

УДК 621.039.73
© 2006

МИКРОВОЛНОВАЯ СУШКА КОНЦЕНТРАТА ВОД СПЕЦКАНАЛИЗАЦИИ ХИМИКО-МЕТАЛЛУРГИЧЕСКОГО ЗАВОДА

А.С. Алой, Е.Ю. Иванов, Б.С. Кузнецов

Россия, г. Санкт-Петербург, ФГУП НПО "Радиовый институт им. В.Г. Хлопина"

С.И. Ровный, А.И. Бобылев, А.В. Ряков, Г.Ш. Баторшин

Россия, г. Озерск, ФГУП "ПО "Маяк"

Приведено описание установки сушки и прокаливания солевого остатка концентрата вод спецканализации химико-металлургического завода с использованием сверхвысокой частоты (СВЧ) и результаты первого этапа исследований. Изучено распределение радионуклидов между сухим остатком и конденсатом при дозировании отходов в периодическом и полунепрерывном режимах. С учетом данных по балансу материальных потоков и эффективности процесса выданы рекомендации по модернизации технологического блока, системы газоочистки и введения дополнительных средств контроля.

Новое Российское законодательство в области обращения с радиоактивными отходами ставит перед ПО "Маяк" задачу снижения, а в ближайшей перспективе прекращения сбросов жидких отходов (ЖРО) в специальные водоемы-накопители. Одним из возможных и, на наш взгляд, перспективных способов может стать перевод ЖРО в твердое состояние в виде кальцината или солевого кека с последующим долговременным хранением.

В этой связи в производственных условиях проводятся испытания мембранных способов очистки сбросных вод спецканализации химико-металлургического завода. Присутствующие в растворах альфа-излучающие радионуклиды (за исключением урана) находятся в коллоидном состоянии, что позволяет вывести их путем непрерывной микрофльтрации с использованием аппарата плоскорамной конструкции с металлокерамическими мембранами марки "Трумем". Образующийся фильтрат поступает в водоем оборотного водоснабжения [1]. Концентрат, содержащий основное количество плутония и америция, подлежит дальнейшей обработке с целью минимизации остаточного объема путем выпаривания и сушки. Одним из рассматриваемых вариантов реализации таких

процессов является способ, основанный на применении СВЧ энергии.

Диэлектрическим, микроволновым или СВЧ нагревом называют нагрев объекта энергией электромагнитного поля сверхвысоких частот (в России разрешены частоты: 915 и 2450 МГц). Электромагнитное поле, проникая в объект, взаимодействует с заряженными частицами, например дипольными молекулами воды, и вызывает их колебания, при этом из-за диэлектрических потерь на внутреннее трение каждая молекула или диполь становится источником тепла. Совокупность таких микропроцессов приводит к поглощению энергии поля и обеспечивает нагрев материала в объеме, что позволяет ускорить процесс сушки и уменьшить габариты оборудования по сравнению с традиционными схемами. Эффективность преобразования СВЧ энергии в тепловую определяется электрофизическими свойствами загрузки, частотой генератора и напряженностью электромагнитного поля.

СВЧ энергия поглощается непосредственно загрузкой и не требует размещения нагревателей вблизи радиоактивного, обычно еще и коррозионно агрессивного материала. Отсутствие внешних источников нагрева уп-

рошает обслуживание и сводит к минимуму загрязнение оборудования и облучение персонала. Основное энергетическое оборудование размещается за пределами "горячей" зоны, генератор изолирован от технологического блока или плавителя вставками из прозрачного для СВЧ материала [2–6].

В ходе освоения СВЧ электротермического оборудования (впервые установки промышленного применения появились в начале 60-х гг.) сформировались основные функциональные узлы, достаточно общие для различных конкретных применений. Накоплен и опыт эксплуатации СВЧ оборудования, позволяющий проводить сопоставление конструктивных достоинств функциональных узлов и технико-экономических показателей установок в целом. Промышленному использованию способствовало увеличение колебательной мощности СВЧ-генераторов до сотен кВт и повышение их временного ресурса до нескольких тысяч часов [7].

Ниже приведены результаты первого этапа исследований, полученных на установке микроволнового нагрева (МВН-1), предназначенной для сушки концентрата вод спецканализации химико-металлургического завода. Основные узлы установки, включая систему газоочистки, были переданы из НПО "Радиовый институт" во ФГУП "ПО "Маяк" для оценки её работоспособности и проведения ресурсных испытаний на реальных отходах. Также в задачу исследований входила оценка распределения радионуклидов между сухим остатком и конденсатом при дозировании отходов в периодическом и полунепрерывном режимах. При этом было необходимо установить баланс материальных потоков и эффективность процесса.

ОПИСАНИЕ УСТАНОВКИ МВН-1

Аппаратурная схема установки МВН-1, предназначенной для переработки альфа-радиоактивных отходов низкого и среднего уровня активности, представлена на рис. 1. В ее состав входят следующие основные узлы: элементы энергетического СВЧ устройства, технологический блок; волноводные тракты; система газоочистки, системы контроля технологических параметров.

В качестве источника СВЧ энергии использован стандартный комплекс "Электроника

КИЭ-5-1", который включает в себя блок управления (1) и блок СВЧ (2), в котором установлен магнетрон типа М-157. Источник позволяет производить плавную регулировку СВЧ колебательной мощности в диапазоне 0,9–5,0 кВт.

Циркулятор и водяная нагрузка (4) установлены на блоке СВЧ. Циркулятор выполняет функцию разделителя прямой и отражённой электромагнитной волны. Прямая волна проходит в направлении нагрузки, а отражённая волна передается в водяную нагрузку и рассеивается. Циркулятор и водяная нагрузка служат для защиты магнетрона от разрушающего воздействия отражённой волны.

Комплект элементов волноводного тракта прямоугольного (3) и круглого (6) сечения предназначен для передачи СВЧ энергии от источника к тиглю-контейнеру, а также для подключения элементов настройки и согласования технологического блока с источником СВЧ энергии.

Герметизирующий фланец (7) с кварцевой вставкой предназначен для защиты волноводного тракта, элементов согласования и магнетрона от воздействия высокотемпературной парогазовой фазы и исключает выход радионуклидов в операторское помещение.

Блок согласования (5) предназначен для эффективной передачи микроволновой энергии от источника к нагрузке, его схема представлена на рис. 2. Конструктивно он выполнен в виде участка прямоугольного волновода закороченного с одной стороны поршнем. В широкой стенке прямоугольного волновода закреплена антенна, которая спиралью заходит в круглый волновод. Антенна и поршень имеют соответствующие степени свободы для регулировки с целью достижения наилучшей передачи мощности к нагрузке.

Технологический блок с тиглем (ТТ) предназначен для приема отходов в тигель-контейнер и удаления парогазовой фазы. Он представляет собой участок круглого волновода оборудованного штуцерами для подачи отходов и подсоединению к системе газоочистки. Снизу к технологическому блоку подсоединяют тигель-контейнер, в котором проводят процессы нагрева, сушку и кальцинацию поступающих отходов. По заполнению тигель служит и первичным контейнером для хранения кальцинированных отходов.

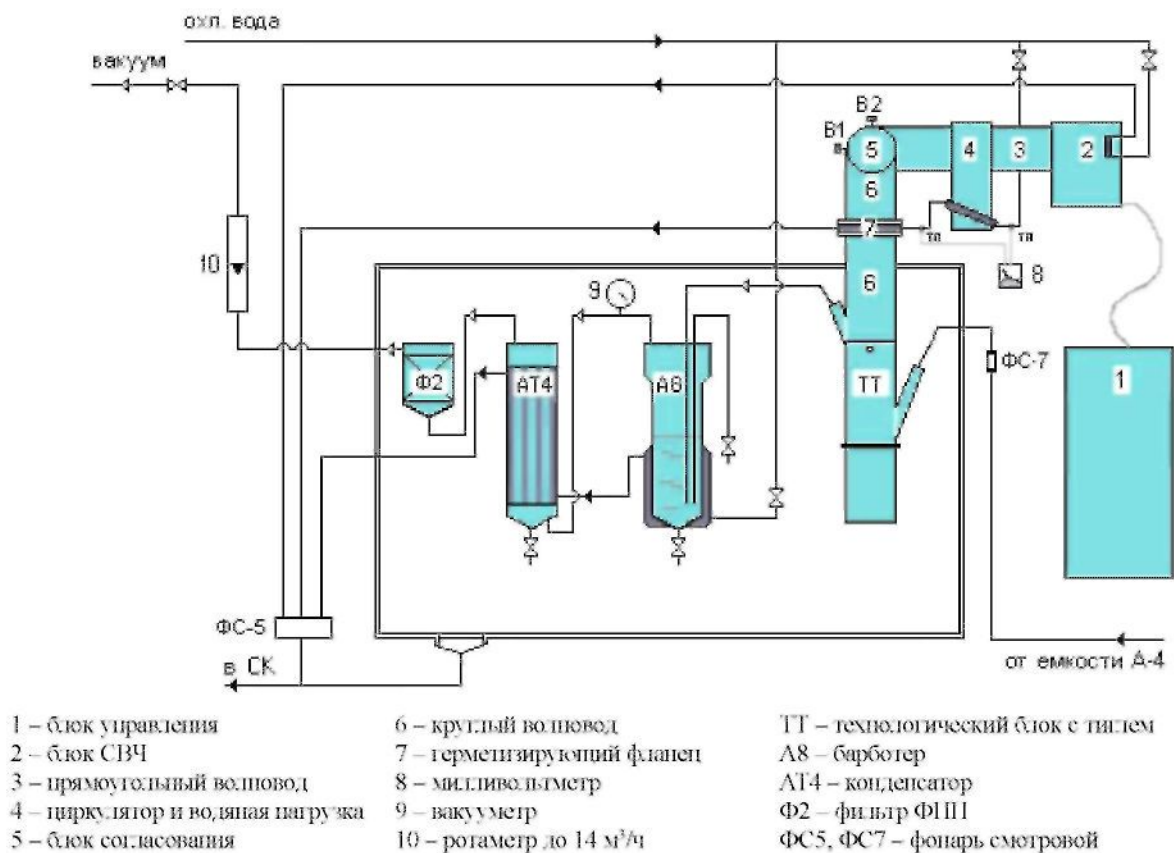


Рис. 1. Аппаратурная схема установки МВН-1

Система газоочистки состоит из последовательно установленных барботера-конденсатора (А8), конденсатора (АТ4) и фильтра ФПП. Система газоочистки обеспечивает достаточную конденсацию паров воды и очистку от радионуклидов при производительности установки 3 л/ч по испаряемой влаге. Система газоочистки подключена к цеховой вакуумной системе, оборудована ротаметром (10) с пределом измерения до 14 м³/ч, регулировочным вентилем и устройством пробоотбора парогазовой фазы на выходе.

Технологический блок и система газоочистки размещены в защитном перчаточном шкафу, который подключен к заводской системе вентиляции. На рис. 3 представлена компоновка элементов энергетического СВЧ устройства, размещенного в операторском помещении. На

рис. 4 изображены технологический блок с тиглем и коммуникациями, а также барботер.

ХАРАКТЕРИСТИКИ ИСХОДНОГО КОНЦЕНТРАТА

Концентрат, поступающий в технологический блок из емкости А-4 представляет собой взвесь гидроксидов и частично нерастворенных солей. Химический состав по данным атомно эмиссионного спектрального анализа и свойства концентрата представлены в табл. 1 и 2. Общее содержание твердой фазы составляет 13–17 г/л. Анионный состав, определенный методом жидкостной хроматографии, включает следующие компоненты: NO₃⁻, SO₄²⁻, Cl⁻, NO₂⁻, CO₃²⁻, PO₄³⁻, C₂O₄²⁻.

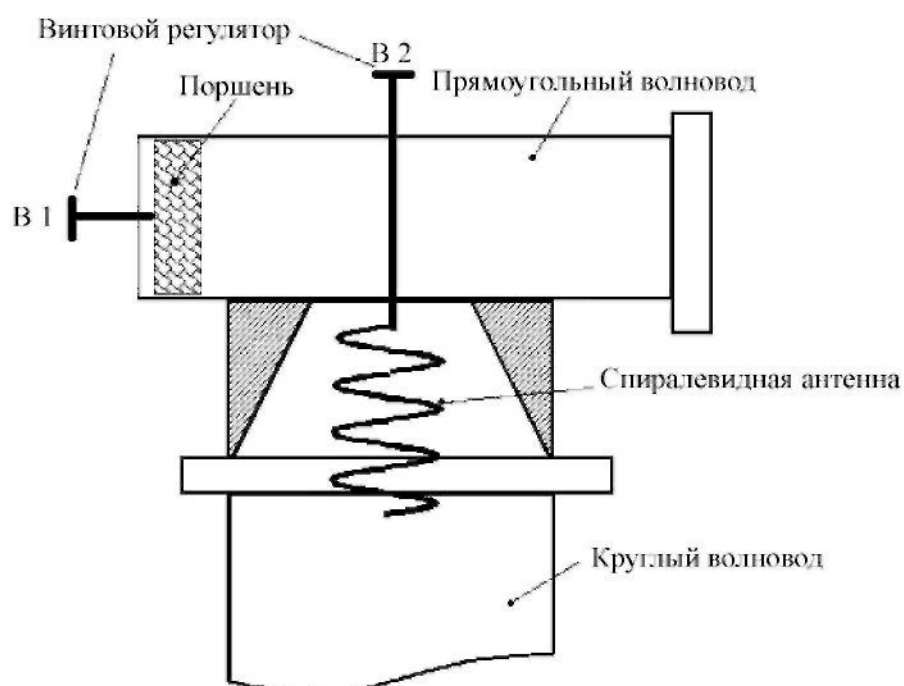


Рис. 2. Блок согласования

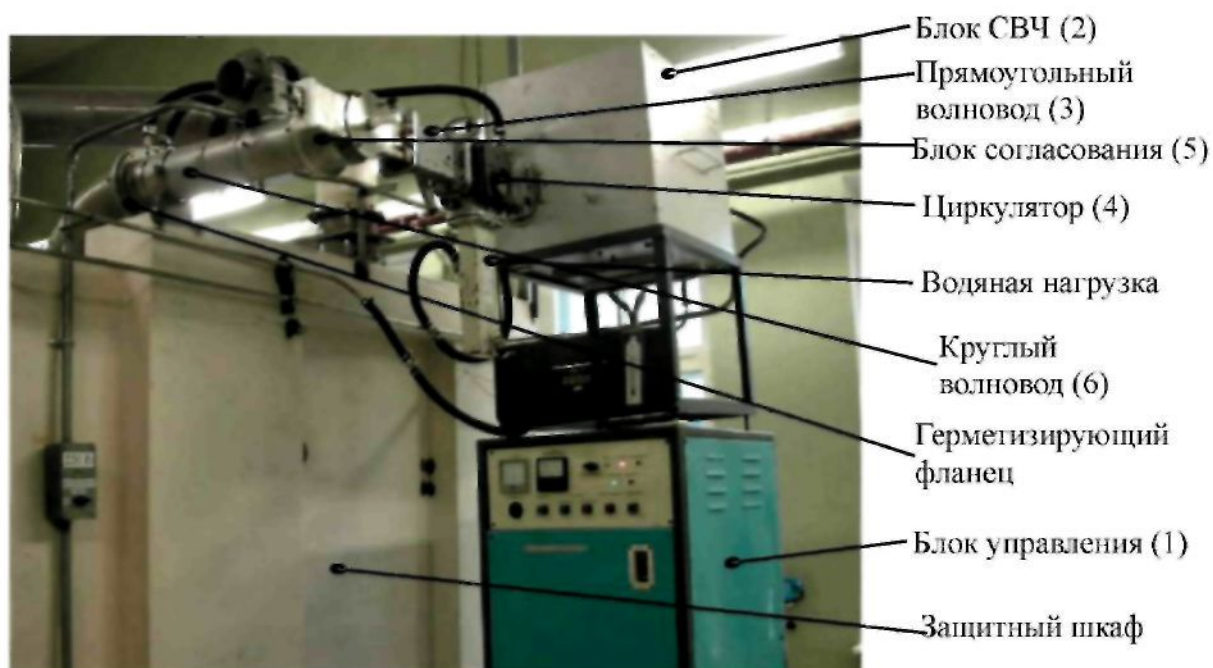


Рис. 3. Блок управления, СВЧ источник и волновод с циркулятором и блоком согласования



Рис. 4. Технологический блок с тиглем и барботер внутри вытяжного шкафа

Таблица 1

Химический состав исходного концентрата по металлам

Компонент	Содержание, г/л
Fe	0,7–1,0
Mg	2,9–3,5
Ca	1,0–1,2
Mn	0,3–0,4
Na	0,3–0,5
Ba	0,1–0,2
Al, Ni, Cr, Pb	< 0,05

Таблица 2

Свойства исходного концентрата

Плотность, г/см ³	1,01–1,05
Значение pH	8,0–9,0
Содержание твердой фазы, г/л	13–17
Σ α -активность, $\times 10^5$ Бк/л	2,5–3,0

ПЕРЕРАБОТКА КОНЦЕНТРАТА В РЕЖИМЕ ПЕРИОДИЧЕСКОГО ДОЗИРОВАНИЯ

При работе в этом режиме в технологический блок периодически дозировали по 0,5 л концентрата. Было установлено, что при мощности 4,5 кВт полное удаление воды из этого объема происходит за 10 мин. Таким образом, производительность установки составила 3 л/ч по испаряемой влаге. Удельная потребляемая колебательная энергия составила 1,5 кВт·ч на 1 л испаряемой влаги, или с учетом КПД магнетрона равным 70 %, удельная потребляемая установкой электроэнергия от электросети составляла 2,1 кВт·ч/л.

Оптимальный расход охлаждающей воды при этом составил 10 л/мин (из них 2 л/мин на водяную нагрузку, 5 л/мин на охлаждение магнетрона и 3 л/мин на аппараты газоочистки), т.е. на 1 л перерабатываемого концентрата расходуются 200 л воды на охлаждение. Существенное влияние на процесс сушки оказывает разрежение в барботере, от которого зависит скорость потока парогазовой фазы. Установлено, что при разрежении в барботере (300±20) мм вод. ст. практически весь конденсат собирается в барботере (А 8) и конденсаторе (АТ 4).

После переработки первых 20 л концентрата, сухой остаток извлекли из тигля. Визуально он представлял собой гранулированный не пылящий порошок светло серого цвета с черными

вкраплениями, размер гранул 0,3–3,0 мм. Масса сухого продукта составила 14–15 г в расчете на 1 л концентрата. Полученный порошок представлял собой солевой кек, содержащий до 12 % влаги, о чем свидетельствует эндотермический пик при 120 °С на рис. 5. По всей видимости на данном этапе сушки температура в тигле не поднималась выше 150–200 °С.

В дальнейшем после высушивания очередной порции концентрата при 150–200 °С, продолжали нагрев при колебательной мощности 2,8 кВт до температуры 960–1000 °С. В результате получался практически полностью кальцинированный продукт. Прокалка проб этого продукта показала, что убыль массы не превышает 0,2 %. Масса сухого продукта составила 10 г в расчете на 1 л концентрата. Содержание радионуклидов в образцах полученного кальцината приведено в табл. 3.

Таблица 3

Содержание радионуклидов в кальцините

Радионуклид	Содержание, Бк/г
Pu	(4,7–4,9)·10 ⁴
Am	(2,5–2,7)·10 ³
U	(2,9–3,3)·10 ³
сумма	(5,2–5,4)·10 ⁴

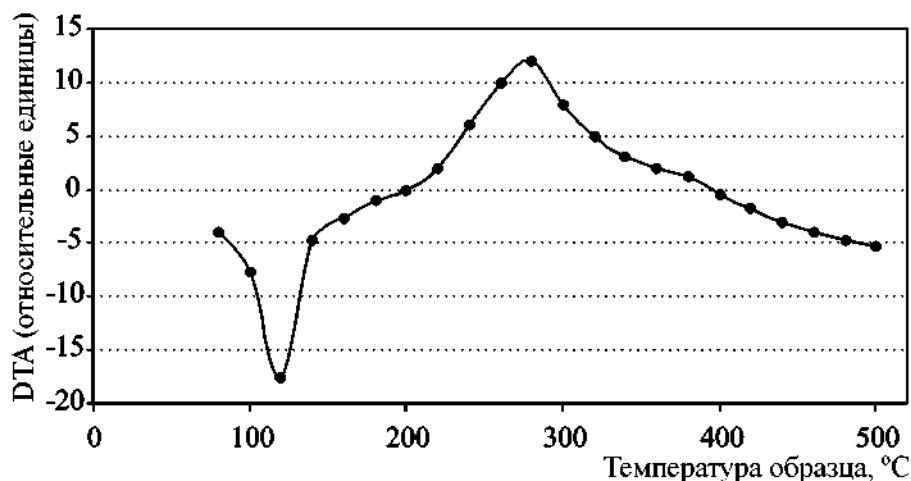


Рис. 5. Термограмма продукта сушки

Конденсат в аппаратах газоочистки представлял мутную медленно отстаивающуюся жидкость, содержащую 0,16 г/л твердой фазы, химический состав которой представлен в табл. 4.

Таблица 4

Химический состав конденсата

Компонент	Содержание, мг/л
Fe	0,9–1,1
Mg	12–15
Ca	16–20
Na	13–16
K	3–5
Cl ⁻	30–35
NO ₂ ⁻	1–2
NO ₃ ⁻	20–24
SO ₄ ²⁻	100–120

Активность конденсата составила 200–600 Бк/л, т.е. при активности исходного концентрата $2,8 \cdot 10^5$ Бк/л унос радионуклидов в конденсат составляет 0,1–0,2 %, а унос твердой фазы не превышает 1,1 %. Всего в данном режиме было переработано 280 л концентрата и получено около 2,8 кг оплавленного продукта.

ПЕРЕРАБОТКА КОНЦЕНТРАТА В РЕЖИМЕ НЕПРЕРЫВНОГО ДОЗИРОВАНИЯ

Технологически более приемлема работа в полунепрерывном режиме до заполнения тигля

сухим продуктом. При этом тигель служит первичным контейнером для длительного хранения или захоронения остатка.

Для организации непрерывного дозирования концентрата в технологический блок установки МВН-1 был использован плунжерный насос марки ДБМ с электроприводом. Концентрат из емкости А-4 подавался насосом к установке по линии диаметром 6 мм, длиной около 8 м. Необходимый расход концентрата устанавливался преобразователем частоты фирмы OMRON (Германия).

При колебательной мощности 4,5 кВт оптимальный расход концентрата составил 3,5 л/ч. Пробы продукта отбирались на разных стадиях ведения процесса. Характеристика полученного продукта, измельченного до размеров менее 0,8 мм, представлена в табл. 5.

Из табл. 5 следует, что при непрерывном процессе сушки для получения кальцината следует периодически проводить прокалку продукта без подачи раствора в течение (10 ± 2) мин. При этом температура продукта достигает (900 ± 100) °С, что подтверждается величиной убыли массы 0,5 % при нагреве навески от 20 °С до 900 °С.

Разрежение в барботере поддерживали на уровне (300 ± 20) мм вод. ст., что позволило сводить баланс по водной фазе (объем исходного раствора и объем собранного конденсата). Активность конденсата в аппаратах газоочистки составила от 200 до 800 Бк/л, то есть унос активности составил 0,1–0,3 % от исходной, что характерно для подобных процессов. Конденсат представлял собой мутную жидкость. Фильтрование через бумажный фильтр “белая лента” не позволяет полностью очис-

Таблица 5

Характеристика кальцината после СВЧ обработки в непрерывном режиме

Условия получения кальцината	Насыпная плотность, г/см ³	Убыль массы, %	
		(20–150) °С	(150–900) °С
После непрерывной сушки при 4,5 кВт (без дополнительной прокалки)	0,45–0,5	7,2	24
После прокалки (12 мин, 2,8 кВт)	1,0–1,1	0,1	0,4

тяться от коллоидных частиц. Активность фильтра при этом снижается всего в 1,6–2,6 раза. Содержание твердой фазы и солей в конденсате составило 0,5 г/л. В непрерывном режиме было переработано 360 л отходов и получено 3,6 кг отвержденного продукта.

Резюмируя, можно отметить следующие моменты:

– показана перспективность использования микроволновой энергии для сушки и прокаливания солевого остатка концентрата вод спецканализации химико-металлургического завода.

– проведены эксперименты в периодическом и полунепрерывном режимах, в результате которых отработаны условия получения солевого кека и полностью кальцинированного продукта.

– установлено, что унос радионуклидов с парогазовой фазой не превышает 0,3 % от их содержания в исходном концентрате.

С учетом данных по балансу материальных потоков и эффективности процесса выданы рекомендации по модернизации волноводной системы установки МВН-1 и технологического блока, совершенствованию системы газоочистки и оборудованию установки МВН-1 дополнительными системами контроля и управления.

ЛИТЕРАТУРА

1. Гелис В.М., Милютин В.В., Козлитин Е.А. и др. Сорбционно-мембранные технологии очистки жидких радиоактивных отходов различного уровня активности // Радиохимия 2003. Тезисы докладов. — Озерск, 2003. — С. 179—180.
2. СВЧ-энергетика // Под ред. Окресса Э. — пер. с англ. — М.: Мир, 1971. — Т. 3.
3. Gillins B.L., Dewitt L.M. and Wollerman A.L. Mixed Waste Integrated Programm Interim Evaluation Report on Thermal Treatment Technologies // DOE-2. — 1993.
4. White T.I. and Berry J.B. Microwave Processing of Radioactive Materials // Proc. Of Amer. Chem. Soc. Symp. On Innovative Waste Management Technologies. — 1989. — V. 29. — P. 127–134.
5. Komatsu F. et al. Development of a New Solidification Method for Wastes Contaminated by Plutonium Oxides. (Utilization of Microwave Power) // in Management of Alpha-Contaminated Wastes. — proc. Of Symp. — Vienna, 1991.
6. Komatsu at al. Microwave Melter with a Square Metal Crucible for Treating Radioactive Waste // TK. Technol. — Kobe Steel, № 45. — 1987. — P. 3–4.
7. Диденко А.Н., Зверев Б.В. СВЧ-энергетика. — М.: Наука, 2000. — 264 с.