

УДК 544.582.2

ОЧИСТКА ОТ ТРИТИЯ ГАЗОВЫХ ПОТОКОВ РАБОЧИХ ПОМЕЩЕНИЙ ЯДЕРНЫХ ОБЪЕКТОВ

© 2023 г. М. Б. Розенкевич^а, *, Н. Н. Кулов^б, Ю. С. Пак^а, А. Н. Букин^а,
В. С. Мосеева^а, С. А. Марунич^а

^аРоссийский химико-технологический университет им. Д.И. Менделеева, Москва, Россия

^бИнститут общей и неорганической химии им. Н.С. Курнакова РАН, Москва, Россия

*e-mail: rozenkevich.m.b@muctr.ru

Поступила в редакцию 27.03.2023 г.

После доработки 30.03.2023 г.

Принята к публикации 30.03.2023 г.

Рассматриваются методы удаления тритий содержащих 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. Оба эти метода предусматривают предварительное каталитическое окисление тритий содержащих 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.

Ключевые слова: тритий, газовые потоки, методы удаления, водород, вода, адсорбция, фазовый изотопный обмен

DOI: 10.31857/S0040357123030156, **EDN:** RPMBVY

ВВЕДЕНИЕ

На ядерных объектах различного назначения технологические операции с тритий содержащими 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 и ее поддержания на разрешенном уровне он снабжается системой детритизации (СДГ), 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 системы детритизации газовых потоков во всем тритий опасном объекте приведена на рис. 1.

Блок СДГ 1 предназначен для удаления трития из циркулирующего газового потока бокса. Для него характерны небольшие величины газового потока и степени детритизации. Степень детритизации газового потока, направляемого в блок СДГ 2, 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, рассчитан на детритизацию значительно больших потоков воздуха до уровня концентрации, разрешенной к сбросу.

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 МБк/м³, а в виде водорода – 4400 МБк/м³. Что касается воздуха и воды, сбрасываемых в окружающую среду, то для них нормативы следующие: воздух – 1900 Бк/м³ ([2], с. 53) вода – 7600 Бк/кг ([2], с. 60).

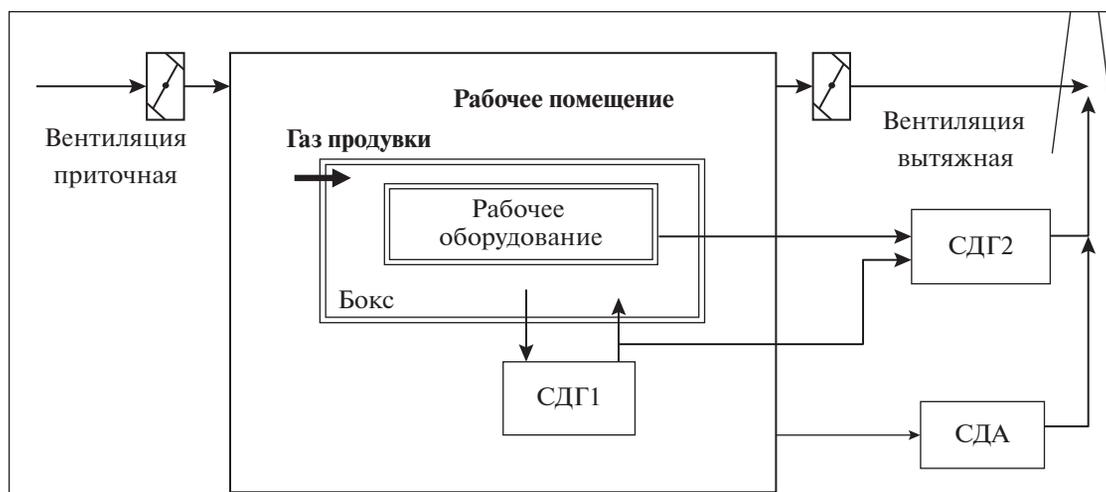


Рис. 1. Многоступенчатая система детритизации газовых потоков.

Для наглядности можно привести такой пример: если в невентилируемом рабочем помещении в открытом сосуде находится тритированная вода с величиной 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 МБк/м³, то есть в 21 раз выше допустимой для рабочего помещения и почти в 5000 раз выше разрешенной к сбросу в окружающую среду. Отсюда следует, что обеспечение тритиевой безопасности как в отношении к рабочим помещениям, так и к сбросам в окружающую среду, всегда является предметом особо 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 быть применены геттеры в виде гидридообразующих металлов или интерметаллидов (ИМС). Подроб-

ный обзор основных закономерностей их взаимодействия с водородом можно найти в [3]. В табл. 1 проведено сравнение свойств некоторых из них.

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 давление гидридообразования при температурах, близких к комнатным. Однако, каждый из них имеет свои недостатки. Для титана недостатком является очень высокая температура десорбции водорода из гидрида, а также склонность к пассивации поверхности в присутствии кислорода и паров воды, 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)

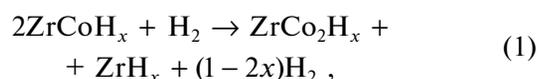


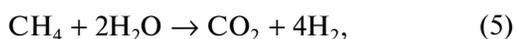
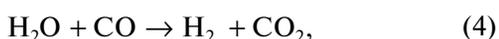
Таблица 1. Сравнение свойств Ti, U, Pd, ZrCo при их взаимодействии с водородом [4]

Металл или ИМС	Емкость по H ₂ , см ³ /г	Давление гидридообразования при 303 К, Па	Температура десорбции, К	Температура начала быстрого взаимодействия с воздухом, К
Ti	460	≈10 ⁻¹⁰	1200	—
U	150	≈10 ⁻⁴	670	303
Pd	60	3000	420	440
ZrCo	200	≈10 ⁻³	690	440

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

Палладий, упомянутый в табл. 1, находит свое применение 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 разработан в Карлсруэ (Германия) [6], и Национальной лаборатории Лос-Аламос (США) [7].

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



В качестве катализатора процесса используется никель, который в ходе протекания 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) и второй реактор, в котором проходила реакция разложения 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-Ривере 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 установлена вдоль слоя никелевого катализатора. Учтявая, что вследствие осаждения на нем углерода объем катализатор быстро растет, реактор должен иметь значительный свободный объем. Для эффективной работы реактора PMR требует-

ся непрерывный анализ и корректировка состава паро-газовой смеси на его входе.

Перечисленные методы удаления трития из газа в виде водорода имеют, однако, небольшую производительность. Например, круглосуточная работа реактора PMR в Саванна-Ривере позволяла перерабатывать 200 г воды, что эквивалентно 10 л/ч водорода. Это значит, что для очистки газовых потоков в сотни и тысячи м³ в час эти методы не применимы. 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 ИЗ ГАЗОВЫХ ПОТОКОВ ТРИТИЯ 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 предметом анализа в настоящей статье. Отметим, однако, некоторые публикации, в которых эти вопросы рассмотрены 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 был либо палладий, либо платина. Работы [12, 13] посвящены рассмотрению проблемы окисления тритий содержащих 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 в виде водорода, что, безусловно, повышает требования к герметичности всей последующей системы детритизации.

Простейшие способы удаления тритированной воды из газового потока были использованы при выводе из эксплуатации термоядерного реактора в Принстоне (США) [14]. В течение года че-

Таблица 2. Характеристики использованных систем детритизации газового потока [14]. Поток газа – по 6.5 м³/ч для каждой из систем, давление паров воды в нем – 0.996 кПа

Система	Барботер + холодильник	Холодильник + емкость	Адсорбер + емкость
Количество воды, $\tau = 0$, кг	114	0	0
Количество воды, $\tau = 12$ мес., кг	528	396	468
Концентрация трития в воде, $\tau = 12$ мес., Ки/кг	0.307	0.367	0.368
Доля собранного из газа в воде трития, $\tau = 12$ мес., Ки	0.92	0.87	≈ 1
Концентрация трития в газе, $\tau = 12$ мес., мКи/м ³	0.367	0.44	0.04
Степень детритизации газа	$\geq 150-8.2^*$	6.8	75

* Степень детритизации уменьшается по мере накопления в барботере трития.

рез каждую из трех независимых систем детритизации пропускали поток воздуха в 6.5 м³/ч с относительной влажностью 40% при температуре 294 К и концентрацией НТО 3 мКи/м³. 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 ($T = 255$ 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, полученные для всех трех использованных систем детритизации. Как видно, для использованных систем 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 против 0.44 МБк/м³).

Анализ приведенных данных показывает 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 системы 2 при температуре газа после холодильника -18°C степень детритизации должна быть 8.0, а для адсорбера при температуре -43°C – 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. Отсюда следует, что 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 JET производительностью 500 м³/ч, использованная после проведения экспериментов в реакторе с дейтерий-третиевой плазмой [15]. Три адсорбера системы заполнены каждый 450 кг цеолита типа 5А. Точка росы газового потока на выходе адсорбера – -60°C ($P_{\text{H}_2\text{O, вых}} = 1.08$ Па [16]). При подаче в адсорбер газового потока с температурой 20°C и относительной влажностью 100% на свежем цеолите степень детритизации газа (СД) соответствовала степени его осушки (СО):

$$\begin{aligned} \text{СД} = \text{СО} &= P_{\text{H}_2\text{O, исх.}} / P_{\text{H}_2\text{O, вых}} = \\ &= 2.34 / 0.00108 = 2167. \end{aligned}$$

Однако при повторном использовании адсорбента после его регенерации при температуре $300-350^\circ\text{C}$ 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 регенера-

ции даже при температурах около 700°C и при повторной адсорбции обменивается с парами воды в очищаемом газе. Например, для цеолита марки 5А после стандартной процедуры регенерации при $T = 320^{\circ}\text{C}$ 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 ограниченная величина степени детритизации газа, адсорбционный метод получил достаточно широкое практическое использование. При этом, однако, следует учитывать, что еще одним недостатком этого метода являются проблемы в обеспечении достаточного уровня надежности. Это связано с высокой вероятностью отказов вентилях 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 степени детритизации газовых потоков больше 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, например, при температуре 298 К, равным $\alpha = 1.09$ [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 происходит реакция (7), в результате которой пары тритированной воды переходят в жидкую фазу. При этом на элементе высоты колонны, называемом высотой, эквивалентной теоретиче-

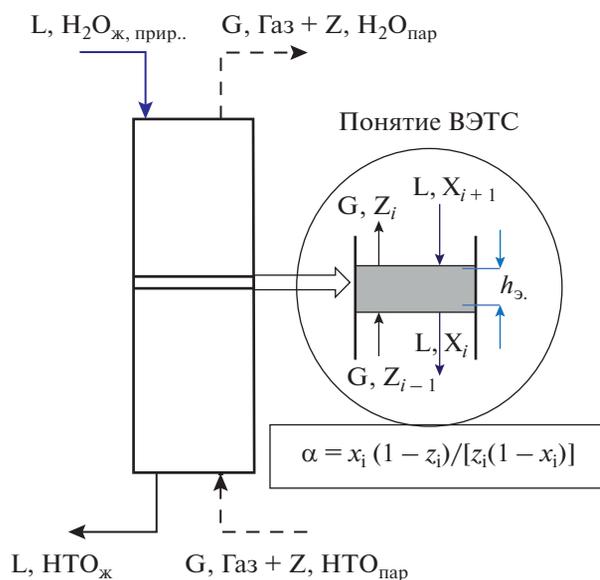


Рис. 2. Схема процесса удаления паров тритированной воды из газового потока методом фазового изотопного обмена воды. X_i, Z_i – концентрации трития в жидкой воде и ее паре в газе.

ской ступени (ВЭТС, h_3), устанавливается равновесие в соответствии со значением α . Этот равновесный процесс повторяется 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, диаметре колонны, и минимальном потоке орошающей воды (плотности орошения насадки) обеспечить максимальную эффективность массопереноса воды между паро-газовой и жидкой фазами. Например, при температуре 273 К в 500 м^3 газа со 100% относительной влажностью содержится 9.5 кг воды. При очистке потока газа в $500 \text{ м}^3/\text{ч}$ 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 м^2 . Это значит, что при таком сечении плотность орошения водой насадки составит около $82 \text{ л}/\text{м}^2 \text{ ч}$. Известно, что в процессе ректификации воды в зависимости от типа заполняю-

Таблица 3. Сравнение эффективности детритизации воздуха в колонне ФИО, заполненной насадкой Sulzer, изготовленной из нержавеющей стали и черной меди (по данным [24], $T = 303$ К, диаметр колонны 62 мм)

№ пп.	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					
1	6	210	1130	0.18	133
2	12	420	1400	0.30	124
Материал насадки – черная медь					
3	6	210	260	0.81	7.0
4	12	420	450	0.93	7.6

Таблица 4. Зависимость значения h_3 от величины газового потока, подаваемого в колонну ФИО [26]

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

шей 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.

В табл. 3 по экспериментальным данным, полученным в работе [24], проведено сравнение величин h_3 в процессе детритизации содержащего пары воды воздуха в колонне диаметром 62 мм, заполненной регулярной насадкой фирмы Sulzer, изготовленной из нержавеющей стали и черной меди. Из приведенных данных видно, что эффективность процесса массообмена в процессе детритизации газа методом ФИО при использовании насадки, изготовленной из черной меди намного выше, чем на насадке, изготовленной из нержавеющей стали, что, очевидно, связано со свойством медной насадки к образованию сплошной тонкой пленки воды на ее поверхности.

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, применительно к детритизации относительно небольших газовых потоков (до 50–100 нм³/ч) в России была проведено исследование по определению эффективности этого процесса с использованием мелкой спирально-призматической насадки, изготовленной также из черной

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, соответствующего величине $\lambda = 1.00–1.05$. Колонна была заполнена регулярной насадкой, изготовленной из черной меди.

Как видно из таблицы, 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 от 21.7 до 10.4. Как показано в [24, 26], при детритизации газового потока со 100% насыщением парами воды при температуре эксперимента зависимость величины степени детритизации СД от параметров процесса определяется следующим уравнением:

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

Из этого уравнения следует, что при указанном изменении ЧТСР степень детритизации газа изменится от значения 65 при $G = 5$ нм³/ч до 18.5 при $G = 20$ нм³/ч. Таким образом, данные таблицы 4 и уравнение (8) позволяют определить требуемую высоту колонны ФИО при заданных величинах G и СД. Дополнительно заметим, что при использовании в той же колонне ФИО медной спирально-призматической насадки при потоке $G = 5$ нм³/ч получена величина СД = 1800 [30]. Это является следствием того, что значения h_3 для

этой насадки в 2–3 раза меньше, чем для регулярной. Одновременно, однако, 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 паро-газовой фазы в жидкую и можно было бы предположить, что увеличение потока жидкости (уменьшение величины 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 проведения процесса детритизации. Использована колонна диаметром 62 мм с высотой разделительной части 1 м, заполненная насадкой из черненой меди. Поток насыщенного парами воды до относительной влажности 100% при рабочей температуре колонны воздуха составлял $12 \text{ нм}^3/\text{ч}$.

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

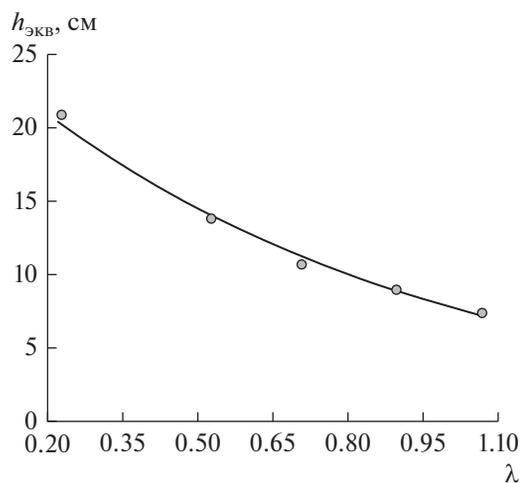


Рис. 3. Зависимость h_3 от отношения потоков пара в газе и орошающей колонну воды. Колонна диаметром 62 мм, поток воздуха $12 \text{ нм}^3/\text{ч}$, температура колонны 298 К.

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°C $100 \text{ нм}^3/\text{ч}$ воздуха с относительной влажностью при этой температуре 30% равновесная температура колонны станет равной 14.5°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 в адиабатический режим работы колонны может быть предпочтительней, чем изотермический.

В табл. 6 приведены результаты экспериментального сравнения двух режимов работы колонны ФИО при детритизации $12 \text{ нм}^3/\text{ч}$ воздуха с на-

Таблица 5. Эффективность процесса детритизации воздуха при разной температуре работы колонны ФИО

№ пп.	$T_{\text{кол}}, ^\circ\text{C}$	α	$L, \text{ г/ч}$	$Z, \text{ г/ч}$	λ	$h_3, \text{ см}$	СД
1	7.9	1.118	112	102	0.915	5.6	166
2	12.4	1.111	140	139	0.993	4.9	77
3	18.5	1.101	201	207	1.030	6.1	30
4	25.0	1.092	300	311	1.037	7.9	19

Таблица 6. Экспериментальное сравнение адиабатического и изотермического режимов работы колонны ФИО при детритизации $12 \text{ нм}^3/\text{ч}$ воздуха

Высота колонным	Режим работы	Температура колонны, °С		Отн. влажность газа, %	Поток воды $\text{кг}/\text{м}^2 \text{ч}$		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	2.9×10^5
1.9	Изотермический	19.0	19.2	100	75	73	0.89	2330
	Адиабатический	21.1	15.1	58	78	58	0.71	1.5×10^4

Таблица 7. Сравнение основных показателей отитки газовых потоков от паров тритированной воды методами адсорбции и фазового изотопного обмена

	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 $T = 350^\circ\text{C}$, $E_{\text{дес}} = f(\text{RH}^*, G)$	Процесс ведется в адиабатических условиях $E_{\text{ФИО}} = 0.03-0.05E_{\text{дес}}$
Объем аппаратуры	Два или три параллельных аппарата, $V_{\text{ад}} = 1$	Одна колонна, $V_{\text{ФИО}} = 0.25-0.3V_{\text{ад}}$
Объем р/а отходов	При десорбции – $Z_{\text{НТО, gas}}$ При захоронении – 1 кг цеолита на 140–170 г НТО	Вода в количестве \leq количества паров в очищаемом газе

Вода * - RH – относительная влажность газа.

чальной температурой около 20°C , но разной относительной влажностью, в колонне диаметром 62 мм, с высотой разделительного слоя 1.9 и 4.8 м.

Из приведенных данных 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 6–7 раз выше, чем при осушке на цеолите с точкой росы -60°C [15], а на колонне с высотой насадки 4.8 м достигнута степень детритизации около 2.9×10^5 .

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В заключение считаем целесообразным провести сравнение основных показателей адсорбционного метода и методы фазового изотопного об-

мена применительно к удалению из газовых потоков паров тритированной воды (табл. 7).

Сравнение показывает значительные преимущества метода ФИО по сравнению с адсорбционной детритизацией газового потока. Эти преимущества становятся особенно значимыми при проведении детритизации больших (сотни и тысячи м^3 в час) газовых потоков. Дополнительно заметим, что метод ФИО использует минимальное количество устройств для регулирования потоков газа и орошающей воды, не требует использования большого количества запорной арматуры, и, в связи с этим, в большей степени отвечает требованиям безопасности при эксплуатации.

Отметим, что в качестве вторичных радиоактивных отходов при адсорбции образуется вода, сорбированная на твердой фазе, и, если сорбент не предполагается повторно использовать, в этом виде может быть захоронена. В методе ФИО в качестве отхода образуется жидкая вода в количестве, практически равном количеству пара в очи-

щаемом газе. С нашей точки зрения наиболее рациональным методом обращения с этими отходами является их накопление с последующим сокращением количества отходов в сотни раз за счет концентрирования трития, например, методом химического изотопного обмена в системе вода-водород, как это было предложено в [31].

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Corcoran V.J. et al.* New containment box for tritium operations // *Fusion Technology*. 1995. V. 28. № 3. P. 1321–1326
2. Санитарные правила и нормативы СанПиН 2.6.1.2523–09 НОРМЫ РАДИАЦИОННОЙ БЕЗОПАСНОСТИ НРБ–99/2009. М.: Роспотребнадзор. 2009. 73 с.
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. 2019Б Долгосрочный, ИД “Интеллект”, 336 с.
5. *Perevezentsev A.N. et al.* Safety Aspects of Tritium Storage in Metal Hydride Form // *Fusion Technology*. 1995. V. 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 Engineering and Design*. 1995. V. 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 Science and Technology*. 2005. V. 48. P. 91–96.
8. *Iwai Ya. et al.* Experimental evaluation of tritium oxidation efficiency in the room temperature recombiner // *Fusion Engineering and Design*. 2018. V. 136. P. 120–124.
9. *Yu. Edao et al.* Tritium oxidation test by platinum-alumina catalyst under moisture and hydrocarbons atmosphere // *Fusion Engineering and Design*. 2018. V. 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 Science and Technology*. 2019. V. 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. Nuclear Science and Technology*. 2016. V. 53. P. 1831–1838.
14. *Willms R.S. et al.* Mathematical comparison of three tritium system effluent HTO cleanup systems // *Fusion Science and Technology*. 2002. V. 41. P. 974–980.
15. *Sabathier F. et al.* Assessment of the performance of the JET Enhauste Detritiation System // *Fusion Engineering and Design*. 2001. V. 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. Nuclear Materials*. 1999. V. 273. P. 203–212.
18. *Allsop P.J. et al.* The effects of residual tritium on air-detritiation dryer performance // *Fusion Technology*. 1992. V. 21. P. 599–603.
19. *Stork D. et al.* Systems for the safe operation of the JET tokamak with tritium // *Fusion Engineering and Design*. 1999. V. 47. P. 131–172.
20. *Андреев Б.М., Зельвенский Я.Д., Кательников С.Г.* Тяжелые изотопы водорода в ядерной технике. М., ИздАТ, 2000, 344 с.
21. *Magomedbekov E.P. et al.* Current State of Rresearch in the Field of Deytiation of Technological Water Flows: A Review // *Theoretical Foundation of Chemical Engineering*. 2021. V. 55. P. 1111–1125.
22. *Магомедбеков Э.П. и др.* Массообменныет характеристики спирально-призматической насадки в колоннах изотопного обмена при ректификации воды под вакуумом // *Теоретические основы химической технологии*. 2016. Т. 50. С. 502–507.
23. *Магомедбеков Э.П. и др.* Массообменныет характеристики регулярной рулонной ленточно-винтовой насадки в колоннах изотопного обмена при ректификации воды под вакуумом // *Теоретические основы химической технологии*. 2016. Т. 50. С. 408–413.
24. *Perevezentsev A.N. et al.* Wet Scrubber Column for Air Detritiation // *Fusion Science and Technology*. 2009. V. 56. P. 1455–1461.
25. *Perevezentsev A.N. et al.* Wet scrubber technology for tritium confinement at ITER // *Fusion Engineering and Design*. 2010. V. 85. P. 1206–1210.
26. *Rozenkevich M.B. et al.* Main Features of the Technology for Air Detritiation in Scrubber Column // *Fusion Science and Technology*. 2016. V. 70. P. 435–447.
27. *Perevezentsev A.N. et al.* Phase Isotope Exchange of Water as a Gas Detritiation Method / / *Theoretical Foundation of Chemical Engineering*. 2013. V. 47. P. 47–54.
28. *Hayashi T. et al.* R@D of atmosphere detritiation system for ITER in JAЕA // *Fusion Engineering and Design*. 2010. V. 85 P. 1386–1390.
29. *Iwai Ya. et al.* Basic concept of JA DEMO fuel cycle // *Fusion Engineering and Design*. 2021. V. 166. 112261
30. *Марунич С.А. et al.* Эффективность массообмена в процессе фазового изотопного обмена воды с целью детритизации воздуха на регулярной и спирально-призматической насадке // *Химическая технология*. 2010. № 12. С. 761–764
31. *Розенкевич М.Б., Магомедбеков Э.П.* Пути решения газовых выбросов трития // *Безопасность окружающей среды*. 2009. № 1. С. 90–93.