

Для организации замыкания ядерного топливного цикла необходимо разработать целый ряд технологий рециклирования ядерного топлива, обосновать их реализуемость и определить оптимальные технологические режимы. Полномасштабное экспериментальное обоснование затрудняется отсутствием в настоящее время образцов отработавшего ядерного топлива (ОЯТ), сложностью работы с реальными высокоактивными составами и высокой стоимостью экспериментальных исследований. Одним из способов оценки характеристик технологического процесса в этих условиях является термодинамическое моделирование.

В РФЯЦ-ВНИИТФ разрабатывается программный комплекс (ПК) TeDu, позволяющий рассчитывать химические равновесные составы систем различной сложности. Программный комплекс предназначен для решения следующих задач:

- расчет термодинамически равновесных составов для заданных начальных условий (в диапазоне температур, в диапазоне давлений, а также при изменении количества одного из компонентов в системе);
- формирование уравнений химических реакций и расчет изменения термодинамических функций по реакциям (при заданной температуре или диапазоне ее изменения);
- работа с базой данных термодинамических свойств индивидуальных веществ (просмотр, редактирование, импорт и экспорт данных);

При расчетах используется база данных, содержащая информацию о свойствах веществ, характерных для технологий ядерного топливного цикла (ЯТЦ).
ПК TeDu предназначен для использования как в автономном режиме – в виде приложения с пользовательским интерфейсом, так и пакетном режиме в составе программных средств, предназначенных для моделирования технологических процессов или работы оборудования. Реализация комплекса на базе платформы АТЭК обеспечивает его интеграцию в программные продукты, разработанные на этой же платформе, в том числе в ПК ВИЗАРТ, предназначенный для обоснования реализуемости и оптимизации параметров технологических линий замыкающей стадии ядерного топливного цикла.

Результаты связанных расчётов ПК ВИЗАРТ и ПК TeDu используются разработчиками технологий переработки ОЯТ и фабрикаци ядерного топлива для анализа и оценки различных вариантов технологии.

Расчет равновесия

Функция «Расчёт равновесия» позволяет рассчитывать химически равновесные составы в многокомпонентных многофазных системах. При постановке задачи пользователь задаёт набор рассматриваемых веществ и граничные условия для расчёта: исходное соотношение веществ или элементный состав, температуру или диапазон температур, давление или диапазон давлений. С помощью одного из выбранных алгоритмов программа рассчитывает химически равновесный состав и далее выводит результаты расчёта в виде графиков.

Пример расчета

Стадия синтеза порошков мононитридов урана и плутония является одной из стадий процесса фабрикаци СНУП топлива. Из исходных оксидов мононитриды получают карботермическим синтезом, который представляет собой высокотемпературную обработку в потоке азота смеси порошков оксидов урана и плутония с графитом. Для процесса карботермического синтеза, с учетом наличия информации о термодинамических свойствах в базе данных, определен следующий список веществ, характерных для рассматриваемой системы:

- исходные вещества: UO_2 , C , N_2 ;
- основные продукты синтеза: UN , CO ;
- возможные промежуточные соединения: CCN , CN , CN_2 , C_2N_2 , CNC , CNN , U .

Для примера расчёта выбрана следующая постановка: стехиометрическое соотношение исходных веществ, интервал температур от 1500 до 2500 К, давление от 0,1 до 10 атм

Пользовательский интерфейс и результаты расчета показаны на рисунке 1.

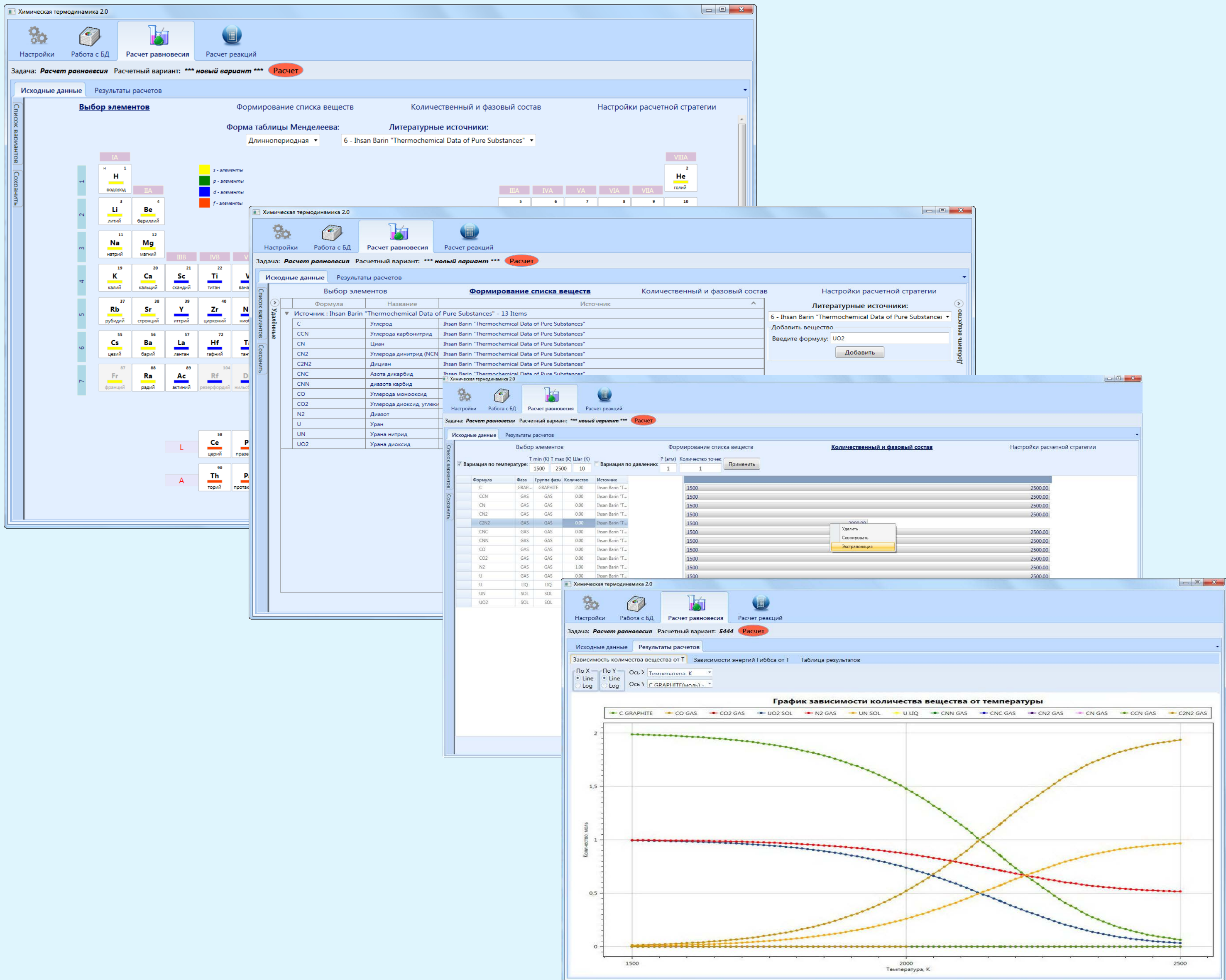


Рисунок 1 –Пользовательский интерфейс задачи расчета равновесия

Расчет реакций

С помощью функции «Расчёт реакций» рассчитываются значения термодинамических функций отдельных реакций. Пользователю предлагается ввести химическую реакцию. В нижней части экрана есть возможность просмотра информации из БД о температурных диапазонах наличия данных по веществам. Это позволяет пользователю видеть, как влияет каждое из выбранных веществ на диапазон, в котором возможен расчёт. С помощью функции экстраполяции можно получить дополнительные данные и, таким образом, расширить диапазон. Пользовательские формы и результаты расчета показаны на рисунке 2.

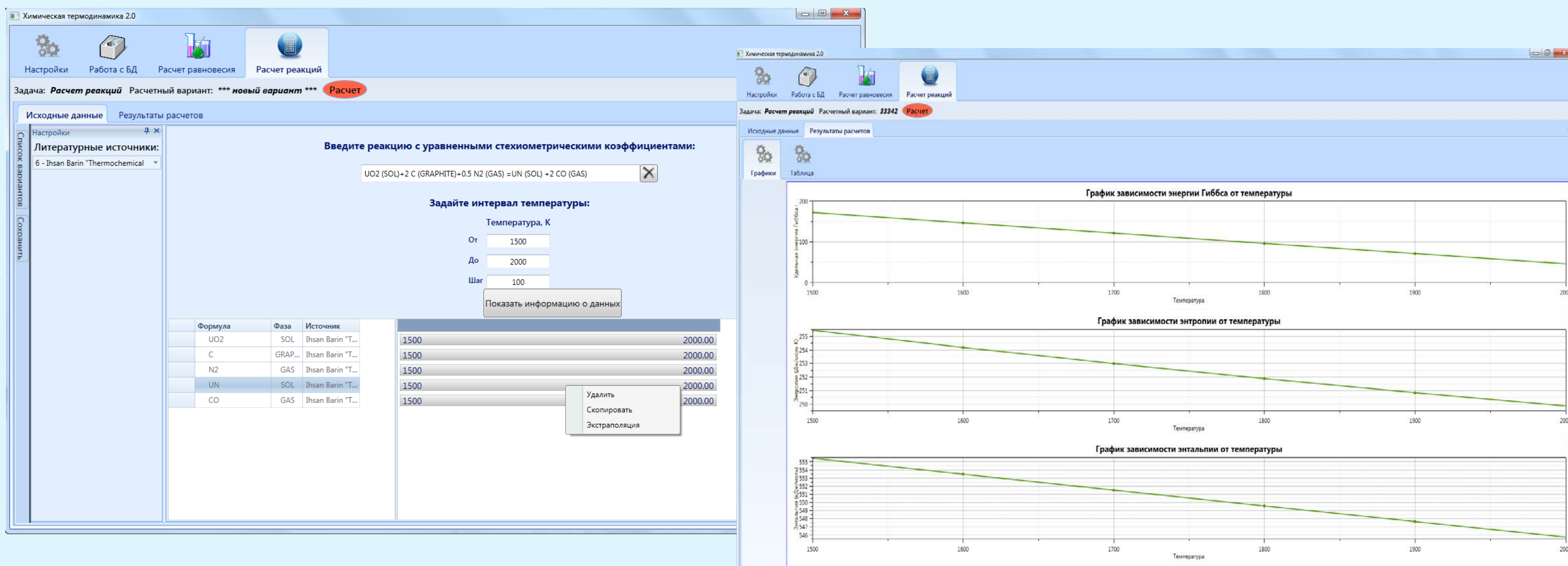


Рисунок 2 –Пользовательский интерфейс задачи расчета реакций

Работа с БД

БД позволяет посмотреть список всех веществ и данные по ним. Также в модуле есть возможность создавать и редактировать собственную БД по свойствам веществ. Пользовательский интерфейс показан на рисунке 3.

- Для анализа имеющихся и оценки недостающих данных в модуле предусмотрен ряд инструментов:
- Экстраполяция данных позволяет по информации о свойствах вещества в узком температурном диапазоне оценивать значения параметров за его пределами;
- Построение корреляций позволяет по информации о свойствах ряда подобных веществ оценивать свойства веществ, отсутствующих в БД;
- Анализ достоверности данных позволяет сопоставлять известные из разных источников значения параметров для одного вещества.

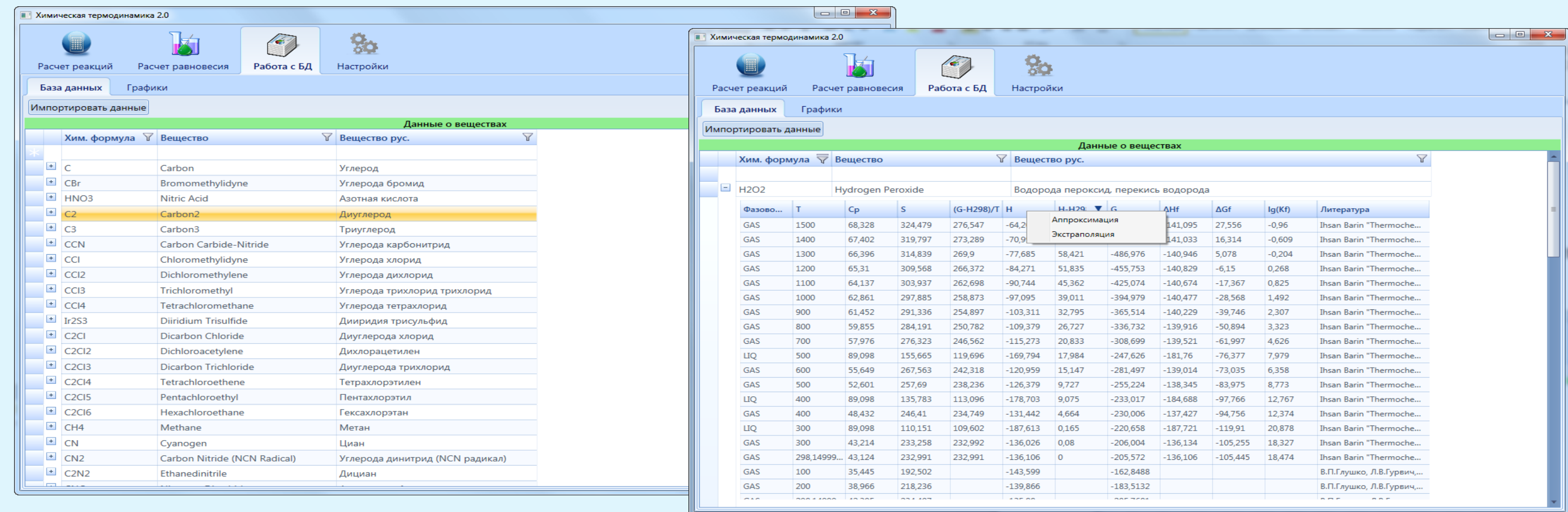


Рисунок 3–Пользовательский интерфейс базы данных

ПК TeDu при расчетах материального баланса технологий ЗЯТЦ

На рисунке 4 показан оконный интерфейс ПК ВИЗАРТ со схемой фабрикаци топлива. Для операции «Синтез нитридов» (1) через пользовательский интерфейс (2) можно задавать параметр температуры, используемый при проведении термодинамических расчетов. Технологическая схема построена по данным статьи [MONONITRIDE URANIUM-PLUTONIUM FUEL OF FAST LEAD-COOLED REACTORS" 11th International Conference on Nuclear Engineering Tokyo, Japan, April 20-23, 2003 "ICONE11-36414"]

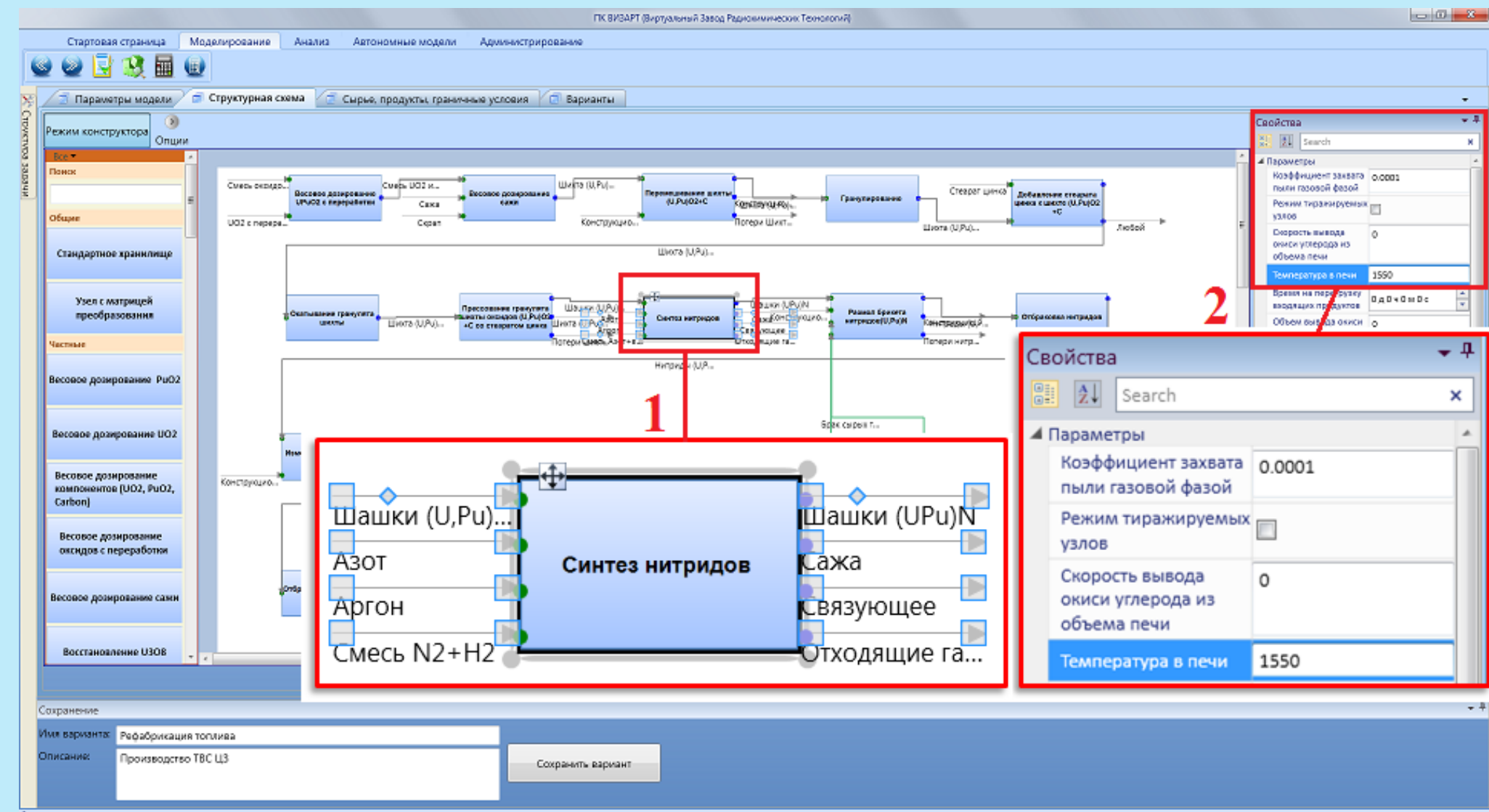


Рисунок 4 – Пользовательский интерфейс ПК ВИЗАРТ

Была проведена серия связанных расчетов с использованием ПК TeDu в пакетном режиме, благодаря которым можно сделать оценку качества продуктов. На рисунке 5 показаны результаты расчётов для трёх температур (T=1950K, 2150K, 2350K). Из гистограммы видно, что требуемое качество продукта (по концентрации кислорода) достигается при температуре выше 2150 К.

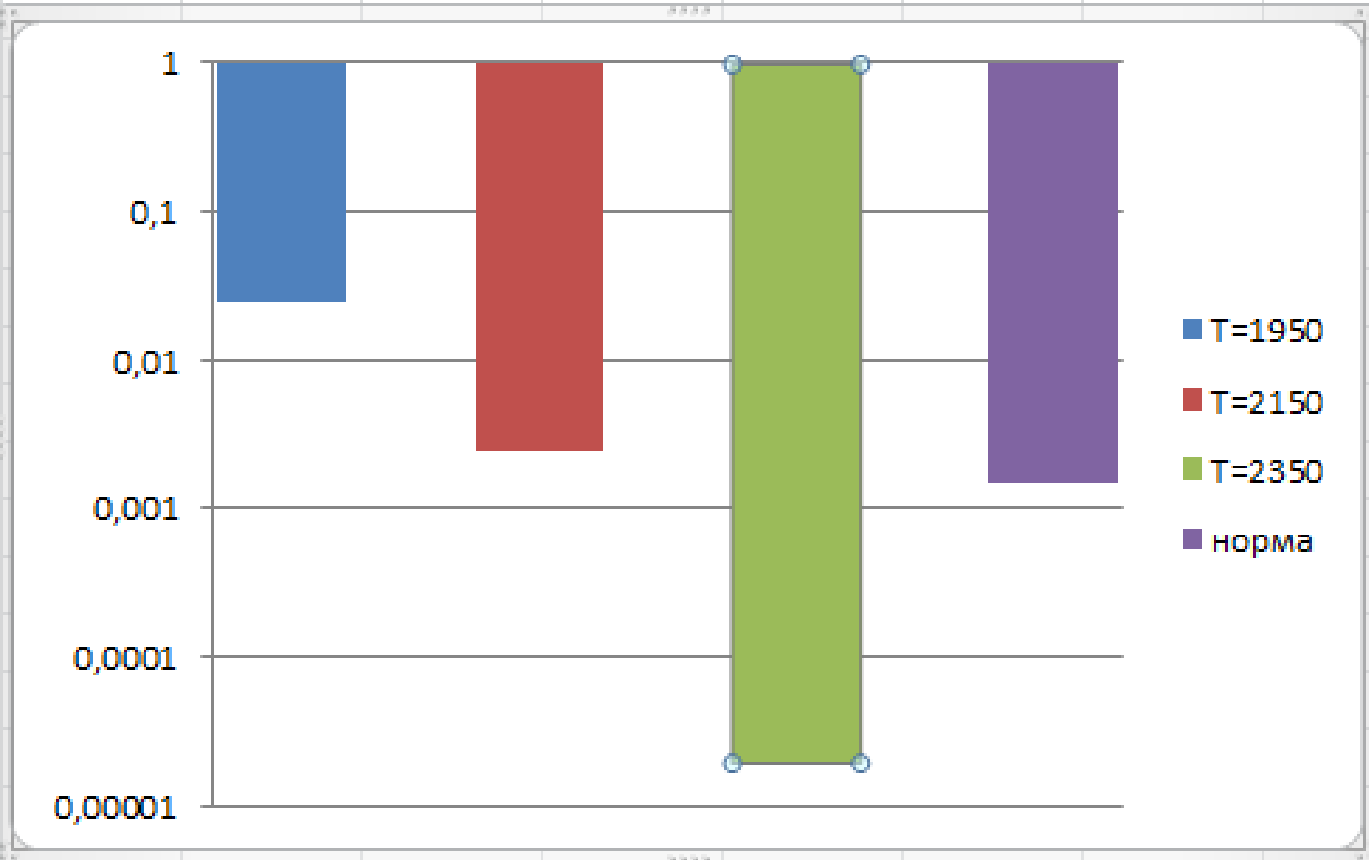
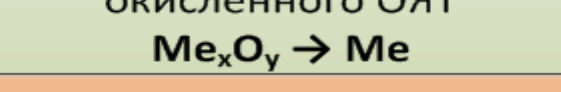


Рисунок 5 – Зависимость массовой доли кислорода в продукте от температуры

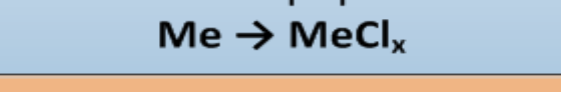
Применение ПК TeDu для расчета пирохимического передела

Основные операции пирохимического передела

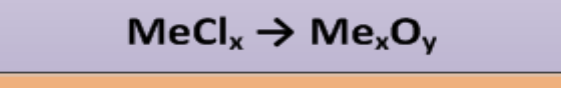
Восстановление (металлизация) окисленного ОЯТ



Мягкое хлорирование



Окисление



ТД моделирование процесса – анализ полноты протекания реакции металлизации.

Чем меньше продуктов деления перейдет в металлостую фазу, тем меньше их попадет в порошок ОЯТ, поступающий на растворение и экстракционное выделение актинидов.

В результате ТД расчета получены коэффициенты выхода реакций операции «Металлизация» для разного количества лития в системе (рисунок 6).

Элемент	Значение по умолчанию, %	Li, моль												
		39,50	24,00	22,00	20,00	18,00	16,00	14,00	12,00	10,00	8,00	6,00	4,00	2,00
U	100,00	100,00	100,00	100,00	100,00	100,00	98,38	84,76	71,93	58,48	45,61	32,39	19,15	19,15
Pu	100,00	99,99	99,97	99,96	100,00	74,43	0,00	1,20	0,01	0,23	0,02	0,01	0,04	0,04
Np	100,00	93,97	98,95	89,58	0,04	0,23	34,74	4,14	0,03	89,97	6,48	70,15	96,90	96,90
La	90,00	0,00	0,01	0,32	10,00	0,05	1,78	6,09	0,00	1,02	0,04	0,27	1,00	1,00
Sr	100,00	0,00	0,00	0,18	0,00	0,00	12,17	1,24	0,96	84,51	3,42	6,87	99,65	99,65
Ba	100,00	91,02	90,93	0,35	0,00	17,20	1,21	32,25	3,27	0,31	1,41	0,47	13,20	13,20
Cs	100,00	100,00	100,00	99,98	100,00	100,00	97,71	96,42	99,49	94,59	99,86	97,59	99,91	99,91
Rb	100,00	100,00	100,00	99,99	100,00	99,93	1,93	97,91	86,34	100,00	62,10	65,40	59,75	59,75
Tc	100,00	100,00	100,00	100,00	100,00	100,00	97,86	99,87	99,96	99,87	99,98	99,63	99,83	99,83
Mo	100,00	100,00	100,00	100,00	100,00	99,60	99,96	99,96	99,92	99,88	99,84	99,94	91,08	91,08
Zr	100,00	99,80	99,75	99,71	99,65	15,30	0,09	0,00	0,95	0,00	0,22	0,54	2,09	2,09

Рисунок 6– Таблица с коэффициентами выхода реакций

Код	Название	Поток Li ОЯТ		Концентрация Li, г/гвоза												
		м ³	г	Li, моль												
				39,50	24,00	22,00	20,00	18,00	16,00	14,00	12,00	10,00	8,00	6,00	4,00	2,00
Металлизация (восстановление) окисленного ОЯТ																
ПКТр001	LiCl	0,95	1,97E+03	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
ПКТр002	Li2O	0,29	590,00	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
ПКТр003	Оксиды ОЯТ	0,13	1,09E+03	46,94	25,43	87,34	75,72	6,39	2,33	22,49	9,89	1,92	0	0	0	0
ПКТр004	Отработанный LiCl	1,13	2,33E+03	0	0	0	0	6,39	0	0	0	0	0	0	0	0
ПКТр005	Оксиды металлов	0,18	1,16E+03	1,84	18,75	46,18	95,77	0,18	1,78E+03	0,18	1,78E+03	0,18	1,78E+03	0,18	1,78E+03	0,18
ПКТр006	Оксиды металлов	1,89	4,49E+03	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33
ПКТр007	Шлам с Pb	0,12	1,27E+03	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Мягкое хлорирование																
ПКТр008	PbCl2	0,27	1,60E+03	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
ПКТр009	Элементарный Pb	1,48	3,08E+03	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
ПКТр010	Оксиды металлов	0,18	1,16E+03	1,84	18,75	46,18	95,77	0,18	1,78E+03	0,18	1,78E+03	0,18	1,78E+03	0,18	1,78E+03	0,18
ПКТр011	Оксиды металлов	1,89	4,49E+03	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33
ПКТр012	Шлам с Pb	0,12	1,27E+03	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Окисление (хлорирование) металлов																
ПКТр013	LiCl	0,95	1,97E+03	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
ПКТр014	Li2O	0,29	590,00	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
ПКТр015	Оксиды металлов	1,89	4,49E+03	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33
ПКТр016	Элементарный Pb	1,48	3,08E+03	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
ПКТр017	Оксиды металлов	0,18	1,16E+03	1,84	18,75	46,18	95,77	0,18	1,78E+03	0,18	1,78E+03	0,18	1,78E+03	0,18	1,78E+03	0,18
ПКТр018	Оксиды металлов	1,89	4,49E+03	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33
ПКТр019	Шлам с Pb	0,12	1,27E+03	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Окисление (хлорирование) металлов																
ПКТр020	LiCl	0,95	1,97E+03	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
ПКТр021	Li2O	0,29	590,00	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
ПКТр022	Оксиды металлов	1,89	4,49E+03	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33
ПКТр023	Элементарный Pb	1,48	3,08E+03	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
ПКТр024	Оксиды металлов	0,18	1,16E+03	1,84	18,75	46,18	95,77	0,18	1,78E+03	0,18	1,78E+03	0,18	1,78E+03	0,18	1,78E+03	0,18
ПКТр025	Оксиды металлов	1,89	4,49E+03	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33
ПКТр026	Шлам с Pb	0,12	1,27E+03	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Окисление (хлорирование) металлов																
ПКТр027	LiCl	0,95	1,97E+03	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
ПКТр028	Li2O	0,29	590,00	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
ПКТр029	Оксиды металлов	1,89	4,49E+03	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33
ПКТр030	Элементарный Pb	1,48	3,08E+03	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
ПКТр031	Оксиды металлов	0,18	1,16E+03	1,84	18,75	46,18	95,77	0,18	1,78E+03	0,18	1,78E+03	0,18	1,78E+03	0,18	1,78E+03	0,18
ПКТр032	Оксиды металлов	1,89	4,49E+03	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33
ПКТр033	Шлам с Pb	0,12	1,27E+03	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Окисление (хлорирование) металлов																
ПКТр034	LiCl	0,95	1,97E+03	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
ПКТр035	Li2O	0,29	590,00	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
ПКТр036	Оксиды металлов	1,89	4,49E+03	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33
ПКТр037	Элементарный Pb	1,48	3,08E+03	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
ПКТр038	Оксиды металлов	0,18	1,16E+03	1,84	18,75	46,18	95,77	0,18	1,78E+03	0,18	1,78E+03	0,18	1,78E+03	0,18	1,78E+03	0,18
ПКТр039	Оксиды металлов	1,89	4,49E+03	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33	0,00	0,11	5,98	0,33
ПКТр040	Шлам с Pb	0,12	1,27E+03	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0