

УДК 66.011, 533.59

DOI 10.17223/19988621/46/9

А.А. Картавых, С.М. Губанов, А.Ю. Крайнов

**ОЦЕНКА ВЛИЯНИЯ НЕКОНДЕНСИРУЕМЫХ ГАЗОВ НА ПРОЦЕСС  
ДЕСУБЛИМАЦИИ ФТОРИСТОГО ВОДОРОДА<sup>1</sup>**

Представлены результаты экспериментальных измерений относительной величины проскока HF через осадительные емкости. Экспериментальные работы проводились путём имитации технологического процесса при температуре 136 К с использованием охлажденного воздуха для термостатирования емкости. Установлено, что величина проскока HF через осадительную емкость составляет менее 1 %.

**Ключевые слова:** десублимация, фтористый водород, неконденсируемые газы, экспериментальные измерения.

В производстве по разделению гексафторида урана принята трехступенчатая схема фракционной разгонки газовой смеси. Основными компонентами смеси, подлежащими фракционной разгонке, являются гексафторид урана (ГФУ), фтористый водород (HF) и неконденсируемые газы. Процесс фракционной разгонки организован при давлениях и температурах, исключающих образование жидкой фазы у веществ.

HF является основной примесью, подлежащей удалению из состава газовой смеси. Для десублимации HF применяются специальные ёмкости – осадители (ОС). ОС охлаждаются жидким азотом с температурой 77 К.

При обращении с жидким азотом помимо неудобств, связанных с большой долей ручного труда (операции по заливке жидкого азота в сосуды Дьюара производится вручную), присутствуют вредные и опасные производственные факторы: низкая температура, способность  $N_2$  к вытеснению кислорода, возможность повышения давления в ограниченном объёме и другие. Применение жидкого азота в качестве холодоносителя экономически затратно, а необходимость хранить запас жидкого азота влечёт дополнительные эксплуатационные расходы.

Рассмотрению возможности исключения применения жидкого азота в технологии фракционной разгонки газовой смеси посвящена настоящая статья.

В публикациях [1–5] рассматривались перспективы использования холодного воздуха в качестве холодоносителя при необходимости организовывать технологический процесс при низких температурах. При этом возникает вопрос о величине температурного уровня ведения процесса десублимации HF, удовлетворяющего технологическим требованиям.

В [1] на основе разработанной математической модели представлены результаты расчетов процесса десублимации HF в ОС при температурах 77 К (охлаждение жидким азотом) и 113 К (охлаждение воздухом). Из расчетов установлено, что концентрация HF вследствие вымораживания быстро уменьшается до величины, соответствующей давлению насыщенного пара HF при температуре стенок ОС. Остаточная концентрация паров HF при охлаждении воздухом с температу-

<sup>1</sup> Работа выполнена при финансовой поддержке гранта РФФИ № 16-48-700732 p\_a.

рой 113 К составляет  $1.04 \cdot 10^{-6}$  кмоль/м<sup>3</sup>, при охлаждении жидким азотом с температурой 77 К –  $1.5 \cdot 10^{-10}$  кмоль/м<sup>3</sup> [1]. Расчеты [1, 2] показывают, что температура HF по ходу движения во внутреннем пространстве ОС в случае охлаждения жидким азотом и холодным воздухом достигает температуры стенки в первой трети ОС.

В [4] приводятся оценки величин проскоков HF и отмечается, что применение жидкого азота в качестве хладагента обеспечивает степень очистки газовой смеси от HF в пределах 70–90 %. В [4] также упоминается, что при охлаждении холодным воздухом с температурой 103 К величина проскока HF будет составлять 30–40 % общего расхода газовой смеси.

С целью определения величин проскоков HF в существующих ОС проведены экспериментальные работы осаждения HF из газовой смеси при температуре 136 К. Экспериментальные работы проводились на экспериментальной установке [3, 6] с конструкционными изменениями.

Установка (рис. 1) состоит из перевернутого вверх дном ОС (2), помещённого в специально разработанный отсек охлаждения (4), покрытый слоем низкотемпературной теплоизоляции ArmaFlex. Отсек охлаждения имеет два патрубка: нижний для подачи охлажденного воздуха от воздушной холодильной машины (ВХМ) и верхний для отбора отепленного воздуха из отсека в ВХМ. Для организации равномерного течения холодного воздуха вдоль стенки отсека охлаждения изготовлена напайка из стальной ленты в виде серпантина. ОС (2) имеет два патрубка. К напускному патрубку посредством коллектора подсоединяется емкость  $V = 6$  л с безводным фтористым водородом (1) и напускное устройство (3). К отсосному патрубку посредством коллектора подключены приборы измерения давления: мановакууметр (5); оптический манометр ОМ-6-50 (6); оптический манометр ОМ-7-1 (7); вакуумметр Televac MP4A (8). К отсосному патрубку подключена система откачки, соединенная металлическим трубопроводом и включающая ОС (9), помещенный в отсек охлаждения (14); узел защиты вакуумного насоса, состоящий из колонки с химическим поглотителем известковым (ХПИ) (10); вакуумный насос ВН-1 (11).

Методика проведения опытных работ заключалась в имитации технологического процесса десублимации HF. В напускной патрубок экспериментальной установки через коллектор подавалась газовая смесь HF и воздуха (в соотношении 90 % HF и 10 % воздуха) с расходом, близким к величине существующего технологического процесса. Расход HF поддерживался с помощью критической шайбы (12), а расход воздуха с помощью напускного устройства (3), отрегулированного на расход воздуха  $G = 0.1$  кг/сут. Для проведения опытов использовали безводный фтористый водород марки «А», удовлетворяющий требованиям ГОСТ 14022-88, что соответствует содержанию основного вещества 99.9 мас.% и осушенный воздух, с точкой росы  $-70$  °С. Установка была отвакуумирована до давления не более 90 мкм. рт. ст. и проверена на плотность. Путем трёхкратного напуска и откачки безводного HF в установку была проведена пассивация внутренних поверхностей установки. Перед проведением работ проведено взвешивание ОС (9) и емкости с HF (1) на весах Metler-Toledo (погрешность 0.5 г). Предварительно ОС (9) был охлажден жидким азотом до температуры 77 К, ОС (2) охлажден воздухом, генерируемым ВХМ до температуры 136 К, ВН-1 включен в работу. Температура стенки ОС определялась как средняя температура между подачей и отбором воздуха ВХМ.

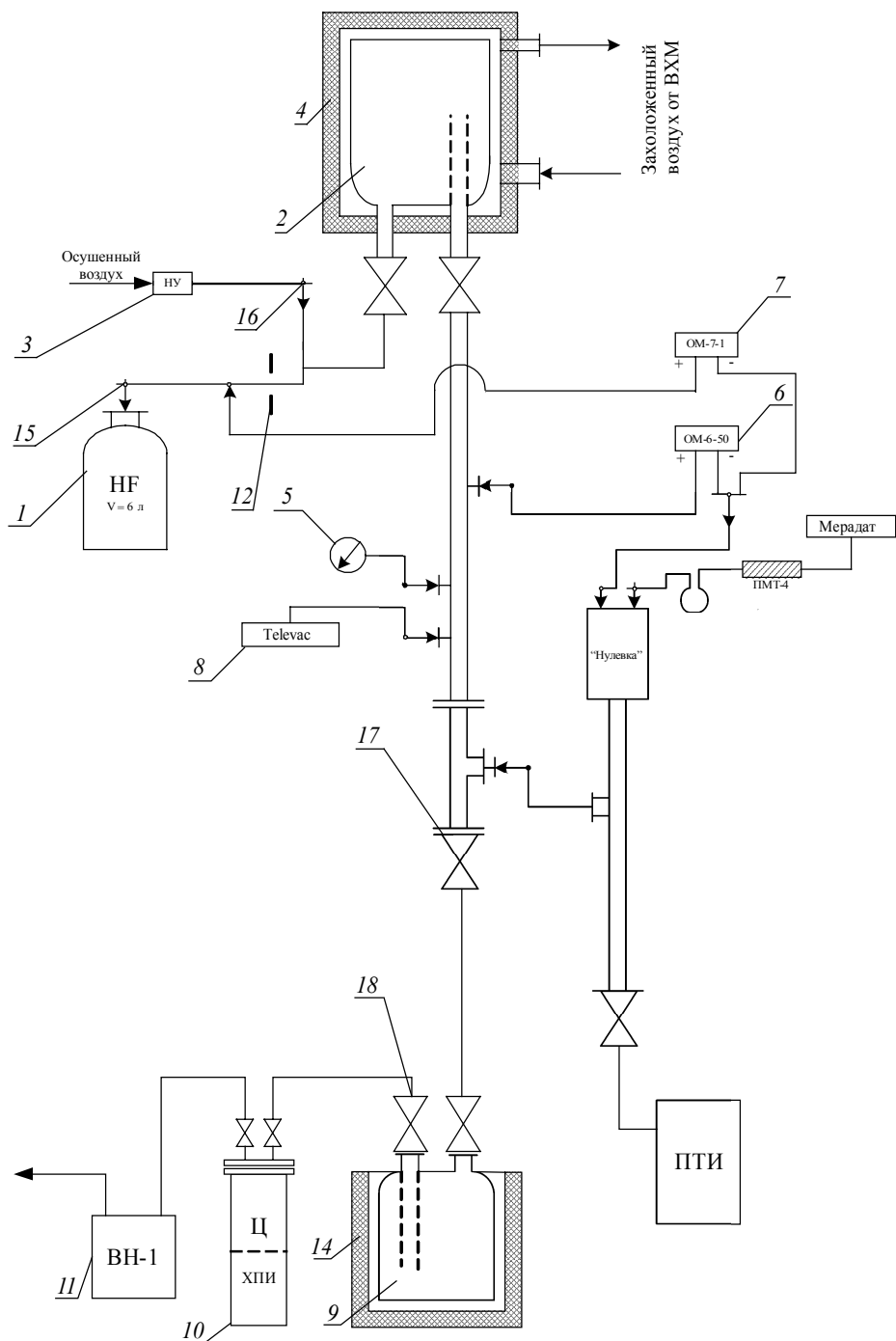


Рис. 1. Принципиальная схема экспериментальной установки  
 Fig 1. Basic scheme of the experimental setup

После окончания подготовительных работ открывались вентили подачи воздуха (16) и HF (15), давление в напускном коллекторе до шайбы (12) поддерживалось равным 30 мм рт.ст., в откачном коллекторе давление соответствует технологическому процессу, и составляет 1 мм рт.ст. Напуск газовой смеси продолжался не менее 8 ч, во время которых периодически подливался жидкий азот в отсек охлаждения (14).

После подачи газовой смеси, закрывались вентили подачи воздуха (16) и HF (15), установка откачивалась в ОС (9). Подача холодного воздуха в отсек охлаждения прекращалась. ОС (9) отсоединялась для отогрева. Далее ОС (9) и ёмкость с HF (1) взвешивались. Определялись количество HF в (1) и количество проскока HF в ОС (9).

Проверка количества десублимированного HF в ОС (2) производилась следующим образом: после отогрева ОС (2) выполнялась переконденсация HF во вновь установленный ОС (9). ОС (9) предварительно взвешивался и охлаждался жидким азотом в отсеке охлаждения (14). Коммуникации откачной системы до вентилей (17) откачивались ВН-1 (11) до давления не более 1 мм рт.ст., после чего закрывался вентиль (18) на вновь установленном ОС (9) и открывался вентиль (17) для переконденсации HF из ОС (2). После переконденсации ОС (9) изымался из отсека охлаждения (14) и взвешивался. Затем подводился расчет массового баланса количества десублимированного HF. Результаты расчета представлены в таблице.

**Результаты подведения материального баланса десублимированного HF**

Показатели	Номер опытной работы		
	1	2	3
Время напуска HF в установку, мин	485	480	480
Массовая скорость подачи HF в установку, г/мин	0.873	0.793	0.830
Количество напущенного HF, г	423.57	380.43	398.60
Изменение веса ОС (9) после переконденсации, г	+420.00	+378.87	+396.23
Изменение веса ОС (9) после переконденсации HF из ОС (2) после окончания напуска HF, г	-0.10	+1.30	+0.87
Материальный баланс HF, г / % от количества напущенного HF	3.67 / 0.87 %	0.26 / 0.07 %	1.50 / 0.38 %

Из таблицы видно, что наличие неконденсируемых газов не оказывает влияния на процесс десублимации HF при охлаждении ОС воздухом с температурой 136 К. Величина не соответствия количества испарённого HF из емкости и десублимируемого HF в ОС (проскок HF через осадительную емкость) составляет менее 1 %. Очевидно что при охлаждении ОС жидким азотом при температуре 77 К, проскок HF будет еще меньше. Для существующего технологического процесса проскок HF в размере 1 % допустим, так как газовая смесь проходит дальнейшую очистку на химпоглонительных установках.

Сравнение затрат указывает на необходимость отказа от потребления жидкого азота. Так, разделительным производством в 2015 г. для ведения технологического процесса фракционной разгонки затраты на приобретение жидкого азота составили около 37 млн руб. (1 450 818 л жидкого азота за 2015 г.). В случае применения холодного воздуха годовые эксплуатационные затраты составят не более 13 млн руб.

Таким образом, проведенная экспериментальная работа на демонстрационном стенде с имитацией процесса фракционной разгонки газовой смеси является доказательством возможности реализации процесса десублимации HF с использовани-

ем холодного воздуха. Такой способ является менее затратным для ведения процесса десублимации HF из-за значительного снижения эксплуатационных затрат. Выполненные опытные работы создают предпосылки для применения более перспективного способа охлаждения ОС.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Васенин И.М., Губанов С.М., Дурновцев М.И., Крайнов А.Ю., Чуканов М.В. Физико-математическое моделирование десублимации фтористого водорода из газовой смеси на стенки конденсатора // Вестник Томского государственного университета. Математика и механика. 2014. № 5(31). С. 76–82.
2. Дурновцев М.И., Крайнов А.Ю., Губанов С.М. Расчет десублимации фтористого водорода из газовой смеси на стенках двух последовательно расположенных емкостей // Физико-технические проблемы в науке, промышленности и медицине: сборник тезисов докладов VII Международной научно-практической конференции. Томск, 2015. 96 с.
3. Дурновцев М.И., Крайнов А.Ю., Губанов С.М., Чуканов М.В. Измерение давления насыщенных паров фтористого водорода в области низких температур // Изв. вузов. Физика. 2015. Т. 58. № 2/2. С. 10–13.
4. Громов О.Б. Анализ технологических схем защиты вакуумных насосов коллекторов КИУ на разделительных заводах ТК ОАО «ТВЭЛ» и последствия отказа от применения жидкого азота в качестве хладагента // Громовские чтения 2014: Материалы Всероссийской научно-практической конференции, приуроченной к 105-летию со дня рождения Б.В. Громова. 2014. С.28-29.
5. Губанов С.М., Дурновцев М.И., Картавых А.А., Чуканов М.В., Крайнов А.Ю., Шрагер Э.Р. Оценка возможности применения воздушного охлаждения для замещения использования жидкого азота в производстве по разделению изотопов урана // Фундаментальные и прикладные проблемы современной механики (ФППСМ-2016): Сборник трудов IX Всероссийской научной конференции, г. Томск, 21–25 сентября 2016 года. Томск: Томский государственный университет, 2016. С. 389–391.
6. Дурновцев М.И., Губанов С.М., Картавых А.А., Крайнов А.Ю. Стенд для измерения давления насыщенных паров при низких температурах // Фундаментальные и прикладные проблемы современной механики (ФППСМ-2016): Сборник трудов IX Всероссийской научной конференции, г. Томск, 21–25 сентября 2016 года. Томск: Томский государственный университет, 2016. С. 392.

Статья поступила 31.01.2017 г.

Kartavykh A.A., Gubanov S.M., Krainov A.Yu.(2017) ESTIMATION OF THE EFFECT OF NON-CONDENSABLE GASES ON THE PROCESS OF HYDROGEN FLUORIDE DESUBLIMATION *Tomsk State University Journal of Mathematics and Mechanics*. 46. pp. 70–75

DOI 10.17223/19988621/46/9

In industrial separation processes, a three-stage scheme of the fractional distillation of the gas mixture is applied. The basic components of the mixture for fractional distillation are as follows: uranium hexafluoride (HF), hydrogen fluoride (HF), and non-condensable gases. HF is the main impurity to be removed from the gas mixture. To desublimite HF, special settling tanks are used. As a coolant medium, liquid nitrogen is taken for cooling the settling tanks down to the temperature of 77 K. Taking cold air as a cooler allows one to reduce expenses and eliminate the harmful and dangerous factors of the production. The residual concentration of HF vapors is higher when cooling with air rather than with liquid nitrogen. An experimental work was performed by simulating the technological process at the temperature of 136 K for determining the value of HF slips in available settling tanks. This work was conducted on a modernized experimental facility. The experiments predetermine an application of a new method of cooling the settling tanks.

Keywords: desublimation, hydrogen fluoride, non-condensable gases, experimental measurements.

KARTAVYKH Andrey Aleksandrovich (Tomsk State University, Tomsk, Russian Federation).  
E-mail: AAKartavykh@yandex.ru

GUBANOV Sergey Mikhailovich (Candidate of Physics and Mathematics, "SIBIRIANGROUP OF CHEMICAL ENTERPRISES", Tomsk, Russian Federation).  
E-mail: SMGubanov@yandex.ru

KRAINOV Aleksey Yurevich (Doctor of Physics and Mathematics, Tomsk State University, Tomsk, Russian Federation).  
E-mail: akrainov@ftf.tsu.ru

## REFERENCES

1. Vasenin I.M., Gubanov S.M., Durnovtsev M.I., Krainov A.Yu., Chukanov M.V. (2014) Fiziko-matematicheskoe modelirovanie desublimatsii fluoristogo vodoroda iz gazovoy smesi na stenki kondensatora [Physical and mathematical modeling of hydrogen fluoride desublimation from a gas mixture onto walls of the condenser]. *Tomsk State University Journal of Mathematics and Mechanics*. 5(31). pp. 76–82.
2. Durnovtsev M.I., Krainov A.Yu., Gubanov S.M. (2015) Raschet desublimatsii fluoristogo vodoroda iz gazovoy smesi na stenkakh dvukh posledovatel'no raspolozhennykh emkostey [Calculation of hydrogen fluoride desublimation from a gas mixture onto the walls of two consistently located capacities]. *Fiziko-tekhnicheskie problemy v nauke, promyshlennosti i meditsine: sbornik tezisev dokladov VII Mezhdunarodnoy nauchno-prakticheskoy konferentsii – Physical and technical problems in science, industry, and medicine: collection of the theses of reports on VII International scientific and practical conference*. Tomsk. p. 96.
3. Durnovtsev M.I., Krainov A.Yu., Gubanov S.M., Chukanov M.V. (2015) Izmerenie davleniya насыshchennykh parov fluoristogo vodoroda v oblasti nizkikh temperatur [Measuring the pressure of saturated vapors of a hydrogen fluoride at low temperatures]. *Izvestiya vysshikh uchebnykh zavedeniy. Fizika*. 58(2/2). pp. 10–13.
4. Gromov O.B. (2014) Analiz tekhnologicheskikh skhem zashchity vakuumnykh nasosov kollektorov KIU na razdelitel'nykh zavodakh TK OAO «TVEL» i posledstviya otkaza ot primeneniya zhidkogo azota v kachestve khladagenta [The analysis of technological schemes of vacuum pump protection in collectors CEI at separation factories FCOR TVEL and the consequences of refusal from application of liquid nitrogen as a coolant]. *Gromovskie chteniya: Materialy vserossiyskoy nauchno-prakticheskoy konferentsii, priurochennoy k 105-letiyu so dnya rozhdeniya B.V. Gromova – Gromov's readings: Proceedings of all-Russian scientific and practical conference dedicated to the 105<sup>th</sup> anniversary of B.V. Gromov*. pp. 28–29.
5. Gubanov S.M., Durnovtsev M.I., Kartavykh A.A., Chukanov M.V., Krainov A.Yu., Shrager E.R. (2016) Otsenka vozmozhnosti primeneniya vozdušnogo okhlazhdeniya dlya zameshcheniya ispol'zovaniya zhidkogo azota v proizvodstve po razdeleniyu izotopov urana [Assessment of the possibility of application the air cooling instead of liquid nitrogen in production on the separation of uranium isotopes] *Fundamental'nye i prikladnye problemy sovremennoy mekhaniki: Sbornik trudov IX vserossiyskoy nauchnoy konferentsii – Fundamental and applied problems of the modern mechanics: Proceeding of IX all-Russian scientific conference*. Tomsk: Tomsk State University. pp. 389–391.
6. Durnovtsev M.I., Gubanov S.M., Kartavykh A.A., Krainov A.Yu. (2016) Stend dlya izmereniya davleniya насыshchennykh parov pri nizkikh temperaturakh [The stand for measurements of saturated vapor pressure at low temperatures]. *Fundamental'nye i prikladnye problemy sovremennoy mekhaniki: Sbornik trudov IX vserossiyskoy nauchnoy konferentsii – Fundamental and applied problems of modern mechanics: Proceedings of IX all-Russian scientific conference*. Tomsk: Tomsk State University. p. 392.