

УДК: 544.582.2

DOI: 10.53403/9785951505378_2023_209

Методы детритизации технологических и сбросных газовых потоков рабочих помещений ядерных объектов

**А. Н. Букин, С. А. Марунич, В. С. Мосеева, Ю. С. Пак,
М. Б. Розенкевич**

Российский химико-технологический университет им. Д. И. Менделеева,
Москва

rozenkevich.m.b@muctr.ru

Рассматриваются методы удаления тритийсодержащих соединений водорода из различных газовых потоков научных и промышленных объектов ядерной и термоядерной отраслей. Проведен анализ возможностей удаления из газового потока трития в виде водорода и сделано заключение о том, что эти методы могут применяться при малых потоках очищаемого газа. Для больших газовых потоков основными методами детритизации являются адсорбционный и фазовый изотопный обмен воды. Эти методы предусматривают предварительное каталитическое окисление тритийсодержащих молекул до воды с последующим удалением из газа тритированной воды. Проведено сравнение основных технологических параметров этих методов и сделан вывод о больших преимуществах метода фазового изотопного обмена.

Введение

На ядерных объектах различного назначения технологические операции с тритийсодержащими объектами должны проводиться в защитных боксах. Такие боксы, как правило, работают при давлении ниже атмосферного, что должно препятствовать попаданию трития в рабочее помещение. Инертная атмосфера в боксе создается за счет использования азота или аргона, при этом в зависимости от типа атмосферы концентрация кислорода в газе может варьироваться в широком диапазоне – от 0–100 ppm (аргоновый бокс) до 1 об. % (азотный бокс) [1]. Для обеспечения контроля концентрации трития в атмосфере бокса он снабжается системой детритизации, через которую осуществляется циркуляция газа. Давление в боксе контролируется путем подачи в него свежего газа и одновременного удаления после системы детритизации части газа через другую систему очистки, обеспечивающую возможность его сброса в окружающую среду. Принципиальная схема многоступенчатой

пенчатой системы детритизации газовых потоков во всем тритийопасном объекте приведена на рис. 1.

Блок СДГ1 предназначен для удаления трития из циркулирующего газового потока в боксе. Для него характерны небольшие значения газового потока и степени детритизации. Степень детритизации газового потока, направляемого в блок СДГ2, должна быть значительно выше, чтобы обеспечить его очистку до концентрации трития, разрешенной к сбросу в окружающую среду. Блок СДА, предназначенный для детритизации воздуха рабочего помещения, включается в работу в случае возникновения каких-либо нештатных ситуаций, сопровождающихся выбросом трития в помещение; он рассчитан на детритизацию значительно больших потоков воздуха до уровня концентрации, разрешенной к сбросу.

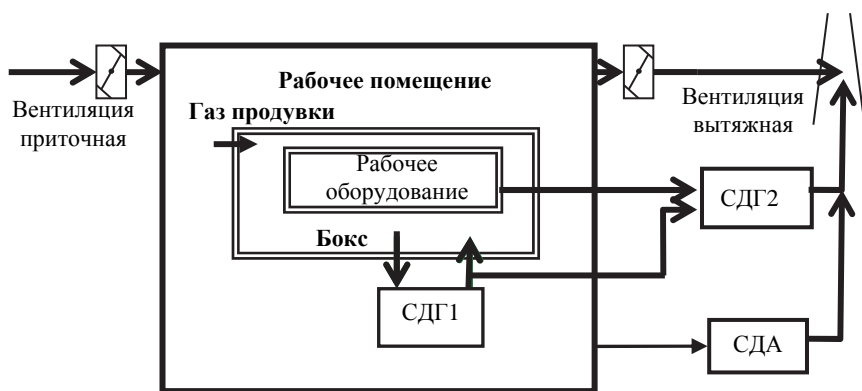


Рис. 1 . Многоступенчатая система детритизации газовых потоков

В целом режим работы систем детритизации должен обеспечить выполнение норм, установленных санитарными правилами и нормативами [2]. В соответствии с ними допустимая концентрация трития в воздухе рабочих помещений в виде молекул воды не должна превышать $0,44 \text{ МБк/м}^3$, а в виде водорода – 4400 МБк/м^3 . Что касается воздуха и воды, сбрасываемых в окружающую среду, то для них нормативы следующие: воздух – 1900 Бк/м^3 , вода – 7600 Бк/кг . Для наглядности можно привести такой пример: если в неветилируемом рабочем помещении в открытом сосуде находится тритированная вода с минимально значимой удельной активностью 1000 МБк/кг (определенной в [2]), то при комнатной температуре и относительной влажности воздуха 50 % концентрация трития в нем составит $9,4 \text{ МБк/м}^3$, т. е. в 21 раз выше допустимой для рабочего помещения и почти в 5000 раз выше разрешенной к сбросу в окружающую среду. Поэтому обеспечение тритиевой безопасности как в отношении рабочих помещений, так и сбросов в окружающую среду всегда является предметом особого внимания контролирующих органов.

Удаление из газовых потоков трития в виде водорода

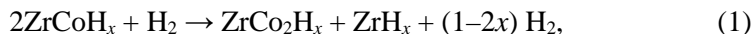
Тритий в газовом потоке может быть в различных химических формах, наиболее вероятными из них являются водород, органические соединения и вода. Для удаления трития только в форме водорода из потоков инертных газов могут применяться геттеры в виде гидридообразующих металлов или интерметаллидов (ИМС). Подробный обзор основных закономерностей их взаимодействия с водородом можно найти в [3]. В табл. 1 проведено сравнение свойств некоторых из них.

Таблица 1

Сравнение свойств Ti, U, Pd, ZrCo при взаимодействии с водородом [4]

| Металл или ИМС | Емкость по H ₂ , см ³ /г | Равновесное давление при 303 К, Па | Температура десорбции, К | Температура начала взаимодействия с воздухом, К |
|----------------|--|------------------------------------|--------------------------|---|
| Ti | 460 | $\approx 10^{-16}$ | 1200 | – |
| U | 150 | $\approx 10^{-10}$ | 670 | 303 |
| Pd | 60 | 3000 | 420 | 440 |
| ZrCo | 200 | $\approx 10^{-9}$ | 690 | 440 |

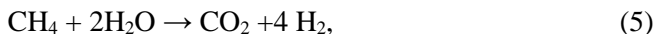
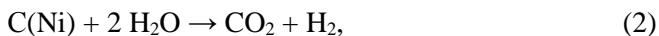
Из приведенных данных следует, что наиболее подходящими для удаления следовых количеств водорода из газового потока являются титан, уран и ИМС ZrCo. Для них характерны относительно высокая емкость по водороду и, главное, низкое равновесное его давление при температурах, близких к комнатным. Однако каждый из них имеет свои недостатки. Для титана недостатком является очень высокая температура десорбции водорода из гидрида, что делает этот металл пригодным лишь для однократного использования с последующим захоронением. Недостатком урана является его высокая пирофорность при контакте с кислородом воздуха. Для ИМС ZrCo недостатком является реакция полного диспропорционирования при температуре десорбции (реакция 1):



сопровождающаяся образованием гидрида циркония, связывающего водород практически необратимо [5].

Палладий, упомянутый в табл. 1, применяется в случае, когда в газовых потоках тритий находится в разных химических формах. В этом случае с использованием каталитических реакторов все примеси предварительно переводятся в форму водорода, который далее выделяется из газового потока с использованием мембран на основе палладия. Такой метод детритизации газа был разработан в Карлсруэ (Германия) [6] и Лос-Аламосской национальной лаборатории (США) [7].

Метод CAPRICE (CAlytic PuRIfiCation Experiment [6]) основан на использовании известных в промышленности реакции паровой конверсии метана (реакция (5) и реакции Будуара (реакция (3)):



В качестве катализатора используется никель, который в ходе процесса проникает в образующийся по реакции (6) углерод, и это соединение само становится катализатором реакции (2) и способствует образованию монооксида углерода по реакции по реакции (3). Что касается реакции (6), то ее константа равновесия при высокой температуре мала и для увеличения выхода углерода в ней необходимо удалять из смеси водород, что и происходит с использованием мембраны из сплава палладия с серебром.

Установка в Карлсруэ использовала два каталитических реактора: один – для разложения углеводородов (использовался метан как наиболее трудно окисляемый углеводород), во втором реакторе происходило разложение воды по реакции (4). В состав установки также входили два мембранных блока для выделения водорода.

Метод, разработанный в Лос-Аламосе, был реализован в лаборатории в Саванна-Ривер для разложения до водорода тритированной воды. В установке PMR (Palladium Membrane Reactor [7]) использовался один каталитический реактор диаметром 90 мм и длиной 1,1 м, в котором проводили реакции (4) и (5). Палладиевая мембрана была установлена вдоль слоя никелевого катализатора. Учитывая, что объем катализатора быстро растет, вследствие осаждения на нем углерода реактор должен иметь значительный свободный объем. Для эффективной работы реактора PMR требуется непрерывный анализ и корректировка состава парогазовой смеси на его входе.

Перечисленные методы удаления трития из газа в виде водорода имеют, однако, небольшую производительность. Например, круглосуточная работа реактора PMR в Саванна-Ривер позволяла перерабатывать 200 г воды, что эквивалентно 10 л/ч водорода. Это значит, что для очистки газовых потоков в сотни и тысячи м³/ч эти методы неприменимы. Поэтому в настоящее время основным методом удаления трития из таких газовых потоков является каталитическое окисление органических соединений и водорода до воды с последующим удалением из газа тритированной воды.

Удаление трития из газовых потоков в виде воды

Процессу удаления тритированной воды из газовых потоков в общем случае предшествует каталитическое окисление в них тритированных молекул в виде водорода и органических соединений. Подробное рассмотрение вариантов каталитического окисления этих молекул не является целью настоящей статьи. Отметим, однако, некоторые публикации, в которых эти вопросы обсуждаются всесторонне и подробно [8–13]. В работах японских исследователей изучены эффективность использования для окисления водорода как гидрофобного катализатора, работающего при комнатной температуре [8], так и гидрофильного катализатора, работающего при температуре не ниже 500 К и способного к окислению не только водорода, но и метана [9]. В работах [10–11] исследован процесс окисления водорода с использованием высокопористых блочно-ячеистых катализаторов, активным металлом в которых являлся либо палладий, либо платина. Работы [12–13] посвящены рассмотрению проблемы окисления тритийсодержащих соединений в каталитических реакторах в случае возникновения пожара и появления дымовых газов в очищаемом потоке.

Необходимо отметить, что перевод содержащегося в потоке газа трития из химической формы водорода в воду, безусловно, сопряжен с увеличением радиотоксичности газа. Как следует из приведенных во введении цифр, допустимая концентрация трития в виде воды в воздухе рабочих помещений в 10000 раз ниже допустимой концентрации трития в виде водорода, что, безусловно, повышает требования к герметичности всей последующей системы детритизации.

Простейшие способы удаления тритированной воды из газового потока применялись при выводе из эксплуатации термоядерного реактора в Принстоне (США) [14]. В течение года через каждую из трех независимых систем детритизации пропускали поток воздуха $6,5 \text{ м}^3/\text{ч}$ с относительной влажностью 40 % при температуре 294 К и концентрацией НТО $3 \text{ мКи}/\text{м}^3$. Первая система состояла из барботера с начальным объемом природной воды около 114 л и холодильника-конденсатора, охлажденного до температуры 255 К. Во второй системе поток газа сразу направляли в холодильник-конденсатор ($T = 255 \text{ К}$), а образующийся конденсат собирали в емкости. В третьей системе вместо холодильника-конденсатора использовали адсорбер с сорбентом, обеспечивающим точку росы осушаемого газа 230 К.

В табл. 2 приведены основные характеристики этих трех систем детритизации. Как видно, степень детритизации невелика, а концентрация трития в газовом потоке, прошедшем через систему детритизации, даже для наиболее эффективной системы очистки (адсорбер + емкость) в несколько раз превышает уровень концентрации, разрешенный для воздуха в рабочих помещениях ($1,5 \text{ МБк}/\text{м}^3$ против $0,44 \text{ МБк}/\text{м}^3$).

Таблица 2

Характеристики систем детритизации газового потока [14]

| Система | Барботер + холодильник | Холодильник + емкость | Адсорбер + емкость |
|--|---------------------------|--------------------------|-----------------------|
| Количество воды, $\tau = 0$, кг | 114 | 0 | 0 |
| Количество воды, $\tau = 12$ месяцев, кг | 528 | 396 | 468 |
| Концентрация трития в воде, $\tau = 12$ месяцев, Ки/кг | 0,307 | 0,367 | 0,368 |
| Доля собранного из газа в воде трития, $\tau = 12$ месяцев, Ки | 0,92 | 0,87 | ≈ 1 |
| Концентрация трития в газе, $\tau = 12$ месяцев, мКи/м ³ | 0,367 | 0,44 | 0,04 |
| Степень детритизации газа | $\gg 150-8,2^*$ | 6,8 | 75 |

Примечание: поток газа – по 6,5 м³/ч для каждой из систем, давление паров воды в нем – 0,996 кПа; * – степень детритизации уменьшается по мере накопления трития в барботере.

Анализ данных в табл. 2 демонстрирует также, что температурные параметры для газового потока на выходе холодильника и адсорбера выше заданных, что ведет к уменьшению степени детритизации по сравнению с расчетной: для второй системы при температуре газа после холодильника -18 °С степень детритизации должна быть 8,0, а для адсорбера при температуре -43 °С – 140. Большая начальная степень детритизации, полученная для первой системы, связана с тем, что уже присутствующая в барботере на начальной стадии процесса природная вода подвергается фазовому обмену с парами воды в газе, снижая концентрацию трития в них. Однако накопление трития в воде барботера ведет к тому, что при длительной эксплуатации такой системы степень детритизации будет приближаться к получаемой для второй системы. Таким образом, в конечном итоге во всех трех системах степень детритизации газа определяется отношением парциального давления паров воды в очищаемом газе и газа на выходе системы. Следовательно, для повышения степени детритизации необходимо использовать адсорбционные системы с минимально возможным равновесным давлением паров воды в процессе адсорбции.

Наиболее масштабным примером использования адсорбционной технологии для детритизации газового потока является система детритизации на тритиевом заводе термоядерного реактора ЖЕТ производительностью 500 м³/ч, использованная после проведения экспериментов в реакторе с дейтерий-тритиевой плазмой [15]. Каждый из трех адсорберов системы заполнен 450 кг цеолита типа 5А. Точка росы газового потока на выходе адсорбера -60 °С ($P_{\text{H}_2\text{O, вых}} = 1,08$ Па [16]). При подаче в адсорбер газового потока с температурой 20 °С и относительной влажностью 100 % на свежем цеолите степень детритизации газа (СД) соответствовала степени его осушки (СО):

$$\text{СД} = \text{СО} = P_{\text{H}_2\text{O, исх}} / P_{\text{H}_2\text{O, вых}} = 2,34 / 0,00108 = 2167.$$

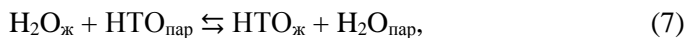
Однако при повторном использовании адсорбента после его регенерации при температуре 300–350 °С степень осушки газа сохранялась на прежнем уровне, а степень детритизации значительно уменьшалась, в пределе – до значений 25–50. Причины этого заключаются в особенностях сорбции различных изотопологов воды на молекулярных ситах [17–18]. Главными при этом являются два эффекта:

1) эффект «памяти» цеолита, связанный с изотопным обменом воды с водой в решетке цеолита. Эта вода не удаляется при термической регенерации даже при температуре около 700 °С и при повторной адсорбции обменивается с парами воды в очищаемом газе. Например, для цеолита марки 5А после стандартной процедуры регенерации при $T = 320$ °С остаток воды в цеолите составляет не менее 8,9 %;

2) эффект «волны» (roll-up effect), связанный с особенностями кинетики сорбции H_2O и НТО на цеолитах, в результате чего в ходе повторной сорбции легкая вода вытесняет тритированную и передний фронт сорбции обогащается тритированной водой.

Тем не менее, несмотря на серьезные недостатки, в том числе и ограниченную степень детритизации газа, адсорбционный метод получил достаточно широкое практическое использование. Однако следует учитывать, что еще одним недостатком этого метода являются проблемы в обеспечении достаточного уровня надежности. Это связано с высокой вероятностью отказов вентилялей на газовых коммуникациях, которые приходится переключать для смены режима работы аппарата с адсорбционного на десорбционный, особенно если через них приходится пропускать газ при высокой температуре [19].

Принимая во внимание вышеизложенное, отметим, что ряд реализуемых сегодня проектов, связанных в первую очередь с созданием термоядерных установок и организацией топливного цикла для них, требуют использования максимально безопасных методов, позволяющих обеспечить степень детритизации газовых потоков выше 10^5 – 10^6 . В последнее десятилетие такой метод был разработан. В его основе лежит простой процесс фазового изотопного обмена (ФИО) между жидкой водой и ее парами в газовой фазе:



в которой тяжелый изотоп концентрируется в жидкой фазе с коэффициентом разделения, равным, например, при температуре 298 К $\alpha = 1,09$ [20]. Технология ФИО воды в виде процесса ректификации широко используется в практике разделения изотопов водорода при решении самых разных задач, в том числе и для детритизации воды [21]. На рис. 2 приведена принципиальная схема этого процесса применительно к удалению пара тритированной воды из газового потока.

Газовый поток G , содержащий пары тритированной воды, поступает в противоточную колонну, орошаемую природной водой (поток L). В колонне проходит реакция (7), в результате которой пары тритированной воды переходят в жидкую фазу. При этом на элементе высоты колонны, называемом высотой, эквивалентной теоретической ступени (ВЭТС, h_s), устанавливается равновесие в соответствии со значением α . Этот равновесный процесс повторяет-

ся столько раз, сколько теоретических ступеней содержит колонна. Таким образом, концентрация трития увеличивается в потоке воды сверху вниз, а в потоке газа уменьшается снизу вверх. Учитывая, что в природной воде тритий практически отсутствует, концентрация трития в паре воды на выходе колонны может быть сколь угодно малой. Отсюда следует, что *метод ФИО воды позволяет достичь любой степени детритизации газового потока, величина которой определяется только высотой колонны*. Основная задача в разработке этого метода заключалась в том, чтобы при большом потоке очищаемого газа и, следовательно, большом диаметре колонны и минимальном потоке орошающей воды (плотности орошения насадки) обеспечить максимальную эффективность массопереноса воды между парогазовой и жидкой фазами. Например, при температуре 273 К в 500 м³ газа со 100 % относительной влажностью содержится 9,5 кг воды. При очистке потока газа 500 м³/ч из материального баланса процесса следует, что на орошение колонны следует подавать поток природной воды, равный 9,5 кг/ч (а в предельном случае даже в α раз меньший). При линейной скорости газового потока в расчете на полное сечение колонны 1,2 м/с площадь сечения колонны должна быть 0,116 м². Это значит, что при таком сечении плотность орошения водой насадки составит около 82 л/м²·ч. Известно, что в процессе ректификации воды в зависимости от типа заполняющей колонну насадки плотность орошения колонны лежит в диапазоне 2500–12000 л/м²·ч [22, 23]. Таким образом, при детритизации газа методом ФИО плотность орошения насадки не превышает нескольких процентов от рекомендуемой для ректификации. Это означает, что для эффективной очистки газового потока от паров тритированной воды в колонне ФИО определяющее значение имеет способность насадки к образованию равномерной пленки воды на ее поверхности при таких малых потоках орошающей воды.

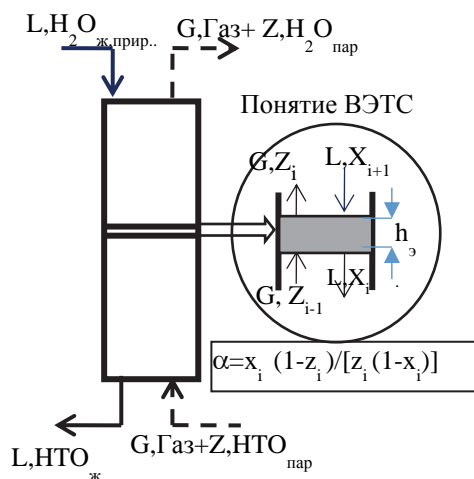


Рис. 2. Схема процесса удаления паров тритированной воды из газового потока методом фазового изотопного обмена воды: X_i , Z_i – концентрации трития в жидкой воде и ее паре в газе

В табл. 3 по экспериментальным данным, полученным в работе [24], проведено сравнение значений h_3 в процессе детритизации содержащего пары воды воздуха в колонне диаметром 62 мм, заполненной регулярной насадкой фирмы «Sulzer», изготовленной из нержавеющей стали и черненой меди, при $T = 303$ К. Из приведенных данных видно, что эффективность процесса массообмена в процессе детритизации газа методом ФИО при использовании насадки, изготовленной из черненой меди, намного выше, чем при использовании насадки, изготовленной из нержавеющей стали. Это, очевидно, связано со способностью медной насадки образовывать сплошную тонкую пленку воды на поверхности.

Таблица 3

Сравнение эффективности детритизации воздуха в колонне ФИО, заполненной насадкой «Sulzer», изготовленной из нержавеющей стали и черненой меди

| Поток воздуха G , м ³ /ч | Поток пара воды Z , г/ч | Поток орошающей воды L , г/ч | $\lambda = Z/L$ | h_3 , см |
|--|------------------------------|-----------------------------------|-----------------|------------|
| Материал насадки – нержавеющая сталь | | | | |
| 6 | 210 | 1130 | 0,18 | 133 |
| 12 | 420 | 1400 | 0,30 | 124 |
| Материал насадки – черненная медь | | | | |
| 6 | 210 | 260 | 0,81 | 7,0 |
| 12 | 420 | 450 | 0,93 | 7,6 |

Высокая эффективность процесса детритизации методом ФИО вызвала в последующем необходимость проведения серии работ по исследованию влияния различных параметров на характеристики процесса при использовании регулярной медной насадки «Sulzer» в России [24–27] и Японии [28, 29]. Кроме того, в России было проведено исследование по определению эффективности процесса детритизации относительно небольших газовых потоков (до 50–100 нм³/ч) с использованием мелкой спирально-призматической насадки, изготовленной также из черненой меди [30]. В настоящей статье приводится краткий обзор полученных в этих работах результатов.

В табл. 4 приведена зависимость высоты, эквивалентной теоретической ступени, от величины потока, подаваемого в колонну ФИО. Эксперименты проведены с использованием колонны ФИО диаметром 62 мм и высотой 1 м при ее температуре 298 К и потоке орошающей воды, соответствующем величине $\lambda = 1,00–1,05$. Колонна была заполнена регулярной насадкой, изготовленной из черненой меди.

Таблица 4

Зависимость h_3 от величины газового потока, подаваемого в колонну ФИО

| | | | | | |
|--|-----|-----|-----|-----|-----|
| Поток воздуха G , нм ³ /ч | 5 | 7 | 12 | 16 | 20 |
| Поток паров воды Z , г/ч | 130 | 180 | 310 | 415 | 520 |
| h_3 , см | 4,6 | 5,9 | 7,9 | 8,5 | 9,6 |

Как видно из табл. 4, увеличение потока воздуха в 4 раза приводит к росту значения h_3 в 2, 1 раза. В колонне с высотой насадки $H = 1$ м это означает, что число теоретических ступеней разделения (ЧТСР), равное отношению высоты слоя насадки H к значению h_3 , изменяется с 21,7 до 10,4. Как показано в [24, 26], при детритизации газового потока со 100 % насыщением парами воды при температуре эксперимента зависимость степени детритизации СД от параметров процесса определяется уравнением

$$\text{СД} = \left[\lambda / (\alpha - \lambda) \right] \left[(\alpha / \lambda)^{\text{ЧТСР}+1} - 1 \right]. \quad (8)$$

Из этого уравнения следует, что при указанном изменении ЧТСР степень детритизации газа изменится с 65 при $G = 5$ $\text{нм}^3/\text{ч}$ до 18,5 при $G = 20$ $\text{нм}^3/\text{ч}$. Таким образом, данные табл. 4 и уравнение (8) позволяют определить требуемую высоту колонны ФИО при заданных значениях G и СД. Дополнительно заметим, что при использовании в той же колонне ФИО медной спирально-призматической насадки при $G = 5$ $\text{нм}^3/\text{ч}$ получено значение СД = 1800 [30]. Это является следствием того, что значения h_3 для этой насадки в 2–3 раза меньше, чем для регулярной. Одновременно заметим, что значение гидравлического сопротивления мелкой насадки примерно на порядок величины выше, чем для регулярной. Следствием этого является рекомендация использовать мелкую насадку при очистке потоков, не превышающих 100 $\text{нм}^3/\text{ч}$.

На рис. 3 приведена зависимость h_3 от отношения потоков λ . Характер полученной зависимости, на первый взгляд, неожиданный. Перенос тритированной воды в колонне ФИО происходит из парогазовой фазы в жидкую, и можно было бы предположить, что увеличение потока жидкости (уменьшение λ) должно приводить к повышению эффективности процесса, а приведенная зависимость свидетельствует об обратном.

С нашей точки зрения, этот факт свидетельствует о том, что при минимальном потоке воды ($1 < \lambda < \alpha$) поверхность насадки «Sulzer», состоящая из тонкой проволочной сетки, полностью покрыта волнистой тонкой пленкой воды. Увеличение потока воды в этом случае приводит к увеличению толщины этой пленки, и ее волновая структура пропадает. В конечном итоге это ведет к уменьшению поверхности контакта между парогазовой и жидкой фазами и, как следствие, увеличению h_3 .

В табл. 5 приведена зависимость степени детритизации воздуха, полученная на одной и той же колонне ФИО, но при разной температуре процесса детритизации. Использована колонна диаметром 62 мм с высотой разделительной части 1 м, заполненная насадкой из черенной меди. Поток насыщенного парами воды до относительной влажности 100 % при рабочей температуре колонны воздуха составлял 12 $\text{нм}^3/\text{ч}$.

Из табл. 5 следует, что уменьшение рабочей температуры колонны ФИО при детритизации насыщенного до 100 % относительной влажности воздуха приводит к значительному увеличению степени его детритизации. При этом значения h_3 , определенные с экспериментальной погрешностью, колеблются в диапазоне ± 20 %. Из уравнения (8) следует, что основной причиной роста СД является температурная зависимость коэффициента разделения α , который значительно увеличивается при снижении рабочей температуры.

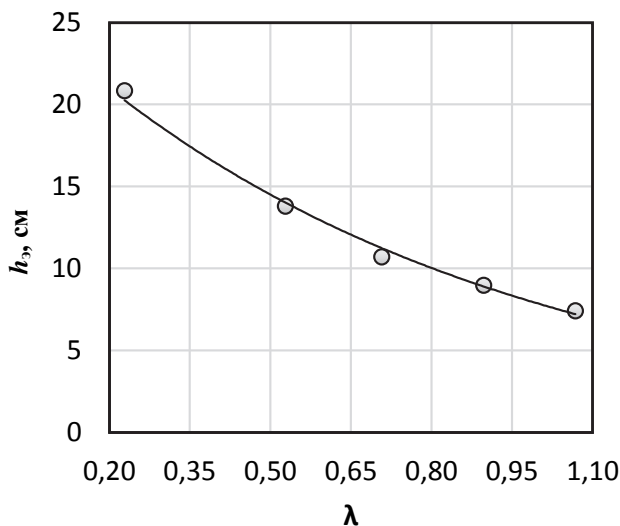


Рис. 3. Зависимость h_3 от отношения потоков пара в газе и орошающей колонну воды. Колонна диаметром 62 мм, поток воздуха 12 $\text{м}^3/\text{ч}$, температура колонны 298 К

Таблица 5

Эффективность процесса детритизации воздуха при разной температуре работы колонны ФИО

| $T_{\text{кол.}}, \text{ }^\circ\text{C}$ | α | $L, \text{ г/ч}$ | $Z, \text{ г/ч}$ | λ | $h_3, \text{ см}$ | СД |
|---|----------|------------------|------------------|-----------|-------------------|-------|
| 7,9 | 1,118 | 112 | 102 | 0,915 | 5,6 | 166,3 |
| 12,4 | 1,111 | 140 | 139 | 0,993 | 4,9 | 76,6 |
| 18,5 | 1,101 | 201 | 207 | 1,030 | 6,1 | 29,6 |
| 25,0 | 1,092 | 300 | 311 | 1,037 | 7,9 | 18,9 |

Полученный результат имеет принципиальное значение с практической точки зрения. В зависимости от происхождения подлежащий детритизации газовый поток может иметь разную относительную влажность, вплоть до долей процента (атмосфера рабочего бокса). При попадании в колонну ФИО, орошаемую природной водой, в ходе противоточного движения к выходу из колонны газ будет насыщаться парами воды. Если при этом колонна будет работать в адиабатическом режиме, за счет теплоты испарения воды ее температура будет понижаться до тех пор, пока не станет равновесной. К примеру, при подаче в колонну с начальной температурой 25 $^\circ\text{C}$ 100 $\text{м}^3/\text{ч}$ воздуха с относительной влажностью при этой температуре 30 % равновесная температура колонны станет равной 14,5 $^\circ\text{C}$ [16], и именно с этой температурой и относительной влажностью 100 % газовый поток выйдет из колонны. Данные табл. 5 позволяют предположить, что при детритизации газа с любой относительной влажностью адиабатический режим работы колонны может быть предпочтительней, чем изотермический.

В табл. 6 приведены результаты экспериментального сравнения двух режимов работы колонны ФИО при детритизации $12 \text{ м}^3/\text{ч}$ воздуха с начальной температурой около $20 \text{ }^\circ\text{C}$, но разной относительной влажностью, в колонне диаметром 62 мм с высотой разделительного слоя $1,9$ и $4,8 \text{ м}$.

Таблица 6

Адиабатический и изотермический режимы работы колонны ФИО при детритизации $12 \text{ м}^3/\text{ч}$ воздуха

| Высота колонны, м | Режим работы | Температура колонны, $^\circ\text{C}$ | | Относительная влажность потока газа, % | Поток воды, $\text{кг}/\text{м}^2 \cdot \text{ч}$ | | λ | СД |
|-------------------|----------------|---------------------------------------|------|--|---|-----|-----------|--------|
| | | низ | верх | | верх | низ | | |
| 4,8 | Изотермический | 19,1 | 19,2 | 100 | 62 | 56 | 1,06 | 1830 |
| | Адиабатический | 19,5 | 13,0 | 40 | 76 | 54 | 0,41 | 293430 |
| 1,9 | Изотермический | 19,0 | 19,2 | 100 | 75 | 73 | 0,89 | 2330 |
| | Адиабатический | 21,1 | 15,1 | 58 | 78 | 58 | 0,71 | 14690 |

Из данных табл. 6 очевидны преимущества адиабатического режима работы колонны. Это означает, что при детритизации газового потока с комнатной температурой при любой его относительной влажности колонна не должна иметь никакой системы обогрева. Дополнительно следует обратить внимание на то, что уже колонна с высотой насадки около 2 м обеспечивает степень детритизации газового потока в $6\text{--}7$ раз выше, чем при осушке на цеолите с точкой росы $-60 \text{ }^\circ\text{C}$ [15], а на колонне с высотой насадки $4,8 \text{ м}$ достигнута степень детритизации около $3 \cdot 10^5$.

Заключение

В заключение сравним основные показатели адсорбционного метода и метода фазового изотопного обмена применительно к удалению из газовых потоков паров тритированной воды (табл. 7).

Сопоставление показывает значительные преимущества метода ФИО по сравнению с адсорбционной детритизацией газового потока. Эти преимущества становятся особенно значимыми при проведении детритизации больших (сотни и тысячи $\text{м}^3/\text{ч}$) газовых потоков. Дополнительно заметим, что метод ФИО использует минимальное количество устройств для регулировки потоков газа и орошающей воды, не требует использования большого количества запорной арматуры и поэтому в большей степени отвечает требованиям безопасности при эксплуатации.

Таблица 7

Сравнение основных показателей очистки газовых потоков от паров тритированной воды методами адсорбции и ФИО

| Метод / Показатель | Адсорбция | ФИО |
|---------------------------------|--|---|
| Режим работы | Циклический (адсорбция – десорбция) | Непрерывный |
| Достижимая степень детритизации | Ограничена отношением парциальных давлений паров воды в газе на входе и выходе адсорбера | При орошении колонны природной водой определяется только ее высотой |
| Аппаратурное оформление | Сложное (несколько переключающихся аппаратов) | Простое (колонна, заполненная насадкой) |
| Затраты энергии | Регенерация сорбента ведется при $T = 350\text{ }^{\circ}\text{C}$, $E_{\text{дес.}} = f(\text{RH}^*, G)$ | Процесс ведется в адиабатических условиях $E_{\text{ФИО}} = 0,03\text{--}0,05E_{\text{дес}}$ |
| Объем аппаратуры | Два или три параллельных аппарата, $V_{\text{ад.}} = 1$ | Одна колонна, $V_{\text{ФИО}} = 0,25\text{--}0,3V_{\text{ад.}}$ |
| Объем р/а отходов | При десорбции $Z_{\text{НТО, gas}}$, при захоронении 1 кг цеолита на 140–170 г НТО | Вода в количестве не более количества паров в очищаемом газе |

Примечание: *RH – относительная влажность газа.

Список литературы

1. Corcoran V. J. et al. New containment box for tritium operations // Fusion Technology. 1995. Vol. 28, N 3. P. 1321–1326.
2. СанПиН 2.6.1.2523-09-99/2009. – М.: Роспотребнадзор. 2009. P. 53.
3. Перевезенцев А. Н. и др. Гидриды интерметаллических соединений и сплавов, их свойства и применение в атомной технике // Физика элементарных частиц и атомного ядра. 1988. Т. 19. С. 1386–1439.
4. Перевезенцев А. Н., Розенкевич М. Б. Технология трития для термоядерного реактора. – Долгопрудный: ИД «Интеллект», 2019. С. 336.
5. Perevezentsev A. N. et al. Safety Aspects of tritium storage in metal hydride form // Fusion Tech. 1995. Vol. 28. P. 1404–1409.
6. Glugla M., Penzhorn R.-D. Development of fusion fuel cycle technology at the Tritium Laboratory Karlsruhe: the experiment CAPRICE // Fusion Eng. and Design. 1995. Vol. 28. P. 348–356.

7. Session K. Processing tritiated water at the Savanna River Site: a production-scale demonstration of a palladium membrane reactor // *Fusion Sci. and Tech.* 2005. Vol. 48. P. 91–96.

8. Iwai Ya. et al. Experimental evaluation of tritium oxidation efficiency in the room temperature recombiner // *Fusion Eng. and Design.* 2018. Vol. 136. P. 120–124.

9. Edao Yu. et al. Tritium oxidation test by platinum-alumina catalyst under moisture and hydrocarbons atmosphere // *Fusion Eng. and Design.* 2018. Vol. 136. P. 319–323.

10. Гаспарян М. Д. и др. Керамические высокопористые блочно-ячеистые катализаторы окисления изотопов водорода с нанесенным платиновым активным слоем // *Огнеупоры и техническая керамика.* 2014. № 7–8. С. 49–54.

11. Гаспарян М. Д. и др. Применение керамических высокопористых блочно-ячеистых катализаторов с нанесенным палладиевым активным слоем в процессе окисления водорода // *Стекло и керамика.* 2014. № 11. С. 22–25.

12. Ivanova A. S. et al. Safety of Air Detritiation System Operation // *Fusion Sci. and Technol.* 2019. Vol. 75. P. 24–35.

13. Edao Yu. et al. Effect of hydrocarbons on the efficiency of catalytic reactor of detritiation system in an event of fire // *J. Nucl. Sci. and Tech.* 2016. Vol. 53. P. 1831–1838.

14. Willms R. S. et al. Mathematical comparison of three tritium system effluent HTO cleanup systems // *Fusion Sci. and Tech.* 2002. Vol. 41. P. 974–980.

15. Sabathier F. et al. Assessment of the performance of the JET Enhauste Detritiation System // *Fusion Eng. and Design.* 2001. Vol. 54. P. 547–553.

16. 2005 ASHRAE Handbook Fundamentals (SI). Chapter 6. Psychrometrics. P. 6.1–6.17.

17. Malara C. et al. Evaluation and matagation of tritium memory in detritiation driers // *J. Nucl. Materials.* 1999. Vol. 273. P. 203–212.

18. Allsop P. J. et al. The effects of residual tritium on air-detritiation dryer performance // *Fusion Tech.* 1992. Vol. 21. P. 599–603.

19. Stork D. et al. Systems for the safe operation of the JET tokamak with tritium // *Fusion Eng. and Design.* 1999. Vol. 47. P. 131–172.

20. Андреев Б. М., Зельвенский Я. Д., Катальников С. Г. Тяжелые изотопы водорода в ядерной технке. – М.: ИздАТ, 2000. С. 344.

21. Magomedbekov E. P. et al. Current state of research in the field of detritiation of technologycal water flows: a review // *Theor. Foundation of Chem. Eng.* 2021. Vol. 55. P. 1111–1125.

22. Магомедбеков Э. П. и др. Массообменные характеристики спирально-призматической насадки в колоннах изотопного обмена при ректификации воды под вакуумом // *Теор. основы хим. технологии.* 2016. Т. 50. С. 502–507.

23. Магомедбеков Э. П. и др. Массообменные характеристики регулярной рулонной ленточно-винтовой насадки в колоннах изотопного обмена при ректификации воды под вакуумом // *Теор. основы хим. технологии.* 2016. Т. 50. С. 408–413.

24. Perevezentsev A. N. et al. Wet scrubber column for air detritiation// Fusion Sci. and Tech. 2009. Vol. 56. P. 1455–1461.
25. Perevezentsev A. N. et al. Wet scrubber technology for tritium confinement at ITER // Fusion Engin. and Design. 2010. Vol. 85. P. 1206–1210.
26. Rozenkevich M. B. et al. Main features of the technology for air detritiation in scrubber column // Fusion Sci. and Tech. 2016. Vol. 70. P. 435–447.
27. Perevezentsev A. N. et al. Phase isotope exchange of water as a gas detritiation method // Theoretical Foundation of Chem. Engin. 2013. Vol. 47. P. 47–54.
28. Hayashi T. et al. R@D of atmosphere detritiation system for ITER in JAEA // Fusion Engin. and Design. 2010. Vol. 85. P. 1386–1390.
29. Iwai Ya. et al. Basic concept of JA DEMO fuel cycle // Fusion Engin. and Design. 2021. Vol. 166. P. 112261.
30. Марунич С. А. Эффективность массообмена в процессе фазового изотопного обмена воды с целью детритизации воздуха на регулярной и спирально-призматической насадке // Хим. технология. 2010. № 12. С. 761–764.