

*На правах рукописи*



МОРДАНОВ Сергей Вячеславович

**ПОВЫШЕНИЕ ЭФФЕКТИВНОСТИ ПРОЦЕССОВ УСРЕДНЕНИЯ  
ХИМИЧЕСКОГО СОСТАВА АЗОТНОКИСЛЫХ РАСТВОРОВ  
УРАНА РАДИОХИМИЧЕСКОГО ЗАВОДА ПО «МАЯК»**

05.17.02 – Технология редких, рассеянных и радиоактивных элементов

Автореферат  
диссертации на соискание ученой степени  
кандидата технических наук

Екатеринбург – 2017

Работа выполнена на кафедре «Машины и аппараты химических производств» Химико-технологического института ФГАОУ ВО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина»

Научный руководитель: доктор технических наук, старший научный сотрудник  
**Хомяков Анатолий Павлович**

Официальные оппоненты: **Поляков Евгений Валентинович**,  
доктор химических наук, старший научный сотрудник,  
ФГБУН Институт химии твердого тела Уральского  
отделения Российской академии наук, г. Екатеринбург,  
заместитель директора по научной работе, заведующий  
лабораторией физико-химических методов анализа;

**Пузиков Егор Артурович**, кандидат химических наук,  
АО «Радиевый институт имени В.Г. Хлопина», г. Санкт-  
Петербург, старший научный сотрудник отделения  
прикладной радиохимии

Ведущая организация: ФГБОУ ВО «Российский химико-технологический  
университет имени Д.И. Менделеева», г. Москва

Защита состоится «06» июня 2017 г. в 15:00 ч. на заседании диссертационного  
совета Д **212.285.09** на базе ФГАОУ ВО «Уральский федеральный университет имени  
первого президента России Б.Н. Ельцина» по адресу: 620002, г. Екатеринбург, ул. Мира,  
19, зал Ученого совета (И-420).

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте ФГАОУ ВО  
«Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н.  
Ельцина», <http://lib.urfu.ru/mod/data/view.php?d=51&rid=266103>

Автореферат разослан «\_\_» \_\_\_\_\_ 2017 г.

Ученый секретарь  
диссертационного совета



Семенищев Владимир Сергеевич

## ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

### *Актуальность темы исследования*

Наибольшее распространение в современной производственной практике переработки ОЯТ находят различные варианты реализации совместного плутониево-уранового экстракционного цикла (PUREX-процесс). Мировой объем переработки ОЯТ в различных вариантах PUREX-процесса составляет 4750 т/год, часть из которых перерабатывается в России, на радиохимическом заводе (заводе РТ-1) ПО «Маяк».

Завод РТ-1 является единственным в России предприятием по переработке ОЯТ широкой номенклатуры (ОЯТ реакторов ВВЭР-440, БН-600, реакторов атомного флота, исследовательских реакторов). Помимо ОЯТ, наработанного в России, на заводе РТ-1 перерабатывается отработавшее топливо ряда зарубежных АЭС.

Радиохимический завод ПО «Маяк» в качестве товарного продукта выпускает плав гексагидрата уранилнитрата  $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ , который в дальнейшем служит сырьем для производства ядерного топлива реакторов типа РБМК. Плав  $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$  получают упариванием азотнокислых растворов урана, поступающих из экстракционного цикла. Подготовка растворов к упариванию осуществляется с помощью струйного перемешивания в емкостях приема с рабочим объемом 250 м<sup>3</sup> каждая. Целью подготовки азотнокислых растворов к упариванию является усреднение концентраций контролируемых компонентов (урана, плутония, азотной кислоты, делящегося изотопа урана и др.).

Ядерная и радиационная безопасность и качество товарного продукта существенным образом зависят от эффективности усреднения химического состава азотнокислых растворов урана при подготовке к упариванию. Продолжительность перемешивания на стадии подготовки растворов к упариванию на заводе РТ-1 составляет 25 ч и более. Качество усреднения химического состава растворов, подаваемых на упаривание, часто не в полной мере удовлетворяет требованиям ядерной и радиационной безопасности и технологическим требованиям последующих производств. Причиной этого может являться неравномерное распределение компонентов технологических растворов в объеме емкостей приема.

Повышение эффективности процессов усреднения химического состава азотнокислых растворов урана при подготовке к упариванию является, таким образом, важной и актуальной задачей. Слабая масштабируемость процессов перемешивания, большой рабочий объем емкостей приема азотнокислых растворов урана, радиоактивность затрудняют экспериментальное изучение процессов усреднения химического состава азотнокислых растворов урана. В диссертации представлены результаты исследований процессов усреднения химического состава технологических растворов в емкостях приема азотнокислых растворов урана завода РТ-1 с использованием численного моделирования методом конечных элементов.

Основные результаты работы получены в рамках НИР, выполненных кафедрой «Машины и аппараты химических производств» УрФУ по заказу ФГУП «ПО «Маяк»: № 01133 «Разработка математической модели гидродинамики перемешивания в емкости для приема азотнокислых растворов урана» (2011 г.), № П687.210.006/13 «Повышение эффективности перемешивания в емкости для приема азотнокислых растворов урана» (2013 г.).

#### ***Степень разработанности темы исследования***

Вопросы технологии и аппаратурного оформления процессов подготовки азотнокислых растворов урана к упариванию в емкостях большого объема практически не освещены в научно-технической литературе.

Классические методики расчета процессов и оборудования перемешивания оперируют методами теории подобия и зачастую представляют собой эмпирические модели, работающие в достаточно узких пределах. Вопросы организации струйного перемешивания, к сожалению, мало изучены по сравнению с вопросами организации перемешивания в аппаратах с мешалками. Кроме того, в доступных источниках отсутствуют данные об организации струйного перемешивания с неосесимметричными схемами размещения перемешивающих сопел в емкостях объемом более 100 – 150 м<sup>3</sup> в целом и на радиохимических производствах в частности.

***Объект исследования*** – технологические азотнокислые растворы урана, поступающие из экстракционного цикла, и емкости приема данных растворов радиохимического завода ПО «Маяк», включая системы струйного перемешивания данных емкостей.

***Предмет исследования*** – усреднение химического состава азотнокислых растворов урана в процессе их подготовки к упариванию и гидродинамические процессы струйного и механического перемешивания в емкостях приема данных растворов.

#### ***Методология и методы исследования***

Исследование процессов усреднения химического состава технологических растворов в емкостях приема осуществлялось с помощью методов и средств вычислительной гидродинамики. Обработка результатов численного моделирования производилась методами математической статистики. Проверка адекватности физико-математических моделей и методик инженерного расчета осуществлялась на основе экспериментальных данных и на основе эксплуатационных данных радиохимического завода ПО «Маяк».

***Цель работы*** – на основании исследований с использованием численного моделирования методом конечных элементов разработать практические рекомендации по повышению эффективности процессов усреднения химического состава

азотнокислых растворов урана радиохимического завода ПО «Маяк» при их подготовке к упариванию.

Для достижения поставленной цели были сформулированы следующие *задачи*:

1. Модернизировать существующие математические модели для их применения в сочетании с методом конечных элементов при моделировании процессов усреднения химического состава азотнокислых растворов урана в процессе подготовке к упариванию. Выполнить проверку модернизированной математической модели.

2. Методом численного моделирования получить распределения концентраций урана, плутония, азотной кислоты, массовой доли  $^{235}\text{U}$  в объеме емкостей приема азотнокислых растворов урана радиохимического завода ПО «Маяк». Получить зависимости минимальных и максимальных отклонений данных характеристик от средних значений в объеме емкостей приема азотнокислых растворов урана от продолжительности подготовки к упариванию.

3. Определить причины недостаточной эффективности усреднения химического состава азотнокислых растворов урана при их подготовке к упариванию. Сформулировать способы и разработать технические решения по повышению эффективности процессов перемешивания.

4. На основе модернизированной модели получить распределения концентраций урана, плутония, азотной кислоты, массовой доли  $^{235}\text{U}$  в объеме емкостей приема азотнокислых растворов урана и зависимости минимальных и максимальных значений и неусредненностей данных характеристик от продолжительности подготовки к упариванию с учетом предложенных технических решений по повышению эффективности процессов перемешивания.

5. Разработать регрессионные модели и графические материалы для инженерных расчетов процессов усреднения химического состава технологических растворов в условиях производства.

#### ***Научная новизна работы:***

1. Модернизирована математическая «модель смеси» (mixture model). Модель дополнена разработанными моделями центробежных насосов и методикой расчета концентраций урана, плутония, азотной кислоты, массовой доли  $^{235}\text{U}$  на основе результатов численного моделирования методом конечных элементов. На основании результатов экспериментальных исследований показано, что погрешность численного расчета по модернизированной математической модели составляет не более 8 – 12 %.

2. Методом численного моделирования впервые получены распределения концентраций урана, плутония, азотной кислоты, массовой доли  $^{235}\text{U}$  в емкостях приема азотнокислых растворов урана и зависимости данных характеристик от продолжительности перемешивания. Показано наличие застойной зоны, занимающей до 50 – 66 % объема емкости приема. Установлено, что продолжительность подготовки к

упариванию лимитируется временем усреднения концентраций плутония и азотной кислоты в объеме емкости приема.

3. Методом численного моделирования впервые получены распределения концентраций урана, плутония, азотной кислоты, массовой доли  $^{235}\text{U}$  и определены зависимости данных характеристик от времени перемешивания в емкостях с дополнительным струйным и механическим перемешиванием. Установлено, что применение дополнительных перемешивающих устройств приводит к ликвидации застойной зоны в емкости: при использовании струйного перемешивания – за счет формирования тангенциального макромасштабного потока; при использовании механического перемешивания – за счет формирования нисходящих и восходящих осевых потоков.

#### ***Теоретическая и практическая значимость работы:***

1. Модернизировано уравнение сохранения импульса математической «модели смеси». В областях моделируемых насосов и осевых перемешивающих устройств базовое уравнение дополнено слагаемым-источником, задающим, с учетом плотности технологических сред, дополнительное количество движения, возникающие в результате воздействия центробежного насоса или ротора мешалки на поток.

2. Разработаны регрессионные модели и графические материалы, описывающие изменение основных технологических показателей в процессе подготовки к упариванию азотнокислых растворов урана в емкостях радиохимического завода ПО «Маяк».

3. Разработаны технические решения, позволяющие повысить эффективность процессов усреднения химического состава азотнокислых растворов урана при подготовке к упариванию в емкостях радиохимического завода ПО «Маяк». Установлено, что применение дополнительного струйного перемешивания позволяет сократить продолжительность подготовки к упариванию на 8 – 9 ч или увеличить долю раствора усредненного химического состава с 65,7 до 92,3 %; применение дополнительного механического перемешивания позволяет сократить продолжительность подготовки к упариванию на 11 – 12 ч или увеличить долю раствора усредненного химического состава с 65,7 до 97,7 %.

4. Представлена конструкция и получены энергетические и технологические характеристики двухъярусного осевого механического перемешивающего устройства, позволяющего интенсифицировать процессы усреднения химического состава азотнокислых растворов урана при полном и неполном заполнении емкостей приема.

5. Предложена методика расчета мощности привода механического перемешивающего устройства на основе данных численного моделирования.

#### ***На защиту выносятся:***

1. Модернизированная математическая модель для численного моделирования методом конечных элементов процессов усреднения химического состава азотнокислых

растворов урана при их подготовке к упариванию. Результаты проверки адекватности данной математической модели.

2. Результаты численного моделирования процессов усреднения химического состава азотнокислых растворов урана при подготовке к упариванию в емкостях приема радиохимического завода ПО «Маяк».

3. Результаты численного моделирования процессов усреднения химического состава азотнокислых растворов урана при подготовке к упариванию в емкостях приема с дополнительным струйным и механическим перемешиванием.

#### ***Степень достоверности результатов исследования***

Адекватность применявшихся в исследованиях математических моделей установлена на основании экспериментальных исследований для различных режимов и вариантов организации струйного и механического перемешивания. Во всех рассмотренных случаях систематическое расхождение расчетных и экспериментальных данных не превышало погрешности измерений и составляло 8 – 12 %.

Дополнительная проверка адекватности модернизированных и разработанных математических моделей осуществлялась на основании экспериментальных данных других исследователей и на основании эксплуатационных данных радиохимического завода ПО «Маяк». Во всех рассмотренных случаях погрешность моделирования не превышала 6 – 12 %.

#### ***Апробация работы***

Основные результаты работы докладывались на всероссийских и международных конференциях: XX Менделеевском съезде по общей и прикладной химии (Екатеринбург, 2016 г.); Международной научно-технической конференции «СвердНИИхиммашу-70» (Екатеринбург, 2012 г.); Всероссийской междисциплинарной молодежной научной конференции «IV информационная школа молодого ученого» (Екатеринбург, 2014 г.); VI Научном семинаре «Моделирование технологий ядерного топливного цикла» (Снежинск, 2017 г.).

#### ***Публикации***

По результатам исследования опубликовано 11 научных работ, в том числе: 2 статьи в журналах из перечня рецензируемых научных изданий, рекомендованных ВАК, патент 118878 РФ на полезную модель, 3 статьи в сборниках трудов и материалов и 2 тезиса докладов международных и всероссийских конференций, 2 статьи в научно-практическом журнале ПО «Маяк».

#### ***Личный вклад автора***

Автором лично разработаны вспомогательные математические модели и методики расчета; разработан экспериментальный стенд и методика исследований процессов струйного перемешивания; получены, обработаны и систематизированы экспериментальные данные; систематизированы и обработаны эксплуатационные

данные; получены, обработаны и систематизированы результаты численных исследований.

Постановка цели и задач исследования, анализ результатов экспериментальных и исследований и численного моделирования, разработка технических решений по повышению эффективности исследуемых процессов проведены совместно с научным руководителем доктором технических наук А. П. Хомяковым. Написание публикаций и подготовку к изданию проводили при участии указанных соавторов.

### ***Структура и объем диссертации***

Диссертация состоит из введения, шести глав, заключения, списка условных обозначений, списка литературы из 130 наименований и одного приложения. Работа изложена на 154 страницах, содержит 84 рисунка и 8 таблиц.

## **ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ**

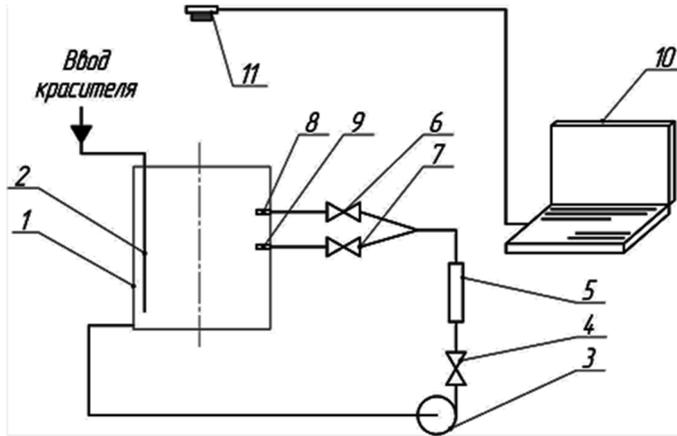
***Во введении*** обоснована актуальность работы, изложены основные сведения по степени разработанности темы исследований, определены цели и задачи исследований, показаны научная новизна и практическая значимость результатов работы.

***В первой главе*** представлен обзор современного состояния технологии и техники переработки ОЯТ и техники перемешивания. Показано, что ядерная и радиационная безопасность и качество плава  $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$  определяются эффективностью подготовки к упариванию азотнокислых растворов урана, поступающих из экстракционного цикла. Вопросы подготовки азотнокислых растворов урана к упариванию практически не освещены в отечественной и зарубежной научно-технической литературе. Кроме того, в открытых источниках отсутствуют сведения о принципах организации перемешивания в емкостях большого объема в целом и на радиохимических производствах в частности.

В результате анализа рассмотренных источников принято решение о проведении исследования процессов усреднения химического состава азотнокислых растворов урана методами вычислительной гидродинамики. Сформулирована цель и определены задачи исследований.

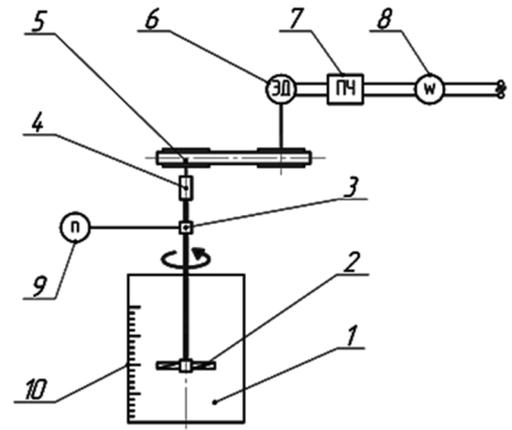
***Во второй главе*** диссертации представлены техника и методика экспериментальных исследований процессов струйного и механического перемешивания. Разработанная техника и методика позволяют получить экспериментальные данные, необходимые для проверки адекватности разрабатываемых и модернизируемых математических моделей, использующихся для численного моделирования исследуемых процессов.

Для исследования процессов струйного и механического перемешивания использовали установки, представленные на рисунках 1 и 2.



1 – емкость, 2 – линия подачи красителя, 3 – насос, 4 – вентиль, 5 – ротаметр, 6, 7 – шаровые краны, 8, 9 – сопла, 10 – персональный компьютер, 11 – цифровая камера

Рисунок 1 – Установка для исследования процессов струйного перемешивания



1 – емкость, 2 – мешалка, 3 – кулачковый патрон, 4 – зубчатая передача, 5 – ременная передача, 6 – электродвигатель, 7 – преобразователь частоты электрического тока, 8 – ваттметр, 9 – лазерный тахометр, 10 – миллиметровая шкала

Рисунок 2 – Установка для исследования процессов механического перемешивания

**Третья глава** диссертации посвящена модернизации существующей математической модели многокомпонентных течений и формулировке системы уравнений для численного расчета процессов усреднения химического состава азотнокислых растворов урана при их подготовке к упариванию.

Модернизация математической модели многокомпонентных течений [1 – 3] выполнена за счет дополнения базовой модели (1) моделями работы центробежных насосов систем струйного перемешивания с принудительным присвоением значений скорости течения через моделируемый насос (2) или заданием в области моделируемого насоса слагаемого-источника количества движения (3) и методикой расчета концентраций урана, плутония, азотной кислоты и массовой доли  $^{235}\text{U}$  (4). Модернизированная модель многокомпонентных течений имеет вид:

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial}{\partial t}(\rho_m) + \text{div}(\rho_m \vec{u}_m) = \dot{m} \\ \frac{\partial}{\partial t}(\rho_m u_{mi}) + \left[ (\rho_m u_{mj}) \frac{\partial u_{mi}}{\partial x_j} - \sum_{\varphi=1}^n (\alpha_{\varphi} \rho_{\varphi} u_{drj\varphi}) \frac{\partial u_{drj\varphi}}{\partial x_j} \right] = \\ = - \frac{dp}{dx_i} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left[ \mu_m \left( \frac{\partial u_{mj}}{\partial x_i} + \frac{\partial u_{mi}}{\partial x_j} - \frac{2}{3} \delta_{ij} \frac{\partial u_{mi}}{\partial x_i} \right) \right] + \rho_m g_i + S_{mi}; \\ \vec{u}_m = \frac{\sum_{\varphi=1}^n \alpha_{\varphi} \rho_{\varphi} \vec{u}_{\varphi}}{\rho_m} \\ \rho_m = \sum_{\varphi=1}^n \alpha_{\varphi} \rho_{\varphi} \\ \mu_m = \sum_{\varphi=1}^n \alpha_{\varphi} \mu_{\varphi} \\ u_{dr\varphi i} = u_{\varphi i} - u_{mi} \end{array} \right. \quad (1)$$

$$\begin{cases} p_H = \frac{\rho_3}{\rho} (aQ_H^2 + bQ_H + c) \\ \frac{\rho_3}{\rho} (au_H^2 A_H^2 + bu_H A_H + c) = \zeta_{\text{сети}} \frac{\rho u_H^2}{2} + \rho gh; \\ u_{mi} = u_H \end{cases} \quad (2)$$

$$\begin{cases} S_{mi} = \frac{\partial p_{Hi}}{\partial x_i} \\ \frac{\partial p_{Hi}}{\partial x_i} = \frac{\rho_3}{\rho_m l_H} (au_H^2 A_H^2 + bu_H A_H + c); \end{cases} \quad (3)$$

$$\begin{cases} C(U)_{\text{node}} = \sum_{\varphi=1}^n \alpha_{\varphi} C(U)_{\varphi \text{ node}} \\ C(\text{Pu})_{\text{node}} = \sum_{\varphi=1}^n \alpha_{\varphi} C(\text{Pu})_{\varphi \text{ node}} \\ C(\text{HNO}_3)_{\text{node}} = \sum_{\varphi=1}^n \alpha_{\varphi} C(\text{HNO}_3)_{\varphi \text{ node}} \\ C(^{235}\text{U})_{\text{node}} = \sum_{\varphi=1}^n \alpha_{\varphi} C(^{235}\text{U})_{\varphi \text{ node}} \end{cases} \quad (4)$$

Результаты проверки адекватности модернизированной модели многокомпонентных течений на основе экспериментальных данных (рисунки 3, 4) показывают, что расхождение экспериментальных и расчетных данных носит систематический характер и не превышает 12 %.

Приняты критерии оценки эффективности усреднения химического состава технологических растворов:

- неусредненность значений контролируемых параметров в объеме емкости;

$$\Delta X_{i_{\max}} = \max \left\{ \frac{|X_{i_{\text{avg}}} - X_{i_{\max}}|}{X_{i_{\text{avg}}}}, \frac{|X_{i_{\text{avg}}} - X_{i_{\min}}|}{X_{i_{\text{avg}}}} \right\}, \quad (5)$$

- время усреднения химического состава растворов;
- затраты мощности на перемешивание;
- количественные критерии  $v_{\text{avg} \pm 2,5\%}$  и  $v_{\text{avg} \pm 0,5\%}$ , показывающие долю раствора передающегося на упаривание с концентрациями контрольных компонентов, отличающимися от средних по емкости не более чем на  $\pm 2,5\%$  и  $\pm 0,5\%$  соответственно.

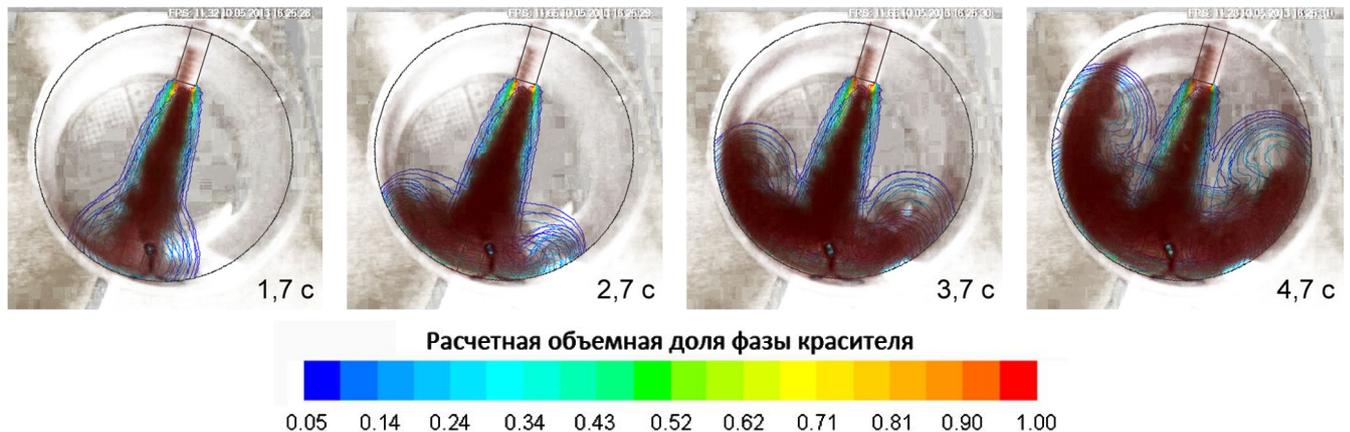


Рисунок 3 – Совмещение экспериментальных и расчетных картин перемешивания.

Время с начала перемешивания, с: а) 1,7; б) 2,7; в) 3,7; г) 4,7

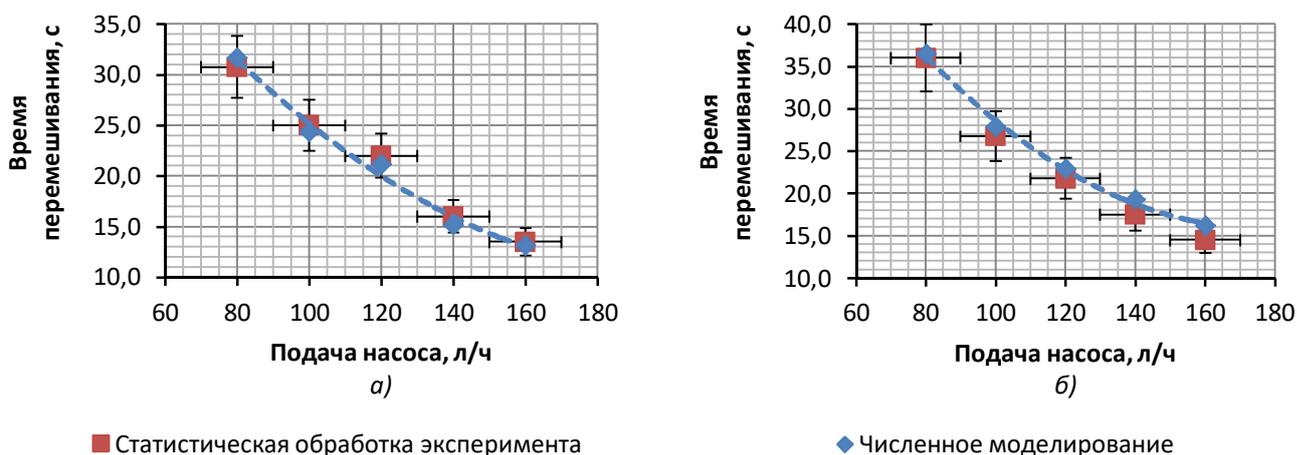


Рисунок 4 – Экспериментальные и расчетные зависимости времени перемешивания от подачи насоса. Перемешивание верхним соплом. Плотность рабочей среды, кг/м<sup>3</sup>: а) 1000, б) 1109

В четвертой главе приведены результаты исследований процессов усреднения химического состава азотнокислых растворов урана в емкостях приема с существующими системами струйного перемешивания (рисунок 5). Получены распределения концентраций урана, плутония, азотной кислоты и массовой доли <sup>235</sup>U в объеме емкости приема. Установлено, что причиной недостаточной эффективности процессов усреднения химического состава технологических растворов является формирование в емкости приема застойной зоны (рисунок 6), занимающей до 2/3 объема емкости.

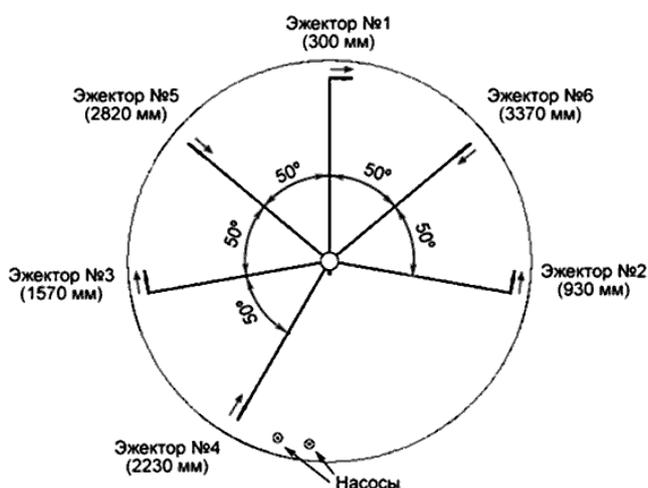


Рисунок 5 – Схема установки эжекторов в емкостях приема

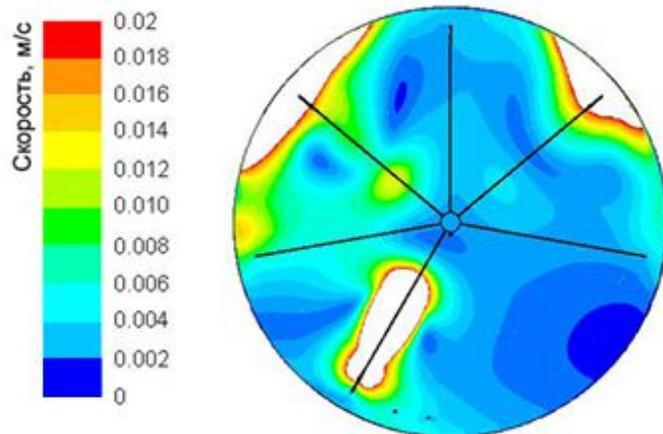


Рисунок 6 – Распределение скоростей в радиальном сечении емкости приема на уровне 930 мм от дна

Формирование застойной зоны приводит к существенному замедлению процессов выравнивания концентраций урана, плутония, азотной кислоты и массовой доли <sup>235</sup>U (рисунок 7). Установившиеся значения неусредненностей основных компонентов технологических растворов составляют: по урану – 1,7 %, по плутонию – 10,0 %, по азотной кислоте – 9,4 %, по <sup>235</sup>U – 2,0 %.

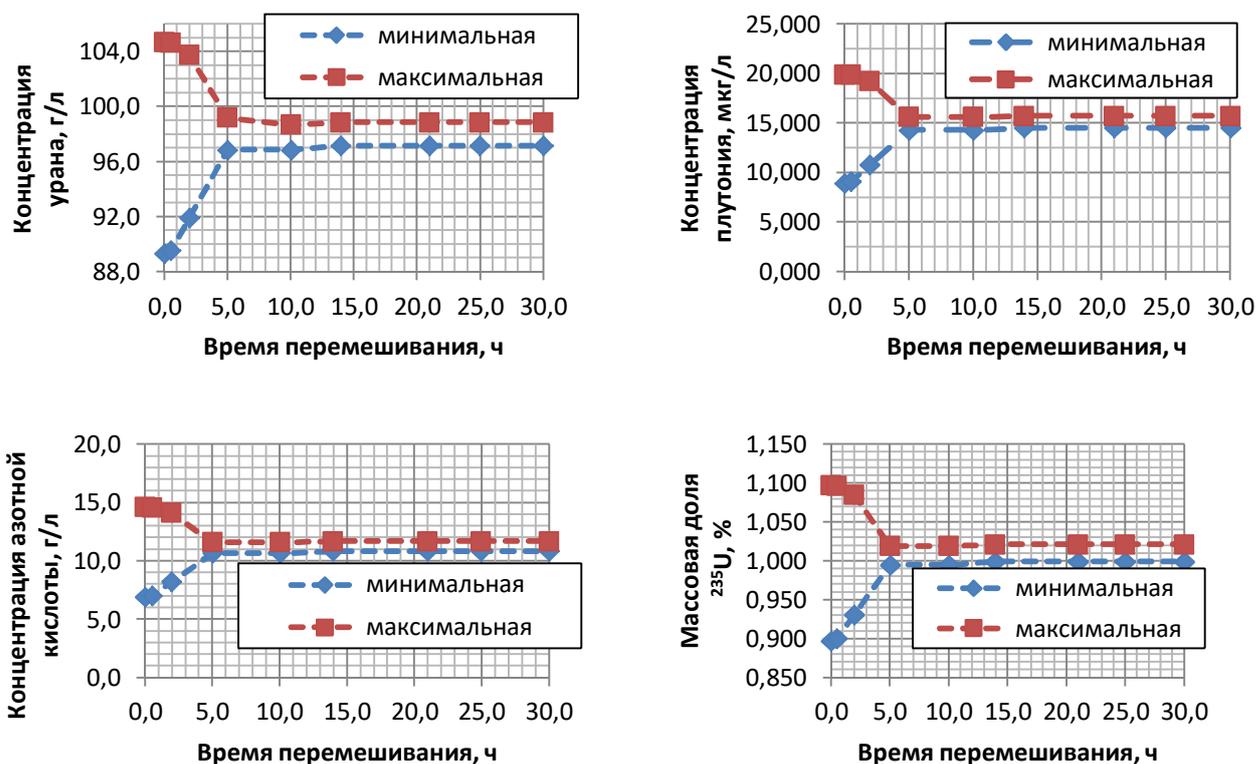


Рисунок 7 – Выравнивание концентраций урана, плутония, азотной кислоты и массовой доли  $^{235}\text{U}$  в емкости приема с существующей системой перемешивания

Показано, что существующие эжекторы системы струйного перемешивания имеют зауженные проходные сечения камер смешения, в результате чего их гидравлическое сопротивление составляет 686 кПа и погружные насосы систем струйного перемешивания работают с минимальной производительностью.

Общие затраты мощности на перемешивание составляют 12 кВт на обеспечение питания погружных насосов системы струйного перемешивания.

По количественному критерию  $v_{avg\pm 2,5\%}$  на упаривание выдается 99,9 % от общего объема раствора в емкости технологического раствора урана, усредненного по концентрации урана; 69,1% – по плутонию; 92,2 % – по азотной кислоте; 99,8 % – по массовой доле  $^{235}\text{U}$ . По количественному критерию  $v_{avg\pm 0,5\%}$  на упаривание выдается 74,5 % от общего объема раствора в емкости технологического раствора урана усредненного по концентрации урана; 65,7% – по плутонию; 68,7 % – по азотной кислоте; 74,3 % – по массовой доле  $^{235}\text{U}$ . Продолжительность усреднения химического состава азотнокислых растворов урана лимитируется продолжительностью усреднения концентраций азотной кислоты и плутония.

Методами регрессионного анализа получены аппроксимирующие уравнения, описывающие снижение максимальных неусредненностей концентраций урана, плутония, азотной кислоты и массовой доли  $^{235}\text{U}$  в емкостях с существующими системами перемешивания:

$$\Delta U_{max} = 0,016 + 0,068e^{-0,320t}, \quad (6)$$

$$\Delta Pu_{max} = 0,089 + 0,334e^{-0,307t}, \quad (7)$$

$$\Delta HNO_{3max} = 0,083 + 0,295e^{-0,358t}, \quad (8)$$

$$\Delta {}^{235}U_{max} = 0,017 + 0,085e^{-0,428t}. \quad (9)$$

Предложены способы интенсификации процессов усреднения химического состава азотнокислых растворов урана в емкостях приема с помощью дополнительного струйного и дополнительного механического перемешивания.

**В пятой главе** приведены результаты исследований процессов усреднения химического состава азотнокислых растворов урана в емкостях приема с дополнительным струйным перемешиванием (рисунки 8-10). Показано, что использование дополнительного струйного перемешивания приводит к ликвидации застойной зоны за счет формирования в объеме емкости тангенциального течения (рисунок 11).

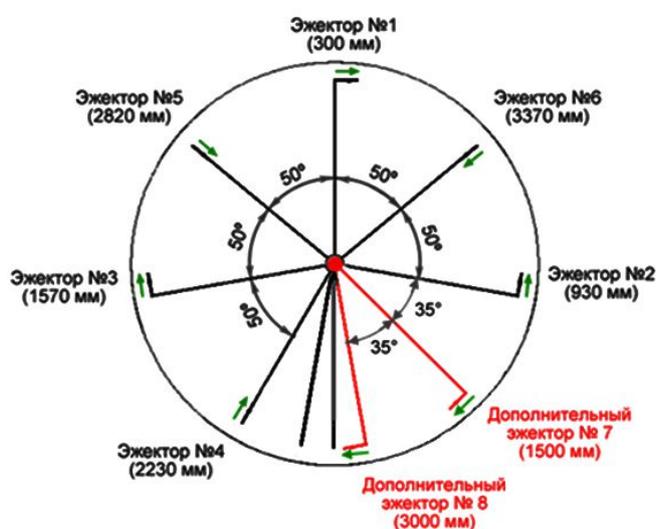


Рисунок 8 – Схема установки дополнительных эжекторов

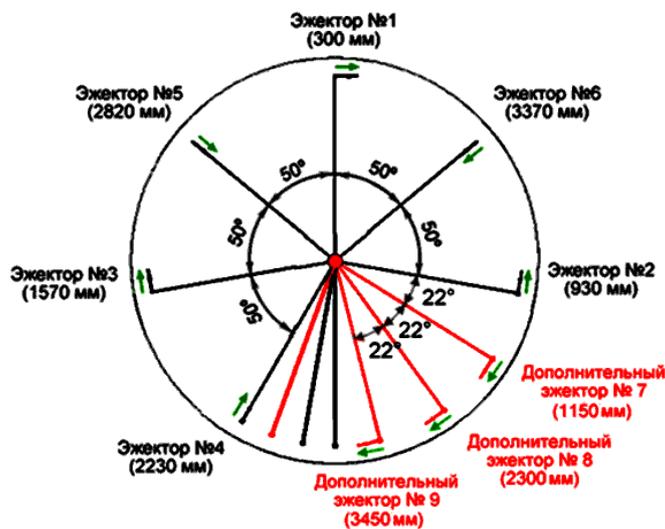
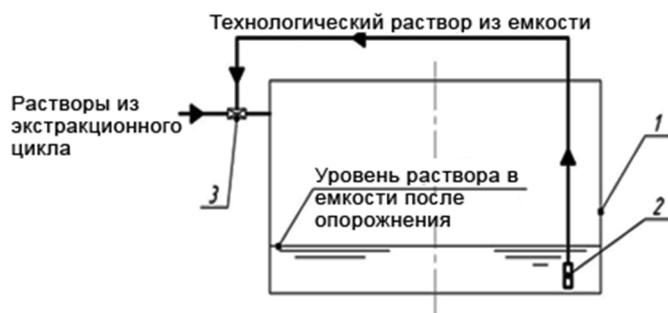


Рисунок 9 – Схема установки дополнительной системы «насос – эжекторы»



1 – емкость, 2 – погружной насос эжекторов №№ 1-3, 3 – статический смеситель

Рисунок 10 – Схема организации предварительного смешения в емкости при ее заполнении после неполного опорожнения

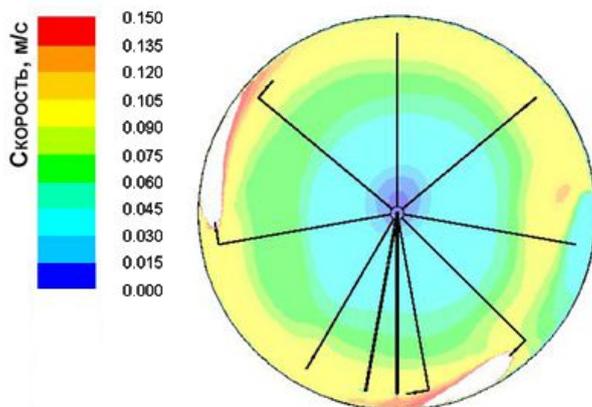


Рисунок 11 – Распределение скоростей в радиальном сечении емкости с дополнительным струйным перемешиванием на уровне 2250 мм от дна



Показано, что использование дополнительного струйного перемешивания позволит сократить время подготовки технологических растворов к упариванию до достижения значений технологических характеристик, соответствующих 25 ч подготовки в емкостях с существующими системами перемешивания, на 8–9 ч. Организация предварительного перемешивания, совмещенного с заполнением емкости после неполного опорожнения (см. рисунок 10), позволит сократить продолжительность подготовки технологических растворов к упариванию на 3–4 ч (таблица 1); применение эжекторов модернизированной конструкции – дополнительно на 0,5 – 1,5 ч.

Таблица 1 – Основные результаты исследований предварительного перемешивания, совмещенного с заполнением емкости после неполного опорожнения

Время заполнения и перемешивания, ч	Уровень раствора в емкости, мм	Средние значения			
		U, г/л	Pu, мкг/л	HNO <sub>3</sub> , г/л	<sup>235</sup> U, % масс. U
0,00	500	104,7	19,9	14,60	1,097
2,00	1129	99,2	15,9	11,83	1,025
5,00	2072	95,8	13,6	10,16	0,982
10,00	3644	92,5	11,2	8,52	0,939
12,00	4273	92,1	10,9	8,28	0,933

Установлено, что при сохранении продолжительности подготовки технологических растворов к упариванию 25 ч при использовании дополнительного струйного перемешивания неусредненность основных технологических параметров снижается: по урану (общ.) – с 1,7 до 0,5 %, по плутонию – 10,0 до 4,0 %; по азотной кислоте – с 9,4 до 3,6 %, по <sup>235</sup>U – с 2,0 до 1 %.

Показано, что применение дополнительного струйного перемешивания позволяет увеличить количество раствора усредненного химического состава, передающегося на получение плава уранил нитрата до 97 % по критерию  $avg_{\pm 2,5\%}$  и до 93 % по критерию  $avg_{\pm 0,5\%}$ .

Аппроксимирующие уравнения, описывающие снижение максимальной неусредненности концентраций урана, плутония, азотной кислоты и массовой доли <sup>235</sup>U в емкостях с дополнительным струйным перемешиванием при использовании эжекторов существующей конструкции, имеют вид:

$$\Delta U_{max} = 0,0075 + 0,0703e^{-0,898t}, \quad (10)$$

$$\Delta Pu_{max} = 0,053 + 0,327e^{-1,177t}, \quad (11)$$

$$\Delta HNO_{3max} = 0,0399 + 0,308e^{-1,177t}, \quad (12)$$

$$\Delta {}^{235}U_{max} = 0,0139 + 0,0859e^{-1,177t}, \quad (13)$$

при использовании модернизированных эжекторов:

$$\Delta U_{max} = 0,0053 + 0,0729e^{-0,937t}, \quad (14)$$

$$\Delta Pu_{max} = 0,042 + 0,339e^{-1,196t}, \quad (15)$$

$$\Delta HNO_{3max} = 0,0393 + 0,319e^{-1,196t}, \quad (16)$$

$$\Delta {}^{235}U_{max} = 0,0109 + 0,0889e^{-1,196t}. \quad (17)$$

В шестой главе приведены результаты исследований процессов усреднения химического состава азотнокислых растворов урана в емкостях приема с дополнительным механическим перемешиванием.

Разработана конструкция (рисунок 13) и получены основные технические характеристики двухъярусного осевого механического перемешивающего устройства, позволяющего производить подготовку к упариванию при неполном заполнении емкости. Определен оптимальный режим работы разработанного перемешивающего устройства – 500 – 600 об/мин. Дополнительные затраты мощности на механическое перемешивание составляют при этом 2 – 3 кВт. Для расчета мощности перемешивания разработанного механического перемешивающего устройства предложена методика. Полная мощность перемешивания, согласно предложенной методике, может быть рассчитана на основе результатов численного моделирования по уравнению:

$$N = \frac{2\pi n}{60 \cdot \eta_{\text{привода}}} \int_0^S \frac{\rho m_i u_{m_i}^2}{2} \sqrt{x_i^2 + y_i^2} dS. \quad (18)$$

Экспериментальная проверка адекватности методики расчета мощности перемешивания показала, что погрешность расчета по данной методике составляет не более 16 % (рисунок 14) и во всех рассмотренных случаях ниже погрешности традиционно применяющихся методик, основанных на методах теории подобия.

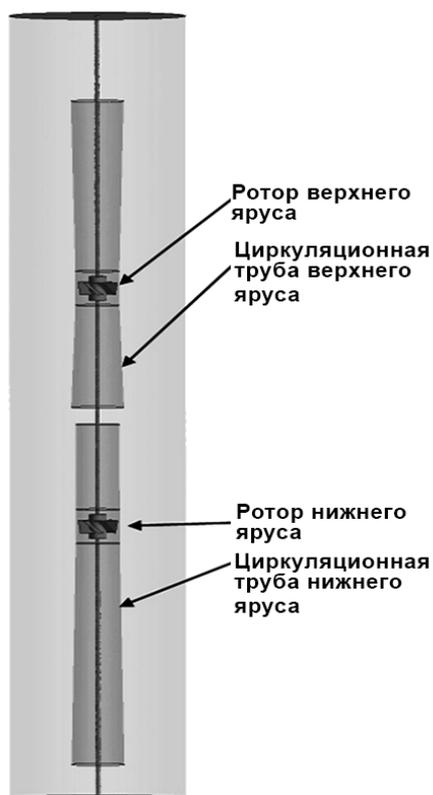


Рисунок 13 – Конструкция двухъярусного осевого механического перемешивающего устройства

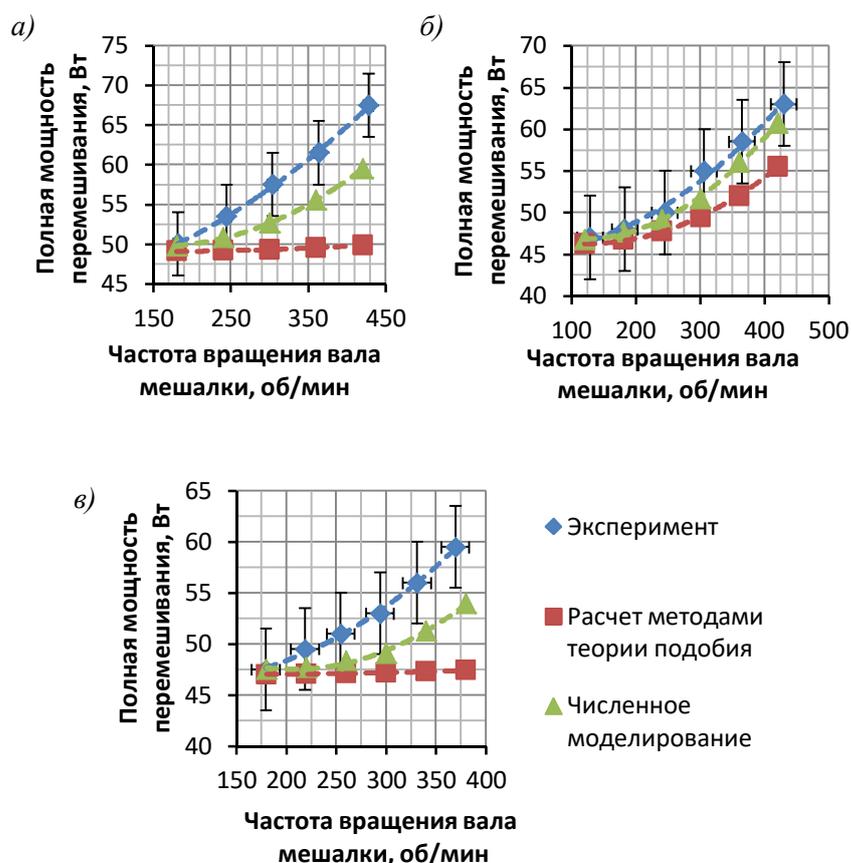


Рисунок 14 – Результаты проверки адекватности методики расчета мощности перемешивания. Мешалки: а) рамная мешалка; б) лопастная; в) пропеллерная

Получены распределения концентраций урана, плутония, азотной кислоты и массовой доли  $^{235}\text{U}$  в объеме емкости с дополнительным механическим перемешиванием. Установлено, что применение дополнительного механического перемешивания приводит к ликвидации застойной зоны в емкости приема за счет формирования устойчивых мезо-масштабных осевых потоков (рисунок 15). Состояние однородности концентраций, соответствующее 25 ч подготовки к упариванию в емкостях с существующими системами струйного перемешивания, при использовании дополнительного механического перемешивания достигается за 9 – 12 часов. Максимальная однородность химического состава технологических растворов достигается за 17 – 20 ч.

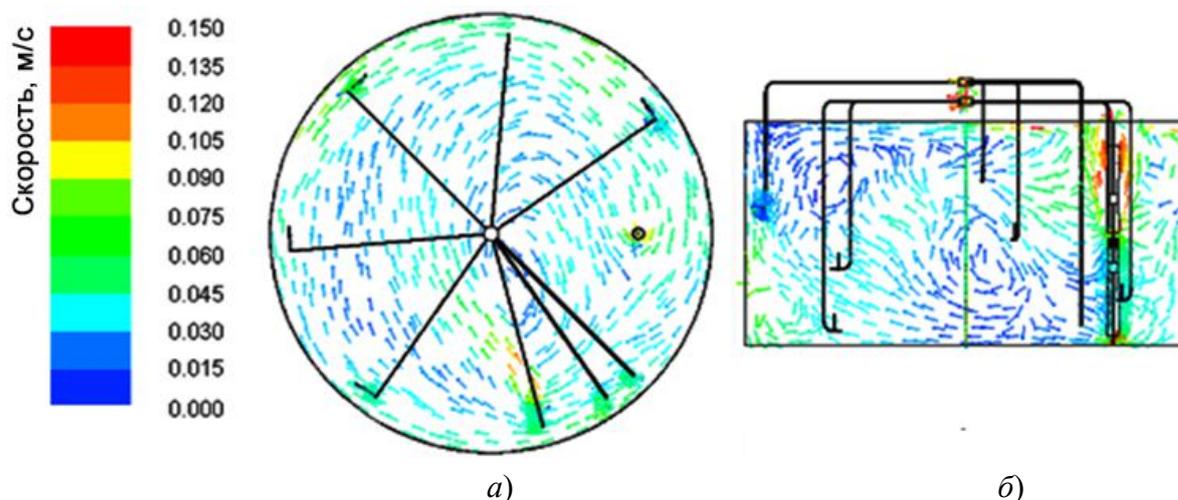


Рисунок 15 – Поле скоростей в емкости с дополнительным механическим перемешиванием: а) на расстоянии 2250 мм от дна емкости; в осевых сечениях: б) проходящем через вал мешалки

Неусредненность основных технологических параметров в растворах, передающихся на упаривание до плава, по сравнению с существующими системами перемешивания при использовании дополнительного механического перемешивания снижается: по урану – с 1,7 до 0,1 %, по плутонию – с 10,0 до 2,1 %; по азотной кислоте – с 9,4 до 2,0 %, по  $^{235}\text{U}$  – с 2,0 до 0,6 %. Доля раствора усредненного химического состава, передающегося на получение до плава нитрата уранила, увеличивается с 88 до 97 % по критерию  $\text{avg}_{\pm 2,5\%}$  и с 66 до 96 % по критерию  $\text{avg}_{\pm 0,5\%}$ . Зависимости максимальных и минимальных значений основных технологических характеристик азотнокислых растворов урана от времени перемешивания представлены на рисунке 16.

Аппроксимирующие уравнения, описывающие снижение максимальной неусредненности концентраций урана, плутония, азотной кислоты и массовой доли  $^{235}\text{U}$  в емкостях с дополнительным механическим перемешиванием, имеют вид:

$$\Delta U_{\max} = 0,0065 + 0,0786e^{-2,538t}, \quad (18)$$

$$\Delta Pu_{\max} = 0,0236 + 0,368e^{-1,380t}, \quad (19)$$

$$\Delta \text{HNO}_{3\max} = 0,0247 + 0,3431e^{-2,492t}, \quad (20)$$

$$\Delta ^{235}\text{U}_{\max} = 0,0071 + 0,0954e^{-2,525t}. \quad (21)$$

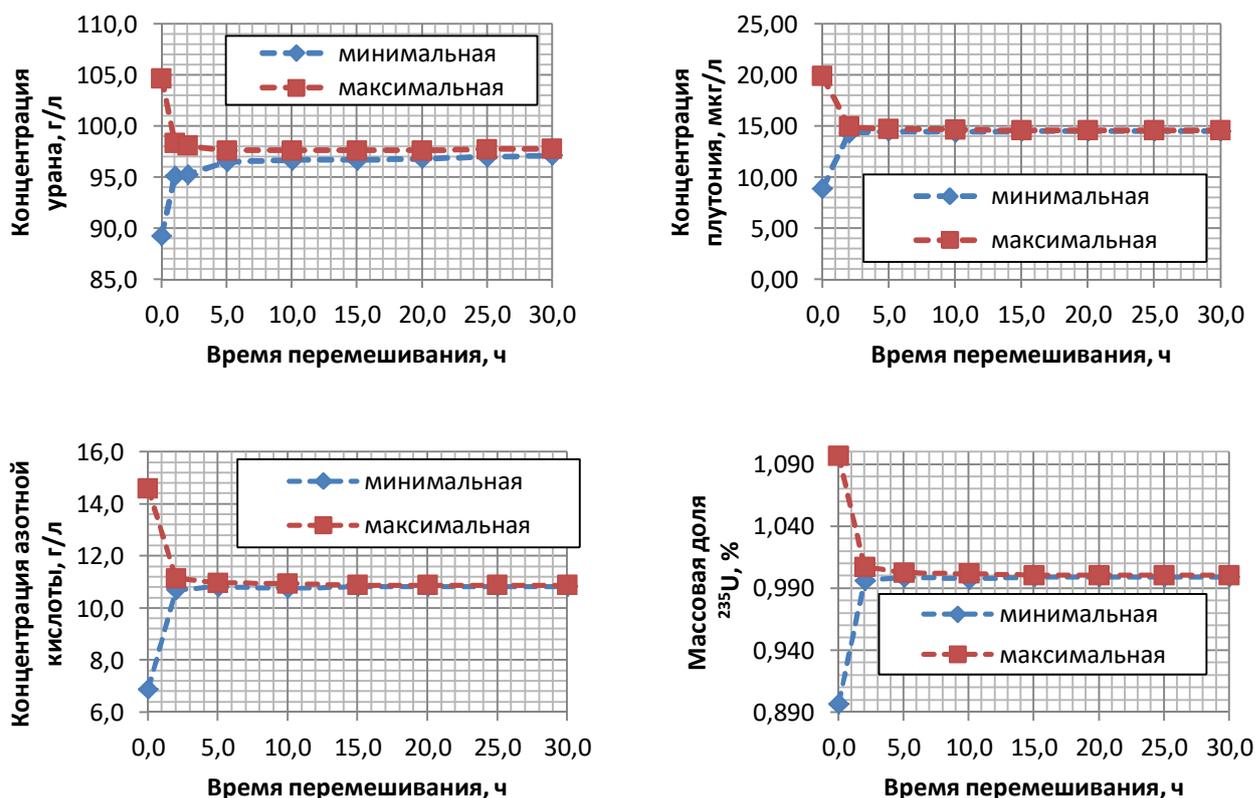


Рисунок 16 – Выравнивание концентраций урана, плутония, азотной кислоты и массовой доли  $^{235}\text{U}$  в емкости приема с дополнительным механическим перемешиванием

По совокупности значений критериев оценки эффективности усреднения химического состава технологических растворов предложенное техническое решение по применению дополнительного механического перемешивания является оптимальным из рассмотренных.

**В заключении** подведены итоги исследований и обозначены перспективы дальнейшей разработки темы.

**В приложении** представлен акт о внедрении результатов диссертационного исследования.

## ВЫВОДЫ

1. Модернизирована математическая модель многокомпонентных течений (модель смеси, mixture model). Модель многокомпонентных течений дополнена разработанными неявными моделями центробежных насосов и методикой расчета концентраций урана, плутония, азотной кислоты, массовой доли  $^{235}\text{U}$  на основе результатов численного моделирования методом конечных элементов.

2. На основании результатов экспериментальных исследований показано, что погрешность численного расчета по модернизированной математической модели составляет не более 8 – 12 %.

3. На основании результатов исследований процессов усреднения химического состава азотнокислых растворов урана в емкостях приема:

- установлены причины недостаточной эффективности усреднения химического состава азотнокислых растворов урана при их подготовке к упариванию;
- получены распределения основных технологических параметров азотнокислых растворов урана в объеме емкости приема и зависимости неусредненностей основных технологических параметров от времени перемешивания;
- установлено, что продолжительность подготовки технологических растворов к упариванию лимитируется временем усреднения концентраций азотной кислоты и плутония в объеме емкости приема.

4. Предложены способы и разработаны технические решения по повышению эффективности исследуемых процессов.

5. На основании результатов исследований процессов усреднения химического состава азотнокислых растворов урана в емкостях приема с дополнительным струйным перемешиванием:

- установлено, что применение дополнительного струйного перемешивания приводит к ликвидации застойной зоны за счет формирования в емкости тангенциальных потоков макромасштаба;
- получены распределения основных технологических параметров азотнокислых растворов урана в объеме емкости приема и зависимости неусредненностей основных технологических параметров от времени перемешивания в емкостях с дополнительным струйным перемешиванием;
- установлено, что применение дополнительного струйного перемешивания позволяет сократить продолжительность подготовки к упариванию на 8-9 ч или увеличить долю раствора усредненного химического состава по критерию  $v_{avg\pm 0,5\%}$  – с 68,3 до 92,3 %, по критерию  $v_{avg\pm 2,5\%}$  – с 91,6 до 96,7 %.

6. На основании результатов исследований процессов усреднения химического состава азотнокислых растворов урана в емкостях приема с дополнительным механическим перемешиванием:

- установлено, что применение дополнительного струйного перемешивания приводит к ликвидации застойной зоны за счет формирования в емкости тангенциальных потоков макромасштаба и осевых потоков мезомасштаба;
- получены распределения основных технологических параметров азотнокислых растворов урана в объеме емкости приема и зависимости неусредненностей основных технологических параметров от времени перемешивания в емкостях с дополнительным механическим перемешиванием;
- установлено, что применение дополнительного механического перемешивания позволяет сократить продолжительность подготовки к упариванию на 11 – 12 ч или

увеличить долю раствора усредненного химического по критерию  $v_{avg \pm 0,5\%}$  – с 65,7 до 96,6 %, по критерию  $v_{avg \pm 2,5\%}$  – с 91,6 до 97,7 %.

7. Разработаны регрессионные модели и графические материалы, описывающие зависимости доли раствора усредненного химического состава, минимальных и максимальных значений и неусредненностей концентраций урана, плутония, азотной кислоты и массовой доли  $^{235}\text{U}$  от продолжительности подготовки к упариванию. Разработанные стохастические модели и графические материалы могут быть использованы в инженерных расчетах в производственных условиях и при проектировании оборудования.

Дальнейшая интенсификация процессов усреднения химического состава азотнокислых растворов урана связана со снижением времени подготовки технологических растворов к упариванию, снижением затрат электроэнергии на перемешивание и повышением химической и радиохимической однородности технологических растворов.

## СПИСОК РАБОТ, ОПУБЛИКОВАННЫХ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

*Статьи, опубликованные в рецензируемых научных журналах и изданиях, определенных ВАК:*

1. Морданов С.В. Исследование гидродинамики перемешивания в емкостях приёма азотнокислых растворов урана / А. П. Хомяков, **С. В. Морданов**, В. А. Никулин, К.К. Корченкин // Вопросы радиационной безопасности. – 2014. – № 3 (75). – С. 32–45 (1,62 п.л. / 0,41 п.л.).

2. Морданов С.В. Применение статических смесителей в системах водоочистки ТЭЦ / **С. В. Морданов**, В. А. Никулин, С. С. Пецура, С. Н. Сыромятников // Водоочистка. – 2011. – № 10. – С. 46–50 (0,58 п.л. / 0,11 п.л.).

### *Патенты РФ:*

3. Статический смеситель : пат. 118878 РФ : МПК В01F 5/00 / Никулин В. А., Трофимов Л. И., Аксенов В. И., Пецура С. С., **Морданов С. В.**, Сыромятников С. Н., Гребенев Е. С., Бюлер А. В. ; заявитель и патентообладатель Никулин В. А., Бюлер А. В. – № 2012111399/05 ; заявл. 23.03.2012 ; опубл. 10.08.2012, Бюл. 22. – 6 с.

### *Прочие публикации:*

4. Морданов С.В. Интенсификация процессов усреднения химического состава и радиационной активности азотнокислых растворов урана / А. П. Хомяков, **С. В. Морданов**, В. А. Никулин, К. К. Корченкин, А. Б. Мелентьев // Ядерная и радиационная безопасность. – 2016. – № 3(81). – С. 3–17 (1,95 п.л. / 0,33 п.л.).

5. Mordanov S.V. Efficiency Improving of Chemical and Radiochemical Composition Averaging of Uranium Nitric Acid Solutions / A. P. Khomyakov, **S. V. Mordanov**, V. A. Nikulin, K. K. Korchenkin, A. B. Melentyev // XX Mendeleev Congress on general and applied chemistry. Five-volumes book. Vol. 3 : abstracts. – Ekaterinburg : Ural Branch of the Russian Academy of Sciences, 2016. – P. 296 (0,05 п.л. / 0,01 п.л.).

6. Морданов С.В. Повышение эффективности процессов усреднения химического состава азотнокислых растворов урана радиохимического завода ПО «Маяк» / А. П. Хомяков, С. В. Морданов, В. А. Никулин, К. К. Корченкин, А. Б. Мелентьев // Тезисы докладов VI научного семинара «Моделирование технологий ядерного топливного цикла». – Снежинск : РФЯЦ – ВНИИТФ, 2017. – С. 15–16 (0,05 п.л. / 0,01 п.л.).

7. Морданов С.В. Повышение эффективности усреднения химического состава азотнокислых растворов урана. Часть 1. Применение дополнительного струйного перемешивания / А. П. Хомяков, **С. В. Морданов**, В. А. Никулин, К. К. Корченкин, А. Б. Мелентьев // Вопросы радиационной безопасности. – 2015. – № 4 (80). – С. 27–37 (1,27 п.л. / 0,25 п.л.).

8. Морданов С.В. Повышение эффективности усреднения химического состава азотнокислых растворов урана. Часть 2. Применение дополнительного механического перемешивания / А. П. Хомяков, **С. В. Морданов**, В. А. Никулин, К. К. Корченкин, А. Б. Мелентьев // Вопросы радиационной безопасности. – 2015. – № 4 (80). – С. 38–45 (0,92 п.л. / 0,18 п.л.).

9. Морданов С.В. Гидродинамика перемешивания в емкости приема азотнокислых растворов урана / А. П. Хомяков, **С. В. Морданов**, В. А. Никулин, С. Н. Сыромятников, С. С. Пещура, Е. С. Гребенев // Сборник докладов Международной конференции «70 лет Свердловского химического машиностроения». – Екатеринбург : Свердловский химический машиностроительный институт, 2012. – С. 248–259 (1,38 п.л. / 0,23 п.л.).

10. Морданов С.В. Методика определения полезной мощности привода механического перемешивающего устройства / **С. В. Морданов**, С. Н. Сыромятников, А. П. Хомяков // Сборник научных трудов «Информационная школа молодого ученого». – Екатеринбург : УрО РАН, 2011. – С. 228–237 (1,15 п.л. / 0,39 п.л.).

11. Морданов С.В. Экспериментальная проверка адекватности численной модели струйного перемешивания / **С. В. Морданов**, А. П. Хомяков, В. А. Никулин // Сборник докладов IV Всероссийской междисциплинарной конференции «IV Информационная школа молодого ученого». – Екатеринбург : ЦНБ УрО РАН, 2011. – С. 251–261 (1,27 п.л. / 0,42 п.л.).

## Список цитируемой литературы

1. Manninen M. On the Mixture Model for Multiphase Flow / M. Manninen, V. Taivassalo. – Espoo : Technical Research Center of Finland, VTT Publications, 1996. – 67 p.
2. Jacobsen H. A. Chemical Reactor Modeling: Multiphase Reactive Flows / H. A. Jacobsen. – Berlin : Springer, 2008. – 1244 p.
3. Marshall E. M. Computational Fluid Mixing / E. M. Marshall, A. Bakker. – Lebanon : Fluent Inc, 2003. – 154 p.

## Список условных обозначений

### *Физические величины*

$A$	-	площадь сечения, $\text{м}^2$ ;
$C$	-	концентрация, г/л, мкг/л; массовая доля, г/г;
$g$	-	ускорение силы тяжести, $\text{м}/\text{с}^2$ ;
$\dot{m}$	-	массовый поток, $\text{кг}/(\text{м}^3 \cdot \text{с})$ ;
$M^*$	-	удельный крутящий момент, $\text{Н} \cdot \text{м}/\text{м}^2$ ;
$N$	-	мощность, Вт;
$n$	-	количество компонентов смеси (модельных фаз); частота вращения вала мешалки, об/мин, рад/с, об/с;
$n_n$	-	количество контрольных точек в объеме перемешивания;
$p$	-	давление, Па; напор, Па;
$Q$	-	объемный расход, $\text{м}^3/\text{с}$ , $\text{м}^3/\text{ч}$ ;
$r$	-	плечо момента, м;
$S$	-	поверхность, $\text{м}^2$ ;
$S_m$	-	источник количества движения, $\text{Н}/\text{м}^3$ ;
$t$	-	время, с, ч;
$u$	-	скорость течения, мгновенная скорость, м/с;
$x$	-	координата, м;
$X$	-	контролируемый количественный параметр раствора;
$\alpha$	-	объемная доля компонента смеси (модельной фазы);
$\delta_{ij}$	-	метрический тензор в декартовых координатах;
$\zeta$	-	коэффициент гидравлического сопротивления;
$\eta$	-	коэффициент полезного действия;
$\mu$	-	вязкость, $\text{Па} \cdot \text{с}$ ;
$\rho$	-	плотность, $\text{кг}/\text{м}^3$ ;
$\omega$	-	угловая скорость вращения вала мешалки, рад/с.

### ***Индексы***

- avg* - индекс, соответствующий средним значениям физических величин в объеме перемешивания;
- dr* - индекс дрейфовых скоростей;
- i* - индекс контрольной точки объема перемешивания; индекс суммирования; индекс продольного направления течения;
- j* - индекс поперечного направления течения;
- m* - индекс величин, относящихся к смеси;
- max* - индекс, соответствующий максимальным значениям физических величин в объеме перемешивания;
- min* - индекс, соответствующий минимальным значениям физических величин в объеме перемешивания;
- node* - индекс узла расчетной сетки;
- $\varphi$  - индекс величин, относящихся к компоненту смеси (модельной фазе);
- н - величины, относящиеся к насосам;
- привода - величины, относящиеся к приводу мешалки;
- сети - величины, относящиеся к сети насоса.

### ***Модельные константы***

- a, b, c* - параметры уравнения, аппроксимирующего характеристику центробежного насоса;
- $l_n$  - длина зоны модельного насоса, м;
- $\rho_\varepsilon$  - плотность жидкости, на которой была получена характеристика моделируемого насоса, кг/м<sup>3</sup>.