

ВЫВОДЫ

1. Опробована возможность использования EXAFS-спектроскопии для изучения механизма хемосорбции фторидов 3d-переходных металлов на поверхности металлов на примере железа и циркония.
2. Осуществлено извлечение структурных характеристик изучаемого образца методом EXAFS на основании экспериментальных спектров по-

глощения атома железа, находящегося на поверхности циркониевой подложки, с целью установления структурных характеристик и химической формы, в которой находятся атомы железа.

3. Показано, для уточнения механизма сорбционной очистки ZrF_4 на активных насадках необходимо дальнейшее изучение процесса очистки от примесей с кинетических методов исследования.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ожерельев О.А., Федин А.С. Физико-химическая модель сублимационной очистки фторидов Zr, Hf, Ti от примесей 3d-переходных металлов её приложения. — Северск: Изд-во СГТИ, 2004. — 120 с.
2. Ожерельев О.А. Сублимационная очистка фторидов циркония, гафния, титана от примесей 3d-переходных металлов. — Новосибирск: Наука, 2005. — 125 с.
3. Ozhereliev O.A., Kochubey D.I., Fedin A.S. Chemical-technological model of purification of zirconium and hafnium tetrafluorides //

Advanced inorganic fluorides: Proc. of ISIF-2008. — 01–06 Sept., 2008. — Vladivostok, 2008. — P. 110–113.

4. Кочубей Д.И., Бабанов Ю.А., Замараев К.И. и др. Рентгеноспектральный метод изучения структуры аморфных тел: EXAFS-спектроскопия. — Новосибирск: Наука, 1988. — 306 с.
5. Кочубей Д.И. EXAFS-спектроскопия катализаторов. — Новосибирск: Наука, 1992. — 145 с.

Поступила 26.02.2009 г.

УДК 66.012

МАТЕМАТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ ПРОИЗВОДСТВА ГЕКСАФТОРИДА УРАНА

С.А. Байдали, В.Ф. Дядик, А.С. Юрков

Томский политехнический университет
E-mail: basa@tpu.ru

Разработана математическая модель производства UF_6 , учитывающая транспортировку полупродуктов посредством импульсного пневмотранспорта, инерционность и запаздывание всех технологических переменных. Проверена и доказана адекватность разработанной модели.

Ключевые слова:

Система автоматизированного управления, математическая модель, производство гексафторида урана, узел непрерывной транспортировки.

Key words:

Automated control system, mathematical model, generation of uranium hexafluoride, continuous transport unit.

Введение

В 2008 г. начато строительство новых энергоблоков АЭС, что непосредственно требует увеличения количества производимого топлива и, соответственно, повышения производительности предприятий ядерно-топливного цикла, в том числе и сублиматного завода ОАО «Сибирский химический комбинат» (СХК).

В Российской Федерации существует только два предприятия осуществляющие производство гексафторида урана: ОАО «Ангарский электролизный химический комбинат» и ОАО «Сибирский химический комбинат». И только на сублиматном заводе СХК это производство является замкнутым посредством импульсного пневмотранспорта твердых продуктов, образующихся в аппарате улавливания (аппарат комбинированного типа — АКТ), в аппарат фторирования (пламенный реактор — ПР). На химическом заводе АЭХК реализован контейнерный способ перегрузки полупродуктов. В связи с этим задача синтеза системы автоматизированного управления комплексом аппаратов фторирования и улавливания производства гексафторида урана на СХК является уникальной для Российской Федерации.

Использование результатов исследований, проводимых за рубежом, не представляется возможным, поскольку технологии в этой отрасли имеют принципиальные отличия, и существует информационный барьер, обусловленный требованиями нераспространения ядерных технологий.

Известные на сегодняшний день системы управления, функционирующие на предприятиях ЯТЦ,

не обеспечивают эффективного автоматизированного управления и используются в основном как системы контроля технологических переменных и дистанционного управления. В рамках существующих систем ОАО СХК даже обеспечение работы локальных контуров управления имеет существенные трудности. В рамках создания системы автоматизированного управления комплексом аппаратов фторирования и улавливания необходима разработка математического описания производства с целью дальнейшего синтеза алгоритмов управления, которые позволят не только обеспечить локальное управление переменными, но и создать системы адаптивного и оптимального управления производства гексафторида урана (ПГУ) с высоким качеством управления.

Постановка задачи

ПГУ на сублиматном заводе ОАО «СХК» из тетрафторида урана и оксидов урана является сложным объектом автоматизации с дорогостоящим целевым продуктом и рядом особенностей, обусловленных быстротой протекания физико-химических процессов и агрессивностью технологических сред [1, 2].

При контейнерном способе перегрузки полупродуктов из АКТ в ПР цель управления узлом улавливания заключалась в стабилизации на заданном уровне содержания фтор-ионов в полупродуктах, выгружаемых из АКТ. При наличии перегрузки полупродуктов с помощью пневмотранспорта приоритетной стала задача согласования загрузок по оксидам урана в АКТ и полупродуктам в ПР, что привело к необходимости разработки нового алгоритма управления АКТ.

Исследование различных режимов работы комплекса аппаратов ПР-АКТ позволит оценить и рассчитать влияние и зависимость загрузки твердого продукта в АКТ на параметры состояния всей технологической цепочки ПГУ. Это, в свою очередь, позволит разработать алгоритм управления комплексом аппаратов и реализовать задачу макси-

мального улавливания ценных компонентов «хвостовых» газов при согласованной загрузке твердого сырья в аппараты ПР и АКТ с учетом пневмотранспорта в автоматизированном режиме.

Для определения поведения всего комплекса аппаратов ПГУ целесообразно использовать метод математического моделирования. Следовательно необходимо создать полную математическую модель ПГУ, учитывающую вещественные, энергетические, материальные и информационные потоки на уровне отдельных узлов, что позволит в полной мере исследовать влияние управляющих и возмущающих воздействий на производство.

Проведенная модернизация АСУ ТП ПГУ позволит реализовать разработанный на основе данной модели алгоритм управления комплексом аппаратов на современном программном и техническом обеспечении, увеличив точность и быстродействие отработки управляющих воздействий.

Разработка математической модели производства гексафторида урана

В производстве UF_6 можно выделить четыре основных стадии (рис. 1) [2]:

- синтез UF_6 в ПР;
- выделение твердого UF_6 в узле десублимации (УД);
- улавливание F_2 , HF и UF_6 из «хвостовых» технологических газов в АКТ;
- транспортировка полупродуктов посредством импульсного пневмотранспорта.

Процессы, происходящие в технологических аппаратах – ПР, УД, АКТ и узле непрерывной транспортировки, в связи со сложной структурой, большими объемами и наличием трубопроводов между аппаратами, обладают инерционностью и запаздыванием.

Основой модели ПГУ является статическая модель, разработанная на основе уравнений материального баланса по всем реагирующим компонентам:

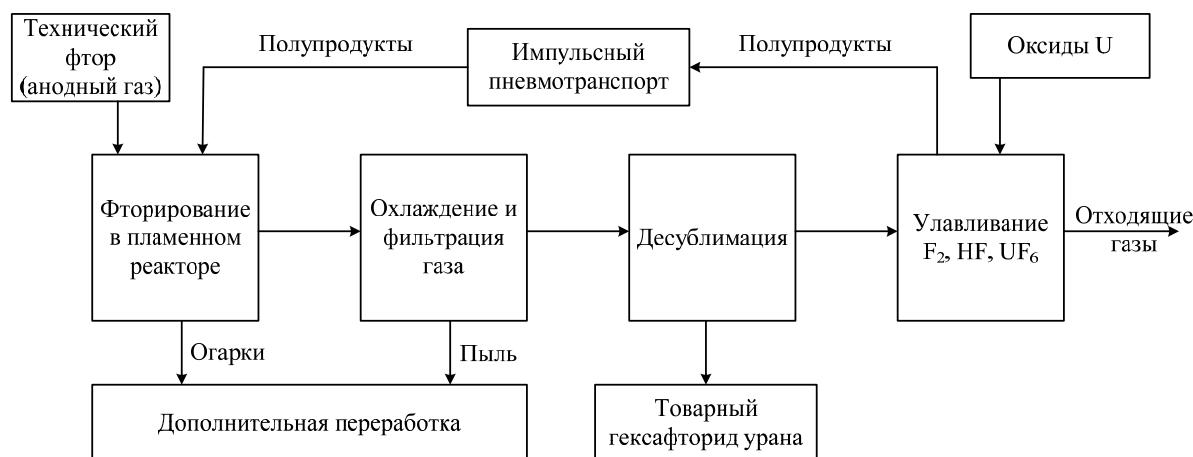


Рис. 1. Структурная схема производства гексафторида урана

$$\left\{ \begin{aligned} C &= \frac{0,94G_A + G_{\text{TB}}^{\text{ПР}}(1,336m - 0,235)}{0,94G_A + G_{\text{TB}}^{\text{ПР}}(1,005m - 0,053)}, \\ V_{\Gamma}^{\text{АКТ}} &= G_A + G_{\text{TB}}^{\text{ПР}}(1,068m - 0,129), \\ C_{10} &= (1 - C_2)G_A / V_{\Gamma}^{\text{АКТ}}, \\ C_{20} &= [0,94G_A + G_{\text{TB}}^{\text{ПР}}(1,336m - 0,235)] / V_{\Gamma}^{\text{АКТ}}, \\ C_{30} &= G_{\text{TB}}^{\text{ПР}}(0,078 - 0,064m)(1 - \beta) / V_{\Gamma}^{\text{АКТ}}, \\ P &= G_{\text{TB}}^{\text{ПР}}(0,078 - 0,064m)\beta, \\ G_{\text{U}_3\text{O}_8} &= 37,59V_{\Gamma}^{\text{АКТ}} \left(\frac{1}{8}\alpha_1 C_{10} + \frac{1}{3}\alpha_2 C_{20} + \frac{1}{2}\alpha_3 C_{30} \right), \\ G_{\text{ПН}} &= G_{\text{М}}(1 - K_{\text{П}}) - G_{\text{U}_3\text{O}_8} + G^{\text{UF}_4} + G^{\text{UO}_2\text{F}_2}, \\ G_{\text{F}^-} &= G_{\text{F}^-}^{\text{UF}_4} + G_{\text{F}^-}^{\text{UO}_2\text{F}_2} = 0,242G^{\text{UF}_4} + 0,123G^{\text{UO}_2\text{F}_2}, \\ m &= G_{\text{F}^-} / G_{\text{ПН}}, \\ K_{\text{изб}} &= G_{\text{М}} / G_{\text{U}_3\text{O}_8}, \\ \alpha_i &= \alpha_{\text{им}}(1 - e^{-2K_{\text{изб}}}), \end{aligned} \right. \quad (1)$$

где C – значение концентрации фтора после ПР, об. доли; G_A – расход анодного газа, м³/ч; m – содержание фтор-ионов в полупродуктах; $G_{\text{TB}}^{\text{ПР}}$ – массовый расход полупродуктов, загружаемых в ПР, кг/ч; C_{10} , C_{20} и C_{30} – объемные концентрации HF, F₂ и UF₆ на входе в АКТ, об. доли; β – суммарная степень конденсации всех трех ступеней узла десублимации; $M_{\text{U}_3\text{O}_8}$, M_{F_2} , M_{UF_4} , $M_{\text{UO}_2\text{F}_2}$ – молекулярные веса U₃O₈, F₂, UF₄ и UO₂F₂, г/моль; α_1 , α_2 , α_3 – степени улавливания HF, F₂ и UF₆ в АКТ; $K_{\text{П}}$ – коэффициент пылеуноса; G^{UF_4} , $G^{\text{UO}_2\text{F}_2}$ – массовые расходы получаемых в АКТ UF₄ и UO₂F₂, кг/ч; $G_{\text{М}}$ – массовый расход твердого сырья (оксидов урана) в АКТ, кг/ч.

Однако, статическая модель ПГУ (1) не учитывает перенос полупродуктов посредством пневмотранспорта, а также инерционность и запаздывание каждого аппарата ПГУ, оказывающие принципиальное влияние на построение системы автоматизированного управления технологическими процессами.

Для описания динамики ПГУ, учитывающей инерционности каждого из аппаратов, использовалось инерционное звено первого порядка с запаздыванием и с коэффициентом передачи равным единице:

$$W(s) = \frac{e^{-\tau s}}{T_0 s + 1},$$

где T_0 – постоянная времени инерционного звена, с; τ – время запаздывания, с; s – оператор Лапласа.

На основании проведенных исследований выяснили, что значение инерционности аппарата и величина запаздывания на участке от него до следующего узла составляют: для ПР: $T_{\text{ПР}}=55$ с и $\tau_{\text{ПР}}=237$ с; для УД: $T_{\text{УД}}=119$ с и $\tau_{\text{УД}}=381$ с; для АКТ: $T_{\text{АКТ}}=36,2$ с, $\tau_{\text{АКТ}}$ вычисляется в зависимости от величины порции перегружаемых полупродуктов, давления сжатого воздуха и других параметров.

Наличие пневмотранспорта обуславливает замкнутость ПГУ по загрузке твердого сырья в аппараты ПР и АКТ.

Производительность ПГУ по UF₆ определяется расходом анодного газа на входе ПР. UF₆ – продукт химической реакции F₂, содержащегося в анодном газе и U₃O₈ и UO₂F₂, содержащихся в полупродуктах, загружаемых в ПР. Следовательно, загрузка полупродуктов в ПР также может выступать в качестве нагрузки всего комплекса аппаратов ПГУ. Количество полупродуктов образующихся в АКТ в результате химических реакций F₂, HF и UF₆, содержащихся в «хвостовых» технологических газах поступающих на улавливание, с U₃O₈, загружаемой в АКТ, должно соответствовать массовому расходу полупродуктов, загружаемых в ПР. Значение расхода полупродуктов, загружаемых в ПР, определяется работой системы стабилизации концентрации F₂ на выходе ПР, представляющей собой одноконтурную систему с ПИД-регулятором. Расход твердого сырья в АКТ напрямую зависит от расхода полупродуктов в ПР. Таким образом, для создания модели ПГУ и дальнейшего ее использования для синтеза алгоритма автоматизированного управления АКТ необходимо включить в модель всего производства модель системы управления ПР.

Система управления ПР включает в себя изменение и фильтрацию значения расхода анодного газа на входе и концентрации фтора на выходе ПР, также она характеризуется конечной точностью дозирования твердых продуктов посредством объемного дозатора, каковым является шнек загрузки.

Расход анодного газа на входе ПР, являясь возмущающим воздействием, сильно зашумлен. Эти помехи заметно ухудшают качество управления ПР. Следовательно, для повышения качества управления, зашумленный сигнал, поступающий с расхода анодного газа, необходимо отфильтровать, выделив тем самым из него полезный сигнал.

Для программной реализации фильтрации сигнала расхода анодного газа, необходимо смоделировать сигнал, приближенный к реальному значению сигнала с производства. Для этого использовались статистические параметры: математическое ожидание и дисперсия значений расхода анодного газа с производства [3]. Для оценки адекватности смоделированного сигнала, были рассчитаны приведенные погрешности математического ожидания и дисперсии: $\delta_m=0,06$ %; $\delta_p=4,35$ %. На основании проведенного расчета смоделированный сигнал можно использовать в качестве исходных значений расхода анодного газа.

Фильтрация сигнала осуществлялась по широко используемой в инженерной практике формуле экспоненциального сглаживания [3, 4]:

$$U_k = \alpha X_k + (1 - \alpha)U_{k-1}, \quad (2)$$

где U_k , U_{k-1} – текущий и предыдущий результаты фильтрации; α – коэффициент сглаживания, диапазон его изменения: $0 \leq \alpha \leq 1$; X_k – текущий результат измерения.

Расчет коэффициента сглаживания α производился на основе анализа автокорреляционной функции сигнала. Для исследуемой выборки экспериментального сигнала анодного газа его значение α составило 0,17. Значение математического ожидания и дисперсии расхода реального сигнала с датчика на производстве может меняться, и сглаживание с постоянным коэффициентом α будет вносить погрешность. Для устранения этого недостатка на основе программной реализации метода экспоненциального сглаживания осуществлена адаптация коэффициента сглаживания α с заданным интервалом времени – 5 мин.

Для оценки качества фильтрации сигнала были рассчитаны приведенные значения среднеквадратичного отклонения сигнала от его среднего значения $\sigma_{\text{пр}}$ до фильтрации и после, которые составили соответственно 1,46 и 0,45 %. Таким образом, после фильтрации значение приведенного среднеквадратичного отклонения регулируемой величины от ее среднего значения $\sigma_{\text{пр}}$ уменьшилось в 3,12 раза.

Значения концентрации фтора, измеряемой масс-спектрометром, также подвержены влиянию различного рода помех, что вносит погрешность в сигнал управления загрузкой твердого сырья в ПР, рассчитываемый ПИД-регулятором. Для устранения влияния этих помех также был применен метод экспоненциального сглаживания (2). Значения среднеквадратичного отклонения регулируемой величины от ее среднего значения $\sigma_{\text{пр}}$ до фильтрации и после составили, соответственно, 4,89 и 2,24 %. Значение $\sigma_{\text{пр}}$ уменьшилось в 2,18 раз.

В обоих случаях значение $\sigma_{\text{пр}}$ после фильтрации меньше 2,5 %, что удовлетворяет требованиям, предъявляемым к качеству фильтрации. На рис. 2 представлены исходные и отфильтрованные сигналы расхода анодного газа и концентрации фтора.

Узел непрерывной транспортировки предназначен для передачи полупродуктов из-под АКТ в бункер накопитель ПР. Основой узла непрерывной транспортировки является установка, предназна-

ченная для передачи полупродукта методом импульсного пневмотранспорта (рис. 3).

Содержание фтор-ионов в полупродуктах, выгружаемых в бункеры-накопители, изменяется с каждой перегрузкой полупродуктов из бункеров АКТ в бункер ПР. Таким образом, полупродукты поступают в бункер ПР с определенным содержанием фтор-ионов.

Модель узла непрерывной транспортировки и его системы управления основана на соблюдении весового баланса загрузки твердых полупродуктов в ПР и выгрузки их из АКТ и заключается в следующем. Используя сигналы о срабатывании загрузочных устройств и показания весоизмерительных датчиков, определяется вес выгружаемых из АКТ полупродуктов – $W_{\text{в}}$. Одновременно с этим по показаниям весоизмерительных приборов определяется количество полупродуктов, загружаемых в ПР – $W_{\text{т}}$, за тот же промежуток времени. При этом, за время загрузки одного бункера накопителя должно соблюдаться условие весового баланса загружаемых в ПР и выгружаемых из АКТ полупродуктов.

На рис. 4 изображена работа модели пневмотранспорта в составе всей модели производства гексафторида урана, отражающая загрузку твердого сырья в бункеры-накопители АКТ и ПР.

Анализ рисунка показывает, что наполнение бункеров происходит последовательно, до тех пор, пока вес в одном из бункеров АКТ не достигнет заданного уровня наполнения 18 % шка. прибора, а выгрузка в бункер аппарата высокотемпературного фторирования происходит в момент, когда достигается минимальный уровень количества полупродуктов в нем. Допустимый вес полупродуктов, который могут вмещать бункеры накопители составляет 20 % шка. прибора.

На основании проведенных исследований и расчетов моделирование ПГУ в программной среде MATLAB [5] осуществлялось последовательно для:

- каждого аппарата в отдельности;

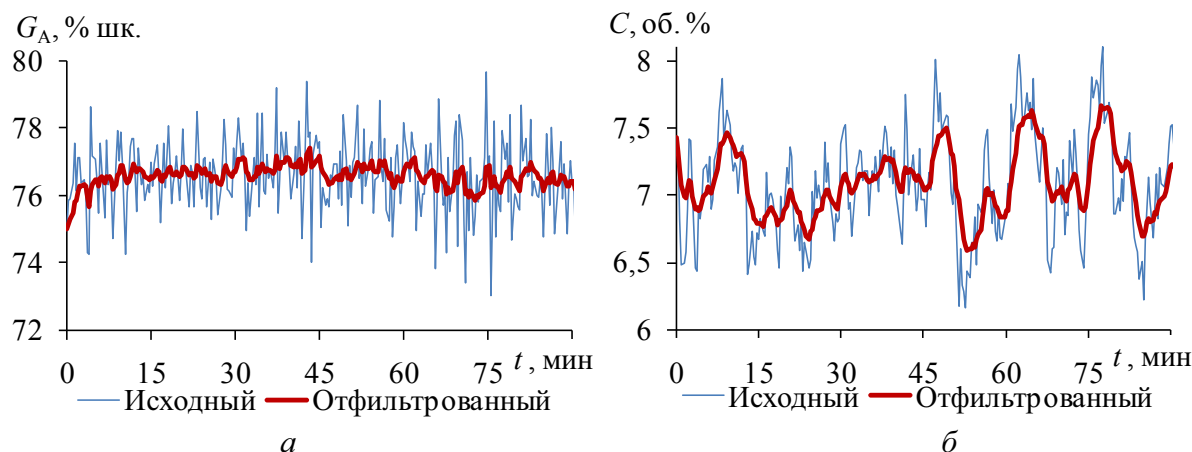


Рис. 2. Графики исходного и отфильтрованного сигналов: а) расхода анодного газа; б) концентрации фтора

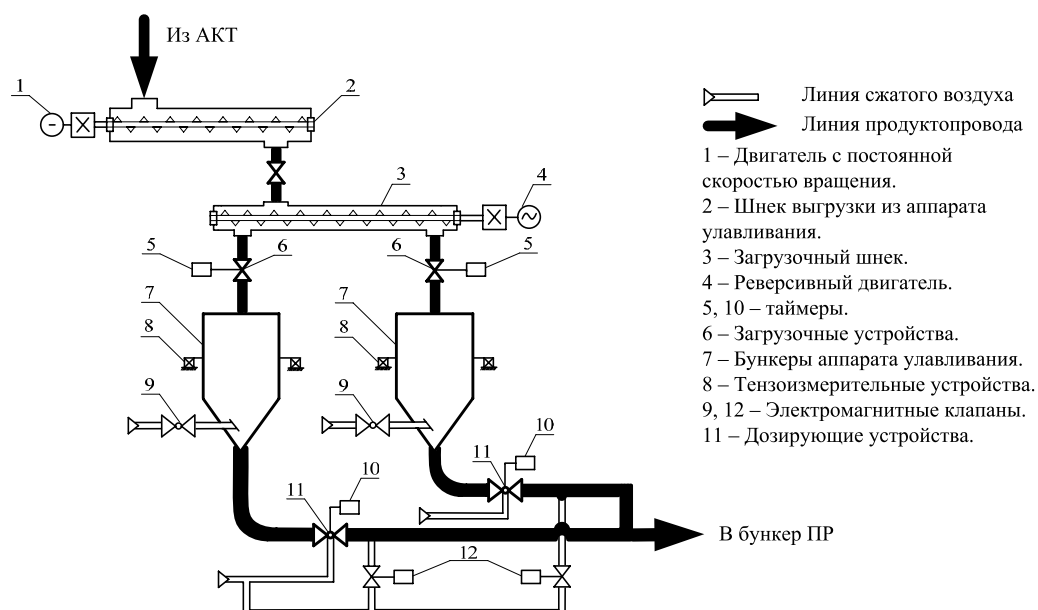


Рис. 3. Структурная схема пневмотранспорта

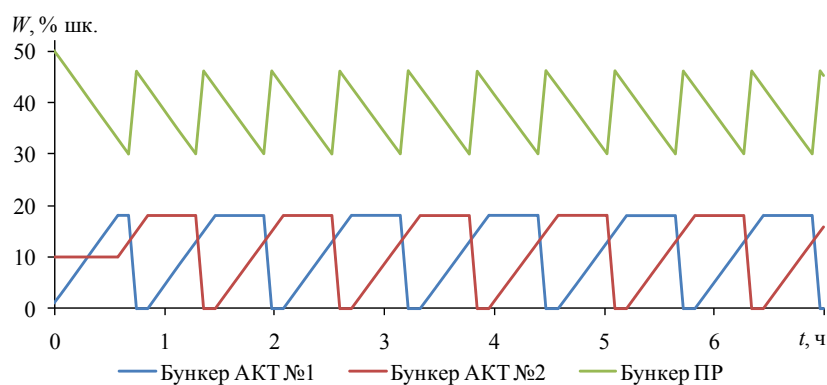


Рис. 4. Зависимости загрузки твердого сырья в бункеры аппарата улавливания и аппарат фторирования от времени



Рис. 5. Структурная схема модели производства гексафторида урана

- входных воздействий и их обработка (фильтрация);
- взаимосвязей между аппаратами.

Для математического моделирования технологических процессов в аппаратах использовали описание статической модели (1) с учетом введенных инерционности и запаздывания.

Результатом проведенных исследований стала модель ПГУ, учитывающая транспортировку полупродуктов в ПР посредством импульсного пневмотранспорта, инерционность и запаздывание всех технологических переменных, автоматическое переключение загрузки полупродуктов в бункеры АКТ, дискретность передачи полупродуктов посредством пневмотранспорта, а также сохранение нормированных значений содержания фтор-ионов в перегружаемых полупродуктах из бункеров АКТ в бункер ПР. Структурная схема модели производства гексафторида урана приведена на рис. 5.

Проверка адекватности модели

Адекватность модели проверялась сопоставлением значений концентрации фтора на выходе ПР, измеренных на реальном производстве и рассчитанных по модели. Для этого рассчитывалась дисперсия адекватности по формуле:

$$D_{ad} = \frac{\sum_{i=1}^n (C_{\Sigma}^i - C_M^i)^2}{n-1}.$$

Интервал времени τ , что соответствует n точкам, на котором рассчитывается значение дисперсии адекватности, определяется временем спада автокорреляционной функции, рассчитанной по экспериментальным данным.

На рис. 6 представлен график сравнения концентраций фтора, рассчитанных по модели и полученных с производства.

Адекватность модели ПР проверялась по критерию Фишера, сравнением двух дисперсий [6]:

$$F_p = \frac{D_{ad}}{D_0} < F_T, \quad (3)$$

где F_p и F_T – рассчитанное и табличное значения коэффициентов Фишера; D_{ad} и D_0 – дисперсия адекватности и опыта.

Рассчитав F_p по (3), получили $F_p=2,12$; для F_T табличное значение равно 3,84.

$$F_p < F_T = 2,12 < 3,84. \quad (4)$$

Поскольку критерий Фишера F_p удовлетворяет условию (4), можно сделать вывод об адекватности модели ПР. Таким образом, на основании проверки адекватности модели пламенного реактора можно говорить об адекватности математической модели производства гексафторида урана.

Завершением исследования модели являлось изучение переходных процессов замкнутой системы при ступенчатом изменении задающего и возмущающего воздействий. Графики, иллюстрирующие изменение концентрации фтора на выходе ПР при ступенчатом изменении заданного значения $C_{зад}$ с 6 до 9 об. % и значения расхода анодного газа G_A на +10 % от номинального (регламентного) значения, приведены на рис. 7.

Для определения показателей качества полученные графики были аппроксимированы в программной среде MATLAB с помощью пакета расширений Curve Fitting Toolbox [5].

Рассчитанные показатели качества составили: по задающему воздействию время регулирования – $t_p=800$ с, перерегулирование – $\sigma=12$ %; по возмущающему – $t_p=710$ с, динамический коэффициент регулирования – $Rd=0,81$.

Данные показатели качества удовлетворяют предъявляемой к разрабатываемой системе управ-

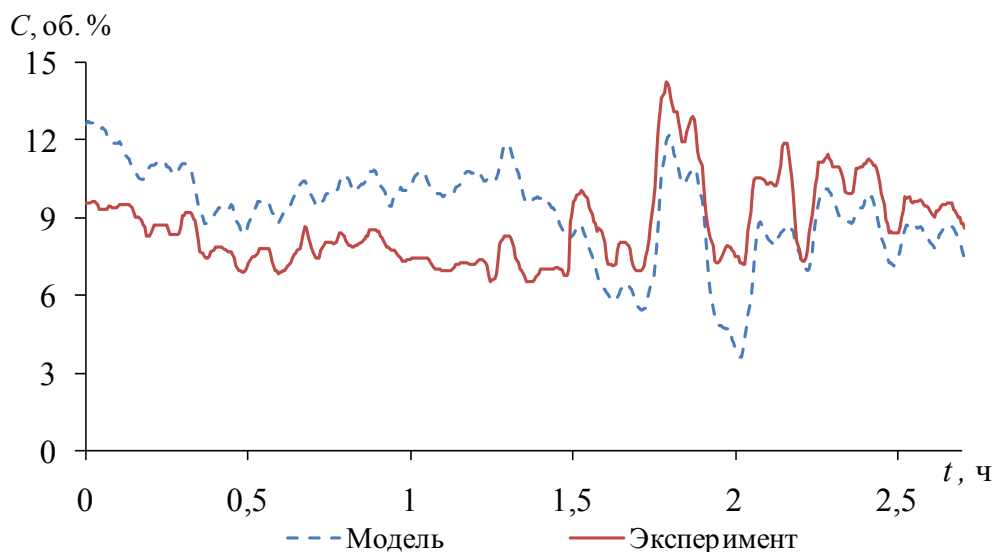


Рис. 6. График сравнения концентраций фтора, полученных по модели с экспериментальными данными

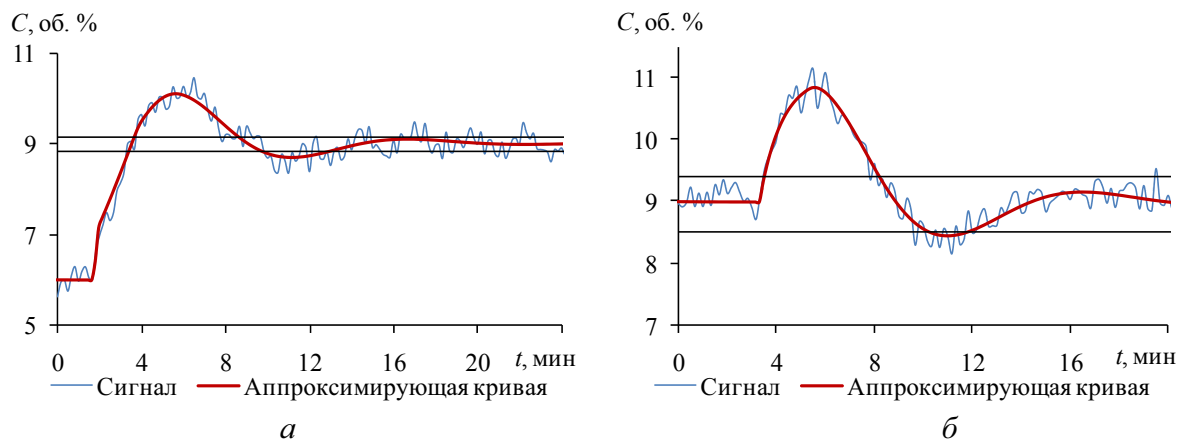


Рис. 7. Графики изменения концентрации фтора по воздействию: а) задающему; б) возмущающему

вления требованиям при реальных (подтвержденных расчетами модели) инерционностях аппаратов и трубопроводов ПГУ.

Выводы

В среде MATLAB разработана математическая модель производства гексафторида урана, учитывающая транспортировку полупродуктов посредством импульсного пневмотранспорта, а также инерционность и запаздывание контролируемых технологических переменных. Особенностью мо-

дели является учет системы импульсного пневмотранспорта, исполнительных и регулирующих органов, автоматического переключения загрузки полупродуктов в бункеры, дискретность их пневмотранспортной передачи, сохранение нормированных значений содержания фтор-ионов в полупродуктах, дискретность загрузки сырья в аппараты. Доказана адекватность разработанной математической модели.

Работа поддержана грантом ФЦП «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России» на 2009–2013.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Береза В.Н., Дядик В.Ф., Байдали С.А. Математическая модель аппарата комбинированного типа для улавливания ценных компонентов из хвостовых технологических газов производства гексафторида урана // Известия Томского политехнического университета. – 2007. – Т. 311. – № 3. – С. 55–60.
2. Тураев Н.С., Жерин И.И. Химия и технология урана. – М.: Издательский дом «Руда и металлы», 2006. – 396 с.
3. Вентцель Е.С., Овчаров Л.А. Теория случайных процессов и ее инженерные приложения. – М.: Наука, 1991. – 384 с.
4. Бендат Д., Пирсол А. Прикладной анализ случайных данных. – М.: Мир, 1989. – 540 с.
5. Дьяконов В., Круглов В. Математические пакеты расширения MATLAB. Специальный справочник. – СПб.: ПИТЕР, 2001. – 480 с.
6. Бондарь А.Г., Статюха Г.А. Планирование эксперимента в химической технологии. – Киев: Вища школа, 1976. – 183 с.

Поступила 09.04.2009 г.