

2. Бабаев Н.С., Адамов Е.О., Рыжов М.Н., Соболев И.А. МАГАТЭ. М., Грин-Лон, 1997. 304 с.
3. Розен А.М. Теория разделения изотопов в колоннах. М.: Атомиздат, 1960. 436 с.
4. Андреев Б.М., Зельвенский Я.Д., Катальников С.Г. Тяжелые изотопы водорода в ядерной технике. М.: Энергоатомиздат, 1987. 456 с.
5. Андреев Б.М., Розенкевич М.Б., Сахаровский Ю.А. и др. Установки для разделения изотопов водорода методом химического изотопного обмена в системе вода—водород. — В сб.: Доклады 2-й Всерос. научной конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул». М., ЦНИИАтоминформ, 1997, с. 134—137.
6. Алексеев И.А., Бондаренко С.Д., Васянина Т.В. и др. Разделение изотопов водорода на опытно-промышленной установке методом химического изотопного обмена в системе вода—водород на гидрофобных катализаторах. — Там же, с. 138—141.
7. Сахаровский Ю.А., Андреев Б.М., Магомедбеков Э.П. и др. Разделение изотопов водорода методом каталитического изотопного обмена водорода с водой. — Там же, с. 131—133.
8. Андреев Б.М., Карпов М.В., Перевезенцев А.Н. и др. Перспективы использования методов химического изотопного обмена для решения задач детритизации водных отходов ядерной и термоядерной энергетики. — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Водородная энергетика и технология, 1992, вып. 1, с. 57—68.
9. Andreev B.M., Sakharovsky Yu.A., Perevezentsev A.N., Rozenkevich M.B. The usage of hydrogen incleaning process of tritium containing water streams. — Hydrogen Energy Progress IX, Paris, France, 1992, p. 1791—1798.
10. Andreev B.M., Sakharovsky Yu.A., Rozenkevich M.B. e. a. Installations for separation of hydrogen isotopes by the method of chemical isotopic exchange in the «water-hydrogen» system. — Fusion Techn., 1995, v. 28, № 3, pt 1, p. 515—518.
11. Andreev B.M., Sakharovsky Yu.A., Rozenkevich M.B. e. a. A new concept of ISS for fusion reactor. — Ibid., p. 511—514.
12. Андреев Б.М., Раков Н.А., Розенкевич М.Б., Сахаровский Ю.А. Использование методов разделения изотопов для улавливания и концентрирования трития в ядерном топливном цикле. — Радиохимия, 1997, т. 39, вып. 2, с. 97—111.
13. Andreev B., Magomedbekov E., Park Y. e. a. The development of water wastes detritization technology of nuclear complex plants — In: Proc. Ann. Meeting on Nuclear Techn., München, 1998, p. 325—328.
14. Патент 2060801 (РФ). B01D59/28. Способ извлечения трития и протия из дейтерийсодержащей воды. — Бюл. № 15 от 27.05.96.
15. Сахаровский Ю.А., Розенкевич М.Б., Андреев Б.М. и др. Очистка водных потоков от трития методом химического изотопного обмена водорода с водой. — Атомная энергия, 1998, т. 85, вып. 1, с. 35—40.
16. Андреев Б.М., Магомедбеков Э.П., Пак Ю.С. и др. Некоторые особенности технологии разделения изотопов водорода методом химического обмена водорода с водой. — Там же, с. 40—45.
17. Патент 2069083 (РФ). B01D59/00. Способ разделения изотопов водорода в газовых средах. — Бюл. № 32 от 20.11.96
18. Andreev B.M., Magomedbekov E. P., Sicking G.H. Interaction of Hydrogen Isotopes with Transition Metals and Intermetallic Compounds. Springer Verlag, 1996. 168 p.
19. Andreev B.M., Perevezentsev A.N., Selivanenko I.L. e. a. Hydrogen isotope separation installation for tritium facility. — Fusion Techn., 1995, v. 28, № 3, pt 1, p. 505—518.
20. Андреев Б.М., Магомедбеков Э.П., Селиваненко И.Л. Разделение бинарных смесей изотопов в противоточной разделительной колонне. — Атомная энергия, 1998, т. 84, вып. 3, с. 242—246.

Поступила в Редакцию 5.03.99

УДК 576.093.1:677.21.661.879

БИОТЕХНОЛОГИЧЕСКИЕ АСПЕКТЫ ПЕРЕРАБОТКИ РАДИОАКТИВНЫХ ЦЕЛЛЮЛОЗОСОДЕРЖАЩИХ ОТХОДОВ

*Ильин В.А., Карлин Ю.В. (МосНПО «Радон»),
Градова Н.Б. (Российский химико-технологический университет
им. Д.И. Менделеева)*

Проблемы обезвреживания и удаления радиоактивных отходов не новы, и тем не менее их приемлемое решение до сих пор не найдено. Биотехнологические способы переработки радиоактивных отходов в настоящее время носят ограниченный характер. Фактически реализованы только биосорбция и биоаккумуляция радионуклидов из вод-

ных сред при очистке шахтных вод урановых рудников [1—3]. Исследования биодеструкции радиоактивных органических отходов, в том числе и радиоактивных целлюлозосодержащих отходов, немногочисленны, и информация о них, как правило, ограничена по содержанию на уровне «ноу-хау» [4—6].

Целью настоящей работы явились сравнительный анализ эффективности экспериментально изученных биотехнологических способов компактизации радиоактивных целлюлозосодержащих отходов (хлопчатобумажного текстиля) и концентрирования радионуклидов в конечном продукте переработки, а также разработка принципиальной технологической схемы их биотехнологической переработки.

Исходя из основной цели переработки приняты следующие основные критерии оценки эффективности биоконверсии отходов:

степень биоконверсии перерабатываемых целлюлозосодержащих отходов, %

$$K_1 = \frac{(m_0 - m_\infty) \cdot 100\%}{m_0} \rightarrow \max,$$

где m_0, m_∞ — масса отходов до и после переработки;

скорость биоконверсии перерабатываемых отходов, кг/сут

$$P + \frac{m_0 - m_\infty}{\tau} \rightarrow \max,$$

где τ — продолжительность процесса;

степень концентрирования радионуклидов в конечном продукте биодеструкции

$$K_2 = \frac{m_\infty C_\infty}{m_0 C_0} \rightarrow \max,$$

где C_0, C_∞ — удельная радиоактивность исходных отходов, поступающих на переработку, и конечного продукта переработки соответственно, Бк/кг;

интенсивность биоконверсии отходов как относительный показатель степени биоконверсии, нормированный по времени τ продолжительности переработки, сут⁻¹

$$T = \frac{K_1}{\tau \cdot 100\%} \rightarrow \max;$$

критерий Φ_Σ [7] в качестве интегральной оценки технико-экономической эффективности, позволяющий судить об удельных затратах при биоконверсии,

$$\Phi_\Sigma = \sum_i (\Phi_1 + \Phi_2 + \Phi_3 + \dots \Phi_i) \rightarrow \min,$$

где Φ_1 — затраты на воду и химические реагенты; Φ_2 — энергетические затраты (пар, электроэнергия и т.п.); Φ_3 — капитальные затраты; Φ_i — i -й компонент прочих затрат.

В качестве основных объектов исследования использовали измельченный (фракция 1×1,5 см) загрязненный ⁶⁰Co, ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs хлопчатобумажный текстиль (халаты), штаммы грибов рода *Trichoderma* и *Aspergillus*, полученные из музея АОО НИИ «Биотехнология», ферментные препараты Приволжского биохимзавода целловиридин ГЗх (продуцент *Trichoderma viride* 44-11-62/3) и целлоком (продуцент *Aspergillus tericola*), дрожжи *Candida tropicalis* ВСБ 928 из коллекции ГосНИИсинтезбелок, биомасса водорослей (*Elodea canadensis*) из прудов-отстойников промплощадки МосНПО «Радон».

Глубинное культивирование грибов и дрожжей в аэробных условиях на стандартных минеральных средах, а также гидролиз ферментными препаратами хлопчатобумажного текстиля проводили в колбах на термостатируемом встряхивающем устройстве с соблюдением условий асептики. Целлюлолитическую активность C_1 ферментов культуральной жидкости оценивали методом Шомодьи—Нельсона. Концентрацию

дрожжевых клеток измеряли в камере Горяева. Степень биоконверсии хлопчатобумажного текстиля определяли весовым методом.

Анаэробную ферментацию хлопчатобумажного текстиля и биомассы водорослей проводили в собранной на базе комплекса «Фермус 3М» лабораторной установке. В процессе анаэробной ферментации контролировали такие параметры, как химический состав сбраживаемых отходов, количество и химический состав образующегося биогаза, pH и температуру среды, концентрацию летучих жирных кислот в среде. Химический состав биогаза определяли методом газовой хроматографии. Концентрацию летучих жирных кислот находили путем анализа проб среды по методике, основанной на их отгоне с водяным паром и последующем титровании раствором щелочи в присутствии фенолфталеина.

В экспериментах по биоконверсии радиоактивных образцов хлопчатобумажного текстиля (удельной радиоактивностью $\sim 10^6$ Бк/кг) расчет коэффициентов распределения и степени извлечения ^{60}Co , ^{90}Sr , ^{137}Cs проводили на основе данных радиометрического анализа проб биомассы и культуральной жидкости.

В ходе предварительных испытаний аэробной биоконверсии хлопчатобумажного текстиля были определены наиболее активный штамм *Trichoderma reesei* N/P и ферментный препарат целловиридин ГЗх, которые использовали во всех последующих исследованиях. Биоконверсию радиоактивных целлюлозосодержащих отходов проводили разными способами:

«прямая» аэробная ферментация —

1) одностадийное глубинное культивирование гриба *Trichoderma reesei* N/P на измельченных отходах, в аэробных условиях, на минеральной среде Чапека;

2) отъемно-доливной способ. Возврат в процесс 1/2 твердой фазы. Условия культивирования по способу 1, 3—5. Одностадийное культивирование гриба *Trichoderma reesei* N/P на среде Чапека. Разные способы предподготовки субстрата:

— измельчение отходов, термическая предподготовка 0,05 МПа, 30 мин;

— измельчение отходов, термохимическая (0,05 МПа, 30 мин) предобработка 0,1%-ным раствором серной кислоты;

— измельчение отходов, термохимическая предобработка (0,1 МПа, 30 мин) 3%-ным раствором NaOH;

б) одностадийное глубинное культивирование гриба *Trichoderma reesei* N/P на минеральной среде в присутствии индукторов биосинтеза целлюлаз, термическая предобработка отходов (0,05 МПа, 30 мин), инокулят глубинно выращен;

7) аналогично б, но инокулят выращен поверхностно;

8) одностадийное глубинное культивирование, инокулят поверхностной культуры гриба *Trichoderma reesei* N/P на отходах с термохимической предобработкой щелочью (3%-ный раствор NaOH, 0,1 МПа, 60 мин) на минеральной среде в присутствии индукторов биосинтеза целлюлолитических ферментов;

«непрямая» аэробная ферментация —

9) ферментативный гидролиз измельченных отходов промышленным ферментным препаратом целловиридин ГЗх;

10) ферментативный гидролиз измельченных отходов промышленным ферментным препаратом целловиридин с одновременным культивированием дрожжей *Candida tropicalis*;

анаэробная ферментация —

11) одностадийная анаэробная ферментация измельченных отходов в периодическом режиме, инокулят — свежий навоз крупного рогатого скота, разведенный водопроводной водой в соотношении 1:2;

12) аналогично 11, но измельченные отходы подвергали термохимической предобработке (3%-ный раствор NaOH, 0,15 МПа, 90 мин) и последующей промывке водопроводной водой до pH 7,2;

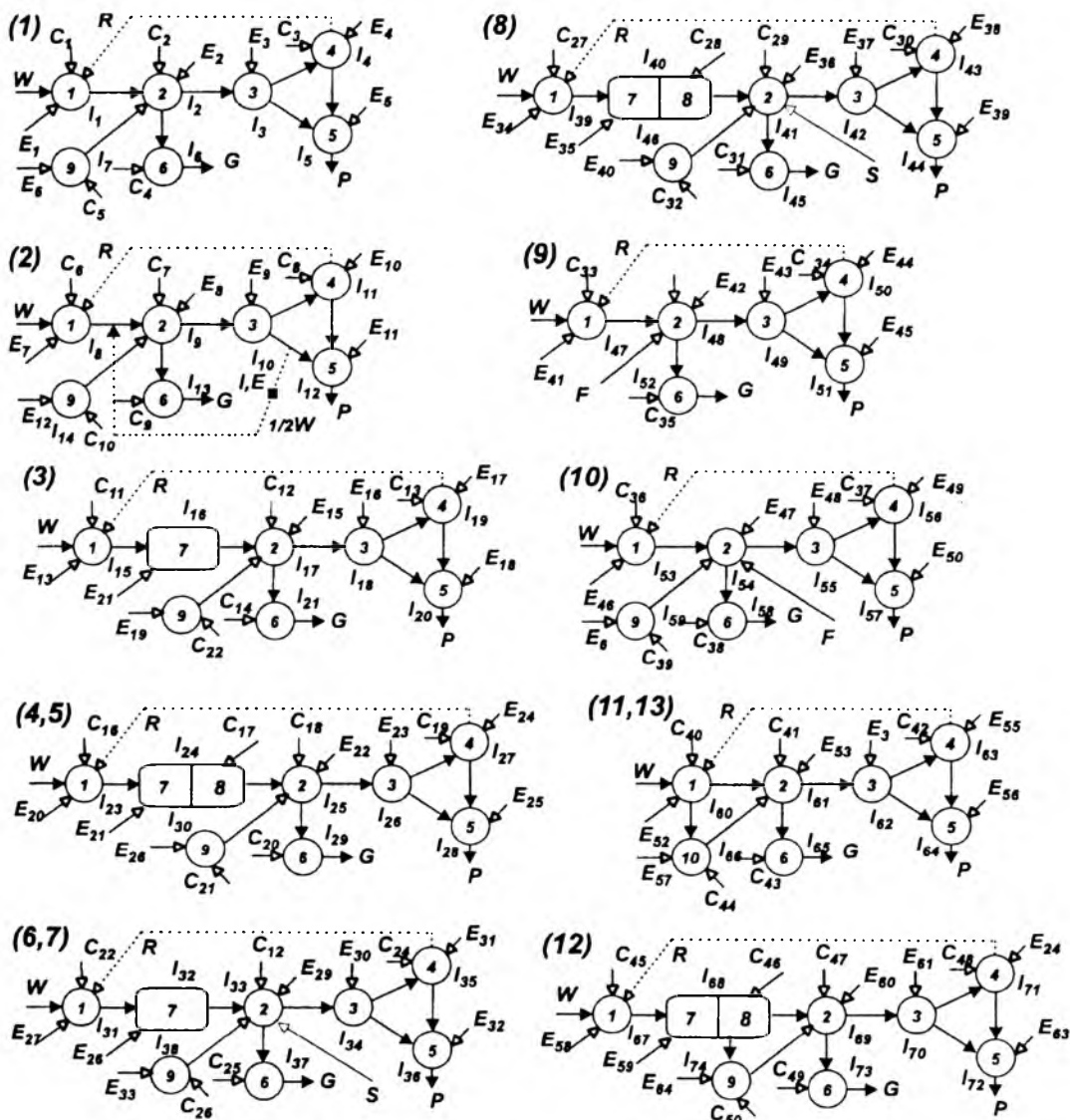
13) отъемно-доливной способ с увеличением доли отбираемых сброженных и добавляемых отходов (без предобработки).

Основные результаты перечисленных способов переработки радиоактивных целлюлозосодержащих отходов представлены в табл. 1. Из экспериментально полученных данных очевидно, что эффективными по критериям «степень» и «скорость биоконверсии» являются способы 5, 10 и 12. Для анализа биотехнологических систем были построены потоковые графы изученных способов переработки (рис. 1). Сопоставление показало, что ферментативный гидролиз препаратом целловиридин ГЗх (9-й способ) является более простым по сравнению с другими. В качестве критерия оптимальности биоконверсии приняли критерий технико-экономической эффективности Φ_{Σ} . При этом производительность изучаемых схем приняли равной 120 т/год [8]. Учитывая относительный характер анализа, рассматривали только те стадии составляющих Φ_{Σ} , которые непосредственно влияют на биоконверсию отходов. Затем путем сопоставления исключали аналогичные затраты по составляющим Φ_i по каждому изученному способу биоконверсии и подставляли равные по затратам значения базового варианта. Приняли допущение, что во всех способах используется стандартное оборудование и один и тот же тип энергии на каждой отдельной стадии рассматриваемых способов биоконверсии, а также равные затраты на используемую в процессах воду.

Т а б л и ц а 1. Основные технологические показатели различных способов биологической переработки целлюлозосодержащих радиоактивных отходов

Способ переработки	Время процесса, сут	Степень биоконверсии (K_1), %	Скорость биоконверсии, 10^{-5} кг/сут	Интенсивность биоконверсии ($K_1/\tau \cdot 100\%$), 10^{-3} сут $^{-1}$
«Прямая» аэробная ферментация				
1-й	200	25	6	1
2-й	28 (35)	48 (50)	7	17 (14)
3-й	60	43	3,6	7
4-й	60	40	3,3	6,7
5-й	25	65	13	26
6-й	50	53	5,3	11
7-й	30	51	8,5	17
8-й	15 (25)	65 (75)	16 (19)	43 (30)
«Непрямая» аэробная ферментация				
9-й	10	37	18	37
10-й	10	55	27	55
Анаэробная ферментация				
11-й	67	39	560	6
12-й	30	65	950	22
13-й	87	34	320	4

При расчетах затрат на химреактивы и прочие материалы (Φ_1) использовали данные прейскуранта на август—сентябрь 1997 г. (с учетом деноминации). Для расчета затрат на энергию (Φ_2) приняли стоимость электроэнергии 756 руб./тыс. кВт·ч, стоимость 1 т пара низкого давления — 75 руб., расход электроэнергии, тыс. кВт/т: на сепарацию — 0,55, глубинное выращивание в ферментере — 2, перемешивание — 0,005, размельчение отходов — 0,005, расход пара на нагревание — 0,6 т/т. Расчет затрат на капитальные вложения проводили исходя из того, что оборудование является типовым для рассматриваемых способов биоконверсии за исключением стоимости био-



Р и с. 1. Поточные графы исследованных способов биологической переработки целлюлозосодержащих отходов (в скобках — номер способа биоконверсии): 1 — мокрое измельчение; 2 — биоконверсия; 3 — разделение; 4 — очистка; 5 — переработка вторичных твердых отходов; 6 — газоочистка; 7 — термическая обработка; 8 — химическая обработка; 9 — подготовка инокулята; 10 — выдерживание; W — целлюлозосодержащие отходы; G — сброс безопасных отработанных газов; P — вторичные отходы на захоронение; E — энергетические затраты; C — химические реагенты, вспомогательные материалы, воздух и вода; I — капитальные вложения; F — ферментный препарат; S — индукторы целлюлаз; R — оборотная вода

реактора. По данным НИИхиммаша стоимость биореактора общим объемом 100 м^3 на текущий момент составляет для аэробной ферментации 550 тыс. руб., анаэробной ферментации — 346 тыс. руб. В расчетах также учитывали расхождение по составу оборудования.

Результаты ориентировочного расчета удельных затрат указанных способов биоконверсии представлены в табл. 2. Анализ данных показывает, что при одном и том же объеме перерабатываемых отходов скорость биоконверсии разная, рассчитывали отношение удельных затрат к скорости биоконверсии Φ_{Σ}/P (в скобках указана скорость биоконверсии на единицу объема биореактора, рассчитанная на основании экспериментальных данных). Сопоставление результатов свидетельствует, что наиболее близ-

кой к оптимальной является анаэробная ферментация в периодическом режиме. Исследования показали, что эффективность анаэробной ферментации в 2 раза выше, чем остальных исследованных способов. На основании результатов исследований разработана принципиальная технологическая схема установки анаэробной биоконверсии радиоактивных целлюлозосодержащих отходов (рис. 2) и оценена ее производительность.

Т а б л и ц а 2. Относительная эффективность разных способов биоконверсии целлюлозосодержащих радиоактивных отходов (хлопчатобумажного текстиля)

Способ переработки	Удельные затраты, тыс. руб./т				P , 10^{-5} кг/сут [кг/(м ³ ·сут)]	Φ_{Σ}/P
	Φ_1	Φ_2	Φ_3	Φ_{Σ}		
Одностадийное глубинное культивирование <i>Trichoderma reesei</i> , минеральная среда Чапека	0,41	1,98	5,74	8,12	6 (0,6)	1,35 (13,53)
Ферментативный гидролиз, концентрация препарата 2% массы субстрата, $t=40$ °С, pH 5,1 (ацетатный буфер), без подсева дрожжей <i>Candida tropicalis</i>	1,47	1,52	4,78	7,78	18 (0,72)	0,43 (10,81)
Анаэробная ферментация, периодический режим, инокулят — свежий навоз крупного рогатого скота	0,26	1,52	6,02	7,8	560 (1,32)	0,014 (5,91)

Удельную скорость биоконверсии отходов можно отождествить с удельной скоростью образования биогаза, если допустить, что газы являются основными продуктами биоконверсии, которые выводятся из метантенка. Для случая биоконверсии хлопчатобумажного материала при оценке производительности метантенка была выбрана удельная скорость образования биогаза $G_6 = 0,001$ кг/(кг·ч). Для определения производительности метантенка составлен материальный баланс по органическому веществу:

$$Gm_0 - Gm_F = G_6 m_F V_F; \quad (1)$$

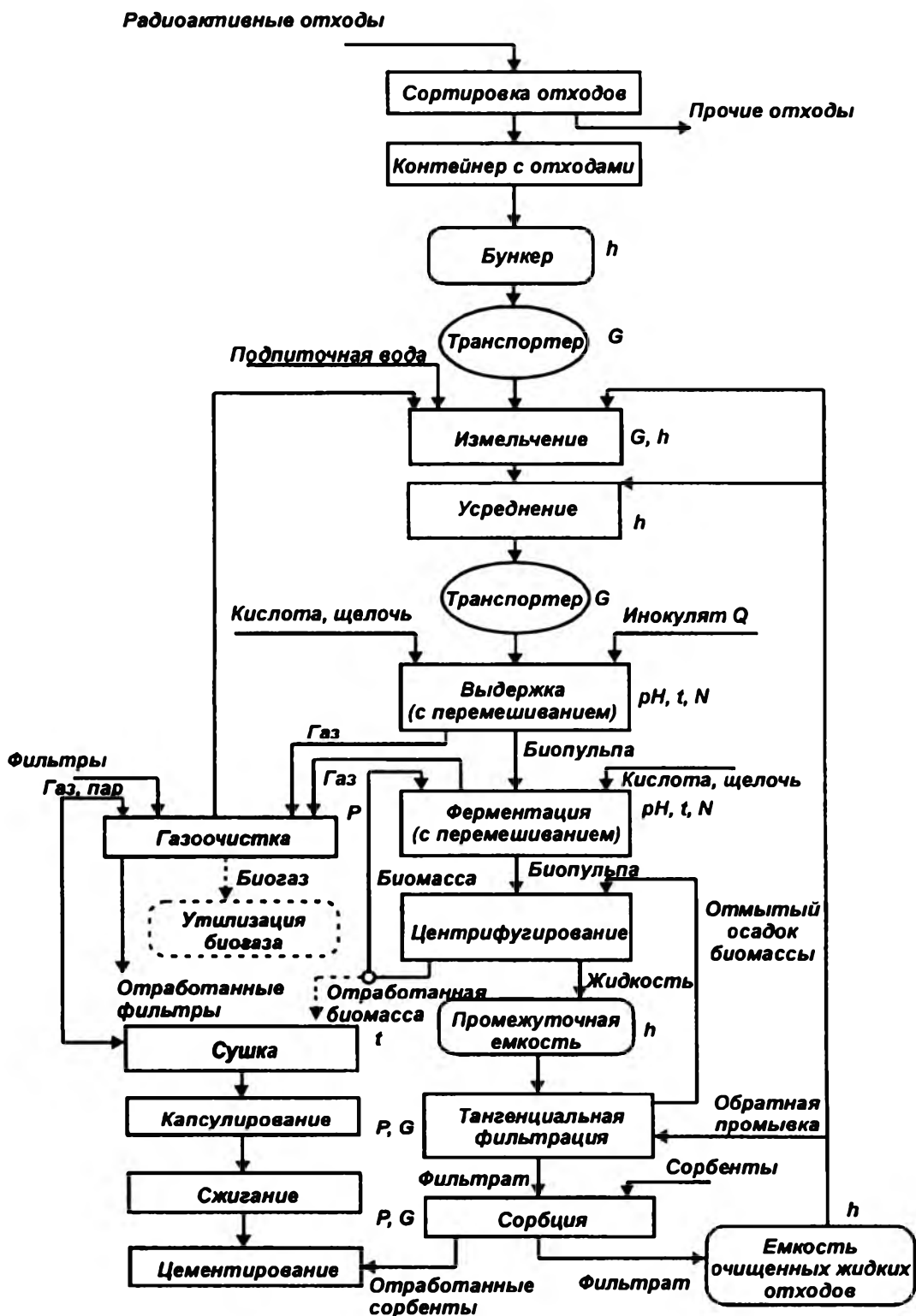
$$G = G_6 V_F (m_0/m_F - 1)^{-1},$$

где G — объемная скорость подачи отходов в метантенк, м³/ч; V_F — рабочий объем метантенка, м³; m_0 , m_F — концентрация органического вещества в отходах, подаваемых в метантенк из выдерживателя, кг/м³. На рис. 3 показана зависимость производительности метантенка разного объема от степени биоконверсии отходов, рассчитанная по уравнению (1). Результаты расчета показывают, что при периодическом режиме работы производительность метантенка резко снижается с увеличением степени биоконверсии. Кроме того, при непрерывной подаче отходов в метантенк возникает проблема вывода избыточного количества культуральной жидкости. Для решения этих проблем предлагается (рис. 4) комбинированный узел биоконверсии отходов с рециркуляцией биомассы, отделяемой от культуральной жидкости. Уравнение материального баланса по органическому веществу для комбинированного узла биоконверсии целлюлозосодержащих отходов может быть представлено как $Gm_0 + (G_F - G_W)m_S - G_F m_F = G_6 m_F V_F$ или с учетом того, что концентрация органического вещества в биопульпе после центрифугирования отобранного из метантенка субстрата возрастаеткратно доле отделенного раствора, как

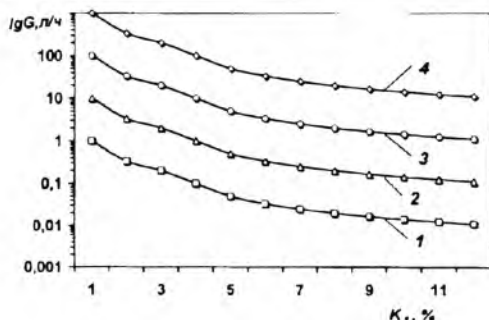
$$m_S = m_F \frac{G_F}{G_F - G_W};$$

$$G = G_6 V_F \frac{m_F}{m_0}. \quad (2)$$

Уравнение (2) показывает, что в данном случае концентрация органического вещества в метантенке может быть выше концентрации органического вещества в от-



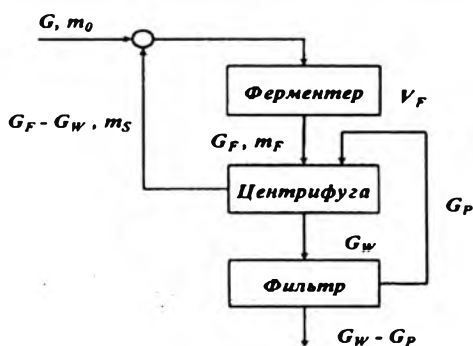
Р и с. 2. Принципиальная технологическая схема анаэробной биоконверсии радиоактивных целлюлозосодержащих отходов



Р и с. 3. Зависимость производительности метантенка от степени биоконверсии целлюлозосодержащих отходов при его объеме 1 (1), 10 (2), 100 (3), 1000 м³ (4)

ходах, подаваемых на биоконверсию. Степень биоконверсии отходов в данном случае не влияет прямым путем на производительность метантенка.

Таким образом, показатели анаэробного процесса ферментации целлюлозосодержащих отходов и предложенная принципиальная технологическая схема позволяют выдать исходные данные для создания опытно-промышленной установки их переработки.



Р и с. 4. Схема материальных потоков в комбинированном узле биодеструкции целлюлозосодержащих отходов с рециркуляцией биомассы: G_F — объемная скорость отбора субстрата из метантенка; G_W — объемная скорость отбора раствора, осветленного в центрифуге; $G_P \ll G_W$ — объемная скорость отбора осадка из фильтра; m_S — содержание органического вещества в биопульпе после центрифугирования

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Kalin M. Long Term Ecological Behaviour of Abandoned Uranium Mill Tailings. 1. Synoptic Survey of Invading Biota, Technology Development. — In: Rep. EPS-4-ES-83-1, Environment Canada, Ottawa 1983, p. 16—21.
2. Kalin M. Long Term Ecological Behaviour of Abandoned Uranium Mill Tailings. 2. Growth Patterns of Indigenous Vegetation on Terrestrial and Semiaquatic Areas. — In: Rep. EPS-3.HA/2, Environment Canada, Ottawa 1984, p. 56—59.
3. Kalin M. Ecological engineering applied to base metal and uranium mining wastes. — Biomaterialurgy, Jackson Hole, USA, 1989, p. 363—368.
4. Lee D., Donaldson T. Anaerobic digestion of cellulosic wastes. — Biotech. Bioengng Symp., 1985, v. 27, № 15, p. 549—560.
5. Tusa E. Microbial treatment of radioactive waste at the Loviisa NPP, Finland. — In: Proc. Conf. Waste Management, Kyoto, 1989, v. 1, p. 137—140.
6. Tusa E. IVO's resin-eating bacteria make light work of waste treatment. — Nucl. Engng Intern., 1992, № 2, p. 39.
7. Быков В.А., Винаров А.Ю., Шерстобитов В.В. Расчет процессов микробиологических производств. Киев: Техника, 1985, с. 14—30.
8. Соболев И.А., Хомчик Л.М. Обезвреживание радиоактивных отходов на централизованных пунктах. М.: Энергоатомиздат, 1983, с. 16—35.

Поступила в Редакцию 10.02.99

УДК 621.039.31

ПРИМЕНЕНИЕ МЕТОДА УСРЕДНЕНИЯ ПО РАДИУСУ ДЛЯ ОПИСАНИЯ ДИФфуЗИИ В ГАЗОВОЙ ЦЕНТРИФУГЕ ПРИ НЕОДНОРОДНОМ ПОТОКЕ ЦИРКУЛЯЦИИ

Александров О.Е. (Уральский государственный технический университет)

Повышение эффективности промышленных газовых центрифуг требует знания резервов увеличения их производительности. В настоящее время основные усилия направлены на создание расчетно-моделирующих программ, хотя остаются неопределенными пределы эффективности, к которым можно стремиться. Эффективность определяется многими факторами, одним из важнейших является внутреннее течение газа в разделительной камере ротора (см. рисунок). Например, для разделительной мощности центрифуги