

РЕКТИФИКАЦИЯ ВОДЫ КАК МЕТОД ИЗОТОПНОЙ ОЧИСТКИ ТЯЖЕЛОЙ ВОДЫ

Э. П. Магомедбеков¹, Д. Ю. Белкин², И. Л. Растунова¹, А. Б. Сазонов¹,
И. Л. Селиваненко¹

¹РХТУ им. Д. И. Менделеева, Москва

²ФГУП «Производственное объединение «Маяк», Озерск
absazonov@mail.ru

В докладе представлены методика и результаты расчета каскада насадочных ректификационных колонн для детритизации тяжелой воды. В основу расчета положены результаты лабораторных испытаний регулярной рулонной ленточно-винтовой насадки, разработанной в РХТУ им. Д. И. Менделеева, и нерегулярной спирально-призматической насадки из нержавеющей стали. Показано, что использование рулонной ленточно-винтовой насадки в колоннах позволяет снизить объем разделительного оборудования при сохранении производительности каскада.

Введение

Тяжеловодный реактор – ядерный реактор, в котором роль теплоносителя и замедлителя нейтронов играет тяжелая вода (D_2O , оксид дейтерия). Поскольку сечение радиационного захвата тепловых нейтронов ядрами дейтерия ($5,2 \cdot 10^{-4}$ б) значительно меньше, чем протонами (0,333 б), такой реактор имеет улучшенный нейтронный баланс, что позволяет использовать в качестве ядерного топлива природный уран или же направить «лишние» нейтроны для наработки радионуклидов.

В процессе работы тяжеловодного реактора D_2O загрязняется другими изотопами водорода – легким водородом (протием, H) и тритием (T). Источниками образования протия в тяжеловодном реакторе являются реакции быстрых нейтронов и жестких гамма-квантов с конструкционными материалами реактора, приводящие к отщеплению протона. Среди них $^{50}Cr(n, p)^{50}V$, $^{54}Fe(n, p)^{54}Mn$, $^{58}Ni(n, p)^{58}Co$, $d(\gamma, p)n$ и некоторые другие. Существенный (а в ряде случаев и основной) вклад в загрязнение протием вносит изотопное разбавление при химической очистке замедлителя: в процессах фильтрации, дистилляции и т. п. Разбавление дейтерия протием приводит к ухудшению ядерно-физических свойств замедлителя: резко снижается коэффициент замедления, в результате чего уменьшается запас реактивности реактора. Поэтому для поддержания нормальной работы тяжеловодного реактора необходимо поддерживать концентрацию протия в замедлителе на уровне не более 0,5 %.

Основным источником загрязнения тритием является реакция $d(n, \gamma)t$. Кроме того, если из теплоносителя не удаляется радиогенный 3He (продукт распада трития), его реакция $^3He(n, p)t$ с нейтронами любых энергий будет

воспроизводить тритий. Другие реакции, характерные для реакторов всех типов (тройное деление, $^{14}\text{N}(n, t)^{14}\text{C}$ и др.), вносят значительно меньший вклад. Образование трития не ухудшает ядерно-физических свойств D_2O . Однако оно приводит к увеличению дозовой нагрузки на персонал в результате вдыхания им паров тритийсодержащей воды. Принято, что максимальная концентрация трития в замедлителе работающего реактора не должна превышать 5 Ки/л. Расчеты и практика эксплуатации тяжеловодных реакторов показывают, что указанные выше критические показатели по протию и тритию могут быть превышены уже через 4–5 лет после ввода реактора в эксплуатацию.

Для изотопной очистки тяжеловодных замедлителей в разные годы предлагались самые разные методы разделения изотопов водорода [1]. Общеизвестным на сегодняшний день является комбинированный подход. Выделение протия из тяжелой воды (депротизация) проводится методом ректификации воды при пониженном давлении. Выделение трития производится в два этапа, что связано с радиолизом воды при высокой концентрации трития. Начальное концентрирование трития (до $\sim 10^2$ – 10^3 Ки/л) проводят методом каталитического изотопного обмена водорода с водой. Для более глубокого концентрирования вплоть до получения чистого T_2 используют либо низкотемпературную ректификацию водорода, либо изотопный обмен в системе «водород – твердый металлический гидрид». Альтернативным методом для первой стадии детритизации может стать метод ректификации воды: более затратный энергетически, но обладающий такими неоспоримыми преимуществами, как простота аппаратного оформления и взрывобезопасность.

В настоящей работе мы представляем результаты математического моделирования процесса детритизации тяжеловодного замедлителя с целью выбора оптимальных условий разделения и оценки материальных затрат на его осуществление.

Математическое моделирование каскада детритизации

Задачу начального концентрирования трития при изотопной очистке тяжеловодного замедлителя можно рассматривать как задачу бинарной (двухкомпонентной) ректификации, так как содержание других изотопных форм трития в D_2O , нежели D_2O , даже при его удельной активности 10^3 Ки/л крайне невелико и не влияет на конечные результаты.

Наиболее полные и точные данные по давлению насыщенных паров различных изотопных форм воды были получены в работах Ван Хука [2, 3]. На рис. 1 представлена рассчитанная по данным этих работ температурная зависимость коэффициента разделения в рассматриваемой системе как отношение давлений насыщенных паров соответствующих изотопных форм:

$$\alpha(T) = \frac{P_{\text{D}_2\text{O}}(T)}{P_{\text{DTO}}(T)}. \quad (1)$$

Особенностью коэффициента разделения в рассматриваемой системе является его быстрое уменьшение до единицы с ростом температуры, а значит, и давления. В связи с этим проведение ректификации при атмосферном

давлении потребует большого объема разделительных колонн, так как необходимое число теоретических ступеней разделения (ЧТСР) растет с уменьшением коэффициента разделения. По этой причине ректификацию воды с целью разделения изотопов проводят, как правило, при пониженном давлении. При этом гидравлическое сопротивление контактного устройства колонны позволяет получить наперед заданное низкое давление лишь в верхней ее части (или, как говорят, в голове колонны). По мере приближения к кубовой части давление и температура будут расти, что самым отрицательным образом скажется на разделительной способности колонны. Поэтому одно из требований, предъявляемых к контактным устройствам колонн для ректификации тяжелой воды, – малое гидравлическое сопротивление.

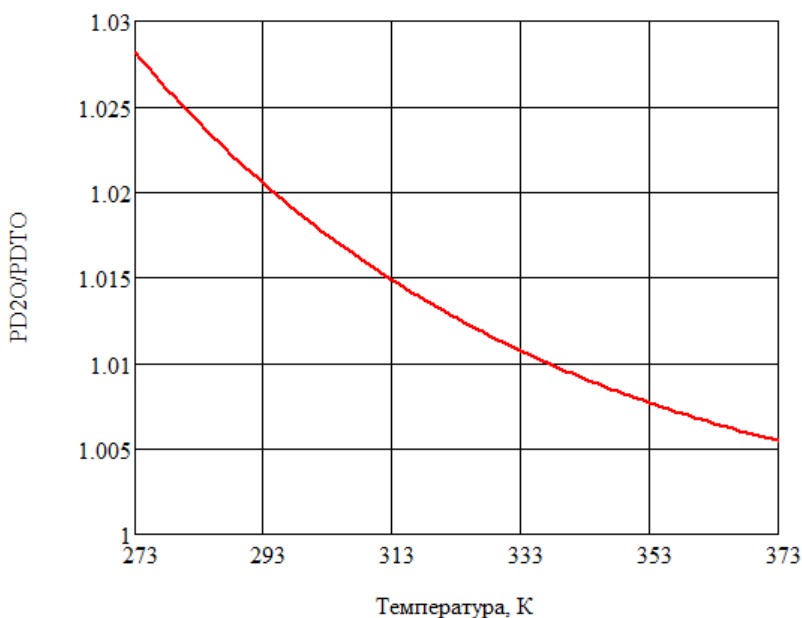


Рис. 1. Отношение давлений насыщенных паров D₂O и DTO

Изменение коэффициента разделения при переходе от одной теоретической ступени разделения (ТСР) к другой приводит к необходимости использовать вычислительный метод, получивший название «расчет от ступени к ступени». В рамках этого метода потки жидкости и пара, покидающие ТСР (*out*), находятся в полном термодинамическом равновесии:

$$x_{out} = \alpha(T) y_{out} . \quad (2)$$

При этом температура (давление) принимается постоянной в пределах одной ТСР. Количество и изотопный состав каждого из входящих (*in*) и выходящих с ТСР потоков связаны соотношениями материального баланса

$$L_{in} + G_{in} = L_{out} + G_{out} , \quad (3)$$

$$L_{in} x_{in} + G_{in} y_{in} = L_{out} x_{out} + G_{out} y_{out} , \quad (4)$$

где L и G – потоки жидкости и пара (кг/с), x и y – концентрации трития в жидкости и паре соответственно. Величины внутренних потоков L и G в пределах одной колонны разделительного каскада постоянны и определяются заданием питающего потока, потока продукта (отбор), и флегмового или парового числа. Данное постоянство обусловлено малостью того изменения энтальпии жидкой воды и пара, к которой приводит изотопное замещение, в силу чего уравнения теплового баланса колонны могут быть оставлены за рамками метода.

Большое ЧТСР, необходимое для решения поставленной задачи разделения, приводит к необходимости использования разделительных каскадов: последовательности нескольких колонн меньшей высоты, а часто и меньшего диаметра (каскад с сокращением потоков) взамен одной колонны большего размера. Для каскада колонн, концентрирующего тритий, расчет которого сводится к расчету колонны с промежуточными испарителями (рис. 2), наиболее удобным оказывается определение внутренних потоков через паровые числа R_v , связывающие количества пара и жидкости, покидающих нижние ТСР каждой ступени m :

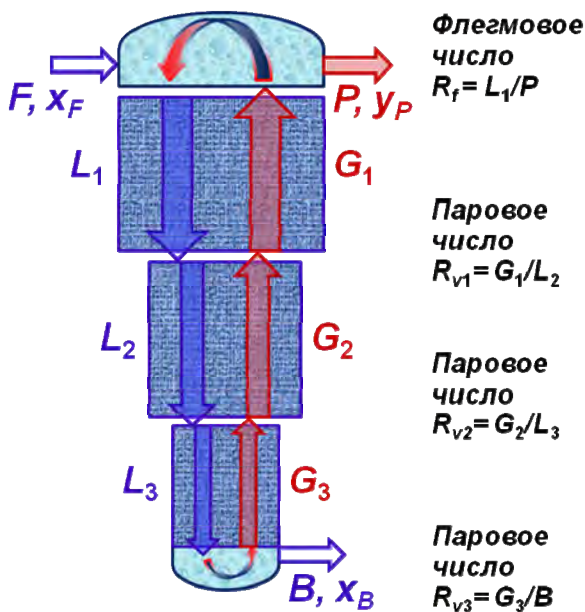


Рис. 2. Концентрирующий каскад со ступенчатым сокращением потоков

$$R_{vm} = G_m / L_{m+1} \cdot \tag{5}$$

При этом для самой последней (M -той) ступени каскада $L_{M+1} = B$. Таким образом, метод расчета «от ступени к ступени» сводится к следующей последовательности операций.

А. На основании заданной степени разделения

$$K = \frac{x_B(1-x_F)}{x_F(1-x_B)} \approx \frac{x_B}{x_F} \quad (6)$$

(см. рис. 2) по уравнению Фэнске

$$K = \alpha^{N_{\min}} \quad (7)$$

рассчитывается минимальное ЧТСП N_{\min} , необходимое для получения продукта нужной концентрации. Для заданной наперед производительности каскада F с учетом очевидного неравенства

$$Fx_F \geq Bx_B \quad (8)$$

выбирается величина потока B , отводимого с последней ступени каскада. Задается паровое число $R_{v1} > 0$: такое, чтобы поток пара G_1 в точке отбора был не менее отвального потока $P = F - B$. С учетом величины отвального потока определяется и флегмовое число R_f (рис. 2).

Б. По уравнению равновесия (2) определяется концентрация трития в паре, покидающем нижнюю ТСП. По уравнениям материального баланса (3–4) определяются концентрация трития в жидкости, приходящей на нижнюю ТСП, и величины потоков пара и жидкости. Далее расчет повторяется для $N_{\min} + 1$ ступеней разделения.

В. Определяется достигнутая степень разделения. Если таковая меньше заданной, ЧТСП увеличивается на единицу, и расчет Б согласно уравнениям (2–4) проводится далее. Операция повторяется до тех пор, пока заданная степень разделения не будет достигнута. Таким образом, на данной стадии определяется реальное ЧТСП (N).

Г. На данном этапе проводится собственно каскадирование, т. е. на одной или более ТСП «устанавливаются» промежуточные испарители. В рамках вычислительного алгоритма это сводится к заданию паровых чисел $R_{vm} > 0$ для второй, третьей и т. д. ступеней каскада. Внутренние потоки жидкости и пара на каждой из ступеней связаны соотношениями общего материального баланса

$$L_m = G_m + B. \quad (9)$$

Д. После осуществления операций ввода, описанных в п. Г, повторяется расчет согласно пп. Б и В. При этом дополнительное число ТСП, если таковое получается в ходе расчета, прибавляется к первой ступени каскада.

Е. Рассчитывается условный объем разделительной части каскада

$$V^* = \sum_{m=1}^M N_m G_m, \quad (10)$$

где N_m – ЧТСП на m -той ступени каскада.

Сравнение различных вариантов каскадной схемы позволяет в итоге найти минимум условного объема разделительной аппаратуры. Для перехода к реальному, физическому объему необходимо знать характеристики контактного устройства, которое планируется использовать на практике. Использование различных контактных устройств в одном каскаде может привести к тому, что реальный минимум не будет совпадать с условным. Те же последствия может иметь игнорирование изменения коэффициента разделения с темпера-

турой. Для устранения подобного несовпадения и для создания расчетного кода с перспективой использования для проектных расчетов вышеописанный алгоритм должен учитывать гидродинамические и другие характеристики контактных устройств, которыми будут заполнены колонны каскада.

Характеристики насадок

Для обеспечения интенсивного массообмена между паром и жидкостью необходимо создать в колонне развитую поверхность контакта фаз, что достигается при использовании различных контактных устройств: тарелок или насадок. Как известно [1], наибольшую эффективность в ректификационных процессах демонстрируют нерегулярные насадки, имеющие высокую удельную поверхность и большую удерживающую способность по отношению к жидкости. Широкое применение в маломасштабных производствах находят спирально-призматическая насадка Левина (СПН) и некоторые другие разновидности нерегулярной насадки с характерными размерами элемента от 1,5–2 до 5–6 мм. Для колонн с большей производительностью (диаметром более 200 мм) используют регулярные насадки. Наибольшее распространение получили регулярные насадки, производимые компанией *Sulzer* (Mellapak, Rombopak и др.). В РХТУ им. Д. И. Менделеева созданы опытные образцы регулярной рулонной ленточно-винтовой насадки (РЛВН), по ряду своих характеристик превосходящие такую известную насадку, как *Sulzer Mellapak 750.CY* [4].

Основными характеристиками любой насадки, определяющими ее эффективность, являются следующие величины.

1) Высота эквивалентная теоретической ступени разделения (ВЭТС) h , м – высота, равная высоте участка колонны, на которой при бинарной ректификации достигается полное термодинамическое равновесие между паром и жидкостью в выходящих с этого участка потоках. Так как в итоге ВЭТС определяет высоту колонны, то ее значение при заданных условиях разделения должно быть по возможности меньшим.

2) Пропускная способность $L^*(\max)$, кг/(м²·с) – максимальное значение потока жидкости на единицу сечения колонны (удельной нагрузки, или плотности орошения), при котором сохраняется пленочный режим движения жидкости по насадке. При дальнейшем увеличении плотности орошения происходит инверсия фаз: жидкость становится непрерывной, а пар, проходящий вверх в виде одиночных пузырей – дисперсной фазой. Во избежание этого явления, резко ухудшающего массообмен, рабочую удельную нагрузку обычно выбирают равной около 80 % от пропускной способности насадки. Пропускная способность определяет сечение (диаметр) колонны и поэтому должна иметь как можно большее значение.

3) (Удельное) гидравлическое сопротивление Δp , Па/м – падение давления на единице высоты насадочного слоя, определяющееся, с одной стороны, удельной нагрузкой, а с другой – свойствами насадки. Гидравлическое сопротивление любой насадки растет особенно сильно при приближении удельной нагрузки к максимальной. Поскольку давление (температура кипения) в нижней части колонны будет тем выше, чем выше гидравлическое сопротивление,

последнее должно быть по возможности меньшим. В противном случае, как уже говорилось в предыдущем разделе, повышение температуры кипения может стать причиной снижения общей эффективности разделения, так как коэффициент разделения обычно снижается с ростом температуры (рис. 1).

4) Коэффициент масштабного перехода (КМП) – относительное увеличение ВЭТС при увеличении диаметра колонны, связанное, как правило, с поперечной неравномерностью в структуре потоков жидкости и пара, движущихся навстречу друг другу. Поскольку теоретический прогноз этой величины в подавляющем большинстве случаев оказывается неудовлетворительным, считают, что $KMP \approx 1$, определенный по данным лабораторных исследований, есть критерий пригодности насадки для использования ее в колоннах промышленного масштаба.

Исходя из указанных характеристик насадок, оказывается возможным составить критерии, определяющие целесообразность их использования при решении той или иной задачи разделения. При моделировании процессов разделения в качестве оптимизируемой величины обычно выступает объем разделительной аппаратуры, определяющий такие технико-экономические показатели, как капитальные затраты на строительство каскада, его энергоемкость (интегральные потери тепла), а также общее количество перерабатываемого вещества внутри каскада. Последний показатель имеет существенное значение, если имеются ограничения по доступному количеству вещества или оно представляет опасность при обращении с ним (пожароопасность, взрывоопасность, радиоактивность и т. п.).

Минимум объема V разделительной части каскада (насадочного слоя) соответствует минимальному суммарному объему всех его ТСР. Поэтому наиболее общий критерий оптимизации (NHS-критерий)

$$V \propto NHS = \sum_{n=1}^N h_n(L_n^*, p_n) / L_n^*(p_n) \rightarrow \min \quad (11)$$

зависит не только от ВЭТС и пропускной способности насадки, но и от необходимого количества ТСР (N), а также гидродинамических (L^*) и термодинамических (p) условий, реализуемых на каждой n -той ТСР.

Нахождение NHS-критерия, по существу, означает проведение полного расчета разделительного каскада с многочисленным перебором вариантов различных насадок, а также величин отбора, паровых и флегмовых чисел, числа колонн в каскаде и т. п. Поэтому при проведении оценочных расчетов на начальном этапе более удобно использовать частный HS-критерий,

$$HS = h(L^*, p) / L^*(p) \rightarrow \min, \quad (12)$$

служащий характеристикой только насадки (при некотором выбранном среднем давлении p) и не включающий параметры стоящей задачи разделения. Отметим, что из размерности обоих критериев ($m^3/(кг \cdot с)$) непосредственно вытекает их физический смысл: это объем ТСР (HS-критерий) или каскада (NHS-критерий), отнесенный к единице производительности. Таким образом, на первом этапе целесообразно свести к минимуму объем некоторой средней ТСР, после чего уже на втором этапе решить задачу минимизации разделительной части колонны (колонн) с выбранной насадкой.

В настоящей работе, посвященной математическому моделированию каскада детритизации, рассматривались два следующих типа насадок.

1. СПН (сталь 12Х18Н10Т) с различными размерами элемента (высота (z) \times сторона основания (z) \times толщина проволоки): от $1,5 \times 1,5 \times 0,2$ до $10 \times 10 \times 0,5$ мм. Высота слоя насадки в колонне составляла 1 м.

2. РЛВН (сталь 12Х18Н10Т, сетка с ячейкой 0,76 мм из проволоки диаметром 0,27 мм) из гофрированных лент с зазором между витками 3 мм. Высота гофра 5 мм, угол наклона гофра 45° . Высота секции насадки 1 м.

Основные характеристики указанных насадок были определены экспериментально на созданном в РХТУ им. Д. И. Менделеева испытательном стенде, подробное описание которого можно найти в работе [4]. Ниже приводятся некоторые результаты, использованные при моделировании.

Зависимость ВЭТС (см) для СПН от размера элемента z (мм) при $p = 0,2$ атм и $L^* = 0,8 \cdot L^*(\max)$ представлена на рис. 3.



Рис. 3. Зависимость ВЭТС от размера элемента СПН

Эта зависимость достаточно точно описывается уравнением

$$h = 0,0578z^2 + 0,8416z + 0,0003. \quad (13)$$

Согласно экспериментальным данным, приведенным в [1], увеличение давления в колонне ректификации воды от 0,2 до 1 атм приводит к небольшому уменьшению ВЭТС для СПН: на 10–15 %, что объясняется температурным снижением диффузионного сопротивления в жидкой фазе, лимитирующего массообмен. Зависимость ВЭТС от удельной нагрузки также слабая: $h \sim L^m$, где $m = 0,15-0,2$. При увеличении диаметра колонны от 60 до 120 мм наблюдается очень незначительный рост ВЭТС для насадок одного и того же размера и изготовленных одним и тем же способом. Таким образом, при условии постоянства способа обработки поверхности и упаковки насадки КМП для СПН близок к единице.

Пропускная способность СПН как функция базового размера элемента насадки удовлетворительно описывается уравнением

$$L^*(\max) = 1500z^{0,8} (\rho_y)^{0,6/z^{0,25}}, \quad (14)$$

где ρ_y – плотность водяного пара, $\text{кг}/\text{м}^3$. Гидравлическое сопротивление (Па) как функция геометрических параметров насадки и удельной нагрузки ($\text{кг}/(\text{м}^2 \cdot \text{с})$) выглядит следующим образом [1]:

$$\Delta p = \frac{26a(L^*)^2}{\left(\frac{4V_r L^*}{a\mu_y}\right)^{0,77} \rho_y (V_r - \Delta H)^3}, \quad (15)$$

где a – удельная поверхность насадки ($\text{м}^2/\text{м}^3$), V_r – доля свободного объема, μ_y – вязкость водяного пара ($\text{Па} \cdot \text{с}$), ΔH – доля объема насадочного слоя, занимаемого жидкостью (задержка). Последняя величина мало меняется с ростом нагрузки, пока L^* все еще меньше, чем $L^*(\max)$, и составляет в среднем около 6 % свободного объема для СПН с разными размерами элемента. На рис. 4–5 приведены зависимости гидравлического сопротивления СПН $2 \times 2 \times 0,2$ и $8 \times 8 \times 0,5$ мм от нагрузки, рассчитанные согласно (15).

Можно отметить, что гидравлическое сопротивление почти линейно снижается с ростом давления (обратная пропорциональность ρ_y), что само по себе уже обуславливает существование оптимальной температуры проведения процесса разделения. При одинаковой удельной нагрузке сопротивление мелкой насадки, как это следует и из общих соображений, значительно выше. Однако для значений рабочей удельной нагрузки, равных, например, $0,8 L^*(\max)$, сопротивление крупной СПН оказывается выше, что, как будет показано далее, ограничивает ее использование при ректификации воды с целью разделения изотопов.

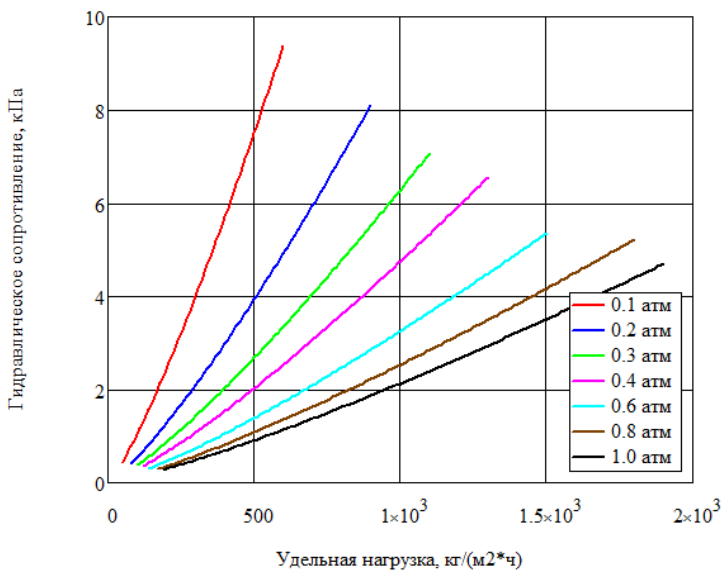


Рис. 4. Гидравлическое сопротивление СПН $2 \times 2 \times 0,2$ мм

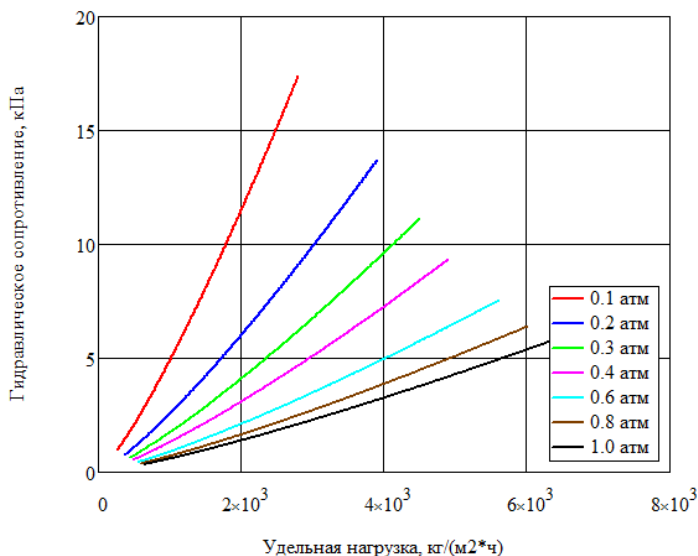


Рис. 5. Гидравлическое сопротивление СПН 8x8x0,5 мм

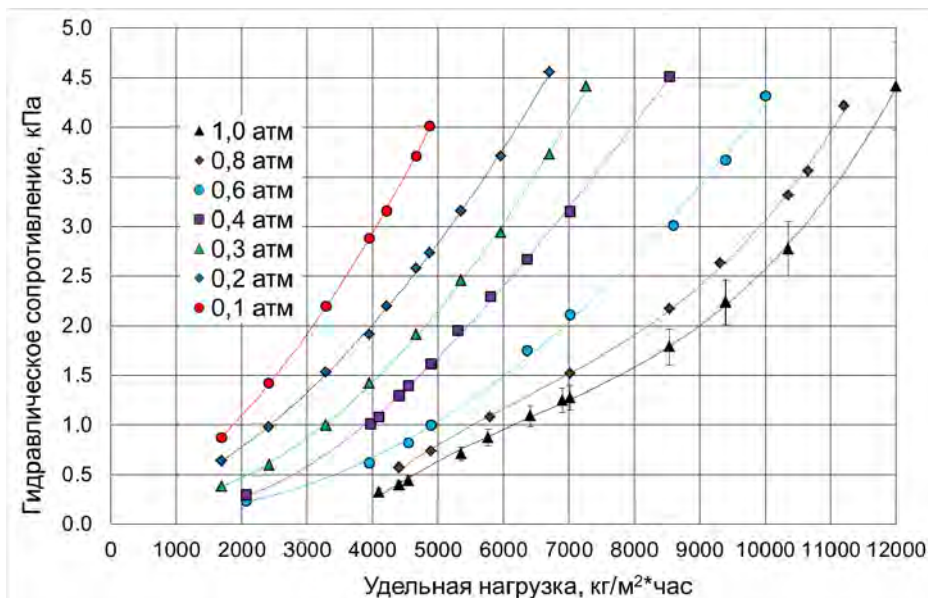


Рис. 6. Гидравлическое сопротивление РЛВН

Перейдем к свойствам РЛВН. Экспериментальное значение ВЭТС для описанного выше образца этой насадки составляет около 18 см при давлении 0,2 атм. Как показано в работе [4], влияние удельной нагрузки на ВЭТС практически отсутствует. При испытаниях РЛВН не было также отмечено влияния давления на величину ВЭТС, что, вероятнее всего, объясняется отсутствием лимитирующего диффузионного сопротивления со стороны обеих фаз: увеличение коэффициента диффузии в жидкости с ростом температуры компенси-

руется уменьшением этой величины в паровой фазе. Наконец, КМП для РЛВН, как и в случае СПН, оказывается близким к единице.

На рис. 6 показана зависимость гидравлического сопротивления РЛВН от удельной нагрузки и давления. Сравнение с данными, представленными на рис. 4–5, показывает, что даже при значительных нагрузках, а также в области малых давлений пара гидравлическое сопротивление этой насадки незначительно: не более 5 кПа/м. При этом диапазон рабочих нагрузок оказывается значительно более широким, чем в случае СПН (рис. 7).

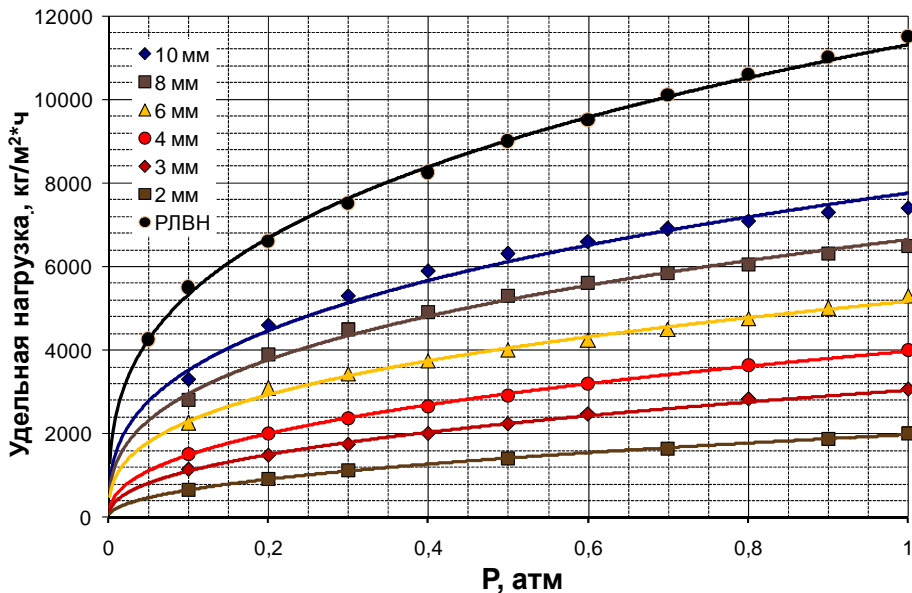


Рис. 7. Пропускная способность СПН (указана величина z) и РЛВН

Пропускная способность РЛВН ($\text{кг}/(\text{м}^2 \cdot \text{с})$) описывается степенной зависимостью от давления (атм)

$$L^*(\text{max}) = 3,143 p^{0,326}. \quad (16)$$

Аппроксимация зависимости гидравлического сопротивления РЛВН от давления и удельной нагрузки уравнением, подобным (15), дает следующее:

$$\Delta p = \frac{6,25a(L^*)^2}{\left(\frac{4V_r L^*}{a\mu_y}\right)^{0,5} \rho_y^{0,6} (V_r - \Delta H)^3}, \quad (17)$$

где (по данным измерений и расчетов) удельная поверхность РЛВН составляет $1055 \text{ м}^2/\text{м}^3$, доля свободного объема равна 93 %, а задержка жидкости на насадке 6 %.

Так как уравнение (15) было получено при рассмотрении сопротивления зернистого слоя, перенос его на РЛВН, очень мало напоминающую какой-либо зернистый слой, привел к необходимости замены первой степени плот-

ности пара, стоящей в знаменателе, на дробную. Тем не менее, уравнение (17) достаточно хорошо работает в области давлений до 0,5 атм, а при любых давлениях – в области нагрузок более 70 % от $L^*(\max)$. При более высоких давлениях в области малых нагрузок наблюдается *завышение* расчетных значений гидравлического сопротивления.

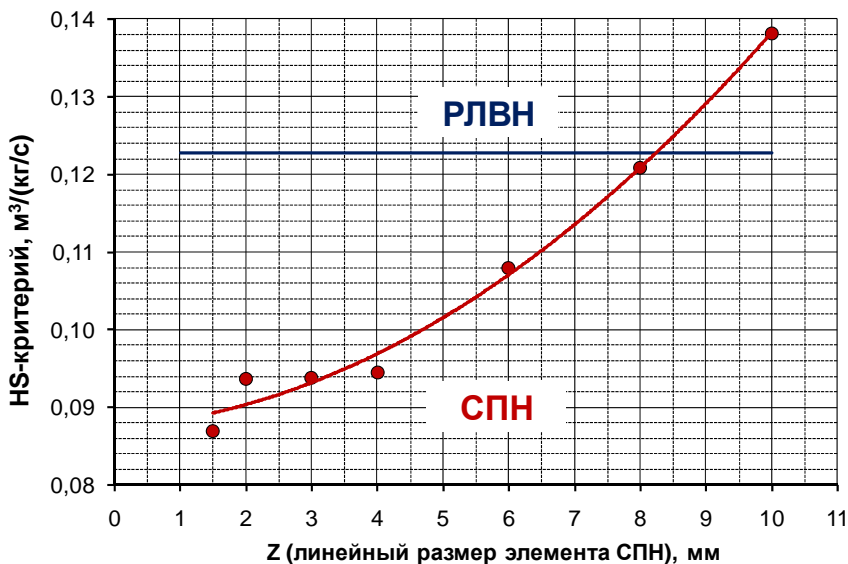


Рис. 8. HS-критерий для СПН и РЛВН при 0,2 атм

Сравнение СПН и РЛВН по HS-критерию (при $p = 0,2$ атм) представлено на рис. 8. На первый взгляд, можно предположить, что использование мелких СПН (с размером элемента менее 8 мм) будет приводить к заметному выигрышу при минимизации объема разделительной части каскада. Однако, как будет показано в следующем разделе, низкое гидравлическое сопротивление РЛВН при гораздо более высокой пропускной способности делает ее незаменимой для использования на первых ступенях каскада с сокращением потоков.

Результаты оптимизации разделительного каскада

С учетом гидродинамических и массообменных характеристик насадок, программа расчета разделительного каскада методом «от ступени к ступени», основной алгоритм которой описан выше, была модифицирована следующим образом. На этапе Г расчета каскадной схемы осуществляется выбор насадки для каждой колонны и задается величина удельной нагрузки (не превышающая 80 % от рассчитанной по формулам (14) или (16)), а также давление в голове каждой колонны (ТСР под номером $n = 1$). Расчет давления на каждой следующей ТСР ($n > 1$) с учетом ВЭТС (м),

$$p_{n+1} = p_n + h \cdot \Delta p_n, \tag{18}$$

проводится с использованием формул (15) или (17). Расчет концентраций и потоков на этапе Д проводится с использованием зависимости коэффициента

разделения от температуры, определяющейся давлением на каждой ТСР. Добавление нескольких ТСР к голове первой ступени каскада проводится в предположении постоянного давления на них, равного p_1 . После этого осуществляется пересчет первой колонны с учетом реального перепада давления. Если после пересчета ЧТСР в первой колонне снова увеличивается, пересчет производится еще раз, и так далее до тех пор, пока ЧТСР не перестанет меняться. В связи с этим при построении оптимальной каскадной схемы целесообразно, по крайней мере, на этапе предварительного расчета выбрать для первой ступени каскада наименьшее ЧТСР.

Блок-схема модифицированного алгоритма расчета каскада изображена на рис. 9. На заключительном этапе расчета определяются высоты и диаметры колонн. Минимизация объема разделительной части каскада путем изменения величины отбора, схемы разбиения и сокращения потоков производится по NHS-критерию (11) в результате анализа данных предыдущего расчета.

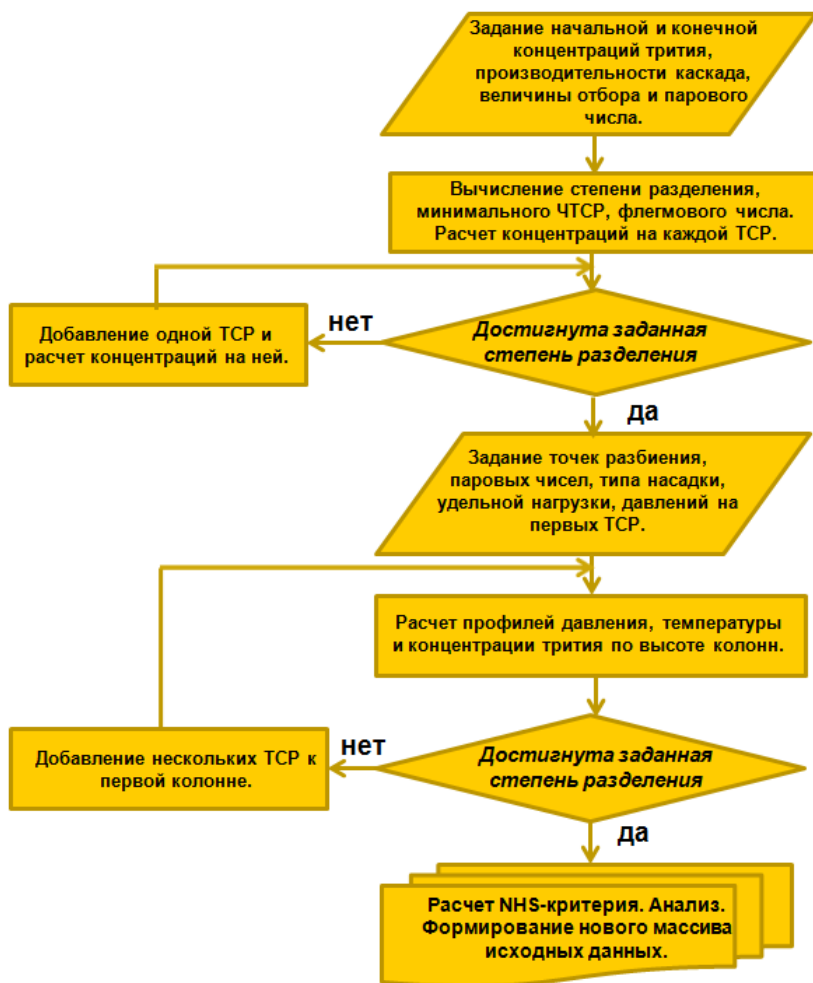


Рис. 9. Блок-схема алгоритма расчета каскада детритизации

В настоящем разделе мы приводим результаты математического моделирования каскада детритизации замедлителя тяжеловодного реактора. Результатом работы каскада должно стать поддержание стационарной концентрации трития на уровне 5 Ки/кг путем выведения его избытка, образующегося со скоростью 220 кКи/год. В качестве других условий было принято следующее. А) Концентрация трития в D_2O , отправляемой на длительное хранение или конечное концентрирование, составляет 1000 Ки/кг. Б) Имеются ограничения по высоте помещения для установки разделительной аппаратуры: общая высота колонн, включая узлы обращения потоков (кипятильник, дефлегматор) и распределители орошения, не должна превышать 40 м. В связи с этим максимальная возможная высота разделительной части колонны была принята равной 30 м.

Схема каскада детритизации (итог расчетов) представлена на рис. 10. Каскад состоит из пяти последовательно соединенных колонн (К1-К5), каждая из которых имеет верхний и нижний узлы обращения потоков. Питающий поток (40 кг/ч D_2O с концентрацией трития 5 Ки/кг) подается на 20-ю теоретическую ступень разделения колонны К1. При переходе от К1 к К2, от К2 к К3 и т. д. происходит сокращение внутренних потоков жидкости L . Головные части колонн присоединены к общему вакуумному коллектору. Часть кубовой жидкости из кипятильника колонны К1 направляется на орошение верхней ТСР колонны К2. В то же время конденсат из дефлегматора колонны К2 направляется на нижнюю ТСР колонны К1. Аналогичным образом осуществляется связь между колоннами К2 и К3, и т. д. Отбор выводимой из обращения D_2O производится в виде кубовой жидкости колонны К5. В реакторную установку возвращается часть флегмы из конденсатора колонны К1.

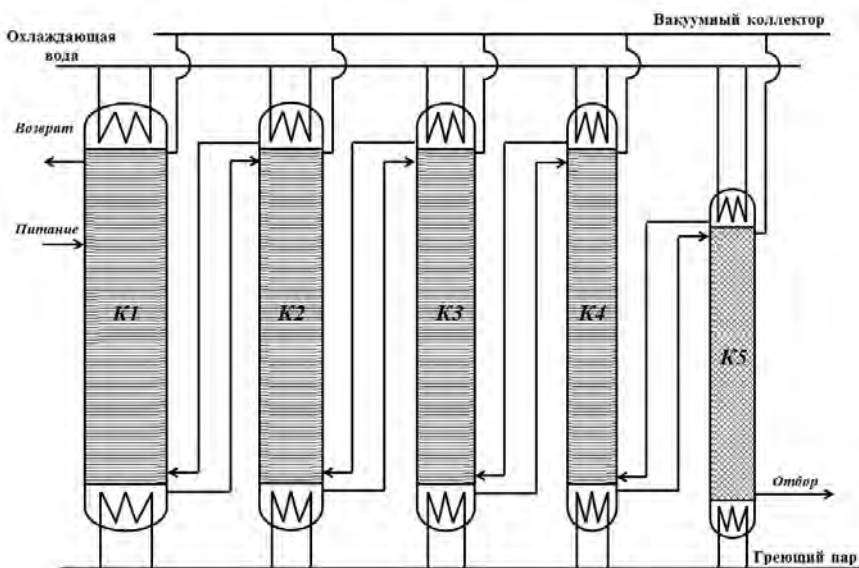


Рис. 10. Принципиальная схема каскада детритизации

Основные эксплуатационные характеристики колонн каскада, определенные по результатам расчета, представлены в следующей таблице.

Колонна	К1	К2	К3	К4	К5
ЧТСР	165	165	165	165	500
Насадка	РЛВН	РЛВН	РЛВН	РЛВН	СПН 4×4×0,25
Высота разделительной части, м	30	30	30	30	22
Поток жидкости по колонне, кг/ч	1351,3	753,1	491,8	242,9	62,3
Соотношение потоков жидкость/пар	0,97*** 1,00004	1,00006	1,0001	1,00025	1,00037
Диаметр, см	50	35	30	24	20
Межколонный поток, кг/ч*	-	400	300	200	59,5
Концентрация в конденсаторе, Ки/кг**	4,418	8,226	12,830	24,944	56,634
Концентрация в кубе, Ки/кг**	8,284	12,907	25,058	57,005	1005,771
Давление в верхней части, кПа	25	25	25	25	25
Давление в нижней части, кПа	45,2	45,2	45,2	45,2	55,8

*Из предыдущей колонны в данную

**Жидкая фаза

***В исчерпывающей части

Приведенные результаты оптимизации нуждаются в следующих комментариях. Во-первых, предлагаемая схема разделения не является классической «открытой» схемой [1], несмотря на то, что исчерпывающая часть в первой колонне содержит всего 20 ТСР.

Во-вторых, как было отмечено в ходе расчетов, использование СПН для заполнения колонн каскада приводит к необходимости иметь последовательность из двадцати колонн относительно малой (до 7–8 м) высоты и большего (до 1,5 м) диаметра. Нетрудно установить, что данный результат обусловлен малой эффективностью нижних ТСР высоких колонн с большим гидравлическим сопротивлением и малой пропускной способностью СПН. Хотя полученный результат и кажется приемлемым с точки зрения общего объема аппаратуры, однако засыпка СПН колонн такого большого диаметра резко повышает вероятность выйти за пределы области КМП ≈ 1 и на практике потерять очень большое число ТСР. Разбиение же на параллельные колонны меньшего диаметра увеличивает не только капитальные, но и эксплуатационные затраты и сводит, таким образом, на нет весь смысл оптимизации.

В результате оказывается, что заполнение колонн РЛВН позволяет минимизировать объем разделительной аппаратуры при сохранении небольшого числа колонн. Лишь на последней, пятой ступени каскада использование СПН 4×4×0,25 мм оправдано, так как сокращение потоков, имевшее место на предыдущих ступенях, уже достаточно велико.

В заключение остановимся на материальных затратах, с которыми сопряжена очистка тяжеловодного замедлителя реактора от трития методом ректификации воды. Помимо капитальных затрат, минимизированных выбором оптимальной схемы разделения, а также сравнительно недорогой регулярной

насадки отечественного производства (РЛВН, СПН), существенную статью расходов представляет потребление тепловой энергии греющего пара, достигающее (с учетом потерь тепла) ~1 МВт. Однако использование вторичного реакторного тепла, а также высокоэффективных холодильных агрегатов – чиллеров [4], с помощью которых может быть реализована схема с рекуперацией тепла, позволяют исключить энергоемкость процесса ректификации D₂O из числа критических показателей. В целом же по предварительным оценкам проведение детритизации методом ректификации воды требует заметно меньших капитальных и эксплуатационных затрат, чем проведение во многом аналогичного процесса депротизации.

Выводы

В РХТУ им. Д. И. Менделеева создан экспериментальный стенд для изучения гидродинамических и массообменных характеристик насадочных контактных устройств, использующихся при разделении изотопов методом ректификации воды. Экспериментально показано, что разработанная в РХТУ им. Д. И. Менделеева рулонная ленточно-винтовая насадка (РЛВН) обладает всеми необходимыми свойствами высокоэффективных регулярных насадок. В частности, влияние давления и нагрузки на величину ВЭТС у РЛВН отсутствует; коэффициент масштабного перехода близок к 1; гидравлическое сопротивление при высокой пропускной способности – наиболее низкое для насадок данного класса.

Разработан алгоритм и написан программный код для проведения расчетов каскада колонн детритизации тяжелой воды, учитывающий характеристики насадки и связанные с ними изменения термодинамических и гидравлических параметров при переходе от одной ТСР к другой. Проведена оптимизация и выданы предварительные технологические параметры для проектирования каскада детритизации тяжеловодного замедлителя ядерного реактора для поддержания стационарной концентрации трития на уровне 5 Ки/кг. Как показывают результаты расчета, использование РЛВН в колоннах позволяет снизить объем разделительного оборудования при сохранении производительности каскада.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки в рамках соглашения о предоставлении субсидии № 14.580.21.0001 от 01.12.2014 г. «Разработка и создание эффективных аппаратов-разделителей для получения кондиционной (с концентрацией 99,8 %) тяжелой воды на ФГУП «ПО «Маяк» (идентификатор проекта RFMEF158014X0001).

Список литературы

1. Андреев Б. М., Зельвенский Я. Д., Кательников С. Г. Тяжелые изотопы водорода в ядерной технике. М.: ИздАт. 2000, 344 с.
2. Chan T. C., Alexander Van Hook W. Vapor Pressure Isotope Effects in Aqueous Systems. VIII. J. Solution Chem., Vol. 5, p. 107 (1976).

3. Alexander Van Hook W. Vapor Pressures of Isotopic Waters and Ices. J. Phys. Chem., Vol. 15, p. 1234 (1967).

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 IHISM'15 JUNIOR: Сб. докл. Десятой международной школы молодых ученых и специалистов им. А. А. Курдюмова / Под ред. А. А. Юхимчука. – Саров, ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», 2016. С. 223–238.