

**СИСТЕМА КАТАЛИТИЧЕСКОЙ РЕКОМБИНАЦИИ
ДЛЯ РАСТВОРНОГО ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОГО РЕАКТОРА:
УСТРОЙСТВО, ТЕПЛОГИДРАВЛИЧЕСКИЕ ПАРАМЕТРЫ,
ВОПРОСЫ ОБЕСПЕЧЕНИЯ ВЗРЫВОБЕЗОПАСНОСТИ**

*Дягель Антон Русланович, Пикулев Алексей Александрович,
Волгутов Валерий Юрьевич, Шлячков Николай Александрович,
Москвин Николай Иванович, Глухов Леонид Юрьевич, Турутин Сергей Львович,
Юнин Денис Анатольевич (otd4@expd.vniief.ru), Кубасов Антон Александрович,
Шуркаев Александр Васильевич, Табаков Сергей Олегович, Авдеев Артем Дмитриевич,
Сахарова Ольга Сергеевна, Корнилова Татьяна Сергеевна*

ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», г. Саров Нижегородской обл.

В докладе представлена схема системы каталитической рекомбинации (СКР) и сформулированы технические требования, обеспечивающие ее эффективную и безаварийную работу. Дано описание полномасштабного макета СКР, а также схемы контроля и управления макетом. Представлена конструкция каталитического блока, позволяющая применять различные катализаторы, как промышленные, так и собственного изготовления ВНИИЭФ. Приведены результаты расчета разогрева парогазовой смеси и конструкций блока при работе СКР.

Проанализированы необходимые условия обеспечения взрывобезопасности СКР, рассмотрены возможные сценарии аварий, связанных с СКР, представлены результаты расчетов концентрации компонент газовой смеси в надтопливном пространстве корпуса реактора для выявления «застойных» областей с повышенной концентрацией водорода.

Ключевые слова: исследовательский ядерный реактор, радиолиз, гремучий газ, катализатор, рекомбинатор, система каталитической рекомбинации, теплогидравлический расчет.

**CATALYTIC RECOMBINATION SYSTEM
FOR SOLUTION RESEARCH REACTOR: LAYOUT,
THERMAL HYDRAULIC PARAMETERS,
ISSUES OF NON-EXPLOSIVENESS SUPPLY**

*Dyagel Anton Ruslanovich, Pikulev Alexey Alexandrovich, Volgutov Valeriy Yurievich,
Shlyachkov Nikolay Alexandrovich, Moskvina Nikolay Ivanovich, Glukhov Leonid Yurievich,
Turutin Sergey Lvovich, Yunin Denis Anatolievich (otd4@expd.vniief.ru),
Kubasov Anton Alexandrovich, Shurkaev Alexandr Vasilievich, Tabakov Sergey Olegovich,
Avdeev Artem Dmitrievich, Sakharova Olga Sergeevna, Kornilova Tatyana Sergeevna*

FSUE «RFNC-VNIIEF», Sarov Nizhny Novgorod region

The paper presents a layout of catalytic recombination system (CRS) and formulates standards, providing its efficient and trouble-free operation. A full-scale mock-up of CRS, as well as mock-up checking and control circuits are described. Presented is a structure of catalytic unit, allowing application of various catalysts, both industrial as well as VNIIEF's domestic ones. Results of calculation of steam-gas mixture heat-up for unit structures during CRS operation are reported.

Necessary conditions for supplying CRS non-explosiveness are analyzed, possible accident scenarios, related to CRS are considered. Here are presented calculation results of concentration of gas mixture components in the reactor vessel above-fuel space to reveal «stagnant» areas with enhanced hydrogen concentration.

Key words: research nuclear reactor, radiolysis, detonating gas, catalyst, combiner, catalytic recombination system, thermal hydraulic calculation.

Введение

В данный момент в РФЯЦ-ВНИИЭФ для проведения опытов по воздействию на объекты исследований мощного нейтронного и гамма излучения одним из наиболее востребованных исследовательских ядерных реакторов (ИЯР) является ВИР-2М [1].

ВИР-2М является растворным реактором, в качестве топлива используется уранил сульфат UO_2SO_4 , растворенный в воде. Работа реактора осуществляется в двух режимах – импульсном и статическом. В первом случае создается импульс энергоснабжением до 60 МДж и полушириной от 2,7 мс за счет быстрого извлечения поглощающих стержней из активной зоны пневматическими приводами, во втором осуществляется работа реактора на постоянной мощности путем медленного извлечения поглощающих стержней электромеханическими приводами, таким образом компенсируются температурный и пустотный эффекты реактивности.

Во время работы реактора, что в импульсном, что в статическом режимах под воздействием осколков деления происходит радиолитическое разложение воды, т. е. ее разложение на радиолитический водород и кислород [2]. Образующаяся гремучая смесь проходит процедуру утилизации в системе газовой контура путем искрового поджига.

Однако при длительной работе в статическом режиме для поддержания давления в надтопливном пространстве в допустимых пределах требуется неоднократное сжигание гремучего газа. Побочным же эффектом такого метода является резкое падение мощности реактора после сжигания радиолитических газов, вызванное вскипанием топливного раствора вследствие падения давления, что переводит реактор в подкритическое состояние.

Устранить нежелательные колебания мощности и, как следствие, повысить качество проводимых на установке экспериментов может внедрение СКР водорода, которая обеспечивает непрерывную утилизацию радиолитических газов. Примером такого устройства может служить разработанная для реактора Аргус в НИЦ «Курчатовский институт» система пассивной каталитической рекомбинации водорода, основанная на естественной циркуляции парогазовой смеси. Необходимый напор создается имеющимися в схеме нагревателем и конденсатором. Похожая система также располагалась на исследовательском реакторе SUPO, разработанном в США [3].

Однако следует отметить, что такая система не лишена ряда недостатков, например, невозможность использования катализатора со средним и высоким газодинамическим сопротивлением. Решить данные проблемы может создание СКР с принудительной циркуляцией парогазовой смеси.

Параметры работы системы каталитической рекомбинации

Требования к производительности СКР ИЯР ВИР-3 определяются исходя из параметров работы ИЯР ВИР-3 в длительном статическом режиме, где максимальная мощность составляет 20 кВт.

Максимальная скорость наработки гремучего газа в реакторе ВИР-3 составляет 5,4 л/мин, в том числе: водород – 3,6 л/мин; кислород – 1,8 л/мин.

Основные параметры СКР ИЯР ВИР-3:

- производительность СКР по водороду – 5,4 л/мин (с коэффициентом запаса 1,5);
- расход парогазовой смеси по контуру СКР – не менее $20 \text{ м}^3/\text{ч}$;
- рабочее давление в контуре СКР – не выше 0,4 МПа;
- концентрация водорода в контуре СКР – не более 3 % объемных;
- максимальная температура газовой среды – не выше $250 \text{ }^\circ\text{C}$;
- максимальная температура катализатора – не выше $400 \text{ }^\circ\text{C}$.

СКР должна выдерживать внутреннее избыточное давление не менее 2 МПа.

Теплогидравлические расчеты, расчет концентрации водорода

Результаты расчетов СКР (перепад давления, максимальная температура катализатора и концентрация водорода в корпусе реактора) представлены на рис. 1.

Из рис. 1 видно, что при работе реактора на мощности 30 кВт (20 кВт с коэффициентом запаса 1,5) СКР обеспечивает в надтопливном пространстве и в контуре СКР концентрацию водорода ниже 3 % объемных.

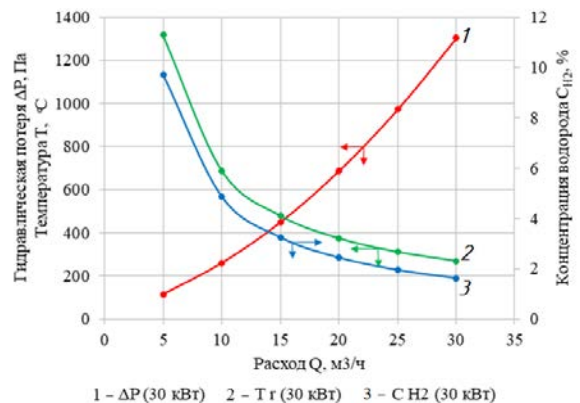


Рис. 1. Зависимость гидравлических потерь ΔP , температуры катализатора T , и концентрации водорода C_{H_2} от расхода прокачного устройства (мощность ИЯР 30 кВт)

3-D расчеты полей скоростей продемонстрировали эффективную вентиляцию корпуса АЗ, отсутствие областей, где возможно локальное скопление радиолитического газа (рис. 2). При этом установившаяся объемная концентрация водорода ниже предела взрывобезопасности (рис. 3).

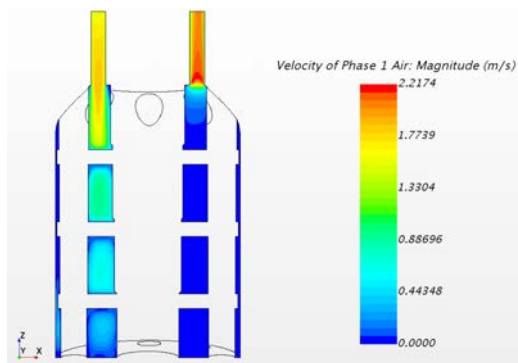


Рис. 2. Установившееся поле расчетных значений амплитуды скорости газовой смеси в корпусе АЗ

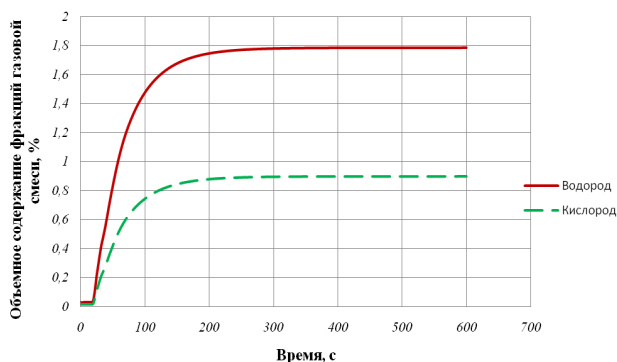


Рис. 3. Изменение расчетных значений объемных концентраций водорода и кислорода во входной патрубке СКР во времени

Испытания ресурсных показателей катализаторов

В качестве катализатора реакции окисления водорода предложено использовать керамику (оксид алюминия) с нанесенным палладиевым покрытием.

Проводились исследования влияния кислотности имитатора топливного раствора (водный раствор серной кислоты) и каталитических ядов (изотопы йода) на ресурсные параметры промышленного катализатора К-ПГ.

Проведенные расчетные оценки показали, что наибольшая суммарная масса изотопов йода в топливном растворе ИЯР ВИР-3 за 30 лет его эксплуатации при энерговыделении 900 ГДж составит $5,83 \cdot 10^{-5}$ кг, т. е. не более ~ 60 мг. При проведении экспериментов суммарное содержание йода в имитаторе топливного раствора макета СКР составляло 65 мг.

Необходимо отметить, что концентрация йода в имитаторе топливного раствора (32,5 мг/л) почти в 100 раз превышала его концентрацию в топливном растворе ИЯР ВИР-3 (максимальная концентрация

йода 0,37 мг/л). Динамика изменения степени каталитической конверсии водорода в зависимости от кислотности раствора (рН) и наличия каталитического яда (растворы I_2 и KI) представлена на рис. 4.

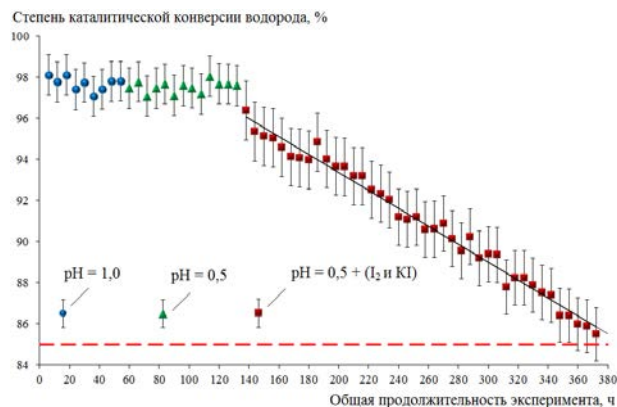


Рис. 4. Динамика изменения степени каталитической конверсии водорода в каталитическом блоке с катализатором К-ПГ

Результаты проведенных экспериментов показали, что каталитический блок с катализатором К-ПГ массой 2500 г в составе СКР будет способен осуществлять каталитическое окисление водорода в течение 5–6 лет интенсивной эксплуатации ИЯР ВИР-3 (с учетом 100-кратного превышения концентрации йода в имитаторе топливного раствора по сравнению с максимальной концентрацией йода в топливном растворе).

Макетирование СКР

Для отработки технических решений разработан полномасштабный макет СКР ИЯР ВИР-3. Макет СКР моделирует работу СКР ИЯР ВИР-3 при работе ИЯР в статическом режиме на мощности до 20 кВт.

Макет СКР (рис. 5) состоит из имитатора корпуса реактора 1, каталитического блока 2, двух конденсаторов (холодильников) 3, воздушного компрессора 4 и, необозначенных на рис. 1, регуляторов расхода газов (РРГ-12), измерителя расхода газов (MASS-VIEW MV-306) с ручным клапаном, датчиками водорода, температуры и давления, устройствами отбора проб газовой среды, а также автоматизированной системы регистрации данных и управления.

Работа макета СКР состоит из последовательности следующих стадий (принципиальная схема представлена на рис. 6):

- закачка водорода и кислорода из газовых баллонов в макет реактора;
- накопление водородно-кислородной смеси в газовой полости макета реактора;
- принудительная продувка парогазовой смеси, обеспечиваемая газодувкой из газовой полости макета реактора во входной патрубке СКР;
- охлаждение парогазовой смеси в холодильнике с целью снижения влагосодержания и йода в прокачиваемой парогазовой смеси;

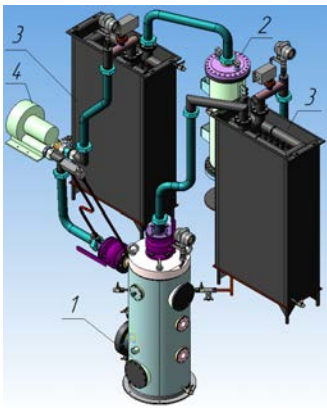


Рис. 5. Внешний вид полномасштабного макета СКР: 1 – имитатор реактора, 2 – каталитический блок, 3 – холодильник, 4 – воздушный компрессор

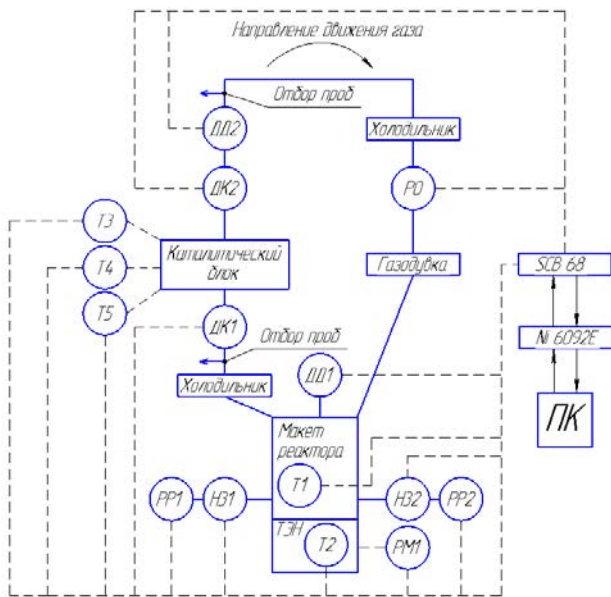


Рис. 6. Принципиальная схема макета СКР: измерительное оборудование: Т1, Т2, Т3, Т4, Т5 – термопары, ДД1, ДД2 – датчики давления, РО – ротаметр, ДК1, ДК2 – датчики концентрации водорода; управляющее оборудование: PP1, PP2 – регуляторы расхода газа, PM1 – регулятор мощности ТЭНа, H31, H32 – нормально закрытые клапаны; блок контроля: SCB68 – блок разъемов, NI6092E – измерительная плата, ПК – персональный компьютер

- поступление парогазовой смеси с пониженным влагосодержанием в каталитический блок с целью регенерации радиолитических водорода и кислорода;
- реакция взаимодействия водорода с кислородом на каталитических элементах с образованием на выходе парогазовой смеси с низким содержанием водорода;
- охлаждение парогазовой воздушной смеси в радиаторе с целью повторного снижения влагосодержания и конденсации паров воды;
- возвращение очищенной от радиолитического газа и охлажденной парогазовой воздушной смеси и сконденсированной воды в макет реактора.

Каталитический блок представляет собой цилиндрический металлический контейнер, внутри которого последовательно один над другим установлены три отсека. Каждый отсек представляет собой набор коаксиальных перфорированных цилиндров разного диаметра. Размер и способ перфорации обеспечивают надежное удержание гранул катализатора и свободный доступ к ним прокачиваемого газа. Диаметр гранул катализатора – не менее 1,5 мм. С торцов цилиндры прижимают две крышки с прорезями для прохода парогазовой смеси. В закрытые с торцов цилиндры засыпаются гранулы катализатора; цилиндры, открытые с торцов, предназначены для прокачки парогазовой смеси.

Общий вид каталитического блока представлен на рис. 7.

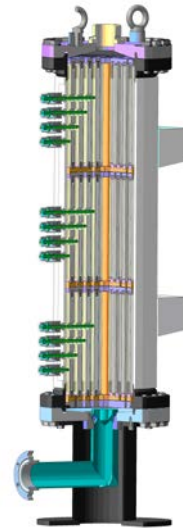


Рис. 7. Общий вид блока каталитического

Обеспечение взрывобезопасности СКР

Данная конструкция блока каталитического была подвергнута расчетному анализу разогрева парогазовоздушной смеси и конструкций самого блока при работе реактора ВИР-3 в статическом режиме с включенной системой СКР на мощности 30 кВт и расходе газо-воздушной смеси в контуре СКР, равном $18 \text{ м}^3/\text{ч}$.

Результаты расчетов показали следующее:

- 1) Основная масса водорода, поступающего в блок каталитический, окисляется путем беспламенного горения на входном участке (рис. 8);
- 2) В нижнем отсеке блока каталитического происходит основная доля тепловыделения экзотермической реакции беспламенного горения водорода. Максимальная объемная мощность тепловыделения составила $235,1 \text{ Вт}/\text{дм}^3$;
- 3) Максимальная температура парогазовой смеси и конструктивных элементов блока достигается в верхней части нижнего отсека и составляет около $316 \text{ }^\circ\text{C}$ (см. рис. 9,а и 9,б);

4) Максимальная температура в блоке каталитическом более чем на 100 °С ниже температурного предела взрывобезопасности водорода, равного 410 °С. Таким образом взрывобезопасность в блоке каталитическом обеспечивается не только относительно нижнего концентрационного предела, но и по отношению к температуре самовоспламенения водорода.

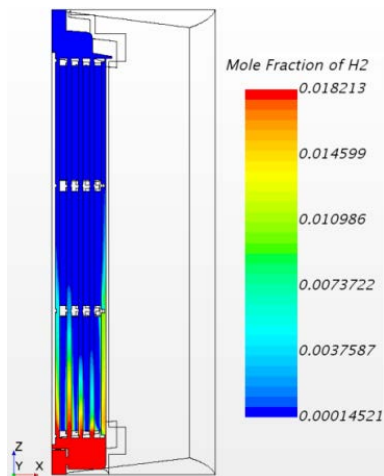


Рис. 8. Распределение водорода по блоку каталитическому

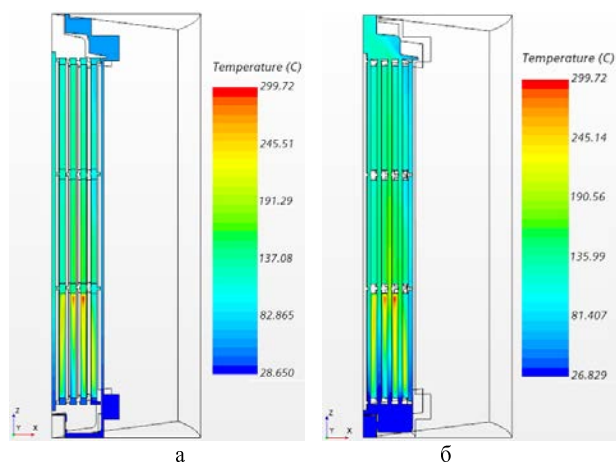


Рис. 9. Поле расчетного распределения температуры паро-газовоздушной смеси: а – в блоке каталитическом, б – поле расчетного распределения температуры конструктивных элементов блока каталитического

Сценарии развития аварий, связанных с СКР

Для обеспечения взрывобезопасности в СКР предусмотрены следующие датчики (дублированные), показания с которых выводятся в СУЗ:

- датчики концентрации водорода – на входе и выходе из каталитического блока;
- датчики температуры газа – на входе и выходе из каталитического блока;
- датчики температуры катализатора;
- датчик давления в контуре СКР.

СУЗ выдает сигнал аварийного сброса и сигнал на закрытие запорной арматуры контура СКР (отсе-

кающей СКР от корпуса АЗ) при превышении следующих аварийных уставок:

- объемная концентрация водорода в СКР – более 2,6 %;
- температура газовой среды и/или катализатора СКР – выше 400 °С;
- давление в контуре СКР – более 98 кПа.

В зависимости от отказов тех или иных датчиков или арматуры, возможны следующие проектные (ПА) и запроектные аварии (ЗПА):

ПА 1. Разгерметизация контура СКР при срабатывании аварийной защиты по давлению.

ПА 2. Самовозгорание водорода в контуре СКР при превышении пределов взрывобезопасности.

ЗПА 1. Разгерметизация контура СКР при отказе аварийной защиты по давлению.

ЗПА 2 (максимальная ЗПА). Самовозгорание водорода в контуре СКР с переходом режима горения в режим детонации (квазидетонации) при превышении объемной концентрации водорода значения 9,4 % [4].

При проведении анализа предполагалось, что давление в контуре СКР при температуре 90 °С не превысит 90 кПа, т. е. рабочее давление будет ниже атмосферного.

ПА1. Поскольку рабочее давление в контуре СКР ниже атмосферного, разгерметизация СКР приведет к повышению давления в контуре СКР. Пока давление в контуре СКР ниже атмосферного, выхода газообразных радиоактивных продуктов деления в помещения СКР не произойдет. При превышении давления 95 кПа сработает предупредительная, а при давлении выше 98 кПа – аварийная уставка. При превышении аварийной уставки СУЗ выдает сигнал аварийного сброса и сигнал на закрытие запорной арматуры СКР (отсекающей СКР от корпуса реактора). В результате аварии в помещение СКР может выйти не более 5 л (внутренний объем СКР) радиоактивного воздуха с объемной концентрацией водорода не более 2 %.

ПА2. Возможность возникновения данной аварии связана с отказом датчиков концентрации водорода или с отказом запорной арматуры СКР.

Как показывают проведенные расчеты, при сгорании (без перехода в детонационный режим) водорода с объемным содержанием водорода вплоть до 15 %, начальной температуре 300 К и начальным давлением воздуха 90 кПа, максимальное расчетное давление в контуре СКР не превысит 0,7 МПа. Поскольку СКР рассчитана на внутреннее давление 2 МПа, сгорание водорода при возникновении ПА2 не приведет к нарушению целостности и к разгерметизации (или даже к пластическим деформациям) элементов СКР (и, тем более, корпуса реактора, который рассчитан на давление не менее 15 МПа). Следовательно, согласно ГОСТ 12.1.010-76 [5], оборудование СКР является взрывобезопасным по отношению к рассмотренной проектной аварии.

Главная опасность возникновения ПА2 связана с возможностью перехода режима горения в режим

детонации (квазидетонации) – переход ПА2 в ЗПА2, когда скачок давления в ударной волне может возрасти до 38 раз [6].

ЗПА1. Данная запроектная авария аналогична ПА1 для случая дополнительного отказа датчиков давления. В этом случае в контуре СКР происходит рост давления до атмосферного, после чего начинается выход газообразных продуктов деления в помещение СКР и далее в верхний реакторный зал. Авария ЗПА1 фиксируется по повышению радиационного фона в верхнем реакторном зале. По команде оператора или при превышении аварийной уставки СУЗ (по уровню радиационной обстановки в верхнем зале) выдает сигнал аварийного сброса и сигнал на закрытие запорной арматуры СКР (отсекающей СКР от корпуса АЗ). В результате аварии в помещение СКР может выйти до 100 л (консервативная оценка) радиоактивного воздуха с объёмной концентрацией водорода не более 2 %.

ЗПА2. Возможность возникновения данной аварии связана с отказом датчиков концентрации водорода, датчика давления газовой среды в контуре СКР, а также с неправильной интерпретацией оператором СУЗ показаний датчиков температуры газовой среды и катализатора СКР.

Переход режима горения в режим детонации (квазидетонации) связан с превышением объёмной концентрации водорода значения 9,4 % [4], что более чем в 3 раза превышает аварийную уставку (2,6 %). Кроме того, рост концентрации водорода будет сопровождаться увеличением давления в контуре СКР. Например, для рабочего давления в контуре СКР, равного 90 кПа, рост объёмной концентрации водорода до 8,4 % (с учетом роста концентрации кислорода на 4,2 %) приведет к повышению давления до 101,3 кПа, что выше аварийной уставки по давлению.

В результате ЗПА 2 возможно формирование детонационных волн с возникновением импульсного давления до 3,8 МПа, что приведет к нарушению целостности и разгерметизации элементов СКР и выходу в помещение СКР (верхний реакторный зал) не более 260 л (из которых 250 л – объем надтопливного пространства корпуса АЗ) радиоактивного воздуха с объёмной концентрацией водорода около 4–5 % (при условии 50 % сгорания водорода).

ЗПА2 возникает при отказе и датчиков водорода и датчиков давления. Учитывая, что эти датчики бу-

дут продублированы, вероятность возникновения данной аварии весьма низка.

Заключение

В работе представлены текущие результаты разработки СКР, которые находятся на этапе создания полномасштабного макета, способного имитировать работу растворного ИЯР на мощности до 20 кВт, а именно:

- сформированы технические требования к СКР и макету СКР;
- разработана схема газового тракта СКР;
- проведены теплогидравлические расчеты СКР и макета СКР;
- оценено влияние каталитических ядов на степень каталитической конверсии;
- разработана конструкторская документация на изготовление полномасштабного макета СКР;
- разработана система управления макетом;
- рассмотрены вопросы обеспечения взрывобезопасности СКР и макета СКР, включая возможные сценарии аварий.

Монтаж и испытания макета запланированы на 2021–2022 гг.

Список литературы

1. Воинов А. М., Колесов В. Ф., Матвеев А. С. и др. Водный импульсный реактор ВИР-2М и его предшественники // ВАНТ. Сер. Физика ядерных реакторов. 1990. № 3. С. 3–15.
2. Бяков В. М., Ничипоров Ф. Г. Радиолит воды в ядерных реакторах. – Москва: Энергоатомиздат, 1990. С. 176.
3. King D. P., Geary J. A., Bunker M. E. and Wykoff W. R. Gas Recombination System for a Homogeneous Reactor // Nucleonic. 1953. Vol. 11, N 9.
4. Stamps D. W., Slezak S. E., Tieszen S. R. Observations of the cellular structure of fuel-air detonations // Combust. Flame. 2006. Vol. 144, P. 289–298
5. ГОСТ 12.1.010-76. Система стандартов безопасности труда. Взрывобезопасность. Общие требования. М.: ИПК «Издательство стандартов», 2003.
6. Гельфанд Б. Е., Попов О. Е., Чайванов Б. Б. Водород: параметры горения и взрыва. М.: ФИЗМАТЛИТ, 2008. С. 288.