

基于高斯克里金代理模型 对模拟高放废液煅烧产物性能影响因素的研究

张 华, 李宝军, 李 扬, 张克乾, 贺 诚, 洪 业

中国原子能科学研究院 放射化学研究所, 北京 102413

摘要: 高放废液煅烧产物是两步法冷坩埚玻璃固化工艺中间过程产物, 其性能(如: 煅烧产物含水率和堆积密度、脱硝率等)对于整体系统工艺控制和玻璃产品质量有较为重要的影响。通常影响煅烧产物性能的因素包括: 回转煅烧炉加热温度、炉体倾角(倾角)、炉体转速(转速)、模拟废液组分等。为了获得不同煅烧产物影响因素对其性能影响程度, 采用高斯克里金代理模型对燃烧 33 GW·d/t (以 U 计, 下同) 和 45 GW·d/t 乏燃料模拟高放废液在台架开展的转形工艺试验数据进行影响因素计算和分析, 结果显示: 该试验条件下, 煅烧产物堆积密度的影响因素排序是模拟废液组分>倾角>转速; 含水率主要影响因素排序是倾角>模拟废液组分>转速等。同时, 采用建立的代理模型对高放废液转形试验四种加热温度、五种倾角和两种模拟废液组分产生的煅烧产物含水率和堆积密度进行预测, 显示前两区加热温度在 540~680 °C、炉体倾角为 3°作为试验参数对于煅烧产物性能较为合适。由此, 通过代理模型方法用于辨识煅烧产物性能影响因素的研究分析方法可为工艺优化过程提供基础数据和技术支撑。

关键词: 高斯克里金代理模型; 煅烧产物; 影响因素

中图分类号: TL941.33 **文献标志码:** A **文章编号:** 0253-9950(2023)01-0076-11

doi: 10.7538/hhx.2023.45.01.0076

Study on Influence Factors of Calcined Products From Simulated HLLW Based on Gaussian Kriging Agent Model

ZHANG Hua, LI Bao-jun, LI Yang, ZHANG Ke-qian, HE Cheng, HONG Ye

China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275(93), Beijing 102413, China

Abstract: The calcined product of the high-level liquid waste(HLLW) is the intermediate product of two-step cold crucible glass solidification process. Its performance(such as water content, bulk density, denitration efficiency and so on) has an important impact on the process control of the whole system and glass product quality. Generally, the factors affecting the performance of calcined products include: the heating temperature of rotary calciner, the inclination angle of furnace body, the rotation speed of furnace body, the composition of simulated waste liquid, etc. In order to obtain the influence degree of different calcined products on their performance, the Gauss Kriging(GP) surrogate model is used to calculate and analyze the influence factors on the experimental data of the transformation process carried out on the bench for the simulated HLLW of spent fuel with burnup of 33 GW·d/t U and

45 GW · d/t U. The results show that the main influencing factor sequencing of the bulk density of calcined products under the experimental conditions is the composition of simulated liquid waste>the angle of furnace body>the rotation speed, and the main influencing factor sequencing of water content is the angle of furnace body> the composition of simulated liquid waste> the rotation speed. At the same time, the established proxy model is used to predict the water content and bulk density of calcined products produced by four heating temperatures, five inclination gradients and two simulated waste liquid component tests in the high-level waste liquid transformation test. It shows that is more suitable for the performance of calcined products, as the heating temperature in the first two areas between 540-680 °C, and the angle of furnace body with 3°. Therefore, the method of identifying the factors affecting the performance of calcined products by agent model method is feasible, and can provide basic data and technical support for the optimization process.

Key words: Gaussian Kriging agent model; calcined product; influence factors

高放废液由于其具有高放射性、高腐蚀性、高毒性等特点,一直是放射性废物管理领域的重点。玻璃固化技术是目前世界上普遍认可的安全有效的高放废液处理方法,两步法冷坩埚玻璃固化技术作为第四代玻璃固化工艺技术,由于其具有加热温度高、处理对象广泛、退役容易、熔炉寿命长等特点成为玻璃固化技术发展的方向。高放废液转形技术是两步法冷坩埚玻璃固化技术的第一步,具体工艺过程包括:将高放废液同脱硝剂按一定比例混合并送入回转煅烧炉中,经过蒸发、脱硝和煅烧反应将高放废液中水分和硝酸盐分解完成后形成的固体颗粒物同基础玻璃一起送入冷坩埚熔炉中熔融,最终形成玻璃固化产品。中国原子能科学研究院从2000年开始致力于两步法冷坩埚玻璃固化技术的研发,到2022年已经建立了生产能力6 kg/h的两步法冷坩埚玻璃固化原理实验装置、处理能力30 L/h和生产能力15 kg/h的科研样机,其中科研样机通过连续运行约600 h验证并获得了关键工艺运行参数,目前正在开展工程样机的研制和验证工作。

煅烧产物作为两步法冷坩埚玻璃固化工艺过程产品,它的性能包括含水率、堆积密度、粒径分布和脱硝率等直接关系到工艺过程控制参数的选择,因此需要对其影响因素进行研究,辨识主要影响因素并在工艺过程中进行控制。通常采用工艺条件试验对煅烧产物性能进行分析以获得试验条件对煅烧产物性能影响。但是,在回转煅烧炉运行过程中对煅烧产物性能影响因素较多,包括温度、炉体转速(转速)、模拟废液组分,甚至系统负压情况等。同时,采用条件

试验的方法试验量较大,试验数据的分析工作量也较大,试验数据还存在偏差。

为了减少试验量同时甄别出影响明显的因素并指导试验工作,在很多工程设计上采用模拟试验来评估。但是在许多实际情况下,直接对原模型求解单次模拟可能需要数分钟、数小时、甚至数天才能完成。因此,类似设计优化、灵敏性分析和假设分析,需要数千、甚至数百万次模拟计算,直接对原模型求解的工作量也是巨大的。为了改善这种情况,通常采用近似模型(代理模型、响应曲面模型、元模型或模拟器)来模拟高精度模拟模型。代理模型的计算结果与原模型非常接近,但是求解计算量较小。代理模型一般假定原模拟过程的内部精确处理过程未知(有时也可能已知),但是该模型的输入-输出行为则非常重要。通过选择有限个点(输入)计算原模型的响应(输出),从而建立代理模型。常用的代理模型有移动最小二乘法^[1-3]、人工神经网络^[4-6]、多项式^[7-8]和高斯克里金法^[9]等方法。高斯克里金(GP)模型与其他代理模型不同,它不仅在未采样点提供预测值,而且还提供预测方差的估计,这种方差表明了高斯克里金模型中的不确定性。为了对高放废液转形系统产生的煅烧产物性能的影响因素进行甄别,本工作拟通过采用高斯克里金代理模型对高放废液转形系统工艺试验数据进行分析计算,对煅烧产物堆积密度和含水率的主要影响因素进行分析对比,获得影响因素排序。并拟采用建立代理模型对高放废液转形试验工艺条件产生的煅烧产物性能进行预测分析,为后续指导工艺试验奠定基础。

1 实验部分

1.1 试剂和设备

模拟高放废液组分:动力堆 33 GW·d/t(以 U 计,下同)乏燃料模拟高放废液组分和 45 GW·d/t 乏燃料模拟高放废液组分,冷却时间为 6 a(每吨乏燃料产生高放废液 0.4 m³),采用相应的硝酸盐配制模拟高放废液,硝酸浓度为 2 mol/L 左右,硝酸根浓度分别为 3.4 mol/L 和 2.7 mol/L。模拟高放废液成分列入表 1^[10]和表 2^[11]。

表 1 动力堆 33 GW·d/t(以 U 计)乏燃料
模拟高放废液的组成^[10]

Table 1 Composition of simulated HLLW
from 33 GW·d/t U nuclear power plants spent fuel^[10]

元素	质量浓度/ (g·L ⁻¹)	试剂	质量浓度/ (g·L ⁻¹)
Zr	6.75	Zr(NO ₃) ₄ ·5H ₂ O	33.10
Ba	3.30	Ba(NO ₃) ₂	6.27
Nd	8.08	Nd ₂ O ₃	9.42
Mo	8.54	Mo	8.54
Fe	2.79	Fe(NO ₃) ₃ ·9H ₂ O	20.20
Sr	1.49	Sr(NO ₃) ₂	3.60
Cs	5.18	CsNO ₃	7.60
Ce	4.76	Ce(NO ₃) ₃ ·6H ₂ O	14.76
La	12.17	La ₂ O ₃	14.28
Co	2.30	Co(NO ₃) ₃ ·6H ₂ O	13.77
Σ	55.36		129.12

注:在配制模拟高放废液时,贵金属 Ru、Rh、Pd 用 Co 代替,SnO₂、Sb₂O₃ 是难溶物也不加入其中,Np、Am、Cm 用 La 代替,Tc 用 Mo 代替,U、Pu、Pm 用 Ce 代替,微量元素 Pr、Eu、Sm、Te、Rb、Cr 等未添加

其它化学试剂均为市售化学纯。脱硝剂:甲酸,分析纯,国药集团北京分公司。

试验设备:采用处理能力 30 L/h 模拟高放废液转形系统试验装置,包括液体进料单元、回转煅烧炉单元、尾气净化单元、出料单元和过程检测和控制单元等。

ME203E 电子天平,精度为 0.001 g,上海梅特勒-托利多公司。

1.2 实验方法

(1) 含水率测量
选取不同粒径的煅烧产物密封研磨,过 100 目标标准筛后称取适量均匀铺在水分测托盘上,

130 ℃下加热干燥约 140 s,样品质量减少量不超过 1 mg 后,计算煅烧产物的总含水率(式(1))。

$$A = \sum \frac{\Delta m}{m} \omega_i \tag{1}$$

式中:A,煅烧产物总含水率,%;Δm,样品减少质量,g;m,样品干燥后质量,g;ω_i,不同粒径煅烧产物的质量分数,%。

表 2 45 GW·d/t(以 U 计)乏燃料模拟高放废液的组成^[11]
Table 2 Composition of simulated HLLW
from 45 GW·d/t U nuclear power plants spent fuel^[11]

元素	质量浓度/ (g·L ⁻¹)	试剂	质量浓度/ (g·L ⁻¹)
Zr	16.0	Zr(NO ₃) ₄ ·5H ₂ O	78.50
Ba	5.5	Ba(NO ₃) ₂	10.47
Gd	14.0	Gd ₂ O ₃	16.14
La	4.2	La ₂ O ₃	4.93
Nd	14.0	Nd ₂ O ₃	16.33
Mo	11.0	Mo	11.00
Mn	2.8	MnO ₂	4.43
Rb	1.3	RbNO ₃	2.24
Fe	1.4	Fe(NO ₃) ₃ ·9H ₂ O	10.13
Sr	2.9	Sr(NO ₃) ₂	7.00
Y	1.6	Y(NO ₃) ₃ ·6H ₂ O	6.89
Cs	9.0	CsNO ₃	13.20
Ce	14.0	Ce(NO ₃) ₃ ·6H ₂ O	43.37
Σ	97.7		224.63

注:在配制模拟高放废液时,不加贵金属 Ru、Rh、Pd 及 SnO₂、Sb₂O₃,Ru、Rh、Pd、SnO₂、Sb₂O₃ 均未使用替代品

(2) 堆积密度测量

采用 10 mL 左右的量筒获得样品体积,同时称量样品质量,最后根据式(2)计算获得样品堆积密度。

$$\rho = \frac{m}{V} \tag{2}$$

式中:ρ,煅烧产物堆积密度,g/cm³;m,煅烧样品质量,g;V,煅烧样品体积,cm³。

1.3 代理模型

主要涉及到试验参数的选取、高斯克里金模型、试验样本个数几方面,其选取原则和方法如下。

(1) 输入参数的选取

选取变化的试验参数作为代理模型的输入参数,如温度、炉体转速(转速)、炉体倾角(倾角)、壁面温度梯度分布等。对于人为设定的工况,如脱

确实验中的废液组分,作为输入参数。

(2) 输出参数的确定

根据平行试验的特点,考虑到平行试验数据的差异性,需对每次试验及多次试验的结果平均值分别进行代理模型的研究。本研究根据试验测量结果选择煅烧产物堆积密度和含水率作为输出参数。

(3) 高斯克里金模型

利用的高斯克里金算法程序提供主流的三种:简单克里金(常数趋势)、一般克里金(一阶趋势)、通用克里金(多项式趋势)构建高斯克里金模型。由于研究是基于实验数据进行计算,在未进行代理模型训练之前对于响应面的特点是未知的,同时计算程序的速度较快,可以分别尝试,确定符合当下数据响应面特点的趋势函数。高斯克里金模型的形式如式(3)。

$$\hat{f}(x) \approx g(x)^T \beta + \epsilon(x) \quad (3)$$

式中: $\hat{f}(x)$,主要由两项组成,一个是趋势函数 $g(x)^T \beta$,另一个是高斯过程的误差模型 $\epsilon(x)$; β ,趋势函数的回归系数; x 是 n 维参数空间中的当前点; $g(x)^T \beta$ 作为趋势函数对数据点进行全局拟合,而 $\epsilon(x)$ 对趋势函数进行局部修正,使得模型经过所有训练数据点成为插值模型。计算过程中选择一次多项式趋势函数进行分析。

(4) 试验样本个数

高斯克里金模型理论上需要不低于 n_c 个($n_c = \frac{n^3 + 6n'^2 + 11n' + 6}{6}$)样本数据,其中 n' 为输入变量个数,在不重叠的前提下尽可能多。本次试验基于21次试验数据,包括内检和外检数据,同时可以选择3种因素(组分、转速、倾角)作为输入参数。

(5) 代理模型验证指标

决定系数 R^2 表示回归平方和占总误差平方和的比例(式(4)),可用来作为代理模型的验证指标, R^2 反映两条曲线的拟合程度,取值范围在 $[0, 1]$ 之间, R^2 越趋近于1,说明代理模型对样本拟合的越好; R^2 越趋近于0,说明代理模型对样本拟合的越差。

$$R^2 = \frac{\sum_{i=1}^N (p_i - \bar{o})^2}{\sum_{i=1}^N (o_i - \bar{o})^2} \quad (4)$$

式中: N ,用于创建代理模型数据点的数量; o_i ,试验结果; p_i ,代理模型计算结果; $\bar{o}$,试验结果平均值。

2 煅烧炉台架试验煅烧产物性能数据分析

2.1 试验数据处理

21次试验条件及煅烧产物性能的统计结果及数据用途列入表3。本批试验中,当启动加热温度后,每隔2h进行煅烧产物取样并对样品的堆积密度和含水率进行测量。加热温度稳定后第1个2h后的加热温度记为 T_{1-1} 、 T_{2-1} 、 T_{3-1} 、 T_{4-1} ,温度稳定后第2个2h后的加热温度记为 T_{1-2} 、 T_{2-2} 、 T_{3-2} 、 T_{4-2} ,其中 T_{1-1} 、 T_{1-2} 为880℃, T_{2-1} 、 T_{2-2} 为850℃; T_{3-1} 、 T_{4-1} 分别约为610℃和550℃, T_{3-2} 、 T_{4-2} 分别约为600℃和540℃。

2.2 参数灵敏度分析

对最后数据处理的最终结果进行参数相关性分析过程中,去除了 T_{1-1} 、 T_{1-2} 、 T_{2-1} 、 T_{2-2} ,因为在本批试验中,这些加热温度几乎不发生变化。将4个加热温度 T_{3-1} 、 T_{4-1} 、 T_{3-2} 、 T_{4-2} ,表3数据导入并以炉体转速、炉体倾角、废液组分为输入,以堆积密度(DJ₁、DJ₂)、含水率(HS₁、HS₂)为输出,进行参数灵敏度分析,获得参数灵敏度排序图,结果示于图1、图2。主效应是指单个变量对相应量的影响效果,交互效应是指主因素同其他因素相互作用产生的综合影响效果,总效应是指主效应和交互效应的总和。

由图1可知,由于组分对堆积密度的影响最为直接,计算结果显示均未出现交互效应,主要是单一因素影响效应。首要影响因素均是组分,灵敏度分别占58.7%和44.6%,对于煅烧产物堆积密度1的次要影响因素转速>倾角,两者灵敏度分别占27.7%和13.7%;同时,对于堆积密度2的次要影响因素倾角>转速,灵敏度分别占34.2%和21.3%,两者影响程度相差不大,相对组分而言较小。同时,堆积密度1、2的次要影响因素排序发生变化,可能是由于反应时间不同而导致。

由图2可知,由于停留时间直接影响物料反应过程,组分、倾角和转速对于含水率1没有交互效应,主要是单一影响因素作用。其中含水率1的最大影响因素是倾角,灵敏度为100.0%,远大于转速和倾角的灵敏度,后两个因素可以忽略;含水率2的倾角因素主效应灵敏度占96.2%,总效应灵敏度占99.5%,组分和倾角交互效应灵敏度为3.3%;含水率2组分的主效应灵敏度为0,总效应和交互效应灵敏度均为4.3%,转速的主效

表 3 试验条件及煅烧产物性能测试结果
Table 3 Experiments parameters and calcinate characterizations results

序号	模拟废液燃耗/ (GW·d·t ⁻¹ ,以 U 计)	炉体转速/ (r·min ⁻¹)	炉体 倾角/°	用途	堆积密度 1/ (g·cm ⁻³)	堆积密度 2/ (g·cm ⁻³)	含水率 1/ %	含水率 2/ %
1	33	25	3	内检	1.35	0.94	1.26	1.32
2	33	20	3	内检	0.78	0.94	1.24	1.07
3	33	15	3	外检	0.89	0.65	0.95	1.05
4	33	20	3	内检	0.66	0.76	0.99	1.10
5	33	15	3	内检	0.52	0.41	1.04	1.10
6	33	25	3	内检	0.35	0.42	0.79	1.04
7	33	30	3	外检	0.45	0.51	1.23	1.05
8	33	30	3	内检	0.38	0.35	1.10	0.99
9	45	25	3	外检	0.43	0.45	1.20	1.05
10	45	20	3	内检	0.45	0.57	1.28	1.05
11	45	15	3	内检	0.42	0.46	1.05	1.28
12	45	30	3	内检	0.27	0.28	0.97	1.12
13	45	30	2	内检	0.32	0.25	1.10	0.95
14	45	20	2	内检	0.25	0.27	0.89	0.79
15	45	30	4	内检	0.17	0.22	1.26	1.41
16	45	20	4	内检	0.23	0.24	1.31	1.53
17	45	20	4	外检	0.20	0.19	1.21	1.30
18	33	30	3	内检	0.30	0.30	1.04	0.95
19	33	20	2	内检	0.53	0.53	0.85	0.91
20	33	30	2	内检	0.42	0.45	0.69	1.10
21	33	30	3	内检	0.42	0.45	0.95	1.18

注:堆积密度 1(DJ₁):第 1 个 2 h 测量;堆积密度 2(DJ₂):第 2 个 2 h 测量;含水率 1(HS₁):第 1 个 2 h 测量;含水率 2(HS₂):第 2 个 2 h 测量

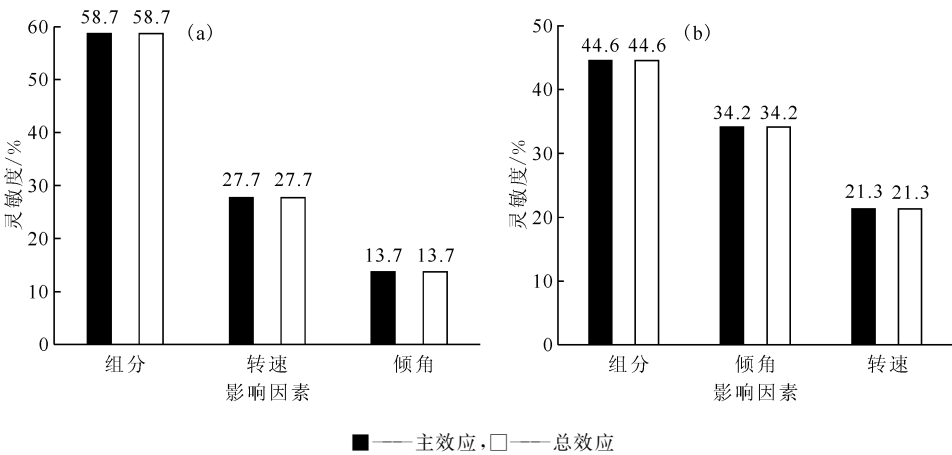


图 1 堆积密度 1(a)和堆积密度 2(b)的参数灵敏度排序图
Fig. 1 Parameter sensitivity ranking of calcinate bulk density 1(a) and 2(b)

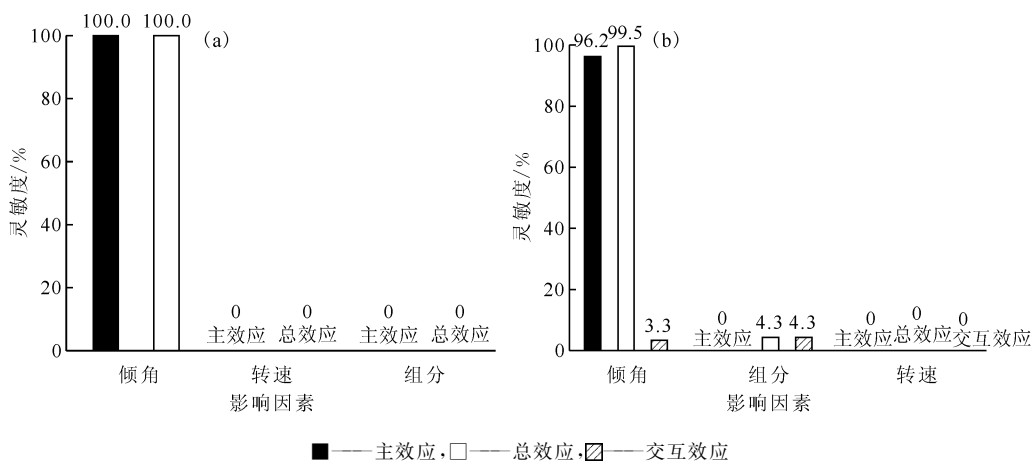


图 2 含水率 1(a)和含水率 2(b)的参数灵敏度排序图

Fig. 2 Parameter sensitivity ranking of calcinate water content 1(a) and 2(b)

应、总效应、交互效应灵敏度均为 0。综上可知,煅烧产物含水率的主要影响因素是倾角,其中倾角和组分存在交互效应,即废液组成同倾角耦合作用也对煅烧产物含水率产生影响。

3 模型建立及检验

3.1 模型建立

在“参数配置”页面,将加热温度、炉体转速、炉体倾角、废液组分设为输入,对应的堆积密度和含水率设为输出,并选择代理模型算法“高斯克里金代理”,高级模式中的趋势函数选择“一次多项式”进行计算。同时,分别选择两组试验数据作为外检计算样本代表,包括 45 GW · d/t 乏燃料模拟高放废液组分 2 个试验数据样本和 33 GW · d/t 乏燃料模拟高放废液组分 2 个试验数据样本作为对比,其余 19 组试验数据作为内检培训数据

进行计算(表 3)。由于 T_{3_1} 、 T_{4_1} 与 DJ_1 、 HS_1 对应, T_{3_2} 、 T_{4_2} 与 DJ_2 、 HS_2 对应,分别建立两次代理模型并检验。

3.2 模型内检

模型内检是用于对建立的模型进行训练,优化参数。对建立的高斯克里金代理模型进行内检计算,并获得内检结果,结果示于图 3 和图 4。由图 3、4 可以看出,以上数据建立的高斯克里金模型的内检精度很高,计算值和样本值一致性很好,每一种拟合计算的计算值和样本值两条曲线基本重合。根据式(4)对四条拟合曲线的 R^2 进行计算,结果列入表 4 和表 5。由表 4、5 可知:四条拟合计算曲线 R^2 均为 1,显示采用代理模型 1、2 对样品含水率和堆积密度内检计算的精度很好,均满足建立模型的内检要求,代理模型 1 和 2 均可以用于样品含水率和堆积密度计算。

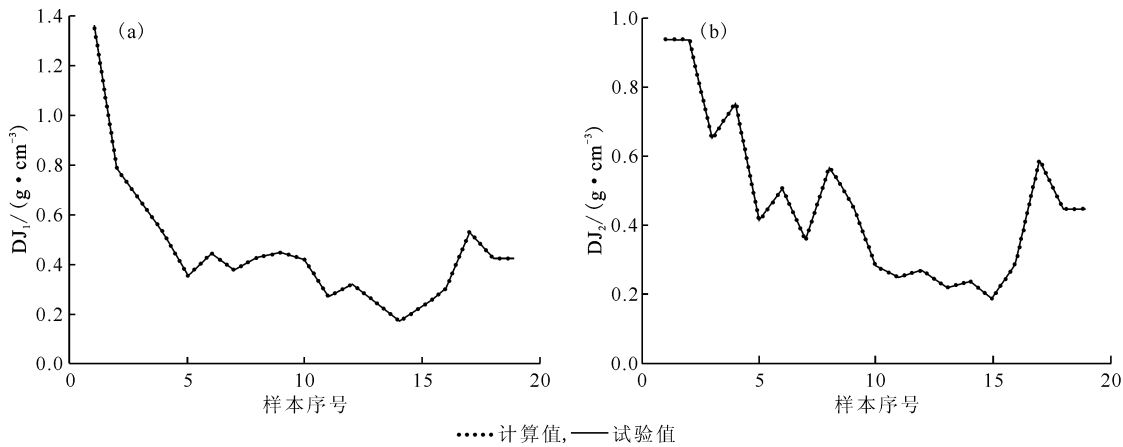


图 3 堆积密度 1(a)、2(b)代理模型的内检结果

Fig. 3 Internal inspection results of two surrogate model for calcinate bulk density 1(a) and 2(b)

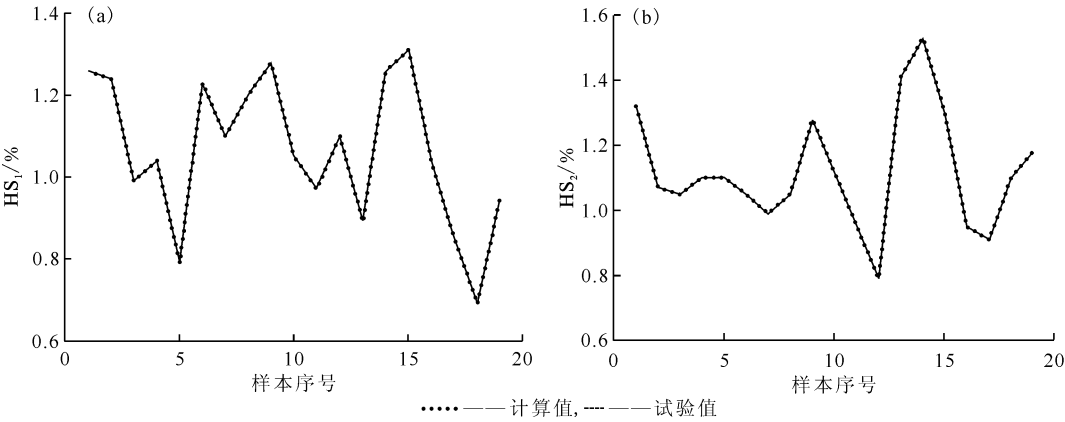


图 4 含水率 1(a)、2(b)代理模型的内检结果

Fig. 4 Internal inspection results of two surrogate model for calcinate water content 1(a) and 2(b)

3.3 模型外检

由于数据限制,只能有三个输入数据,因此建立的代理模型有三种:代理模型 1 是输入参数为 $T_{3,1}/T_{4,1}$ 、组分、转速,输出为第 1 个 2 h 取样堆积密度和含水率;代理模型 2 是输入参数为 $T_{3,2}/T_{4,2}$ 、组分、转速,输出为第 2 个 2 h 取样堆积密度和含水率;根据灵敏度分析,倾角对于含水率和堆积密度的影响均很大,因此代理模型 3 为将代理模型 2 输入参数更换为 $T_{3,2}/T_{4,2}$ 、组分、倾角,输出为第 2 个 2 h 取样堆积密度和含水率。根据四组试验数据分别采用上述三种代理模型进行外检计算,并将结果同试验结果对比分析,结果列入表 6。

由表 6 可知:代理模型 1 的堆积密度 1(DJ₁)计算值同试验值的相对误差较大,能耗为 45 GW·d/t 的模拟高放废液最大相对误差达到 83.6%,对于 33 GW·d/t 模拟高放废液相对误差达到-18.4%;代理模型 2 计算能耗为 33 GW·d/t 的模拟高放废液煅烧产物堆积密度 2(DJ₂)同试验值的相对误差在-14.4%,计算能耗 45 GW·d/t 的模拟高放废液煅烧产物堆积密度 2 同试验值相对误差为 3.6%,相对代理模型 1 的误差明显降低;代理模型 3 计算能耗 33 GW·d/t 的模拟高放废液煅烧产物堆积密度 2 同试验值的相对误差为-10.8%,计算能耗 45 GW·d/t 的模拟高放废液煅烧产物堆积密度 2 同试验值的相对误差为 3.8%,显示代理模型 3 中引入倾角参数后,计算值同试验值更为接近,该代理模型计算煅烧产物堆积密度 2 的值可靠性更高。

采用代理模型 1 计算两种能耗模拟高放废液煅烧产物的含水率 1(HS₁)同试验值的相对误差绝对值不超过 10%;采用代理模型 2 计算两种燃

耗模拟高放废液煅烧产物的含水率 2(HS₂)同试验值的相对误差绝对值不超过 3%,结果显示,采用代理模型 2 对于含水率 HS₂ 计算值的精度比代理模型 1 计算 HS₁ 的准确度更高,这可能是因为第 1 个 2 h 取样系统并未达到平衡,参数影响因素较多导致。采用代理模型 3 时,含水率 2(HS₂)的计算值与试验值相对误差绝对值不超过 2%(其中能耗 45 GW·d/t 的模拟高放废液煅烧产物含水率的相对误差绝对值接近 2%,能耗 33 GW·d/t 的模拟高放废液煅烧产物含水率的相对误差绝对值为 0.5%左右),结果显示采用引入炉体倾角的代理模型 3 对于含水率 HS₂ 计算值的精度最高。

根据上述结果可以看出,采用代理模型 1 计算第 1 个 2 h 煅烧产物含水率和堆积密度的相对误差绝对值均大于采用代理模型 2 和代理模型 3 计算第 2 个 2 h 煅烧产物含水率和堆积密度的相对误差绝对值,说明该系统运行第 2 个 2 h 后样品性能趋于稳定,同时根据前期试验结果^[12-13]显示,随着加热时间的延长,煅烧产物物理和化学性质趋于稳定,上述高斯克里金代理模型的计算结果同试验过程中发现的规律一致。外检结果还显示:采用代理模型 2 和代理模型 3 对 DJ₂ 和 HS₂ 的计算误差比采用代理模型 1 计算的 DJ₁、HS₁ 的误差绝对值小,尤其是堆积密度。当代理模型 3 中引入倾角后,煅烧产物含水率和堆积密度的计算值更接近试验值,进一步证明倾角对于煅烧产物含水率和堆积密度性能影响较大。

3.4 代理模型预测计算

由上述分析显示,代理模型 3 具有较好的预测结果。采用代理模型 3 对四组温度(21 组温度

表 4 代理模型 1 内检计算 HS₁ 和 DJ₁ 的 R² 值
Table 4 R² calculation of HS₁ and DJ₁ for internal inspection calculation with agent model 1

T ₃₋₁ /℃	T ₄₋₁ /℃	转速/(r·min ⁻¹)	燃料/ (GW·d·t ⁻¹)	HS ₁			DJ ₁		
				计算值/%	试验值/%	(p _i - $\bar{p}$) ²	计算值/ (g·cm ⁻³)	试验值/ (g·cm ⁻³)	(p _i - $\bar{p}$) ²
651	558	25	33	1.26	1.26	3.79×10 ⁻²	1.35	1.35	7.95×10 ⁻¹
571	531	20	33	1.24	1.24	3.05×10 ⁻²	0.78	0.78	1.03×10 ⁻¹
646	522	20	33	0.99	0.99	5.66×10 ⁻³	0.66	0.66	3.87×10 ⁻²
603	533	15	33	1.04	1.04	6.38×10 ⁻⁴	0.52	0.52	4.22×10 ⁻³
639	524	25	33	0.79	0.79	7.58×10 ⁻²	0.35	0.35	1.09×10 ⁻²
600	540	30	33	1.23	1.23	2.71×10 ⁻²	0.45	0.45	1.60×10 ⁻⁴
649	537	30	33	1.10	1.10	1.21×10 ⁻³	0.38	0.38	6.41×10 ⁻³
649	534	25	45	1.20	1.20	1.82×10 ⁻²	0.43	0.43	8.62×10 ⁻⁴
591	539	20	45	1.28	1.28	4.61×10 ⁻²	0.45	0.45	9.44×10 ⁻⁵
589	540	15	45	1.05	1.05	2.33×10 ⁻⁴	0.42	0.42	1.47×10 ⁻³
594	540	30	45	0.97	0.97	9.08×10 ⁻³	0.27	0.27	3.55×10 ⁻²
629	546	30	45	1.10	1.10	1.21×10 ⁻³	0.32	0.32	1.92×10 ⁻²
632	531	20	45	0.89	0.89	3.07×10 ⁻²	0.25	0.25	4.34×10 ⁻²
617	537	30	45	1.26	1.26	3.79×10 ⁻²	0.17	0.17	8.32×10 ⁻²
616	528	20	45	1.31	1.31	5.99×10 ⁻²	0.23	0.23	5.22×10 ⁻²
638	541	20	33	1.04	1.04	6.38×10 ⁻⁴	0.30	0.30	2.37×10 ⁻²
617	551	30	33	0.85	0.85	4.63×10 ⁻²	0.53	0.53	5.38×10 ⁻³
628	547	20	33	0.69	0.69	1.41×10 ⁻¹	0.42	0.42	1.14×10 ⁻³
646	553	30	33	0.95	0.95	1.33×10 ⁻²	0.42	0.42	1.14×10 ⁻³
						(1.07), R ² =1.00	(0.46), R ² =1.00		

注:括号内数据是试验平均值;R²是决定系数,下同

表 5 代理模型 2 内检计算 HS₂ 和 DJ₂ 的 R² 值
Table 5 R² calculation of HS₂ and DJ₂ for internal inspection calculation with agent model 2

T _{3,2} /°C	T _{4,2} /°C	转速/(r·min ⁻¹)	燃料/(GW·d·t ⁻¹)	HS ₂			DJ ₂		
				计算值/%	试验值/%	(p _i - $\bar{p}$) ²	计算值/(g·cm ⁻³)	试验值/(g·cm ⁻³)	(p _i - $\bar{p}$) ²
640	526	25	33	1.32	1.32	4.06×10 ⁻²	0.94	0.94	2.27×10 ⁻¹
637	541	20	33	1.07	1.07	2.35×10 ⁻³	0.94	0.94	2.27×10 ⁻¹
603	553	15	33	1.05	1.05	4.68×10 ⁻³	0.65	0.65	3.46×10 ⁻²
605	537	20	33	1.10	1.10	3.39×10 ⁻⁴	0.76	0.76	8.53×10 ⁻²
595	540	15	33	1.10	1.10	3.39×10 ⁻⁴	0.41	0.41	2.81×10 ⁻³
650	538	30	33	1.05	1.05	4.68×10 ⁻³	0.51	0.51	1.85×10 ⁻³
584	542	30	33	0.99	0.99	1.65×10 ⁻²	0.35	0.35	1.20×10 ⁻²
592	544	20	45	1.05	1.05	4.68×10 ⁻³	0.57	0.57	1.17×10 ⁻²
589	534	15	45	1.28	1.28	2.61×10 ⁻²	0.46	0.46	1.49×10 ⁻⁵
593	539	30	45	1.12	1.12	2.49×10 ⁻⁶	0.28	0.28	3.38×10 ⁻²
606	548	30	45	0.95	0.95	2.84×10 ⁻²	0.25	0.25	4.57×10 ⁻²
611	548	20	45	0.79	0.79	1.08×10 ⁻¹	0.27	0.27	3.76×10 ⁻²
604	543	30	45	1.41	1.41	8.50×10 ⁻²	0.22	0.22	5.95×10 ⁻²
612	541	20	45	1.53	1.53	1.69×10 ⁻¹	0.24	0.24	5.01×10 ⁻²
623	549	30	45	1.30	1.30	3.30×10 ⁻²	0.185	0.185	7.78×10 ⁻²
630	546	20	33	0.95	0.95	2.84×10 ⁻²	0.29	0.29	2.95×10 ⁻²
615	553	30	33	0.91	0.91	4.34×10 ⁻²	0.59	0.59	1.66×10 ⁻²
620	555	20	33	1.10	1.10	3.39×10 ⁻⁴	0.45	0.45	2.85×10 ⁻⁴
621	554	30	33	1.18	1.18	3.79×10 ⁻³	0.45	0.45	2.85×10 ⁻⁴
				(1.12), R ² =1.00			(0.46), R ² =1.00		

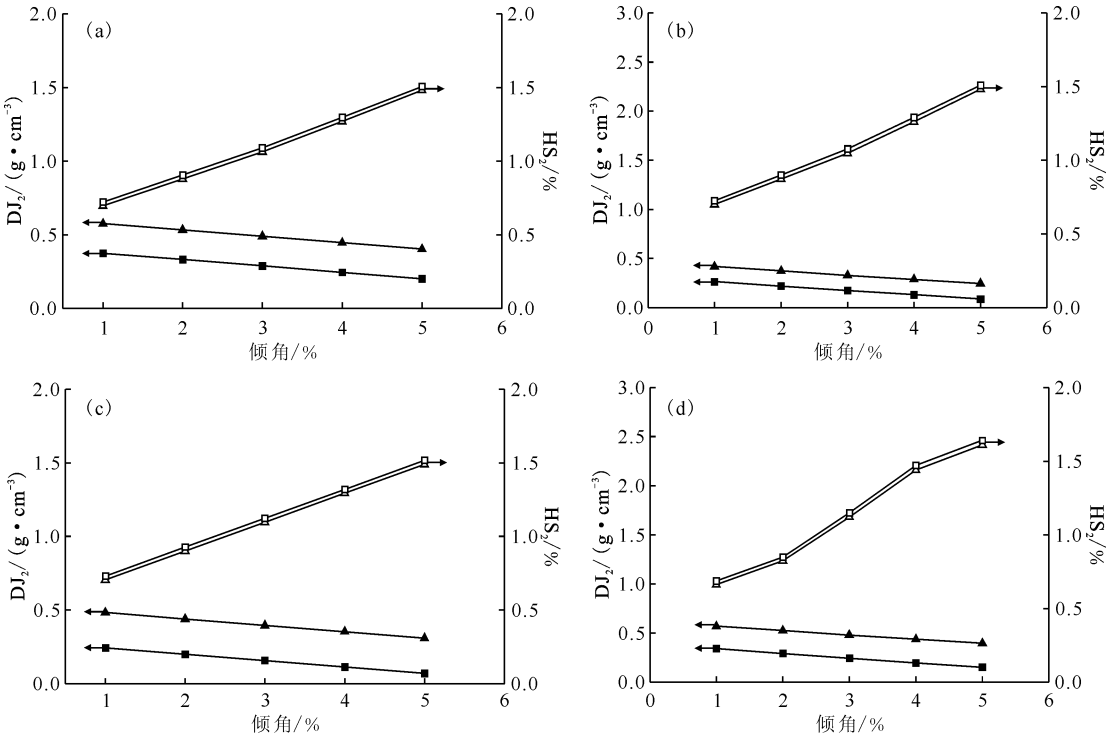
表 6 外检计算结果及误差分析
Table 6 External inspection calculation results and error analysis

代理 模型	$T_3/^\circ\text{C}$	$T_4/^\circ\text{C}$	转速/ ($\text{r} \cdot \text{min}^{-1}$)	燃耗/ ($\text{GW} \cdot \text{d} \cdot \text{t}^{-1}$)	倾角	堆积密度			含水率		
						计算值/ ($\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$)	试验值/ ($\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$)	相对 误差	计算值/%	试验值/%	相对 误差
1	595	547	15	33	3%	0.726	0.890	-18.4%	1.036	0.950	9.1%
	616	547	30	45	4%	0.367	0.195	83.6%	1.137	1.210	6.1%
2	588	540	25	33	3%	0.358	0.419	-14.4%	1.017	1.040	-2.2%
	586	541	25	45	3%	0.464	0.448	3.6%	1.072	1.050	2.1%
3	588	540	25	33	3%	0.373	0.419	-10.8%	1.045	1.040	-0.5%
	586	541	25	45	3%	0.465	0.448	3.8%	1.029	1.050	2.0%

注:代理模型 1 的数据是 DJ₁ 和 HS₁,代理模型 2 和 3 的数据是 DJ₂ 和 HS₂

平均值 612 °C/544 °C、设定温度 580 °C/550 °C、640 °C/550 °C 和 680 °C/550 °C)、不同倾角、不同组分废液产生的煅烧产物性能进行预测分析,计算结果示于图 5。图 5 展示了在当前建立的代理模型 3 下,设定了输入参数值:温度、倾角和组分,

获得了 DJ₂ 和 HS₂ 的预测值,可以在未做试验的情况下,对试验的结果进行事先预测。由图 5 可知:堆积密度会随着炉体倾角增加而减少,其中燃耗 45 GW · d/t 的模拟高放废液产生的煅烧产物堆积密度总体低于燃耗 33 GW · d/t 的模拟高放



采用代理模型 3,炉体转速为 25 r/min
燃耗, $\text{GW} \cdot \text{d}/\text{t}$: $\blacktriangle, \triangle$ — 33; $\blacksquare, \square$ — 45
(a) — $T_3=580^\circ\text{C}, T_4=550^\circ\text{C}$; (b) — $T_3=640^\circ\text{C}, T_4=550^\circ\text{C}$;
(c) — $T_3=680^\circ\text{C}, T_4=550^\circ\text{C}$; (d) — $T_3=612^\circ\text{C}, T_4=544^\circ\text{C}$

图 5 两种燃耗废液在不同倾角、不同温度条件下的堆积密度和含水率预测计算值
Fig. 5 Calculated values of bulk density and water content under different slope and temperature with two type simulated HLW

废液煅烧产物的堆积密度,这同两种废液组分差异相关;同时,含水率会随着倾角增加而增大,两种燃料废液煅烧产物含水率相差不大;图5显示,含水率计算值在倾角为1%和2%下增量较低,在倾角为3%下增量增大,在倾角为4%和5%时含水率增量降低。理论上应该选择倾角最低的1%可以获得较高的堆积密度和较低的含水率,但是实际上处理大量废液时,如果炉体倾角太低、煅烧产物停留时间太长会导致煅烧产物粒径较小容易随着气流夹带导致物料流失;同时,注意到倾角较高时,含水率较高,因此,为了保证获得较高堆积密度同时获得较低含水率的煅烧产物,对于设定在550~680℃试验装置的炉体倾角应选择3%较为适合,该结论同文献[14]的炉体倾角条件较为一致。

4 结 论

(1) 根据高斯克里金代理模型对高放废液转形系统工艺试验的21组试验数据的计算分析显示,试验过程中在4h后取煅烧产物含水率在相同温度条件下,影响因素排序是:倾角>组分>转速;堆积密度主要影响因素排序是:组分>倾角>转速。

(2) 采用输入倾角参数的高斯克里金代理模型3对四组试验数据进行外检计算和试验数据的对比,通过内检数据的训练,该模型可以对煅烧产物含水率和堆积密度进行预测计算,含水率外检计算值与试验值的相对误差绝对值最大达到2.0%,堆积密度计算值与试验值相对误差绝对值最高达到10.8%。

(3) 采用该代理模型3对于煅烧产物含水率和堆积密度预测显示,倾角为3%是实验过程中较为适中的参数,可以在煅烧产物堆积密度减少较小条件下尽可能满足含水率较低的要求。

由此,采用高斯克里金代理模型分析多影响因素对煅烧产物性能影响程度可行。同时,注意到煅烧产物物理化学性能稳定状态的起始时间还同炉体加热时长、负压状态等因素都有相关性,其中煅烧产物物理化学性能中的粒径分布的影响因素还涉及到设备结构等相关影响因素,也同试验

数据量对模型的内检培训程度相关,因此更为复杂的影响因素还有待于进一步开展试验研究优化模型。

参考文献:

- [1] 郭春贤. 移动最小二乘法的快速算法及其应用[D]. 重庆:重庆大学,2016.
- [2] 周志高,黄俊,刘志勤,等. 基于移动最小二乘法的气动力数据建模方法[J]. 计算机测量与控制,2021,29(3):165-170.
- [3] 周平红,李志福. 移动最小二乘法在高程异常拟合中的应用[J]. 全球定位系统,2018(1):85-90.
- [4] 张驰,郭媛,黎明. 人工神经网络模型发展及应用综述[J]. 计算机工程与应用,2021,57(11):57-69.
- [5] 陈晓君,陈小根,宋刚,等. 基于人工神经网络模型的岩石特性预测[J]. 探矿工程:岩土钻掘工程,2019(1):34-38.
- [6] 孙秋菊,刘向楠. 人工神经网络模型在地下水水位预测中的应用[J]. 陕西水利,2018(2):189-190.
- [7] 兰文博,罗小云,郑安波. 导弹多学科设计优化中响应面方法研究[J]. 计算技术与自动化,2009,28(3):111-115.
- [8] 熊芬芬,陈江涛,任成坤,等. 不确定性传播的混沌多项式方法研究进展[J]. 中国舰船研究,2021,16(4):19-36.
- [9] Han Z H. Kriging surrogate model and its application to design optimization: a review of recent progress[J]. Acta Aeronautica et Astronautica Sinica, 2016, 37(11): 3197-3225.
- [10] 顾忠茂. 核废物处理技术[M]. 北京:中国原子能出版社,2009.
- [11] Takashi K, Yuki S. Experiments on the leak path factor of ruthenium volatilized from high-level liquid waste tanks in a reprocessing plant in case of the boiling and drying accident[J]. J Nucl Sci Technol, 2014, 52(4): 1-5.
- [12] 贺诚,张华,李争,等. 煅烧条件对模拟高放废液煅烧产物物理化学性质的影响[J]. 核化学与放射化学,2021,43(6):465-472.
- [13] 李争,李泉鑫,张华,等. 蔗糖脱硝对模拟动力堆高放废液煅烧产物性能及结构的影响[J]. 原子能科学技术,2022,56(3):434-442.
- [14] 孙东辉. 高放废液玻璃固化电熔炉技术[M]. 北京:中国原子能出版社,1995.