

ISSN 0021–3411

ИЗВЕСТИЯ
ВЫСШИХ УЧЕБНЫХ ЗАВЕДЕНИЙ

ФИЗИКА

ФИЗИКА ЭЛЕМЕНТАРНЫХ ЧАСТИЦ И ТЕОРИЯ ПОЛЯ

ФИЗИКА ПОЛУПРОВОДНИКОВ И ДИЭЛЕКТРИКОВ

ФИЗИКА КОНДЕНСИРОВАННОГО СОСТОЯНИЯ

ФИЗИКА МАГНИТНЫХ ЯВЛЕНИЙ

ОПТИКА И СПЕКТРОСКОПИЯ

КВАНТОВАЯ ЭЛЕКТРОНИКА

ФИЗИКА ПЛАЗМЫ

2-2·2021

ИЗДАНИЕ
ТОМСКОГО ГОСУНИВЕРСИТЕТА

Учредители:
Министерство науки и высшего образования Российской Федерации,
Федеральное государственное автономное
образовательное учреждение высшего образования
«Национальный исследовательский Томский государственный университет»

РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ

*Потекаев А. И., проф. (гл. редактор), Россия; Багров В. Г., проф. (зам. гл. редактора), Россия;
Козырев А. В., проф. (зам. гл. редактора), Россия; Портнова Т. С., к.ф.-м.н. (отв. секретарь), Россия;
Борисов А. В., проф., Россия; Воеводин В. Н., чл.-корр. НАН Украины; Войцеховский А. В., проф., Россия;
Гаман В. И., проф., Россия; Gitman D. M., проф., Бразилия; Глезер А. М., проф., Россия;
Guoyi Tang, проф., Китай; Джафаров Р. Г., д.ф.-м.н., Азербайджан; Колобов Ю. Р., проф., Россия;
Кортаев А. Д., проф., Россия; Майер Г. В., проф., Россия; Месяц Г. А., акад. РАН, Россия;
Неклюдов И. М., акад. НАН Украины; Per Jensen, проф., Германия; Ратахин Н. А., акад. РАН, Россия;
Саранин А. А., чл.-корр. РАН, Россия; Singh Haridwar, проф., Индия; Суржиков А. П., проф., Россия;
Углов В. В., проф., Беларусь; Ушаков В. Я., проф., Россия; Чумляков Ю. И., проф., Россия;
Шановалов А. В., проф., Россия; Якубов В. П., проф., Россия*

К сведению авторов!

Ссылку на это издание следует оформлять следующим образом:
Автор(ы) // Изв. вузов. Физика. – 2021. – Т. 64. – № 2-2. – С. ...

Сведения о журнале можно найти на сайте в Интернете:
<http://www.ntl.tomskinvest.ru>

Электронная версия журнала «Известия высших учебных заведений. Физика»
доступна на сайте: www.elibrary.ru

Электронная версия «Russian Physics Journal»
(перевод на английский язык журнала «Известия вузов. Физика»)
доступна на сайте: www.springer.com

**Журнал «Известия высших учебных заведений. Физика» входит в перечень
рецензируемых научных журналов, включенных в список ВАК,
для публикации основных результатов кандидатских и докторских диссертаций**

Свидетельство о регистрации ПИ № 77-11546 от 4 января 2002 г.
выдано Министерством Российской Федерации по делам печати,
телерадиовещания и средств массовых коммуникаций

Старший редактор *Л. А. Пивоварова*
Верстка *Л. В. Пермяковой*

Подписано к печати 22.03.2021. Выпуск в свет 31.03.2021.
Формат 60×84 1/8. Бум. книжно-журнальная. Гарнитура Таймс. Печать офсетная.
Усл. п. л. 21,04. Усл. кр.-отт. 21,39. Уч.-изд. л. 23,56.
Тираж 100 экз. Заказ № 6.

Адрес редакции: 634050, г. Томск, пл. Новособорная, 1, Сибирский физико-технический институт,
редакция журнала «Известия высших учебных заведений. Физика», тел. (3822) 533-335
Адрес издателя: Издательство научно-технической литературы, 634034, г. Томск, ул. Студенческая, 4

Адрес типографии: ИП Умярова Е.Л., 634050, г. Томск, ул. М. Горького, 53

ФИЗИКО-ТЕХНИЧЕСКИЕ ПРОБЛЕМЫ РАЗВИТИЯ АТОМНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ

ТЕМАТИЧЕСКИЙ ВЫПУСК

Под редакцией докт. физ.-мат. наук, профессора **М.Д. НОСКОВА**

СОДЕРЖАНИЕ

Бондаренко Е.А., Варлачев В.А., Емец Е.Г. Оптимизация параметров нейтронных полей реактора ИРТ-Т при создании комплекса для радиационных испытаний изделий электронной техники.....	3
Головин Н.П., Егоров А.В., Родина Е.А., Хомяков Ю.С. Исследование запаса реактивности в инновационных реакторах на быстрых нейтронах большой мощности в ЗЯТЦ.....	8
Грачев В.А., Сазонов А.Б. Образование радиолитического водорода в БВ ВВЭР-1000 в результате аварийной выгрузки топлива.....	13
Грачев В.А., Сазонов А.Б., Быстрова О.С., Задонская Ю.Н., Задонский Н.В. Образование и распределение трития в первом контуре ВВЭР: математическое моделирование.....	20
Иванов О.П., Потапов В.Н., Самойлова М.А. Визуализация источников гамма-излучения с помощью сканера с антиколлиматором.....	27
Истомин А.Д., Кеслер А.Г., Кокорев О.Н., Носков М.Д., Чеглоков А.А. Система информационного обеспечения управления полигоном глубинного захоронения жидких радиоактивных отходов.....	34
Карпов С.А., Бутов В.Г., Солоненко В.А., Брендаков В.Н. Численное исследование турбулентного течения в плазменном реакторе с учетом химических реакций.....	40
Кокорев О.Н., Адонин Н.Р., Носков М.Д., Заведий Т.Ю., Щипков А.А. Автоматизированная система гидродинамического мониторинга для обеспечения экологической безопасности пункта глубинного захоронения жидких радиоактивных отходов.....	46
Колотков Г.А., Матина П.Н. Гамма-спектрометрическое определение содержания урана, тория и калия в почвах юго-востока Томской области.....	52
Кылышканов М.К., Ярошенко Н.Н., Гусакова Г.В., Дорн А.А. Исследования по получению оксида гадолиния из отхода технологии переработки уран-гадолинийсодержащих материалов.....	57
Кылышканов М.К., Ярошенко Н.Н., Кириллов Е.В., Алдажаров Т.М., Болтанов А.В., Долганов А.В., Титов М.В. Развитие технологий изготовления ядерного керамического топлива.....	61
Муслимова А.В., Софронов В.Л., Буйновский А.С., Попова К.Е. Исследование процесса переработки монацита фторидно-сульфатным методом.....	67
Никишкин Т.Г. Разработка модели портативного сцинтилляционного детектора гамма-излучения на основе твердотельных микропиксельных лавинных фотодиодов.....	73
Попова К.Е., Гладышев А.В., Носкова С.Н., Носков М.Д. Применение численного моделирования для оценки эффективности использования дополнительных скважин при добыче урана методом подземного выщелачивания.....	78
Седанова Е.П., Кашкаров Е.Б., Сыртанов М.С., Лидер А.М. Получение композитов на основе карбида кремния из прекерамических бумаг методом искрового плазменного спекания.....	83
Сербин А.В., Гуцул М.В., Носков М.Д., Щипков А.А. Применение искусственных нейронных сетей для прогнозирования состояния насосных агрегатов полигона скважинного подземного выщелачивания урана.....	90
Смирнов К.В., Фаустов Б.А., Фаустова И.Л. Метод оптического потока.....	96
Смирнов К.В., Фаустов Б.А., Фаустова И.Л. Система распределенного вычисления поля скоростей.....	100
Сумин Г.В., Денисевич А.А., Горюнов А.Г., Ливенцов С.Н. Разработка системы измерения малых расходов радиоактивных жидкостей радиохимических производств.....	106
Суханов Е.А., Селиваникова О.В. Программно-аналитический комплекс по проектированию и оценке защищенности периметра ядерного объекта.....	113
Теровская Т.С., Кеслер А.Г., Носков М.Д. Математическая модель изменения состояния продуктивного горизонта при серно-кислотном скважинном выщелачивании урана.....	119

Ушаков А.О., Ожерельев О.А. Исследование процесса воздействия СВЧ-излучения на оксиды урана в воздушной и восстановительной атмосферах.....	125
Ушаков А.А., Орлов А.А. Математическое моделирование процесса заполнения каскада газовых центрифуг для разделения изотопов никеля при различной величине потока питания	131
Федин А.С., Ожерельев О.А. Использование различных нагревательных устройств для проведения сублимации неорганических фторидов	135
Федоров М.С., Зозуля Д.В., Жиганов А.Н., Софронов В.Л. Применение технологии карботермического синтеза при производстве смешанного нитрида урана и плутония.....	142
Шайдуллин С.М., Беланова Е.А., Козлов П.В., Ремизов М.Б., Дворянчикова Е.М. Отработка процесса варки боросиликатных стекол с имитаторами компонентов ВАО и исследование их химической устойчивости	148
Шваб А.В., Соломаха А.Е. Численное моделирование аэродинамики воздушно-центробежного классификатора.....	155
Шестак О.О., Денисова О.В., Деулин А.А. Моделирование международного бенчмарка OECD/NEA «Cold Leg Mixing CFD-UQ» по пакету программ «Логос»	162
Ширманов И.А., Костарев В.С., Литвинов Д.Н., Щеклеин С.Е. О применении компрессии и неядерного перегрева пара на реакторах на быстрых нейтронах со свинцовым теплоносителем для повышения термодинамической эффективности цикла турбоустановки.....	171
Шрайнер А.Э., Буйновский А.С., Карташов Е.Ю., Софронов В.Л., Бродский В.М. Применение механически активированных порошков в процессе получения магнитов Nd-Fe-B.....	178

УДК 621.039.556

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/3

Е.А. БОНДАРЕНКО, В.А. ВАРЛАЧЕВ, Е.Г. ЕМЕЦ

ОПТИМИЗИЦИЯ ПАРАМЕТРОВ НЕЙТРОННЫХ ПОЛЕЙ РЕАКТОРА ИРТ-Т ПРИ СОЗДАНИИ КОМПЛЕКСА ДЛЯ РАДИАЦИОННЫХ ИСПЫТАНИЙ ИЗДЕЛИЙ ЭЛЕКТРОННОЙ ТЕХНИКИ

На исследовательском ядерном реакторе ИРТ-Т создана установка для проведения радиационных испытаний изделий электронной техники на базе одного из горизонтальных экспериментальных каналов. Приведены результаты расчета модифицированного кадмиевым фильтром спектра нейтронов в экспериментальном канале реактора с помощью программного средства MSU-PTR. Показано, что нейтронно-физические характеристики модифицированного спектра нейтронов реактора ИРТ-Т соответствуют характеристикам импульсного ядерного реактора БАРС-4.

Ключевые слова: ядерный реактор, экспериментальный канал, изделия электронной техники, радиационные испытания, быстрые нейтроны, фильтр тепловых нейтронов.

Введение

К компонентной базе электронных приборов, эксплуатирующихся в условиях повышенного радиационного фона, предъявляются особенно высокие требования к надежности и продолжительности функционирования. В связи с этим существует необходимость в расширении экспериментальной базы для проведения исследований на радиационную стойкость. Кроме того, все сертифицированные установки для радиационных испытаний находятся в Европейской части России, что создает дополнительные трудности для заказчиков из удаленных регионов страны.

Исследовательский ядерный реактор ИРТ-Т обладает большим набором технических средств для решения различных научно-технических задач по созданию и развитию новых установок в сфере радиационных и ядерных технологий. Реактор оборудован горизонтальными и вертикальными экспериментальными каналами и при работе на мощности 6 МВт максимальная плотность потока тепловых нейтронов составляет $1.4 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$, быстрых – $2.8 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ [1]. На рис. 1 представлена схема реактора ИРТ-Т.

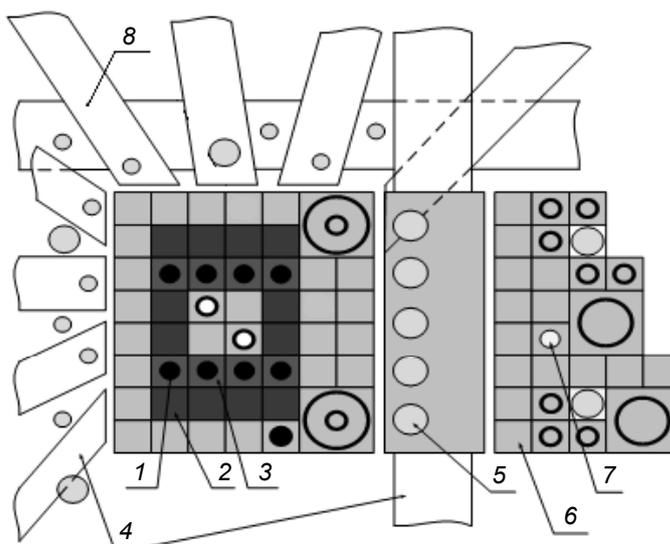


Рис. 1. Схема реактора ИРТ-Т: 1 – стержни регулирования; 2 – 8-трубные ТВС; 3 – 6-трубные ТВС; 4 – горизонтальные экспериментальные каналы; 5 – вертикальные экспериментальные каналы; 6 – бериллиевые блоки; 7 – экспериментальные каналы с водой; 8 – ГЭК-6

Таким образом, на исследовательском ядерном реакторе ИРТ-Т имеется большой потенциал для проведения и развития исследований в области создания пучков выведенных нейтронов для

изучения радиационной стойкости различных материалов, отработки методик физических измерений и калибровки детекторов нейтронов. Кроме того, на базе реактора ИРТ-Т развиваются научно-исследовательские работы по созданию технологий радиационного воздействия нейтронного излучения для целей медицины, космической и военной промышленности.

Для проведения таких исследований на базе горизонтального экспериментального канала (ГЭК-6) реактора ИРТ-Т создана установка для испытания на радиационную стойкость изделий электронной техники. Установка представляет собой металлическую штангу, которая дистанционно закатывается электродвигателем в экспериментальный канал реактора и позволяет помещать облучаемый образец в выведенный пучок нейтронов на определенное расстояние от активной зоны реактора для набора необходимого флюенса. Диаметр канала составляет 10 см.

Нейтронно-физические расчеты проводились с помощью аттестованного программного средства MCU-PTR (Аттестационный паспорт ПС № 393 от 14.07.2016 г., выданный экспертным советом по аттестации программных средств при Ростехнадзоре). В данном пакете использовалась модель реактора ИРТ-Т, которая воспроизводит все экспериментальные каналы аппарата максимально приближенными к реальным прототипам [2]. В ходе работы был рассчитан и экспериментально измерен спектр нейтронов в ГЭК-6 реактора ИРТ-Т. Произведено сравнение модифицированного спектра ГЭК-6 реактора ИРТ-Т со спектром реактора БАРС-4, а также рассмотрено влияние фильтра тепловых нейтронов на ядерно-физические характеристики спектра.

1. Расчет плотности потока нейтронов в ГЭК-6 реактора ИРТ-Т

На первом этапе была рассчитана плотность потока нейтронов в ГЭК-6 реактора ИРТ-Т для сравнения с результатами эксперимента, проведенного специалистами ВНИИФТРИ. На рис. 2 показано сравнение спектров в ГЭК-6, полученных в MCU-PTR и в результате реального эксперимента по методике ВНИИФТРИ.

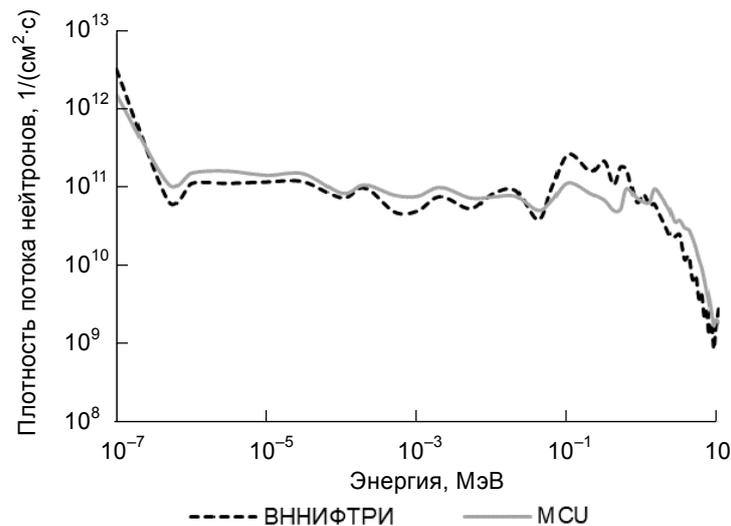


Рис. 2. Сравнение спектров в ГЭК-6 реактора ИРТ-Т

Из рис. 2 видно, что оба спектра имеют похожую форму, однако в спектре, полученном в результате реального эксперимента по методике ВНИИФТРИ, в диапазоне энергий от 0.1 до 0.6 МэВ регистрируется значительный всплеск. Значение плотности потока нейтронов в данном энергетическом интервале на 60% превышает значение, полученное в пакете MCU-PTR. Это может быть вызвано сбоем в работе регистрирующей аппаратуры или человеческим фактором.

Известно, что для радиационных испытаний особый интерес представляют нейтроны с энергией больше 0.1 МэВ. Поэтому для снижения влияния нейтронов с меньшей энергией в точке облучения смоделирован кадмиевый фильтр в форме пенала длиной 10 см и толщиной 2 мм. На дно пенала помещен карбид бора толщиной 1 см. На рис. 3 приведены результаты влияния кадмиевого фильтра на спектр.

Использование кадмиевого фильтра данной геометрии позволило оптимизировать условия облучения, значительно снизив поток нейтронов в тепловой области.

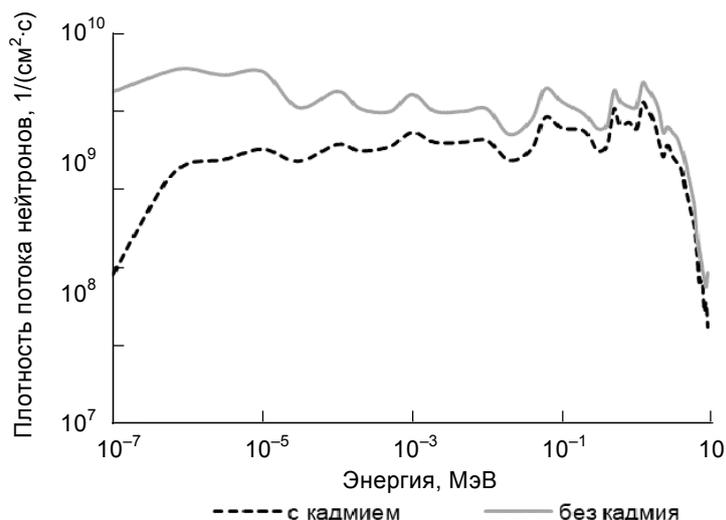


Рис. 3. Влияние кадмиевого фильтра

2. Сравнение спектра нейтронов реактора ИРТ-Т со спектром реактора БАРС-4

Импульсный реактор БАРС-4, находящийся в АО «Научно-исследовательский институт приборов», является сертифицированной установкой для проведения испытаний материалов на радиационную стойкость [3]. На рис. 4 показано сравнение нейтронных спектров реакторов ИРТ-Т и БАРС-4.

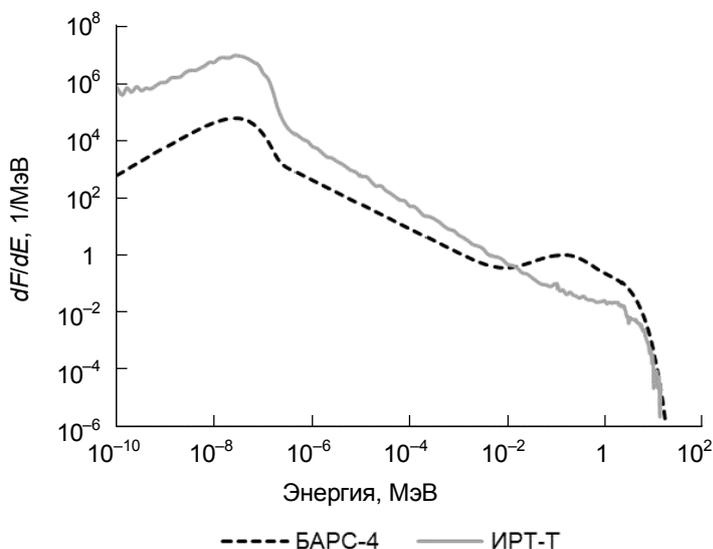


Рис. 4. Сравнение спектров реактора ИРТ-Т и БАРС-4

Использование установок подобного типа сопряжено с высокой стоимостью исследований и большими временными затратами, поскольку необходимо проводить воздействия в диапазоне нескольких порядков флюенсов. Таким образом, была поставлена задача добиться подобия характеристик спектра нейтронов ГЭК-6 реактора ИРТ-Т спектру реактора БАРС-4 в области высоких энергий. На рис. 5 представлено сравнение модифицированного кадмиевым фильтром спектра реактора ИРТ-Т и спектра реактора БАРС-4.

Исходя из графика, можно сказать, что модифицированный кадмиевым фильтром спектр ГЭК-6 реактора ИРТ-Т имеет схожую форму со спектром реактора БАРС-4. Данный вывод подтверждают и результаты расчетов средних энергий спектров. Для ГЭК-6 ИРТ-Т средняя энергия спектра равна 1.288 МэВ, для БАРС-4 – 1.215 МэВ. Следовательно, можно сделать заключение, что на реакторе ИРТ-Т создана установка для исследований на радиационную стойкость материа-

лов в широком диапазоне флюенса нейтронов. Более того, исследования на этой установке сокращают временные и финансовые затраты на исследования.

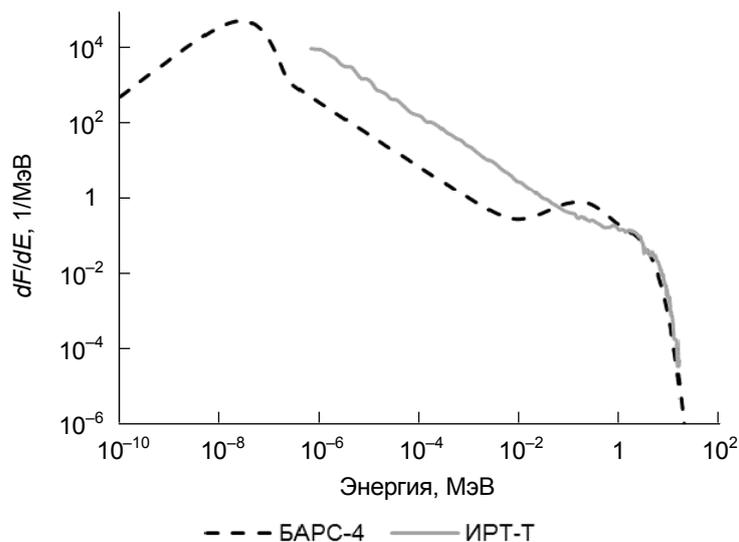


Рис. 5. Сравнение модифицированного спектра реактора ИРТ-Т и спектра реактора БАРС-4

Заключение

Первостепенной задачей данной работы было создание установки для радиационных испытаний изделий электронной техники. Для этого необходимо было модифицировать нейтронное поле в ГЭК-6 реактора ИРТ-Т таким образом, чтобы добиться подобия его параметров с нейтронным полем импульсного реактора БАРС-4 в области высоких энергий.

На первом этапе были выполнены расчет спектра нейтронов в ГЭК-6 и сравнение полученных результатов с результатами, взятыми из реального эксперимента, проведенного специалистами ВНИИФТРИ. Это позволило сделать выводы о точности расчетов с помощью программного средства MCU-PTG. Моделирование кадмиевого фильтра тепловых нейтронов в точке облучения образцов показало, что фильтр данной геометрии значительно снижает поток тепловых нейтронов и оптимизирует условия облучения. Сравнительный анализ позволил сделать вывод, что характеристики модифицированного нейтронного спектра реактора ИРТ-Т соответствуют характеристикам импульсного реактора БАРС-4. Таким образом, существуют все предпосылки для развертывания на реакторе ИРТ-Т исследований по влиянию быстрых нейтронов на изделия электронной техники. В рамках коллаборации с НИИПП была проведена успешная серия пробных облучений.

Поиск альтернативы кадмию в связи с его высокой наведенной активностью при облучениях на больших значениях флюенсов нейтронов является приоритетным направлением дальнейших исследований.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Варлачев В.А., Солодовников Е.С., Дудкин Г.Н. // Изв. вузов. Физика. – 2010. – Т. 53. – № 10/2. – С. 304–309.
2. Shchugovskaya M.V. et al. // Ann. Nucl. Energy. – 2016. – V. 96. – P. 332–343.
3. Ненадышин Н.Н., Членов А.М. // Импульсные реакторы: история создания и перспективы использования: труды межотраслевой науч. конф. – Саров, 2015. – Т. 1. – С. 91–93.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

Национальный исследовательский Томский политехнический университет,
г. Томск, Россия

Бондаренко Евгений Анатольевич, аспирант, инженер Учебно-научного центра «Исследовательский ядерный реактор» НИ ТПУ, e-mail: eab17@tpu.ru;

Варлачев Валерий Александрович, д.т.н., профессор, зав. лабораторией Учебно-научного центра «Исследовательский ядерный реактор» НИ ТПУ, e-mail: varlachev@tpu.ru;

Емец Евгений Геннадьевич, к.т.н., ведущ. инженер Учебно-научного центра «Исследовательский ядерный реактор» НИ ТПУ, e-mail: emecevgeniy@tpu.ru.

E.A. BONDARENKO, V.A. VARLACHEV, E.G. YEMETS

OPTIMIZATION OF THE PARAMETERS OF IRT-T REACTOR NEUTRON FIELDS WHEN CREATING A FACILITY FOR RADIATION TESTING OF ELECTRONIC PRODUCTS

The radiation testing facility was created on the IRT-T nuclear reactor based on one of the experimental channel. The calculation results of experimental channels neutron spectrum modified by cadmium filter in MCU-PTR code are given. It has been given that neutron-physical characteristics of the modified IRT-T reactors neutron spectrum correspond to the characteristics of the pulse nuclear reactor BARS-4.

Keywords: *nuclear reactor, experimental channel, electronic products, radiation testing, fast neutron, thermal neutron filter.*

National Research Tomsk Polytechnic University, Tomsk, Russia

Bondarenko Evgeny Anatolievich, Graduate Student, Engineer Educational and Scientific Center «Research Nuclear Reactor» NR TPU, e-mail: eab17@tpu.ru;

Varlachev Valery Alexandrovich, Doctor of Technical Sciences, Professor, Head of Laboratory Educational and Scientific Center «Research Nuclear Reactor» NR TPU, e-mail: varlachev@tpu.ru;

Yemets Evgeny Gennadievich, Candidate of Technical Sciences, Lead Engineer Educational and Scientific Center «Research Nuclear Reactor» NR TPU, e-mail: emecevgeniy@tpu.ru.

УДК 621.039.51

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/8

Н.П. ГОЛОВИН¹, А.В. ЕГОРОВ², Е.А. РОДИНА², Ю.С. ХОМЯКОВ²

ИССЛЕДОВАНИЕ ЗАПАСА РЕАКТИВНОСТИ В ИННОВАЦИОННЫХ РЕАКТОРАХ НА БЫСТРЫХ НЕЙТРОНАХ БОЛЬШОЙ МОЩНОСТИ В ЗЯТЦ

В рамках проектного направления «Прорыв» в Российской Федерации разрабатывается комплекс технологий замыкания топливного цикла с использованием смешанного (U-Pu-MA) нитридного топлива. Одна из ключевых задач новой технологии – обеспечение такого состава топлива и таких характеристик активных зон с новым топливом, при которых реактор имеет минимальный запас реактивности в процессе кампании. Это должно привести к снижению или исключению риска реактивных аварий с тяжелыми последствиями. В новой технологии при достижении коэффициента воспроизводства в активной зоне, близкого к единице, возможна реализация равновесного режима, характеризующегося стабильностью как реактивности, так и изотопного состава топлива. Однако реакторная установка (РУ) длительное время (более 10 лет) должна работать в переходном режиме, который требует специальных мер по управлению выбегом реактивности по кампании. Представлены результаты расчетных исследований, показывающие, что использование в топливе стартовых загрузок быстрых реакторов минорных актинидов из отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) тепловых реакторов позволяет улучшить кривую изменения реактивности РУ, приводя к снижению запаса реактивности на выгорание. В работе представлены результаты моделирования полного жизненного цикла быстрого реактора мощностью 1200 МВт, перехода топливной композиции к равновесному составу и изменение нуклидного и изотопного состава ОЯТ в этом процессе.

Ключевые слова: быстрые реакторы, нитридное топливо, замкнутый ядерный топливный цикл, запас реактивности, равновесный цикл.

Введение

Замыкание ядерного топливного цикла в настоящее время рассматривается как способ решения насущных проблем существующей ядерной энергетики и путь к крупномасштабной ядерной энергетике на базе реакторов на быстрых нейтронах (РБН). Замкнутый ядерный топливный цикл (ЗЯТЦ) позволяет принципиально решить проблему отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) и снизить радиологическую опасность радиоактивных отходов (РАО) до приемлемого уровня радиационной эквивалентности [1, 2]. Ключевую системообразующую роль в ЗЯТЦ играют реакторы на быстрых нейтронах, работающие на плутонии, выделяемом из ОЯТ, с последующим многократным его рециклированием, и позволяющие выжигать долгоживущие РАО, так называемые минорные актиниды (МА). Комплекс технологий РБН и ЗЯТЦ активно разрабатывается в России в рамках проектного направления «Прорыв» [3–5].

Помимо проблем, связанных с ОЯТ и РАО, РБН должны продемонстрировать и новый, ранее не достижимый уровень безопасности, детерминистически исключая потенциальную возможность тяжелых аварий, подобных Чернобыльской. В частности, В.В. Орловым предложено снизить запас реактивности РБН до величины не более доли запаздывающих нейтронов ($\beta_{эфф}$), что позволяет исключить реактивные аварии на мгновенных нейтронах [6]. Это достигается за счет обеспечения высокого воспроизводства топлива в активной зоне с коэффициентом воспроизводства (КВА) не менее единицы.

Теоретически такая возможность, безусловно, существует при использовании в активной зоне плотного топлива. В рамках проекта «Прорыв» для этого используется смешанное нитридное топливо (СНУП-топливо). Ключевой практической проблемой реализации данной идеи является необходимость обеспечения высокой точности соблюдения запаса реактивности и учета неопределенностей в прогнозируемом составе топлива и активной зоны. Эти неопределенности связаны как с неоднозначностью изотопного состава исходного плутония, так и еще в большей степени с постоянным изменением состава топлива в процессе многократного рециклирования, зависящего от условий облучения, длительности и схемы реализации топливного цикла, выгорания топлива, учета выжигания МА, а также технологическими неопределенностями при изготовлении топлива. Характеристики топлива и активной зоны, а следовательно, и запас реактивности РБН изменяются

в течение длительного времени, что требует их прогноза на много лет вперед (как будет показано ниже – не менее 30 лет).

1. Методика моделирования жизненного цикла активной зоны РУ

Для исследования описанных выше проблем разрабатывается специальная методика автоматизированного моделирования полного жизненного цикла активной зоны РБН, работающего в условиях ЗЯТЦ с многократным рециклом топлива. Основные положения этой методики заключаются в следующем.

Считается, что запуск быстрого реактора происходит в рамках двухкомпонентной ядерной энергетики и для формирования стартовой загрузки РБН плутония, выделенного из ОЯТ тепловых реакторов ВВЭР. Плутоний такого же состава используется и для двух первых перегрузок топлива, а начиная с третьей перегрузки топлива РБН переходит на использование собственного регенерированного топлива. Поскольку тепловыделяющие сборки (ТВС) с первоначально одинаковым составом топлива облучаются в несколько различающихся условиях по нейтронному потоку и энерговыделению, то и состав выгружаемого, а затем рециклируемого топлива также может различаться. Поэтому необходима организация моделирования каждой персональной ТВС.

Для формирования критических загрузок разработан специализированный алгоритм подбора массовой доли плутония двух или трех компонент топлива с обеспечением критичности на начало микрокампании. В наиболее простом варианте происходит итерационное определение массовой доли плутония в СНУП-топливе. В более сложных вариантах возможно моделирование смешения более сложных композиций, например, неразделенных смесей урана и плутония после переработки с природным или обедненным ураном.

В течение микрокампании управление критичностью осуществляется изменением положения рабочих органов системы управления и защиты (РО СУЗ). При выгонке реактора в критическое состояние учитывается возможность учета методической погрешности расчетного кода, а также требуемый уровень точности итераций.

Состав активной зоны формируется из регенерируемых ТВС автоматически, исходя из заданной пользователем схемы частично-равномерной перегрузки топлива и расчетного состава топлива, выгруженного двумя перегрузками ранее, с учетом изменения в течение хранения и переработки.

Нейтронно-физический расчет ведется на базе многогруппового диффузионного уравнения переноса с заранее определенной методической поправкой на критичность. Применение диффузионного приближения дает достоверные результаты изменения реактивности при выгорании топлива при разумной скорости расчетов, позволяющих обеспечить моделирование 30–60 лет эксплуатации РБН в ЗЯТЦ.

Реализация указанного подхода осуществляется в рамках программного комплекса РТМ-2 [7], современная опытная версия которого использовалась и в данной работе.

2. Анализ различных алгоритмов формирования критических загрузок на запас реактивности

Различия в изотопном составе плутония требуют корректировки его массовой доли для обеспечения критичности загрузки активной зоны. Ввиду заметных погрешностей расчета критичности $\sim 0.4\text{--}0.5\% \Delta k/k$ (более $\beta_{эфф}$) для определения массовой доли необходимо опираться не на расчетную, а экспериментальную величину, определенную на данной стадии эксплуатации. Однако целесообразность изменения массовой доли в каждой микрокампании вызывает сомнения по технологическим причинам. И, как показали расчеты, попытка «продлонгации» измеренного запаса реактивности на несколько микрокампаний вперед может приводить к потере стабильности методики корректировки (рис. 1), колебаниям как запаса реактивности, так и массовой доли. Эту проблему можно решить за счет использования расчетной усредненной величины массовой доли на прогнозируемое число микрокампаний. В целом, может быть рекомендована корректировка не по микрокампаниям, а по каждому рециклу топлива, что технологически наиболее приемлемо.

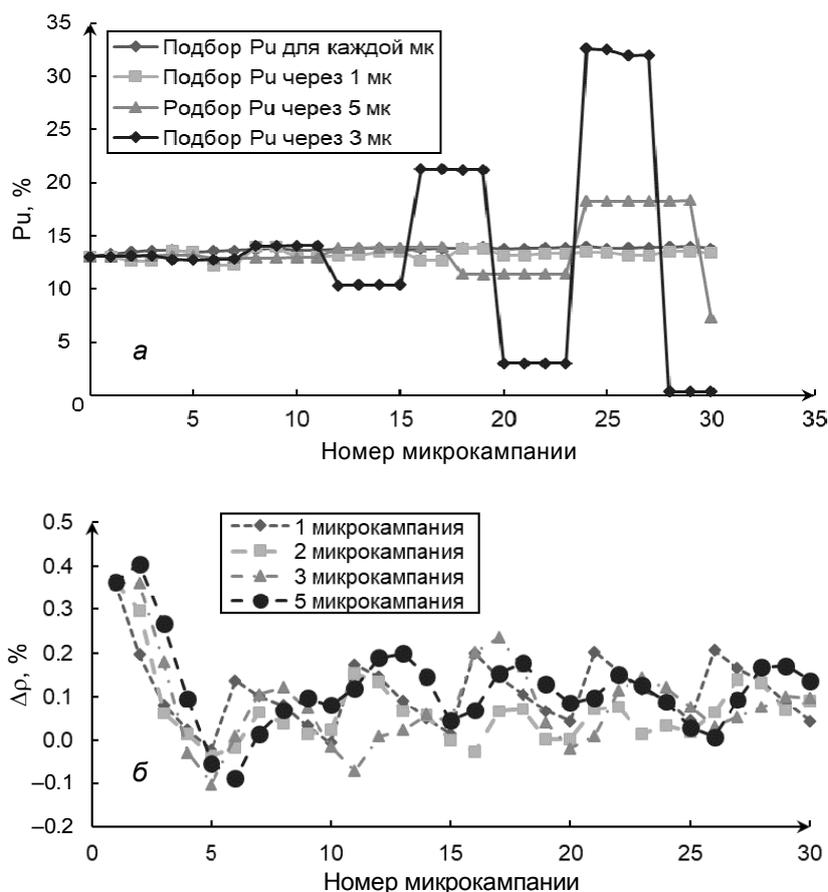


Рис. 1. Изменение запаса реактивности при использовании различных алгоритмов формирования критических нагрузок: *а* – базовый состав топлива; *б* – изменение реактивности для базового состава топлива

3. Изменения реактивности в реакторах с натриевым и свинцовым теплоносителем

Первые же расчеты показали, что запас реактивности достаточно долго изменяется в связи с модификацией состава топлива при рециклировании до стабилизации на так называемом равновесном уровне. Можно отметить, что физика КВА и запаса реактивности более благоприятна в реакторах со свинцовым теплоносителем, в которых можно наблюдать даже рост реактивности при выгорании топлива, в то время как в РУ БН изменение реактивности носит более традиционный спадающий характер. Технически при высоком КВА и росте реактивности управлять запасом реактивности проще, так как для снижения этого роста может быть использован ряд мер, таких, как снижение объемной доли топлива, использование поглотителей. Влияние погрешности для РУ БН компенсировать сложнее, потому что оно требует увеличения средней плотности топлива по активной зоне, а такие возможности уже практически исчерпаны. Результаты сравнительного расчетного анализа изменения реактивности при выгорании топлива для длительности жизненного цикла, равного 60 лет, представлены на рис. 2.

4. Анализ влияния состава топлива стартовой загрузки на запас реактивности

Включение в состав топливной композиции не только Pu , но и минорных актинидов (Am и Np) позволяет улучшить кривую изменения реактивности РУ, выхолаживая ее и приводя к снижению запаса реактивности на выгорание (рис. 3). По-видимому, МА играют роль некоего дополнительного «выгорающего поглотителя», а их доля может быть дополнительным параметром для оптимизации запаса реактивности.

Начальная концентрация МА в топливе РБН определялась соотношением МА и Pu в ОЯТ ВВЭР, так чтобы все трансурановые элементы были вовлечены в топливный цикл. Доля МА может применяться и для регулирования запаса реактивности при использовании плутония различного изотопного состава.

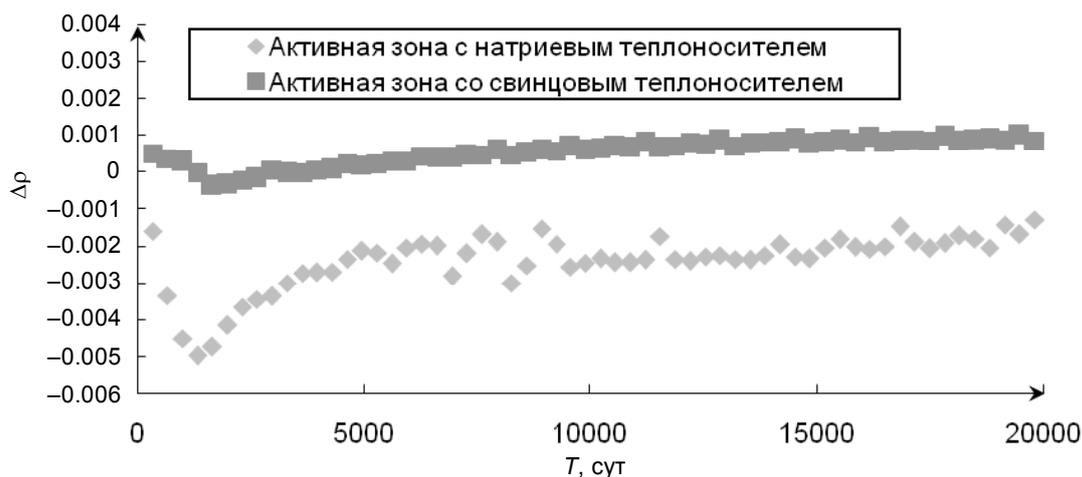


Рис. 2. Изменение реактивности при выгорании топлива в активной зоне

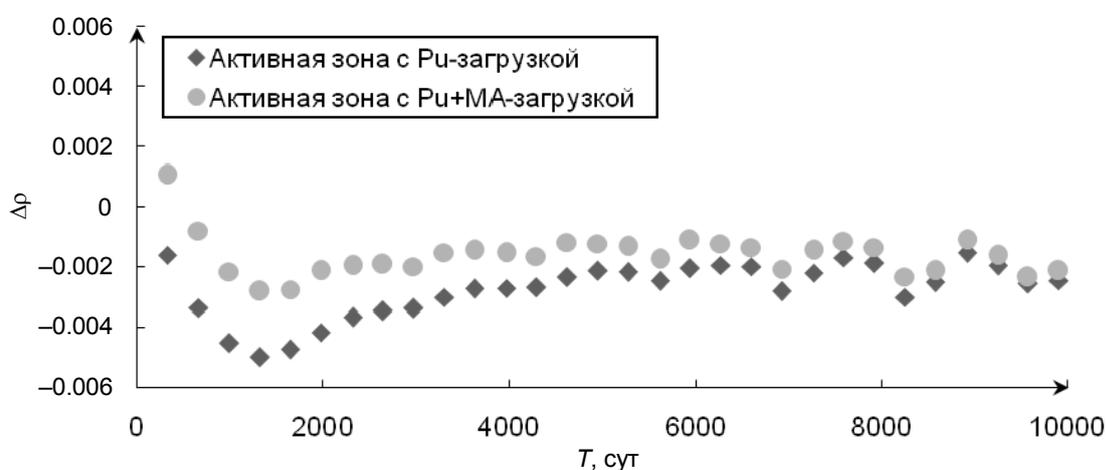


Рис. 3. Изменение реактивности при выгорании топлива при использовании Pu с добавлением минорных актинидов в стартовую загрузку

Заключение

Одна из ключевых задач технологии ЗЯТЦ – обеспечение такого состава топлива и таких характеристик активных зон со смешанным уран-плутониевым топливом, при которых реактор имеет минимальный запас реактивности в процессе кампании.

В работе приведены основные положения автоматизированного моделирования полного жизненного цикла активной зоны РБН, работающего в условиях ЗЯТЦ с многократным рециклом топлива. Для формирования критических загрузок разработан специализированный алгоритм подбора массовой доли плутония с обеспечением критичности на начало микрокампании.

Представлены результаты моделирования полного жизненного цикла быстрых реакторов со свинцовым и натриевым теплоносителем в замкнутом ядерном топливном цикле и решения некоторых практических задач по реализации концепции малого запаса реактивности для исключения реактивностных аварий на мгновенных нейтронах. Показано, что использование МА благоприятно сказывается на величине максимального запаса реактивности, а массовая доля МА может быть параметром, позволяющим оптимизировать переходной режим в равновесный режим ЗЯТЦ.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Адамов Е.О., Ганев И.Х., Лопаткин А.В. и др. // Атомная энергия. – 1996. – Т. 81. – № 6. – С. 403–409.
2. Лопаткин А.В., Величкин В.И., Никипелов Б.В. и др. // Атомная энергия. – 2002. – Т. 92. – № 4. – С. 308–317.
3. Rachkov V.I., Adamov E.O., Lopatkin A.V., et al. // International Atomic Energy Agency, Fast Reactors and Related Fuel Cycles: Safe Technologies and Sustainable Scenarios. Paris, France, March 4, 2013. – 2013. – P. 93–102.

4. Адамов Е.О., Орлов В.В., Рачков В.И. и др. // Известия РАН. Энергетика. – 2015. – № 1. – С. 13–29.
5. Адамов Е.О., Забудько Л.М., Матвеев В.И. и др. // Известия РАН. Энергетика. – 2015. – № 2. – С. 3–15.
6. Орлов В.В., Адамов Е.О., Велихов Е.П. и др. // Атомная энергия. – 1992. – Т. 72. – № 4. – С. 317.
7. Егоров А.В., Хомяков Ю.С., Рачков В.И., et al. // Nucl. Energy Technol. – December 2019. – V. 5(4). – P. 353–359. <https://doi.org/10.3897/nucet.5.46517>.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

¹ Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ»,
г. Москва, Россия

² Акционерное общество «Прорыв», г. Москва, Россия

Головин Никита Павлович, студент НИЯУ «МИФИ», e-mail: nikitagolovin95@yandex.ru;

Егоров Александр Владимирович, зам. начальника отдела АО «Прорыв», e-mail: eav@proruv2020.ru;

Родина Елена Александровна, к.т.н, ведущ. науч. сотр. АО «Прорыв», e-mail: rea@proryv2020.ru;

Хомяков Юрий Сергеевич, д.ф.-м.н., начальник отдела АО «Прорыв», e-mail: hus@proryv2020.ru.

N.P. GOLOVIN¹, A.V. EGOROV², E.A. RODINA², Yu.S. KHOMYAKOV²

STUDIES ON EXCESS REACTIVITY IN THE LARGE SIZE INNOVATIVE FAST REACTORS IN CNFC

Closure of nuclear fuel cycle is now addressed as an approach to solving vital problems of existing nuclear power and as pathway to development of the large-scale nuclear power based on fast reactors (FR). Closed nuclear fuel cycle (CNFC) makes it possible to ultimately solve the problem of spent nuclear fuel (SNF) and reduce radwaste related radiological hazard down to acceptable level of radiological equivalence [1, 2]. Fast neutron reactors using plutonium extracted from SNF with its repeated recycling are key, systemically important component of CNFC, in which long-lived radwaste, so-called minor actinides (MA) can be successfully incinerated. Suite of FR and CNFC technology is being intensively developed in Russia within the framework of «Proryv» project stream [3–5]. Apart from solving problems related to SNF and radwaste, FR should demonstrate the new level of safety, which has not been reached before. In this safety-grade reactor plant, the potential of Chernobyl type severe accident would be deterministically eliminated. In particular, V.V. Orlov proposed that excess reactivity value in FR would not exceed β_{eff} , thus eliminating prompt neutron reactivity accidents [6]. This is achieved by assuring high breeding ratio of the core (equal to at least 1). Certainly, such a possibility theoretically exists if high-density fuel is used in the reactor core. In this view mixed nitride uranium-plutonium, (MNUP) fuel is called for within the framework of «Proryv» project. On condition of the core-breeding ratio close to 1 the new technology allows realization of equilibrium mode characterized by stability of both reactivity and fuel isotopic composition. However reactor should be operated in transient mode for a long time period (more than 10 years), and this operation requires special measures for controlling reactivity windup during core lifetime. In the article presented are the main guidelines of automated modeling of the entire life cycle of the core of FR operating in CNFC with repeated fuel recycling. A designated algorithm of plutonium mass fraction selection assuring reactor criticality in the beginning of the core run was worked out for making critical loadings. Results of simulation of the whole life cycle of fast reactors with lead and sodium coolants in the closed fuel cycle are presented, as well as the results of solution of some practical problems concerning implementation of low excess reactivity concept in order to eliminate prompt neutron reactivity accidents. It was demonstrated that MA introduction had beneficial effect on max value of excess reactivity, and MA mass fraction might be the parameter allowing transient mode transformation into equilibrium mode of CNFC.

Keywords: fast reactors, nitride fuel, closed nuclear fuel cycle, excess reactivity, equilibrium cycle.

¹ National Research Nuclear University «МЭФИ», Moscow, Russia

² JSC «Proryv», Moscow, Russia

Golovin Nikita Pavlovich, Student of NRNU «МЭФИ», e-mail: nikitagolovin95@yandex.ru.

Egorov Alexander Vladimirovich, Deputy Head of Department of JSC «Proryv», e-mail: eav@proruv2020.ru;

Rodina Elena Alexandrovna, Ph.D. Tech. Sciences, Leading Researcher of JSC «Proryv», e-mail: rea@proryv2020.ru;

Khomyakov Yuri Sergeevich, Dr. Phys.-Math. Sciences, Head of Department of JSC «Proryv», e-mail: hus@proryv2020.ru.

УДК 544.542

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/13

В.А. ГРАЧЕВ, А.Б. САЗОНОВ

ОБРАЗОВАНИЕ РАДИОЛИТИЧЕСКОГО ВОДОРОДА В БВ ВВЭР-1000 В РЕЗУЛЬТАТЕ АВАРИЙНОЙ ВЫГРУЗКИ ТОПЛИВА

Разработаны методика расчета мощности поглощенной дозы ионизирующего излучения в бассейне выдержки водо-водяного энергетического реактора и методика расчета скорости образования радиолитического водорода. Представлены результаты модельного расчета образования водорода при протекании запроектной аварии без плавления топлива с аварийной выгрузкой последнего. Показано, что для выбранных условий превышения содержания водорода в защитной оболочке не происходит.

Ключевые слова: ВВЭР, бассейн выдержки, водород, мощность поглощенной дозы, радиолиз, авария.

Введение

При проектировании атомных электрических станций (АЭС) особое внимание уделяется вопросам безопасности, связанным с протеканием проектных и запроектных аварий и с ликвидацией их последствий. В качестве примера запроектной аварии часто рассматривают сценарий полного обесточивания станции в течение 7 сут, без плавления топлива, с последующей его выгрузкой в бассейн выдержки (БВ) отработанного ядерного топлива (ОЯТ).

В режиме нормальной эксплуатации реакторной установки (РУ) часть отработавших тепло-выделяющих сборок (ТВС) в конце цикла работы на мощности выгружается из активной зоны (АЗ) и помещается в БВ с целью снижения активности ОЯТ со временем. Многолетний опыт эксплуатации АЭС показывает, что создаваемая при этом мощность дозы излучения в БВ соответствует условиям, при которых равновесная концентрация водорода под защитной оболочкой (ЗО) реактора не превышает 0.2–0.3 об. %. Это на порядок меньше нижнего концентрационного предела распространения пламени.

В случае аварийной выгрузки топлива в БВ мощность дозы увеличивается, что вызывает ускоренное разложение воды и, следовательно, рост концентрации H_2 в воздухе. Как известно, нижний концентрационный предел распространения пламени в воздухе при нормальных условиях составляет $\sim 4H_2$ (об. %). Превышение этого значения является нарушением критерия пожаро- и взрывобезопасности помещения, что в контексте аварийной ситуации на АЭС недопустимо.

В настоящей работе излагается методика расчета скорости образования радиолитического водорода для РУ с ВВЭР-1000 при аварийной выгрузке ТВС в БВ, позволяющая прогнозировать его накопление в воздухе под ЗО.

Методика расчета

Мощность дозы в воде БВ

Мощность дозы излучения, поглощенного водой БВ, пропорциональна остаточному тепло-выделению (ОТВ) твэлов и обусловлена накопившимися в них как продуктами деления (ПД) ядерного топлива, так и продуктами захвата нейтронов. Поэтому радионуклидный состав ОЯТ представлен α -, β - и γ -излучающими ядрами.

Пробег α -частиц в конденсированных средах измеряется десятками микрометров, поэтому их вклад в формирование дозы в воде близок к нулю. Кроме того, основные α -излучатели ОЯТ (^{238}U , ^{235}U , ^{236}U и др.) имеют весьма длительные периоды полураспада, а содержание короткоживущих изотопов трансурановых элементов сравнительно невелико. В связи с этим вкладом α -излучателей в ОТВ на стадии хранения ОЯТ в БВ можно пренебречь. Для оценки количества водорода, выделяющегося в БВ, такой подход является не только консервативным, но и достаточно строгим, поскольку доля α -излучения в тепловыделении увеличивается со временем выдержки ОЯТ, но само тепловыделение, а значит, и скорость образования водорода при этом уменьшается.

Максимальный пробег β -частиц в материалах достигает нескольких миллиметров, а средний пробег γ -квантов – десятков сантиметров. Среди β - и γ -излучающих ПД – множество радионуклидов (РН), имеющих самые разные периоды полураспада, энергии распада и выходы при делении.

Ради простоты дальнейших оценок примем, что мощность дозы от наиболее высокоэнергетических β -частиц ПД (еще способных проникнуть через оболочку твэла) равна мощности дозы от самых низкоэнергетических γ -квантов (почти на 100% поглощающихся в оболочке). В этом случае можно считать, что мощность поглощенной дозы в бассейне выдержки определяется только γ -квантами, испускаемыми ПД. Согласно [1], энергии запаздывающего β - и γ -излучения ПД (как ^{235}U , так и ^{239}Pu) практически равны. Таким образом, можно вполне обоснованно принять, что энергия ОТВ твэлов, приходящаяся на γ -излучение, составляет 50% от их суммарного тепловыделения.

Взаимодействие γ -квантов с веществом, в ходе которого их энергия передается веществу, имеет место в общем случае в трех основных процессах: фотоэффекте, эффекте Комптона и образовании электрон-позитронных пар. В [2, 3] приведены уравнения, использовавшиеся для расчета сечений этих процессов, а также полного сечения передачи энергии γ -квантов веществу.

Далее будем считать, что в бассейне выдержки присутствуют четыре основных вида материалов: вода, ОЯТ, циркониевые сплавы, из которых изготовлены ТВС, а также материалы стеллажей (аустенитные стали). Без потери точности дальнейших расчетов примем, что химический состав ОЯТ соответствует формуле UO_2 , а в составе материалов ТВС и стеллажей присутствуют только цирконий и железо соответственно. С точки зрения вероятности поглощения γ -квантов наличие в ОЯТ продуктов деления (с меньшим атомным номером, чем у урана) компенсируется одновременным присутствием в нем трансурановых элементов, а содержание хрома в стали – содержанием в ней никеля. Эффектами, вносимыми другими элементами (ниобий, бор и т.п.), пренебрегаем ввиду их малой концентрации.

С учетом того, что размеры БВ существенно превышают средний пробег γ -кванта с энергией ~ 1 МэВ в воде, доля энергии γ -квантов, поглощенных водой бассейна, может быть оценена в пределе бесконечно большого объема как

$$f_{\text{H}_2\text{O}} = \frac{N_{\text{H}_2\text{O}} \sigma_{\text{H}_2\text{O}}}{N_{\text{H}_2\text{O}} \sigma_{\text{H}_2\text{O}} + N_{\text{UO}_2} \sigma_{\text{UO}_2} + N_{\text{Zr}} \sigma_{\text{Zr}} + N_{\text{Fe}} \sigma_{\text{Fe}}}, \quad (1)$$

где величины N_i обозначают количество веществ (моль), $i = \text{H}_2\text{O}, \text{UO}_2, \text{Zr}$ или Fe , а σ_i – полные сечения передачи энергии γ -квантов молекулам воды, диоксида урана, атомам циркония и железа соответственно. Так как в правую часть (1) входят сечения, определяемые для монохроматических γ -квантов, коэффициент $f_{\text{H}_2\text{O}}$ также зависит от E_γ .

В свете сделанных допущений мощность поглощенной дозы γ -излучения (Гр/с) в воде БВ можно рассчитать следующим образом:

$$\dot{D}_\gamma = \frac{W \cdot f_\gamma}{m_{\text{H}_2\text{O}}} \sum_{E_\gamma} f_{\text{H}_2\text{O}} \cdot f_{E_\gamma}, \quad (2)$$

где W – мощность ОТВ твэлов, Вт; $f_\gamma = 0.5$ – доля мощности ОТВ, приходящейся на γ -излучение; $m_{\text{H}_2\text{O}}$ – масса облучаемой воды, кг; f_{E_γ} – доля энергии γ -излучения, приходящейся на полосу спектра с энергией E_γ . Суммирование в формуле (2) ведется по всем полосам спектра испускаемых γ -квантов.

Для дискретного спектра γ -излучения ПД

$$f_{E_\gamma} = \frac{s(E_\gamma) \lambda(E_\gamma) y(E_\gamma) E_\gamma}{\sum_{E_\gamma} s(E_\gamma) \lambda(E_\gamma) y(E_\gamma) E_\gamma}, \quad (3)$$

где $s(E_\gamma)$ – выход РН при делении топлива; $\lambda(E_\gamma)$ – его постоянная распада; $y(E_\gamma)$ – интенсивность группы монохроматических γ -квантов с энергией E_γ . При соответствующем переопределении формула (3) может использоваться и для учета вклада трансурановых элементов в общий γ -спектр.

Значения плотности потока энергии γ -излучения, испускаемого АЗ остановленного реактора в течение первых 100 сут после останова, представлены в [4] для семи основных энергетических групп γ -квантов. Эти данные после нормирования на единицу (т.е. получив значения f_{E_γ}) использовали для расчета мощности дозы от ТВС с выдержкой менее года. Для ТВС с большим временем выдержки пользовались формулой (3), а также тем, что γ -активность ОЯТ на протяжении первых 10 лет хранения определяют на 99% и более следующие несколько РН: ^{134}Cs , ^{137}Cs , $^{106}\text{Ru} + ^{106}\text{Rh}$,

$^{144}\text{Ce}+^{144}\text{Pr}$, а также (в первые 1–2 года) $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$. В [5] приведены ядерно-физические свойства этих РН; выходы при делении ^{235}U и ^{239}Pu указанных РН представлены в [6].

В табл. 1 представлены данные по содержанию воды, топлива (на примере ТВС-2М) и основных конструкционных материалов БВ, использованные при расчете доли энергии γ -излучения, поглощаемого водой [7, 8]. Предполагается, что в условиях аварии емкость БВ по ОЯТ будет реализована практически на 100%. В силу этого все материалы будем считать распределенными между малым и большим отсеками бассейна пропорционально числу ТВС, размещаемых в них (214 и 345 ТВС соответственно).

Таблица 1

Содержание воды, топлива и конструкционных материалов в отсеках БВ

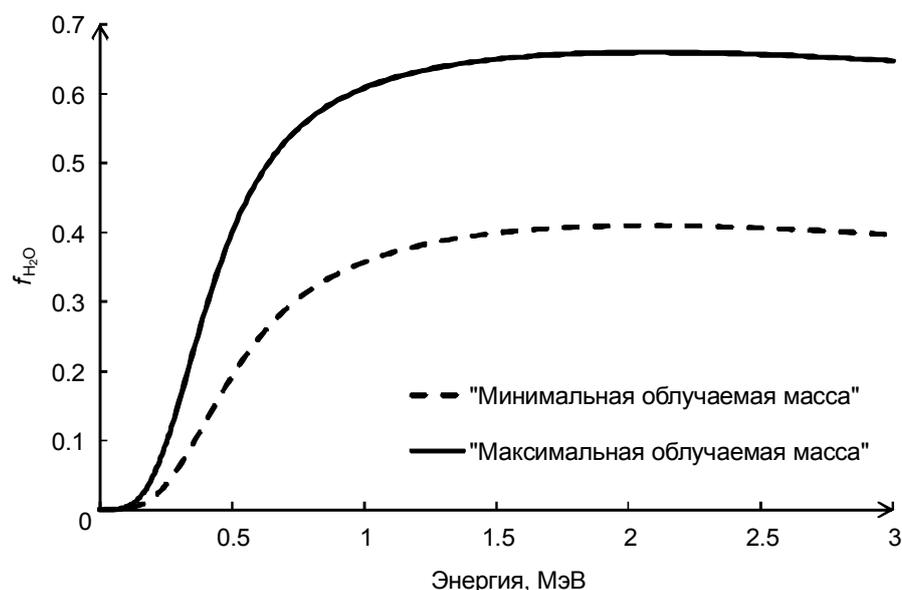
Материал	Малый отсек, т	Большой отсек, т
Топливо (UO_2)	114.2	184.1
Zr (сплавы)	74.9	120.8
Аустенитная сталь	86.1	138.9
Вода	507.6	818.4

Поскольку определение точного значения $f_{\text{H}_2\text{O}}$ для объекта конечных размеров и неправильной формы является довольно сложной задачей, были использованы следующие приближения.

1. «Минимальная облучаемая масса» воды БВ. Принимается, что энергия γ -излучения, испускаемого ТВС, поглощается, помимо всей массы топлива и конструкционных материалов, слоем воды, высота которого примерно равна высоте ТВС (в расчетах использовали значение 5 м).

2. «Максимальная облучаемая масса» воды БВ. Принимается, что энергия γ -излучения поглощается, помимо всей массы топлива и конструкционных материалов, всей массой воды, находящейся в бассейне.

Количество воды $N_{\text{H}_2\text{O}}$, входящее в формулу (1), рассчитывается для этих двух предельных случаев. Результаты расчетов $f_{\text{H}_2\text{O}}$ как функции E_γ представлены на рис. 1. Видно, что для самых «мягких» γ -квантов ($E_\gamma < 200$ кэВ) значения $f_{\text{H}_2\text{O}}$ стремятся к нулю, что обусловлено фотоэффектом в материалах с большими атомными номерами. Для «жестких» γ -квантов (с энергией 1.5 МэВ и выше) коэффициент $f_{\text{H}_2\text{O}}$ достигает максимума и далее меняется мало. Величина максимума зависит от соотношения между количествами материалов. Как показывает расчет, средние по спектрам γ -излучения ТВС значения $f_{\text{H}_2\text{O}}$ мало отличаются друг от друга: для «минимальной» облучаемой массы воды они равны 0.25 и 0.23, тогда как для «максимальной» массы это 0.53 и 0.52 в малом и большом отсеках соответственно. Доля делений ^{235}U и ^{239}Pu в общем числе делений топлива также не влияет на среднее $f_{\text{H}_2\text{O}}$.

Рис. 1. Доля энергии γ -излучения, поглощаемая водой бассейна

Радиолиз воды

Определение концентраций продуктов радиолиза воды в БВ осуществляется путем решения системы дифференциальных уравнений:

$$\frac{dC_i}{dt} = \frac{\dot{D}_\gamma \rho G_{0i}}{e N_A} - C_i \sum_j k_{ij} C_j + \sum_m \sum_n k_{mn} C_m C_n \delta_i(m, n), \quad (4)$$

где C_i – концентрация i -го компонента, моль/л; t – время, с; ρ – плотность воды, кг/л; G_{0i} – первичный выход образования (разложения) i -го компонента, молекула/эВ; e – элементарный заряд, Кл; N_A – число Авогадро, моль⁻¹; k_{ij} – константа скорости бимолекулярной реакции между i -м и j -м компонентами, л/(моль·с); $\delta_i(m, n)$ – множитель, равный 1, если в ходе реакции между m -м и n -м компонентами образуется i -й компонент, и нулю во всех остальных случаях.

Уравнения температурной зависимости G_{0i} при γ -радиолизе воды можно найти в работах [9, 10]. Перечень реакций, которые мы использовали для описания радиолиза воды, преимущественно взят из [11]. Кинетические характеристики реакций были взяты из базы данных [12]. Пересчет значений констант скоростей при 25 °С на другую температуру проводили по уравнению Аррениуса. Если для реакции не было найдено значение энергии активации, его принимали равным энергии активации самодиффузии воды, 12,6 кДж/моль. Данное допущение основано на том, что энергии активации большинства быстрых реакций в воде меньше или соизмеримы с энергией активации диффузии ее молекул.

Так как концентрации частиц могут изменяться во времени со скоростями, различающимися на несколько порядков величины, система (4) – жесткая. Ее решение в рамках данной работы осуществлялось методом формул дифференцирования назад.

Скорость образования радиолитического H_2 рассчитывалась с учетом работы вентиляционной системы, поддерживающей в условиях нормальной эксплуатации стационарную концентрацию водорода в воздухе на уровне 0,25 об. %. Равновесная ей концентрация H_2 в воде БВ определялась из закона Генри с использованием данных работы [13].

Пример расчета

Исходные данные

В следующем примере рассмотрим образование H_2 при аварийной выгрузке топлива в БВ. Примем, что ТВС семисуточной выгрузки полностью размещаются в малом отсеке БВ. Там же размещается 51 ТВС со временем выдержки 30 сут. Всего в малом отсеке находятся 214 ТВС, что соответствует полной емкости отсека. В большом отсеке находятся 15 ТВС со временем выдержки 30 сут и по 66 ТВС со временами выдержки от 1,5 до 7,5 лет с шагом 1,5 года, т.е. всего 345 ТВС. В табл. 2 представлены данные по остаточному тепловыделению ТВС различного времени выдержки в БВ. При расчетах учитывалось, что мощность ОТВ 7-суточных ТВС снижается, а для остальных ТВС – практически постоянна во времени.

Таблица 2

Мощность ОТВ для ТВС с различными временами выдержки

Время выдержки ТВС в БВ	Количество ТВС в БВ, шт.	Мощность ОТВ одной ТВС, кВт	Мощность ОТВ группы ТВС, кВт
7 сут (аварийная выгрузка)	163	50,42	8219
30 сут	66	25,99	1715,2
1,5 год	66	3,54	233,6
3 года	66	1,63	108
4,5 года	66	1,03	68
6 лет	66	0,79	52,7
7,5 лет	66	0,69	45,5

Дополнительные меры по управлению аварией подразумевают в том числе и работу установок системы специальной вентиляции для поддержания допустимой объемной активности в воздухе в зоне ограниченного доступа.

Таким образом, в герметичной оболочке в течение всего времени аварии осуществляется непрерывный воздухообмен.

В табл. 3 представлены данные о состоянии воды БВ и воздуха в ЗО, использованные для расчета.

Таблица 3

Состояние воды в БВ и воздуха внутри ЗО

Параметр	Значение
Температура воды в БВ, °С	60
Температура воздуха внутри ЗО, °С	60
Давление воздуха внутри ЗО, кПа	101.3
Объем воздуха в ЗО, м ³	65000
Стационарная концентрация Н ₂ в воздухе, об. %	0.25

Скорость образования радиолитического водорода

Количество образующегося Н₂ пропорционально энергии, поглощенной облучаемой средой. Из расчетов по (1) (см. рис. 1) следует, что при облучении «максимальной» массы количество образующегося Н₂ будет примерно в 2 раза больше, чем при облучении «минимальной» массы воды бассейна. То есть нижний предел образования Н₂ соответствует «минимальной облучаемой массе», а верхний предел – «максимальной облучаемой массе» воды бассейна.

В табл. 4 приведены значения мощности поглощенной дозы в малом и большом отсеках, рассчитанные по формуле (2) для «минимальной» и «максимальной» облучаемой массы воды в начальный момент времени и через 7 сут. Приведенные значения получены суммированием вкладов всех групп ТВС. Значения f_{H_2O} рассчитывались с учетом времени выдержки ТВС в бассейне. Мощность поглощенной дозы, которую создает γ -излучение 7- и 30-суточных ТВС в малом отсеке, изменяется линейно в соответствии с падением мощности ОТВ. Так как мощность ОТВ всех ТВС, кроме 7-суточных, принимается постоянной во времени, мощность поглощенной дозы γ -излучения от ТВС, располагающихся в большом отсеке, также постоянна.

Значения скорости образования водорода в малом и большом отсеках БВ также представлены в табл. 4. Согласно расчетам, для малого отсека скорость снижается от $2 \cdot 10^{-4}$ до $1.5 \cdot 10^{-4}$ кг/с в верхнем пределе и от $1 \cdot 10^{-4}$ до $0.75 \cdot 10^{-4}$ кг/с в нижнем пределе. В связи с тем, что мощность поглощенной дозы в большом отсеке остается постоянной в течение всего времени аварии, скорость образования водорода также постоянна и составляет $0.2 \cdot 10^{-4}$ кг/с в верхнем пределе и около $0.1 \cdot 10^{-4}$ кг/с в нижнем пределе.

Таблица 4

Мощность поглощенной дозы (Гр/с) / скорость образования водорода (10^{-4} кг/с)

Масса облучаемой воды	Малый отсек		Большой отсек	
	В начальный момент времени	Через 7 сут	В начальный момент времени	Через 7 сут
«Минимальная»	7.8 / 1.0	6.0 / 0.75	0.43 / 0.1	0.43 / 0.1
«Максимальная»	4.7 / 2.0	3.6 / 1.5	0.27 / 0.2	0.27 / 0.2

На рис. 2 представлены расчетные значения массы водорода, поступившего в воздух ЗО из большого и малого отсека БВ.

Согласно результатам расчетов, под ЗО за счет разложения воды в малом отсеке БВ за 7 сут поступает от 54 до 110 кг водорода, а за счет разложения воды в большом отсеке БВ – еще от 6 до 13 кг. Это объясняется различием в мощностях дозы, создаваемой в отсеках бассейна ТВС с разным временем выдержки.

Суммарное количество водорода, которое может поступить в воздух под ЗО за 7 сут аварии, составляет от 60 до 123 кг.

Реальные мощности поглощенной дозы и скорости образования водорода в отсеках бассейна, а также количество водорода, которое поступает в воздушную часть контейнента, находятся между показателями нижнего и верхнего пределов.

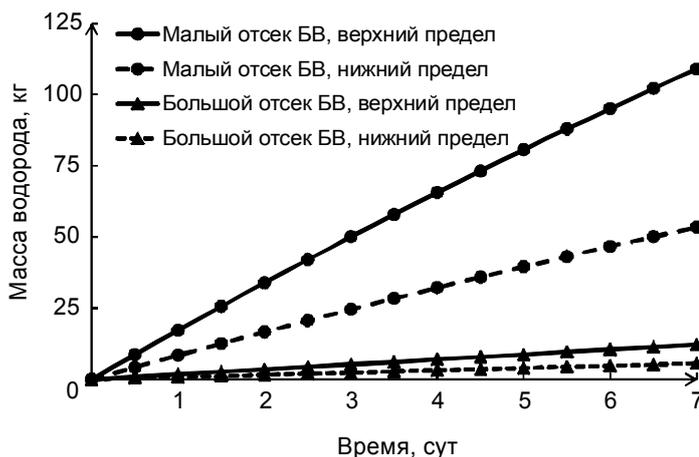


Рис. 2. Масса водорода, поступившего в воздух ЗО из большого и малого отсеков БВ

Выводы

Результаты расчетов показывают, что в рассматриваемом сценарии аварии концентрация образующегося водорода не превышает нижнего концентрационного предела распространения пламени. Поступление водорода в количестве 123 кг соответствует его объемному содержанию около 2.5%. Следует учесть, что в приведенном примере все это количество не накапливается в воздухе под ЗО, а удаляется благодаря работе системы вентиляции. В случае отказа последней накопление водорода возможно, однако повышение концентрации H_2 в воздухе увеличивает и его равновесную концентрацию в воде, что, как известно, замедляет процесс ее разложения. С этой точки зрения рассчитанная концентрация радиолитического H_2 (2.5%) является оценкой «сверху», и в рассматриваемом случае превышения концентрационного предела не будет наблюдаться ни при каких дополнительных условиях, предусмотренных сценарием аварии. С другой стороны, увеличение мощности дозы, например, вследствие повреждения оболочек ТВЭЛов и выхода ПД в воду БВ, является фактором, однозначно повышающим скорость образования и потенциально возможного накопления водорода выше предела пожаро- и взрывобезопасности.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Бабичев А. П., Бабушкина Н. А., Братковский А. М. и др. Физические величины: справочник / под ред. И.С. Григорьева, Е.З. Мейлихова. – М.: Энергоатомиздат, 1991.
2. Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. Теоретическая физика: учеб. пособие: в 10 т. Т. IV / В.Б. Берестецкий, Е.М. Лифшиц, Л.П. Питаевский. Квантовая электродинамика. – 3-е изд., испр. – М.: Наука, 1989.
3. Гусев Н.Г., Климанов В.А., Машкович В.П., Суворов А.П. Защита от ионизирующих излучений. Т. 1. Физические основы защиты от излучений. – М.: Энергоатомиздат, 1986.
4. Егоров Ю. А. Основы радиационной безопасности атомных электростанций: учеб. пособие для вузов / под общ. ред. Н.А. Доллежаля. – М.: Энергоиздат, 1982.
5. Mills R. W. Fission Product Yield Evaluation. – School of Physics and Space Research, University of Birmingham, 1995.
6. <http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/index.asp>
7. Будаев М. А., Васильев А. Д., Звонарев Ю. А. и др. // Сб. трудов 8-й МНТК «Обеспечение безопасности АЭС с ВВЭР». – Подольск, Россия, 2013.
8. Безбородов А. Н., Меркулов В. В. // Сб. трудов 9-й МНТК «Обеспечение безопасности АЭС с ВВЭР». – Подольск, Россия, 2015.
9. Elliot A. J., Chenier M. P., and Ouellette D. C. // J. Chem. Soc., Faraday Trans. – 1993. – V. 89. – No. 8. – P. 1193–1197.
10. Sunaryo G. R., Katsumura Y., Hiroishi D., and Ishigure K. // Radiat. Phys. Chem. – 1995. – V. 45. – No. 1. – P. 131–139.
11. Бяков В. М., Ничипоров Ф. Г. Радиолитиз воды в ядерных реакторах. – М.: Энергоатомиздат, 1990.
12. <https://kinetics.nist.gov/solution/>
13. Himmelblau D. M. // J. Chem. Eng. Data. – 1960. – V. 5. – No. 1. – P. 10–15.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

НИЦ «Курчатовский институт», г. Москва, Россия

Грачев Василий Алексеевич, инженер НИЦ «Курчатовский институт», e-mail: vasya-grachyov@yandex.ru;

Сазонов Алексей Борисович, к.х.н., ведущ. науч. сотр. НИЦ «Курчатовский институт», e-mail: absazonov@mail.ru.

V.A. GRACHEV, A.B. SAZONOV

FORMATION OF RADIOLYTIC HYDROGEN IN VVER-1000 SPENT FUEL POOL CAUSED BY EMERGENCY FUEL DISCHARGE

The computational methods to estimate ionizing radiation absorbed dose rate in the spent fuel pool of water-water power reactor and to simulate formation of radiolytic hydrogen have been developed. The results of simulation in case of beyond design basis accident (without core meltdown) followed by emergency fuel discharge are presented. It is shown that concentration of hydrogen does not exceed the safety limit at the conditions described.

Keywords: *VVER, spent fuel pool, hydrogen, absorbed dose rate, radiolysis, accident.*

NRC «Kurchatov Institute», Moscow, Russia

Grachev Vasiliy Alexeevich, Engineer NRC «Kurchatov Institute», e-mail: vasya-grachyov@yandex.ru;

Sazonov Alexey Borisovich, Ph.D. Chemistry, Leading Research Scientist NRC «Kurchatov Institute», e-mail: absazonov@mail.ru.

УДК 544.58

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/20

В.А. ГРАЧЕВ, А.Б. САЗОНОВ, О.С. БЫСТРОВА, Ю.Н. ЗАДОНСКАЯ, Н.В. ЗАДОНСКИЙ

ОБРАЗОВАНИЕ И РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ТРИТИЯ В ПЕРВОМ КОНТУРЕ ВВЭР: МАТЕМАТИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ

Проведено математическое моделирование образования и распределения трития в первом контуре ВВЭР-1000 при использовании топлива с оболочками твэлов, имеющими различную проницаемость по тритию за счет диффузии в металле (циркониевый сплав Э110 и хромоникелевый сплав 42ХНМ). Результаты расчетов показывают, что активность трития, переходящего из топлива в теплоноситель первого контура за цикл работы на мощности, в хромоникелевом сплаве составит не менее 700 ТБк.

Ключевые слова: тритий, первый контур, ВВЭР, оболочки твэлов, проницаемость.

Введение

В настоящее время на АЭС с ВВЭР в качестве материала топливных оболочек используются сплавы циркония. По отношению к тепловым нейтронам цирконий является ядерно-прозрачным, и основное преимущество циркониевых сплавов – это малая величина потерь нейтронов вследствие захвата. Тем не менее цирконий как конструкционный материал имеет и существенный недостаток: при повышении температуры оболочек твэлов вследствие потери теплоносителя при аварии становится возможной экзотермическая парациркониевая реакция, способная привести к накоплению взрывоопасной газовой смеси H_2 с воздухом. Во избежание этого предлагается использовать для изготовления оболочек твэлов хромоникелевый сплав 42ХНМ. Однако вопросы, связанные с проницаемостью оболочек из 42ХНМ для трития (3H), до сих пор нигде не рассматривались. В настоящей работе представлена модель накопления трития в первом контуре ВВЭР, его распределения по связанным системам, а также в жидких сбросах и газовых выбросах. Результаты моделирования даны для оболочек, выполненных из сплавов Э110 и 42ХНМ.

Методика расчета накопления трития

При работе реакторной установки (РУ) с ВВЭР тритий накапливается в технологических средах систем поддержания водно-химического режима первого контура ВВЭР. Разработанная модель позволяет проводить расчеты активности 3H в теплоносителе первого контура, в бассейнах выдержки (БВ) и перегрузки (БП) топлива, в баках систем хранения теплоносителя (КВВ), дистиллята и борного концентрата (КВС) и в системе переработки трапных вод (КРФ). Основными источниками накопления 3H в теплоносителе при нормальной эксплуатации являются: 1) тройное деление и выход трития из топлива за счет диффузии через оболочки твэлов; 2) активация ядер ^{10}B ; 3) активация дейтерия. В работах [1, 2] приведены параметры, характеризующие скорости образования трития за счет данных процессов.

Содержание борной кислоты (H_3BO_3) в теплоносителе первого контура C_B как функции времени t задается скоростью водообмена в течение топливного цикла, например

$$dC_B/dt = -C_{max}/T_{ц}, \quad (1)$$

где C_{max} – концентрация H_3BO_3 в начале цикла; $T_{ц}$ – длительность цикла. В соответствии с этим концентрация трития в теплоносителе C_0 зависит от времени следующим образом:

$$\frac{dC_0}{dt} = \frac{1}{M} \left(R_f + R_D + R_B \frac{2C_B}{C_{max}} \right) - \lambda \cdot C_0 + \frac{1}{M} \sum_{i=1}^2 Q_{i0} (C_i - C_0), \quad (2)$$

где M – масса теплоносителя; R_f , R_D , R_B – скорости появления 3H в теплоносителе на участке активной зоны за счет выхода из топлива, активации дейтерия и ^{10}B соответственно; λ – постоянная распада 3H ; Q_{i0} – потоки, поступающие в контур из баков дистиллята ($i = 1$) и борного концентрата ($i = 2$) системы КВС; C_i – концентрации 3H в этих баках. В указанных емкостях, а также в баках систем КВВ ($i = 3$) и КРФ ($i = 4$) концентрации 3H определяются из уравнений

$$m_i dC_i/dt = -\lambda \cdot m_i C_i + \sum_j Q_{ji} (C_j - C_i), \quad (3)$$

где индекс j нумерует все емкости (включая контур теплоносителя, когда $j = 0$), потоки из которых приходят в емкость с индексом i ; m_i – масса воды в емкости.

Текущая концентрация H_3BO_3 в системе КВВ (C_K) описывается уравнением, аналогичным (3):

$$dC_K/dt = Q_{03}(C_B - C_K)/m_3. \quad (4)$$

Изменения массы воды в баках дистиллята (m_1) и борного концентрата (m_2) системы КВС, а также массы воды в баке КВВ (m_3) описываются разностью сумм входящих и выходящих потоков:

$$dm_i/dt = \sum_j (Q_{ji} - Q_{ij}). \quad (5)$$

Входящие в емкости потоки включают потоки извне: это химически обессоленная вода (ХОВ), поступающая в баки дистиллята КВС, и трапные воды без трития, направляющиеся в систему КРФ. Вода, получаемая в результате очистки трапных вод, поступает в баки собственных нужд КРФ для повторного использования в технологическом цикле АЭС.

Выходящие потоки из системы КРФ включают поток дебаланса вонне, формирующий жидкий сброс. Последняя величина рассчитывается из материального баланса.

Ненулевые потоки из КВВ в КВС обеспечиваются работой выпарной установки. Неорганизованные протечки теплоносителя, а также воды от пробоотбора из контура поступают на переработку в систему КРФ.

Работа РУ с ВВЭР в течение цикла, включая период планово-предупредительного ремонта (ППР), моделируется следующим образом. При пуске РУ происходит разогрев теплоносителя со сбросом избытка его объема в бак системы FAL.

Выход на номинальную мощность сопровождается снижением концентрации H_3BO_3 в теплоносителе от стояночной до C_{\max} за счет водообмена из бака дистиллята КВС со сбросом теплоносителя в бак КВВ. Работа на мощности подразумевает водообмен для снижения концентрации H_3BO_3 от стартовой концентрации примерно до 0.03 г/кг. Далее до конца цикла снижение осуществляется за счет работы фильтров байпасной очистки, и поток водообмена Q_{03} равен нулю. В остальное время

$$Q_{03} = MC_{\max}/(T_c C_0). \quad (6)$$

В период работы на мощности имеет место подпитка БВ и БП ХОВ для компенсации потерь за счет испарения. Останов реактора осуществляется путем ввода в контур борного концентрата из системы КВС для достижения стояночной концентрации H_3BO_3 со сбросом теплоносителя в баки системы КВВ. Во время расхолаживания контура осуществляется его подпитка из бака системы FAL для компенсации термической усадки теплоносителя.

В период ППР при перегрузке топлива производится объединение теплоносителя и воды БП и БВ, а также подпитка ХОВ БП и БВ для компенсации потерь за счет испарения в этот период. В этот же период происходит полная переработка теплоносителя из баков КВВ и заполнение баков КВС дистиллятом и борным концентратом до начальных уровней.

Удельная активность ^3H в воздухе контейнента в период ППР описывается уравнением

$$A_C = A_0 \exp(-\beta t) + \alpha \cdot A_B [1 - \exp(-\beta t)]/\beta, \quad (7)$$

в котором величины A_0 и A_B имеют смысл удельной активности в воздухе и в воде БВ и БП к началу ППР; α – параметр, характеризующий скорость поступления трития в воздух,

$$\alpha = Q_{\text{исп}}/(V_C S), \quad (8)$$

а β – скорость вывода трития из воздуха контейнента (включая естественный распад),

$$\beta = Q_{\text{вент}}/V_C + \lambda. \quad (9)$$

Здесь V_C – воздушный объем контейнента; $Q_{\text{исп}}$ – скорость испарения воды с зеркала БВ и БП; S – коэффициент изотопного разделения H^1/H^3 в системе «жидкая вода – водяной пар»; $Q_{\text{вент}}$ – расход вентиляции. Величины α и β принимают различные значения при работе на мощности и в период ППР благодаря изменениям температуры воды бассейнов и кратности вентиляции.

Необходимые для тестового моделирования технические характеристики РУ В-320 с реактором ВВЭР-1000 и условия работы ее систем были взяты из проектной документации. При моделировании использовались следующие сценарии компенсации потерь теплоносителя:

- потери за счет неорганизованной протечки и отбора проб полностью компенсируются ХОВ, не содержащей тритий (сценарий 1);
- потери компенсируются дистиллятом собственных нужд из системы КРФ (сценарий 2);
- вся тритийсодержащая протечка собирается отдельно и возвращается в первый контур; сброс дебалансной воды с тритием отсутствует (сценарий 3).

Расчеты по представленным формулам, а также моделирование проницаемости топливных оболочек (см. ниже) проводили с использованием программного пакета MathCad [3].

Результаты расчетов накопления трития и сравнение с данными АЭС

На рис. 1–4 представлены результаты моделирования, проведенные для 50-и циклов работы РУ с ВВЭР-1000. На рис. 1 для сравнения приведены данные по содержанию трития в теплоносителе первого контура реактора PWR. Можно видеть, что и диапазон значений, и характер изменения удельной активности трития в теплоносителе реактора сравнимой мощности с борным регулированием довольно хорошо согласуются с результатами расчета.

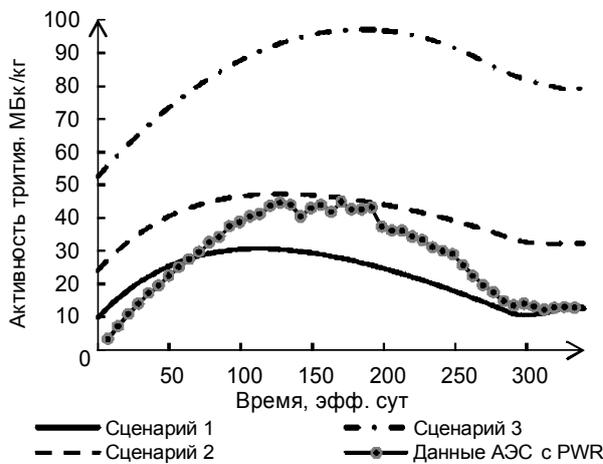


Рис. 1. Активность ^3H в теплоносителе на 50-м цикле

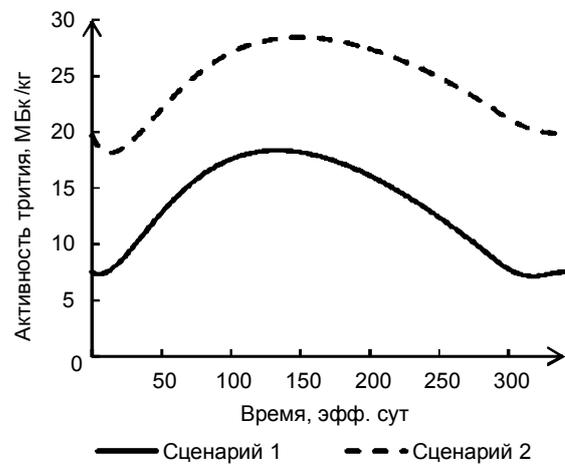


Рис. 2. Активность ^3H в баках КРФ на 50-м цикле

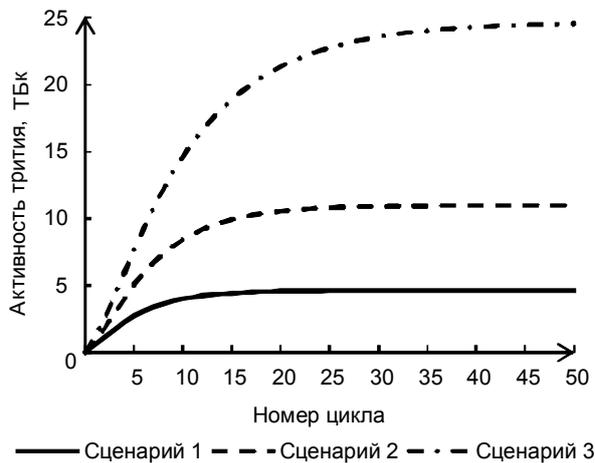


Рис. 3. Газовый выброс трития

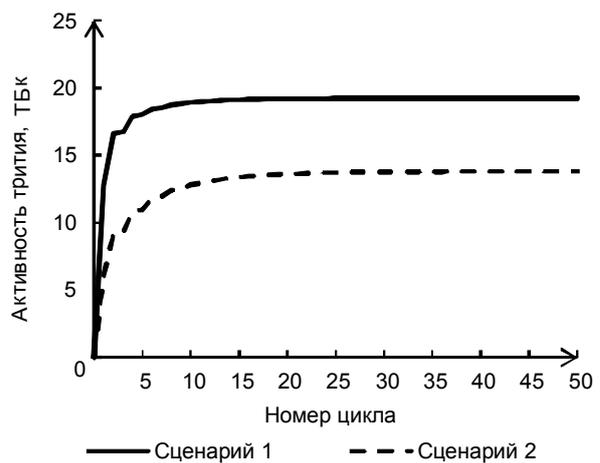


Рис. 4. Жидкий сброс трития

Для реакторов PWR с электрической мощностью ~ 1000 МВт ежегодные газовые выбросы ^3H варьируются от 1 до 30 ТБк, а жидкие сбросы – от 10 до 70 ТБк [4]. Для ВВЭР в пересчете на единицу мощности данные в целом аналогичны [5].

Таким образом, результаты моделирования с рекомендованными значениями выхода ^3H из топлива в теплоноситель (0.1% за счет диффузии и 0.22% за счет проектной негерметичности твэлов) адекватно описывают ситуацию с ^3H на РУ с ВВЭР, где используется топливо с оболочками из циркониевого сплава Э110.

Моделирование проницаемости топливных оболочек для трития

Для оценки проницаемости используем представления о хемосорбции водорода и его растворении в металлах, изложенные в [6]. В рамках этих представлений на поверхности любого металла в общем случае имеют место все элементарные процессы, перечисленные в таблице, с участием молекул H_2 , свободных атомов H газовой фазы, хемосорбированных атомов (H_C) и атомов, растворенных в объеме металла (H_S). В таблице I_0 – число соударений молекул с поверхностью в единицу времени; n – концентрация химически адсорбированного водорода; u – концентрация растворенного водорода; u_{\max} – максимально возможное значение; ν – частота колебаний атома H (принимается одинаковой на поверхности и в объеме); L^2 – площадь, занимаемая одним атомом H на поверхности; E_C и Q_C – потенциальный барьер и энергия хемосорбции, E_S и Q_S – то же для растворения соответственно; $E' = \max(E_C, E_S)$, $E'' = E' - Q_S$; E_D – энергия диссоциации молекулы H_2 в газовой фазе (4.275 эВ).

Скорости элементарных процессов с участием изотопов водорода на поверхности металла

№ п/п	Процесс	Поток частиц через поверхность раздела	Константа скорости	Энергия активации
1	$H_2 \rightarrow 2H_C$	$J_1 = k_1 I_0 [1 - (n/n_{\max})]^2$	$k_1 = \exp(-E_1/kT)$	$E_1 = 2E_C$
2	$2H_C \rightarrow H_2$	$J_2 = k_2 n^2$	$k_2 = \nu L^2 \exp(-E_2/kT)$	$E_2 = 2(E_C - Q_C)$
3	$H_C \rightarrow H_S$	$J_3 = k_3 n [1 - (u/u_{\max})]$	$k_3 = \nu \exp(-E_3/kT)$	$E_3 = E_S - Q_C$
4	$H_S \rightarrow H_C$	$J_4 = k_4 u [1 - (n/n_{\max})]$	$k_4 = \nu L \exp(-E_4/kT)$	$E_4 = E_S - Q_S$
5	$H_2 \rightarrow H_C + H_S$	$J_5 = k_5 I_0 [1 - (n/n_{\max})] \times [1 - (u/u_{\max})]$	$k_5 = \exp(-E_5/kT)$	$E_5 = E_C + E'$
6	$H_C + H_S \rightarrow H_2$	$J_6 = k_6 n u$	$k_6 = \nu L^3 \exp(-E_6/kT)$	$E_6 = E_C - Q_C + E''$
7	$H_2 \rightarrow 2H_S$	$J_7 = k_7 I_0 [1 - (u/u_{\max})]^2$	$k_7 = \exp(-E_7/kT)$	$E_7 = 2E'$
8	$2H_S \rightarrow H_2$	$J_8 = k_8 u^2$	$k_8 = \nu L^4 \exp(-E_8/kT)$	$E_8 = 2E''$
9	$H_C \rightarrow H$	$J_9 = k_9 n$	$k_9 = \nu \exp(-E_9/kT)$	$E_9 = E_D - Q_C$
10	$H_S \rightarrow H$	$J_{10} = k_{10} u$	$k_{10} = \nu L \exp(-E_{10}/kT)$	$E_{10} = E_D - Q_S$

Если диффузионная составляющая не лимитирует переход 3H из внутреннего объема твэла в теплоноситель (что действительно имеет место при высоких температурах), то изменение концентрации 3H в объеме материала оболочки в любой точке и в любой момент времени равно

$$\frac{V du}{dt} = \sum_{i=1,2} S_i (J_{3i} - J_{4i} + J_{5i} - J_{6i} + 2J_{7i} - 2J_{8i} - J_{10i}) - V u \lambda, \quad (10)$$

где S_i – площадь поверхности оболочки твэла ($i = 1$ и 2 соответствует внутренней и наружной поверхностям); V – объем материала оболочки. Изменение концентрации 3H на поверхностях твэла

$$dn_i/dt = 2J_{1i} - 2J_{2i} - J_{3i} + J_{4i} + J_{5i} - J_{6i} - J_{9i} - S_i n_i \lambda, \quad (11)$$

а изменение числа атомов 3H внутри твэла и снаружи равны соответственно

$$dN_1/dt = S_1 (-2J_{11} + 2J_{21} - 2J_{51} + 2J_{61} - 2J_{71} + 2J_{81} + J_{91} + J_{101}) + R - N_1 \lambda; \quad (12)$$

$$dN_2/dt = S_2 (2J_{22} + 2J_{62} + 2J_{82} + J_{92} + J_{102}) - N_2 \lambda. \quad (13)$$

Последнее выражение определяет скорость выхода 3H в теплоноситель. Выразим I_0 через число молекул N_1 , свободный объем V_G внутри твэла и локальную температуру, принимаемую равной температуре внутренней стенки T_1 :

$$I_0 = (N_1/V_G) \sqrt{kT_1/2\pi m}, \quad (14)$$

где k – постоянная Больцмана; m – масса молекулы.

Система (10) – (13) с начальными условиями (u_0, n_{i0}, N_{i0}) решается численно. Параметрами являются величины $E_C, Q_C, E_S, Q_S, \nu, L, u_{\max}, n_{\max}, S_i, T_i, V$ и V_G . Все они, за исключением четырех последних, определяемых геометрией и температурой внутри и на поверхности твэла, характеризуют взаимодействие ^3H с оболочкой. При этом, поскольку хемосорбция Н на металлах (кроме Cu, Ag, Au [7]) носит неактивированный характер, $E_C = 0$.

Величина кванта колебательной энергии для атома Н на поверхности металлов на разных гранях составляет в среднем 120 мэВ [7]. То же справедливо и для атомов в объеме (кроме Pd с аномально низкой $h\nu \approx 60$ мэВ). Так как для ^3H частота примерно в $\sqrt{3}$ раз ниже, $\nu \approx 1.7 \cdot 10^{13}$ Гц.

Параметры L и n_{\max} в рамках модели хемосорбции Лэнгмюра являются зависимыми, характеризуя одно и то же свойство поверхности металла: адсорбционную емкость

$$n_{\max} = 1/L^2. \quad (15)$$

Атомы Н способны связываться с поверхностными атомами металла в максимальном соотношении 1:1, поэтому мерой адсорбционной емкости служит атомный радиус металла. Так как поверхность представлена гранями с различными индексами, используем эмпирическое соотношение между атомным радиусом R_a и «посадочной площадкой» атома Н на Ni [8]:

$$L^2 = 1.27\pi R_a^2. \quad (16)$$

Величину максимальной растворимости u_{\max} для разбавленного раствора можно определить как концентрацию атомов Н, соответствующую предельному заполнению междоузлий, заселяющихся в первую очередь. При этом, так как в разбавленном растворе $u/u_{\max} \ll 1$, изменением объема, которым сопровождается растворение водорода, можно пренебречь и считать u_{\max} величиной, зависящей только от параметра решетки. В этом случае

$$u_{\max} = za^3/64R_a^3, \quad (17)$$

где z – число занимаемых атомом Н междоузлий, приходящееся на одну элементарную ячейку; $a = \sqrt{2}$ и $\sqrt{3}$ для плотноупакованных и ОЦК-решеток соответственно.

Параметры Q_C и Q_S для большинства металлов известны, тогда как о величинах E_S надежной информации нет. В первом приближении

$$E_S = Q_S + U, \quad (18)$$

где U – энергия активации диффузии. Значения R_a, U, Q_C и Q_S для основных металлов, входящих в состав Э110 и 42ХНМ, были взяты из работ [7, 9–12]. Влиянием Nb и других металлов в сплаве Э110 на свойства циркония по отношению к водороду пренебрегали. 42ХНМ по своей структуре представляет собой частично упорядоченный твердый раствор Ni в Cr. Упорядоченная фаза соответствует соединению Ni_2Cr с ОЦК-решеткой [13]. В связи с этим структурные параметры 42ХНМ были приняты равными таковым для чистого Cr, а энергетические – усреднены (влиянием Mo и других металлов также пренебрегали).

Расчеты проводились для твэлов сборок ТВС-2М. Истинную площадь поверхности считали равной геометрической. Долю свободного объема под оболочкой принимали равной 30%, температуры на внутренней и внешней поверхностях – 375 и 355 °С соответственно. Общую скорость образования трития в топливе делили на число твэлов в активной зоне ВВЭР-1000.

Результаты моделирования проницаемости топливных оболочек по тритию

На рис. 5 показаны результаты расчетов по распределению ^3H между объемом металла оболочки твэла, его поверхностями, пространством внутри твэла и пространством теплоносителя в зависимости от времени работы реактора. Видно, что большая часть ^3H при использовании Э110 остается растворенной в объеме оболочки, тогда как в случае 42ХНМ уходит в теплоноситель. Причина этого – экзотермическое растворение водорода в Zr, для которого $Q_S = -0.732$ эВ [12].

Как показывает расчет, выход ^3H в теплоноситель из-под оболочек из сплава Э110 за счет диффузии к моменту окончания топливного цикла составляет 0.17%, что разумно согласуется с рекомендованной в [1] величиной 0.1%. Для 42ХНМ эта величина составляет 99.9%. Таким образом, хромоникелевые сплавы сами по себе оказываются прозрачными для ^3H , и вклад негерметичных твэлов при переходе трития в теплоноситель сводится к нулю.

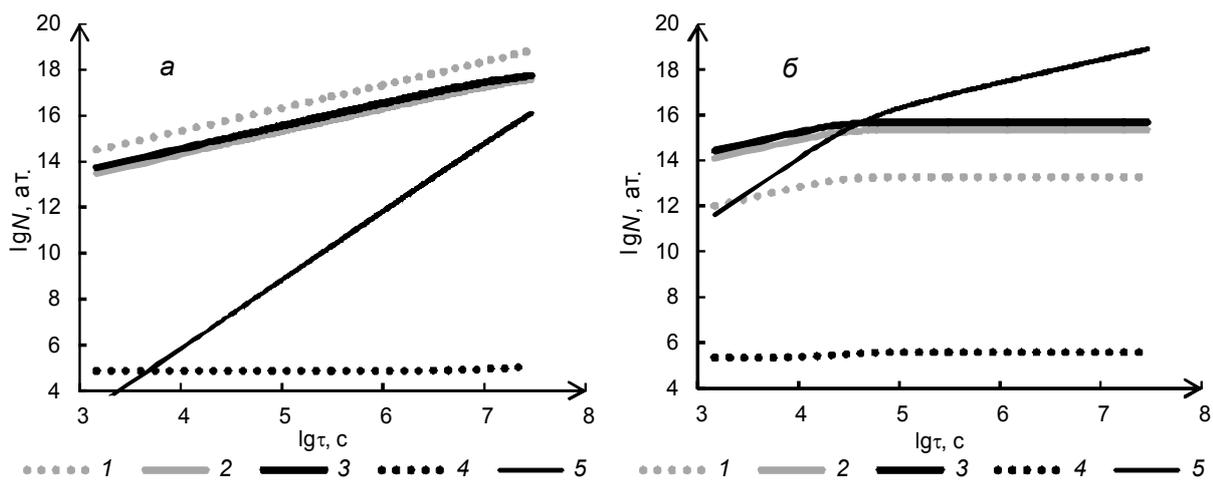


Рис. 5. Распределение трития, образующегося в твэле с оболочкой из циркониевого сплава Э110 (а) и сплава 42ХНМ (б): 1 – в объеме оболочки; 2 – на внутренней поверхности оболочки; 3 – на внешней поверхности оболочки; 4 – в твэле; 5 – выход трития в теплоноситель

На рис. 7 представлены расчетные данные по количеству ^3H , образовавшегося в теплоносителе и поступившего в него из ядерного топлива в ВВЭР-1000 для разных материалов оболочек твэлов. Можно видеть, что при использовании хромоникелевого сплава это значение как минимум на порядок больше, в связи с чем величина сброса и выброса ^3H в окружающую среду также будет в несколько раз выше.

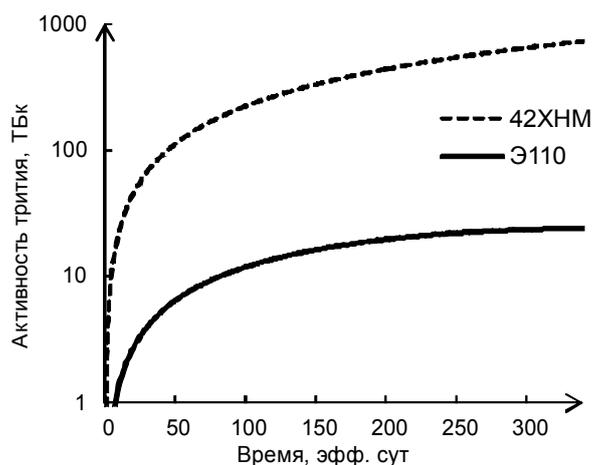


Рис. 7. Образование трития в первом контуре ВВЭР-1000 в течение цикла работы

Выводы

Результаты моделирования накопления и распределения ^3H в технологических средах РУ с ВВЭР хорошо согласуются с данными АЭС, использующих твэлы с оболочками из циркониевых сплавов.

Расчеты показывают, что высокая растворимость изотопов водорода в цирконии создает емкостный барьер на пути проникновения ^3H из топлива в теплоноситель первого контура. Сплавы, в которых такой барьер отсутствует, прозрачны для трития. Поэтому использование прозрачных для ^3H топливных оболочек потребует разработки в составе РУ узла извлечения ^3H .

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Егоров Ю.А. Основы радиационной безопасности атомных электростанций. – М.: Энергоатомиздат, 1982.
2. Голубев Л.И., Илясов В.М., Лурье А.И. и др. // Атомная энергия. – 1979. – Т. 46 (2). – С. 79–92.
3. Кирьянов Д.В. Mathcad 15/MathcadPrime 1.0. – СПб.: БХВ-Петербург, 2012.
4. Daugherty N. and Conatser R. Radioactive Effluents from Nuclear Power Plants. Annual Report 2008. Office of Nuclear Reactor Regulation U.S. Nuclear Regulatory Commission.
5. Наумов В.А., Климин С.Г. // Вестник МГТУ. – 1998. – Т. 1. – № 3. – С. 145–150.

6. Pisarev A. A. and Ogorodnikova O. V. // J. Nucl. Mater. – 1997. – V. 248. – P. 52–59.
7. Агеев В.Н., Бекман И.Н., Бурмистрова О.П. и др. Взаимодействие водорода с металлами. – М.: Наука, 1987.
8. Трепнел Б. Хемосорбция. – М.: ИЛ, 1958.
9. Колачев Б.А. Водородная хрупкость цветных металлов. – М.: Metallurgia, 1966.
10. Гранкин Э.А., Шалимов Ю.Н., Островская Е.Н. // Альтернативная энергетика и экология. – 2004. – № 7.
11. Водород в металлах. 1. Основные свойства / под ред. Г. Алефельда и И. Фелькля. – М.: Мир, 1981.
12. Черняева Т.П., Остапов А.В. // ВАНТ. – 2013. – № 5 (87). – С. 16–32.
13. Barnard L., Young G. A., Swoboda B., et al. // Acta Mater. – 2014. – V. 81. – P. 258–271.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

НИЦ «Курчатовский институт», г. Москва, Россия

Грачев Василий Алексеевич, инженер НИЦ «Курчатовский институт», e-mail: vasya-grachyov@yandex.ru;
Сазонов Алексей Борисович, к.х.н., ведущ. науч. сотр. НИЦ «Курчатовский институт», e-mail: absazonov@mail.ru;
Быстрова Ольга Сергеевна, к.х.н, ст. науч. сотр. НИЦ «Курчатовский институт», e-mail: Bystrova_OS@nrcki.ru;
Задонская Юлия Николаевна, инженер НИЦ «Курчатовский институт», e-mail: Zadonskiy_NV@nrcki.ru;
Задонский Николай Васильевич, начальник группы НИЦ «Курчатовский институт», e-mail: Zadonskiy_NV@nrcki.ru.

V.A. GRACHEV, A.B. SAZONOV, O.S. BYSTROVA, Y.N. ZADONSKAYA, N.V. ZADONSKY

FORMATION AND DISTRIBUTION OF TRITIUM IN THE PRIMARY CIRCUIT OF VVER: NUMERICAL SIMULATION

Formation and distribution of tritium in VVER-1000 primary circuit has been simulated for the cases when fuel rod cladding was made of structured materials with different tritium permeability due to its diffusion in metal, namely zirconium alloy E110 and chromium-nickel alloy containing 42% of Cr. The simulation results show that in the last case activity of tritium transferred from nuclear fuel into primary circuit coolant during one cycle of the reactor power operating exceeds 700 TBq. Thus, one can expect that the use of chromium-nickel alloys for fabrication of fuel cladding will increase both gas exhaust and liquid discharge of tritium from the VVER nuclear power plants in a few times.

Keywords: tritium, primary circuit, VVER, fuel rod cladding, permeability.

NRC «Kurchatov Institute», Moscow, Russia

Grachev Vasily Alexeevich, Engineer NRC «Kurchatov Institute», e-mail: vasya-grachyov@yandex.ru;
Sazonov Alexey Borisovich, Ph.D. Chemistry, Leading Research Scientist NRC «Kurchatov Institute», e-mail: absazonov@mail.ru;
Bystrova Olga Sergeevna, Ph.D. Chemistry, Senior Research Scientist NRC «Kurchatov Institute», e-mail: Bystrova_OS@nrcki.ru;
Zadonskaya Yliya Nikolaevna, Engineer NRC «Kurchatov Institute», e-mail: Zadonskiy_NV@nrcki.ru;
Zadonsky Nikolay Vasil'evich, Head of Group NRC «Kurchatov Institute», e-mail: Zadonskiy_NV@nrcki.ru.

УДК 53.083

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/27

О.П. ИВАНОВ¹, В.Н. ПОТАПОВ¹, М.А. САМОЙЛОВА^{1,2}

ВИЗУАЛИЗАЦИЯ ИСТОЧНИКОВ ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЯ С ПОМОЩЬЮ СКАНЕРА С АНТИКОЛЛИМАТОРОМ *

Описан метод формирования гамма-изображений, основанный на сканировании области интереса с применением антиколлимационной техники. Данный метод может применяться при создании средств визуализации гамма-источников, предназначенных для проведения работ по выводу из эксплуатации объектов использования атомной энергии, а также для дезактивационных и восстановительных работ при обращении с радиоактивными отходами. Применение методики сканирования с антиколлиматором позволяет значительно сократить массу и габариты системы визуализации по сравнению с коллимационной техникой, а в некоторых случаях сократить время, необходимое для обследования радиационно-загрязненного объекта.

Ключевые слова: визуализация гамма-излучения, антиколлиматор, спектрометрический детектор, картирование гамма-радиоактивного загрязнения.

Введение

История визуализации гамма-излучения берет свое начало в астрофизике. Для идентификации первого космического источника рентгеновского излучения [1] использовался коллиматор [2], ограничивающий поле зрения детекторов на основе счетчиков Гейгера и пропорциональных счетчиков. Первая карта звездного неба получена благодаря запуску спутника Uhuru – первой орбитальной рентгеновской обсерватории [3], на борту которой размещались коллимированные счетчики Гейгера, регистрировавшие рентгеновское излучение с энергиями от 2 до 20 кэВ. В [4] был предложен переход от камеры-обскуры с единичным отверстием к массиву случайным образом расположенных коллиматоров. Данный метод заложил основы для применения кодирующих апертур, использование которых стало важным достижением в приборостроении.

Сегодня для эффективной локализации источников гамма-излучения при проведении реабилитационных работ применяются устройства, позволяющие визуализировать распределение источников гамма-излучения в пространстве. Это позволяет повысить точность выполняемых работ, сократить дозовую нагрузку на персонал, а также сроки выполнения реабилитационных манипуляций. Существует ряд методов визуализации источников гамма-излучения: сканирование с коллиматором [5], камера-обскуры [6], камера Комптона [7], кодирующие апертуры [8], комбинированные системы [9] и др. Каждый метод обладает своими преимуществами и недостатками и для решения каждой конкретной задачи требуется тщательный анализ условий применения разрабатываемой системы для поиска оптимального метода визуализации гамма-излучения.

Одним из самых простых и доступных способов формирования гамма-изображения является сканирование с коллиматором – детектирующая головка, представляющая собой детектор, размещенный в массивной защите с небольшим отверстием (апертурой) для пространственной модуляции потока гамма-квантов, устанавливается на поворотном-наклонном механизме. В процессе сканирования формируется массив данных о вкладе активности в рассматриваемом телесном угле в точке размещения гамма-локатора. Основным недостатком такой системы является очень большая масса установки, поскольку для эффективной модуляции потока гамма-квантов требуется толстый слой защиты. Кроме того, в некоторых случаях необходимо двукратное сканирование для точного учета влияния фонового излучения.

В работе описывается способ получения гамма-изображений с помощью сканера с антиколлиматором, позволяющий значительно сократить массу и габариты средства гамма-визуализации, а в некоторых случаях и время сканирования обследуемого объекта.

Метод сканирования с антиколлиматором

Антиколлиматор представляет собой объект из материала высокой плотности, помещенный перед открытым детектором для модуляции потока гамма-квантов. Такой объект описан в патен-

* Работа выполнена при поддержке НИЦ «Курчатовский институт» (приказ от 14.08.2019 № 1808).

те [10] и был предложен для решения задачи визуализации источников гамма-излучения для случая, когда излучение имеет преимущественно одно направление.

Техника сканирования с применением антиколлиматора заключается в последовательном перемещении оси антиколлиматора относительно детектора в границах области интереса: в каждой точке антиколлиматор поглощает ту часть гамма-излучения, которая направлена от источников, расположенных на одной оси с детектором и антиколлиматором; детектор регистрирует излучение в 4π -пространстве за исключением телесного угла за антиколлиматором – в областях с источниками будут наблюдаться «теневые» области, характеризующиеся меньшей в сравнении с соседними интенсивностью (рис. 1). В процессе сканирования формируется теневое изображение источников гамма-излучения. Реальное изображение источников осуществляется с помощью процедуры инверсии «теневой области» изображения, т.е. путем формирования разностного сигнала открытого детектора (однократное измерение) и теневых сигналов детектора с антиколлиматором, формируемых в процессе сканирования.

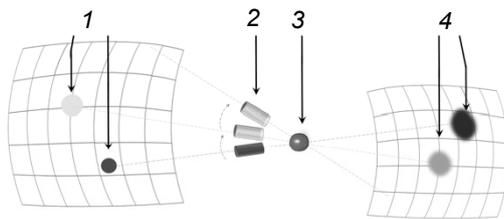


Рис. 1. Схематическое представление антиколлимационного метода: 1 – источники гамма-излучения в области интереса; 2 – положения антиколлиматора в процессе сканирования; 3 – чувствительный элемент детектора; 4 – области теневого изображения

Реконструкция изображения методом максимального правдоподобия позволяет повысить угловое разрешение системы благодаря процедуре восстановления полученного по результатам сканирования массива данных. Итоговое изображение получается наложением восстановленного гамма-изображения на фотопанораму, полученную по результатам сшивки фотоснимков, сделанных в каждой точке сканирования.

Гамма-сканер с антиколлиматором

При разработке устройства основными требованиями были легкость и компактность, а также простота в управлении.

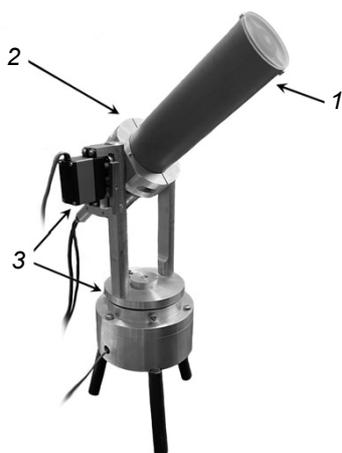


Рис. 2. Внешний вид гамма-сканера с антиколлиматором: 1 – детектирующая головка; 2 – фиксатор детектирующей головки; 3 – поворотные механизмы

На рис. 2 показан внешний вид прототипа гамма-сканера с антиколлиматором, изготовленного в НИЦ «Курчатовский институт». Гамма-сканер с антиколлиматором представляет собой детектирующую головку 1, размещенную с помощью фиксатора 2 на поворотно-наклонном устройстве 3 на треноге.

Детектирующая головка состоит из детектора и антиколлиматора, разнесенных на определенное расстояние и помещенных в единый корпус. На фронтальной стороне детектирующей головки размещена видеокамера так, что ось ее симметрии параллельна оси антиколлиматора и центра детектора.

Спектрометрический детектор

Поскольку основным узлом устройства является детектор, ключевым моментом было создание максимально легкого и компактного чувствительного элемента, отвечающего основным требованиям:

1. Для обеспечения возможности определения радионуклидного состава загрязнения детектор должен регистрировать гамма-излучение в диапазоне энергий от 100 кэВ до 1.5 МэВ в спектрометрическом режиме.

2. Для разрешения радионуклидов долгоживущих элементов цезий-137 (662 кэВ) и кобальт-60 (1.17 и 1.33 МэВ) энергетическое разрешение по энергии 662 кэВ должно быть не хуже 15%.

3. Для сохранения анизотропии чувствительности при перемещении детектирующей головки чувствительный объем детектора должен иметь форму шара.

4. Эффективность регистрации должна быть достаточна для выполнения измерений в условиях мощности дозы в точке размещения 0.1 мЗв/ч.

В качестве материала детектора применен сцинтиллятор CsI(Tl), так как низкая гигроскопичность и прочность позволяют обрабатывать кристалл, придавая ему нужную форму, а спектр свечения хорошо согласуется со спектром поглощения твердотельных кремниевых фотоумножителей SiPM [11], которые обладают минимальными массогабаритными характеристиками из всех известных фотоприемников. Объем кристалла детектора составил 6 см³.

Суммарная масса детектора с предусилительной электроникой и в корпусе составила 200 г. Эффективность регистрации по энергии 662 кэВ – 30%. Энергетический диапазон от 50 кэВ до 1.5 МэВ подтверждается возможностью регистрации низкоэнергетического гамма-излучения радионуклида америций-241 (59.5 кэВ) и высокоэнергетического излучения радионуклида кобальт-60 (1.17 и 1.33 МэВ). Энергетическое разрешение по энергии 662 кэВ – 12.1% обеспечивается применением четырех кремниевых фотоприемников СРГА-149-35 размерами 3×3 мм. Управление детектором осуществляется спектроанализатором «Колибри» [12].

Моделирование системы

Определение оптимальных геометрических параметров выполнялось с помощью компьютерного моделирования. Для этого методом Монте-Карло моделировался отклик системы для различных геометрических комбинаций детектор – антиколлиматор, затем полученные результаты обрабатывались с помощью метода максимального правдоподобия. В качестве основных критериев были проанализированы отношение сигнала к шуму, частотно-контрастная характеристика и аппаратная функция моделируемой системы.

По результатам оптимизации определено, что оптимальной формой антиколлиматора является свинцовый цилиндр высотой 4 см (из соображений оптимального поглощения для энергий основных дозообразующих радионуклидов цезий-137 и кобальт-60) и радиусом 1 см, удаленный на 10 см от центра детектора. При этом угловая апертура антиколлиматора составляет порядка 10°.

Полученные результаты моделирования позволили сконструировать прототип гамма-сканера с антиколлиматором с оптимальными геометрическими параметрами, при этом не потребовалось изготавливать ряд образцов и экспериментально определять характеристики каждого из них, что оказалось бы весьма затратно как с точки зрения использования материальных ресурсов, так и времени.

Предварительные лабораторные эксперименты показали влияние крепежных элементов на аппаратную функцию системы, поэтому в конструкцию был внесен ряд корректировок.

Экспериментальное определение аппаратной функции подтвердило значение угловой апертуры антиколлиматора на половине высоты порядка 10°.

Конструкция и элементы управления

Поскольку масса детектирующей головки достаточно мала, то требования по механической нагрузке на поворотный механизм значительно ниже, нежели для устройств, применяющих коллимационную технику, однако требования к точности позиционирования остаются высокими. При изготовлении прототипа гамма-сканера с антиколлиматором были применены два сервопривода, один из которых обеспечивает перемещение детектирующей головки по азимутальной координате, второй – по полярной. Управление сервоприводами обеспечивается специальным контроллером, который, получая команду с управляющего компьютера, задает положение соответствующему сервоприводу, после чего сервопривод плавно перемещается в заданную координату. В результате поворотный механизм обеспечивает высокую точность позиционирования детектирующей головки при низком токопотреблении.

Масса детектирующей головки, размещенной на треноге с поворотным механизмом, составила всего 3.8 кг.

Управление гамма-сканером с антиколлиматором осуществляется с помощью персонального компьютера. Графический интерфейс приложения для управления устройством позволяет опреде-

лить границы области интереса, выполнить фоновое измерение (для открытого детектора) и выполнить сканирование в заданной области. Область интереса определяется путем задания координат детектирующей головки и проверки установленного положения по отображающемуся фотоснимку и лазерному указателю. Фоновое измерение выполняется в вертикальном положении детектирующей головки, когда детектор регистрирует излучение от всех источников в помещении. Для выполнения сканирования объекта требуется задать границы сканируемой области, шаг сканирования и время одного измерения (время измерения в каждой точке).

При старте измерения управляющий компьютер направляет контроллеру сервоприводов команду, содержащую информацию о задаваемом положении; сервоприводы занимают указанные положения, о чем на управляющий компьютер приходит сообщение; в установленном положении захватывается изображение с видеокамеры – оно сохраняется в памяти управляющего компьютера и обновляется в окне графического интерфейса управляющей программы; также управляющий компьютер направляет команду спектроанализатору об установленном времени измерения и команду к старту измерения. Прибор в автоматическом режиме сканирует помещение в заданных границах области интереса по заданному программой управления сценарию.

Процедура обработки результатов измерений

По окончании сканирования в заданной директории формируется массив спектров, каждый из которых соответствует определенным угловым координатам, а также фоновый спектр. В каждом спектре определяется интегральная скорость счета в пике полного поглощения рассматриваемого радионуклида(ов) в данной точке (рис. 3, а).

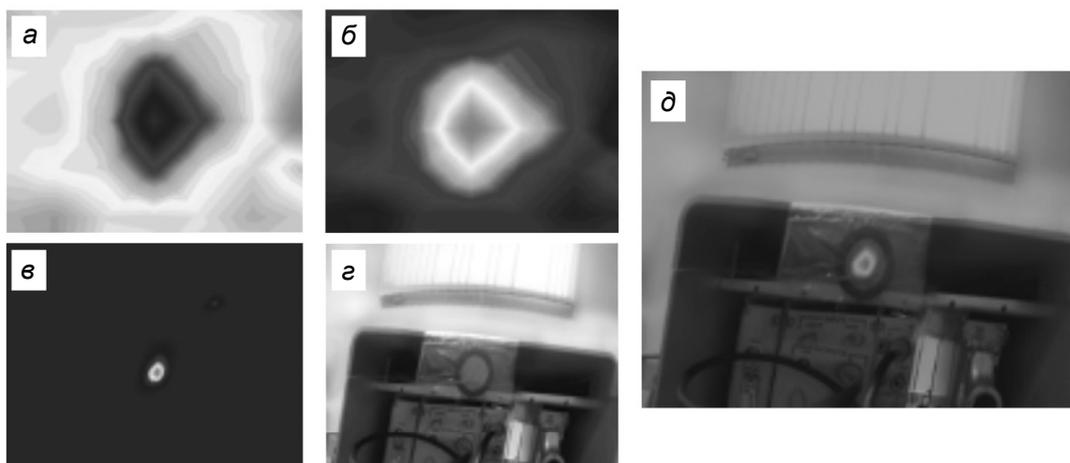


Рис. 3. Процедура обработки результатов измерений на примере визуализации точечного источника типа ОСГИ с радионуклидом натрий-22: формирование гамма-изображения (а); результат вычитания из фонового спектра (б); восстановленное изображение (в); панорамное фото (г); результат наложения восстановленного изображения на панорамное фото (д)

Вклад от источников, расположенных в измеряемом телесном угле (точке сканирования), определяется разностью интегральной скорости счета в пиках полного поглощения рассматриваемого радионуклида фонового спектра и спектра, полученного в рассматриваемой точке сканирования (рис. 3, б).

Для повышения углового разрешения и точности визуализации применяется процедура реконструкции (рис. 3, в), заключающаяся в решении обратной задачи методом максимального правдоподобия [13] с помощью программного обеспечения «Программа восстановления пространственного распределения источников излучения по результатам измерений гамма-сканером с антиколлиматором» [14].

Сшивка полученных в каждой точке фотоснимков позволяет получить панорамное изображение (рис. 3, г), для этого применяется программный инструмент Autostich [15].

Для визуализации распределения источников гамма-излучения результат реконструкции накладывается на панорамное изображение (рис. 3, д). Полученная карта углового распределения активности демонстрирует расположение гамма-источников в области интереса.

Результаты испытаний гамма-сканера с антиколлиматором

Экспериментально определялось угловое разрешение гамма-сканера с антиколлиматором. Для этого использовались два источника ионизирующего излучения с радионуклидом цезий-137 с отношением активностей 1:3. Активность источника, размещаемого справа, в 3 раза меньше, чем активность левого. Источники устанавливались на вертикальной поверхности на расстоянии 2 м от гамма-сканера с антиколлиматором на различном (5.3 , 7.1 , 8.5 , 11 и 14°) угловом расстоянии друг от друга. В заданной области проводилось сканирование в автоматическом режиме. Поле сканирования представляло собой прямоугольную область высотой 20° и шириной 35° . Дополнительно было выполнено фоновое измерение в вертикальном положении детектирующей головки. Результаты измерения обрабатывались итерационным методом с помощью программы восстановления, после чего накладывались на панорамное изображение обследуемого объекта.

На рис. 4 приведены результаты наложения восстановленных изображений (поз. 2) на фото для двух источников (поз. 1), расположенных на угловом расстоянии 5.3° (рис. 4, а), 8.5° (рис. 4, б) и 11° (рис. 4, в) друг от друга.

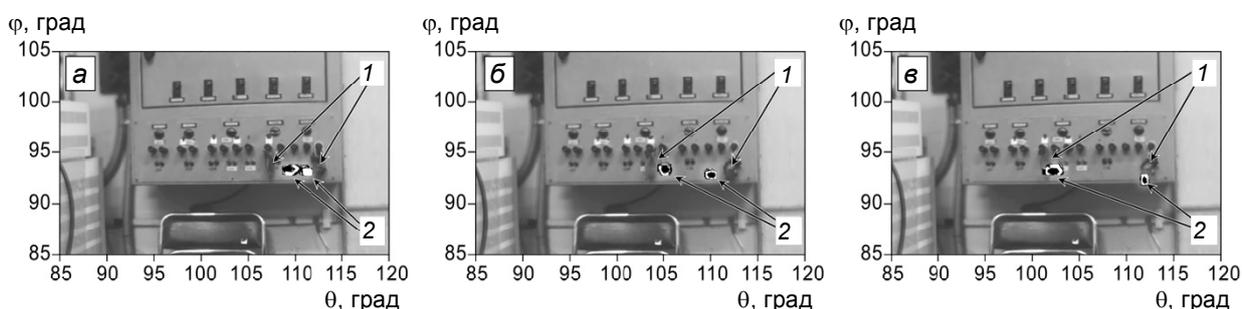


Рис. 4. Результаты определения углового разрешения для двух точечных источников с радионуклидом цезий-137, расположенных на угловом расстоянии 5.3 (а), 8.5 (б) и 11° (в)

Из рис. 4 видно, что два источника, расположенные на угловом расстоянии 11° , однозначно разрешаются сканирующей системой. Процедура восстановления позволяет точно локализовать каждый источник гамма-излучения, а соотношение интегральных значений интенсивностей точно соответствует отношению активностей источников. При расположении источников гамма-излучения на угловом расстоянии 8.5° заметно некоторое размытие и незначительное смещение, однако два точечных источника разрешаются в хорошем качестве, а соотношение интенсивностей хорошо согласуется с фактическим соотношением активностей рассматриваемых источников. Два точечных источника, расположенные на угловом расстоянии 5.3° , различаются как два отдельно расположенных источника, причем хорошо видно, что активность левого источника выше активности правого.

Для оценки влияния фонового излучения на разрешающую способность гамма-сканера с антиколлиматором была проведена серия экспериментов с двумя точечными источниками с радионуклидом цезий-137. Один источник размещался в сканируемой области интереса, а второй источник формировал фоновую подсветку и перемещался относительно гамма-сканера для изменения мощности дозы. Мощность дозы, создаваемая основным источником в точке размещения гамма-сканера составляла 0.01 мЗв/ч. Фоновая мощность дозы, создаваемая вторым источником, в точке размещения гамма-сканера составляла от 0.01 до 0.05 мЗв/ч. На рис. 5 приведены результаты серии экспериментов.

Измерению на рис. 5, а соответствует фоновая мощность дозы фонового источника 0.01 мЗв/ч, на рис. 5, б – 0.02 мЗв/ч, на рис. 5, в – 0.03 мЗв/ч, на рис. 5, г – более 0.05 мЗв/ч. Из рисунка видно, что с увеличением мощности дозы боковой подсветки в некоторой степени происходит размытие изображения точечного источника гамма-излучения; однако интегральная интенсивность области расположения источника сохраняется во всех случаях. Также в случаях, приведенных на рис. 5, в и г, заметно смещение расположения изображения точечного источника в сторону боковой подсветки.

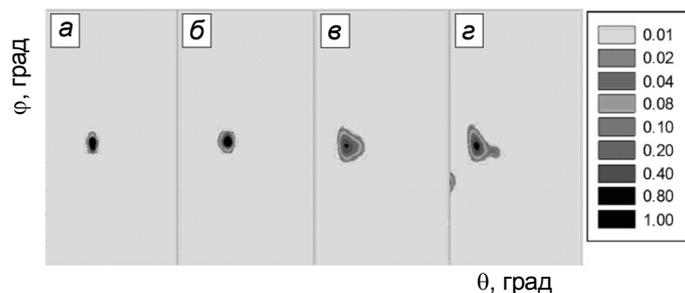


Рис. 5. Влияние фонового излучения на разрешающую способность в зависимости от мощности фонового источника: для значений фоновой мощности дозы 0.01 (а), 0.02 (б), 0.03 (в), более 0.05 мЗв/ч (г)

Полевые испытания гамма-сканера с антиколлиматором проводились в одном из помещений здания для очистки воды первого контура исследовательского реактора МР. Сканирование выполнялось в области $70 \times 80^\circ$ с шагом 5° по каждому направлению. Время экспозиции в каждой точке составляло 30 с. Результаты обследования приведены на рис. 6, где показан результат наложения гамма-изображения, полученный в процессе сканирования (а) и в ходе реконструкции (б). Области загрязнения показаны изолиниями разной толщины.

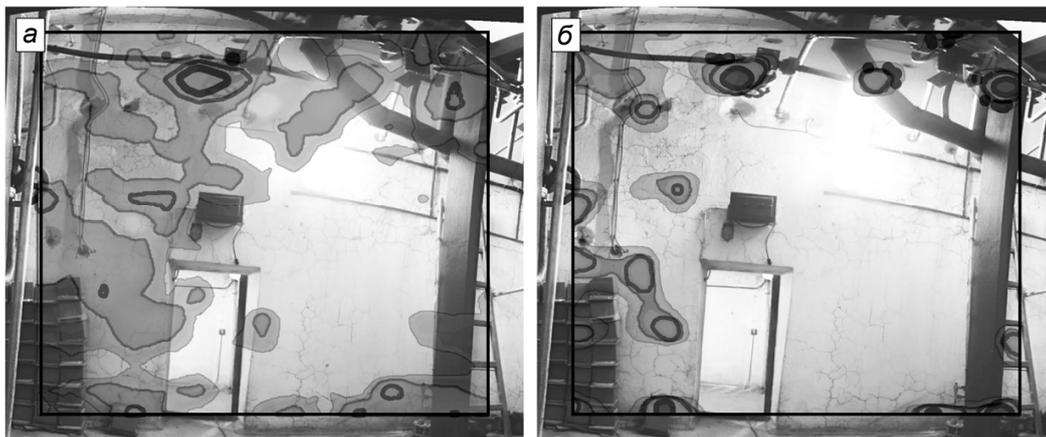


Рис. 6. Результаты измерений (а) и восстановления (б) распределения активности радионуклида цезий-137, полученные по результатам сканирования с антиколлиматором

Обследование показало наличие в помещении радиоактивного загрязнения радионуклидом цезий-137. Наложение восстановленного гамма-изображения на оптический снимок позволило локализовать наиболее загрязненные участки: вентили, сварочные швы, отдельные участки трубопровода.

Лабораторные испытания гамма-сканера с антиколлиматором показали возможность его применения для проведения работ в условиях максимальной мощности дозы в точке размещения устройства до 0.2 мЗв/ч.

Заключение

Продемонстрирована эффективность применения методики сканирования с применением антиколлиматора для снижения массы и времени измерения сканируемых систем визуализации гамма-излучения. Общая масса прототипа гамма-сканера с антиколлиматором составила менее 4 кг, что на порядок меньше аналогичных сканирующих систем с коллиматором. Угловое разрешение системы составляет менее 6 градусов. Испытания гамма-сканера с антиколлиматором показывают перспективность применения разработанного устройства для обследования радиационно-загрязненных объектов. Продемонстрирована возможность локализации источников гамма-излучения с помощью методики сканирования с применением антиколлиматора.

Авторы выражают благодарность С.М. Игнатову и И.А. Семину за помощь в создании прототипа гамма-сканера с антиколлиматором.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Riccardo Giacconi, Herbert Gursky, Frank R. Paolini, and Bruno B. Rossi // *Phys. Rev. Lett.* – 1962. – V. 9. – P. 439.
2. Minoru Oda // *Appl. Opt.* – 1965. – V. 4. – Iss. 1. – P. 143–143.
3. Kellogg E. M. // Newton Lacy Pierce Prize Lecture, *Astrophysical Journal.* – 1975. – V. 197. – May 1. – Pt. 1. – P. 689–691, 693–695, 697–704. NASA-supported research, 1975.
4. Dicke R. H. // *Astrophys. J.* – 1968. – V. 153. – P. L101.
5. Степанов В.Е., Смирнов С.В., Иванов О.П., Данилович А.С. // *Атомная энергия.* – 2010. – Т. 109. – № 2. – С. 82–84.
6. Chiron M., Diop C.M., Gal O., et al. // *Proc. SFEN 2003 Conf. Decommissioning challenges: An Industrial Reality*, 2003.
7. Kagayaag M., Katagiriag H., Enomoto R., et al. // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment.* – 2015. – V. 804. – P. 25–32.
8. Иванов О.П., Степанов В.Е., Смирнов С.В. и др. // *Ядерные измерительно-информационные технологии.* – 2011. – № 2(38). – С. 48–50.
9. Wahl Christopher, Kaye Willy, Wang Weiyi, et al. // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* – 2015. – V. 422. 10.1016/j.nima.2014.12.110.
10. Patent. European Patent Application. Application number 94300288.1/ Date of filing: 17.01.94, Priority: 22.01.93 GB 9301206. Applicant: British Nuclear Fuels PLC Risley Warrington Cheshire, WA3 6 AS (GB).
11. Golovin V. and Saveliev V. // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A.* – 2004. – V. 518. – P. 560–565.
12. <http://greenstar.ru>.
13. Тараско М.З., Крамер-Агеев Е.А., Тихонов Е.Б. // *Вопросы дозиметрии и защиты от излучений.* Вып. 11. – М.: Атомиздат, 1970. – С. 125–133.
14. Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ № 2019663243 «Программа восстановления пространственного распределения источников излучения по результатам измерений гамма-сканером с антиколлиматором» от 14 октября 2019 г.
15. Brown M. and Lowe D. // *Int. J. Computer Vision.* – 2007. – V. 74(1). – P. 59–73.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

¹ Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт»,
г. Москва, Россия

² ООО НПП «РАДИКО», г. Обнинск, Калужская обл., Россия

Иванов Олег Петрович, д.ф.-м.н., начальник отдела НИЦ «Курчатовский институт», e-mail: olegivanov@mail.ru;
Потапов Виктор Николаевич, д.ф.-м.н., ведущ. науч. сотр. НИЦ «Курчатовский институт», e-mail: potapov_v@mail.ru;
Самойлова Мария Андреевна, аспирантка НИЦ «Курчатовский институт», ведущ. инженер-метролог ООО НПП «РАДИКО», e-mail: mariya_baranova@list.ru.

O.P. IVANOV¹, V.N. POTAPOV¹, M.A. SAMOYLOVA^{1,2}

VISUALIZATION OF GAMMA-RAY SOURCES BY THE SCANNER WITH AN ANTI-COLLIMATOR

The method of gamma-images forming by scanning the area of interest using anti-collimation technique is described. This method can be used for development of devices for gamma-ray imaging. It can be applied for decommission and decontamination atomic energy facilities and in the management of radioactive waste. The use of anti-collimator scanning techniques makes it possible to significantly reduce the weight and size of the gamma-visualization system unlike the traditional scanning technique with a shield and a collimated detector.

Keywords: *visualization of gamma-ray sources by the scanner with an anti-collimator.*

¹ National Research Center «Kurchatov Institute», Moscow, Russia

² LLC RPE «RADICO», Obninsk, Kaluga Region, Russia

Ivanov Oleg Petrovich, Doctor of Science, Head of Division NRC «Kurchatov Institute», e-mail: olegivanov@mail.ru;
Potapov Victor Nicolaevich, Doctor of Science, Leading Researcher NRC «Kurchatov Institute», e-mail: potapov_v@mail.ru;
Samoylova Mariya Andreevna, Postgraduate NRC «Kurchatov Institute», Leading Engineer LLC RPE «RADICO», e-mail: mariya_baranova@list.ru.

УДК 004.942

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/34

А.Д. ИСТОМИН¹, А.Г. КЕСЛЕР¹, О.Н. КОКОРЕВ^{1,2}, М.Д. НОСКОВ¹, А.А. ЧЕГЛОКОВ¹

СИСТЕМА ИНФОРМАЦИОННОГО ОБЕСПЕЧЕНИЯ УПРАВЛЕНИЯ ПОЛИГОНОМ ГЛУБИННОГО ЗАХОРОНЕНИЯ ЖИДКИХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

Представлено описание специализированной компьютерной системы информационного обеспечения управления полигоном глубинного захоронения жидких радиоактивных отходов. Система состоит из геоинформационного, технологического информационного, геотехнологического моделирующего и экспертно-аналитического модулей. Рассмотрено применение системы информационного обеспечения для повышения безопасности эксплуатации полигона глубинного захоронения жидких радиоактивных отходов.

Ключевые слова: информационные системы, математическое моделирование, экологическая безопасность, жидкие радиоактивные отходы, глубинное захоронение.

Введение

Инновационно-технологическое развитие предприятий атомной отрасли предусматривает информатизацию производства и внедрение интеллектуальных методов управления технологическими процессами. Особенно эффективно применение цифровой трансформации управления для действующих длительное время распределенных и сложных технологических объектов, характеризующихся высоким уровнем неопределенности информации и большим количеством потоков контекстно-зависимых данных. Именно такими чертами обладает полигон глубинного захоронения жидких радиоактивных отходов (ПГЗ ЖРО) [1]. Для обеспечения эффективности управления ПГЗ ЖРО необходимо обрабатывать значительные количества геологических и технологических данных, а также прогнозировать изменение состояния пласта-коллектора ЖРО. Разнородность данных о состоянии и истории эксплуатации полигона, а также значительные объемы информации являются причиной низкой оперативности работы, сложности анализа и затруднения принятия оптимальных управленческих решений. Для прогнозирования миграции радионуклидов в подземных водах и изменения состояния пласта-коллектора ЖРО необходимо использовать адекватные математические модели физико-химических, гидродинамических и термодинамических процессов, происходящих в системе ЖРО – пластовые воды – вмещающая порода [2–4]. Применение информационных и моделирующих систем позволяет повысить эффективность управленческих решений. В работе рассматривается специализированная система информационного обеспечения управления пунктом глубинного захоронения жидких радиоактивных отходов (СИОУ ПГЗ ЖРО).

Описание СИОУ ПГЗ ЖРО

СИОУ ПГЗ ЖРО включает в себя четыре взаимосвязанных модуля: геоинформационный (ГИМ), технологический информационный (ТИМ), геотехнологический моделирующий (ГТММ) и экспертно-аналитический (ЭАМ).

Геоинформационный модуль (ГИМ) предназначен для сбора, хранения, обработки и интерпретации данных о геологической среде, а также создания трехмерной геологической и гидрогеологической модели пласта-коллектора [5, 6]. Результаты работы ГИМ хранятся в базе геологических данных (БГД). В состав ГИМ входит система управления БГД, блок ввода и интерпретации данных, блок построения геолого-гидрогеологических разрезов и блок создания геолого-математических гидрогеологических моделей (рис. 1).

Блок ввода и интерпретации данных предназначен для ввода первичной информации по скважинам и результатов ее интерпретации. Первичная информация формируется при сооружении наблюдательных и нагнетательных скважин и содержит описание керна, исследования проб керна, данные геофизических исследований (ГИС) (термокаротажа, гамма-каротажа, спектрометрического гамма-каротажа, резистивиметрии, видеокаротажа и др.) и конструкции (параметры обсадки, цементации, посадки фильтра и т.д.). Исходные информация и результаты ее интерпретации заносятся в БГД с привязкой к технологическому объекту. На основе этих данных модуль автоматически формирует геотехнологическую колонку по скважине в заданном формате.

Блок построения геологических разрезов предназначен для увязки данных по соседним скважинам. Разрезы строятся на основе данных, внесенных в БГД с помощью блока ввода и их интерпретации. При построении определяется список выносимых на разрез скважин и задается ломаная линия профиля, вдоль которой строится разрез. Далее проводится пространственная увязка данных по скважинам путем их выноса на вертикальные профили с последующим соединением участков сходных литологических разностей. Выделяются границы гидрогеологических комплексов, водоносных горизонтов и водоупоров. Параллельно проверяется адекватность интерпретации геофизической, геологической, гидрогеологической и литологической информации по скважинам.

Блок построения геолого-математических гидрогеологических моделей предназначен для создания 3D-цифровых моделей геологической среды на основе информации БГД. При создании 3D-модели в соответствии с гидрогеологическим строением и региональным потоком подземных вод выделяется область моделирования, которая может включать в себя подобласти с различной детализацией в зависимости от решаемых задач и размеров пространственной неоднородности. При дискретизации области моделирования учитываются положения скважин, границ областей и пропластков. Далее интерполяционными или геостатистическими методами строятся дискретные распределения физических величин на адаптивной нерегулярной сетке. Для оценки достоверности полученных распределений проводится кросс-валидация и рассчитываются статистические параметры.

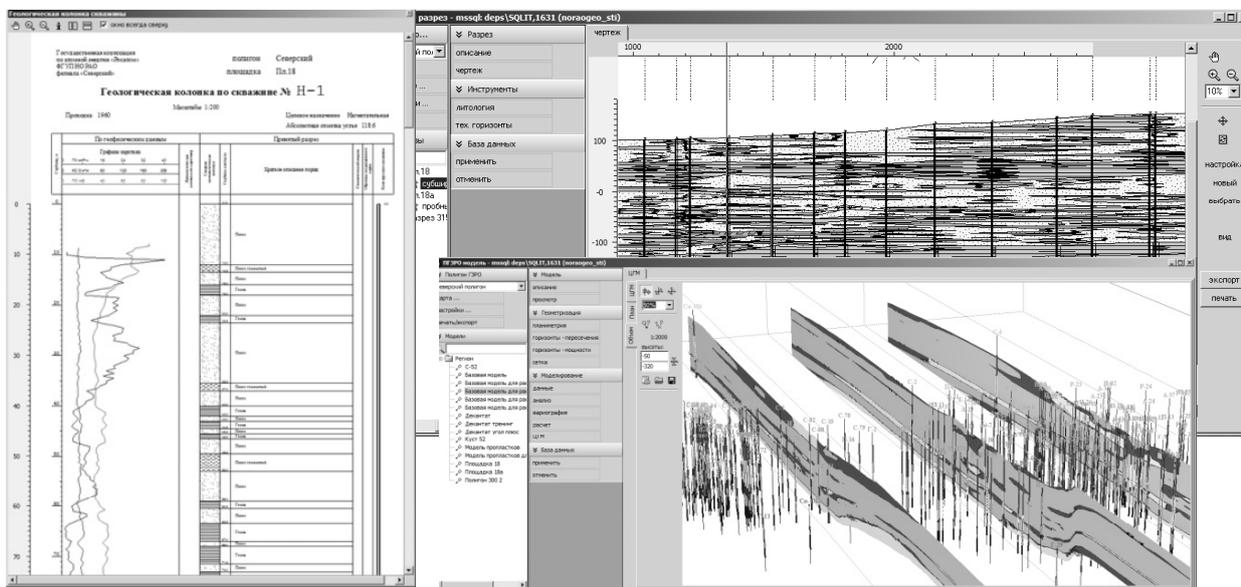


Рис. 1. Примеры рабочих окон блоков ГИМ

Технологический информационный модуль (ТИМ) предназначен для создания цифровой модели наземного комплекса ПГЗ ЖРО. Модуль позволяет осуществлять сбор, хранение, представление и анализ разнородных данных по работе наземного комплекса ПГЗ ЖРО. Результаты работы ТИМ хранятся в базе технологических данных (БТД).

С помощью ТИМ вводятся данные по техническим объектам ПГЗ ЖРО, результатам анализа проб, устанавливаются связи между объектами, выполняется проверка на непротиворечивость введенных данных и установленных связей (рис. 2). В результате создается цифровая модель наземного комплекса ПГЗ ЖРО. В модели содержится технологическая цепочка наземного комплекса и заданы контрольные точки, в которых производятся замеры значений (отборы проб) технологических данных. Модель определяет движение растворов различного типа по трубопроводам в технологической цепочке наземного комплекса. В процессе эксплуатации полигона модель регулярно пополняется и актуализируется.

Модуль состоит из шести блоков. Блок ввода и редактирования технологической схемы предназначен для создания цифровых двойников технологических объектов с пространственной и временной привязкой данных. Для построения технологической схемы между объектами задаются направленные бинарные связи с определением временного интервала их существования. Интел-

лектуальная система на основе анализа всех связей на данный временной интервал строит схему движения растворов и выявляет логические ошибки.

Блок ввода данных химических анализов предназначен для ввода результатов физико-химических анализов с привязкой к технологическому объекту, на котором была отобрана проба и с указанием даты забора, обеспечения контроля работы лаборатории, анализа полученных результатов и редактирования исходных данных.

Блок ввода данных контроля движения растворов предназначен для сбора данных о работе технологических скважин и трубопроводов наземного комплекса. Блок позволяет вводить данные замеров гидродинамических параметров (расходов, дебетов, уровня пластовых вод) с привязкой к контрольной точке, а также указывать временные интервалы остановки работы объекта и вызвавшие ее причины.

Блок ввода информации об удаляемых ЖРО предназначен для внесения в ТИС данных о выполненных операциях нагнетания растворов в подземный пласт-коллектор. Отдельный этап нагнетания ЖРО в подземный пласт-коллектор, как правило, состоит из последовательной закачки растворов нескольких типов (продуктов). Для каждого этапа указывается произвольная последовательность закачиваемых продуктов. Для каждого продукта указывается объем прокаченных растворов и значения контролируемых параметров (свои для каждого типа растворов). Производится увязка результатов исследования проб с закачиваемым продуктом.

Блок ввода и анализа данных ГИС скважин предназначен для внесения соответствующих данных в ТИС. Для выбранной скважины блок позволяет: импортировать из LAS-файлов первичные данные ГИС; визуализировать имеющиеся каротажные кривые в виде таблиц и графиков; сохранять первичные данные в базе технологических данных; при наличии информации о скважине в базе геологических данных предприятия автоматически формировать геологическую колонку.

Блок согласования информации с БГД позволяет, на основе сопоставления ключевых полей в таблицах для одного и того же объекта, осуществлять сопряжение массивов данных геологической и технологической баз данных.

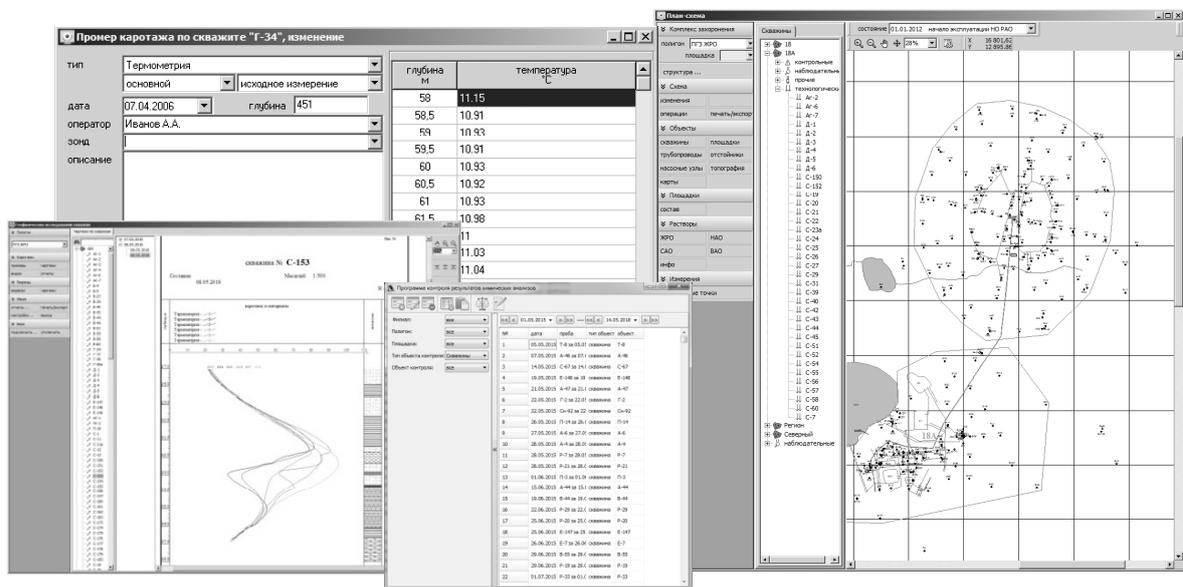


Рис. 2. Рабочие окна ТИМ

Геотехнологический моделирующий модуль (ГТММ) предназначен для создания геотехнологических моделей ПГЗ ЖРО и проведения математического моделирования физико-химических процессов, происходящих в пласте-коллекторе при глубинном захоронении ЖРО (рис. 3). Геотехнологическая модель включает в себя сопряженные геолого-гидрогеологическую, технологическую и физико-химическую модели пластов-коллекторов.

В геолого-гидрогеологическую модель пласта-коллектора входят 3D-распределения литологических, минералогических и гидрогеологических характеристик подземных водоносных пластов. Технологическая модель включает в себя расположение нагнетательных и наблюдательных скважин, режимы работы нагнетательных скважин и составы удаляемых растворов. Физико-

химическая модель имеет набор параметров, необходимых для моделирования физико-химических процессов.

Моделирование эволюции состояния пласта-коллектора производится на основе численной реализации математической модели физико-химических процессов, происходящих в системе вмещающая порода – пластовые воды – ЖРО [7, 8]. Модель описывает распределение давления, кондуктивный теплообмен, конвективный тепло- и массоперенос, гидродинамическую дисперсию, растворение-осаждение минералов, сорбцию радионуклидов, соосаждение радионуклидов с вновь образованными минералами, комплексообразование, ассоциацию-диссоциацию кислот, гомогенные и гетерогенные окислительно-восстановительные процессы, радиоактивный распад, энерговыделение, радиационно-химическое и термохимическое разложение кислот. В результате работы модуля получают пространственные распределения концентраций компонентов в технологических растворах и подземных водах, температуры, радиационных полей, содержания радионуклидов в породе и других параметров, характеризующих состояние пласта-коллектора.

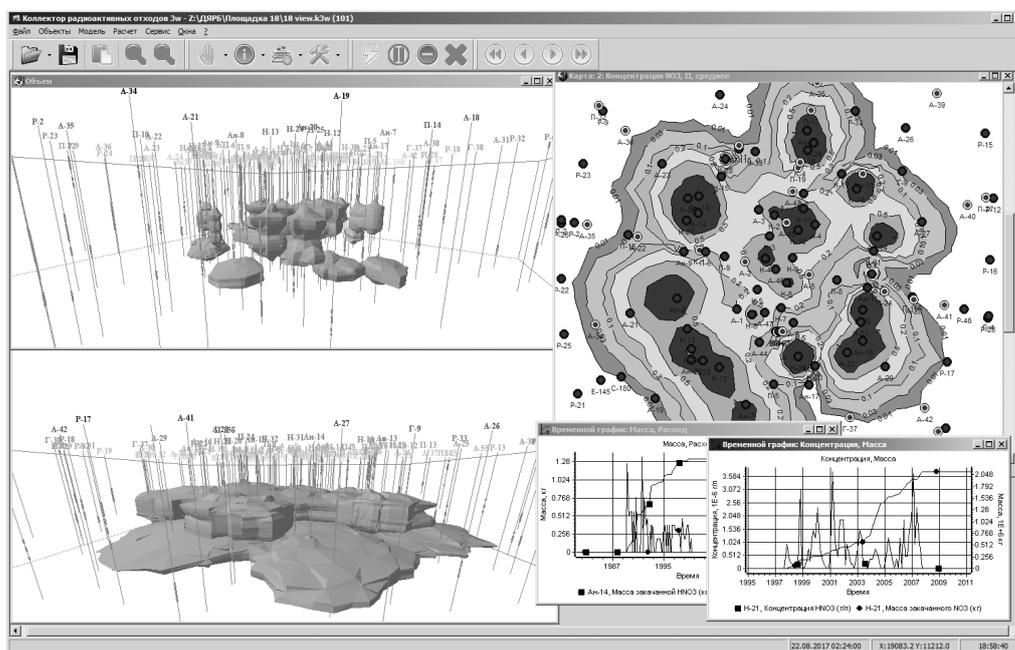


Рис 3. Результаты моделирования работы ПГЗ ЖРО с помощью ГТММ

Экспертно-аналитический модуль (ЭАМ) предназначен для выполнения оценки состояния пласта-коллектора и поддержки принятия управленческих решений (рис. 4). Его работа основана на результатах работы ГИМ, ТИМ и ГТММ. Результаты работы ЭАМ хранятся в БГД. Модуль позволяет просматривать в интерактивном режиме весь объем данных, необходимых для описания состояния пласта-коллектора ПГЗ ЖРО. С помощью ЭАМ можно проводить анализ показателей работы технологических объектов, временных зависимостей, характеризующих состояние полигона и работу скважин, визуализировать распределения физических величин в выделенных водоносных горизонтах, а также вдоль вертикальных и латеральных сечений и др.

Методика эксплуатации СИОУ ПГЗ ЖРО

СИОУ применяется для сбора, обработки и хранения актуальных геологических и технологических данных, эпигнозного и прогнозного моделирования состояния пласта-коллектора, экспертной оценки и анализа данных о работе ПГЗ ЖРО. В задачу системы также входит осуществление информационной поддержки принятия управленческих решений. На первом этапе с помощью ГИМ создаются 3D-геологическая и гидрогеологическая модели пласта-коллектора. В БГД вносятся первичные данные, полученные при сооружении скважин, проведении на них геофизических работ, описании керна и т.д. На основе внесенных данных создаются геологические колонки по скважинам. По геологическим колонкам строятся разрезы пластов-коллекторов с отображением распределений геологических и геотехнологических параметров (состава и возраста пород, технологических горизонтов и др.). На основе согласованных первичных данных и результатов интер-

претации создается 3D-сопряженная гидрогеологическая модель осадочной толщи, содержащая полигон глубинного захоронения. При построении модели задаются границы области моделирования, выделяются плановые подобласти, требующие большей детализации описания. Далее литологическая осадочная толща на исследуемом участке разбивается на горизонтальные стратифицированные слои. Детальность и критерии выделения горизонтальных слоев определяются с поставленной задачей. В области моделирования в соответствии с выделенными подобластями и разбиением на слои генерируется адаптированная расчетная сетка. На основе имеющихся в БГД данных строятся распределения физических величин различными интерполяционными или геостатистическими методами.

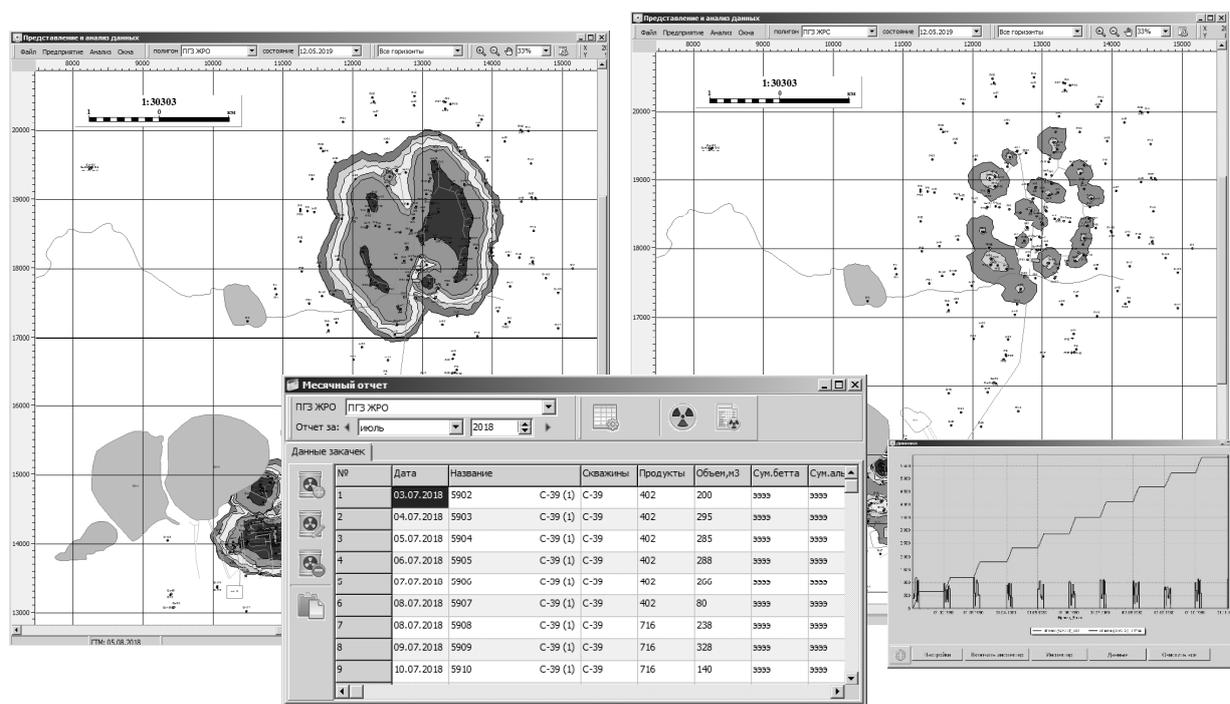


Рис. 4. Рабочие окна ЭАМ

На втором этапе с помощью ТИМ создается цифровая модель наземного комплекса ПГЗ ЖРО. Вводятся данные по техническим объектам полигона – нагнетательным и наблюдательным скважинам, трубопроводам и другим наземным объектам. Вносятся данные по объемам и составам удаляемых растворов, режимам работы скважин. Между объектами устанавливаются связи и выполняется проверка на их непротиворечивость. На основе непротиворечивых первичных данных формируются согласованные режимы работы скважин. В результате создается цифровая модель наземного комплекса полигона глубинного захоронения. В модели содержится технологическая цепочка такого комплекса, определены принадлежности скважин к площадкам, заданы контрольные точки, в которых производятся замеры значений (отборы проб) технологических данных. Модель определяет движение растворов различного типа по трубопроводам в технологической цепочке наземного комплекса. В процессе эксплуатации полигона модель регулярно пополняется и актуализируется.

На третьем этапе с помощью ГТММ проводится 3D-моделирование миграции радионуклидов и динамики теплового поля в пласте-коллекторе при глубинном захоронении ЖРО. Моделирование выполняется на основе геотехнологической модели ПГЗ ЖРО. Параметры моделирования физико-химических процессов определяются на основе литературных данных, по результатам лабораторных опытов, а также на основе результатов наблюдений за состоянием полигона.

На последнем этапе с помощью ЭАМ выполняется оценка геоэкологического состояния пласта-коллектора. Работа ЭАМ основана на результатах работы геоинформационного, технологического информационного и геотехнологического модулей. По результатам работы СИОУ ПГЗ ЖРО вырабатываются управленческие решения для повышения безопасности и эффективности эксплуатации ПГЗ.

Заключение

СИОУ ПГЗ ЖРО позволяет производить сбор, обработку и хранение разнородных геологических и технологических данных, строить геологическую и гидрогеологическую модели пласта-коллектора, создавать цифровую модель технологических объектов наземного комплекса ПГЗ ЖРО, проводить эпигнозное и прогнозное моделирование работы полигона, выполнять анализ большого количества технологических данных. В результате эксплуатации СИОУ создается цифровой двойник ПГЗ ЖРО и формируется цифровой след работы полигона. Применение СИОУ ПГЗ ЖРО позволяет увеличить безопасность глубинного захоронения ЖРО, а также повысить скорость и эффективность принятия управленческих решений.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Рыбальченко А.И., Пименов М.К., Костин П.П. и др. Глубинное захоронение жидких радиоактивных отходов. – М.: ИздАТ, 1994.
2. Зубков А.А., Рыбальченко А.И., Токарев И.В. и др. // Разведка и охрана недр. – 2007. – № 11. – С. 56–61.
3. Захарова Е.В., Каймин Е.П., Дарская Е.Н. и др. // Радиохимия. – 2001. – Т. 43. – № 4. – С. 378–380.
4. Alexandrova L.N., Glinsky M.L., Danilov V.V., et al. // Injection Science and Technology, Berkeley, California, 22–25 October 2003. – Berkeley, 2003. – P. 46–53.
5. Данилов В.В., Истомин А.Д., Носков М.Д. // Вестник Томского государственного университета. – 2009. – № 329. – С. 256–261.
6. Данилов В.В., Истомин А.Д., Кокорев О.Н. и др. // Изв. вузов. Физика. – 2018. – Т. 61. – № 12/2. – С. 19–24.
7. Истомин А.Д., Носков М.Д., Кеслер А.Г. и др. // Радиохимия. – 2007. – Т. 49. – № 2.
8. Данилов В.В., Зубков А.А., Носков М.Д., Истомин А.Д. // Геоинформатика. – 2007. – № 4. – С. 36–43.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

¹ Северский технологический институт Национального исследовательского ядерного университета «МИФИ», г. Северск, Россия

² Филиал «Северский» ФГУП «НО РАО», г. Северск, Россия

Истомин Андрей Дмитриевич, к.ф.-м.н., доцент СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: Istomin_a.d@mail.ru;

Кеслер Аркадий Григорьевич, к.ф.-м.н., доцент СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: arcanag@mail.ru;

Кокорев Олег Николаевич, аспирант СТИ НИЯУ «МИФИ», геолог филиала «Северский», e-mail: ONKokorev@nora.ru;

Носков Михаил Дмитриевич, д.ф.-м.н., профессор СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: MDNoskov@mephi.ru;

Чеглоков Алексей Александрович, науч. сотр. СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: AACheglovkov@mephi.ru.

A.D. ISTOMIN¹, A.G. KESLER¹, O.N. KOKOREV^{1,2}, M.D. NOSKOV¹, A.A. CHEGLOKOV¹

SPECIALIZED INFORMATION SUPPORT SYSTEM FOR THE MANAGEMENT OF A DEEP DISPOSAL SITE FOR LIQUID RADIOACTIVE WASTE

The description of a specialized information support system for the management of a deep disposal site for liquid radioactive waste is presented. The system consists of geo-information, technological information, geotechnological modeling and expert-analytical modules. The application of the information support system to improve the safety of deep disposal site of liquid radioactive waste is considered.

Keywords: *information systems, mathematical modeling, environmental safety, liquid radioactive waste, deep disposal.*

¹ Seversk Technological Institute National Research Nuclear University «МЕРФИ», Seversk, Russia

² The Federal State Unitary Enterprise «National operator for radioactive waste management» the branch «Severskiy», Seversk, Russia

Istomin Andrey Dmitrievich, Candidate of Physical and Mathematical Sciences, Assistant Professor STI NRNU «МЕРФИ», e-mail: Istomin_a.d@mail.ru;

Kesler Arkadiy Grigorievich, Candidate of Physical and Mathematical Sciences, Associate Professor STI NRNU «МЕРФИ», e-mail: arcanag@mail.ru;

Kokorev Oleg Nikolaevich, Postgraduate Student STI NRNU «МЕРФИ», Geologist branch «Severskiy», e-mail: ONKokorev@nora.ru;

Noskov Mikhail Dmitrievich, Doctor of Physical and Mathematical Sciences, Professor STI NRNU «МЕРФИ», e-mail: MDNoskov@mephi.ru;

Cheglovkov Alexey Alexandrovich, Researcher STI NRNU «МЕРФИ», e-mail: AACheglovkov@mephi.ru.

УДК 532.517.2

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/40

С.А. КАРПОВ¹, В.Г. БУТОВ², В.А. СОЛОНЕНКО², В.Н. БРЕНДАКОВ¹

ЧИСЛЕННОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ТУРБУЛЕНТНОГО ТЕЧЕНИЯ В ПЛАЗМЕННОМ РЕАКТОРЕ С УЧЕТОМ ХИМИЧЕСКИХ РЕАКЦИЙ

Выполнено численное моделирование течения потока газа в рабочей зоне плазменного реактора. В созданной модели учитывается влияние химических реакций, протекающих в аппарате, на поля скорости и температуры, формируемых в верхней части реактора. Показано, что в исследуемой зоне аппарата располагаются интенсивные циркуляционные зоны, которые могут оказывать существенное влияние на плазмохимические процессы, реализуемые в аппарате. Достоверность полученных результатов обеспечивается выбором проверенных численных методов и использованием при математическом моделировании известных математических пакетов программ, выполнением тестовых расчетов и сравнением с известными решениями.

Ключевые слова: плазменный реактор, турбулентность, массовая скорость, численный метод.

Введение

Плазменный реактор является сложным техническим решением. Это аппарат, который применяется на пересечении двух фундаментальных наук – химии и физики. В нем используется низкотемпературная плазма для осуществления необходимых плазмохимических и металлургических процессов.

Главная задача, стоящая перед плазмохимическим реактором, – это выполнение процесса смешения выбранных реагентов и получение при этом на выходе из аппарата нового продукта. При работе оборудования происходит минимальное количество потери тепла, одновременно с этим между реагентами выполняется интенсивный обмен теплом и массой исходного вещества.

В настоящей работе проводится математическое моделирование процесса турбулентного течения в рабочей зоне плазменного реактора. При постановке задачи сделана попытка учесть влияние химических реакций, протекающих в рассматриваемом объеме, на гидродинамическую обстановку, складывающуюся в плазменном реакторе.

Математическая модель

На рис. 1 представлена цилиндрическая часть реактора с верхней крышкой. Здесь же обозначены условия ввода исходных реагентов.

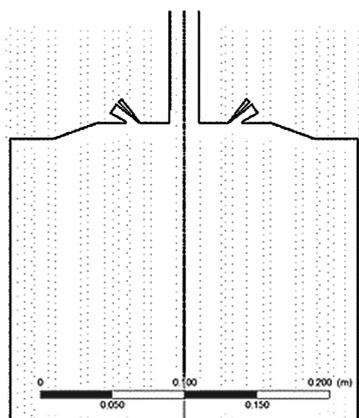


Рис. 1. Схема верхней части реактора

Для моделирования процессов и выполнения расчетов в активной зоне реактора использовался программный комплекс ANSYS CFX, в рамках которого была построена конечно-объемная модель, воспроизводящая геометрию реактора и позволяющая проводить комплексные расчеты многокомпонентной газовой смеси и полидисперсных конденсированных частиц с учетом пространственного турбулентного характера течения.

Запишем уравнения математической модели течения в рабочей зоне реактора, реализованные в комплексе ANSYS CFX, обоснование которых излагается в работах [1–4]. Модель процесса выполнена на основе законов сохранения, используемых в газовой динамике и уравнений химической кинетики. Для этого к элементарному объему реагирующей смеси применяются законы сохранения массы, импульса, энергии и закон сохранения числа атомов.

Используем в уравнениях эйлеровы переменные x_i , $i = 1, 2, 3$, вектор скорости U с компонентами u_i ($i = 1, 2, 3$). Течение также характеризуется термодинамическими параметрами: давлением p , плотностью газовой смеси ρ , температурой T , концентрацией компонент c_i .

Полидисперсный ансамбль твердых частиц характеризуется скоростями V_i с компонентами v_{ij} , $j = 1, 2, 3$, температурой частиц i -й фракции T_i , распределенной плотностью $\rho_{si} = n_{si}(x, t) m_i$, где m_i – масса частицы, n_{si} – концентрация частиц.

Уравнение неразрывности для осредненных по времени величин газовой фазы имеет вид

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_k} (\rho \cdot u_k) = J. \quad (1)$$

Здесь J – массовая скорость химической реакции. В этой формуле и далее предполагается, что по повторяющимся индексам проводится суммирование.

Уравнение сохранения импульса записывается следующим образом:

$$\frac{\partial (\rho \cdot u_i)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_k} (\rho \cdot u_k u_i) = -\frac{\partial p}{\partial x_i} + g_i + \sum_{j=1}^N C_{Rj} \rho_{sj} (v_{ij} - u_i) + \frac{\partial \tau_{ik}}{\partial x_k}, \quad (2)$$

где g_i – массовая сила в i -м направлении, в случае расчета в реакторе $g_1 = g_2 = 0$, $g_3 = \rho g$ (g – ускорение силы тяжести); C_{Rj} – коэффициент силового взаимодействия между газовой фазой и частицами.

Тензор вязких напряжений выбран в следующем виде:

$$\tau_{ij} = \mu \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) - \frac{2}{3} \mu \delta_{ij} \frac{\partial u_k}{\partial x_k}. \quad (3)$$

Здесь $\mu = \mu(T, c_i)$ – коэффициент вязкости; $\delta_{ij} = 1$ для $i = j$ и $\delta_{ij} = 0$ при $i \neq j$.

Уравнение сохранения энергии имеет вид

$$\frac{\partial (\rho h_0 - p)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_k} (\rho u_k h_0) = \frac{\partial}{\partial x_k} (u_i \tau_{ik}) + \frac{\partial}{\partial x_k} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial x_k} \right) + \sum_{i=1}^N C_{Li} \rho_i (T_i - T), \quad (4)$$

где $h_0 = h + V^2/2$, h – полная энтальпия и энтальпия смеси, V – модуль вектора скорости газа; C_{Li} – коэффициент теплового взаимодействия между газовой фазой и конденсированными частицами.

Уравнение энергии для частиц i -й фракции записывается вдоль траектории частиц:

$$m_i c_s \frac{dT_i}{dt} = C_{Li} (T_i - T) + l_m \frac{dm_i}{dt}. \quad (5)$$

Здесь m_i , c_s , l_m – масса, теплоемкость и удельная теплота частиц.

Энтальпия h смеси выражается через удельные энтальпии компонентов h_i :

$$h = \sum_{i=1}^N Y_i h_i(T), \quad (6)$$

где

$$h_i(T) = h_i^0 + \int_0^T c_{pi}(T) dT, \quad (7)$$

Y_i , c_{pi} , h_i^0 – массовая доля, удельная теплоемкость и стандартная теплота образования i -го компонента смеси.

Уравнение состояния смеси идеальных газов с молярной массой смеси

$$p = \rho R T \sum_{i=1}^N \frac{Y_i}{M_i}, \quad (8)$$

где M_i – молярная масса i -й компоненты смеси; R – универсальная газовая постоянная.

Для описания турбулентного течения использована модель Д.К. Уилкокса [1], называемая k - ω -моделью, определяемой следующими двумя уравнениями.

Уравнение для кинетической энергии турбулентных пульсаций:

$$\frac{\partial(\rho k)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i}(\rho u_i k) = \frac{\partial}{\partial x_j}(u_i \tau_{ij}) - \beta^* \rho \omega k + \frac{\partial}{\partial x_i} \left((\mu + \sigma^* \mu_T) \frac{\partial k}{\partial x_i} \right). \quad (9)$$

Уравнение для удельной скорости диссипации этой энергии:

$$\frac{\partial(\rho \omega)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i}(\rho u_i \omega) = \gamma (u_i \tau_{ij}) - \beta \rho \omega^2 + \frac{\partial}{\partial x_i} \left((\mu + \sigma^* \mu_T) \frac{\partial \omega}{\partial x_i} \right). \quad (10)$$

Здесь k – кинетическая энергия турбулентных пульсаций; ω – удельная скорость диссипации этой энергии.

Турбулентная вязкость определяется при помощи соотношения:

$$\mu_T = \gamma^* \frac{\rho k}{\omega}. \quad (11)$$

В этих уравнениях имеется ряд коэффициентов. Д.К. Уилкоксом показано, что значения этих констант следующие:

$$\beta = 3/40, \beta^* = 9/100, \gamma = 5/9, \gamma^* = 1, \sigma = 0.5, \sigma^* = 0.5. \quad (12)$$

Уравнение сохранения массы компонентов Y_k имеет вид

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho Y_k) + \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\rho u_i Y_k - \rho D \frac{\partial Y_k}{\partial x_i} \right) = J_k, \quad k = 1, 2, \dots, N. \quad (13)$$

Здесь D – коэффициент молекулярной диффузии; J_k – массовая скорость образования (расходования) в ходе химической реакции k -й компоненты газовой смеси.

Плотность молекулярного потока компонента смеси описывается законом Фика. Считая, что коэффициент диффузии D одинаков для всех компонентов смеси, закон Фика имеет вид

$$\rho_k \eta_{ki} = -\rho D \frac{\partial Y_k}{\partial x_i}, \quad (14)$$

где η_{ki} – скорость диффузии k -го компонента смеси в направлении оси координат i .

Произвольная химическая реакция с обозначением символов реагирующих веществ A_j и стехиометрических коэффициентов ν_j и ν_j' записывается так:

$$\sum_{j=1}^N \nu_j A_j \rightarrow \sum_{j=1}^N \nu_j' A_j. \quad (15)$$

Массовая скорость J_k определяется уравнением:

$$J_k = M_k (\nu_j' - \nu_j) \left(A T^\beta e^{-\frac{E_A}{RT}} \right) \prod_{i=1}^N c_i^{\nu_i^*}. \quad (16)$$

Здесь E_A – энергия активации; A – предэкспоненциальный множитель; M_k – молярная масса; $c_k = \rho Y_k / M_k$; β – показатель температуры; ν_k^* – порядок реакции по k -му исходному реагенту.

Для определения общего характера движения частиц можно воспользоваться следующими соотношениями из работы [5]:

$$m \frac{\partial u}{\partial t} = -mg + \frac{1}{2} \lambda F \rho_0 (u - w)^2, \quad (17)$$

где m , ρ_0 – масса и плотность частицы; λ , F – коэффициент сопротивления и площадь поперечного сечения; u , w – скорости частицы и газа соответственно.

Из этого соотношения можно определить скорость витания частицы как

$$u_b = \sqrt{\frac{4gd(\rho - \rho_0)}{3\lambda\rho_0}}. \quad (18)$$

В свою очередь, коэффициент сопротивления λ можно представить как зависимость от локального числа Re_0 вида

$$\lambda = \begin{cases} \frac{24}{Re_0}, & Re_0 \ll 1, \\ \frac{24}{Re_0} (1 + 0.15Re_0^{0.687}), & Re_0 < 1000, \\ 0.44, & Re_0 > 1000. \end{cases} \quad (19)$$

Таким образом, решая нелинейное уравнение, можно определить скорость витания для частицы заданной плотности и диаметра d .

Анализ полученных результатов

Для примера визуализации выполненных расчетов на рис. 2 и 3 представлены распределения линий тока и вектора скорости газа в верхней части реакционной зоны плазменного реактора.

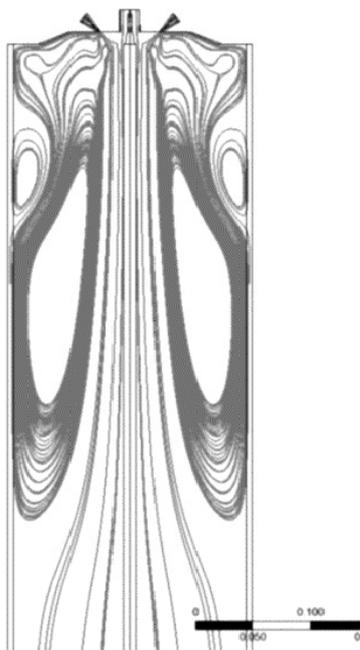


Рис. 2. Распределение изолиний функции тока газа в верхней части реакционной зоны (проекция в вертикальной плоскости симметрии)

Из рис. 2 видно, что в аппарате организуются вихревые структуры большой протяженности. В верхней части рассмотренной геометрии наблюдаются небольшие рециркуляционные области с вращением против часовой стрелки. Такие структуры могут оказывать негативное влияние на устойчивость формирования центрального ядра потока газа, в котором происходят плазмохимические процессы.

Для более удобного представления пространственной структуры течения рабочая зона реактора была разбита перпендикулярными друг к другу меридиональными плоскостями, а визуализация поля векторов скорости газа проводилась в плоскостях поперечных сечений в клиновидных окрестностях.

Результаты численного моделирования для различных вариантов режимов течения показывают, что в верхней части реактора образование вихревых структур неизбежно при любом способе подачи исходных реагентов.

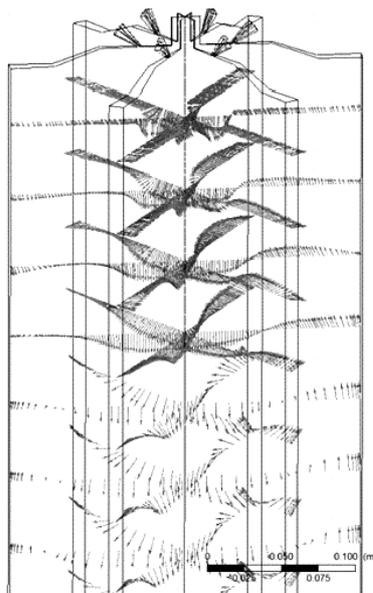


Рис. 3. Вектор скорости газа в верхней части реакционной зоны

На рис. 4 представлено характерное распределение поля температуры газа в верхней части рассматриваемой области аппарата. Как видно из рисунка, в результате устойчивых крупных вихревых структур происходит существенный нагрев в области боковых стенок плазменного реактора. Постоянное охлаждение верхней крышки реактора, предусмотренное конструктивными особенностями аппарата, связано с тем, что в этой области создается на входе поток плазмы. Интенсивный перенос тепла к боковой стенке реактора может стать причиной нарушения герметичности всего реактора в целом. Полученные результаты должны быть тщательно проанализированы и при необходимости выработаны защитные меры, позволяющие обеспечить безопасный режим работы плазменного реактора.

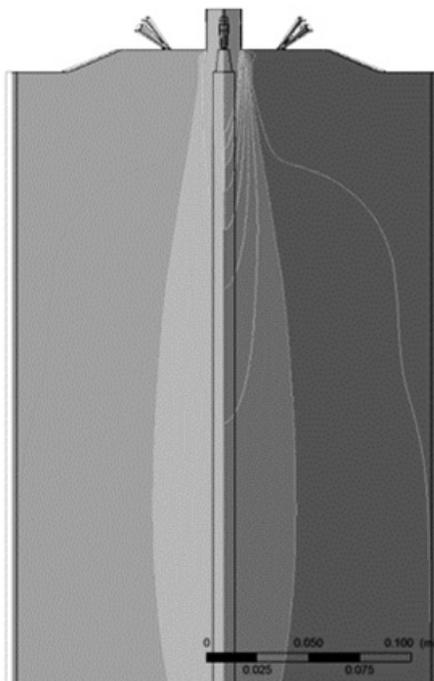


Рис. 4. Распределение поля температуры газа в под-областях верхней части реакционной зоны

Заклучение

Созданная математическая модель работы плазменного реактора и численные расчеты, выполненные по этой модели, позволили получить новые данные по организации гидродинамической и тепловой обстановке в рабочей зоне аппарата. Полученная информация может быть использована при проектировании новых перспективных конструкций аппаратов такого типа. Эти данные можно учитывать при оценки стабильности и безопасности работы существующих конструкций плазменных реакторов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Уилкоккс Д. К. // Аэрокосмическая техника. – 1989. – № 11. – С. 47–60.
2. Турбулентные течения реагирующих газов: пер. с англ. / под ред. П. Либби, Ф. Вильямса. – М.: Мир, 1983. – 328 с.
3. Канторович Б. В., Миткалинный В. И., Делягин Г. Н., Иванов В. М. Гидродинамика и теория горения потока топлива. – М.: Metallurgy, 1971. – 488 с.
4. Сполдинг Д. Б. Горение и массообмен. – М.: Машиностроение, 1985. – 240 с.
5. Барский М. Д. Фракционирование порошков. – М.: Недра, 1980. – 327 с.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

¹ Северский технологический институт Национального исследовательского ядерного университета «МИФИ», г. Северск, Россия

² Национальный исследовательский Томский государственный университет, г. Томск, Россия

Карпов Сергей Алексеевич, к.ф.-м.н., руководитель СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: sakarpov@mephi.ru;

Бутов Владимир Григорьевич, д.ф.-м.н., профессор НИ ТГУ, e-mail: bvg@niipmm.tsu.ru;

Солоненко Виктор Александрович, к.ф.-м.н., доцент НИ ТГУ, e-mail: sva@niipmm.tsu.ru;

Брендаков Владимир Николаевич, д.ф.-м.н., доцент СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: vnbrendakov@mephi.ru.

S.A. KARPOV¹, V.G. BUTOV², V.A. SOLONENKO², V.N. BRENDAKOV¹

NUMERICAL STUDY OF TURBULENT FLOW IN A PLASMA REACTOR TAKING INTO ACCOUNT CHEMICAL REACTIONS

In this work, a numerical simulation of the gas flow in the working zone of a plasma reactor is performed. The created model takes into account the influence of chemical reactions occurring in the apparatus on the field of velocity and temperature formed in the upper part of the reactor. It is shown that intense circulation zones are located in the investigated zone of the apparatus, which can have a significant effect on the plasma-chemical processes in the apparatus. The reliability of the results obtained is ensured by the choice of proven numerical methods and the use of known mathematical software packages in mathematical modeling, by performing test calculations and comparison with known solutions.

Keywords: *plasma reactor, turbulence, mass velocity, numerical method.*

¹ Seversk Technological Institute National Research Nuclear University «MEPHI», Seversk, Russia

² National Research Tomsk State University, Tomsk, Russia

Karpov Sergey Alekseevich, Ph.D., Head of STI NRNU «MEPHI», e-mail: sakarpov@mephi.ru;

Butov Vladimir Grigorievich, Doctor of Physical and Mathematical Sciences, Professor NR TSU, e-mail: bvg@niipmm.tsu.ru;

Solonenko Viktor Alexandrovich, Ph.D., Associate Professor NR TSU, e-mail: sva@niipmm.tsu.ru;

Brendakov Vladimir Nikolayevich, Doctor of Physical and Mathematical Sciences, Associate Professor of STI NRNU «MEPHI», e-mail: vnbrendakov@mephi.ru.

УДК 65.011.56

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/46

О.Н. КОКОРЕВ^{1,2}, Н.Р. АДОНИН¹, М.Д. НОСКОВ¹, Т.Ю. ЗАВЕДИЙ³, А.А. ЩИПКОВ¹

АВТОМАТИЗИРОВАННАЯ СИСТЕМА ГИДРОДИНАМИЧЕСКОГО МОНИТОРИНГА ДЛЯ ОБЕСПЕЧЕНИЯ ЭКОЛОГИЧЕСКОЙ БЕЗОПАСНОСТИ ПУНКТА ГЛУБИННОГО ЗАХОРОНЕНИЯ ЖИДКИХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

Рассмотрены основные подходы для построения автоматизированной системы гидродинамического мониторинга пункта глубинного захоронения жидких радиоактивных отходов. Система состоит из модуля автоматизированного сбора данных и информационно-вычислительного модуля компенсации возмущений гидросферы. Описаны архитектура системы, функциональная структура программного обеспечения, методология выявления изменения уровня подземных вод вследствие техногенных воздействий.

***Ключевые слова:** гидродинамический мониторинг, пункт глубинного захоронения жидких радиоактивных отходов, автоматизированная система, компенсация природных возмущений гидросферы, экологическая безопасность.*

Введение

Гидродинамический мониторинг (ГМ) является одним из основных способов оценки экологической безопасности пунктов глубинного захоронения жидких радиоактивных отходов (ПГЗ ЖРО) [1]. Он представляет собой систему наблюдений за изменением уровней подземных вод с последующей обработкой результатов измерений. Оценка безопасности основана на сопоставлении текущих параметров нагнетания ЖРО в эксплуатационные горизонты (объем, расход, давление, приемистость и т.п.) с динамикой уровней подземных вод в эксплуатационных, буферных и вышележающих горизонтах. Это позволяет выявлять перетоки между горизонтами, вызванные техногенными факторами. Своевременное обнаружение таких перетоков при соответствующей реакции эксплуатационного персонала минимизирует последствия нештатных ситуаций, основную опасность среди которых представляют перетоки по затрубному пространству нагнетательной скважины, межгоризонтные перетоки, потеря герметичности эксплуатационной колонны нагнетательных скважин. В этой связи является актуальным создание автоматизированной системы ГМ, работающей в режиме реального времени [2]. В настоящее время разработан целый ряд автоматизированных систем для сбора данных от объектов, расположенных на значительных площадях [3–5]. Подобные системы используются для мониторинга окружающей среды, радиационной обстановки, различных геолого-технологических параметров и т.п. В отличие от существующих систем, при автоматизации гидродинамического мониторинга ПГЗ ЖРО необходимо учитывать ряд особенностей, оказывающих влияние на архитектуру системы, функциональную структуру программного обеспечения и методику обработки данных. К таким особенностям можно отнести: размещение технологических объектов на значительной площади; отсутствие централизованного электроснабжения ряда наблюдательных скважин ввиду их удаленности; невозможность реализовать проводные каналы связи для передачи технологических данных от удаленных наблюдательных скважин; зависимость состояния подземной гидросферы от вариаций атмосферного давления, изменений нагрузки под весом осадков, лунно-солнечных приливных вариаций; необходимость учета смещения эксплуатационной колонны наблюдательных скважин. В данной работе рассмотрены основные технические решения и методологические подходы для построения автоматизированной системы ГМ ПГЗ ЖРО, разрабатываемой с целью наиболее раннего выявления перетоков между подземными водоносными горизонтами.

Архитектура и функциональная структура программного обеспечения системы ГМ

Автоматизированная система ГМ представляет собой аппаратно-программный комплекс, обеспечивающий сбор, обработку и хранение данных, необходимых для оценки гидродинамической обстановки в районе ПГЗ и контроля основных параметров технологического процесса, а также взаимодействие с пользователями.

Архитектура системы ГМ характеризуется наличием различных каналов связи: волоконно-оптического канала (ВОК), электропроводного канала, GSM-канала (рис. 1). Это связано с отличии-

ем условий передачи сигналов от комплекса измерительных средств, расположенных внутри технологического здания, где находятся насосное оборудование и запорная арматура, и от измерительной аппаратуры нагнетательных и наблюдательных скважин, рассредоточенных на полигоне.

Аппаратная часть автоматизированной системы ГМ состоит из:

- контрольно-измерительных приборов (КИП), установленных на технологическом оборудовании и формирующих сигналы о параметрах технологического процесса;
- автоматизированной стационарной метеостанции, регистрирующей изменение погодных факторов, влияющих на уровень подземных вод;
- технических средств, обеспечивающих работу каналов передачи данных и линий связи, по которым эта передача осуществляется (медиаконвертеры, GSM-передатчики и приемники, коммутатор);
- программируемого логического контроллера (ПЛК), отвечающего за режим сбора и передачи данных;
- сервера приложений и баз данных (БД), обеспечивающего работу программной части системы и хранение данных;
- автоматизированных рабочих мест (АРМ) специалистов ПГЗ ЖРО, являющихся пользователями системы.

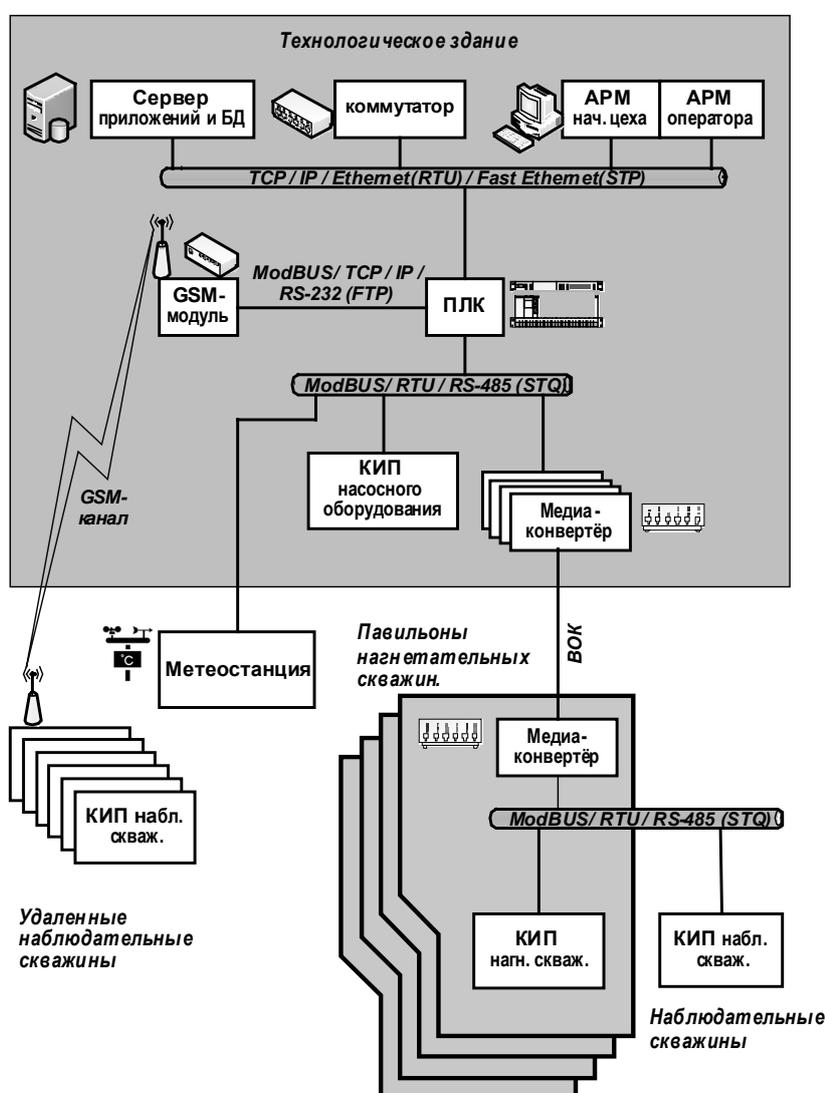


Рис. 1. Архитектура автоматизированной системы ГМ ПГЗ ЖРО

При каждом павильоне нагнетательных скважин сформирована шина RS-485, куда поступают данные от измерительных приборов, установленных в самом павильоне и на близлежащих наблюдательных скважинах. Данные с шины каждого павильона преобразуются в оптический сигнал с

помощью медиаконвертеров RS-485 – ВОК и передаются по волоконно-оптическому кабелю в технологическое здание, где преобразуются медиаконвертерами ВОК – RS-485 обратно в электрический сигнал. Таким образом, все линии волоконно-оптической связи между павильонами нагнетательных скважин и технологическим зданием построены по топологии «точка-точка». Медиаконвертеры ВОК – RS-485 присоединены к шине RS-485 технологического здания. Через эту же шину передаются данные от КИП насосного оборудования, расположенного в технологическом здании, и метеоданные от стационарной метеостанции. Данные от удаленных наблюдательных скважин передаются по GSM-каналу на GSM-модуль, который расположен в технологическом здании. Центральным узлом сбора данных системы ГМ является программируемый логический контроллер (ПЛК), который является ведущим устройством шины RS-485 технологического здания, а также шины RS-232 (по которой получает данные от GSM-модуля). Используемая в архитектуре автоматизированной системы ГМ комбинированная топология позволяет обеспечить надежную передачу данных и слабую созависимость сетевых каналов. Обработка данных производится с помощью программного обеспечения системы, установленного на сервере приложений и баз данных. Сервер связан с ПЛК по сети Ethernet, куда также входят автоматизированные рабочие места (АРМ), через которые осуществляется взаимодействие пользователей с автоматизированной системой ГМ.

Программная часть автоматизированной системы ГМ имеет модульную структуру и состоит из модуля сбора данных, модуля компенсации возмущений гидросферы и базы данных (рис. 2). Согласованная работа модулей позволяет реализовать гидродинамический мониторинг в режиме реального времени.

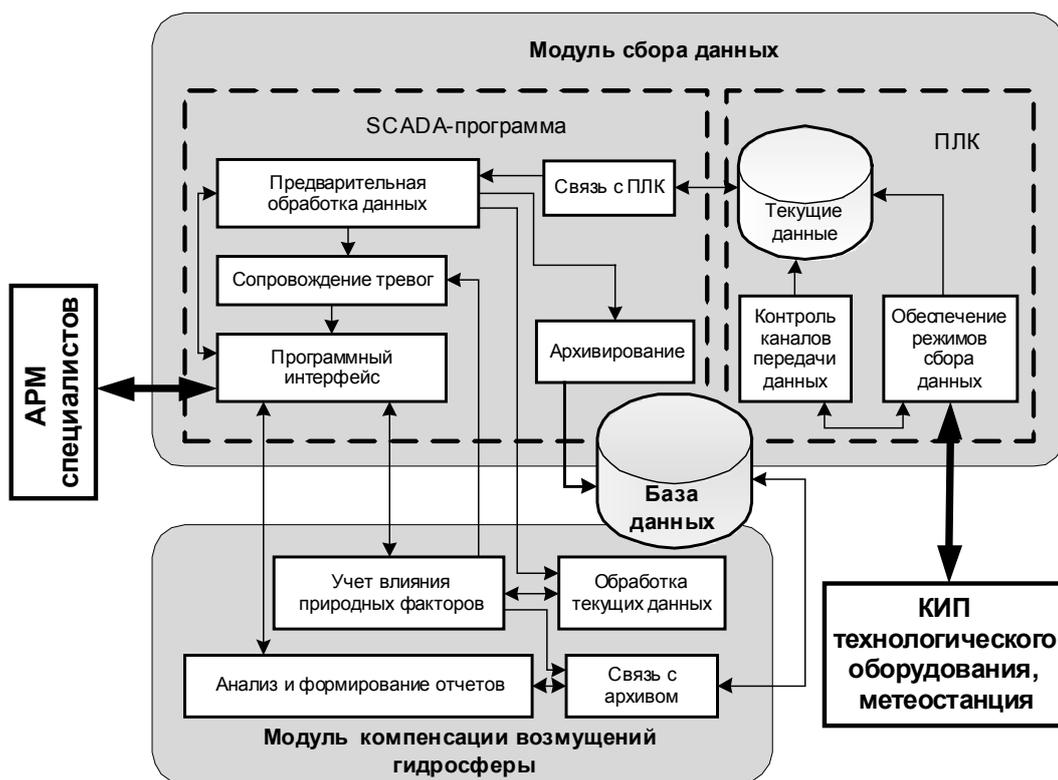


Рис. 2 Функциональная структура программного обеспечения автоматизированной системы ГМ ПГЗ ЖРО

Модуль сбора данных состоит из программного обеспечения ПЛК и SCADA-программы, размещенной на сервере приложений и БД. Программное обеспечение ПЛК реализует сбор данных с КИП технологических объектов, предварительную обработку, структуризацию и буферное хранение значений технологических параметров и метеоданных, обеспечивает заданный режим сбора данных, формирует сигналы о состоянии каналов связи и комплекса измерительных средств. SCADA-программа в реальном времени обеспечивает отображение значений параметров технологического процесса на мониторах АРМ специалистов, контроль нахождения параметров в допус-

тимых интервалах, формирование сигналов тревог и ведение журнала тревог, наполнение базы данных.

Основная задача программного модуля компенсации возмущений гидросферы – выявление изменения уровня подземных вод в наблюдательных скважинах ПГЗ ЖРО, вызванных перетоками из эксплуатационных горизонтов. Модуль размещается на сервере приложений и БД и реализует методики, позволяющие компенсировать изменения уровня подземных вод в наблюдательных скважинах, возникающие из-за влияния природных факторов и смещения эксплуатационной колонны. Для этого модуль использует технологические и метеоданные, поступающие от модуля сбора данных. Если динамика уровня подземных вод не обусловлена изменениями природных условий, то модуль формирует сигнал о техногенной природе изменения уровня, причиной которого может быть переток между горизонтами. Модуль обеспечивает сохранение полученных результатов в базе данных и организацию работы с архивом. Программный интерфейс модуля встроен в программный интерфейс SCADA-программы, что позволяет специалистам оперативно реагировать на выданную модулем информацию, рассматривая ее в контексте текущих значений технологических параметров. Вся информация, получаемая при работе автоматизированной системы ГМ, хранится в базе данных, работающей под управлением СУБД. Централизованное хранение информации позволяет анализировать работу ПГЗ ЖРО в различные периоды, формировать необходимые отчеты, совершенствовать методику компенсации возмущающих факторов.

Одним из ключевых условий своевременного выявления перетока между горизонтами ПГЗ ЖРО является точность компенсации влияния на уровень подземных вод возмущающих факторов. В следующем разделе рассмотрены основные методологические подходы, реализуемые программным модулем компенсации возмущений гидросферы автоматизированной системы ГМ.

Методика компенсации возмущений гидросферы

Программный модуль компенсации возмущений реализует методики учета влияния следующих природных факторов на уровень подземных вод в наблюдательных скважинах ПГЗ ЖРО [6–8]: атмосферное давление, лунно-солнечные приливные вариации, атмосферные осадки. Кроме того, модуль учитывает смещение эксплуатационной колонны из-за избыточного давления в эксплуатационных горизонтах. Рассмотрим основные подходы для учета этих факторов.

Известно, что естественные вариации атмосферного давления оказывают значительное влияние на уровни подземных вод. В зависимости от глубины залегания контролируемого горизонта колебания давления ± 15 мм рт. ст. будут обуславливать приращения уровня в контрольных скважинах с амплитудой до нескольких сантиметров. Для учета этого фактора производится синхронная регистрация атмосферного давления и коррекция измеренного значения уровня подземных вод по заранее известной линейной зависимости «давление – уровень». Величиной, связывающей приращения уровня подземных вод в скважине с приращениями атмосферного давления, является дифференциальный коэффициент линейной связи B – барометрическая эффективность скважины, мм в. ст./мм рт. ст. Выражение пересчета уровня для компенсации колебаний атмосферного давления имеет вид

$$h^*(t_i) = h(t_i) + (P_0 - P(t_i))B/1000, \quad (1)$$

где $h^*(t_i)$ – пересчитанный уровень подземных вод в скважине в момент времени t_i , м; $h(t_i)$ – измеренный уровень подземных вод в скважине в момент времени t_i , м; P_0 – среднее многолетнее атмосферное давление в месте установки датчика уровня, мм рт. ст.; $P(t_i)$ – измеренное атмосферное давление в момент времени t_i , мм рт. ст.

Амплитуда лунно-солнечных приливных вариаций уровня растет с увеличением глубины. В обычных песчано-глинистых водоносных горизонтах с общей пористостью в 30% на глубине 200 м средняя амплитуда лунно-солнечных вариаций составляет 1–2 мм, а в залегающем ниже палеозойском фундаменте – до 10 мм (при глубине в 370–400 м). Приливные вариации уровня удаляются из замеров с помощью простых расчетных зависимостей, использующих как астрономические константы, так и экспериментально определенные характеристики приливного отклика, индивидуального для каждой скважины.

В умеренных широтах наибольшей амплитуды лунно-солнечные вариации достигают в периоды сизигий (полнолуние или новолуние, через каждые 14.77 сут), в периоды максимума или минимума лунных склонений, когда Луна сильнее всего отходит от небесного экватора в Северное

или Южное небесное полушарие соответственно (через каждые 13.66 сут), а также в период прохождения Луной точки перигея (через каждые 27.55 сут).

Интенсивные осадки на большой площади за счет давления выпавшего дождя или снега создают поверхностную нагрузку, особенно в первые сутки после осадков. На графике (рис. 3) это выглядит как резкое увеличение уровня подземных вод, которое можно спутать с началом перетока, особенно если наблюдательная скважина расположена вблизи нагнетательной. В летнее время за счет испарения поверхностного и подземного стока такая аномалия, возникнув от интенсивных осадков, постепенно уменьшается за 1–2 недели; зимой же – остается практически постоянной до следующего снегопада либо слабо уменьшается или увеличивается за счет явления снегопереноса.

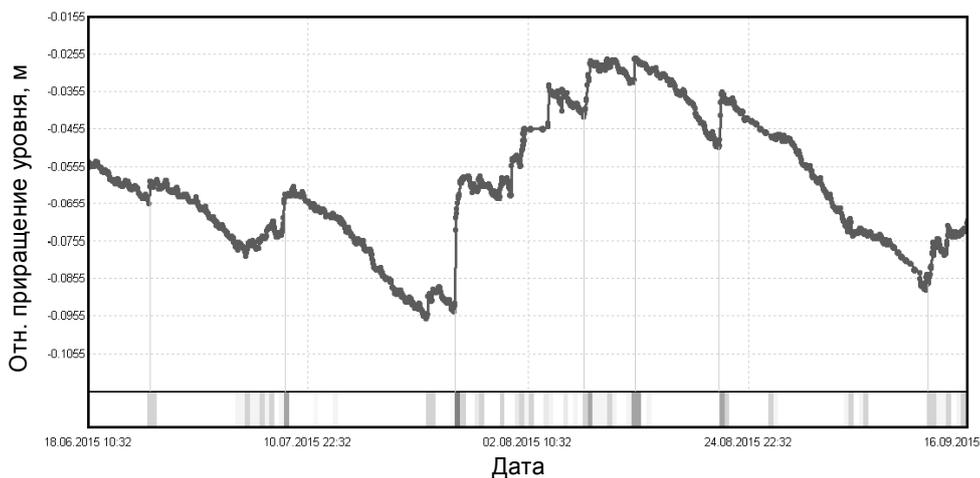


Рис. 3. Пример зависимости уровня подземных вод в буферном горизонте от выпадения осадков в летний период (наиболее интенсивные осадки выделены линиями)

Кроме влияния на гидросферу природных факторов, программное обеспечение модуля компенсации возмущений учитывает техногенный фактор воздействия на точность измерения уровня, связанный со смещением эксплуатационной колонны, на оголовке которой установлен контрольно-измерительный прибор замера уровня. Любое смещение колонны приводит к изменению точки отсчета при замере уровня. Смещение колонны вверх приводит к ложному падению уровня, а смещение вниз, напротив, – к ложному скачку. Формула, описывающая затухание деформационного смещения наблюдательной скважины δ_p (м) в зависимости от расстояния забоя этой скважины до кровли эксплуатационного горизонта h (м) и расстояния до нагнетательной скважины r (м), может быть представлена в виде

$$\delta_p = K_p \cdot \exp \left(-\sqrt{\left(\frac{h}{h_c}\right)^2 + \left(\frac{r}{r_c}\right)^2} \right) \Delta P, \quad (2)$$

где K_p – дифференциальный коэффициент деформационного смещения, м/атм; r_c – характеристический радиус экспоненциального затухания деформации, м; h_c – характеристическая высота экспоненциального затухания деформации, отсчитываемая от кровли эксплуатационного горизонта, м; ΔP – приращение давления нагнетания в скважине, вызвавшей деформацию, атм.

Кроме перечисленных природных факторов, на состояние гидросферы влияют также сезонное воздействие от ближайшего крупного водотока и сезонная периодичность поступления питания в водоносные горизонты. Однако при разработке программного обеспечения автоматизированной системы ГМ они не учитываются, так как имеют долгопериодические вариации, которые не влияют на выявление резких и небольших скачков уровня подземных вод.

Выводы

На основе анализа особенностей технологического процесса ПГЗ ЖРО разработана архитектура, функциональная структура программного обеспечения и основные методики обработки данных автоматизированной системы ГМ. Предложенные технические решения и методологические подходы позволяют создать систему, работающую в режиме реального времени, которая обеспе-

чивает своевременное выявление изменений уровня подземных вод в наблюдательных скважинах, возникающих вследствие перетока из эксплуатационных горизонтов. Использование такой системы минимизирует потенциальный ущерб для окружающей среды и существенно повысит эффективность и безопасность работы ПГЗ ЖРО.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Рыбальченко А.И., Пименов М.К., Костин П.П. и др. Глубинное захоронение жидких радиоактивных отходов. – М.: ИздАТ, 1994. – 230 с.
2. Гаричев С.Н., Еремин Н.А. Технология управления в режиме реального времени. – М.: МФТИ, 2015. – 196 с.
3. Антоний Е.В., Арутюнян Р.В., Богатов С.А. и др. // Труды ИБРАЭ РАН. – 2013. – Вып. 15. – С. 24–41.
4. Замай В.И., Добровольский Н.С. // Геориск. – 2012. – № 4. – С. 64–68.
5. Киргизов Д.И., Иванов А.А., Шерстюков О.Н. // Электротехнические и информационные комплексы и системы. – 2013. – Т. 9. – № 2. – С. 55–60.
6. Беседина А.Н., Виноградов Е.А., Горбунова Э.М. и др. // Физика Земли. – 2015. – № 1. – С. 73–82.
7. Гумен А.М. // Вестник ГГТУ им. П.О. Сухого. – 2000. – № 3. – С. 37–41.
8. Zubkov A.A., Sukhorukov V.A., Zykov A.I., et al. // Developments in Water Science. V. 52. Under-ground Injection Science and Technology / eds. by Chin-Fu Tsang and John A. Apps. – Elsevier, 2005. – P. 151–155.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

¹ Северский технологический институт Национального исследовательского ядерного университета «МИФИ», г. Северск, Россия

² Филиал «Северский» ФГУП «НО РАО», г. Северск, Россия

³ АО «Сибирский химический комбинат», г. Северск, Россия

Кокорев Олег Николаевич, аспирант СТИ НИЯУ «МИФИ», геолог филиала «Северский», e-mail: ONKokorev@noraо.ru;

Адонин Никита Русланович, аспирант СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: d273ANR@edu.ssti.ru;

Носков Михаил Дмитриевич, д.ф.-м.н., профессор СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: MDNoskov@mephi.ru;

Заведый Тарас Юрьевич, к.г.-м.н., инженер СХК, e-mail: taras-zavedy@yandex.ru;

Щипков Александр Андреевич, к.т.н., доцент СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: AAShchipkov@mephi.ru.

O.N. KOKOREV^{1,2}, N.R. ADONIN¹, M.D. NOSKOV¹, T.Y. ZAVEDY³, A.A. SHCHIPKOV¹

AN AUTOMATED SYSTEM OF HYDRODYNAMIC MONITORING FOR THE ENVIRONMENTAL SAFETY OF A GEOLOGICAL REPOSITORY OF LRW

The main approaches to creating an automated system for hydrodynamic monitoring a geological repository of liquid radioactive waste have been considered. The system consists of a computer-aided data acquisition module and a computing module for compensating hydrosphere disturbance. The system architecture, the software functional structure and the technique for determining ground water level change due to industrial action have been described.

Keywords: hydrodynamic monitoring; a geological repository of liquid radioactive waste; computer-aided data acquisition; compensating natural hydrosphere disturbance; environmental safety.

¹ Seversk Technological Institute National Research Nuclear University «МЕРФИ», Seversk, Russia

² The Federal State Unitary Enterprise «National operator for radioactive waste management» the branch «Severskiy», Seversk, Russia

³ Joint-Stock Company «Siberian Chemical Combine», Seversk, Russia

Kokorev Oleg Nikolayevich, Graduate Student STI NRNU «МЕРФИ», Geologist branch «Seversky», e-mail: ONKokorev@noraо.ru;

Adonin Nikita Ruslanovich, Graduate Student STI NRNU «МЕРФИ», e-mail: d273ANR@edu.ssti.ru;

Noskov Mikhail Dmitrievich, Doctor of Physical and Mathematical Sciences, Professor STI NRNU «МЕРФИ», e-mail: MDNoskov@mephi.ru;

Zavedy Taras Yurievich, Candidate of Geology, Engineer JSC «Siberian Chemical Combine», e-mail: taras-zavedy@yandex.ru;

Shchipkov Alexander Andreevich, Candidate of Technical Sciences, Associate Professor STI NRNU «МЕРФИ», e-mail: AAShchipkov@mephi.ru.

УДК 550.42

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/52

Г.А. КОЛОТКОВ¹, П.Н. МАТИНА²

ГАММА-СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКОЕ ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОДЕРЖАНИЯ УРАНА, ТОРИЯ И КАЛИЯ В ПОЧВАХ ЮГО-ВОСТОКА ТОМСКОЙ ОБЛАСТИ *

Актуальность работы связана с разработкой нового подхода дистанционного мониторинга повышенной радиоактивности почв с использованием бортового радиометра, регистрирующего косвенные эффекты, проявляющиеся в среде. Данный вопрос актуален в районах с высоким показателем радиоэкологических рисков для населения. Методом полевой гамма-спектрометрической съемки проведена количественная оценка естественных радионуклидов в почвах юго-востока Томской области. Данные о радионуклидном составе почв, а именно содержании урана, тория и калия, позволяют установить причины повышенной концентрации (природные или техногенные) и оценить степень опасности для населения. Повышенное содержание тория обнаружено в почвах п. Светлого, д. Кусково, ТГОК «Ильменит» Александровского участка, с. Зоркальцево, а урана – в пробах в п. Кузовлево, п. Надежда, ТГОК «Ильменит».

Ключевые слова: гамма-спектрометрия, радионуклиды, почвы, калий, уран, торий.

Введение

Миграция и накопление радиоактивных элементов – это сложные процессы, на которые влияет множество факторов природной среды. Индикаторные химические элементы в различных компонентах ландшафта образуют единую структуру геохимического пространства. В настоящее время источники радиоактивных веществ, представляющих опасность для живой природы, имеют различный генезис, формы их нахождения и закономерности миграционных процессов в окружающей среде постоянно усложняются, а в районах распространения радиоактивных пород и почв наблюдается высокая заболеваемость населения [1].

Повышенная концентрация радиоактивных элементов может быть связана как с природными факторами (месторождения редких и редкоземельных металлов, ореолы рассеяния и т.д.), так и с антропогенными (испытания ядерного оружия, аварии и выбросы предприятий ядерно-топливного цикла (ЯТЦ), разработка месторождений полезных ископаемых, захоронение радиоактивных отходов и т.д.). При обнаружении зоны с высокой степенью нарушения радиоактивного равновесия в почвах, могут быть выявлены несанкционированные захоронения радиоактивных отходов. Поэтому радиоактивные элементы изучаются с целью решения многих научных вопросов, таких, как исследование различных геохимических процессов, оценка экологической обстановки и мониторинг радиационного фона, и разработки новых методов разведки месторождений полезных ископаемых [2].

Изучение радионуклидного состава почв проводилось в рамках первого этапа реализации гранта КИАС РФФИ 20-35-90046 «Аспиранты». Для измерений содержания таких элементов, как калий, уран и торий, использовались полевые гамма-спектрометрические методы, а именно разработанный для полевых измерений К, U, Th портативный гамма-спектрометр GS 512. Полевая гамма-спектрометрия применяется в разведке полезных ископаемых, при выполнении геофизической съемки, наблюдении за естественным радиоактивным фоном, оценке радиоактивности природных и антропогенных объектов. Набирается база данных по К, U, Th, которая в настоящий момент содержит около 30 проб и будет расширяться. Образцы почв отобраны с верхних горизонтов почвенного профиля, так как радионуклиды распределяются довольно равномерно по всему профилю. Образующие радиоактивные осадки радионуклиды также концентрируются в поверхностном слое почвы толщиной 2–20 см [3].

Содержание естественных радионуклидов в почвах юго-востока Томской области

Целью данного исследования является получение данных, необходимых для анализа и количественной оценки содержания радионуклидов (источников гамма-излучения) в почвах, а также

* Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 20-35-90046 «Аспиранты» и в рамках научного проекта № АААА-А17-117033010037-0.

для выявления радиоактивных аномалий, объективной оценки угрозы для населения и прогноза развития радиационной ситуации самой густонаселенной юго-восточной части Томской области. Радиоактивность почвообразующих пород определяет среднее содержание естественных радионуклидов в почве. Основными источниками гамма-излучения в природной среде являются калий К, уран U и торий Th. Излучаемые ими гамма-кванты попадают в энергетический интервал до 2615 кэВ. Гамма-спектрометрическое определение содержания калия основано на регистрации радиоактивного изотопа калия ^{40}K , доля которого в естественных изотопах калия составляет 0.012%. Определение содержания калия является прямым, и результаты в области геохимии и геофизики выражаются в процентах концентрации по массе. Содержание калия в почвах зависит, прежде всего, от их минералогического и гранулометрического состава. Самая высокая концентрация калия наблюдается в черноземах, а самая низкая – в супесчаных дерново-подзолистых почвах. Содержание тория и урана выражается в гр/т. Содержание тория в почвах регионов Сибири устойчиво, а содержание урана возрастает в аридном климате. Районы, подверженные влиянию предприятий ЯТЦ, отличаются повышенным содержанием изотопов урана в природных средах, в том числе и почвах. Усредненные значения по почвам Западно-Сибирской низменности составляют для калия – 1.7%, урана – 1.5 г/т, тория – 6.5 г/т [4].

В качестве объектов исследования использовали пробы почв, отобранные в населенных пунктах Томской области (50–60 км от г. Томска) в летне-осенний период 2020 г. как в ближней зоне влияния Сибирского химического комбината (СХК) по «розе ветров» (рис. 1), по оси радиоактивного следа, образовавшегося в результате аварии 1993 г., так и на значительном расстоянии от СХК, к западу от г. Томска (рис. 2) [5].

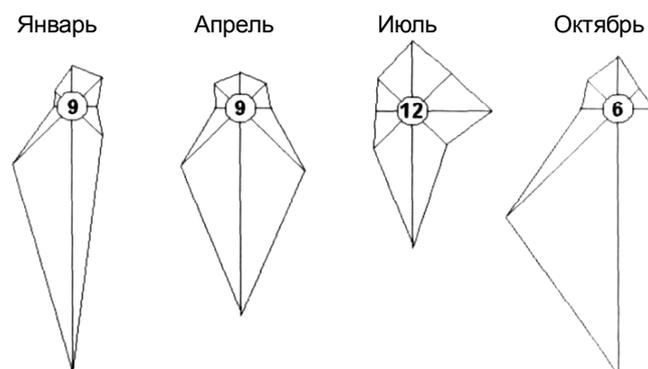


Рис. 1. Роза ветров, г. Томск [6]



Рис. 2. Населенные пункты Томской области, где проводились замеры гамма-спектрометром

Уровень содержания К, U и Th в пробах почв изученной территории соответствует данным других исследователей и, в целом, близок к этим значениям (табл. 1) [4].

Таблица 1

Содержание естественных радионуклидов в почвах Томской области, степной и таежной зоны Сибири (2010 г.) [4]

Область исследования	U, г/т	Th, г/т	K, %
Томская область, включая зону влияния СХК	2.5–2.6	9.6–10.8	1.7
Усредненные значения по таежной зоне Сибири	2 (0.4–3.1)	5.7 (1.7–8.1)	1.6 (1.3–2.1)
Усредненные значения по степной зоне Сибири	1.8 (0.7–2.8)	7.3 (3.0–17)	1.9 (1.3–2.7)

Анализ полученных данных показал, что наблюдается превышение содержания урана в почвах по сравнению со средними значениями по почвам Сибири. Вышефоновые содержания урана в почвах (с превышением регионального фона в 2 раза и более) обнаружены в пробах в п. Кузовлево (3.3 г/т), п. Надежда (3.9 г/т) и в пробе, отобранной на территории Туганского горно-обогатительного комбината (ТГОК) «Ильменит» (3.9 г/т). Поселки Кузовлево и Надежда находятся в районе действия СХК, где отмечаются более высокие концентрации урана. Повышенное содержание радионуклидов урана и тория в пробах почв ТГОК объясняется тем, что руды и минералы, содержащиеся в комплексе РЗМ, как правило, содержат природные радиоактивные изотопы, и наиболее высокая естественная радиоактивность обнаруживается в почвах, которые формировались на высокорadioактивных гранитах.

Повышенное содержание тория обнаружено в почвах п. Светлого (8.6 г/т), д. Кусково (7 г/т), ТГОК «Ильменит» (8.6 г/т), с. Зоркальцево (7 г/т). Концентрация в почвах тория обусловлена минералогическим составом почвогрунтов и гипсометрическим положением пунктов отбора проб, а в некоторых случаях – техногенной нагрузкой. На текущем этапе рассматриваемых данных недостаточно для корректной оценки и разделения радионуклидов по происхождению на природные и техногенные. Участки с явным превышением требуют детальных исследований.

Зафиксированное процентное содержание калия в почве на территории исследования колеблется от 0.4 до 1.3%, что на порядок ниже усредненных значений по Сибири. Пробы отобраны на территориях, где преобладают дерново-подзолистые и серые лесные почвы, которые характеризуются самыми низкими концентрациями (табл. 2).

Таким образом, повышенные концентрации урана, тория и калия, имеют локальный характер и не занимают большую площадь на территории юго-востока Томской области.

Таблица 2

Содержание естественных радионуклидов в почвах исследуемого района (2020 г.)

Место взятия пробы	Координаты	K, %	U, г/т	Th, г/т
п. Светлый	N56°33'55.3 E085°07'47.3	1.3	2.9	8.6
п. Кузовлево	N56°34'51.9 E085°00'37.4	1.1	3.3	4.6
п. Надежда	N56°43'35.9 E085°03'18.8	1	3.9	5.9
д. Георгиевка	N56°47'04.8 E085°07'47.3	1	2.9	3.7
д. Наумовка	N56°43'24.8 E085°06'24.1	1	2.1	4.3
42 км дорога Томск-Самусь	N56°44'27.3 E084°47'50.3	1.2	1.2	6.0
п. Самусь	N56°44'38.5 E084°43'43.7	0.8	1.4	2.6

Окончание табл. 2

Место взятия пробы	Координаты	K, %	U, г/т	Th, г/т
д. Кусково	N56°38'33.7 E085°14'12.0	1.2	2.2	7.0
п. Молодежный	N56°40'50.3 E085°20'10.2	1	3.5	4.5
ТГОК «Ильменит», Транспортно-логистический терминал	N56°42'22.1 E085°20'44.7	1.2	2.0	6.6
с. Октябрьское	N56°43'22.2 E085°24'30.6	1	1.7	5.5
с. Александровское	N56°43'20.1 E085°22'26.3	0.9	1.8	2.8
ТГОК «Ильменит» Александровского участка	N56°43'20.1 E085°22'26.3	0.4	3.9	8.6
с. Тимирязевское	N56°28'51.8 E084°52'51.8	1.2	0.3	2.9
с. Зоркалецево	N56°32'36.4 E084°40'03.0	1.3	2.7	7.0
п. Победа	N56°31'30.0 E084°10'15.1	1	1.5	1.7
с. Мельниково	N56°33'24.5 E084°02'35.0	1.2	2.2	5.9
с. Каргала	N56°37'09.7 E083°57'20.1	1.2	2.1	7.6
с. Баткат	N56°36'24.6 E083°57'52.8	1.3	2.0	5.1
д. Астраханцево	N56°27'35.1 E084°07'55.8	1.1	1.1	4.7
д. Чернышевка	N56°32'28.3 E084°22'17.0	1.1	2.4	4.4
д. Нелюбино	N56°33'27.5 E084°33'01.1	1.3	1.5	6.4

Выводы

С помощью гамма-спектрометрии могут быть оценены общие закономерности пространственной локализации геохимических показателей, а именно гамма-излучения в почвах. Для количественной оценки выбросов в атмосферу радионуклидов искусственного происхождения, которые разносятся на большие расстояния, необходимо фиксировать содержания изотопов ^{137}Cs и ^{134}Cs , где их количественное содержание будет выражаться поверхностной активностью. Об уровне радиации и изотопном составе радиоактивных осадков в начальной стадии загрязнения можно судить на основании анализа энергетического спектра зарегистрированного гамма-излучения.

Дальнейшие исследования позволят составить геоинформационные карты для интерпретации полученных результатов и выявления природных и техногенных процессов, влияющих на концентрацию и миграцию радионуклидов, а также определить закономерности и дать комплексную оценку радиационного фона изучаемой территории.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Злобина А.Н., Рихванов Л.П., Барановская Н.В. и др. // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2019. – Т. 330. – № 3. – С. 111–125. DOI: 10.18799/24131830/2019/3/172.
2. Соболев И.С. // Известия Томского политехнического университета. – 2007. – Т. 311. – № 1 – С. 90–96.
3. Гудзенко В.В. // Спелеология и карстология. – Симферополь, 2009. – № 2. – С. 88–91.

4. Рихванов Л.П., Страховенко В.Д., Маликова И.Н. и др. // Междунар. науч.-практич. конф. «Радиоэкология XXI века», сб. материалов [Электронный ресурс]. – Красноярск: Сибирский федеральный ун-т, 2011.
5. Kolotkov G.A., Penin S.T., and Matina P.N. // Proc. SPIE. – 2018. DOI: 10.1117/12.2505805.
6. География Томской области / под ред. А.А. Земцова. – Томск: Изд-во Том. ун-та, 1988. – 246 с.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

¹ Институт оптики атмосферы им. В.Е. Зуева СО РАН, г. Томск, Россия

² Национальный исследовательский Томский государственный университет, г. Томск, Россия

Колотков Геннадий Александрович, к.т.н., ст. науч. сотр. ИОА СО РАН, e-mail: kolotkov@iao.ru;

Матина Полина Николаевна, мл. науч. сотр. НИ ТГУ, e-mail: matina_polina@mail.ru.

G.A. KOLOTKOV¹, P.N. MATINA²

GAMMA-SPECTROMETRIC DETERMINATION OF URANIUM, TORIUM AND POTASSIUM CONTENT IN SOILS OF SOUTH-EAST OF TOMSK REGION

A quantitative assessment of natural radio nuclides in the soils of the south-east of the Tomsk region was carried out by the method of field gamma-spectrometric survey. Data on the radionuclide composition of soils, namely the content of uranium, thorium and potassium, make it possible to establish the reasons for the increased concentration (natural or man-made) and assess the degree of danger to the population. The increased content of thorium was found in the soils of the v. Svetly, the v. Kuskovo, TGOK «Ilmenite», s. Zorkaltsevo, and uranium in samples in p. Kuzovlevo, p. Nadezhda, TGOK «Ilmenite».

Keywords: *gamma spectrometry, radionuclides, soils, potassium, uranium, thorium.*

¹ V.E. Zuev Institute of Atmospheric Optics SB RAS, Tomsk, Russia

² National Research Tomsk State University, Tomsk, Russia

Kolotkov Gennady Aleksandrovich, Candidate of Technical Sciences, Senior Researcher IAO SB RAS, e-mail: kolotkov@iao.ru;

Matina Polina Nikolaevna, Junior Researcher NR TSU, e-mail: matina_polina@mail.ru.

УДК 661.866.2

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/57

М.К. КЫЛЫШКАНОВ, Н.Н. ЯРОШЕНКО, Г.В. ГУСАКОВА, А.А. ДОРН

ИССЛЕДОВАНИЯ ПО ПОЛУЧЕНИЮ ОКСИДА ГАДОЛИНИЯ ИЗ ОТХОДА ТЕХНОЛОГИИ ПЕРЕРАБОТКИ УРАН-ГАДОЛИНИЙСОДЕРЖАЩИХ МАТЕРИАЛОВ

Проведена оценка возможности получения оксида гадолия из отхода технологии переработки уран-гадолинийсодержащих материалов. В ходе проведения работ были опробованы различные способы получения оксида гадолия. Проведен ряд экспериментов по отработке режимов получения оксида гадолия методом двухстадийного осаждения оксалата. Разработана технологическая схема, по которой получен готовый продукт, пригодный для дальнейшего применения в технологии получения уран-гадолинийсодержащих таблеток АО «УМЗ».

Ключевые слова: редкоземельные элементы, осаждение оксалатов, оксид гадолия.

Введение

Одним из видов деятельности Уранового производства АО «УМЗ» является переработка трудноскрываемых уран-гадолинийсодержащих скрапов. При переработке материалов указанного вида, после их растворения, проводят операцию осаждения фторида гадолия с последующей экстракционной очисткой полученных растворов уранилнитрата.

На стадии осаждения практически весь гадолий, содержащийся в скрапах, переводят в осадок GdF_3 и в составе твердых отходов направляют на хвостохранилище. При существующих объемах переработки скрапов, содержащих до 7.0% гадолия, ежегодно на хвостохранилище может попадать ≈ 500 кг Gd.

С целью определения возможности получения оксида гадолия из отхода переработки уран-гадолинийсодержащих материалов были инициированы поисковые исследования.

Экспериментальная часть

Наиболее подходящими методами, применительно к существующей в урановом производстве АО «УМЗ» технологии, являются осаждение и экстракция. Выделение редкоземельных элементов (РЗЭ) можно проводить в виде гидроксидов или основных солей. Поскольку при получении гидроксидов происходит соосаждение урана, для выделения гадолия были выбраны методы осаждения двойных сульфатов или оксалатов. С сульфатами щелочных металлов гадолий образует двойные соли, практически не растворимые в избытке сульфата, а с щавелевой кислотой – оксалаты.

На первом этапе исследований проводили эксперименты по подбору метода перевода гадолия в раствор. Из данных источников научно-технической информации [1] известно, что фториды РЗЭ не растворяются в воде, холодных и горячих разбавленных кислотах. Перевести в растворимую форму осадки фторидов РЗЭ можно, обрабатывая раствором нитрата алюминия. В качестве растворяющего осадка GdF_3 -агента применяли раствор нитрата алюминия. В ходе экспериментов варьировали соотношение твердой и жидкой фаз, концентрацию алюминия и азотной кислоты.

Анализ результатов экспериментов показал, что при увеличении соотношения фаз Т:Ж и концентрации алюминия степень растворения гадолия повышается с 77.75 до 99.99%. С увеличением концентрации HNO_3 степень растворения гадолия снижается с 83.69 до 22.09%.

В ходе исследований проводились эксперименты по получению оксида гадолия методом сульфатного осаждения. Выделение двойных сульфатов осуществляли из раствора с содержанием гадолия 63.0 г/л, урана 1.3 г/л, азотной кислоты 18.7 г/л. Осадок $Na_3[Cd(SO_4)_3]$ растворяли в азотной кислоте с повторным осаждением двойного сульфата. Полученный осадок прокаливали до оксида гадолия. Содержание гадолия в конечном оксиде составляло 40.66%, что составляет 46.87% от теоретического содержания. Низкая степень извлечения гадолия и неудовлетворительная ядерная чистота полученных при этом оксидов – 40.66% по гадолию заставила отказаться от схемы получения оксида гадолия через промежуточное осаждение двойных сульфатов и инициировала поиск других способов.

Из данных источников научно-технической информации известно, что для получения редкоземельных элементов широко распространен метод оксалатного осаждения, который позволяет практически полностью освободиться от основных примесей: железа, алюминия, кальция и дру-

гих. При использовании многостадийного осаждения оксалатов возможно получение РЗЭ практически ядерной чистоты. Выделение оксалата гадолиния проводили из растворов, полученных после растворения осадка GdF_3 в нитрате алюминия. Содержание гадолиния в растворе составляло 63.8 г/л, урана – 1.5 г/л. В ходе экспериментов варьировали концентрацию азотной кислоты и расход осаждающего агента.

На основании результатов выполненных экспериментов был сделан вывод, что с увеличением расхода $H_2C_2O_4$ степень осаждения Gd незначительно увеличивается, в то же время увеличение остаточной кислотности раствора приводит к снижению степени осаждения.

Осадок оксалата гадолиния прокаливали и измеряли содержание гадолиния в полученном оксиде. Содержание гадолиния находилось на уровне 70.45%, что составляет 81.20% от теоретического содержания. Согласно данным [2], для получения соединений гадолиния ядерной чистоты требуется многостадийная очистка: оксалат первого осаждения растворяют в азотной кислоте и из полученного раствора осаждают оксалат следующей стадии, степень чистоты конечного продукта определяется, главным образом, числом стадий очистки.

С целью увеличения степени извлечения гадолиния были реализованы эксперименты по схеме двухстадийного осаждения оксалата гадолиния. Оксалат гадолиния, по данным источников научно-технической информации, имеет чрезвычайно низкую растворимость в нейтральных и кислых средах. Например, в 2N азотной кислоте растворимость оксалатов гадолиния составляет 2.7 г/л. Гидроксид гадолиния имеет высокую степень растворения. Поэтому перед растворением в азотной кислоте оксалат гадолиния первой стадии осаждения переводили в форму $Gd(OH)_3$. В ходе экспериментов были опробованы разные условия ведения процесса.

Экспериментально было установлено, что значимыми параметрами процесса являются расход реагента и соотношение твердой и жидкой фаз. С увеличением указанных показателей извлечение гадолиния в раствор повышается с 62.83 до 83.55%. Для выбора оптимального режима растворения гидроксида гадолиния в азотной кислоте в ходе экспериментов варьировали концентрацию HNO_3 .

Основываясь на результатах экспериментов, можно сделать вывод, что с увеличением в растворяющем агенте концентрации азотной кислоты извлечение гадолиния в раствор увеличивается с 89.52 до 99.99%.

Процессы осаждения и прокалки оксалата гадолиния осуществляли в ранее установленных режимах. Содержание гадолиния в полученном оксиде гадолиния находилось на уровне ~ 81.57%, что составляет 94.02% от теоретического содержания.

На следующем этапе исследований для более полного извлечения гадолиния в оксалат были выполнены эксперименты по изучению влияния условий осаждения. Одним из основных факторов, оказывающих существенное влияние на состав получаемого в результате осаждения осадка, является время его созревания.

Исследования по изучению влияния времени созревания проводили на осадках оксалата гадолиния, полученных после повторного осаждения из растворов с остаточной концентрацией азотной кислоты 444.0 г/л, гадолиния – 38.44 г/л, урана – 0.086 г/л. Выдержка осадка в растворе варьировалась от 1 до 24 ч. Далее осадок подвергали высокотемпературной обработке и проводили аналитический контроль содержания гадолиния в конечном оксиде.

На основании результатов выполненных опытов можно сделать вывод, что при увеличении времени созревания оксалата гадолиния с 1 до 8 ч содержание гадолиния в оксиде увеличивается с 81.57 до 82.25%. Дальнейшее увеличение времени созревания осадка приводит к незначительному увеличению содержания гадолиния в оксиде.

Был также опробован метод быстрого охлаждения раствора после выдержки оксалата 1, 4 и 8 ч. Охлаждение проводили путем погружения стакана с раствором и осадителем в химический стакан большего объема, наполненного водопроводной водой с температурой +15 °С. Применение способа быстрого охлаждения раствора после введения щавелевой кислоты позволило сократить время выдержки осадка оксалата гадолиния и получить продукт с содержанием гадолиния 82.28%. Для оценки пригодности полученного оксида гадолиния его добавляли к триурана октаоксиду в количестве 8.0 мас. %.

Результаты аналитического определения содержания химических примесей свидетельствуют о том, что полученные в ходе эксперимента порошки триурана октаоксида с введением оксида гадолиния не соответствуют требованиям технической спецификации по суммарному содержанию алюминия, кальция, магния и кремния.

Для оценки возможности получения оксида гадолиния, обеспечивающего требуемую ядерную чистоту порошков триурана октаоксида, были проведены эксперименты по двухстадийному осаждению с промежуточной отмывкой оксалата гадолиния первой стадии осаждения.

Из источников научно-технической информации известно, что оксалаты свинца, кадмия, висмута, меди, алюминия и трехвалентного железа легко растворяются в 0.1–0.5N растворах кислот. Оксалаты цинка, никеля, двухвалентного железа полностью растворяются в 1N азотной кислоте [3].

В ходе выполнения экспериментов осадок оксалата гадолиния первой стадии осаждения промывали растворами азотной кислоты. Соотношение фаз Т:Ж составляло 1:5, время – 30 мин. Затем оксалат гадолиния промывали щелочью, гидроксид гадолиния растворяли в азотнокислом растворе. Далее осаждением выделили оксалат гадолиния с последующей его прокалкой. Содержание гадолиния в оксиде гадолиния составило 83.24%.

С целью определения возможности применения полученного реагента в технологии изготовления уран-гадолиниевого топлива оксид гадолиния подшихтовали к триурану октаоксиду в количестве 8%. Результаты аналитического определения содержания химических примесей свидетельствуют о том, что порошки триурана октаоксида с введением оксида гадолиния, полученного по схеме двухстадийного осаждения с кислотной обработкой оксалата гадолиния первой стадии осаждения, соответствуют требованиям технической спецификации.

Заключение

По результатам исследований разработана технологическая схема получения оксида гадолиния методом двухстадийного осаждения оксалата гадолиния с промежуточной отмывкой оксалата первой стадии осаждения раствором азотной кислоты. Схема состоит из следующих основных операций: растворение фторида гадолиния в растворе нитрата алюминия, осаждение оксалата гадолиния, промывка оксалата гадолиния первой стадии осаждения раствором азотной кислоты, перевод оксалата в гидроксид гадолиния, растворение гидроксида в растворе азотной кислоты, повторное осаждение оксалата гадолиния, прокалка до оксида гадолиния.

Разработанная технология открывает перспективу получения продукта, который в дальнейшем будет применяться в технологии получения уран-гадолиниевых таблеток в урановом производстве АО «УМЗ». Представленная технология является экономически рентабельной, так как ее реализация не требует приобретения нового оборудования и создания новых производственных площадей.

Реализация технологии получения оксида гадолиния из фторида гадолиния – отхода уранового производства – дает возможность снизить объемы твердых радиоактивных отходов АО «УМЗ», что, в свою очередь, будет способствовать улучшению радиационной обстановки в районе хвостохранилища предприятия.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Рябчиков Д.И., Рябухин В.А. Аналитическая химия редкоземельных элементов и иттрия. – М.: Наука, 1966.
2. Айринг Л. Успехи в химии и технологии редкоземельных элементов. – М.: Металлургия, 1970.
3. Тураев Н.С., Жерин И.И. Химия и технология урана. – М.: ЦНИИАТОМИНФОРМ, 2005.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

АО «Ульбинский металлургический завод»,
г. Усть-Каменогорск, Республика Казахстан

Кылышканов Манарбек Калымович, д.ф.-м.н., профессор, акад. Региональной академии менеджмента, начальник Научного центра АО «УМЗ», e-mail: KylyshkanovMK@ulba.kz;

Ярошенко Наталья Николаевна, начальник лаб. урана НЦ АО «УМЗ», e-mail: YaroshenkoNN@ulba.kz;

Гусакова Галина Васильевна, ведущ. инженер-исследователь ЛУ НЦ АО «УМЗ», e-mail: GusakovaGV@ulba.kz;

Дорн Анна Александровна, инженер-исследователь ЛУ НЦ АО «УМЗ», e-mail: DornAA@ulba.kz.

M.K. KYLYSHKANOV, N.N. YAROSHENKO, G.V. GUSAKOVA, A.A. DORN

RESEARCH ON OBTAINING GADOLINIUM OXIDE FROM WASTE TECHNOLOGIES FOR PROCESSING OF URANIUM-GADOLINIUM CONTAINING MATERIALS

The assessment of the possibility of obtaining gadolinium oxide from the waste of the technology of processing uranium-gadolinium-containing materials is carried out. In the course of the work, various methods of obtaining gadolinium oxide were tested. A number of experiments were carried out to refine the modes of obtaining gadolinium oxide by the method of two-stage precipitation of oxalate. A technological scheme was developed, according to which a finished product was obtained, suitable for further use in the technology of obtaining uranium-gadolinium tablets of UMP JSC.

Keywords: rare earth elements, precipitation of oxalates, gadolinium oxide.

Joint Stock Company «Ulba Metallurgical Plant»,
Ust-Kamenogorsk, Republic Kazakhstan

Kylyshkanov Manarbek Kalymovich, Doctor of Physical and Mathematical Sciences, Professor, Academician of the Regional Academy of Management, Head of the Scientific Center of JSC «UMP», e-mail: KylyshkanovMK@ulba.kz;
Yaroshenko Natalia Nikolaevna, Head of the Uranium Laboratory of the SC JSC «UMP», e-mail: YaroshenkoNN@ulba.kz;
Gusakova Galina Vasilievna, Lead Research Engineer of the LU of the SC JSC «UMP», e-mail: GusakovaGV@ulba.kz;
Dorn Anna Alexandrovna, Research Engineer of the LU of the SC JSC «UMP», e-mail: DornAA@ulba.kz.

УДК 669.822

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/61

*М.К. КЫЛЫШКАНОВ, Н.Н. ЯРОШЕНКО, Е.В. КИРИЛЛОВ, Т.М. АЛДАЖАРОВ,
А.В. БОЛТАНОВ, А.В. ДОЛГАНОВ, М.В. ТИТОВ*

РАЗВИТИЕ ТЕХНОЛОГИЙ ИЗГОТОВЛЕНИЯ ЯДЕРНОГО КЕРАМИЧЕСКОГО ТОПЛИВА

Проведена оценка модернизации технологической схемы изготовления топливных таблеток на качественные показатели производства ядерного топлива. В ходе работ был отработан алгоритм загрузки, выгрузки и продолжительности смешивания порошка в планетарно-шнековом смесителе, обеспечивающий высокую однородность смешивания. Внедрение в технологический процесс пресса с таблетоукладчиком позволило увеличить массу загружаемых прессовок в лодки и снизить их травмируемость, тем самым повысить производительность операции прессования. Реализован комплекс работ по увеличению плотности прессовок, который позволил улучшить внешний вид спеченных таблеток и, как следствие, повысить показатель выхода в «годное» на операции разбраковки. Сокращена периодичность загрузки таблеток в печь спекания, что способствовало увеличению производительности печей и снижению энергозатрат. Успешно проведена сертификация в компании AREVA в соответствии с технической документацией, применяемой для производства топливных таблеток.

Ключевые слова: ядерное топливо, модернизация технологического процесса, диоксид урана, порошковая металлургия.

Введение

Урановое производство АО «Ульбинский металлургический завод (УМЗ)» – это уникальный и один из крупнейших в мире комплекс по производству уранового топлива для атомных электростанций, имеющий огромный опыт работы в ядерной отрасли. Высокое качество продукции позволяет Ульбинскому металлургическому заводу быть активным участником мирового рынка ядерного топлива для АЭС.

На протяжении не одного десятка лет, до недавнего времени, АО «УМЗ» являлся одним из основных поставщиков топливных таблеток для российских реакторов. Главными видами продукции были топливные таблетки для реакторов российского дизайна – ВВЭР и РБМК, как стандартные, состоящие из чистого диоксида урана, так и с использованием различных химических добавок для повышения физико-химических показателей ядерного топлива. Богатый опыт освоения новых технологических процессов и совершенствования уже внедренных технологий, постоянная нацеленность на выполнение не только существующих, но и перспективных требований к качеству продукции, позволили специалистам АО «УМЗ» сохранить уверенность в своих возможностях при решении практически любых задач в данной сфере деятельности.

В связи с увеличением объемов производства топливных таблеток на российских заводах АО «ТВЭЛ» объемы поставок таблеток АО «УМЗ» стремительно сокращались и возникал вопрос о дальнейшей деятельности уранового производства. Наиболее верным решением являлось освоение производства топливных таблеток для реакторов других ведущих мировых (не российских) энергетических компаний и выходом на международный рынок. При удачном стечении обстоятельств это позволяло надеяться на получение стабильных заказов на услуги по изготовлению таблеток, а в перспективе – и топливных сборок.

В этих условиях в связи с развитием совместного проекта по добыче природного урана наиболее перспективным направлением был выход на китайский рынок с таблетками для реакторов дизайна французской компании AREVA (ныне – Framatome).

Стало очевидно, что использование существующей технологии, основанной на приготовлении пресс-порошка с использованием жидкого связующего (пластификатор на основе поливинилового спирта и глицерина), при имеющемся аппаратурном оформлении не может обеспечить требований спецификации AREVA по многим параметрам, таким, как микроструктура, термическая стабильность, геометрическая плотность и т.д. На рис. 1 приведены примеры фрагментов пористой структуры с использованием жидкого и сухого связующего.

В связи с этим необходимо было разрабатывать новую технологию приготовления пресс-порошка с использованием сухих смазок, как это и практикуют все ведущие компании мира. Ситуация осложнялась очень ограниченным выбором оборудования, которое можно было вовлечь в

технологический процесс и тем, что в АО «УМЗ» практически отсутствовал опыт работы с сухими смазками при изготовлении топливных таблеток.

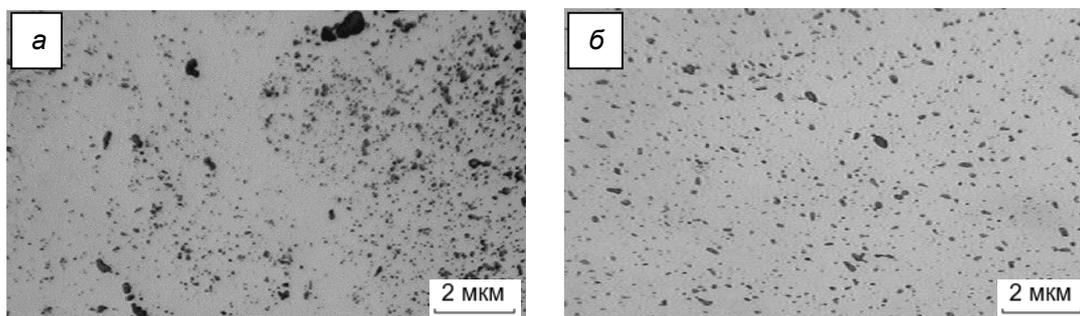


Рис. 1. Пористая структура топливных таблеток: *а* – с использованием жидкой связки; *б* – с использованием сухой связки

Эти непростые задачи достаточно оперативно решались сначала в лабораторных условиях, а затем и в промышленных. Так была разработана, смонтирована и успешно опробована принципиально новая линия мехобработки и грануляции порошков, состоящая из смесителей, валкового пресса, вибромельницы и виброгранулятора. Особое внимание уделялось технологии введения сухой смазки стеарата цинка и порообразователя азодикарбонамида (АДКА), с помощью которого планировалось регулировать плотность и термическую стабильность спеченных таблеток. Порядок ввода добавок играл большую роль для получения равномерной пористой и зеренной структуры таблеток. Были проведены многочисленные эксперименты по изучению зависимости количества вводимого порообразователя на плотность таблеток. Результатом этой работы явилось получение эмпирической формулы зависимости количества вводимого АДКА на величину снижения плотности спеченных таблеток.

Успешная сертификация процесса и оборудования для изготовления топливных таблеток в соответствии с требованиями AREVA позволила предприятию сертифицироваться у потенциальных потребителей продукции компаний CGNPC-URC, CJNF.

Итогом работы, проведенной специалистами АО «УМЗ» в течение 2009–2010 гг., стала разработанная технология получения топливных таблеток, соответствующих требованиям спецификации AREVA.

В 2015–2016 гг. была проведена модернизация технологического процесса изготовления топливных таблеток в связи с необходимостью увеличения производительности и повышения качества выпускаемой продукции путем установки нового оборудования и оптимизации технологических режимов.

Методика проведения работ

На первом этапе работ была проведена модернизация участка приготовления и комплектования партий порошков оксидов урана.

В разработанной технологической схеме при шихтовании партий порошков оксидов урана использовался смеситель барабанного типа. Однако недостатком смесителей барабанного типа (как и любых других смесителей, в которых порошок движется по повторяющейся траектории) является сегрегация (расслоения частиц порошка в зависимости от их размеров и массы), которая не позволяет достичь высокой степени однородности при смешении. Особенно ярко это проявляется при смешении порошков, значительно различающихся между собой по физико-химическим характеристикам [1]. Еще одним значительным недостатком смесителей данного типа является узкий диапазон масс смешиваемых порошков (от 1000 до 2100 кг). Очевидно, что конструкция существующих смесителей барабанного типа существенно ограничивает возможности уранового производства при приготовлении пресс-порошков и изготовлении таблеток в соответствии со спецификациями существующих и потенциальных потребителей. Многие зарубежные и российские производители порошков и таблеток в настоящее время для смешения используют смесители, обеспечивающие сложную, практически неповторяющуюся траекторию движения порошка, что позволяет исключить явление сегрегации и обеспечить высокое качество смешения.

В 2015 г. был приобретен и установлен планетарно-шнековый смеситель Vrieco-Nauta типа 15 VV-5 (рис. 2).

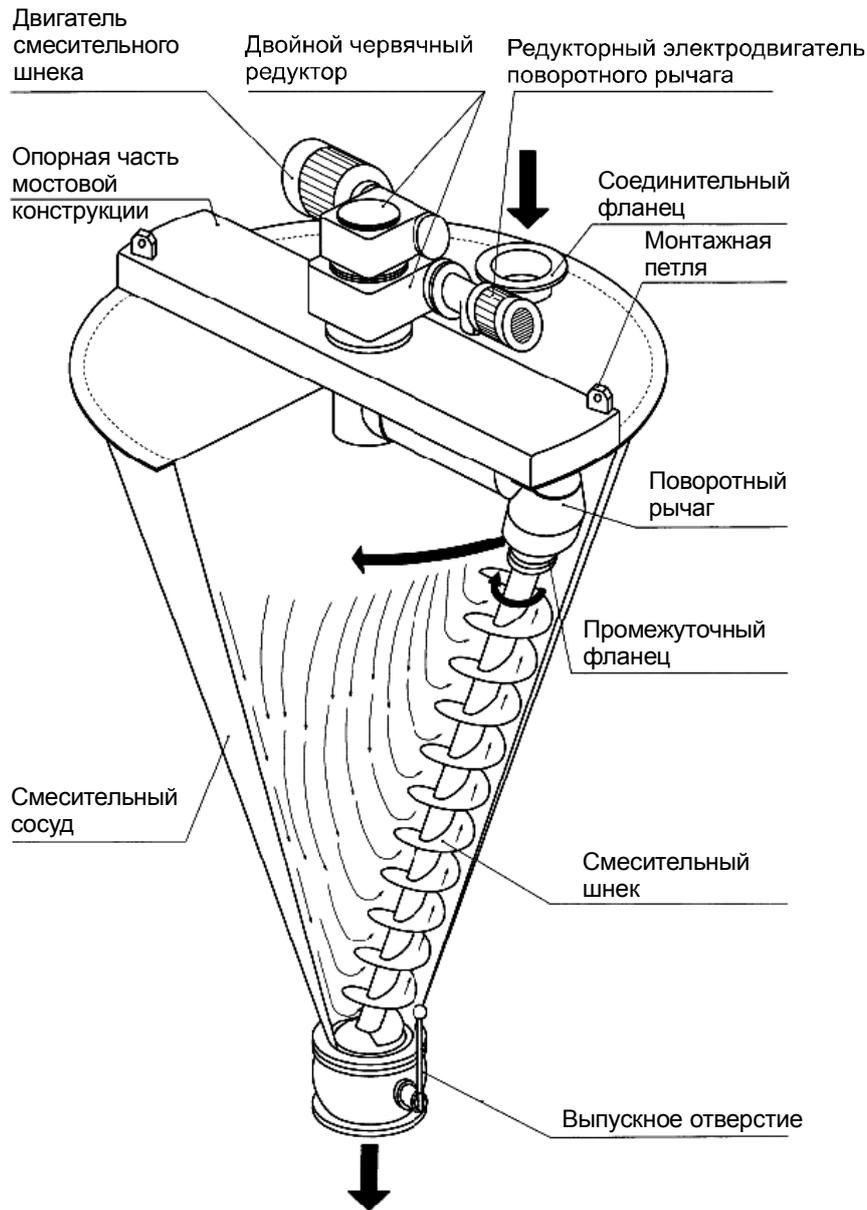


Рис. 2. Планетарно-шнековый смеситель

Принцип работы смесителя основан на трехстороннем смешивающем действии, которое является результатом совместного движения вращающихся элементов в коническом смесительном сосуде.

Были проведены испытания планетарно-шнекового смесителя по подбору алгоритма смешивания и оценке возможности достижения однородности смешивания порошков оксидов урана. Основываясь на результатах испытаний, были определены массы минимальной и максимальной партий порошков оксидов урана, смешиваемых в планетарно-шнековом смесителе, отработан алгоритм работы этого смесителя (порядок загрузки, выгрузки и продолжительность смешивания), обеспечивающий высокую однородность смешивания.

Использование планетарно-шнекового смесителя, наряду с обеспечением высокой однородности смешивания за короткий интервал времени, позволило увеличить диапазон массы смешиваемых порошков оксидов урана с 1000–2100 до 500–2850 кг, что привело к сокращению количества и массы проб при дальнейшем контроле.

На втором этапе работ была проведена корректировка используемого пресс-инструмента, режимов прессования и запуск пресса с таблетоукладчиком на участке формования прессовок.

Недостатками операции формования на тот момент являлись низкие прочностные характеристики прессовок и высокая травмируемость их в процессе транспортировки и укладки в лодку. Проведенные ранее исследования показали, что формование прессовок в более высокую плотность (5.65–5.85 г/см³) приводит к улучшению внешнего вида прессовок, спеченных таблеток и, как следствие, к увеличению выхода в «годное» на операции разбраковки. Однако при увеличении плотности прессовок происходит увеличение диаметров спеченных таблеток и соответственно увеличение количества шлифотходов при их шлифовании.

С целью уменьшения количества шлифотходов (при увеличении плотности прессовок на операции формования до 5.65–5.85 г/см³) проводились расчеты для корректировки размеров пресс-инструмента. По их результатам был изготовлен новый пресс-инструмент. Проведен запуск и отработаны режимы формования на прессе «COURTOY» с таблетоукладчиком, что позволило увеличить массу загружаемых прессовок в лодки на 15% и снизить их травмируемость в процессе укладки в лодку, тем самым повысив производительность операции прессования. Результаты проведенных экспериментов приведены в таблице.

Показатель выхода в «годное»

Параметры пресса	Выход в «годное», %	Количество брака, %	Разбраковка по видам брака, %	
			Трещины	Сколы
Пресс без таблетоукладчика	83.3	16.7	5.5	11.2
Пресс с таблетоукладчиком	89.5	10.5	2.2	8.3

На третьем этапе работ была проведена корректировка режимов на операции спекания топливных таблеток. Ранее спекание таблеток в печи TER проводили при периодичности загрузки лодок с таблетками в печь 75 мин. Проведенные исследования показали возможность сокращения периода загрузки лодочки в печь до 60 мин без ухудшения качественных показателей таблеток. Уменьшение периодичности загрузки лодок с таблетками в печь приводит к увеличению производительности и к снижению затрат процесса спекания топливных таблеток.

Для выполнения требований 100%-го контроля диаметра и высоты топливных таблеток в кратчайшие сроки силами ТОО «УМЗ-Инжиниринг» была разработана, смонтирована и опробована линия контроля таблеток с использованием лазерных анализаторов LaserMike. По результатам испытаний был выпущен отчет об аттестации линии автоматизированного контроля геометрических размеров топливных таблеток, утвержденный в AREVA.

Для обеспечения технологического контроля диаметра, оценки конусности и овальности, определения геометрических размеров таблеток с применением оптических методов измерения высоты и диаметра были установлены системы измерения с лазерным датчиком ZUMBACH Electronic AG, осуществлена их адаптация для решения поставленной задачи по измерению диаметра, высоты, конусности и овальности таблеток.

По окончании модернизации технологического процесса была проведена повторная сертификация процесса изготовления топливных таблеток UO₂ на производственной линии уранового производства АО «УМЗ». Она подтвердила, что таблетки, выпущенные с использованием нового оборудования и откорректированных технологических режимов, соответствуют требованиям спецификации и технологической документации по всем анализируемым показателям: геометрическая плотность, шероховатость, термическая стабильность, геометрические размеры, содержание массовой доли водорода, микроструктура и химические примеси.

Таким образом, Ульбинский металлургический завод успешно прошел все виды контроля, предусмотренного технической документацией по аттестации процесса изготовления таблеток UO₂, применяемой в компании AREVA, и был успешно сертифицирован для производства топливных таблеток.

Заключение

Проведена оценка модернизации технологической схемы изготовления топливных таблеток на качественные показатели производства ядерного топлива.

В ходе проведения работ были определены массы минимальной и максимальной партий порошков оксидов урана, смешиваемых в смесителе, отработан алгоритм (порядок загрузки, порядок и продолжительность смешивания, порядок выгрузки), обеспечивающий высокую однородность смешивания.

Внедрение в технологический процесс пресса с таблетоукладчиком позволило увеличить массу загружаемых прессовок в лодки на 15% и снизить их травмируемость в процессе укладки в лодку, тем самым повысить производительность операции прессования.

Проведен комплекс работ по увеличению плотности прессовок с 5.15–5.45 до 5.65–5.85 г/см³:

- рассчитан, изготовлен и опробован новый пресс-инструмент с откорректированными размерами и возможностью его использования при формовании прессовок в плотность 5.65–5.85 г/см³;

- подтверждено улучшение внешнего вида спеченных таблеток за счет увеличения плотности прессовок, и, как следствие, повышен показатель выхода в «годное» на операции разбраковки.

Сокращена периодичность загрузки таблеток в печь TER при спекании с 75 до 60 мин, что приводит к увеличению производительности печей и снижению энергозатрат на операции спекания.

Итогом работы, проведенной специалистами АО «УМЗ», стала корректировка технологии изготовления топливных таблеток дизайнера компании AREVA, а также успешно проведенная сертификация, которая подтвердила, что имеющееся оборудование и разработанные параметры технологического процесса позволяют изготавливать продукцию, соответствующую требованиям спецификации и технологической документации.

Таким образом, Ульбинский металлургический завод успешно прошел сертификацию в компании AREVA в соответствии с технической документацией, применяемой для производства топливных таблеток.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Федорченко И. М. Порошковая металлургия. Материалы, технология, свойства, области применения: Справочник. – Киев: Наукова Думка, 1985.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

АО «Ульбинский металлургический завод»,
г. Усть-Каменогорск, Республика Казахстан

Кылышканов Манарбек Калымович, д.ф.-м.н., начальник НЦ АО «УМЗ», e-mail: KylyshkanovMK@ulba.kz;

Ярошенко Наталья Николаевна, начальник лаборатории НЦ АО «УМЗ», e-mail: YaroshenkoNN@ulba.kz;

Кириллов Евгений Викторович, ведущ. инженер-исследователь НЦ АО «УМЗ», e-mail: KirillovEV@ulba.kz;

Алдажаров Тимур Муратович, ведущ. инженер-исследователь НЦ АО «УМЗ», e-mail: AldazharovTM@ulba.kz;

Болтанов Алексей Владимирович, заместитель директора по производству УП АО «УМЗ», e-mail: BoltanovAV@ulba.kz;

Долганов Антон Владимирович, технолог отделения УП АО «УМЗ», e-mail: DolganovAV@ulba.kz;

Титов Максим Васильевич, технолог отделения УП АО «УМЗ», e-mail: TitovMV@ulba.kz.

*M.K. KYLYSHKANOV, N.N. YAROSHENKO, E.V. KIRILLOV, T.M. ALDAZHAROV,
A.V. BOLTANOV, A.V. DOLGANOV, M.V. TITOV*

DEVELOPMENT OF TECHNOLOGIES FOR PRODUCING NUCLEAR CERAMIC FUEL

The impact of the modernization of the technological scheme for the production of fuel pellets on the quality indicators of the production of nuclear fuel is assessed. In the course of the work, an algorithm for loading, unloading and mixing duration of powder in a planetary screw mixer was worked out, which ensures high homogeneity of mixing. The introduction of a press with a tablet-laying machine into the technological process made it possible to increase the mass of the loaded compacts into the boats and reduce their injury rate, thereby increasing the productivity of the pressing op-

eration. A set of works was implemented to increase the density of compacts, which made it possible to improve the appearance of the sintered tablets and, as a result, to increase the rate of «@good» yield for the sorting operation. The frequency of loading the tablets into the sintering furnace has been reduced, which contributed to an increase in furnace productivity and a decrease in energy consumption. AREVA has been successfully certified in accordance with the technical documentation used for the production of fuel pellets.

Keywords: *nuclear fuel, technological process modernization, uranium dioxide, powder metallurgy.*

Joint Stock Company «Ulba Metallurgical Plant»,
Ust-Kamenogorsk, Republic Kazakhstan

Kylyshkanov Manarbek Kalymovich, Doctor of Physical and Mathematical Sciences, Head of the Scientific Center of JSC «UMP», e-mail: KylyshkanovMK@ulba.kz;

Yaroshenko Natalya Nikolaevna, Head of the Laboratory of the Scientific Center of JSC «UMP», e-mail: YaroshenkoNN@ulba.kz;

Kirillov Evgeniy Viktorovich, Leading Research Engineer, Scientific Center of JSC «UMP», e-mail: KirillovEV@ulba.kz;

Aldazharov Timur Muratovich, Leading Research Engineer, Scientific Center of JSC «UMP», e-mail: AldazharovTM@ulba.kz;

Boltanov Alexey Vladimirovich, Deputy Director for Production of UD JSC «UMP», e-mail: BoltanovAV@ulba.kz;

Dolganov Anton Vladimirovich, Technologist of the Department of UD JSC «UMP», e-mail: DolganovAV@ulba.kz;

Titov Maxim Vasilievich, Technologist of the Department of UD JSC «UMP», e-mail: TitovMV@ulba.kz.

УДК 546:65

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/67

А.В. МУСЛИМОВА, В.Л. СОФРОНОВ, А.С. БУЙНОВСКИЙ, К.Е. ПОПОВА

ИССЛЕДОВАНИЕ ПРОЦЕССА ПЕРЕРАБОТКИ МОНАЦИТА ФТОРИДНО-СУЛЬФАТНЫМ МЕТОДОМ

Монацит является ценным источником редкоземельных элементов (РЗЭ), но в России концентрат на данный момент не перерабатывают. Это связано с отсутствием эффективных и экономически оправданных технологий, а также с радиозокологическими проблемами, возникающими при его переработке. В настоящей работе рассмотрен способ переработки монацита в три стадии: на первой стадии – фторирование концентрата бифторидом аммония (БФА), на второй стадии – сульфатизация продуктов гидрофторирования для перевода малорастворимых фторидов РЗЭ в форму растворимых сульфатов. На третьей стадии изучали возможность глубокой очистки полученных продуктов от кремния и фосфора при помощи прокалки. Проведен термогравиметрический анализ процесса сульфатизации продукта гидрофторирования монацитового концентрата. В результате исследования были выявлены оптимальные условия фторирования. Получено, что проведение сульфатизации продукта фторирования монацита принципиально возможно в две стадии: при температурах 280–300 °С с отгонкой кремния и при температуре более 400 °С для глубокой очистки.

Ключевые слова: монацит, монацитовый концентрат, редкоземельные элементы, торий, вскрытие, гидродифторид аммония, серная кислота.

Введение

Благодаря уникальным свойствам редкоземельные элементы (РЗЭ) находят широкое применение в различных отраслях, которые обеспечивают научно-технический прогресс (электронно-вычислительная техника, магниты нового поколения и др.). На данный момент Китай является основным поставщиком РЗМ. В последние годы производство редкоземельных металлов в России постепенно возрождается, в основном, за счет источников, из которых РЗЭ можно извлекать попутно. С учетом указанных тенденций необходимо также обратить внимание на еще один источник РЗЭ, уже представленный в виде концентрата и не требующий вложений в разведку, добычу и обогащение, – монацитовый концентрат (МК), хранящийся на складе «УралМонацит» в г. Красноуфимске. Концентрат на данный момент не перерабатывают в связи с отсутствием эффективных и экономически оправданных технологий: щелочная технология предъявляет высокие требования к качеству концентрата, при серно-кислотной технологии требуется значительный расход реагентов, что в дальнейшем приводит к необходимости нейтрализации кислых продуктов реакции, а это значительно повышает объемы перерабатываемых растворов [1].

Монацит – минерал, безводный фосфат РЗЭ и тория $(Ln,Th)PO_4$ [1]. Монацит наряду с бастнезитом относится к основным промышленным минералам-концентратам РЗЭ, на их долю приходится около 80 % всех запасов РЗЭ. Концентраты монацита, хранящиеся на базе «УралМонацит», представляют собой примерно 800 различных партий концентрата из различных, в том числе иностранных, источников. Их минеральный и химический составы различаются, иногда существенно. Обобщенная характеристика концентратов с содержанием монацита 78–100%, данная в работе [2], приведена в табл. 1.

Из табл. 1 видно, что для монацита-1 характерно наличие вростков хаттонита и чералита, для монацита-2 – повышенное содержание иттрия и средне-тяжелых РЗЭ; для монацита-3 – низкое содержание тория, а монацит-4 включает все остальные типы. Присутствие в части партий монацита вростков минералов-силикатов может привести к снижению степени извлечения РЗЭ при кислотной переработке, а в связи с невысоким качеством концентрата нецелесообразна его щелочная переработка из-за увеличения расхода щелочи.

С учетом этого, а также того, что монацит относится к достаточно устойчивым минералам, эффективными способами разложения монацитовых концентратов базы «УралМонацит» могут стать способы с применением фторирующих агентов. С точки зрения удобства транспортировки, экологических аспектов, возможности регенерации интерес представляют фторид и бифторид аммония, которые по значениям величин констант и скорости многих реакций занимают промежуточное положение между газообразным фтором и безводным фтороводородом [3]. Для перевода образующихся в результате фторидов РЗЭ в растворимую форму возможно использование серной

кислоты, так как это позволит воспользоваться хорошо известными методами очистки сульфатных растворов суммы РЗЭ перед экстракционным аффинажом [4] и выделить в газообразную фазу SiF_4 при разложении образовавшихся на стадии гидрофторирования фторсиликатов аммония.

Таблица 1

Характеристика монацитовых концентратов [2]

Тип	Другие минералы	Особенности
Монацит-1	Вростки хаттонита ThSiO_4 , чералит $\text{CaTh}(\text{PO}_4)_2$	Наличие участков с вростками хаттонита с повышенным содержанием Th и Si. Повышенному содержанию Th соответствует пониженное содержание Ce и повышенное U, Pb, Si, и наоборот. Присутствие метамиктных зерен с содержанием оксида железа до 2.5 мас. %
Монацит-2	Рутил, циркон	Содержание Y_2O_3 до 3.0 мас. %, увеличенные концентрации оксидов Sm, Gd, Dy, Eu и Ca до 1–2 мас. %
Монацит-3	–	Содержание ThO_2 не превышает 4.0 мас. %, либо ниже предела обнаружения; малое содержание Ca и Si, заметно увеличено содержание Ce и La
Монацит-4 (а, б)	–	Присутствие 4.0–10.5 мас. % ThO_2 , во многих анализах имеется Pb. В монаците-4а в среднем меньше SiO_2 и больше CaO, а в монаците-4б содержание SiO_2 выше (до 1.5–2.0 мас. %) при меньшей концентрации примеси CaO (0.15–0.70 мас. %)

Таким образом, цель работы – определение оптимальных условий фторирования и последующей сульфатизации монацитовых концентратов на примере образцов из двух партий, а также определение возможности более глубокой очистки получаемых продуктов от кремния на стадии сульфатизации.

Результаты исследования исходного сырья

До начала экспериментов был проведен анализ элементного и вещественного составов исследуемых проб монацитов для определения их типа. Исходный монацитовый концентрат подвергли ситовому анализу при помощи аналитической просеивающей машины AS 200 («RETSCH GmbH», Германия) методом сухого отсева. Предварительную оценку химического состава МК проводили методом рентгено-флуоресцентного анализа (РФА) при помощи волнодисперсионного спектрометра «Спектроскан МАКС-GVM». Количественную оценку химического состава МК проводили методами нейтронно-активационного анализа (НАА) (ЯР ТПУ, г. Томск) и атомно-эмиссионной спектроскопии (АЭС) на приборе iCAP-6200. Шлифы зерен МК исследовали методом сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) на приборе «Hitachi S-3400N» (ТПУ, г. Томск). Рентгенофазовый анализ проводили на дифрактометре ДРОН-3 с идентификацией фаз по картотеке JCPDS [5]. Результаты анализов приведены в табл. 2.

По результатам элементного анализа получили, что содержание тория в исследуемых пробах монацита несколько выше усредненного состава, приведенного для всех концентратов базы хранения в г. Красноуфимске [6], а содержание РЗЭ ниже на 10%. Данная зависимость характерна для монацита типа 1. Содержание РЗЭ, тория, урана в двух имеющихся пробах весьма однородно. Различия в содержании титана, железа связано с различным содержанием ильменита FeTiO_3 .

Вещественный анализ состава пробы монацита проводили при помощи сканирующего электронного микроскопа с энергодисперсионной приставкой. По его результатам было обнаружено следующее:

1) содержание тория в монаците составляет 4.2%, а концентрация урана находится на уровне аналитического предела метода (не более 0.2%);

2) характер распределения изученных элементов по профилю минерала – равномерный;

3) пространственное распределение РЗЭ и радиогенного Pb по поверхности минерала – равномерное. При этом по результатам картирования наблюдается некоторая неоднородность в распределении Th, Si, Ca. Это позволило предположить присутствие в пробе хаттонита ThSiO_4 и чералита (смешанного фосфата кальция и тория) $(\text{Ca}, \text{Ce})(\text{Th}, \text{Ce})(\text{PO}_4)_2$.

Для подтверждения указанного предположения был проведен рентгеноструктурный анализ пробы монацита, показавший присутствие CePO_4 , LaPO_4 , ThSiO_4 .

Таким образом, исследуемые пробы можно отнести к типу монацит-1, для которого характерно:

- присутствие вростков силиката тория;
- обратная зависимость между содержанием тория и РЗЭ.

Таблица 2

Состав монацитовых концентратов

Соединение	Усредненный состав концентрата из г. Красноуфимска, мас. % [6]	Составы концентратов, использованных в исследованиях, г. Красноуфимск, мас. %	
		Проба 1	Проба 2
Сумма Ln ₂ O ₃	54.0	44.2	43.6
Оксид фосфора P ₂ O ₅	22.2	19.9	20.7
Оксид тория ThO ₂	5.4	6.1	5.9
Оксид железа Fe ₂ O ₃	3.6	3.4	1.2
Оксид алюминия Al ₂ O ₃	2.8	0.7	0.7
Оксид кремния SiO ₂	4.0	3.4	3.1
Оксид титана TiO ₂	2.2	2.9	0.7
Оксид кальция CaO	1.4	0.7	0.7
Оксид циркония ZrO ₂	3.0	0.04	0.04
Оксид урана U ₃ O ₈	0.2	0.28	0.3

Результаты исследования переработки монацита фторидно-сульфатным методом

В литературе предложено большое число методов вскрытия монацита, из них промышленное применение нашли сернок-ислотный [7] и щелочной [8]. Для усовершенствования щелочной технологии предложено использовать автоклавы [9], двустадийную обработку [10], выщелачивание получаемых гидроксидов карбонатными растворами [11]. Также имеется информация о сплавлении монацита с щелочами [12] при температуре 800 °С.

При изучении распределения элементов и по результатам рентгенофазового анализа в минералах монацита исследуемой пробы обнаружено присутствие вростков хаттонита (ThSiO₄). Присутствие таких вростков может привести к снижению степени извлечения РЗЭ при кислотной переработке и значительно увеличить время вскрытия. С учетом этого было предложено проводить обработку концентрата перед серно-кислотным вскрытием фторирующими агентами для удаления кремний-составляющей [5, 13].

В патенте [14] рассмотрена модификация серно-кислотного метода, предполагающая разложение монацита смесью серной кислоты и фторида аммония. К недостаткам данного способа можно отнести неполноту отделения кремния и продолжительность его отгонки в серной кислоте: при несвоевременном удалении диоксида кремния из-за гелеобразования процессы фильтрования и центрифугирования будут значительно осложнены.

В связи с этим нами было предложено проводить процесс в три стадии:

- 1) фторирование концентрата фторидом или бифторидом аммония (БФА);
- 2) сульфатизация продукта фторирования с отгонкой кремнефторида;
- 3) прокалка сульфатов для их глубокой очистки от кремния и фосфора.

Исследования первой стадии – фторирования монацита показали, что увеличение времени фторирования более 1.5 ч не оказывает значительного влияния на степень фторирования. Содержание кремния при этом также мало изменяется – с 0.27 до 0.20 мас. %

При температурах 170 и 250 °С степень фторирования концентрата ниже, чем в интервале от 190 до 230 °С. Это связано с тем, что температура в 170 °С, видимо, является недостаточной, а при температуре 250 °С происходит частичное разложение бифторида аммония. Наименьшее содержание кремния получено при температуре 230 °С – 0.17 мас. %.

Выявлено также, что увеличение количества БФА выше стехиометрического не оказывает значительного влияния как на степень фторирования, так и на степень отгонки кремнефторида. Расчет стехиометрически необходимого количества БФА проводили с учетом образования фторидов РЗЭ, кальция, магния и фтораммонийных соединений железа, алюминия, кремния, титана. При этом можно предположить, что при фторировании фосфатов образующаяся фосфорная кислота взаимодействует с F⁻ с получением дифторфосфорной кислоты, которая затем взаимодействует с аммиаком, образуя дифторофосфат аммония, разлагающийся при 220 °С до NH₄HPO₃F, который

плавится при 226 °С без разложения [3, 15]. При дальнейшем повышении температуры происходит удаление фосфора с образованием аммоний диамидодиокси фосфата.

Таким образом выбраны оптимальные условия фторирования:

- продолжительность процесса 1.5–2.0 ч;
- температура 210–230 °С;
- массовое соотношение концентрат : БФА = 1 : (0.9–1.0).

На второй стадии проводили сульфатизацию гидрофторированного монацитового концентрата для перевода малорастворимых фторидов РЗЭ в форму растворимых сульфатов. Для этого примерно при 300 °С проводили сульфатизацию полученного после гидрофторирования монацита порошка, при этом степень вскрытия монацита увеличивалась. Полученные сульфаты растворяли в воде, а остаточные серная и фосфорная кислоты создавали кислую среду, раствор направляли на дальнейшую очистку РЗЭ.

Проведен анализ процесса взаимодействия полученных после фторирования продуктов с серной кислотой методом термогравиметрического анализа (ТГА)/дифференциально-термического анализа (ДТА)/дифференциальной сканирующей калориметрией (ДСК). На ТГ- и ДТГ-кривых отчетливо видно два экстремума изменения массы при температурах (t) 282 и 378 °С (рис. 1), которым соответствуют эндотермические эффекты. По кривой изменения массы видна сложность и многостадийность процесса, что усложняет установление механизма реагирования по расчету изменения массы (Δm).

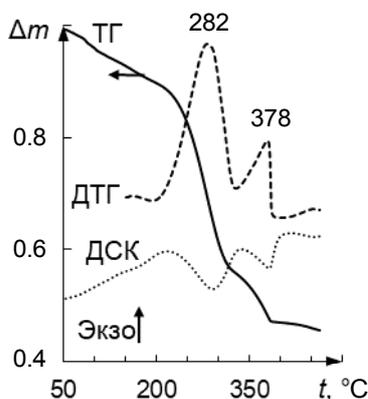
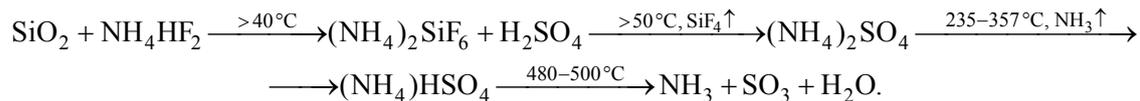


Рис. 1. Результаты термогравиметрического анализа методом ТГА/ДТА/ДСК

При фторировании кремнийсодержащей части концентрата образуется фторсиликат аммония (температура возгонки 240–320 °С). При его взаимодействии с серной кислотой может образоваться сульфат аммония с выделением SiF_4 в газовую фазу. В интервале температур 235–357 °С сульфат аммония разлагается с выделением аммиака и гидросульфата аммония, который разлагается при 500 °С с поглощением теплоты, чем можно объяснить наличие пика при 480 °С. По результатам анализа шихты того же состава, выдержанной при 280 °С в течение 2 ч, на содержание кремния было получено, что степень его отгонки составила 81.8% относительно содержания в исходном монаците, а при выдержке при 400 °С достигала 95.4%. На основании данных ТГ-анализа и анализа на содержание кремния предложена следующая схема превращений:



Содержание фосфора при данных температурах изменялось в меньшей степени. Так, при выдержке шихты при 280 °С степень отгонки фосфора была близка к нулю, а при 400 °С – достигала величины лишь 29.3%. Это указывает на то, что выделяющаяся в ходе реакций гидрофторирования монацита и сульфатизации непрореагировавшей части монацита фосфорная кислота также вступает в реакцию с компонентами расплава, образуя, в частности, малорастворимый пирофосфат тория. Это позволяет значительно снизить выход тория в раствор выщелачивания (2.7–6.2% при комнатной температуре), достигая очистки РЗЭ от тория на стадии вскрытия и выщелачивания (степень извлечения РЗЭ варьируется в интервале 90.1–99.0%). При снижении же температу-

ры выщелачивания в интервале 20–5 °С за счет разницы в зависимости растворимостей сульфатов тория и РЗЭ от температуры удается снизить степень извлечения тория в раствор до 1.0%, содержание тория в нерастворенном остатке составляет величину 5.1–8.9 мас. %. В стандартной серно-кислотной технологии торий также выделяют в виде пирофосфата, но лишь при нейтрализации и кипячении раствора выщелачивания, что ведет к потере и части РЗЭ [4].

Таким образом, выбраны оптимальные условия сульфатизации продуктов гидрофторирования монацитового концентрата:

- продолжительность процесса 3.0 ч;
- температура 300 °С;
- массовое соотношение исходный концентрат: серная кислота = 1: 1.3.

Несмотря на большую температуру стадии сульфатизации, проведение предварительного гидрофторирования монацитового концентрата позволило использовать меньшее количество серной кислоты по сравнению со стандартной сульфатной технологией (1.5–2 т серной кислоты на 1 т концентрата [4]), повысить выход РЗЭ за счет удаления кремний-составляющей монацита и оставить до 99.0% тория в нерастворенном остатке после выщелачивания.

Так как дальнейшая переработка полученных сульфатных РЗЭ-содержащих растворов выщелачивания возможна по уже известным условиям и технологиям, были приняты следующие стадии переработки монацитовых концентратов:

- последовательное разложение монацитового концентрата бифторидом аммония и концентрированной серной кислотой в шнековых реакторах;
- выщелачивание получаемого после сульфатизации порошкообразного продукта, последовательная гидролитическая доочистка РЗЭ: сначала осаждение гидроксидов примесных элементов (U, Th, Fe, Zr, Ti, Al), далее – осаждение гидроксидов или карбонатов РЗЭ;
- растворение полученных гидроксидов или карбонатов РЗЭ в азотной кислоте с получением раствора суммы нитратов РЗЭ, пригодного для экстракционной переработки;
- экстракционное выделение групповых концентратов и индивидуальных РЗЭ с применением центробежных экстракторов.

С учетом суммарной массы концентратов, хранящихся на базе «УралМонацит», в качестве производительности по исходному сырью принята величина 8000 т/год. Для данной производительности электроэнергетические затраты составили 4.2 кВт/ч в расчете на 1 кг редкоземельных оксидов. Для сравнения, в работе [16] приведены расчеты стоимости диоксида тория при его извлечении из монацита по серно-кислотной технологии, при этом электроэнергетические затраты составили величину 12.5–20.9 кВт/ч на кг ThO₂ в зависимости от масштабов производства.

Заключение

Таким образом, на основании проведенных экспериментов определено, что увеличение продолжительности процесса фторирования монацита бифторидом аммония более 1.5 ч слабо влияет на изменение степени фторирования. Установлены оптимальные параметры стадий гидрофторирования и сульфатизации монацитового концентрата (количество реагентов, продолжительность, температура). Получено, что проведение сульфатизации продукта фторирования монацита бифторидом аммония возможно в две стадии: при температурах 280–300 °С с отгонкой кремния и при температуре более 400 °С для более глубокой очистки.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Зеликман А.Н. *Металлургия редкоземельных металлов, тория и урана*. – М.: Metallurgizdat, 1960.
2. Репина С.А., Попова В.И., Баженова Л.Ф. // *Урал. минерал. сб.* – 2008. – № 15. – С. 17–26.
3. Раков Э.Г., Мельниченко Е.И. // *Успехи химии*. – 1984. – Т. LIII. – Вып. 9. – С. 1463–1492.
4. Поляков Е.Г., Нечаев А.В., Смирнов А.В. *Металлургия редкоземельных металлов*. – М.: Metallurgizdat, 2018.
5. Муслимова А.В., Буйновский А.С., Молоков П.Б., Софронов В.Л. // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2019. – Т. 330. – № 2. – С. 95–107.
6. Медведев В.П. и др. // *Вестн. Дальневост. отд. РАН*. – 2016. – № 1. – С. 53–57.
7. Demol J., Ho E., and Senanayake G. // *Hydrometallurgy*. – 2018. – V. 179. – P. 253–267.
8. Быховский Л.З., Потанин С.Д., Котельников Е.И. и др. // *Минерал. сырье*. – № 31. – М.: ВИМС, 2016.
9. Abdel-Rehim A.M. // *Hydrometallurgy*. – 2002. – Т. 67. – № 1. – P. 9–17.
10. Kumari A., Jha M.K., Hait J., et al. // *J. Indian Chem. Soc.* – 2013. – V. 90. – P. 2105–2110.
11. El-Nadi Y.A., Daoud J.A., and Aly H.F. // *Int. J. Mineral Process.* – 2005. – V. 76. – P. 101–110.

12. Goswami D. and Das A. // J. Radioanal. Nucl. Chem. – 2003. – V. 258. – No. 2. – P. 249–254.
13. Софронов В.Л. и др. // Патент 2667932 Россия, кл. C22B. – № 2017130644. Заявл. 29.08.2017. Опубл. 25.09.2018.
14. Акимов Д.В. и др. // Патент 2549412 Россия, кл. C01F6 C22B. – № 2013145917/05. Заявл. 14.10.2013. Опубл. 27.04.2015.
15. Лапташ Н.М., Кайдалова Т.А. // Журн. неорган. химии. – 1996. – Т. 41. – № 4. – С. 557–559.
16. Salehuddin A.H.J.M., Ismail A.F., Bahri C.N.A.C.Z., and Aziman E.S. // Nucl. Eng. Technol. – 2019. – V. 51. – No. 2. – P. 631–640.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

Северский технологический институт Национального исследовательского ядерного университета «МИФИ», г. Северск, Россия

Муслимова Александра Валерьевна, к.х.н., доцент каф. химии и технологии материалов современной энергетики СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: avmuslimova@mephi.ru;

Софронов Владимир Леонидович, д.т.н., профессор СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: vlsofronov@mephi.ru;

Буйновский Александр Сергеевич, д.т.н., профессор СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: asbujnovskij@mephi.ru;

Попова Ксения Евгеньевна, студентка СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: ksenya.ksenia.popova@mail.ru.

A.V. MUSLIMOVA, V.L. SOFRONOV, A.S. BUINOVSKY, K.E. POPOVA

INVESTIGATION OF MONAZITE PROCESSING BY FLUORIDE-SULFATE METHOD

Monazite is a valuable source of rare earth elements (REE), but the concentrate is not currently processed in Russia. This is due to the lack of effective and cost-effective technologies, as well as radioecological problems that arise during its processing. This paper considered a method for processing monazite in three stages: at the first stage, the concentrate is fluorinated with ammonium bifluoride (AB), and at the second stage, the products are sulfated with hydrofluorination products to convert low – soluble REE fluorides into the form of soluble sulfates. In the third stage, was studying the possibility of deep purification of silicon and phosphorus obtained by calcination. Thermogravimetric analysis of the process of sulfatization of the monazite concentrate hydrofluorination product was performed. As a result of the study, optimal conditions for fluoridation were identified. It is found that the sulfatization of the monazite fluorination product can be carried out in two stages: at temperatures of 280–300 °C with silicon distillation and at a temperature of more than 400 °C for deep purification.

Keywords: monazite, monazite concentrate, rare earth elements, thorium, opening, ammonium hydrodifluoride, sulfuric acid.

Seversk Technological Institute National Research Nuclear University «MEPHI», Seversk, Russia

Muslimova Alexandra Valeryevna, Candidate of Chemical Sciences, Associate Professor of the Department of Chemistry and Technology of Modern Energetics Materials Department STI NRNU «MEPHI», e-mail: avmuslimova@mephi.ru;

Sofronov Vladimir Leonidovich, Doctor of Technical Sciences, Professor STI NRNU «MEPHI», e-mail: vlsofronov@mephi.ru;

Buinovsky Alexander Sergeevich, Doctor of Technical Sciences, Professor STI NRNU «MEPHI», e-mail: asbujnovskij@mephi.ru;

Popova Ksenia Evgenievna, Student STI NRNU «MEPHI», e-mail: ksenya.ksenia.popova@mail.ru

УДК 539.122.16:543.429.3

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/73

Т.Г. НИКИШКИН

РАЗРАБОТКА МОДЕЛИ ПОРТАТИВНОГО СЦИНТИЛЛЯЦИОННОГО ДЕТЕКТОРА ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЯ НА ОСНОВЕ ТВЕРДОТЕЛЬНЫХ МИКРОПИКСЕЛЬНЫХ ЛАВИННЫХ ФОТОДИОДОВ *

Исследована возможность разработки портативного детектора гамма-излучения с чувствительным элементом на основе связки твердотельный фотодетектор – сцинтиллятор. Проведены исследования характеристик и возможности применения кремниевых фотодиодов в качестве фотоприемников для сцинтилляционных детекторов в различных прикладных задачах регистрации гамма-излучения.

Ключевые слова: гамма-излучение, твердотельный детектор, сцинтиллятор, микропиксельные лавинные фотодиоды, твердотельный фотоэлектронный умножитель, кремниевый фотоумножитель, портативный детектор, микропиксельный лавинный фотодиод, сцинтилляционный детектор.

Введение

В науке и технике широко применяются детекторы для регистрации нейтронного (n) и гамма (γ)- излучений. Данные детекторы применяются для измерения характеристик ядерных материалов и радиоактивных веществ, а также для проведения ядерно-физических экспериментов.

Одним из наиболее распространенных типов детекторов являются детекторы на базе сцинтилляционных материалов, в основу работы которых положено преобразование энергии частиц в энергию пропорциональных световых вспышек с определенным спектром высвечивания и последующей регистрации фотонов фотоприемником. Интерес к сцинтилляционным детекторам связан с их высокой эффективностью и оптимальной разрешающей способностью при относительной простоте устройства. Поэтому при решении многих научных и практических задач сцинтилляционные спектрометры успешно конкурируют с полупроводниковыми, обладающими высокой разрешающей способностью, но существенно меньшей эффективностью регистрации, а методы спектрометрии, построенные на основе сцинтилляционного принципа регистрации все еще сохраняют значительный потенциал для своего совершенствования.

В общем случае сцинтилляционный детектор состоит из сцинтиллятора, который выдает вспышку света под действием ионизирующего излучения, и фотоприемника для регистрации и преобразования этой вспышки в электрический сигнал для дальнейшей обработки. Большинство используемых в экспериментах сцинтилляторов имеют максимум свечения в видимой области спектра с длиной волны от 415 до 480 нм. Самыми распространенными фотоприемниками являются вакуумные фотоэлектронные умножители (ФЭУ). Достоинство их заключается в высокой чувствительности и в том, что максимум чувствительности совпадает с максимумом длины волны свечения сцинтиллятора. Однако ФЭУ имеет ряд существенных недостатков, таких, как необходимость высоковольтного питания, большие габариты, высокая стоимость и необходимость магнитного экранирования [1].

В настоящее время в качестве альтернативы фотоэлектронным умножителям существуют новые типы фотоприемников, которые лишены данных недостатков. Их можно разделить на две большие группы: фотодетекторы без внутреннего усиления заряда (PIN-фотодиоды), фотодетекторы с внутренним усилением заряда (лавинные фотодиоды (ЛФ) и микропиксельные лавинные фотодиоды (МЛФД)) [2].

К недостаткам PIN-фотодиодов можно отнести необходимость использования внешнего усилителя, что из-за шумов самого усилителя не позволяет зарегистрировать вспышку света с количеством фотонов <1000 .

МЛФД превосходят фотоэлектронные умножители по целому ряду параметров: низкое напряжение питания, меньшая потребляемая мощность, высокая надежность и стабильность характеристик, нечувствительность к магнитным полям, высокая линейность световой характеристики в широком диапазоне интенсивности светового потока. Несмотря на их очевидные преимущества, они пока не получили широкого распространения, более того, не все специалисты знают об их су-

* Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ в рамках гранта на выполнение НИР № 13452ГУ/2018.

ществовании. Однако в последнее время многие образцы таких фотодиодов стали коммерчески доступны и могут стать заменой традиционных ФЭУ.

Исследование характеристик микропиксельных лавинных фотодиодов с точки зрения регистрации ионизирующего излучения

Регистрация ядерного излучения основана на физических и химических эффектах, которые возникают при взаимодействии ядерного излучения с веществом. На таких эффектах базируются методы регистрации и обработки гамма-излучения.

К созданию новых детекторов чаще всего предъявляются противоречивые требования. Современные детекторы должны обладать максимальным быстродействием, высокой эффективностью и высоким энергетическим разрешением, имея при этом минимальные размеры и невысокую конечную стоимость.

Для разработки модели детектора было решено использовать полупроводниковые микропиксельные лавинные фотодиоды, так называемые твердотельные ФЭУ, которые существенно превосходят классические фотоэлектронные умножители по целому ряду параметров и являются перспективными для разработки сцинтилляционных детекторов (табл. 1). По сравнению с ФЭУ, фотодиоды гораздо прочнее и компактнее, имеют очень высокий коэффициент усиления, высокую квантовую эффективность, работают от низкого напряжения питания, не подвержены воздействию внешних электрических полей и имеют значительно меньшую стоимость [3].

Таблица 1

Сравнительные характеристики фотодетекторов [2]

Параметр	МЛФД	ФЭУ
Эффективность регистрации света с длиной волны, %		
470 нм	15	20
590 нм	25	7–15
670 нм	15	<1
Усиление	10^5 – 10^6	10^6 – 10^8
Фактор шума, ENF	1.1–1.3	1.15–4
Пороговая чувствительность, фотоэлектроны	1	1
Разброс времени срабатывания, нс	0.3	1
Динамический диапазон	10^2 – 10^4	10^2 – 10^3
Напряжение смещения, В	25–80	1000–2000
Работа в магнитном поле	Можно	Нельзя

Микропиксельные лавинные фотодиоды являются новым направлением для спектрометрии и приборостроения. МЛФД – это пиксельное устройство, где каждый пиксель или микроячейка представляет собой последовательную комбинацию лавинного фотодиода и гасящего резистора. МЛФД позволяет регистрировать отдельные заряженные частицы. Однако не все падающие фотоны могут вызвать срабатывание микроячейки. Поэтому для фотодиодов введено понятие эффективности детектирования фотонов (Photodetection Efficiency – PDE), которое определяется количеством фотонов, вызывающих срабатывания микроячеек, к общему числу падающих фотонов. Иными словами, PDE – это вероятность того, что падающий на фотоприемную площадку МЛФД фотон будет зарегистрирован. Для модели разрабатываемого детектора был выбран МЛФД серии С – 60035, квантовая эффективность которого достигает 41%. При использовании детекторов на основе МЛФД будут обеспечены их одинаковые характеристики при одинаковом напряжении питания.

Главным источником шума в МЛФД является темновой счет, сильно зависящий от температуры. Высокое усиление МЛФД делает шум электроники незначительным по сравнению с данным шумом. Он возникает вследствие спонтанного срабатывания микропикселей от носителей заряда, возникающих в чувствительной области микроячеек в отсутствие светового воздействия, и характеризуется таким параметром, как скорость темнового счета (число импульсов в секунду). Для выбранного МЛФД максимальный темновой ток равен 1.7 мкА [4].

Выходной сигнал МЛФД пропорционален числу сработавших микроячеек и таким образом зависит от числа падающих фотонов. Значение динамического диапазона МЛФД определяется числом микропикселей, количество которых составляет 18980. По величине динамического диапа-

зона, МЛФД ($\approx 1.9 \cdot 10^4$) опережают стандартные ФЭУ ($\approx 10^3$) и могут составлять им достойную конкуренцию при выборе фотоприемника для различных прикладных физических задач.

Временные характеристики МЛФД определяются временем гейгеровского разряда и временем восстановления микроячейки. В системе сцинтилятор – МЛФД временные характеристики выходного импульса также зависят от типа сцинтиллятора и быстродействия схемы усиления сигнала.

Принцип работы твердотельного сцинтилляционного детектора

Принцип работы сцинтилляционного детектора заключается в следующем. При попадании ионизирующего излучения в рабочий объем сцинтилляционного кристалла, в нем образуются электроны и дырки, которые под действием электрического поля, приложенного к электродам, двигаются в направлении электродов, собираются на них, и это приводит к возникновению электрического сигнала в цепи. Образующиеся при этом импульсные сигналы напряжения или тока используются для идентификации ионизирующего излучения. Число возникших электрон-дырочных пар практически полностью зависит только от энергии, потерянной ионизирующей частицей в рабочем объеме детектора, и не зависит от каких-либо других характеристик этой частицы.

Это условие позволяет обеспечить линейную связь между амплитудой импульса и энергией частицы, потерянной в объеме детектора. Для обеспечения максимальной эффективности разделения светогенерированных носителей заряда и полного обеднения i -слоя кремниевое микропиксельное лавинное детектора на его контакты необходимо подать обратное смещение порядка 24.2–24.7 В.

Фотоприемник в виде микропиксельного лавинного фотодетектора с активной областью 6×6 мм позволяет регистрировать видимое излучение электромагнитного спектра в диапазоне от 300 до 950 нм. Максимум спектральной чувствительности фотоприемника находится в диапазоне от 430 до 470 нм, что позволяет использовать его практически с любым сцинтиллятором. Максимальная квантовая эффективность фотоприемника составляет 41% при рабочем напряжении от 24.2 до 24.7 В, а темновой ток при этом не превышает 1750 нА [4].

Сцинтилляционный кристалл германата висмута ВГО обладает большой плотностью и, следовательно, малой радиационной длиной $X_0 = 1.2$ см, не гигроскопичен, легко обрабатываем. Спектр его излучения с максимумом 480 нм соответствует чувствительности фотодиодов. Сцинтиллятор ВГО обладает высокой прозрачностью, длина затухания достигает 3.5–4 м. Время свечения составляет 300 нс, но сильно зависит от температуры, что, пожалуй, является его единственным недостатком [5].

На рис. 1 представлен разрез чувствительного элемента сцинтилляционного детектора, где 1 – твердотельный детектор на основе микропиксельного лавинного фотодиода с размером активной области 6×6 мм, 2 – сцинтилляционный кристалл ВГО размерами 10×10 мм, соединенный с активной областью твердотельного детектора оптически прозрачным клеем [6].



Рис. 1. Чувствительный элемент детектора в разрезе

На рис. 2 представлена функциональная схема основных составляющих сцинтилляционного твердотельного детектора. К основным составляющим детектора ионизирующего излучения на основе твердотельного фотоумножителя относится детектор ионизирующего излучения, предназначенный для регистрации низкоэнергетического и высокоэнергетического гамма-излучения, состоящий из чувствительного элемента в виде полупроводникового микропиксельного лавинного фотодиода размером активной области 6×6 мм и квантовой эффективностью 41%, соединенный поверхностью активной области со сцинтилляционным кристаллом ВГО 10×10 мм оптически прозрачным клеевым веществом. Устройство отличается тем, что содержит предварительный усилитель, быстродействующий малошумящий дифференциальный операционный усилитель с широкой

полосой пропускания, помещенный в изолированный корпус с выходом усилителя для подключения ко входу амплитудно-цифрового преобразователя (АЦП), и блок питания.

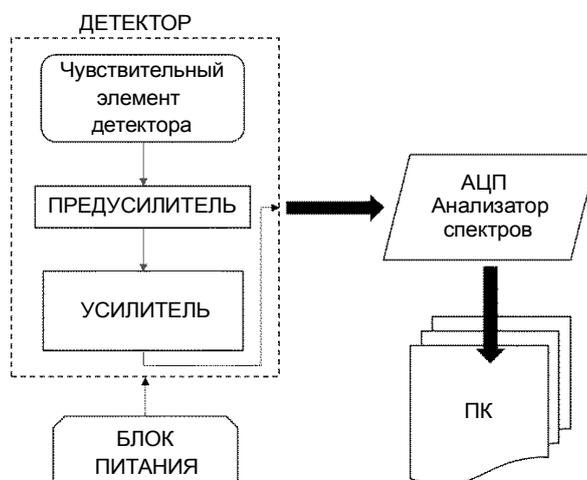


Рис. 2. Функциональная схема основных составляющих сцинтилляционного твердотельного детектора

Экспериментальная часть

Для оценки работоспособности собранной схемы был проведен эксперимент по использованию разработанного макета детектора на восприимчивость и отклик к ионизирующему излучению. Для съема аналогового сигнала макет детектора был подключен к осциллографу Tektronix TDS 2024. Далее вблизи детектора устанавливались образцовые спектрометрические гамма-источники (ОСГИ) Cs-137 и Ba-133. Эксперимент показал, что макет портативного переносного детектора гамма-излучения позволяет регистрировать ионизирующее излучение от различных гамма-источников. Был проведен эксперимент по использованию разработанного макета детектора в режиме интегрального счета гамма-квантов. Вблизи детектора устанавливались следующие образцовые спектрометрические гамма-источники Cs-137 и Am-241. Макет детектора подключался к дискриминатору и затем сигнал подавался на счетчик импульсов. В табл. 2 приведены характеристики образцовых спектрометрических гамма-источников и полученная скорость счета макета детектора.

Таблица 2

Характеристики ОСГИ и скорость счета макета детектора

Источник	Активность, Бк	Энергия гамма-квантов, кэВ	Скорость счета, имп./с
Cs-137	8500	661	245
Am-241	10000	59	113

Таким образом, по результатам эксперимента были получены следующие данные:

1. ОСГИ – Am-241 ($A = 10000$ Бк; $k = 0.36$):

$$N_{\pi} = \frac{1000 \cdot 0.36 \cdot 1.1}{4 \cdot 3.14 \cdot 0.5^2} = 1146 \text{ квант/с}, \quad (1)$$

$$\mathfrak{E}_{Am} = \frac{113}{1146} = 0.10. \quad (2)$$

2. ОСГИ – Cs-137 ($A = 8500$ Бк, $k = 0.85$):

$$N_{\pi} = \frac{8500 \cdot 0.85 \cdot 1.1}{4 \cdot 3.14 \cdot 0.5^2} = 2300 \text{ квант/с}, \quad (3)$$

$$\mathfrak{E}_{Cs} = \frac{245}{2300} = 0.11. \quad (4)$$

Из эксперимента видно, что макет портативного переносного детектора гамма-излучения позволяет регистрировать ионизирующее излучение от различных гамма-источников.

Заключение

Выполнен обзор существующих перспективных типов фотоприемников для детекторов гамма-излучения, в том числе сцинтилляционных детекторов. Исследованы характеристики микропиксельных лавинных фотодиодов с точки зрения регистрации ионизирующего излучения. Проведен анализ возможных радиоэлектронных схем включения МЛФД.

На основании проведенных научно-исследовательских и опытно-конструкторских работ была разработана радиоэлектронная схема макета портативного детектора гамма-излучения, включая блок чувствительного элемента детектора, блок предусилителя, блок усилителя сигнала.

Был собран лабораторный образец-макет детектора на основе МЛФД MicroFC-60035 с активной областью 6×6 мм и сцинтиллятором BGO 10×10 мм, предусилителем на основе операционного усилителя AD8132, усилителем AD8051, многоканальным анализатором MD-198. Проведено его тестирование на восприимчивость к ионизирующему излучению от образцовых спектрометрических гамма-источников Ba-133, Am-241 и Cs-137. Установлено, что лабораторный образец регистрирует низкоэнергетическое и высокоэнергетическое гамма-излучения от образцовых спектрометрических гамма-источников. По расчетам эффективность регистрации лабораторного образца-макета детектора составила ~ 10%. Таким образом, была оценена возможность использования макета детектора в качестве регистратора ионизирующего излучения.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Мусиенко Ю. В. // Семинар ОФВЭ ИЯИ РАН. – 2011.
2. Шумаков А. В., Свиридов А. С., Колесников С. В. // Атомная энергия. – 2011. – Т. 110. – № 3.
3. Renker D. and Lorenz E. // JINST. – 2009. – V. 4. – P. 289–295.
4. Каталог фирмы «SensL, C-Series». Технические данные микропиксельных лавинных фотодиодов (SiPM) фирмы SensL серии C. // <http://www.sensl.com/downloads/ds/DS-MicroCseries.pdf>.
5. Каталог фирмы «Азимут Фотоникс». Технические данные сцинтиллятора (BGO) производства Saint-Gobain Crystals. // <http://www.azimp.ru/catalogue/Scintillators-crystals1/32/>.
6. Th eremino. SiPM. Silicon Photomultipliers for radiation detection // Th eremino System Rev.3. – 2015.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

Национальный исследовательский Томский политехнический университет,
г. Томск, Россия

Никишкин Тимофей Геннадьевич, аспирант ИЯТШ НИ ТПУ, e-mail: timofei.nikishkin@gmail.com.

T.G. NIKISHKIN

DEVELOPMENT OF A MODEL OF PORTABLE SCINTILLATION DETECTOR OF GAMMA RADIATION BASED ONMPCC (SIPM)

The possibility of developing a portable gamma radiation detector with a sensitive element based on a solid-state photodetector-scintillator bundle. Investigations of the characteristics and the possibility of using silicon photodiodes as photodetectors for scintillation detectors in various applied problems of detecting gamma radiation is presented.

Keywords: *gamma radiation, solid-state detector, scintillator, micropixel avalanche photodiodes, solid-state photomultiplier tube, silicon photomultiplier, portable detector, micropixel avalanche photodiode, scintillation detector.*

National Research Tomsk Polytechnic University, Tomsk, Russia

Nikishkin Timofey Gennadevich, Postgraduate Student of Institute of Nuclear Physics and Technology of NR TPU, e-mail: timofei.nikishkin@gmail.com.

УДК 004.09+622.2

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/78

К.Е. ПОПОВА¹, А.В. ГЛАДЫШЕВ², С.Н. НОСКОВА¹, М.Д. НОСКОВ¹

ПРИМЕНЕНИЕ ЧИСЛЕННОГО МОДЕЛИРОВАНИЯ ДЛЯ ОЦЕНКИ ЭФФЕКТИВНОСТИ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ ДОПОЛНИТЕЛЬНЫХ СКВАЖИН ПРИ ДОБЫЧЕ УРАНА МЕТОДОМ ПОДЗЕМНОГО ВЫЩЕЛАЧИВАНИЯ

Рассмотрено применение дополнительных рядов технологических скважин в области с высокой продуктивностью для повышения эффективности добычи урана способом скважинного подземного выщелачивания. Для различных вариантов схем вскрытия приведены результаты расчетов геотехнологических показателей отработки эксплуатационных блоков. На основе сравнения полученных результатов сделана оценка эффективности применения дополнительных скважин.

Ключевые слова: математическое моделирование, скважинное подземное выщелачивание, добыча урана, геотехнологические показатели, схема вскрытия.

Введение

Скважинное подземное выщелачивание (СПВ) является перспективным методом добычи урана [1, 2]. СПВ основывается на воздействии на залежь полезных ископаемых через систему технологических скважин. Через нагнетательные скважины осуществляется нагнетание в залежь выщелачивающих растворов для перевода урана в раствор. Продуктивные растворы, содержащие растворенный уран, извлекаются через откачные скважины на поверхность, где подвергаются дальнейшей переработке. В России способ подземного выщелачивания применяется при разработке экзогенных месторождений урана палеодолинного типа. Эти месторождения характеризуются сложными горно-геологическими условиями, рудные тела имеют сложную морфологию с неоднородным распределением продуктивности. Применение стандартных схем расположения технологических скважин приводит к неравномерности темпов отработки: бедные участки эксплуатационных блоков обрабатываются раньше, чем участки с высокой продуктивностью. Это повышает эксплуатационные затраты на стадии доработки эксплуатационных блоков. Снижение себестоимости добычи урана может быть достигнуто путем применения специальных систем вскрытия залежи. Для оценки эффективности применения различных систем вскрытия целесообразно использовать методы численного моделирования [3–6]. В настоящей работе с помощью численного моделирования исследуется применение дополнительных рядов скважин в области с высокой продуктивностью при отработке эксплуатационного блока поперечной рядной системой технологических скважин.

Методика проведения исследований

Исследование проводилось с помощью специализированной информационно-моделирующей системы «Курс», разработанной в СТИ НИЯУ МИФИ [7]. Система «Курс» позволяет создавать геолого-технологические цифровые модели эксплуатационных блоков, включающие в себя модели геологической среды и технологических объектов, а также осуществлять моделирование процесса методом скважинного подземного выщелачивания. Геотехнологические расчеты выполняются с учетом гидрологических и геологических особенностей строения продуктивного горизонта, режимов работы технологических скважин и составов нагнетаемых растворов.

В настоящей работе рассматривается два варианта схемы вскрытия (рис. 1) модельного технологического блока. В первом случае для вскрытия блока применяется классическая поперечная рядная схема со следующими параметрами: расстояние между рядами откачных и нагнетательных скважин – 40 м, расстояние между нагнетательными и откачными скважинами в ряду – 30 м (рис. 1, а). Количество технологических скважин равняется 32 (20 нагнетательных и 12 откачных). Во втором случае в области с высокой продуктивностью расстояние между рядами откачных и нагнетательных скважин сокращается вдвое. При этом в схему добавляется 9 нагнетательных и 6 откачных скважин, располагающихся в области с высокой продуктивностью (рис. 1, б). Эксплуатационный блок имеет следующие геотехнологические параметры: площадь – 28.8 тыс. м², эффективная мощность – 10 м, запас урана – 157.5 т, горно-рудная масса – 529.8 тыс. т. Продуктивность в пределах блока изменяется в диапазоне от 0.3 до 10 кг/м² при среднем значении 5.47 кг/м².

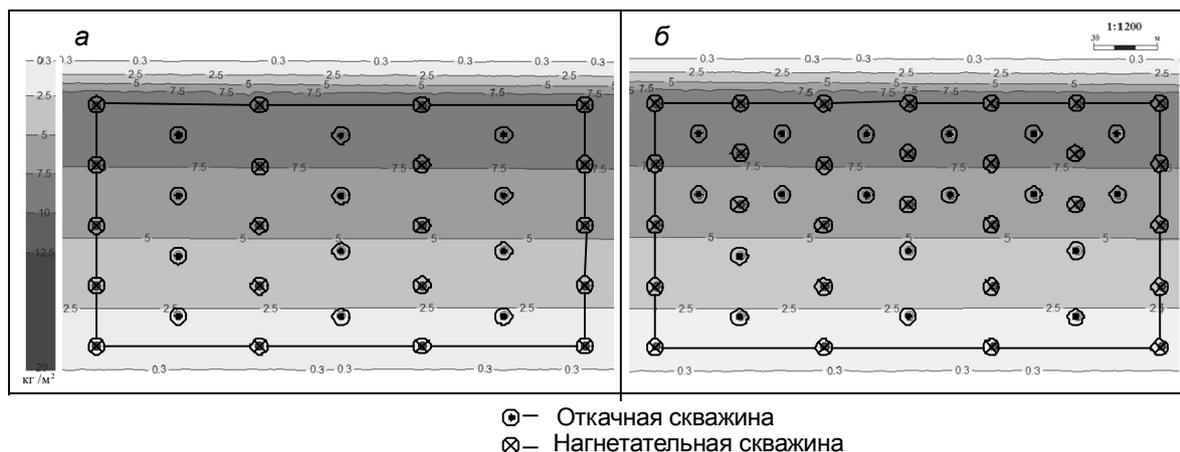


Рис. 1. Исходное распределение продуктивности ($\text{кг}/\text{м}^2$) и расположение технологических скважин в эксплуатационном блоке в случае классической рядной схемы (а) и схемы со сгущением рядов в области с высокой продуктивностью (б)

Моделирование работы эксплуатационного блока проводилось при постоянной разнице напоров в откачных и нагнетательных скважинах при соблюдении баланса темпов нагнетания и откачки. Вследствие разного количества технологических скважин дебиты блока были различны. В первом случае среднее значение дебита откачной скважины составило $5 \text{ м}^3/\text{ч}$ (суммарный дебит по блоку – $60 \text{ м}^3/\text{ч}$), а во втором случае – $6.55 \text{ м}^3/\text{ч}$ ($117.9 \text{ м}^3/\text{ч}$). Средняя концентрация кислоты в выщелачивающих растворах составляла $12.5 \text{ г}/\text{л}$. Моделирование осуществлялось до момента достижения 80% извлечения урана из контура эксплуатационного блока.

Результаты и их обсуждение

Результаты расчетов распределения кислоты и урана в технологических растворах продуктивного горизонта для двух вариантов схемы вскрытия на момент извлечения 80% урана представлены на рис. 2.

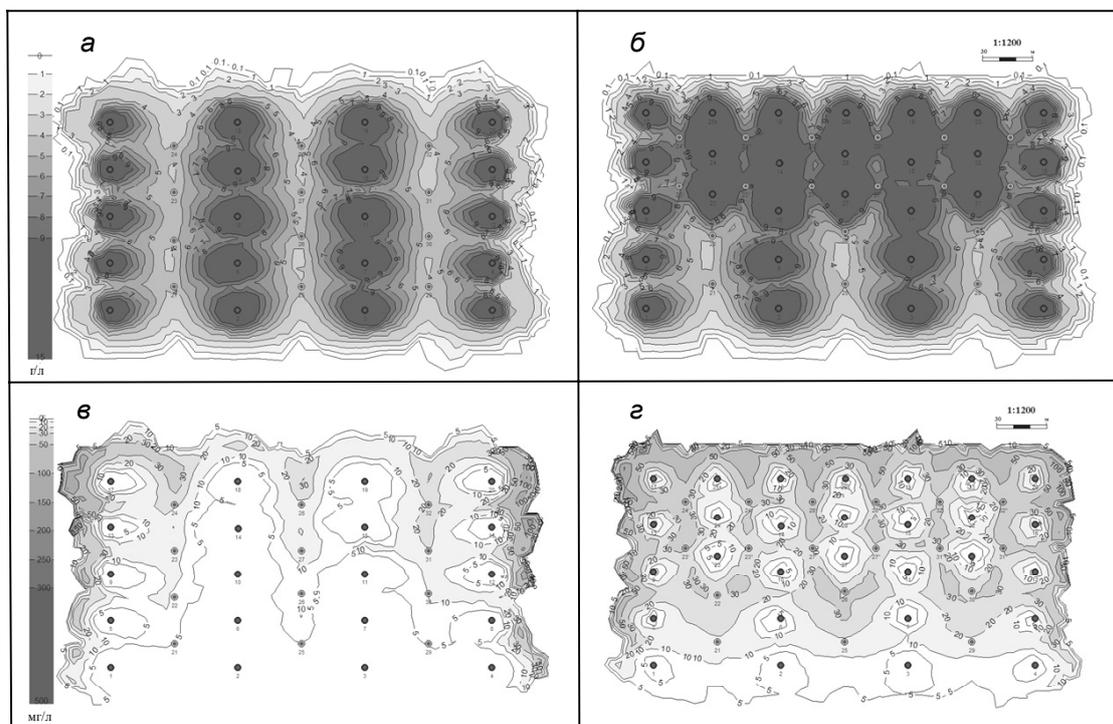


Рис. 2. Распределение в продуктивном горизонте кислоты (а, б) и урана (в, г) при отработке блока классической рядной схемой (а, в) и рядной схемой с дополнительными скважинами (б, г)

Из сравнения рис. 2, *а* и *б* видно, что увеличение количества технологических скважин ведет к росту концентрации кислоты в области с высокой продуктивностью. Это приводит к интенсификации растворения урановых минералов и возрастанию концентрации урана в технологических растворах продуктивного горизонта, как показано на рис. 2, *в* и *г*. Распределение продуктивности на момент извлечения 80% урана представлено на рис. 3. Видно, что применение дополнительных скважин приводит к более равномерной отработке блока и уменьшению остаточного урана в области с высокой продуктивностью на завершающей стадии отработки.

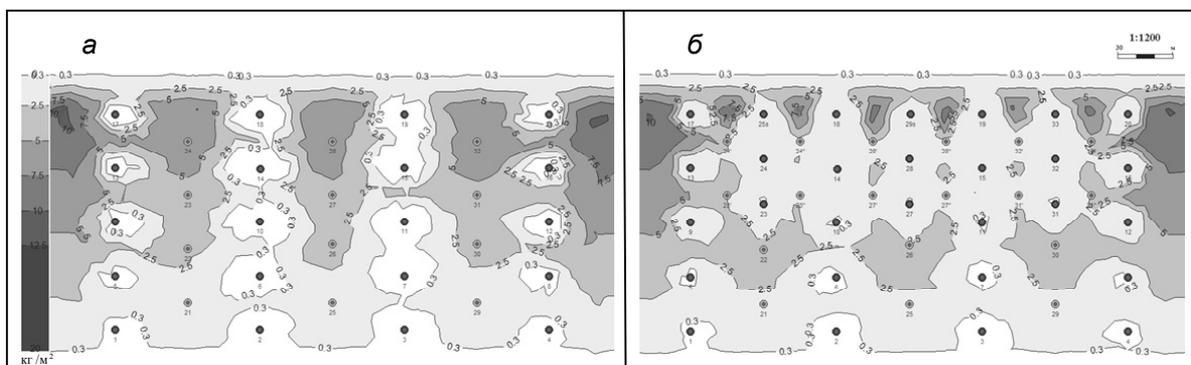


Рис. 3. Распределение продуктивности на момент 80% извлечения урана при отработке блока классической рядной схемой (*а*) и рядной схемой с дополнительными скважинами (*б*)

На рис. 4 приведены временные зависимости концентрации урана в продуктивных растворах и массы извлеченного урана для различных вариантов схемы вскрытия. Применение дополнительных скважин приводит к снижению концентрации урана в продуктивных растворах (рис. 4, *а*). Вместе с тем в результате увеличения суммарного дебита блока происходит существенное возрастание темпов добычи урана. Таким образом, достижение 80%-й степени извлечения урана из технологического блока происходит значительно быстрее, как показано на (рис. 4, *б*).

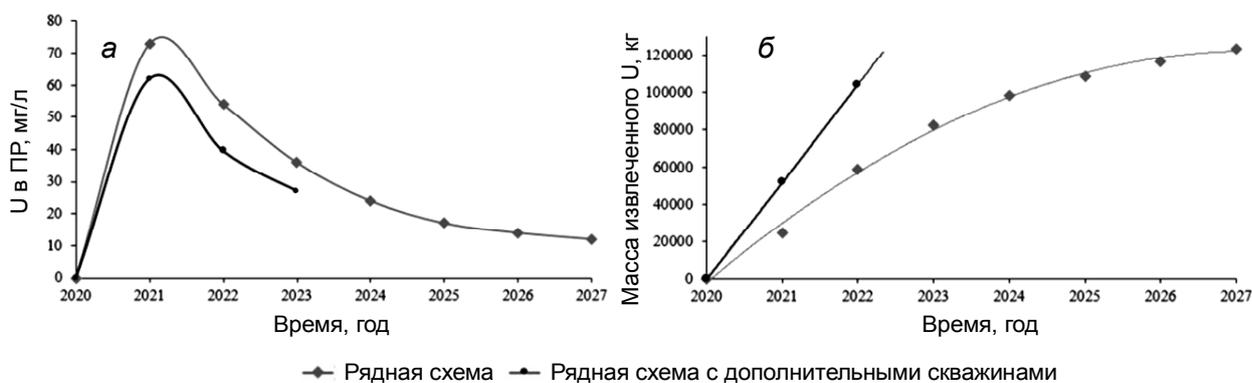


Рис. 4. Зависимости от времени концентрации урана в продуктивных растворах (*а*) и массы извлеченного урана (*б*) для различных вариантов схемы вскрытия

Геотехнологические показатели отработки технологического блока на момент извлечения 80% урана для двух вариантов схемы вскрытия представлены в таблице. На основе приведенных данных можно сделать вывод, что увеличение количества технологических скважин в области высокой продуктивности приводит к повышению эффективности отработки технологического блока (сокращению времени отработки, уменьшению отношения жидкое/твердое (Ж/Т), снижению затрат кислоты и увеличению содержания урана в продуктивных растворах и др.). В результате происходит снижение эксплуатационных расходов за счет сокращения затрат на реагенты, электроэнергию и прочие расходы, необходимые для работы блока. Интегральная оценка экономических показателей отработки технологического блока показывает, что снижение эксплуатационных расходов приводит к уменьшению себестоимости добычи урана несмотря на увеличение капитальных затрат при сооружении дополнительных скважин.

**Основные геотехнологические показатели отработки технологического блока
для степени извлечения урана 80%**

Показатель	Классическая поперечная рядная схема	Рядная схема с дополнительными скважинами
Концентрация U в продуктивных растворах на момент завершения отработки, мг/л	11.76	27.47
Концентрация кислоты в продуктивных растворах на момент завершения отработки, г/л	4.4	7.78
Масса извлеченного U, т	126	126
Время отработки, лет	7.42	2.67
Отношение Ж/Т, м ³ /т	7.36	5.21
Расход кислоты, тыс. т	32.96	14.5
Кислотоемкость, кг/т	62.22	27.37
Удельный расход кислоты, кг/кг	261.38	114.07
Средняя концентрация U в продуктивных растворах, мг/л	32.33	46.07
Средняя концентрация кислоты в продуктивных растворах, г/л	4.06	7.25

Выводы

Результаты геотехнологических расчетов отработки модельного блока показывают, что увеличение количества технологических скважин в области с высокой продуктивностью приводит к повышению равномерности отработки рудного тела. При этом происходит увеличение темпов добычи урана, уменьшение расхода кислоты и сокращение времени отработки блока. Таким образом, сооружение дополнительных технологических скважин в области с высокой продуктивностью можно рассматривать как способ повышения эффективности разработки месторождения урана методом СПВ и снижения себестоимости добычи.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Белецкий В.И., Богатков Л.К., Волков Н.И. и др. Справочник по геотехнологии урана. – М.: ЭнергATOMиздат, 1997. – 672 с.
2. Акимова И.Д., Бабкин А.С., Воронцова О.М. и др. Геотехнология урана (российский опыт). – М.: КДУ, 2017. – 576 с.
3. Гуцул М.В., Кеслер А.Г., Носкова С.Н., Носков М.Д. // Изв. вузов. Физика. – 2013. – Т. 56. – № 4/2. – С. 109–113.
4. Бабкин А.С., Гуцул М.В., Кеслер А.Г. и др. // Изв. вузов. Физика. – 2015. – Т. 58. – № 12/3. – С. 3–8.
5. Гусаров М.А., Носков М.Д. // Изв. вузов. Физика. – 2017. – Т. 60. – № 11/2. – С. 11–14.
6. Шрайнер А.Э., Носков М.Д., Носкова С.Н. // Изв. вузов. Физика. – 2018. – Т. 61. – № 12/2. – С. 140–144.
7. Носков М.Д., Гуцул М.В., Истомин А.Д. и др. // Горный информационно-аналитический бюллетень. – 2012. – № 7. – С. 361–366.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

¹ Северский технологический институт Национального исследовательского ядерного университета «МИФИ», г. Северск, Россия

² АО «Хиагда», Баунтовский эвенкийский район, поселок Багдарин, Республика Бурятия, Россия

Попова Ксения Евгеньевна, студентка СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: ksenya.ksenya.popova@mail.ru;

Гладышев Андрей Владимирович, генеральный директор АО «Хиагда», e-mail: gladishev.a.v@hiagda.ru;

Носкова Светлана Николаевна, мл. науч. сотр. СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: snnoskova@mephi.ru;

Носков Михаил Дмитриевич, д.ф.-м.н., профессор СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: md_noskov@mail.ru.

K.E. POPOVA¹, A.V. GLADYSHEV², S.N. NOSKOVA¹, M.D. NOSKOV¹

**APPLICATION OF NUMERICAL SIMULATION TO ESTIMATE THE EFFICIENCY
OF ADDITIONAL WELLS USING AT URANIUM MINING
BY THE IN SITU LEACHING METHOD**

The application of additional rows of technological wells in the area of high productivity to improve the efficiency of uranium mining by in-situ leaching is considered. Geotechnological indicators of operational unit development are calculated for various hole patterns. Efficiency of the additional wells application has been estimated on the basis of the obtained results.

Keywords: *mathematical modeling, in situ leaching, uranium mining, geotechnological indicators, opening scheme.*

¹ Seversk Technological Institute National Research Nuclear University «MEPHI», Seversk, Russia

² JSC «Khiagda», Bauntovsky Evenk district, Bagdarin village, Republic of Buryatia, Russia

Popova Kseniya Yevgenyevna, Student STI NRNU «MEPHI», e-mail: ksenya.ksenya.popova@mail.ru;

Gladyshev Andrei Vladimirovich, General Manager JSC «Khiagda», e-mail: gladishev.a.v@hiagda.ru;

Noskova Svetlana Nikolaevna, Junior Researcher STI NRNU «MEPHI», e-mail: snnoskova@mephi.ru;

Noskov Mikhail Dmitrievich, Doctor of Physical and Mathematical Sciences, Professor STI NRNU «MEPHI», e-mail: md_noskov@mail.ru.

УДК 666.3-127.7; 54.057

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/83

Е.П. СЕДАНОВА, Е.Б. КАШКАРОВ, М.С. СЫРТАНОВ, А.М. ЛИДЕР

ПОЛУЧЕНИЕ КОМПОЗИТОВ НА ОСНОВЕ КАРБИДА КРЕМНИЯ ИЗ ПРЕКЕРАМИЧЕСКИХ БУМАГ МЕТОДОМ ИСКРОВОГО ПЛАЗМЕННОГО СПЕКАНИЯ*

Искровым плазменным спеканием прекерамических бумаг с порошковым наполнителем SiC получены образцы композитов SiC и керамических композиционных материалов SiC_f/SiC, армированных карбидокремниевым волокном. Исследовано влияние параметров спекания: температуры, давления, времени – на состав, структуру и механические свойства полученных материалов. Установлено, что увеличение давления, прикладываемого к исходному сырью при спекании, от 20 до 60 МПа снижает пористость полученных композитов SiC с 21.2 до 17.3% соответственно. При спекании прекерамической бумаги, послойно армированной SiC-волокнами, при 2100 °С, 60 МПа в течение 3 мин получен образец высокопрочного композита, величина прочности на изгиб и модуль Юнга которого составили 430 МПа и 297 ГПа соответственно.

Ключевые слова: карбид кремния, искровое плазменное спекание, прекерамическая бумага, непрерывные волокна, прочность на изгиб.

Введение

Физико-химические свойства карбидокремниевой керамики, такие, как жаростойкость, прочность, химическая инертность, делают этот материал перспективным для использования в атомной отрасли [1]. Композиты на основе карбида кремния (SiC) обладают меньшим сечением захвата тепловых нейтронов, а также существенно большей стойкостью к окислению при высоких температурах по сравнению с традиционно применяемыми циркониевыми сплавами [1–3].

В работах [2, 3], направленных на исследование перспективы использования керамических композитов на основе SiC, в качестве материалов оболочечных труб ТВЭЛов водо-водяных энергетических реакторов, как правило, рассматриваются трубчатые образцы, полученные по технологии химической инфильтрации из паровой фазы карбида кремния на каркас из сплетенного карбидокремниевое волокна (SiC_f) на графитовом стержне. Результаты испытаний на окисление в потоке водяного пара композитов SiC_f/SiC показали, что выделение водорода в процессе высокотемпературного окисления таких материалов примерно в 40 раз ниже, чем при окислении традиционно применяемых в отрасли цирконий-ниобиевых сплавов. Однако отмечается сложность и длительность проведения процедуры химической инфильтрации, высокая стоимость и токсичность расходных материалов.

В данной работе рассматривается возможность получения высокопрочных композитов на основе карбида кремния при высокотемпературном спекании прекерамических бумаг. Прекерамические бумаги – материалы, представляющие собой матрицу из органических волокон целлюлозы и неорганического порошкового наполнителя [4]. Основным преимуществом прекерамической бумаги является возможность получения заготовок сложной формы перед термической обработкой, так как бумага легко может быть подвержена механической или лазерной резке. Более того, предполагаются различные варианты послойного армирования для повышения механических свойств изделий из бумаги и создания градиентных структур при чередовании слоев бумаги с разным составом и/или других материалов. Одним из наиболее эффективных методов изготовления керамики на основе карбида кремния является метод искрового плазменного спекания (ИПС), который позволяет получать плотные керамические материалы за короткий по времени цикл спекания без предварительной обработки исходного сырья [5].

Цель настоящей работы – исследование влияния параметров искрового плазменного спекания на состав, структуру и механические свойства материалов на основе SiC, полученных из прекерамических бумаг, в том числе послойно армированных непрерывными волокнами.

* Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проект 19-19-00192) и в рамках Программы повышения конкурентоспособности Национального исследовательского Томского политехнического университета среди ведущих мировых научно-образовательных центров.

Материалы и методы

В качестве наполнителя для получения прекерамических бумаг были использованы порошки SiC фракцией до 10 мкм. Подробное описание технологии производства прекерамических бумаг представлено в работе [4]. Долю наполнителя в бумаге при ее получении возможно варьировать от 60 до 90 мас. %. Влияние содержания порошкового наполнителя на свойства получаемой керамики описано в работе [6]. В данном исследовании были использованы прекерамические бумаги с содержанием порошкового наполнителя 90 мас. %.

Образцы для спекания были выполнены в виде 12 дисков прекерамической бумаги диаметром 20 мм, уложенных послойно в стопку. Диски были получены путем механической обработки полотна бумаги. Для композитов SiC_f/SiC в качестве армирующего материала использовались непрерывные волокна из карбида кремния. Керамические волокна укладывались параллельно поверхности дисков из прекерамической бумаги. Армирование материала непрерывным волокном обеспечивает более высокую прочность вдоль направления укладки волокна, в то время как механические свойства поперек укладки снижаются [7]. Для компенсации этого эффекта угол между соседними, через два слоя бумаги, слоями армирующего волокна отличался на 90°.

Спекание материалов осуществлялось с использованием установки SPS 10–4 («Advanced Technology», США). Диаметр прессформы составлял 20 мм. Спекание композитов проводилось при следующих параметрах: скорость нагрева – 180 °С/мин, температура синтеза – 1800–2100 °С, время синтеза – 3–10 мин. Давление при синтезе композитов варьировалось от 20 до 60 МПа. Схема процесса подготовки и спекания образцов для исследования, армированных волокном, представлена на рис. 1.

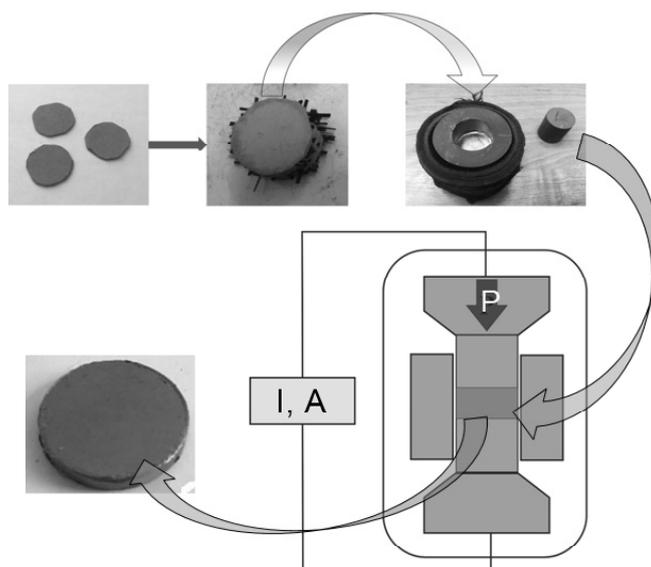


Рис. 1. Схема синтеза образцов SiC_f/SiC из прекерамических бумаг методом ИПС

Полученные образцы после обработки поверхности были исследованы методом гидростатического взвешивания с целью определения плотности и пористости материала образцов. Взвешивание проводилось с использованием аналитических весов Sartorius ME 235 S. В качестве жидкости использовался керосин (плотность 0.784 г/см³ при 20 °С).

Анализ фазового состава осуществлялся методом рентгеновской дифракции на дифрактометре Shimadzu XRD 7000S (CuK_α-излучение), оборудованном высокоскоростным 1280-канальным детектором OneSight («Shimadzu», Япония). Анализ микроструктуры образцов проводился методом сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) на микроскопе Tescan Vega 3.

Испытания на изгиб исследуемых образцов проводились на испытательной машине Gotech al7000m. Принимая во внимание, что размер изготовленных образцов меньше минимального размера для трехточечных и четырехточечных испытаний на изгиб, было изготовлено специальное устройство для испытаний образцов малого размера согласно [8, 9]. Для испытаний методом электроэрозионной резки были подготовлены серии образцов диаметром 7.9 мм и толщиной 1 мм. Мо-

дуль Юнга синтезированных материалов определялся по методу акустического резонанса на основе данных, полученных при ультразвуковом контроле образцов толщиномером 45MG Olympus.

Результаты и их обсуждение

Полученные образцы представляют собой плотные диски без видимых трещин и расслоений. На поверхности наблюдается графитовая пленка толщиной 100–150 мкм, которая была удалена механическим шлифованием с последующей полировкой.

Результаты гидростатического взвешивания образцов, синтезированных методом ИПС при различных параметрах, представлены в табл. 1.

Таблица 1

Результаты гидростатического взвешивания

Образец	Давление синтеза, МПа	Длительность спекания, мин	Волокно	Кажущаяся плотность, г/см ³	Пористость, %
SiC _f /SiC–20–3	20	3	Есть	2.49	21.2
SiC _f /SiC–20–10	20	10	Есть	2.49	21.2
SiC _f /SiC–40–3	40	3	Есть	2.50	20.9
SiC _f /SiC–40–10	40	10	Есть	2.51	20.7
SiC–20–10	20	10	Нет	2.53	20.0
SiC _f /SiC–60–3	60	3	Есть	2.54	19.6
SiC _f /SiC–60–10	60	10	Есть	2.61	17.3
SiC–40–10	40	10	Нет	2.64	16.6

Как видно из результатов, добавление карбидокремниевых волокон приводит к снижению плотности материала. Для всех серий образцов плотность композитов SiC_f/SiC, выдержанных при температуре 2100 °С в течение 10 мин, выше, чем у спеченных за 3 мин. Необходимо также отметить, что плотность композитов увеличивается с ростом давления спекания. Наибольшее значение плотности композита SiC_f/SiC, полученного при 60 МПа и 10 мин, составляло 2.61 г/см³. Для образцов SiC, полученных при 40 МПа, – 2.64 г/см³.

Анализ изменения микроструктуры образцов SiC (рис. 2) показал, что с увеличением температуры спекания от 1800 до 2100 °С и давления от 20 до 60 МПа микроструктура материала становится более плотной. Следует отметить, что температура 1800 °С недостаточна для синтеза керамики SiC, поскольку частицы порошка слабо связаны между собой. На СЭМ-изображениях также наблюдаются вытянутые поры, образовавшиеся при разложении целлюлозных волокон. Поры сохраняются в структуре образцов, синтезированных при относительно низких значениях давления.

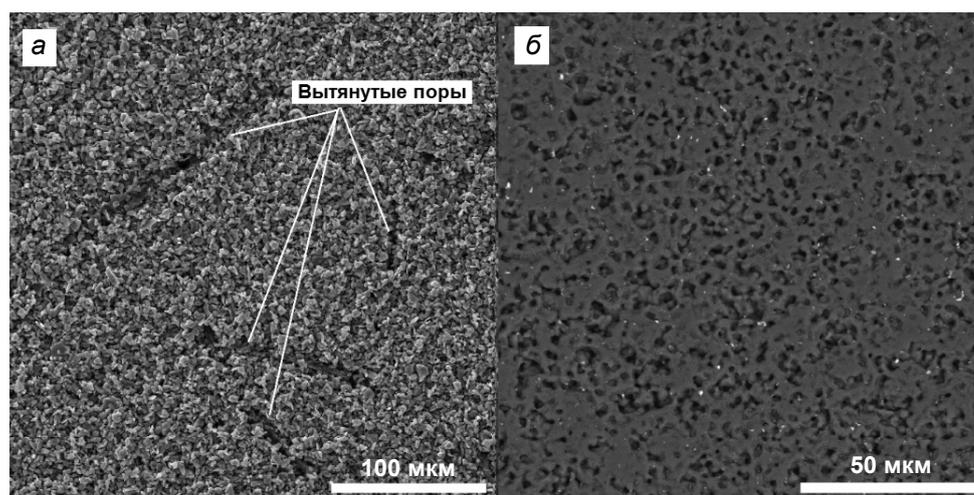


Рис. 2. СЭМ-изображения образцов SiC, синтезированных при 20 МПа, 1800 °С (а) и 60 МПа, 2100 °С (б) в течение 10 мин

СЭМ-изображения областей образцов композитов SiC_f/SiC, армированных волокном, представлены на рис. 3. Пунктирной линией обозначена граница раздела между областью, содержащей волокно, и матрицей SiC композита без волокна. В композите, синтезированном при 60 МПа в те-

чение 10 мин, наблюдается частичное спекание волокон между собой (рис. 3, а). В то время как волокна композита, спеченного в течение 3 мин (рис. 3, б), имеют четко различимые границы, что может положительно влиять на механические свойства за счет частичного проскальзывания и вытягивания между собой.

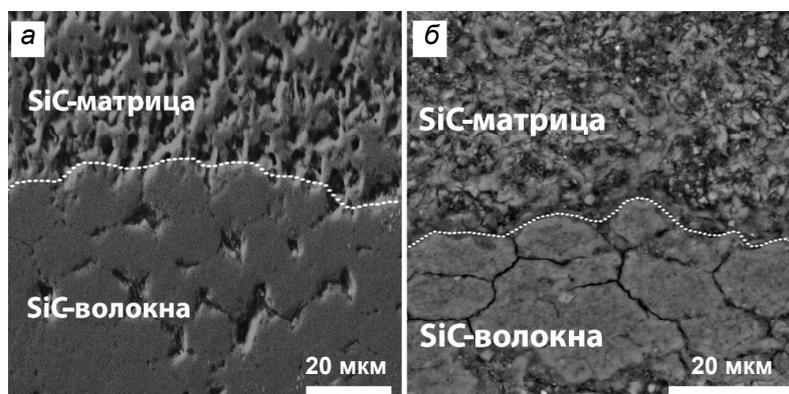


Рис. 3. СЭМ-изображения SiC_f/SiC композитов, синтезированных при 60 МПа в течение 10 (а) и 3 мин (б)

На рис. 4 представлены дифрактограммы исходной прекерамической бумаги и синтезированных композитов. Данные рентгеноструктурного анализа показали, что прекерамическая бумага представляет собой многофазную систему, состоящую из двух кристаллических полиморфных фаз SiC (4Н и 6Н) с гексагональной плотноупакованной решеткой и аморфной фазы органических составляющих (целлюлоза). Объемное содержание фаз в бумаге 4Н и 6Н составляет 15 и 85% соответственно. Аморфная фаза не присутствует на дифрактограммах после искрового плазменного спекания (рис. 4, б и в). Это связано с разложением целлюлозы при 315–400 °С.

На основании вышеизложенного можно сделать вывод, что все органические компоненты в прекерамической бумаге разлагаются в процессе искрового плазменного спекания. Соотношение между фазами 4Н и 6Н незначительно изменяется после спекания.

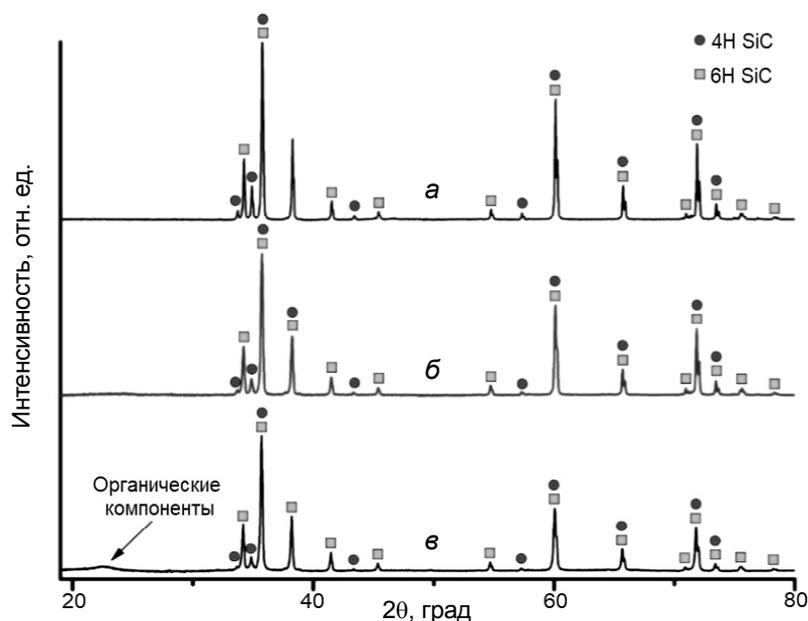


Рис. 4. Дифрактограммы прекерамической бумаги (а), материала без волокна (б) и композита с волокном (в)

Содержание фазы 4Н увеличивается до 22 об. %, а содержание фазы 6Н увеличивается до 78 об. %. Такое перераспределение между фазами связано с разложением органического составляющего при спекании. Очевидно, что процесс спекания несущественно влияет на фазовый состав

исследуемых материалов. Добавление волокон SiC также не влияет на фазовый состав матрицы композитов.

Для оценки механических свойств образцов SiC- и SiC_f/SiC-композитов были проведены измерения прочности на изгиб. Данные результаты представлены в табл. 2. Для анализа влияния упругих волокон на прочностные характеристики сравнивались армированные композиты и композиты без волокна, синтезированные при одинаковом давлении (40 МПа) в течение 10 мин. Было показано, что армирование волокнами карбида кремния приводит к улучшению механических свойств материалов. Армированный композит SiC_f/SiC имеет значение прочности на изгиб, равное 360 МПа, что на 20% превышает значение для материала SiC без волокна (300 МПа).

Результаты измерения модуля Юнга синтезированных образцов также представлены в табл. 2. Сравнение значений модуля Юнга для образцов с волокнами и без указывает на то, что при армировании матрицы SiC-волокнами величина модуля Юнга изменяется незначительно.

Таблица 2

Результаты испытаний на изгиб и измерения модуля Юнга

Образец	Давление синтеза, МПа	Длительность спекания, мин	Волокно	Прочность на изгиб, МПа	Модуль Юнга, ГПа
SiC-40-10	40	10	Нет	300	274
SiC _f /SiC-40-10	40	10	Есть	360	263
SiC _f /SiC-60-10	60	10	Есть	380	301
SiC _f /SiC-60-3	60	3	Есть	430	297

На рис. 5 представлены кривые нагружения-разгрузки армированного композита и композита без волокна. Анализ кривых позволяет сделать вывод о хрупком механизме разрушения материалов. Однако в случае армированного композита разрушение происходит ступенчато, что указывает на присутствие вязкостных механизмов упрочнения. Такие механизмы обусловлены разветвлением и отклонением распространения трещин, а также наличием слоистой структуры и частичным вытягиванием волокна [10].

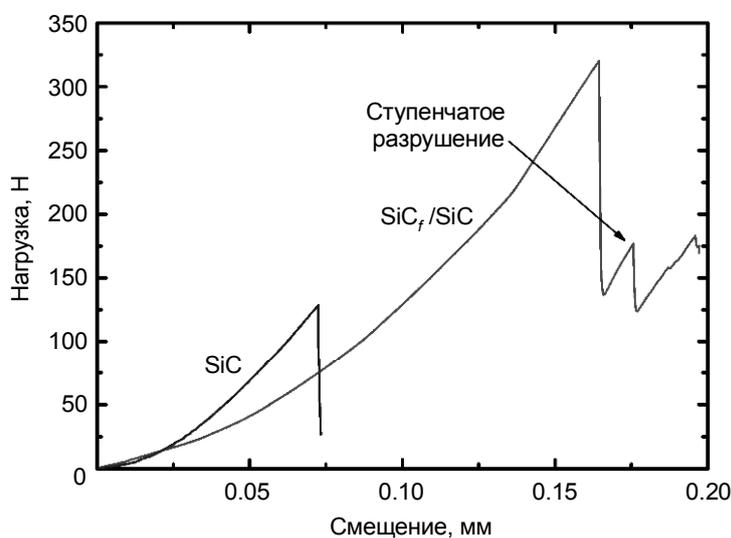


Рис. 5. Кривые нагружения-разгрузки армированного композита и композита без волокна, синтезированные при 40 МПа и длительности спекания 10 мин

Частичное вытягивание волокна было обнаружено на поверхности разрушения композита, полученного при давлении 60 МПа и длительности спекания 3 мин (рис. 6). Вытягивание волокон является одним из механизмов разрушения армированных волокном композитов [11]. При распространении трещины через материал также может происходить ее отклонение или разветвление вследствие наличия слоистой структуры композита и отрыва волокон друг от друга. В таком случае на распространение трещины в композите затрачивается значительное количество энергии. Этот механизм важен с точки зрения вязкости разрушения, которая существенно повышается при добавлении волокон в сравнении с неармированным SiC.



Рис. 6. СЭМ-изображения поверхности разрушения SiC_f/SiC -композита, синтезированного при 60 МПа и длительности спекания 3 мин: скол под углом 45°

Заключение

На основании результатов проделанной работы можно сделать вывод, что прекерамические бумаги с SiC -наполнителем, межслойно армированные непрерывными волокнами SiC , могут быть использованы в качестве исходного сырья для получения высокопрочных композиционных керамических материалов на основе SiC_f/SiC .

Установлено, что фазовый состав синтезированных композитов SiC_f/SiC соответствует составу исходных прекерамических бумаг с карбидокремниевым наполнителем. Кристаллическая структура композита представлена α -фазами 6H-SiC (78%) и 4H-SiC (22%). Органические компоненты прекерамической бумаги удаляются в процессе спекания.

В синтезированных композитах волокна SiC компактно уложены друг к другу, обеспечивая образование плотных армированных слоев между слоями SiC -матрицы. Последнее способствует повышению прочности на изгиб примерно на 20% (в сравнении с керамикой SiC , полученной из прекерамической бумаги). Плотность армированных волокнами композитов варьируется от 2.49 до 2.61 г/см³.

Прочность композитов SiC_f/SiC на изгиб и модуль Юнга увеличиваются с увеличением давления спекания за счет формирования более плотной микроструктуры. Максимальное значение предела прочности 430 МПа было достигнуто при синтезе композита SiC_f/SiC при давлении 60 МПа в течение 3 мин. Из-за частичного спекания волокон SiC более короткое время спекания (3 мин) предпочтительно для получения высокопрочных композитов SiC_f/SiC .

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Макаров Ф. // Наноиндустрия. – 2017. – № 3. – С. 60–67.
2. Avincola V. A. et al. // Nucl. Eng. Design. – 2015. – V. 295. – P. 468–478.
3. Lee Y., Mckrell T. J., and Kazimi M. S. // Nucl. Eng. Technol. – 2013. – V. 45. – No. 6. – P. 811–820.
4. Travitzky N. et al. // J. Am. Ceram. Soc. – 2008. – V. 91. – No. 11. – P. 3477–3492.
5. Noviyanto A., Han Y. H., and Yoon D. H. // Adv. Appl. Ceram. – 2011. – V. 110. – No. 7. – P. 375–381.
6. Sedanova E. P. et al. // J. Phys.: Conf. Ser. – 2020. – V. 1611. – No. 1. – P. 012007.
7. Demir A. // J. Eur. Ceram. Soc. – 2012. – V. 32. – P. 1405–1411.
8. Manahan M., Argon A. S., and Harling O. K. // J. Nucl. Mater. – 1981. – V. 103–104. – P. 1545–1550.
9. Rasche S., Strobl S., Kuna M., et al. // Proc. Mater. Sci. – 2014. – V. 3. – P. 961–966.
10. Nakazato N., Kishimoto H., and Park J. // Ceram. Int. – 2018. – V. 44. – P. 19307–19313.
11. Cantwell W. J. and Morton J. // Composites. – 1991. – V. 22. – P. 347–362.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

Национальный исследовательский Томский политехнический университет,
г. Томск, Россия

Седанова Елизавета Павловна, инженер ИЯТШ НИ ТПУ, e-mail: eps4@tpu.ru
Кашкаров Егор Борисович, к.ф.-м.н., доцент ИЯТШ НИ ТПУ, e-mail: ebk@tpu.ru;
Сыртанов Максим Сергеевич, к.т.н., доцент ИЯТШ НИ ТПУ, e-mail: mss12@tpu.ru;
Лидер Андрей Маркович, д.т.н., профессор ИЯТШ НИ ТПУ, e-mail: lider@tpu.ru.

E.P. SEDANOVA, E.B. KASHKAROV, M.S. SYRTANOV, A.M. LIDER

SYNTHESIS OF SiC-BASED COMPOSITES BY SPARK PLASMA SYNTERING OF PRECERAMIC PAPERS

The samples of SiC and SiC_f/SiC ceramic matrix composite were obtained by spark plasma sintering of preceramic paper with silicon carbide powder filler. The influence of sintering parameters - temperature, pressure, holding time - on the obtained materials phase composition, structure, and mechanical properties was studied. It was found that an increase in the pressure applied during sintering from 20 to 60 MPa reduces the porosity of the composites from 21.2 to 17.3%, respectively. A high-strength SiC_f/SiC composite with the flexural strength of 430 MPa and Young's modulus of 297 GPa was obtained by sintering of preceramic paper layer-by-layer reinforced with SiC fibers at 2100 °C, 60 MPa for 3 min.

Keywords: *silicon carbide, spark plasma sintering, preceramic paper, continuous fibers, flexural strength.*

National Research Tomsk Polytechnic University, Tomsk, Russia

Sedanova Elizaveta Pavlovna, Engineer School of Nuclear Science and Engineering NR TPU, e-mail: eps4@tpu.ru;

Kashkarov Egor Borisovich, Ph.D., Associate Professor School of Nuclear Science and Engineering NR TPU, e-mail: ebk@tpu.ru;

Syrtanov Maxim Sergeevich, Ph.D., Associate Professor School of Nuclear Science and Engineering NR TPU, e-mail: mss12@tpu.ru;

Lider Andrey Markovich, Doc. of Tech. Sc., Professor School of Nuclear Science and Engineering NR TPU, e-mail: lider@tpu.ru.

УДК 004.032.26

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/90

А.В. СЕРБИН, М.В. ГУЦУЛ, М.Д. НОСКОВ, А.А. ЩИПКОВ

ПРИМЕНЕНИЕ ИСКУССТВЕННЫХ НЕЙРОННЫХ СЕТЕЙ ДЛЯ ПРОГНОЗИРОВАНИЯ СОСТОЯНИЯ НАСОСНЫХ АГРЕГАТОВ ПОЛИГОНА СКВАЖИННОГО ПОДЗЕМНОГО ВЫЩЕЛАЧИВАНИЯ УРАНА

Рассматривается система прогнозирования отказов насосных агрегатов полигона скважинного подземного выщелачивания урана. Работа системы основана на применении искусственной нейронной сети. Система прогнозирования реализована в виде специализированного программного обеспечения. Описаны топология и алгоритм обучения нейронной сети, а также функционал программного обеспечения.

Ключевые слова: добыча урана, скважинное подземное выщелачивание, электронасосный агрегат, прогнозирование, искусственная нейронная сеть, многослойный персептрон, алгоритм обратного распространения ошибки.

Введение

Скважинное подземное выщелачивание (СПВ) является одним из эффективных методов добычи урана [1, 2]. Разработка месторождения осуществляется с помощью системы технологических скважин. Нагнетательные скважины используются для подачи в рудоносный горизонт выщелачивающих растворов, которые способны переводить уран в раствор на месте залегания руды. Подъем продуктивного раствора осуществляется с помощью электронасосных агрегатов (ЭНА), установленных в откачных скважинах. ЭНА состоят из погружного электродвигателя и центробежного насоса. ЭНА работают в сложных условиях, обусловленных химически агрессивной средой, наличием твердых частиц в составе откачных растворов и т.д. Это вызывает сокращение срока службы ЭНА. Неожиданный выход из строя ЭНА вынуждает предприятие держать резерв оборудования с целью сокращения перерывов в работе откачных скважин. Предсказание времени до момента возникновения неисправности ЭНА позволит повысить качество планирования ремонта и замены оборудования. В настоящее время для прогнозирования состояния технологического оборудования применяются информационные системы, основанные на различных методах искусственного интеллекта [3–6]. Однако на предприятиях, ведущих добычу урана способом СПВ, подобные системы не применяются. В настоящей работе рассматривается система прогнозирования отказов ЭНА полигонов СПВ, разработанная с применением искусственной нейронной сети (ИНС) [7, 8].

Искусственная нейронная сеть

Система прогнозирования отказов позволяет предсказывать ожидаемое время y до момента выхода из строя ЭНА. Входными параметрами x_i ($i = 1, \dots, 13$) для работы системы прогнозирования являются характеристики режима работы ЭНА (таблица). К входным параметрам применяется нормировка в интервале $[0; 1]$. Нормированное значение входного параметра \tilde{x}_i рассчитывается по абсолютному значению параметра x_i по формуле

$$\tilde{x}_i = \frac{x_i - \min(x_i)}{\max(x_i) - \min(x_i)}, \quad (1)$$

где $\max(x_i)$ – максимальное значение параметра; $\min(x_i)$ – минимальное значение параметра.

Для прогнозирования времени y до момента выхода из строя ЭНА применяется четырехслойный персептрон, количество нейронов входного (первого) слоя которого равно количеству входных параметров $n_1 = 13$, а количество нейронов выходного (четвертого) слоя соответствует одному прогнозируемому параметру $n_4 = 1$. Количество нейронов двух внутренних (второго и третьего) слоев n_2 и n_3 рассчитывается с помощью формул:

$$n_2 = n_4 \cdot v^2 = 1 \cdot 2.35^2 \approx 5; \quad (2)$$

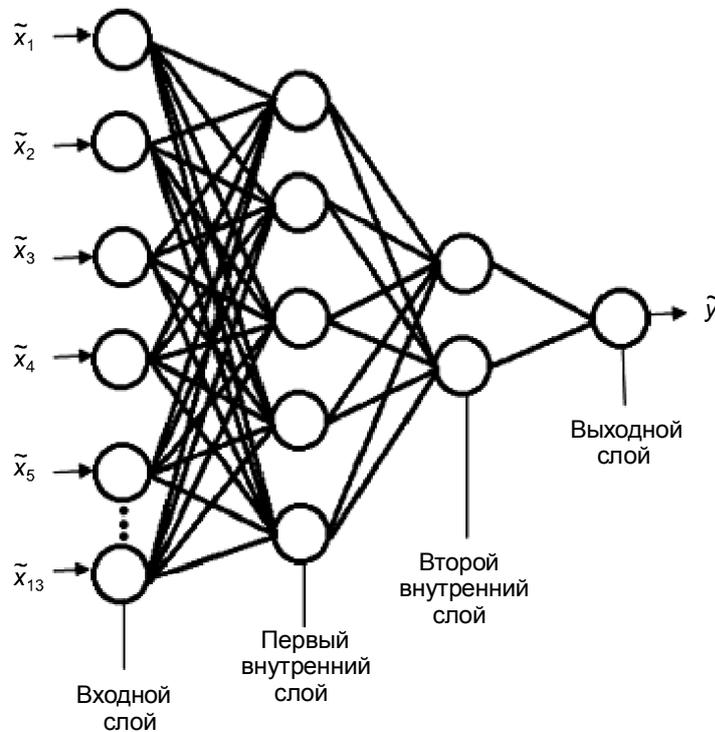
$$n_3 = n_4 \cdot v = 1 \cdot 2.35 \approx 2; \quad (3)$$

$$v = \sqrt[3]{n_1/n_4} = 2.35. \tag{4}$$

Перечень входных параметров

Параметр	Название параметра	Ед. изм.
x_1	Время активной работы ЭНА	ч
x_2	Количество прецедентов частых пусков ЭНА	шт.
x_3	Количество срабатываний защиты от сухого хода	шт.
x_4	Количество прецедентов работы при пониженном напряжении	шт.
x_5	Время работы с повышенными пульсациями тока	ч
x_6	Время работы с низким КПД	ч
x_7	Время работы с низким дебитом	ч
x_8	Количество дней, когда средний коэффициент пульсаций тока больше 1%	шт.
x_9	Количество дней, когда средний cosφ меньше 60%	шт.
x_{10}	Количество дней работы с аномально низким КПД меньше 20–30%	шт.
x_{11}	Время работы с повышенным током, превышающим номинальный ток в 1.5 раза	ч
x_{12}	Количество прецедентов работы с током, превышающим номинальный ток в 3 раза	шт.
x_{13}	Время работы с повышенными пульсациями расхода	ч

Схема топологии ИНС представлена на рис. 1. ИНС состоит из четырех слоев: 13 нейронов входного слоя, 5 нейронов первого внутреннего слоя, 2 нейрона второго внутреннего слоя, 1 нейрон выходного слоя. Входной вектор $\tilde{X} = (\tilde{x}_1, \tilde{x}_2, \dots, \tilde{x}_{13})$ подается на входной слой, а выходной сигнал ИНС \tilde{y} определяется путем поочередного вычисления уровней активности элементов каждого слоя (от первого внутреннего слоя до выходного слоя) с использованием уже известных реакций элементов предшествующих слоев.



Перцептрон имеет следующие особенности: нейроны каждого слоя не связаны между собой; входной сигнал каждого нейрона поступает на входы всех нейронов последующего слоя; нейроны

входного слоя не осуществляют преобразования входных сигналов, их функция заключается только в распределении этих сигналов между нейронами первого внутреннего слоя.

Искусственный нейрон представляет собой сумматор произведений всех входящих сигналов на весовые коэффициенты связи между нейронами. К результату сумматора применяется функция активации $f(S)$, значение которой является выходным сигналом нейрона u_j^k . В настоящей работе в качестве функции активации выбрана сигмоидная функция, принимающая значения от 0 до 1:

$$f(s_j^k) = \frac{1}{1 + e^{-s_j^k}}. \quad (5)$$

Здесь s – сумма произведений всех входящих сигналов нейрона на весовые коэффициенты связи. Выходной сигнал для нейронов входного слоя ($k = 1$):

$$(u_1^1, u_2^1, \dots, u_{13}^1) = (\tilde{x}_1, \tilde{x}_2, \dots, \tilde{x}_{13}), \quad (6)$$

Выходной сигнал для нейронов внутренних слоев и выходного слоя ($k = 2, 3, 4$):

$$u_j^k = f(s_j^k) = f\left(\sum_{i=1}^{n_{k-1}} \omega_{ij}^{k-1} \cdot u_i^{k-1}\right), \quad (7)$$

где k – порядковый номер слоя; ω_{ij}^{k-1} – весовой коэффициент связи между нейронами $k-1$ -слоя и k -слоя; i – порядковый номер нейрона $k-1$ -слоя; j – порядковый номер нейрона k -слоя.

Выходной сигнал ИНС \tilde{y} равен выходному сигналу нейрона выходного слоя u_1^4 :

$$\tilde{y} = u_1^4. \quad (8)$$

Ожидаемое время y до момента выхода из строя ЭНА равняется произведению выходного сигнала ИНС \tilde{y} на максимальное время y_{\max} наработки на отказ ЭНА:

$$y = \tilde{y} \cdot y_{\max}. \quad (9)$$

Схема искусственного нейрона на примере первого нейрона первого внутреннего слоя приведена в рис. 2.

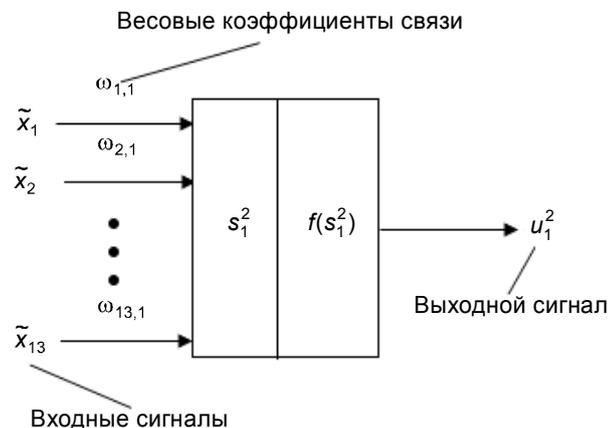


Рис. 2. Искусственный нейрон

Алгоритм обучения ИНС

Обучение ИНС происходит с помощью алгоритма обратного распространения ошибки – итерационного алгоритма обучения [7]. Для работы алгоритма необходима обучающая выборка, состоящая из R векторов. Каждый вектор r обучающей выборки состоит из нормированных значений входных параметров $\tilde{X}_l^r = (\tilde{x}_{l,1}^r, \tilde{x}_{l,2}^r, \dots, \tilde{x}_{l,13}^r)$ и желаемого нормированного значения выходного параметра \tilde{y}_l^r .

Перед началом работы алгоритма весовые коэффициенты инициализируются случайными значениями. После инициализации происходит итерационный процесс изменения значений весо-

вых коэффициентов связи между нейронами. Каждая итерация алгоритма состоит из следующих шагов:

1) подача векторов \tilde{X}_i^r на вход ИНС из обучающей выборки:

$$\left\{ \left(\tilde{X}_i^1, \tilde{y}_i^1 \right); \left(\tilde{X}_i^2, \tilde{y}_i^2 \right); \dots; \left(\tilde{X}_i^R, \tilde{y}_i^R \right) \right\}; \tag{10}$$

2) вычисление выходных сигналов нейрона выходного слоя \tilde{y}^r ;

3) вычисление ошибок работы ИНС ε^r :

$$\varepsilon^r = \tilde{y}_i^r - \tilde{y}^r; \tag{11}$$

4) вычисление суммарной квадратической ошибки E :

$$E = \frac{1}{2} \sum_{r=1}^R \left(\tilde{y}_i^r - \tilde{y}^r \right)^2; \tag{12}$$

5) если $E \leq E_{\text{допустимое}}$, процедура обучения окончена. Иначе переход к шагу 6;

6) изменение весов ИНС в направлении уменьшения ошибки обучения:

$$\omega_{ij}^l(k+1) = \omega_{ij}^l(k) + \gamma \omega_{ij}^l(k-1) - \alpha \frac{\partial E}{\partial \omega_{ij}^l(k)}, \tag{13}$$

где k – номер итерации; α – скорость обучения ИНС (шаг градиентного спуска); γ – постоянная момента. Переход к первому шагу итерации.

Программное обеспечение

Система прогнозирования отказов ЭНА реализована в виде специализированного программного обеспечения (ПО), предназначенного для работы с эксплуатационным блоком, содержащим восемь откачных скважин. ПО написано на языке программирования C++ с использованием методов объектно-ориентированного программирования в среде разработки Embarcadero RAD Studio 10.2. ПО является 32-разрядным приложением, работающим на персональном компьютере под управлением семейства операционных систем Windows.

ПО в процессе работы постоянно взаимодействует с базой данных (БД), хранящей в себе данные обучающей выборки, тестовой выборки, значения весовых коэффициентов связи между нейронами, результаты работы ИНС и т.д. Внутри программы реализовано автоматическое сопряжение с системой управления БД (СУБД) Microsoft Access. ПО состоит из модуля ИНС и информационного модуля ЭНА. Модуль ИНС (рис. 3) предназначен для обучения и тестирования ИНС с возможностью их контроля.

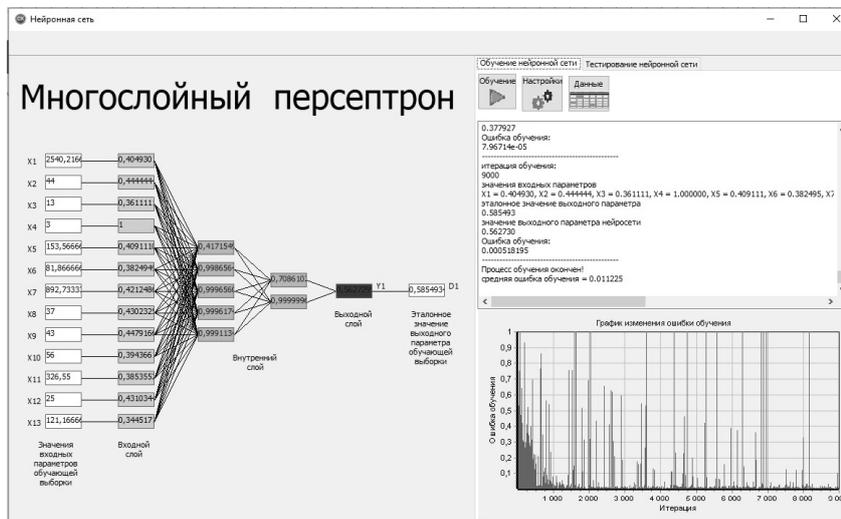


Рис. 3. Окно модуля ИНС

Модуль позволяет осуществлять автоматическое импортирование векторов обучающей и тестовой выборки из БД; отображение в отдельном окне данных обучающей выборки в виде таблицы с возможностью ручного добавления, редактирования и удаления данных; настройку параметров ИНС в отдельном окне; отображение всех итераций работы алгоритмов обучения и тестирования ИНС на схеме ее топологии, текстовом поле и на графике.

Информационный модуль ЭНА (рис. 4) предназначен для осуществления доступа к информации по каждому из восьми ЭНА. Модуль позволяет отображать в отдельных окнах: общие сведения о каждом ЭНА (модель и характеристики насоса и электродвигателя, расположение на добычном полигоне, значение входных параметров за последнюю смену); истории значений входных параметров системы прогнозирования в табличной форме с возможностью их ручного добавления, редактирования и удаления; временные графики входных и выходных систем прогнозирования; значения выходного параметра за последнюю смену и истории значений выходного параметра в виде гистограммы.

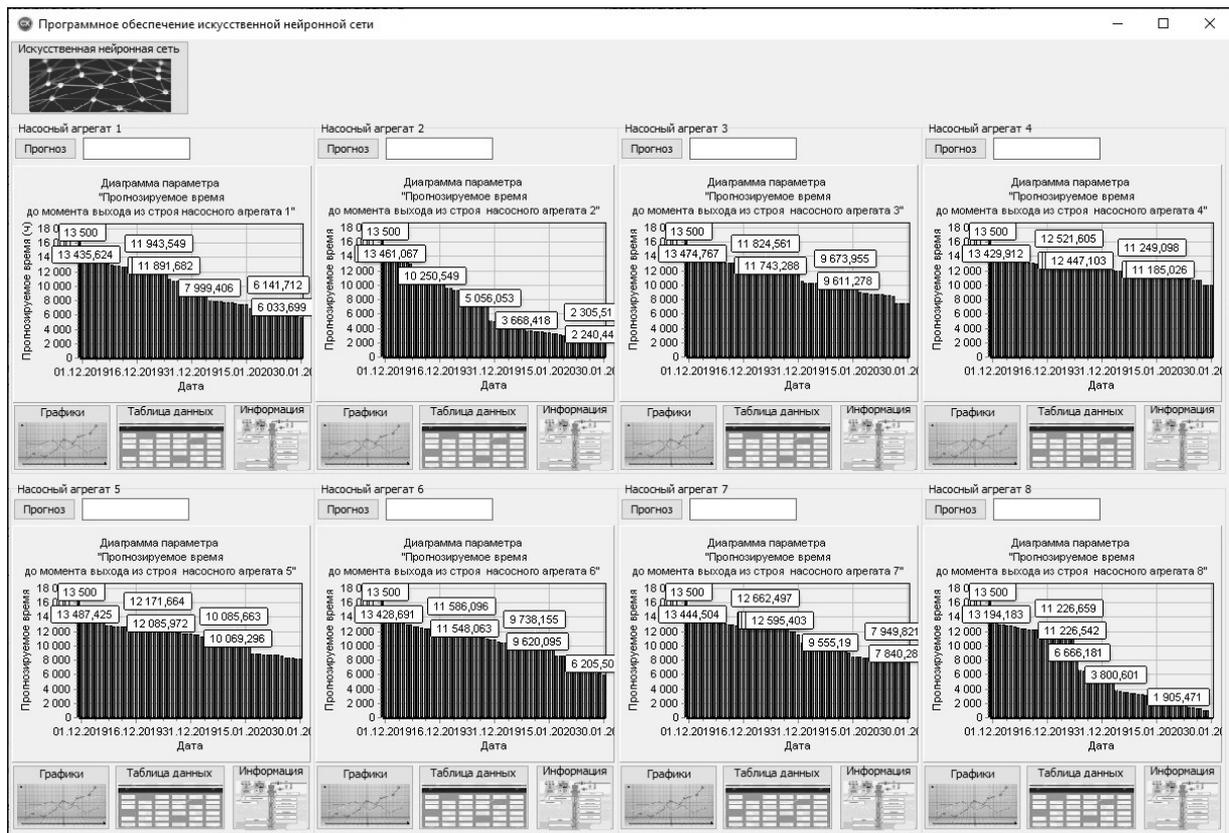


Рис. 4. Окно информационного модуля ЭНА

Обучение ИНС было произведено с помощью алгоритма обратного распространения ошибки на обучающей выборке, сформированной на основе экспертных оценок. Обучающая выборка состояла из 3000 векторов ($R = 3000$). Векторы импортировались из БД, сопряженной с ПО. Результаты тестирования, проведенные после обучения ИНС, показали адекватную работу системы.

Выводы

На основе метода ИНС разработана система прогнозирования отказов насосных агрегатов полигона СПВ. Система реализована в виде специализированного ПО, предназначенного для работы с эксплуатационным блоком, содержащим восемь откачных скважин. Произведено обучение и тестирование ИНС на модельных данных, полученных с помощью экспертных оценок. Полученные результаты показывают адекватность работы системы и ее готовность к практическому использованию.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Белецкий В.И., Богатков Л.К., Волков Н.И. и др. Справочник по геотехнологии урана. – М.: Энергatomиздат, 1997. – 672 с.
2. Акимова И.Д., Бабкин А.С., Воронцова О.М. и др. Геотехнология урана (российский опыт). – М.: КДУ, 2017. – 576 с.
3. Жукова А.Г., Лаврушин В.М. // Информационные технологии моделирования и управления. – 2015. – Т. 91. – № 1. – С. 41–49.
4. Канаев А.К., Сахарова М.А. // Автоматика, связь, информатика. – 2015. – № 2. – С. 13–16.
5. Бендерская Е.Н., Никитин К.В. // Информационно-управляющие системы. – 2015. – № 1 (74). – С. 85–91.
6. Прахов И.В., Бикметов А.Г. // Технические науки. – 2015. – № 9. – С. 502–506.
7. Галушкин А.И. Нейронные сети: основы теории. – М.: Горячая линия-Телеком, 2012. – 497 с.
8. Хливненко Л.В. Практика нейросетевого моделирования. – Воронеж: ВГТУ, 2015. – 214 с.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

Северский технологический институт Национального исследовательского ядерного университета «МИФИ», г. Северск, Россия

Сербин Антон Владимирович, аспирант СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: serbin-96@mail.ru;
Гуцул Михаил Владимирович, мл. науч. сотр. СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: vistum@rambler.ru;
Носков Михаил Дмитриевич, д.ф.-м.н., профессор СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: md_noskov@mail.ru;
Щипков Александр Андреевич, к.т.н., доцент СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: AAShchipkov@mephi.ru.

A.V. SERBIN, M.V. GUTSUL, M.D. NOSKOV, A.A. SHCHIPKOV

APPLICATION OF NEURAL NETWORKS FOR PREDICTION THE STATE OF PUMPING UNITS OF THE BOREHOLE UNDERGROUND LEACHING OF URANIUM

A system for predicting failures of pumping units of uranium in situ leaching landfill is considered. The system is based on the use of an artificial neural network. The forecasting system is implemented in the form of specialized software. The topology and learning algorithm of the neural network, as well as the functionality of the software, are described.

Keywords: uranium mining, in situ leaching, pumping unit, prediction, artificial neural network, multilayer perceptron, algorithm of error back propagation.

Seversk Technological Institute National Research Nuclear University «МЕРФИ», Seversk, Russia

Serbin Anton Vladimirovich, Graduate Student, e-mail STI NRNU «МЕРФИ»: e-mail: serbin-96@mail.ru;
Gutsul Mikhail Vladimirovich, Junior Researcher STI NRNU «МЕРФИ», e-mail: vistum@rambler.ru;
Noskov Mikhail Dmitrievich, Doctor of Physical and Mathematical Sciences, Professor STI NRNU «МЕРФИ», e-mail: md_noskov@mail.ru;
Shchipkov Alexander Andreevich, Candidate of Technical Sciences, Assistant Professor STI NRNU «МЕРФИ», e-mail: AAShchipkov@mephi.ru.

УДК 004.932.2

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/96

К.В. СМИРНОВ¹, Б.А. ФАУСТОВ¹, И.Л. ФАУСТОВА²

МЕТОД ОПТИЧЕСКОГО ПОТОКА

Несмотря на существование большого количества методов и алгоритмов обработки изображений, отвечающих различным целям, остается актуальной задача разработки новых подходов. Рассмотрен метод, который можно применять для определения оптического потока радионуклидных изображений. Приведено обоснование метода и математическая формализация, показаны примеры использования алгоритмов на тестовых изображениях.

Ключевые слова: поле скоростей, оптический поток, обработка изображений.

Введение

Изучение методов обработки и анализа изображений является в настоящее время актуальной задачей, так как эти методы применяются в самых различных информационных и технических системах. Существует большое количество методов и алгоритмов обработки изображений, отвечающих различным целям, таким, как восстановление изображений, улучшение их качества, определение движения на изображениях, распознавание и классификация и т.д. Для радионуклидных изображений важны все перечисленные виды обработки, в частности анализ изображений, основанный на построении поля скоростей или поля перемещений. Несмотря на большое количество методов обработки изображений, остается актуальной задача разработки новых подходов. В [1] сделан подробный обзор локальных и глобальных методов.

В данной работе рассмотрен метод, который можно применять для определения оптического потока радионуклидных изображений. Поле скоростей – одна из форм представления движения объектов на изображении, при котором каждой точке изображения ставится в соответствие вектор скорости, отвечающий соответствующей точке на объекте. В работе приведено обоснование метода и математическая формализация, показаны примеры использования алгоритмов на тестовых изображениях.

Метод оптического потока

Чтобы выделить исходные концепции, которые лежат в основе выбора метода, пригодного для решения задачи распознавания движения объектов на изображении, в нашем случае необходимо проанализировать радионуклидные изображения. Как и в общем случае задачи распознавания, можно использовать внешнюю геометрическую похожесть одного и того же объекта на разных изображениях, при этом чем меньше изменений произошло между моментами, запечатленными на них, тем проще выделить один и тот же объект. Поэтому в самом простом случае за основу можно принять неизменность цвета объекта в течение времени. Если учесть, что яркость изображений может быть различна ввиду качества цветопередачи или изменения мощности регистрируемого излучения, можно принимать во внимание неизменность градиента цвета. В более общем случае яркость изображения может быть неравномерной, поэтому стоит рассмотреть постоянство второй производной цвета, выраженное в форме матрицы Гессе, ее определителя гессиана или следа лапласиана.

Приведенных параметров недостаточно для построения алгоритма, так как они связывают точки одного изображения с точками другого, основываясь только на их цвете, при этом нет упорядоченности, которая бы разрешала неоднозначность: в случае, если точке на одном изображении будут соответствовать несколько точек другого. Одно из предположений, которое позволяет частично решить эту проблему, является предположение гладкости потока. Это отвечает неразрывности двигающихся тел, они не могут резко изменять свое строение, но могут менять размеры и форму.

Постановка задачи и алгоритм построения оптического потока

Приведем подробное описание семейства методов на примере предположений постоянства яркости и гладкости потока, затем сформулируем результаты для случая замены предположения постоянства яркости на постоянство гессииана [2]. Будем рассматривать изображения, цвет каждой точки которого кодируется одним числом яркости $I_i(x)$, где вектор $x = (x_1, x_2, t)$ включает координату и время. Предположение постоянства яркости формулируется в виде задачи минимизации

$$I_z = I(x + u) - I(x) \rightarrow \min, \quad (1)$$

где вектор $u = x'_t = (u_1, u_2, 1)$ отвечает полю скоростей, которое является параметром минимизации. Чтобы это выполнялось для всех точек изображения, будем рассматривать задачу минимизации для интеграла

$$E_1 = \int_{\Omega} [I(x + y) - I(x)]^2 dx. \quad (2)$$

Добавим предположение гладкости потока

$$E = \int_{\Omega} [I(x + y) - I(x)]^2 dx + \alpha \int_{\Omega} (\|\nabla u_1\|^2 + \|\nabla u_2\|^2) dx. \quad (3)$$

Здесь α – коэффициент различия важности для наших двух предположений. Знак ∇ обозначает градиент, далее Δ будет символом лапласиана. Для решения задачи минимизации составим систему уравнений Эйлера – Лагранжа:

$$I_z \nabla I(x + u) - \alpha \begin{pmatrix} \Delta & u_1 \\ \Delta & u_2 \end{pmatrix} = 0. \quad (4)$$

Приведем это выражение к системе линейных уравнений. Построим итерационную схему. Введем вектор $du^k = (u_1^k, u_2^k, 1)^T$.

$$I_z^{k+1} \nabla I(x + u^k) - \alpha \begin{pmatrix} \Delta & u_1^{k+1} \\ \Delta & u_2^{k+1} \end{pmatrix} = 0. \quad (5)$$

Для решения системы используем обратную итерационную схему. Лапласиан раскроем с помощью его интерполяции через значение потока, полученного на предыдущем шаге [3]. Линейную часть получим из I_z^{k+1} с помощью формулы Тейлора. Тогда

$$I_z^{k+1} \approx I_z^k + I_{x_1}^k du_1^k + I_{x_2}^k du_2^k. \quad (6)$$

При этом $u_1^{k+1} = u_1^k + du_1^k$, $u_2^{k+1} = u_2^k + du_2^k$.

Таким образом,

$$\left(I_z^k + I_{x_1}^k du_1^k + I_{x_2}^k du_2^k \right) \nabla I(x + u^k) - \alpha \begin{pmatrix} \Delta & (u_1^{k+1}) \\ \Delta & (u_2^{k+1}) \end{pmatrix} = 0. \quad (7)$$

Получили линейную систему относительно u^k , решать которую можно различными методами [4], например с помощью последовательных приближений, по следующей схеме:

$$\left(I_z^k + du^{k,l+1} + \nabla I^k \right) \nabla I(x + u^{k,l}) - \alpha \begin{pmatrix} \Delta & (u_1^k + du_1^{k,l+1}) \\ \Delta & (u_2^k + du_2^{k,l+1}) \end{pmatrix} = 0. \quad (8)$$

При использовании предположений постоянства гессииана и гладкости потока результат будет иметь вид

$$\sum_{i,j=1}^2 \nabla I_{x_i x_j}^k \left[I_{x_i x_j z}^{k,l+1} + \left(\nabla I_{x_i x_j}^k \right)^T du^{k,l+1} \right] - \alpha \begin{pmatrix} \Delta & (u_1^k + du_1^{k,l+1}) \\ \Delta & (u_2^k + du_2^{k,l+1}) \end{pmatrix} = 0.$$

Здесь нижние индексы $x_i x_j$ обозначают частные производные.

Примеры применения метода оптического потока

На рис. 1 и 2 даны результаты работы приведенных алгоритмов для постоянства цвета и его гессииана. При этом видно, что правильная картина в обоих случаях достигается только в отдельных областях, причем их расположение зависит от алгоритма. Заметно, что оба потока выделяют места, отвечающие положениям границ на изображении. Это может являться одним из способов использования данного метода.

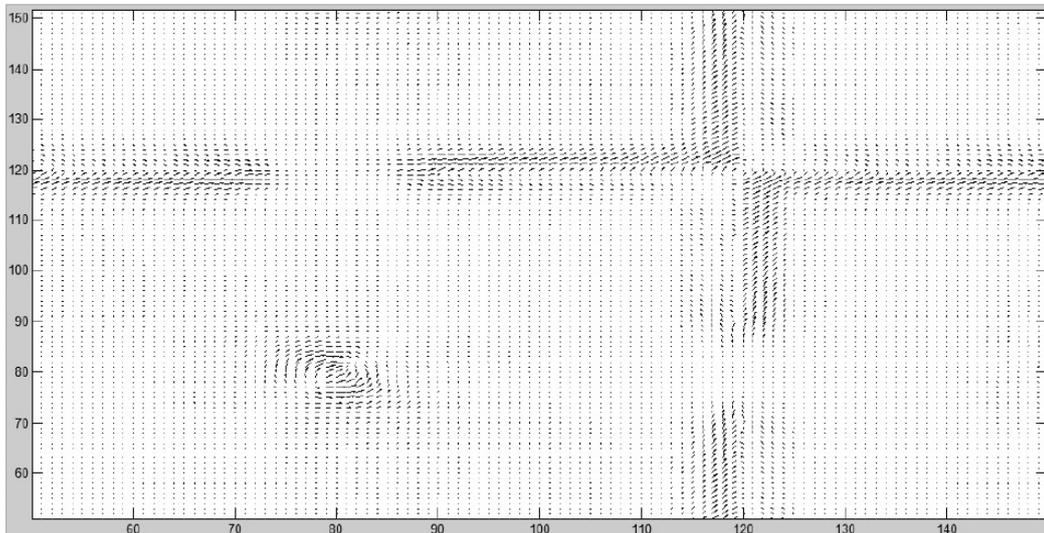


Рис. 1. Поток, рассчитанный из предположения постоянства яркости

При рассмотрении других изображений можно выделить дополнительные нюансы, одним из которых является возможность зависимости результата от начального приближения потока. Это достаточно просто представить на примере шахматной доски. При наличии дискретной информации о поступательном движении доски можно определить ее скорость с точностью до слагаемого, которое можно прибавлять к скорости любое целое число раз. Это носит название апертурной проблемы.

При данных предположениях возможности определения потока ограничиваются визуальными возможностями восприятия движения в каждой отдельной точке. В приведенном примере это достаточно хорошо заметно: вдоль полос с постоянным цветом нельзя определить движение, так как ничего не известно о движении прямой вдоль самой себя.

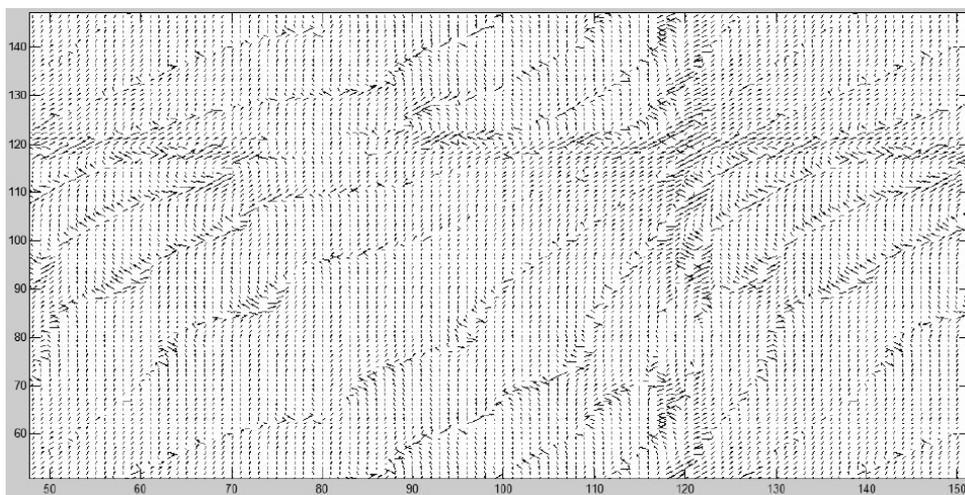


Рис. 2. Поток, рассчитанный из предположения постоянства гессииана яркости

Заключение

В данной работе рассмотрен метод, который можно применять для определения оптического потока радионуклидных изображений. Этот алгоритм можно использовать в других приложениях, но необходимо учитывать специфику каждого отдельного случая. В целом, чем больше известно о свойствах движения и объектах на начальном этапе, тем точнее будет работать алгоритм оптического потока радионуклидных изображений.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Bruhn A., Weickert J., and Schnorr C. // Int. J. Comp. Vision. – 2005. – V. 61. – No. 3. – P. 211–231.
2. Papenberg N. et al. // Int. J. Comp. Vision. – 2006. – V. 67. – No. 2. – P. 141–158.
3. Horn B.K.P. and Schunck B.G. // Artificial Intelligence. – 1981. – No. 17. – P. 185–203.
4. В е р ж б и ц к и й В. М. Основы численных методов: учебник для вузов. – М.: Высшая школа, 2002. – 840 с.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

¹ Санкт-Петербургский государственный университет, г. Санкт-Петербург, Россия

² Северский технологический институт Национального исследовательского ядерного университета «МИФИ», г. Северск, Россия

Смирнов Константин Валерьевич, аспирант СПбГУ, e-mail: constcoh@gmail.com;

Фаустов Богдан Андреевич, аспирант СПбГУ, e-mail: bogfaust@gmail.com;

Фаустова Инна Леонтьевна, к.ф.-м.н., доцент СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: infaust@rambler.ru.

K.V. SMIRNOV¹, B.A. FAUSTOV¹, I.L. FAUSTOVA²

OPTICAL FLOW METHOD

There are a large number of methods and algorithms for image processing that meet different purposes. Despite the large number of image processing methods, the task of developing new approaches remains relevant. In this paper we consider a method which can be applied to determine the optical flow on radionuclide images. The article provides the substantiation of the method and mathematical formalization, shows examples of the use of algorithms on test images.

Keywords: *velocity field, optical flow, image processing.*

¹ Saint-Petersburg State University, Saint-Petersburg, Russia

² Seversk Technological Institute National Research Nuclear University «МЕРФИ», Seversk, Russia

Smirnov Konstantin Valer'yevich, Postgraduate Student SPbU, e-mail: constcoh@gmail.com;

Faustov Bogdan Andreyevich, Postgraduate Student SPbU, e-mail: bogfaust@gmail.com;

Faustova Inna Leontievna, Candidate of Physical and Mathematical Sciences, Docent STI NRNU «МЕРФИ», e-mail: infaust@rambler.ru.

УДК 004.932.2

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/100

К.В. СМЕРНОВ¹, Б.А. ФАУСТОВ¹, И.Л. ФАУСТОВА²

СИСТЕМА РАСПРЕДЕЛЕННОГО ВЫЧИСЛЕНИЯ ПОЛЯ СКОРОСТЕЙ

Рассмотрена реализация метода определения поля скоростей, который можно применять для нахождения оптического потока радионуклидных изображений. Поле скоростей – одна из форм представления движения объектов на изображении, при котором каждой точке изображения ставится в соответствие вектор скорости, отвечающий соответствующей точке на объекте. Приведено математическое описание используемого метода и его реализация с применением облачных технологий.

Ключевые слова: поле скоростей, оптический поток, обработка изображений.

Введение

Информатизация технологий и объектов атомной отрасли в настоящее время является актуальной задачей. Методы обработки и анализа изображений применяются в самых различных информационных и технических системах. В данной работе рассмотрена реализация метода определения поля скоростей, который можно применять для нахождения оптического потока радионуклидных изображений. Поле скоростей – одна из форм представления движения объектов на изображении, при котором каждой точке изображения ставится в соответствие вектор скорости, отвечающий соответствующей точке на объекте. Построение поля скоростей было проведено многими авторами. Наиболее известная постановка задачи с использованием понятия оптического потока предполагает постоянство функции плотности распределения вдоль траекторий изучаемой системы [1]. В работе приведено математическое описание используемого метода [2] и его реализация с применением облачных технологий.

Описание метода

Возьмем последовательность дискретных изображений какого-либо предмета. Обозначим ширину и высоту изображения из последовательности w и h соответственно. Количество изображений обозначим d . При переходе от одного изображения к другому каждая точка с координатами $(x_1, x_2) \in \Omega$, $\Omega = \{x_1 \in [0, w + 1], x_2 \in [0, h + 1]\}$ меняет цвет.

Для упрощения описания будем считать, что изображения полутонные и цвет каждой точки кодируется одним числом. Далее эту числовую характеристику цвета будем называть яркостью и обозначать как $I_i(x) = I_i(x_1, x_2)$, где i – номер изображения в последовательности. В случае цветного изображения каждый цвет рассматривается отдельно. Поле скоростей для пары изображений с номерами i и $i + 1$ будем обозначать как

$$u(x_1, x_2) = \begin{pmatrix} u_1(x_1, x_2) \\ u_2(x_1, x_2) \end{pmatrix}, \quad (x_1, x_2) \in \Omega. \quad (1)$$

Метод оптического потока базируется на задаче минимизации интеграла. В случае, если рассматривается неизменность яркости объектов при переходе от одного изображения к другому, это можно выразить следующим образом:

$$\int_{\Omega} \left([I_{i+1}(x + u) - I_i(x)]^2 \right) dx + \alpha \int_{\Omega} \left(\|\nabla u_1\|^2 + \|\nabla u_2\|^2 \right) dx \xrightarrow{u} 0, \quad x \in \Omega. \quad (2)$$

Первый интеграл отвечает за постоянство яркости, второй – за гладкость потока, α – параметр регуляризации. Переходя к уравнениям Эйлера – Лагранжа, получаем систему относительно u

$$\begin{cases} \frac{\partial I_i(x)}{\partial x} [I_{i+1}(x + u) - I_i(x)] + \alpha \nabla^2 u_1 = 0, \\ \frac{\partial I_i(x)}{\partial y} [I_{i+1}(x + u) - I_i(x)] + \alpha \nabla^2 u_2 = 0, \end{cases} \quad (3)$$

где $\nabla^2 u = \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2}$ – лапласиан.

При переходе к дискретной сетке его можно раскрыть с помощью формул приближенного вычисления производных [3] и получить систему линейных уравнений для расчета поля скоростей $u(x_1, x_2), (x_1, x_2) \in \Omega$.

Например, можно использовать следующую итерационную схему:

$$\begin{aligned} (I_{i,z}^k + I_{i,x}^k u_1^k + I_{i,y}^k u_1^k) - \alpha \nabla^2 u_1^{k+1} &= 0, \\ (I_{i,z}^k + I_{i,x}^k u_2^k + I_{i,y}^k u_2^k) - \alpha \nabla^2 u_2^{k+1} &= 0, \end{aligned} \quad (4)$$

где $I_{i,x} = \frac{\partial I_i(x)}{\partial x}$, $I_{i,y} = \frac{\partial I_i(x)}{\partial y}$, $I_{i,z} = \frac{\partial I_i(x)}{\partial z}$ – частные производные яркости по координатам и времени, k – номер итерации в процессе вычисления u_1, u_2 . Частные производные будем оценивать с помощью формул конечных разностей.

Общая схема

Для построения схемы вычислительного процесса за основу возьмем итерационный процесс (4), для ускорения сходимости этот алгоритм будем применять не к исходному изображению, а к пирамиде изображений, построенной на его основе. Основанием пирамиды является пара исходных изображений, каждый следующий уровень представляет собой вдвое меньшие по размерам усредненные изображения.

Исходное изображение можно разделить на несколько изображений меньшего размера делением пополам или на четыре части. Таким образом, оценка поля скоростей по формулам (4) может выполняться параллельно на нескольких узлах.

Схема вычислительного процесса показана на рис. 1.

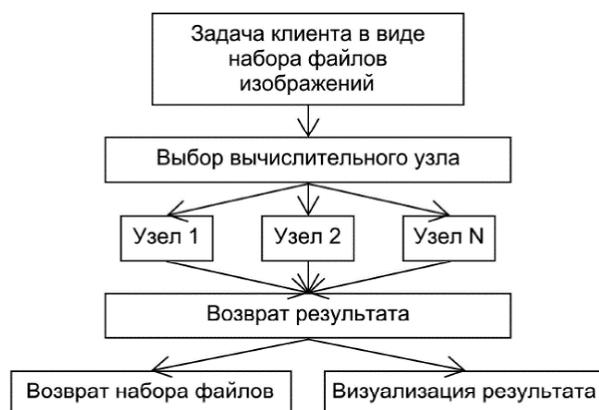


Рис. 1. Общая схема вычислительного процесса

Пользователь на вход подает несколько изображений, для каждой пары необходимо вычислить поле скоростей. Процесс вычисления состоит из следующих этапов:

1. Выбор свободных вычислительных узлов для новой задачи в требуемом количестве.
2. Загрузка данных на вычислительные узлы.
3. Вычисление поля скоростей для задачи.
4. Предоставление результата пользователю в виде набора файлов.

Средства реализации

Для реализации web-сервиса были выбраны следующие средства.

1) Негоку. Облачный сервис Негоку предоставляет вычислительные ресурсы для размещения проектов, созданных на базе различных языков программирования: PHP, Java, Ruby, Python и некоторые другие. Каждый проект запускается в отдельном контейнере, что обеспечивает его защищенность и легкую масштабируемость.

В описываемой реализации используется вариант однопоточных проектов для организации вычислительных сервисов, каждый из которых может вычислять поле скоростей для набора изображений, и сервиса-контроллера, который будет предоставлять информацию о состоянии вычислительных сервисов. Все они реализованы с использованием языка программирования JAVA.

Доступ к вычислительным сервисам (вычислительные узлы) организуется через POST-запрос.

2) Heroku DB. Кроме вычислительных ресурсов облачный сервис Heroku предоставляет возможность размещения базы данных под СУБД PostgreSQL, эта возможность используется для хранения состояний вычислительных узлов. Каждый из них в начале вычисления задачи отмечает в базе, что он занят. При завершении вычисления задачи – что он освобожден.

3) Файловый сервер и web-сервис. Основной сайт, через который предоставляется доступ к вычислительной системе, представляет собой отдельный сервис, реализованный на PHP, также развернутый на Heroku. Временное хранилище изображений, полученных от пользователей, и результаты вычислений размещаются на ftp-сервисе byethost.

Описание жизненного цикла задачи

Схема процесса обработки отдельной задачи представлена на рис. 2. Пользователь выбирает на основном сайте [4] набор изображений и запускает процесс обработки задачи.

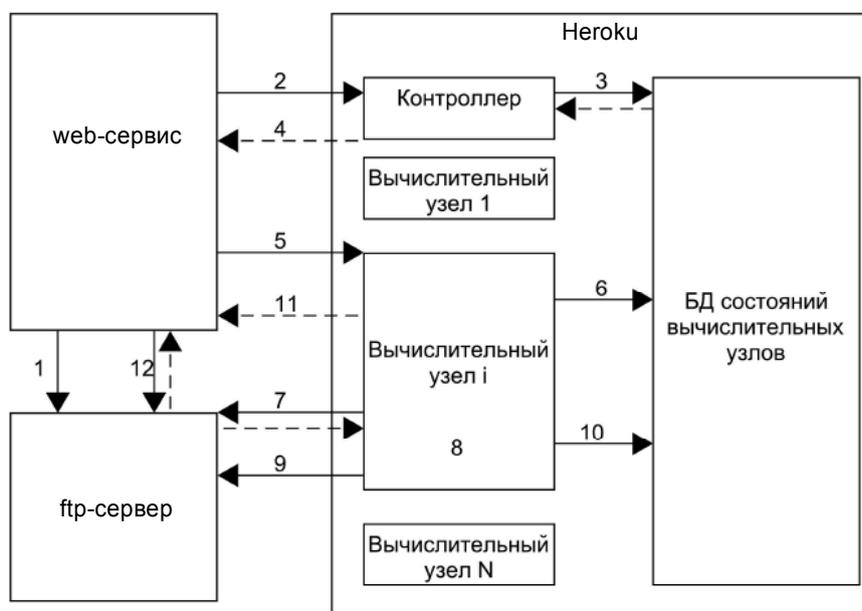


Рис. 2. Схема базы данных состояний вычислительных узлов

Далее приведено описание шагов обработки задачи:

1. Web-сервис загружает изображения на ftp-сервер.
2. Web-сервис обращается к узлу-контроллеру (Heroku) для получения информации о состоянии вычислительных узлов.
3. Узел-контроллер соединяется с базой данных состояний вычислительных узлов (Heroku PostgreSQL) и загружает информацию о состоянии системы.
4. Узел-контроллер возвращает web-сервису информацию о состоянии вычислительных узлов.
5. Web-сервис выбирает узел, на который подается запрос на обработку с параметрами количества изображений в последовательности и массив имен файлов.
6. Вычислительный узел указывает в базе данных состояний узлов Heroku PostgreSQL информацию о том, что он занят.
7. По этим ссылкам вычислительный узел загружает изображения из ftp-сервера.
8. Вычислительный узел производит решение задачи: для каждой пары изображений вычисляет поле скоростей в виде пары матриц в одном файле данных.
9. Вычислительный узел сохраняет файлы результата на ftp-сервер.

10. Вычислительный узел указывает в базе данных состояний узлов Heroku PostgreSQL информацию о том, что он свободен.
11. Web-сервис получает ответ на POST запрос от вычислительного узла, содержащий информацию о завершении обработки задачи. Пользователю предоставляется результат в виде набора ссылок на файлы результата, хранящиеся на ftp-сервере
12. Пользователь может скачать файлы результата с ftp-сервера или просмотреть визуализацию потока на сайте.

Пример: сдвиг карты

Метод оптического потока можно применять для анализа карт местности, получаемых в результате аэрофотосъемки. Рассмотрим сдвиг карты на вектор 1, 1 вниз-вправо (рис. 3).

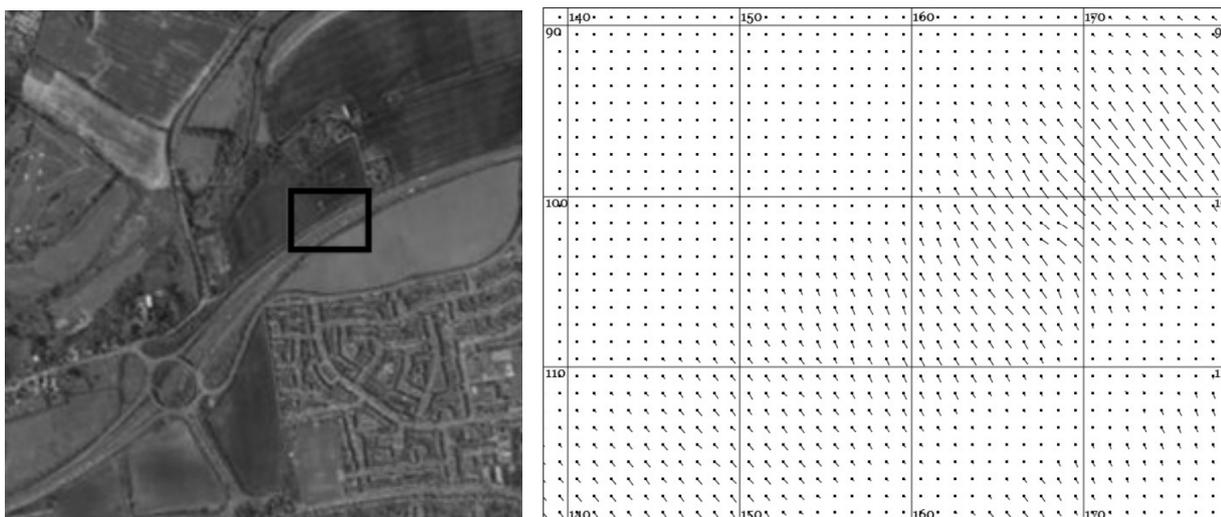


Рис. 3. Исходное изображение и результат работы

Анализ

Для проведения анализа работы алгоритмов необходимо выбрать величины, по которым будем производить сравнение. В качестве таковых выберем величины, которые будут отражать средние отклонения вычисленных величин от реальных

$$E_{\phi} = \frac{1}{wh} \sum_{i,j=i_0,j_0}^{i_w,j_h} \phi_{ij} - \phi_0,$$

$$E_r = \frac{1}{wh} \sum_{i,j=i_0,j_0}^{i_w,j_h} (u_{xij} - u_x)^2 + (u_{yij} - u_y)^2. \quad (5)$$

Здесь область $i = i_0 \dots i_w$, $j = j_0 \dots j_h$ – фрагмент изображения размером wh ; ϕ_0 , u_x, u_y – соответственно фазовый угол и компоненты известного вектора сдвига изображения; ϕ_{ij} , u_{xij} , u_{yij} – соответственно фазовый угол и компоненты вектора, вычисленного для точки i, j . E_{ϕ} измеряется в радианах, так как это нормированная сумма ошибок при определении фазового угла по всем точкам изображения. E_r измеряется в квадратных пикселях, так как мы определяем компоненты вектора скорости в пикселях, деленных на кадр.

Приведем сравнение различных вариантов линеаризации схемы (3), (4):

1. Оригинального алгоритма Horn – Schunck.
2. Модифицированного смешанного алгоритма Horn – Schunck и Лукаса – Канаде, где точке с координатами i_0, j_0 соответствует множество точек

$$\{(i_0 + i, j_0 + j) \mid i \in \{-1, 0, 1\}, j \in \{-1, 0, 1\}\}.$$

3. Модифицированного смешанного алгоритма Horn – Schunck и Лукаса – Канаде с подчеркиванием границ.

Результаты сравнения методов для примера сдвига карты представлены в таблице.

Сравнение методов для сдвига карты

E_ϕ – средняя ошибка фазового угла вектора поля скоростей				
Число итераций	5	20	40	60
Оригинальный Horn – Schunck	0.516	0.295	0.236	0.207
Смешанный Horn – Schunck и Лукаса – Канаде	0.619	0.627	0.668	0.739
Смешанный Horn – Schunck и Лукаса – Канаде с подчеркиванием границ	0.619	0.627	0.668	0.739
Оригинальный Horn – Schunck с подчеркиванием границ	0.516	0.295	0.236	0.207
E_r – средняя ошибка длины вектора поля скоростей				
Число итераций	5	20	40	60
Оригинальный Horn – Schunck	2.637	2.498	2.347	2.246
Смешанный Horn – Schunck и Лукаса – Канаде	2.268	1.877	1.795	1.578
Смешанный Horn – Schunck и Лукаса – Канаде с подчеркиванием границ	2.268	1.877	1.795	1.578
Оригинальный Horn – Schunck с подчеркиванием границ	2.637	2.498	2.347	2.246

Анализируя результаты, можно сделать вывод, что смешанный алгоритм дает более точные оценки поля скоростей.

Заключение

Рассмотрена реализация метода определения поля скоростей, которую можно применять для анализа движения объектов на изображениях. Проведено сравнение различных вычислительных схем. Данную систему можно улучшить несколькими способами, а именно, добавить визуализацию работы описанного распределенного приложения [5], помимо обработки последовательности изображений прибавить обработку файла видео, ускорить вычислительный процесс, добавив распределение одной задачи на несколько узлов, и усовершенствовать отказоустойчивость системы при выходе из строя вычислительных узлов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Horn B. K. P. and Schunck B. G. // Artificial Intelligence. – 1981. – No. 17. – P. 185–203.
2. Смирнов К. В. // Процессы управления и устойчивость. – 2014. – Т. 1. – № 1. – С. 272–276.
3. Вержбицкий В. М. Основы численных методов: учебник для вузов. – М.: Высшая школа, 2002. – 840 с.
4. Velocity Flow [Электронный ресурс]: URL: <http://velocityflow.herokuapp.com> (дата обращения: 15.03.16).
5. Якушкин О. О., Гришкин В. М. // Компьютерные исследования и моделирование. – 2015. – Т. 7. – № 3. – С. 529–532.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

¹ Санкт-Петербургский государственный университет, г. Санкт-Петербург, Россия

² Северский технологический институт Национального исследовательского ядерного университета «МИФИ», г. Северск, Россия

K.V. SMIRNOV¹, B.A. FAUSTOV¹, I.L. FAUSTOVA²

DISTRIBUTED SYSTEM FOR CALCULATING THE VELOCITY FIELD

This paper considers the implementation of the method for determining the velocity field, which can be used to find the optical flux of radionuclide images. The velocity field is one of the forms of representing the movement of objects in the image, in which each point of the image is associated with a velocity vector that corresponds to the point on the object. The article provides a mathematical description of the method used and its implementation using cloud technologies.

Keywords: *velocity field, optical flow, image processing.*

¹ Saint-Petersburg State University, Saint-Petersburg, Russia

² Seversk Technological Institute National Research Nuclear University «MEPHI», Seversk, Russia

Smirnov Konstantin Valer'yevich, Postgraduate Student SPbU, e-mail: constcoh@gmail.com;

Faustov Bogdan Andreyevich, Postgraduate Student SPbU, e-mail: bogfaust@gmail.com;

Faustova Inna Leontievna, Candidate of Physical and Mathematical Sciences, Docent STI NRNU «MEPHI», e-mail: infaust@rambler.ru.

УДК 681.2.083

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/106

Г.В. СУМИН, А.А. ДЕНИСЕВИЧ, А.Г. ГОРЮНОВ, С.Н. ЛИВЕНЦОВ

РАЗРАБОТКА СИСТЕМЫ ИЗМЕРЕНИЯ МАЛЫХ РАСХОДОВ РАДИОАКТИВНЫХ ЖИДКОСТЕЙ РАДИОХИМИЧЕСКИХ ПРОИЗВОДСТВ

Разрабатывалась установка для повышения точности дозирования растворов в технологических процессах ядерных производств. Система реализована с использованием дифференциального манометра и капиллярного сенсора перепада давления. Проведены эксперименты с различными конфигурациями капиллярного сенсора: длины капилляра, внутренние диаметры. Эксперименты проводились на жидкостях различной плотности и вязкости. Представлены результаты экспериментов, структурная схема системы измерения.

Ключевые слова: расход, давление, капилляр, датчик, дозирование.

Введение

Одной из главных особенностей проекта «Прорыв», ключевая задача которого – реализация замкнутого ядерного топливного цикла (ЗЯТЦ), является малая производительность аппаратов и, как следствие, малые выходные материальные потоки, измерение которых важно для поддержания корректных технологических режимов. Измерение малых расходов (до 18 л/ч) растворов радиохимических производств является специфичной задачей, так как накладываются определенные ограничения на использование оборудования для проведения измерений из-за агрессивности и радиоактивности применяющихся растворов [1].

Проблема точного дозирования на производствах в настоящий момент решается за счет использования перистальтических насосов. Однако из-за своей конструкции при длительном использовании данного насоса в результате механических воздействий гибкий шланг испытывает деформацию, вследствие чего меняется характеристика расхода. Измерения расходов используемых растворов необходимы как для устранения влияния механической деформации, так и для контроля количества используемых реагентов и повышения точности дозирования растворов путем корректировки значения мощности питающих насосов по измеренным значениям расхода. Точное поддержание заданных расходов технологических сред на входах аппаратов, особенно экстракторов – необходимое условие успешного проведения технологической операции [2, 3].

В настоящее время на рынке приборов контроля расхода жидких сред существует множество датчиков, основанных на различных принципах действия: тахометрические, расходомеры постоянного и переменного перепада давления, ультразвуковые, кориолисовы расходомеры и др. Но далеко не все приборы позволяют измерять малые расходы в диапазоне до 18 л/ч.

Известны следующие серийно выпускаемые датчики измерения малых расходов жидких сред:

- ультразвуковые расходомеры серии Es-Flow (компания «Bronkhorst»);
- кориолисовы расходомеры-дозаторы серии mini CORI-FLOW (компания «Bronkhorst»);
- кориолисовы расходомеры серии LF (компания «Micro Motion» корпорации «Emerson»).

Однако указанные измерители малых расходов не могут применяться для радиоактивных жидкостей и не могут устанавливаться в «горячих» камерах (из-за невозможности отделения и дистанционного удаления электронного модуля от сенсора).

Цель работы – разработка установки для повышения точности дозирования растворов в технологических процессах ядерных производств.

1. Разработка системы измерения малых расходов

Для решения проблемы, представленной во введении, была разработана система измерения малых расходов на основе датчика дифференциального давления ДМ5017 и гидравлического сопротивления.

Потеря давления в гидравлическом сопротивлении любого типа зависит от расхода. Поэтому при измерении перепада давления, существующего с обеих сторон гидравлического сопротивления (преобразователь), можно судить о расходе. Преобразователь давления в расход представляет собой капиллярную трубку определенной длины, скрученную в виде спирали.

Получив уравнение зависимости между расходом (эталонным) и перепадом давления на капилляре, можно в дальнейшем, зная перепад, по уравнению рассчитать расход (экспериментальный). Схема измерителя малых расходов представлена на рис. 1.

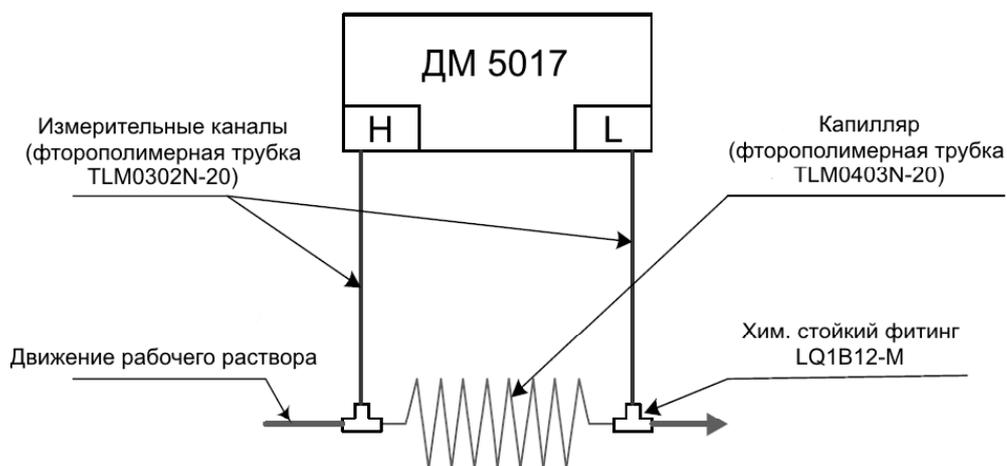


Рис. 1. Схема измерителя малых расходов

Для регистрации перепада давления к торцам фторполимерной трубки TLM0403N-20 подведены измерительные каналы (капилляр TLM0302N-20), которые присоединяются к фитингам LQ1B12-M, а именно к выступающей части, так как по прямому участку тройника будет проходить рабочий раствор. Рабочий раствор представляет собой агрессивную жидкость (азотная кислота и трибутилфосфат). В данной ситуации агрессивная жидкость может по соединительным трубкам попасть в сенсорный блок датчика дифференциального давления, что приведет к его поломке, так как при взаимодействии ее с преобразователями они могут выйти из строя, и тогда будет невозможно производить измерения расхода.

Чтобы избежать данной проблемы, было решено использовать промывочную жидкость, которая подается насосом из бака с разделительной жидкостью через сенсорный блок датчика дифференциального давления по направлению к преобразователю. В качестве разделительной жидкости для уменьшения влияния на производственный процесс можно использовать дистиллированную воду либо среду без радиоактивного излучения, не изменяющую технологический процесс, расход которой измеряется. Экспериментально установлено, что для подводящих капилляров длиной до 10 м (фторполимерная трубка с внутренним диаметром 2 мм) достаточно осуществлять промывку с периодом 1 раз в 8 ч длительностью в 1 с, что не оказывает существенного воздействия на технологический процесс [4, 5].

Применение датчика ДМ 5017 обусловлено его отличительной особенностью: наличием модуля реализации дополнительных функций (дискретные выходы релейного типа, сигнализирующее устройство и дискретный вход типа «Сухой контакт»). Управление модулем происходит по интерфейсу RS-485 с помощью протокола Modbus RTU.

Для управления и снятия выходных характеристик с измерителя малых расходов используется программируемый логический контроллер (ПЛК) 154-220 А.М. фирмы «ОВЕН». Контроллер также производит предварительные расчеты, необходимые для корректного функционирования системы. Визуализация получаемых данных в виде графиков реализуется в программной среде Codesys 2.3.

Структурная схема системы автоматизации представлена на рис. 2. Рабочий раствор прокачивается через контур с помощью перистальтического насоса, управление которым производится с ПЛК по протоколу Modbus RTU. Перепад давления, полученный на капиллярном расходомере, передается датчиком ДМ 5017 в ПЛК для дальнейшей обработки также по протоколу Modbus RTU. Состояние клапанов и промывочного насоса определяют дискретные выходы дополнитель-

ного модуля датчика ДМ 5017, управление которым происходит с ПЛК. Данные для архивирования передаются с ПЛК на ПК по протоколу Modbus TCP/IP.

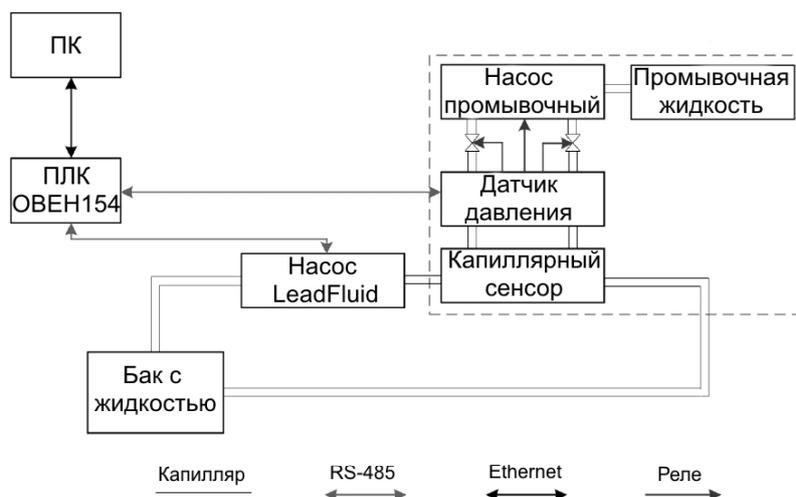


Рис. 2. Структурная схема автоматизации системы измерения малых расходов

2. Экспериментальные исследования системы измерения малых расходов

Для изучения влияния конфигурации капиллярного сенсора и исследуемой жидкости на показания перепада давления была проведена серия экспериментов. Измерения проводились на капиллярах, имеющих разные длины, диаметры намотки, внутренние диаметры капилляра, и на жидкостях различной вязкости и плотности.

На рис. 3 приведен пример обработки эксперимента, в котором использовался капилляр длиной 2 м, намотанный на шнек, диаметр которого 2 см, внутренний диаметр капилляра 3 мм. Эксперимент проводился на дистиллированной воде с плотностью 998.2 кг/м^3 при температуре $25 \text{ }^\circ\text{C}$.

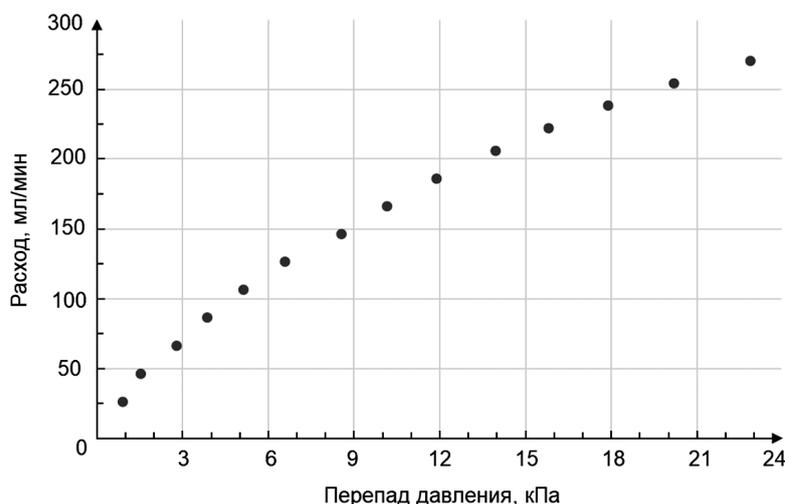


Рис. 3. Зависимость расхода от перепада давления на сенсоре

На рис. 4 приведено сопоставление значений эталонного расхода и значений расхода, полученных с опытного расходомера. По полученным данным максимальная приведенная к диапазону измерения погрешность измерения расхода составила 3.4%.

Далее представлены результаты экспериментов с разной длиной, внутренним диаметром капилляра исследуемой жидкости различной вязкости и плотности. В качестве исследуемой жидкости использовались растворы глицерина с водой различной концентрации.

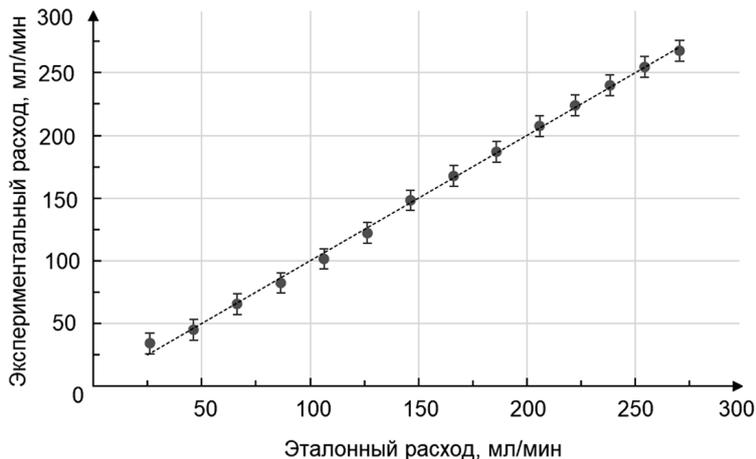


Рис. 4. Сопоставление значений эталонного расхода и значений расхода, полученных с опытного расходомера

На рис. 5 представлены результаты эксперимента для жидкости вязкостью 3.32 сСт и плотностью 1095 г/см³ на капиллярах разной длины (90, 120 и 180 см) и различного внутреннего диаметра (2, 3 и 4 мм).

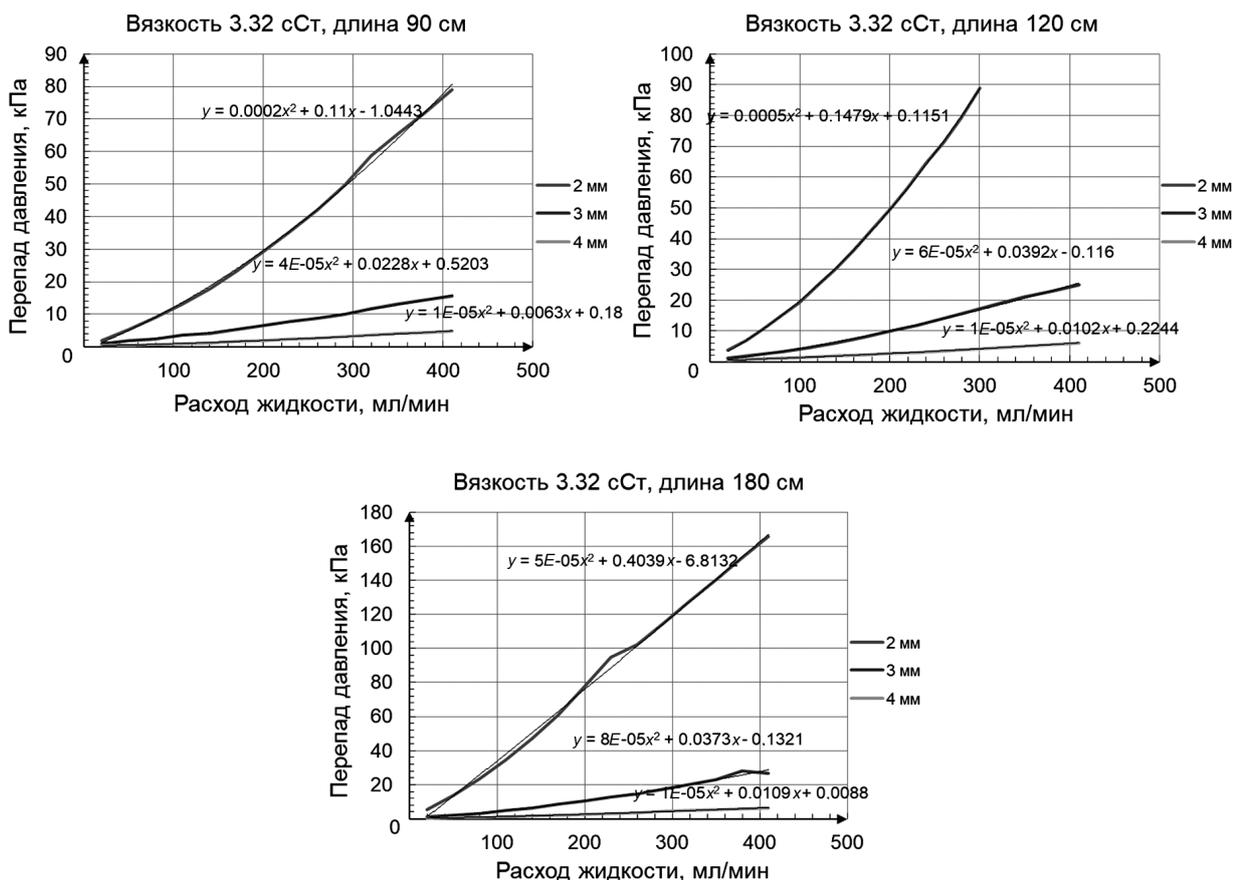


Рис. 5. Результаты экспериментов для жидкости вязкостью 3.32 сСт на капиллярах с разными длинами и внутренними диаметрами

На рис. 6 представлены результаты эксперимента для жидкости вязкостью 5.52 сСт и плотностью 1125 г/см³ на капиллярах разной длины (90, 120 и 180 см) и различного внутреннего диаметра (2, 3 и 4 мм).

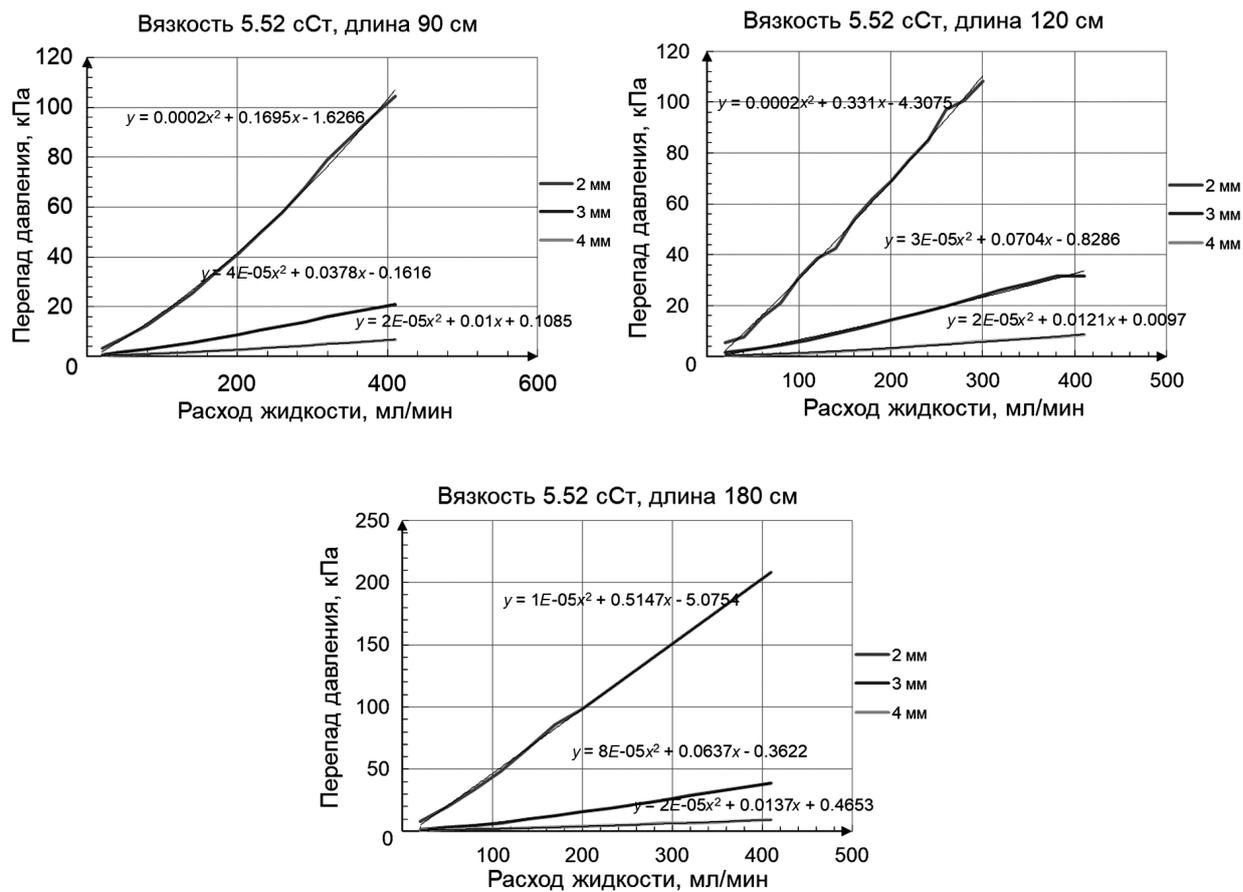


Рис. 6. Результаты экспериментов для жидкости вязкостью 5.52 сСт на капиллярах с разными длинами и внутренними диаметрами

На рис. 7 представлены результаты эксперимента для жидкости вязкостью 13.16 сСт и плотностью 1170 г/см^3 на капиллярах разной длины (90, 120 и 180 см) и различного внутреннего диаметра (3 и 4 мм). На капилляре с внутренним диаметром 2 мм эксперименты не проводились, так как перепад давления был существенно больше 100 кПа (максимальное значение перепада давления на ДМ5017).

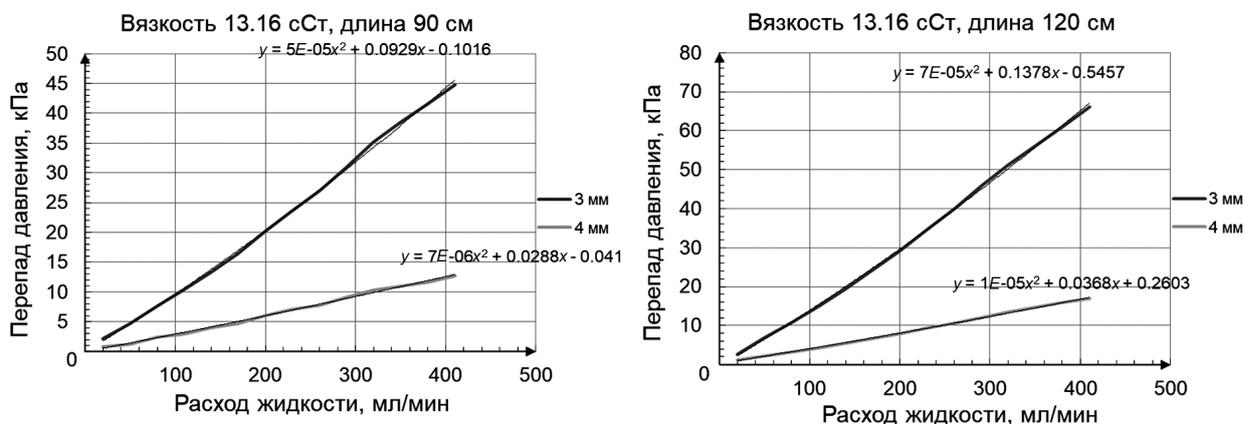


Рис. 7. Результаты экспериментов для жидкости вязкостью 13.16 сСт на капиллярах с разными длинами и внутренними диаметрами (см. также с. 111)

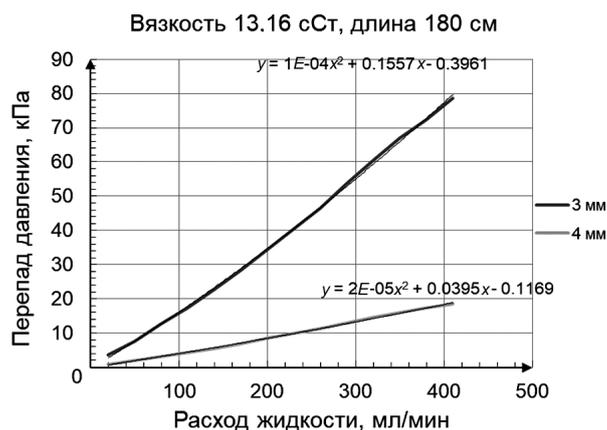


Рис. 7. Окончание

Заключение

В результате проделанной работы разработан измеритель малых расходов на основе капиллярного расходомера. Конструкция измерителя удовлетворяет следующим условиям: возможности разделения и дистанционного удаления сенсорной части от электронной и возможности измерения расхода агрессивной жидкости.

Экспериментальные испытания показали, что приведенная погрешность измерения расходов на диапазоне от 0 до 300 мл/мин составляет не более 3.5%, на диапазоне от 0 до 100 мл/мин – не более 3%.

Разработано ПО, которое позволило реализовать взаимодействие между основными элементами системы. Управление и сбор информации со всех устройств производится с ПК оператора.

На основе разработанного измерителя малых расходов синтезирована и испытана автоматизированная система стабилизации малых расходов.

Проведены эксперименты с различными конфигурациями сенсоров давления и жидкостями различной плотности и вязкости. Результаты, полученные в ходе экспериментов, в дальнейшем будут использованы для разработки справочного материала по конфигурации сенсора для конкретных параметров исследуемой жидкости.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Shadrin A.Y., Ivanov V.B., Skupov M.V., et al. // Atomic Energy. – 2016. – V. 121. – P. 119–126.
2. Кремлевский П.П. Расходеры и счетчики количества веществ: справочник. Кн. 1. – 5-е изд., перераб. и доп. – СПб.: Политехника, 2002. – 409 с.
3. Левин В.М. Расходомеры малых расходов для схем промышленной автоматики. – М.: Энергия, 1972. – 72 с.
4. Монахов В.И. Измерение расхода и количества жидкости, газа и пара. – М.; Л.: Госэнергоиздат, 1962. – 128 с.
5. Pletnev A.O., Denisevich A.A., Goryunov A.G., and Manenti F. // Chem. Eng. Trans. – 2018. – V. 70. – P. 1411–1416. DOI: 10.3303/CET1870236.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

Национальный исследовательский Томский политехнический университет,
г. Томск, Россия

Сумин Григорий Викторович, студент, техник НОЛ ЭАФУ НИ ТПУ, e-mail: gvs9@tpu.ru;

Денисевич Александр Александрович, аспирант, ассистент ОЯТЦ НИ ТПУ, e-mail: DenisevichAA@tpu.ru;

Горюнов Алексей Германович, д.т.н., зав. кафедрой – руководитель отделения на правах кафедры НИ ТПУ, e-mail: alex1479@tpu.ru;

Ливенцов Сергей Николаевич, д.т.н., профессор, заведующий НОЛ ЭАФУ НИ ТПУ, e-mail: liventsov@tpu.ru.

*G.V. SUMIN, A.A. DENISEVICH, A.G. GORYUNOV, S.N. LIVENTSOV***DEVELOPMENT OF A SYSTEM FOR MEASURING LOW CONSUMPTIONS OF RADIOACTIVE LIQUIDS OF RADIO-CHEMICAL PRODUCTIONS**

The purpose of the work is a development of an installation for increasing the accuracy of dosing solutions in technological processes of nuclear industries. The system is implemented by using a differential pressure gauge and a capillary differential pressure sensor. Experiments have been carried out with various configurations of a capillary sensor: different capillary lengths, internal diameters. The experiments were carried out on liquids of various density and viscosity. The results of experiments, block diagram of the circuit are presented.

Keywords: *flow rate, pressure, capillary, sensor, dosing.*

National Research Tomsk Polytechnic University, Tomsk, Russia

Sumin Grigoriy Viktorovich, Student, Technician of SEL EAPS NR TPU, e-mail: gvs9@tpu.ru;

Denisevich Alexander Alexandrovich, Post-Graduate Student, Assistant at the NFCD NR TPU, e-mail: DenisevichAA@tpu.ru;

Goryunov Aleksey Germanovich, Doctor of Technical Sciences, Head of the NFCD NR TPU, e-mail: alex1479@tpu.ru;

Liventsov Sergey Nikolaevich, Doctor of Technical Sciences, Professor, Head of SEL EAPS NR TPU, e-mail: liventsov@tpu.ru.

УДК 621.039.58

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/113

Е.А. СУХАНОВ, О.В. СЕЛИВАНИКОВА

ПРОГРАММНО-АНАЛИТИЧЕСКИЙ КОМПЛЕКС ПО ПРОЕКТИРОВАНИЮ И ОЦЕНКЕ ЗАЩИЩЕННОСТИ ПЕРИМЕТРА ЯДЕРНОГО ОБЪЕКТА

Представлена разработка модуля программно-аналитического комплекса по проектированию и оценке защищенности периметра охраняемой зоны системы физической защиты. Предлагаемый вариант позволяет повысить уровень защищенности за счет проведения оценки периметра на проектном этапе и анализа выбранного оснащения с учетом особенностей размещения ядерного объекта. Разработанный модуль планируется внедрить в программно-аналитический комплекс для дальнейшего использования в области подготовки специалистов.

Ключевые слова: физическая защита, периметр ядерного объекта, ядерный материал, внешний нарушитель, проектирование системы физической защиты.

Введение

В последние годы растет активность террористических организаций, которые хотят обладать контролем над ядерным оружием или ядерным материалом. Потенциальное владение таким видом оружия может привести к серьезным последствиям. Для противодействия угрозам в отношении ядерного материала мировое сообщество сформировало режим нераспространения ядерных материалов. Одной из мер данного режима является физическая защита, которая направлена на противодействие несанкционированным действиям в отношении ядерного материала или ядерных установок. Данная мера закреплена международной конвенцией, принятой 26 октября 1979 г. [1].

Российская Федерация также подписала данную конвенцию. Для выполнения требований, прописанных в конвенции, в России были разработаны нормативные акты на разных уровнях, обязывающие создание системы физической защиты на каждом ядерном объекте. Процесс проектирования системы физической защиты можно поделить на следующие стадии: предпроектная, проектная, оценка эффективности. С развитием электронно-вычислительных машин появилась возможность упрощения процесса проектирования благодаря использованию специализированного программного обеспечения на предпроектной и проектной стадиях.

На текущий момент существуют программные продукты, которые помогают решать одну из конкретных задач, а именно: оценку эффективности или проектирование системы физической защиты. В качестве примера можно привести программу «Вега-2», которая занимается оценкой эффективности [2]. В настоящее время в мире ведутся работы по созданию комплексов, которые позволили бы при проектировке проводить оценку эффективности. В качестве примера можно привести разработку группы ученых из Китая, которые представили свою концепцию подобного программного комплекса [3]. Минусом данной платформы является невозможность проверки на соответствие нормативно-правовой базы и основных принципов построения системы физической защиты с учетом особенностей объекта.

Цель данной работы – разработка модуля программно-аналитического комплекса по проектированию и оценке защищенности периметра охраняемой зоны объекта. Для достижения поставленной цели рассматривалась нормативно-правовая база по построению периметра ядерного объекта, разработан общий алгоритм по проектировке и оценке защищенности периметра объекта.

1. Проектирование периметра

Угроза со стороны террористических организаций в отношении кражи ядерного материала или саботажа ядерных установок зачастую представляется в виде внешних нарушителей. Следовательно, необходимо обеспечивать защиту от проникновения на охраняемую территорию с возможностью обнаружения несанкционированного прохода. Для предотвращения такого вторжения по границе защищенной зоны организуется периметр.

По требованиям нормативной базы [4], периметр должен содержать не менее двух физических барьеров с контрольно-следовой полосой. На барьерах должны размещаться технические средства обнаружения, работающие на разных физических принципах. В исключительных случаях допускается заменить контрольно-следовую полосу на дополнительное инженерное ограждение.

Помимо устанавливаемого комплекса инженерно-технических средств, применяются организационные мероприятия. Например, обход периметра и проверка целостности контрольно-следовой полосы. Таким образом, необходимо учитывать данные требования при оснащении границы защищенной зоны и принимать во внимания особенности объекта, которые могут повлиять на уровень защищенности. Учитывая эти обстоятельства, в программно-аналитическом комплексе реализована возможность введения данных параметров проектировщиком.

Первые два шага в комплексе являются подготовительными. На первом шаге комплекс предлагает задать параметры ядерного объекта с возможностью использования двумерного графического интерфейса. Специалист задает рельеф, наличие водной и береговой части на территории объекта, расположение зданий. Данные из графического редактора конвертируются в компьютерно-математическую модель, в дальнейшем с ней будет работать аналитическая часть программы. Помимо этого, задается предмет физической защиты и его расположение. Вторым шагом пользователь вводит данные о модели нарушителя с основными его характеристиками, например: количество нарушителей, степень физической подготовки, время действия, оснащение и т.д. Введенные данные необходимы, так как они тоже влияют на степень защищенности объекта и в дальнейшем будут использоваться для расчетов временных характеристик.

На третьем шаге начинается проектировка периметра. Каждое инженерное средство проектируется по отдельности, в интерфейсе задаются следующие параметры: тип, высота физического барьера и т.д. При каждом проектировании ограждения предлагается выбрать средство обнаружения из базы данных или же внести собственное средство с указанием его основных характеристик. Каждое техническое средство размещается на высоте, задаваемой проектировщиком, если зона обнаружения не охватывает всю высоту данного ограждения, то программный комплекс предлагает добавить дополнительный датчик или же изменить параметр размещения основного средства обнаружения, подсказывая оптимальное значение. Существует также возможность установления организационных мероприятий на определенных типах инженерных средств, например, обход патрульной службы по тропе наряда. Затем специалист имеет возможность выбрать способ преодоления барьера нарушителями либо, в противном случае, программа автоматически выберет наименьший по времени способ, исходя из оснащения нарушителей.

После всех заданий параметров пользователь может сохранить инженерное средство и перейти к следующему. В комплексе допускается изменение предыдущих физических барьеров без возможности удаления, в противном случае необходимо проводить очистку всех барьеров и начинать проектировку заново.

Важно также учитывать, что на объект должен быть организован санкционированный доступ для работников [5] автомобильного и железнодорожного транспорта при необходимости. Для выполнения этих задач в программном комплексе предусмотрена возможность проектировки разных видов контрольно-пропускных пунктов. Реализуется это через разработанный двухмерный графический редактор, позволяющий визуальнo проектировать пункты и выбирать применяемые организационные меры. На рис. 1 представлен пользовательский интерфейс заполненных физических барьеров комплекса.



Рис. 1. Спроектированные физические барьеры программного комплекса

2. Проведение анализа и оценка защищенности

На последующих шагах проводится аналитика и оценка защищенности проектируемого решения, по результатам которой пользователю предлагается способ улучшения системы физической защиты периметра. При проведении оценки защищенности системы физической защиты применяются две разные методики. Первая методика позволяет определить время действия нарушителей и сил реагирования, вторая методика основана на вероятности обнаружения несанкционированных действий. Важно принимать во внимание при оценке временных характеристик степень подготовки злоумышленников, время несанкционированных действий, так как они влияют на длительность преодоления физических барьеров. Например, в ночное время суток длительность по преодолению ограждения увеличивается, а в дневное время, наоборот, уменьшается [6]. Поэтому при расчете учитываем данные факторы с помощью вводимых поправок. В основном выделяют три способа преодоления барьера, а именно: перелаз, подкоп и пролом. Рассчитать время перелаза нарушителями физического барьера можно по формуле

$$T = B \cdot n \cdot t \cdot K \cdot P \cdot h, \quad (1)$$

где T – время преодоления нарушителем или группой нарушителей физического барьера путем перелаза; B – коэффициент поправки на время суток совершения несанкционированных действий; n – количество нарушителей; t – время на преодоление барьера одним человеком без использования технических средств; K – коэффициент поправки на инвентарь нарушителя при совершении несанкционированных действий; P – коэффициент поправки на степень подготовки нарушителей; h – высота барьера.

Для расчета времени подкопа или пролома используется формула

$$T = B \cdot t \cdot K \cdot P. \quad (2)$$

Здесь T – время преодоления нарушителем или группой нарушителей физического барьера путем подкопа или пролома; B – коэффициент поправки на время суток совершения несанкционированных действий; t – время на преодоление барьера одним человеком с использованием саперной лопатки; K – коэффициент поправки на инвентарь нарушителя при совершении несанкционированных действий; P – коэффициент поправки на степень подготовки нарушителей.

На пятом шаге проводится построение маршрута движения службы охраны для перехвата нарушителей и производится расчет времени до точки пересечения, со сравнением между собой значений. Если время движения караула меньше, чем время продвижения злоумышленников, то результат выводится пользователю. Если значения группы реагирования больше, то происходит заново построение маршрута с другой точкой пересечения. Такой расчет продолжается до тех пор, пока не обнаружится оптимальное пересечение, позволяющее охранникам прибыть раньше нарушителя.

Следующим шагом программно-аналитический комплекс проводит расчет вероятности обнаружения нарушителя при преодолении физических барьеров. Для нахождения данной характеристики используется формула

$$P = \sum_{i=1}^k \frac{P_i^j}{k}, \quad (3)$$

где P – вероятность обнаружения нарушителя при преодолении физического барьера; P_i^j – вероятность обнаружения i -м средством обнаружение на j -м физическом барьере; k – общее количество установленных средств обнаружения.

Параллельно проводимым расчетам происходит проверка на выполнение требований нормативно-правовой документации, а также соблюдения принципов построения систем физической защиты. В случае обнаружения какого-либо нарушения аналитический модуль формирует рекомендации по устранению или компенсирующие меры. Если в ходе проведения не выявлено нарушений, то выводится результат с сообщением об отсутствии нарушений нормативно-правовой базы.

На последнем шаге проводится оценка показателей эффективности, если показатели будут низкими, например, вероятность обнаружения ниже 90%, то модуль предложит улучшения по выбранному комплексу инженерно-технических средств, а также в автоматическом режиме произведет расчет защищенности с предложенными средствами. На рис. 2 представлен алгоритм данного модуля программы.

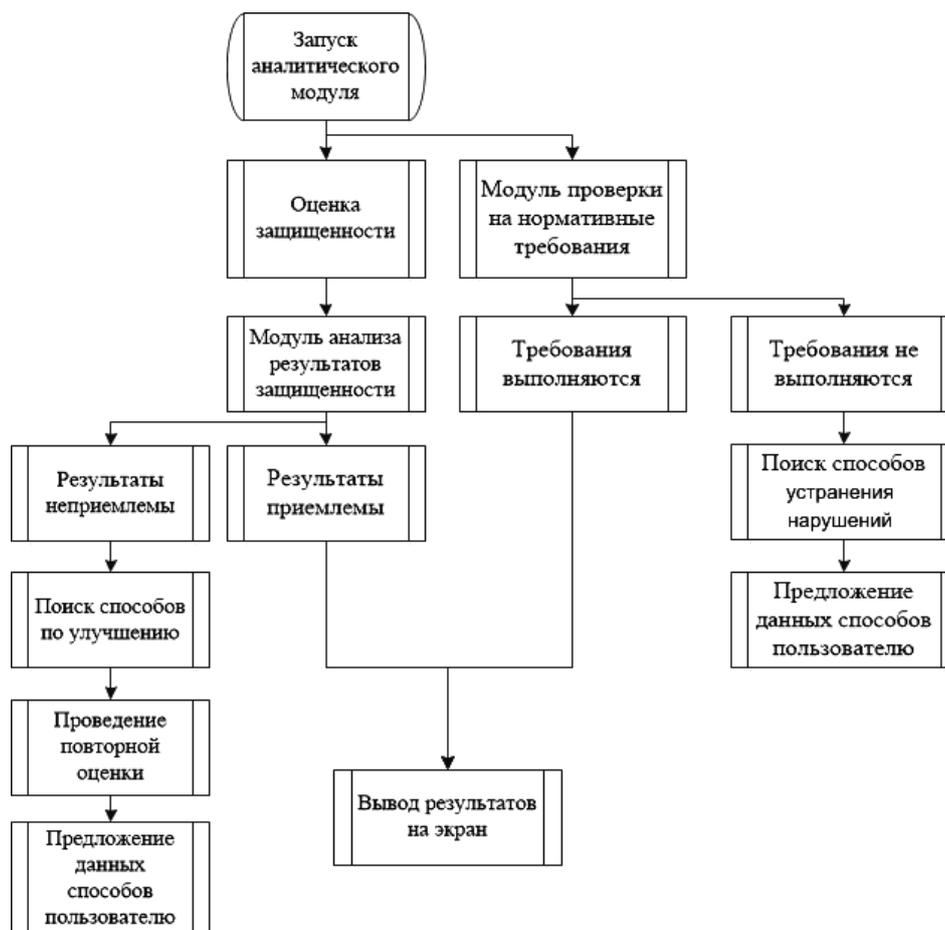


Рис. 2. Алгоритм работы аналитического модуля

3. Результаты моделирования объекта

Рассмотрим результаты на примере моделирования периметра гипотетического объекта, который будет приближен к существующему объекту ядерно-топливного цикла. В качестве основного ограждения, расположенного по границе объекта, используется железобетонное заграждение с установленным на нем радиоволновым средством обнаружения. За ним располагается контрольно-следовая полоса шириной 6 м. Затем задается второе ограждение, которое оснащается активным инфракрасным извещателем. Далее проходит тропа наряда шириной 2 м с постовыми грибами, оснащенными тревожно-вызывной сигнализацией и связью с пунктом управления. С периодичностью 40 м устанавливаются инженерные столбы высотой 4.5 м, оснащенные камерами видеонаблюдения и освещением. Завершает периметр сетчатое заграждение с вибрационным проводным датчиком.

Проектируем также контрольно-пропускные пункты для прохода персонала, проезда авто- и железнодорожного транспорта. На рис. 1 приведены результаты проектирования в программном комплексе, который описан выше. После того, как заданы все параметры, пользователь нажимает кнопку далее, отправляя все данные в аналитический модуль. Более подробно работа аналитического модуля представлена выше.

В результате в интерфейсе выводится краткая информация по анализу проектируемого решения с дальнейшим сохранением. Имеется возможность более подробно ознакомиться с приведенным анализом по каждому из пунктов и посмотреть детально результаты работы аналитического модуля. Например, рассмотреть время достижения цели нарушителями можно путем ознакомления со значениями преодоления каждого физического барьера. Помимо данных пунктов, аналитический модуль сигнализирует о том, что спроектированная граница защищенной зоны соответствует нормативным требованиям, но возможно улучшение для удобства работы персонала. Проектировщику выводятся результаты работы данного модуля, представленные на рис. 3.

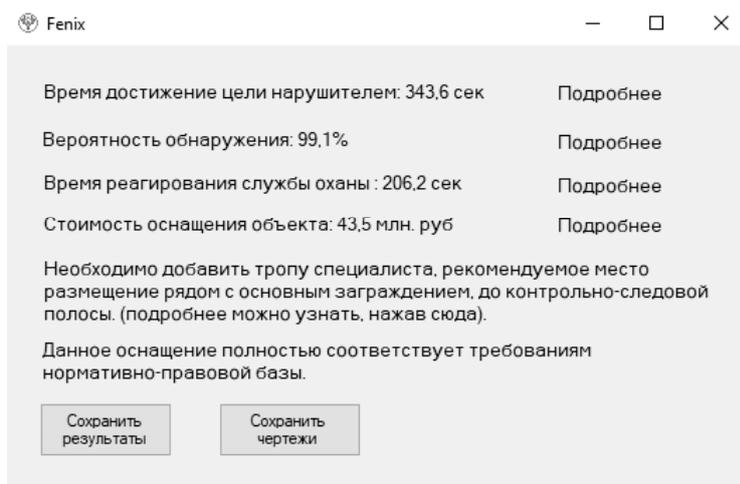


Рис. 3. Результаты моделирования периметра гипотетического объекта

Как видно из рис. 3, аналитический модуль предлагает добавить тропу для специалиста, который производит обслуживание технических средств системы физической защиты. Более подробную справку и возможность внести правки пользователь получает при нажатии на соответствующую кнопку. Пользователю также предлагается сохранить спроектированный периметр с контрольно-пропускными пунктами в формате pdf.

Заключение

Таким образом, результатом представленной работы является разработанный модуль программно-аналитического комплекса, позволяющий производить проектирование и оценку защищенности периметра с учетом особенностей объекта. Как видно из результатов анализа спроектированного гипотетического объекта, границы защищенной зоны полностью соответствуют требованиям выдвигаемой нормативно-правовой базы. Модуль также предлагает добавить недостающие компоненты, которые не влияют на уровень защищенности, но облегчают работу персонала службы физической защиты на объекте.

Предлагаемые решения в виде программных комплексов на рынке направлены на решение одной конкретной задачи: либо проектировка, либо оценка эффективности. Разрабатываемая платформа в КНР не учитывает особенности ядерных объектов, которые могут повлиять на уровень защищенности объекта, а также принципов построения системы физической защиты. Следовательно, главной отличительной особенностью комплекса от разрабатываемых аналогов является принятие в рассмотрении особенностей объекта и проверка на соответствие нормативной базы и принципов построения физической защиты.

Использование такого программно-аналитического комплекса позволяет упростить проектирование системы физической защиты, а также улучшить ее надежность, безопасность и эффективность. Данный модуль направлен на предотвращение несанкционированных действий со стороны внешнего нарушителя или группы внешних нарушителей. Разработанный алгоритм по проектировке с учетом собранной базы данных комплекса инженерно-технических средств предоставляет специалисту огромный выбор комбинации инженерных и технических средств. Разработанный алгоритм по анализу периметра позволяет проводить проверку на соответствие требованиям выдвигаемой нормативно-правовой базы, что дает возможность также использовать данный программный комплекс при подготовке специалистов в области физической защиты. Использование комплекса в промышленности позволит упростить этап проектировки и сократить время на разработку системы физической защиты.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Конвенция о физической защите ядерного материала и ядерных установок [Текст] // Собр. законодательства РФ. – 2007. – № 46 (12 нояб.). – Ст. 5218.
2. Программный комплекс «ВЕГА-2». [Электронный ресурс]. – Режим доступа: <https://www.eleron.ru/production/special-programs/vega-2>. – 8.10.2020.
3. Zou Bowen and Yang Min // IEEE Trans. Systems, Man, and Cybernetics: Systems. – 2017. – No. 11.

4. НП-083-15. Требования к системам физической защиты ядерных материалов, ядерных установок и пунктов хранения ядерных материалов. [Электронный ресурс]. – Введен 23.11.2015 г. – Режим доступа: http://www.consultant.ru/document/cons_doc_LAW_189442/. – 10.10.2020.
5. П о с т а н о в л е н и е Правительства Российской Федерации «Об утверждении Правил физической защиты ядерных материалов, ядерных установок и пунктов хранения ядерных материалов» от 19.07.2007 № 456 // Российская газета. 2007 г. с изм. и доп. в ред. от 05.07.2018.
6. С о к о л о в Е. Е. Физическая защита ядерных материалов и установок. – М.: НИЯУ МИФИ, 2010. – 78 с.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

Национальный исследовательский Томский политехнический университет,
г. Томск, Россия

Суханов Евгений Андреевич, магистрант НИ ТПУ, e-mail: eas70@tpu.ru;

Селиваникова Ольга Валерьевна, ст. преподаватель ОЯТЦ НИ ТПУ, e-mail: selov@tpu.ru.

E.A. SUKHANOV, O.V. SELIVANIKOVA

ANALYTICAL SOFTWARE FOR DESIGN AND PROTECTION ASSESSMENT OF THE PERIMETER OF A NUCLEAR OBJECT

The work is devoted to the development of a module for the design and security assessment of the protected zone perimeter of the physical protection system of a nuclear facility. The proposed option allows increasing the level of security by assessing the effectiveness at the design stage and analyzing the selected equipment, taking into account the specifics of the location of the nuclear facility. The developed module is planned to be introduced into the software-analytical complex for further implementation in the areas of training specialists and industry.

Keywords: *physical protection, perimeter of a nuclear facility, nuclear material, outside intruder, design of a physical protection system.*

National Research Tomsk Polytechnic University, Tomsk, Russia

Sukhanov Evgeniy Andreevich, Student NR TPU, e-mail: eas70@tpu.ru;

Selivanikova Olga Valerievna, Senior Lecturer, Division for Nuclear-Fuel Cycle NR TPU, e-mail: selov@tpu.ru.

УДК 004.9+622.2

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/119

Т.С. ТЕРОВСКАЯ, А.Г. КЕСЛЕР, М.Д. НОСКОВ

МАТЕМАТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ ИЗМЕНЕНИЯ СОСТОЯНИЯ ПРОДУКТИВНОГО ГОРИЗОНТА ПРИ СЕРНО-КИСЛОТНОМ СКВАЖИННОМ ВЫЩЕЛАЧИВАНИИ УРАНА

Представлена математическая модель, описывающая основные гидродинамические и физико-химические процессы, происходящие при серно-кислотном скважинном подземном выщелачивании урана. Приведены результаты расчетов изменения состояния рудовмещающего горизонта при нагнетании выщелачивающего раствора в однородный проницаемый пласт.

Ключевые слова: добыча урана, скважинное подземное выщелачивание, геоэкология, миграция загрязняющих веществ, математическое моделирование.

Введение

Способом скважинного подземного выщелачивания (СПВ) разрабатывают экзогенные месторождения урана, в которых рудное тело находится в хорошо проницаемом подземном водоносном горизонте (продуктивном горизонте). Извлечение урана из рудного тела происходит с помощью системы (откачных и закачных) скважин, объединенных в технологические блоки [1]. Через нагнетательные скважины в продуктивный горизонт поступает выщелачивающий раствор, содержащий реагенты, способные растворять урановые минералы. В результате физико-химического взаимодействия урановых минералов и вмещающих пород с выщелачивающим реагентом в подземном водоносном горизонте образуется содержащий уран продуктивный раствор, который извлекается на поверхность с помощью откачных скважин. Разработка месторождений методом СПВ оказывает меньшее отрицательное влияние на окружающую среду по сравнению с традиционными горными способами. Отсутствуют оседания и нарушения земной поверхности, отвалы забалансовых руд и пустых пород, а также хвостохранилища. Однако при разработке месторождения методом СПВ в результате нагнетания технологических растворов происходит загрязнение продуктивного горизонта выщелачивающими реагентами и продуктами их взаимодействия с вмещающей породой [2]. Для обеспечения экологической безопасности добычи урана способом СПВ необходимо прогнозировать изменение состояния продуктивного горизонта и распространение загрязняющих веществ в процессе разработки месторождения и после его завершения. Количественный прогноз можно получить с помощью математического моделирования [3]. Однако в большинстве работ по математическому моделированию СПВ урана решаются задачи оптимизации работы эксплуатационных блоков [4–8]. Работ, посвященных моделированию миграции загрязняющих веществ в продуктивном горизонте после завершения разработки месторождения урана методом СПВ, достаточно мало, и они основаны на упрощенном подходе к описанию физико-химических процессов [1, 9], что снижает точность прогнозирования. В связи с этим разработка математической модели, адекватно описывающей изменение состояния продуктивного горизонта и поведение загрязняющих веществ в процессе добычи урана способом СПВ и после его завершения, является актуальной.

Описание математической модели

Представлена математическая модель, описывающая основные гидродинамические и физико-химические процессы, определяющие изменение состояния рудовмещающего горизонта и поведение компонентов технологических растворов при серно-кислотном СПВ урана. К гидродинамическим процессам относится изменение напора пластовых вод, конвективный массоперенос, гидродинамическая дисперсия. Физико-химические процессы включают в себя комплексообразование, гомогенные и гетерогенные кислотно-основные и окислительно-восстановительные процессы, сорбцию – десорцию и растворение – осаждение минералов.

В рассматриваемой модели пористая среда описывается в приближении двойной пористости, согласно которому поровое пространство делится на содержащие мобильную жидкость проточные поры с пористостью m_1 и содержащие иммобильную жидкость застойные поры с пористостью m_2 [10]. Твердая фаза делится на породу, граничащую с мобильной и иммобильной частями жидкой

фазы. Предполагается, что объемные доли частей вмещающей породы, граничащие с мобильной и иммобильной частями жидкой фазы, пропорциональны проточной и застойной пористостям соответственно. Таким образом, система состоит из четырех частей Φ : мобильная часть жидкой фазы ($\Phi = 1$); иммобильная часть жидкой фазы ($\Phi = 2$); вмещающая порода, граничащая с мобильной частью жидкой фазы ($\Phi = 3$); вмещающая порода, граничащая с иммобильной частью жидкой фазы ($\Phi = 4$) (рис. 1).

Все минералы твердой фазы разделяются на растворимые и нерастворимые (инертные) [2]. К инертным минералам относятся минералы, изменением которых при взаимодействии с выщелачивающим раствором можно пренебречь. Они составляют нерастворимый скелет породы (основной объем твердой фазы). Растворимые минералы могут разделяться на подгруппы, различающиеся интенсивностью взаимодействия с раствором серной кислоты [2].

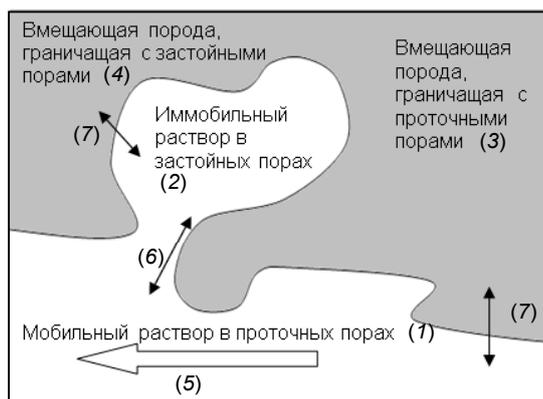


Рис. 1. Репрезентативный объем пористой среды: (1) – мобильная жидкость; (2) – иммобильная жидкость; (3) – порода, граничащая с мобильной жидкостью; (4) – порода, граничащая с иммобильной жидкостью; (5) – конвективный массоперенос; (6) – массообмен между мобильной и иммобильной жидкостями; (7) – массообмен между жидкой и твердой фазами

Концентрация компонентов в жидкой фазе описывается с помощью молярной концентрации C_{Φ}^i i -го компонента в части системы Φ :

$$C_{\Phi}^i = \frac{n_{\Phi}^i}{V_{\Phi}} \quad (\Phi = 1, 2), \quad (1)$$

где n_{Φ}^i – количество i -го компонента в части системы Φ ; V_{Φ} – объем части системы Φ . Концентрация сорбированных компонентов (\tilde{C}_{Φ}^i) в твердой фазе описывается с помощью приведенной молярной концентрации:

$$\tilde{C}_{\Phi}^i = \frac{n_{\Phi}^i}{V}. \quad (2)$$

Здесь V – репрезентативный объем пористой среды.

Концентрация минералов (\tilde{C}_{Φ}^a) в твердой фазе описывается с помощью приведенной молярной концентрации:

$$\tilde{C}_{\Phi}^a = \frac{n_{\Phi}^a}{V} \quad (\Phi = 3, 4), \quad (3)$$

где n_{Φ}^a – количество a -го минерала в части системы Φ .

Для расчета распределения напоров используется уравнение непрерывности потока жидкости для упругого режима фильтрации [3]:

$$\eta \frac{\partial H}{\partial t} = \nabla(U) + q_{in} - q_{out}. \quad (4)$$

Здесь H – напор, м; η – упругая емкость, 1/м; U – скорость фильтрации; q_{in} (q_{out}) – плотность мощности источников и стоков жидкости, связанная с работой закачных и откачных скважин.

Скорость конвективного потока жидкости определяется законом Дарси [3]:

$$U = -k \text{ grad}(H), \quad (5)$$

где k – коэффициент фильтрации, м/с.

Гидродинамическая дисперсия описывается как массообмен между мобильными и иммобильными частями жидкой фазы, при этом полагается, что поток концентрации i -го компонента $J_{1,2}^i$ (кмоль/(м³·с)) из проточных пор в застойные пропорционален разности молярных концентраций [11]:

$$J_{1,2}^i = \alpha_i (C_1^i - C_2^i), \quad (6)$$

Здесь α_i – параметр скорости массообмена i -го компонента, 1/с.

В настоящей модели полагается, что гомогенные физико-химические процессы (ассоциация-диссоциация кислот, комплексообразование, гомогенные окислительно-восстановительных реакции) протекают много быстрее гетерогенных и для описания можно использовать уравнения химического равновесия:

$$\prod_i (\gamma_{\Phi}^i C_{\Phi}^i)^{\nu_A^i} = K_A \quad (\Phi = 1, 2), \quad (7)$$

где K_A – константа химического равновесия A -й реакции; ν_A^i – стехиометрический коэффициент i -го компонента в A -й реакции; γ_{Φ}^i – коэффициент активности i -го компонента в части Φ .

Сорбция описывается в рамках приближения линейной кинетики, согласно которому поток концентрации i -го компонента из части системы Φ жидкой фазы в граничащую с ней часть системы Φ^* твердой фазы $E_{\Phi\Phi^*}^i$ задается уравнением

$$E_{\Phi\Phi^*}^i = d^i \left(C_{\Phi}^i - (C_{\Phi}^i)_{pc} \right) \quad (\Phi = 1, 2). \quad (8)$$

Здесь d^i – параметр скорости массообмена i -го компонента между раствором и породой при сорбционных процессах; $(C_{\Phi}^i)_{pc}$ – равновесная концентрация i -го компонента в части системы Φ жидкой фазы для сорбционных процессов.

Равновесная молярная концентрация $(C_{\Phi}^i)_{pc}$ в уравнении (8) описывается как функция от приведенных молярных концентраций сорбированного компонента и концентрации иона водорода:

$$(C_{\Phi}^i)_{pc} = f_c^i (\tilde{C}_{\Phi^*}^i, C_{\Phi}^{H+}) \quad (\Phi = 1, 2). \quad (9)$$

Для расчета гетерогенных кислотно-основных процессов и растворения-осаждения минералов также используется приближение линейной кинетики. Поток концентрации i -го компонента из части системы Φ жидкой фазы в граничащую с ней часть системы Φ^* твердой фазы вследствие осаждения i -го компонента в a -й минерал $G_{a,\Phi\Phi^*}^i$ полагается пропорциональным отклонению концентрации i -го компонента от равновесной:

$$G_{a,\Phi\Phi^*}^i = k_a^+ (S_{\Phi^*}^a)_{уд} \cdot \theta(-\Delta C_{\Phi,a}^i) \Delta C_{\Phi,a}^i + k_a^- \cdot \theta(\Delta C_{\Phi,a}^i) \Delta C_{\Phi,a}^i \quad (\Phi = 1, 2); \quad (10)$$

$$\Delta C_{\Phi,a}^i = C_{\Phi}^i - (C_{\Phi,a}^i)_p, \quad (\Phi = 1, 2), \quad (11)$$

где $(C_{\Phi,a}^i)_p$ – равновесная концентрация i -го компонента в части системы Φ ; $(S_{\Phi^*}^a)_{уд}$ – удельная площадь поверхности a -го минерала в части системы Φ^* ; k_a^+ (k_a^-) – константы скорости растворения (осаждения) a -го минерала; $\theta(\Delta C_{\Phi,a}^i)$ – функция Хевисайда, равная нулю для отрицательных значений $\Delta C_{\Phi,a}^i$ и единице – для положительных.

Равновесная молярная концентрация в уравнениях (10), (11) описывается как функция от молярных концентраций растворенных компонентов:

$$(C_{\Phi,a}^i)_P = f_a^i(C_{\Phi}^1 \dots C_{\Phi}^{N_K}) \quad (\Phi = 1, 2), \quad (12)$$

где $1 \dots N_K$ – номера компонентов, участвующих в определении равновесной концентрации.

Расчет гетерогенных окислительно-восстановительных процессов также осуществляется в рамках приближения линейной кинетики. Плотность потока концентрации восстановленной формы i -го компонента в части системы Φ жидкой фазы в результате восстановления b -го минерала в граничащей с ней части системы Φ^* твердой фазы $F_{b,\Phi\Phi^*}^i$ определяется уравнением

$$F_{b,\Phi\Phi^*}^i = (S_{\Phi^*}^b)_{уд} \cdot k_b^i (C_{\Phi}^{i,Red} - (C_{\Phi}^{i,Red})_P) \quad (\Phi = 1, 2), \quad (13)$$

где $C_{\Phi}^{i,Red}$ – молярная концентрация i -го компонента в восстановленной форме в части системы Φ ; $(S_{\Phi^*}^b)_{уд}$ – удельная площадь поверхности b -го минерала в части системы Φ^* ; k_b^i – константа скорости окисления (восстановления) i -го компонента b -м минералом; $(C_{\Phi}^{i,Red})_P$ – равновесная молярная концентрация i -го компонента в восстановленной форме в части системы Φ , определяемая уравнением Нернста.

С учетом используемых приближений изменение во времени концентраций компонентов и минералов в различных частях системы описывается системой уравнений:

$$\frac{\partial C_1^i}{\partial t} = -\nabla(C_1^i \cdot U) + q_{in} C_{in}^i - q_{out} C_1^i - J_{12}^i - E_{13}^i - \sum_a G_{a,13}^i - \sum_b F_{b,13}^i; \quad (14)$$

$$\frac{\partial C_2^i}{\partial t} = J_{12}^i - E_{24}^i - \sum_a G_{a,24}^i - \sum_b F_{b,24}^i; \quad (15)$$

$$\frac{\partial \tilde{C}_{\Phi}^a}{\partial t} = m_{\Phi^*} \frac{1}{k_a} \sum_{i=1}^{k_a} \frac{G_{a,\Phi^*\Phi}^i}{\mu_a^i} + m_{\Phi^*} \sum_j w_a^j F_{a,\Phi^*\Phi}^j \quad (\Phi = 3, 4); \quad (16)$$

$$\frac{\partial \tilde{C}_{\Phi}^i}{\partial t} = m_{\Phi^*} E_{\Phi\Phi^*}^i \quad (\Phi = 3, 4), \quad (17)$$

где C_{in}^i – концентрация i -го компонента в выщелачивающем растворе; k_a – число компонентов в a -м минерале; μ_a^i – число молей i -го компонента в одном моле a -го минерала; w_a^j – отношение разницы валентностей окисленной и восстановленной форм j -го компонента к разнице валентностей окисленной и восстановленной форм a -го минерала; m_{Φ^*} – проточная (застойная пористость). В уравнении (16) суммирование в первом слагаемом ведется по всем i -м компонентам, входящим в a -й минерал, суммирование во втором слагаемом ведется по всем поливалентным компонентам жидкой фазы в восстановленной форме, участвующим в гетерогенных окислительно-восстановительных процессах. Система уравнений массообмена и массопереноса (14)–(17) дополняется уравнениями (8), описывающими гомогенные процессы.

Результаты моделирования

В качестве примера применения разработанной математической модели представлены результаты расчетов изменения состояния рудовмещающего горизонта и поведения различных компонентов технологического раствора при нагнетании серно-кислотного выщелачивающего раствора в рудовмещающий горизонт через одну совершенную скважину. Проницаемый рудовмещающий горизонт был однородным по своим свойствам и имел следующие параметры: коэффициент фильтрации – 3 м/сут, пористость – 0.35, проточная пористость – 0.15, мощность – 5 м, содержанием урана – 0.5 кг/т. Нагнетание выщелачивающего раствора осуществлялось в течение 6 месяцев с постоянным расходом, равным 2.5 м³/ч, концентрация серной кислоты в выщелачивающем растворе составляла 10 г/л.

На рис. 2 представлено изменение концентраций сульфат-иона, серной кислоты и урана в растворе и породе в зависимости от расстояния до нагнетательной скважины для различных моментов времени. В процессе нагнетания в пласте образуется линза сульфатных технологических растворов. К моменту завершения нагнетания радиус области распространения растворов составляет около 60 м (рис. 2, а). В результате нейтрализации серной кислоты при взаимодействии с бы-

строрастворимыми минералами (кальцит, магнезит, сидерит и др.) область сернокислых растворов существенно меньше (около 30 м на момент завершения нагнетания (рис. 2, б)). После завершения нагнетания процесс нейтрализации серной кислоты при взаимодействии с медленно растворимыми минералами (каолинит, мусковит, иллит и др.) продолжается, и спустя 18 месяцев после начала нагнетания максимальная концентрация кислоты составляет менее 0.35 г/л (рис. 2, б).

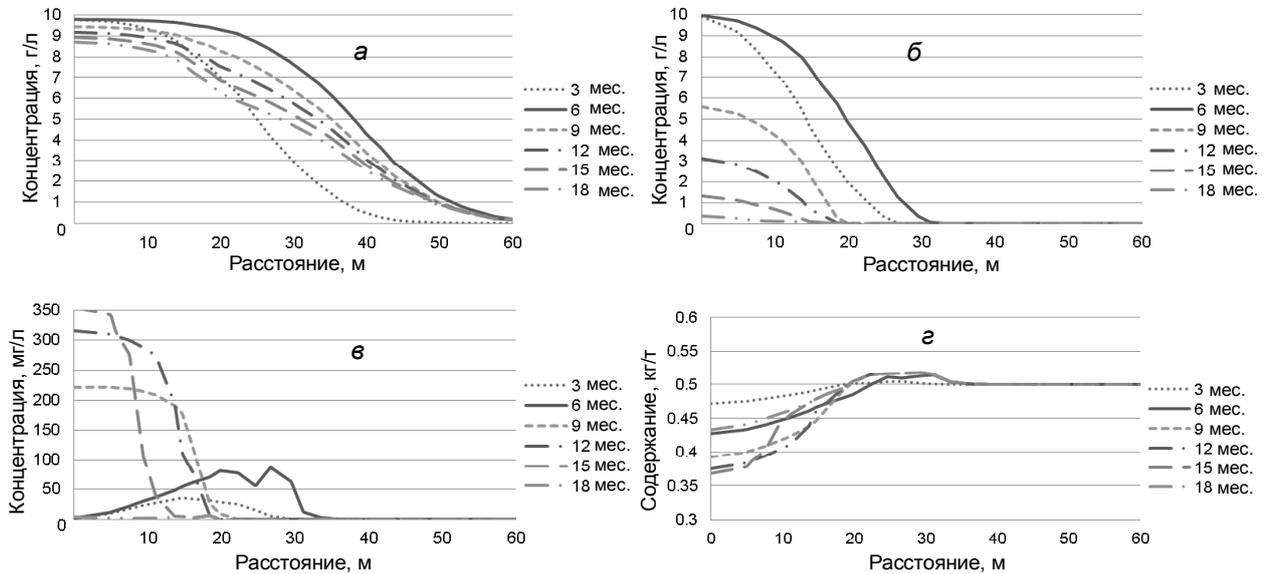


Рис. 2. Изменение концентраций сульфат-иона (а), серной кислоты (б), урана в жидкой (в) и твердой (г) фазах в сечении от нагнетательной скважины к контуру области моделирования

В процессе нагнетания выщелачивающего раствора происходит растворение урансодержащих минералов и формируется область с повышенной концентрацией урана в растворе, распространяющаяся вслед за фронтом продвижения кислоты (рис. 2, в). После завершения нагнетания в области с высокой концентрацией кислоты (прискважинная зона) уран продолжает выходить в раствор, а на фронте, где концентрация кислоты снижается быстрее, начинает осаждаться с новообразованными минералами. По мере нейтрализации кислоты происходит переход урана в твердую фазу во всей области распространения технологических растворов (рис. 2, в, г), спустя 18 месяцев после начала нагнетания концентрация урана в растворе становится меньше 4 мг/л. При взаимодействии сернокислого выщелачивающего раствора с породообразующими минералами в раствор входят такие компоненты, как железо, алюминий, кальций и т.д. После завершения нагнетания начинает происходить процесс деминерализации остаточных сульфатных технологических растворов и новообразование минералов (рис. 3).

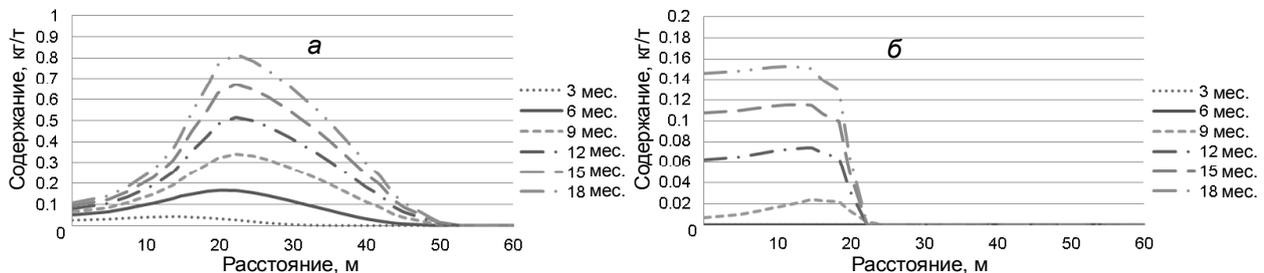


Рис. 3. Изменение содержаний в породе гипса (а) и пирита (б) в сечении от нагнетательной скважины к контуру области моделирования

В результате взаимодействия различных компонентов остаточных растворов (сульфат-ион, железо, кальций, калий, алюминий и др.), происходит образование новых минералов. В области с повышенным содержанием кальция образуется гипс (рис. 3, а). Одновременно с нейтрализацией содержащейся в остаточных технологических растворах кислоты протекают окислительно-

восстановительные процессы между остаточным раствором и содержащимся в породе органическим веществом (восстанавливающим минералом). Происходит восстановление сульфат-иона и наблюдается новообразование дисульфида железа (пирита) (рис. 3, б).

Выводы

Таким образом, представленная математическая модель описывает основные гидродинамические и физико-химические процессы, определяющие изменение состояния рудовмещающего горизонта и поведение различных компонентов технологических растворов при серно-кислотном СПВ урана. Математическая модель может быть использована для оценки экологических последствий добычи урана методом СПВ и прогнозирования миграции загрязняющих веществ в подземных водах в процессе разработки месторождения и после его завершения.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Акимова И.Д., Бабкин А.С., Воронцова О.М. и др. Геотехнология урана (российский опыт). – М.: КДУ, 2017. – 576 с.
2. Белецкий В.И., Богатков Л.К., Волков Н.И. и др. Справочник по геотехнологии урана. – М.: ЭнергATOMиздат, 1997. – 672 с.
3. Румынин В.Г. Геомиграционные модели в гидрогеологии. – СПб.: Наука, 2011. – 1158 с.
4. Носков М.Д., Гуцул М.В., Истомина А.Д. и др. // Горный информационно-аналитический бюллетень. – 2012. – № 7. – С. 361–366.
5. Бабкин А.С., Гуцул М.В., Кеслер А.Г. и др. // Изв. вузов. Физика. – 2015. – Т. 58. – № 12/3. – С. 3–8.
6. Гусаров М.А., Носков М.Д. // Изв. вузов. Физика. – 2017. – Т. 60. – № 11/2. – С. 11–14.
7. Шрайнер А.Э., Носков М.Д., Носкова С.Н. // Изв. вузов. Физика. – 2018. – Т. 61. – № 12/2. – С. 140–144.
8. Разуваева Т.В., Мырзабек Г.А., Копбаева М.П. // Актуальные проблемы урановой промышленности: сб. трудов IX Междунар. науч.-практич. конф. – 2019. – С. 322–328.
9. Бураков М.М., Павличенко Л.М. // Актуальные проблемы урановой промышленности: сб. трудов VI Междуна. науч.-практич. конф. – 2010. – С. 335–345.
10. Голубев В.С. Динамика геохимических процессов. – М.: Недра, 1981. – 208 с.
11. Крайнов С.Р., Рыженко Б.Н., Швецов В.М. Геохимия подземных вод. Теоретические, прикладные и экологические аспекты. – М., 2012. – 672 с.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

Северский технологический институт Национального исследовательского ядерного университета «МИФИ», г. Северск, Россия

Теровская Татьяна Сергеевна, начальник научного отдела СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: tsterovskaya@mephi.ru;

Кеслер Аркадий Григорьевич, к.ф.-м.н., доцент каф. физики СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: arcanag@mail.ru;

Носков Михаил Дмитриевич, д.ф.-м.н., профессор СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: mdnoskov@mephi.ru.

T.S. TEROVSKAYA, A.G. KESLER, M.D. NOSKOV

MATHEMATICAL MODEL OF CHANGE IN THE STATE OF THE PRODUCTIVE HORIZON BY IN SITU LEACHING

A mathematical model describing the main hydrodynamic and physicochemical processes occurring at uranium mining by sulfuric acid in situ leaching method is presented. The calculations results of the ore-bearing horizon state change during the leaching solution injection into a homogeneous permeable formation are presented.

Keywords: uranium mining, in situ leaching, geoecology, migration of pollutants, mathematical modeling.

Seversk Technological Institute National Research Nuclear University «MEPHI», Seversk, Russia

Terovskaya Tatiana Sergeevna, Head of Scientific Department STI NRNU «MEPHI», e-mail: tsterovskaya@mephi.ru;

Kesler Arkadiy Grigorievich, Candidate of Physical and Mathematical Sciences, Associate Professor STI NRNU «MEPHI», e-mail: arcanag@mail.ru;

Noskov Mikhail Dmitrievich, Doctor of Physical and Mathematical Sciences, Professor STI NRNU «MEPHI», e-mail: mdnoskov@mephi.ru.

УДК 621.039.59+ 621.385.69

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/125

А.О. УШАКОВ, О.А. ОЖЕРЕЛЬЕВ

ИССЛЕДОВАНИЕ ПРОЦЕССА ВОЗДЕЙСТВИЯ СВЧ-ИЗЛУЧЕНИЯ НА ОКСИДЫ УРАНА В ВОЗДУШНОЙ И ВОССТАНОВИТЕЛЬНОЙ АТМОСФЕРАХ

Проведены исследования по влиянию СВЧ-излучения на оксиды урана типа UO_3 и U_3O_8 . Исследования проводились в атмосфере воздуха и в среде аргоно-водородной смеси. Для проведения исследований использовалась специальная модернизированная лабораторная СВЧ-печь. В ходе исследований были выявлены температурные зависимости разогрева исходных веществ под действием СВЧ-излучения, а также описаны результаты наблюдений за процессом СВЧ-нагрева оксидов урана в течение различных промежутков времени. Для наглядного отображения результатов проведенных исследований построены графики зависимости изменений температуры от времени и приведены рентгенограммы, полученные на дифрактометре «ДРОН-3». Результаты проведенных исследований подтверждают, что метод СВЧ-нагрева положительно сказывается на скорости разогрева оксидов урана и способствует ускорению химико-физических процессов в ходе термоденитрации. Подтверждена возможность восстановления смеси оксидов урана до диоксида урана в восстановительной атмосфере.

Ключевые слова: термоденитрация, СВЧ-излучение, оксиды урана, атмосфера воздуха, атмосфера аргоно-водорода.

Введение

В последние годы были предприняты заметные усилия к оценке практических возможностей использования нагревания высокочастотным излучением для обработки самых разных материалов, а также поиск технологических решений для повышения эффективности процессов переработки уранил нитрата до оксидов урана требуемой в действующих производствах предприятий ядерного топливного цикла стехиометрии. Несмотря на значительный объем проведенных в этой области исследований [1, 2], большинство разработок, связанных с обработкой высокочастотным излучением различных соединений, в настоящее время все еще находятся на стадии лабораторных испытаний и не имеют промышленного применения в России. Основными причинами этого являются высокая стоимость оборудования и лимитирование используемых для проведения процессов веществ по составу и физико-химическим свойствам.

Метод СВЧ-денитрации имеет ряд преимуществ и особенностей перед другими методами термоденитрации (плазмохимическая, электротермическая и т.д.) азотно-кислых растворов урана.

Целевым и основным продуктом в ходе термоденитрации является триоксид урана (UO_3), который впоследствии прокаливается до образования октаоксида триурана (U_3O_8). Необходимо отметить, что при одинаковом исходном сырье и продукте на выходе, по сравнению с иными методами, СВЧ-денитрация имеет определенное отличие, которое проявляется в ходе процесса выпаривания исходного гексагидроксиуранилнитрата ($UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$).

При выпаривании жидкой фазы $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ вместо классической схемы протекания процесса, присущей процессу обычного нагрева и имеющей вид $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O \rightarrow UO_2(NO_3)_2 \cdot 3H_2O \rightarrow UO_2(NO_3)_2 \cdot 2H_2O$, наблюдается преобразование по типу $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O \rightarrow UO_2(OH)NO_3$, что оказывает непосредственное влияние на процесс. В качестве основного промежуточного продукта выступает гидросинитрат уранила. Промежуточным веществом перед стадией получения UO_3 является не $UO_2(NO_3)_2 \cdot 2H_2O$, а $UO_2(OH)NO_3$, что подтверждено с помощью термогравиметрического, рентгенофазового анализов, а также методов ИК-спектроскопии и электронной микроскопии [3].

Результаты проведенных анализов свидетельствуют о том, что условия эксперимента оказывают значительное влияние на проведение процесса денитрации. Кроме того, ввиду физических особенностей микроволновая термоденитрация обеспечивает более быстрый разогрев в объеме уранил-нитрата, что положительно сказывается на кинетике процесса.

С технологической точки зрения СВЧ-денитрация имеет ряд особенностей по сравнению, к примеру, с хорошо отработанной технологией химической термоденитрации, которая в данный момент играет основную роль в производстве UO_3 . Использование СВЧ-нагрева позволяет не просто получать UO_3 , но обеспечить в одном аппарате последовательное его превращение в U_3O_8 [3], а затем провести восстановление до диоксида урана (UO_2) [4].

Необходимо отметить, что, в отличие от химической термоденитрации, при использовании метода СВЧ-нагрева происходит упрощение общей технологической цепи ввиду отсутствия дополнительных реагентов, участвующих в технологическом процессе, что соответственно влечет за собой и отсутствие каких-либо связанных с ними жидких радиоактивных отходов. Данный факт обуславливает актуальность проведенных исследований, так как порошки диоксида урана можно использовать не только для изготовления топливных таблеток, применяемых в качестве наполнителя в тепловыделяющих сборках, но и для производства гексафторида урана, что в перспективе поможет модернизировать и оптимизировать текущие технологические процессы производства ядерного топлива.

Экспериментальная часть

В работе исследовано воздействие СВЧ-излучения на оксиды урана с целью установления влияния атмосферной среды на свойства полученных продуктов. Были проведены две серии экспериментов, в каждой из которых осуществлялось три опыта по воздействию СВЧ-излучения на следующие оксиды урана: UO_3 , U_3O_8 , UO_3 с добавлением U_3O_8 . Первая серия экспериментов проводилась в воздушной атмосфере, вторая – в атмосфере аргоно-водородной смеси. Содержание водорода в смеси составляло 5% (в соответствии с ТУ 2114-001-05758954-2014), что было обусловлено критериями по взрыво- и пожаробезопасности проведения процесса, а также расчетами, которые подтвердили достаточность данного количества водорода для процесса восстановления.

Для исследования процесса воздействия СВЧ-излучения на данные оксиды урана была разработана экспериментальная лабораторная установка малой мощности (800 Вт) и имеющая частоту СВЧ-излучения 2.45 ГГц (рис. 1). Эта установка представляла из себя СВЧ-печь с подведенными и подключенными к ней трубками для подачи азотно-кислого раствора урана и аргоно-водородной смеси и соответственно отвода образующихся газов. Время проведения каждого опыта составило 40 минут, масса навески бралась равной 15 г.

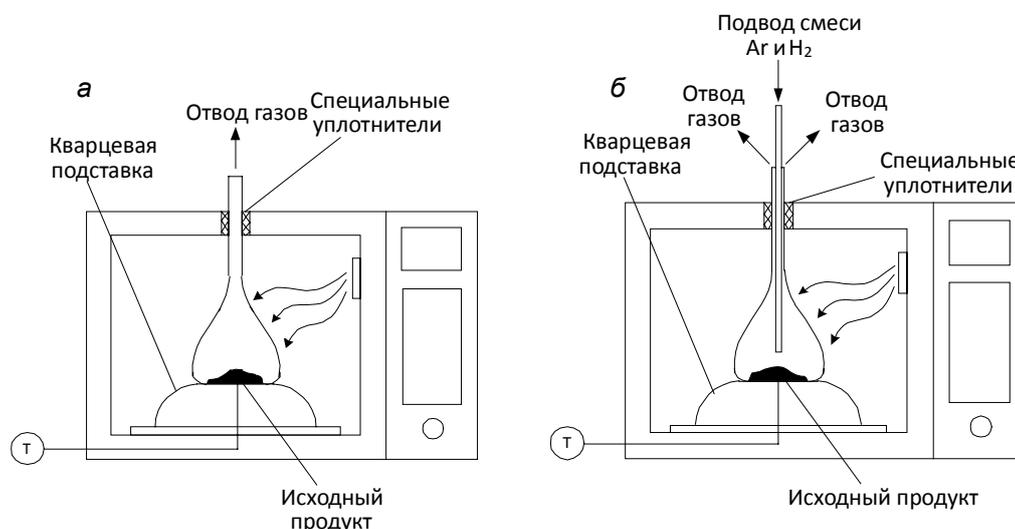


Рис. 1. Схема экспериментальной установки без подвода (а) и с подводом аргоно-водорода (б)

При воздействии СВЧ-излучения на UO_3 в кварцевой колбе изменений его температуры не наблюдалось, при этом колба также не нагревалась. Измерения температуры порошка и колбы проводили с помощью защищенной термопары. Материал колбы был выбран на основании ее прозрачности к СВЧ-излучению. Таким образом, можно сказать, что поглощение СВЧ-излучения UO_3 не происходит.

Из результатов эксперимента по воздействию СВЧ-излучения на U_3O_8 в воздухе было видно, что происходит разогрев U_3O_8 . Температура разогретого U_3O_8 достигла 751 °С. При этом никаких изменений с порошком U_3O_8 под воздействием СВЧ-излучения не наблюдалось. Вначале разогрев U_3O_8 шел быстро, со скоростью около 0.8 °С/с, далее замедлялся – скорость приняла значения около 0.08 °С/с. Экспериментально было показано, что происходит поглощение СВЧ-излучения U_3O_8 .

Для проведения эксперимента по восстановлению UO_3 до UO_2 в СВЧ-поле с добавлением U_3O_8 в исходный оксид урана использовали навеску смеси порошков UO_3 , $m = 10.0$ г и U_3O_8 , $m = 5.0$ г.

На подставку из кварцевого стекла была установлена кварцевая колба с навесками UO_3 и U_3O_8 . На СВЧ-печи была выставлена максимальная мощность 800 Вт, установлен таймер на 40 мин. Через 10 с после включения СВЧ-нагрева наблюдалось образование красных светящихся вкраплений в реакционной массе. При дальнейшем разогреве реакционной массы красное свечение распространялось по всему ее объему. Достигнутая температура разогрева порошка составила 600–700 °С. Через 40 мин свечение реакционной массы становилось менее интенсивным. После выдержки еще 10 мин, печь отключали. По окончании эксперимента был получен порошок черного цвета с темно-оранжевыми вкраплениями.

На рис. 2 представлена рентгеноструктурная диаграмма продукта, полученного после разогрева смеси $\text{UO}_3 + \text{U}_3\text{O}_8$ в атмосфере воздуха. Анализ состава и структуры порошка проводили на рентгеновском дифрактометре «ДРОН-3». Интерпретация полученных результатов рентгеноструктурного анализа состава пробы проводилась с использованием электронной базы эталонных образцов «Base Diffract» по образцам (PDF-150201) Uranium Oxide UO_3 и (PDF-241172) Uranium Oxide U_3O_8 .

По результатам эксперимента можно предположить, что при вышезаданных параметрах процесса в составе пробы присутствуют U_3O_8 и UO_3 , относительные величины содержания которых оценивались расчетно-экспериментальным способом по отношению к шкале величин интенсивностей дифракционных максимумов в процентах и составляли 73% U_3O_8 и 27% UO_3 . Данные результаты являются суммирующими для массива полученных экспериментальных данных.

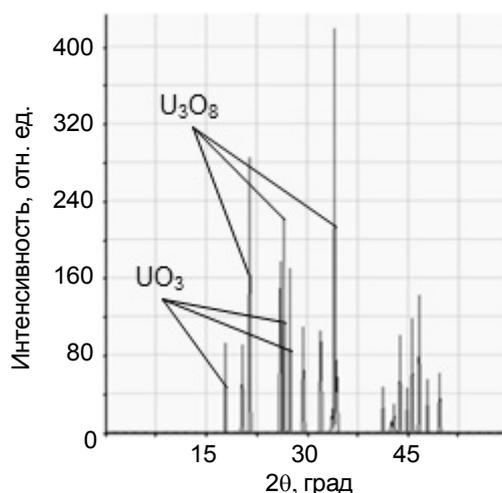


Рис. 2. Рентгеноструктурная диаграмма продукта, полученного после разогрева смеси $\text{UO}_3 + \text{U}_3\text{O}_8$ в атмосфере воздуха

Для проведения эксперимента по определению возможности восстановления UO_3 до UO_2 аргоно-водородной смесью в СВЧ-поле использовали навеску UO_3 массой 15.0 г.

На подставку из кварцевого стекла установили кварцевую колбу с навеской UO_3 . Во внутренний объем колбы подали аргоно-водородную смесь содержанием H_2 около 5 об. %, с расходом до 0.17 л/с. Визуальных эффектов протекания реакции не наблюдалось. Температура разогретого кварцевого тигля составила 30–40 °С. Проведенный эксперимент подтвердил данные о незначительном поглощении СВЧ-излучения UO_3 .

Для проведения эксперимента по восстановлению U_3O_8 до UO_2 аргоно-водородной смесью в СВЧ-поле использовались навеска U_3O_8 , $m = 15$ г, аргоно-водородная смесь с 5%-м содержанием H_2 . В верхней части микроволновой печи через технологическое отверстие были организованы подача и отвод аргоно-водородной смеси. На подставку из кварцевого стекла была установлена кварцевая колба с навеской U_3O_8 массой 15 г. Во внутренний объем колбы была подана аргоно-водородная смесь с расходом до 0.17 л/с. Через 30–40 с работы СВЧ-печи в объеме колбы наблюдалось свечение порошка U_3O_8 ярко-оранжевым цветом, что свидетельствовало о поглощении энергии излучения порошком и его нагреве. При достижении температуры порошка порядка 900–

1000 °С (ярко-оранжевый цвет свечения) в объеме колбы наблюдалась дугообразная вспышка ярко-белого цвета.

После отключения СВЧ-печи внутренний объем колбы заполнялся аргоно-водородной смесью в течение 20 мин. В выгруженном после эксперимента порошке агломерированных или спеченных гранул не наблюдалось.

Анализ показал, что проба представлена черно-коричневым порошком, на 100% состоящим из UO_2 . Полученные данные свидетельствовали о полноте протекания реакции восстановления по всему объему навески смеси порошков.

Для проведения эксперимента по восстановлению UO_3 до UO_2 аргоно-водородной смесью в СВЧ-поле с добавлением затравки U_3O_8 использовали навеску смеси порошков UO_3 , $m = 10.0$ г и U_3O_8 , $m = 5.0$ г.

На подставку из кварцевого стекла установили кварцевую колбу с навесками UO_3 и U_3O_8 . Во внутренний объем колбы подали аргоно-водородную смесь с расходом до 0.17 л/с. После 50 с работы СВЧ-печи в смеси порошков образовался «центр разогрева», окрашенный в оранжевый цвет (~ 900 °С). Постепенно разогреву подвергся весь объем смеси порошков от центра разогрева к периферии. Над разогретой смесью порошков наблюдались вспышки пламени желто-оранжевого цвета. Отмечались электродуговые вспышки в объеме колбы, что свидетельствовало об ионизации аргона. В момент ионизации молекул аргона реакция горения над смесью порошков прекращалась, свечение смеси порошков тускнело. Иногда смесь порошков полностью переставала светиться. В целом, протекание эксперимента можно разделить на следующие стадии:

- разогрев смеси порошков до желтого цвета (около 900 °С);
- возникновение пламени над смесью порошков;
- резкое исчезновение пламени, угасание свечения смеси порошков;
- кратковременная ионизация аргона в объеме колбы.

Об окончании реакции восстановления свидетельствовало длительное (порядка 5 мин) отсутствие пламени над смесью порошков. При этом смесь порошков продолжала светиться оранжевым цветом (800–900 °С). По окончании процесса полученный продукт имел черный цвет с коричневыми вкраплениями. Интерпретация полученных результатов рентгеноструктурного анализа состава данной пробы также проводилась с использованием электронной базы эталонных образцов «Base Difract» по образцам (PDF-50550) Uranium Oxide UO_2 Uraninite, syn. и (PDF-40511) Uranium Oxide U_3O_8 . Анализ показал, что проба представлена смесью порошков 80% отн. UO_2 и 20% отн. U_3O_8 . На рис. 3 представлена рентгеноструктурная диаграмма продукта, полученного после разогрева смеси $UO_3+U_3O_8$ в атмосфере аргоно-водорода.

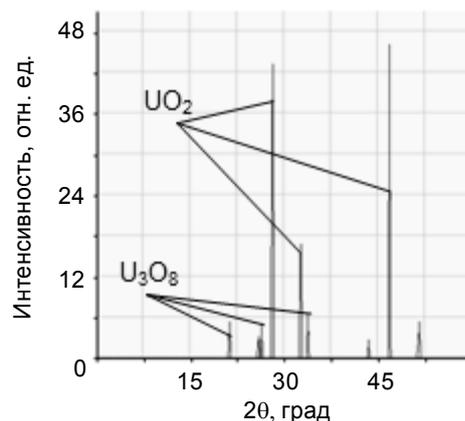


Рис. 3. Рентгеноструктурная диаграмма продукта, полученного после разогрева смеси $UO_3+U_3O_8$ в атмосфере аргоно-водорода

На наш взгляд, наблюдаемые дугообразные вспышки ярко-белого цвета являлись свидетельством резкого температурного скачка, что в восстановительной атмосфере привело к образованию UO_2 .

Приведены графики зависимости изменения температуры и скорости нагрева исходных продуктов во времени (рис. 4). На рисунках наглядно отображена особенность СВЧ-нагрева, которая выражается в быстром нагреве взятых для исследования образцов. При сравнении всех трех гра-

фигов друг с другом можно сделать вывод, что нагрев триоксида урана на воздухе и в атмосфере аргоно-водорода не является столь же значительным, как в случае с октаоксидом триурана и его смесью с триоксидом урана. Рассматривая рис. 4, а, можно отметить незначительный нагрев триоксида урана в атмосфере воздуха, что подтверждает тезис о прозрачности данного оксида для СВЧ-излучения. При наличии атмосферы аргоно-водорода наблюдается рост температуры, который, однако, вызван не воздействием СВЧ-излучения, а наличием в смеси водорода, выступающего в роли восстановителя и способствующего протеканию химической реакции. Кривые, отображенные на рис. 4, б и в, имеют схожую тенденцию роста температуры во времени. Из обоих рисунков видно, что температура резко возрастает в течение 5 мин воздействия СВЧ-излучения на вещество, а затем ее рост замедляется. Более низкие максимальные достигнутые значения температур на рис. 4, в объясняются наличием примеси триоксида урана, который прозрачен для СВЧ-излучения и затрудняет процесс протекания реакции с октаоксидом триурана. На рис. 4, б и в также можно отметить перепад температур, наблюдаемый на момент времени протекания процесса на 10-й минуте. Данный факт требует дополнительных исследований и может свидетельствовать о структурных преобразованиях участвующих в реакционном процессе веществ.

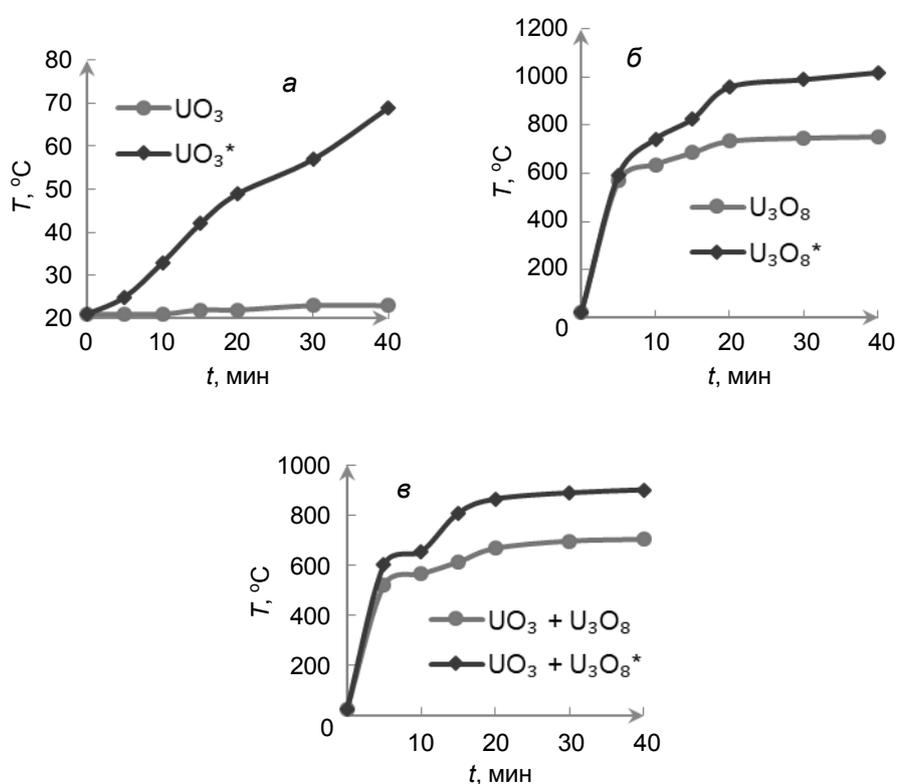


Рис. 4. Изменение температуры во времени в воздушной атмосфере и в атмосфере аргоно-водорода (*): а – UO_3 ; б – U_3O_8 ; в – смеси $UO_3 + U_3O_8$

Выводы по результатам экспериментов

1. Октаоксид триурана СВЧ непрозрачен, при воздействии СВЧ-поля в отсутствие сторонних поглотителей и рассеивателей происходит его нагрев до температуры 600–800 °С в атмосфере воздуха.
2. При нагревании октаоксида триурана в восстановительной атмосфере температура в зоне реакции резко возрастает до 900–1000 °С и октаоксид триурана восстанавливается до диоксида урана.
3. Для поддержания инертно-восстановительной атмосферы в зоне реакции при восстановлении U_3O_8 до UO_2 в СВЧ-поле достаточно подавать аргоно-водородную смесь с содержанием водорода 5%.
4. Триоксид урана слабо поглощает СВЧ-излучение в инертно-восстановительной атмосфере.

Заключение

В ходе проделанной работы была подтверждена возможность восстановления триоксида урана в восстановительной атмосфере до диоксида урана с использованием добавки октаоксида триурана в исходный триоксид урана. Использование высокочастотного излучения для нагрева вещества и его последующего разложения, в том числе для проведения денитрации азотно-кислого раствора урана, является в настоящее время одним из перспективных направлений в области управления физико-химическими процессами в ядерном топливном цикле.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Куляко Ю.М., Трофимов Т.И., Пилюшенко К.С. и др. // Ядерная физика и инжиниринг. – 2017. – Т. 9. – № 5. – С. 425–428.
2. Вуков Ю.В., Рыбаков К.И., and Semenov V.E. // J. Phys. D: Appl. Phys. – 2001. – V. 34. – P. 55–75.
3. Кулюхин С.А., Каменская А.Н. // Радиохимия. – 2009. – Т. 51. – № 3. – С. 228–233.
4. Kulyako Yu.M., Trofimov T.I., Perevalov S.A., et al. // Radiochemistry. – 2015. – V. 57. – No. 3. – P. 251–254.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

Северский технологический институт Национального исследовательского ядерного университета «МИФИ», г. Северск, Россия

Ушаков Александр Олегович, студент СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: su96.su96.su96@mail.ru;

Ожерельев Олег Александрович, к.т.н., доцент, руководитель Центра карьеры ГК «Росатом» СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: ooasti@mail.ru.

A.O. USHAKOV, O.A. OZHERELYEV

RESEARCH OF THE EFFECTS OF MICROWAVE RADIATION ON URANIUM OXIDES IN AIR AND REDUCING ATMOSPHERES

Research have been carried out on the effects of microwave radiation on uranium oxides such as UO_3 and U_3O_8 . The studies were conducted in the atmosphere of the air and in the environment of the argon-hydrogen mixture. A special modernized microwave laboratory furnace was used for the research. The studies revealed temperature dependence of heating of the original substances under the influence of microwave radiation, as well as the results of observations of the process of microwave-heating of uranium oxides over different periods of time. To visually show the results of the research, graphs of temperature dependence on time are constructed and X-rays spectra obtained on the diffractometer «DRON-3» are presented. The results of the research confirm that the microwave-heating method has a positive effect on the rate of heating of uranium oxides and helps to accelerate chemical and physical processes during thermal denitration. Confirmed possibility of restoring uranium oxide mixture to uranium dioxide in the reducing atmosphere.

Keywords: *thermal denitration, microwave radiation, uranium oxides, air atmosphere, atmosphere of argon-hydrogen.*

Seversk Technological Institute National Research Nuclear University «МЕРФИ», Seversk, Russia

Ushakov Alexander Olegovich, Student STI NRNU «МЕРФИ», e-mail: su96.su96.su96@mail.ru;

Ozherelyev Oleg Alexandrovich, Candidate of Technical Sciences, Associate Professor, Head of the Career Center of Rosatom State Corporation STI NRNU «МЕРФИ», e-mail: ooasti@mail.ru.

УДК 621.039.342

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/131

А.А. УШАКОВ¹, А.А. ОРЛОВ²

МАТЕМАТИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССА ЗАПОЛНЕНИЯ КАСКАДА ГАЗОВЫХ ЦЕНТРИФУГ ДЛЯ РАЗДЕЛЕНИЯ ИЗОТОПОВ НИКЕЛЯ ПРИ РАЗЛИЧНОЙ ВЕЛИЧИНЕ ПОТОКА ПИТАНИЯ

Приведены результаты исследований процесса заполнения каскада газовых центрифуг на примере разделения смеси изотопов никеля. Установлены закономерности распределения изотопов никеля по длине каскада в соответствии с их массовыми числами. Определены условия, при которых увеличивается концентрация целевого изотопа в потоке легкой или тяжелой фракции после заполнения каскада, что повышает эффективность процесса разделения изотопной смеси.

Ключевые слова: каскад, разделение, изотоп, никель, нестационарный процесс.

Введение

При эксплуатации каскада газовых центрифуг (ГЦ) для разделения многокомпонентных изотопных смесей (МИС) возникают нестационарные гидравлические процессы, в ходе которых изменяются величины давлений и потоков рабочего вещества в ступенях каскадов и выходящих потоках. Нестационарный гидравлический процесс порождает нестационарный разделительный процесс, в ходе которого происходит изменение изотопного состава рабочего вещества в ступенях и потоках каскадов. Во всех нестационарных процессах необходимо обеспечить безопасность разделительного оборудования и свести к минимуму потери работы разделения.

Каскады ГЦ имеют меньшее газосодержание по сравнению с газодиффузионными каскадами, следовательно, и меньшую инерционность. Малая инерционность приводит к усилению влияния нестационарных процессов на эффективность работы каскадов. Особенно это может отразиться на работе каскадов ГЦ для разделения МИС, которые, в отличие от каскадов для разделения изотопов урана, имеют существенно меньшее количество ГЦ и отличаются регулирующими устройствами.

В связи с этим приобрело актуальность решение задачи изучения и полномасштабного учета нестационарных процессов при разделении МИС. Использование экспериментального подхода к решению данной задачи является достаточно затратным и требует создания дополнительных исследовательских установок. Поэтому целесообразно изучать нестационарные процессы путем их математического моделирования.

Известные математические модели [1–5] описывают нестационарные гидравлические процессы для случая длинного каскада и нестационарные разделительные процессы при постоянных гидравлических параметрах. Для устранения указанных недостатков нами была разработана математическая модель нестационарных гидравлических и разделительных процессов [6–8] и проведена ее верификация на примере разделения изотопов германия, криптона и кремния.

Стационарному режиму разделения МИС в каскаде ГЦ предшествует нестационарный процесс, который условно можно разделить на две стадии: 1) заполнение каскада рабочим веществом, 2) установление равновесных концентраций компонентов в каскаде. Основное внимание исследователей было приковано ко второй стадии в виду ее значительной длительности [1–5].

Изучение процесса заполнения каскада до настоящего времени не проводилось, поэтому для расчета второй стадии при задании начальных условий использовалось допущение, что концентрации компонентов в ступенях каскада после его заполнения соответствуют их концентрациям в МИС. Учитывая, что от начальных условий зависит характер изменения концентраций компонентов в ходе нестационарного процесса и его длительность [7, 8], целесообразно провести исследование процесса разделения МИС в ходе заполнения каскада и проверить справедливость этого допущения. Ранее в работе [9] установлено, что концентрации изотопов в потоках легкой и тяжелой фракции каскада после его заполнения зависят от номера ступени подачи потока питания.

В данной работе приведены результаты моделирования процесса заполнения каскада при различной величине потока питания для случая разделения изотопов никеля, которые используются в ядерно-физических исследованиях и для получения радиоактивных изотопов (например,

изотоп ^{62}Ni используется в качестве стартового материала для получения радиоактивного изотопа ^{63}Ni [10].

Описание математической модели

Разделение МИС происходит в каскаде ГЦ. Рабочее вещество содержит n компонентов (изотопов) с индексом j ($j = \overline{1; n}$). Каскад состоит из S ступеней (рис. 1) с индексом i ($i = \overline{1; S}$). Ступени соединены по противоточно-симметричной схеме. В каскад подается поток питания F и отбираются потоки легкой P и тяжелой W фракции. Поток питания подается в ступень с индексом S_F , поток тяжелой фракции отбирается из первой ступени, поток легкой фракции – из ступени S .

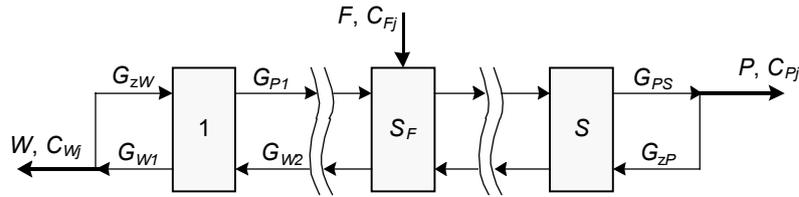


Рис. 1. Разделительный каскад

Разделительная ступень состоит из N_i параллельно соединенных ГЦ. В нее подается поток питания G_{Fi} . Из ступени отбираются потоки легкой G_{Pi} и тяжелой G_{Wi} фракций. Концентрацию j -го компонента в потоках питания, легкой и тяжелой фракций i -й ступени обозначили C_{Fij} , C_{Pij} и C_{Wij} соответственно. Тяжелая фракция первой ступени может частично возвращаться потоком закрутки тяжелой фракции G_{zW} на питание первой ступени. Легкая фракция ступени S может частично возвращаться потоком закрутки легкой фракции G_{zP} на питание ступени S .

При отсутствии коррозионных потерь рабочего вещества потоки ступеней и концентрации компонентов в них в стационарном гидравлическом режиме связаны уравнениями баланса рабочего вещества и компонента (изотопа):

$$G_{Fi} = G_{Pi} + G_{Wi}; \quad (1)$$

$$G_{Fi}C_{Fij} = G_{Pi}C_{Pij} + G_{Wi}C_{Wij}. \quad (2)$$

Сумма концентраций всех компонентов для любого потока равна единице. Разделение компонентов в ступени определяется выражениями [11, 12]:

$$\chi_{ijl} = \frac{C_{Pij}C_{Wil}}{C_{Pil}C_{Wij}}; \quad (3)$$

$$\chi_{ijl} = \chi_{0i}^{M_j - M_l}, \quad (4)$$

где χ_{ijl} – коэффициент разделения j -го и l -го компонента в i -й ступени; χ_{0i} – коэффициент разделения, приходящийся на единицу разности массовых чисел; M_j , M_l – массовые числа j -го и l -го компонента соответственно.

Потоки каскада в стационарном гидравлическом режиме связаны уравнениями баланса:

$$F = P + W; \quad (5)$$

$$FC_{Fj} = PC_{Pj} + WC_{Wj}. \quad (6)$$

Алгоритм решения дифференциальных уравнений, описывающих нестационарные гидравлические и разделительные процессы, приведен в работах [6, 7].

Результаты и их обсуждение

Рассмотрен каскад постоянной ширины (КПШ), состоящий из 60 ступеней ($S = 60$) и имеющий одинаковую производительность G_F всех ступеней в стационарном режиме. Поток питания подается в ступень № 30 ($S_F = 30$). Коэффициент разделения ГЦ $\chi_0 = 1.1$. В качестве рабочего вещества для разделения изотопов никеля использовался тетраакс никеля ($\text{Ni}(\text{PF}_3)_4$, молярная масса $M = 411$ кг/кмоль). В начальный момент времени каскад пуст (газосодержание равно нулю). В процессе заполнения в каскад подается поток питания постоянной величины, величины потоков

легкой и тяжелой фракции каскада равны нулю. В ходе заполнения происходит увеличение давлений, газосодержаний и потоков рабочего вещества в ступенях каскада до стационарных значений. Проведено моделирование процесса заполнения каскада рабочим веществом при различной величине потока питания, которая выражена относительно производительности ступени как F/G_F . На рис. 2 приведены концентрации изотопов никеля в потоках легкой и тяжелой фракции каскада после его заполнения в зависимости от величины F/G_F .

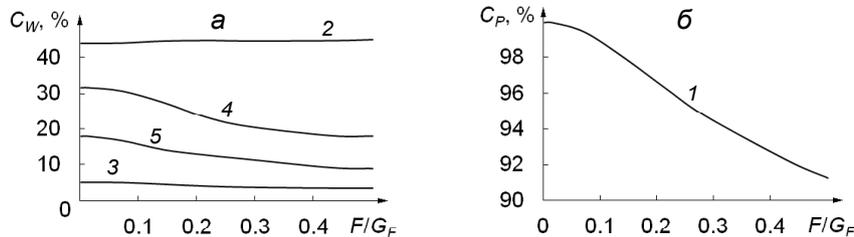


Рис. 2. Концентрация изотопов никеля после заполнения каскада в зависимости от величины F/G_F : а – поток тяжелой фракции каскада; б – поток легкой фракции каскада; кр. 1 – ^{58}Ni ; кр. 2 – ^{60}Ni ; кр. 3 – ^{61}Ni ; кр. 4 – ^{62}Ni ; кр. 5 – ^{64}Ni

Из рис. 2 видно, что концентрации изотопов никеля в потоках легкой и тяжелой фракции каскада после его заполнения зависят от величины потока питания (или от величины F/G_F). С увеличением потока питания каскада и, как следствие, с увеличением F/G_F происходит снижение концентрации ^{58}Ni в потоке легкой фракции каскада и концентраций ^{62}Ni и ^{64}Ni в потоке тяжелой фракции каскада. При этом концентрация изотопов ^{60}Ni и ^{61}Ni остается практически неизменной.

Изменение концентраций изотопов никеля в потоках легкой и тяжелой фракции каскада объясняется изменением концентраций изотопов в ступенях каскада в процессе заполнения. На рис. 3 приведено распределение изотопов никеля по ступеням каскада при различной величине F/G_F и для случая $F/G_F = 0$, который соответствует стационарному режиму каскада после заполнения и отключения внешних потоков ($F = P = W = 0$).

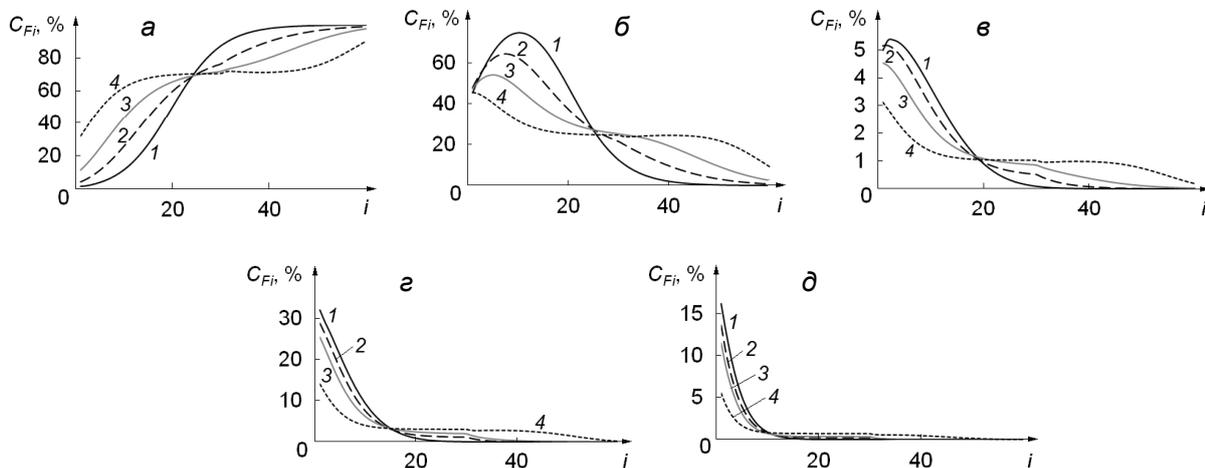


Рис. 3. Распределение концентрации изотопов никеля по ступеням каскада в зависимости от величины F/G_F : а – ^{58}Ni ; б – ^{60}Ni ; в – ^{61}Ni ; г – ^{62}Ni ; д – ^{63}Ni ; кр. 1 – $F/G_F = 0$; кр. 2 – $F/G_F = 0.07$; кр. 3 – $F/G_F = 0.15$; кр. 4 – $F/G_F = 0.50$

Как видно из рис. 3, при $F/G_F = 0$ (кривая 1) имеет место максимальный градиент концентраций изотопов по ступеням каскада. Изотопы распределены по ступеням каскада в соответствии с их массовыми числами: ^{58}Ni имеет максимальную концентрацию в ступени $i = 60$, ^{60}Ni – в ступени $i = 10$, ^{61}Ni – в ступени $i = 3$, ^{62}Ni и ^{64}Ni сконцентрированы в ступени $i = 1$. При увеличении потока питания каскада (величины F/G_F) обратно пропорционально уменьшается продолжительность заполнения каскада, что приводит к снижению максимальных значений концентраций изотопов и их перераспределению по каскаду. Это обусловлено интенсификацией процесса смешения изотопов, что происходит одновременно с процессом их разделения в ГЦ. Таким образом, оптимизация ве-

личины потока питания при заполнении каскада позволяет повысить концентрацию целевого изотопа в потоке легкой или тяжелой фракции после заполнения. Это уменьшит продолжительность установления стационарного распределения концентраций изотопов.

Выводы

Проведено исследование процесса заполнения каскада для разделения изотопов никеля при различной величине потока питания. Установлено, что изотопы никеля распределяются по длине каскада в соответствии с их массовыми числами независимо от величины потока питания каскада. Концентрации изотопов в ступенях, потоках легкой и тяжелой фракции после заполнения каскада зависят от величины потока питания каскада. Увеличение потока питания каскада приводит к снижению максимальных значений концентраций изотопов и их перераспределению по каскаду. Показано, что оптимизация величины потока питания при заполнении каскада позволяет повысить концентрацию целевого изотопа в потоке легкой или тяжелой фракции после заполнения.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Levin D.M. and Zapelin Yu.P. // Proc. Physical and Chemical Process During Separation of Atoms and Molecules and in Laser, Plasma and Nanotechnology. – 2008. – P. 417–419.
2. Levin E.V., Laguntcov N.I., and Sulaberidze G.A. // J. Eng. Phys. – 1982. – V. 43. – P. 456–462.
3. Laguntcov N.I., Levin E.V., Nikolaev B.I., and Sulaberidze G.A. // Atomic Energy. – 1987. – V. 62. – P. 394–398.
4. Smirnov A.Yu., Sulaberidze G.A., Borisevich V.D., et al. // Chem. Eng. Sci. – 2015. – V. 127. – P. 418–424.
5. Smirnov A.Yu., Bonarev A.K., Sulaberidze G.A., et al. // J. Phys.: Conf. Ser. – 2016. – V. 751. – P. 012006.
6. Orlov A.A., Ushakov A.A., and Sovach V.P. // MATEC Web of Conf. – 2017. – V. 92. – P. 01033.
7. Orlov A.A., Ushakov A.A., and Sovach V.P. // J. Eng. Phys. Thermophys. – 2017. – V. 90. – No. 2. – P. 258–265.
8. Орлов А.А., Ушаков А.А., Совач В.П. // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Математическое моделирование физических процессов. – 2017. – № 3. – С. 51–61.
9. Orlov A.A., Ushakov A.A., and Sovach V.P. // MATEC Web of Conf. – 2017. – V. 110. – P. 01063.
10. Sosnin L.J., Suvorov I.A., Tcheltsov A.N., et al. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. – 1993. – V. A334. – P. 43–44.
11. De la Garza A., Garrett G.A., and Murphy J.E. // Chem. Eng. Sci. – 1961. – V. 15. – P. 188–209.
12. Ying C., Guo Z., and Wood H.G. // Separation Sci. Technol. – 1996. – V. 31. – P. 2455–2471.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

¹ АО «ПО «Электрохимический завод», г. Зеленогорск, Россия

² Национальный исследовательский Томский политехнический университет, г. Томск, Россия

Ушаков Антон Андреевич, к.т.н., инженер-технолог ПО ЭХЗ, e-mail: ushakovaa2015@sibmail.com;

Орлов Алексей Алексеевич, д.т.н., профессор НИ ТПУ, e-mail: orlovaa@tpu.ru.

A.A. USHAKOV¹, A.A. ORLOV²

MATHEMATICAL MODELING OF FILLING OF GAS CENTRIFUGE CASCADE FOR NICKEL ISOTOPE SEPARATION BY VARIOUS FEED FLOW RATE

This article presents the research results of the process of filling gas centrifuge cascade for example of separation of nickel isotope mixture. The regularities of the distribution of nickel isotopes along the cascade length in accordance with their mass numbers have been established. The conditions for increasing the concentration of the target isotope in light or heavy fraction flow after filling the cascade are determined. This also increases the efficiency of the isotope mixture separation process.

Keywords: cascade, separation, isotope, nickel, nonstationary process.

¹ Electrochemical Plant JSC, Zelenogorsk, Russia

² National Research Tomsk Polytechnic University, Tomsk, Russia

Ushakov Anton Andreevich, Ph.D., Process Engineer Electrochemical Plant JSC, e-mail: ushakovaa2015@sibmail.com;

Orlov Alexey Alexeevich, D.Sc. (Technics), Professor NR TPU, e-mail: orlovaa@tpu.ru.

УДК 66.042+66.046+661.489

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/135

А.С. ФЕДИН, О.А. ОЖЕРЕЛЬЕВ

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ РАЗЛИЧНЫХ НАГРЕВАТЕЛЬНЫХ УСТРОЙСТВ ДЛЯ ПРОВЕДЕНИЯ СУБЛИМАЦИИ НЕОРГАНИЧЕСКИХ ФТОРИДОВ

Представлены систематизация и анализ использования различных нагревательных устройств для нагрева порошков неорганических фторидов в лабораторном и промышленном сублиматорах с целью разработки высокопроизводительного сублимационного оборудования, в том числе для многоступенчатой глубокой безводной очистки. На примере испарения тетрафторида циркония, гексафторсилката аммония и других фторидов рассмотрены возможные варианты модернизации оборудования с использованием современных нагревательных устройств и учетом агрессивности среды, интервала используемых температур, технологических требований. Обсуждение эффективности различных способов осуществления нагрева-сублимации основывалось на ранее опубликованных экспериментальных данных по безводной очистке фторидов от примесей 3d-переходных металлов.

Ключевые слова: *нагрев порошков, сублимация, неорганический фторид, степень чистоты, поверхность испарения.*

Введение

Многими авторами в течение длительного времени проводились исследования сублимационной очистки неорганических фторидов, в частности изучались закономерности нагрева и сублимации тетрафторидов титана (ТФТ), циркония (ТФЦ) и гафния (ТФГ) от 3d-переходных металлов [1–6].

Целями исследований было:

- разработка высокопроизводительного сублимационного оборудования;
- разработка технологии и оборудования для глубокой многоступенчатой сублимационной очистки.

В 2004–2019 гг. авторами была проведена работа по систематизации результатов исследований сублимационной очистки ТФТ, ТФЦ и ТФГ и формированию физико-химической модели [7–9]. Для апробации и одновременного расширения физико-химической модели сублимационной очистки неорганических фторидов исследования были продолжены на гексафторсилкаты аммония (ГФСА) [10–14].

В исследованиях сублимации применяли образцы ТФТ, ТФЦ, ТФГ и ГФСА, полученные безводным фторированием с использованием для синтеза первых трех фторидов, чаще всего элементного фтора, а для ГФСА – бифторида аммония. Образцы обладали разной степенью чистоты: с содержанием примесей в интервале от 30 до 0.001 мас. %.

Данная работа посвящена обобщению и анализу материалов по используемым системам нагрева порошков ТФТ, ТФЦ, ТФГ и ГФСА неорганических фторидов в оборудовании для их сублимационной очистки.

Нагревательные устройства для нагрева тетрафторидов титана, циркония и гафния

Для всех трех фторидов характерна одна общая технологическая проблема, возникающая при их возгонке, – агрессивная фторидная среда. В связи с этим на практике никогда не применяют открытые нагревательные элементы и печь сублиматора всегда отделяется от внутреннего резервуара обечайкой, например, из никеля или стали 12Х18Н10Т.

На рис. 1 представлена схема лабораторной установки для исследования кинетики сублимации ТФЦ, ранее использованная в исследованиях процессов очистки тетрафторида циркония от гафния и других примесей [1]. Как видно на рис. 1, никелевый стакан с исследуемым образцом из смеси тетрафторидов циркония и гафния размещался на дно внутренней полости сублиматора, при этом нагревательный элемент отделялся никелевой обечайкой.

На рис. 2 представлена схема промышленного аппарата для сублимационной очистки ТФЦ. Несмотря на то, что в промышленности большее распространение получили сублиматоры с испарителями в виде тарелей, показанный на рис. 2 нагреватель являлся типовым как для сублиматоров со стаканом-испарителем, так и в тарельчатых сублимационных аппаратах [7–9].

В большинстве случаев, как показано на рис. 1 и 2, в качестве нагревательного элемента сублимационных аппаратов использовалась нихромовая спираль [3, 7], которая одновременно имеет повышенную жаропрочность, крипоустойчивость, пластичность и хорошо держит форму. В качестве печного наполнителя традиционно применялся шамот, в том числе в виде кладки шамотных кирпичей.

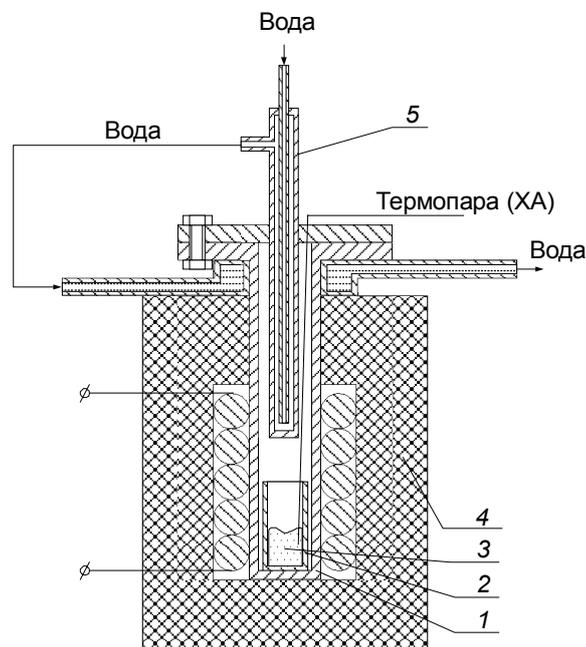


Рис. 1. Схема лабораторной установки для исследования кинетики сублимации: 1 – сублиматор; 2 – никелевый стакан; 3 – сублимируемый продукт; 4 – электropечь; 5 – конденсатор

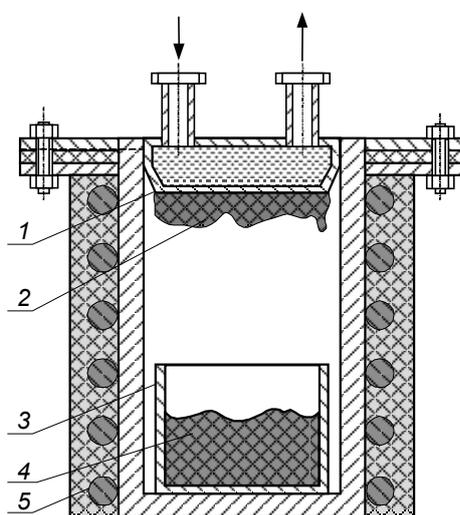


Рис. 2. Схема промышленного аппарата для сублимационной очистки ТФЦ: 1 – крышка-холодильник; 2 – десублимат; 3 – стакан-испаритель; 4 – исходный порошок; 5 – нагревательный элемент

Использование в качестве нагревательного элемента более дешевой фехрелевой спирали затруднительно в связи с достаточно высокой сложностью замены спирали в случае разрушения. Поскольку сублимация данных фторидов происходит при достаточно высоких температурах, то после первого же использования спираль становилась хрупкой и в случае ее разрыва для замены необходимо было практически полностью разбирать конструкцию аппарата, включая слой внешней теплоизоляции и печного наполнителя.

В связи с тем, что разрыв может возникать и при использовании нихромовой спирали, пространство получили также сублимационные аппараты с центральной нагревательной системой, в которых печь нагрева встроена в крышку аппарата (рис. 3) [3]. При разрыве спирали нагревателя в данных аппаратах достаточно было демонтировать и разобрать крышку-нагреватель, что требует существенно меньше затрат времени и усилий, чем если разбирать внешний кожух аппарата при ремонте внешнего нагревателя.

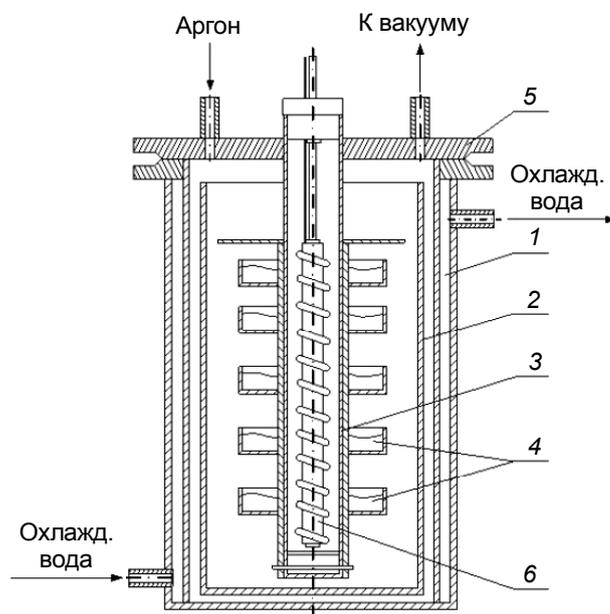


Рис. 3. Схема сублиматора с внутренним нагревателем: 1 – корпус; 2 – десублиматор; 3 – сублиматор; 4 – тарелки с очищаемым материалом; 5 – крышка аппарата; 6 – электронагреватель

В лабораторных исследованиях также применялись альтернативные источники нагрева, которые, однако, не получили в промышленности широкого распространения. Для примера на рис. 4 показана схема лабораторной установки сублимации ТФЦ с ВЧ-нагревом [7–8]. Для нагревания образца ТФЦ в лабораторной установке (рис. 4) использовался ВЧ-генератор, при этом образец размещался в центре установки в стеклоглеродном стакане. Как и в предыдущих случаях, агрессивная фторидная среда представляла основную сложность проведения процесса сублимационной очистки, в связи с чем сублимация проводилось в кварцевой трубке, внутрь которой и помещался стеклоглеродный стакан с образцами ТФЦ. Отличительной особенностью было также использование во время сублимации в качестве газа-носителя гелия, который одновременно создавал объемную десублимацию и препятствовал воздействию фторидной среды на кварцевую трубку и стеклоглеродный стакан.

Применение лабораторной установки сублимации ТФЦ с ВЧ-нагревом позволило получить образцы десублимата ТФЦ с существенно более высоким коэффициентом очистки от $3d$ -переходных металлов. Однако сложности в изготовлении и хрупкость кварцевого сублиматора и стеклоглеродного испарителя весьма существенно затрудняют воспроизводство подобных сублиматоров до размеров, позволяющих использовать их в промышленном производстве.

Проведенные расчеты повышения производительности и качества продукта за счет применения параллельных и последовательных каскадов подобных сублиматоров с ВЧ-нагревом показали экономическую целесообразность только в случае получения продукта сверхвысокой чистоты. Возможность использования иных материалов для осуществления ВЧ-нагрева в сублиматорах со фторидной газовой средой требует дополнительных исследований.

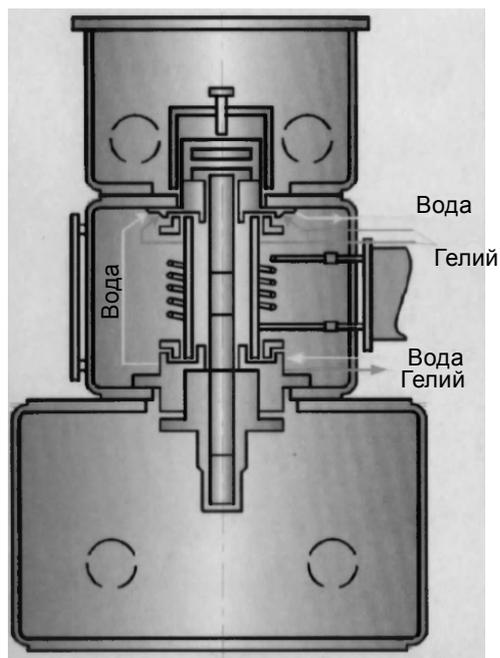


Рис. 4. Схема лабораторной установки сублимации ТФЦ с ВЧ-нагревом

Нагревательные устройства для нагрева гексафторосиликата аммония

Исследования закономерностей протекания сублимации ГФСА проводились на опытно-промышленной установке (рис. 5), состоящей из отдельных сублиматора и десублиматора, соединенных технологическим каналом [10–11, 14]. Материал аппаратов – алюмомагниевого сплава АМг1.

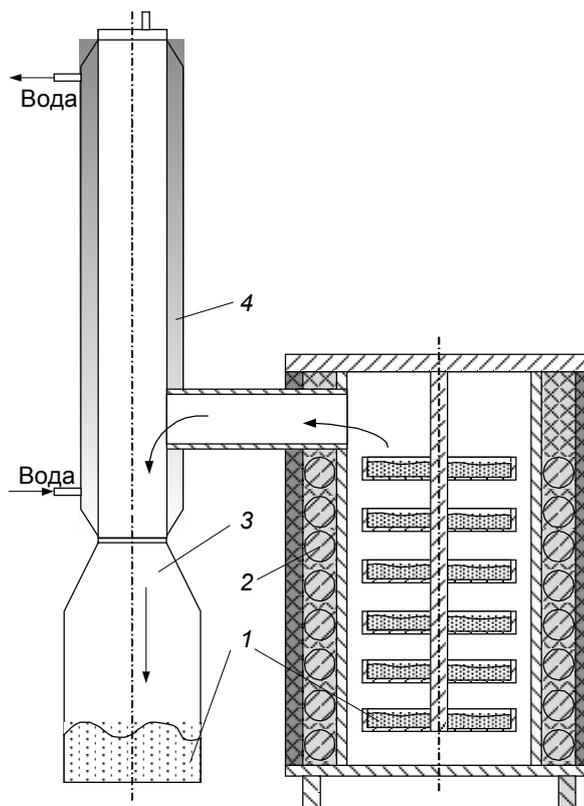


Рис. 5. Схема опытно-промышленной установки сублимационной очистки ГФСА: 1 – порошок гексафторосиликата аммония; 2 – печь; 3 – приемная емкость; 4 – холодильник-десублиматор

Сублиматор представлял собой цилиндрический аппарат периодического действия тарельчатого типа. Исходный порошок равномерно размещается на серии тарелок, которые для удобства загрузки и улучшения теплопроводности приварены к стержню, который, в свою очередь, приварен к крышке аппарата. Сублимированный ГФСА через технологический канал попадает в десублиматор – вертикальную цилиндрическую трубу, охлаждаемую через рубашку водой.

Опытные испытания установки показали, что даже в отсутствие конвективного газового потока в десублимации ГФСА преобладает объемный процесс [8], в то время как на поверхности нижней части холодильника десублимируется лишь незначительная часть.

Следует отметить, что проведенные исследования сублимации ГФСА [5] показали весьма низкий вклад конвекции в нагрев порошка ГФСА, в связи с чем практически весь нагрев осуществляется за счет теплопередачи. Более того, в случае использования для сублимационной очистки мелкогранулированного порошка образующийся газообразный сублимат ГФСА снижает эффект прогрева теплопередачей от испарителя, вероятно, за счет вскипания порошка и формирования своеобразной газообразной теплоизоляционной подушки, т.е. имеет место разновидность эффекта Лейденфроста [10].

По результатам исследований сублимации ГФСА авторы пришли к выводу о необходимости непосредственной фиксации испарителя к стенке нагревателя. То есть, например, при использовании внутреннего центрального нагревателя тарели-испарители должны быть приварены непосредственно к нему. Однако при использовании стакана-испарителя, размещающегося на дне аппарата, необходимо использовать внешний нагреватель, равномерно прогревающий стакан-испаритель.

Использование современных устройств нагрева

Последние десятилетия все большее распространение в промышленных аппаратах, в том числе сублиматорах, получают патронные теплоэлектронагреватели (ТЭН). Патронный ТЭН состоит из металлического корпуса, резистивного провода, изоляции и контактных проводов (рис. 6) [15].

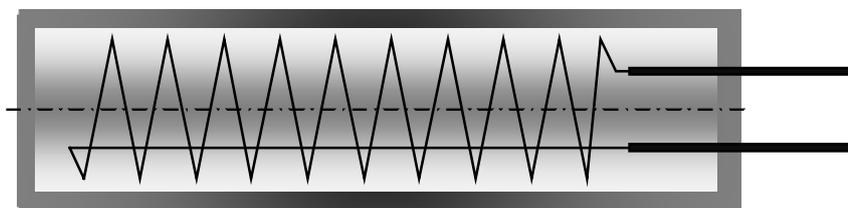


Рис. 6. Схема патронного ТЭН

Используемые в промышленности патронные ТЭН представляют собой прямые цилиндрические трубки, которые устанавливаются в специально изготовленные отверстия. Для монтажа патронных ТЭН в печной кладке сверлятся отверстия с использованием стандартных сверл соответствующего размера для нагревателя. Согласно стандартам сборки, диаметр тела нагревателя может составлять от 3 до 5 мм. Мощность патронника ограничена площадью рабочей поверхности, которая зависит от диаметра греющего элемента. Длина также зависит от диаметра и может составлять не менее 50 мм и не более 1300 мм.

Иногда в современных промышленных аппаратах также применяются системы нагрева, основанные на трубчатых нагревателях, в которых находится элемент высокого сопротивления из никелевой проволоки, изолированный от металлического корпуса периклазом. В трубчатых нагревателях нагревательный элемент прикреплен к концу трубки, от которой отводятся штыри для внешнего подключения. Корпус патронных ТЭН и трубчатых нагревателей, как правило, изготавливается из сплава на основе никеля и нержавеющей стали. Стандартный патронный ТЭН комплектуется гибкой электропроводкой, прикрепленной к специальным штырям питания или отведенной снаружи частью изолированного обжимного соединения. Соединения стандартного трубчатого нагревателя осуществляют через резьбовые стержни или клеммы.

Применение в промышленных аппаратах в качестве нагревательных элементов патронных ТЭН и трубчатых нагревателей весьма существенно упрощает эксплуатацию данного оборудования, поскольку при выходе из строя одного из нагревательных элементов система нагрева, хотя и с меньшей производительностью, но продолжает работать. Кроме того, значительно упрощается и

ремонт системы нагрева, так как для этого достаточно просто заменить нагревательный элемент на новый.

В качестве современных элементов нагрева в аппаратах сублимационной очистки ТФЦ и ТФГ могут также использоваться кремнемолибденовые (дисилицид молибденовые) и карбидокремниевые нагреватели. В кремнемолибденовых нагревателях нагревательный элемент состоит из чистого дисилицида молибдена. Кремнемолибденовые нагреватели позволяют в печах достичь температуры до 1700 °С.

Карбидокремниевые нагреватели изготавливаются из порошка карбида кремния SiC, который практически не подвержен коррозии, не деформируется и не окисляется. Нагреватели из карбида кремния могут поддерживать температуры до 1450 °С и имеют долгий срок службы.

Вариантом улучшения систем нагрева также является применение современных теплоизоляционных материалов для печей и нагревательных элементов, например суперизола. Суперизол – пористый плотный теплоизоляционный материал, легко выдерживает температуру до 1000–1100 °С. Схемы теплоизоляции с использованием плит суперизола различной толщины приведены на рис. 7.

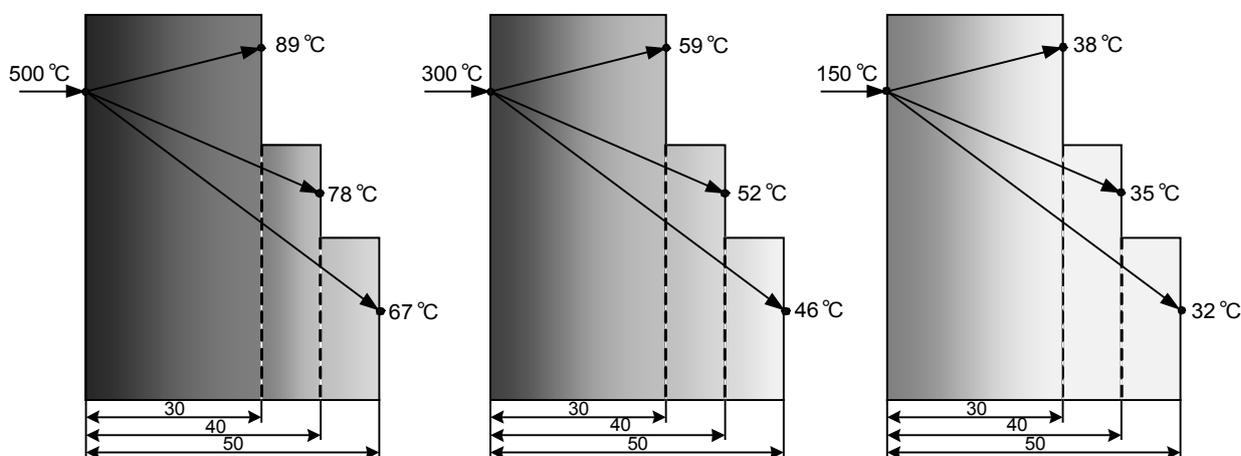


Рис. 7. Схемы теплоизоляции суперизолом

В связи с более низкими температурами сублимации ТФТ и ГФСА в качестве теплоизоляционного материала может также применяться асбокартон, который легко выдерживает температуру до 500 °С.

Выводы

Анализ использования нагревательных устройств показал, что при проектировании печного оборудования для нагрева порошков ТФТ, ТФЦ, ТФГ и ГФСА (и других неорганических фторидов) в температурном интервале до 800–1000 °С целесообразно использовать патронные ТЭН. При этом для эффективного нагрева порошков испаритель (например, тарель) необходимо монтировать (припаивать, приваривать) непосредственно на нагревателе.

Разделение в сублимационном оборудовании зоны нагрева от зоны испарения приводит к значительному снижению скорости нагрева и повышает потерю тепла через теплоизоляцию, особенно при внешнем размещении нагревателя, что приводит к низкому КПД оборудования.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Древаль А. Н. Исследование процессов очистки тетрафторида циркония от гафния и других примесей: дис. ... к.т.н. – Томск, 1982. – 222 с.
2. Федюнин В. А. Разработка безводных способов очистки тетрафторида циркония: дис. ... к.т.н. – Томск, 1984. – 214 с.
3. Буйновский А. С., Софронов В. Л., Русаков И. Ю. Расчет сублимационно-десублимационных аппаратов: учеб. пособие. – Томск: ТПИ, 1987. – 121 с.
4. Русаков И. Ю., Буйновский А. С., Софронов В. Л. Сублимационно-десублимационные процессы для фторидных технологий и их аппаратурное оформление. – Северск: Изд-во СТИ НИЯУ МИФИ, 2015. – 230 с.
5. Русаков И. Ю. Сублимационные и десублимационные процессы фторидной технологии получения циркония, гафния, урана и их аппаратурное оформление: дис. ... д.т.н. – Северск, 2019. – 370 с.

6. Бреховских М. Н., Федоров В. А. // Неорг. материалы. – 2014. – Т. 50. – № 12. – С. 1363–1368.
7. Ожерельев О. А., Федин А. С. Физико-химическая модель сублимационной очистки фторидов циркония, гафния, титана. – Северск: Изд-во СГТИ, 2004. – 125 с.
8. Ожерельев О. А. Сублимационная очистка фторидов циркония, гафния, титана от примесей 3d-переходных металлов. – Новосибирск: Наука, 2005. – 135 с.
9. Федин А. С., Ожерельев О. А. // Изв. вузов. Физика. – 2013. – Т. 56. – № 4/2. – С. 312–320.
10. Федин А. С. и др. // Известия Томского политехнического университета. – 2013. – Т. 323. – № 3. – С. 23–27.
11. Федин А. С. и др. // Известия Томского политехнического университета. – 2013. – Т. 323. – № 3. – С. 28–33.
12. Мельниченко Е. И., Крысенко Г. Ф., Эпов Д. Г., Марусова Е. Ю. // Журн. неорг. химии. – 2004. – Т. 49. – № 12. – С. 1943–1947.
13. Мельниченко Е. И., Крысенко Г. Ф., Эпов Д. Г. // Журн. неорг. химии. – 2005. – Т. 50. – № 2. – С. 192–196.
14. Борисов В. А., Дьяченко А. Н., Кантаев А. С. // Известия Томского политехнического университета. – 2010. – Т. 317. – № 3. – С. 73–76.
15. Negbom T. Integrating Electrical Heating Elements in Appliance Design. – N.Y.: Marcel Dekker Inc., 1997. – 480 p.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

Северский технологический институт Национального исследовательского ядерного университета «МИФИ», г. Северск, Россия

Федин Андрей Сергеевич, соискатель СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: fedinas333@mail.ru;

Ожерельев Олег Александрович, к.т.н., доцент СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: ooasti@mail.ru.

A.S. FEDIN, O.A. OZHERELYEV

USE OF VARIOUS HEATING DEVICES FOR THE SUBLIMATION OF INORGANIC FLUORIDES

The research have been carried out on the systematization and analysis of the use of various heating devices for heating inorganic fluoride powders in laboratory and industrial sublimators in order to develop high-performance sublimation equipment, including for multi-stage deep anhydrous cleaning as well. Evaporation of zirconium tetrafluoride, ammonium hexafluorosilicate and other fluorides under the influence of possible options for upgrading equipment using modern heating devices, the aggressiveness of the environment, the range of temperatures used, and technological requirements are considered. The discussion of the effectiveness of various methods of heating-sublimation was based on previously published experimental data on anhydrous purification of fluorides from impurities and anhydrous purification of fluorides from impurities of 3d-transition metals.

Keywords: heating of powders, sublimation, inorganic fluoride, degree of purity, evaporation surface.

Seversk Technological Institute National Research Nuclear University «МЕРФИ», Seversk, Russia

Fedin Andrey Sergeevich, Postgraduate STI NRNU «МЕРФИ», e-mail: fedinas333@mail.ru;

Ozherelyev Oleg Aleksandrovich, Candidate of Technical Sciences, Associate Professor STI NRNU «МЕРФИ», e-mail: ooasti@mail.ru.

УДК 621.039.54

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/142

М.С. ФЕДОРОВ^{1,2}, Д.В. ЗОЗУЛЯ¹, А.Н. ЖИГАНОВ², В.Л. СОФРОНОВ²

ПРИМЕНЕНИЕ ТЕХНОЛОГИИ КАРБОТЕРМИЧЕСКОГО СИНТЕЗА ПРИ ПРОИЗВОДСТВЕ СМЕШАННОГО НИТРИДА УРАНА И ПЛУТОНИЯ

Представлен обзор и краткий анализ применения технологии карботермического синтеза при производстве смешанного нитрида урана и плутония. Акцент поставлен на применении данного метода при реализации проекта «Прорыв». Показаны опыт внедрения данной технологии на площадке Акционерного общества «Сибирский химический комбинат», а также планируемая технологическая схема получения смешанного нитрида урана и плутония на модуле фабрикация-рефабрикация опытно-демонстрационного энергетического комплекса.

Ключевые слова: карботермический синтез, уран, плутоний, нитридное топливо, опытно-демонстрационный энергетический комплекс.

Введение

Инновационно-технологическое развитие ядерной энергетики предусматривает решение одной из главных задач – разработка и создание ядерных реакторов, которые соответствуют принципу «естественной безопасности (самозащищенности)» [1]. Для решения этой задачи изучен вопрос перехода от оксидного топлива к высокоплотному топливу с повышенной ядерной концентрацией делящихся изотопов. В качестве наиболее возможного топлива для адаптации технологий и обогативания, разработанных для изготовления и переработки оксидного топлива, является нитридное топливо. Нитридное топливо как потенциальное ядерное топливо для реакторов на быстрых нейтронах начали серьезно рассматривать лишь в 1980–1990 гг. XX в. Наибольший опыт по производству смешанного уран-плутониевого нитридного (СНУП) топлива накоплен в Европейском институте трансурановых элементов в Карлсруэ, Германия. Значительный объем работ выполнен в Индии, Америке, Японии и, конечно же, в России [2, 3].

Применение СНУП-топлива обосновывают следующие достоинства [4]: содержание делящегося изотопа и теплопроводность значительно выше оксидного, температура в центре нитридного тепловыделяющего элемента (ТВЭЛ) намного меньше оксидного (при одинаковой скорости деления и геометрии ТВЭЛ), а следовательно, и температурный градиент, величина которого влияет на поведение топлива и распределение продуктов деления в нем, будет значительно меньше; важны также совместимость топлива с теплоносителем и простота радиохимической переработки облученного топлива.

В 2010 г. ГК «Росатом» инициировал работы по созданию новой технологической платформы атомной отрасли на основе быстрых реакторов и ЗЯТЦ – проект «Прорыв» [5]. В рамках этого проекта, во-первых, предполагается создать проекты двух типов реакторных установок: коммерческого быстрого реактора с натриевым теплоносителем мощностью 1200 МВт (далее – БН-1200) и опытно-демонстрационного реактора со свинцовым теплоносителем мощностью 300 МВт (далее – БРЕСТ-ОД-300). Во-вторых, предстоит создать совершенно новое топливо для них – смешанное нитридное уран-плутониевое [2, 6–8]. В-третьих, решить проблемы отработавшего ядерного топлива. С 2012 г. проект «Прорыв» реализуется на площадке Акционерного общества «Сибирский химический комбинат» (далее – АО «СХК»).

Поэтому изучение СНУП-топлива, а также методов получения данного вида топлива является актуальной задачей.

Карботермический синтез нитридов урана и плутония

Исторически первым способом для получения нитридного топлива был выбран металл-гидридный [3, 9]. Однако данный способ получения неэкономичен, связан с решением дополнительных технологических проблем и поиском способов обеспечения безопасности вследствие использования водорода, который является взрывопожароопасным реагентом [4].

Поэтому дальнейшие эксперименты по получению СНУП-топлива стали проводить с использованием метода карботермического синтеза (КТС). Указанный способ является наиболее проработанным с точки зрения промышленного освоения и имеет преимущество в использовании в ка-

честве исходных материалов оксидов, являющихся продуктом действующих предприятий радиохимической переработки облученного топлива [10].

Из недостатков следует отметить необходимость контроля примесей в получаемых порошках, а также соблюдение заданной газовой атмосферы в печи.

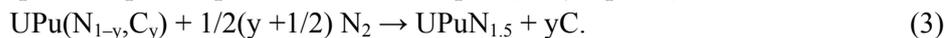
Суммарная реакция карботермического восстановления:



Реакция удаления избыточного углерода:



После чего происходит перевод карбонитрида в высший нитрид (полуторный):



Далее следует реакция удаления углерода, выделившегося при превращении карбонитрида в полуторный нитрид:



И в конце процесса происходит следующее превращение:



Реакции (1), (3) протекают в атмосфере азота при температуре не менее 1000 °С, реакции (2), (4) – в атмосфере водорода при температуре до 1200 °С, реакция (5) – в атмосфере гелия при температуре до 1500 °С.

Технологическая схема получения СНУП-топлива, основанная на данном методе, представлена на рис. 1 [3].

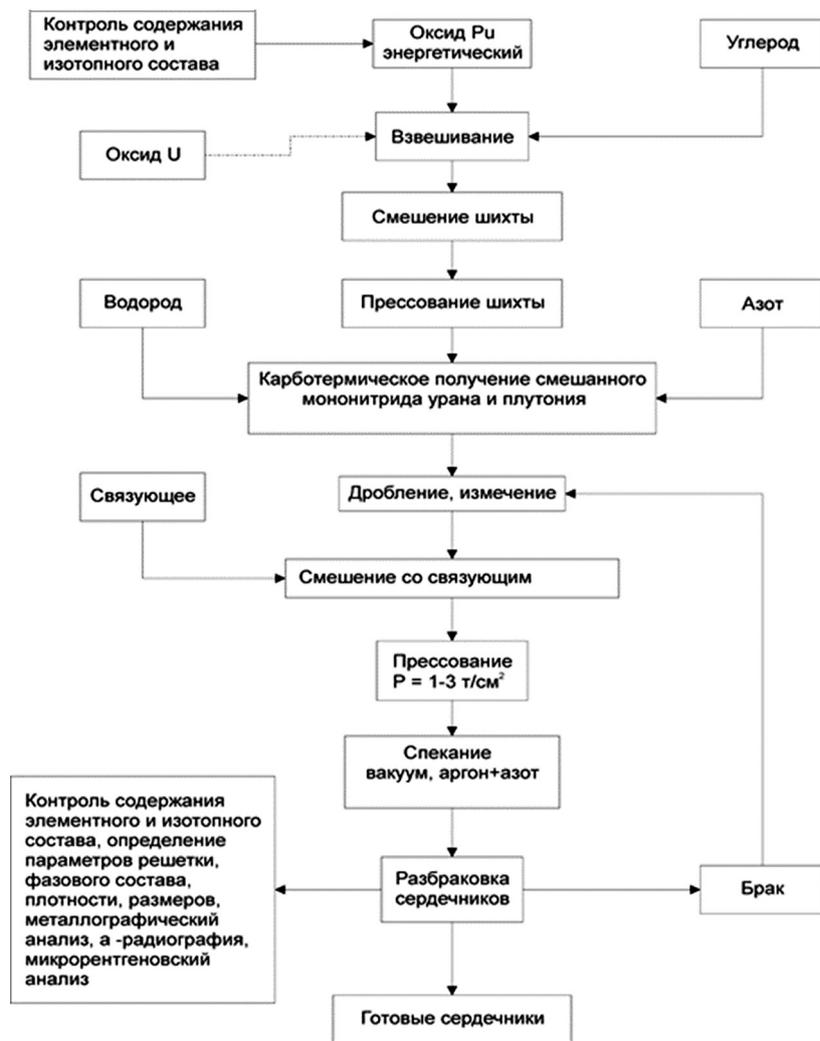


Рис. 1. Схема получения СНУП-топлива карботермическим восстановлением

В 2012 г. на площадке АО «СХК» создан комплекс экспериментальных установок (КЭУ1) – уникальная площадка для опытно-промышленного производства компонентов топлива, от топливной таблетки до тепловыделяющей сборки (ТВС), для быстрых и тепловых реакторов как российского, так и иностранного дизайнов.

КЭУ1 – действующее экспериментальное производство топлива, ТВЭЛ и ТВС со СНУП-топливом. Данное производство необходимо для обоснования его работоспособности и лицензирования.

На первом этапе для производства СНУП-топлива на КЭУ1 применялась технология ФГУП «НИИ НПО «ЛУЧ», которая заключалась в получении смешанного полупуторного нитрида урана и плутония из исходных оксидов. Полученный порошок полупуторного нитрида направлялся на стадию прессования таблеток, после чего таблетки спекались с обязательной стадией восстановления полупуторного нитрида до моонитрида. В данной технологии в качестве связующего использовался тетрахлорид углерода, вследствие чего в составе спеченных таблеток присутствовало избыточное количество хлора, превышающее регламентированное.

По этой причине пришлось осуществить переход на технологию АО «ВНИИНМ» в конце 2012 г. В 2013 г. произошло дооснащение и модернизация КЭУ (установка четырех боксов-укрытий, дополнительных печей синтеза, печи спекания и монтаж автоматизированного пресса), создание установки изготовления ТВС и, таким образом, увеличение производительности КЭУ.

В 2013 г. на КЭУ внедрена лабораторная технология получения СНУП-топлива методом карботермического синтеза. В результате внедрения и совершенствования данной технологии оптимизированы режимы получения исходных оксидов урана и плутония, процессы карботермического синтеза и спекания, а также оформлен технологический процесс на АО «СХК».

Первые этапы отработки технологии ВНИИНМ выявили ряд проблем:

- невозможность прямого переноса технологии АО «ВНИИНМ» в условия КЭУ;
- низкая, плохо управляемая прессуемость как исходных диоксидов, так и синтезированных нитридов;
- загрязнение исходных материалов конструктивными примесями на стадиях смешения и измельчения;
- отсутствие проверенных материалов для изготовления технологической оснастки;
- отсутствие повторяемости результатов процессов;
- низкая производительность установки.

Для решения данных проблем проведены следующие мероприятия:

- отработка режимов измельчения материалов;
- отработка и оптимизация режимов КТС и спекания;
- разработка и адаптация технологической оснастки;
- разработка и оптимизация конструкции пресс-инструмента;
- разработка технологии переработки несоответствующей продукции, доведение до кондиционных параметров;
- модернизация технологического оборудования;

В ходе работ на КЭУ выполнены следующие работы:

- впервые в мире изготовлены полномасштабные ТВС на основе СНУП-композиции;
- всего загружено в БН-600 18 ТВС (более 1000 ТВЭЛ различной конструкции с разными оболочками), успешно завершено облучение и послереакторные испытания 10-ти ТВС;
- подготовлены данные для верификации технологической модели процессов изготовления СНУП-топлива;
- на опытных образцах оборудования проведена отработка комплексного технологического процесса с экспериментальным масштабированием технологии изготовления СНУП-топлива;
- отработан алгоритм автоматической разбраковки таблеток и системы обеспечения и контроля параметров внутрибоксовой атмосферы;
- протестированы конструкционные материалы печей синтеза и спекания нитридного топлива.

На площадке опытно-демонстрационного энергетического комплекса (ОДЭК) планируется изготавливать таблетки СНУП-топлива, ТВЭЛ и ТВС с соблюдением следующих принципов:

- применение только «сухих» технологий;
- обеспечение высокой чистоты атмосферы, контактирующей с топливными материалами (постоянный контроль содержания влаги и кислорода);
- применение только автоматизированных процессов при обеспечении максимально возможного доступа к оборудованию для ручной настройки;
- переход к рефабрикации, т.е. в замкнутый ядерный топливный цикл (ЗЯТЦ), без изменения состава оборудования.

В составе модуля фабрикация-рефабрикации ОДЭК предусмотрена линия карботермического синтеза и изготовления таблеток СНУП-топлива.

На модуле фабрикация-рефабрикации ОДЭК будет использоваться представленная на рис. 2, схема получения СНУП-топлива.

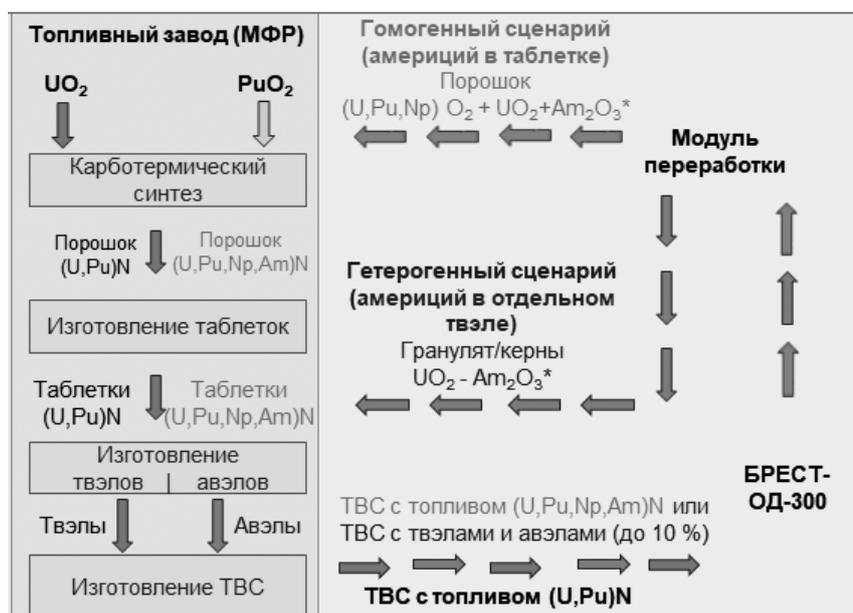


Рис. 2. Схема получения и использования СНУП-топлива на площадке ОДЭК

Рассмотрим подробнее процесс карботермического синтеза на модуле фабрикация-рефабрикации. Нитрид урана и плутония синтезируют по карботермической технологии восстановления металлов из оксидов с одновременным нитрированием [4].

В соответствии с [11], на первом этапе порошки UO_2 и PuO_2 смешивают, добавляют углерод и стеарат цинка. Из полученной шихты прессуют шашки диаметром от 18 до 20 мм, высотой от 3 до 5 мм и массой от 7 до 9 г. Содержание UO_2 и PuO_2 составляет 85 и 15% соответственно. Полученные шашки направляют в печь, где происходит синтез. Карботермический синтез осуществляется сначала в азотной атмосфере, затем в атмосфере азота и водорода. Согласно данным, указанным в работе [12], для исключения повышенного содержания углерода в синтезированном нитриде урана и плутония, в газовую среду вводят водород, который, взаимодействуя с углеродом, образует метан. Таким образом, в результате синтеза образуются нитрид урана и плутония, а также газы диоксид и монооксид углерода и метан, которые постоянно удаляют из зоны протекания реакции. Нитрид урана и плутония охлаждают в атмосфере аргона в целях предотвращения образования высших нитридов урана.

Основными элементами установки являются шесть высокотемпературных садочных печей синтеза горизонтального типа, входной/выходной бокс, два шлюзовых бокса (входной и выходной), шесть камер охлаждения, транспортно-технологическая система перемещения лодочек с шашками, включающая каналы загрузки и выгрузки, шесть установок газоочистки, системы подачи газов, воды для охлаждения печей, а также система управления и контроля.

Ядерная и радиационная безопасность при эксплуатации обеспечивается, в первую очередь, конструкцией установки и ее составных частей, а также ограничением массы делящихся изотопов

урана и плутония. Герметичное исполнение оборудования исключает выход радиоактивных продуктов за пределы установки. Для предотвращения аварийных ситуаций и поломки установки при отказе ее элементов и систем предусмотрены системы блокировок и оповещения об отказах.

Заключение

На ранних стадиях НИР ученые применяли способ гидрирования-нитрирования металлов урана и плутония, но после детального анализа был поставлен акцент на карботермическое восстановление из исходных оксидов урана и плутония. Первые анализы нитридов урана и плутония, полученных данным способом, показали, что карботермический синтез является одним из возможных способов получения нитридного топлива в промышленном масштабе и имеет преимущество в использовании в качестве исходных материалов оксидов, являющихся продуктом действующих предприятий радиохимической переработки облученного топлива.

В настоящее время также ведутся научно-исследовательские работы по созданию альтернативных способов, исключающих введение карбидизирующих реагентов, но пока они находятся на стадии лабораторной реализации. В данной работе показан опыт использования на АО «СХК» метода карботермического синтеза для получения СНУПТ в действующем опытном производстве.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Адамов Е.О., Орлов В.В., Рачков В.И. и др. // Известия РАН. Энергетика. – 2015. – № 1. – С. 13–39.
2. Троянов В.М., Грачев А.Ф., Забудько Л.М., Скупов М.В. // Атомная энергия. – 2014. – Т. 117. – Вып. 2. – С. 69–75.
3. Копырин А.А., Карелин А.И., Карелин В.А. Технология производства и радиохимической переработки ядерного топлива: учеб. пособие для вузов. – М.: ЗАО «Издательство Атомэнергоиздат», 2006. – 576 с.
4. Алексеев С.В., Зайцев В.А. Нитридное топливо для ядерной энергетики. – М.: Техносфера, 2013. – 240 с.
5. Постановление Правительства РФ от 3.02.2010 № 50 «О федеральной целевой программе «Ядерные энерготехнологии нового поколения на период 2010–2015 годов и на перспективу до 2020 года».
6. Поплавский В.М., Забудько Л.М., Шкабура И.А. и др. // Атомная энергия. – 2010. – Т. 108. – Вып. 4. – С. 212–217.
7. Рогозкин Б.Д., Степеннова Н.М., Прошкин А.А. // Атомная энергия. – 2003. – Т. 95. – Вып. 3. – С. 208–211.
8. Елисеев В.А., Забудько Л.М., Малышева И.В., Матвеев В.И. // Атомная энергия. – 2013. – Т. 114. – Вып. 5. – С. 266–271.
9. Ватулин А.В., Рогозкин Б.Д., Сила-Новицкий А.Г. // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Обеспечение безопасности АЭС. – 2004. – Вып. 4. – С. 161–170.
10. Грачев А.Ф., Забудько Л.М., Глушенков А.Е. и др. // Атомная энергия. – 2017. – Т. 122. – Вып. 3. – С. 156–167.
11. Смирнов В.П., Павлов С.В., Иванов Д.В. и др. // Атомная энергия. – 2018. – Т. 125. – Вып. 5. – С. 284–287.
12. Bordell P. and Warin D. // J. Nucl. Mater. – 1992. – V. 188. – P. 36–42.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

¹ АО «Сибирский химический комбинат», г. Северск, Россия

² Северский технологический институт Национального исследовательского ядерного университета «МИФИ», г. Северск, Россия

Федоров Максим Сергеевич, технолог участка ОДЭК АО «СХК», аспирант СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: maxwin1@yandex.ru;

Зозуля Дмитрий Валерьевич, директор ОДЭК АО «СХК», e-mail: DVZozulya@rosatom.ru;

Жиганов Александр Николаевич, д.т.н., профессор СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: anzhiganov@mephi.ru;

Софронов Владимир Леонидович, д.т.н., профессор СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: vlsofronov@mephi.ru.

M.S. FEDOROV^{1,2}, D.V. ZOZULYA¹, A.N. ZHIGANOV², V.L. SOFRONOV²

APPLICATION OF THE TECHNOLOGY OF CARBOTHERMAL SYNTHESIS IN THE PRODUCTION OF MIXED URANIUM AND PLUTONIUM NITRIDE

An overview and a brief analysis of the application of the technology of carbothermal synthesis in the production of mixed uranium and plutonium nitride is presented. Emphasizes on the application of this method in the implementation of the «Breakthrough» project. The paper presents the experience of implementing this technology at the site of the «Siberian Chemical Plant», the proposed technological scheme for producing mixed uranium and plutonium nitride at the fabrication-refabrication module of the experimental demonstration power complex.

Keywords: *carbothermal synthesis, uranium, plutonium, nitride fuel, experimental demonstration energy complex.*

¹ Siberian Chemical Plant, Seversk, Russia

² Seversk Technological Institute National Research Nuclear University «MEPHI», Seversk, Russia

Fedorov Maxim Sergeevich, Area Technologist PDEC Siberian Chemical Plant, Graduate Student STI NRNU «MEPHI», e-mail: maxwin1@yandex.ru;

Zozulya Dmitry Valerevich, Director of PDEC Siberian Chemical Plant, e-mail: DVZozulya@rosatom.ru;

Zhiganov Alexander Nikolaevich, Doctor of Technical Sciences, Professor STI NRNU «MEPHI», e-mail: anzhiganov@mephi.ru;

Sofronov Vladimir Leonidovich, Doctor of Technical Sciences, Professor STI NRNU «MEPHI», e-mail: vlsofronov@mephi.ru.

УДК 621.039.736

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/148

С.М. ШАЙДУЛЛИН^{1,2}, Е.А. БЕЛАНОВА², П.В. КОЗЛОВ^{2,3}, М.Б. РЕМИЗОВ², Е.М. ДВОРЯНЧИКОВА²

ОТРАБОТКА ПРОЦЕССА ВАРКИ БОРОСИЛИКАТНЫХ СТЕКОЛ С ИМИТАТОРАМИ КОМПОНЕНТОВ ВАО И ИССЛЕДОВАНИЕ ИХ ХИМИЧЕСКОЙ УСТОЙЧИВОСТИ

Описано текущее состояние технологии остекловывания высокоактивных отходов (ВАО) на радиохимическом производстве ФГУП «ПО «Маяк». Рассмотрены концептуальные и технические решения по развитию технологии остекловывания различных видов жидких ВАО на предприятии. Исследованы составы боросиликатных стекол с компонентами ВАО, определены их температуры варки и легкого слива. Приведены результаты определения их химической устойчивости.

Ключевые слова: боросиликатное стекло, остекловывание, высокоактивные отходы, химическая устойчивость, печь остекловывания.

Изоляция и безопасное хранение ядерных отходов возможны благодаря иммобилизации отходов в прочные, химически устойчивые материалы. Если для низко- и среднеактивных отходов приемлем метод цементирования, то для иммобилизации высокоактивных отходов (ВАО) нужны более устойчивые материалы, такие, как керамика и стекло. Стекло – нестехиометрическое соединение, при нагревании оно способно растворять, а при последующем охлаждении прочно удерживать сложную смесь продуктов деления ядерного топлива. Получаемый продукт обладает высокой химической и радиационной стойкостью, является изотропным, непористым.

Для иммобилизации ВАО, в основном, применяются два вида стекол – боросиликатные и фосфатные [1]. Базовый состав боросиликатных стекол, как правило, представлен оксидами кремния, бора и натрия, а алюмофосфатных стекол – оксидами алюминия, фосфора и натрия [2]. Состав стекла ограничивается, с одной стороны, растворимостью отдельных компонентов ВАО в стекле, а с другой – технологическими параметрами остекловывания (способа денитрации отходов применяемого устройства для их кальцинирования, способа нагрева, режима процессов отверждения, слива из плавителя и т.п.).

На ФГУП «ПО «Маяк» иммобилизация жидких ВАО радиохимического производства в алюмофосфатное стекло применяется в промышленном масштабе с 1987 г. Данный способ происходит на неэвакуируемых плавителях прямого электрического нагрева типа ЭП-500. За прошедший период времени на предприятии отработали расчетный срок и были выведены из эксплуатации четыре подобные печи. С 27 декабря 2016 г. введена в эксплуатацию на жидких ВАО пятая промышленная электропечь ЭП-500/5. Проектный срок ее эксплуатации составляет 6 лет. В настоящее время проектируется следующая печь подобного типа (ЭП-250/6), в конструкции которой будет учтен опыт эксплуатации предыдущих установок остекловывания, что должно обеспечить срок ее эксплуатации порядка 8 лет. Предполагаемый срок пуска в эксплуатацию данной электропечи – 2023 г.

В 2028 г. на предприятии планируется создание нового комплекса остекловывания, универсального по составу отверждаемых жидких высокоактивных отходов. В частности, для отверждения жидких ВАО от переработки ОЯТ энергетических реакторов (ВВЭР-440, ВВЭР-1000, БН-600, БН-800) предполагается использовать малогабаритные плавители прямого электрического нагрева на боросиликатном стекле [3]. Данные электропечи должны будут иметь предусмотренную проектом процедуру демонтажа, разборки и удаления для обеспечения соответствия природоохранному законодательству и снижению издержек при создании новых установок за счет использования значительной части инфраструктуры [4].

Таким образом, на ближайшее десятилетие в России основным способом отверждения ВАО будет оставаться технология остекловывания в печах прямого электрического нагрева. При этом будет расширяться номенклатура применяемых стекол и характеристики отверждаемых отходов [5].

Согласно нормативам МАГАТЭ, жидкие ВАО подлежат отверждению [6]. Основной целью является максимальное уменьшение их объема и кондиционирование, т.е. перевод в химически- и радиационно-устойчивую форму, сохраняющую свою стабильность на протяжении всего времени

хранения. С точки зрения долговременной экологической безопасности основную роль играет химическая устойчивость.

Несмотря на то, что боросиликатные стекла уже достаточно давно используются для отверждения радиоактивных отходов за рубежом, систематическое исследование их физико-химических свойств в России, в основном, проводится последние 20 лет.

Цель данной работы – сварить боросиликатные стекла на основе кальцината модельной гидроксидной пульпы сложного состава, имитирующей накопленные ВАО емкостей-хранилищ, и стеклофритты в разных соотношениях, определить температуру варки, температуру легкого слива и химическую устойчивость стекол.

Составы исследованных боросиликатных стекол, температура варки и температура легкого слива приведены в табл. 1.

Таблица 1

Составы исследованных боросиликатных стекол, температура варки и температура легкого слива

№ стекла	Массовая доля оксидов в боросиликатных стеклах, %													$T_{в}, ^\circ\text{C}$	$T_{л.с}, ^\circ\text{C}$
	SiO ₂	B ₂ O ₃	Li ₂ O	Na ₂ O	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	Cr ₂ O ₃	NiO	MnO	CaO	K ₂ O	MgO	SO ₃		
1	61.43	6.8	6.8	18.69	3.19	0.56	0.26	0.67	0.18	0.09	0.67	0.13	0.54	1050	1150
2	50.85	5.6	5.6	25.37	6.37	1.13	0.52	1.33	0.36	0.19	1.34	0.26	1.07	1000	1100
3	40.28	4.4	4.4	32.06	9.56	1.69	0.77	2	0.55	0.28	2.01	0.39	1.61	950	1000
4	29.71	3.2	3.2	38.75	12.74	2.26	1.03	2.66	0.73	0.37	2.69	0.52	2.14	900	950

Примечание. $T_{в}$ – температура варки; $T_{л.с}$ – температура легкого слива.

Кальцинат – это продукт переработки модельной гидроксидной пульпы одной из емкостей-хранилищ, представляющей собой четырнадцать изолированных друг от друга бетонных отсеков, облицованных нержавеющей сталью марки 1X18H9T толщиной 3 мм, объемом 1170 м³ каждый. В хранилища активно загружались гетерогенные ВАО в период с 1968 по 1986 г. Емкости расположены на поверхности земли, что исключает подпор грунтовых вод [7]. Содержимое емкостей – это слабощелочные и щелочные системы осадков, суспензий и осветленных растворов. Основу осадков составляют гидроксиды железа, алюминия, никеля, хрома, сульфиды железа и никеля, ферроцианиды никеля-цезия и титана-цезия. Жидкая фаза представляет собой высокосолевыми растворы, химический состав которых обусловлен преимущественно гидроксидом, алюминатом и нитратом натрия. Радионуклидный состав представлен продуктами деления и различается для осветленной фазы и осадка. Активность жидкой фазы определяется, главным образом, цезием-137, в осадке присутствует еще и значительное количество стронция-90 (в равновесии с иттрием-90), а также делящиеся компоненты – уран и плутоний. Состав пульпы представлен в табл. 2.

Таблица 2

Содержание компонентов в гидроксидной пульпе при условии гомогенизации осадка и жидкой фазы

Компонент	Концентрация компонентов в реальной пульпе, г/л	Концентрация компонентов в девятикратно разбавленной пульпе, г/л
Na	170.3	18.9
Al	181.5	20.2
Fe	42.5	4.7
Cr	19.1	2.1
Ni	56.3	6.3
Mn	15	1.7
Si	11.4	1.3
Mg	8.4	0.9
Ca	7.3	0.8
K	60	6.7
SO ₄ ²⁻	69.1	7.7
Cl ⁻	0.37	0.04
NO ₃ ⁻	30.7	3.4

Поскольку в лабораторных условиях синтезировать пульпу подобного состава представляет трудную задачу, условно было принято девятикратное ее разбавление. В соответствии с этим гидроксиды алюминия, железа, хрома, никеля, марганца, магния, кальция получали непосредственным осаждением элементов из азотно-кислого раствора гидроксидом натрия. Раствор гидроксида натрия с концентрацией 500 г/л к азотно-кислому раствору добавляли из расчета полного осаждения гидроксидов отмеченных элементов, в результате модельная лабораторная пульпа получилась с превышенным содержанием натрия. Калий вводили в виде нитрата калия, сульфат-ионы – в виде сульфата натрия, хлорид-ионы – в виде хлорида натрия, кремний – в виде коллоидного оксида кремния (аэросила). После осаждения получали систему из твердой и жидкой фазы. В твердую фазу входили алюминий, железо, хром, никель, марганец, магний, кальций, кремний, в жидкую фазу – калий, натрий, нитрат-, хлорид- и сульфат-ионы.

В ходе работы пульпа была упарена до сухого остатка и термически обработана при 600 °С в течение 2 ч. Для надежной кальцинации дополнительно выдержана в течение 2 ч при 800 °С.

Конечный состав модельной гидроксидной пульпы, полученной в лабораторных условиях, и соответствующий состав кальцината представлены в табл. 3.

Таблица 3

Состав гидроксидной пульпы, приготовленной в лабораторных условиях, и соответствующий состав кальцината

Компоненты модельной гидроксидной пульпы	Концентрация компонентов в пульпе, г/л	Полный состав модельной гидроксидной пульпы	Концентрация компонентов в пульпе, г/л	Полный состав кальцината модельной гидроксидной пульпы	Массовая доля оксидов в кальцините, %
Al	19.64	Al(OH) ₃	56.76	Al ₂ O ₃	21.24
Fe	4.6	Fe(OH) ₃	8.82	Fe ₂ O ₃	3.76
Cr	2.07	Cr(OH) ₃	4.09	Cr ₂ O ₃	1.72
Ni	6.09	Ni(OH) ₂	9.61	NiO	4.44
Mn	1.62	Mn(OH) ₂	2.64	MnO	1.21
Mg	0.91	Mg(OH) ₂	2.18	MgO	0.87
Ca	0.79	Ca(OH) ₂	1.45	CaO	0.62
K	6.49	KOH	5.52	K ₂ O	4.48
Na	73.28	KNO ₃	6.82	Na ₂ O	53.78
Si	1.23	NaNO ₃	257.58	SiO ₂	1.51
SO ₄ ²⁻	7.48	SiO ₂	2.64	Na ₂ SO ₄	6.33
Cl	0.04	Na ₂ SO ₄	11.06	NaCl	0.03
NO ₃ ⁻	187.9	NaCl	0.06		

Сварены четыре состава стекла на основе кальцината модельной гидроксидной пульпы сложного состава и стеклофритты в разных соотношениях:

- кальцинат – 15%, фритта – 85%;
- кальцинат – 30%, фритта – 70%;
- кальцинат – 45%, фритта – 55%;
- кальцинат – 60%, фритта – 40%.

Стеклообразующий кальцинат плавил в диапазоне температур от 800 до 1050 °С. Поскольку для каждого состава стекла характерна индивидуальная температура варки, через каждые 50 °С проводили визуальный осмотр состояния содержимого тигля (начиная с 800 °С). Температуру варки стекла фиксировали в момент превращения кальцината в расплав, для полной гомогенизации расплав выдерживали при отмеченной температуре в течение 2 ч. Далее с интервалом в 50 °С продолжали нагрев для определения температуры легкого слива расплава, что наблюдается визуально по состоянию текучести. Закаленные стекла получали быстрым охлаждением расплава до комнатной температуры при его выливании на металлическую плиту из нержавеющей стали.

Установлено, что температура варки стекол составляет от 900 до 1050 °С, температура легкого слива стекол – от 950 до 1150 °С (см. табл. 1). Стекла получились прозрачными по всему объему. Стекла составов № 1–4 испытаны на химическую устойчивость. Для испытаний стекол по методу ГОСТ Р 52126 [8] готовили фракции стекол с размерами частиц от 0.16 до 0.25 мм. Удельная поверхность порошка составляет 120 см²/г. Порошки стекол перед экспериментом промывали эти-

ловым спиртом для удаления пылевидной фракции и высушивали. По методу длительного выщелачивания навески порошка массой 0.3 г, имеющие общую поверхность 36 см², помещали в полиэтиленовые стаканы с герметичной крышкой и заливали деионизированной водой объемом 50 см³. Образцы выдерживали при температуре (23±2) °С. Контактный раствор меняли через 1, 3, 7, 10, 14, 21, 28, 35, 56 и 91 сут от начала опыта. По истечении заданного времени контактный раствор декантировали и анализировали на содержание элементов методом масс-спектрометрии с индуктивно-связанной плазмой (ICP-MS). Согласно НП-019-2015 [9], химическая устойчивость фосфатных стекол оценивается по выщелачиванию цезия-137, нормативная скорость выщелачивания которого не должна превышать 1·10⁻⁵ г/(см²·сут). В настоящей работе химическую устойчивость боросиликатных стекол оценивали по скорости выщелачивания лития, натрия, калия, которые являются химическими аналогами цезия. Из перечисленных одновалентных элементов наиболее подвижны литий и натрий ввиду их малого ионного радиуса. Кроме этого, исследовано выщелачивание матричных компонентов (кремния и бора) и компонентов ВАО (алюминия) для отслеживания поведения многовалентных элементов.

В качестве дополнительной характеристики химической устойчивости стекол учитывается степень выщелачивания элементов. Данная величина не нормируется, однако позволяет сделать более точную оценку качества матрицы. Скорость выщелачивания элемента из матрицы, определенная по методу длительного выщелачивания, – величина дифференциальная, а степень выщелачивания – величина интегральная.

Результаты выщелачивания элементов из боросиликатных стекол составов № 1–4, полученные по методу длительного выщелачивания, представлены на рис. 1–6 и в табл. 4.

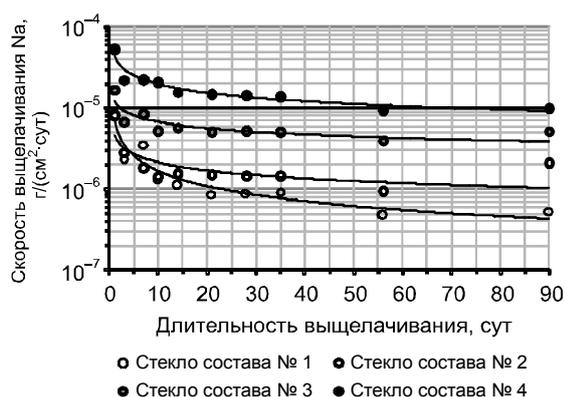


Рис. 1. Зависимость скорости выщелачивания натрия из закаленных боросиликатных стекол составов № 1–4 от длительности выщелачивания

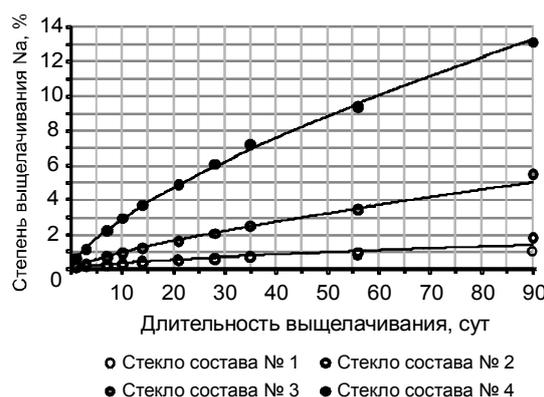


Рис. 2. Зависимость степени выщелачивания натрия из закаленных боросиликатных стекол составов № 1–4 от длительности выщелачивания

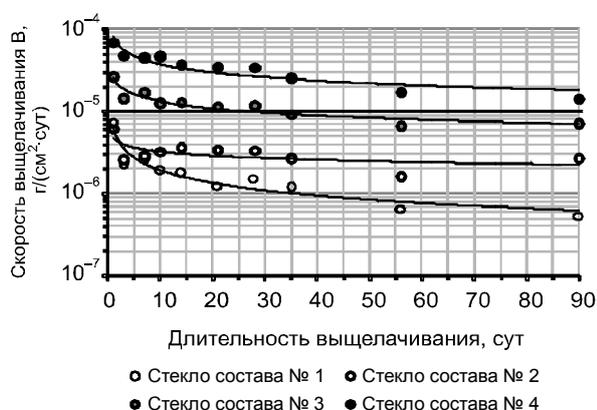


Рис. 3. Зависимость скорости выщелачивания бора из закаленных боросиликатных стекол составов № 1–4 от длительности выщелачивания

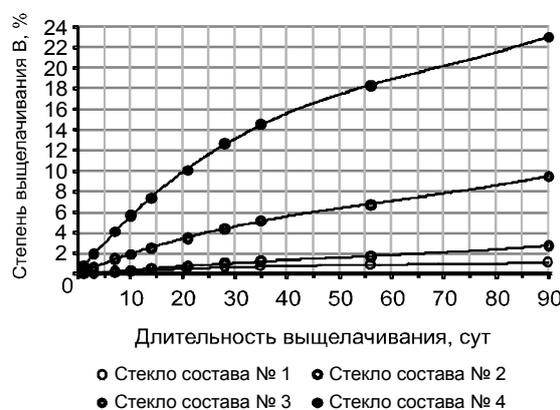


Рис. 4. Зависимость степени выщелачивания бора из закаленных боросиликатных стекол составов № 1–4 от длительности выщелачивания

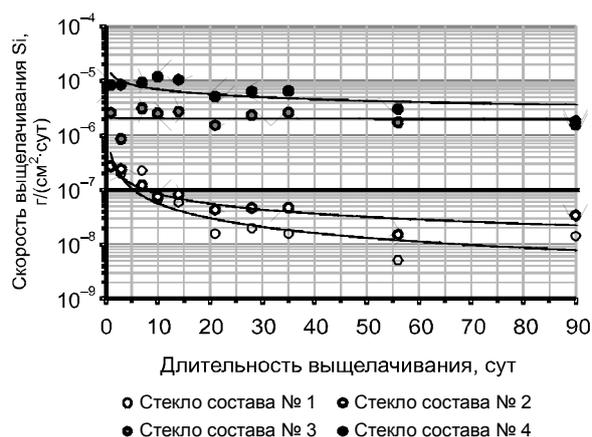


Рис. 5. Зависимость скорости выщелачивания кремния из закаленных боросиликатных стекол составов № 1–4 от длительности выщелачивания

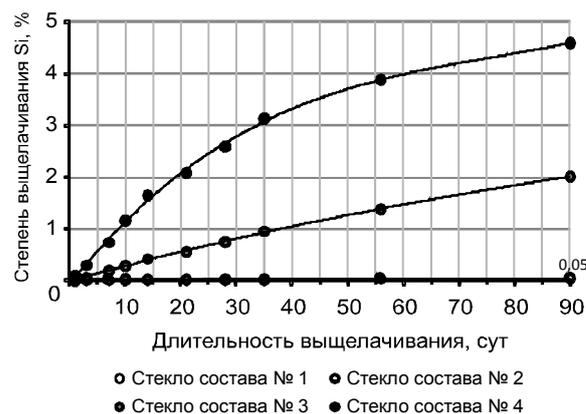


Рис. 6. Зависимость степени выщелачивания кремния из закаленных боросиликатных стекол составов № 1–4 от длительности выщелачивания

Таблица 4

Обобщенные результаты выщелачивания элементов из закаленных боросиликатных стекол, полученные по методу длительного выщелачивания

Номер стекла	Дифференциальная скорость выщелачивания, г/(см ² ·сут)		Степень выщелачивания, %	
	На 1 сут	На 91 сут	За 1 сут	За 91 сут
Л и т и й				
1	$1.48 \cdot 10^{-5}$	$3.74 \cdot 10^{-7}$	0.18	1.12
2	$2.12 \cdot 10^{-5}$	$1.69 \cdot 10^{-6}$	0.25	2.68
3	$4.23 \cdot 10^{-5}$	$4.69 \cdot 10^{-6}$	0.51	9.19
4	$1.78 \cdot 10^{-4}$	$1.01 \cdot 10^{-5}$	2.14	21.34
Н а т р и й				
1	$8.34 \cdot 10^{-6}$	$5.40 \cdot 10^{-7}$	0.10	0.99
2	$8.22 \cdot 10^{-6}$	$2.11 \cdot 10^{-6}$	0.10	1.85
3	$1.69 \cdot 10^{-5}$	$5.21 \cdot 10^{-6}$	0.20	5.54
4	$5.36 \cdot 10^{-5}$	$1.00 \cdot 10^{-5}$	0.64	13.12
К а л и й				
1	$4.63 \cdot 10^{-6}$	$4.73 \cdot 10^{-7}$	0.06	0.91
2	$8.10 \cdot 10^{-6}$	$8.25 \cdot 10^{-7}$	0.10	1.35
3	$1.10 \cdot 10^{-5}$	$2.11 \cdot 10^{-6}$	0.13	2.31
4	$4.65 \cdot 10^{-5}$	$3.88 \cdot 10^{-6}$	0.56	6.39
Б о р				
1	$7.42 \cdot 10^{-6}$	$5.35 \cdot 10^{-7}$	0.09	1.13
2	$6.13 \cdot 10^{-6}$	$2.68 \cdot 10^{-6}$	0.07	2.83
3	$2.65 \cdot 10^{-5}$	$7.18 \cdot 10^{-6}$	0.32	9.52
4	$6.95 \cdot 10^{-5}$	$1.43 \cdot 10^{-5}$	0.83	23.08
К р е м н и й				
1	$2.54 \cdot 10^{-7}$	$1.41 \cdot 10^{-8}$	0.003	0.035
2	$2.72 \cdot 10^{-7}$	$3.41 \cdot 10^{-8}$	0.003	0.051
3	$2.58 \cdot 10^{-6}$	$1.57 \cdot 10^{-6}$	0.03	2.02
4	$8.26 \cdot 10^{-6}$	$1.82 \cdot 10^{-6}$	0.10	4.60
А л ю м и н и й				
1	$1.13 \cdot 10^{-6}$	$4.54 \cdot 10^{-9}$	0.014	0.067
2	$8.69 \cdot 10^{-7}$	$1.78 \cdot 10^{-8}$	0.010	0.044
3	$2.08 \cdot 10^{-6}$	$1.92 \cdot 10^{-7}$	0.03	0.35
4	$3.77 \cdot 10^{-6}$	$4.87 \cdot 10^{-7}$	0.05	1.87

Из представленных данных видно, что с увеличением массовой доли кальцината пульпы в боросиликатных стеклах уменьшается их химическая устойчивость. Связано это с высоким содержанием натрия в модельной гидроксидной пульпе. Наибольшей химической устойчивостью обладают стекла составов № 1 и 2. Скорость выщелачивания натрия и калия уже с начала испытаний ниже нормативной величины ($1 \cdot 10^{-5}$ г/(см²·сут)), а скорость выщелачивания лития достигает контрольного уровня по истечении 3 сут. При этом степень выщелачивания трех элементов за все время испытаний (91 сут) не превышает 3% [9]. Замечено, что поведение бора при выщелачивании идентично поведению натрия. Что касается кремния, то его показатели выщелачивания наиболее низкие и в соответствии с НП-019-2015 [9] сопоставимы с нормативной скоростью выщелачивания плутония ($1 \cdot 10^{-7}$ г/(см²·сут)). Данный показатель достигается по истечении 7 сут, при этом степень выщелачивания за весь период испытаний составляет не более 0.051%. Начальная скорость выщелачивания алюминия из стекол № 1 и 2 составляет в среднем $1 \cdot 10^{-6}$ г/(см²·сут), что сопоставимо с нормативной скоростью выщелачивания стронция. При этом степень выщелачивания алюминия за 91 сут составляет не более 0.1%. Увеличение массовой доли щелочных элементов в стеклах (составы № 3 и 4) приводит к увеличению их содержания в среде выщелачивания, что, в свою очередь, ускоряет растворение оксида кремния.

Таким образом, температура варки стекол, полученных на основе кальцината модельной гидроксидной пульпы сложного состава и стеклофритты в разных соотношениях, составляет от 900 до 1050 °С, температура легкого слива стекол – от 950 до 1150 °С. Достаточной (приемлемой) химической устойчивостью обладают стекла с массовой долей кальцината не более 30%.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ожован М.И., Полуэктов П.П. // Безопасность окружающей среды. – 2010. – № 1. – С. 112–115.
2. Vedishcheva N.M., Shakhmatkin B.A., and Wright A.C. // J. Non-Cryst. Solids. – 2004. – V. 345–346. – P. 39–44.
3. Козлов П.В., Ремизов М.Б., Беланова Е.А. и др. // Вопросы радиационной безопасности. – 2019. – № 1. – С. 3–15.
4. Шайдуллин С.М., Козлов П.В., Ремизов М.Б. и др. // Актуальные проблемы инновационного развития ядерных технологий: материалы конф. в рамках Научной сессии НИЯУ МИФИ, 8–12 апреля 2019 г. – Северск: Изд-во СТИ НИЯУ МИФИ, 2019. – С. 47.
5. Баторшин Г.Ш., Ремизов М.Б., Козлов П.В. и др. // Вопросы радиационной безопасности. – 2015. – № 1. – С. 3–10.
6. Подземное захоронение радиоактивных отходов. Основное руководство. – Вена: МАГАТЭ, 1981. – 56 с.
7. Козлов П.В., Ремизов М.Б., Макаровский Р.А. и др. // Радиоактивные отходы. – 2018. – № 4(5). – С. 55–64.
8. Отходы радиоактивные. Определение химической устойчивости отвержденных высокоактивных отходов методом длительного выщелачивания. ГОСТ Р 52126-2003. – М.: ИПК «Изд-во стандартов», 2003. – 5 с.
9. Сбор, переработка, хранение и кондиционирование жидких радиоактивных отходов. Требования безопасности. НП-019-2015. – М.: Госатомнадзор России, 2015. – 22 с.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

¹ Северский технологический институт Национального исследовательского ядерного университета «МИФИ», г. Северск, Россия

² ФГУП «Производственное объединение «Маяк», г. Озерск, Россия

³ Озерский технологический институт Национального исследовательского ядерного университета «МИФИ», г. Озерск, Россия

Шайдуллин Сергей Минуллович, аспирант СТИ НИЯУ «МИФИ», инженер-технолог ФГУП «ПО «Маяк», e-mail: shaidullinsergey@gmail.com;

Беланова Елена Андреевна, инженер-технолог 2 кат. ФГУП «ПО «Маяк», e-mail: belanova_ea@mail.ru;

Козлов Павел Васильевич, к.т.н., доцент, начальник лаборатории ФГУП «ПО «Маяк», доцент кафедры ОТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: kozlov_pavel@inbox.ru;

Ремизов Михаил Борисович, ведущ. инженер-технолог ФГУП «ПО «Маяк», e-mail: mirem@yandex.ru;

Дворянчикова Елена Максимовна, инженер-физик 2 кат. ФГУП «ПО «Маяк», e-mail: DEM61@docs.mayak.ru.

S.M. SHAYDULLIN^{1,2}, E.A. BELANOVA², P.V. KOZLOV^{2,3}, M.B. REMIZOV², E.M. DVORYANCHIKOVA²

INVESTIGATION OF BOROSILICATE GLASSES WITH SIMULATED HLW COMPONENTS AND DETERMINATION OF THEIR CHEMICAL DURABILITY

The paper discusses the current status of the HLW vitrification technology applied at the radiochemical plant of the Mayak PA. Conceptual and technical solutions proposed to develop the technology of vitrification of various types of liquid HLW at the Mayak PA are described. Compositions of borosilicate glasses with HLW components are described, temperatures of their melting and easy pouring are determined. Chemical durability parameters obtained for the borosilicate glasses are provided.

Keywords: borosilicate glass, vitrification, high-level waste, chemical durability, vitrification melter.

¹ Seversk Technological Institute National Research Nuclear University «MEPHI», Seversk, Russia

² FSUE «Mayak» Production Association, Ozyorsk, Chelyabinsk Region, Russia

³ Ozyorsk Technological Institute National Research Nuclear University «MEPHI», Ozyorsk, Russia

Shaydullin Sergey Minullovich, Postgraduate Student of STI NRNU «MEPHI», Process Engineer FSUE PA «Mayak», e-mail: shaidullinsergey@gmail.com;

Belanova Elena Andreevna, Process Engineer 2 Category FSUE PA «Mayak», e-mail: belanova_ea@mail.ru;

Kozlov Pavel Vasilievich, Candidate of Technical Sciences, Associate Professor, Head of the Laboratory FSUE PA «Mayak», Associate Professor of the Department OTI NRNU «MEPHI», e-mail: kozlov_pavel@inbox.ru;

Remizov Mikhail Borisovich, Candidate of Technical Sciences, Leading Process Engineer FSUE PA «Mayak», e-mail: mirem@yandex.ru;

Dvoryanchikova Elena Maksimovna, Engineer-Physicist 2 Category FSUE PA «Mayak», e-mail: DEM61@docs.mayak.ru.

УДК 532.517.2

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/155

А.В. ШВАБ, А.Е. СОЛОМАХА

ЧИСЛЕННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ АЭРОДИНАМИКИ ВОЗДУШНО-ЦЕНТРОБЕЖНОГО КЛАССИФИКАТОРА

Моделируется сравнение полей скорости газового потока в традиционном и усовершенствованном воздушно-центробежных аппаратах. Показано, что в предлагаемой рабочей зоне аппарата дополнительный подвод газа без частиц позволяет получить аэродинамику закрученного течения газа без отрывных, циркуляционных зон, что подтверждается сравнением численных исследований закрученных течений в сепарационных камерах традиционного и оригинального воздушно-центробежных аппаратов. Достоверность полученных результатов обеспечивается тестовыми исследованиями и сравнением с известными решениями.

Ключевые слова: гидродинамика, вязкость, классификатор, давление, окружная скорость, расход.

Введение

Широкое применение во многих областях техники и различных отраслях промышленности нашли тонкодисперсные порошки [1–4]. Развитие атомной и химической промышленности, порошковой металлургии и других отраслей связано с необходимостью получения однородных по фракционному составу тонкодисперсных порошков. Одна из важнейших проблем в порошковой технологии заключается в возможности с высокой эффективностью получать тонкодисперсные порошки с заданным гранулометрическим составом с использованием центробежных сил [5–8]. В настоящее время существуют различные методы разделения и классификации порошков. Однако пневматические центробежные методы переработки порошковых материалов наиболее эффективны, состав получаемых продуктов после классификации более однороден. Практический опыт использования пневматических и центробежных методов переработки порошковых материалов показывает, что неотъемлемым их преимуществом является экологическая чистота и высокая производительность. Эксплуатация пневматических и центробежных аппаратов для процесса фракционного разделения порошковых материалов показала, что применение вихревых камер, классификаторов, сепараторов и воздушно-центробежных классификаторов представляется наиболее перспективным. На сегодняшний день проведено недостаточно фундаментальных теоретических и экспериментальных исследований в области двухфазных закрученных течений с точки зрения процессов классификации и сепарации тонкодисперсных порошков. Поэтому в настоящее время актуальным является проведение теоретических и численных исследований, касающихся вопросов аэродинамики закрученных течений, которые являются определяющими при сепарации и классификации частиц по размерам в воздушно-центробежных классификаторах [9–12]. Настоящее исследование касается математического моделирования аэродинамики закрученного течения в усовершенствованном воздушно-центробежном классификаторе.

Математическая постановка задачи

В настоящей работе проводится моделирование закрученного вязкого течения в воздушно-центробежном аппарате, используемом для разделения частиц по размерам, рабочая камера которого представляет собой традиционный (рис. 1, *а*) и предлагаемый оригинальный (рис. 1, *б*) типы.

Процесс сепарации частиц в известном воздушно-центробежном аппарате осуществляется следующим образом [10, 13]. Снизу аксиально (рис. 1, *а*) подается закрученный газовый поток вместе с частицами в дисковое пространство, стенки которого вместе с газом вращаются относительно оси вращения. В результате в междисковом пространстве в радиальном направлении возникают противоположно направленные центробежные и аэродинамические силы, действующие на частицы. Мелкие частицы за счет преобладающей аэродинамической силы над центробежной движутся к оси вращения и попадают в область сбора мелкого продукта частиц. Крупные частицы, наоборот, за счет преобладания центробежной силы над аэродинамической движутся по радиусу от оси к периферии в область сбора крупного продукта частиц. В этой области на периферии подается дополнительный радиальный закрученный газовый поток без частиц, направленный к оси в

зону сепарации, который возвращает случайно попавшие мелкие частицы на повторную сепарацию в междисковое пространство.

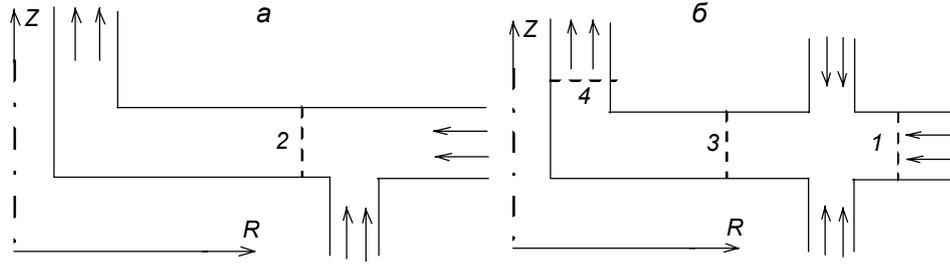


Рис. 1. Схема традиционной (а) и оригинальной (б) вихревых камер

Для получения более однородного потока, без образования циркуляционных областей в междисковом пространстве, предлагается дополнительно сверху аксиально подавать симметричный поток газа (рис. 1, б) с расходом, равным расходу из нижнего патрубка.

Численное моделирование вязкого закрученного газа проводилось в вихревых камерах, представленных на рис. 1, на основе уравнений Навье – Стокса в цилиндрической системе координат. В силу скоростей газа, существенно меньших скорости звука, считается, что плотность газа постоянна и, учитывая неизменность параметров газа по окружной координате, получим осесимметричную систему безразмерных дифференциальных уравнений переноса импульса и уравнения неразрывности в виде [12]

$$\frac{\partial u_r}{\partial \tau} + \frac{\partial u_r^2}{\partial r} + \frac{\partial u_r u_z}{\partial z} + \frac{u_r^2}{r} - \frac{u_\varphi^2}{r} = -\frac{\partial p}{\partial r} + \frac{1}{\text{Re}} \left[\frac{\partial^2 u_r}{\partial r^2} + \frac{\partial^2 u_r}{\partial z^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial u_r}{\partial r} - \frac{u_r}{r^2} \right]; \quad (1)$$

$$\frac{\partial u_\varphi}{\partial \tau} + \frac{\partial u_r u_\varphi}{\partial r} + \frac{\partial u_z u_\varphi}{\partial z} + 2 \frac{u_r u_\varphi}{r} = \frac{1}{\text{Re}} \left[\frac{\partial^2 u_\varphi}{\partial r^2} + \frac{\partial^2 u_\varphi}{\partial z^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial u_\varphi}{\partial r} - \frac{u_\varphi}{r^2} \right]; \quad (2)$$

$$\frac{\partial u_z}{\partial \tau} + \frac{\partial u_r u_z}{\partial r} + \frac{\partial u_z^2}{\partial z} + \frac{u_r u_z}{r} = -\frac{\partial p}{\partial z} + \frac{1}{\text{Re}} \left[\frac{\partial^2 u_z}{\partial r^2} + \frac{\partial^2 u_z}{\partial z^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial u_z}{\partial r} \right]; \quad (3)$$

$$\frac{\partial u_r}{\partial r} + \frac{\partial u_z}{\partial z} + \frac{u_r}{r} = 0. \quad (4)$$

Здесь безразмерная форма уравнений получена: с использованием масштаба длины – высоты междискового пространства H ; скорости – средней аксиальной входной скорости газа U_0 через верхний и нижний патрубок; постоянной плотности – ρ . Значение безразмерного давления имеет вид $p = P/(\rho U_0^2)$ и критерий Рейнольдса – $\text{Re} = \rho U_0 H / \mu$.

Для получения единственного решения задачи использовались следующие граничные условия. На входе в вихревую камеру в нижнем патрубке принималось постоянное значение аксиальной скорости $u_z = 1$ и на противоположной верхней стороне камеры соответственно $u_z = -1$, а значения окружной составляющей скорости в обоих патрубках $u_\varphi = rR\omega_0$. Значение входной радиальной и окружной составляющей скорости на периферии принималось соответственно $u_r = -\gamma$ и $u_\varphi = rR\omega_1$, причем критерии вращения имеют вид $R\omega_0 = \omega_0 H / U_0$ и $R\omega_1 = \omega_1 H / U_0$. Здесь ω_0 и ω_1 – средние значения угловых скоростей вращения газа в соответствующих сечениях. На стенках для радиальной и осевой составляющих вектора скорости за счет условия прилипания вязкого газа использовалось условие равенства нулю. Для окружной скорости на стенках вихревой камеры также применялось условие $u_\varphi = rR\omega_d$, где $R\omega_d = \omega_d H / U_0$ – критерий вращения и ω_d – угловая скорость вращения стенок. На выходе из вихревой камеры было взято условие Неймана $\partial/\partial z = 0$ для всех искомых функций.

Численный метод решения

Численное решение системы уравнений (1) – (4) проводилось в переменных скорость – давление путем расщепления полей скорости и давления [14]. В соответствии с этим методом в сим-

волическом безразмерном виде и векторной форме уравнения (1) и (3) можно представить в виде [7]

$$\frac{V^* - V^n}{\Delta\tau} = -\nabla p^n + F(V^*, V^n); \quad (5)$$

$$\frac{V^{n+1} - V^*}{\Delta\tau} = -\nabla(\delta p). \quad (6)$$

Правая часть уравнения (5) представляет конвективные и диффузионные слагаемые уравнения переноса, причем верхний индекс «*» обозначает промежуточную сеточную функцию для вектора скорости. В уравнении (6) поправка к давлению имеет вид $\delta p = p^{n+1} - p^n$. После взятия операции дивергенции от уравнения (6) и, учитывая соленоидальность поля скорости на $(n+1)$ -временном слое, получим уравнение для поправки к давлению

$$\nabla^2(\delta p) = \frac{\nabla \cdot V^*}{\Delta\tau}. \quad (7)$$

Для удобства решения уравнение (7) представим в форме нестационарного уравнения

$$\frac{\partial(\delta p)}{\partial\tau_1} - \nabla^2(\delta p) = -\frac{\nabla \cdot V^*}{\Delta\tau}, \quad (8)$$

где τ_1 – время, которое фактически представляет собой итерационный параметр. На всех границах для поправки к давлению используется условие Неймана [15].

Таким образом, после решения уравнений (1) и (3) для определения промежуточных значений, составляющих скорости u_r и u_z , определяется поправка к давлению по уравнению (8) и в соответствии с зависимостью (6) определяется вектор скорости и давление $p^{n+1} = p^n + \delta p$. Далее решаются уравнения переноса импульса для окружной составляющей скорости и затем процесс повторяется до установления решения по времени. Решение задачи проводилось на разнесенной разностной сетке с использованием метода контрольного объема и неявной обобщенной схемы переменных направлений [16]. Конвективные и диффузионные слагаемые этого уравнения представлялись в конечных разностях с помощью экспоненциальной схемы [15]. Известно, что эта схема снимает ограничение по сеточному числу Рейнольдса.

Для проверки достоверности получаемого решения в переменных скорость – давление дополнительно решалась эта же задача в переменных вихрь – функция тока. Определим значение вихря

$$\Omega = \frac{\partial U_r}{\partial z} - \frac{\partial U_z}{\partial r}. \quad (9)$$

Функцию тока определим с помощью формул, обеспечивающих выполнение уравнения неразрывности:

$$U_r = \frac{1}{r} \frac{\partial \Psi}{\partial z}, \quad U_z = -\frac{1}{r} \frac{\partial \Psi}{\partial r}. \quad (10)$$

Уравнения (1) и (3) можно привести к уравнению переноса вихря путем перекрестного дифференцирования и вычитания полученных уравнений, в результате будем иметь

$$\frac{\partial \Omega}{\partial \tau} + \frac{\partial(u_r \Omega)}{\partial r} + \frac{\partial(u_z \Omega)}{\partial z} = \frac{2u_\varphi}{r} \frac{\partial u_\varphi}{\partial z} + \frac{1}{\text{Re}} \left(\frac{\partial^2 \Omega}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial \Omega}{\partial r} + \frac{\partial^2 \Omega}{\partial z^2} - \frac{\Omega}{r^2} \right). \quad (11)$$

Уравнение для определения функции тока определится, если подставить скорости из формул (10) в определение вихря (9):

$$\frac{\partial^2 \Psi}{\partial r^2} + \frac{\partial^2 \Psi}{\partial z^2} = \frac{1}{r} \frac{\partial \Psi}{\partial r} + r \Omega,$$

которое для удобства численного расчета представим в виде нестационарного уравнения

$$\frac{\partial \Psi}{\partial \tau} = \frac{\partial^2 \Psi}{\partial r^2} + \frac{\partial^2 \Psi}{\partial z^2} - \frac{1}{r} \frac{\partial \Psi}{\partial r} - r \Omega. \quad (12)$$

При таком способе расчета уравнение переноса импульса в окружном направлении остается тем же уравнением (2). Граничные условия для функции тока определяются интегрированием (10), а для определения вихря на стенках используются известные разностные формулы Тома [17]. Для окружной составляющей скорости граничные условия остаются такими же, что и при решении в переменных скорость – давление.

Анализ получаемых результатов

Достоверность численных результатов подтверждалась тестовыми исследованиями на сеточную сходимость, а также при малых числах Рейнольдса на основе аналитической формулы при установившемся течении в кольцевом канале. Так, на рис. 2 показано распределение скорости u_z в среднем сечении для нижнего (а) и верхнего патрубков (б) в сравнении с известной формулой для кольцевого канала [18]:

$$\frac{U_z}{U_{\text{ср}}} = 2 \frac{(r_1^2 - r^2) \ln(r_0/r_1) - (r_1^2 - r_0^2) \ln(r/r_1)}{r_1^2 - r_0^2 + (r_1^2 + r_0^2) \ln(r_0/r_1)}, \quad (13)$$

где r_0, r_1 – соответственно внутренний и внешний радиус кольцевого канала; r – текущее значение радиуса.

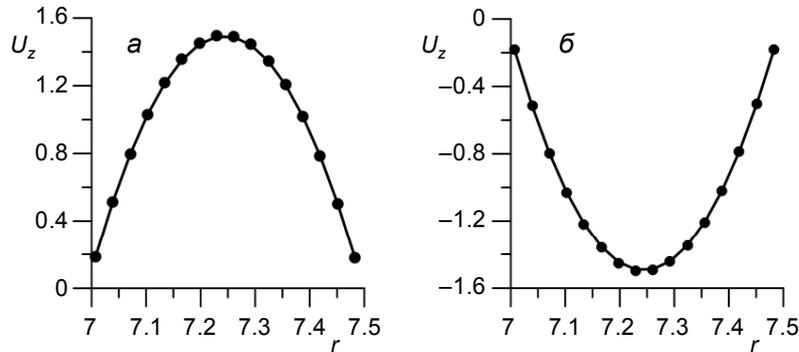


Рис. 2. Сравнение решений: расчет (сплошная кривая) и формула (13) (точки) при числе $Re = 2$

На рис. 3 и 4 представлено сравнение решений закрученного течения в физических переменных скорость – давление с данными, полученными при решении этой же задачи, но в переменных вихрь – функция тока. Причем на графиках верхние кривые относятся к сечению 1, а нижние – к сечению 3 (рис. 1, б).

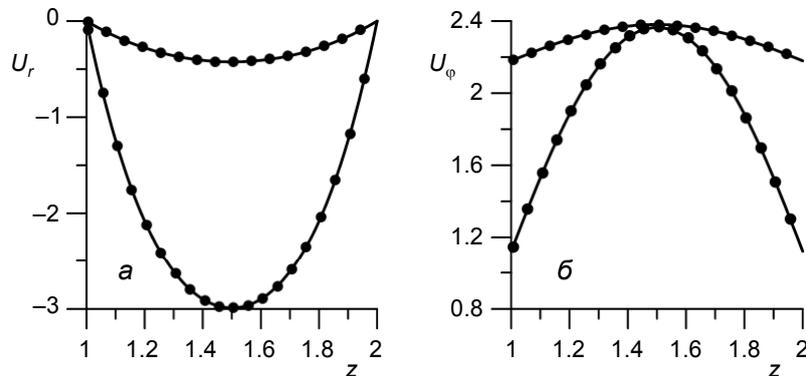


Рис. 3. Распределение скорости u_r (а) и u_ϕ (б) в зависимости от координаты z в сечениях 1 и 3 (рис. 1, б). Сплошная кривая – решение скорость – давление, точки – решение в переменных функция тока – вихрь

Сравнение численных решений для разных геометрий, представленных на рис. 1, показывает, что усовершенствованная зона сепарации позволяет практически устранить циркуляционную зону в области за вертикальными патрубками ввода газа. Для демонстрации этого на рис. 4 и 5 показано

распределение линий тока в обеих геометриях. Следует отметить, что расход газа за патрубками в обоих случаях имел одно и то же значение.

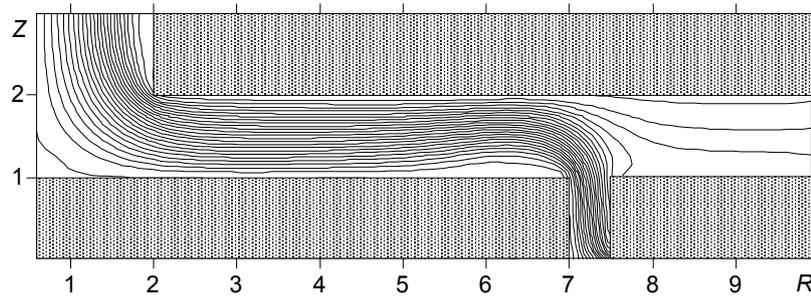


Рис. 4. Распределение изолиний функции тока для аппарата известной геометрии при $Re = 500$

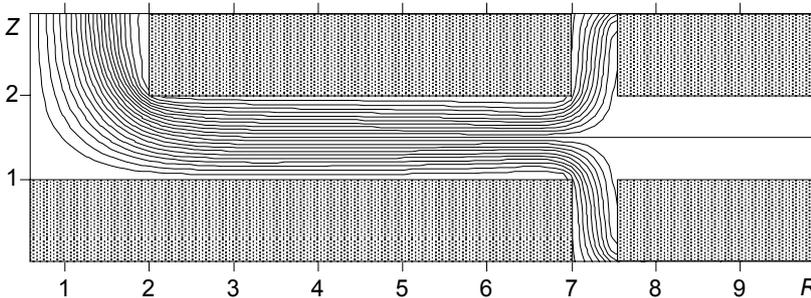


Рис. 5. Распределение изолиний функции тока для аппарата модифицированной геометрии при $Re = 500$

Для более детального рассмотрения образования циркуляционной области за вертикальными патрубками подвода газа необходимо представить распределение радиальной скорости вблизи поворота потока газа. На рис. 6 показано изменение радиальной скорости по высоте междискового пространства в зависимости от аксиальной координаты.

Из этих графиков видно, что для известной геометрии (рис. 6, *a*) вблизи нижнего диска ($z = 1$) распределение радиальной скорости имеет положительное значение, т.е. имеет место возвратное течение, в отличие от случая усовершенствованной геометрии в том же геометрическом сечении. Следует также отметить более симметричный и однородный профиль радиальной скорости для предлагаемой геометрии вихревой камеры (рис. 6, *б*). Параметрическое исследование распределения окружной составляющей скорости в зависимости от критериев Re и критериев закрутки газа и дисковых элементов оказывает существенное влияние на форму профиля радиальной скорости по

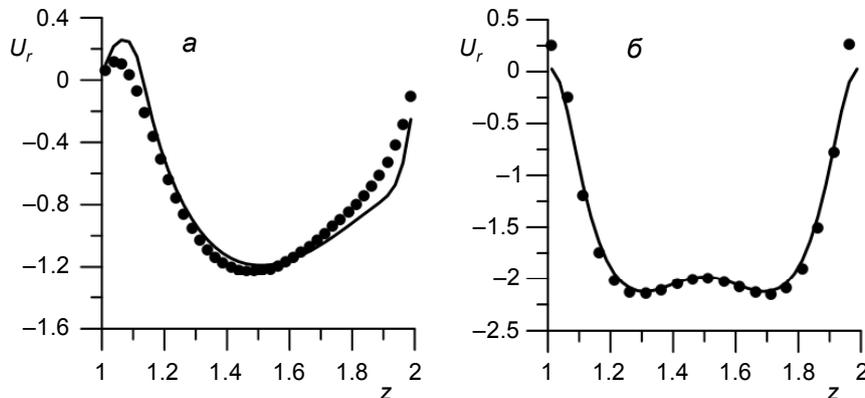


Рис. 6. Распределение скорости u_r от высоты междискового пространства в сечении 2 (рис. 1) для известной геометрии (*a*) и усовершенствованной геометрии (*б*) при $Re = 100$ (точки) и $Re = 500$ (сплошная кривая)

высоте междискового пространства. Так, на рис. 7 показано распределение радиальной скорости по высоте при различных закрутках газа и дисковых элементах.

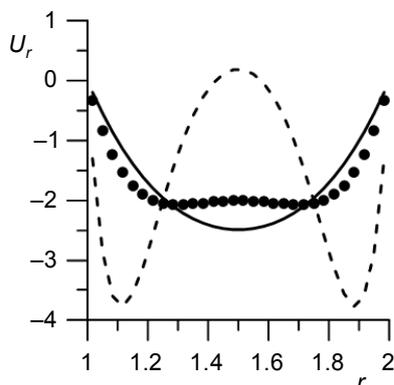


Рис. 7. Поведение профиля радиальной составляющей вектора скорости в сечении 3 (рис. 1) для предлагаемой зоны сепарации при $Re = 10$ и параметрах закрутки $R\omega = 0.2$ (сплошная кривая), $R\omega = 1$ (точки) и $R\omega = 4$ (пунктирная кривая)

Из последнего графика хорошо видно, что увеличение закрутки газа приводит к торможению окружной скорости в ядре потока за счет действия большей центробежной силы в ядре потока по сравнению с областью вблизи дисковых элементов и, как следствие, к изменению скорости вблизи стенок в соответствии с уравнением неразрывности.

Заключение

Данное численное исследование показало теоретические возможности описывать аэродинамику вязкого закрученного течения, рассматривать основные физические тенденции в распределении полей вектора скорости закрученного течения в вихревой камере, оценивать перспективы предложенной оригинальной геометрии зоны сепарации, а также демонстрировать возможность создания более стабильного поля вектора скорости в области междискового пространства воздушно-центробежного классификатора.

Представленный в работе подход к математическому моделированию аэродинамики закрученного течения может быть полезен при теоретическом исследовании вихревых камер, сепараторов и других пневматических аппаратов порошковой технологии применительно к атомной и химической промышленности.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Гупта А., Лилли Д., Сайред Н. Закрученные потоки. — М.: Мир, 1987. — 588 с.
2. Алексеенко С.В., Окулов В.Л. // Теплофизика и аэромеханика. — 1996. — Т. 3. — № 2. — С. 101–138.
3. Росляк А.Т., Бирюков Ю.А., Пачин В.Н. Пневматические методы и аппараты порошковой технологии. — Томск: Изд-во ТГУ, 1990. — 273 с.
4. Шваб А.В., Евсеев Н.С. // Инженерно-физический журнал. — 2016. — Т. 89. — № 4. — С. 826–836.
5. Архипов В.А., Ткаченко А.С., Усанина А.С. // Инженерно-физический журнал. — 2013. — Т. 86. — № 3. — С. 534–541.
6. Волков К.Н., Емельянов В.Н. Течения и теплообмен в каналах и вращающихся полостях. — М.: Физмалит, 2010. — 487 с.
7. Shvab A.V and Khairullina V. Yu. // J. Appl. Mech. Tech. Phys. — 2011. — V. 52. — No. 1. — P. 557–565.
8. Ахметов Д.Г., Ахметов Т.Д. // Научный вестник. — 2015. — № 4. — С. 109–120.
9. Вараксин А.Ю. // ТВТ. — 2015. — Т. 53. — № 3. — С. 441.
10. Shvab A.V., Zyatikov P.N., Sadretdinov Sh.R., and Chepel A.G. // J. Appl. Mech. Tech. Phys. — 2010. — V. 51. — No. 2. — P. 174–181.
11. Князев Д.В. // Известия РАН. Механика жидкости и газа. — 2011. — № 4. — С. 59–66.
12. Турубаев Р.Р., Шваб А.В. // Вестник Томского государственного университета. Математика и механика. — 2020. — № 65. — С. 137–147.
13. Зятиков П.Н., Росляк А.Т., Шваб А.В. и др. Способ газовой центробежной классификации и измельчения порошков // Патент РФ № 2522674. Оpubл. 20.07.2014. Бюл. № 20.
14. Chorin A.J. // Math. Comput. — 1968. — V. 22. — P. 745.

15. Патанкар С.В. Численные методы решения задач теплообмена и динамики жидкости. – М.: Энергоатомиздат, 1984. – 146 с.
16. Пейре Р., Тейлор Т.Д. Вычислительные методы в задачах механики жидкости. – Л.: Гидрометеоздат, 1986. – 351 с.
17. Роч П. Вычислительная гидродинамика. – М.: Мир, 1991. – 616 с.
18. Петухов Б. Теплообмен и сопротивление при ламинарном течении жидкости в трубах. – М.: Энергия, 1967. – 411 с.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

Национальный исследовательский Томский государственный университет,
г. Томск, Россия

Шваб Александр Вениаминович, д.ф.-м.н., профессор, зав. кафедрой НИ ТГУ, e-mail: avshvab@inbox.ru;
Соломаха Артем Евгеньевич, аспирант НИ ТГУ, e-mail: solomahaartem@yandex.ru.

A.V. SHVAB, A.Ye. SOLOMAKHA

NUMERICAL SIMULATION OF AERODYNAMICS OF AIR-CENTRIFUGAL CLASSIFIER

The paper simulates a comparison of the gas flow velocity fields in traditional and advanced air-centrifugal apparatus. It is shown that in the proposed working zone of the apparatus, an additional supply of gas without particles makes it possible to obtain the aerodynamics of a swirling gas flow without separation, circulation zones, which is confirmed by a comparison of numerical studies of swirling flows in the separation chambers of traditional and original air-centrifugal apparatus. The reliability of the results obtained is ensured by test studies and comparison with known solutions.

Keywords: *hydrodynamics, viscosity, classifier, pressure, peripheral speed, flow rate.*

National Research Tomsk State University, Tomsk, Russia

Shvab Alexander Veniaminovich, Doctor of Physical and Mathematical Sciences, Professor, Head of the Department NR TSU, e-mail: avshvab@inbox.ru;
Solomakha Artem Yevgen'yevich, Postgraduate Student NR TSU, e-mail: solomahaartem@yandex.ru.

УДК 004.94

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/162

*О.О. ШЕСТАК, О.В. ДЕНИСОВА, А.А. ДЕУЛИН***МОДЕЛИРОВАНИЕ МЕЖДУНАРОДНОГО БЕНЧМАРКА OECD/NEA «COLD LEG MIXING CFD-UQ» ПО ПАКЕТУ ПРОГРАММ «ЛОГОС»**

Представлены результаты моделирования по отечественному пакету программ «Логос» разработки ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ» международного бенчмарка OECD/NEA «Cold Leg Mixing CFD-UQ», посвященного исследованию смешения потоков различной плотности на экспериментальной установке, находящейся в Техасском А&М Университете (TAMU). Основная цель бенчмарка – анализ применимости CFD-методов к моделированию процессов перемешивания под влиянием сил плавучести в условиях теплового удара под давлением, что имеет большое значение с точки зрения ядерной безопасности. На основании расчетов открытого теста с известными экспериментальными данными отработаны подходы к моделированию, которые использованы для расчетов «слепого» теста. Выполнено качественное сравнение расчетных профилей с доступными экспериментальными данными по «слепому» тесту. Проведен анализ неопределенности для оценки влияния входных данных на результаты моделирования «слепого» теста.

Ключевые слова: бенчмарк OECD/NEA «Cold Leg Mixing CFD-UQ», пакет программ «Логос», вычислительная гидродинамика (CFD), анализ неопределенности (UQ).

Введение

Вычислительная гидродинамика (CFD) – это хорошо развитый современный численный инструмент, который используется в различных технических дисциплинах. Все большее распространение получает использование CFD-методов в атомной отрасли, особенно для моделирования ситуаций с существенными трехмерными эффектами, в которых традиционные отраслевые коды слабо применимы и неинформативны. Актуальность адаптации CFD-кодов для решения задач атомной энергетики подтверждается значительным объемом работ в данном направлении, координируемых Международным агентством по атомной энергии (МАГАТЭ) и Агентством по атомной энергии Организации экономического сотрудничества и развития в Европе (OECD/NEA). Под эгидой OECD/NEA на регулярной основе организуются международные CFD-тесты атомной отрасли (бенчмарки), направленные на отработку методов применения CFD-кодов для актуальных задач отрасли с использованием представительной экспериментальной базы [1].

«Cold Leg Mixing CFD-UQ» – это пятый международный бенчмарк, организованный OECD/NEA в 2017 г. и продолжающийся по настоящее время. Основная цель бенчмарка – анализ применимости CFD-методов к моделированию процессов перемешивания под влиянием сил плавучести в условиях теплового удара под давлением (Pressurized Thermal Shock, PTS), имеющих большое значение с точки зрения ядерной безопасности. Бенчмарк посвящен моделированию экспериментов по исследованию смешения потоков различной плотности на установке, находящейся в Техасском А&М Университете (TAMU) [2].

На базе серии экспериментов организаторами бенчмарка сформулирован открытый тест, результаты которого были предоставлены участникам для отработки стратегии моделирования, а также «слепой» тест, экспериментальных данных по которому не предоставлялось. Целью «слепого» теста является анализ и оценка результатов моделирования, определенных организаторами и представленных участниками. В рамках бенчмарка «Cold Leg Mixing CFD-UQ» участникам было предложено также провести анализ неопределенностей. Наличие неопределенностей различных типов в таких сложных системах, как реакторные установки, оказывает существенное влияние на процесс моделирования, что приводит к высокой актуальности их анализа для учета и поиска путей устранения.

В бенчмарках OECD/NEA традиционно принимает участие широкий круг специалистов из разных стран, поскольку результаты таких тестов имеют большое значение для развития методов моделирования в атомной энергетике, публикуются и широко обсуждаются на международных семинарах и конференциях. Так, на участие в бенчмарке «Cold Leg Mixing CFD-UQ» подали заявки 36 команд из 11 стран и 22 организаций. Итоговые результаты представили 11 команд из 6 стран и 10 организаций, включая команду ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ» с расчетами по пакету программ «Логос». Только 5 команд, включая ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», провели анализ неопреде-

ленности при моделировании «слепого» теста. Отечественный многофункциональный пользовательский пакет программ инженерного анализа и суперкомпьютерного моделирования «Логос» [3] разработан и активно развивается во ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ». Одной из перспективных областей его применения является CFD-моделирование трехмерных задач тепломассопереноса в интересах решения задач атомной энергетики.

В работе представлены результаты расчетов международного бенчмарка OECD/NEA «Cold Leg Mixing CFD-UQ», выполненных по пакету программ «Логос». Приведено краткое описание экспериментальных исследований, описана процедура отработки подходов к моделированию на базе расчетов открытого теста, а также представлены результаты расчетов «слепого» теста. В настоящее время организаторами бенчмарка проводится анализ результатов участников и подготовка финального отчета. В работе [4] опубликована частичная предварительная экспериментальная информация, в том числе по «слепому» тесту, которая в данной работе использована для сравнения с результатами, полученными по пакету программ «Логос». Представлены также результаты анализа неопределенности входных данных для оценки их влияния на результаты моделирования.

Данная работа является первым опытом применения пакета программ «Логос» для моделирования международного бенчмарка. При этом необходимо отметить положительный опыт участия ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ» с расчетами по пакету программ «Логос» в первом российском отраслевом бенчмарке по исследованию турбулентной конвекции Рэлея – Бенара в прямоугольных полостях [5], организованном АО «ОКБМ Африкантов» в 2018 г.

1. Описание экспериментальной установки. Методика проведения экспериментов

Экспериментальная установка, состоящая из двух цилиндрических резервуаров, соединенных горизонтальной круглой трубой с задвижкой, находится в Техасском А&М Университете [2], [4]. Схема установки представлена на рис. 1.

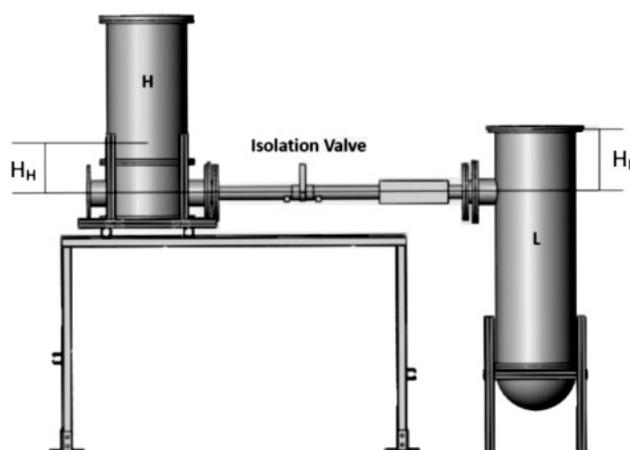


Рис. 1. Схема экспериментальной установки

В экспериментах моделируется сценарий, при котором наблюдается перемешивание холодного и горячего теплоносителя в горизонтальной холодной нитке циркуляционного контура реактора. С точки зрения безопасности важна ситуация, когда холодный теплоноситель поступает в сосуд под давлением, при этом тепловые напряжения могут вызвать развитие процесса образования трещин, что может привести к нарушению целостности корпуса реактора.

Геометрия экспериментальной установки близко повторяет холодную нитку и опускной участок реактора (в масштабе 1:10). Эксперименты проводятся в изотермических условиях: используются рабочие жидкости, разница плотностей которых примерно соответствует реальным условиям. В качестве легкой жидкости применяется вода с этанолом, в качестве тяжелой – вода с солью.

Правый резервуар представляет собой сосуд под давлением, моделирующий опускной участок реактора. Он закрыт сверху и в начале эксперимента заполнен легкой жидкостью. В левом резервуаре с тяжелой жидкостью, моделирующем бак системы аварийного охлаждения, выставлен уровень, обеспечивающий равенство гидростатического давления слева и справа от задвижки, расположенной на горизонтальной трубе, соединяющей резервуары. В начале эксперимента задвижка открывается, позволяя жидкостям смешаться.

При проведении экспериментов, соответствующих открытому и «слепому» тестам, используются аналогичные методики. Отличие состоит в свойствах рабочих жидкостей (и уровне тяжелой жидкости). В открытом тесте разница плотностей жидкостей составляет 100 кг/м^3 , в «слепом» – 200 кг/м^3 .

Резервуары и труба изготовлены из прозрачного акрила для обеспечения возможности визуализации потоков в процессе проведения эксперимента. Измерения проводятся в горизонтальной трубе (одновременное измерение скоростей методом PIV и концентраций методом LIF) и в опускающем участке (измерение скоростей методом PIV).

2. Расчеты открытого теста. Обработка подходов к моделированию

Стандартной практикой при расчете бенчмарков является использование экспериментальных данных открытого теста для выбора стратегии моделирования. Это длительное трудоемкое численное исследование, требующее проведения большой серии расчетов с детальным анализом результатов. Для открытого теста организаторами были предоставлены экспериментальные профили компонент скорости вдоль опорных линий в горизонтальной трубе и в опускающем участке, которые были использованы для сравнения с результатами моделирования по пакету программ «Логос».

Сравнительный анализ расчетов, выполненных с использованием различных подходов к моделированию турбулентности (ламинарная постановка, учет турбулентности по RANS- и LES-моделям), показал (рис. 2):

- наиболее близкие к эксперименту результаты получены в расчетах в ламинарной постановке и с учетом турбулентности по модели LES;
- LES более близок к эксперименту в опускающем участке, чем ламинарная постановка;
- профили, полученные в RANS-постановке (использовалась модель SST), имеют существенные качественные расхождения с экспериментом.

Таким образом, для моделирования турбулентности в качестве базовой выбрана модель LES.

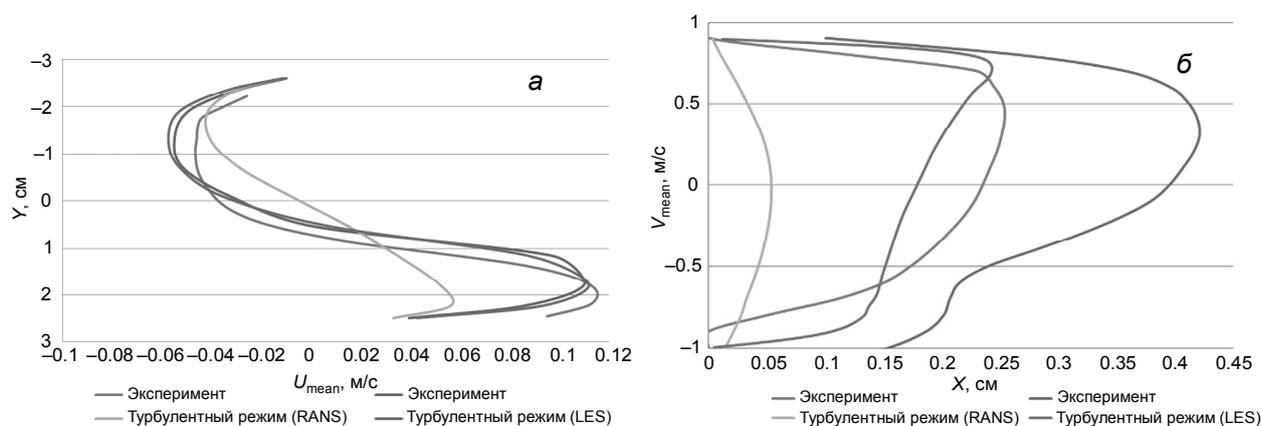


Рис. 2. Открытый тест, профили скорости (тестовая модель 3.5 млн ячеек): а – в горизонтальной трубе (продольная компонента, интервал осреднения 6–16 с); б – в опускающем участке (вертикальная компонента, интервал осреднения 10–20 с)

Отдельное внимание было уделено способу моделирования открытого резервуара с тяжелой жидкостью. Рассмотрение различных вариантов постановки граничных условий в окрестности свободной поверхности позволило выбрать оптимальный с точки зрения точности и скорости счета метод VOF.

В ходе обработки подходов к моделированию были исследованы расчетные сетки различной структуры: блочные и преимущественно шестигранные с призматическими слоями, для построения которых использованы сеточные генераторы «Логос-Препост». В областях наибольшего интереса (участок смещения горизонтальной трубы и опускающий участок) все расчетные сетки локально измельчались. Наилучшие результаты были получены на преимущественно шестигранных сетках с призматическими слоями.

Анализ сеточной сходимости был выполнен на преимущественно шестигранных сетках с призматическими слоями, содержащих 8, 12 и 20 млн ячеек. Измельчение сетки от 8 до 12 млн ячеек позволило улучшить согласие расчетных профилей с экспериментальными. Использование

сетки размерностью 20 млн ячеек не дало существенных изменений профилей по сравнению с сеткой, содержащей 12 млн ячеек. На рис. 3 показаны профили скорости, полученные на сетке размерностью 12 млн ячеек.

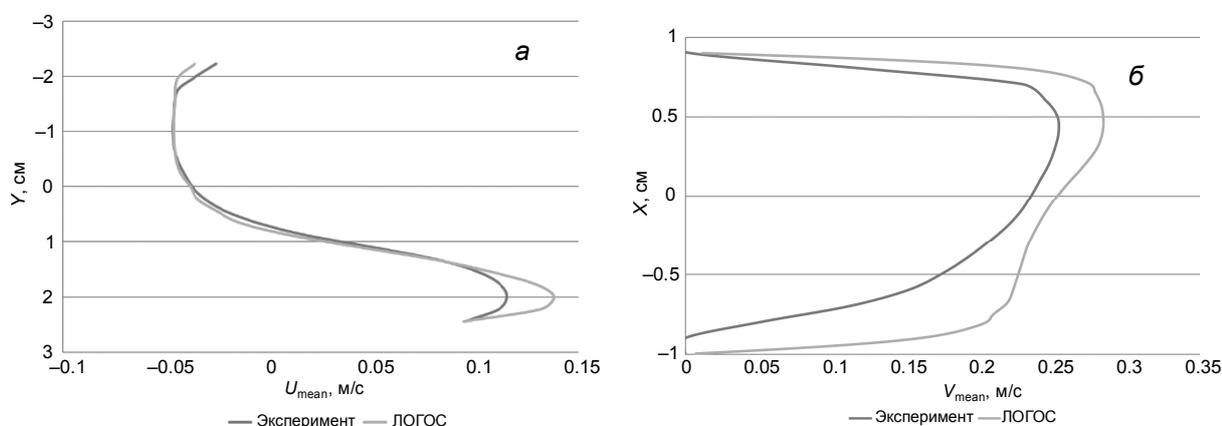


Рис. 3. Открытый тест, профили скорости (результатирующая модель 12 млн ячеек): а – в горизонтальной трубе (продольная компонента, интервал осреднения 6–16 с); б – в опускном участке (вертикальная компонента, интервал осреднения 10–20 с)

Таким образом, в результирующем расчете открытого теста:

- достигнуто существенное улучшение профиля продольной компоненты скорости в горизонтальной трубе по сравнению с тестовой моделью (рис. 2 и 3): получена качественно верная форма профиля, хорошо предсказано положение точки перегиба, соответствующее нулевой скорости на границе между двумя слоями жидкости, что подтверждает правильность моделирования стратификации;
- в горизонтальной трубе наблюдается близкое совпадение с экспериментом величины скорости легкой жидкости при завышении величины скорости тяжелой жидкости;
- достигнуто лучшее качественное согласие с экспериментом профиля вертикальной компоненты скорости в опускном участке по сравнению с тестовой моделью (рис. 2 и 3), при этом наблюдается расхождение формы профиля (в эксперименте он более гладкий) и некоторое завышение величины скорости, что может быть следствием завышения скорости тяжелой жидкости в горизонтальной трубе.

Одним из возможных путей дальнейшего улучшения результатов моделирования является калибровка констант модели LES и используемых схем аппроксимации, однако в силу ограниченности временных сроков (с учетом необходимости проведения анализа неопределенностей в «слепом» тесте) это не было выполнено и остается задачей на перспективу.

По результатам расчетов открытого теста для последующих расчетов «слепого» теста была выбрана следующая стратегия:

- преимущественно шестигранная расчетная сетка с призматическими слоями, содержащая 12 млн ячеек;
- метод VOF для моделирования свободного уровня тяжелой жидкости;
- модель LES для учета турбулентности.

3. Результаты расчетов «слепого» теста

На рис. 4 и 5 для иллюстрации приведены средние по времени поля скорости и концентрации тяжелой жидкости на интервале осреднения 10–15 с.

Ключевыми результатами «слепого» теста являются профили компонент скорости в горизонтальной трубе и опускном участке, а также профили концентрации тяжелой жидкости в горизонтальной трубе, осредненные на последовательных пятисекундных временных интервалах, определенных организаторами бенчмарка.

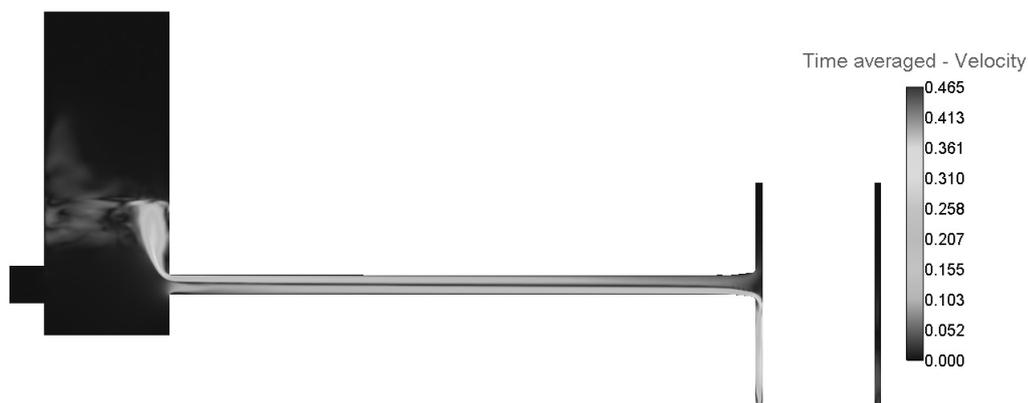


Рис. 4. «Слепой» тест, средняя скорость (интервал осреднения 10–15 с)



Рис. 5. «Слепой» тест, средняя концентрация тяжелой жидкости (интервал осреднения 10–15 с)

В работе [4] представлены экспериментальные профили компонент скорости в горизонтальной трубе и опускном участке, однако границы интервалов осреднения не совпадают с заявленными в бенчмарке. На рис. 6 и 7 приведены расчетные и экспериментальные профили с целью их качественного сравнения и общего анализа.

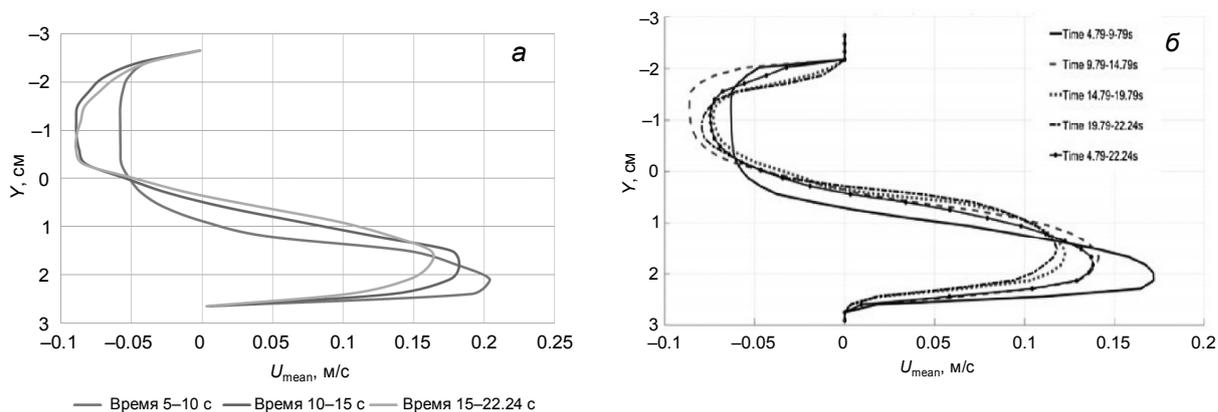


Рис. 6. «Слепой» тест, профили продольной компоненты скорости в горизонтальной трубе: а – «Логос»; б – эксперимент [4]

Анализ профилей продольной компоненты скорости в горизонтальной трубе, представленных на рис. 6, позволяет сделать следующие выводы:

– в расчете наблюдается согласующаяся с экспериментом динамика поведения скорости – с течением времени скорость тяжелой жидкости уменьшается, а скорость легкой сначала возрастает, а после 10 с мало меняется;

- расчетная скорость легкой жидкости хорошо согласуется с экспериментом, тогда как скорость тяжелой в расчете завышается (как и в открытом тесте);
- наблюдается схожая форма профилей, в расчете удовлетворительно предсказано положение точек перегиба на различных интервалах осреднения.

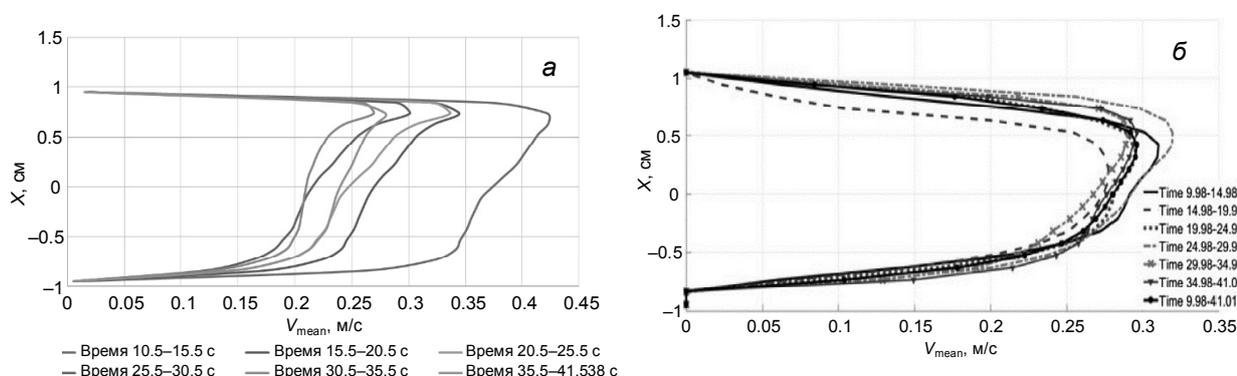


Рис. 7. «Слепой» тест, профили вертикальной компоненты скорости в опускном участке: а – «Логос»; б – эксперимент [4]

Анализ профилей вертикальной компоненты скорости в опускном участке, представленных на рис. 7, позволяет сделать следующие выводы:

- и расчетные, и экспериментальные профили показывают наличие более высокой скорости у внутренней стенки, однако экспериментальные профили в целом имеют более гладкую форму, как и в открытом тесте;
- расчетные профили демонстрируют более высокое значение скорости на первом интервале по сравнению с экспериментом (что может быть следствием завышения скорости тяжелой жидкости) и при этом более выраженное снижение скорости со временем, в отличие от экспериментальных профилей, однако на финальных интервалах в расчете, как и в эксперименте, наблюдается повторное увеличение скорости, что подтверждает правильную динамику процесса.

На рис. 8 представлены расчетные профили концентрации тяжелой жидкости, полученные при моделировании «слепого» теста по пакету программ «Логос».

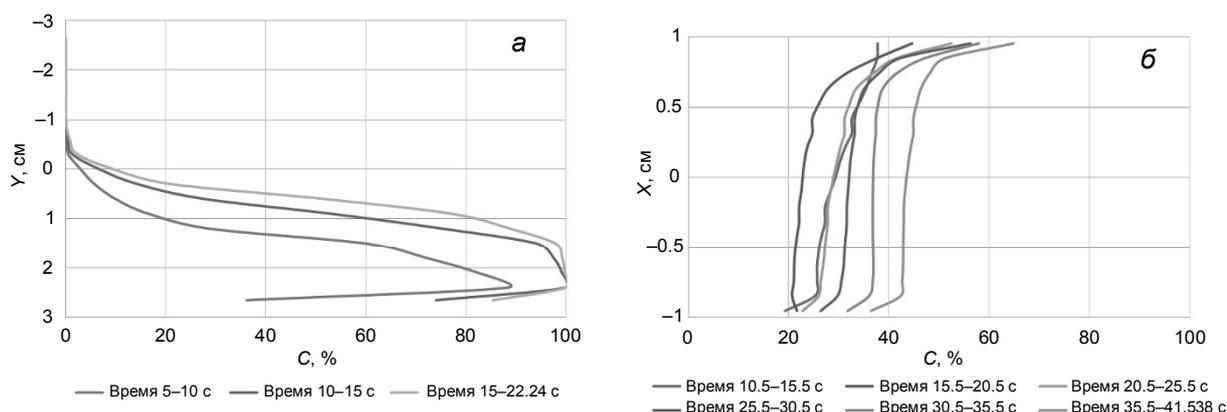


Рис. 8. «Слепой» тест, расчетные профили концентрации тяжелой жидкости: а – в горизонтальной трубе; б – в опускном участке

4. Анализ неопределенности входных данных

Анализ неопределенностей (Uncertainty Quantification, UQ) в математическом моделировании лишь относительно недавно (в начале 90-х гг. XX в.) стал предметом систематических исследований применительно к атомной энергетике в попытке найти обоснованные методы учета неполноты знаний. Ряд подходов к анализу неопределенностей изложен в обзоре OECD/NEA [6] и в стандарте Американского общества инженеров-механиков ASME [7]. К настоящему времени накоплен определенный опыт проведения анализа неопределенностей для теплогидравлических расчетов с ис-

пользованием отраслевых интегральных кодов, модели в которых построены на основе законов сохранения, а априорная информация используется в замыкающих соотношениях. Распространение опыта теплогидравлических кодов на CFD-коды – очень важная и наукоемкая задача. Это связано, в частности, с повышением количества рассматриваемых источников возникновения неопределенностей и с отсутствием принципиальной возможности проведения необходимого (по факту очень большого) количества трехмерных расчетов, требующих несравнимо больших временных и вычислительных затрат относительно теплогидравлических кодов.

Согласно [6, 7], источники неопределенностей в численных расчетах можно отнести к одному из трех основных типов.

В качестве первого источника рассматриваются неопределенности численного моделирования: математических моделей, а также используемых подходов и допущений при создании расчетных моделей (численные неопределенности пространственной и временной дискретизации, итерационных процедур, неопределенность эмпирических коэффициентов и т.п.).

Второй источник неопределенностей связан с недостаточностью знаний о начальных и граничных условиях, физико-химических свойствах веществ, геометрических размерах, неполнотой информации о механизмах протекания процессов и др., т.е. с исходными данными для моделирования.

Третий источник неопределенностей заключается в используемых физических моделях, которые могут иметь существенные отличия от результатов экспериментальных наблюдений.

Наилучшего согласия с экспериментами не всегда можно достичь путем усовершенствования схем дискретизации, повышения качества сетки и т.д. Признавая, что некоторые исходные данные являются неопределенными параметрами с вероятностным распределением, необходимо определить уровень неопределенности, которую эти переменные вносят в численные расчеты.

В 2015–2016 гг. OECD/NEA был проведен первый бенчмарк, включающий в себя анализ неопределенностей, посвященный моделированию экспериментов по турбулентному смешению потоков на установке GEMIX [1]. В рамках бенчмарка предлагалось оценить влияние таких источников неопределенностей как граничные условия и модели турбулентности. Для текущего бенчмарка «Cold Leg Mixing CFD-UQ» участникам было предложено самостоятельно определить источники неопределенностей и провести их анализ.

В рамках данной работы был выполнен анализ неопределенности входных данных – проведена оценка влияния значений плотности легкой и тяжелой жидкостей на результаты моделирования «слепого» теста. Были использованы экспериментально измеренные значения плотности со статистическими характеристиками (средним и стандартным отклонениями), предоставленные организаторами в качестве исходных данных. Для анализа неопределенности был выбран метод детерминированной выборки [6], в котором рассматриваются три статистических момента – среднее, дисперсия и стандартное отклонение:

$$\text{mean} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N q_i = \bar{q}; \quad (1)$$

$$\text{var} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (q_i - \bar{q})^2; \quad (2)$$

$$\sigma = \sqrt{\text{var}}. \quad (3)$$

Параметр q – плотность тяжелой и легкой жидкостей – варьируется следующим образом:

$$q_1 = \bar{q} + \sqrt{3} \cdot \sigma; \quad (4)$$

$$q_2 = \bar{q}; \quad (5)$$

$$q_3 = \bar{q} - \sqrt{3} \cdot \sigma. \quad (6)$$

Здесь \bar{q} – среднее значение, а σ – стандартное отклонение плотности тяжелой и легкой жидкостей, представленные организаторами бенчмарка.

В соответствии с принятым методом была составлена матрица, включающая в себя девять расчетов, в которых проводилось варьирование плотности. По результатам расчетов определены среднее, дисперсия, стандартное отклонение, а также верхняя и нижняя полосы ошибок согласно формулам

$$UEB = \bar{q} + 2 \cdot \sigma; \quad (7)$$

$$LEB = \bar{q} - 2 \cdot \sigma. \quad (8)$$

На рис. 9 представлены профили скорости с верхними (UEB) и нижними (LEB) полосами ошибок. Рисунок демонстрирует существенное влияние вариаций плотности рабочих жидкостей на результаты моделирования, при этом необходимо отметить, что заявленные стандартные отклонения плотностей рабочих жидкостей не превышают 1% от средних значений.

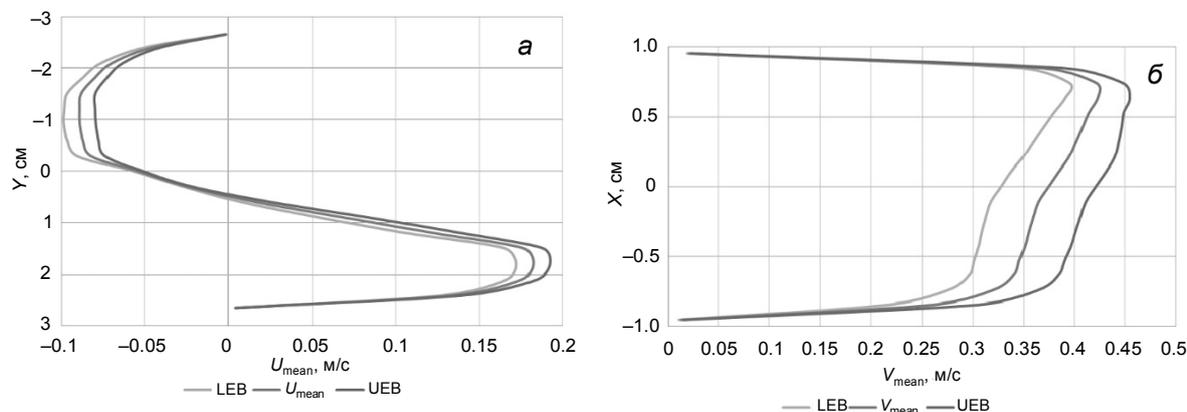


Рис. 9. «Слепой» тест, профили скорости с полосами ошибок: *a* – в горизонтальной трубе (продольная компонента, интервал осреднения 10–15 с); *б* – в опускном участке (вертикальная компонента, интервал осреднения 10–15 с)

Заключение

В работе представлены результаты моделирования по пакету программ «Логос» пятого международного бенчмарка OECD/NEA «Cold Leg Mixing CFD-UQ», проводимого в настоящее время с целью анализа применимости CFD-методов к моделированию процессов перемешивания под влиянием сил плавучести в условиях теплового удара под давлением. Это первый опыт применения отечественного пакета программ «Логос» разработки ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ» в качестве CFD-кода для моделирования международного бенчмарка атомной отрасли. В настоящее время организаторами бенчмарка проводится анализ результатов участников и подготовка финального отчета.

В ходе работы на основании расчетов открытого теста отработаны подходы к моделированию и выбрана следующая стратегия для последующих расчетов «слепого» теста: преимущественно шестигранная расчетная сетка с призматическими слоями размерностью 12 млн ячеек, метод VOF для моделирования свободного уровня тяжелой жидкости, модель LES для учета турбулентности.

Для анализа результатов моделирования «слепого» теста выполнено качественное сравнение расчетных профилей с доступными экспериментальными данными. Продемонстрировано удовлетворительное согласие расчетных данных с экспериментальными по форме профилей скорости в горизонтальной трубе, включая положение границы между двумя слоями жидкости, что подтверждает правильность моделирования стратификации. В расчетах наблюдается близкая к эксперименту скорость легкой жидкости при завышении скорости тяжелой жидкости, которая, в свою очередь, оказывает влияние на картину в опускном участке, где расчет отражает правильную общую динамику и положение максимумов, но демонстрирует расхождения по форме профилей и по величине расхода.

Поскольку одной из целей бенчмарка является проведение анализа неопределенностей, то для «слепого» теста с применением метода детерминированной выборки был выполнен анализ неопределенности входных данных, а именно проведена оценка влияния значений плотности рабочих жидкостей на результаты моделирования.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. CFD benchmarks [Электронный ресурс]: Официальный сайт OECD/NEA. – Режим доступа: <https://oecd-nea.org/nsd/csni/cfd/>
2. COLD LEG MIXING CFD-UQ BENCHMARK [Электронный ресурс]: Сайт Техасского А&М Университета. – Режим доступа: <http://thrlab.tamu.edu/pressurized-thermal-shock-pts-facility-the-cold-leg-mixing-cfd-uq-benchmark/>

3. Программный комплекс ЛОГОС. Техническое руководство. – РФЯЦ-ВНИИЭФ, 2019.
4. Orea D., Vaghetto R., Nguyen T., and Hassan Y. // Ann. Nucl. Energy. – 2019. – V. 140. – P. 107–137.
5. Шестак О.О., Деулин А.А., Денисова О.В. и др. // Сб. материалов науч.-практич. конф. «Ядерные технологии: от исследований к внедрению – 2019». – Нижний Новгород, 2019.
6. Review of Uncertainty Methods for Computational Fluid Dynamics Application to Nuclear Reactor Thermal Hydraulics, NEA/CSNI/R(2016)4.
7. V&V20-2009. Standard for Verification and Validation in Computational Fluid Dynamics and Heat Transfer. American Society of Mechanical Engineers, 2009. www.asme.org.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», г. Саров, Россия

Шестак Олег Олегович, мл. науч. сотр. ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», e-mail: shestak_oleg92@mail.ru;
Денисова Оксана Владимировна, начальник науч.-исслед. группы ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», e-mail: ok.denisova@yandex.ru;
Деулин Андрей Александрович, начальник науч.-исслед. отдела ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», e-mail: drunix@mail.ru.

O.O. SHESTAK, O.V. DENISOVA, A.A. DEULIN

SIMULATION THE OECD/NEA INTERNATIONAL «COLD LEG MIXING CFD-UQ» BENCHMARK BY THE LOGOS SOFTWARE PACKAGE

The paper presents the results of simulation by the domestic software package Logos developed by FSUE «RFNC-VNIIEF» international OECD/NEA «Cold Leg Mixing CFD-UQ» benchmark dedicated to the study of mixing phenomena in the presence of density gradients at the experimental facility located at Texas A&M University (TAMU). The main objective of the benchmark is to analyze the applicability of CFD methods to simulation mixing processes with the influence of buoyancy forces under Pressure Thermal Shock event, which is of great importance from the point of view of nuclear safety. Based on the calculations of an open test with known experimental data, approaches to modeling have been worked out, which are used to calculate the «blind» test. A qualitative comparison of the calculated profiles with the available experimental data of the «blind» test is carried out. An uncertainty analysis was carried out to assess the influence of input data on the results of modeling a «blind» test.

Keywords: *OECD/NEA «Cold Leg Mixing CFD-UQ» benchmark, Logos software package, Computational Fluid Dynamics (CFD), Uncertainty Quantification (UQ).*

FSUE «RFNC-VNIIEF», Sarov, Russia

Shestak Oleg Olegovich, Junior Researcher FSUE «RFNC-VNIIEF», e-mail: shestak_oleg92@mail.ru;
Denisova Oksana Vladimirovna, Team Lead FSUE «RFNC-VNIIEF», e-mail: ok.denisova@yandex.ru;
Deulin Andrey Aleksandrovich, Head of Research Department FSUE «RFNC-VNIIEF», e-mail: drunix@mail.ru.

УДК 621.039

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/171

И.А. ШИРМАНОВ, В.С. КОСТАРЕВ, Д.Н. ЛИТВИНОВ, С.Е. ЩЕКЛЕИН

О ПРИМЕНЕНИИ КОМПРЕССИИ И НЕЯДЕРНОГО ПЕРЕГРЕВА ПАРА НА РЕАКТОРАХ НА БЫСТРЫХ НЕЙТРОНАХ СО СВИНЦОВЫМ ТЕПЛОНОСИТЕЛЕМ ДЛЯ ПОВЫШЕНИЯ ТЕРМОДИНАМИЧЕСКОЙ ЭФФЕКТИВНОСТИ ЦИКЛА ТУРБОУСТАНОВКИ

Представлены результаты компьютерного моделирования вариантов тепловых схем АЭС с реактором БРЕСТ-ОД-300 с использованием неядерного перегрева пара, а также паровой компрессии для повышения термодинамической эффективности цикла турбоустановки К-300-240. Проведена оценка эффективности использования данных тепловых схем.

Ключевые слова: БРЕСТ-ОД-300, тепловая схема АЭС, термодинамическая эффективность, суперсверхкритические параметры пара.

Введение

Происходящий в настоящее время переход мировой теплоэнергетики на суперсверхкритические параметры пара позволяет значительно увеличить КПД и снизить расход топлива, а также сократить сбросы вредных веществ в окружающую среду. Для поддержания конкурентоспособности на рынке производителей электроэнергии АЭС необходимо увеличивать свою эффективность. Одним из возможных способов повышения энергоэффективности АЭС с реакторами на быстрых нейтронах является совершенствование термодинамического цикла.

На сегодняшний день атомные и тепловые электрические станции составляют большую часть энергетической системы России – 81.7% по состоянию на 2019 г. [1]. В связи с этим одной из приоритетных задач экономики страны является повышение энергоэффективности при использовании как ТЭС, так и АЭС. В атомной энергетике для достижения данной цели рассматриваются следующие задачи:

- повышение установленной мощности действующих энергоблоков путем модернизации оборудования;
- повышение коэффициентов полезного действия АЭС путем совершенствования тепловых схем и термодинамических циклов;
- увеличение глубины выгорания ядерного топлива;
- повышение коэффициентов использования установленной мощности (КИУМ);
- снижение расходов тепловой и электрической энергии на собственные нужды АЭС;
- снижение непроизводительных расходов и потерь энергии;
- использование низкопотенциальной сбросной тепловой энергии.

Наряду с данными задачами рассматриваются также многочисленные инновационные проекты, способные радикально повысить экологическую, энергетическую и экономическую эффективность атомной энергетики. К таким проектам относятся реакторы на быстрых нейтронах с натриевым теплоносителем (БН-600, БН-800, проектируемый БН-1200), а также реактор со свинцовым теплоносителем БРЕСТ-ОД-300, сооружаемый в настоящее время в г. Северске на площадке Сибирского химического комбината.

1. Реактор БРЕСТ-ОД-300

Реактор БРЕСТ является элементом концепции ядерной энергетики естественной безопасности, разработанной в 1980-х гг. (рис. 1). К принципам, которым должен соответствовать новый вектор развития атомной энергетики, относятся:

- исключение тяжелых аварий АЭС, соответствующих четвертому уровню международной шкалы ядерных событий, что требует эвакуации населения;
- создание замкнутого ядерного топливного цикла для использования в полной мере энергетического потенциала уранового сырья;
- поступательное приближение к радиационно-эквивалентному захоронению природных отходов;

– технологическое усиление нераспространения ядерного оружия (неразделение урана и плутония при переработке облученного ядерного топлива быстрых реакторов, отказ от уранового blankets и обогащения урана);

– конкурентоспособность в сравнении с другими видами производства электроэнергии.

Итогом работы является концептуальный проект реакторной установки естественной безопасности.

Для достижения необходимого спектра нейтронов при низком давлении в первом контуре, а также реализации высоких теплофизических свойств пара был выбран свинцовый теплоноситель. Применение данного теплоносителя, как химически инертного по отношению к рабочему телу, позволило отказаться от второго контура, выполняющего роль промежуточного (трехконтурная схема с промежуточным контуром применяется в реакторах на быстрых нейтронах семейства БН), и использовать двухконтурную схему с интегральной компоновкой. Благодаря большому запасу до кипения теплоносителя при умеренной энергонапряженности активной зоны предложена высокая температура острого пара, что позволяет вывести общий коэффициент полезного действия цикла в диапазон с 44 до 47% [2] при 30–33% у АЭС с реакторами на тепловых нейтронах.

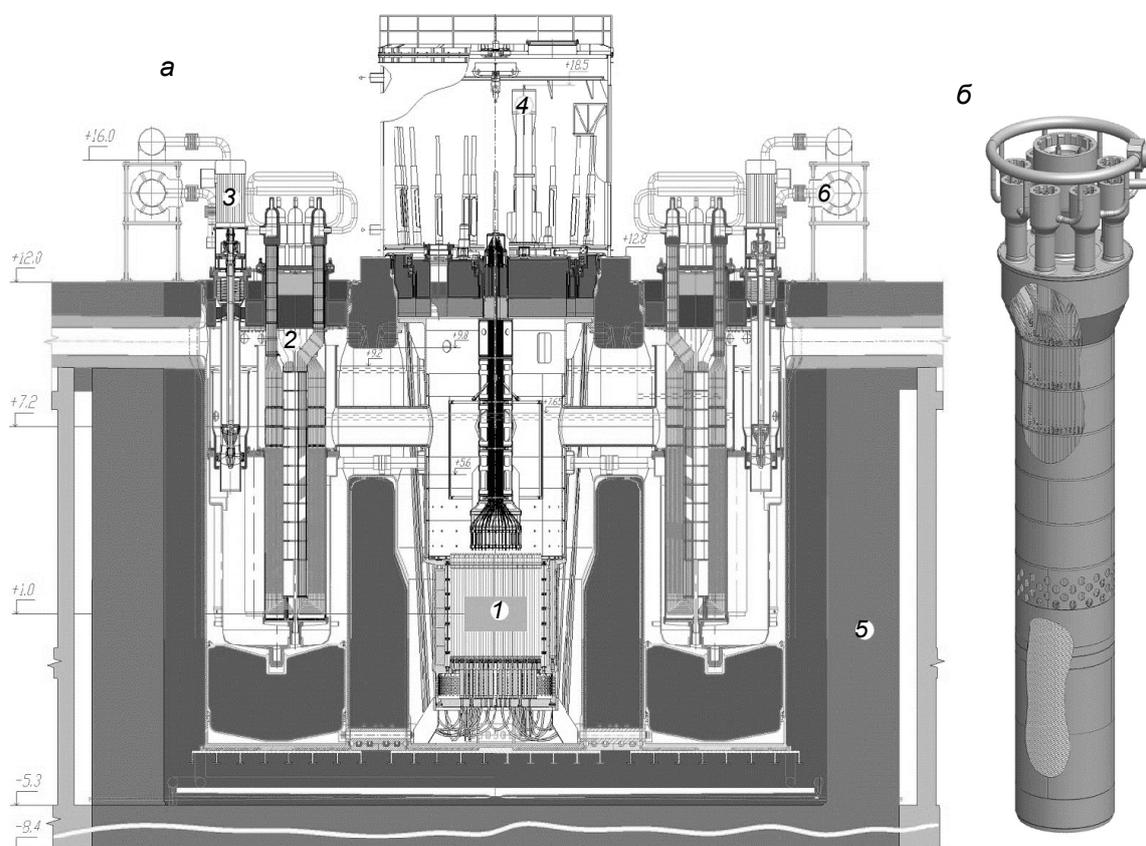


Рис. 1. Реактор БРЕСТ-ОД-300 (а): 1 – активная зона; 2 – парогенератор; 3 – насос; 4 – перегрузочная машина; 5 – шахта реактора; б – система расхолаживания. Парогенератор, используемый в реакторе БРЕСТ-ОД-300 (б)

2. Система автоматизированного проектирования (САПР) «United Cycle»

САПР «United Cycle» – специализированная программа для автоматизированного проектирования, моделирования и расчета стационарных режимов работы теплоэнергетических установок и систем. Спектр расчетных режимов работы охватывает весь диапазон эксплуатационных нагрузок с учетом отпуска электроэнергии, тепла и пара [3–5].

На кафедре «Атомные станции и возобновляемые источники энергии» УрФУ при помощи данной программы успешно проводились расчеты по определению наиболее термодинамически эффективной модификации тепловой схемы АЭС с реактором ВВЭР-1200. В случае легководных реакторов (ЛВР) становится возможным также понизить параметры первого и второго контура, с последующей компрессией и огневым перегревом пара. Понижение начальных параметров пара

на ЛВР позволит увеличить глубину выгорания ядерного топлива и уменьшить толщину корпуса реактора [6].

3. Объект исследования

В настоящее время известно несколько способов повышения энергоэффективности АЭС путем применения перегрева как ядерного, так и неядерного пара.

Повышение КПД цикла АЭС путем применения ядерного перегрева пара успешно применялось на реакторах канального типа АМБ-100 и АМБ-200, но не получило дальнейшего развития, главным образом, из-за необходимости применять для активной зоны реакторов высокотемпературные стали, снижающие эффективность использования уранового топлива [7].

Однако в теплоэнергетике благодаря развитию технологий энергетического машиностроения и созданию высокотемпературных паровых турбин и компрессоров стало возможно широкое применение циклов на суперсверхкритических параметрах пара ($P = 30$ МПа, $t = 650$ °С), что позволяет рассматривать возможность достижения суперсверхкритических параметров пара на АЭС с реакторами как на тепловых, так и на быстрых нейтронах [8, 9].

4. Постановка задачи

Перед началом моделирования были заданы следующие начальные параметры: температура острого пара принималась равной 530 °С, давление – 26 МПа, расход пара – 890 т/ч. В САПР «United Cycle» затем были построены несколько потенциально возможных вариантов тепловых схем для их дальнейшего расчета. Рассматривались следующие варианты:

- тепловая схема БРЕСТ-ОД-300 со стандартными параметрами;
- тепловая схема БРЕСТ-ОД-300 со стандартными параметрами и начальным огневым перегревом пара (до 650 °С);
- тепловая схема БРЕСТ-ОД-300 с компрессией (до 30 МПа) и одним промежуточным огневым перегревом пара (до 650 °С);
- тепловая схема БРЕСТ-ОД-300 с компрессией (до 30 МПа) и двумя промежуточными огневыми перегревами пара (до 650 °С).

Моделирование производилось без учета и с учетом системы регенеративного подогрева питательной воды (РППВ) в тепловых схемах АЭС.

5. Результаты

На рис. 2 и 3 представлены показатели электрической мощности и коэффициента полезного действия АЭС нетто, полученные в результате расчетов без учета и с учетом регенеративного подогрева питательной воды.

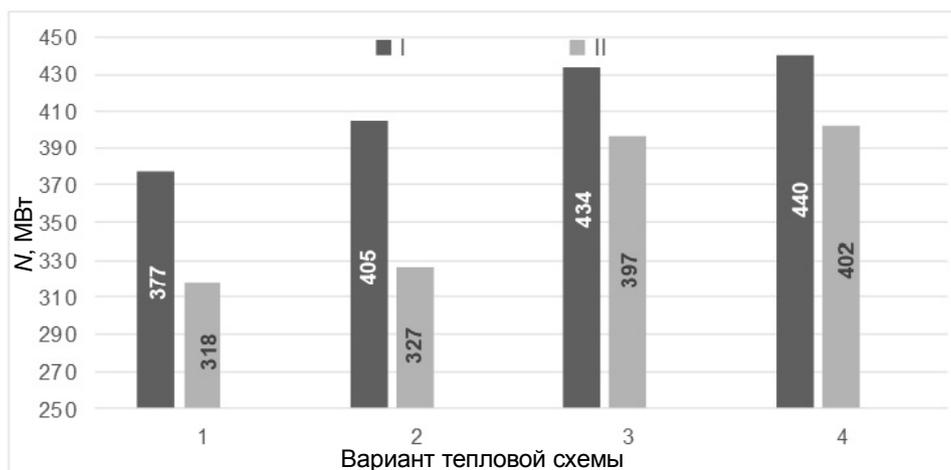


Рис. 2. Электрическая мощность нетто; I – тепловые схемы без включения системы РППВ; II – тепловые схемы с включением РППВ; 1 – тепловая схема БРЕСТ-ОД-300 со стандартными параметрами; 2 – тепловая схема БРЕСТ-ОД-300 со стандартными параметрами и начальным огневым перегревом пара; 3 – тепловая схема БРЕСТ-ОД-300 с компрессией и одним промежуточным огневым перегревом пара; 4 – тепловая схема БРЕСТ-ОД-300 с компрессией и двумя промежуточными огневыми перегревами пара

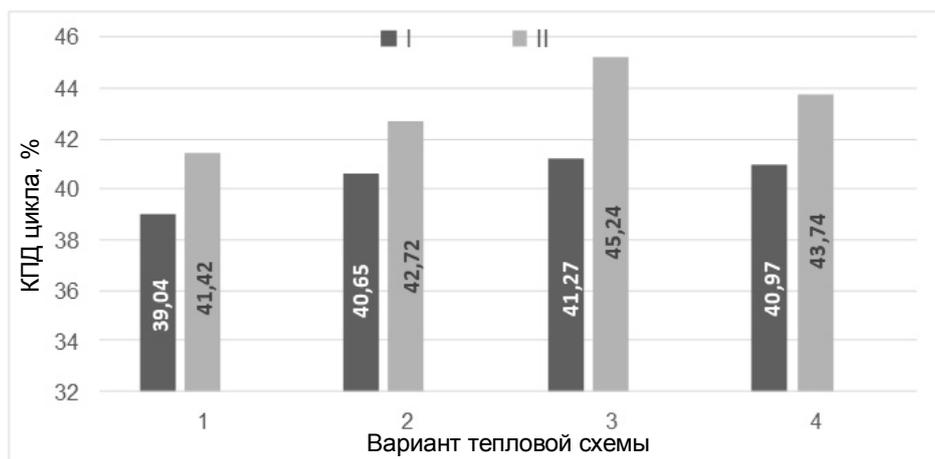


Рис. 3. КПД нетто цикла. Обозначения номеров схем аналогичны рис. 2

Для оценки величины вклада ядерной мощности в общую мощность станции был рассчитан коэффициент использования ядерной энергии ξ по следующей формуле:

$$\xi = \frac{Q_{\text{ПГ}}}{Q_{\text{ПГ}} + \Sigma Q_{\text{К}}}, \quad (1)$$

где $Q_{\text{ПГ}}$ – тепловая мощность парогенератора; $\Sigma Q_{\text{К}}$ – суммарная тепловая мощность паровых котлов, используемых в тепловой схеме. На рис. 4 представлены результаты расчета.

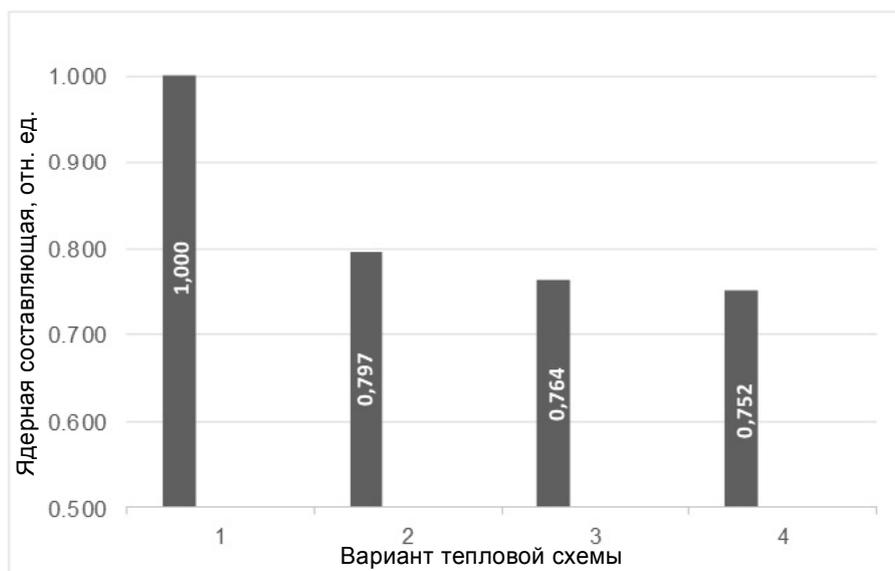


Рис. 4. Коэффициент использования ядерной энергии в цикле. Обозначения номеров схем аналогичны рис. 2

Можно заключить, что коэффициент полезного действия и значение электрической мощности наиболее высоки в схеме 3 (тепловая схема с компрессией и одним огневым перегревом) (рис. 3).

Расширение пара в турбине в каждом из рассматриваемых циклов, за исключением стандартного для работы турбины, проходит в зоне глубокой сверхкритичности, что влияет на термодинамическую эффективность цикла в лучшую сторону. Переход в область влажного пара происходит исключительно на последних ступенях цилиндра низкого давления, что оказывает воздействие на работу конденсатора, куда при обычных режимах не должен попадать перегретый пар.

На рис. 2 и 3 показаны значения электрической мощности и КПД нетто с условием использования системы РППВ в тепловой схеме турбоустановки.

При сопоставлении параметров пара, полученных в результате расчета стандартной тепловой схемы БРЕСТ-ОД-300 в «United Cycle», с проектными на основе системы с турбиной К-300-240

ЛМЗ становится видно, что применение рассмотренных методов повышения параметров пара можно достичь с увеличением КПД станции в целом.

Конечные параметры и параметры пара при отборе для каждой вариации тепловой схемы, за исключением стандартной, подбирались по критерию наиболее высокого коэффициента полезного действия. Наибольшим КПД (45.24%) обладает схема с компрессией и единичным огневым пром-перегревом пара. Наибольшей электрической мощностью (402.43 МВт) располагает схема с компрессией и двумя промперегревами пара. Высокие параметры пара позволяют отказаться от включения в систему РППВ ПВД-8 (после прохождения ПВД-7 пар отправляется сразу в парогенератор), а также снизить давление после прохождения турбины с 0.0034 до 0.0029 МПа с повышением влажности пара с 8.39 до 8.6%. Данный вариант схемы представлен на рис. 5.

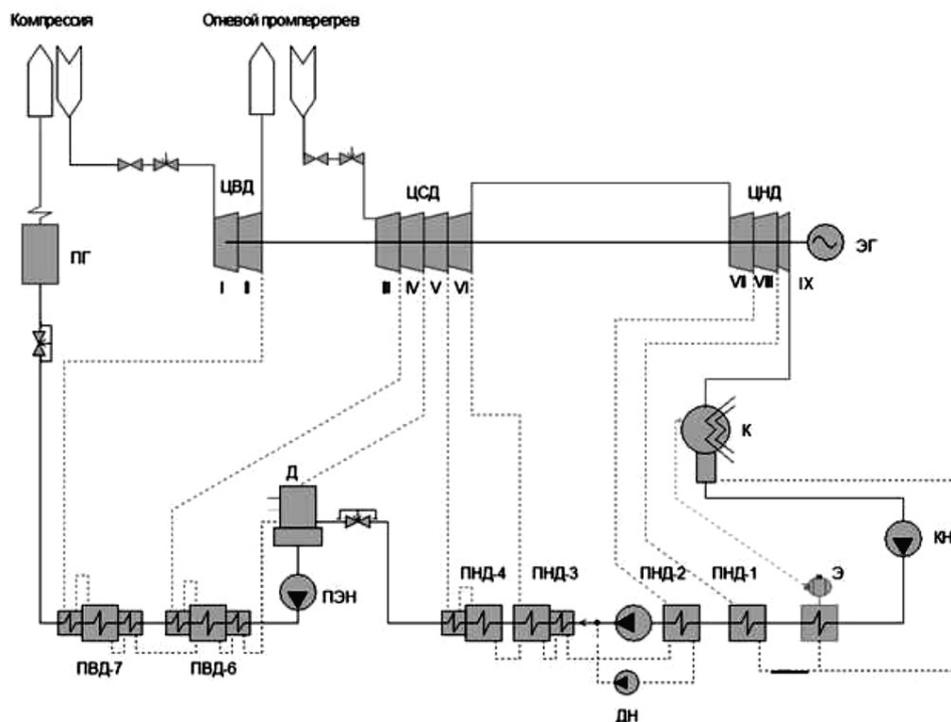


Рис. 5. Тепловая схема с компрессией и одноступенчатым огневым перегревом, созданная в «United Cycle»: I, II – отсеки ЦВД; III, IV, V, VI – отсеки ЦСД; VII, VIII, IX – отсеки ЦНД; Д – деаэрактор; ДН – дренажный насос; К – конденсатор; КН – конденсатный насос; ПВД-6, 7 – подогреватели высокого давления; ПГ – парогенератор; ПНД-1, 2, 3, 4 – подогреватели низкого давления; ПЭН – питательный электронасос; Э – эжектор; ЭГ – электрогенератор

Другие варианты тепловых схем представляют меньший интерес, так как КПД незначительно повышается в сравнении со стандартной схемой. На рис. 6 представлены h - S -диаграммы процесса расширения пара в турбине для стандартной схемы и для схемы с компрессией и одним промежуточным огневым перегревом пара (таблица). На рис. 6 обозначены следующие характерные точки процесса расширения пара в турбине:

- 1 – параметры пара на выходе из парогенератора;
- 2 – параметры пара на выходе из компрессора (только для схемы А);
- 3_А, 3_Б – параметры пара в конце процесса расширения в ЦВД;
- 4_А, 4_Б – параметры пара после промежуточного перегрева;
- 5_А, 5_Б – параметры пара в конце процесса расширения в ЦНД.

Из данных диаграммы рис. 6 видно, что расширение пара в турбине для схемы с компрессией и промежуточным огневым перегревом находится в области гораздо больших значений энтальпии по сравнению со стандартной схемой, что существенно повышает общую термодинамическую эффективность цикла.

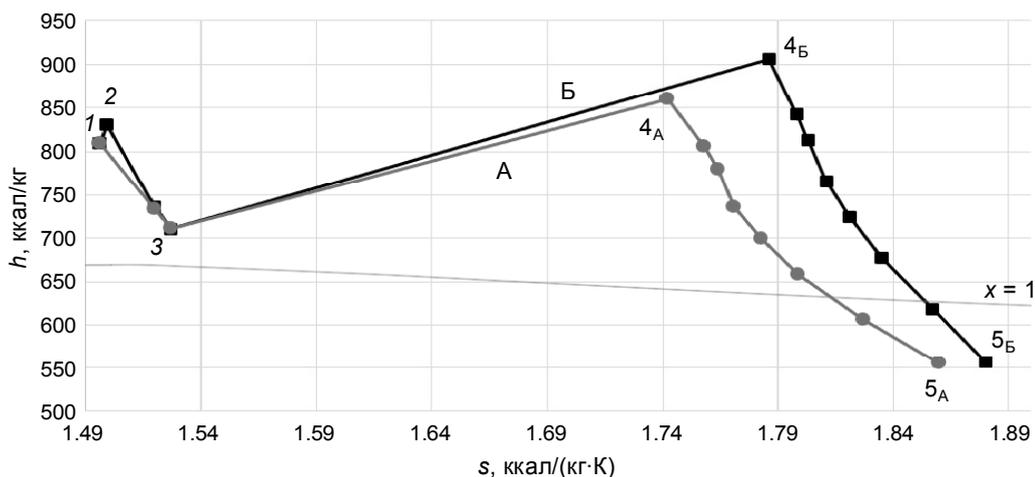


Рис. 6. Диаграмма h - S процесса расширения пара в турбине: А – тепловая схема с компрессией и промежуточным огневым перегревом; Б – стандартная тепловая схема БРЕСТ-ОД-300. Цифрами обозначены характерные точки процесса расширения

Значения термодинамических параметров в характерных точках процесса расширения пара

Номер точки	P , кг/см ²	T , °C (Y , %)
Стандартная тепловая схема БРЕСТ-ОД-300		
1	240.0	560.0
3	40.0	303.8
4 _А	39.74	560.0
5 _А	0.035	9.12
Тепловая схема с компрессией и промежуточным огневым перегревом		
1	240.0	560.0
2	300.0	607.8
3	40.0	303.8
4 _Б	43.12	650.0
5 _Б	0.030	8.65

Заключение

Анализ результатов позволяет сделать вывод, что применение в тепловой схеме АЭС с реакторной установкой БРЕСТ-ОД-300 компрессии (до 30 МПа) и последующего промежуточного неядерного (огневого) перегрева пара после ЦВД увеличит электрическую мощность установки на 24.84%, а КПД нетто – на 3.82% по сравнению со стандартным циклом установки, что приводит к значительному повышению термодинамической эффективности цикла.

Применение компрессии и неядерного огневого перегрева пара для выхода параметров пара в область суперсверхкритических параметров на АЭС с реактором БРЕСТ-ОД-300 является целесообразным мероприятием, так как использование данных методов повышения параметров пара позволяет существенно повысить электрическую мощность вырабатываемой АЭС, а также коэффициент полезного действия, что может существенно сказаться на экономической составляющей АЭС.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Отчет о функционировании ЕЭС России в 2019 г. / Акционерное общество «Системный оператор Единой энергетической системы». – 2019.
2. Драгунов Ю.Г., Лемехов В.В., Смирнов В.С., Чернецов Н.Г. // Атомная энергия. – 2012. – Т. 113. – № 1. – С. 58–64.
3. United Cycle. Руководство пользователя.
4. Аникина И.Д., Сергеев В.В., Амосов Н.Т., Лучко М.Г. // Научно-технические ведомости СПбГПУ. – 2016. – № 2 (243). – С. 24–33.
5. Григорьева Д.В., Шарапа Е.Г. // Научно-технические ведомости СПбГПУ. – 2016. – № 1 (238). – С. 46–56.

6. Щеклеин С.Е., Титов Г.П., Борисова Е.В. // Вестник Одесского политехнического университета. – 2011. – № 2 (36). – С. 104–108.
7. Петров А.А., Роменков А.А., Ярмоленко О.А. // Изв. вузов. Ядерная энергетика. – 2009. – № 2. – С. 21–29.
8. Касилов В.Ф., Низовой А.В. // Научные исследования: от теории к практике. – 2015. – № 4 (5). – С. 34–38
9. Darwish M.A., Al Awadhi F.M., and Bin Amer A.O. // Energy. – 2010. – No. 35. – P. 4562–4571.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

Уральский федеральный университет им. первого Президента России
Б.Н. Ельцина, г. Екатеринбург, Россия

Ширманов Иван Андреевич, студент УрФУ, e-mail: topzar76123@gmail.com;
Костарев Вячеслав Сергеевич, студент УрФУ, e-mail: slavakostarev@yandex.ru;
Литвинов Данил Николаевич, студент УрФУ, e-mail: danil.litvinov@urfu.me;
Щеклеин Сергей Евгеньевич, д.т.н., профессор, зав. каф. атомных станций и возобновляемых источников энергии УрФУ, e-mail: s.e.shcheklein@urfu.ru.

I.A. SHIRMANOV, V.S. KOSTAREV, D.N. LITVINOV, S.E. SHCHEKLEIN

ON THE POSSIBILITY OF APPLICATION OF COMPRESSION AND NON-NUCLEAR STEAM SUPERHEATING ON FAST NEUTRON REACTORS WITH A LEAD COOLANT TO INCREASE THE THERMODYNAMIC EFFICIENCY OF THE TURBINE PLANT

The ongoing transition of the world thermal power industry to ultra-supercritical steam parameters makes it possible to significantly increase efficiency and reduce fuel consumption, as well as reduce the discharge of harmful substances into the environment. To maintain competitiveness in the NPP electricity market, it is necessary to increase its efficiency. One of the possible ways to improve the energy efficiency of nuclear power plants with fast reactors is to improve the thermodynamic cycle. The paper presents the results of computer simulation of options for cycle arrangements of NPPs with the BREST-OD-300 reactor using non-nuclear steam superheating, as well as steam compression to increase the thermodynamic efficiency of the cycle of the K-300-240 turbine unit and an assessment of the efficiency of using these cycle arrangements.

Keywords: *BREST-OD-300, NPP cycle arrangement, thermodynamic efficiency, ultra-supercritical steam parameters.*

Ural Federal University named after the first President of Russia B. N. Yeltsin, Ekaterinburg, Russia

Shirmanov Ivan Andreevich, Student UrFU, e-mail: topzar76123@gmail.com;
Kostarev Vyacheslav Sergeevich, Student UrFU, e-mail: slavakostarev@yandex.ru;
Litvinov Danil Nikolaevich, Student UrFU, e-mail: danil.litvinov@urfu.me;
Shcheklein Sergei Evgenevich, Doctor of Technical Sciences, Professor UrFU, e-mail: s.e.shcheklein@urfu.ru.

УДК 66-963

DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/178

*А.Э. ШРАЙНЕР, А.С. БУЙНОВСКИЙ, Е.Ю. КАРТАШОВ, В.Л. СОФРОНОВ, В.М. БРОДСКИЙ***ПРИМЕНЕНИЕ МЕХАНИЧЕСКИ АКТИВИРОВАННЫХ ПОРОШКОВ В ПРОЦЕССЕ ПОЛУЧЕНИЯ МАГНИТОВ Nd–Fe–B**

Представлены результаты исследований по получению высокоэнергетических постоянных магнитов на основе редкоземельных металлов типа Nd–Fe–B из материалов, полученных в процессе индукционного переплава с добавлением механически активированных порошков. При этом рассмотрено влияние количества и вида механически активированных порошков на основные характеристики полученных магнитов.

Ключевые слова: магниты Nd–Fe–B, механически активированные порошки, индукционный переплав, гидрирование.

Высокоэнергетические магниты на основе редкоземельных металлов (РЗМ) становятся все более востребованы в современном мире благодаря их уникальным свойствам: небольшие массогабаритные размеры, высокие магнитные характеристики и качество продукта [1].

В настоящее время основным способом получения таких магнитов является метод порошковой металлургии, который представляет собой многостадийный процесс [2]. В работе рассмотрена усовершенствованная технология их получения, которая позволяет сократить число операций и существенно снизить количество получающихся отходов и тем самым увеличить выход готовой продукции. Принципиальная технологическая схема получения магнитов с применением механически активированных порошков представлена на рис. 1.

Отличия данной технологии от классического метода порошковой металлургии заключаются в следующем:

- использование индукционного переплава слитков высоконеодимовых лигатур с добавлением механически активированного модификатора с целью получения мелкокристаллической структуры отливки во всем ее объеме;
- исключение операций фторирования и восстановления при получении сплавов с использованием металлического неодима;
- возможность добавки к порошкам гидридов полученных сплавов на основе Nd–Fe–B требуемых количеств порошков ферробора и металлического Fe до стехиометрии тройного сплава с их последующим измельчением в шаровых мельницах в процессе твердофазного легирования (ТФЛ);
- возможность ТФЛ порошков гидридов сплава Nd–Fe–B порошками гидридов, содержащих Dy, Tb и другие металлы.

Процессы изготовления гидридов металлов и сплавов в настоящий момент достаточно подробно исследованы и описаны в литературе, а операции, следующие за ними, находят применение в существующей технологии получения постоянных магнитов [3]. Использование способа индукционного переплава сплавов и лигатур с добавлением механоактивированных нанодисперсных модификаторов для получения мелкокристаллической структуры, состоящей из кристаллов $Nd_2Fe_{14}B$, размерами не более 10 мкм, т.е. размеров доменов магнитных материалов, является новой и актуальной задачей. Исследования процесса гидрирования высоконеодимовых модифицированных лигатур продемонстрировали, что гидрирование материала проходит по границам зерен, которые являются обогащенными по неодиму. Поэтому при смешивании полученных таким образом гидридов с порошками металлического железа и ферробора в процессе ТФЛ происходят последующие спекание, рекомбинация гидридов и образование кристаллов $Nd_2Fe_{14}B$ с размерами доменов 5–10 мкм.

При получении лигатур и магнитных сплавов фторидным способом или с применением индукционного переплава кристаллизация имеет направленный характер от холодных поверхностей футерованного тигля или изложницы к центру [4].

Причем получающиеся при этом кристаллы имеют размеры, значительно превышающие размеры доменов. При гидрировании такого материала он рассыпается на пластинки и чешуйки, которые следует дополнительно истирать механически. Известно, что для получения мелкокристал-

лической (5–10 мкм) структуры получаемых сплавов необходимо выполнение одного из двух условий: либо скорость охлаждения отливки должна быть выше 10^4 К/мин, либо кристаллизация должна проходить не от стенок, а непосредственно в объеме металла [5]. Первое условие технологически сложно осуществить, поэтому для обеспечения второго условия нами был использован метод добавки искусственных центров кристаллизации в виде ультрананодисперсных механоактивированных порошков, который зарекомендовал себя при производстве чугунов [6].

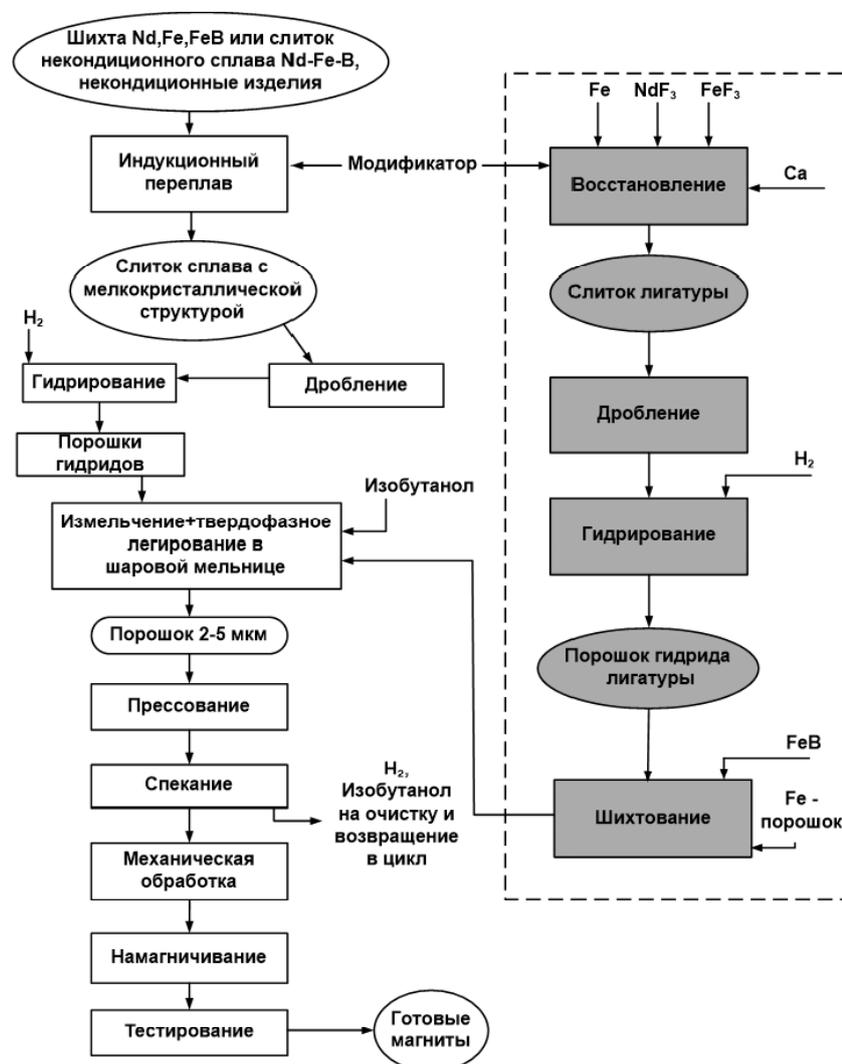


Рис. 1. Принципиальная технологическая схема получения магнитов

В работе приведены результаты исследований по получению магнитных сплавов на основе системы Nd-Fe-B с мелкокристаллической структурой, полученных при добавлении высоконеодимовых модифицированных лигатур, а также постоянных магнитов из них. Исследования по получению сплавов и лигатур проводили на индукционной установке УППФ-3М со сливом расплава металла в кристаллизатор через воронку и шлакоулавнитель. Для обеспечения объемной кристаллизации расплава высоконеодимовой лигатуры перед сливом металла в кристаллизатор добавляли механоактивированный модификатор, состоящий из оксидов РЗЭ, плакированных железом, размером 0,5 мкм. Модификатор является поверхностно-активным веществом, обеспечивающим появление активных центров кристаллизации во всем объеме расплава. Благодаря этому удалось создать одинаковую микроструктуру в объеме слитка и облегчить дальнейший процесс его гидрирования.

Получившийся слиток далее раздробили на прессе, отшлифовали образец из центра слитка и исследовали его на электронном микроскопе марки Philips SEM 515. Полученные результаты анализов образцов высоконеодимовой (70–75% Nd) лигатуры представлены на рис. 2.

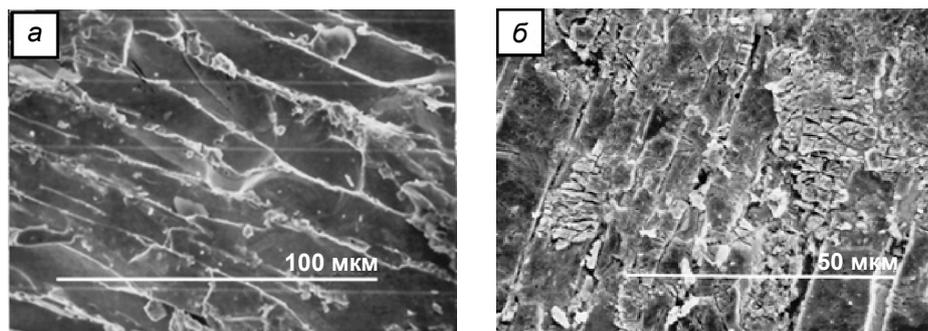


Рис. 2. Микрофотографии скола высоконеодимовой лигатуры: *a* – без модификатора, *b* – с модификатором

Как видно из микрофотографий, поверхность модифицированной лигатуры выглядит более «рыхлой», с меньшим размером зерен (0.1–1.0 мкм), т.е. имеет более разветвленную поверхность контакта. Благодаря этому гидрирование такой лигатуры будет проходить интенсивнее, чем гидрирование лигатуры, полученной путем индукционного переплава материалов без добавления модификатора. Время реагирования с водородом уменьшается на 25–30 %, что влияет на общее время изготовления магнитов и, в конечном итоге, на общую себестоимость продукта.

При получении магнитных сплавов Nd–Fe–В из высоконеодимовой лигатуры с использованием модификатора и без его добавления установили, что первые слитки обладают более высокой хрупкостью при их измельчении.

В таблице представлены магнитные характеристики образцов постоянных магнитов, полученных по методу порошковой металлургии из слитков магнитных сплавов с добавлением и без добавления модификатора.

Сравнение свойств полученных постоянных магнитов Nd–Fe–В

№ опыта	Количество модификатора, %/г	Время измельчения сплава, мин	Магнитные характеристики		Состояние изложницы (кристаллизатора)
			B_r , Тл	$H_{сц}$, кЭ	
1	Без модификатора	36	1.10	4.75	Горячая ($t = 200$ °С)
2	0.05 / 11.4	30	1.19	5.50	Холодная ($t = 25$ °С)
		36	1.19	5.75	
		42	1.19	6.00	
3	0.10 / 22.8	30	1.25	6.00	Горячая ($t = 200$ °С)
		36	1.25	6.50	
		42	1.25	6.75	

Пр и м е ч а н и е. B_r – магнитная индукция, Тл; $H_{сц}$ – коэрцитивная сила по намагниченности, кЭ; погрешность измерения приборов $\pm 0.5\%$.

Из таблицы видно, что при добавлении даже небольшого количества модификатора магнитные свойства полученных образцов магнитов улучшаются. Добавка 0.05–0.01% модификатора позволила увеличить магнитную индукцию на 0.09–0.15 Тл (8–14%), а коэрцитивную силу по намагниченности – на 0.75–2.00 кЭ (15–42%). Причем с увеличением количества введенного модификатора магнитные характеристики возрастают.

Следует отметить, что требуется проведение дополнительных исследований по установлению механизма влияния механоактивированных добавок на процесс кристаллизации расплава металла во всем объеме, а также определения оптимальных условий для достижения наибольшей эффективности по увеличению магнитных характеристик постоянных магнитов.

Таким образом, проведенные исследования показали, что магниты, химический состав сплава которых был скорректирован с применением гидридов, полученных из модифицированных высоконеодимовых лигатур, обладают более высокими магнитными свойствами по сравнению с магнитами, которые получены по классической технологии порошковой металлургии.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Буйновский А.С., Софронов В.Л., Макашеев Ю.Н. и др. // *Металлы*. – 1996. – № 2.
2. Петров И.М. // *Актуальные вопросы получения и применения РЗМ-2015: сб. материалов Междунар. науч.-практич. конф., Москва, 25 июня 2015 г. – 2015.* – С. 13–15.
3. Шумкин С.С., Прокофьев П.А., Семенов М.Ю. и др. // *Металлург*. – 2019. – № 5. – С. 37–42.
4. Карташов Е.Ю. *Технология измельчения РЗМ-содержащих лигатур методом гидрирования: дис. ... к.т.н. – Северск: СГТА, 2006.* – 157 с.
5. Пикунов М.В., Беляев И.В., Сидоров Е.В. *Кристаллизация сплавов и направленное затверждение отливок.* – Владимир: Владим. гос. ун-т, 2002. – 214 с.
6. Полубояров В.А. и др. *Способ модифицирования чугунов и сталей // Патент РФ № 2121510 по заявке № 96122580/02. Оpubл. 10.11.1998. Бюл. № 31.*

Поступила в редакцию 20.10.2020.

Северский технологический институт Национального исследовательского ядерного университета «МИФИ», г. Северск, Россия

Шрайнер Артур Эдуардович, аспирант СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: Artshrayner@gmail.com;
Буйновский Александр Сергеевич, д.т.н., профессор СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: Asbujnovskij@mail.ru;
Карташов Евгений Юрьевич, к.т.н., доцент СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: Kart.62@yandex.ru;
Софронов Владимир Леонидович, д.т.н., профессор СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: VLSofronov@mephi.ru;
Бродский Владимир Маркович, к.т.н., доцент СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: lamansh2006@yandex.ru.

A.E. SHRAYNER, A.S. BUINOVSKIY, E.U. KARTASHOV, V.L. SOFRONOV, V.M. BRODSKIY

APPLICATION OF MECHANICALLY ACTIVATED POWDERS IN THE PRODUCTION OF Nd-Fe-B MAGNETS

The results of research on the production of high-energy permanent magnets based on rare-earth metals such as Nd-Fe-B from materials obtained in the process of induction remelting with the addition of mechanically activated powders are presented. The influence of the amount and type of mechanically activated powders on the main characteristics of the obtained magnets is considered.

Keywords: Nd-Fe-B magnets, mechanically activated powders, induction remelting, hydrogenation.

Seversk Technological Institute National Research Nuclear University «МЕРФИ», Seversk, Russia

Shrayner Artur Eduardovich, Graduate Student STI NRNU «МЕРФИ», e-mail: Artshrayner@gmail.com;
Buinovskiy Alexander Sergeevich, Doctor of Technical Sciences, Professor STI NRNU «МЕРФИ», e-mail: Asbujnovskij@mail.ru;
Kartashov Evgeny Yurievich, Candidate of Technical Sciences, Associate Professor STI NRNU «МЕРФИ», e-mail: Kart.62@yandex.ru;
Sofronov Vladimir Leonidovich, Doctor of Technical Sciences, Professor STI NRNU «МЕРФИ», e-mail: VLSofronov@mephi.ru;
Brodskiy Vladimir Markovich, Candidate of Technical Sciences, Associate Professor STI NRNU «МЕРФИ», e-mail: lamansh2006@yandex.ru.

Уважаемые подписчики!

Обращаем Ваше внимание, что эксклюзивное право распространения русской версии журнала «Известия вузов. Физика» за пределы России принадлежит ООО «Издательство научно-технической литературы».

Адрес редакции: 634050, г. Томск, пл. Новособорная, 1, СФТИ, редакция журнала «Известия вузов. Физика».

Телефон: (382-2) 53-33-35.

Dear subscribers!

We call your attention to the fact that the exclusive right of distribution abroad of the Russian language originals of the Journal «Izvestiya Vysshikh Uchebnykh Zavedenii. Fizika» belongs to the Limited Liability Company «Publishing House of Scientific and Technology Literature». Write to our Publishing House for a sample copy of this journal.

*Our address: Sq. Novosobornaya, 1, SFTI, Tomsk, 634050, Russian Federat.
E-mail: physics@mail.tsu.ru*