

УДК 66.063.8:519.6:621.039.738

ИНТЕНСИФИКАЦИЯ ПРОЦЕССОВ УСРЕДНЕНИЯ ХИМИЧЕСКОГО СОСТАВА И РАДИАЦИОННОЙ АКТИВНОСТИ АЗОТНОКИСЛЫХ РАСТВОРОВ УРАНА

Хомяков А.П., д.т.н. (ural-nrs@gosnadzor.ru), Морданов С.В., Никулин В.А., к.т.н. (news@urfu.ru)
(ФГАОУ ВПО «Уральский федеральный университет
имени первого Президента России Б.Н. Ельцина»)
Корченкин К.К., к.т.н., Мелентьев А.Б., к.х.н. (Mayak@po-mayak.ru) (ФГУП «ПО «Маяк»)

Представлены результаты исследований процессов усреднения химического состава и радиационной активности технологических азотнокислых растворов урана в емкостях приема азотнокислых растворов урана в процессе их подготовки к упариванию. Показана динамика изменения концентрации урана и радиационной активности технологических растворов. Представлены результаты сравнительного анализа эффективности перемешивания в емкостях приема с существующими перемешивающими устройствами и с предложенными модернизированными системами перемешивания.

► **Ключевые слова:** азотнокислый уранил, усреднение концентрации, радиационная активность, перемешивание, вычислительная гидродинамика.

NITRIC ACID URANIUM SOLUTIONS CHEMICAL COMPOSITION AND RADIATION ACTIVITY AVERAGING PROCESSES INTENSIFICATION

Khomjakov A., Ph. D., Mordanov S., Nikulin V., Ph. D.
(FSAEI HPE Ural Federal University named after the
first President of Russia B.N. Yeltsin (UrFU))
Korchenkin K., Ph. D., Melent'ev A., Ph. D. (FSUE Mayak PA)

The researches results of the chemical nitric acid uranium solutions chemical composition and radiation activity averaging processes in the reception tanks during the preparation for evaporation are presented. The dynamics of uranium concentration and radiation activity alteration of technological solutions is shown. The comparative analysis results of mixing efficiency in the reception tanks via existing mixing equipment and offered modernized mixing systems are presented.

► **Key words:** uranyl nitrate, concentration averaging, radiation activity, mixing, calculating fluid dynamics.

Переработка отработавшего ядерного топлива является одной из важнейших комплексных задач современной радиохимической промышленности. Наиболее широкое распространение в мировой производственной практике получили экстракционные методы переработки отработавшего ядерного топлива (PUREX-процесс). На ФГУП «ПО«Маяк» конечный продукт переработки урана в рамках PUREX-процесса – гексагидрат азотнокислого уранила $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$, который получают упариванием до плава водных азотнокислых растворов урана, поступающих с цикла экстракционной очистки [1].

Качество и радиационная безопасность товарного азотнокислого уранила определяются равномерностью распределения в плаве изотопов урана, допустимого остаточного плутония и продуктов распада. Подготовка азотнокислых растворов урана к упариванию на радиохимическом заводе ФГУП «ПО«Маяк» осуществляется с помощью струйного перемешивания в емкостях с рабочим объемом 250 м³. Время подготовки к упариванию достигает 20 и более часов, при этом химический и радиохимический состав плава после упаривания не всегда в полной мере удовлетворяют требованиям качества и радиационной безопасности, предъявляемым к товарному продукту [2]. В результате выполненных ранее исследований [2] установлено, что качество перемешивания в емкостях приема азотнокислых растворов урана существенным образом снижается за счет формирования в емкости застойной зоны, занимающей до 0,25 – 0,33 объема перемешивания.

В результате анализа результатов исследований [2] были предложены варианты технических решений по повышению эффективности перемешивания в емкостях приема азотнокислых растворов урана. В данной статье представлены результаты исследований по влиянию дополнительного перемешивания на усреднение концентрации урана и радиационной активности технологических растворов в объеме емкостей приема для двух наиболее перспективных вариантов модернизации систем перемешивания в данных емкостях.

1. Конструкция емкостей приема и систем перемешивания

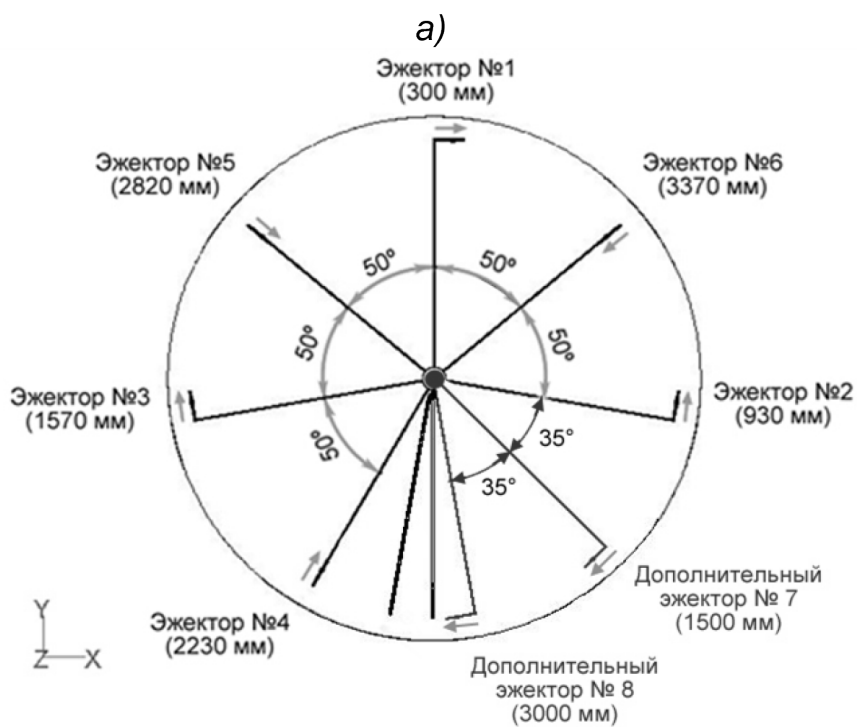
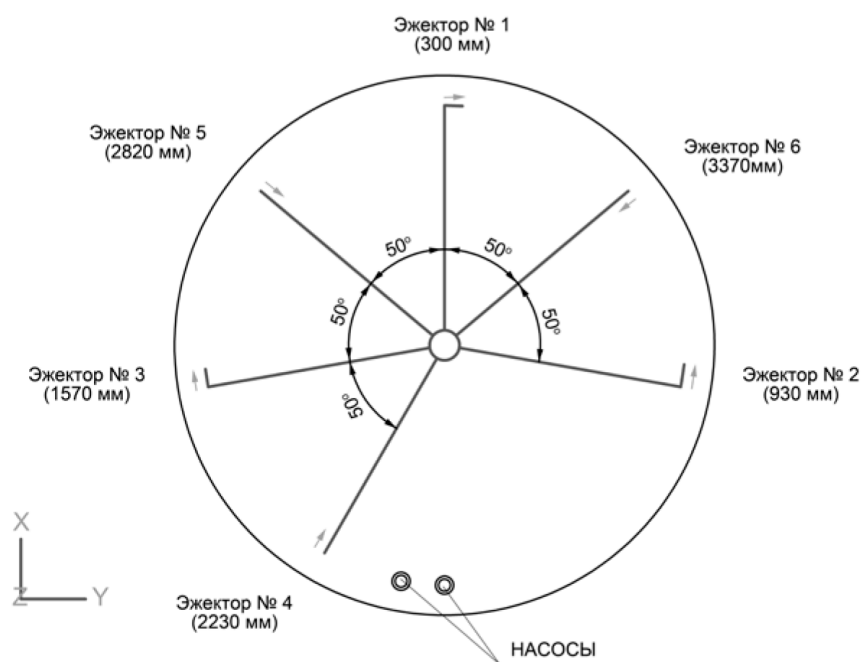
Емкости приема азотнокислых растворов представляют собой цилиндрические сосуды с плоскими днищами. Высота и диаметр емкостей составляют, соответственно, 4500 и 9000 мм. Подготовка техно-

логических растворов к упариванию осуществляется с помощью системы струйного перемешивания, состоящей из двух погружных центробежных насосов, установленных у дна емкости, и шести эжекторов, установленных на разных уровнях от дна емкости. Схема установки эжекторов существующих систем струйного перемешивания представлена на рис. 1 а). Каждый насос выдает растворы на коллектор трех эжекторов. Один из насосов выдает растворы на эжекторы, установленные в нижней половине объема перемешивания (эжекторы № 1, 2, 3; рис. 1), второй – на эжекторы, установленные в верхней половине объема перемешивания (эжекторы № 4, 5, 6; рис. 1). Такая организация подачи технологических растворов на эжекторы позволяет эксплуатировать емкости при неполном заполнении.

По результатам выполненных ранее исследований [2] установлено, что в емкостях приема в секторе между эжекторами № 2, 4 образуется застойная зона, существенно снижающая эффективность перемешивания в емкости. Для ликвидации застойной зоны были предложены варианты технических решений, связанные с организацией в емкости дополнительного струйного и механического перемешивания [2]. В результате анализа предложенных вариантов установлено, что наиболее перспективными с точки зрения технологической, энергетической эффективности усреднения состава растворов и возможности эксплуатации емкостей при неполном заполнении являются следующие технические решения:

- установка в секторе между эжекторами № 2, 4 дополнительных эжекторов № 7, 8, подключенных соответственно к коллекторам эжекторов № 1 – 3 и № 4 – 6 (рис. 1 б));
- установка в центре застойной зоны двухъярусного механического осевого перемешивающего устройства.

Механическое перемешивающее устройство (рис. 2 а), б)) состоит из двух роторов (рис. 2 в)), установленных на одном валу на расстояниях 1600 и 3000 мм от дна емкости, и разомкнутой циркуляционной трубы переменного сечения, обеспечивающей подсос раствора между ярусами перемешивающего устройства и возможность эксплуатации устройства при неполном заполнении емкости. Осевого потока в зоне ротора формируется 6 плоскими лопастями, установленными на ступице под углом 45° к горизонту. Угловое расстояние между лопастями составляет 60°. Наружный диаметр ротора составляет 190 мм.



б)

Рис. 1. Схема установки эжекторов в емкостях приема азотнокислых растворов урана:

- а) существующая система перемешивания; б) система струйного перемешивания с дополнительными эжекторами. (Стрелками показано направление потоков, формируемых эжекторами, в скобках указана высота установки эжектора относительно дна емкости)

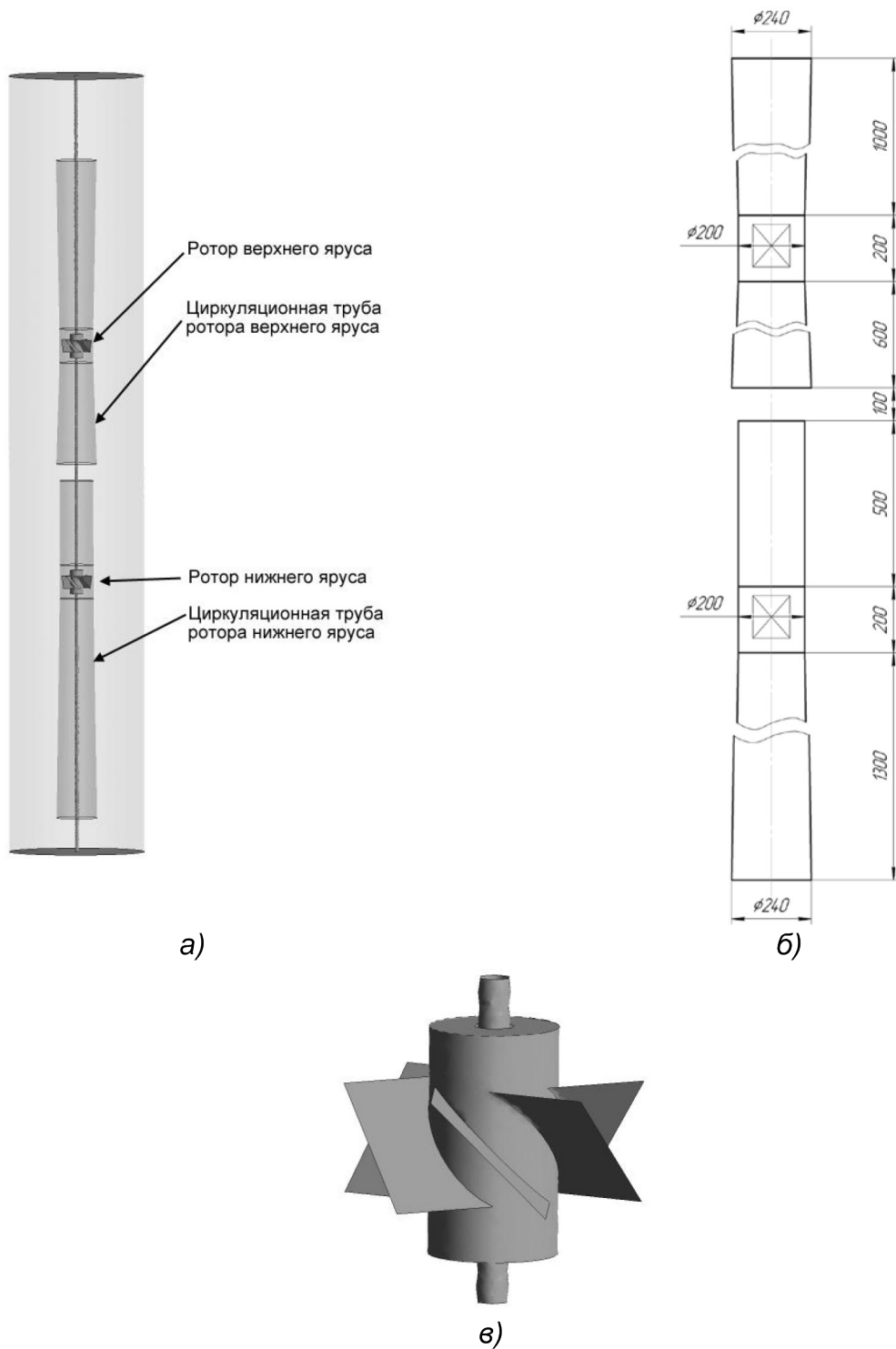


Рис. 2. Двухъярусное механическое осевое перемешивающее устройство:
 а) геометрическая модель; б) эскиз; в) геометрическая модель ротора

2. Методика расчета полей концентраций урана и радиационной активности технологических растворов

Для моделирования процессов перемешивания в емкостях приема азотнокислых растворов урана использовалась составленная ранее физико-математическая модель, основанная на уравнениях Навье-Стокса для многокомпонентных потоков с осреднением гидродинамических параметров по объемным долям компонентов [3,4], стандартной $k-\varepsilon$ модели турбулентных пульсаций [5,6] с модельными константами, принятыми по данным Маршалл и Баккера [7], и собственных неявных моделей работы центробежных насосов [2,8].

Проверка адекватности физико-математической модели проводилась ранее [2,8] на основе собственных экспериментальных данных и показала, что погрешность моделирования не превышает 12 %.

Характерной особенностью предложенной физико-математической модели является осреднение параметров потока по объемным долям компонента и решение системы уравнения сохранения массы и количества движения для осредненных скорости, плотности и вязкости:

$$\rho_m = \sum_{\varphi=1}^n \alpha_{\varphi} \rho_{\varphi}, \quad (1)$$

$$\mu_m = \sum_{\varphi=1}^n \alpha_{\varphi} \mu_{\varphi}, \quad (2)$$

$$\vec{u}_m = \frac{\sum_{\varphi=1}^n \alpha_{\varphi} \rho_{\varphi} \vec{u}_{\varphi}}{\rho_m}, \quad (3)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho_m) + \text{div}(\rho_m \vec{u}_m) = \dot{m}, \quad (4)$$

$$\begin{aligned} & \frac{\partial}{\partial t}(\rho_m u_{mi}) + \left[(\rho_m u_{mj}) \frac{\partial u_{mi}}{\partial x_j} - \sum_{\varphi=1}^n (\alpha_{\varphi} \rho_{\varphi} u_{d\varphi j}) \frac{\partial u_{d\varphi i}}{\partial x_j} \right] = \\ & = -\frac{dp}{dx_i} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left[\mu_m \left(\frac{\partial u_{mj}}{\partial x_i} + \frac{\partial u_{mi}}{\partial x_j} - \frac{2}{3} \delta_{ij} \frac{\partial u_{mi}}{\partial x_i} \right) \right] + \rho_m g_i, \end{aligned} \quad (5)$$

$$u_{d\varphi i} = u_{\varphi i} - u_{mi}, \quad (6)$$

где:

ρ_m, ρ_{φ} – плотности смеси и компонента φ , кг/м³;

n – количество компонентов;

α_{φ} – объемная доля компонента φ ;

μ_m, μ_{φ} – вязкость смеси и компонента φ , Па·с;

u_m, u_{φ} – скорости течения смеси и компонента φ , м/с;

m – поток массы, кг/(с·м³);

i, j – индексы продольного и поперечного направлений течения;

x – координата, м;

$u_{d\varphi}$ – дрейфовая скорость компонента, м/с;

p – давление, Па;

δ_{ij} – метрический тензор декартова пространства в прямоугольных координатах;

g – ускорение силы тяжести, м/с².

Усреднение концентрации компонентов технологических растворов в емкостях приема осуществляется как за счет конвективного движения потоков, согласно уравнениям (1 – 6), так и за счет диффузии:

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho_m \theta) + \frac{\partial}{\partial x} \left(\rho_m u_m \theta - \Gamma \frac{\partial \theta}{\partial x} \right) = S_{\theta}, \quad (7)$$

где:

θ – скаляр, описывающий объемную концентрацию растворенного компонента, г/л (кг/м³, моль/л и т.д.);

$\Gamma = D \cdot \rho_m$ – массовый коэффициент диффузии, кг/м·с; здесь D – объемный коэффициент диффузии, м²/с;

S_{θ} – источник скаляра θ .

По имеющимся данным [9,10] в азотнокислых водных растворах объемные коэффициенты диффузии ионов уранила UO_2^{2+} и основных продуктов деления имеют порядок $10^{-5} - 10^{-6}$ см²/с ($10^{-9} - 10^{-10}$ м²/с), то есть крайне малы. Процесс усреднения состава технологических растворов, таким образом, определяется, в первую очередь, не молекулярной диффузией, а перемешиванием. В связи с этим при численных расчетах уравнением (7) было решено пренебречь.

Явный расчет распределения концентраций компонентов в объеме емкостей приема с заданием для каждого основного компонента технологического раствора соответствующего компонента модельного раствора по уравнениям (1 – 6), к сожалению, крайне затруднителен ввиду резкого роста ресурсоемкости решения с увеличением количества компонентов. В связи с этим расчет концентраций производился следующим образом. Объем емкости делился на две равные части по высоте. В начальный момент времени нижняя часть емкости заполнялась компонентом № 1 ($\alpha_1=1$), верхняя – компонентом № 2 ($\alpha_2=1$). Далее производилось решение системы уравнений (1 – 6) с фиксацией результатов для определенного времени решения t ($t = 0; 0,5; 1; 2; 3; 5; 10; 15; 20$ ч). Таким образом, был получен массив значений объемных долей компонентов № 1, 2 в пространстве и времени решения.

Для перехода от объемных долей к концентрациям урана раствору № 1 была сопоставлена концентрация 115 г/л, раствору № 2 – 93 г/л. Минимальному значению концентрации соответствует минимальное измеренное значение для реального раствора, максимальному – максимальная допустимая концентрация урана в растворе, поступающем с экстракционного цикла. Тогда в любой момент времени для любой точки в объеме емкости, соответствующей узлу расчетной сетки, можно рассчитать значение концентрации урана:

$$C(U)_{node} = C(U)_1 \cdot \alpha_1 + C(U)_2 \cdot \alpha_2, \quad (8)$$

где:

$C(U)$ – концентрация урана, г/л;

node – индекс узла расчетной сетки;

$C(U)_1$ – концентрация урана при расчетном $\alpha_1 = 1$;

$C(U)_2$ – концентрация урана при расчетном $\alpha_2 = 1$.

Концентрация остаточного плутония рассчитывалась из соотношения 2 мкг на 1 кг урана. Радиационная активность растворов рассчитывалась исходя из измеренного значения мощности экспозиционной дозы излучения (МЭД) 0,002 мкР/с на 1 кг урана в растворе [2].

3. Результаты численного моделирования

В таблице представлены данные об изменении максимальных и минимальных концентраций урана и плутония и радиационной активности растворов

в емкостях приема с существующими и модернизированными системами перемешивания. Колебания расчетных значений средней концентрации урана в емкости связаны с погрешностью метода решения (погрешностью сходимости), неизбежно возникающей при расчете значений переменных в узлах решетки. Следует отметить, что данная погрешность не превышает для всех рассмотренных случаев 0,47 %.

В целом наиболее динамичное приближение минимальной и максимальной концентраций урана и плутония к средним значениям наблюдается для емкостей с дополнительным механическим перемешиванием, наименее динамичное – для емкостей с существующими системами перемешивания.

В малом числе узлов расчетной сетки (порядка 10^3 из $2,5 \cdot 10^6$) минимальные и максимальные расчетные значения концентрации урана не меняются для всех рассмотренных случаев. Данные контрольные точки были исключены из анализа.

Сложившаяся ситуация объясняется наличием в емкости малых застойных областей, где гидродинамические параметры практически не изменяются. Такие малые застойные области составляют сотые доли процента общего объема перемешивания и практически не сказываются на общей картине усреднения состава растворов. Данное замечание наглядно подтверждается эпюрами распределения концентраций в объеме емкостей (рис. 3 – 5).

Так, в осевом сечении емкости и радиальном сечении, расположенном на высоте 2250 мм от дна, через 10 ч перемешивания для существующей системы перемешивания разность максимальной и минимальной концентраций урана составляет 2,2 – 4,5 г/л (рис. 3), для емкостей с дополнительными эжекторами – 0,8 – 3,4 г/л (рис. 4), для емкостей с дополнительным механическим перемешиванием – в пределах 0,7 г/л (рис. 5).

Из представленных результатов моделирования можно сделать вывод, что использование значений максимальной, минимальной и средней концентраций компонентов растворов в емкости или общей оценки неусредненности объемной доли контрольного компонента [2] недостаточно для оценки технологической эффективности оборудования. Использование эпюр объемных распределений объемных долей или концентраций хотя и позволяет получить наглядную картину распределения компонентов в емкости, но в целом не очень удобно для количественной оценки процессов усреднения состава технологических растворов.

**Изменение максимальной и минимальной концентраций
урана и плутония и радиационной активности
технологических растворов в процессе
их подготовки к упариванию**

Продолжительность перемешивания, ч	Концентрация урана, г/л			Концентрация плутония, мкг/л			Мощность экспозиционной дозы на 1 м ³ раствора, мкР/с		
	минимальная	максимальная	средняя	минимальная	максимальная	средняя	минимальная	максимальная	средняя
Существующая система перемешивания									
0	93,0	115,0	104,2	18,6	23,0	20,8	0,186	0,230	0,208
0,5	93,0	115,0	104,2	18,6	23,0	20,8	0,186	0,230	0,208
1,95	94,9	113,6	104,2	19,0	22,7	20,8	0,190	0,227	0,208
3,95	98,6	111,8	104,2	19,7	22,4	20,8	0,197	0,224	0,208
5,95	100,4	111,1	104,0	20,1	22,2	20,8	0,201	0,222	0,208
10	102,6	110,5	104,3	20,5	22,1	20,9	0,205	0,221	0,209
13,95	104,3	110,7	104,8	20,9	22,1	21,0	0,209	0,221	0,210
20,95	105,1	110,9	105,5	21,0	22,2	21,1	0,210	0,222	0,211
Система перемешивания, снабженная двумя дополнительными эжекторами									
0	93,0	115,0	104,2	18,6	23,0	20,8	0,186	0,230	0,208
0,5	95,5	112,5	104,4	19,1	22,5	20,9	0,191	0,225	0,209
1	96,2	111,6	104,4	19,2	22,3	20,9	0,192	0,223	0,209
5	97,2	110,0	103,7	19,4	22,0	20,7	0,194	0,220	0,207
10	97,4	104,9	103,6	19,5	21,0	20,7	0,195	0,210	0,207
15	97,6	104,5	103,5	19,5	20,9	20,7	0,195	0,209	0,207
20	97,6	103,4	103,4	19,5	20,7	20,7	0,195	0,207	0,207
Система перемешивания, снабженная двухъярусным механическим осевым перемешивающим устройством									
0	93,0	115,0	104,2	18,6	23,0	20,8	0,186	0,230	0,208
0,5	102,9	108,8	104,0	20,6	21,8	20,8	0,206	0,218	0,208
1	103,8	107,9	104,0	20,8	21,6	20,8	0,208	0,216	0,208
2	103,9	107,4	104,0	20,8	21,5	20,8	0,208	0,215	0,208
5	104,0	105,9	104,0	20,8	21,2	20,8	0,208	0,212	0,208
10	103,8	104,2	103,8	20,8	20,8	20,8	0,208	0,208	0,208
15	103,7	103,8	103,7	20,7	20,8	20,7	0,207	0,208	0,207
20	103,5	103,6	103,5	20,7	20,7	20,7	0,207	0,207	0,207

В связи с этим для количественной оценки эффективности перемешивания предлагается использовать долю объема емкости, в которой концентрация урана отличается от средней концентрации c_{avg} не более, чем на какую-либо фиксированную величину. В качестве пороговых значений такого критерия были приняты $c_{avg} \pm 0,5\%$ и $c_{avg} \pm 2,5\%$.

Средняя концентрация рассчитывается как среднее арифметическое значений концентрации в контрольных точках [11]:

$$c_{avg} = \frac{\sum_{node=1}^n C(U)_{node}}{n}, \quad (9)$$

где n – количество контрольных точек; в случае моделирования с использованием метода конечных элементов количество контрольных точек равно количеству узлов расчетной сетки (в рассмотренных задачах $n \approx 2,5 \cdot 10^6$).

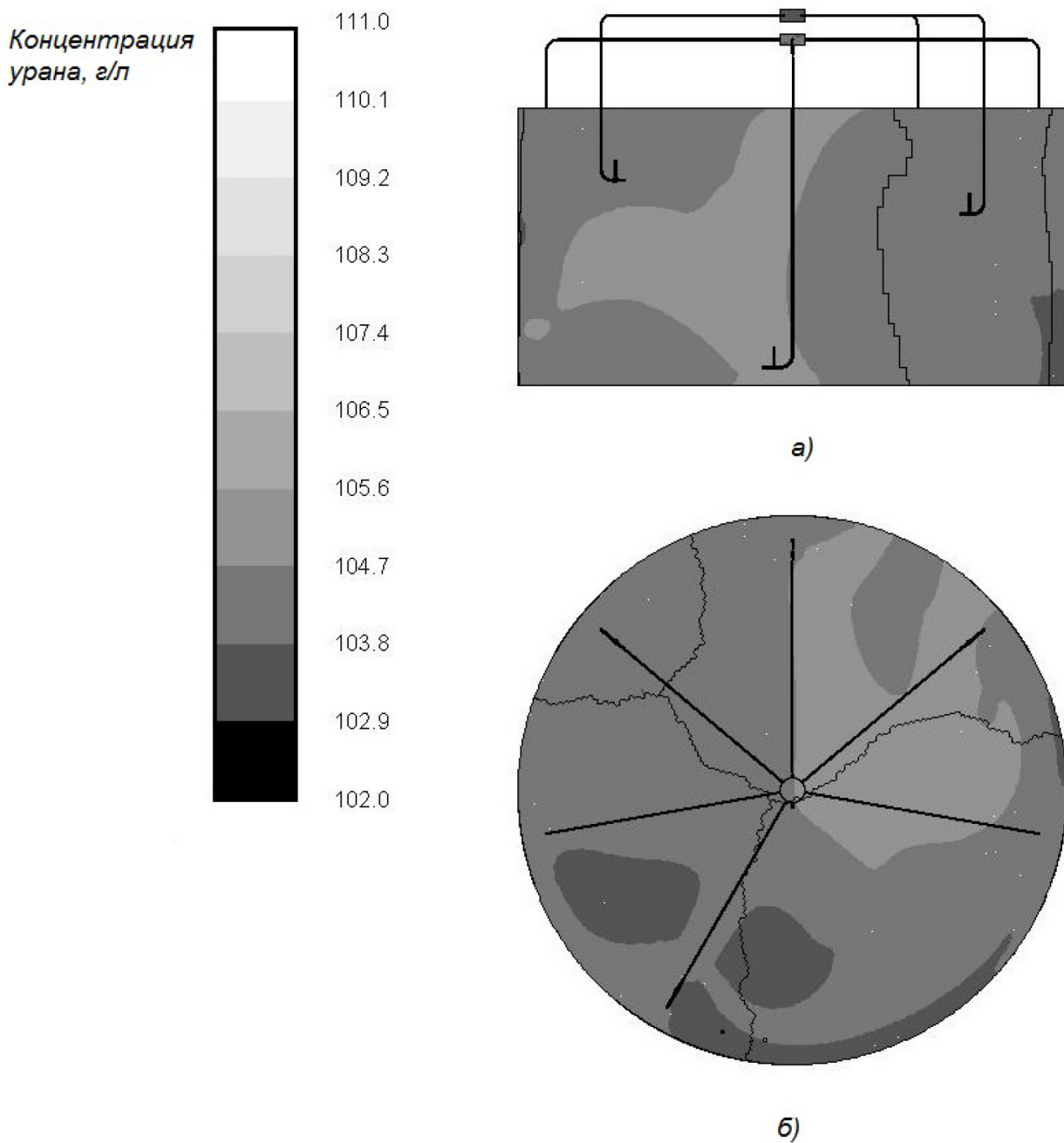


Рис. 3. Концентрация урана через 10 ч после начала перемешивания в емкости с существующей системой перемешивания: а) в осевом сечении; б) в радиальном сечении на высоте 2250 мм от дна емкости

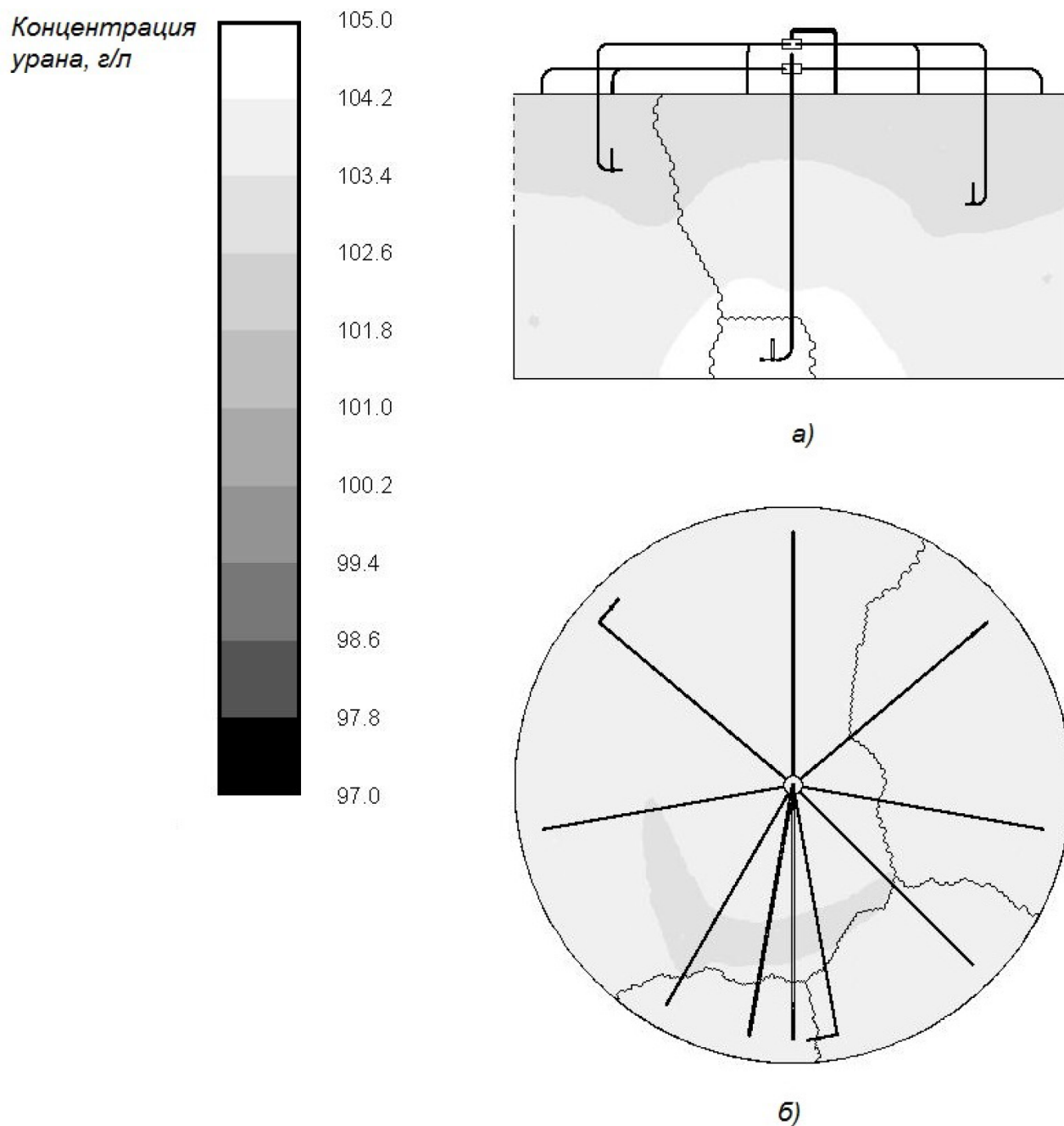


Рис. 4. Концентрация урана через 10 ч после начала перемешивания в емкости с двумя дополнительными эжекторами:
 а) в осевом сечении; б) в радиальном сечении на высоте 2250 мм от дна емкости

Концентрация урана, г/л

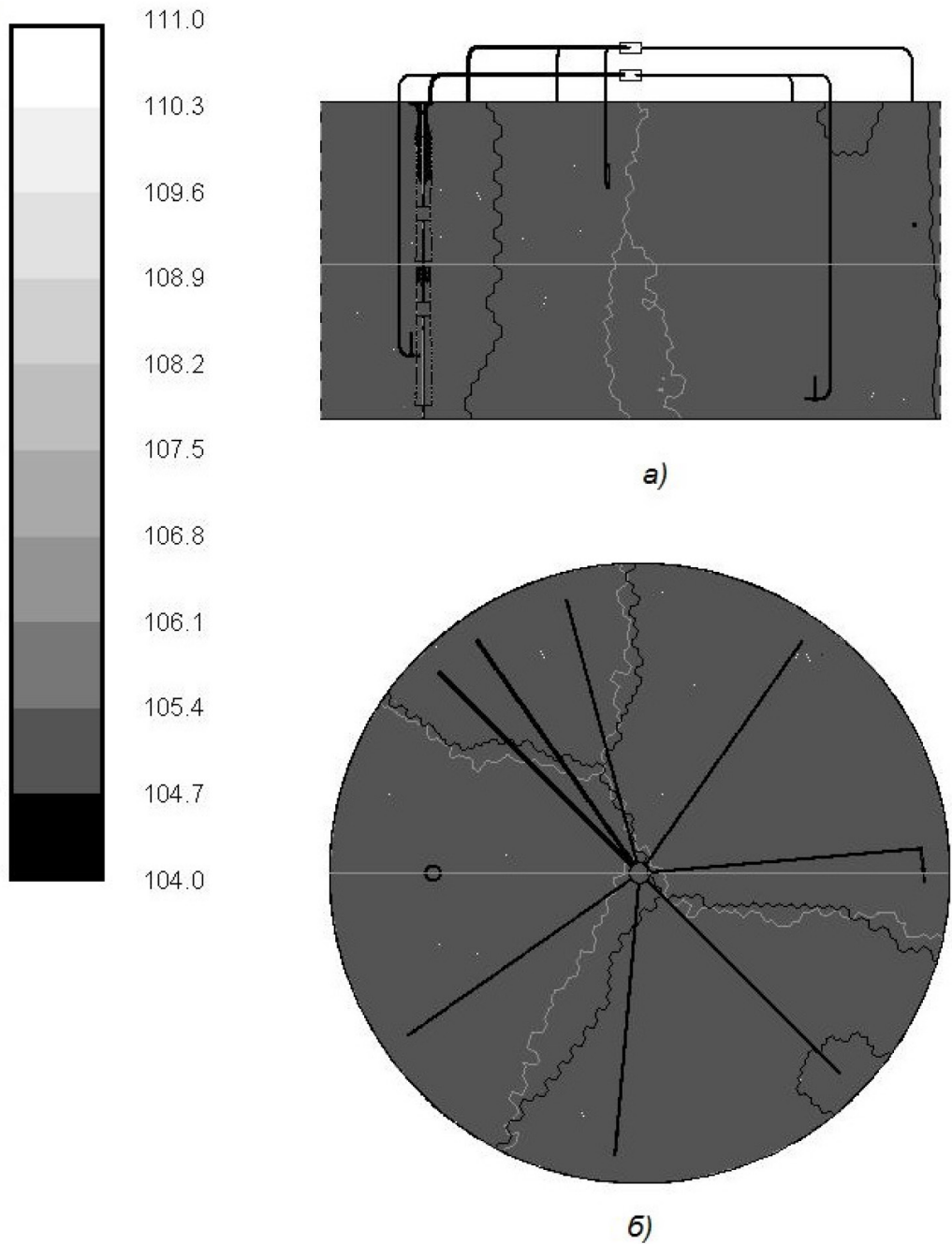


Рис. 5. Концентрация урана через 10 ч после начала перемешивания в емкости с двухъярусным механическим осевым перемешивающим устройством: а) в осевом сечении; б) в радиальном сечении на высоте 2250 мм от дна емкости. (Секущие плоскости повернуты вокруг вертикальной оси на 130° относительно рис. 3, 4)

Пороговое значение $\pm 2,5\%$ соответствует принятому в классических инженерных методиках расчета перемешивающих устройств порогу разности концентраций [11 – 13], составляющему 5% . Пороговое значение $\pm 0,5\%$, соответствующее разности концентраций 1% , принято исходя из определенной ранее погрешности сходимости решения по сетке, составляющей $0,5\%$.

На рис. 6 представлены зависимости долей объема емкости приема, занятых раствором с концентрацией урана $c_{avg} \pm 0,5\%$ (рис. 6 а)) и $c_{avg} \pm 2,5\%$ (рис. 6 б)), от продолжительности перемешивания.

Методами регрессионного анализа результатов численного моделирования с помощью пакета прикладных математических программ *Scilab* были получены стохастические модели рассмотренных режимов перемешивания. Уравнения аппроксимирующих кривых, показанных на рис. 6 пунктирными линиями, соответственно, для существующей системы перемешивания, системы перемешивания с дополнительными эжекторами и системы перемешивания с дополнительным механическим перемешивающим устройством, имеют вид:

▪ для доли объема с концентрацией урана $c_{avg} \pm 0,5\%$:

$$X_{\pm 0,5\%} = 0,015 + \frac{0,7}{1 + \exp\left(\frac{t - 11,076}{0,899}\right)}; \quad (10)$$

$$X_{\pm 0,5\%} = 0,025 + \frac{0,883}{1 + \exp\left(\frac{t - 12,262}{1,731}\right)}; \quad (11)$$

$$X_{\pm 0,5\%} = -0,007 + \frac{0,955}{1 + \exp\left(\frac{t - 10,396}{3,03}\right)}; \quad (12)$$

▪ для доли объема с концентрацией урана $c_{avg} \pm 2,5\%$:

$$X_{\pm 2,5\%} = 0,017 + \frac{0,99}{1 + \exp\left(\frac{t - 7,649}{1,447}\right)}; \quad (13)$$

$$X_{\pm 2,5\%} = -0,103 + \frac{1,109}{1 + \exp\left(\frac{t - 4,389}{2,213}\right)}; \quad (14)$$

$$X_{\pm 2,5\%} = 0,091 + \frac{0,9}{1 + \exp\left(\frac{t - 5,844}{1,45}\right)}; \quad (15)$$

где:

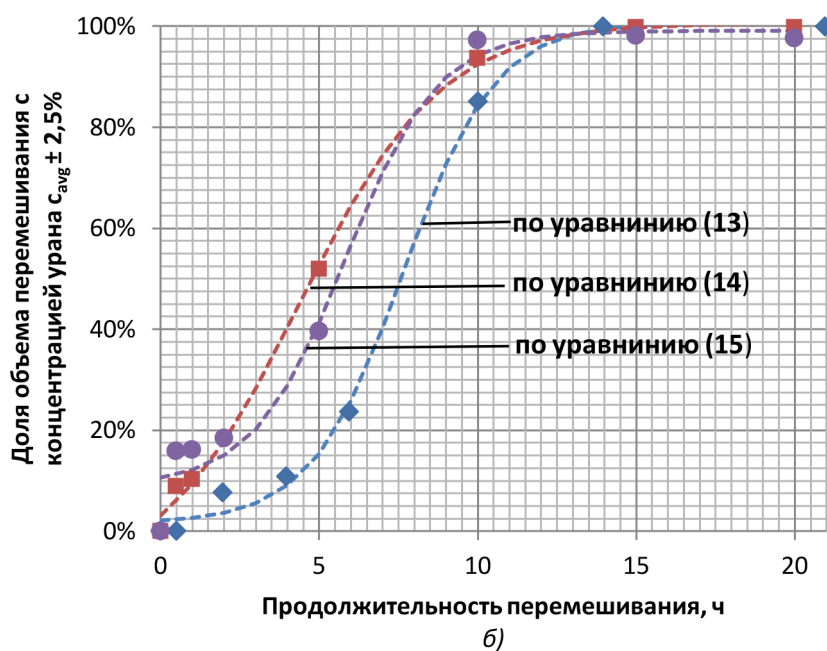
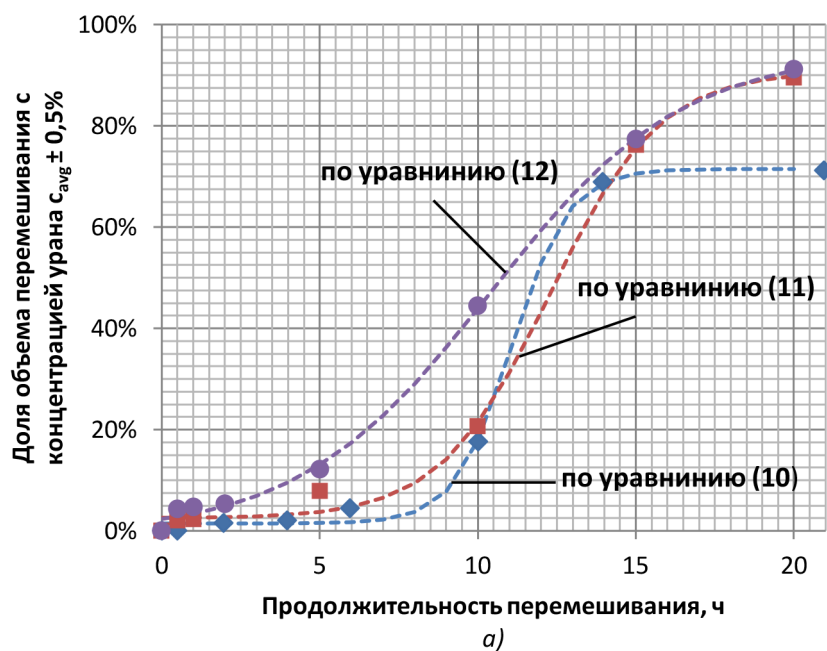
$X_{\pm 0,5\%}$ – доля объема емкости приема, занятая технологическим раствором с концентрацией урана $c_{avg} \pm 0,5\%$;

$X_{\pm 2,5\%}$ – доля объема емкости приема, занятая технологическим раствором с концентрацией урана $c_{avg} \pm 2,5\%$;

t – продолжительность перемешивания, ч.

Наиболее интенсивное изменение доли объема емкости приема с концентрацией урана $c_{avg} \pm 2,5\%$ (рис. 6 б)) наблюдается в первые 10 ч с начала момента перемешивания. При этом рост доли объема с $c_{avg} \pm 2,5\%$ на данном временном интервале для системы перемешивания с дополнительными эжекторами происходит практически линейно, в то время как для существующей системы перемешивания и для системы с дополнительным механическим перемешиванием – с плавно увеличивающейся скоростью роста. Так, через 5 часов данный показатель для существующей системы перемешивания составляет 15% , для системы с дополнительным механическим перемешиванием – 41% , для системы перемешивания с дополнительными эжекторами – 53% . Через 10 ч перемешивания доли объема с концентрацией урана $c_{avg} \pm 2,5\%$ для модернизированных систем перемешивания уравниваются и составляют около 93% , для существующей системы перемешивания за то же время доля объема с $c_{avg} \pm 2,5\%$ достигает 84% .

Через 14 часов перемешивания доля объема с концентрацией урана $c_{avg} \pm 2,5\%$ для всех рассмотренных систем перемешивания достигает уровня, близкого к 98% , и далее практически не изменяется. При этом в абсолютных величинах колебания концентрации урана в области с концентрацией $c_{avg} \pm 2,5\%$ составляют до $5,5$ г/л, колебания концентрации плутония – до $1,1$ мкг/л. Колебания технологических показателей в рассмотренных интервалах могут приводить к снижению качества плава, полученного в результате упаривания азотнокислых растворов урана. Особенно актуально данное замечание для продукции с повышенными требованиями к чистоте и равномерности химического и радиохимического состава.



- ◆ существующая система перемешивания
- система перемешивания, снабженная двумя дополнительными эжекторами
- система перемешивания, снабженная механическим перемешивающим устройством

Рис.6. Зависимости доли объема емкости с концентрацией урана от продолжительности перемешивания:
 а) $c_{avg} \pm 0,5 \%$; б) $c_{avg} \pm 2,5 \%$

Таким образом, использование порогового значения по концентрации урана $c_{avg} \pm 2,5 \%$, традиционно применяемого для химических производств, не может быть достаточным в связи со спецификой конкретного производства. Для анализа результатов усреднения состава технологических растворов требуется более точная количественная оценка.

На рис. 6 а) показана зависимость доли объема емкости с концентрацией урана $c_{avg} \pm 0,5 \%$ от продолжительности перемешивания для всех рассмотренных вариантов организации перемешивания. На интервале до 12 ч с начала перемешивания для всех рассмотренных систем перемешивания наблюдается рост доли объема емкости с $c_{avg} \pm 0,5 \%$. Причем, наиболее быстрый рост доли с $c_{avg} \pm 0,5 \%$ обеспечивается при использовании дополнительного механического перемешивания. Для систем со струйным перемешиванием как с существующими, так и с дополнительными эжекторами, на данном временном интервале значения доли с $c_{avg} \pm 0,5 \%$ достаточно близки. После 14 – 15 ч перемешивания картина изменения доли объема с $c_{avg} \pm 0,5 \%$ меняется. Для существующей системы перемешивания данный показатель выходит на уровень насыщения 72 %. Для систем с дополнительными перемешивающими устройствами значения доли объема емкости с $c_{avg} \pm 0,5 \%$ практически уравниваются и продолжают расти с плавным замедлением, достигая через 20 ч с начала перемешивания 90 – 91 %.

В абсолютных величинах колебания концентрации урана в доле объема емкости с $c_{avg} \pm 0,5 \%$ составляют до 1,1 г/л, колебания концентрации плутония – до 0,2 мкг/л.

Вообще говоря, для количественной оценки эффективности усреднения состава технологических растворов могут применяться и более узкие интервалы колебаний концентрации, чем $c_{avg} \pm 0,5 \%$. Для этого необходимо повышение точности решения и снижение погрешности сходимости по сетке, что может быть достигнуто при применении более плотных конечноэлементных сеток или путем уменьшения шага дискретизации решения по времени. Однако в таком случае ресурсоемкость задач моделирования существенно возрастет.

Следует отметить, что так как радиационная активность технологических растворов рассчитывалась по концентрации урана, уравнения (10) – (15) можно использовать также для расчета доли растворов с активностью, состоящей $\pm 0,5 \%$ и $\pm 2,5 \%$ от средней активности. Среднюю актив-

ность растворов в емкости приема следует принимать по таблице.

В результате анализа полученных данных можно сделать вывод, что эффективность усреднения химического состава и радиационной активности растворов в емкостях приема, оборудованных дополнительными механическими и струйными перемешивающими устройствами, сопоставима для времени перемешивания 20 ч и более. Для времени перемешивания 10 ч и менее наилучшую эффективность показала система перемешивания, снабженная дополнительным механическим двухъярусным осевым перемешивающим устройством. Для всех рассмотренных случаев системы перемешивания с дополнительными перемешивающими устройствами показали более высокую эффективность, чем существующая система перемешивания.

Выводы

1. Показано, что усреднение состава азотно-кислых растворов урана при их подготовке к упариванию осуществляется, главным образом, по конвективному механизму. Влияние диффузионных эффектов перемешивания пренебрежимо мало.

2. Показано, что традиционно применяемый в химической промышленности порог разности концентраций в объеме перемешивания 5 % не позволяет дать достаточно точную оценку эффективности усреднения состава в емкостях приема азотнокислых растворов урана в силу требований к качеству конечной продукции.

3. Установлено, что в процессе подготовки к упариванию в емкостях приема азотнокислых растворов урана при использовании существующих систем струйного перемешивания обеспечивается усреднение химического состава и радиационной активности 72 % от растворов, поступающих с экстракционного цикла. При этом в растворах усредненного состава концентрация урана равна средней концентрации по объему перемешивания $\pm 0,5 \%$. Усреднение химического состава и радиационной активности раствора до указанного состояния происходит за 14 – 16 часов.

4. Дальнейшее перемешивание не позволяет существенным образом снизить неусредненность химического состава и радиационной активности технологических растворов. Через 20 ч перемешивания доля объема емкости с концентрацией урана, равной средней по емкости $\pm 0,5 \%$, составляет 74 %.

5. Установка в емкости дополнительных струйных и механических перемешивающих устройств позволяет сократить время перемешивания, необходимое до достижения доли объема емкости с усреднением радиационной активности, равной 72 %, и химического состава растворов до уровня $c_{avg} \pm 0,5 \%$, на 2 – 3 ч и при продолжительности перемешивания 19 – 20 ч может достичь доли объема перемешивания с концентрацией по урану $c_{avg} \pm 0,5 \%$ до 90 – 92 % и выше.

6. Лучшая эффективность усреднения химического состава и радиационной активности технологических растворов достигается при использовании

дополнительного механического перемешивания. Особенно заметна интенсификация процессов усреднения при использовании механического перемешивания в первые 10 ч с начала перемешивания.

7. Разработаны графические материалы и уравнения расчета доли объема емкостей приема азотнокислых растворов урана, занятых раствором с концентрацией по урану $c_{avg} \pm 0,5 \%$ и $c_{avg} \pm 2,5 \%$, в зависимости от продолжительности перемешивания. Уравнения и таблица позволяют также произвести количественные оценки концентрации плутония в емкостях приема и радиационной активности технологических растворов.

Список литературы

1. Глаголенко Ю.В., Дзекун Е.Г., Медведев Г.М. Переработка отработавшего ядерного топлива АЭС и жидких радиоактивных отходов на ПО «Маяк». Атомная энергия, Т. 83, № 6, 1997.
2. Хомяков А.П., Морданов С.В., Никулин В.А., Корченкин К.К. Исследование гидродинамики перемешивания в ёмкостях приёма азотнокислых растворов урана. Вопросы радиационной безопасности, № 3, 2013.
3. Manninen M. On the Mixture Model for Multiphase Flow / M. Manninen, V. Taivassalo. – Espoo: Technical Research Center of Finland, VTT Publications, 1996.
4. Brennen C. E. Fundamentals of Multiphase Flows / C. E. Brennen. – Cambridge: Cambridge University Press, 2005.
5. Wilcox D.C. Turbulence Modeling for CFD / D.C. Wilcox. – San Diego, California: DCW Industries, 2006.
6. Авраменко, М.И. О $k-\epsilon$ модели турбулентности. 2е изд., перераб. и дополн. Снежинск: Изд-во РФЯЦ – ВНИИТФ, 2010.
7. Marshall M. Computational Fluid Mixing / E.M. Marshall, A. Bakker–Lebanon: Fluent Inc, 2003.
8. Морданов С.В., Хомяков А.П., Никулин В.А. Экспериментальная проверка адекватности численной модели струйного перемешивания. IV Информационная школа молодого ученого: сб. трудов. – Екатеринбург, УЦАО, 2015.
9. Schubert J. Diffusion Coefficients of Carriers-Free Fission Product in Uranyl Nitrate and Acid Solutions. Technical Information Branch / J. Schubert, E.C.Cohn.. – Oak Ridge: Oak Ridge National Laboratory, 1948.
10. Ondrejcin R.S. Physical Properties Of Uranium Process Solutions / R.S. Ondrejcin. – Savanna: Savanna River Laboratory, 1961.
11. Стренк Ф. Перемешивание и аппараты с мешалками. Пер. с польского И.А. Щупляка. – Л., Химия, 1975.
12. Tatterson G.B. Scaleup and Desing of Industrial Mixing Processes / G.B. Tatterson. – 2-nd ed. – Greensboro: North Carolina A&T University, 2003.
13. Штербачек З., Тауск П. Перемешивание в химической промышленности. Пер. с чешского под ред. Павлушенко И.С. – Л., ГХИ, 1963.

References

1. Glagolenko YU.V., Dzekun E.G., Medvedev G.M. Pererabotka otrabotavshego yadernogo topliva AEHS i zhidkih radioaktivnyh othodov na PO «Mayak». Atomnaya ehnergiya, T. 83, № 6, 1997.
2. Homyakov A.P., Mordanov S.V., Nikulin V.A., Korchenkin K.K. Issledovanie gidrodinamiki peremeshivaniya v yomkostyah priyoma azotnokislyh rastvorov urana. Voprosy radiacionnoj bezopasnosti, № 3, 2013.

3. Manninen M. On the Mixture Model for Multiphase Flow / M. Manninen, V. Taivassalo. – Espoo: Technical Research Center of Finland, VTT Publications, 1996.
4. Brennen C. E. Fundamentals of Multiphase Flows / C. E. Brennen. – Cambridge: Cambridge University Press, 2005.
5. Wilcox D.C. Turbulence Modeling for CFD / D.C. Wilcox. – San Diego, California: DCW Industries, 2006.
6. Avramenko, M.I. O k - ϵ modeli turbulentnosti. 2e izd., pererab. i dopoln. Snezhinsk: Izd-vo RFYAC – VNIITF, 2010.
7. Marshall M. Computational Fluid Mixing / E.M. Marshall, A. Bakker– Lebanon: Fluent Inc, 2003.
8. Mordanov S.V., Homyakov A.P., Nikulin V.A. Eksperimental'naya proverka adekvatnosti chislennoj modeli strujnogo peremeshvaniya. IV Informacionnaya shkola molodogo uchenogo: sb. trudov. – Ekaterinburg, UCAO, 2015.
9. Schubert J. Diffusion Coefficients of Carriers-Free Fission Product in Uranyl Nitrate and Acid Solutions. Technical Information Branch / J. Schubert, E.C.Cohn.. – Oak Ridge: Oak Ridge National Laboratory, 1948.
10. Ondrejcin R.S. Physical Properties Of Uranium Process Solutions / R.S. Ondrejcin. – Savanna: Savanna River Laboratory, 1961.
11. Strenk F. Peremeshivanie i apparaty s meshalkami. Per. s pol'skogo I.A. SHCHuplyaka. – L., Himiya, 1975.
12. Tatterson G.B. Scaleup and Desing of Industrial Mixing Processes / G.B. Tatterson. – 2-nd ed. – Greensboro: North Carolina A&T University, 2003.
13. SHterbachek Z., Tausk P. Peremeshivanie v himicheskoy promyshlennosti. Per. s cheshskogo pod red. Pavlushenko I.S. – L., GHI, 1963.

