

АНАЛИЗ РЕЖИМОВ РАБОТЫ ЛИНЕЙНОГО КРИСТАЛЛИЗАТОРА НЕПРЕРЫВНОГО ДЕЙСТВИЯ

Е.А.Посеницкий¹

Научный руководитель: директор отделения, к.ф.-м.н. В.А. Кашеев²

¹Национальный исследовательский Томский политехнический университет,

Россия, г. Томск, пр. Ленина, 30, 634050

²Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов имени

академика А.А. Бочвара, Россия, г. Москва, ул. Рогова, 5а, 123098

E-mail: posenickiy@gmail.com

ANALYSIS OF LINEAR CONTINUOUS CRYSTALLIZER OPERATING MODES

E.A. Posenitskiy¹

Scientific Supervisor: Dir. of Department, Ph.D. V.A. Kasheev²

¹Tomsk Polytechnic University, Russia, Tomsk, Lenin str., 30, 634050

²Research Institute for Inorganic Materials, Russia, Moscow, Rogov St., 5a, 123098

E-mail: posenickiy@gmail.com

Abstract. *The object of research is linear continuous crystallizer (LCC) operating modes. LCC is device, which can provide effective crystallization refining of uranyl nitrate (UN) from nitric acid solution during spent nuclear fuel (SNF) reprocessing. The purpose of the work is mathematical description of operating mode parameters – LCC operational efficiency and time required for accumulation tank filling with uranyl nitrate hexahydrate (UNH) crystals. Presented estimates have been compared with experimental data and numerical simulation results.*

Введение. Основной задачей процесса переработки облученного ядерного топлива (ОЯТ) является извлечение присутствующих в ОЯТ делящихся материалов (урана и плутония) с целью их повторного использования для фабрикации ядерного топлива [1], причем при переработке необходимо обеспечить высокую степень очистки делящихся материалов от накопленных в ОЯТ продуктов деления. Промышленно используемая в Российской Федерации [2] и других странах технология переработки ОЯТ основана на растворении ОЯТ в азотной кислоте и использовании различных экстрагентов для селективного извлечения делящихся материалов из азотнокислого раствора. Отработавший экстрагент является радиоактивным продуктом, его утилизация представляет серьезную проблему и сопровождается возникновением органических радиоактивных отходов. В связи с этим, особый интерес представляет разработка технологических операций, основанных на использовании безреагентных способов извлечения целевых продуктов из ОЯТ.

Одним из таких способов является метод кристаллизационного выделения урана и плутония из ОЯТ [3,4]. Метод основан на создании условий, при которых целевые продукты, находящиеся в растворенном виде в азотнокислом растворе, выделяются в кристаллическую фазу. Указанный метод в последние годы достаточно интенсивно разрабатывается и имеет аппаратное воплощение в виде экспериментальных аппаратов – кристаллизаторов, наиболее совершенный из которых – линейный

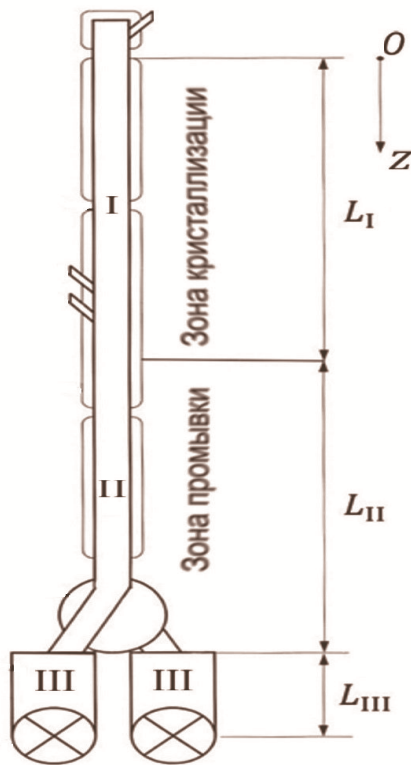


Рис. 1. Схема линейного кристаллизатора. I – зона кристаллизации, II – зона промывки, III – накопительная емкость

кристаллизатор непрерывного действия, разработанный в АО «ВНИИНМ» [5], схематически изображен на рис. 1.

Оценка эффективности кристаллизационного процесса и времени заполнения накопительной емкости в заданном режиме. Анализ работы линейного кристаллизатора [6] при различных значениях геометрических и температурных (распределение температуры на стенках аппарата) параметров, а также при различном составе подаваемого на вход аппарата исходного раствора НУ, показал, что существуют режимы, при которых на границе зон в объеме аппарата устанавливается равновесие между жидкой и твердой фазами, то есть прекращается массообмен между фазами. Подобные режимы соответствуют максимальной доле выхода целевого продукта в кристаллическую фазу и естественно представляют наибольший интерес при промышленном использовании линейного кристаллизатора. Проанализированы указанные режимы работы и получены приближенные выражения для оценки важных с практической точки зрения характеристик работы аппарата – эффективности Ω выделения урана в кристаллическую

фазу и времени заполнения τ накопительной емкости кристаллической фазой.

$$\Omega = \frac{C_{\text{ТВ}} - \sigma C_{\text{Ж}}^{22}}{C_0} \frac{C_0 - C_{\text{Ж}}^{11}}{C_{\text{ТВ}} - C_{\text{Ж}}^{11}} - \frac{C_{\text{Ж}}^{12}}{C_{\text{ТВ}} - C_{\text{Ж}}^{12}} \frac{Q_{\text{пр}}}{\rho_0 v_0 S}; \tau = \frac{V \rho_{\text{ТВ}}}{\rho_0 v_0 S} \left(\omega + \frac{C_{\text{Ж}}^{22} \sigma}{2} \left[\frac{1}{C_{\text{ТВ}} - C_{\text{Ж}}^{22} \sigma} + \frac{1 - \omega}{C_{\text{ТВ}}} \right] \right) \left(1 + \sigma \frac{C_{\text{Ж}}^{12} - C_{\text{Ж}}^{22}}{C_{\text{ТВ}} - C_{\text{Ж}}^{12}} \right);$$

где $\sigma = \rho_{\text{Ж}}^{22} / \rho_{\text{ТВ}}$; $C_{\text{Ж}}^{ij} = C_{\text{Ж}}(T_i, \psi_j)$ ($i, j = 1, 2$) – массовая доля НУ в жидкой фазе на границе раздела зон аппарата; T_1 и T_2 – температура жидкой фазы на границе зон I-II и II-III соответственно; $C_{\text{ТВ}}$ – массовая доля кристаллов ГНУ в растворе; $\rho_0, v_0, C_0, Q_{\text{пр}}$ – параметры растворов (маточного и промывного), поступающих в аппарат; V – объем накопительной емкости; $\omega = 55\%$ – объемное содержание кристаллической фазы в накопительной емкости [7].

Валидация результатов. Для валидации полученных выражений была проведена серия численных расчетов по разработанной ранее математической модели нестационарных режимов работы линейного кристаллизатора непрерывного типа [8]. В таблице 1 приведены значения параметров кристаллизации ГНУ для различных режимов работы аппарата. Использованные обозначения: $\tau_{\text{м}}$ – время заполнения накопительной емкости, полученное в результате расчетов по математической модели, $C_{\text{НУ}}$ и C_{HNO_3} – массовая доля НУ и азотной кислоты в жидкой фазе соответственно.

Таблица 1

Параметры работы аппарата в различных режимах работы (температура подаваемого маточного раствора $T_0 = 60^\circ\text{C}$; температура стенок аппарата $T_1 = 11^\circ\text{C}$; $T_2 = 6^\circ\text{C}$)

$Q_{\text{пр}}$, кг/ч	Концентрационный режим		Эффективность кристаллизации и время заполнения емкости (мин)	
	Состав входящего плава	Исходный состав жидкой фазы в емкости	Оценка по формулам	Расчет по уравнениям мат. модели [6,8]
0,24	$C_{\text{H}_2\text{U}} = 70\%$ $C_{\text{HNO}_3} = 5\%$	$C_{\text{H}_2\text{U}} = 0\%$ $C_{\text{HNO}_3} = 45\%$	$\Omega = 83\%$	$\Omega = 85\%$
			$\tau = 98$	$\tau_{\text{м}} = 96$
0,23	$C_{\text{H}_2\text{U}} = 65\%$ $C_{\text{HNO}_3} = 6\%$	$C_{\text{H}_2\text{U}} = 0\%$ $C_{\text{HNO}_3} = 40\%$	$\Omega = 76\%$	$\Omega = 79\%$
			$\tau = 126$	$\tau_{\text{м}} = 124$
0,00	$C_{\text{H}_2\text{U}} = 70\%$ $C_{\text{HNO}_3} = 5\%$	$C_{\text{H}_2\text{U}} = 0\%$ $C_{\text{HNO}_3} = 45\%$	$\Omega = 87\%$	$\Omega = 87\%$
			$\tau = 96$	$\tau_{\text{м}} = 95$

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Taylor R. Reprocessing and Recycling of Spent Nuclear Fuel. – Woodhead Publishing, 2015.
2. Балакин И.М., Роцин А.Н., Никулин С.Л. и др. Разработка и совершенствование фильтрационного и экстракционного оборудования завода РТ-1 // Вопросы радиационной безопасности. – 1997. – № 2. – С. 13–26.
3. Пат. 2268510 РФ. G21C19/46. Способ очистки нитрата уранила от продуктов деления и устройство для его осуществления / Волк В.И., Арсеенков Л.В., Данилин Е.М. и др. Заявлено 24.02.2004; Опубл. 20.01.2006.
4. Волк В.И., Арсеенков Л.В., Веселов С.Н., Жеребцов А.А., Мельникова С.Н. Физико-химические основы процесса кристаллизационного выделения и очистки урана в виде плава гексагидрата нитрата уранила // Радиохимия–2009: Сб. тезисов докладов конференции. Москва, 2009. – С. 221.
5. Пат. 2528399 РФ. G21C19/00. Способ кристаллизационного выделения и очистки гексагидрата нитрата уранила и устройство для его осуществления / Волк В.И., Арсеенков Л.В., Веселов С.Н. и др. Заявлено 23.01.2013; Опубл. 20.09.2014.
6. Веселов С.Н., Волк В.И., Кашеев В.А., Подымова Т.В., Посеницкий Е.А. Кристаллизационный аффинаж целевых продуктов при переработке облученного ядерного топлива (математическая модель линейного кристаллизатора) // Атомная энергия. – 2015. – Т. 119. – № 5. – С. 279–284.
7. Воронцовская Е.В., Розен А.М. Плотность, вязкость, поверхностное натяжение и коэффициенты диффузии веществ в системе $\text{UO}_2(\text{NO}_3)\text{--HNO}_3\text{--H}_2\text{O--ТБФ}$. Сборник «Экстракция. Теория, применение, аппаратура». – М.: Госатомиздат, 1962. – 380 с.
8. Веселов С.Н., Волк В.И., Кашеев В.А., Подымова Т.В., Посеницкий Е.А. Математическое моделирование процесса кристаллизации в линейном кристаллизаторе непрерывного типа // Инженерно-физический журнал. – 2017. – Т. 90. – № 1. – С. 148–158.