

**МОДЕЛИРОВАНИЕ РОСТА КРИСТАЛЛОВ ГЕКСАГИДРАТА НИТРАТА УРАНИЛА В  
ЛИНЕЙНОМ КРИСТАЛЛИЗАТОРЕ ДЛЯ НАНО-ОЧИСТКИ МАТЕРИАЛОВ С  
ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ ПРОГРАММНОГО КОМПЛЕКСА SIMSAR**

А.И. Гожимов, Ю.А. Чурсин, А.О. Очоа Бикэ, Ф. Маненти, О.В. Шмидт

Научный руководитель: профессор, д.т.н. С.Н. Ливенцов

Национальный исследовательский Томский политехнический университет,

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

E-mail: \_Ju\_@tpu.ru

**MODELING OF URANYL NITRATE HEXAHYDRATE (UNH) CRYSTAL GROWTH IN LINEAR  
CRYSTALLIZER FOR NANO-CLEANING USING SIMSAR SOFTWARE**

A.I. Gozhimov, Y.A. Chursin, A.O. Ochoa Bique, F. Manenti, O.V. Shmidt

Scientific Supervisor: Prof., Dr. S.N. Liventsov

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

E-mail: \_Ju\_@tpu.ru

*The paper deals with simulation of linear crystallizer work process for the research of technic operating modes and searching the most effective. The model is realized by using SimSar software. Importance of device's geometry and process variables are marked. The model was included in the complex's composition of closed nuclear fuel cycle.*

Развитие современных технологий переработки отработанного ядерного топлива предполагает получение веществ в чистом виде (нано чистота). В химической промышленности для этого используется процесс кристаллизации [1]. Процесс кристаллизации является сложным процессом, сопровождающимся выделением твердой фазы в виде кристаллов. Определяющую роль в формировании свойства получаемого материала играют фазовые превращения и процессы тепломассопереноса, формирующие условия на границе раздела фаз. Для выращивания кристаллов ГНУ и проведения процессов кристаллизации важным является проведение достаточно полных исследований в данной области. Исследование в данном направлении отражены в ряде работ русских и японских исследователей [2 – 6]. Заметная роль здесь отводится проведению теоретических исследований с использованием различных математических моделей. Из-за сложности постановки реальных экспериментов и недостатка знаний о процессе встает необходимость реализации виртуального эксперимента для обнаружения нестационарных режимов его протекания. Поэтому моделирование работы кристаллизатора по получению ГНУ является актуальной задачей. В данный момент в России создается афинажный стенд для отработки экстракционно-кристаллизационной технологии переработки ОЯТ (в рамках проектного направления «ПРОРЫВ»), для этого требуется составление моделей всех его узлов и моделирование их одновременной работы, что требует больших вычислительных мощностей. Предполагается моделирование не только самого химического процесса, но и его аппаратного оформления.

## «ПЕРСПЕКТИВЫ РАЗВИТИЯ ФУНДАМЕНТАЛЬНЫХ НАУК»

В связи с этим целью данной работы является моделирование роста кристаллов ГНУ в линейном кристаллизаторе. Для достижения поставленной цели используется программный продукт SimSar, специально созданный для моделирования производств ЗЯТЦ.

В данной работе рассмотрена модель кристаллизационной зоны.

Жидкий азотнокислый раствор НУ можно рассматривать как трехкомпонентную жидкость:

$$C_{UN}^m + C_{HNO_3}^m + C_{H_2O}^m = \sum_{i=1}^{NC} C_i^m = 1 \quad (1)$$

где  $C_i^m$  – массовая доля  $i$ -ой компоненты. Массовые доли нитрат уранила (НУ) и азотной кислоты (HNO<sub>3</sub>) определяются из начальных значений концентрации урана(U) и азотной кислоты.

Зависимость между  $C_{HY}^m$  и  $C_{HNO_3}^m$  описывается следующим выражением:

$$C_{HY}^m = A - \psi \cdot C_{HNO_3}^m, A = 1 / (1 + \alpha) = 0.785 \quad (2)$$

где коэффициент  $\alpha$  определяется отношением массы шести молекул воды к массе молекулы нитрата уранила, принимая во внимание тот факт, что при образовании кристаллов ГНУ на одну молекулу НУ расходуется шесть молекул воды.  $\psi = (A - C_{HY}^{m,нач}) / C_{HNO_3}^{m,нач}$  – параметр задающий наклон рабочей линии процесса

Зависимость радиуса R кристалла от времени t можно представить в виде:

$$\frac{dR}{dt} = k(C_{HY}^m - C_{HY}^{m,нас}) \cdot \frac{L}{U_{me}} - R \quad (3)$$

где  $k$  – скорость роста кристаллической фазы;  $U_{me}$  – скорость движения кристаллической фазы;  $C_{HY}^{m,нас} = C_{HY}^{m,нас}(T, \psi)$  – концентрация насыщения НУ в жидком растворе.

В рабочем объеме кристаллизатора жидкая и кристаллическая фазы движутся с разными скоростями из-за разницы их массовых плотностей. скорость движения кристаллической фазы  $U_{me}$  можно выразить следующим выражением:

$$U_{me}(t) = U_{ж} + \frac{2g}{9\nu} R^2 \left[ \frac{\rho_{me}}{\rho_{ж}} - 1 \right] \quad (4)$$

где  $U_{ж}$  – скорость жидкой фазы;  $g$  – ускорение свободного падения;  $\nu$  – кинематическая вязкость жидкой фазы (функция температуры и состава);  $\rho_{me}$  и  $\rho_{ж}$  – массовые плотности твердой и жидкой фаз соответственно.

Плотность жидкой фазы описана в работе Chikazawa и находится по следующей формуле:  $\rho_{ж} = [1.023 + 2.936 \cdot 10^{-2} \cdot C_{HNO_3} + 1.313 \cdot 10^{-3} \cdot C_U - (4.681 \cdot 10^{-4} + 3.475 \cdot 10^{-5} \cdot C_{HNO_3}) \cdot T] \cdot 10^3$ .

Закон сохранения НУ и HNO<sub>3</sub> в растворе представлен следующими формулами:

$$\frac{dC_{HY}^m}{dt} = \frac{Q_0 \cdot C_{HY}^{m,нач} - U_{ж} \cdot S \cdot (1 - 4/3 \cdot \pi R^3(t)n) \cdot C_{HY}^m - U_{me} \cdot S \cdot 4/3 \cdot \pi R^3(t)n \cdot A}{U_{ж} \cdot S \cdot (1 - 4/3 \cdot \pi R^3(t)n)} \quad (5)$$

$$\frac{dC_{HNO_3}^m}{dt} = \frac{Q_0 \cdot C_{HNO_3}^{m,нач} - U_{ж} \cdot S \cdot (1 - 4/3 \cdot \pi R^3(t)n) \cdot C_{HNO_3}^m}{U_{ж} \cdot S \cdot (1 - 4/3 \cdot \pi R^3(t)n)} \quad (6)$$

Где  $Q_0$  – расход маточного раствора, подаваемого в кристаллизатор;  $S$  – площадь сечения кристаллизатора;  $n$  – количество твердых включений.

Тепловой баланс может быть описан следующим выражением:

## «ПЕРСПЕКТИВЫ РАЗВИТИЯ ФУНДАМЕНТАЛЬНЫХ НАУК»

$$\frac{dT}{dt} = T_{нач} - T - \frac{\pi \cdot D \cdot \chi \cdot (T - T_{стен})}{\rho_{ж} \cdot C_{ж} \cdot Q_0 \cdot (1 - 4/3 \cdot \pi R^3(t)n) + 4/3 \cdot \pi R^3(t)n \cdot C_{те} \cdot \rho_{те} \cdot S \cdot U_{те}} \quad (7)$$

Где  $D$  – диаметр поперечного сечения рабочего объема кристаллизатора;  $C_{те}$  и  $C_{ж}$  – удельные теплоемкости жидкой и твердой фаз;  $\chi$  – теплопроводность среды (жидкая + твердая фазы) в рассматриваемом сечении рабочего объема кристаллизатора;  $T_{стен}$  – температура стенки рабочего объема кристаллизатора.

Полученная модель процесса кристаллизации была адаптирована для моделирования конкретного аппарата.

- Полученные дифференциальные уравнения представлены в форме Коши
- Учтены геометрические параметры аппарата (превышение максимального объема, работа незаполненного аппарата).
- Реализована работа аппарата при всех состояниях входных и выходных вентилях
- Реализована модель теплопередачи от охлаждающих и греющих рубашек.

#### Заключение

Полученная модель позволяет, анализируя различные температурные режимы процесса, снизить потери полезного материала, а также отследить динамику процесса в различных режимах. Представленная реализация модели вошла в состав расчетного комплекса ЗЯТЦ.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Горюнов А.Г., Дядик В.Ф. и др. Математическое моделирование технологических процессов водно-экстракционной переработки ядерного топлива. – Томск: ТПУ, 2011. – 237с.
2. Yano K. Research and Development of Crystal Purification for Product of Uranium Crystallization Process// Proc. Int. Conf. GLOBAL 2009. – 2009. – 9093.
3. Shibata A., Kaji N., Nakahara M., Yano K., Tayama T., Nakamura K., Washiya T., Myochin M., Chikazawa T., Kikuchi T. Current Status on Research and Development of Uranium Crystallization System in Advanced Aqueous Reprocessing of FaCT Project// Proc. Int. Conf. GLOBAL 2009. – 2009. – 9154.
4. Chikazawa T., Kikuchi T., Shibata A., Koyama T., Homma S. Batch crystallization of uranyl nitrate// Journal of Nuclear Science and Technology. – 2008. –Т. 45.–№ 6. – С. 582-587.
5. Homma S., Ishii J., Kikuchi T., Chikazawa T., Shibata A., Koyama T., Koga J., Matsumoto S. Flowsheet Study of U-Pu Co-Crystallization Reprocessing System// Journal of Nuclear Science and Technology. – 2008. – Т. 45. –№6. –С. 510-517.
6. Veslov S., Volk V., Kashev V., Podimova T., Posenitsky E. Mathematic Simulation of Crystallization Affinage Process of Spent Nuclear Fuel Reprocessing Desired Products in Line Crystallizer// Advanced Materials Research. – 2014. –Т. 1084.