

СИСТЕМЫ ОЧИСТКИ НАТРИЯ АЭС С РЕАКТОРАМИ НА БЫСТРЫХ НЕЙТРОНАХ (РЕТРОСПЕКТИВНО- ПЕРСПЕКТИВНЫЙ ВЗГЛЯД)

Ф.А. Козлов*, А.П. Сорокин*, М.А. Коновалов*, **

* АО «ГНЦ РФ – Физико-энергетический институт имени А.И. Лейпунского»

пл. Бондаренко, 1, г. Обнинск, Калужская обл., 249033

** НИЯУ МИФИ, Каширское шоссе, 31, г. Москва, 115409



Системы очистки теплоносителя – это неотъемлемые элементы любой реакторной установки. В сегодняшнем реакторостроении возникает ряд новых задач, одной из которых является повышение производительности и емкости этих систем. Ретроспективный анализ систем очистки в реакторах от БР-5 до БН-1200, таких как холодные ловушки и сорбенты для очистки от цезия, обеспечившие успешную эксплуатацию ЯЭУ с реакторами на быстрых нейтронах с натриевым теплоносителем, горячие ловушки, имеющие перспективу использования для очистки натрия от кислорода на АЭС, показал, что возможности повышения характеристик этих систем существуют. На основании результатов исследований рекомендованы основные направления работы по улучшению характеристик систем очистки перспективных АЭС с натриевым теплоносителем. Холодная ловушка должна быть обязательным элементом системы очистки первого контура реакторной установки, встроенной в бак реактора. Горячие ловушки могут обеспечить очистку натриевого теплоносителя в первом контуре от кислорода при работе АЭС как на номинальном режиме, так и в стояночных режимах при подогреве в них теплоносителя. Оптимальные решения по очистке от радиоактивных примесей и нерадиоактивных продуктов коррозии применительно к быстрым реакторам с натриевым теплоносителем требуют целенаправленных НИОКР.

Ключевые слова: система очистки, холодная ловушка, горячая ловушка, фильтр, примеси, кислород, водород, продукты коррозии, диффузия, тепломассообмен, нагреватель.

ВВЕДЕНИЕ

Системы очистки (СО) теплоносителя являются необходимым элементом любой реакторной установки (РУ). Состав СО определяется величиной источников и стоков примесей во всех возможных режимах эксплуатации ЯЭУ и требованиями по допустимым концентрациям примесей. СО в АЭС с натриевым теплоносителем должна

– иметь производительность, обеспечивающую требуемую чистоту теплоносителя

© Ф.А. Козлов, А.П. Сорокин, М.А. Коновалов, 2015

ля в различных режимах эксплуатации (номинальный режим и режим перегрузки топлива, ППР, аварийные загрязнения) за время, заданное техническим заданием на установку;

- иметь необходимую емкость по примесям, минимизирующую число замен элементов СО;

- не оказывать негативного влияния на экономические показатели АЭС.

Ретроспективный анализ СО (в РУ от БР-5 до БН-1200) показывает, что при создании РУ на быстрых нейтронах с натриевым теплоносителем с хронологической и научно-технической точек зрения можно выделить три основных этапа: первый – 1956 – 1959 гг. (БР-5); второй – 1960 – 1980 гг. (БОР-60, БН-350, БН-600) и третий – с начала третьего тысячелетия по настоящее время (БН-1200).

ХОЛОДНЫЕ ЛОВУШКИ

На первом этапе решались практические вопросы проектирования, монтажа и эксплуатации БР-5 и ЯЭУ для космических аппаратов [1]. В результате анализа возможных методов очистки для дальнейших НИОКР было выбрано два: холодные ловушки для АЭС, горячие ловушки для ЯЭУ космических аппаратов.

Что касается источников примесей, то на первом этапе кислороду воздуха, загрязняющему натриевые системы в результате монтажных, ремонтных и прочих работ, было уделено основное внимание. Сегодня на этапе разработки АЭС БН-1200 с учетом почти столетнего (только в нашей стране) опыта эксплуатации АЭС с натриевым теплоносителем помимо кислорода анализируются водород, углерод, продукты коррозии, продукты деления, например, цезий и тритий, и даже само топливо (при разгерметизации твэлов).

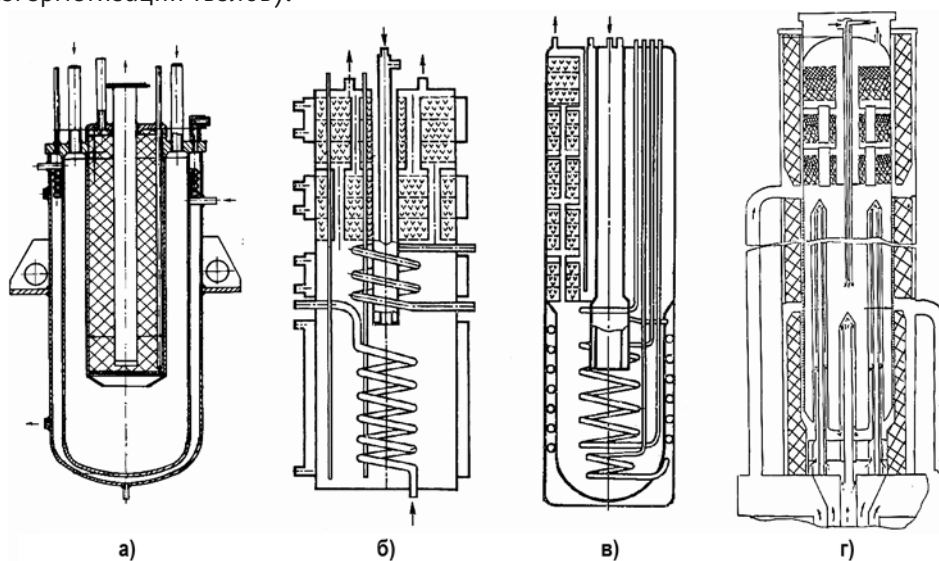


Рис. 1. ХЛ реактора БР-5 (а); ХЛ, охлаждаемая Na-K (б); ХЛ БН-350 (в); ХЛ БН-600 (г)

Работа по обоснованию холодных ловушек (ХЛ) началась с исследования характеристик ловушки, аналогичной описанной в [2]. В первой модели весь рабочий объем ХЛ был заполнен насадкой из нержавеющей проволоки. Ловушка охлаждалась кипящим толуолом. Прежде всего было установлено, что обеспечивается охлаждение натрия до заданной температуры при исключении замерзания натрия в любой части ХЛ. При этом по показаниям пробкового индикатора натрия очищается от примесей до концентраций, соответствующих их растворимости в натрии при температуре на выходе из ХЛ. Оказалось, что по этим па-

раметрам создание ХЛ для БР-5, да и для установок типа БН-350 не встречает принципиальных проблем.

Однако емкость ХЛ по окиси натрия составила лишь 1,5% об. Для улучшения этого показателя перед испытанием вторая ловушка была модернизирована: удалена насадка из входного канала и добавлен отстойник. В результате емкость ХЛ увеличилась до 3% об. [3]. Было решено использовать ловушки такого типа на БР-5 (рис. 1 а) несмотря на неудовлетворительный показатель по емкости ХЛ. В дальнейшем, при эксплуатации этот фактор сыграл отрицательную роль: было заменено 16 ХЛ первого контура.

При создании ХЛ с большей емкостью для БН-350, БОР-60 и БН-600 на втором этапе проводились расчетно-теоретическое и экспериментальные исследование теплогидравлических и массообменных процессов как на специальных экспериментальных участках, так и на ХЛ. Выполнение этих работ можно разделить на два периода: до начала 1970-х гг., когда проводились НИОКР в обоснование ХЛ для БН-350 и БОР-60, и последующий, до конца 1970-х гг., когда НИОКР были направлены на обоснование ХЛ для БН-600, охлаждаемой воздухом (первоначально предполагалось, что ХЛ первого контура будут охлаждаться азотом). В исследованиях до 1970 г. использовались участки, в которых в проточной зоне охлаждения вынужденная и естественная конвекции действовали в одну сторону, – параллельная смешанная конвекция (ПСК). После нее натрий поступал в изотермический отстойник, а затем в фильтр.

Было установлено, что отложение окиси в зоне охлаждения начинается практически сразу, как только раствор становится пересыщенным. Этот фактор является основной причиной ограничения емкости ХЛ – происходит локальное перекрытие проходного сечения. Распределение окиси в зоне охлаждения по результатам анализов и рассчитанное в предположении, что окись натрия кристаллизуется из пересыщенного раствора только на неподвижных поверхностях, омываемых натрием, и состояние проб при наличии насадки после дистилляции из них натрия приведены на рис. 2 а (аналогичные результаты получены без насадки). Видно, что оно существенно различалось. Было сделано предположение, что наиболее вероятной причиной расхождения расчетного и найденного в опыте количества окиси в зоне охлаждения заключалось в том, что помимо кристаллизации на неподвижных поверхностях происходит кристаллизация из пересыщенного раствора на присутствующие в потоке натрия кристаллы. Расчеты показали, что вклад обоих эффектов может иметь существенную величину.

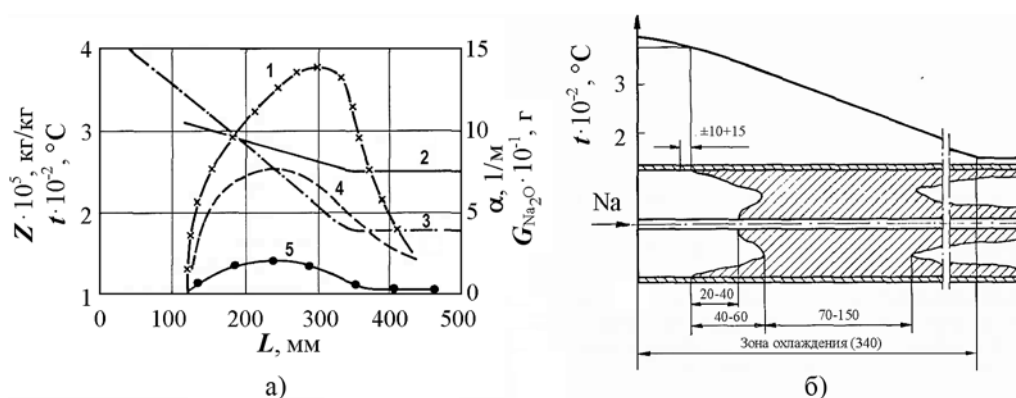


Рис. 2. Распределение окиси натрия в зоне охлаждения: а) – при наличии насадки (1 – пересыщение; 2 – коэффициент массообмена; 3 – температура натрия; 4 – количество окиси натрия в пробе по данным опыта; 5 – количество окиси в пробе по данным расчета); б) – визуально наблюдаемое.

В изотермическом отстойнике при малых накоплениях концентрация окислов убывает при удалении от дна; при больших накоплениях поддерживается на некотором среднем уровне (приблизительно равном концентрации у дна отстойника), а затем начинает снижаться. Удержание окислов в отстойнике составляет 11 и 46% при его длине 0,3 и 0,85 м соответственно. Необходимо отметить, что в опытах с высоким удержанием окислов в зоне охлаждения было получено и более высокое удержание окислов в отстойнике ~32% при длине 0,3 м.

Из теоретического анализа следует, что распределение окислов в изотермическом фильтре должно убывать по экспоненте при удалении от входа. В пределах разброса экспериментальных данных $C_l / C_{вх}$ вплоть до расстояний от входа, равных $(3 - 4) l_{0,5}$, это имеет место. При больших расстояниях спад происходит медленнее. В опытах получено возрастание $l_{0,5}$ с увеличением скорости в ламинарном режиме обтекания насадки и практическое постоянство в диапазоне исследованных скоростей в турбулентном. Такая зависимость $l_{0,5}$ в изотермическом фильтре от скорости натрия понятна, если учесть, что при ламинарном режиме коэффициент массообмена возрастает пропорционально скорости натрия в фильтре (скорости обтекания насадки) $W^{0,5}$, а при турбулентном режиме он пропорционален $W^{0,9}$ [4]. В дальнейшем при оптимизации фильтра важно, что в наших опытах и в ХЛ была использована насадка из стружки, для которой ламинарный режим обтекания реализовывался при скорости натрия, меньшей 8 – 10 мм/с. Увеличение плотности набивки по ходу металла снижает неравномерность распределения примесей в фильтре, однако зависимость от плотности набивки, полученная экспериментально, слабее, чем это вытекает из теории. Это объясняется тем, что в результате осаждения окиси на неподвижных поверхностях их поверхность увеличивается. При значительных накоплениях, когда проходное сечение уменьшается, поверхность массообмена будет уменьшаться.

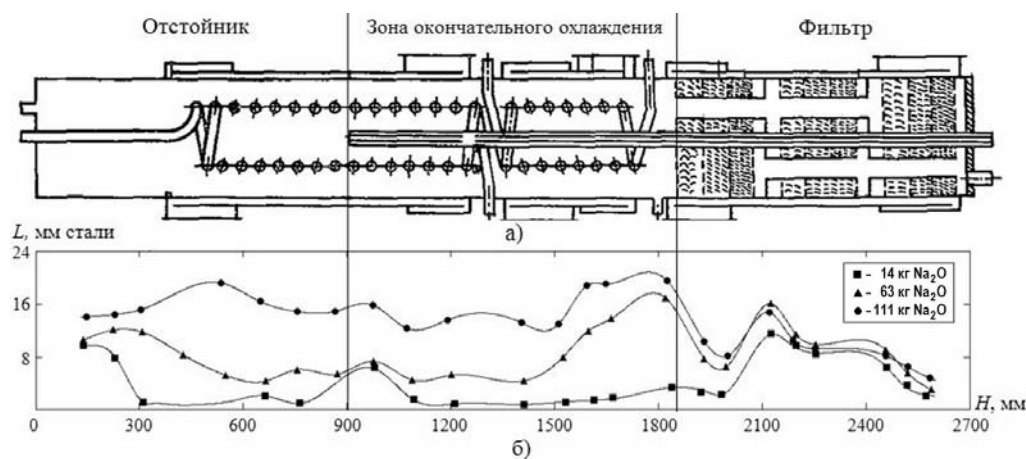


Рис. 3. Прототип 180-литровой ХЛ БН-600 и распределение окиси в ней: а) – продольный разрез анализируемой ловушки; б) – распределение примесей по длине ловушки после накопления; отстойник: $\psi = 45,2\%$ (доля удержания Na_2O); $C_V = 34,3\%$ об. (объемная концентрация); зона окончательного охлаждения: $\psi = 38,7\%$; $C_V = 34,3\%$ об.; фильтр: $\psi = 16,1\%$; $C_V = 13,4\%$ об.

Наряду с исследованиями, приведенными выше, в период до 1970 г. были изучены характеристики пяти ХЛ: глубина очистки, распределение температур по высоте и диаметру ловушки, глубина проникновения струи горячего натрия (факела) в отстойник, емкость, по примесям, производительность (коэффициент удержания примесей). В трех из пяти ХЛ зона окончательного охлаждения работала в условиях ПСК (см. рис. 1 а и 2), в двух – в условиях ВСК (рис. 1 б и 3). Анализ температурных и

кислородных режимов при испытании первых трех ХЛ при ПСК в зоне охлаждения показал, что во всех случаях именно из-за неравномерного осаждения окислов в этой зоне происходило локальное перекрытие сечения зоны охлаждения. В результате их емкость была в два – три раза меньше, чем у двух последних. Причем первое возрастание сопротивления этих ловушек фиксировалось, когда доля объема, занятая окисью, не превышала 6, 8 и 5% для первой, второй и третьей ловушек соответственно.

Измерения показали, что градиенты температуры в ХЛ, в которой действует ПСК, на порядки больше градиентов в ХЛ, работающей в условиях ВСК. В последнем случае большие градиенты наблюдаются лишь в области горячего факела. Эти и дальнейшие исследования на моделях отдельных зон ХЛ (неизотермического отстойника и зоны окончательного охлаждения) и на ХЛ (см. рис. 1 б и 3) показали перспективность использования модели ХЛ, состоящей из трех зон: неизотермического отстойника, зоны окончательного охлаждения и изотермического фильтра. Емкость такой ХЛ по окиси натрия в три – пять раз выше, чем у ХЛ с ПСК. Это объясняется эффективным использованием объемов зоны окончательного охлаждения и неизотермического отстойника. Показано, что оптимальное использование объема отстойника при осаждении в нем примесей зависит от гидродинамического и температурного режимов: с ростом скорости натрия на входе в отстойник и при охлаждении его концентрация примесей в системе натрий-примеси, формирующейся в отстойнике, и доля примесей, удерживаемых в нем, возрастают примерно в 1,5 – 2 раза.

На основании полученных результатов в 1963 г. выданы рекомендации по конструированию холодных ловушек для БОР-60 и БН-350, у которых основное охлаждение перенесено в отстойник, а над ним последовательно расположены зона окончательного охлаждения и изотермический фильтр. Постоянные, необходимые для расчета и конструирования ХЛ, определены из результатов опытов. Емкость испытанного прототипа такой ловушки по примесям составляла 25% об. Из-за отсутствия строгих методов моделирования при проектировании ХЛ для БОР-60 и БН-350 было принято, что при выполнении рекомендаций их емкость по примесям будет равна 10% об.

Дальнейшие исследования проводились на экспериментальном участке, который имел зоны отстойника, окончательного охлаждения и фильтра (аналогично предложенной модели ХЛ, см рис. 1 б, в, г и 3), и на прототипах ХЛ, состоящих из трех аналогичных зон. В обоснование ХЛ БН-600 были исследованы характеристики двух холодных ловушек, охлаждаемых воздухом, объемом 180 и 800 литров. На рисунке 3 приведены схематичная конструкция 180-литровой ХЛ и результаты измерений распределения окиси в ловушке γ -методом. После окончания испытаний ХЛ была разрезана на семь участков. Анализ их содержимого подтвердил результаты измерений, полученные γ -методом. Аналогичные результаты были получены и на экспериментальных участках с ВСК. Полученное γ -методом распределение окиси (см. рис. 3), по-видимому, можно объяснить тем, что поверхность кристаллизации в результате накопления примесей в предшествующих зонах увеличивается и натрий очищается практически полностью до входа в фильтр. В результате объем фильтра используется неэффективно.

Коэффициент удержания примесей в ХЛ предложенной конструкции близок к единице лишь до расхода, когда время пребывания натрия в холодной ловушке превышает 20 мин. При дальнейшем росте расхода коэффициент удержания снижается. С накоплением примесей в холодной ловушке при постоянном расходе натрия через нее вначале происходит возрастание коэффициента удержания, если он был меньше единицы, затем стабилизация его и при накоплении примесей ~20% об. и выше

возможно его снижение.

При очистке теплоносителя ХЛ получение концентраций по кислороду, водороду и продуктам их взаимодействия с водой, соответствующих насыщению при рабочих температурах ловушки, не вызывало каких-либо осложнений. Продукты коррозии и углерод хоть и были обнаружены в ХЛ, но очистка натрия от них была неэффективной. Их концентрация в теплоносителе как на экспериментальных стендах, так и на ЯЭУ на порядки превышала их растворимость при температуре ХЛ и даже при нижней температуре контура. Таким образом, приходится констатировать, что этот вопрос остается открытым.

Анализ режимов вымывания окиси накопленной в испытательном участке в холодную ловушку показал, что вымывание примесей происходило, в основном, за счет их растворения, а вклад уносимых частиц незначителен. Однако из полученных результатов не следует, что вынос значительного количества частиц примесей, осевших в ловушке, при изменении гидродинамического режима невозможен. Более того, было показано, что при резком возрастании расхода через ловушку в два – четыре раза наблюдается вынос частиц с теплоносителем в контур. Более подробно с результатами можно ознакомиться в [5].

На основании полученных результатов были разработаны холодные ловушки для РУ БОР-60, БН-350 и БН-600.

По данным термодинамического анализа и экспериментальных работ предложены и обоснованы методы регенерации ХЛ, позволяющие восстанавливать их характеристики за счет перевода накопленных в ловушке примесей в каустическую фазу (NaOH (основа) + Na_2O + NaH), температура плавления которой не превышает 400°C , и гидродинамического удаления ее из холодной ловушки. Исследования коррозии конструкционных материалов в продуктах регенерации и практический опыт показывают, что одна и та же ловушка может регенерироваться данным методом не менее трех раз [6].

Анализ опыта промышленной эксплуатации ХЛ подтвердил их основные характеристики. Была обеспечена очистка натрия, в том числе и при аномальных загрязнениях от водорода и кислорода и продуктов взаимодействия его с водой. На БН-350 ХЛ первого контура отработали весь ресурс без замены, а на БН-600 успешно эксплуатируются и сегодня, более 35-ти лет. ХЛ вторых контуров, также работают без замены, но на каждой из них из-за возрастания сопротивления или сложностей обеспечения необходимых параметров эксплуатации (расход, температурный режим) проводилась регенерация.

Положительный опыт эксплуатации способствовал тому, что в двадцатилетний период после пуска БН-600 НИОКР по системам очистки ограничился испытанием (исследования были прекращены) оригинальной конструкции ХЛ интенсивной очистки. Работы по этой тематике были сведены к сопровождению эксплуатации СО и анализу полученного опыта.

На третьем этапе, в связи с созданием перспективной АЭС с реактором на быстрых нейтронах, работы по СО возобновились. Учитывая, что при эксплуатации ХЛ первого контура БН-600 имели место течи радиоактивного натрия, было решено разрабатывать СО, встроенную в бак реактора. При этом использован следующий подход:

- анализ безопасности;
- обоснование требований по производительности и емкости;
- определение необходимого объема ХЛ и параметров их эксплуатации;
- расчет необходимых поверхностей, обеспечивающих заданный теплосъем в ХЛ;
- оптимизация конструкции ХЛ и режимов эксплуатации;

– анализ возможного использования горячих ловушек в СО первого контура, встроенной в бак реактора.

Вследствие отсутствия в нашей стране опыта создания СО, встроенных в бак реактора, возникает ряд новых задач, которые необходимо решить. Должны быть разработаны по существу новая конструкция холодной ловушки и внешние системы обеспечения ее работы: рекуператор, собственный электромагнитный насос; расходомер; эффективная тепловая изоляция от окружающего ловушку натрия; арматура; система охлаждения как при ее эксплуатации в режиме очистки натрия, так и при отключенной ХЛ; технология теплоносителя, охлаждающего ХЛ; система и технология ввода ХЛ в бак реактора, извлечения ее из бака реактора и перемещения в систему хранения ХЛ; система хранения извлеченных из реактора ХЛ и выемных рабочих узлов.

Прежде всего важны вопросы безопасности: аномальные ситуации могут возникнуть из-за повышения температуры холодной ловушки при отказе ее СО и при аварийном расхолаживании ЯЭУ. В этих условиях парциальное давление водорода над системой натрий-гидрид натрия может возрасти до десятков атмосфер, а скорость коррозии конструкционных материалов возрастет на порядки. Следовательно, не исключены потеря герметичности ХЛ и выброс водорода в первый контур. Пространство для размещения ХЛ в БР ограничено, а следовательно, ограничен и объем ХЛ. Это отрицательно сказывается на эксплуатационных, а следовательно, и экономических характеристиках установки: снижается КИУМ, возрастает число замен ХЛ. Учитывая эти обстоятельства и то, что встроенная в бак реактора СО разрабатывается в нашей стране впервые, требуется большой объем НИОКР.

Расчетными оценками показано, что проблема опасности, связанная с накоплением водорода в ХЛ первого контура при работе на номинальных параметрах, решается. За счет увеличения температуры на выходе из ХЛ первого контура до 150°C при сохранении прежнего температурного режима ХЛ второго контура (температура на выходе из ХЛ равна 120°C) и при суммарном расходе через холодные ловушки второго контура выше 44 м³/ч [7] водород будет мигрировать в холодные ловушки второго контура. Однако константы, необходимые для расчета кинетики этого процесса, сегодня не в полной мере изучены.

Таблица 1

Сопоставление систем очистки первых контуров АЭС БН-350, БН-600 и БН-1200

АЭС	$V_{\text{Na}}, \text{ м}^3$	$V_{\text{ХЛ}}, \text{ м}^3$	Расход ХЛ, $G_{\text{Na}}, \text{ м}^3/\text{ч}$	$T_{\text{вых}}^{\text{ХЛ}},$ °C	Емкость*, кг	$V_{\text{Na}}/G_{\text{Na}},$ ч
СО БН-350	500	3×3	7×3	120	600×3	24
СО БН-600	1000	8×2	8×2	120	1600×2	62
СО БН-1200 (Ar)	1900	1,75×3	2,8×3	150	350×3	230
СО БН-1200 (Na)	1900	1,86×3	4×3	150	441×3	160

*емкость по окиси натрия

В результате работ, выполненных в ОКБМ и ГНЦ РФ-ФЭИ, в настоящее время для БН-1200 предложены две конструкции ХЛ: с охлаждением аргоном и натрием. Показано, что охлаждение ХЛ жидкометаллическим теплоносителем позволит исключить опасность, обусловленную применением аргона под давлением 1,5 МПа, и будет способствовать улучшению характеристик ХЛ. Сопоставление систем очистки первых контуров АЭС БН-350, БН-600 и АЭС БН-1200 (охлаждаемых натрием и арго-

ном) приведено в табл. 1.

Видно, что производительность и емкость системы очистки БН-1200, охлаждаемой аргоном, уступают БН-600 почти в четыре и в три раза, а при охлаждении натрием в 2,6 и 1,7 раза соответственно. Это значит, что время очистки теплоносителя первого контура БН-1200 тремя ХЛ, охлаждаемыми аргоном, при равных условиях будет почти в четыре раза большим, чем для БН-600. При аварийных загрязнениях концентрация примесей может соответствовать температуре закипания, измеряемой пробковым индикатором, до 250°С и выше. Следовательно, очистка после аварийного загрязнения, ППР, перегрузки топлива может потребовать до 870-ти и более часов. Наличие постоянно действующих источников примесей увеличит время очистки. В качестве примера можно привести результаты расчетов очистки натрия первого и второго контуров холодными ловушками в режиме освоения мощности АЭС [7], учитывающие поступление коррозионного водорода из третьего контура во второй и при действии источника водорода в натрии, обусловленного изначальным присутствием его в конструкционных материалах первого контура. Время очистки в этом случае может превышать 2000 часов.

К сожалению, время очистки, а следовательно, и производительность системы очистки не регламентированы техническим заданием. Но, очевидно, что для увеличения КИУМ время очистки должно быть минимизировано: за каждый час простоя АЭС с номинальной мощностью 1200 МВт станция теряет от одного до двух миллионов рублей. Следует отметить, что для АЭС в проект закладывается КИУМ, равный 90%. В то же время эксплуатация АЭС показала, что для БН-350 он был равен 70–90%, для БН-600 – 77–80% среднегодовой, максимальный – 83,5%, минимальный – 47,9% (ремонт ЦПК в 1998 г.) [8], а для СуперФеникс – 20% [9]. Эти результаты показывают, что для обеспечения высокого КИУМ следует использовать все имеющиеся возможности, в том числе и увеличение производительности системы очистки.

Ограниченная емкость СО по примесям потребует не менее 10-ти замен ХЛ за 60 лет. При этих оценках принято, что накопление водорода в системе очистки первого контура исключено. Работы по замене ХЛ могут быть организованы так, что они не повлияют на КИУМ, но это потребует дополнительных затрат. Аналогичные возможности при ограниченной производительности СО, реализованной в проекте, практически исключены: потребуется изменение принятых конструкторских и схемных решений. Поэтому при проведении НИОКР улучшению этих показателей уделялось и уделяется самое серьезное внимание.

В частности, приведенные результаты анализа, показывающие неэффективное использование объема фильтра ХЛ, свидетельствуют о возможности увеличения ее емкости. За счет оптимизации использования объема фильтра (необходимы соответствующие конструкторские решения) емкость ХЛ можно увеличить на 5–6%, а из данных по доле объемной концентрации окиси натрия в различных зонах ХЛ следует, что в ХЛ, у которой минимизирована вероятность локального перекрытия сечения, емкость может достигать 30–40% об. Эти цифры, по-видимому, следует считать максимальными: их реализация в конкретной конструкции требует специальных НИОКР.

Очевидно, что основное условие увеличения производительности системы очистки – увеличение объема ХЛ при обеспечении необходимого теплосъема [5]. Так, например, было показано, что использование эффективной теплоизоляции позволит уменьшить ее толщину и за счет этого увеличить диаметр ловушки. Только за счет этого производительность может быть увеличена в 1,5 раза.

Условие необходимого теплосъема должно выполняться как на «чистой» ХЛ, так

и на «грязной» (в конце ресурса эксплуатации ХЛ), когда теплообмен в ловушке ухудшается из-за образования на поверхностях слоя примеси, пропитанной натрием. Расчет температурного напора в этих условиях затруднителен. Поэтому сначала выполняется расчет для чистой ловушки, затем оцениваются толщина слоя примесей и его вклад в дополнительное термическое сопротивление. Имеющиеся оценки показывают, что для ловушки, охлаждаемой жидким металлом, коэффициент теплопередачи может снижаться в два раза и более. Конкретные значения определяются количеством примесей, уловленных ХЛ, размещением поверхностей тепло- и массообмена внутри ХЛ и их площадью. Для расчета необходимых поверхностей теплообмена и расхода теплоносителя, охлаждающего ХЛ, был предложен и использован подход, приведенный в [7]. Результаты расчетов показывают, что реализация режима с $T_{\text{вых}} = 150^\circ\text{C}$ потребует увеличения охлаждаемой поверхности до 14 м^2 , а расхода натрия, охлаждающего ловушку, – до $20 \text{ м}^3/\text{ч}$. При расчетах по кодам TURBOFLOW и MASKA-LM были получены аналогичные результаты. Следовательно, конструкция ХЛ БН-1200 в настоящее время неоптимальна по производительности. Конкретные решения по ее оптимизации проводятся в настоящее время.

Для оптимизации теплогидравлических режимов ХЛ и осаждения примесей в ней в последнее десятилетие в ГНЦ РФ-ФЭИ разрабатываются специальные коды. Анализируя результаты расчетов процессов в ХЛ с использованием кодов, можно констатировать, что прогресс в расчетах теплогидравлических процессов несомненен. Но для оптимизации осаждения примесей на поверхностях ХЛ необходимо совершенствование моделей и уточнение констант. Уточнение констант и подтверждение достоверности результатов расчета по кодам (теплогидравлические и массообменные параметры) планируется с помощью специальных экспериментов на модели ХЛ в ГЦН РФ-ФЭИ.

ГОРЯЧИЕ ЛОВУШКИ

Обоснование геттеров для горячих ловушек (ГЛ) и опыт проектирования и эксплуатации ГЛ был получен на экспериментальных стендах и ЯЭУ космических аппаратов [10]. В качестве геттера был выбран йодидный цирконий и установлено, что привес циркония в результате взаимодействия с кислородом в натрии описывается уравнением

$$\Delta G/S = 1,8 \cdot 10^4 \cdot \exp(-17500/T) \cdot \tau^{0,51} = K \cdot \tau^{0,51}, \quad (1)$$

где $\Delta G/S$ – привес на единицу поверхности, $\text{кг} \cdot \text{м}^{-2}$; τ – время, ч; T – температура, К.

С учетом опыта по геттерной очистке была проанализирована возможность улучшения характеристик СО перспективного реактора большой мощности за счет применения ГЛ. При этом считали, что необходима очистка только от кислорода: водород первого и второго контуров аккумулируется в ХЛ второго контура. В частности, было принято, что привес фольги из йодидного циркония на единицу поверхности в зависимости от температуры и времени описывается уравнением (1).

Анализ [11] использования ГЛ в СО для очистки натрия первого контура от примеси кислорода показал, что при номинальных параметрах, когда температура теплоносителя, омывающего геттер, равна 550°C , могут быть обеспечены необходимые производительность и емкость ГЛ с геттером в виде фольги из йодидного циркония в ограниченном объеме. Однако в стояночных режимах, когда температура теплоносителя составляет $250\text{--}300^\circ\text{C}$, производительность ГЛ с йодидным цирконием снижается более чем на четыре порядка. Имеются геттеры – различные сплавы на основе циркония, у которых постоянная, характеризующая взаимодействие с кислородом в натрии, на порядок выше, чем для йодидного циркония. Однако и это не

позволяет существенно упростить конструкторские решения, обеспечивающие необходимую производительность в стояночном режиме. Поэтому была исследована возможность очистки от кислорода низкотемпературными сорбентами, но в настоящее время такие сорбенты не найдены [12].

Для обеспечения необходимой концентрации кислорода в натрии на номинальных параметрах необходима ГЛ, в которой используется цирконий в виде фольги толщиной 0,15 мм, при весе ее 400 кг. Объем такой ГЛ будет равен 130 л, ресурс – 10 тыс. часов. Расход натрия через нее ≈ 1 т/ч может обеспечиваться за счет ГЦН. Недостатки такой ГЛ: неэффективное использование циркония (не более 6%), снижение производительности в процессе эксплуатации ГЛ (при ресурсе 10 тыс. часов производительность снижается по сравнению с первым часом почти на два порядка).

Показана возможность повышения производительности и эффективности использования циркония, а следовательно, и ресурса работы при использовании ГЛ со взвешенным слоем [7]. При выборе диаметра ГЛ учитывалась необходимость размещения ее в баке реактора, желательно, без использования объемов, предназначенных для ХЛ, а при выборе диаметра шариков считалось, что емкость ГЛ со взвешенным слоем по кислороду и ее производительность должны быть не хуже, чем у ГЛ с фольгой. Оценки были сделаны для двух диаметров ГЛ 0,2 и 0,4 м при использовании шариков диаметром 0,1, 0,2, 0,6 и 2 мм. С учетом неизбежности образования мелкодисперсной фазы за счет разрушения окисной пленки, образующейся на поверхности геттера (ее характерный размер может быть существенно меньше размера шариков), была сделана оценка параметров взвешенной фазы для шариков диаметром 0,01 мм.

В результате расчета значений параметров взвешенного слоя для сферических частиц различных размеров при засыпке 300 кг циркониевого геттера в цилиндрическую ловушку с диаметром 200 или 400 мм получено, что

- поверхность геттера, выполненного в виде шаров, превышает поверхность геттера, выполненного из фольги толщиной 0,15 мм, даже при размерах шариков 0,6 мм, следовательно, скорость очистки такой ГЛ будет выше (по крайней мере, в начальный период работы ГЛ);
- перепад давления на слое не зависит от диаметра шариков;
- с учетом точности расчета не обнаружено зависимости высоты, пористости и объема взвешенного слоя по отношению к аналогичным параметрам для неподвижного слоя от диаметра частиц;
- объемный критический расход натрия для диаметров частиц 0,1–1 мм меняется от 0,73 до 17,7 м³/ч для диаметра ГЛ 0,4 м, а для ГЛ диаметром 0,2 м – от 0,2 до 4,4 м³/ч;

– скорость витания частиц образующейся мелкодисперсной фазы более чем на порядок выше критической скорости (ожигения). Оценка выполнена для диаметра частиц 10 мкм. Это говорит о необходимости использования фильтров для очистки натрия, поступающего из ГЛ в контур. Для его обоснования необходимо проведение целенаправленных НИОКР. В первую очередь, следует определить характеристики мелкодисперсной фазы, образующейся в ГЛ со взвешенным слоем.

Если принять, что в такой ГЛ допустим привес геттера, при котором будет происходить отслоение образующейся на поверхности циркония окисной пленки, то очевидно, что производительность ГЛ при ее эксплуатации будет снижаться медленнее, чем при ограничении допустимого привеса (происходит деблокирование поверхности циркония от образующейся оксидной пленки). При этом условии эффективность использования циркония возрастет. Конкретное значение может быть определено

в результате специальных НИОКР.

Экспериментальные исследования ГЛ с геттером в гранулированном виде из йодидного циркония проводились на натриевом стенде ПРОТВА-1. Было получено, что результаты [10] применимы для расчета ГЛ с гранулами из йодидного циркония; время, в течение которого они могут использоваться, ограничено, для его определения требуется НИР.

Для обеспечения требуемой чистоты теплоносителя в стояночных режимах за время, заданное техническим заданием, необходима ГЛ с подогревом натрия. Мощность, необходимая для работы ГЛ в стояночных режимах с производительностью не хуже чем ХЛ, составляет 385 кВт. При использовании рекуператора мощности могут быть распределены между рекуператором 322 кВт и нагревателем 63 кВт (при подогреве теплоносителя на нагревателе 50 К) [13].

Результаты численного моделирования очистки теплоносителя от кислорода с учетом источников в период освоения мощности при использовании ГЛ без системы подогрева площадью 32 тыс. м² показали возможность реализации режима «скоростной очистки». При использовании «скоростной очистки» поступление продуктов коррозии не отличается существенно от поступления продуктов коррозии при использовании штатного режима выхода на номинальные параметры [13], а время очистки СО с использованием ГЛ сокращается по сравнению с временем очистки СО с ХЛ. Результаты исследований по ГЛ показывают возможность и перспективность использования ГЛ, встроенных в бак реактора.

ОЧИСТКА ОТ РАДИОАКТИВНЫХ ПРИМЕСЕЙ

Поведение радиоактивных примесей в натрии и очистка его от них обобщено в монографии [14]. Сегодня установлено, что в ХЛ обнаруживается практически весь спектр радиоактивных примесей, присутствующих в натрии, однако ХЛ эффективно очищают натрий только от трития, йода и теллура. Поэтому для очистки от других радиоактивных примесей разрабатывались специальные методы очистки: различные виды графита – очистка от цезия; специальные стали – очистка от углерода; никель, специальные сплавы – очистка от марганца, кобальта. Остановимся на некоторых особенностях очистки от цезия как одной из основных радиоактивных примесей, определяющих радиоаквационную обстановку.

Предложен и обоснован метод сорбционной очистки натрия от цезия с использованием графитовых материалов. Из 12-ти испытанных в нашей стране материалов для применения в ловушках радионуклидов рекомендованы графиты марок ГМЗ, РБМ и ГМЗ-6. Рекомендовано в графитовой ловушке использовать гранулы диаметром ~4 мм, рабочая температура 160–320°C; расход определяется типом установки и конструкцией ловушки. Положительные результаты были получены на установках БОР-60, БН-350, БН-600 [14].

Важнейшая характеристика графита – коэффициент распределения цезия в системе натрий графит (K_{Cs}):

$$K_{Cs} = C_{гр} / C_{Na} \quad (2)$$

где $C_{гр}$ – концентрация цезия в графите; C_{Na} – концентрация цезия в натрии.

В лабораторных опытах результаты отличались на порядок – от 10^3 до 10^4 , в реакторных условиях до 10^5 и даже до 10^7 . Последнее значение – результат, полученный при очистке от цезия на ЕБР-2 специальным углеродным материалом RVS, который обладает структурой пористого стеклографита с большой поверхностью на единицу объема [14]. Характерно, что уже за первые 14 суток активность Cs^{137} и Cs^{134} была снижена с 13,0 и 1,67 до 2,1 и 0,29 МБк/кг. За два года работы в ловушке накопилось 9,25 ТБк цезия, а активность Cs^{137} и Cs^{134} снизилась до 0,25 и

0,025 МБк/кг. Обработка этих результатов с учетом веса графита (3,2 кг) и его поверхности (360 м²) показала, что коэффициент распределения цезия в конце эксперимента был равен 10⁷. Анализ этих результатов и сопоставление их с результатами, приведенными выше, свидетельствует в пользу диффузионного механизма усвоения цезия графитом с образованием соединений внедрения типа графитидов Cs₈Cs-C₆₀Cs, термодинамические характеристики которых определяют равновесное распределение цезия (вопрос практически не исследован). При таком механизме кинетика процесса зависит от квадрата геометрических размеров абсорбента:

$$D\tau_1/\delta_1^2 = D\tau_2/\delta_2^2, \quad (3)$$

откуда

$$\tau_1 = \tau_2 \cdot \delta_1^2 / \delta_2^2. \quad (4)$$

Сопоставление результатов для EBR-II ($\delta_2 = 0,02$ мм) и полученных на наших реакторах ($\delta_1 = 4$ мм) показывает, что времена достижения одинаковой степени равновесия могут отличаться более чем на четыре порядка. Следовательно, коэффициенты распределения, полученные на образцах, характерный размер которых равен даже одному миллиметру, не соответствуют условиям равновесия. По-видимому, приведенный выше разброс данных отражает влияние продолжительности опытов на результат измерения.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Несмотря на положительные результаты, полученные при создании систем очистки установок БН-350, БН-600, показано, что при размещении систем очистки в баке реактора из-за ограниченности объема требования к характеристикам систем очистки по производительности и емкости повышаются. Для выполнения этих требований целесообразно использовать систему очистки, включающую в себя как холодные, так и горячие ловушки. Оптимальное сочетание может быть получено в результате комплекса НИОКР, основными направлениями которых являются

- определение констант, необходимых для описания кинетики выхода примесей из конструкционных материалов (форма существования примеси в конструкционных материалах и коэффициенты диффузии примесей в них);

- для холодных ловушек

- исследование закономерностей процессов тепло- и массообмена прототипа ловушки БН-1200, доработка и верификация кодов на основании полученных результатов;

- оптимизация характеристик ХЛ с использованием верифицированных кодов;

- для горячих ловушек

- поиск перспективных материалов, определение зависимости скорости поглощения ими кислорода от времени, температуры и концентрации кислорода в натрии, ресурса работы в натрии, емкости по примесям;

- обоснование конструкции прототипа штатной ГЛ для перспективного реактора на быстрых нейтронах, изучение ее характеристик на экспериментальном стенде с учетом всех возможных режимов ее эксплуатации («скоростной» режим очистки, режим очистки с подогревом натрия).

Очистка от радиоактивных примесей и нерадиоактивных продуктов коррозии применительно к созданию систем очистки АЭС с перспективным реактором на быстрых нейтронах детально не рассматривается. Анализ на примере цезия показал, что для обоснования оптимальных решений необходим целенаправленный НИОКР.

Литература

1. Жидкие металлы: от первого теплофизического стенда к крупномасштабной атомной энер-

- гетике / Сб. статей под ред. А.Д. Ефанова, Ф.А. Козлова. – Обнинск: ГНЦ РФ-ФЭИ, 2001.
2. Паркинс В. Экспериментальный натриевый реактор / Доклады международной конференции по мирному использованию атомной энергии, Женева, 1955. – М.: Государственное энергетическое издательство, 1956. – С. 208-263.
 3. Кириллов П.Л., Козлов Ф.А., Субботин В.И., Турчин Н.М. Очистка натрия от окислов и контроль за их содержанием // Атомная энергия. – 1960. – Т. 8. – №1. – С. 30.
 4. Левич В.Г. Физико-химическая гидродинамика. – М.: Физматгиз, 1959.
 5. Козлов Ф.А., Волчков Л.Г., Кузнецов Э.К., Матюхин В.В. Жидкометаллические теплоносители ЯЭУ. Очистка от примесей и их контроль / Под ред. Ф.А. Козлова. – М: Энергоатомиздат, 1983.
 6. Козлов Ф.А., Волчков Л.Г. Новый способ регенерации ловушек для очистки щелочных металлических теплоносителей // Атомная энергия. – 1975. – Т. 39. – Вып. 4. – С. 310.
 7. Алексеев В.В., Ковалев Ю.П., Калякин С.Г., Козлов Ф.А., Кумаев В.Я., Кондратьев А.С., Матюхин В.В., Пирогов Э.П., Сергеев Г.П., Сорокин А.П., Торбенкова И.Ю. Системы очистки натриевого теплоносителя АЭС с реактором БН-1200 // Теплоэнергетика. – 2013. – №5. – С. 9-20.
 8. Баканов М., Потапов О. 30-летний опыт промышленной эксплуатации реактора БН-600 / Доклад на IX Международной научно-технической конференции «БН-600 – 30 лет». – г. Заречный, 07.02.2011. – URL: <http://energyland.info/analitic-show-51526> (дата обращения 09.09.2011).
 9. Ринейский А.А. Инжиниринг энергоблока с реактором на быстрых нейтронах БН-800 // Атомная стратегия. – 2006. – №23. – С. 23-25.
 10. Козлов Ф.А., Кузнецов Э.К. Очистка натрия от кислорода с помощью горячих ловушек / В сб. «Жидкие металлы». – М.: Атомиздат, 1967. – С. 340.
 11. Козлов Ф.А., Алексеев В.В., Ковалев Ю.П., Кумаев В.Я., Матюхин В.В., Орлова Е.А., Пирогов Э.П., Сорокин А.П., Щербаков С.И. Исследования в обоснование системы очистки натрия для быстрых реакторов // Атомная энергия. – 2012. – Т. 112. – Вып. 1. – С. 18-24.
 12. Паповяц А.К., Асхадуллин Р.Ш., Ягодкин И.В., Алексеев В.В., Богданович Н.Г., Скоморохова С.Н., Воронин И.А. Стендовые испытания новых сорбционно-фильтрующих и геттерных материалов для очистки натриевого теплоносителя / Сб. докл. научно-технической конференции «Теплофизика-2013». – Обнинск: ОНТИ ГНЦ РФ-ФЭИ. – 2014. – С. 421-428.
 13. Козлов Ф.А., Сорокин А.П., Коновалов М.А. Очистка геттерами жидкометаллических систем с натриевым теплоносителем от кислорода // Теплоэнергетика. – 2015. – В печати.
 14. Четкин Ю.В., Кизин В.Д., Поляков В.И. Радиационная безопасность АЭС с быстрым реактором и натриевым теплоносителем. – М.: Энергоатомиздат, 1983.

Поступила в редакцию 13.08.2015 г.

Авторы:

Козлов Федор Алексеевич, советник директора, доктор техн. наук

E-mail: kozlov@ippe.ru.

Сорокин Александр Павлович, заместитель директора, доктор техн. наук

E-mail: sorokin@ippe.ru.

Коновалов Михаил Александрович, инженер-исследователь, аспирант НИЯУ МИФИ

E-mail: kozlov@ippe.ru.

SODIUM PURIFICATION SYSTEMS FOR NPP WITH FAST REACTORS (RETROSPECTIVE AND PERSPECTIVE VIEWS)

Kozlov F.A.^{*}, Sorokin A.P.^{*}, Konovalov M.A.^{*,**}

^{*} «JSC SSC RF – Institute for Physics and Power Engineering n.a. A.I. Leypunsky». 1, Bondarenko Sq., Obrinsk, Kaluga reg., 249033 Russia

^{**} NRNU MEPhI. 31, Kashirskoye sh., Moscow, 115409 Russia

ABSTRACT

Coolant purification system is an essential part of any nuclear facility. The lack of experience with in-vessel purification systems in our country poses a series of tasks, one of them is to increase the effectiveness and capacity of such systems. A retrospective analysis of the purification systems in reactors from BR-5 to BN-1200, among them cold traps and cesium sorbents that ensure successful operation of sodium-cooled fast reactor NPPs, hot traps to be used for sodium purification from oxygen at NPPs has shown improvement potential of these systems. Based on the results of this work, recommendations for the directions of work toward improvement of characteristics of sodium purification systems for perspective NPPs with sodium coolant are given. The cold trap should be a mandatory element of the in-vessel primary coolant purification system. Hot traps can ensure the primary loop sodium purification from oxygen at NPP nominal operation, as well at lay regimes with heated coolant. Optimal solutions for removing radioactive impurities and non-radioactive products of corrosion from sodium coolant require goal-oriented R&D programs.

Key words: purification system, cold trap, hot trap, filter, impurities, oxygen, hydrogen, corrosion products, diffusion, heat and mass transfer, heater.

REFERENCES

1. Zhidkie metally: ot pervogo teplofizicheskogo stenda k krupnomasshtabnoj atomnoj energetike [Liquid metals: from first thermophysical test facility to the large-scale nuclear engineering]. Sb. statej pod red. A.D. Efanova, F.A. Kozlova [Paper collection under the editorship of A.D. Efanov, F.A. Kozlov]. Obninsk.: SSC RF-IPPE Publ., 2001 (in Russian).
2. Parkins V. Eksperimental'nyj natrievyj reaktor. [Experimental sodium reactor]. Doklady mezhdunarodnoj konferentsii po mirnomu isspol'zovaniyu atomnoj energii, Zheneva, 1955 [Reports of the international conference on peace use of an atomic energy, Geneva, 1955]. Moscow. Gosenergo izdat Publ., 1956, pp. 208-263 (in Russian).
3. Kirillov P.L., Kozlov F.A., Subbotin V.I., Turchin N.M. Ochistka natrija ot okislov i kontrol' za ih sodержaniem [Removal of oxides from sodium and tests for the oxide content]. *Atomic Energy*. 1960, v. 8, no. 1, p. 30 (in Russian).
4. Levich V.G. Fiziko-himicheskaya gidrodinamika [Physical and chemical hydrodynamics]. Moscow. Fizmatgiz Publ., 1959 (in Russian).
5. Kozlov F.A., Volchkov L.G., Kuznetsov E.K., Matyukhin V.V. Zhidkometallicheskie teplonositeli YaEU. Ochistka ot primesej i ih kontrol' [Liquid metal coolant for NPP. Purification from impurity and their control] / Under the editorship of F.A. Kozlov. Moscow. Energoatomizdat Publ., 1983 (in Russian).
6. Kozlov F.A., Volchkov L.G. Novyj sposob regeneracii lovushek dlja ochistki shhelochnyh metallicheskih teplonositelej [A new method of regeneration of traps for the purification of alkali-metal coolants] // *Atomic Energy*. 1975, v. 39, no. 4, p. 310 (in Russian).
7. Alekseev V.V., Kovalyov Yu.P., Kalyakin S.G., Kozlov F.A., Kumaev V.Ya., Kondrat'ev A.S., Matyukhin V.V., Pirogov E.P., Sergeev G.P., Sorokin A.P., Torbenkova I.Yu. Sistemy ochistki

natrievogo teplonositelya AES s reaktorom BN-1200 [Purification systems of the sodium coolant for NPP with BN-1200 reactor]. *Thermal Engineering*. 2013, no. 5, pp. 9-20 (in Russian).

8. Bakanov M., Potapov O. 30-letnij opyt promyshlennoj ekspluatatsii reaktora BN-600 [30-year-old experience of commercial operation of BN-600 reactor]. Doklad na IX Mezhdunarodnoj nauchno-tehnicheskoy konferentsii «BN-600 – 30 let» [The report at IX International scientific and technical conference «BN-600 – 30 years»]. Zarechnyj. 07.02.2011. Available at: <http://energyland.info/analitic-show-51526> (in Russian).

9. Rinejskij A.A. Inzhiniring energobloka s reaktorom na bystryh nejtronah BN-800 [Engineering of power-generating unit with BN-800 fast reactor]. *Atomic Energy*. 2006, no. 23, pp. 23-25 (in Russian).

10. Kozlov F.A., Kuznetsov E.K. Ochistka natriya ot kisloroda s pomosh'yu goryachih lovushek [Purification of sodium from oxygen by means of hot traps] / V Sb. «Zhidkie metally» [In collection «Liquid metals»]. Moscow. Atomizdat Publ., 1967, pp. 340-354 (in Russian).

11. Kozlov F.A., Alekseev V.V., Kovalev Yu.P., Kumaev V.Ya., Matjukhin V.V., Orlova E.A., Pirogov E.P., Sorokin A.P., Scherbakov S.I. Issledovaniya v obosnovanie sistemy ochistki natriya dlya bystryh reaktorov [Studies validating a sodium purification system for fast reactors]. *Atomic Energy*. 2012, v. 112, no. 1, pp. 18-24 (in Russian).

12. Papovyants A.K., Ashadullin R.Sh., Yagodkin I.V., Alekseev V.V., Bogdanovich N.G., Skomorohova S.N., Voronin I.A. Stendovye ispytaniya novyh sorbtsionno-fil'truyushhih i getternyh materialov dlya ochistki natrievogo teplonositelya [Test on test facility of new sorbition filtrating and getter materials for sodium coolant purification] // Sbornik dokladov nauchno-tehnicheskoy konferencii «Teplofizika-2013» [The collector of reports on scientific and technical conference «Thermal physics-2013»]. Obninsk. ONTI SSC RF-IPPE Publ. 2014, pp. 421-428 (in Russian).

13. Kozlov F.A., Sorokin A.P., Konovalov M.A. Ochistka getterami zhidkometallicheskih sistem s natrievym teplonositelem ot kisloroda [Purification by getters of liquid metal systems with the sodium coolant from oxygen]. *Thermal Engineering*. 2015. – V pechati (in Russian).

14. Chechetkin Yu.V., Kizin V.D., Polyakov V.I. Radiatsionnaya bezopasnost' AES s bystryim reaktorom i natrievym teplonositelem [Radiation safety of NPP with fast reactor and sodium coolant]. Moscow. Energoamtoizdat Publ., 1983 (in Russian).

Authors

Kozlov Fyodor Alekseevich, Adviser Director, Dr. Sci. (Engineering)

E-mail: kozlov@ippe.ru.

Sorokin Aleksandr Pavlovich, Deputy Director, Dr. Sci. (Engineering)

E-mail: sorokin@ippe.ru.

Konovalov Mihail Aleksandrovich, PhD Student, Research Engineer

E-mail: kozlov@ippe.ru.