

УДК 661.87.001.5

МАТЕМАТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ ПРОЦЕССА ДЕСУБЛИМАЦИИ ГЕКСАФТОРИДА УРАНА

А. А. Орлов, А. Ф. Цимбалюк, Р. В. Малюгин

(Национальный исследовательский Томский политехнический университет, г. Томск)

Представлена нестационарная математическая модель десублимации UF_6 в вертикальную емкость, учитывающая наличие конвекции и десублимации UF_6 на донной стенке, а также эллиптичность верхней и нижней стенок емкости. Представлены результаты расчета временных зависимостей линейной скорости десублимации, толщины образующегося слоя твердой фазы, распределения температуры в системе *стенка емкости – слой десублимата*, динамики заполнения цилиндрической емкости объемом $2,5 \text{ м}^3$ твердым UF_6 .

Ключевые слова: гексафторид урана, десублимация, математическая модель, тепло- и массоперенос, нестационарный процесс, газовая динамика, задача Стефана, подвижная сетка, алгоритм SIMPLE, итерационно-интерполяционный метод.

Введение

Для получения электроэнергии с помощью атомных станций в настоящее время используется уран, обогащенный по ^{235}U [1, 2]. При обогащении урана по легкому изотопу в качестве рабочего вещества используется газообразный гексафторид урана (UF_6); способы его получения на сублиматных производствах и очистки десублимацией от примесей подробно рассмотрены авторами в работе [3]. Полученный фторированием UF_6 в твердом состоянии отправляется в транспортных емкостях на разделительные производства, где в каскаде газовых центрифуг происходит его обогащение по ^{235}U . Фракция, обедненная легким изотопом урана, десублимируется в специальные емкости и отправляется на склад для длительного хранения. Обогащенная фракция очищается от легких и тяжелых примесей и отправляется на предприятия для перевода UF_6 в UO_2 и изготовления из него ТВЭЛов.

В настоящее время в связи с закрытием газодиффузионных разделительных предприятий в США и Франции произошло перераспределение мировых позиций стран на рынке обогащенного урана. Теперь его основными производителями являются Россия и консорциум URENCO (Англия, Германия, Голландия), использующие центробежную технологию обогащения. За ними следуют Япония и Китай. При этом Россия на 100 % снабжает обогащенным ураном свой внутренний рынок, а также поставляет его значительную долю на внешний рынок.

Правительство России приняло решение об увеличении доли атомной энергетики в общем энергобалансе страны с 16 до 25 %, что требует, помимо строительства новых АЭС, увеличения мощностей разделительных предприятий, производящих обогащенный уран. Кроме того, намечены крупные проекты по совместному строительству и эксплуатации АЭС в Беларуси, Иране, Словакии, Индии, Бангладеш, где поставки ядерного топлива будет осуществлять российская сторона.

В связи с этим возникла необходимость модернизации основного технологического оборудования разделительных предприятий по обогащению урана с целью замены отработавших свой ресурс газовых центрифуг на современные, более производительные.

Помимо замены газовых центрифуг, разделительным производствам предстоит решить следующие актуальные задачи: разработка и проектирование конденсационно-испарительных установок

(КИУ) повышенной производительности, оптимизация режимов работы КИУ и усовершенствование их конструкции [4].

Используемые в настоящее время технологические приемы и режимы работы КИУ основываются преимущественно на данных, полученных экспериментальным путем. В то же время возможности применения экспериментальных подходов ограничены, поскольку требуют проведения длительных и дорогостоящих экспериментов на действующем оборудовании или лабораторных установках [2, 5, 6].

Одним из перспективных путей решения описанных выше производственных задач является создание математических моделей процессов тепло- и массопереноса, протекающих в КИУ при сублимации и десублимации UF_6 .

В качестве объекта изучения выбран процесс десублимации, реализуемый на разделительных предприятиях ядерно-топливного цикла, который имеет определенную специфику (более низкая температура газообразного UF_6 и малое содержание примесей) по сравнению с десублимацией на сублиматных производствах [2, 3].

С учетом сказанного выше актуальной становится разработка математической модели процесса десублимации для разделительных производств, которая может быть использована при расчете и проектировании участка КИУ повышенной производительности, а также для исследования и оптимизации данного процесса.

Проведенный авторами обзор и анализ известных подходов к математическому моделированию процесса десублимации UF_6 [7] показал, что общими недостатками известных математических моделей является отсутствие учета:

- теплопереноса путем конвекции и диффузии газообразного UF_6 внутри емкости (газообразный UF_6 считается неподвижным);
- десублимации на торцевых стенках теплообменных емкостей;
- нестационарности процессов тепло- и массопереноса.

Целью данной работы являлось создание двумерной нестационарной математической модели десублимации UF_6 в вертикальную емкость, учитывающей наличие конвекции и десублимации UF_6 на донной стенке, а также эллиптичность верхней и нижней стенок емкости.

Описание модели

Рассматривалось течение газообразного UF_6 в вертикальной цилиндрической емкости (рис. 1). Емкость (1) помещалась в термостат (2), закреплялась в нем, предотвращая самопроизвольное всплытие, после чего термостат заполнялся насыщенным раствором $CaCl_2$ (потоки I, II), который захлаживался жидким азотом (3) до температуры $-20^\circ C$. В емкость через клапан, расположенный в верхней части емкости, подавался газообразный UF_6 (поток А), который в результате процессов тепло- и массопереноса десублимировался (переходил в твердое состояние).

При построении математической модели были приняты следующие допущения:

- 1) газообразный UF_6 не содержит примесей и считается политропным;
- 2) процесс десублимации происходит только на боковой и донной частях емкости (верхняя часть емкости с патрубком выступает из термостата, заполненного хладагентом);

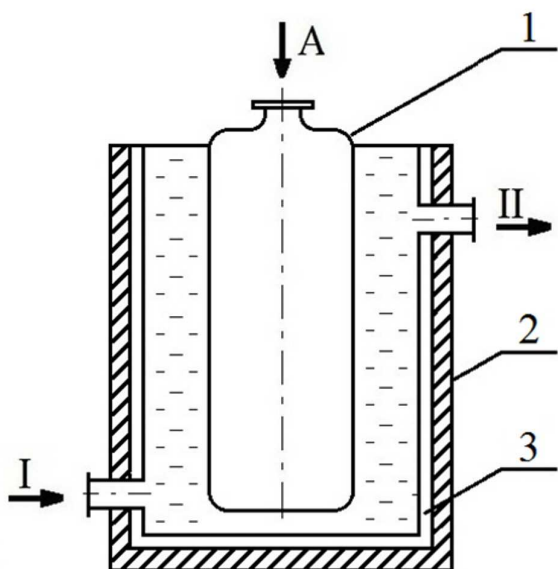


Рис. 1. Вертикальная емкость

- 3) температура внешней поверхности стенки емкости считается постоянной и равной температуре хладагента;
- 4) процесс десублимации газовой фазы определяется теплоотводом через стенку емкости и слой твердого UF₆, тепловые процессы внутри рассматриваемой системы могут быть описаны в рамках традиционной теории теплопроводности;
- 5) температура фазового перехода равна равновесной температуре и определяется по давлению над слоем десублимата; все тепло, выделяющееся при фазовом переходе, отводится хладагентом через стенку емкости и слой десублимата.

В связи с тем, что учитывался только градиент температуры, формируемый в направлении, перпендикулярном теплообменной поверхности, для моделирования тепловых процессов сначала использовалась одномерная модель. При этом двухслойная система *стенка—десублимат* разбивалась неравномерной сеткой (рис. 2) на N отрезков так, чтобы узлы сетки совпадали с местами контакта десублимата с теплообменной поверхностью.

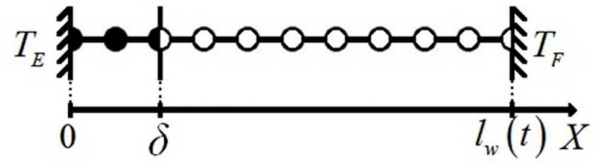


Рис. 2. Разностная сетка для моделирования тепловых процессов

Для стенки емкости решалось уравнение теплопроводности

$$\frac{\partial rT}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial n} \left(\chi \frac{\partial rT}{\partial n} \right),$$

где χ [м²/с] — коэффициент температуропроводности материала стенки; n [м] — нормальная координата, отсчитываемая от внешней поверхности емкости внутрь; T [К] — абсолютная температура; t [с] — время.

С течением времени толщина слоя твердого UF₆ увеличивалась, поэтому расчет температуры в нем производился с использованием подвижной системы координат, связанной с поверхностью раздела *стенка—десублимат* (решалась задача Стефана с подвижной границей фазового перехода):

$$\begin{aligned} (\rho c)_U l_w(t) \frac{\partial rT}{\partial t} + \eta (\rho c)_U v_w(t) \frac{\partial T}{\partial \eta} &= \frac{\partial}{\partial \eta} \left(\frac{\lambda_U r}{l_w(t)} \frac{\partial T}{\partial \eta} \right); \\ \eta &= \frac{n - \delta}{l_w(t)}, \quad 0 \leq \eta \leq 1; \\ \rho_U v_w(t) L &= \frac{\lambda_U r}{l_w(t)} \frac{\partial T}{\partial \eta}. \end{aligned}$$

Здесь и далее c [Дж/К] — удельная теплоемкость; λ [Дж/(м·с·К)] — коэффициент теплопроводности; δ [м] — толщина стенки емкости; $l_w(t)$ [м] — толщина слоя десублимата; $v_w(t)$ [м/с] — скорость десублимации; η — безразмерная координата, связанная с поверхностью раздела *стенка—десублимат*; L [Дж/кг] — теплота десублимации UF₆. Индекс U относится к твердому UF₆, S — к материалу стенки, E — к хладагенту.

На внешней поверхности емкости задавалось граничное условие 1-го рода (равенство температуры поверхности емкости температуре жидкого хладагента, в который она помещена):

$$T|_{\eta=0} = T_E.$$

На границе *стенка—десублимат* задавались условия сопряжения:

$$\lambda_S \frac{\partial T}{\partial n} \Big|_{n=\delta-0} = \lambda_U \frac{\partial T}{\partial \eta} \Big|_{n=\delta+0}; \quad T|_{n=\delta-0} = T|_{n=\delta+0}.$$

На внутренней поверхности — граничное условие 1-го рода (равенство температуры границы раздела фаз равновесной температуре фазового перехода, которая зависит от давления над поверхностью раздела фаз):

$$T|_{\eta=1} = T_F.$$

Для численного решения дифференциальных уравнений теплопроводности применялся хорошо зарекомендовавший себя для решения широкого круга задач тепло- и массообмена итерационно-интерполяционный метод [8].

Для определения скорости увеличения толщины твердого гексафторида урана использовалось условие Стефана. В ходе решения представленных уравнений определялось распределение температуры в системе *стенка—десублимат*, вычислялись тепловой поток и скорость десублимации гексафторида урана, после чего рассчитывалась толщина образовавшегося слоя твердой фазы.

Движение газообразного UF₆ считалось двумерным осесимметричным и описывалось системой интегральных уравнений сохранения массы, импульса и энергии:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \iint_S r \rho dz dr + \oint_{\Gamma} (\rho u dr - \rho v dz) &= 0; \\ \frac{d}{dt} \iint_S r \rho u dz dr + \oint_{\Gamma} r [(\rho u^2 + p) dr - \rho u v dz] &= 0; \\ \frac{d}{dt} \iint_S r \rho v dz dr + \oint_{\Gamma} [\rho u v dr - (\rho v^2 + p) dz] &= \iint_S p dz dr; \\ \frac{d}{dt} \iint_S E dz dr + \oint_{\Gamma} r [(E + p) u dr - (E + p) v dz] &= 0; \\ E = \rho \left(e + \frac{u^2 + v^2}{2} \right), \quad e = \frac{p}{\rho(\gamma - 1)}, \end{aligned} \quad (1)$$

где Γ — произвольный замкнутый контур, ограничивающий площадку S в плоскости (z, r) цилиндрической системы координат, начало которой помещено на оси симметрии во входном сечении; t [с] — время; p [Па] — давление; ρ [кг/м³] — плотность газа; e [Дж] — удельная внутренняя энергия UF₆; E [Дж] — полная энергия UF₆; γ — показатель адиабаты газа; u, v [м/с] — проекции вектора скорости на оси z, r соответственно.

Течение газа до входа в емкость считалось изэнтропическим, поэтому на входе в емкость задавались значения полной энтальпии и энтропии. С течением времени толщина слоя десублимата увеличивается, поэтому на границах области решения, соответствующих боковой и донной частям емкости, задавалось условие равенства нормальной к поверхности емкости скорости газа и скорости перемещения границы раздела фаз с учетом соответствующих потоков массы, импульса и энергии, отвечающих за десублимацию UF₆ на стенку. На границе, соответствующей верхней части емкости, принималось обычное условие непротекания, на оси симметрии вертикальной емкости — условие симметрии потока.

Считалось, что емкость охлаждена до температуры хладагента и имеет определенное давление, толщина слоя десублимата в начальный момент времени равна нулю. Таким образом, для системы уравнений (1) задавались начальное распределение давления и скорость движения UF₆ в емкости:

$$p = p_0; \quad u(0) = 0; \quad v(0) = 0; \quad l_w(0) = 0.$$

Режим течения газообразного UF₆ в рассматриваемой задаче является вязким и дозвуковым, со значениями числа Маха существенно меньше единицы.

Система уравнений (1) приводилась к безразмерному виду с помощью следующих соотношений:

$$\bar{p} = \frac{p}{\rho_* u_*^2}; \quad \bar{u} = \frac{u}{u_*}; \quad \bar{v} = \frac{v}{u_*}; \quad \bar{\rho} = \frac{\rho}{\rho_*}; \quad \bar{T} = \frac{T}{T_*},$$

где u_* [м/с] — характерная скорость газообразного UF_6 во входном сечении емкости; нижним индексом $*$ обозначаются гидродинамические параметры во входном сечении.

Для учета подвижной границы фазового перехода UF_6 из газообразного состояния в твердое был реализован алгоритм, учитывающий изменение размеров расчетной области, в которой решаются уравнения газовой динамики (1). Размеры расчетной области в различные моменты времени представлены на рис. 3. Из рисунка видно, что с течением времени, по мере нарастания слоя десублимата, происходит перерасчет геометрии разностной сетки, на которой решаются уравнения газовой динамики.

Кроме того, математическая модель движения газообразного UF_6 в емкости была дополнена учетом эллиптичности торцевых стенок. С этой целью в нее введены уравнения, описывающие зависимости $H(r)$ и $R(z)$. Радиусы скругления верхней и донной частей емкости выбирались согласно ГОСТ 6533-78. Расчетная сетка с учетом эллиптичности торцевых стенок представлена на рис. 4.

В дальнейшем потребовалось преобразовать переменные и нормировать область решения (рис. 5). Для этого были введены новые переменные:

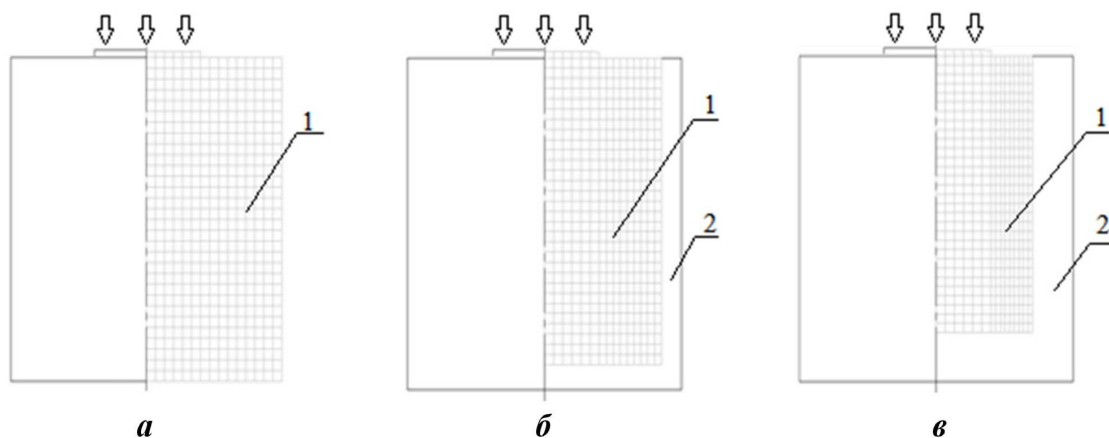


Рис. 3. Расчетная область для решения системы уравнений газовой динамики (1 — газообразный UF_6 , 2 — слой десублимата): $a - t = 0$; $b - t = 10$ ч; $v - t = 50$ ч

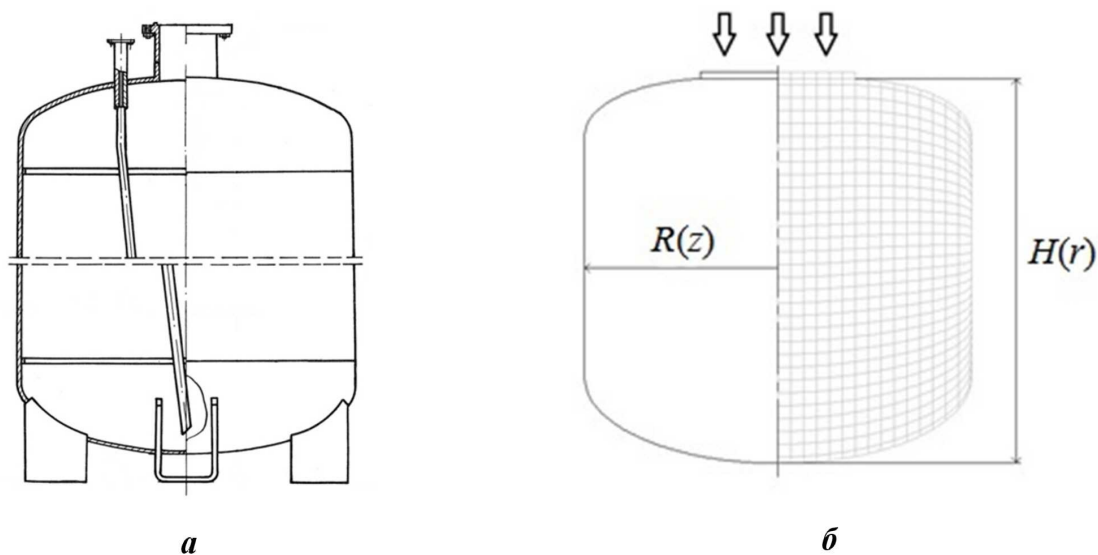


Рис. 4. Учет эллиптичности торцевых стенок емкости: a — вертикальная емкость; b — расчетная сетка

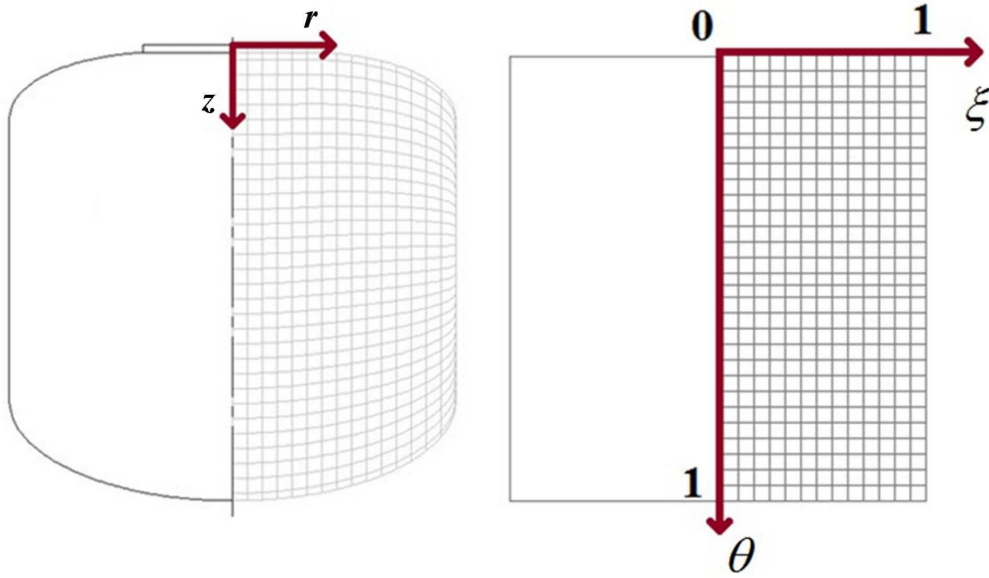


Рис. 5. Преобразование расчетной области в систему координат θ, ξ

$$\theta = f(z, t) = \frac{z(r)}{R(z) - W_1 t}; \quad \xi = \varphi(z, t) = \frac{r(z)}{H(r) - W_2 t},$$

где W_1, W_2 [м/с] — скорости десублимации на боковой и донной стенках соответственно; $H(r), R(z)$ [м] — высота и радиус расчетной области.

В представленной системе координат закон сохранения импульса для радиальной и аксиальной компонент скорости имеет вид

$$\frac{\partial u}{\partial t} - W_1 \theta \frac{1}{R(z) - W_1 t} \frac{\partial u}{\partial \theta} + u \frac{1}{R(z) - W_1 t} \frac{\partial u}{\partial \theta} + v \frac{\partial u}{\partial \xi} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial P}{\partial \theta} + \frac{\mu}{\rho} \left(\frac{1}{(R(z) - W_1 t)^2} \frac{\partial u}{\partial \theta} + \frac{\partial^2 u}{\partial \xi^2} \right);$$

$$\frac{\partial v}{\partial t} - W_1 \xi \frac{1}{H(r) - W_2 t} \frac{\partial v}{\partial \xi} + u \frac{\partial v}{\partial \theta} + v \frac{1}{H(r) - W_2 t} \frac{\partial v}{\partial \xi} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial P}{\partial \xi} + \frac{\mu}{\rho} \left(\frac{\partial^2 v}{\partial \theta^2} + \frac{1}{(H(r) - W_2 t)^2} \frac{\partial v}{\partial \xi} \right).$$

Использование метода Годунова [9] оказалось неприемлемым из-за ограничений на шаг интегрирования по времени, накладываемых при использовании явных разностных схем в целях получения устойчивого решения. Расчет движения газообразного UF_6 занимал очень много времени (1 минута процесса рассчитывалась в течение 2 часов). В связи с этим было решено использовать классический метод SIMPLE [10] на неявной разностной сетке, который достаточно хорошо опробован, имеет более высокую скорость счета и рекомендован авторами [11] для решения задач расчета дозвуковых внутренних течений.

Результаты расчетов

Описанная математическая модель процесса десублимации реализована в виде пакета прикладных программ, который позволяет проследивать динамику движения газообразного UF_6 в емкости, изменение температурного поля и давления в емкости, а также временные зависимости массы десублимата и безразмерной скорости десублимации в процессе расчета. На первом этапе проводилась верификация программы путем сравнения результатов расчетов с известными аналитическими решениями уравнения теплопроводности [12], в частности, рассматривалась задача о нагреве полубесконечной стенки. В ходе расчетов на сетке из 100 ячеек проверялся баланс полной энергии UF_6 . Относительная точность составила 10^{-5} .

Далее решалась одномерная нестационарная задача десублимации UF_6 на внутренней поверхности вертикальной цилиндрической емкости при постоянных значениях температуры хладагента и давления газа на ее внутренней поверхности. Длительность процесса десублимации в расчетах составляла 10 часов.

На рис. 6 приведены графики изменения температуры в двухслойной системе *стенка—десублимат* по мере увеличения толщины слоя твердого UF_6 в процессе десублимации. На рис. 7 приведен график зависимости безразмерной линейной скорости десублимации от толщины слоя твердого UF_6 . Из рисунков видно, что основной градиент температур приходится на слой десублимата. Толщина слоя десублимата постоянно увеличивается, термическое сопротивление системы растет, что приводит к уменьшению теплового потока от поверхности фазового перехода к хладагенту. Вследствие этого происходит резкое падение линейной скорости десублимации.

Проведен расчет заполнения вертикальной емкости объемом $2,5\text{ м}^3$ твердым UF_6 до 70 % ее максимального объема. Скорость десублимации определялась с помощью аппроксимационной зависимости от толщины слоя десублимата и давления газа.

На рис. 8 приведены временные зависимости изменения массы UF_6 , десублимирующегося в емкость объемом $2,5\text{ м}^3$, и безразмерной скорости десублимации на внутренней поверхности донной части емкости. Видно, что указанная емкость заполняется десублиматом на 70 % объема за 250 часов, что хорошо согласуется с экспериментальными данными по динамике десублимации в них газообразного UF_6 .

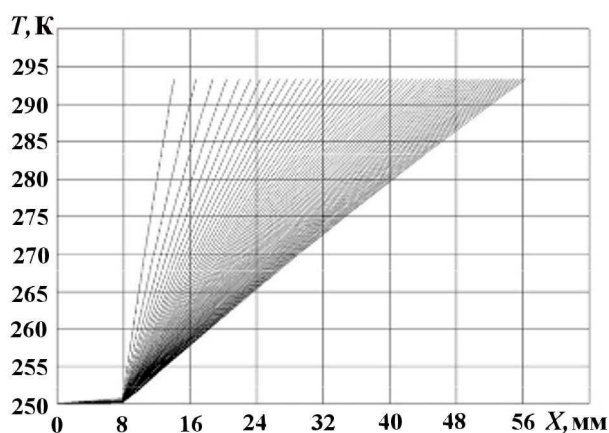


Рис. 6. Изменение температуры в системе *стенка—десублимат* по мере увеличения толщины слоя твердого UF_6

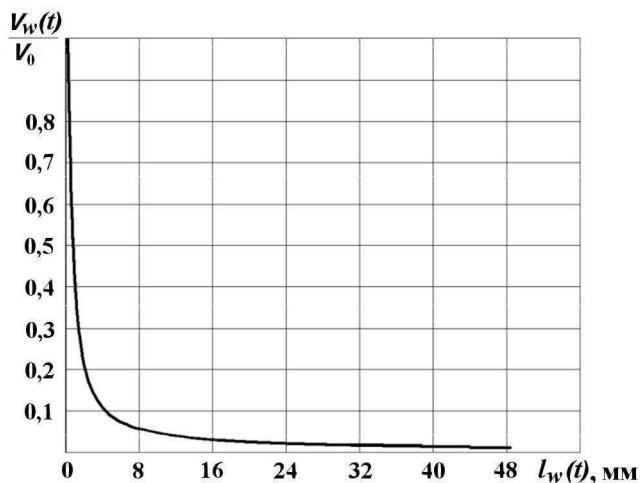


Рис. 7. Безразмерная линейная скорость десублимации UF_6 в зависимости от толщины слоя десублимата

На рис. 9 (см. также цветную вкладку) представлены векторы скорости и безразмерные изобарные линии давления газообразного UF_6 при заполнении им вертикальной емкости. Из рисунка видно, что с течением времени происходит изменение расчетной области, на которой решаются уравнения газовой динамики: по мере протекания процесса десублимации объем газообразного UF_6 в емкости уменьшается, а его давление увеличивается.

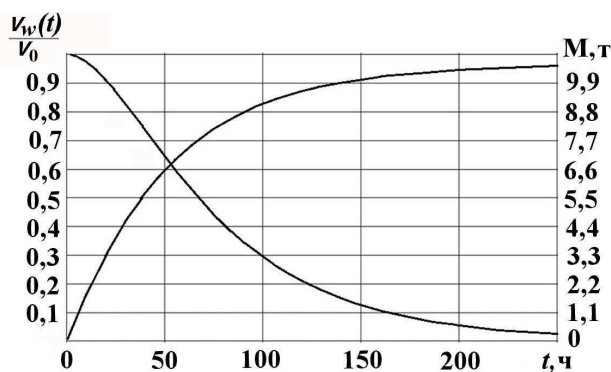


Рис. 8. Динамика заполнения емкости объемом $2,5\text{ м}^3$

Заключение

Разработана и реализована в виде пакета программ двумерная нестационарная математическая модель десублимации UF_6 в вертикальную емкость, учитывающая наличие конвекции и десублимации UF_6 на донной стенке, а также эллиптичность верхней и нижней стенок емкости.

С использованием полученной математической модели произведен расчет временных зависимостей скорости десублимации, толщины и массы образующегося слоя твердой фазы и распределения температуры в системе *стенка емкости – слой десублимата*.

Показано, что с увеличением толщины слоя десублимата происходит уменьшение скорости десублимации, увеличение термического сопротивления системы и, как следствие, уменьшение теплового потока от поверхности фазового перехода к хладагенту.

Произведенный расчет динамики заполнения вертикальной емкости объемом $2,5 \text{ м}^3$ твердым UF_6 показал, что представленная математическая модель адекватно описывает происходящие процессы тепло- и массопереноса. В дальнейшем планируется дополнить эту математическую модель наличием ребер на внутренней поверхности емкости, чтобы использовать ее для расчета параметров десублимации всех типов применяемых вертикальных емкостей.

Список литературы

1. *Edwards C. R., Oliver A. J.* Uranium processing: a review of current methods and technology // *J. Metals*. 2000. Vol. 52, No 12. P. 12–20.
2. *Вильнина А. В., Дядик В. Ф., Байдали С. А. и др.* Экспериментальное исследование процесса десублимации от длительности цикла захлаживания // *Изв. Томского политех. ун-та*. 2009. Т. 315, № 2. С. 91–93.

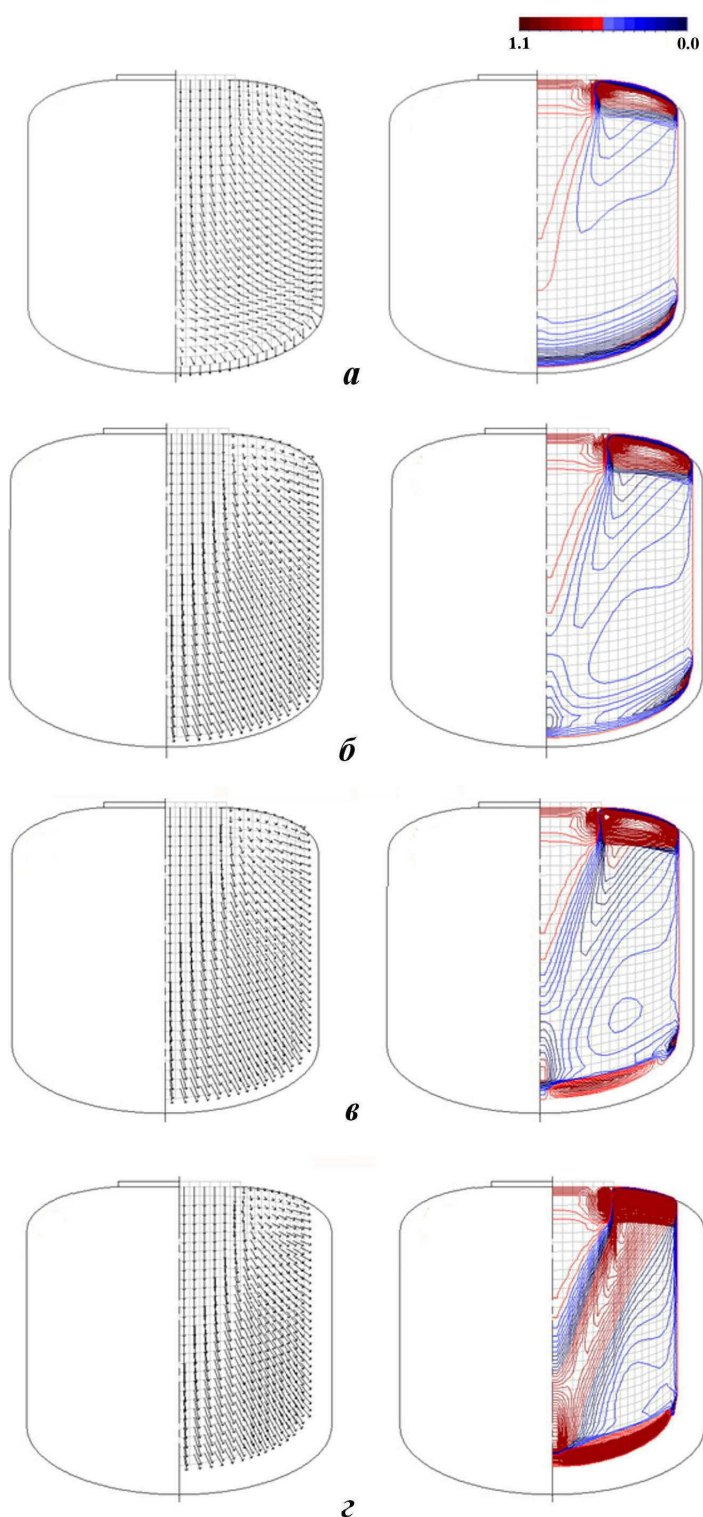


Рис. 9. Векторы скорости движения газообразного UF_6 (слева) и его давление в емкости (справа): а – $t = 20$ ч; б – $t = 40$ ч; в – $t = 60$ ч; г – $t = 80$ ч

3. Орлов А. А., Малюгин Р. В. Анализ способов получения гексафторида урана, очистки его от примесей и заполнения в транспортные емкости // Современные наукоемкие технологии. Региональное приложение. 2014. № 3. С. 89—98.
4. Орлов А. А., Кошелев С. М., Вандышев В. И. и др. Математическое моделирование процесса десублимации UF_6 // Изв. Томского политех. ун-та. 2006. Т. 309, № 3. С. 89—92.
5. Раев В. В., Сапрыгин А. В., Цедилкин А. П. и др. Определение коэффициента теплопроводности твердой фазы гексафторида урана // Фундаментальные проблемы современного материаловедения. 2011. Т. 8, № 4. С. 125—130.
6. Байдали С. А., Дядик В. Ф., Юрков А. С. Математическая модель производства гексафторида урана // Изв. Томского политех. ун-та. 2009. Т. 315, № 2. С. 84—90.
7. Орлов А. А., Малюгин Р. В. Подходы к моделированию процесса десублимации гексафторида урана // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Математическое моделирование физических процессов. 2014. Вып. 4. С. 14—21.
8. Гришин А. М., Зинченко В. И., Ефимов К. Н. и др. Итерационно-интерполяционный метод и его приложения. Томск: Изд-во Томского гос. ун-та, 2004.
9. Орлов А. А., Цимбалюк А. Ф., Малюгин Р. В. Математическая модель десублимации UF_6 в вертикальной емкости // Известия вузов. Физика. Т. 58, № 2/2. С. 14—20.
10. Patankar S. V. Numerical heat transfer and fluid flow. Washington D.C.: Hemisphere, 1980.
11. Ланин Ю. В., Стрелец М. Х. Внутренние течения газовых смесей. М.: Наука, 1989.
12. Якимов А. С. Аналитический метод решения уравнений. Томск: Изд-во Томского гос. ун-та, 2010.

Статья поступила в редакцию 08.06.15.

MATHEMATICAL MODEL OF URANIUM HEXAFLUORIDE DESUBLIMATION /
A. A. Orlov, A. F. Tsimbalyuk, R. V. Malyugin (National Research Tomsk Technological
University, Tomsk).

The paper presents a nonstationary mathematical model of the UF_6 desublimation in a vertical storage vessel regarding the convection and UF_6 desublimation on a bottom wall, as well as ellipticity of the upper and lower walls of the vessel. Simulation results are presented for the linear desublimation rate, thickness of a solid layer, temperature distribution in the vessel wall-desublimation layer system, and dynamics of filling out the 2,5 m³ cylindrical vessel with solid UF_6 as functions of time.

Keywords: uranium hexafluoride, desublimation, mathematical model, heat-and-mass transfer, nonstationary process, gas dynamics, Stephen problem, a movable grid, SIMPLE algorithm, iteration-interpolation method.
