	0,946795		0,893519	0,672886	0,788172
Omg 3	0,867541	0,931622	0,959543		0,952051	0,684942	0,913926



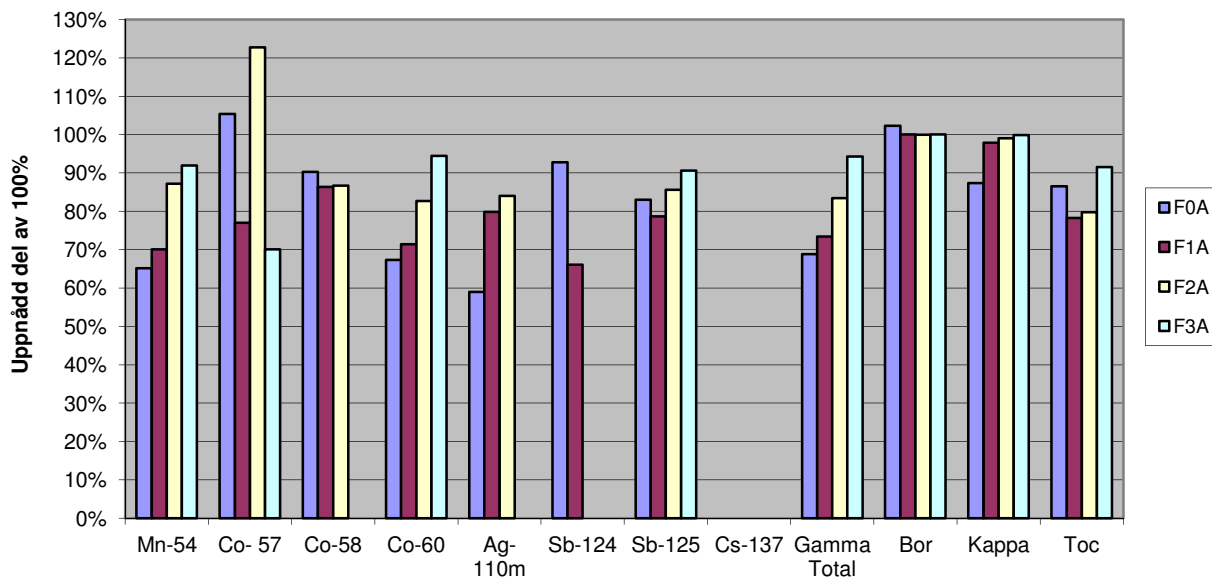


Bilaga 5.

Diagram och tabell över massbalansen för vatten A.



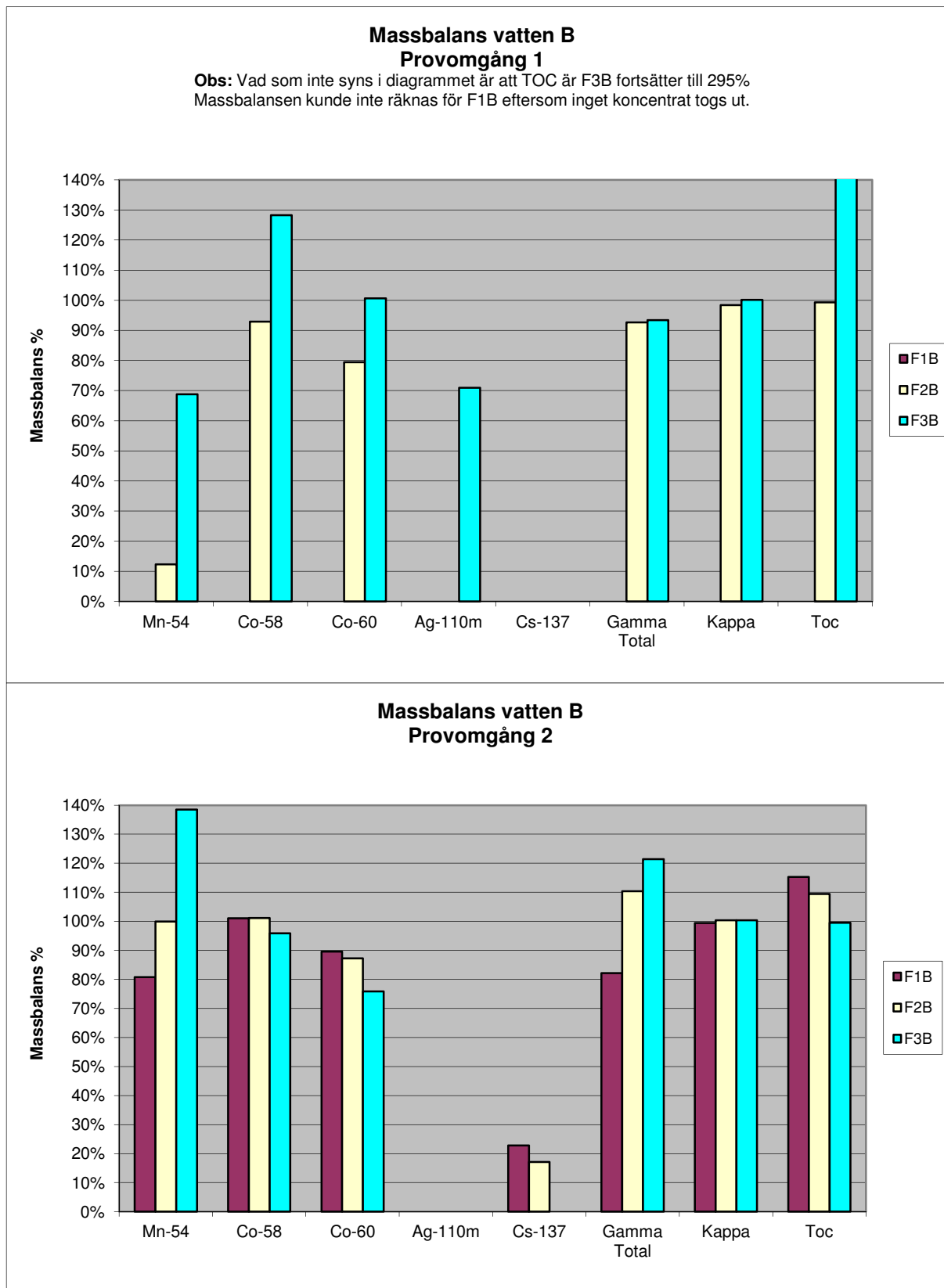
Massbalans för vatten A
Provomgång 3
 Önskas nära 100%

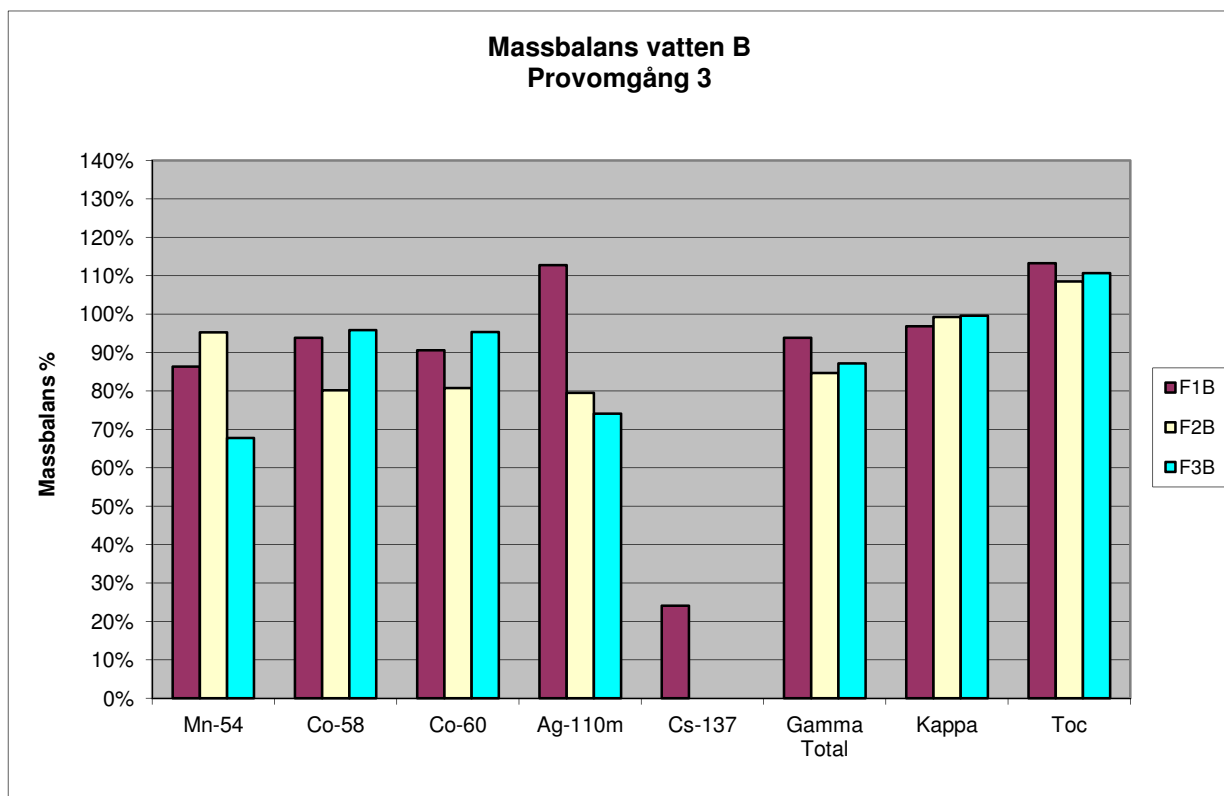


Massbalans vatten A											
Provomgång 1											
MDA											
Fall	Mn-54	Co- 57	Co-58	Co-60	Ag-110m	Sb-124	Sb-125	Gamma Total	Bor	Kappa	Toc
F0A	0,6485	0,7540	0,8943	0,6774	0,7312		0,779345	0,6843	1,0068	1,0051	1,0120
F1A	0,5766	0,9032	0,8271	0,6530	0,8131		0,8006	0,6859	0,9965	1,0000	0,2424
F2A	0,8238	0,0526	0,7901	0,7985	0,8368		0,7694	0,8020	0,9934	1,0117	1,0223
F3A	1,0376	0,6485	0,9078	0,9135	0,9056		0,8706	0,9134	0,9854	1,0175	1,2520
Provomgång 2											
Fall	Mn-54	Co- 57	Co-58	Co-60	Ag-110m	Sb-124	Sb-125	Gamma Total	Bor	Kappa	Toc
F0A	0,5526	0,9129	0,8954	0,6000	0,6352		0,731909	0,6122	0,9142	0,8971	1,3591
F1A	0,6723	0,7209	0,9472	0,6932	0,752709		0,7181	0,7108	1,0004	1,0103	0,5036
F2A	0,8431	0,8068	0,8740	0,8451	0,8609		0,9022	0,8454	0,9987	1,0072	1,8520
F3A	0,8489	0,2134	0,9245	0,9592	0,901458		0,8934	0,9359	0,9973	0,9993	1,5852
Provomgång 3											
Fall	Mn-54	Co- 57	Co-58	Co-60	Ag-110m	Sb-124	Sb-125	Gamma Total	Bor	Kappa	Toc
F0A	0,6515	1,0539	0,9029	0,6736	0,5902	0,927736	0,8299	0,6883	1,0233	0,8738	0,8651
F1A	0,7013	0,7704	0,8633	0,7144	0,7982	0,660777	0,7868	0,7346	1,0007	0,9790	0,7826
F2A	0,8717	1,2276	0,8666	0,8266	0,8404		0,8564	0,8345	0,9999	0,9901	0,7973
F3A	0,9198	0,7005		0,9449			0,9061	0,9428	1,0000	0,9987	0,9157

Bilaga 6.

Diagram och tabell över massbalansen för vatten B.





Massbalans vatten B								
Provomgång 1								
Fall	Mn-54	Co-58	Co-60	Ag-110m	Cs-137	Gamma Total	Kappa	Toc
F1B						ej uttaget ok		
F2B	0,1232	0,9292	0,7945			0,9266	0,9844	0,9932
F3B	0,6882	1,2831	1,0067	0,7096		0,9339	1,0013	2,9525
Provomgång 2								
Fall	Mn-54	Co-58	Co-60	Ag-110m	Cs-137	Gamma Total	Kappa	Toc
F1B	0,8074	1,0105	0,8956		0,228422	0,8219	0,9939	1,1527
F2B	0,9994	1,0116	0,8725		0,170983	1,1035	1,0040	1,0938
F3B	1,3845	0,9590	0,7583			1,2139	1,0037	0,9946
Provomgång 3								
Fall	Mn-54	Co-58	Co-60	Ag-110m	Cs-137	Gamma Total	Kappa	Toc
F1B	0,8633	0,9387	0,9057	1,1277	0,240526	0,9383	0,9688	1,1328
F2B	0,9527	0,8017	0,8078	0,7954		0,8467	0,9922	1,0854
F3B	0,6777	0,9580	0,9530	0,7411		0,8720	0,9956	1,1065