

РАЗДЕЛЕНИЕ МНОГОКОМПОНЕНТНОЙ ИЗОТОПНОЙ СМЕСИ В ПРОЦЕССЕ ЗАПОЛНЕНИЯ КАСКАДА ГАЗОВЫХ ЦЕНТРИФУГ

А.А. Орлов*, А.А. Ушаков*.,*, В.П. Совач****

* *Томский политехнический университет*

634050, г. Томск, пр. Ленина, 30

** *АО «ПО ЭХЗ»*

663690, Красноярский край, г. Зеленогорск, ул. Первая Промышленная, 1

Р

Широкое применение в ядерной энергетике, медицине, фундаментальных исследованиях, сельском хозяйстве и других областях нашли изотопно-модифицированные материалы с изотопным составом, отличным от природного. Интерес исследователей прикован к разделению многокомпонентных изотопных смесей в каскадах газовых центрифуг. Стационарному режиму разделения многокомпонентной изотопной смеси в каскаде газовых центрифуг предшествует нестационарный процесс, который условно можно разделить на две стадии: заполнение каскада рабочим веществом и установление равновесных концентраций компонентов в каскаде. Изучение процесса заполнения каскада до настоящего времени не проводилось, поэтому для расчета второй стадии при задании начальных условий использовалось допущение, что концентрации компонентов в ступенях каскада после его заполнения соответствуют их концентрациям в исходной многокомпонентной изотопной смеси. Учитывая, что от начальных условий зависит характер изменения концентраций компонентов в ходе нестационарного процесса и его длительность, целесообразно провести исследование процесса разделения многокомпонентной изотопной смеси в ходе заполнения каскада и проверить справедливость этого допущения.

Приведены результаты моделирования процесса заполнения каскада при различном количестве ступеней каскада и величине потока питания, а также при подаче потока питания в различные ступени каскада на примере разделения изотопов германия. Определены закономерности изменения концентраций изотопов Ge в ступенях и потоках каскада. В процессе заполнения каскада происходит разделение изотопов Ge и их распределение по ступеням каскада в соответствии с их массовыми числами. Увеличение потока питания приводит к уменьшению продолжительности заполнения каскада, снижению максимальных концентраций изотопов и перераспределению их по каскаду. Концентрации каждого изотопа Ge в каскаде после его заполнения находятся в широком диапазоне значений. Показано, что допущение о равенстве концентраций изотопов в ступенях после заполнения каскада концентрациям в исходной смеси (потоке питания) является достаточно грубым приближением. Использование этого допущения при задании начальных условий для моделирования нестационарного разделительного процесса приводит к изменению расчетной динамики концентраций изотопов в потоках каскада.

Ключевые слова: математическое моделирование, каскад, разделение, изотоп, заполнение, нестационарный процесс, германий, газовая центрифуга, концентрация, ступень.

ВВЕДЕНИЕ

Широкое применение в различных областях народного хозяйства (ядерная энергетика, медицина, фундаментальные исследования, сельское хозяйство и т.д.) нашли изотопно-модифицированные материалы [1]. В них содержание изотопов химических элементов отличается от природного [2]. Изменение состава изотопной смеси происходит в процессе ее разделения каким-либо методом. Основы теории разделения двухкомпонентных изотопных смесей [3] для случаев слабого и произвольного обогащения урана были заложены при реализации проекта по созданию ядерного оружия. Затем обогащенный ^{235}U стали использовать для получения тепла и энергии. На смену низкоэффективной газодиффузионной технологии обогащения урана пришел метод с использованием газовых центрифуг (ГЦ) [4]. Со временем ГЦ стали использовать для разделения изотопов других химических элементов [5]. Сегодня интерес исследователей прикован к разделению многокомпонентных изотопных смесей (МИС) в каскадах ГЦ.

При эксплуатации каскада газовых центрифуг для разделения многокомпонентных изотопных смесей возникают нестационарные гидравлические процессы, в ходе которых изменяются величины давлений и потоков рабочего вещества в ступенях каскада и выходящих потоках. Нестационарный гидравлический процесс порождает нестационарный разделительный процесс, в ходе которого происходит изменение изотопного состава рабочего вещества в ступенях и потоках каскадов. Во всех нестационарных процессах необходимо обеспечить безопасную эксплуатацию разделительного оборудования и свести к минимуму потери работы разделения. Каскады ГЦ имеют меньшее газосодержание по сравнению с газодиффузионными каскадами, следовательно, и меньшую инерционность. Малая инерционность приводит к усилению влияния нестационарных процессов на эффективность работы каскадов. Особенно это может отразиться на работе каскадов ГЦ для разделения МИС [6, 7], которые в отличие от каскадов для разделения изотопов урана имеют существенно меньшее количество ГЦ и отличаются регулирующими устройствами.

В связи с этим приобрело актуальность решение задачи изучения и полномасштабного учета нестационарных процессов при разделении МИС. Использование экспериментального подхода к решению данной задачи является затратным и требует создания дополнительных исследовательских установок. Поэтому целесообразно изучать нестационарные процессы путем их математического моделирования. Известные математические модели [8 – 12] описывают нестационарные разделительные процессы при постоянных гидравлических параметрах. Для устранения указанных недостатков разработана математическая модель нестационарных гидравлических и разделительных процессов [13, 14] и проведена ее верификация на примере разделения изотопов Ge, Kr и Si [15].

Стационарному режиму разделения МИС в каскаде ГЦ предшествует нестационарный процесс, который условно можно разделить на две стадии: заполнение каскада рабочим веществом и установление равновесных концентраций компонентов в каскаде. Основное внимание было приковано ко второй стадии из-за ее значительной длительности [8 – 12]. Изучение процесса заполнения каскада до настоящего времени никем не проводилось, поэтому для расчета второй стадии при задании начальных условий использовалось допущение, что концентрации компонентов в ступенях каскада после его заполнения соответствуют их концентрациям в исходной МИС. Учитывая, что от начальных условий зависят характер изменения концентраций компонентов в ходе нестационарного процесса и его длительность [13 – 15], целесообразно провести исследование

процесса разделения МИС в ходе заполнения каскада и проверить справедливость этого допущения.

В статье приведены результаты исследований процесса заполнения каскада ГЦ рабочим веществом. Исследования проведены для случая разделения изотопов Ge, которые используются при создании полупроводниковых материалов, изучении безнейтринного двойного β -распада. Изотопы Ge также используются в качестве стартового материала для получения радиоактивных изотопов мышьяка (например, из ^{70}Ge получают радиоактивный изотоп ^{72}As , который используется в медицинской диагностике).

ОПИСАНИЕ МАТЕМАТИЧЕСКОЙ МОДЕЛИ

Разделение МИС происходит в каскаде ГЦ. Рабочее вещество содержит n компонентов (изотопов) с индексом j ($j = 1, \dots, n$). Каскад состоит из S ступеней (рис. 1) с индексом i ($i = 1, \dots, S$). Ступени соединены по противоточно-симметричной схеме. В каскад подается поток питания F и отбираются потоки легкой P и тяжелой W фракции. Поток питания подается в ступень с индексом S_F , поток тяжелой фракции отбирается из первой ступени, поток легкой фракции – из ступени S .

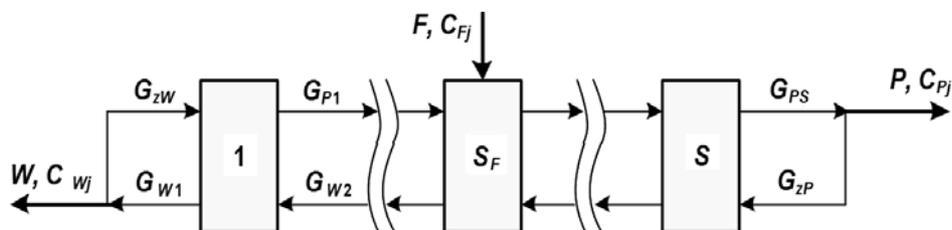


Рис. 1. Разделительный каскад

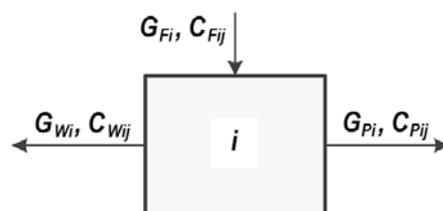


Рис. 2. Разделительная ступень

Разделительная ступень состоит из N_i параллельно соединенных ГЦ. В нее подается поток питания G_{Fi} . Из ступени отбираются потоки легкой G_{Pi} и тяжелой G_{Wi} фракций (рис. 2). Концентрация j -го компонента в потоках питания, легкой и тяжелой фракций i -ой ступени обозначены C_{Fij} , C_{Pij} и C_{Wij} соответственно. Тяжелая фракция первой ступени может частично возвращаться потоком закрутки тяжелой фракции G_{zW} на питание первой ступени. Легкая фракция ступени S может частично возвращаться потоком закрутки легкой фракции G_{zP} на питание ступени S .

При отсутствии коррозионных потерь рабочего вещества потоки ступеней и концентрации компонентов в них в стационарном гидравлическом режиме связаны уравнениями баланса рабочего вещества и компонента (изотопа):

$$G_{Fi} = G_{Pi} + G_{Wi} \quad (1)$$

$$G_{Fi} C_{Fij} = G_{Pi} C_{Pij} + G_{Wi} C_{Wij} \quad (2)$$

$$\theta_i = G_{Pi} / G_{Fi} \quad (3)$$

где θ_i – коэффициент деления потока питания i -ой ступени.

Сумма концентраций всех компонентов для любого потока равна единице.

Разделение компонентов в ступени определяется выражениями

$$\chi_{ijl} = (C_{Pij} C_{Wil}) / (C_{Pil} C_{Wij}), \quad (4)$$

$$\chi_{ijl} = \chi_{0i}^{M_j - M_l}, \quad (5)$$

где χ_{ijl} – коэффициент разделения j -го и l -го компонента в i -ой ступени; χ_{0i} – коэффициент разделения, приходящийся на единицу разности массовых чисел; M_j, M_l – массовые числа j -го и l -го компонента соответственно.

Величина χ_{0i} зависит от гидравлических параметров ступени:

$$\chi_{0i} = f(G_{Fi}, \theta_i). \quad (6)$$

Потоки каскада в стационарном гидравлическом режиме связаны уравнениями баланса:

$$F = P + W, \quad (7)$$

$$FC_{Fj} = PC_{Pj} + WC_{Wj}. \quad (8)$$

Методика расчета нестационарных гидравлических и разделительных процессов основана на следующих положениях [13 – 15]:

- в каждой ступени каскада выделяется конечное число объемов, в которых содержится рабочее вещество;
- в любой момент времени температура, давление рабочего вещества и концентрация j -го компонента одинаковы во всем объеме;
- основными уравнениями модели являются уравнения баланса рабочего вещества и компонентов в каждом объеме и уравнение разделения МИС в ГЦ.

Выделенный объем V имеет следующие характеристики: давление рабочего вещества p ; концентрация j -го компонента C_j ; физические свойства рабочего вещества (молярная масса μ , динамическая вязкость η , температура T); масса рабочего вещества (газосодержание объема) H , значение которой определяется величинами V, p, μ и T .

Все газосодержание каскада принято сосредоточенным в $4S$ объемах: S объемов ГЦ ступени; S объемов коллектора питания; S объемов коллектора легкой фракции; S объемов коллектора тяжелой фракции.

Поступающий в i -ю ступень поток G_{Fi} определяется как

$$G_{Fi} = \begin{cases} \delta_i F + G_{zW} + G_{W_{i+1}}, & i = 1; \\ \delta_i F + G_{P_{i-1}} + G_{W_{i+1}}, & i = 2, \dots, S-1; \\ \delta_i F + G_{P_{i-1}} + G_{zP}, & i = S; \end{cases} \quad (9)$$

$$\delta_i = \begin{cases} 1, & i = S_F; \\ 0, & i \neq S_F, \end{cases} \quad (10)$$

где δ_i – коэффициент, характеризующий наличие внешнего потока питания F в i -ю ступень.

Концентрация C_{Fij} в потоке G_{Fi} определяется выражением

$$C_{Fij} = \frac{1}{G_{Fi}} \cdot \begin{cases} \delta_i FC_{Fj} + G_{zW} C_{Wij} + G_{W_{i+1}} C_{W_{i+1}j}, & i = 1; \\ \delta_i FC_{Fj} + G_{P_{i-1}} C_{P_{i-1}j} + G_{W_{i+1}} C_{W_{i+1}j}, & i = 2, \dots, S-1; \\ \delta_i FC_{Fj} + G_{P_{i-1}} C_{P_{i-1}j} + G_{zP} C_{P_{ij}}, & i = S. \end{cases} \quad (11)$$

Частота вращения роторов ГЦ и температурный режим их работы не изменяются.

Газосодержание ступени H_i определяется как сумма газосодержаний объемов этой ступени:

$$H_i = H_{Fi} + H_{Pi} + H_{Wi} + H'_{i}, \quad (12)$$

где $H'_{i}, H_{Fi}, H_{Pi}, H_{Wi}$ – газосодержание ГЦ, коллекторов питания, легкой и тяжелой фракции i -й ступени, кг.

Средневзвешенная концентрация компонента в ступени $C^{a_{ij}}$ определяется как

$$C_{ij}^a = (H_{Fi}C'_{Fij} + H_{Pi}C_{Pij} + H_{Wi}C_{Wij} + H'_iC'_{ij}) / H_i, \quad (13)$$

где C'_{i} , C'_{Fi} , C_{Pi} , C_{Wi} – концентрация j -го компонента в ГЦ, коллекторах питания, легкой и тяжелой фракции.

Средневзвешенное массовое число изотопной смеси M^a_i в ступени определяется как

$$M^a_i = \sum_{j=1}^n C_{ij}^a M_j. \quad (14)$$

Газосодержание каскада H_k и концентрация компонента в нем C_{Hj} определяется как

$$H_k = \sum_{i=1}^S H_i, \quad (15)$$

$$C_{Hj} = \frac{1}{H_k} \sum_{i=1}^S C_{ij}^a H_i. \quad (16)$$

Основными уравнениями нестационарного гидравлического процесса являются уравнения баланса рабочего вещества в выделенных объемах [13]:

$$\begin{cases} dH'_i / dt = G'_{Fi} - G'_{Pi} - G'_{Wi}; \\ dH_{Fi} / dt = G_{Fi} - G'_{Fi}; \\ dH_{Wi} / dt = \begin{cases} G'_{Wi} - W - G_{zW}, & i = 1; \\ G'_{Wi} - G_{Wi}, & i = 2, \dots, S; \end{cases} \\ dH_{Pi} / dt = \begin{cases} G'_{Pi} - G_{Pi}, & i = 1, \dots, S-1; \\ G'_{Pi} - P - G_{zP}, & i = S. \end{cases} \end{cases} \quad (17)$$

Основными уравнениями нестационарного разделительного процесса являются уравнения баланса рабочего вещества и компонентов (изотопов) в выделенных объемах [14, 15]:

$$\begin{cases} d(H'_i C'_{ij}) / dt = G'_{Fi} C'_{Fij} - G'_{Pi} C'_{Pij} - G'_{Wi} C'_{Wij}; \\ d(H_{Fi} C'_{Fij}) / dt = G_{Fi} C'_{Fij} - G'_{Fi} C'_{Fij}; \\ d(H_{Wi} C_{Wij}) / dt = \begin{cases} G'_{Wi} C_{Wij} - (W + G_{zW}) \cdot C_{Wij}, & i = 1; \\ G'_{Wi} C'_{Wij} - G_{Wi} C_{Wij}, & i = 2, \dots, S; \end{cases} \\ d(H_{Pi} C_{Pij}) / dt = \begin{cases} G'_{Pi} C'_{Pij} - G_{Pi} C_{Pij}, & i = 1, \dots, S-1; \\ G'_{Pi} C'_{Pij} - (P + G_{zP}) \cdot C_{Pij}, & i = S. \end{cases} \end{cases} \quad (18)$$

Алгоритм решения дифференциальных уравнений, описывающих нестационарные гидравлические и разделительные процессы, приведен в работах [13 – 15].

РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТА КАСКАДА ДЛЯ РАЗДЕЛЕНИЯ ИЗОТОПОВ ГЕРМАНИЯ

Рассмотрен каскад постоянной ширины, имеющий одинаковую производительность G_F всех ступеней в стационарном режиме. В качестве рабочего вещества для разделения изотопов Ge использовался тетрафторид германия (GeF_4 , молярная масса $\mu = 149$ кг/кмоль). Изотопный состав природного Ge и концентрации молекул GeF_4 приведены в табл. 1. Коэффициент разделения ГЦ при работе на $GeF_4 - \chi_0 = 1,1$.

Изотопный состав природного германия [16]

Таблица 1

Массовое число изотопа Ge, а.е.м.	70	72	73	74	76
Массовое число молекулы GeF_4 , а.е.м.	146	148	149	150	152
Концентрация, %	19,76	27,18	7,79	37,17	8,10

В начальный момент времени каскад пуст (газосодержание равно нулю). В процессе заполнения в каскад подается поток питания постоянной величины; величины потоков легкой и тяжелой фракций каскада равны нулю. В ходе заполнения происходит увеличение давлений и потоков рабочего вещества в ступенях каскада до стационарных значений.

Моделировался процесс заполнения каскада из 60-ти ступеней ($S = 60$) при подаче потока питания в середину каскада ($S_F = 0,5 \cdot S$) и величинах F/G_F , равных 0,05, 0,1 и 0,4. На рисунке 3 приведена зависимость средневзвешенной концентрации изотопов Ge в ступенях C_{ij}^a от величины F/G_F . Для сравнения приведены концентрации изотопов Ge в ступенях каскада при $F/G_F = 0$, соответствующие стационарному режиму каскада после заполнения, отключения потоков ($F = P = W = 0$) и выдержке при $t \rightarrow \infty$.

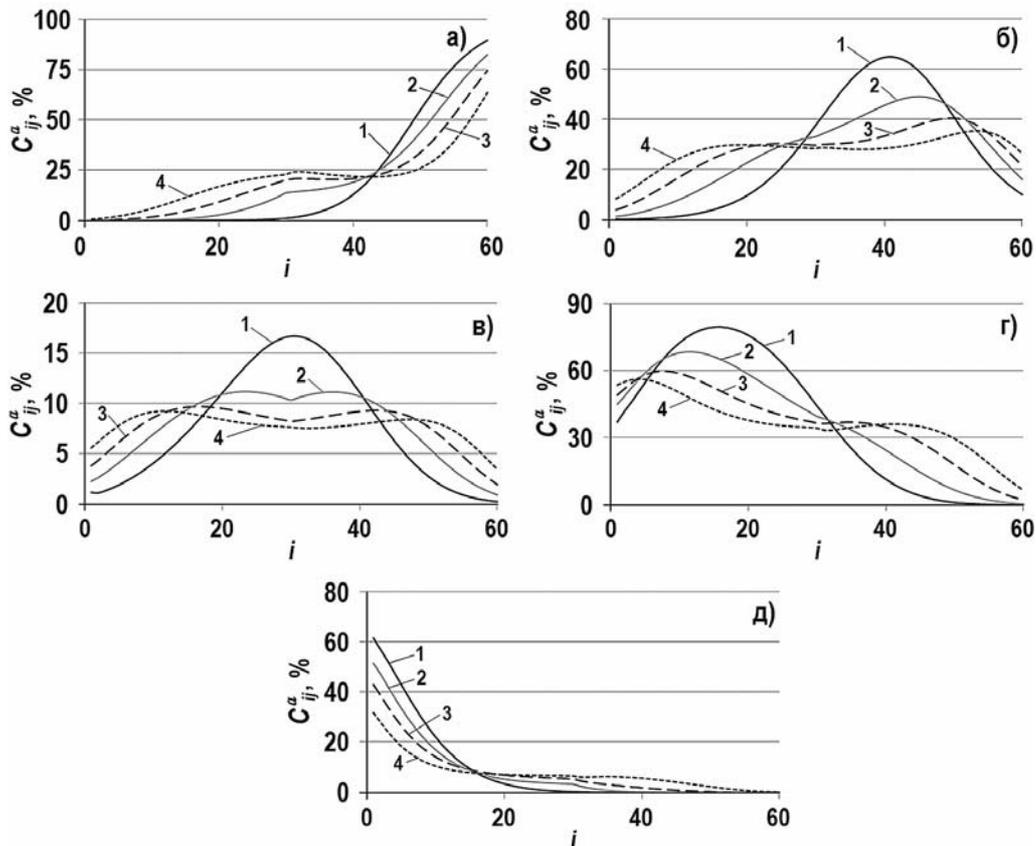


Рис. 3. Концентрация изотопов Ge по ступеням каскада в зависимости от величины F/G_F : а) – ^{70}Ge ; б) – ^{72}Ge ; в) – ^{73}Ge ; г) – ^{74}Ge ; д) – ^{76}Ge ; 1 – $F/G_F = 0$; 2 – $F/G_F = 0,05$; 3 – $F/G_F = 0,1$; 4 – $F/G_F = 0,4$

Как видно на рис. 3, в результате процесса заполнения каскада происходит разделение компонентов изотопной смеси. Они распределяются по длине каскада в соответствии с их массовыми числами. Так изотоп ^{70}Ge с наименьшим массовым числом концентрируется в ступени № 60, из которой осуществляется отбор легкой фракции каскада. Изотоп ^{76}Ge концентрируется в первой ступени каскада, откуда отбирается поток тяжелой фракции каскада. Промежуточные изотопы концентрируются в средней части каскада и распределяются в порядке возрастания массовых чисел от 5-й ступени в направлении к первой ступени каскада. Максимальное значение концентраций промежуточных изотопов наблюдается в ступени, в которой средневзвешенное массовое число смеси равно массовому числу этого изотопа ($M_i^a = M_j$). Так при $F/G_F = 0$ изотоп ^{72}Ge

имеет максимальную концентрацию в ступени $i = 41$, ^{73}Ge – в ступени $i = 30$, ^{74}Ge – в ступени $i = 16$ (кривая 1 на рис. 3б, в, г).

Максимальное значение концентрации каждого изотопа $C_{\max j}^a$ и его положение (номер ступени каскада) i_{\max} определяются прежде всего изотопным составом исходной смеси. Чем выше концентрация изотопа в исходной смеси C_{Fj} , тем больше значение $C_{\max j}^a$. Концентрация изотопа в газосодержании каскада соответствует концентрации изотопов в исходной смеси $C_{Hj} = C_{Fj}$, что согласуется с уравнениями баланса вещества и каждого изотопа в каскаде.

Максимальная концентрация изотопов Ge в каскаде зависит от величины потока питания (или скорости подачи рабочего вещества в каскад) – чем меньше F , тем больше $C_{\max j}^a$. Наблюдается также смещение положения максимума i_{\max} концентраций промежуточных изотопов ^{72}Ge и ^{73}Ge в зависимости от величины потока питания каскада. Так с увеличением F для изотопа ^{72}Ge наблюдается смещение i_{\max} ближе к отбору легкой фракции каскада (к S -й ступени), а для ^{74}Ge – к отбору тяжелой фракции каскада (к первой ступени). Это обусловлено интенсификацией процесса смешения изотопов, что происходит одновременно с процессом их разделения в ГЦ. Например, максимум концентрации ^{72}Ge смещается к ступени $j = 53$, а ^{74}Ge – к ступени $j = 4$.

При увеличении F/G_F концентрация ^{73}Ge в ступени $j = 30$ стремится к концентрации в исходной смеси ($C_{30,3}^a \rightarrow C_{F3} = 7,79\%$), что объясняется смещением потока F и потоков G_{P29} и G_{W31} , поступающих в ступень $j = 30$ и имеющих различный изотопный состав.

Помимо величины потока питания каскада на процесс разделения изотопной смеси в ходе заполнения каскада оказывает влияние положение подачи потока питания (номер ступени, в которую подается поток питания).

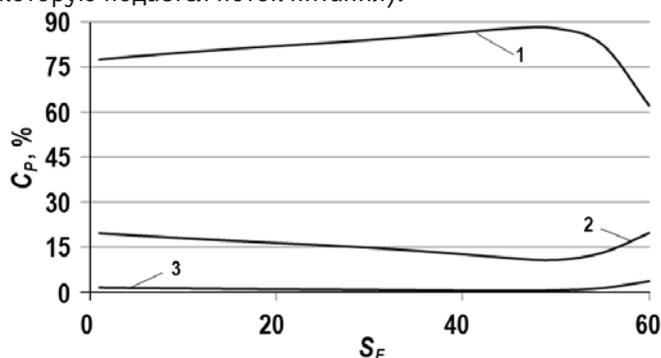


Рис. 4. Концентрация изотопов Ge в потоке легкой фракции каскада после его заполнения в зависимости от номера ступени подачи потока питания: 1 – ^{70}Ge ; 2 – ^{72}Ge ; 3 – ^{73}Ge

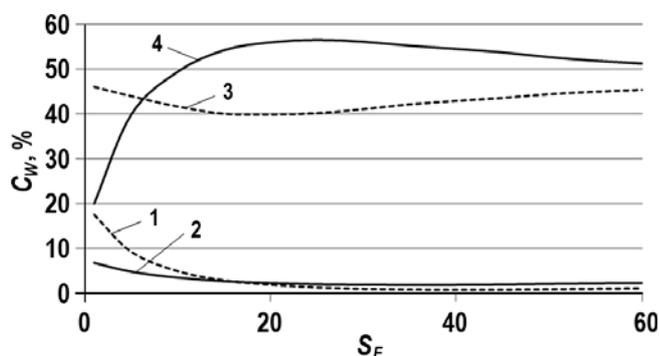


Рис. 5. Концентрация изотопов Ge в потоке тяжелой фракции каскада после его заполнения в зависимости от номера ступени подачи потока питания: 1 – ^{72}Ge ; 2 – ^{73}Ge ; 3 – ^{74}Ge ; 4 – ^{76}Ge

На рисунках 4, 5 приведены результаты моделирования процесса заполнения каскада из 60-ти ступеней – $S = 60$, отношение величин потока питания каскада и производи-

тельности ступени – $F/G_F = 0,13$ и подаче потока питания в различные ступени каскада.

Из рисунков видно, что концентрации изотопов в потоках легкой C_{Pj} и тяжелой C_{Wj} фракций зависят от номера ступени подачи потока питания. Вид такой зависимости индивидуален для каждого изотопа. Максимальная концентрация ^{70}Ge в потоке P наблюдается при подаче потока питания в ступень № 48 (см. рис. 4), при этом концентрации остальных изотопов Ge имеют минимальные значения. В потоке W концентрация ^{70}Ge снижается с увеличением значения S_F . Кривые зависимости концентрации остальных изотопов от значения S_F имеют унимодальный вид с максимальным или минимальным значением при $S_F = 20 - 40$. В таблице 2 приведены оптимальные номера ступеней подачи потока питания, при которых наблюдается максимальная концентрация изотопов Ge в потоках легкой или тяжелой фракции каскада. Например, в потоке тяжелой фракции максимальная концентрация изотопа ^{76}Ge составляет 56,5 % после заполнения каскада в ступень $S_{\text{Фопт}} = 25$.

Таблица 2

Оптимальный номер ступени подачи потока питания

Изотоп	Поток каскада	Оптимальная ступень подачи питания $S_{\text{Фопт}}$	Максимальная концентрация изотопа, %
^{70}Ge	Лёгкая фракция	48	87,9
^{72}Ge	Лёгкая фракция	60	19,7
^{73}Ge	Тяжёлая фракция	1	6,8
^{74}Ge	Тяжёлая фракция	1	46,1
^{76}Ge	Тяжёлая фракция	25	56,5

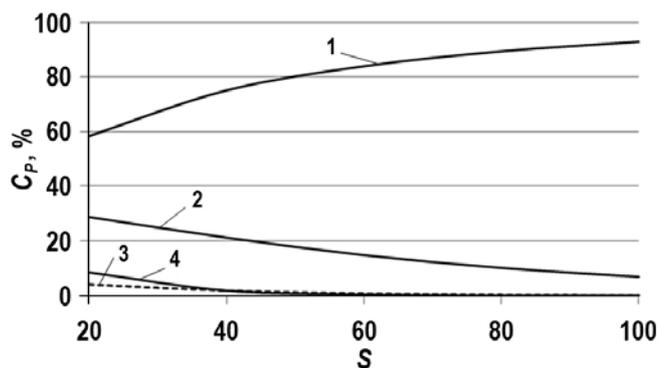


Рис. 6. Концентрация изотопов Ge в потоке легкой фракции каскада после его заполнения в зависимости от количества ступеней: 1 – ^{70}Ge ; 2 – ^{72}Ge ; 3 – ^{73}Ge ; 4 – ^{74}Ge

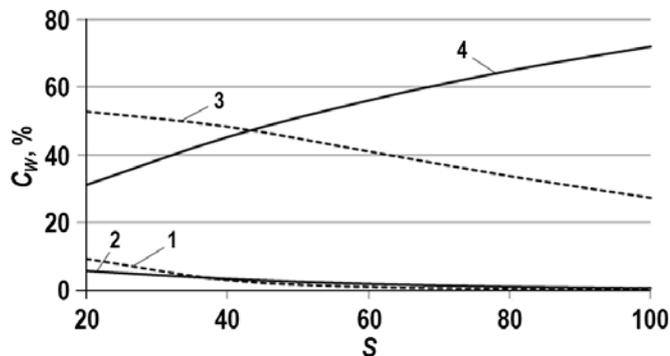


Рис. 7. Концентрация изотопов Ge в потоке тяжелой фракции каскада после его заполнения в зависимости от количества ступеней: 1 – ^{72}Ge ; 2 – ^{73}Ge ; 3 – ^{74}Ge ; 4 – ^{76}Ge

Одним из параметров, который влияет на разделение изотопной смеси в процессе заполнения каскада, является количество ступеней каскада. Нами проведено моделирование процесса заполнения рабочим веществом каскада, состоящего из различного числа ступеней. Поток питания ($F/G_F = 0,1$) подавался в середину каскада ($S_F = 0,5 \cdot S$). На рисунках 6, 7 приведены концентрации изотопов Ge в потоках P и W после заполнения каскада в зависимости от количества его ступеней S .

Из рисунков видно, что количество ступеней в каскаде существенно влияет на величины концентраций изотопов в потоках легкой и тяжелой фракций после заполнения каскада. При этом зависимости концентраций изотопов от количества ступеней каскада имеют монотонный характер. При увеличении S в потоке легкой фракции возрастает концентрация изотопа ^{70}Ge и уменьшаются концентрации остальных изотопов Ge. Это обусловлено тем, что изотоп с наименьшим массовым числом (в данном случае – ^{70}Ge) имеет максимальную концентрацию в ступени отбора легкой фракции каскада и при увеличении количества ступеней каскада происходит концентрирование этого изотопа в S -й ступени. При этом промежуточные изотопы ^{72}Ge , ^{73}Ge и ^{74}Ge переносятся в среднюю часть каскада. С увеличением S происходит рост их максимальных концентраций в средней части каскада и снижение концентраций в концевых ступенях (первая и S -я ступени). В потоке тяжелой фракции каскада наблюдается аналогичная картина. С ростом S увеличивается концентрация изотопа ^{76}Ge с наибольшим массовым числом, и снижаются концентрации промежуточных изотопов.

При увеличении количества ступеней каскада S или уменьшении потока питания каскада F (или F/G_F) происходит увеличение максимальных концентраций изотопов Ge в ступенях каскада и рост градиента средневзвешенного массового числа изотопной смеси M^a по ступеням каскада.

Анализ полученных результатов показывает, что концентрации изотопов в ступенях и потоках легкой и тяжелой фракций каскада после заполнения отличаются от исходных значений (концентраций в потоке питания каскада) (табл. 3).

Таблица 3

Концентрация изотопов германия в исходной смеси и каскаде после заполнения

Массовое число изотопа Ge, а.е.м.	70	72	73	74	76
Концентрация в исходной смеси, %	19,76	27,18	7,79	37,17	8,10
Концентрация в каскаде после заполнения, %	0,1 – 89,7	0,1 – 64,8	0,1 – 16,7	0,1 – 79,6	0,1 – 17,2

При расчете такого нестационарного разделительного процесса, как вывод каскада на режим, используется допущение, что после заполнения каскада концентрации изотопов в ступенях соответствуют концентрациям в исходной смеси. Как видно из таблицы, концентрации изотопов Ge в каскаде после заполнения находятся в широком диапазоне значений. Из рисунков 3 – 7 видно, что концентрации изотопов в ступенях стремятся к концентрации в исходной смеси при $F \rightarrow \infty$. Однако реализация такого режима на практике невозможна. Таким образом, результаты проведенного исследования показывают, что указанное допущение о равенстве концентраций изотопов в ступенях каскада после заполнения концентрациям в исходной смеси (потоке питания каскада) является достаточно грубым приближением. Использование этого допущения при задании начальных условий для моделирования нестационарного разделительного процесса приводит к изменению расчетной динамики концентраций изотопов в потоках каскада.

ВЫВОДЫ

Проведено исследование процесса заполнения каскада для разделения изотопов Ge с использованием разработанной ранее математической модели нестационарных процессов. В процессе заполнения каскада происходит разделение изотопов Ge и их распределение по ступеням каскада в соответствии с их массовыми числами. Чем больше массовое число изотопа, тем ближе он концентрируется к ступени отбора легкой фракции каскада. Показано, что для каждого изотопа Ge существует оптимальный номер ступени подачи потока питания, соответствующий установлению его максимальной концентрации в потоках легкой или тяжелой фракции каскада после заполнения. Увеличение потока питания приводит к уменьшению продолжительности заполнения каскада, снижению максимальных концентраций изотопов и перераспределению их по каскаду. Концентрации каждого изотопа Ge в каскаде после его заполнения находятся в широком диапазоне значений. Показано, что допущение о равенстве концентраций изотопов в ступенях после заполнения каскада концентрациям в исходной смеси (потоке питания) является достаточно грубым приближением. Использование этого допущения при задании начальных условий для моделирования нестационарного разделительного процесса приводит к изменению расчетной динамики концентраций изотопов в потоках каскада.

Благодарности

Работа была поддержана Программой повышения конкурентоспособности Томского политехнического университета, проектом СЕР-ПТИ-72/2017.

Литература

1. *Borisevich V.D., Pavlov A.V., Okhotina I.A.* Depleted zinc: properties, application, production. // *Applied Radiation and Isotopes*. – 2009. – Vol. 67. – PP. 1167-1172. Электронный ресурс: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2009.02.063> (дата доступа 17.09.2018).
2. *Смирнов А.Ю., Сулаберидзе Г.А.* Особенности массопереноса промежуточных компонентов в прямоугольном каскаде из газовых центрифуг для разделения многокомпонентных смесей // *Теоретические основы химической технологии*. – 2014. – Т. 48. – Р. 572.
3. *Cohen K.* The Theory of Isotope Separation as Applied to the Large-Scale Production of U-235. First ed. – McGraw Hill, New York, 1951. – 184 p.
4. *Glaser A.* Characteristics of the gas centrifuge for uranium enrichment and their relevance for nuclear weapon proliferation. // *Science and Global Security*. – 2008. – Vol. 16. – PP. 1-25. Электронный ресурс: <https://doi.org/10.1080/08929880802335998> (дата доступа 17.09.2018).
5. *Igumenov I.K., Turgambaeva A.E., Krisyuk V.V.* Volatile zirconium compounds: prospects for use in gas-phase isotope separation. // *Russian Journal of Applied Chemistry*. – 2016. – Vol. 89. – PP. 1903-1931. Электронный ресурс: <https://doi.org/10.1134/S1070427216120016> (дата доступа 17.09.2018).
6. *Власов В.А., Бутов В.Г., Голдобин Д.Н., Орлов А.А., Тимченко С.Н.* Моделирование нестационарных процессов в центробежных каскадах. // *Известия Томского политехнического университета*. – 2007. – Т. 310. – С. 103-106.
7. *Orlov A.A., Timchenko S.N., Sidorenko V.S.* Mathematical model of nonstationary hydraulic process occurring in gas centrifuges for uranium enrichment. // *Advanced Materials Research*. – 2015. – Vol. 1084. – P. 673. Электронный ресурс: <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/AMR.1084.673> (дата доступа 17.09.2018).
8. *Levin E.V., Laguntcov N.I., Sulaberidze G.A.* One method of numerical research of nonstationary processes in cascades for separation of multicomponent isotope mixtures. // *Journal of Engineering Physics*. – 1982. – Vol. 43. – PP. 456-462.
9. *Smirnov A.Yu., Bonarev A.K., Sulaberidze G.A., Borisevich V.D., Zeng S., Jiang D., Zhang Y.N.* Peculiarities of the transient processes in cascades for separation of isotope mixtures with various numbers of components. // *IOP Conference Series: Materials Science and*

Engineering. – 2016. Электронный ресурс: <https://doi.org/10.1088/1742-6596/751/1/012006> (дата доступа 17.09.2018).

10. *Quanxin X., Liming W., Zengguang L.* Transient Characteristics of Intermediate Components in a Cascade for Separation of Multicomponent Isotope Mixtures. // *Perspective Materials*. – 2011. – No. 10. – PP. 25-28.

11. *Zeng S., Ying C.* Transient Process in Gas Centrifuge Cascades for Separation of Multicomponent Isotope Mixture. // *Separation Science and Technology*. – 2001. – Vol. 36. – PP. 3439-3457.

12. *Zeng S., Zhou M., Ying C.* Theoretical and Experimental Study of a Non-Stationary Isotope Separation Process in a Gas Centrifuge Cascade. // *Separation Science and Technology*. – 2003. – Vol. 38. – PP. 2375-2394. Электронный ресурс: <https://doi.org/10.1081/SS-120022278> (дата доступа 17.09.2018).

13. *Orlov A.A., Ushakov A.A., Sovach V.P.* Mathematical model of nonstationary hydraulic processes in gas centrifuge cascade for separation of multicomponent isotope mixtures. // *MATEC Web of Conferences*. – 2017. Электронный ресурс: <https://doi.org/10.1051/mateconf/20179201033> (дата доступа 17.09.2018).

14. *Orlov A.A., Ushakov A.A., Sovach V.P., Mymrina D.F.* Modeling of nonstationary processes during separation of multicomponent isotope mixtures. // *Separation Science and Technology*. – 2018. – Vol. 53. – PP. 796-806. Электронный ресурс: <https://doi.org/10.1080/01496395.2017.1399910> (дата доступа 17.09.2018).

15. *Орлов А.А., Ушаков А.А., Совач В.П., Малюгин Р.В.* Математическое моделирование нестационарных разделительных процессов в каскаде газовых центрифуг для разделения изотопов вольфрама // *Инженерно-физический журнал*. – 2018. – Т. 91. – С. 566-573.

16. *Meija J. et al.* Isotopic compositions of the elements 2013 (IUPAC Technical Report). // *Pure Applied Chemistry*. – 2016. – Vol. 88. – PP. 293-306. Электронный ресурс: <https://doi.org/10.1515/pac-2015-0503> (дата доступа 17.09.2018).

Поступила в редакцию 21.09.2018 г.

Авторы

Орлов Алексей Алексеевич, профессор, доктор технических наук

E-mail: orlova@tpu.ru

Ушаков Антон Андреевич, инженер-технолог, аспирант

E-mail: ushakova2015@sibmail.com, aushakov@tpu.ru

Совач Виктор Петрович, ведущий инженер-технолог

E-mail: vsovach@mail.ru

UDC 621.039.342

SEPARATION OF MULTICOMPONENT ISOTOPE MIXTURE DURING FILLING OF GAS CENTRIFUGE CASCADE

Orlov A.A. *, Ushakov A.A. **, Sovach V.P. **

* National Research Tomsk Polytechnic University

30 Lenin str., Tomsk, 634050 Russia

** JSC «Production Association «Electrochemical Plant»

1 Pervaya promyshlennaya str., Zelenogorsk, 663690Russia

ABSTRACT

Isotopically modified materials with isotope content of chemical elements different from that in natural compositions, have found wide application in various fields of economy (nuclear power engineering, medicine, fundamental research, etc.). During recent decades, special attention of researchers was focused on the separation of multicomponent isotope mixtures (MCIM) in gas centrifuge (GC) cascades. Steady-state

mode of MIM separation in GC cascade is preceded by non-stationary process consisting of two phases: phase 1 is the filling of GC cascade with process gas; phase 2 is the establishment of steady-state concentrations of components in the cascade. So far, research under phase 1 (filling the cascade with process gas) has not yet been implemented. Consequently, the assumption that concentrations of components in stages after filling the separation cascade correspond to their concentrations in the source MIM (feed flow of the cascade) is used for setting initial conditions for calculation and research of phase 2. Taking into consideration the effects of initial conditions on the character of the evolution of concentrations of components in the separation cascade during the subsequent non-stationary process and its duration it is expedient to research MIM separation process during filling GC cascade in order to verify the above assumption.

Results of modeling the process of filling the GC cascade with process gas for different number of separation stages and different feed flow rates, as well as for the case when feed flow is supplied to different stages of the cascade are provided in the present paper using the example of germanium isotopic separation. Regularities were identified in the evolution of concentrations of Ge isotopes in different cascade stages and flows. Separation of Ge isotopes and their distribution between the cascade stages in accordance with mass numbers take place in the process of filling the cascade. Increased feed flow results in the reduction of the duration of cascade filling, decrease of maximum concentrations of isotopes and their redistribution over the cascade stages. Concentrations of each of Ge isotopes in the cascade after its filling vary within wide range of values. It is demonstrated that the assumption of equality of concentrations of isotopes in the cascade stages after the filling to the concentrations of isotopes in the source isotope mixture (cascade feed flow) is a rude approximation. Use of this assumption for setting the initial conditions for modeling non-stationary separation cascade process results in the change of calculation dynamics of isotope concentrations in the cascade flows.

Key words: mathematical modeling, cascade, separation, isotope, filling, non-stationary process, germanium, gas centrifuge, concentration, stage.

REFERENCES

1. Borisevich V.D., Pavlov A.V., Okhotina I.A. Depleted zinc: properties, application, production. *Applied Radiation and Isotopes*. 2009, v. 67, pp. 1167-1172. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2009.02.063> (accessed Sep 17, 2018).
2. Smirnov A.Yu., Sulaberidze G.A. Features of mass transfer of intermediate components in square gas centrifuge cascade for separating multicomponent isotope mixtures. *Theoreticheskie Osnovy Khimicheskoy Tekhnologii*. 2014, v. 48, p. 629. Available at: <https://doi.org/10.1134/S0040579514050248> (accessed Sep 17, 2018) (in Russian).
3. Cohen K. *The Theory of Isotope Separation as Applied to the Large-Scale Production of U-235*. First ed. McGraw Hill, New York, 1951. 184 p.
4. Glaser A. Characteristics of the gas centrifuge for uranium enrichment and their relevance for nuclear weapon proliferation. *Science and Global Security*. 2008, v. 16, pp. 1-25. Available at: <https://doi.org/10.1080/08929880802335998> (accessed Sep 17, 2018).
5. Igumenov I.K., Turgambaeva A.E., Krisyuk V.V. Volatile zirconium compounds: prospects for use in gas-phase isotope separation. *Russian Journal of Applied Chemistry*. 2016, v. 89, pp. 1903-1931. Available at: <https://doi.org/10.1134/S1070427216120016> (accessed Sep 17, 2018).
6. Vlasov V.A., Butov V.G., Goldobin D.N., Orlov A.A., Timchenko S.N. Simulation of nonstationary processes in centrifugal cascades. *Izvestiya Tomskogo Politehnicheskogo Universiteta*. 2007, v. 310, pp. 103-106 (in Russian).
7. Orlov A.A., Timchenko S.N., Sidorenko V.S. Mathematical model of nonstationary hydraulic

process occurring in gas centrifuges for uranium enrichment. *Advanced Materials Research*. 2015, v. 1084, p. 673. Available at: <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/AMR.1084.673> (accessed Sep 17, 2018).

8. Levin E.V., Laguntcov N.I., Sulaberidze G.A. One method of numerical research of nonstationary processes in cascades for separation of multicomponent isotope mixtures. *Journal of Engineering Physics*. 1982, v. 43, pp. 456-462.

9. Smirnov A.Yu., Bonarev A.K., Sulaberidze G.A., Borisevich V.D., Zeng S., Jiang D., Zhang Y.N. Peculiarities of the transient processes in cascades for separation of isotope mixtures with various numbers of components. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*. 2016. Available at: <https://doi.org/10.1088/1742-6596/751/1/012006> (accessed Sep 17, 2018).

10. Quanxin X., Liming W., Zengguang L. Transient Characteristics of Intermediate Components in a Cascade for Separation of Multicomponent Isotope Mixtures. *Perspective Materials*. 2011, no. 10, pp. 25-28.

11. Zeng S., Ying C. Transient Process in Gas Centrifuge Cascades for Separation of Multicomponent Isotope Mixture. *Separation Science and Technology*. 2001, v. 36, pp. 3439-3457.

12. Zeng S., Zhou M., Ying C. Theoretical and Experimental Study of a Non-Stationary Isotope Separation Process in a Gas Centrifuge Cascade. *Separation Science and Technology*. 2003, v. 38, pp. 2375-2394. Available at: <https://doi.org/10.1081/SS-120022278> (accessed Sep 17, 2018).

13. Orlov A.A., Ushakov A.A., Sovach V.P. Mathematical model of nonstationary hydraulic processes in gas centrifuge cascade for separation of multicomponent isotope mixtures. *MATEC Web of Conferences*. 2017, v. 92, p. 01033. Available at: <https://doi.org/10.1051/mateconf/20179201033> (accessed Sep 17, 2018).

14. Orlov A.A., Ushakov A.A., Sovach V.P., Mymrina D.F. Modeling of nonstationary processes during separation of multicomponent isotope mixtures. *Separation Science and Technology*. 2018, v. 53, pp. 796-806. Available at: <https://doi.org/10.1080/01496395.2017.1399910> (accessed Sep 17, 2018).

15. Orlov A.A., Ushakov A.A., Sovach V.P., Malyugin R.V. Mathematical modeling of nonstationary separation processes in a gas centrifuge cascade for separation of tungsten isotopes. *Inzhenerno-Fizicheskij Zhurnal*. 2018, v. 91, pp. 566-573. Available at: <https://doi.org/10.1007/s10891-018-1777-0> (accessed Sep 17, 2018) (in Russian).

16. Meija J., Coplen T.B., Berglund M., Brand W.A., De Bièvre P., Gronig M., Holden N.E., Irrgeher J., Loss R.D., Walczyk T., Prohaska T. Isotopic compositions of the elements 2013 (IUPAC Technical report). *Pure Applied Chemistry*. 2016, v. 88, pp. 293-306. Available at: <https://doi.org/10.1515/pac-2015-0503> (accessed Sep 17, 2018).

Authors

Orlov Alexey Alexeevich, Professor, Dr. Sci. (Engineering)

E-mail: orlovaa@tpu.ru

Ushakov Anton Andreevich, Process Engineer, PhD Student

E-mail: ushakovaa2015@sibmail.com, aushakov@tpu.ru

Sovach Viktor Petrovich, Lead Process Engineer

E-mail: vsovach@mail.ru