

На правах рукописи

Белкин Дмитрий Юрьевич

**Изотопная очистка теплоносителя
промышленного тяжеловодного
реактора ЛФ-2**

05.17.02 – Технология редких, рассеянных и радиоактивных
элементов

Автореферат

диссертации на соискание ученой степени
кандидата технических наук

Москва – 2017

Работа выполнена на кафедре химии высоких энергий и радиоэкологии Федерального государственного бюджетного образовательного учреждения высшего образования «Российский химико-технологический университет имени Д.И. Менделеева».

Научный руководитель: кандидат химических наук, доцент
Магомедбеков Эльдар Парпачевич
Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования «Российский химико-технологический университет имени Д.И. Менделеева», заведующий кафедрой химии высоких энергий и радиоэкологии

Официальные оппоненты: доктор химических наук, профессор, член-корреспондент Российской академии наук
Калмыков Степан Николаевич
Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования «Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова», заведующий кафедрой радиохимии

доктор технических наук
Алексеев Иван Александрович
Федеральное государственное бюджетное учреждение «Петербургский институт ядерной физики имени Б.П. Константинова», заведующий лабораторией разделения изотопов водорода

Ведущая организация: Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт общей и неорганической химии имени Н.С. Курнакова Российской академии наук (ИОНХ РАН)

Защита диссертации состоится 27 апреля 2017 г. в 15 часов на заседании диссертационного совета Д 212.204.09 при Российском химико-технологическом университете имени Д.И. Менделеева (125480, г. Москва, ул. Героев Панфиловцев, д. 20, корпус 1) в конференц-зале имени академика В.А. Легасова ИМСЭН-ИФХ.

С диссертацией можно ознакомиться в информационно-библиотечном центре Российского химико-технологического университета имени Д.И. Менделеева и на официальном сайте <http://diss.muctr.ru>.

Автореферат диссертации разослан «___» _____ 2017 г.

Ученый секретарь диссертационного совета
Д 212.204.09, кандидат технических наук

Растунова И.Л.

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы. Использование тяжелой воды (D_2O) в качестве теплоносителя и замедлителя в ядерных реакторах обусловлено ее ядерно-физическими и теплофизическими свойствами. В процессе работы за счет ряда ядерных реакций и технологических операций происходит разбавление ее протием, что ухудшает ее ядерно-физические свойства. Для обеспечения работы реактора в установленном диапазоне мощности концентрация дейтерия должна быть не менее 99%, а нормальное рабочее значение составляет 99,8 ат.%. Кроме этого, за счет реакций $D(n, \gamma)T$, $^3He(n, p)T$ и др. в тяжеловодных замедлителе и теплоносителе образуется радиоактивный изотоп водорода – тритий (Т). Из-за штатных протечек и технологических потерь теплоносителя тритий-содержащая вода и ее пары могут поступать как в рабочие помещения, увеличивая дозовую нагрузку на персонал, так и в окружающую среду. Таким образом, эксплуатация тяжеловодных ректоров требует проведения комплексной изотопной очистки, которая включает в себя депротизацию и детритизацию D_2O и может быть реализована только с использованием методов разделения изотопов водорода.

В России существует единственный промышленный тяжеловодный реактор ЛФ-2 на ФГУП «ПО «Маяк». До недавнего времени депротизацию тяжеловодного теплоносителя ЛФ-2 проводили в каскаде ректификационных колонн с тарельчатыми контактными устройствами в колоннах диаметром от 250 до 700 мм и высотой разделительной части более 40 м, при этом получали отвал, содержащий 4 – 5 ат.% дейтерия, который хранился в течение нескольких лет. Решение задачи детритизации теплоносителя ЛФ-2 при проектировании предусмотрено не было. Еще одной проблемой эксплуатации реактора ЛФ-2 является отсутствие в стране собственного производства тяжелой воды из природного сырья, текущие потребности в которой удовлетворяются за счет переработки некондиционного сырья с различным содержанием дейтерия.

В настоящее время перспективным методом для депротизации и детритизации считается химический изотопный обмен водорода с водой, который, однако, обладает рядом недостатков, таких как необходимость использования гидрофобных катализаторов активации молекулярного водорода, электролитическое разложение воды в нижнем узле обращения потоков, необходимость каталитического окисления газообразного водорода в верхнем узле обращения потоков, а также пожаро- и взрывоопасность.

Ректификация воды под вакуумом, несмотря на малые значения коэффициента разделения и значительные энергозатраты на испарение воды, может рассматриваться как альтернативный способ изотопной очистки тяжеловодного замедлителя и теплоносителя, так как он характеризуется высокой надежностью, безопасностью и простотой организации технологического процесса.

Диссертационная работа выполнена в рамках Федеральной целевой программы «Исследования и разработки по приоритетным направлениям развития научно-технологического комплекса России на 2014–2020 годы» на тему «Разработка и создание эффективных аппаратов-разделителей для получения кондиционной (с концентрацией 99,8%) тяжелой воды на ФГУП «ПО «Маяк» (Соглашение о предоставлении субсидии №14.580.21.0001 от 01.12.2014 г., идентификатор проекта RFMEF158014X0001).

Цель работы: разработка технологии очистки тяжеловодного теплоносителя ЛФ-2 от протия и трития методом ректификации воды под вакуумом.

Задачи исследования:

1. Получение базы массообменных и гидравлических характеристик насадочных контактных устройств регулярного и нерегулярного типа в процессе ректификации воды под вакуумом.
2. Разработка математической модели расчета каскадов ректификационных установок для депротизации и детритизации тяжелой воды.
3. Проведение оптимизации действующего каскада депротизации и разработка предложений по созданию установки детритизации тяжеловодного теплоносителя реактора ЛФ-2 методом ректификации воды под вакуумом.
4. Разработка принципиальной схемы установки получения тяжелой воды с концентрацией дейтерия 99,8 ат. % из некондиционного тяжеловодного сырья.

Научная новизна:

1. Впервые изучено влияние способа упаковки, режима смачивания насадки РЛВН и диаметра колонны на эффективность разделения трех изотопов водорода при ректификации воды под вакуумом.
2. Впервые получена систематизированная и полная база данных гидродинамических и массообменных характеристик спирально-призматических и регулярных насадок применительно к условиям процесса вакуумной ректификации воды.
3. Впервые разработан метод математического моделирования и оптимизации параметров каскада колонн для разделения бинарных смесей изотопов водорода методом ректификации воды под вакуумом, позволяющий учесть изменение условий разделения по высоте колонны с возможностью варьирования типа контактного устройства в ходе расчета.
4. Впервые проведена расчетная оптимизация параметров каскада насадочных колонн ректификации воды под вакуумом для поддержания концентрации трития в тяжеловодном замедлителе.

Практическая значимость:

1. Показана возможность использования воды природного изотопного состава для от-

работки технологии и получения массообменных характеристик контактных устройств насадочного типа «на месте» при создании промышленных разделительных установок разделения изотопов водорода методом ректификации воды.

2. Верификация разработанной математической модели расчета установки ректификации воды под вакуумом на примере действующего каскада депротизации тяжеловодного теплоносителя реактора ЛФ-2 показала ее адекватность в области концентрации дейтерия от 99,8 ат. % до 0,1 ат. %.
3. Показана возможность уменьшения объема каскада депротизации тяжелой воды более чем в 4 раза за счет замены колпачковых тарелок на регулярную насадку при сохранении его производительности.
4. Предложена схема модернизации действующего каскада ректификационных колонн депротизации тяжеловодного теплоносителя промышленного тяжеловодного реактора ЛФ-2 с целью уменьшения его объема.
5. Разработана принципиальная схема и определены предварительные технологические параметры для создания установки детритизации теплоносителя промышленного тяжеловодного реактора ЛФ-2 методом ректификации воды под вакуумом.
6. Разработана принципиальная схема и определены предварительные технологические параметры для создания установки, состоящей из двух колонн, для получения кондиционной тяжелой воды с концентрацией дейтерия 99,8 ат.% из исходного сырья, содержащего 42 ат.% дейтерия.

На защиту выносятся:

- результаты исследования зависимости пропускной способности и гидравлического сопротивления спирально-призматической и регулярной рулонной ленточно-винтовой насадки с различными характеристиками от давления;
- результаты определения влияния способа загрузки, режима смачивания насадки и диаметра колонны на эффективность разделения изотопов при ректификации воды под вакуумом;
- метод проведения проектно-проверочных расчетов каскадов колонн для разделения изотопов путем ректификации воды под вакуумом;
- принципиальная схема ректификационного каскада детритизации теплоносителя промышленного тяжеловодного реактора ЛФ-2;
- принципиальная схема установки из двух колонн для получения кондиционной тяжелой воды с концентрацией дейтерия 99,8 ат.% из исходного сырья, содержащего 42 ат.% дейтерия.

Личный вклад автора состоит в непосредственном участии в постановке основных задач исследования, разработке технологических схем экспериментальных стендов,

участии в проведении экспериментов, участии в интерпретации результатов и создании математической модели расчета и оптимизации параметров каскада колонн для разделения бинарных смесей изотопов водорода методом ректификации воды под вакуумом, подготовке основных публикаций по выполненной работе.

Апробация результатов. Основные положения и результаты диссертационной работы представлены на международных и всероссийских конференциях, в том числе на IX-XI Международных Школах молодых ученых и специалистов имени А.А. Курдюмова «Взаимодействие водорода с конструкционными материалами» IHISM-14, IHISM-15, IHISM-16; XII Международном конгрессе молодых ученых по химии и химической технологии «МКХТ-2016»; Научно-практической конференции и школы молодых ученых и студентов «Образование и наука для устойчивого развития», посвященной 80-летию со дня рождения академика В.А. Легасова.

Публикации. По теме диссертации опубликовано 7 научных работ, в том числе 2 в научных журналах, включенных в перечень рецензируемых научных изданий для опубликования основных научных результатов диссертаций.

Объем и структура диссертации. Диссертация состоит из введения, четырех глав, выводов, списка литературы и приложения. Общий объем работы – 151 страница, включая 43 рисунка, 26 таблиц и библиографию из 198 наименований.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во **введении** обоснована актуальность темы диссертации, сформулированы цель исследования, научная новизна и практическая значимость работы.

Глава 1. Литературный обзор. В данной главе приведен анализ литературных данных, отражающих современное состояние работ, посвященных проблемам использования тяжелой воды в качестве теплоносителя и замедлителя ядерных реакторов. Рассмотрены и проанализированы основные технологии, используемые для проведения процессов депротизации и детритизации тяжелой воды, среди которых основное внимание уделено процессу ректификации воды под вакуумом как наиболее простому и безопасному способу разделению изотопов водорода. Представлены массообменные характеристики различных видов контактных устройств, используемых в процессах ректификации, а также проанализированы некоторые подходы к созданию математических моделей описания процесса ректификации. Глава завершается выводами, в которых обосновываются актуальность и цель диссертационной работы.

Глава 2. Методика проведения экспериментов. Глава посвящена изложению экспериментальных, аналитических и расчетных методик, использовавшихся в работе. Представлены принципиальные схемы лабораторных установок с колоннами диаметром 50-150 мм и 250 мм и высотой насадочной части 1 м, а также экспериментальной уста-

новки на ФГУП «ПО «Маяк» с колонной диаметром 120 мм и высотой 10 м. В качестве примера на рис. 1 представлена схема лабораторной установки с колонной 250 мм, отличительной особенностью которой является использование схемы теплового насоса на базе чиллера с фреоновым циклом.

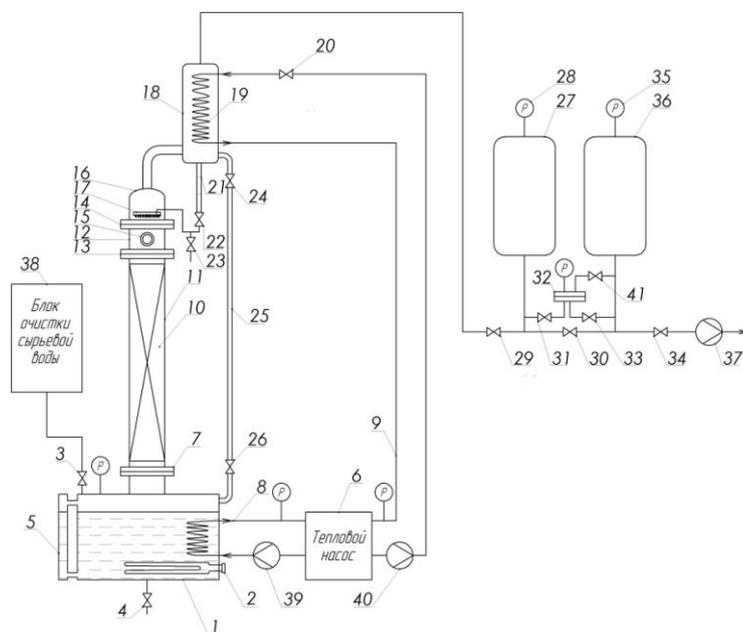


Рис. 1. Принципиальная схема лабораторной установки ректификации воды с колонной диаметром 250 мм:

1 – куб; 2 – ТЭНы; 3,4,20,22-24,26,29-31, 33, 34, 41 – краны; 5, 21 – мерные трубки; 6 – тепловой насос; 7, 13, 14 – фланец; 8 – контур нагрева; 9 – контур охлаждения; 10 – разделительные элементы; 11 – колонна; 12 – вставка; 15 – смотровое окно; 16 – крышка; 17 – распределитель орошения; 18 – конденсатор; 19 – змеевик; 25 – паропровод; 27 – буферная емкость рабочего давления; 28,35 – вакуумметр; 32 – регулятор давления; 36 – буферная емкость нулевого давления; 37 – вакуумный насос; 38 – блок очистки сырьевой воды; 39, 40 – центробежные насосы

Лабораторные исследования проводились с использованием воды природного изотопного состава с анализом по дейтерию и кислороду-18 с помощью спектрального жидкостного изотопного анализатора «Т-LWIA-45-EP», обеспечивающего погрешность измерения $\pm 0,0001$ ат. % (1 ppm). Верификация лабораторных исследований проводилась на экспериментальном стенде на ФГУП «ПО «Маяк» с использованием слабых тяжеловодных сливов с изотопным анализом по дейтерию методом инфракрасной спектроскопии на ИК-Фурье спектрометре Nicolet iS10 и по тритию сцинтилляционным методом на приборе Tri Carb 2810 TR.

По результатам анализа проб рассчитывали число теоретических ступеней разделения (ЧТСР) по уравнению Фэнске для безотборного режима:

$$K = \alpha^n, \quad (1)$$

где K – степень разделения в колонне; α – коэффициент разделения в системе H_2O – H_2O , H_2O – H_2^{16}O – H_2^{18}O ; n – ЧТСР.

Расчет степени разделения в области малых концентраций тяжелых изотопов проводили по формуле (2), а при использовании тяжеловодных сливов – (3):

$$K = \frac{x_{\text{H}}}{x_{\text{B}}} \quad (2)$$

$$K = \frac{x_{\text{H}}(1-x_{\text{B}})}{x_{\text{B}}(1-x_{\text{H}})}, \quad (3)$$

где x_H , x_B – концентрация в жидкой фазе в испарителе и конденсаторе дейтерия или кислорода-18 [ppm, ат. доля], и трития [Ки/кг, Бк/мл].

Высота эквивалентная теоретической ступени разделения (ВЭС) рассчитывалась как отношение высоты блока насадки (H , см) к ЧТСР:

$$h = \frac{H}{n}. \quad (4)$$

Средняя относительная ошибка определения ВЭС не превышала 3–4% при расчете по тритию, а также в экспериментах с водой природного состава; в экспериментах на слабых тяжеловодных сливах при расчете по дейтерию – составляла 10%.

Глава 3. Результаты экспериментов и их обсуждение. В данной главе представлены результаты гидродинамических и массообменных испытаний регулярных и нерегулярных насадок в колоннах различного диаметра.

3.1. Исследование характеристик нерегулярных насадок. Исследование характеристик нерегулярной спирально-призматической насадки (СПН) из нержавеющей стали с размерами элементов 2×2×0,2 мм, 3×3×0,2 мм, 4×4×0,25 мм, 6×6×0,4 мм, 8×8×0,4 мм и 10×10×0,5 мм проводили на лабораторном стенде колоннами диаметром 60 мм и 120 мм и высотой насадочной части 1 м при многоточечном орошении с использованием воды природного изотопного состава. Перед загрузкой в колонну насадка была протравлена в 3% растворе «царской водки» (1 часть азотной кислоты + 3 части соляной кислоты) по методике, разработанной в РХТУ им. Д.И. Менделеева. В табл. 1 представлены результаты определения предельной пропускной способности ($L_{уд}^*$) СПН при давлениях от 0,1 до 1,0 атм.

Таблица 1

Зависимость предельной пропускной способности СПН различного размера от давления при ректификации воды в колонне диаметром 120 мм

P , атм	$L_{уд}^*$, кг/(м ² ·ч)					
	$Z=2$ мм	$Z=3$ мм	$Z=4$ мм	$Z=6$ мм	$Z=8$ мм	$Z=10$ мм
0,1	650	1150	1500	2250	2800	3300
0,2	912	1488	2005	3080	3900	4600
0,3	1112	1750	2375	3430	4500	5300
0,4	–	2000	2650	3750	4900	5900
0,5	1400	2238	2910	4000	5300	6300
0,6	–	2475	3200	4230	5600	6600
0,7	1650	–	–	4500	5850	6900
0,8	–	2838	3640	4750	6050	7100
0,9	1875	–	–	5000	6300	7300
1,0	2000	3062	4000	5300	6500	7400

Из представленных данных видно, что с ростом давления пропускная способность насадок возрастает не линейно. При этом с увеличением давления с 0,1 атм до 0,3 атм для всех образцов пропускная способность увеличивается примерно в 1,5 раза.

Дальнейшее увеличение давления оказывает меньшее влияние на $L_{уд}^*$. Так, при увеличении давления в 10 раз пропускная способность всех исследованных образцов СПН в среднем возрастает в 2,5 раза. Также выявлено, что пропускная способность линейно возрастает с увеличением размера элемента насадки, причем диаметр колонны в пределах точности на $L_{уд}^*$ не влияет (рис. 2).

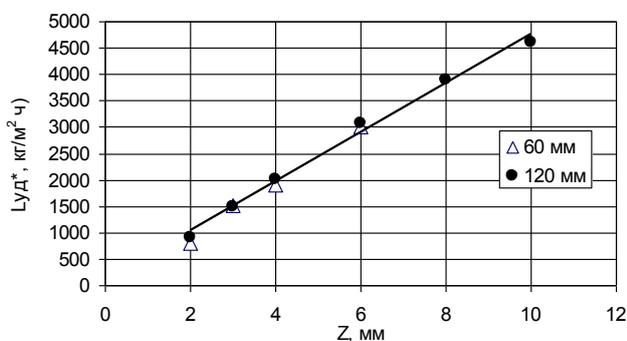


Рис. 2. Зависимость предельной пропускной способности от размера элемента СПН при 0,2 атм

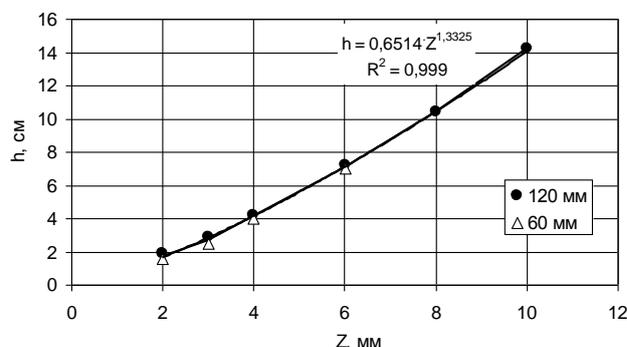


Рис. 3. Зависимость ВЭТС от размера элемента СПН при давлении 0,2 атм

Исследование массообменных характеристик насадок проводилось при удельной нагрузке, равной 0,8 от предельной пропускной способности насадки при давлении сверху колонны 0,2 атм.

В ходе предварительных исследований в колонне диаметром 120 мм с насадкой 3×3×0,2 мм выявлено влияние способа заполнения колонны насадкой. Так, при послойной засыпке СПН без трамбовки было получено значение ВЭТС 8,5±0,3 см, а при засыпке насадки небольшими партиями с послойной трамбовкой удалось снизить ВЭТС до 3,1±0,3 см. При исследовании влияния пускового периода на эффективность разделения было показано, что при пуске колонны без предварительного затопливания насадки значение ВЭТС составило 6,2±0,3 см, а при «захлебывании» колонны флегмой и при предварительном затоплении насадки с последующим непрерывным орошением до достижения заданного режима работы ВЭТС снизились до 2,8±0,3 см и 2,6±0,3 см соответственно. На наш взгляд, для колонн большой высоты наиболее предпочтительным является последний вариант пуска, так как в этом случае исключается возможность частичного осушения и нарушения сплошности пленки жидкости в верхних слоях насадки. Для дальнейших экспериментов использовался метод заполнения колонны с трамбовкой и пуск с непрерывным орошением насадки.

Результаты определения ВЭТС в колоннах высотой 1 м представлены на рис. 3, причем следует отметить, что значения, полученные по результатам анализа дейтерия и кислорода-18, в пределах точности определения совпадают между собой. Получено, что зависимость ВЭТС от размера элемента насадки не линейна и хорошо описывается

уравнением вида

$$h = 0,6514 \cdot Z^{1,3325} . \quad (5)$$

Для СПН с размером элемента от 2 мм до 6 мм выявлено, что увеличение диаметра колонны в 2 раза приводит к росту ВЭТС в среднем в 1,11 раза, т.е. пропорционально отношению диаметров колонны в степени 0,17.

При испытаниях СПН с размером элемента $3 \times 3 \times 0,2$ мм в экспериментальной установке диаметром 120 мм и высотой насадочной части 10 м на ФГУП «ПО «Маяк» при давлении вверху колонны 0,29 атм с использованием тяжеловодных сливов с концентрацией дейтерия 14,50 ат.% и трития 1,3 Ки/кг было получено значение ВЭТС $6,3 \pm 0,5$ см, что может объясняться влиянием пуска колонны методом захлебывания флегмой без принудительного орошения насадки, а также колебаниями потока греющего пара, приводящими к отклонению от безотборного режима.

3.2. Исследование характеристик регулярных насадок. Эксперименты проводились в лабораторных колоннах диаметром 60 мм, 120 мм и 250 мм с высотой насадочного слоя 1 м. В работе использовали два типа регулярной рулонной ленточно-винтовой насадки (РЛВН), изготовленные в РХТУ им. Д.И. Менделеева из гофрированной нержавеющей сетки с ячейкой 0,76 мм из проволоки 0,27 мм 12Х18Н10Т со следующими характеристиками: тип гофра исходных лент – прямой; ширина исходной ленты – 47 мм; ширина гофрированной полосы – 40 мм; высота гофра сетки – 5 мм; намотка – с зазором между витками 3 мм; слой по 4 параллельные полосы; высота блока 1000 мм. Традиционный тип – блок РЛВН с «юбочками», изготовленными из прямых лент из нержавеющей сетки, установленных на расстоянии 200 мм друг от друга, диаметр блока примерно на 10 мм меньше диаметра царги, чтобы при установке в колонну «юбочки» в расправленном состоянии обеспечивали контакт между насадкой и стенкой царги. Образцы РЛВН без «юбочек» получали путем удаления «юбочки» и дополнительной намотки лент с высотой гофра 5 мм до диаметра, равного диаметру царги для обеспечения плотной упаковки. В качестве объекта сравнения использовали блоки диаметром 60 мм и высотой 160 мм промышленной насадки швейцарского производства Sulzer Mellapak 750 СУ из гофрированной нержавеющей сетки с высотой гофра 5 мм. Внешний вид образцов представлен на рис. 4. Перед загрузкой в колонну насадка была протравлена в 3% растворе «царской водки».

Результаты определения предельной пропускной способности исследованных образцов показали, что для образцов РЛВН значения $L_{уд}^*$, полученные в колоннах различного диаметра, в пределах точности совпадают (рис. 5). При этом их пропускная способность оказывается примерно в 1,3 раза выше, чем для насадки Sulzer Mellapak 750 СУ. По нашему мнению, это может объясняться тем, что для создания слоя высотой 96

мм в колонну было установлено друг на друга 6 блоков насадки Sulzer. При этом в местах стыковки блоков нарушается регулярность формы насадки, а следовательно, и режим течения жидкости, что приводит к росту гидравлического сопротивления и более раннему захлебыванию колонны. При использовании РЛВН, изготовленной в соответствии с высотой насадочной части царги, этот недостаток отсутствует. Результаты исследования ВЭТС представлены в табл. 2.

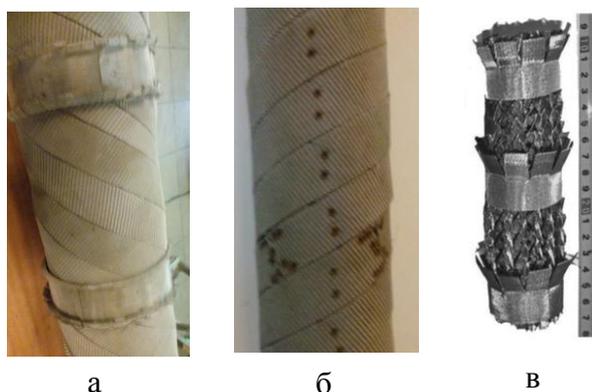


Рис. 4. Образцы регулярных насадок а – РЛВН с «юбочками»; б – РЛВН без «юбочек»; в – Sulzer Mellapak 750 CY

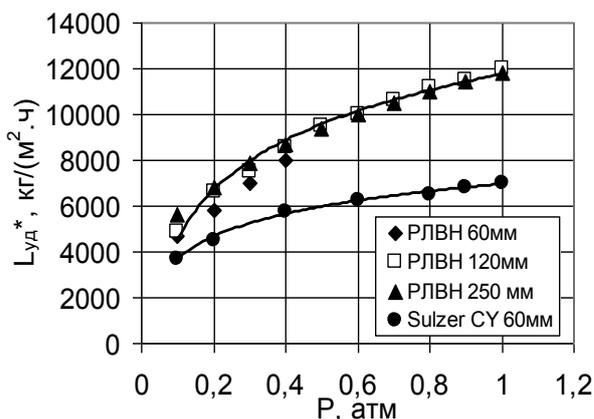


Рис. 5. Зависимость предельной пропускной способности регулярных насадок от давления

Таблица 2

Массообменные характеристики РЛВН при ректификации воды под вакуумом в колоннах диаметром 120 мм и 250 мм при $P=0,2$ атм

Изотопная система	α	$L_{уд}, \text{ кг}/(\text{м}^2 \cdot \text{ч})$	$\Delta P, \text{ мм. вод. ст.}$	Изотопная концентрация, ppm		K	$h, \text{ см}$
				x_H	x_B		
колонна 120 мм, РЛВН с «юбочками»							
$\text{H}_2\text{O}-\text{HDO}$	1,046	5280	310±10	141	100	1,280	18,2
$\text{H}_2^{16}\text{O}-\text{H}_2^{18}\text{O}$	1,006			1965	1901	1,033	18,2
$\text{H}_2\text{O}-\text{HDO}$	1,046	1760	70±4	141	109	1,285	17,9
$\text{H}_2^{16}\text{O}-\text{H}_2^{18}\text{O}$	1,006			1967	1900	1,034	17,7
колонна 250 мм, РЛВН с «юбочками»							
$\text{H}_2\text{O}-\text{HDO}$	1,046	5440	336±10	142	114	1,250	20,2
$\text{H}_2^{16}\text{O}-\text{H}_2^{18}\text{O}$	1,006			1966	1907	1,031	19,8
колонна 250 мм, РЛВН без «юбочек»							
$\text{H}_2\text{O}-\text{HDO}$	1,046	5420	334±10	142	121	1,178	27,3
$\text{H}_2^{16}\text{O}-\text{H}_2^{18}\text{O}$	1,006			1966	1922	1,023	26,7

Результаты, полученные в колонне диаметром 120 мм показывают, что разделительная способность РЛВН с «юбочками» не зависит от нагрузки в диапазоне от 25% до 80% от значения предельной пропускной способности. Эксперименты в колонне диаметром 60 мм показали, что значения ВЭТС, полученные для РЛВН с «юбочками» оказались примерно в 2 раза выше ($16,1 \pm 0,2$ см), чем для Sulzer Mellapak 750 CY ($7,8 \pm 0,1$ см), однако, поток по колонне с РЛВН был не только почти в 1,5 раза больше, чем ис-

пользовавшийся в колонне с насадкой Sulzer, но и был недостижим для нее при данном давлении, так как превышал значение $L_{уд}^*$. На основании значений ВЭТС, полученных для РЛВН с «юбочками» в колоннах диаметром 60 – 250 мм, было получено уравнение расчета коэффициента масштабного перехода (КМП):

$$КМП = \frac{h_2}{h_1} = \left(\frac{D_2}{D_1} \right)^{0,156}, \quad (6)$$

где h_1 – ВЭТС для колонны меньшего диаметра D_1 ; h_2 – ВЭТС для колонны большего диаметра D_2 .

Из данных табл. 2 видно, что заполнение колонны насадкой без пристеночного зазора (РЛВН без «юбочек»), приводит к увеличению ВЭТС в 1,35 раза (до $27,0 \pm 0,5$ см) по сравнению с традиционным вариантом РЛВН с «юбочками» ($20,0 \pm 0,3$ см), несмотря на увеличение поверхности насадки на 8,5% (с $47,7 \text{ м}^2$ до $51,76 \text{ м}^2$), что, по-нашему мнению, связано с влиянием пристеночного эффекта. Полученные в лабораторных исследованиях результаты были подтверждены испытаниями в экспериментальной колонне высотой 10 м и диаметром 120 мм с использованием как природной воды, так и слабых тяжеловодных сливов с концентрацией дейтерия 1,69 ат.% и трития $5,65 \cdot 10^{-2}$ Ки/кг, где были получены значения ВЭТС для РЛВН с «юбочками» $h=16,8 \pm 0,4$ см, а для РЛВН без «юбочек» $h=20,1 \pm 0,4$ см. По результатам испытаний для практического применения было рекомендовано использование РЛВН с «юбочками».

3.3. Практическое применение результатов исследований. Основным результатом работы является модернизация действующего каскада депротизации тяжеловодного теплоносителя реакторной установки ЛФ-2. До модернизации каскад состоял из четырех тарельчатых колонн ректификации воды, первая из которых включала в себя концентрирующую и исчерпывающую части, а оставшиеся три работали в режиме исчерпывания по дейтерию. При этом отбор отвала осуществлялся из верха последней колонны в количестве 5 кг/сутки с концентрацией дейтерия 4 – 5 ат.%, что приводило к накоплению слабых тяжеловодных сливов. В результате модернизации в каскад была включена колонна ROA6100 диаметром 120 мм и высотой насадочной части 10 м, заполненная изготовленной в РХТУ им. Д.И. Менделеева СПН размером $3 \times 3 \times 0,2$ мм. Это привело к увеличению КПД исчерпывающей части каскада с 59 % до 70,5 % и возможности проведения исчерпывания до концентрации дейтерия в отвале не более 0,1 ат.%, т.е. до уровня, не подпадающего под нормативы учета тяжелой воды. Таким образом, данное решение позволило исключить проблемы накопления слабых тяжеловодных сливов на установке депротизации тяжелой воды на ФГУП «ПО «Маяк».

В рамках перспектив использования экспериментальных колонн ROA6200 и

ROA4/5000 диаметром 120 и 250 мм предлагается создание участка по получению кондиционной тяжелой воды из тяжеловодных сливов с концентрацией дейтерия 42 ат.%. Установка представляет собой каскад из двух колонн с сокращением потоков. При этом колонна ROA4/5000 представляет собой концентрирующую часть каскада, а ROA6200 – исчерпывающую. Данная установка позволит перерабатывать 6,75 т/год 42%-ной тяжелой воды с получением кондиционной тяжелой воды с концентрацией дейтерия 99,8% в количестве 2,65 т/год.

Глава 4. Математическое моделирование и оптимизация каскадов ректификации воды под вакуумом для депротизации и детритизации тяжеловодного теплоносителя. Разработанная в рамках выполнения настоящей работы математическая модель предназначена для расчета и оптимизации каскадов разделения изотопов водорода методом ректификации воды под вакуумом с учетом гидродинамических и других характеристик контактных устройств (КУ). В данной модели процесс изотопной очистки тяжелой воды сводится к решению задачи разделения бинарной смеси, что позволяет использовать вычислительный метод «от ступени к ступени». В рамках этого метода температура (T) и величины потоков жидкости (L) и пара (G) принимаются постоянными в пределах одной теоретической ступени разделения (ТСР), что позволяет исключить из рассмотрения уравнения теплового баланса колонны. Изотопные составы каждого из входящих и выходящих с n -й ТСР потоков связаны соотношением материального баланса, а концентрации в потоках пара и жидкости, покидающих n -ю ТСР, находятся в термодинамическом равновесии:

$$L_n x_n + G_{n+1} y_{n+1} = L_{n+1} x_{n+1} + G_n y_n \quad , \quad (7)$$

$$\frac{x_{n+1}(1-y_n)}{y_n(1-x_{n+1})} = \alpha(T). \quad (8)$$

где L и G – внутренние потоки жидкости и пара; x и y – атомные доли изотопа (для определенности – дейтерия) в жидкости и паре соответственно.

Вследствие малых значений коэффициентов разделения, для решения задач разделения изотопов водорода требуется большое количество ЧТСР, что приводит к необходимости каскадирования, т.е. использования последовательности нескольких колонн меньшей высоты и/или меньшего диаметра взамен одной колонны большего размера. Моделирование каскада со ступенчатым сокращением потоков в итоге сводится к моделированию одной колонны с промежуточными дефлегматорами и испарителями (рис. б). При этом разбиение колонны на ступени каскада может производиться по одному из критериев: а) максимальная высота (если существенны ограничения по высоте) и б) перепад давления по высоте (когда повышение температуры кипения серьезным образом снижает эффективность разделения).

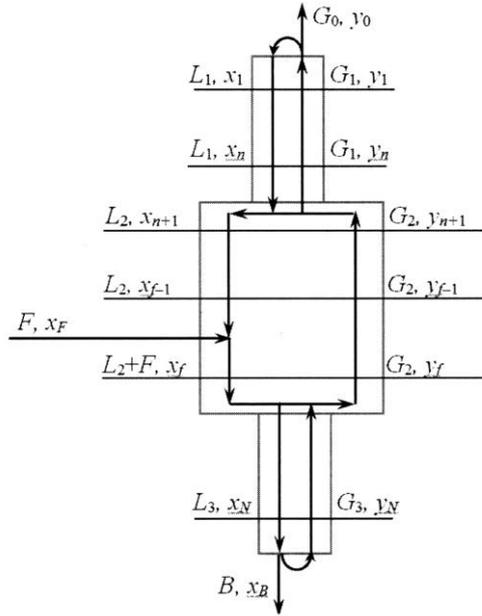


Рис. 6. Трехступенчатый каскад с сокращением потоков в концентрирующей и исчерпывающей части

щей по дейтерию части каскада $\sigma_{n,n-1} > 1$, а в концентрирующей части $\sigma_{n,n-1} < 1$. Величина θ равна произведению всех коэффициентов кратности потока в пределах исчерпывающей части каскада.

Для заданного контактного устройства высота колонны определяется (помимо ЧТСР) высотой h , эквивалентной при заданных условиях одной ТСР. В число этих условий в общем случае входят термодинамические (температура), гидродинамические (удельная нагрузка, или поток жидкости на единицу сечения колонны) и структурные параметры. Для проведения расчета методом от ступени к ступени необходимо, прежде всего, задать тип контактного устройства каждой m -й колонны (по их числу в каскаде M) и выбрать приемлемую величину удельной нагрузки L_m^* , после чего рассчитать сечение (S), коэффициент масштабного перехода (K) и ВЭТС (h):

$$S_m = L_m / L_m^* , \quad (10)$$

$$K_m = 1 + \frac{1 - \eta}{\eta} \lg \frac{S_m}{S_h} , \quad (11)$$

$$h_{m,n} = h(T_n, L_m^*, S_h) \cdot K_m . \quad (12)$$

В формуле (11) параметр η определяется степенью организации структуры потоков в колонне за счет использования данного контактного устройства, а S_h – величина опорного сечения, для которого известна ВЭТС h как функция температуры и удельной нагрузки. Расчет давления P на каждой ТСР проводится с учетом найденного значения

Величины внутренних потоков при расчете от ступени к ступени находятся согласно следующим соотношениям:

$$\begin{aligned} L_1 &= R \cdot G_0 / \theta \\ G_1 &= L_1 + G_0 \\ \left. \begin{aligned} L_n &= \sigma_{n,n-1} L_{n-1} \\ G_n &= L_n + G_0 \end{aligned} \right\} \text{ при } 2 \leq n \leq f - 1 \end{aligned} \quad (9)$$

$$\begin{aligned} L_f &= \sigma_{f,f-1} L_{f-1} + F \\ G_f &= L_f - B \end{aligned}$$

$$\left. \begin{aligned} L_n &= \sigma_{n,n-1} L_{n-1} \\ G_n &= L_n - B \end{aligned} \right\} \text{ при } f + 1 \leq n \leq N$$

где R – флегмовое число в каскаде без сокращения потоков, f – номер ТСР питания, $\sigma_{n,n-1}$ – коэффициенты кратности потока, в пределах одной колонны равные единице. При переходе от одной колонны к другой в исчерпывающей

Блок-схема алгоритма расчета каскада изображена на рис. 7. В первом цикле производится расчет каскада без сокращения потоков. Разбиение на отдельные колонны может производиться как по величине гидравлического сопротивления, так и по предельной высоте (последний вариант на блок-схеме не указан). На втором этапе вводятся значения коэффициентов $\sigma_{n,n-1}$, отличные от единицы (рекомендуемые или произвольные), и производится расчет каскада с сокращением потоков (изменение формы каскада, в результате которого число колонн M может увеличиться). Алгоритм предусматривает вариант замены КУ при переходе от одной колонны к другой, а также изменение удельной нагрузки. Минимизация объема разделительной части осуществляется путем варьирования флегмового числа и коэффициентов кратности потока.

Верификация математической модели проводилась путем сравнения результатов расчета с экспериментальными данными, полученными на каскаде депротизации тяжеловодного замедлителя после модернизации на ФГУП «ПО «Маяк». При выбранных значениях ВЭТС в тарельчатых и насадочных колоннах наблюдается хорошее согласие между теорией и экспериментом (различие не более 18%), что свидетельствует об адекватности выбранной модели расчета. Расчетная оптимизация каскада депротизации при замене тарельчатых контактных устройств на РЛВН показала возможность уменьшения количества колонн с 5 до 4, при этом суммарный объем разделительной части установки снижается в 4,4 раза (с 28,36 м³ до 6,4 м³).

Таблица 3

Технические и эксплуатационные характеристики разделительного оборудования каскада детритизации, $P_1=20$ кПа, $T_1=321$ К, $F=40$ кг/ч

Колонна	$K1$	$K2$	$K3$	$K4$	$K5$
Контактное устройство	РЛВН	РЛВН	РЛВН	РЛВН	СПН
L^* , кг/(м ² ·ч)	7000	7000	7000	7000	2000
L , кг/ч	1367/1407 [†]	885	517	222	63,4
$\sigma_{m,m+1} (R)$	(34,2)	1,59	1,71	2,33	3,5
D , см	50	40	31	20	20
h , см	22,8	22,1	21,2	19,9	4,6
P_N , кПа	87,7	100	100	100	101
T_N , К	371	374	374	366	374,5
x_1 , ppm	1,520	2,559	5,026	11,20	26,44
x_N , ppm	2,543	4,991	11,12	26,30	344,9
K	1,143/1,478 [†]	1,963	2,228	2,365	13,11
N	132	180	188	201	557
H , м	30,1	39,8	39,9	40	25,84
V , м ³	5,88	5,03	2,951	1,267	0,82
V_{Σ} , м ³	15,948				

[†] В истощающей / концентрирующей части; ввод питания на 20-ю ТСП

С использованием разработанной модели был проведен расчет установки детритизации тяжеловодного замедлителя методом ректификации воды под вакуумом. В качестве начальных условий было принято: концентрация дейтерия в питающем потоке F

99,8 ат.%, удельная активность трития $x_f=5$ Ки/кг, количество выводимого трития 220 Ки/год, концентрация в потоке B , отбираемом из последней колонны каскада, $x_B=1000$ Ки/кг, откуда $B=220$ кг/год (0,025 кг/ч), высота колонны не более 40 м. В основу оптимизации были положены экспериментальные характеристики СПН и РЛВН. В результате получен пятиступенчатый каскад с сокращением потоков, первая ступень которого имеет исчерпывающую и концентрирующую части, а остальные колонны работают в режиме концентрирования. Основные параметры каскада представлены в таблице 3.

В заключение следует отметить, что объем предложенного каскада детритизации в 2,5 раза превышает объем каскада депротизации с насадочными контактными устройствами, однако он оказывается в 1,7 раза меньше, чем для эксплуатирующегося в настоящее время каскада с тарельчатыми контактными устройствами. Таким образом, можно сделать заключение о том, что ректификация воды обоснованно может рассматриваться в качестве альтернативного метода для детритизации замедлителя тяжеловодного реактора с последующим долговременным хранением концентрата ДТО.

ВЫВОДЫ

1. Изучены свойства регулярных и нерегулярных насадочных контактных устройств в процессе ректификации воды под вакуумом применительно к решению комплексной задачи очистки от протия и трития теплоносителя промышленного тяжеловодного реактора ЛФ-2.

2. Показана возможность отработки технологии и изучения массообменных характеристик процесса разделения при ректификации воды под вакуумом с использованием воды природного изотопного состава с последующим корректным переносом данных на условия разделения реальных тритийсодержащих тяжеловодных смесей.

3. В унифицированных условиях получена база гидравлических и массообменных характеристик спирально-призматических насадок с размером элементов от 2 мм до 10 мм в колоннах диаметром 60–120 мм и регулярной рулонной ленточно-винтовой насадки в колоннах диаметром 60–250 мм при процессе ректификации воды под вакуумом.

4. Выявлено влияние вида насадки, способов заполнения и пуска колонны на эффективность разделения изотопов водорода при ректификации воды под вакуумом.

5. Показана перспективность использования в российских разделительных ректификационных установках регулярной рулонной ленточно-винтовой насадки отечественного производства.

6. Разработана адекватная математическая модель для расчета каскадов депротизации и детритизации тяжелой воды методом ректификации воды под вакуумом в колоннах с различными типами контактных устройств.

7. Предложены способы модернизации действующего каскада депротизации тяже-

ловодного теплоносителя ЛФ-2 с целью уменьшения объема разделительного оборудования за счет замены колпачковых тарелок на регулярную рулонную ленточно-винтовую насадку при сохранении производительности установки.

8. С использованием математической модели предложена принципиальная схема и получены оптимизированные предварительные технологические параметры для создания установки детритизации теплоносителя промышленного тяжеловодного реактора ЛФ-2 методом ректификации воды под вакуумом.

Список опубликованных работ по теме диссертации

1. Магомедбеков Э.П., Белкин Д.Ю., Селиваненко И.Л., Растунова И.Л. Массообменные характеристики регулярной рулонной ленточно-винтовой насадки в колоннах изотопного обмена при ректификации воды под вакуумом // Теоретические основы химической технологии. 2016. Т.50. № 4. С. 408-413.

2. Магомедбеков Э.П., Белкин Д.Ю., Селиваненко И.Л., Растунова И.Л. Массообменные характеристики спирально-призматической насадки в колоннах изотопного обмена при ректификации воды под вакуумом // Теоретические основы химической технологии. 2016. Т.50. № 5. С. 502-507.

3. Магомедбеков Э.П., Белкин Д.Ю., Растунова И.Л., Селиваненко И.Л. Депротизация тяжеловодного теплоносителя на ФГУП «ПО «МАЯК» методом ректификации воды под вакуумом // Успехи в химии и химической технологии: сборник научных трудов. 2016. Т. 30. № 6. С. 68-70.

4. Магомедбеков Э.П., Белкин Д.Ю., Растунова И.Л., Селиваненко И.Л. Высокоэффективные контактные устройства для разделения изотопов водорода методом ректификации воды // Взаимодействие изотопов водорода с конструкционными материалами ИНИСМ-15. Сборник докладов. Саров: РФЯЦ-ВНИИЭФ. 2016. С. 223-238.

5. Магомедбеков Э.П., Белкин Д.Ю., Растунова И.Л., Сазонов А.Б., Селиваненко И.Л. Ректификация воды как метод изотопной очистки тяжелой воды // Взаимодействие изотопов водорода с конструкционными материалами ИНИСМ-16. Сборник тезисов докладов. Саров: РФЯЦ-ВНИИЭФ. 2016. С. 123-124.

6. Магомедбеков Э.П., Белкин Д.Ю., Растунова И.Л., Селиваненко И.Л. Депротизация тяжеловодного теплоносителя на ФГУП «ПО «МАЯК» методом ректификации воды под вакуумом // Научно-практическая конференция и школа молодых ученых и студентов «Образование и наука для устойчивого развития»: материалы конференции: в 3 ч. Ч.2. М.: РХТУ им Д.И Менделеева. 2016. С. 6-9.

7. Магомедбеков Э.П., Баранов С.В., Белкин Д.Ю., Розенкевич М.Б., Растунова И.Л. Тяжелая вода – свойства, получение и применение в ядерной отрасли // Взаимодействие изотопов водорода с конструкционными материалами ИНИСМ-14. Сборник докладов. Саров: РФЯЦ-ВНИИЭФ. 2015. С. 39-56.