

文章编号：0258-0926(2016)S2-0142-04；doi: 10.13832/j.jnpe.2016.S2.0142

非能动氢复合器表面催化反应与热工特性 实验研究

贺艳秋, 闫晓, 眭曦, 黄彦平, 咎元峰, 黄振, 王迎

中国核动力研究设计院中核核反应堆热工水力技术重点实验室, 成都, 610213

摘要: 针对非能动氢复合器催化板开展了表面催化反应与流动传热耦合特性机理实验研究, 分析了不同入口流速和入口氢浓度对化学反应与流动传热特性的影响。结果表明: 催化板表面温度总体上呈现出前段高、后段低的规律; 入口流速越大, 出口氢浓度越高, 入口流速对催化板表面温度呈现出非单调影响; 入口氢浓度越高, 出口氢浓度和催化板表面温度均升高。

关键词: 氢气风险; 表面催化反应; 热工特性; 催化板表面温度

中图分类号: TL331 **文献标志码:** A

Experimental Investigations on Interaction of Surface Catalyst and Thermal Hydraulics in Passive Autocatalytic Recombiner

He Yanqiu, Yan Xiao, Sui Xi, Huang Yanping,
Zan Yuanfeng, Huang Zhen, Wang Yin

CNNC Key Laboratory on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics Technology, Nuclear power institute of China, Chengdu, 610213, China

Abstract: An experimental investigation focusing on the interaction between surface catalytic reaction and thermal hydraulics is carried out. Analysis is conducted on the effects of different inlet velocities and hydrogen concentrations on the chemistry and thermal hydraulics. From the experiment results, it can be found that the distribution of catalytic temperature at first half of the sheet is higher than that of the second half. With the increasing of the inlet velocity, the outlet hydrogen concentration also increases. Relative to the inlet hydrogen concentration, the effect of inlet velocity exerted on outlet temperature and catalytic temperature are not monotonous. As inlet hydrogen concentration increases, outlet hydrogen concentration, along with catalytic temperature would increase therewith.

Key words: Hydrogen risk, Surface chemistry, Thermal hydraulics, Catalyst sheets temperatures

0 引言

核电厂严重事故工况下, 安全壳内会产生大量氢气。这些氢气聚集在安全壳内可能存在发生局部或整体性氢燃和氢爆的风险。非能动氢复合器(PAR)是核电厂缓解氢气风险的一种重要措施。为了评价和优化 PAR 缓解氢气风险的能力, 有必要对其内部机理, 如表面催化反应、流动传热特性等开展研究。国内外均针对 PAR 整机运行性能开展过实验研究和数值模拟研究^[1-6]。国际上

针对复合器机理现象开展过实验研究和数值模拟, 国内则几乎未开展相关机理实验。

本文采用两块单面涂覆铂钯混合物的催化板, 开展了表面催化反应与流动传热耦合特性机理实验研究, 获取了不同工况下的实验数据, 分析了不同入口条件对板区化学反应与热工特性的影响规律, 所获实验结果能够为数值模拟方法的验证提供数据支撑, 同时为认识 PAR 表面催化反应与热工耦合特性机理提供技术参考。

1 实验方法

1.1 实验回路

实验回路由实验本体、配气系统、氢气和氧气分析取样系统、排放系统组成，如图 1 所示。实验所需的不同氢浓度由氢气和空气混合配比得出，所需的氢气流量和空气流量由流量计以及调节阀控制，配制结果可通过实验本体入口的在线氢分析仪测量得到。氢气由高压气瓶提供，空气由无油空压机提供。在实验本体进出口均布置了热电偶，以测量气体进出口温度。在本体催化板外表面布置热电偶，测量催化板外表面温度。在本体入口还布置有精密压力表，用于监测本体内压力。同时在实验本体的出口段安装在线氢分析仪，可实时在线检测出口氢气浓度。

回路主要设计参数为：最大工作压力：0.5 MPa；工作温度：常温；空压机流量：0~156 m³/h；氢气浓度：0~20%。

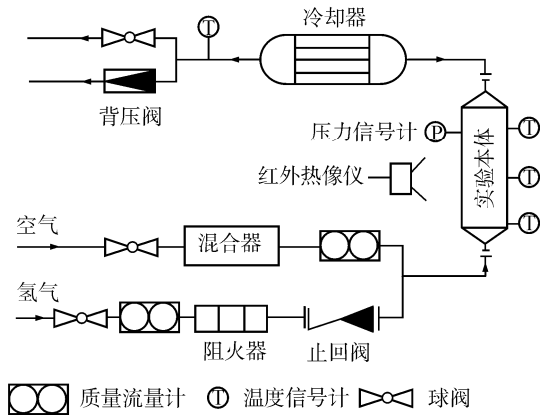


图 1 实验回路示意图

Fig. 1 Schematic Diagram of Experiment Loop

1.2 实验本体

实验本体主要由混合段、入口段、催化段以及出口段组成，如图 2 所示。混合段出口布置有流量分配板，用以均匀流量。本体壁厚 10 mm，入口段高度为 300 mm，催化段高度为 146 mm，出口段总高度为 344 mm。催化段长度为 296 mm，内腔宽度设计为 8.5 mm，催化段两侧加工成大小为 150 mm×300 mm 的矩形窗口，窗口内侧各边有 2 mm×1 mm 的凸起，用以安装催化板。为了方便测量催化板表面温度，同时又不干扰内部气体流场，实验中使用两块单面涂覆催化剂的催化板并联布置在矩形窗口，催化板尺寸 150 mm×300

mm×0.4 mm。混合气体从进口 a1、a2 流入实验本体，经过流量分配板向上流经催化段，在催化板内表面发生化学反应，最后经出口 b 进入排放系统。

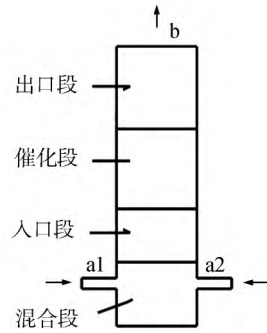


图 2 实验本体示意图

Fig. 2 Schematic Diagram of Test Section

1.3 测量系统

实验中需要测量的物理量有：进出口气体温度与流量、催化板表面温度、系统压力以及氢气浓度。

催化板外表面分布着 19 个热电偶以定量获得催化板温度分布情况，实验采用 $\phi 1.5$ 的级精度 N 型铠装热电偶，测量范围 0~550，最大误差满足 ± 1.5 或 $\pm 0.4\%$ 的要求。同时采用红外热像仪对催化板外表面温度实现全场非接触连续测量。本实验催化板厚度为 0.4 mm，本体外部全部包裹保温棉，如果保温棉绝热效果理想，催化板温度沿厚度方向没有梯度。考虑一定热损失后，由于催化板表面热流密度沿流动方向非均匀，不同高度内外表面温差存在差异。近似认为催化板导热系数与不锈钢一致，选取热流密度最大值，计算得到催化板内外表面温差小于 1，该值在热电偶测量误差范围内，可忽略。因此测量得到的催化板外表面温度近似为催化板内表面温度。

实验本体入口段安装有质量流量计以确定入口气体流速。高压氢气瓶出口安装质量流量计以确保氢气流量低于一定值。以上流量信号均采用 Saisors TF100 热式质量流量计进行测量，流量计测量范围分别为：0~150 m³/h 和 0~20 m³/h，精度为 $\pm 0.1\%$ 。

实验中现场压力指实验系统压力。由于实验本体进出口压差很小，入口段压力近似等于整个实验本体的压力。在本体入口段安装压力测量装置。本体进出口安装在线氢分析仪，其体积浓度

测量范围为 0~20%，精度为 $\pm 1.0\%$ 。

本实验过程中采用的所有测量仪表均在实验前进行专业标定，且所有测量信号均由数据采集系统采集并记录在计算机中。被测物理量的不确定度由采集精度和仪表精度共同决定，实验中主要测量参数的不确定度如表 1 所示。

表 1 测量结果的不确定度
Table 1 Results of Uncertainty Analysis

参数	不确定度
压力/kPa	± 0.85
气体流量/ $\text{m}^3\cdot\text{h}^{-1}$	± 0.13
氢气浓度/%	± 0.17
表面温度/	± 1.46

1.4 实验流程及工况

本实验工况参数范围为：催化段气体入口流速 V_{in} 为 $0.58 \sim 1.68 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ，入口氢气体积浓度 C_{in} 为 $2.04\% \sim 4.27\%$ 。为保证实验顺利进行，需首先对回路以及各信号进行调试检查。实验开始时，首先将催化段气体流速调整到工况预定值，然后通过缓慢调整高压氢气瓶阀门开度，确保氢气浓度达到工况预定值。随着反应的进行，所有参数达到稳定后，对催化板表面温度和氢气浓度数据进行记录。实验过程中先做相同空气流量条件下的低氢气浓度工况，当 C_{in} 需要增大时，直接缓慢调大氢气出口流量至 C_{in} 达到预定值，实验过程中如需改变本体入口空气流量，必须先关闭氢气出口阀门，待在线氢分析仪显示 C_{in} 为 0 时，再调节本体入口阀门使空气流量到达预定值。

2 实验结果与讨论

2.1 实验的可重复性

为验证实验的可重复性，确保实验数据的可靠性，对以下工况进行了重复性实验，如表 2 所示。在不同的时间分别对相同工况进行实验。本实验数据的重复性良好，催化板表面温度分布的

表 2 重复性实验工况
Table 2 Working Conditions in Repetitive Experiments

工况	$C_{in}/\%$	$V_{in}/\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$	$T_{in}/$	系统压力/kPa
A1	3.19	0.90	18.6	108.0
A2	3.05	0.94	19.3	108.5
B1	4.14	0.94	20.1	107.9
B2	4.05	0.98	20.4	108.5

重复性偏差最大为 1.57%，充分证明了实验回路系统的稳定性、测量系统和测量结果的可靠性。

2.2 催化板表面温度分布规律

实验研究了不同入口条件下催化板表面温度分布规律。红外成像结果表明催化板前段温度较高、后段温度较低。热电偶测量结果（图 3）表明，催化板表面温度规律保持与红外结果一致，大量的氢气在催化板前段及中段发生了反应，催化板表面温度最大值出现在催化板前段及中段处，这与 Reko-3 实验^[3]规律相符合。

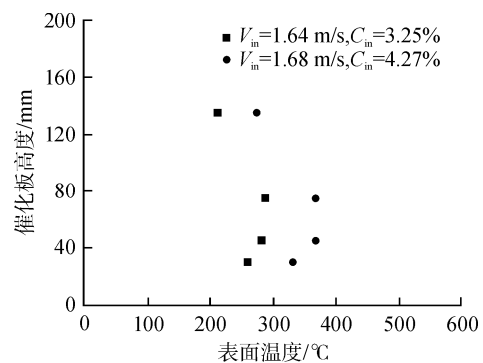


图 3 催化板表面温度分布（热电偶测量值）
Fig. 3 Catalyst Temperatures Distribution by Thermal Electrical Double

造成该现象的主要原因是混合气体进入催化区域后，沿催化板表面发生化学反应，氢气浓度沿催化板高度方向逐渐降低。气体流速随着化学反应的驱动沿催化板高度方向逐渐增大。综上，在催化板前段，氢气浓度高，气体流速低，发生化学反应的速率快，且发生化学反应的总量多，因此释放的热量更多，使得催化板表面温度更高。

2.3 入口流速的影响

实验研究了不同入口流速对催化板化学反应与热工特性的影响，选取的实验 V_{in} 分别为 0.6、0.9、 $1.6 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ，气体温度为 $15 \sim 18$ ，系统压力为 $106 \sim 124 \text{ kPa}$ ， C_{in} 为 2% 和 4%。出口氢浓度随着 V_{in} 的增大而增加。 V_{in} 越小，气体停留在反应区域内的时间越长，与催化剂接触时间越长，反应越充分，因此出口氢浓度越小。

图 4 是催化板表面温度随 V_{in} 的变化图。 C_{in} 为 2% 左右， V_{in} 为 0.58、0.84 和 $1.59 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 时对应的最大表面温度分别为 170.1、184.3 和 161.8 ； C_{in} 为 4% 左右， V_{in} 为 0.63、0.94 和 $1.68 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 时对应的最大表面温度分别为 314.9、332.6 和

368.4。由此可见,催化板表面温度最大值随 V_{in} 的变化关系并不单调,与 C_{in} 有关。

气体流速越大,催化反应的氢气量越多,化学释热就越多,催化板表面温度越高;同时气体流速越大,气体对流换热能力越强,催化板表面温度越低。因此对于某一特定工况,存在一个 V_{in} 使催化板表面温度达到最大,称为特征流速, C_{in} 越高,化学反应能力就越强,要达到最大温度所需的流速就越大。由图 4 可知,在 C_{in} 为 2% 时,特征流速在 $0.84\sim 1.59\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 之间,在 C_{in} 为 4% 时,特征流速大于 $1.68\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 。上述现象表明了表面催化反应与热工特性之间存在耦合关系,而该耦合关系决定了催化板表面温度值。

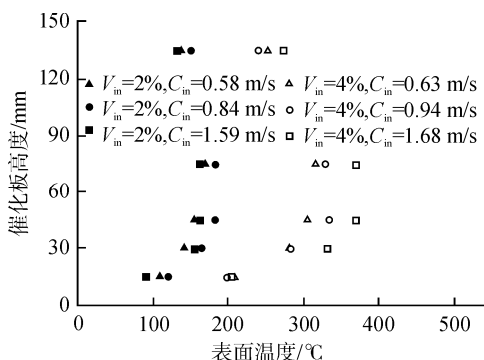


图 4 V_{in} 对催化板表面温度的影响
Fig. 4 Temperature of Catalyst Plane Surface Influenced By V_{in}

2.4 入口氢气浓度的影响

通过实验研究了 C_{in} 对催化板表面化学反应与热工特性的影响, C_{in} 为 2%、3% 和 4%, 气温为 $15\sim 18$, 系统压力为 $106\sim 124\text{ kPa}$, V_{in} 为 $0.9\sim 1.6\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 。

出口氢浓度随 C_{in} 的增加而有所增加。任何一个化学反应均由化学动力学和扩散过程共同控制,尽管 C_{in} 增加会使化学反应速率加快,发生反应的氢气总量增多,但是由于 C_{in} 较高,化学反应程度有限,最终剩余的出口氢浓度仍然较高。

图 5 为不同流速时, C_{in} 对催化板表面温度的影响。在本实验的流速范围内,随着 C_{in} 的增加,催化板表面温度整体增大。在其他条件一定时, C_{in} 增加,化学反应速率加快,化学释热量增加,催化板表面温度升高, C_{in} 对气体换热能力影响较小。因此随着 C_{in} 的增加,催化板表面温度升高。

3 结论

本文针对非能动氢复合器表面催化反应与热

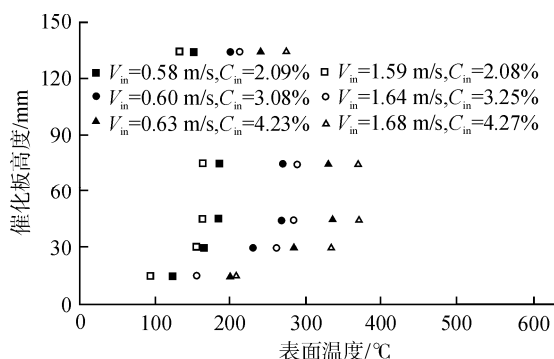


图 5 C_{in} 对催化板表面温度的影响
Fig. 5 Temperature of Catalyst Plane Surface Influenced by C_{in}

工特性开展了机理性实验研究,获得了多组实验数据,并分析了 V_{in} 和 C_{in} 对化学反应与热工特性的影响规律,得出以下结论:

- (1) 催化板表面温度分布规律呈现出前段高、后段低的趋势。
- (2) V_{in} 对化学反应及热工特性均有一定程度的影响,导致对板温的影响呈现出非单调规律。
- (3) C_{in} 对化学反应有重要影响,对热工特性影响较小,从而对板温呈现出单调规律。
- (4) 催化区域出口氢气浓度由化学动力学和扩散过程共同控制。

参考文献:

- [1] Thomas K Blanchat, Asimios Malliakos. Analysis of hydrogen depletion using a scaled passive autocatalytic recombiner[J]. Nuclear Engineering and Design, 1999, 187: 229-239.
- [2] Tadashi Fujii, Kiyoshi Fujimoto. A thermal hydraulic analysis model for catalytic hydrogen recombiners in the containment vessel of BWR[C]. 7th International conference on nuclear engineering, Tokyo, Japan, April 19-23, 1999.
- [3] Ernst Arndt Reinecke, Inga Maren Tragsdorf, Kerstin Gierling. Studies on innovative hydrogen recombiners as safety devices in the containments of light water reactors[J]. Nuclear Engineering and Design, 2004, 230: 49-59.
- [4] Meynet N, Ernst Arndt Reinecke, Kelmb S, et al. Detailed experimental and numerical study of passive autocatalytic recombiners[C]. ST-NH2, San Diego, California, June 13-17, 2010.
- [5] 姜韶堃, 赵宁, 朱敏, 等. 非能动氢复合器消氢性能研究: 催化板间距影响[J]. 舰船防化, 2013, 2: 1-5.
- [6] 王宏庆, 马韦刚, 姜峨, 等. 核电厂非能动氢复合器研制[J]. 核动力工程, 2014, 35(5): 113-116.

(责任编辑:王中强)