

На правах рукописи

**БУКИН АЛЕКСЕЙ НИКОЛАЕВИЧ**

**ОПТИМИЗАЦИЯ ПРОЦЕССА  
ДЕТРИТИЗАЦИИ ГАЗОВ С  
ОТНОСИТЕЛЬНОЙ ВЛАЖНОСТЬЮ  
МЕНЬШЕ 100% МЕТОДОМ  
ФАЗОВОГО ИЗОТОПНОГО  
ОБМЕНА**

05.17.02 – Технология редких, рассеянных и радиоактивных элементов

**АВТОРЕФЕРАТ**

диссертации на соискание ученой степени  
кандидата технических наук

**Москва – 2014**

Работа выполнена на кафедре технологии изотопов и водородной энергетики Федерального государственного бюджетного образовательного учреждения высшего профессионального образования «Российский химико-технологический университет имени Д.И. Менделеева»

Научный руководитель: доктор химических наук, профессор  
Розенкевич Михаил Борисович  
Федеральное государственное бюджетное  
образовательное учреждение высшего  
профессионального образования «Российский химико-  
технологический университет имени Д.И. Менделеева»,  
заведующей кафедрой технологии изотопов и водородной  
энергетики

Официальные оппоненты: доктор технических наук, профессор  
Зильберман Борис Яковлевич  
ОАО «Радиевый институт имени В.Г. Хлопина», главный  
научный сотрудник отделения 910

Доктор технических наук, профессор  
Соболев Андрей Игоревич  
Федеральное государственное унитарное предприятие  
«Предприятие по обращению с радиоактивными отходами  
«РосРАО», заместитель генерального директора по науке

Ведущая организация: Федеральное государственное бюджетное учреждение  
науки  
Институт Физической Химии и Электрохимии имени А.Н.  
Фрумкина Российской Академии Наук

Защита состоится 13 ноября 2014 года в 15-00 часов на заседании диссертационного совета Д. 212.204.09 в РХТУ им. Д. И. Менделеева (125480 г. Москва, ул. Героев Панфиловцев, д. 20, к. 1) в конференц-зале ИМСЭН-ИФХ.

С диссертацией можно ознакомиться в Информационно-библиотечном центре РХТУ им. Д. И. Менделеева.

Автореферат диссертации разослан «    » сентября 2014 г.

Ученый секретарь диссертационного  
совета Д. 212. 204. 09,  
кандидат технических наук

Растунова И. Л.

**Актуальность работы:** В настоящее время за счет активных международных усилий, в том числе с участием России, проводится работа, направленная на реализацию идеи о крупномасштабном использовании термоядерной энергии в рамках проекта экспериментального реактора ITER. Основным источником опасности на термоядерных объектах являются возможные утечки в окружающую среду радиоактивного изотопа водорода (трития). Для безопасного обращения с тритием и его удержания в пределах производственного помещения реализуются многобарьерные системы, включающие в себя локальные системы извлечения трития на отдельных объектах, в которых проводятся работы с возможными источниками выделения трития (боксы, горячие камеры), и общую систему детритизации газов, сбрасываемых в окружающую среду. При этом, как правило, реализуется технология детритизации, основанная на каталитическом окислении тритированного водорода и органических соединений до воды с дальнейшим удалением паров воды адсорбцией на цеолитах. В последние годы в качестве альтернативы адсорбционной технологии улавливания НТО предложен метод фазового изотопного обмена (ФИО) между жидкой водой и тритированными парами воды в газе, протекающий в противоточных насадочных колоннах. Этот метод имеет целый ряд несомненных преимуществ по сравнению с адсорбцией с точки зрения энергетических затрат, объема аппаратуры и объема образующихся вторичных радиоактивных отходов. Однако ранее исследование процесса ФИО проводилось только применительно к детритизации газа с относительной влажностью  $RH=100\%$ . При этом не происходит изменение влагосодержания газа при его прохождении через колонну и, следовательно, процесс проходит в равновесных условиях. В реальности в систему детритизации будет поступать газ с переменной относительной влажностью  $RH<100\%$ , и его контакт с водой в колонне будет сопровождаться процессами тепло и массопереноса. Насыщение газа приведет к изменению температуры и величины потоков воды и пара в колонне, что, безусловно, будет оказывать влияние на эффективность всего процесса детритизации газа.

**Целью настоящей работы является** выбор условий и оптимизация процесса детритизации газов с переменной влажностью методом фазового изотопного обмена воды в противоточной колонне, заполненной медной оксидированной насадкой Sulzer типа CY. Для достижения поставленной цели необходимо решить следующие задачи:

1. Изучить эффективность тепло- и массопереноса в колонне фазового изотопного обмена, при подаче в нее воздуха с переменной влажностью;
2. Исследовать возможные варианты проведения процесса детритизации воздуха с  $RH<100\%$  методом ФИО, отличающиеся способами компенсации тепловых затрат

на испарение воды при ее контакте с ненасыщенным газом в колонне, и выбрать наиболее эффективный из них;

3. Изучить влияние основных параметров процесса ФИО (температуры в колонне, отношения потока водяного пара в воздухе к потоку воды, потока поступающего на очистку воздуха), способа предварительной подготовки насадки в колонне и ее диаметра на эффективность процесса детритизации.

#### **Научная новизна:**

1. Показано, что при детритизации газов с относительной влажностью  $RH < 100\%$  методом фазового изотопного обмена воды оптимальным с точки зрения достигаемой степени детритизации, энергозатрат и количества вторичных радиоактивных отходов является адиабатический режим работы колонны.
2. Найдено, что в диапазоне температур  $6-20^{\circ}\text{C}$  и  $RH$  газа, равном  $100\%$ , массообменные характеристики процесса ФИО – высота, эквивалентная теоретической ступени (ВЭТС) и высота единицы переноса (ВЕП) – не зависят от температуры, а коэффициент массопередачи увеличивается пропорционально изменению давления насыщенных паров воды.
3. Показано, что для исследованной регулярной насадки Sulzer типа CY при фиксированном мольном соотношении потоков пара и жидкости  $\lambda$  и  $RH=100\%$  значения ВЭТС и ВЕП уменьшаются при уменьшении плотности орошения колонны вплоть до минимальной, *составляющей 0,5% от предельной*, что свидетельствует о сохранении развитой поверхности контакта фаз в этих условиях.
4. Найдено, что массообменные характеристики процесса ФИО при фиксированных удельных нагрузках колонны по потокам воды и газа не изменяются при изменении диаметра колонны ФИО в диапазоне 32-110 мм.

#### **Практическая значимость:**

1. Разработан метод очистки газа от паров тритированной воды при любой его относительной влажности в колонне фазового изотопного обмена, работающей в адиабатических условиях.
2. Показано, что при линейной скорости газа в сечении колонны  $1,1$  м/с насыщение газа до  $RH$ , близкой к  $100\%$ , происходит на высоте колонны не более  $1$  м.
3. Полученная в работе база физико-химических и массообменных данных достаточна для проектирования новых установок для очистки газов от паров тритированной воды в широком диапазоне их производительности.

**Личный вклад автора** заключается в проведении основного объема теоретических и экспериментальных исследований, изложенных в диссертационной работе, включая обработку и обобщение экспериментальных данных, проведение исследований, анализ и оформление результатов в виде публикаций и научных докладов на конференциях.

**Апробация работы:** Материалы диссертации докладывались и обсуждались на: 2-ой отраслевой конференции «Вентиляция, газоочистка и аэрозольный контроль на предприятиях атомной отрасли», С. Петербург, 2011 г; Всероссийской конференции по химической технологии, Москва 2012; 5-ой Российской конференции по радиохимии и ядерным технологиям, Озерск, 2012 г; 7 и 8-ой школе конференции «Взаимодействие изотопов водорода с конструкционными материалами» им. А. А. Курдюмова, 2011-2012 гг; 15-ой Международной научной конференции «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул», Звенигород, 2012 г; Всероссийской научно-технической конференции «Материалы ядерной техники МАЯТ-2012», Москва, 2012 г; 10-th International conference on tritium science and technology, Nice (France), 2013.

**Публикации:** По теме диссертации опубликовано 8 работ, в том числе тезисы 3 докладов, 1 патент (положительное решение по заявке), 4 статьи в рецензируемых российских научных журналах, в том числе 2 статьи из перечня ВАК.

**Структура и объем работы:** Диссертация состоит из введения, 5 глав, выводов и списка литературы. Работа изложена на 159 страницах машинописного текста, содержит 35 таблиц и 43 рисунка. Список литературы включает 97 наименований.

### **Основное содержание работы**

**Во введении** обоснована актуальность работы, сформулированы ее цель и задачи, научная новизна и практическая значимость.

**Глава 1. Литературный обзор.** Рассматриваются методы и принципы работы систем детритизации жидких, твердых и газообразных отходов. Наибольшую эффективность при очистке вентиляционных газов с относительной влажностью  $RH=100\%$  демонстрирует метод фазового изотопного обмена между жидкой водой и ее тритированными парами, реализуемый в противоточных колоннах. Особенностью данного метода является малая плотность орошения насадки водой, которая на 1,5-2 порядка ниже, чем соответствующая величина в ректификационных процессах. Проведенное ранее сравнительное изучение процесса ФИО при использовании в колонне регулярной насадки Sulzer CY-типа<sup>1</sup>, изготовленной из нержавеющей стали и оксидированной меди, показало, что

---

<sup>1</sup> Марунич С.А. Фазовый изотопный обмен как метод очистки воздуха от паров тритированной воды: дис. канд. тех. наук: 05.17.02. М., 2012. – 115 с.

эффективность процесса детритизации значительно выше при использовании медной насадки. Проводится анализ особенности использования метода ФИО для детритизации газов с относительной влажностью (в дальнейшем RH) менее 100%, на основании которого формулируются цель и задачи настоящей работы.

**Глава 2. Методическая часть.** В главе описывается методика проведения теплового и массообменного экспериментов, изотопного анализа и обработки полученных данных. Исследования проводились на противоточной колонне с независимыми потоками (рис. 1). На основании литературных данных в колонне использовалась регулярная насадка Sulzer CY-типа, изготовленная из оксидированной меди, диаметр колонны изменялся в диапазоне от 32 до 110 мм.

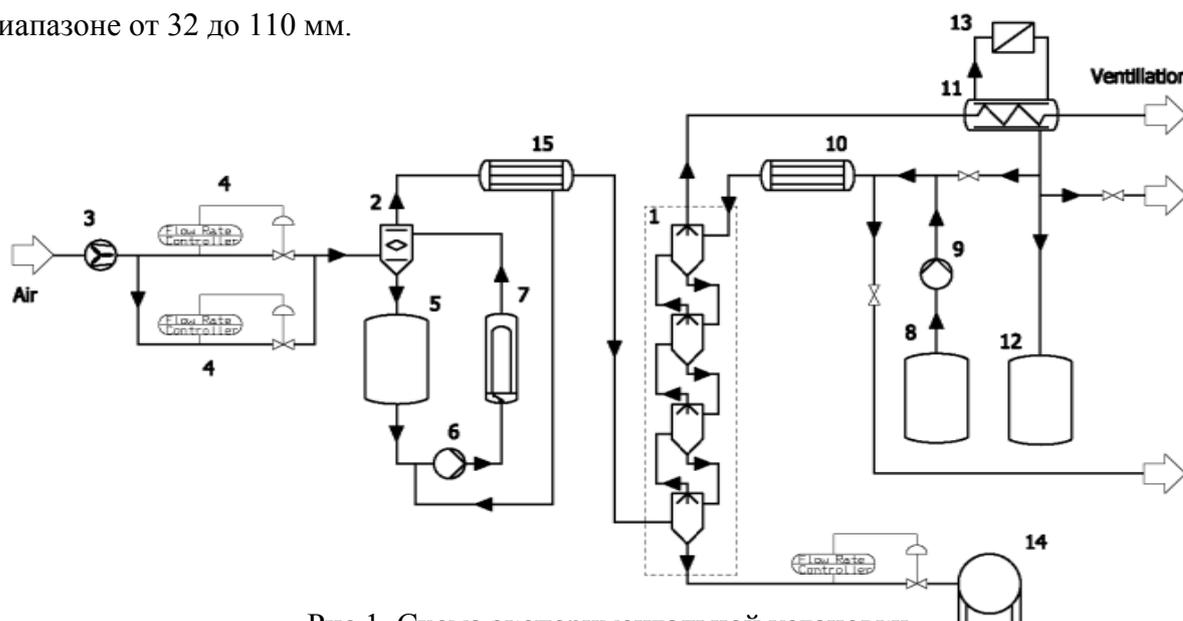


Рис.1. Схема экспериментальной установки

1. Колонна фазового изотопного обмена (скруббер); 2. Насытительная колонна; 3. Воздушный компрессор; 4. Контроллеры потока воздуха; 5. Емкость с тритированной водой; 6. Перистальтический насос; 7. Электрический нагреватель; 8. Емкость с природной водой; 9. Насос для подачи воды на питание колонны; 10. Теплообменник; 11. Конденсатор; 12. Емкость для сбора конденсата; 13. Криостат; 14. Емкость для сбора тритированной воды их колонны; 15. Теплообменник.

По результатам измерения потоков в колонне и изотопного анализа проб на содержание трития жидкостным сцинтилляционным методом на приборе Tri-Carb 2810 TR (Perkin Elmer) определяли соблюдение материального баланса в эксперименте:

$$L_{H_2O} \cdot (X_B - X_U) = G_{H_2O} \cdot (Z_B - Z_U) \quad (1),$$

где  $L_{H_2O}$  – поток жидкости (г/ч),  $G_{H_2O}$  – поток пара (г/ч),  $Z_B$  и  $Z_U$  – концентрации трития в паре на входе и выходе из колонны ФИО,  $X_U$  и  $X_B$  – концентрации трития в жидкости на входе и выходе из колонны. Результаты экспериментов с расхождением материального баланса не более 10% считались достоверными и для них рассчитывали следующие массообменные характеристики:

- число теоретических ступеней разделения:  $n = \frac{\ln\left(\frac{Z_B - Z_B^*}{Z_U - Z_U^*}\right)}{\ln\left(\frac{\alpha}{\lambda}\right)}$  (2)

где  $Z_B^*$  и  $Z_U^*$  – соответствующие концентрации трития в паре, равновесные выходящему и входящему потоку жидкости;  $\alpha$  – термодинамический коэффициент разделения,  $\lambda$  – отношение потоков,  $\lambda = \frac{X_B - X_U}{Z_B - Z_U}$ .

- высота, эквивалентная теоретической ступени разделения ВЭТС (см):  $\text{ВЭТС} = \frac{H_{\text{кол}}}{n}$  (3)

где  $H_{\text{кол}}$  – высота насадочного слоя (см);

- высоту единицы переноса ВЕП (см):  $\text{ВЕП} = \text{ВЭТС} \cdot \frac{(\alpha - \lambda)}{\ln\frac{\alpha}{\lambda}}$  (4)

- степень детритизации (detritiation factor) DF:

- при детритизации насыщенного воздуха:  $DF_{\text{конц}} = \frac{Z_B}{Z_U}$  (5),

- при детритизации ненасыщенного воздуха с учетом изменения влагосодержания очищаемого газа:  $DF_{\text{сумм}} = \frac{G_{\text{H}_2\text{O, вх}} \cdot Z_B}{G_{\text{H}_2\text{O, вых}} \cdot Z_U}$  (6),

где  $G_{\text{H}_2\text{O, вх}}$  и  $G_{\text{H}_2\text{O, вых}}$  – поток пара на входе и выходе из колонны (г/ч).

Величину объемного коэффициента массопередачи  $K_G$  (моль/м<sup>3</sup>·с) рассчитывали по уравнению:  $K_G = G_{\text{H}_2\text{O}} / (S \cdot \text{ВЕП})$  (7),

где  $S$  – площадь сечения колонны (м<sup>2</sup>)

Для определения достоверности получаемых характеристик процесса ФИО была проведена оценка величины возможных экспериментальных погрешностей и их влияния на точность определения массообменных характеристик. Показано, что относительная погрешность в определении расчетных величин увеличивается в следующем ряду:  $n(5 \text{ отн. \%}) = \text{ВЭТС} (5 \text{ отн. \%}) \approx \text{ВЕП} (5 \text{ отн. \%}) < K_G (8,1 \text{ отн. \%})$ .

Эффективность процесса теплообмена контролировалась измерением температуры и влагосодержания воздуха на входе и выходе из колонны ФИО. Для определения влияния ламинарной пленки жидкости на теплообмен анализировались случаи с постоянным (без насыщения) и переменным влагосодержанием (с насыщением) воздуха по высоте колонны. По полученным данным рассчитывался коэффициент теплопередачи через внутреннюю стенку колонны:

$$K = Q_{\text{нагр}} / (S \cdot \Delta T_{\text{сред}}) \quad (8)$$

где  $Q_{\text{нагр}}$  – количество тепла, необходимое для нагрева парогазовой смеси (кДж/ч), а  $\Delta T_{\text{сред}}$  – средняя разность температур.

**Глава 3. Предварительные эксперименты по изучению тепло- и гидродинамического режима колонны ФИО.** Глава посвящена рассмотрению

результатов предварительных тепловых экспериментов и опытов с различными вариантами режимов запуска колонны ФИО.

В результате проведения тепловых экспериментов было получено, что эффективность насыщения воздуха парами воды в скрубберной колонне является достаточно высокой. Даже при относительной влажности исходного воздуха около 10% (при  $t \approx 25^\circ\text{C}$ ) при потоке воздуха  $12 \text{ м}^3/\text{ч}$  из колонны диаметром 62 мм с высотой насадочного слоя 96 см, находящейся в адиабатических условиях, выходит воздух с относительной влажностью, близкой к 100%, при температуре  $12,3^\circ\text{C}$ . Следовательно, в колонне высотой больше 1 м вся остальная ее высота будет работать в равновесных условиях, но при температуре ниже комнатной. Время достижения теплового стационарного режима составляет приблизительно 2 часа.

С целью определения значения коэффициента теплопередачи в процессе ФИО, осуществляемом в условиях интенсивного испарения жидкости, и оценки влияния пленки воды на поверхности насадки на его величину, были проведены два предварительных опыта. Для создания адиабатических условий в рубашку колонны подавали воду с температурой  $25,0 \pm 0,1^\circ\text{C}$ . Условия проведения экспериментов и их результаты представлены в табл. 1.

Таблица. 1.

Влияние пленки жидкости на поверхности насадки на коэффициент теплопередачи ( $D_{\text{кол.}}=62 \text{ мм}$ ,  $G_{\text{возд.}}=16 \text{ м}^3/\text{ч}$ ,  $T_{\text{возд. вх.}}=13,1-13,3^\circ\text{C}$ ,  $RH_{\text{вх.}}=100\%$ )

Условия эксперимента	$\Delta t_{\text{ср}}, ^\circ\text{C}$	$K, \text{ кДж}/(\text{м}^2 \cdot \text{ч} \cdot \text{К})$
Насадка в колонне сухая	6,5	$158 \pm 17$
Колонна орошается водой $133,6 \text{ кг}/\text{м}^2 \cdot \text{ч}$	8,7	$175 \pm 21$

Анализируя полученные значения коэффициентов теплопередачи и относительные ошибки в их определении, можно сделать вывод, что смоченная и сухая поверхность контактных элементов при данной плотности орошения обладают одинаковыми характеристиками теплопереноса.

Для достижения максимальной поверхности контакта фаз необходимо равномерное распределение жидкости на поверхности насадки. При подаче в орошаемую водой колонну потока газа в насадочном слое произойдет накопление динамической задержки. Равномерность распределения жидкости будет зависеть от ее начального количества в слое. Для определения потока орошения в предпусковой момент времени были проведены эксперименты по измерению динамики выхода жидкости из колонны в условиях противотока газа в зависимости от начального потока питания (рис. 2).

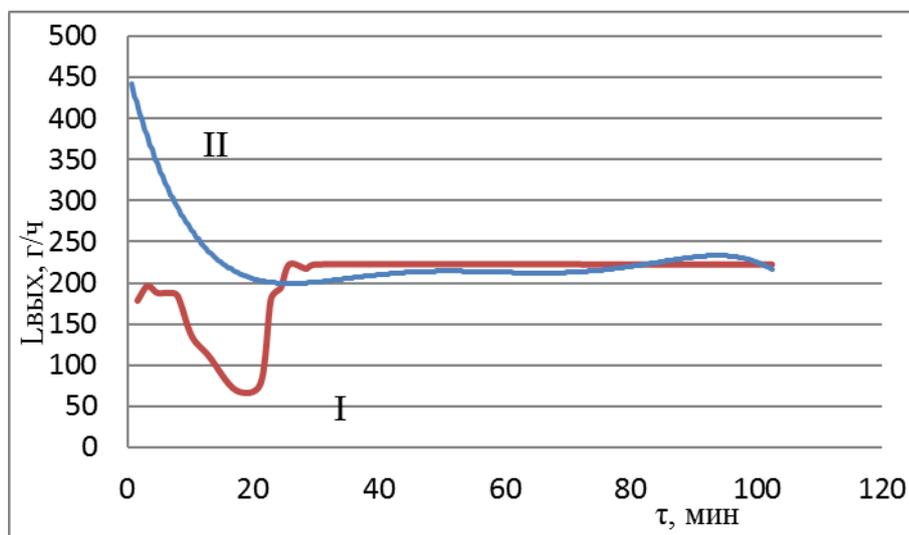


Рис. 2. Динамика изменения потока жидкости на выходе колонны ( $D_{\text{кол}}=62$  мм) в условиях противотока ( $G_{\text{возд}}=12$  м<sup>3</sup>/ч,  $RH_{20^{\circ}\text{C}}=100\%$ ). I – предварительное смачивание насадки потоком 230 г/ч ( $73$  кг/м<sup>2</sup>·ч), II – предварительное смачивание насадки потоком 460 г/ч ( $146$  кг/м<sup>2</sup>·ч) с изменением потока воды перед подачей в колонну воздуха до 230 г/ч

При начальном смачивании насадки двойным по сравнению с расчетным рабочим потоком воды отсутствует период, связанный с накоплением динамической задержки при пуске газа в колонну. Это означает, что при таком режиме запуска не будет наблюдаться уменьшения потока воды по насадке и возможного проскока трития в пусковой период. Экспериментальные данные по изучению зависимости эффективности процесса детритизации в стационарных условиях от способа запуска колонны и типа насадки приведены в табл. 2.

Таблица. 2.

Результаты экспериментов по детритизации ненасыщенного воздуха в колонне при разных способах предварительной подготовки насадки ( $D_{\text{кол.}}=62$  мм,  $H_{\text{нас}}=96$  см,  $G_{\text{возд.}}=12$  м<sup>3</sup>/ч)

№	Режим запуска	$T_{\text{газ}}$ , °С	$RH$ , %	$L_{\text{H}_2\text{O}}$ , Г/ч	$\lambda_{\text{конц}}$	ВЭТС, см	ВЕП, см	$DF_{\text{кон}}$
Sulzer CY из медной оксидированной проволоки								
1	Затопление	12,8	100	136	0,910	6,6	6,0	161
2	Сухая			132	0,897	9,2	8,0	129
3	Затопление	19,8	45	99	0,570	-	-	6900*
4	Влажная (хранение 25 ч)			102	0,590	-	-	1900*
5	Сухая			102	0,580	-	-	396*
Sulzer CY из нержавеющей проволоки								
6	Затопление	20,0	100	237	0,956	7,0	6,5	50
7	Влажная (хранение 40 мин)			245	0,860	24,2	21,2	9
8	Сухая			234	0,979	370,7	347,9	1

\* – для ненасыщенного воздуха рассчитывалось  $DF_{\text{сумм}}$

Из представленных данных видно, что при используемых для процесса ФИО экстремально малых плотностях орошения насадки в колонне на достигаемую степень детритизации при прочих равных условиях сильное влияние оказывает начальное состояния поверхности и материал насадки. При предварительном затоплении колонны достигается максимальное смачивание поверхности насадки, а значения ВЕП не зависят от материала, из которого она изготовлена. Если после затопления колонны не пустить рабочие потоки газа и жидкости, а дать воде стечь, то эффективность насадки из нержавеющей стали уменьшится в 4 раза, а при полном высыхании поверхности – в 50 раз. При использовании насадки из медной оксидированной сетки такая зависимость значительно слабее, а при использовании изначально сухой насадки за время эксперимента происходит практически полное восстановление активной поверхности контакта фаз, а эффективность уменьшается всего в 1,5 раза. Слабое влияние исходного состояния поверхности на массообменные характеристики в случае с медной проволокой, объясняется более высокой ее гидрофильностью и шероховатостью по сравнению с проволокой из нержавеющей стали. При детритизации ненасыщенного воздуха затопление насадки непосредственно перед запуском колонны позволяет достичь в 3,6 раза большей  $DF_{\text{сумм}}$ , чем при использовании смоченной и в 17 раз большей, чем при использовании сухой насадки. Влияние режима запуска в этом случае возникает в результате сложности поддержания активной поверхности контакта фаз в условиях испарения пленки жидкости при насыщении газа в колонне. *Следовательно, из полученных результатов следует практически важный вывод о том, что для достижения максимальной степени детритизации в колонне ФИО насадка в ней должна быть влажной, а пленка жидкости на ней должна поддерживаться циркулирующим потоком воды, в два раза превышающим рабочий.*

В ходе предварительных экспериментов была определена динамическая задержка колонны (с насадкой Sulzer CY) в условиях проведения процесса детритизации газа. В пределах экспериментальной погрешности при детритизации газа с  $RH=100\%$  единственным параметром, влияющим на величину динамической задержки колонны, является плотность орошения ее питающей водой: независимо от величины потока газа, температуры, высоты насадочного слоя в колонне и способа ее запуска экспериментальные точки удовлетворительно описываются одной степенной зависимостью:

$$\sum L [\text{кг/м}^3] = 5,45 \cdot L^{0,37} [\text{кг/м}^2\text{ч}] \quad (9)$$

Заметим, что измерение динамической задержки в настоящей работе проводилось при плотности орошения колонны в диапазоне от 3,5 кг/м<sup>2</sup>ч до 570 кг/м<sup>2</sup>ч. Тем не менее,

полученная зависимость удовлетворительно коррелирует с литературными данными<sup>2</sup> по зависимости динамической задержки насадочных дистилляционных колонн от плотности орошения при значениях  $L \geq 2000 \text{ кг/м}^2$ :  $\Sigma L [\text{кг/м}^3] \approx L^{0,33}$ .

**Глава 4. Выбор режима работы колонны ФИО при детритизация воздуха с  $RH < 100\%$ .** В данной главе приводятся результаты исследования возможных вариантов компенсации теплоты, затраченной на испарение воды при насыщении очищаемого газа с  $RH < 100\%$  в колонне ФИО. В табл. 3. представлены расчетные данные по насыщению воздуха до  $RH = 100\%$  при атмосферном давлении в насадочной колонне в адиабатических условиях ее работы.

Таблица 3.

Расчетные данные по насыщению воздуха в колонне ФИО в адиабатических условиях ( $t_{\text{возд. вх}} = 20^\circ\text{C}$ ,  $P = 101325 \text{ Па}$ ,  $G_{\text{возд}} = 12 \text{ м}^3/\text{час}$ )

RH, отн. %	0,1	1	5	10	20	30	50	70	90	100
$t_{\text{возд.}}, ^\circ\text{C}$	5,8	6	6,7	7,6	9,3	10,8	13,8	16,4	18,9	20
$G_{\text{H}_2\text{O}}^t, \text{ г/ч}$	89,2	90,2	94,8	100,7	113	125,8	153,1	182	213	228,9
$\alpha$	1,122	1,122	1,120	1,119	1,116	1,113	1,109	1,104	1,101	1,099

Из представленных данных видно, что в зависимости от исходной влажности очищаемого газа при  $t_{\text{возд. вх}} = 20^\circ\text{C}$ , равновесная температура колоны ФИО может изменяться в диапазоне от 6 до  $20^\circ\text{C}$ . К положительным следствиям уменьшения температуры следует отнести увеличение  $\alpha$  и уменьшение общего количества паров воды в выходящем газе, что при прочих равных условиях приводит к уменьшению количества трития, сбрасываемого в окружающую среду. Вместе с тем, уменьшение влагосодержания воздуха при условии поддержания равенства количества выходящей из колонны воды количеству входящего в нее пара приводит к уменьшению плотности орошения колонны, а, следовательно, возможному разрыву тонкой ламинарной пленки жидкости на поверхности насадки и ухудшению условий массообмена.

В результате предварительного анализа были выбраны три основных варианта проведения процесса: адиабатический режим работы колонны, сопровождающийся снижением ее рабочей температуры (опция 1), и два режима с компенсацией тепла на испарение воды при насыщении газа в колонне – нагреванием внешней рубашки колонны (опция 2) и предварительным нагревом газа, поступающего в колонну (опция 3). Условия проведения экспериментов и их результаты представлены в табл. 3. и в табл. 4

<sup>2</sup> Mackowiak J. Fluid Dynamics of Packed Columns. Principles of the Fluid Dynamic Design of Columns for Gas/Liquid and Liquid/Liquid Systems. Springer-Verlag Berlin Heidelberg. 2010, - 355 p.

Таблица 3.

Условия проведения экспериментов по детритизации ненасыщенного воздуха при различных условиях проведения процесса ( $D_{\text{кол.}}=62$  мм,  $H_{\text{нас.}}96$  см,  $G=12$  м<sup>3</sup>/ч,  $RH_{t=20^{\circ}\text{C}}=45\%$ )

№	Опция	$t_{\text{H}_2\text{O руб.}},$ °C	$t_{\text{вх.}},$ °C	$t_{\text{вых.}},$ °C	$G_{\text{H}_2\text{O вх.}},$ г/ч	$G_{\text{H}_2\text{O вых.}},$ г/ч	$L_{\text{H}_2\text{O вх.}},$ г/ч	$L_{\text{H}_2\text{O вых.}},$ г/ч
1	1	-	19,8	13,3	103	147	231	187
2		-	19,7	13,4	103	148	168	123
3	2	34	25,6	24,8	104	271	315	148
4	4	-	35,3	19,1	101	219	317	199

Как видно из табл. 3, опыты 1 и 2, проведенные в адиабатическом режиме работы колонны, отличаются только потоком орошающей колонну воды. В опыте 3 температуру в рубашке колонны поддерживали таким образом, чтобы температура газа на выходе из колонны была одинаковой с его температурой на входе, в опыте 4 входящий в колонну газ нагревали так, чтобы его температура на выходе была близка к комнатной.

Таблица 4.

Сравнение эффективности детритизации ненасыщенного воздуха с использованием разных режимов работы колонны

Сравниваемые параметры	Опции 1 и 4 при $\lambda=0,59$ и $0,6$		Опции 1 и 2 при $\lambda=0,78-0,86$	
	Опция 1	Опция 4	Опция 1	Опция 2
№ опыта в табл. 3	1	4	2	3
$t_{\text{возд. вых.}},$ °C	13,3	19,1	13,0	24,8
$L_{\text{H}_2\text{O, вых.}},$ г/ч	187	199	123	148
$DF_{\text{сумм}}$	3100	2600	490	353

Как видно из проведенного в табл. 4 сравнения, значения  $DF_{\text{сумм}}$ , достигнутые в сопоставимых условиях при использовании адиабатического режима работы колонны, во всяком случае, не меньше, чем при использовании режимов с компенсацией тепла испарения воды. К негативным последствиям опций с внешним подводом энергии следует отнести и увеличение количества вторичных отходов в виде тритированной воды на выходе из колонны. Отсюда следует важный вывод: *оптимальным режимом детритизации газа с  $RH < 100\%$  является адиабатический.*

**Глава 5. Оптимизация условий детритизации ненасыщенного парами воды воздуха методом ФИО.** Данная глава посвящена определению оптимальных условий проведения процесса детритизации. Изучалась зависимость массообменных характеристик от соотношения потоков  $\lambda$ , температуры проведения процесса, величины газового потока и диаметра колонны.

### 5.1. Влияние соотношения потоков на эффективность процесса детритизации

В данном разделе исследовалось влияние величины  $\lambda$  на достигаемую степень детритизации ненасыщенного воздуха, а полученные результаты сравнивались с литературными данными по аналогичной зависимости для насыщенного газа<sup>3</sup> (рис. 4). Эксперименты проведены в колонне диаметром 62 мм при высоте насадочного слоя 96 см. В колонну, работающую в адиабатических условиях, подавали воздух с температурой около 20°C и RH=45-50%.

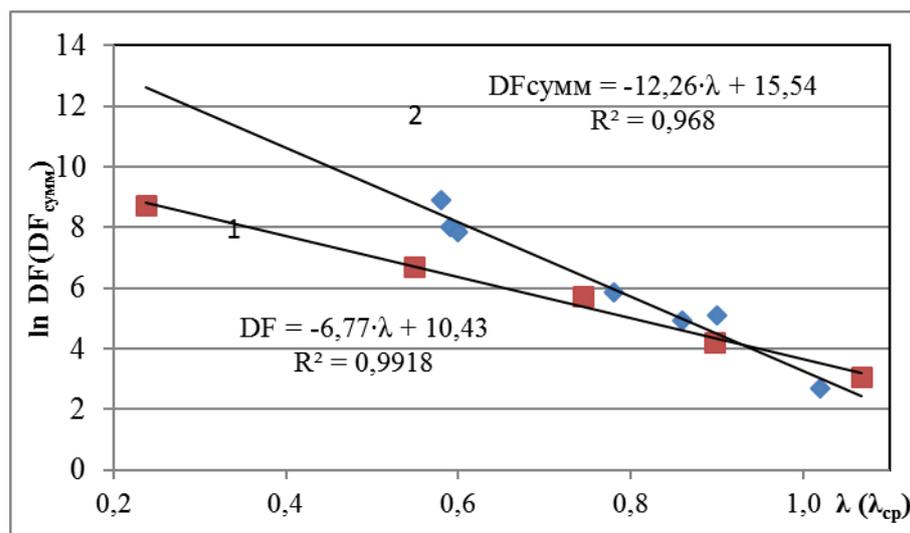


Рис. 4. Зависимость степени детритизации от величины мольного соотношения потоков (1- эксперименты с насыщенным воздухом (RH=100%, 2 – эксперименты с ненасыщенным воздухом (RH<100%) )

Из представленных данных видно, что степень детритизации ненасыщенного газа при сопоставимых  $\lambda$  (для воздуха с RH=100%) и  $\lambda_{ср}$  (для воздуха с RH<100%) превышает аналогичную величину для газа с RH=100%. Этот положительный с точки зрения практики эффект можно объяснить тем, что проходящий при детритизации ненасыщенного газа межфазный перенос воды из жидкой фазы в парогазовую повышает эффективность процесса детритизации, в частности, за счет разбавления входящих в колонну тритированных паров воды парами воды природного изотопного состава.

### 5.2. Зависимость эффективности процесса детритизации от температуры.

Целью данного исследования стало определение массообменных характеристик процесса детритизации газа с RH=100% при работе колонны в диапазоне температур от 6 до 25°C. Верхняя граница исследуемого диапазона соответствует температуре газа в

<sup>3</sup> Марунич С.А. Фазовый изотопный обмен как метод очистки воздуха от паров тритированной воды: дис. канд. тех. наук: 05.17.02. М., 2012. – 115 с. Отметим, что в этой работе для сопоставимых с исследованными в настоящей работе условиях проведения процесса детритизации газа получена следующая зависимость ВЭТС от  $\lambda$ : ВЭТС=26,8·e<sup>-1,225·λ</sup>

производственном помещении, а нижний предел обусловлен потенциальным охлаждением колонны при детритизации воздуха с  $RH=0,1\%$ . Работа проводилась на установке с высотой насадочной части термостатируемой колонны диаметром 62 мм от 96 до 208 см. В колонну подавали поток воздуха  $12 \text{ м}^3/\text{ч}$  с  $RH=100\%$  при температуре работы колонны. В табл. 5 представлены полученные экспериментальные данные. Поскольку приведенные величины получены при различающихся значениях  $\lambda$ , в той же таблице приведены скорректированные значения ВЭП и ВЭТС с использованием зависимости, полученной в цитированной выше работе [3].

Таблица. 5.  
Зависимость массообменных характеристик процесса ФИО от температуры

t, °C	6,0	7,9	12,0	18,2	20,3	25,0
ВЭТС <sub>эксп.</sub> , см	7,4	8,2	7,4	7,1	7,3	7,9
$\lambda_{\text{эксп}}$	0,879	0,844	0,851	0,931	0,910	1,035
ВЭТС <sub>расч., <math>\lambda=1</math></sub> , см	6,4	6,8	6,2	6,5	6,5	8,2
ВЕП <sub>расч., <math>\lambda=1</math></sub> , см	6,5	7,1	6,5	6,6	6,6	7,7
$\alpha$	1,122	1,118	1,111	1,101	1,099	1,092
DF <sub><math>\lambda=1</math></sub>	43,5	37,7	42,7	34,9	34,4	22,1

Из представленных данных видно, что при детритизации насыщенного воздуха с понижением температуры не происходит уменьшение наблюдаемой степени детритизации, а значения ВЭТС и ВЭП как минимум не увеличиваются. Следовательно, в случае детритизации газа с  $RH < 100\%$  снижение температуры в колонне за счет насыщения газа парами воды в нижней ее части не приведет к ухудшению эффективности процесса детритизации. Остальная часть высоты колонны, в которой будет проходить детритизация газа с  $RH=100\%$ , будет обеспечивать величину DF даже более высокую, чем в колонне с комнатной температурой. *Этот вывод еще раз подтверждает правильность выбора опции 1 (колонна, работающая в адиабатических условиях) как оптимальной для детритизации газа с любой величиной RH.*

### 5.3. Зависимость эффективности детритизации от величины газового потока.

Эксперименты по определению эффективности массообмена от скорости потока газа проводились с использованием воздуха с  $RH=100\%$  при температуре процесса 12 и 20°C. В колонну ФИО диаметром 62 мм было загружено 7 блоков насадки, и общая высота насадочного слоя составила 112 см. Зависимость ВЭТС от величины газового потока представлена на рис. 5. Величина  $\lambda$  в ходе этих экспериментов поддерживалась в диапазоне 0,85-1,0.

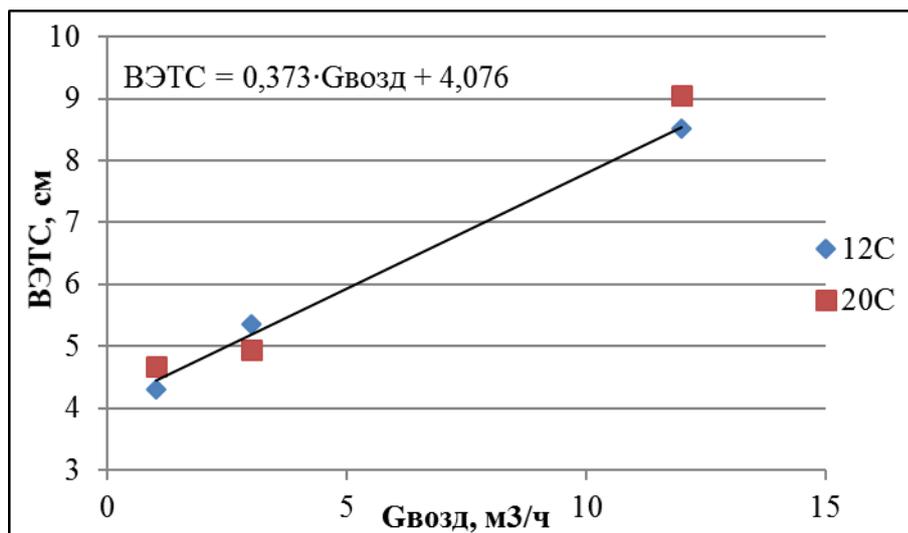


Рис. 5. Зависимость ВЭТС от потока газа и температуры процесса при детритизации насыщенного воздуха

Из представленных данных видно, что с уменьшением величины газового потока происходит линейное падение ВЭТС. Заметим, что на колонне фиксированного диаметра это приводит к увеличению времени контакта парогазовой смеси со смоченной поверхностью насадки. Таким образом, наблюдаемый эффект можно рассматривать как противоположный влиянию соотношения потоков на значения ВЭТС и  $K_G$ , поскольку при уменьшении  $\lambda$  (увеличении потока воды) скорость движения воды по насадке увеличивается, а время контакта уменьшается.

Полученные данные свидетельствуют о высокой степени смачиваемости поверхности насадки водой. Обратим внимание на то, что плотность орошения колонны диаметром 62 мм при потоке воздуха  $1 \text{ м}^3/\text{ч}$  и температуре  $12^\circ\text{C}$  составляет всего 3-4 капли (0,05 мл) в минуту, и при этом ВЭТС в 2 раза меньше, чем при плотности орошения на в 10 раз порядок величины большей. Следовательно, в процессе детритизации ненасыщенного воздуха с  $RH \ll 100\%$  при малых плотностях орошения в нижней части колонны, где будет происходить процесс испарения воды для насыщения газа, не произойдет разрыва тонкой пленки воды на насадке, и поверхность контакта, во всяком случае, не уменьшится.

**5.4. Зависимость эффективности процесса детритизации от диаметра колонны ФИО.** В работе получены массообменные характеристики процесса детритизации для колонн ФИО диаметром 32, 62 и 110 мм. Колонна заполнялась медной оксидированной насадкой Sulzer на высоту ее слоя 96 см. Поток газа с  $RH=100\%$  для каждого диаметра подбирался таким образом, что его линейная скорость в сечении колонны составляла 1,1 м/с. Температура колонны во всех экспериментах составляла  $20^\circ\text{C}$ . Полученные результаты обобщены в табл. 6.

Таблица 6.

Сравнение массообменных характеристик процесса детритизации, полученных в колоннах разного диаметра

Параметр	Диаметр колонны 32 мм	Диаметр колонны 62 мм	Диаметр колонны 110 мм
$G_{\text{возд}}$ , м <sup>3</sup> /ч	3,2	12	37,1
$L_{\text{H}_2\text{O}}$ , г/ч	62,5	217	704
$\lambda_{\text{конц}}$	0,981	1,008	0,854
ВЭТС, см	9,2	9,0	10,3
ВЕТС $_{\lambda=1}$ , см	9,0	9,0	8,6
$K_{G,\lambda=1}$ , моль/м <sup>3</sup> с	13,6	13,5	15,1

Из представленных результатов следует, что в пределах погрешности эксперимента для исследованного диапазона диаметров колонны ФИО зависимость массообменных характеристик от диаметра колонны отсутствует.

#### **Заключение:**

Проведенное исследование продемонстрировало высокую эффективность процесса удаления паров тритированной воды из газов методом фазового изотопного обмена воды при любой его исходной относительной влажности. При этом несомненным достоинством разработанного метода является обоснованная в работе возможность эффективного его осуществления в адиабатическом режиме работы колонны. С практической точки зрения это предельно упрощает технологическую схему и систему управления и регулировки технологическими параметрами процесса, т.к. приемлемым является любой температурный режим работы колонны, устанавливающийся в зависимости от параметров газа, поступающего на очистку. Изученные закономерности изменения массообменных характеристик процесса при варьировании различных параметров, включая результаты, полученные в колоннах ФИО разного диаметра, составляют базу физико-химических данных, достаточных для проектирования установок в широком диапазоне их производительности. Высокая оценка процесса ФИО как более простого и безопасного метода по сравнению с адсорбционным, данная специалистами ITER<sup>4</sup>, позволяет рекомендовать разработанную технологию удаления паров тритированной воды для внедрения на строящихся тритий опасных производствах.

<sup>4</sup> ITER ORGANIZATION. Annual Report 2012. 2012, – 26 p.

## ВЫВОДЫ:

На основании проведенного исследования, направленного на разработку оптимальных условий удаления тритированных паров воды из воздуха с относительной влажностью  $RH \leq 100\%$  методом фазового изотопного обмена воды в противоточной колоннах, заполненной регулярной медной оксидированной насадкой Sulzer CY-типа, можно сделать следующие выводы:

1. Показано, что при детритизации газов с относительной влажностью  $RH < 100\%$  методом фазового изотопного обмена воды оптимальным с точки зрения достигаемой степени детритизации, энергозатрат и количества вторичных радиоактивных отходов является адиабатический режим работы колонны.

2. Найдено, что при значениях относительной влажности  $RH$  ненасыщенного парами воды газа  $\geq 10\%$  при температуре  $20^\circ\text{C}$  и его линейной скорости в сечении колонны  $1,1$  м/с насыщение газа до равновесного давления паров воды происходит на высоте колонны не более  $1$  м.

3. Обнаружено, что при детритизации газа с  $RH = 100\%$  в колонне ФИО, работающей в изотермическом режиме, при изменении температуры в диапазоне от  $6$  до  $20^\circ\text{C}$  значения ВЭТС и ВЕП в пределах погрешности эксперимента не изменяются и при линейной скорости газа в сечении колонны  $1,1$  м/с и  $\lambda = 1$  составили  $\text{ВЭТС} = 6,5 \pm 0,3$  см,  $\text{ВЕП} = 6,7 \pm 0,4$  см.

4. Показано, что значения ВЕП не зависят от диаметра колонны при его изменении в  $3,4$  раза (от  $32$  мм до  $110$  мм).

5. Продемонстрирована высокая эффективность использования регулярной медной оксидированной насадки CY типа для детритизации газов в условиях экстремально малых плотностей орошения колонны ФИО водой. Так, при уменьшении плотности орошения в  $12$  раз (с  $72$  до  $5,8$  кг/м<sup>2</sup>ч) происходит монотонное уменьшение ВЭТС примерно в  $2$  раза.

6. В широком диапазоне плотностей орошения измерена динамическая задержка  $\Sigma L$  регулярной медной оксидированной насадки CY типа. Показано, что эта величина описывается уравнением:  $\Sigma L [\text{кг/м}^3] = 5,45 \cdot L^{0,37} [\text{кг/м}^2 \cdot \text{ч}]$ .

### **Основное содержание диссертации изложено в публикациях:**

1. Перевезенцев А.Н., Розенкевич М.Б., Пак Ю.С., Марунич С.А., Букин А.Н. Фазовый изотопный обмен как метод детритизации газов // Теоретические основы химической технологии. 2013. Т. 47. №1. С. 54-61.
2. Розенкевич М.Б., Пак Ю.С., Марунич С.А., Букин А.Н., Ривкис Л.А., Ионесян И.А., Александров В.В., Ермолаев И.Е., Демидов Д.А., Беляков М.И., Субботин М.Л., Николаев Е.С., Карпушов И.Д., Перевезенцев А.Н. Новая технология детритизации газовых потоков // Перспективные материалы. 2013. № 14. С. 345-351.
3. Перевезенцев А.Н., Букин А.Н., Марунич С.А., Пак Ю.С., Розенкевич М.Б. Особенности очистки газовых потоков от паров тритированной воды методом фазового изотопного обмена // Материалы 2-ой отраслевой конференции «Вентиляция, газоочистка и аэрозольный контроль на предприятиях атомной отрасли», 2011. С. 20-23.
4. Букин А.Н., Марунич С.А., Пак Ю.С., Розенкевич М.Б. Способ очистки газов от паров тритированной воды. № 2013110765/05; заявл. 12.03.2012, Бюл. № 22. 7 с.
5. М.Б. Розенкевич, А.Н. Букин, С.А. Марунич, Ю.С. Пак, Э.П. Магомедбеков. Состояние разработки технологии детритизации жидких и газовых отходов, возникающих при переработке ОЯТ в России // Вопросы атомной науки и техники. 2013. Т. 1. № 74. С. 159-171.
6. Букин А.Н., Сумченко А.С., Розенкевич М.Б. Разработка оптимальных режимов работы установки детритизации воздуха методом фазового обмена при его относительной влажности от 0 до 100% // Успехи в химии и химической технологии. 2012. Т. 26. № 11. С. 11-15.
7. Сумченко А.С., Букин А.Н., Розенкевич М.Б. Возможности использования фазового изотопного обмена как метода очистки сбросных газов от трития // Тез. Докладов 50-ой Российской школы конференции по радиохимии и ядерным технологиям, Озерск. 2012. С. 43-45.
8. Розенкевич М.Б., Букин А.Н., Марунич С.А., Пак Ю.С., Магомедбеков Э.П. Состояние разработки технологии детритизации жидких и газовых отходов, возникающих при переработке ОЯТ России // Программа и тезисы Всероссийской научно-технической конференции «Материалы ядерной техники МАЯТ-2012», Москва. 2012. С. 66.