

УДК: 66.08

DOI: 10.53403/9785951505378\_2023\_224

## **Оборудование установки изотопной очистки тяжелой воды НИЦ «Курчатовский институт» – ПИЯФ. Опыт эксплуатации**

**С. Д. Бондаренко, И. А. Алексеев, Т. В. Васянина,  
О. А. Федорченко**

НИЦ «Курчатовский институт» – ПИЯФ, Гатчина, Ленинградская обл.

bondarenko\_sd@npri.nrcki.ru

*В работе рассматривается развитие опытно-промышленной установки ЭВИО, этапы модернизации и причины для модификации ее технологической схемы и оборудования.*

*Установка ЭВИО работает в Петербургском институте ядерной физики им. Б. П. Константинова с 1995 г. и использует СЕСЕ-технологию, основанную на процессах электролиза и каталитического изотопного обмена в системе «вода – водород». В состав установки входит электролизер ФС-525, колонны каталитического изотопного обмена, разработанные и изготовленные в НИЦ «Курчатовский институт» – ПИЯФ. Массообменная часть колонн состоит из катализатора и насадки. На установке ЭВИО проводятся НИР и опытная наработка тяжелой воды из тяжеловодного разбавленного сырья, в том числе с очисткой от трития до уровня ниже 74000 Бк/кг. За время эксплуатации установка претерпела ряд значительных изменений и усовершенствований, позволивших автоматизировать работу основных узлов, создать автоматизированную систему онлайн-анализа потоков получаемой продукции и поднять производительность по тяжелой воде в 1,5 раза.*

*В работе анализируется опыт эксплуатации основного оборудования установки: электролизера, приборов измерения и контроля расхода жидкости и газа, насосного оборудования. Рассматриваются вопросы адаптации стандартных промышленных решений для применения в процессах очистки тяжелой воды от протия и трития, вопросы снижения выбросов трития и потерь тяжелой воды при эксплуатации установки ЭВИО.*

### **Введение**

Комбинированный процесс изотопного обмена вода – водород на гидрофобном катализаторе и электролиза воды (так называемый СЕСЕ-процесс – Combined Electrolysis Catalytic Exchange) представляется наиболее перспек-

тивным для извлечения трития и протия из тяжелой воды и переработки тяжеловодных отходов. К преимуществам этого метода относятся высокие значения коэффициента разделения в практически удобном интервале температур, доступность и безвредность рабочих веществ. Реализация процесса изотопного обмена в аппаратах колонного типа осуществляется на гидрофобных катализаторах, которые необходимы для проведения реакции между водой и газообразным водородом.

На основе СЕСЕ-процесса в ПИЯФ им. Б. П. Константинова с участием ЗАО «ДОЛ» и РХТУ им. Д. И. Менделеева в 1995 г. была создана опытная установка ЭВИО (Электролиз Воды и Изотопный Обмен), которая используется с тех пор для отработки технологии разделения изотопов водорода и получения кондиционной тяжелой воды и газообразного дейтерия [1]. Установка ЭВИО была одной из первых в мире, работающей по СЕСЕ-технологии и предназначенной в том числе для решения производственных задач. На начало 2023 г. ЭВИО отработала в различных режимах более 90000 ч. В мире нет установок, работающих по этой технологии столь продолжительное время, и накопленный за время работы ЭВИО опыт является уникальным.

В работе рассматривается опыт эксплуатации оборудования установки электролизера, приборов измерения и контроля расхода жидкости и газа, прибор проточного анализа тяжелой воды, насосного оборудования.

## Основные характеристики установки ЭВИО

ЭВИО является опытной установкой, и за время эксплуатации она постоянно модифицируется для расширения исследовательских и производственных возможностей.

Первоначальная технологическая схема ЭВИО подробно описана в [2] и представлена на рис. 1. Основными узлами первоначальной установки являлись электролизер, колонна изотопного обмена, система аппаратов каталитического сжигания водорода и системы питания и отбора жидкости. В результате переработки тяжеловодных отходов с концентрацией дейтерия 40–45 ат. % на ЭВИО получали продукт в виде концентрированной тяжелой воды (>99,8 ат. % дейтерия). В результате эксплуатации ЭВИО в первые 5 лет были получены основные разделительные характеристики массообменной засыпки колонны изотопного обмена (КИО), отработаны основные приемы управления установкой, разработана и верифицирована математическая модель процесса массообмена в системе *вода – водород* на гидрофобном катализаторе, позволяющая точно описывать профиль концентраций изотопов водорода по высоте колонны, отражать влияние температуры и давления на процесс разделения изотопов водорода, моделировать работу установки в различных режимах: очистки от протия или очистки от трития.

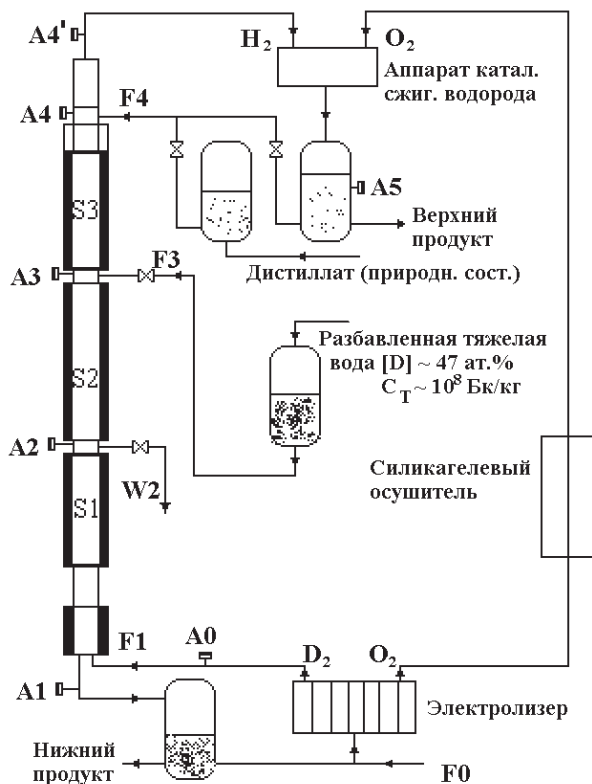


Рис. 1. Первоначальная принципиальная схема установки ЭВИО: F0–F4 – точки питания установки газом и водой, A0–A5 – точки пробоотбора

Высокая эффективность разделительной колонны позволила отказаться от первоначально заложенного в проекте аппарата каталитического сжигания водорода как ненадежного и небезопасного, и сверху в колонну при депротизации стали подавать воду природного изотопного состава, а водород, содержащий дейтерий на близком к природному уровню, сбрасывать в атмосферу.

Поскольку существует потребность в тяжелой воде с пониженным содержанием трития, установка была модернизирована еще раз для того, чтобы обеспечить возможность удаления трития из тяжелой воды с высокой степенью детритизации без использования аппарата каталитического сжигания водорода. Для получения очищенной от трития тяжелой воды была разработана схема использования дополнительной колонны изотопного обмена, которая служила в качестве верхнего узла обращения потоков.

Автоматизация процесса, разработка системы проточного аналитического контроля изотопного состава потоков жидкости позволили упростить управление установкой [3].

Текущая технологическая схема ЭВИО подробно описана в [4, 5] и представлена на рис. 2. Основной частью установки являются колонны жидкофазного каталитического обмена (LPCE – Liquid Phase Catalytic Exchange)

вода – водород. Колонны заполнены чередующимися слоями гидрофобного платинового катализатора на сополимере стирола и дивинилбензола, разработанного РХТУ им. Д. И. Менделеева [6], и нерегулярной гидрофильной насадкой спирально-призматического типа из нержавеющей стали производства ПИЯФ. Важно подчеркнуть, что все это время установка работает без замены катализатора, который сохраняет свою каталитическую активность. Рабочее давление и температура в колоннах находятся в диапазонах 0,13–0,2 МПа и 300–360 К соответственно. Основные характеристики колонн приведены в табл. 1.

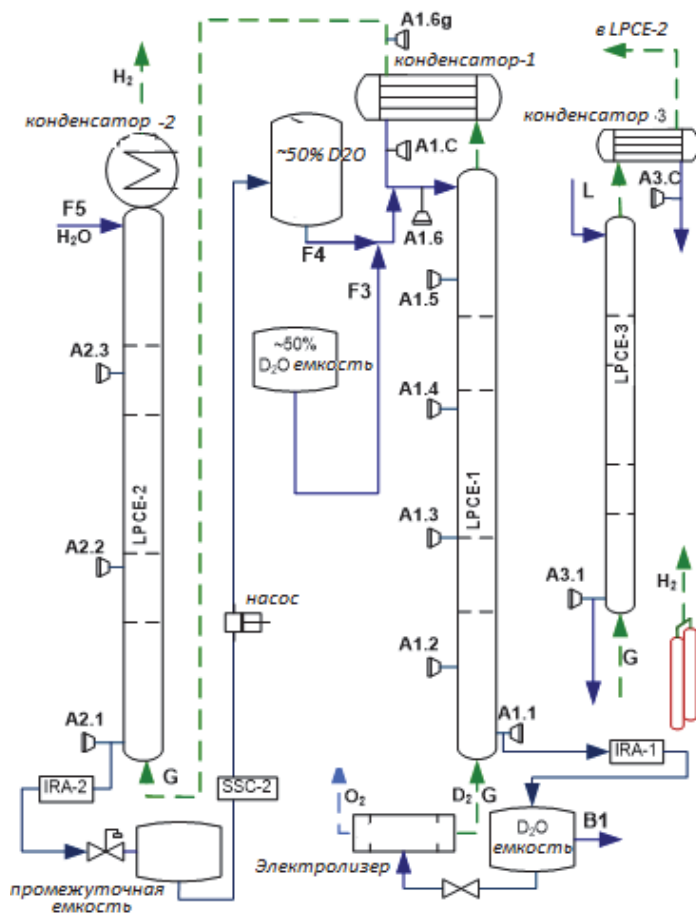


Рис. 2. Принципиальная схема установки ЭВИО в 2022 г.: IRA-1, IRA-2 – проточные анализаторы дейтерия; SSC-2 – проточный анализатор трития в жидкости; А – точки пробоотбора

В качестве нижнего узла обращения потоков на установке используется щелочной электролизер ФС-525 с производительностью по водороду до 5 м<sup>3</sup>/ч. В состав установки ЭВИО также входит система поддержания заданной температуры (греющий контур), вспомогательное оборудование, контрольно-измерительные приборы, компьютерная система сбора и хранения информации.

Таблица 1

## Характеристика обменных колонн установки ЭВИО

Характеристика \ Колонна	LPCE-1	LPCE-2	LPCE-3
Начало работы	2003	1995	2014
Высота колонны, м	5,4	5,9	2,0
Внутренний диаметр, мм	96	96	50
Насадка/катализатор	Объемное отношение 4/1		
Насадка	Спирально-призматическая из нерж. проволоки 12X18Н10Т 2,2×2,2×0,2 мм		
Катализатор	РХТУ-3		РХТУ-3СМ
Содержание Pt, масс. %	0,8–1,0		0,8–1,0
Носитель	Сополимер стирола с дивинилбензолом (SDBC)		
Диаметр гранул, мм	0,5–1,0		0,8–1,2

Наряду с обработкой СЕСЕ-процесса для разделения изотопов водорода установка применяется для переработки тритийсодержащих отходов тяжелой воды. Перерабатывая тяжеловодные отходы с содержанием ~10–85 % дейтерия и до  $10^8$  Бк/кг трития, установка производит тяжелую воду, в том числе очищенную от трития, и газообразный дейтерий с концентрацией 99,85–99,999 ат. % для нужд науки и промышленности.

Тритийсодержащий дейтерий из электролизера поступает в низ колонны LPCE-1. Проходя через колонну, вода и газ вступают в сложный повторяющийся контакт: на слоях гидрофобного катализатора идет прямоточный изотопный обмен между водородом и паром, а на слоях гидрофильной насадки – противоточный изотопный обмен между паром и водой. В результате этого поднимающийся вверх водород (дейтерий) постепенно обедняется по тяжелому изотопу, в то время как стекающая вода обогащается.

Вода природного изотопного состава, подаваемая на орошение колонны LPCE-2, по мере продвижения вниз обогащается дейтерием до концентрации, соответствующей концентрации входящего газа. Выходящая из колонны LPCE-2 вода направляется на орошение колонны LPCE-1. Обедненный по дейтерию водород из колонны LPCE-2 удаляется в атмосферу. Таким образом, колонна изотопного обмена LPCE-2, работая очень эффективно по схеме «с независимыми потоками», по сути, используется в качестве верхнего узла обращения потока по отношению к колонне LPCE-1.

В режиме детритизации: тритийсодержащая тяжелая вода питает электролизер, очищенный от трития дейтерий покидает колонну LPCE-1 и поступает на вход в низ колонны LPCE-2, тяжелая вода с пониженным содержанием

третия отбирается из потока жидкости между колоннами. Колонна LPCE-3 используется для проведения экспериментальных работ.

Поток кислорода, вырабатываемый щелочным электролизером, направляется заполненный силикагелем в блок осушки для удаления паров тритий-содержащей тяжелой воды, а затем – в атмосферу.

## Электролизер: устройство и опыт эксплуатации

Узлом нижнего обращения фаз на установке ЭВИО служит щелочной электролизер ФС-525 (изготовитель – Институт физико-технологических исследований, Москва). Поступающая из КИО вода разлагается в электролизере на водород и кислород. Поток водорода направляется в колонну, кислород первоначально использовался в узле сжигания водорода после КИО, а впоследствии после осушки удалялся в атмосферу.

На рис. 3 представлена технологическая схема щелочного электролизера ФС-525. Получение водорода и кислорода происходит на биполярных электродах при прохождении постоянного тока через водный раствор КОН. Electrodes собраны в две сборки фильтр-прессного типа (Э1/1 и Э1/2) по 64 ячейки в каждой.

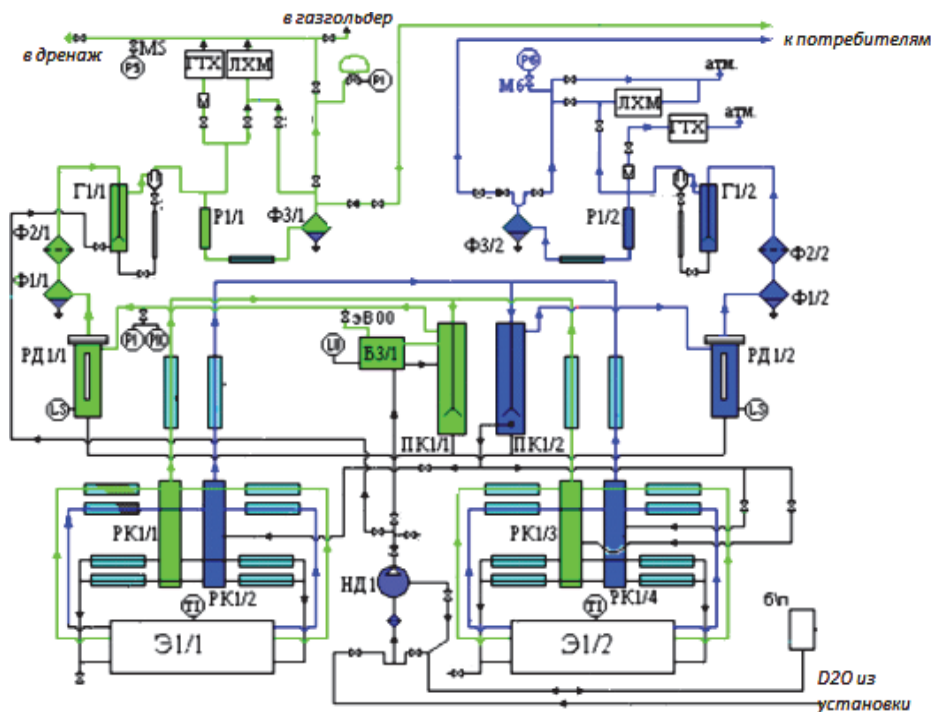


Рис. 3. Схема электролизера: Э1/1, Э1/2 – электролизные модули, НД1 – насос дозатор, РК – разделительные колонки, ПК – промывные колонки, РД – регуляторы давления, БЗ/1 – бак подпитки, Ф – фильтр-влажнотделитель, Р – каталитический реактор, Г – гидрозатвор, ГТХ – анализатор газов термохимический, ЛХМ – хроматограф газовый, б/п – бачок сбора протечек насоса дозатора

Биполярный электрод выполнен в виде кольца с приваренной по внутреннему диаметру металлической мембраной. В кольце имеются отверстия с запрессованными фторопластовыми втулками, а также радиальные отверстия, образующие каналы для подвода щелочи и отвода газов. К биполярному электроду с обеих сторон примыкают выносные перфорированные электроды, увеличивающие общую поверхность. Все поверхности электродов покрыты слоем никеля, нанесенного гальваническим способом. Биполярные электроды, разделенные кольцевыми паронитовыми прокладками и асбестовой диафрагмой, образуют электролизную ячейку. Герметизация ячеек обеспечивается за счет обжатия прокладок посредством стяжных шпилек и концевых плит. Концевые плиты представляют собой крайние монополярные электроды (катоды), не изолированные от земли.

Напряжение подводится к среднему электроду (+) и крайним электродам (концевым плитам) каждой сборки (-). Водородные и кислородные полости ячейки разделены асбестовыми диафрагмами, обеспечивающими ионную проводимость и препятствующими смешению газов.

Газожидкостная эмульсия из соответствующих полостей ячеек поступает в водородный и кислородный коллекторы, поднимается по подъемным трубам в разделительные колонки (РК), где под действием силы тяжести щелочь отделяется от газов. Охлаждение жидкости происходит на горизонтальных участках подъемных и опускных труб посредством теплообменников типа «труба в трубе». На каждую сборку Э1/1 и Э1/2 приходится по паре разделительных колонок (водородная и кислородная). Разделительные колонки в паре связаны между собой по жидкости. Кислородные разделительные колонки РК1/2 и РК1/4 соединяются между собой вентилем ЭВ17. Восполнение жидкости в разделительных колонках осуществляется из кислородной промывной колонки ПК1/2. Потоки жидкости из водородных и кислородных РК проходят теплообменники (ТО) и, объединившись, через жидкостной коллектор, расположенный в нижней части электролизной сборки, поступают в каждую ячейку. Газы (водород и кислород) из соответствующих разделительных колонок охлаждаются в ТО и поступают в промывные колонки (ПК), где барботируют сквозь слой воды и отмываются от остатков унесенной щелочи. Из ПК водород и кислород поступают в соответствующие регуляторы давления (РД) поплавкового типа. Промывные колонки (ПК) и регуляторы давления (РД) связаны между собой как сообщающиеся сосуды, поэтому нормальная безопасная работа РД возможна при наличии жидкости в РД и ПК выше минимального уровня. Регуляторы давления работают следующим образом: при возникновении разницы давлений водорода и кислорода жидкость из полости с большим давлением перетекает в полость с меньшим давлением, при этом в последней поплавок регулятора давления всплывает и перекрывает выходное газовое отверстие, которое будет закрыто до тех пор, пока в кислородном и водородном коллекторах давление не сравняется. Естественно, при таком режиме работы РД жидкости в ПК и РД должно быть столько, чтобы не допустить смешения водорода и кислорода.

Из РД газы проходят фильтры грубой очистки Ф1, где отделяется капельная жидкость, затем в фильтрах Ф2 на ткани Петрянова очищаются от аэрозолей и барботируют в гидрозатворах Г1/1 и Г1/2. Далее часть потоков отбирается для анализа на проточные термохимические газоанализаторы (ГТХ). Кроме ГТХ на водородной и кислородной линиях установлены хроматографы ЛХМ, на которых газовый анализ выполняется периодически.

Далее газовые потоки поступают в реакторы Р1/1 и Р1/2. В реакторах, снабженных электрическими нагревателями и автоматическими регуляторами температуры, на палладиевом катализаторе происходит окисление примесей водорода в кислородном потоке и кислорода в водороде. Затем газы охлаждаются в ТО, в фильтрах Ф3 отделяется жидкость, образовавшаяся при дожигании примесей в реакторах. Водород направляется в колонну, кислород – в систему дополнительной осушки.

Восполнение воды, истраченной на получение водорода и кислорода, осуществляется периодически насосом-дозатором (НД) плунжерного типа, по сигналам датчиков уровня в питающем баке.

Объем жидкости в электролизере составляет около 120 л, из них около 80 л – раствор щелочи.

В процессе эксплуатации некоторые узлы электролизера были реконструированы в ПИЯФ для обеспечения работы с тяжелой водой, загрязненной тритием. Так, были устранены механические дефекты оборудования, изменена система КИПиА установки (установлены другие термометры, изменена схема аварийной защиты), обеспечена возможность анализа состава газов электролиза с помощью хроматографа, что позволило исключить выброс дорогостоящего дейтерия через штатный газоанализатор.

В ходе эксплуатации была изменена система охлаждения электролизера (организована отдельная подача охлаждающей воды на теплообменники газов после реакторов и теплообменники электролита). В процессе эксплуатации ремонту подвергались насос-дозатор (замена червячного колеса вследствие износа) и фильтры грубой очистки (замена проржавевших деталей из углеродистой стали на нержавеющие).

При эксплуатации электролизера выявлен ряд проблем.

Регуляторы давления в водородной и кислородной полостях электролизера работают таким образом, что при возникновении разницы давлений водорода и кислорода жидкость из полости с большим давлением перетекает в полость с меньшим давлением. При этом в последней полости поплавков регулятора давления всплывает и перекрывает выходное газовое отверстие, которое будет закрыто до тех пор, пока в кислородном и водородном коллекторах давление не сравняется.

Первая проблема была связана с весом поплавковых регуляторов, рассчитанных на работу с легкой водой. При переходе к тяжелой воде, плотность которой на 10 % выше, чем легкой, поплавки всплывали раньше срабатывания датчика верхнего уровня в приемной емкости. В результате рабочее давление в электролизере возрастало вплоть до срабатывания защитных блокировок. Выходом из данной ситуации стало увеличение веса поплавков.



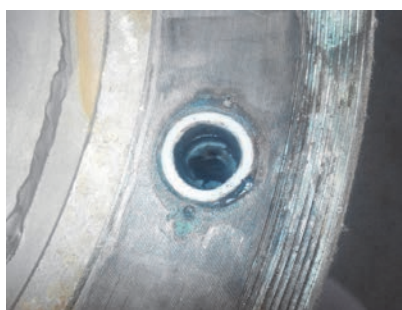
Вторая проблема связана с тем, что благодаря поплавковой схеме регулирования давления в конструкцию электролизера заложена возможность прерывания потоков электролизного газа. Прерывание потока водорода или кислорода ведет к сбоям в работе установки ЭВИО, особенно в режиме работы с дожигателем, когда резкое изменение состава газа в дожигателе приводило сначала к прекращению реакции окисления, а затем к детонации водородо-кислородной смеси в трубопроводах за каталитическим реактором. В этих условиях оператор установки должен обращать особое внимание на то, чтобы разница давлений водорода и кислорода на выходе из электролизера оставалась постоянной, обеспечивающей свободный выход дейтерия и работу кислородного клапана в режиме частого открывания.

Отсутствие уклонов трубопроводов от разделительных колонок к раздаточному коллектору (особенно наличие обратного уклона на одном из трубопроводов анолита) приводит к ухудшению циркуляции электролита. При работе установки наблюдаются периодические выплески электролита из разделительной колонки кислорода в промывную колонку, что приводит к нарушению работы регуляторов давления и повышенному уносу щелочи из электролита.

Наблюдался выход из строя некоторых электролизных ячеек, наиболее вероятной причиной чего являлась забивка отверстий выхода газа из ячеек и выдавливание электролита из ячейки.

Капитальный ремонт электролизера выполнялся в 2000, 2008 и 2018 гг. Проводилась полная разборка электролизных модулей, замена асбестовых мембран и вышедших из строя элементов и новая сборка электролизных модулей.

На рис. 4 показаны основные дефекты электролизных ячеек.



а



б



в



г

Рис. 4. Основные дефекты электролизных ячеек

Основные дефекты электролитической сборки при длительной эксплуатации: а) коррозия вокруг втулок газоотводящих коллекторов – на 15 % ячеек; б) отслоение никеля на выносных электродах – около 5 % ячеек; в) разрушение выносных электродов за счет нарушения геометрии ячейки – 2 %; г) накопление губчатого железа за счет нарушения циркуляции – менее 2 % ячеек (см. рис. 4).

Несмотря на выявленные недоработки изготовителей, в целом опыт эксплуатации показал, что электролизер ФС-525 решает поставленную задачу и может служить нижним узлом обращения потоков в установке ЭВИО и других подобных установках изотопного обмена в системе *вода – водород*.

## Опыт эксплуатации расходомеров и регуляторов расхода

Как результаты расчетов, так и имеющийся опыт работы установки ЭВИО показывают, что для получения заданных характеристик продукта требуется высокая точность поддержания потоков жидкости и газа по колоннам изотопного обмена. Нарушение соотношения потоков в колоннах приводит к изменению концентраций дейтерия и трития в продукте и отвале. Необходимая точность поддержания потоков определяется в зависимости от задачи разделения: чем выше глубина очистки или степень концентрирования, тем требования к точности поддержания потоков должны быть выше.

Анализ работы системы контроля и регулировки потоков показывает, что наличия расходомеров нужной точности недостаточно, система должна учитывать и другие факторы, влияющие на величины потоков в колоннах. Опыт создания и эксплуатации установки ЭВИО показал, что для оптимизации работы установки требуется поддержание расходов жидкости и газа с точностью на уровне не менее 0,3 %.

При ручном управлении расходом жидкости такую точность выдержать практически невозможно. Требуется система, которая могла бы отслеживать все возмущающие факторы, влияющие на стабильность потоков, и автоматически корректировать расход жидкости, а также своевременно предупреждать оператора об отклонении основных, наиболее важных для процесса параметров, чтобы не допустить критического развития событий, ведущих как к снижению производительности установки, так и к возникновению предаварийной ситуации.

Первоначально была разработана компьютеризированная система управления расходами жидкости установки ЭВИО на основе пузырьковых расходомеров, состоящая из следующих частей:

- двух пузырьковых датчиков и электронных плат расходомеров, электронных плат сопряжения (интерфейса), коммутатора расходомеров;
- компьютера, программы сбора информации и управления установки ЭВИО «WODA1» и пересчетных приборов ПСО2-4;
- пневмосистемы управления расходом жидкости.

Пузырьковый датчик формирует пузырь газа в потоке воды и регистрирует момент его входа и выхода на мерном участке трубопровода. Электрон-

ная плата усиливает импульс и формирует сигналы включения и выключения пересчетных приборов, измеряющих время прохода пузырьком газа мерного участка. Коммутатор расходомеров предназначен для подключения к пересчетному прибору ПСО2-4 одного из датчиков расхода по выбору оператора с пульта установки ЭВИО и обеспечивает параллельное подключение пересчетных приборов по месту установки датчиков. Интерфейс служит для подключения датчиков к компьютеру и управления системой пневмоклапанов, обеспечивающих подачу и сброс инертного газа для регулирования потоков жидкости как в ручном (без компьютера), так и в автоматическом режимах (управление от ПК). С помощью системы клапанов обеспечивается возможность дистанционного регулирования давления азота в питающих емкостях. Повышение или понижение давления происходит путем соединения на определенный промежуток времени емкостей либо с системой азотообеспечения, либо с дренажным трубопроводом. Таким образом регулировалось давление в источнике жидкости с интервалом 2 минуты.

Система управления расходом жидкости на основе пузырьковых расходомеров проработала до 2008 г. и была заменена на систему на основе цифровых регуляторов жидкости и газа. Были установлены регуляторы теплового и кориолисова типов фирмы «Bronkhorst», обеспечивающих высокую точность измерений массового расхода (до 0,2 % от показаний + стабильность нуля для жидкостей, 0,5 % от показаний + стабильность нуля для газов).

Система управления расходом жидкости в настоящее время состоит из трех цифровых регуляторов расхода F3, F4 и F5, двух блоков управления и индикации, преобразователя интерфейсов RS232 в RS485, семи емкостей, регулирующих вентилей, электромагнитных клапанов и управляющих программ.

Регулятор расхода жидкости F3 – цифровой прибор кориолисова типа с перестраиваемым пределом измерения. Максимальный расход – 10 кг/ч. Прибор имеет индикации расхода, уставки, плотности и среды температуры.

Регулятор расхода жидкости F4 – цифровой прибор кориолисова типа с пределом измерения 6 кг/ч. Прибор имеет индикации расхода, уставки и температуры среды.

Регулятор расхода жидкости F5 – цифровой прибор теплового типа с пределом измерения 7 кг/ч. Прибор имеет индикации расхода и уставки. Для его питания используется отдельный блок питания и управления, подключенный к регулятору расхода через аналоговый разъем. Цифровой выход (разъем типа RJ45) подключен к шине FLOWBUS.

Для питания F3, F4 и газового расходомера F6 используется второй блок питания и управления. Все приборы подключены к шине FLOWBUS. Через эту шину осуществляется управление расходомерами и их опрос. Для связи с компьютером служит преобразователь RS232/RS485, получающий сигнал от шины FLOWBUS через порт регулятора расхода газа F6.

Для обеспечения подачи жидкости в регуляторы расхода служит система баков. Принцип работы системы основан на создании регулируемого сопротивления потоку жидкости при помощи регулирующего клапана, входящего в состав регуляторов расхода. Сравниваются два сигнала – уставка и измеренное значение расхода. Путем изменения положения штока регулирующего

клапана обеспечивается соответствие уровня уставки и измеренного расхода. Давление над жидкостью в питающих регуляторы расхода емкостях поддерживается постоянным.

Для связи шины FLOWBUS и программы управления цифровыми расходомерами служит программа FlowDDE.exe.

Для сопряжения персонального компьютера с системой КИПиА служит интерфейс индивидуальной разработки и изготовления. Интерфейс также применяется для управления системой клапанов, обеспечивающих подачу и сброс инертного газа для регулирования давления в питающих емкостях.

## **Разработка методик непрерывного измерения концентрации дейтерия и трития в тяжелой воде**

Основным результатом деятельности производства является получение конечного продукта с заданными показателями качества. Поэтому наиболее привлекательным и эффективным является управление установкой в зависимости от изменения качественного состава продукта. Основным показателем качества тяжелой воды является содержание в ней дейтерия и трития.

Для измерения изотопного состава путем определения остаточного содержания протия в тяжелой воде широко используется метод ИК-спектрофотометрии. Однако, как правило, отбор проб и измерения проводят периодически в условиях лаборатории. В ходе доставки пробы в лабораторию возможно разбавление высококонцентрированной тяжелой воды, анализ теряет свою оперативность, обратная связь по изменению режима в зависимости от результатов анализа работает с большим запозданием. Это наиболее актуально для небольших установок.

Поэтому при получении тяжелой воды с высокой концентрацией дейтерия необходимо проводить анализ содержания протия в кондиционной тяжелой воде в проточном режиме. Постоянный контроль главного качественного показателя позволяет перейти на автоматический режим управления установкой в зависимости от содержания дейтерия (или протия) в готовом продукте.

Автоматический анализатор жидкости (тяжелой воды) типа «Анализа-3» разработан и изготовлен Северодонецким ОКБА по заказу и техническому заданию ПИЯФ. Он предназначен для измерения атомной доли протия в проточном режиме.

Оптическая измерительная схема «Анализа-3» является 4-канальной. При вращении диска модулятора с установленными на нем светофильтрами каждый светофильтр сравнения (СФС), который вырезает область  $3700\text{--}3900\text{ см}^{-1}$ , и светофильтр измерения (СФИ), который вырезает область  $3400\text{--}3650\text{ см}^{-1}$ , поочередно пересекает световые потоки, проходящие через рабочую кювету (КР) и кювету сравнения (КС).

Калибровку «Анализа-3» проводили по образцам тяжелой воды, содержание протия в которых определяли на ИК-спектрофотометре «Specord M80» [7]. Для этого была организована герметичная проточная система, в которой были последовательно соединены друг с другом измерительные кюветы

прибора «Анализ-3» и 206 мкм проточная кювета в камере образцов «Specord M80» (кювета не извлекалась из камеры образцов в течение всей процедуры калибровки). Тяжелая вода медленно передавливалась через всю систему из исходной колбы с тяжелой водой в приемную сливную колбу. Измерение всех параметров проводилось после того, как прекращалось их изменение. В результате была получена калибровочная зависимость, позволяющая определять с помощью прибора «Анализ-3» атомную долю дейтерия в тяжелой воде.

Отработка методики, наладка и проверка работоспособности системы автоматического анализа тяжелой воды в целом проводилась на опытно-промышленной установке ЭВИО в процессе наработки тяжелой воды из тяжеловодных отходов и при проведении экспериментов. Прибор непрерывно измеряет концентрацию протия в тяжелой воде, поступающей из нижней части колонны изотопного обмена в сборник продукта.

Выходные аналоговые сигналы прибора «Анализ-3» преобразовывались в цифровые и передавались на пульт управления установки ЭВИО. Измеряемые концентрации отображаются в графическом виде на мониторе компьютера в реальном времени и сохраняются в базе данных для последующего изучения и анализа их изменения с течением времени.

Реализована также схема проточного анализа дейтерия с привязкой к ИК-Фурье спектрометру с проточной термостатируемой кюветой Rapid\_Flow\_Cell. ИК-Фурье спектрометр размещен в боксе, смонтированы подводящие линии к кювете и клапаны, переключающие потоки. На анализ заведены точки из нижней части первой колонны ЭВИО (точка А1.1, концентрация дейтерия около 99,9 %) и три точки по высоте второй колонны (А2.1, А2.2 и А2.3 с концентрацией дейтерия от 45 % до менее 1 %).

Предложен и тестируется вариант проточной кюветы с твердым сцинтиллятором на базе прибора РЖС-05 для непрерывного измерения концентраций трития (в диапазоне  $10^{-3}$ – $10^{-5}$  Ки/л) в воде на выходе из первой колонны установки ЭВИО. Планируется провести тестовые испытания проточного жидкостного радиометра Wilma (производитель «LabLogic Systems Ltd.», Великобритания), предназначенного для измерения удельной активности радионуклидов в жидких средах, концентраций трития в проточном режиме в области концентраций  $10^{-3}$ – $10^{-6}$  Ки/л

Система автоматического непрерывного анализа тяжелой воды позволяет упростить управление установкой, а также повысить ее производительность и улучшить характеристики готового продукта. В случае, когда отклонения параметров установки приводят к изменению заданной концентрации дейтерия в готовом продукте, имеется возможность быстрого реагирования и возвращения установки в заданный режим до фактического выхода из него.

## **Опыт эксплуатации насосного оборудования**

На сегодняшний день проблема эффективных герметичных насосов малой производительности (10–50 л/ч) остается нерешенной в масштабе страны. Немногие модели, представленные на рынке, имеют ряд существенных недостатков, ограничивающих их применение для тяжелой воды.

Первоначально на установке ЭВИО были установлены для перемещения жидкости между емкостями насосы типа ГНД 25/10: насос герметичный дозировочный плунжерного типа с промежуточной камерой производительностью 25 л/ч и напором 10 кгс/см<sup>2</sup>, в котором плунжер воздействует на жидкость в промежуточной камере, а давление жидкости (масло) промежуточной камеры через мембраны воздействует на перемещаемую жидкость. К сожалению, данный тип химических насосов для работы с тяжелой водой оказался неудобен. Недостатки, связанные с конструкцией герметичной промежуточной камеры и клапанов, вызвали необходимость доработки. При разрыве мембраны масло из промежуточной камеры попадает в тяжелую воду, что негативно воздействует на катализатор в колоннах изотопного обмена. Замена масла на «легкую» воду с контролем электропроводимости жидкости в промежуточной камере позволила устранить элемент негативного воздействия на процесс, но постоянное залипание клапанов всасывания или нагнетания так и не удалось полностью исключить.

Насосы типа ГНД были заменены на плунжерные химические насосы-дозаторы типа НД 25/16. Недостатком насосов типа НД является стоимость, огромная масса по сравнению с выполняемой работой (30 кг железа перемещают несколько грамм воды в секунду, используя 3-киловаттный электродвигатель), наличие организованной течи через уплотнение плунжера для снижения трения и высокий износ фторопластового уплотнения плунжера. Установка приемной бачки для сбора из закамерного пространства плунжера протечек воды, установка механических фильтров на напорном трубопроводе насосов позволили устранить недостатки, но удобства обслуживания не добавилось. Наличие червячного редуктора с масляной ванной и постоянная борьба с утечкой масла через сальники ванны, необходимость регулярной замены фторопластовых уплотнений плунжера, очистки фильтров от фторопластовой стружки и постоянный контроль за скоростью организованной протечки создавали неудобства. В числе неявных недостатков отметим высокую стоимость и шумность работы. Поэтому были предприняты попытки найти оборудование, более подходящее по параметрам, стоимости и энергопотреблению. Были испытаны насосы-дозаторы поршневого типа, широко применяемые в промышленности для дозирования малых порций реагентов, и бустерные насосы для обратноосмотических систем. Опыт использования этих насосов показал их явное преимущество перед промышленными агрегатами как по простоте обслуживания, так и надежности работы; при этом не требуется смазка частей, контактирующих с тяжелой водой, следовательно, нет загрязнения, отсутствуют организованные протечки, не требуется дополнительное оборудование для их сбора, очистки и возврата в процесс; насосы отличаются экономичностью и бесшумностью работы. Это позволило сократить объемы оборудования, тем уменьшив задержку тяжелой воды в оборудовании и, как следствие, увеличив скорость выхода установки на стационарный режим при детритизации тяжелой воды и степень детритизации.

## Заключение

Создана и успешно эксплуатируется опытная установка ЭВИО для разделения изотопов водорода на основе методов химического изотопного обмена между водой и водородом на гидрофобном катализаторе и электролиза воды (СЕСЕ-процесс). На установке обрабатывается технология СЕСЕ-процесса и осуществляется производство тяжелой воды и дейтерия.

Опыт, полученный при эксплуатации установки в течение более 90000 ч, свидетельствует о высокой эффективности разделения. Наряду с получением тяжелой воды реакторного качества продемонстрирована возможность детритизации тяжелой воды.

За годы эксплуатации установка претерпела ряд значительных изменений и усовершенствований, позволивших автоматизировать работу основных узлов, создать автоматизированную систему онлайн-анализа потоков получаемой продукции и поднять производительность по тяжелой воде в 1,5 раза. Основные вехи в модернизации установки ЭВИО представлены в табл. 2.

Таблица 2

### Основные вехи в развитии установки ЭВИО

Год	Выполненные работы
1995	Ввод в эксплуатацию в составе: электролизер, одна колонна LPCE, аппарат сжигания
2001	Модернизация: удаление аппарата сжигания, монтаж колонны LPCE-2
2008	Замена всех регуляторов расхода
2008	Замена насосного оборудования (ГНД на плунжерные)
2012	Монтаж колонны LPCE-3
2022	Модернизация технологической схемы для детритизации, уменьшение промежуточных емкостей для снижения задержки, замена насосов

Проведенные исследования и многолетняя эксплуатация установки ЭВИО позволили отработать технологию СЕСЕ-процесса и обоснованно рекомендовать процесс изотопного обмена *вода – водород* на гидрофобном катализаторе для промышленного использования. Благодаря успешной работе установки ЭВИО на основе СЕСЕ-процесса уже разработана и построена установка извлечения трития из тяжелой воды реактора ПИК и проектируются аналогичные установки для других реакторов.

## Список литературы

1. Алексеев И. А., Розенкевич М. Б., Уборский В. В. 25 лет получения тяжелой воды в России на опытной установке ЭВИО в ПИЯФ им. Б. П. Константинова // Химическая промышленность сегодня. 2021. № 2. С. 24–27.

2. Alekseev I. A., Bondarenko S. D., Fedorchenko O. A., Grushko A. I., Karpov S. P., Konoplev K. A., Trenin V. D., Arkhipov E. A., Vasyanina T. V., Voronina T. V., Uborsky V. V. Operating Experience of the Experimental Industrial Plant for Reprocessing of Tritiated Water Wastes // *Fusion Engin. and Design*. 2001. Vol. 58–59. P. 439.

3. Alekseev I. A., Bondarenko S. D., Fedorchenko O. A., Vasyanina T. V., Konoplev K. A., Arkhipov E. A., Uborsky V. V. Fifteen years of operation of CECE experimental industrial plant in PNPI // *Fusion Sci. and Techn.* 2011. Vol. 60. P. 1117–1120.

4. Алексеев И. А., Архипов Е. А., Бондаренко С. Д., Васянина Т. В., Коноплев К. А., Федорченко О. А., Уборский В. В. Получение тяжелой воды и дейтерия методом изотопного обмена вода – водород в ПИЯФ РАН // *Перспективные материалы*. 2010. Спец. вып. 8. С. 203–210.

5. Fedorchenko O. A., Alekseev I. A., Bondarenko S. D., Vasyanina T. V. Recent Progress in the Experimental Study of LPCE Process on «EVIO» Pilot Plant // *Fusion Sci. and Technol.* 2017. Vol. 71, N 4. P. 432–437 [doi: 10.1080/15361055.2016.1273695].

6. Пат. РФ № 2307708. Способ приготовления платинового гидрофобного катализатора изотопного обмена водорода с водой / Ю. А. Сахаровский, Д. М. Никитин, Э. П. Магомедбеков, Ю. С. Пак // *Изобретения. Полезные модели*. 2007. № 28.

7. Алексеев И. А., Воронина Т. В., Грушко А. И., Федорченко О. А., Харитоновна Л. Г., Чижов А. С. Измерение содержания протия в высококонцентрированной тяжелой воде методом ИК-спектрофотометрии : препринт ПИЯФ-2456. – Гатчина, 2001. С. 27.