

УДК 621.039.31

ЭФФЕКТИВНОСТЬ МНОГОКОМПОНЕНТНОГО РАЗДЕЛЕНИЯ В ОПТИМАЛЬНОМ КАСКАДЕ С ЗАДАННОЙ КОНЦЕНТРАЦИЕЙ ЦЕЛЕВОГО ИЗОТОПА

Палкин В.А. (Уральский федеральный ун-т, г. Екатеринбург)

Для практики многокомпонентного разделения представляет интерес расчет оптимальных параметров каскадов с заданной концентрацией целевого изотопа во всех внешних потоках. В работе [1] предложен метод оптимизации такого каскада по произвольному критерию эффективности. Исследованы особенности минимизации суммарного потока питания ступеней, который при одинаковых параметрах разделительных элементов соответствует минимуму их числа. Показано, что несмешивающие каскады по целевому изотопу имеют заметно больший суммарный поток.

В настоящей работе упрощена вычислительная схема оптимизации, предложенная в работе [1]. Продолжены исследования параметров и свойств каскадов с минимальным суммарным потоком. Проведен вычислительный эксперимент по оптимизации каскадов с варьированием коэффициента разделения ступеней в широких пределах. Основное внимание уделено оценке эффективности разделения с помощью многокомпонентного потенциала. Проведено сравнение оптимальных каскадов с бинарным разделением и R -каскадами, рассчитываемыми методами [2, 3].

Основные расчетные формулы. На рисунке приведена симметричная схема каскада для разделения многокомпонентной смеси изотопов. Приняты следующие обозначения: n — число ступеней каскада, f — номер ступени подачи питания каскада, m — число компонентов в

смеси, F, P, W — потоки питания, отбора и отвала каскада соответственно, C_j^F, C_j^P, C_j^W — концентрация j -го компонента в питании, отборе и отвале каскада, $j = \overline{1, m}$. Внешние параметры каскада, в число которых входят потоки F, P, W , концентрация $C_j^F, C_j^P, C_j^W, j = \overline{1, m}$, связаны уравнениями баланса

$$F = P + W; FC_j^F = PC_j^P + WC_j^W, j = \overline{1, m}.$$

При этом покомпонентная сумма концентрации для питания, отбора и отвала каскада равна единице (условия нормировки).

Внутренними параметрами каскада являются потоки питания, отбора и отвала ступеней L_i, L_i', L_i'' и концентрация компонентов $C_{ji}, C_{ji}', C_{ji}''$, где $j = \overline{1, m}, i = \overline{1, n}$. Для каждой ступени справедливы уравнения баланса, аналогичные каскадным. Кроме того, эти переменные должны удовлетворять условиям нормировки, уравнениям связи потоков между ступенями, а также разделительным характеристикам ступеней. К внутренним параметрам относятся также число ступеней каскада n и номер ступени подачи внешнего питания f .

Уравнения связи потоков между ступенями определяются для вещества и изотопов:

$$\begin{aligned} L_1 &= L_2''; L_2 = L_1' + L_3''; \dots L_f = L_{f-1}' + L_{f+1}'' + F; \dots \\ L_n &= L_{n-1}'; L_1 C_{j1} = L_2' C_{j2}''; L_2 C_{j2} = L_1' C_{j1}' + L_3' C_{j3}''; \dots \\ L_f C_{jf} &= L_{f-1}' C_{jf-1}' + L_{f+1}'' C_{jf+1}'' + F C_j^F; \dots \\ L_n C_{jn} &= L_{n-1}' C_{jn-1}'. \end{aligned}$$

Разделительные характеристики ступеней задаются полным коэффициентом разделения q_{ji} каждого компонента по всем ступеням. По определению коэффициент разделения, который будем считать константой, связан с концентрацией соотношениями

$$q_{ji} = \frac{C_{ji}' C_{mi}''}{C_{ji}'' C_{mi}'}, j = \overline{1, m}, i = \overline{1, n},$$

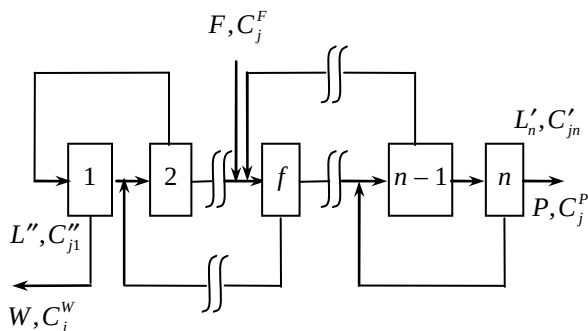


Схема противоточного симметричного каскада: 1, 2, f , $n-1$, n — номер ступени

где m — базовый компонент, в качестве которого удобно принять самый тяжелый изотоп. Будем также считать, что компоненты пронумерованы в порядке возрастания их молекулярной массы M_j .

Коэффициент q_{ji} в молекулярно-кинетических методах разделения выражается через $\Delta M_{jm} = M_m - M_j$ по формулам $q_{ji} = (q_{0i})^{\Delta M_{jm}}$, где q_{0i} — коэффициент разделения на единицу разности молекулярной массы. Отсюда следует, что достаточно знать q_{si} для целевого s -го компонента. Коэффициент разделения для других вычисляется как $q_{ji} = (q_{si})^{\Delta M_{jm}/\Delta M_{sm}}$.

С учетом граничных условий, которые связывают внешние и внутренние параметры:

$$W = L'_1, \quad P = L'_n; \quad C_j^W = C''_{j1}; \quad C_j^P = C'_{jn}, \quad j = \overline{1, m},$$

общее число независимых параметров каскада составляет $n + m + 2$.

Выбор указанных параметров зависит от критерия эффективности каскада. При оптимизации каскада по критерию минимума суммарного потока питания ступеней, т.е. $\sum_{i=1}^n L_i \rightarrow \min$, задаются внешние независимые $m + 2$ параметра. В качестве них можно принять $P, C_s^P, C_s^W, C_j^F, j = \overline{1, m-1}$. В число варьируемых при оптимизации n величин целесообразно включить внутренние параметры $n, f, C''_{s2}, C''_{s3}, \dots, C''_{sn-1}$ [1]. При этом наилучшие значения n, f определяются численным перебором, а оптимальные $C''_{s2}, C''_{s3}, \dots, C''_{sn-1}$ можно выбирать методом Хука—Дживса [4]. Выбор указанных переменных оптимизации обусловлен удобной процедурой расчета параметров каскада по ступеням при их фиксированных значениях.

На каждом шаге оптимизации при заданных n, f выбирается приближенно внешняя концентрация нецелевых изотопов в отвале каскада и из уравнений баланса в отборе, которая затем уточняется расчетом. Далее из граничных условий находится для каждого компонента концентрация отвала первой и отбора последней ступеней, соответствующая внешней концент-

рации каскада. После чего вычисляется концентрация целевого изотопа в отвале последней ступени $C''_{sn} = a_{sn} C'_{sn} / \sum_{k=1}^m a_{kn} C'_{kn}$, где $a_{kn} = 1/q_{kn}$.

Дальнейшие расчеты проводятся последовательно по ступеням, начиная с первой, с использованием соотношений

$$C'_{ji} = q_{ji} C''_{ji} / \sum_{k=1}^m q_{ki} C''_{ki}, \quad j = \overline{1, m}, \quad i = \overline{1, n};$$

$$L''_i = (\tau_{si} - \tau_i C'_{si-1}) / (C'_{si-1} - C''_{si}), \quad i = \overline{2, n};$$

$$C''_{ji} = C'_{ji-1} - (\tau_{ji} - \tau_i C'_{ji-1}) / L''_i, \quad j \neq s, \quad i = \overline{2, n}.$$

Здесь τ_{ji}, τ_i — транзитные потоки j -го изотопа и вещества в сечении перед i -й ступенью. Они находятся по внешним параметрам каскада: $\tau_{ji} = -WC_j^W, \tau_i = -W$ при $i \leq n$ и $\tau_{ji} = PC_j^P, \tau_i = P$ при $i > n$. Такой подход в отличие от методики [1] не связан с приближенным выбором концентрации нецелевых компонентов для второй и последующих ступеней.

Расчет заканчивается проверкой сходимости полученных значений $C'_{jn}, j \neq s$ с выбранными первоначально. Если эти параметры не совпадают с заданной точностью, то внешняя концентрация нецелевых изотопов изменяется и вычисления повторяются. Такие итерации можно проводить целенаправленно, например, путем минимизации суммы квадратов невязок концентрации. В случае, когда указанная концентрация по каждому изотопу совпадает, рассчитывается суммарный поток питания и принимается решение о новом шаге оптимизации. Вычислительная схема оптимизации может быть дополнена ограничениями по внешней концентрации нецелевых компонентов. В этом случае учитываются только такие $C''_{s2}, C''_{s3}, \dots, C''_{sn-1}$, которые удовлетворяют ограничениям.

Характеристики эффективности каскадов с минимальным суммарным потоком. В табл. 1 приведены расчеты оптимальных каскадов, разделяющих трехкомпонентную смесь тетрафторида кремния SiF_4 молекулярной массой 104, 105, 106. Содержание компонентов в питании каскада составляет 92,21, 4,7, 3,09%

Таблица 1. Эффективность оптимальных каскадов для разделения трехкомпонентной смеси тетрафторида кремния

q_1	n	f	$\Delta U_c/L$		$\eta_c, \%$		$\eta, \%$	$\mu, \%$	$\sum L, \text{ г/с}$
			Минимум	Максимум	Минимум	Максимум			
2	99	64	0,06	0,06	96,02	100	99,56	99,52	464,6
3	62	40	0,148	0,15	96,1	99,99	99,46	99,37	185,8
5	41	27	0,313	0,321	96,12	99,94	99,52	98,97	87,2
7	34	22	0,451	0,464	96,13	99,99	99,58	99,29	60,1
10	29	19	0,617	0,645	96,56	99,99	99,62	99,2	43,3

соответственно. Поток отбора принимали 1 г/с. Концентрацию целевого легкого компонента задавали на отборе 99,99, на отвале — 0,01%. Коэффициент разделения принимали одинаковым по ступеням: $q_{ji} = q_j$. Видно, что независимо от коэффициента разделения легкого компонента q_1 (в диапазоне от 2 до 10) эффективность каскадов с минимизированным суммарным потоком питания высока. Об этом свидетельствуют коэффициент полезного действия η и коэффициент использования разделительной мощности μ , составляющие 99—99,6%.

Коэффициент полезного действия каскада зависит от потерь разделительной способности ступеней от смешения потоков с разной концентрацией на их входах. Его определяли по формуле $\eta = \Delta U_k / \Delta U_c$, где ΔU_k — разделительная способность каскада по внешним параметрам, ΔU_c — суммарная разделительная способность ступеней: $\Delta U_c = \sum_{i=1}^n \Delta U_i$. Разделительную способность каскада рассчитывали в виде

$$\Delta U_k = PV(C_1^P, C_2^P, C_3^P) + \\ + WV(C_1^W, C_2^W, C_3^W) - FV(C_1^F, C_2^F, C_3^F),$$

где потенциал разделения был принят в виде [5]

$$V(C_1, C_2, C_3) = (\Delta M_{13} / \Delta M_{12})^2 (C_1 - C_2) \ln(C_1 / C_2) + \\ + C_3 \ln(C_3 / C_1),$$

наилучшим образом соответствующем оптимальным каскадам [6].

Аналогичным образом находили разделительную способность каждой ступени ΔU_i с подстановкой соответствующей концентрации компонентов и потоков питания, отбора и отвала.

Коэффициент использования разделительной мощности каскада определяет, насколько его разделительная способность ΔU_k отличается от максимальной суммарной разделительной способности ступеней ΔU_m . Его вычисляли по формуле $\mu = \Delta U_k / \Delta U_m$, где $\Delta U_m = (\Delta U_c / L)_m L_c$ оценивается по наибольшей удельной разделительной способности ступени $(\Delta U_c / L)_m$ и суммарному потоку L_c , полученным при оптимизации каскада.

В табл. 1 представлены также минимальные и максимальные значения $\Delta U_c / L$ и η_c ступеней. Коэффициент полезного действия η_c приведен по всем ступеням, за исключением крайних (для них $\eta_c = 100\%$). Его рассчитывали по формуле $\eta_c = 1 - \Delta U_{cm} / \Delta U_c$. Здесь ΔU_{cm} — потеря разделительной способности ступени от смешения потоков с разной концентрацией на ее питании. Эта величина равна $\Delta U_{cm} = \sum L_n (V_n - V)$, где суммирование ведется по всем потокам L_n , приходящим на питание ступени. Потенциал разделения V_n определяли по концентрации компонентов в потоке L_n , потенциал V — по концентрации, получаемой после смешения всех потоков.

Несмотря на высокие показатели эффективности каскадов, удельная разделительная способность отдельных ступеней относительно невелика. Анализ показывает, что большинство таких ступеней приходится на короткие каскады с небольшими числом ступеней n и номером ступеней подачи питания f . Это, как правило, имеет место при больших коэффициентах разделения q_1 . Следствием является некоторое снижение коэффициента использования разделительной мощности каскада. Такое умень-

Таблица 2. Эффективность оптимальных каскадов для разделения модельной бинарной смеси изотопов

q_1	n	f	$\Delta U_c/L$		$\eta_c, \%$		$\eta, \%$	$\mu, \%$	$\Sigma L, \text{ г/с}$
			Минимум	Максимум	Минимум	Максимум			
2	52	34	0,059	0,06	99,85	100	99,97	99,71	129,9
3	30	19	0,146	0,148	96,85	99,97	99,75	99,08	52,5
5	20	13	0,307	0,312	97,34	99,88	99,65	98,6	25,1
7	17	12	0,439	0,45	96,96	99,99	98,78	97,64	17,6
10	13	9	0,597	0,619	96,05	99,63	98,25	97,01	12,9

шение может быть объяснено отклонением параметров ступеней от наилучших значений. Аналогичное снижение наблюдается при уменьшении степени разделения. Так, коэффициент использования разделительной мощности каскада уменьшается на 0,5—1,2% при $C_1^P = 99$, $C_1^W = 1\%$. Данный эффект также связан со снижением числа ступеней.

Эта особенность проявляется и при разделении бинарной смеси изотопов. В табл. 2 приведены расчеты оптимальных каскадов при концентрации легкого компонента, потоке отбора и коэффициенте разделения q_1 , соответствующим табл. 1. Показатели эффективности каскада и ступеней оценивали как для трехкомпонентной смеси. При этом использовали потенциал разделения, введенный П. Дираком и Р. Пайерлсом $V(C) = (2C - 1) \ln [C/(1 - C)]$, где C — концентрация легкого изотопа.

Для получения той же концентрации легкого изотопа при бинарном разделении требуется существенно меньше ступеней. В результате эффективность работы каскада снижается по сравнению с трехкомпонентным разделением. Это выражается в более низких коэффициенте полезного действия и коэффициенте использования разделительной мощности.

Другим эффектом является очень слабая зависимость от коэффициента разделения отношения v суммарных потоков при разделении бинарной и трехкомпонентной смесей. Это отношение, взятое при одинаковом коэффициенте разделения q_1 , составляет 28—29,8%. Анализ показывает, что отношение суммарных потоков v увеличивается с уменьшением степени разделения, определяемой отношением концентрации отбора к отвалу для целевого компонента. От-

меченные эффекты объясняются тем, что выбранные потенциалы V достаточно хорошо описывают разделительную способность каскада ΔU_c . С учетом небольшого изменения удельной разделительной способности $\Delta U_c/L$ и коэффициента использования разделительной мощности μ отношение $v = (\Delta U_c)_{\text{бин}} / (\Delta U_c)_{\text{трех}}$.

Свойства оптимальных каскадов с минимальным суммарным потоком. Оптимальные каскады могут быть рассчитаны для любой концентрации целевого изотопа. Это выгодно их отличает от R -каскадов и квазиидеальных каскадов. Вместе с тем вычислительный эксперимент показал, что при не очень больших эффектах разделения и близких внешних параметрах различие по суммарному потоку между этими каскадами невелико. Если концентрация целевого компонента задана по R -каскаду и одинаковы число ступеней и номер ступени подачи питания, то, как правило, суммарный поток оптимального каскада меньше на десятки—сотые доли процента. Однако он может и соответствовать R -каскаду.

В табл. 3 приведены характеристики R -каскада, разделяющего трехкомпонентную смесь тетрафторида кремния. Концентрация питания компонентов и поток отбора приняты аналогично рассмотренным примерам. Коэффициент разделения $q_1 = 3$. R -каскад построен для ключевых компонентов 1, 3 и характеризуется несмещением соответствующей относительной концентрации на входах в ступени: $R'_{i-1} = R''_{i+1} = R_i$, $i = 2, n - 1$. Дополнительно в точке питания $R_f = C_1^F / C_3^F$. R -каскад рассчитывали при $n = 81$ и $f = 21$. Полученную концентрацию легкого компонента в отборе и отвале задавали в качестве исходных данных для оптимального

Таблица 3. Сравнительные характеристики оптимальных и *R*-каскадов

Каскад	<i>n</i>	<i>f</i>	Концентрация отвала компонентов, %			Концентрация отбора компонентов, %			ΣL , г/с
			1	2	3	1	2	3	
<i>R</i> -каскад по компонентам 1, 3	81	21	0,014	53,077	46,909	98,711	1,289	$9 \cdot 10^{-15}$	291,8
Оптимальный	42	38	0,014	53,767	46,219	98,711	1,24	0,049	51,2
Оптимальный с ограничениями	42	24	0,014	53,078	46,908	98,711	1,289	$4 \cdot 10^{-5}$	100,1
<i>R</i> -каскад по компонентам 1, 2	45	41	0,014	53,579	46,407	98,672	1,274	0,054	50,4

каскада. При расчете этого каскада также сохраняли концентрацию питания компонентов, поток отбора и коэффициент разделения.

Расчет оптимального каскада при $n = 81$ и $f = 21$ не привел к разнице с *R*-каскадом — все параметры, в том числе суммарный поток, почти совпали. Варьирование числа ступеней и точки подачи питания дало существенно отличающийся результат. Наилучшие $n = 42$, $f = 38$. Коэффициент полезного действия составил 98,6%, коэффициент использования разделительной мощности 98,2%. Суммарный поток питания ступеней оказался в 6 раз меньше, чем для *R*-каскада, по компонентам 1, 3. Однако концентрация отбора и отвала компонентов 2 и 3 сильно изменилась. В связи с этим были проведены дополнительные расчеты (см. табл. 3). Они показали, что введением ограничений на концентрацию изотопов 2, 3 можно приблизиться к исходному *R*-каскаду. Что касается оптимального каскада, то к нему по внешней концентрации всех изотопов близок *R*-каскад, построенный для компонентов 1, 2.

В табл. 3 представлены характеристики такого каскада, рассчитанного при $n = 45$ и $f = 41$. Полученный суммарный поток оказался немного меньше, чем у оптимального каскада. Это объясняется невозможностью точно получить концентрацию отбора и отвала целевого компонента, совпадающую с оптимальным каскадом. Данная особенность отличает *R*-каскады при больших эффектах разделения изотопов. В рассмотренном примере концентрация отбора легкого компонента в оптимальном каскаде выше, что требует дополнительных затрат разделительной мощности.

Близость оптимального и *R*-каскада характерна и для других случаев разделения. Данная особенность отмечалась ранее в работах [7, 8].

В табл. 4 приведены внутренние параметры оптимального каскада. Изменение потока питания по ступеням типично для случая высокой концентрации питания целевого компонента. В обеднительной части каскада происходит его плавное увеличение к точке питания. В обогащительной части поток питания резко уменьшается к отбору. Коэффициент деления потока θ находится в пределах 0,41—0,56. Концентрация компонентов на входах в ступени не совпадает, т.е. оптимальный каскад является смешивающим. То же касается и относительной концентрации компонентов.

Таблица 4. Параметры каскада, оптимизированного на заданную концентрацию легкого компонента тетрафторида кремния ($n = 42$, $f = 38$)

Номер ступени	L , г/с	θ	C'_1 , %	C'_2 , %	C''_2 , %	C'_2 , %	C''_3 , %	C'_3 , %
1	0,12	0,43	0,01	0,03	53,8	66,8	46,2	33,2
4	0,3	0,41	0,04	0,08	66,6	77,5	33,3	22,4
7	0,36	0,41	0,11	0,22	71,5	81,2	28,4	18,6
10	0,38	0,41	0,28	0,55	73,2	82,3	26,5	17,2
13	0,39	0,41	0,71	1,37	73,6	82,1	25,7	16,6
16	0,4	0,41	1,75	3,34	73,1	80,6	25,2	16,1
19	0,42	0,42	4,22	7,9	71,3	76,8	24,5	15,3
22	0,45	0,43	9,81	17,5	67,1	68,9	23,1	13,7
25	0,53	0,45	21	34	58,7	54,9	20,4	11
28	0,71	0,48	38,9	55,4	45,2	37,1	15,9	7,54
31	1,15	0,52	60	74,5	29,4	21,1	10,5	4,35
34	2,15	0,54	77,8	87,2	16,3	10,6	5,9	2,2
38	5,93	0,55	91,6	95,5	6,2	3,73	2,22	0,77
40	4,39	0,56	95,7	97,6	3,71	2,19	0,54	0,19
42	1,88	0,53	97,7	98,7	2,13	1,24	0,14	0,05

Заключение. Расчеты показали высокую эффективность каскадов, оптимизированных по критерию минимизации суммарного потока питания ступеней. Эти каскады могут быть рассчитаны для любой концентрации целевого изотопа. Они являются смешивающими как по абсолютной, так и относительной концентрации компонентов. Однако в большинстве случаев можно найти близкий к оптимальному *R*-каскад, который будет мало отличаться по суммарному потоку и концентрации всех компонентов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Палкин В.А., Сбитнев Н.А., Фролов Е.С. Расчет оптимальных параметров каскада для разделения многокомпонентной смеси изотопов. — Атомная энергия, 2002, т. 92, вып. 2, с. 130—133.
2. Сазыкин А.А. Термодинамический подход к разделению изотопов. — В кн.: Изотопы: свойства, получение, применение. Под ред. В.Ю. Баранова. М.: ИздАТ, 2000, с. 72—108.
3. Sulaberidze G.A., Borisevich V.D. Cascades for separation of multicomponent isotope mixtures. — Separ. Sci. Technol., 2001, v. 36, № 8, 9, p. 1769—1817.
4. Hooke R., Jeeves T.A. Direct search solution of numerical and statistical problems. — Association Computing Machinery, 1961, № 8, p. 212—229.
5. Палкин В.А. Обобщение решения Смородинского для потенциала разделения многокомпонентной смеси изотопов. — Атомная энергия, 2003, т. 95, вып. 5, с. 373—382.
6. Палкин В.А. Потенциалы разделения многокомпонентной смеси изотопов. — Там же, 2013, т. 115, вып. 4, с. 230—235.
7. Сулаберидзе Г.А., Борисевич В.Д., Се Ц. О сравнении оптимальных и модельных каскадов для разделения многокомпонентных смесей при произвольном обогащении на ступени. — Теор. основы хим. техн., 2008, т. 42, № 4, с. 1—7.
8. Song T., Shi Z., Borisevich V.D. e.a. Comparative study of the model and optimum cascades for multicomponent isotope separation. — Separ. Sci. Technol., 2010, v. 45, № 14, p. 2113—2118.

Поступила в Редакцию 12.11.13

УДК 539.1.074+621.039.54

ОПРЕДЕЛЕНИЕ АКТИВНОСТИ ДОННОГО ШЛАМА И ОТЛОЖЕНИЙ НА СТЕНАХ БАСЕЙНОВ РЕАКТОРА МР

Степанов А.В., Симицкий Ю.Н., Семин И.А., Волкович А.Г. (НИЦ «Курчатовский ин-т», г. Москва)

При демонтаже многопетлевого исследовательского МР в НИЦ «Курчатовский институт» экспериментальные петли и рабочие каналы перемещали из бассейна реактора в бассейн-хранилище [1]. Некоторые петли были ранее частично разрушены в процессе экспериментальной работы. В воде обоих бассейнов обнаружено высокое содержание ^{137}Cs , ^{90}Sr и компонентов топливной матрицы [2, 3]. На дне бассейнов посредством подводной спектрометрической системы был обнаружен слой шлама толщиной 10—15 см (рис. 1) [4, 5]. Отложения на стенах бассейнов содержат значительное количество ^{137}Cs и ^{60}Co [3]. Наличие компонентов топливной матрицы в воде позволяет предположить их наличие в донном шламе и отложениях на стенах бассейнов.

Методика эксперимента. Для отбора проб воду со шламом откачивали насосом со дна бассейнов в 50-литровые бочки, после отстаивания

ее декантировали, осадок сушили на бумажном фильтре (рис. 2). Со стен бассейна отложения снимали металлическим скребком. Из высушенного шлама и отложений со стены для исследований отбирали навески массой 20—30 мг.

Концентрацию γ -излучающих радионуклидов определяли по гамма-спектрам, полученным



Р и с. 1. Дно бассейна-хранилища