

УДК 66.021.2.065.5

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ПРОЦЕССА ДЕСУБЛИМАЦИИ ОТ ДЛИТЕЛЬНОСТИ ЦИКЛА ЗАХОЛАЖИВАНИЯ

А.В. Вильнина, В.Ф. Дядик, С.А. Байдали, С.Н. Ливенцов

Томский политехнический университет

E-mail: anviv@mail.ru

Выявлены основные показатели работы десублиматоров и разработана программа промышленных испытаний. По результатам экспериментальных исследований определены количественные оценки влияния режима работы десублиматора на степень десублимации и насыпную массу гексафторида урана UF_6 . Выбран цикл захлаживания, при котором достигается оптимальное соотношение степени заполнения транспортной емкости и степени десублимации.

Ключевые слова:

Десублимация, цикл захлаживания, насыпная плотность, степень десублимации.

Key words:

Desublimation, cooldown cycle, apparent density, desublimation degree.

В настоящее время активно проводятся работы по решению проблем атомной отрасли с учетом современных экономических требований. В связи с построением и введением в работу новых АЭС возникает необходимость в увеличении количества UF_6 , который используется для получения топлива. Поэтому актуальной становится задача увеличения степени заполнения транспортных емкостей твердым UF_6 без снижения эффективности его улавливания из газовой смеси и без дополнительных вложений, что позволит снизить расходы, связанные с транспортировкой. Основным направлением при решении данной задачи является экспериментальное исследование влияния режима работы головного десублиматора с целью определения количественных оценок, характеризующих степень заполнения транспортных емкостей.

Для выделения UF_6 из газовой смеси в твердом виде используется метод поверхностной десублимации. Технологический газ поступает в десублиматор, находясь в нагретом состоянии. Проходя через десублиматор, смесь газов остывает, и появляются пересыщенные пары UF_6 . Давление и температура в аппарате способствуют тому, что согласно законам термодинамики процесс будет смещаться в сторону образования твердого UF_6 , и на поверхности трубки начнут выделяться его кристаллы [1, 2]. Поверхностью для осаждения служат вертикальные трубки, в которые подается хладагент. Для обеспечения сброса накопившегося количества твердого продукта с внешней поверхности трубок подача хладагента прекращается и вместо него подается теплоноситель.

Десублимация представляет собой сложный процесс, при котором, вследствие диффузии и теплопроводности одновременно протекают процессы массо- и теплообмена: охлаждение газа и перенос молекул UF_6 к охлажденной поверхности. Температура охлаждающей поверхности теплообмена T_{II} является мерой изменения парциального давления газообразной фазы UF_6 в обедняемом технологическом газе и, как следствие, мерой степени де-

сублимации для некоторого технологического аппарата [1].

Давление пара над твердым UF_6 может быть вычислено из уравнения [2]:

$$\ln P = -10,26646 - \frac{2678,406}{T_{II}} + 0,12342T_{II} - 0,000144291T_{II}^2.$$

Из закона Дальтона следует, что парциальное давление i -го газа в смеси является его мерой концентрации [3]. Следовательно, можно оценить изменение концентрации на выходе десублиматора от температуры охлаждающей поверхности, что характеризует предельную степень улавливания UF_6 из технологического газа (рис. 1).

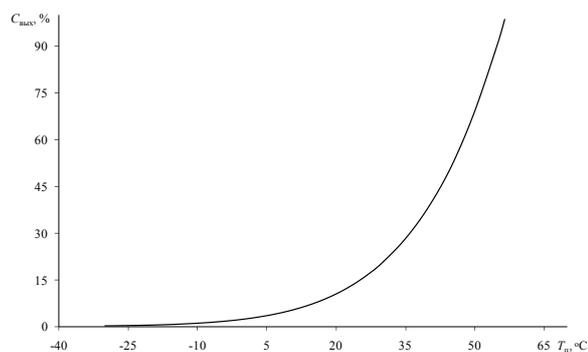


Рис. 1. График зависимости концентрации UF_6 на выходе десублиматора от температуры охлаждающей поверхности

Из полученной зависимости видно, что чем ниже температура охлаждающей поверхности, тем выше должна быть степень улавливания UF_6 . Но в действительности, при очень низких температурах, кроме UF_6 , также могут конденсироваться примеси, входящие в состав технологического газа (F_2 , HF).

В свою очередь, образование пористого слоя десублимата и рост его толщины из-за низкого коэффициента теплопроводности снижают интенсивность теплообмена между парогазовой фазой и охлаждаемой поверхностью [4]. Поэтому температура

на границе раздела фаз постепенно растет, понижая тем самым степень десублимации и соответственно увеличивая проскок UF₆ на выходе аппарата.

Анализ физико-химических свойств процесса десублимации выявил, что основными показателями работы десублиматоров является не только максимальное извлечение UF₆ из технологического газа, но и обеспечение максимального заполнения транспортных емкостей, что достигается за счет насыпной массы твердого продукта. О максимальной возможной величине степени десублимации можно судить по выходной концентрации, которая зависит от температуры охлаждающей поверхности и теплопроводности твердого слоя UF₆. На насыпную плотность, являющуюся характеристикой уплотняемости дисперсных сыпучих материалов, влияет продолжительность времени захлаживания.

Варьирование продолжительности цикла захлаживания позволяет изменять не только толщину слоя десублимата, но и условия протекания процесса. При уменьшении времени захлаживания степень десублимации увеличивается, так как меньшим значениям толщины слоя продукта соответствуют более низкие величины температуры и давления насыщенного пара на границе раздела фаз, которые определяют скорость массопередачи [4]. В то же время, если толщина слоя мала, то большая часть UF₆ возгонится в момент теплового сброса.

Для повышения насыпного веса продукта следует увеличивать циклы охлаждения. Обычно в начале цикла захлаживания образуется пористый кристаллический слой в виде инея, который затем уплотняется за счет диффундирования пара в слой и последующей его кристаллизации вплоть до образования монолитного слоя. Перенос массы вызван наличием градиента равновесных концентраций десублимируемого UF₆ [2]. С увеличением продолжительности цикла захлаживания наблюдается рост силы сцепления (адгезия) кристаллического слоя к охлаждаемой поверхности, что необходимо учитывать при выборе режимов работы десублиматора.

Таким образом, нормальное протекание процесса десублимации происходит при накоплении некоторой оптимальной толщины слоя десублимата за определенный цикл захлаживания, которой соответствует рациональное соотношение степени десублимации и насыпной плотности твердого UF₆.

Для определения количественных оценок влияния времени захлаживания на степень десублимации и насыпную плотность твердого UF₆ в транспортной ёмкости была разработана программа промышленных испытаний, которая заключалась в следующем:

1. Плавное увеличение продолжительности захлаживания с 10 до 60 мин.

2. Проведение прямых измерений массы емкостей заполненных твердым UF₆.
3. Оценка времени заполнения транспортных емкостей.
4. Прямое измерение уровня заполнения емкости.

Степень десублимации представляет собой отношение твёрдого UF₆, накопленного в транспортной ёмкости, к его количеству, поступающему в аппарат с входным газовым потоком за определённый интервал времени и определяется экспериментальным способом по следующему выражению:

$$\alpha = \frac{W}{G_m t},$$

где W – масса твердого UF₆, поступившего в транспортную ёмкость за время заполнения, кг; G_m – массовый расход UF₆, поступившего в десублиматор за время заполнения, кг/ч; t – время заполнения транспортной ёмкости, ч.

Массовый расход рассчитывается по формуле, полученной из материального баланса, составленного для пламенного реактора, в котором протекает реакция фторирования полупродуктов [5]:

$$G_m = \frac{G_F (C_F^{вх} - C_F^{вых})(1,244 - 0,895q_F)}{0,240 - 0,762q_F - C_F^{вых}(0,0536 - 0,432q_F)},$$

где G_A – расход технического фтора, м³/ч; $C_F^{вх}$ – концентрация фтора на входе пламенного реактора, об. доли; $C_F^{вых}$ – концентрация фтора в технологическом газе на выходе пламенного реактора, об. доли; q_F – массовое содержание фтор-ионов в полупродуктах, определяемое из материального баланса работы аппарата улавливания, в котором происходит процесс улавливания ценных компонентов из «хвостового» газа при взаимодействии с оксидами урана.

Насыпная плотность определяется экспериментальным способом по выражению:

$$\gamma = \frac{W}{V_T},$$

где V_T – объем твердого UF₆ в емкости, м³.

Объем твердого UF₆ V_T в емкости объемом 2,5 м³ зависит от уровня заполнения и определяется по формулам:

$$\begin{cases} V_T = 2,47; & L \leq 0,2; \\ V_T = 3,892 L^3 - 5,928 L^2 + 1,795 L + 2,319; & L > 0,2, \end{cases}$$

где L – уровень твердого UF₆ в емкости, м.

В таблице приведены данные для оценки зависимости прямых измеряемых показателей эффективности работы десублиматоров – массы UF₆ в емкости и времени заполнения емкости.

Графики на рис. 2 и 3 иллюстрируют зависимости средних значений с указанием доверительных интервалов, массы UF₆ в емкости и времени заполнения емкости от цикла захлаживания.

Таблица. Зависимость массы UF_6 в емкости и времени заполнения емкости от цикла захлаживания

Цикл, мин	Кол-во емкостей	Масса UF_6 в емкости, кг	Время заполнения, ч
10	21	5861±139	6,00±0,12
30	31	6599±60	6,96±0,09
40	3	6393±335	7,23±0,31
45	2	6738±709	7,80±2,81
50	5	6598±244	8,12±0,69
55	3	6612±556	7,80±1,72
60	4	6419±736	7,38±0,23

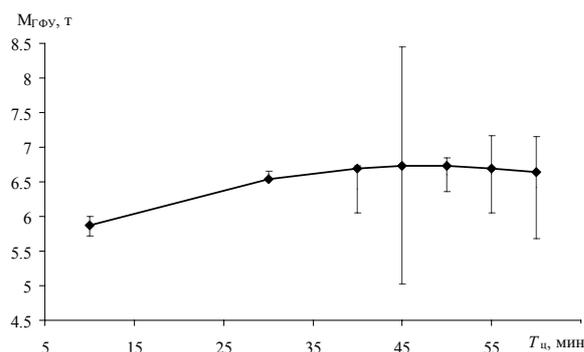


Рис. 2. Зависимость массы $M_{ГФУ}$ UF_6 в емкости от цикла захлаживания

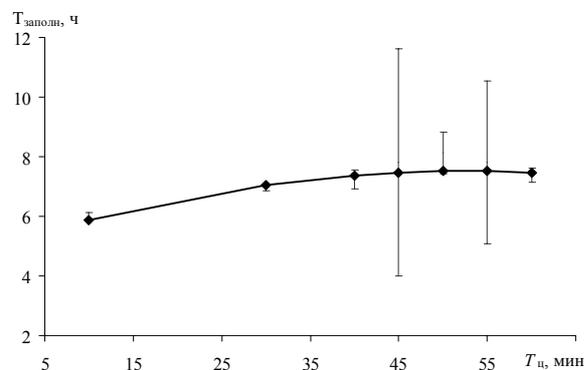


Рис. 3. Зависимость времени заполнения емкости $T_{заполн}$ от цикла захлаживания

Полученные по экспериментальным данным зависимости $M_{ГФУ}(T_{ц})$ и $T_{заполн}(T_{ц})$ можно аппроксимировать следующими выражениями:

$$M_{ГФУ}(T_{ц}) = 5365,6 + 57,2T_{ц} - 0,6T_{ц}^2,$$

$$T_{заполн}(T_{ц}) = 5,0319 + 0,0946T_{ц} - 9 \cdot 10^{-4}T_{ц}^2.$$

Согласно полученным результатам, при 10-минутном цикле среднее время заполнения емкости составило 6 ч, при 30-минутном цикле – 7 ч, при 50-минутном цикле – 8 ч. Т. е. увеличение времени заполнения емкости по отношению к 10-минутному циклу составляет 14,3 % для $T_{ц}=30$ мин и 28,6 % для $T_{ц}=50$ мин. Что соответствует пропорциональному уменьшению степени десублимации на этих циклах.

По отношению к начальному циклу захлаживания $T_{ц}=10$ мин степень заполнения транспортных емкостей повысилась на 12,6 % при цикле работы секций трубчатки $T_{ц}=30$ мин. Максимально достигнутое увеличение степени заполнения по отношению к степени заполнения на 10-минутном цикле составляет ≈ 15 % при $T_{ц}=40$ мин.

Выводы

1. Исследовано влияние режима работы десублиматора на степень десублимации и насыпную массу гексафторида урана.
2. Показано, что продолжительность стадии захлаживания десублиматора при производстве UF_6 определяется соотношением степени заполнения транспортной емкости к степени десублимации.
3. Выбран оптимальный цикл захлаживания, при котором достигается наиболее рациональное соотношение степени заполнения транспортной емкости и степени десублимации.
4. Произведена оценка влияния длительности цикла захлаживания на прямые показатели эффективности работы десублиматора: массу емкостей, заполненных твердым UF_6 , и время заполнения транспортных емкостей.

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

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Айнштейн В.Г. Общий курс процессов и аппаратов химической технологии. – М.: Физматкнига: Логос, 2006. – 911 с.
2. Горелик А.Г., Амитин А.В. Десублимация в химической промышленности. – М.: Химия, 1986. – 272 с.
3. Кафаров В.В. Системный анализ процессов химической технологии: Процессы массовой кристаллизации из растворов и газовой фазы. – М.: Наука, 1983. – 368 с.
4. Курин Н.П., Андреев Г.Г., Дядик В.Ф., Ливенцов С.Н., Маслов А.А., Онишук А.Н. АСУТП производств гексафторида

урана // Известия Томского политехнического университета. – 2002. – № 3 (Спецвыпуск). – С. 398–402.

5. Вильнина А.В., Ливенцов С.Н. Адаптивный алгоритм управления узлом десублимации гексафторида урана // Известия Томского политехнического университета. – 2008. – Т. 312. – № 5. – С. 133–136.

Поступила 10.09.2009 г.