

И.Ю. Русаков, А.С. Буйновский,
В.Л. Софронов

Сублимационно- десублимационные процессы для фторидных технологий и их аппаратурное оформление

НАЦИОНАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ
ЯДЕРНЫЙ УНИВЕРСИТЕТ "МИФИ"

СВЕТЛОЯ
АТОМНО-ЭНЕРГЕТИЧЕСКАЯ
ЛАБОРАТОРИЯ



МИНИСТЕРСТВО ОБРАЗОВАНИЯ И НАУКИ РОССИЙСКОЙ
ФЕДЕРАЦИИ
ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ АВТОНОМНОЕ ОБРАЗОВАТЕЛЬНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ ВЫСШЕГО ПРОФЕССИОНАЛЬНОГО
ОБРАЗОВАНИЯ
«Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ»
Северский технологический институт –
филиал федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего
профессионального образования «Национальный исследовательский ядерный университет
«МИФИ»
(СТИ НИЯУ МИФИ)

И.Ю. Русаков, А.С. Буйновский, В.Л. Софронов

**СУБЛИМАЦИОННО-ДЕСУБЛИМАЦИОННЫЕ ПРОЦЕССЫ
ДЛЯ ФТОРИДНЫХ ТЕХНОЛОГИЙ И ИХ
АППАРАТУРНОЕ ОФОРМЛЕНИЕ**

Северск 2015

УДК 661.87

ББК 35.115

Р 88

Русаков, И.Ю.

Р 88 Сублимационно-десублимационные процессы для фторидных технологий и их аппаратурное оформление: монография/ И.Ю.Русаков, А.С.Буйновский, В.Л.Софронов. – Северск: Изд-во СТИ НИЯУ МИФИ, 2015. - 230с.

ISBN 978-5-93915-129-0

В монографии кратко изложены преимущества фторидных технологий по сравнению с традиционно существующими технологиями. Описаны теоретические основы сублимации и десублимации и рассмотрены особенности этих процессов применительно к фторидным технологиям. Приведены конструкции аппаратов предназначенных для сублимационно-десублимационного передела при переработке (получении и очистке от примесей) фторидов редких, радиоактивных и редкоземельных металлов, таких как цирконий, гафний, уран, торий скандий, и другие. Приведены принципы конструирования этого оборудования, позволяющие учитывать технологические особенности и требования процессов, а также методики расчёта сублиматоров и десублиматоров с различным принципом работы применительно к фторидам циркония, гафния, урана.

Монография предназначена для инженерно-технических работников при разработке конструкций оборудования для сублимационных процессов, а также может быть использована студентами при подготовке курсовых и дипломных работ.

Рег. № 13/15 от «13» февраля 2015г.

Рецензенты

доктор технических наук, профессор, зав. кафедрой неорганической химии

химического факультета НИ ТГУ

В.В. Козик

доктор химических наук, зав. лабораторией Сибирского физико-технического

института им. ак. В.Д.Кузнецова НИ ТГУ

В.И. Сачков

ISBN 978-5-93915-129-0

© Северский технологический институт НИЯУ МИФИ, 2015

Содержание

Введение	6
1 Обзор и анализ сублимационных и десублимационных процессов	14
2 Общая характеристика и конструкции сублимационно-десублимационного оборудования	28
2.1 Общие требования к сублимационным аппаратам.....	28
2.2 Общие требования к десублимационным аппаратам	30
2.3 Сублимационно-десублимационное оборудование для переработки фторидов РЗМ	37
3 Расчёт сублимационных аппаратов	69
3.1 Расчёт сублиматоров с неподвижным слоем продукта	69
3.1.1 Исходные данные для расчёта	69
3.1.2 Материальный расчёт	70
3.1.3 Тепловой расчёт	72
3.1.3.1 Расчёт продолжительности нагревания исходных продуктов	73
3.1.3.2 Расчёт продолжительности сублимации	79
3.1.3.3 Расчёт поверхности нагрева и основных размеров аппарата	81
3.1.3.4 Расчёт мощности нагревателя	85
3.1.3.5 Определение продолжительности разогрева печи	89
3.2 Конструктивный расчёт сублиматоров непрерывного действия	91
3.2.1 Расчёт барабанных (трубчатых) аппаратов	92
3.2.1.1 Расчёт мощности нагревателя	96
3.3 Расчёт шнековых сублиматоров	96
3.3.1 Математическое моделирование зоны нагрева	97
3.3.2 Математическое моделирование зоны сублимации	100
3.3.3 Пример расчёта сублиматора шнекового типа	106
3.4 Расчёт электронагревателей	109
4 Расчёт десублимационных аппаратов	114
4.1 Методика расчёта поверхностного десублиматора	114

4.2 Расчёт десублимации обогащённого гексафторида урана (ГФУ)	
в горизонтальном кольцевом аппарате	120
4.2.1 Постановка задачи	120
4.2.2 Материальный расчёт	120
4.2.3 Тепловой и гидродинамический расчёты	122
4.2.4 Численная реализация математической модели	129
4.3 Расчёт вертикального десублиматора кольцевого типа	134
4.3.1 Условия и данные для расчёта	134
4.3.2 Определение геометрических размеров десублиматора	136
4.3.3 Материальный расчёт десублимации ГФУ	138
4.3.4 Тепловой расчёт аппарата, работающего в режиме десублимации	143
4.3.4.1 Определение тепловых потоков	143
4.3.4.2 Определение количества хладагента	152
4.3.4.3 Определение поверхности теплоотдачи	157
4.3.5 Материальный расчёт процесса сублимации ГФУ	161
4.3.6 Тепловой расчёт сублимации ГФУ	163
4.3.7 Расчёт теплоизоляции	170
4.4 Расчёт объёмного десублиматора	175
4.4.1 Определение скорости гомогенного зародышеобразования	176
4.4.2 Кинетика роста частиц	179
4.4.3 Осаждение твёрдых частиц под действием силы тяжести	180
4.4.3.1 Свободное осаждение	180
4.4.3.2 Осаждение из псевдоожигенного слоя	186
4.4.4 Тепловой баланс объёмной десублимации	190
4.4.5 Контрольные примеры	190
Заключение	197
Список использованной литературы	199
Приложение А (справочное) Зависимость коэффициента теплоотдачи излучением α_L , Вт/(м ² ·К), в системе	

никель-фторид РЗМ при его сублимации от температуры поверхности и остаточного давления ...	213
Приложение Б (справочное) Зависимость параметров μ и B_I от критерия Био	214
Приложение В (справочное) Определение температуры тела в форме пластины	215
Приложение Г (справочное) Определение температуры сплошного цилиндра.....	216
Приложение Д (справочное) Определение температуры полого цилиндра	217
Приложение Е (справочное) Номограмма для определения времени откач- ки в зависимости от конечного давления	218
Приложение Ж (справочное) Зависимость показателя сокращения поверх- ности материала, спекающегося при сублимации	219
Приложение И (справочное) Значения коэффициента диафрагмирования φ для определения тепловых потерь излучением через отверстия	221
Приложение К (справочное) Блок-схема алгоритма расчёта сублимационного аппарата шнекового типа	222
Приложение Л (справочное) Эффективная удельная поверхностная мощ- ность нагревателей в зависимости от температуры тепловоспринимающей поверхности	223
Приложение М (справочное) Физико-химические свойства летучих продуктов реакции фторирования оксидов урана элементарным фтором	224
Приложение Н (справочное) Зависимость критерия Лященко Lu от критерия Архимеда Ar	227
Приложение П (справочное) Пример расчёта с использованием программы HSC Chemistry 7.0	228

Введение

Интенсивное развитие науки и техники, начавшееся в двадцатом столетии, вызвало необходимость применения новых материалов на основе тугоплавких, рассеянных, редких и редкоземельных металлов (РЗМ). В частности, широкое применение находят цирконий, гафний, уран, торий, скандий, иттрий, эрбий и другие редкие и редкоземельные элементы в виде металлов, сплавов и химических соединений [1].

Химические соединения редких и РЗМ металлов широко применяют в качестве катализаторов различных химико-технологических процессов [2, 3], в радио- и квантовой электронике [4, 5]. Так, карбид гафния входит в состав керамических элементов управления атомных реакторов с высокой удельной мощностью, скандий является лучшим модификатором лёгких сплавов на основе магния и алюминия, применяемых в качестве конструкционных материалов в авиационной и космической технике. В последнее время подобные сплавы стали применять в судостроении, химическом аппаратуростроении и в производстве товаров народного потребления. Быстроразвивающейся отраслью, потребляющей РЗМ, является производство постоянных высокоэнергетических магнитов на основе РЗМ, например, неодим-железо-бор. Такие магниты обладают магнитной энергией, в 8-10 раз превышающей энергию ферритовых магнитов. Развитие производства магнитов на основе РЗМ возрастает в геометрической прогрессии. На сегодняшний день лидирующее положение на рынке редкоземельных магнитов занимают Китай и Япония, где прирост производства магнитов составляет 25-30 % в год [7].

Циркониевые сплавы, как и прежде, остаются незаменимыми конструкционными материалами для атомных реакторов. В атомной промышленности одной из важнейших задач является снижение стоимости топливного цикла. Общепринятым способом достижения указанной цели является увеличение степени выгорания ^{235}U за счёт использования более

обогащенного топлива в действующих легководных реакторах (LWR). Поскольку активные зоны LWR рассчитаны на определённое обогащение, то с переходом на топливо с большим содержанием ^{235}U возникла необходимость введения дополнительных выгорающих поглотителей непосредственно в твэлы для компенсации начальной избыточной реактивности. В качестве поглотителей применяют РЗМ с высоким сечением захвата нейтронов: гадолиний и эрбий. Масштабы применения интегрированных с топливом выгорающих поглотителей за последние годы существенно расширились [7].

Сырьевую базу для производства фторирующих реагентов в России представляют большие запасы фтора как в составе флюоритовых, так и в составе фосфорито-апатитовых руд. Запасы фтора в минеральных сырьевых источниках в России могут удовлетворять потребность промышленности на долгие годы, вплоть до 2245 года [10]. Кроме того, перспективным источником фтора является “отвальный” гексафторид урана, который образовался после извлечения из него делящегося изотопа уран-235. Его запасы в России превышают сотни тысяч тонн и, являясь агрессивным и токсичным материалом, представляет собой серьёзную угрозу безопасности людей и окружающей среде. В рамках конверсионных программ рассматривается перевод этого продукта в устойчивое химическое соединение, предпочтительно в оксидной форме, а высвободившийся при его переработке фтор использовать во фторидных технологиях [11].

Снятие закрытости с атомной промышленности дало возможность использовать накопленный опыт работы с фторидами урана в других отраслях промышленности, в том числе, для получения редких и редкоземельных материалов.

Интерес к фторидной технологии переработки руд редких и рассеянных элементов появился в конце 60-х годов XX века [8, 9]. Высокая химическая активность фтора и его соединений, значительные различия в физи-

ко-химических свойствах фторидов ценных элементов рудного сырья, позволили создать короткие и высокопроизводительные технологические схемы переработки редкометаллических рудных концентратов.

Явное преимущество фторидной технологии перед другими, традиционно существующими технологиями, можно проследить на примере получения оксида титана. Так, в настоящее время, для получения оксида титана существует две промышленные технологии – сернокислотная и хлоридная. Сернокислотный способ не позволяет организовать замкнутый цикл по кислоте, что вызывает необходимость создания вблизи этого предприятия и крупнотоннажного производства серной кислоты, кроме того, этот способ является дорогостоящим и опасным для окружающей среды. Для хлоридной технологии возможно использование в качестве исходного сырья только рутила, запасы которого в России незначительны. Была предложена [12] фторидная малоотходная, энергосберегающая технология получения диоксида титана из ильменита. Исходное сырьё ильменит фторируют фторидом аммония с образованием фторида титана и фторида железа. Сравнительный анализ существующих технологий с вновь предложенной фторидной технологией, по этапам производства и экономическим показателям, приведён в таблице 1.

Таблица 1 – Сравнение технологий получения диоксида титана

Технология	Сернокислотная	Хлоридная	Фторидная
Вскрытие руды	При давлении 40 ати, температуре 200-220 °С, в 85-94%-ной серной кислоте, после образования плава пропускание сжатого воздуха, “вызревание” 2-3 часа	Обескремнивание, восстановительная плавка при 900-1000 °С, магнитная сепарация, хлорирование рутила	Разложение ильменита при 150-200 °С и возгонка TiF_4 при 400-500 °С

Окончание таблицы 1

Технология	Сернокислотная	Хлоридная	Фторидная
Гидролиз полупродукта	Пресыщение раствора, введение зародышей, вызревание, фильтрация, отбелка-очистка	Сжигание смеси TiCl_4 и AlCl_3 при 1000-1200 °С, “закалка”, компрессия и очистка	Аммиачное осаждение при 25 °С
Термообработка	Рутилизирующие добавки, при 800-900 °С, 4-5 часов	При 700-800 °С, 3 часа	500 °С, 2 часа – анатаз 800 °С, 2 часа – рутил
Регенерация реагентов	Нет	95% по Cl_2 , при сжигании TiCl_4 в O_2	95% по NH_4F
Отходы на 1т TiO_2	4т $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$, 10т гидролиз. H_2SO_4 , 60т загрязнённых вод	0,35т HCl (10%), 0,31 т раствора $\text{Ca}(\text{ClO})_2$	1т Fe_2O_3
Качество продукта	Среднее	Высокое	Высокое
Себестоимость (при производстве 2000т/год), руб/кг	42 (без учёта создания производства серной кислоты)	35 (без обогащения титановых шлаков, получения синтетического рутила)	18 (без учёта коммерциализации оксида железа)

Из таблицы 1 видно, что фторидная технология требует меньше энергетических затрат, отходы менее опасны для окружающей среды, а себестоимость готового продукта меньше в 1,9-2,3 раза при сохранении высокого качества. Кроме того, ильменит является минеральным сырьём, весьма распространённым и доступным на территории России.

Аналогичные преимущества фторидной технологии можно отметить и при переработке таких видов минерального сырья, как циркон, топаз, ильменит, берилл, ортит, а также при утилизации медеплавильного и угольного шлаков.

Другим фактором в пользу использования фторидных технологий является уникальность свойств фторидных соединений. Фториды титана, циркония, урана, тория и других редкоземельных элементов самостоятельного применения не имеют, но используются в качестве полуфабрикатов

при получении целевых продуктов на основе элементов, образующих фторид. Так, в технологии получения ядерного горючего особую роль играет гексафторид урана. Это единственное соединение, которое применяют в атомной промышленности для разделения изотопов урана-235 и урана-238 методом газовой диффузии через пористую перегородку или методом центрифугирования. В перспективе гексафторид урана будет играть исключительную роль при переработке неводным («сухим») фторидным методом отработанного ядерного топлива (ОЯТ) атомных реакторов на быстрых нейтронах. По этой технологии высокоактивное ОЯТ на первом этапе подвергают гидрофторированию фтористым водородом с образованием тетрафторида урана, тетрафторида плутония и фторидов элементов продуктов деления. На второй стадии полученную смесь фторидов металлов обрабатывают трифторидом хлора или трифторидом брома, получая газообразный гексафторид урана, который выделяют из парогазовой смеси с помощью десублимации. На заключительном этапе безводный фторидный метод переработки позволяет разделить высокоактивное ОЯТ на остальные составляющие (плутоний и продукты деления) в виде фторидов без образования жидких радиоактивных отходов.

Кроме процесса производства фторидов РЗЭ, фторидные технологии можно использовать для получения высокочистых веществ в форме фторидов, отделяя «целевой» продукт от примесей.

В России и за рубежом весьма активно проводятся научно-исследовательские работы по созданию промышленных способов получения ядерно-чистого циркония, пригодного для конструкционных материалов атомных реакторов.

Перспективными являются неводные методы очистки циркония от различных примесей. Эти методы условно разделяют на две группы [13]. Первая – это методы, основанные на различиях в летучести этих соединений: тонкослойная сублимация при атмосферном давлении, экстрактивная

дистилляция из расплавов солей, фракционная ректификация при высоком давлении. Вторая группа – это химические методы разделения галогенидов: избирательное восстановление, окислительно-восстановительный фторидный обмен, избирательное разложение солей, избирательное окисление хлоридов. Патентный поиск показывает, что большинство изобретений в области технологии очистки циркония относятся к экстрактивной дистилляции из расплава солей (73 патента), далее следуют: избирательное восстановление (36), тонкослойная сублимация (7), фракционная ректификация и избирательное дехлорирование (по 4 патента), окислительно-восстановительный фторидный обмен, хлоридно-оксидный обмен, избирательное разложение солей и хлоридов (по одному изобретению). Анализ существующих способов получения высокочистого циркония, показал:

- неводные методы разделения циркония и гафния не требуют значительных капитальных вложений, громоздкого оборудования, резко снижают или совсем не имеют технологические отходы;

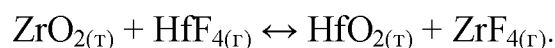
- из всех летучих соединений циркония и гафния наибольший интерес для разделения этих элементов представляют их высшие галогениды;

- описаний методов очистки циркония от гафния в виде фторидов нет.

Тетрафторид циркония в той или иной мере можно очищать от ряда примесей (алюминия, никеля, кислорода, хрома, железа) посредством процесса сублимации. Наиболее трудно отделяемой примесью является гафний, который характеризуется как полный химический аналог циркония. Был предложен [13] способ разделения циркония и гафния в форме их тетрафторидов путём сублимации в вакууме, при этом десублимат обогащается цирконием, а гафний остаётся в несублимированном остатке. Однако было показано [14], что для получения ядерно-чистого тетрафторида циркония, необходимого в атомной промышленности, потребуется 11 ступе-

ней очистки, что в реальных условиях вызовет большие технические трудности.

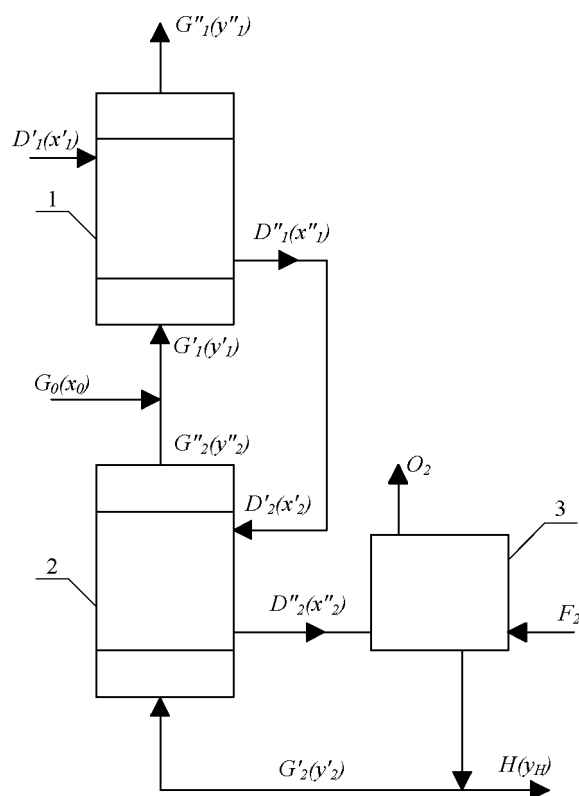
Более перспективным для промышленного использования является метод очистки циркония от гафния [15], основанный на способности фторидов гафния вступать в обменную реакцию с диоксидом циркония



В этом случае смесь паров тетрафторидов циркония и гафния при температуре более 1023 К пропускают через насадку из диоксида циркония, которая селективно взаимодействует с тетрафторидом гафния. При этом гафний концентрируется в твёрдой фазе диоксида гафния, а цирконий – в паровой фазе тетрафторида циркония. Далее очищенные пары тетрафторида циркония десублимируют.

Используя этот метод очистки, была предложена и рассчитана схема технологического каскада для разделения и обогащения тетрафторидов циркония и гафния [16], показанная на рисунке 1.

Каскад содержит два последовательно соединённых сублимационных аппарата поз. 1, 2 и реактор фторирования (фторатор) поз.3. Первый сублимационный аппарат, предназначен для очистки тетрафторида циркония от гафния и содержит насадку из диоксида циркония. Второй сублимационный аппарат предназначен для концентрирования гафния и выполнен с насадкой из смеси диоксида гафния, поступающей из первого аппарата и тетрафторида гафния из фторатора поз.3. Далее установлен аппарат для фторирования элементарным фтором диоксида гафния, который поступает из второго сублимационного аппарата. Из фторатора часть продукта возвращается во второй сублимационный аппарат, а другая часть является готовым продуктом – концентратом тетрафторида гафния. При определённом соотношении материальных потоков каскад позволяет получать ядерно-чистый



- 1- ступень очистки тетрафторида циркония от гафния
- 2- ступень концентрирование гафния
- 3- ступень фторирования
- x - концентрация гафния в диоксиде
- y - концентрация гафния в тетрафториде

Рисунок 1 – Каскад для разделения и обогащения тетрафторидов циркония и гафния

тетрафторид циркония и тетрафторид гафния с содержанием более 99% целевого продукта за одну ступень разделения.

Таким образом, фторидные технологии, кроме атомной отрасли, имеют большие перспективы использования в горно-перерабатывающей и в химико-металлургической отраслях промышленности. Эти технологии, используя неводные методы переработки путём применения элементарного фтора или фтора, находящегося в различных соединениях, дают возможность эффективного вскрытия минерального сырья, получения различных соединений РЗМ, чистых и высокочистых материалов на основе РЗМ при минимальном количестве технологических отходов.

1 Обзор и анализ сублимационных и десублимационных процессов

Сублимационные процессы используют практически во всех отраслях промышленности: химической, пищевой, медицинской, металлургической, электронной и др. Их применяют для получения новых продуктов в результате химической реакции между исходными газообразными реагентами (например, хлоридов аммония и металлов, цианурхлорида, технического углерода – сажи), для очистки веществ (йода, хлоридов, фторидов, полупроводниковых материалов и др.), для сублимационной сушки термочувствительных материалов и т.д. [17].

Сублимацию, а это фазовый переход твёрдого вещества в газообразное, минуя жидкую фазу, в зависимости от условий проведения процесса можно условно классифицировать по схеме, показанной на рисунке 1.1



Рисунок 1.1 – Классификация способов сублимации

сублимации включает в себя ряд сложных и взаимосвязанных явлений, которые в конечном итоге определяют скорость подвода энергии к поверхности фазового перехода и скорость отвода от последней образующейся па-

ровой массы. Поэтому представляет интерес рассмотреть влияние энергоподвода на тепло- и массообмен при сублимации.

Возможностью сублимационного перехода при давлении, близком к атмосферному, обладают фториды редких элементов: рений, цирконий, уран, вольфрам, бор и др. Это свойство фторидов используют для выделения их из парогазовых смесей, а также для очистки их от примесей. Причем, при сублимации целевой продукт очищается от низколетучих примесей, а при десублимации – от высоколетучих.

Говоря о сублимации, можно отметить, что большинство исследований [18-23], посвящены сублимации при малоинтенсивном подводе тепла к веществам, находящимся в неподвижном состоянии.

Сам процесс Известны три способа подвода энергии к поверхности сублимации: излучением, конвекцией и теплопроводностью. В большинстве практических случаев тепло подводят с участием двух или всех трёх видов теплообмена. Однако один из них преобладает и используется как классификационный признак. Нагрев излучением (инфракрасный, индукционный, ионный, электронно-лучевой, лазерный) позволяет получать большую объёмную мощность ($800-1000 \text{ Вт/см}^3$), но неизбежные при этом значительные тепловые потери и громоздкость используемого оборудования ограничивают применение данного вида нагрева [24-30]. При наличии конвективного теплоподвода (естественного или вынужденного) характер сублимации усложняется. Интенсивность процесса сублимации при таком способе подвода тепла зависит от соотношения скоростей потока пара, отделяющегося от поверхности сублимации (поперечный поток) и теплоподводящего потока [31-43]. В данном процессе вопрос о роли конвекции ещё полностью не изучен.

Наиболее распространённым является нагрев сопротивлением, когда электрический ток пропускают по специальному нагревателю и выделяемое в нём тепло передаётся к нагреваемому веществу за счёт теплопровод-

ности. При этом желательно, чтобы вещество имело форму теплотехнически тонкого тела, т.е. такую форму, для которой число Био не превышает 0,25 [24]

$$Bi = \frac{\alpha \cdot d}{\lambda} \leq 0,25, \quad (1.1)$$

где α – суммарный коэффициент теплоотдачи, Вт/(м²·К);

d – характерный размер вещества, м;

λ – коэффициент теплопроводности вещества, Вт/(м·К).

Это доступный и простой для организации и регулирования способ нагрева.

В работе [14] рассмотрена сублимация применительно к тетрафториду циркония (ТФЦ). Выделены факторы, влияющие на кинетику сублимации: температура, количество инертных примесей в исходном продукте, давление и продолжительность процесса. Показано, что сублимация протекает на поверхности исходного порошкообразного материала и к его описанию применимы законы кинетики гетерогенных реакций. Математическая обработка результатов экспериментов по сублимации ТФЦ позволила получить регрессионное уравнение, которое описывает зависимость степени сублимации α от времени процесса τ в диапазоне температур T от 903 до 1123 К при остаточном давлении от 30 до 130 Па

$$\alpha = 0,5183 + 0,004214(T-1021) + 0,04244(\tau - 10,02) - 0,0007147(\tau - 10,02)^2 - 0,0003014(\tau - 10,02)(T-1021). \quad (1.2)$$

Результаты обработки экспериментальных данных по уравнению Рогинского З.С. [44], показали, что образование центров сублимации тетрафторида циркония происходит мгновенно и сокращение поверхности вещества происходит по закону “сжимающейся сферы”

$$1 - (1 - \alpha)^{1/3} = k \cdot \tau, \quad (1.3)$$

где k – константа скорости.

В этой же работе [14] сделана попытка наиболее полно выявить влияние инертного разбавителя (дифторида никеля) на сублимацию тетрафторидов циркония и гафния. В результате получены регрессионные уравнения зависимости степени сублимации α вещества от времени τ , температуры T процесса от степени разбавления c сублимируемой смеси фторидов инертным разбавителем для тетрафторида циркония, содержащего 0,7% фторида гафния

$$\alpha = 0,4749 + 0,1032 \cdot T - 0,1047 \cdot c + 0,1469 \cdot \tau + 0,0449 \cdot c^2 - 0,0189 \cdot c \cdot \tau + 0,0285 \cdot T \cdot \tau, \quad (1.4)$$

а для тетрафторида циркония, содержащего 0,22% фторида гафния

$$\alpha = 0,623 + 0,0973 \cdot T - 0,0973 \cdot c + 0,1318 \cdot \tau + 0,0142 \cdot T^2 + 0,04 \cdot c^2 - 0,035 \cdot \tau^2 - 0,60264 \cdot T \cdot c - 0,0134 \cdot c \cdot \tau. \quad (1.5)$$

Из уравнений (1.4) и (1.5) следует, что степень сублимации возрастает при увеличении температуры процесса и уменьшается при увеличении степени разбавления сублимируемого вещества. Скорость сублимации тетрафторидов циркония и гафния возрастает с увеличением температуры процесса и уменьшается с ростом давления остаточных газов над поверхностью вещества.

В работе [45] рассмотрены модели процесса сублимации дисперсного материала, находящегося на теплопередающей поверхности при различном, целенаправленном воздействии на сублимируемый материал в условиях вакуума. Приводятся аналитические формулы для расчёта времени сублимации порошкообразного материала при различных способах ведения процесса:

1) при периодическом уплотнении материала на теплоподводящей поверхности

$$\tau = \frac{1}{2AB} \left[\frac{(B \cdot M_{co} + C) \cdot \sqrt{(B \cdot M_{co} + C)^2 + A \cdot \Delta\tau} - C \cdot \sqrt{C^2 + A \cdot \Delta\tau}}{A \cdot \Delta\tau \cdot \ln \frac{(B \cdot M_{co} + C) \sqrt{(B \cdot M_{co} + C)^2 + A \cdot \Delta\tau}}{C + \sqrt{C^2 + A \cdot \Delta\tau}}} + \frac{B}{2A} \cdot M_{co}^2 + \frac{C}{A} \cdot M_{co} \right]; \quad (1.10)$$

2) при периодическом перемешивании на теплоподводящей поверхности

$$\tau = \frac{M_{co}}{A} \left[C + \sqrt{C^2 + A \cdot \Delta\tau} - \frac{A \cdot \Delta\tau}{2C} \cdot \ln \frac{A \cdot \Delta\tau}{2\sqrt{C^2(C^2 + A \cdot \Delta\tau)} + 2C^2 + A \cdot \Delta\tau} \right], \quad (1.11)$$

где τ – время сублимации, с;

$\Delta\tau$ – время цикла сублимации, с;

M_{co} – масса сублимата в исходном материале в начальный момент времени, кг/м²;

A, B, C – параметры, определяемые по формулам

$$A = \frac{2(T_{II} - T_C) \cdot \lambda_p \cdot \rho_p \cdot q_0}{r},$$

$$B = \frac{\lambda_p \cdot \rho_p}{\lambda_y \cdot \rho_y},$$

$$C = h_w \cdot \rho_p \cdot q_0;$$

T_{II} – температура теплоподводящей поверхности, К;

T_C – температура сублимации, К;

λ_p – теплопроводность рыхлого шлака, Вт/(м·К);

λ_y – теплопроводность уплотнённого шлака, Вт/(м·К);

ρ_p – плотность рыхлого шлака, кг/м³;

ρ_y – плотность уплотнённого шлака, кг/м³;

r – теплота сублимации, Дж/кг;

q_0 – относительное содержание сублимата и примесей в исходном материале

$$q_0 = M_{co} / M_{по};$$

h_w – условная толщина рыхлого шлака, термическое сопротивление которого эквивалентно термическому сопротивлению теплоот-

дачи со стороны теплоносителя и теплопроводности греющей поверхности, м

$$h_w = \left(\frac{\delta}{\lambda_w} + \frac{1}{\alpha} \right) \cdot \lambda_p;$$

δ – толщина греющей стенки, м;

λ_w – теплопроводность греющей стенки, Вт/(м·К);

α – коэффициент теплоотдачи, Вт/(м²·К).

Результаты расчётов по формулам (1.10) и (1.11) были проверены экспериментально для мономера акриламида. Максимальная ошибка при определении продолжительности сублимации составила 3,5%. Однако, используя эти формулы применительно к тетрафториду циркония, получили, что время сублимации намного (примерно в 10 раз) меньше, чем продолжительность этого процесса, определённая экспериментально [46]. Поэтому при конструировании эффективного сублимационного аппарата, работающего с конкретным продуктом, для расчёта процесса требуются формулы, учитывающие состав, свойства продукта и условия ведения сублимации. Справедливость используемых формул необходимо проверять опытным путём.

Анализ литературы показывает, что различные авторы, описывая вакуумную сублимацию в аппаратах периодического действия, имеют качественные и количественные расхождения в вопросах кинетики и механизма её протекания. Объяснить это можно различием способов получения исходных продуктов, а отсюда и различием их свойств, при множестве факторов, влияющих на процесс сублимации, которые полностью учесть в расчёте весьма затруднительно. Необходимо изучение процесса сублимации для конкретно взятого вещества с учётом возможно большего количества факторов, влияющих на процесс, с целью получения кинетических уравнений, пригодных для расчётов сублимационных установок.

Почти во всех работах посвящённых сублимации этот процесс рассматривается в отрыве от десублимации. Между тем эти процессы взаимо-

связаны, т.к. от того, в каких условиях, с какой скоростью протекает сублимация, зависят выбор способа и условия ведения процесса десублимации. Эта связь обусловлена тем, что оба процесса желательны и целесообразно организовывать не в отдельных аппаратах, находящихся на расстоянии друг от друга и соединённых трубопроводами, а в корпусе одного аппарата, где внешние факторы (давление, среда) будут для них общие.

Десублимационные процессы связаны с фазовым переходом вещества из газовой фазы в твёрдую. Область применения таких процессов достаточно широка – это выделение веществ из парогазовых смесей (например, для фталевого ангидрида, малеинового ангидрида, антрахинона, фталонитрила и др. веществ), образование твёрдых плёнок и покрытий (например, разложением металлоорганических соединений), выращивание монокристаллов, газофазная полимеризация и др. [17].

В промышленности используют громоздкие несовершенные аппараты, т.к. отсутствует чёткая методика расчёта этих процессов. В основном, применяют эмпирические методы [17, 47].

В общем случае различают десублимацию, протекающую на поверхности или в объёме парогазовой фазы.

Выделение вещества на поверхности осуществляют путём пересыщения паров этого вещества за счёт охлаждения поверхности. Поверхность имеет существенно более низкую температуру, чем пары продукта. При этой температуре, объём пара, находящийся у поверхности, становится пересыщенным по отношению к равновесной концентрации в остальном объёме и происходит его осаждение на стенке. В случае объёмной десублимации теплообмен паровой фазы с внешней средой происходит через газовую фазу либо конвекцией, либо излучением. В объёме охлаждённого пара (или парогазовой смеси) при уменьшении температуры, создаются условия для пересыщения продукта, благодаря чему часть молекул пара начинают взаимодействовать между собой и образуют кластеры. Осаждение

другой (основной) части паров продукта происходит на поверхности образованных кластеров. Вопрос о том, где произойдёт десублимация продукта, на поверхности десублиматора или в объёме парогазовой смеси, определяется соотношением скоростей тепло- и массообмена десублимируемого продукта, которые можно оценить с помощью критерия Льюиса [48]

$$Le = \frac{\alpha}{C_p \cdot \rho \cdot \beta}, \quad (1.12)$$

где α – коэффициент теплоотдачи, Вт/(м²·К);

C_p – удельная теплоёмкость, Дж/(кг·К);

ρ – плотность, кг/м³;

β – коэффициент массоотдачи, м/с.

Если критерий Льюиса больше единицы, то интенсивность теплообмена выше интенсивности массообмена, в результате чего пары десублимируемого продукта не будут успевать доставляться к охлаждаемой поверхности десублиматора и преобладающим процессом будет объёмная десублимация. Однако, в виду сложности определения коэффициентов тепло- и массопередачи при оценке процесса десублимации расчёт критерия Льюиса практически не применяют.

Рассмотрим механизмы образования десублимата. Процесс десублимации характеризуется взаимодействием двух объёмных фаз – газовой и твёрдой кристаллической, ограниченных поверхностью раздела. Образование твёрдой фазы происходит через стадии адсорбции и создания некоторой поверхностной фазы – двумерного газа. Совокупность поверхностных процессов можно представить в виде физико-химической системы поверхностных процессов. Система содержит три уровня, которые описывают молекулярный процесс (процессы в двумерном газе), кластерный процесс (процессы образования зародышей типа островков на поверхности) и монокристаллический (монослойный) процесс (процессы роста слоёв твёрдой фазы на поверхности). В современной теории поверхностных явлений

предполагают, что исходные фазы разделены некоторым поверхностным слоем конечной толщины. Применительно к процессу десублимации, существует газовая объёмная фаза, образующая некоторый поверхностный слой конечной толщины вблизи твёрдой поверхности. Десублимируемое вещество переходит на поверхность, образуя двумерную фазу (поверхностный двумерный слой). Молекулы из этого слоя образуют двумерные кристаллические зародыши, которые при достижении критических размеров начинают расти, образуя двумерную твёрдую плёнку. Эта плёнка в свою очередь после нарастания на ней последующего слоя вещества включается в состав твёрдой объёмной фазы. Фазовый переход на поверхности может при этом быть или физическим процессом или возникнуть в результате протекания химической реакции [17]. Для нас интересен первый вариант.

При физической десублимации поверхность, на которой выделяется твёрдая фаза, имеет температуру T_s , которая ниже, чем температура парогазовой смеси T_0 , которая её омывает. С момента соприкосновения парогазовой смеси с поверхностью, последняя бомбардируется молекулами пара и газа (или смеси газов) носителя. Поскольку молекулы могут адсорбироваться, т.е. задерживаться некоторое время на поверхности, на ней образуется плоский (двумерный) газ с некоторой поверхностной концентрацией. Плоский газ представляет собой совокупность молекул, которые лишены возможности совершать поступательное движение в нормальном к поверхности направлении, но сохраняют возможность совершать поступательное движение по поверхности, а также возможность колебательного и вращательного движений во всех направлениях. Из плоского газа образуются отдельные зародыши на плоскости (кластеры), рост которых определяет скорость образования на поверхности слоя твёрдой фазы. Скорость зародышеобразования увеличивается по мере роста плоской концентрации. В процессе адсорбции изменяется величина пересыщения пара S , которая

определяется отношением действительной концентрации к некоторому значению, соответствующему равновесию между плоским газом и поверхностью плоского кластера.

После того как на поверхности образовался зародыш, начинается рост кристалла. Теорий роста кристаллов существует несколько (теория “поверхностного натяжения”, “диффузионная” теория, теория “адсорбционного слоя”), но, ни одна из них не объясняет все особенности этого процесса.

При образовании слоя десублимата рассматривают три периода. В период роста кристаллов (после подачи парогазовой смеси) охлаждаемая поверхность быстро покрывается очень тонким слоем, состоящим из отдельных островков. Перенос массы к этим островкам происходит в соответствии с моделью роста кристаллов в начальный период. Этот процесс близок к процессу в поверхностном каталитическом архипелаге, состоящем из круглых активных островков. В этом случае поглощённый поверхностью материал (поверхностный газ) реагирует на круговой границе активного островка. Затем в этот период на слое десублимата появляются кристаллы, которые располагаются на сравнительно большом расстоянии один от другого и растут в вертикальном направлении примерно с одинаковой скоростью. Для этого периода характерен преимущественный рост кристаллов в длину, в результате чего слой приобретает вид своеобразного “леса”, состоящего из отдельных деревьев.

В период роста шероховатого слоя десублимата, представляющего собой скопление кристаллов стержневого типа, меняется форма этих кристаллов. Изменение обусловлено образованием ветвей около вершин кристаллов или взаимодействием между кристаллами. Эти образования постепенно переходят в более однородный по своей структуре слой десублимата. Поверхность слоя становится относительно гладкой. Плотность десуб-

лимата в этот период увеличивается в связи с ростом кристаллов в трёхмерном пространстве и диффузией пара внутри слоя десублимата.

После завершения роста слоя десублимата его форма не меняется до тех пор, пока температура на его поверхности не достигнет температуры плавления продукта в результате увеличения термического сопротивления слоя. После этого начинается оплавление поверхности слоя десублимата. При достижении на поверхности слоя температуры плавления происходит конденсация и образование капель десублимируемого вещества. Эти капли за счёт капиллярных сил всасываются в слой и затем замерзают в глубине десублимата. Оплавление и замерзание вызывают резкое увеличение плотности слоя и снижение его термического сопротивления (при этом уменьшается толщина слоя). Температура поверхности слоя вследствие роста его теплопроводности вновь понижается, и снова начинается процесс десублимации, приводящий к увеличению толщины слоя. Увеличение толщины вновь приводит к повышению температуры поверхности. Циклический процесс оплавления, всасывания, замерзания и нарастания слоя периодически повторяется до достижения равновесного в отношении передачи тепла. В конечном результате получается плотный и компактный слой.

В общем случае при десублимации на поверхности образуется слой твёрдой фазы: при турбулентном потоке – этот слой гладкий и твёрдый, при ламинарном потоке – слой рыхлый, аналогичный снегу. Слой десублимата обычно имеет сложную пористую структуру. Структура пористого слоя характеризуется проницаемостью (зависит от пористости слоя) и извилистостью пор. Процессы, протекающие в пористых средах, зависят от двух факторов: случайного, нерегулярного характера пористой среды и взаимодействия участвующих в процессе фаз. В процессах десублимации построение модели пористой структуры более сложно, поскольку сама пористая структура изменяется со временем.

Свойства слоя десублимата характеризуют плотностью, толщиной слоя, эффективными коэффициентами переноса (коэффициентами диффузии и теплопроводности) и шероховатостью поверхности. Эти параметры зависят от скорости газового потока, его температуры и температуры охлаждаемой поверхности, концентрации десублимируемого вещества в парогазовой смеси, длительности процесса десублимации.

Основой процесса объёмной десублимации является образование десублимата в виде частиц в замкнутом объёме аппарата. Появление таких частиц будет происходить если в парогазовой смеси имеются центры десублимации в виде мелкодисперсного аэрозоля. Образование аэрозоля происходит при понижении температуры парогазовой смеси, поскольку при этом равновесная концентрация пара, соответствующая этой температуре, становится ниже фактической концентрации. Охлаждение может происходить при адиабатическом расширении газа или смешении газа с более холодным потоком. При высокой температуре газовой смеси тепло может отводиться лучеиспусканием в окружающую среду.

Для характеристики механизма процесса объёмной десублимации можно построить структуру физико-химической системы. Эта структура состоит из нескольких уровней в зависимости от размера и количества частиц образующегося десублимата. На молекулярном уровне взаимодействие молекул одного сорта вызывает гомогенное зародышеобразование в объёме. Обычно наблюдаются высокие скорости гомогенного образования зародышей новой фазы (скорости нуклеации). В основе теории нуклеации лежит кластерная модель, по которой пересыщенный пар рассматривается как смесь молекул пар молекулярных агрегатов различной кратности (кластеров), возникающих в результате флуктуаций плотности пара. При анализе зародышеобразования и роста зародышей необходим учёт возможной коагуляции частиц. Существенное влияние на процесс коагуляции оказывают молекулярные силы взаимодействия, в особенности для мелких ча-

стиц. С увеличением концентрации пара в газе размер конденсированных частиц возрастает.

На кластерном уровне происходит взаимодействие отдельных кластеров, в частности сублимация мелких кластеров и десублимация образовавшегося пара на крупных кластерах (перегонка). Механизм перегонки определяется тем, что по отношению к более мелким частицам концентрация в объёме может быть ниже равновесной при данной температуре (вследствие высокой кривизны поверхности частиц). В результате этого мелкие частицы будут испаряться. По отношению к наиболее крупным частицам парогазовая смесь в объёме может быть пересыщенной. Рост крупных частиц может быть обусловлен как десублимацией исходного пара из парогазовой смеси, так и испарением мелких частиц. Процесс перегонки существенно влияет на изменение функции распределения частиц по размерам.

На уровне частиц аэрозоля с устойчивыми размерами происходит сублимация материала частиц и десублимация пара на их поверхности, приводящая к дальнейшему росту частиц.

На уровне систем аэрозольных частиц происходят столкновения отдельных частиц, коагуляция также является характерным процессом этого уровня. Процесс коагуляции аэрозолей может, как и десублимация пара на частицах, протекать по диффузионному или по газокINETическому механизму. Следует отметить, что вначале частицы растут за счёт молекул пара и только после достижения определённых размеров крупные частицы начинают питаться мелкими, т.е. начинается процесс перегонки. В этом случае практически исключено образование новых зародышей.

На уровне аппарата происходит перенос частиц под действием различных механизмов, а также осуществляется взаимодействие частиц с потоком газа-носителя и с поверхностью, ограничивающей технологическое пространство. Основными механизмами переноса, определяемыми pulsa-

ционной составляющей скорости, являются: турбулентная диффузия продольного импульса частицы в радиальном направлении и инерционное движение частиц к поверхности. Существует также поперечная сила, обусловленная градиентом осреднённой скорости потока при движении частиц в поле течения со сдвигом. Особенно возрастает эта сила в пограничном слое. Кроме того, на частицу могут влиять силы термофореза, фотофореза и диффузиофореза. Некоторыми процессами переноса в обычных условиях можно пренебречь. Процессы, определяющие перенос частиц аэрозоля к поверхности, соответствуют процессам переноса пара к поверхности: механизм турбулентной диффузии аэрозоля соответствует механизму конвективной диффузии пара; движение частиц аэрозоля под действием термофореза соответствует движению пара под действием термодиффузии [17].

Объёмная десублимация исследовалась многими авторами [17, 48-53], но все они не пришли к единому мнению о механизме образования и роста частиц десублимата, а математический расчёт процесса требует большого количества эмпирических параметров. Новые конструкции объёмных десублиматоров периодического или непрерывного действия разрабатывают, в основном, путём анализа опытных исследований применительно к конкретному продукту. Таким образом, в настоящее время нет единой и достаточно надёжной методики расчёта для конструирования десублимационных аппаратов, обеспечивающих получение продукта заданного гранулометрического состава [54].

2 Общая характеристика и конструкции сублимационно-десублимационного оборудования

2.1 Общие требования к сублимационным аппаратам

При разработке сублимационного оборудования необходимо учитывать ряд технологических требований. Аппараты должны обеспечивать максимальный съём продукта (в виде пара) с единицы поверхности, иметь максимальную степень сублимации вещества при минимальном времени пребывания его в аппарате, процесс желательно вести в непрерывном режиме и предусмотреть автоматизацию контроля его параметров. Геометрическая форма оборудования должна обеспечивать компактность и удобства по организации его обогрева и обслуживания. Анализ технической литературы [55] показывает, что существующее сублимационное оборудование имеет разнообразное конструктивное оформление, объясняемое многовариантностью ведения процесса и приспособлением этого оборудования к условиям производства. Чтобы выбрать способ ведения процесса и приступить к конструированию аппарата необходимо знать общие принципы и механизмы, характеризующие технологический процесс, который будет использоваться в данном аппарате. На основании этих знаний конструктор делает выводы о возможности (или невозможности) использования того или иного способа сублимации применительно к данному продукту.

Основным фактором, замедляющим процесс сублимации, является термическое сопротивление слоя шлака из несублимирующихся примесей, образующегося на поверхности нагрева [45]. Для увеличения интенсивности процесса необходимо применять какое-либо воздействие на слой сублимируемого материала с целью повышения теплоотдачи от поверхности нагрева. При всём многообразии конструктивного оформления существу-

ющих сублимационных аппаратов с дисперсным материалом фактически в них реализуют один из двух методов воздействия на слой - это уплотнение или перемешивание (или их комбинация), либо можно ввести в сублимируемый продукт вещества, увеличивающих этот коэффициент.

Уплотнение материала можно производить следующими способами:

- периодическое воздействие одновременно на всю поверхность слоя (например, с помощью поршня);
- последовательное уплотнение слоя (например, катящимися по поверхности материала прижимными валиками);
- сжатие слоя постоянно действующей нагрузкой (например, с помощью перфорированных пластин или сеток).

Явления, происходящие во всём слое материала (первый способ) и в отдельном элементе слоя (при последовательном уплотнении), по существу одинаковы, если элемент выбран так, что характеристики материала в процессе сублимации зависят только от расстояния до поверхности нагрева.

В случае периодического перемешивания материала на теплоподводящей поверхности, можно применить:

- периодическое перемешивание всего слоя (например, встряхивание материала);
- последовательное перемешивание слоя при неизменной поверхности теплоподвода (например, с помощью ворошителей различной конструкции, поступательно перемещающиеся в слое и расположенные на некотором расстоянии друг от друга);
- поэлементное перемешивание материала в условиях изменяющейся площади контакта его с теплообменной поверхностью (например, при поступательном перемещении его вдоль греющей поверхности за счёт пересыпания).

Для увеличения эффективности нагревания и сублимации исходного продукта предлагается [56] добавлять инертный материал, обладающий высокой теплопроводностью и способствующий более интенсивной передаче тепла в объём слоя. Например, для сублимации тетрафторида циркония (ТФЦ), в качестве такого инертного материала используют стружку или другие измельчённые отходы (гарнисаж, обрезки и т.д.) после получения или обработки металлического циркония. Такие отходы циркония, во-первых, вносят минимальное количество примесей в ТФЦ, так как их состав близок к кондиционному металлу, во-вторых, металлический цирконий при высоких температурах интенсивно поглощает многие газообразные продукты, например, фтористый водород и пары воды, что приводит к замедлению процесса коррозии материала сублиматора и вспомогательного оборудования (например, вакуумных насосов). В-третьих, металлический цирконий, имея высокую химическую активность, уменьшает летучесть некоторых примесей, снижая валентность примесных металлов. В-четвёртых, добавляемый материал в виде металла увеличивает поверхность нагрева исходного продукта и имеет более высокий коэффициент теплопроводности, что в итоге способствует увеличению скорости сублимации.

2.2 Общие требования к десублимационным аппаратам

В промышленности отсутствуют типовые конструкции десублиматоров. Это объясняется, как и для сублимационных аппаратов, многовариантностью способов ведения десублимации. Десублимация может быть организована при нормальном и при пониженном давлении, в вакууме или в потоке инертного газа. В зависимости от условий процесса продукт можно получать в виде монолита (крупных кусков) или порошка. По способу вы-

деления твердой фазы из газового потока десублиматоры делят на три группы: поверхностные, объёмные и смешанные.

Классификацию способов ведения процесса в поверхностных десублиматорах можно представить в виде схемы, показанной на рисунке 2.1.



Рисунок 2.1 – Классификация поверхностных десублиматоров

В поверхностных аппаратах десублимация из парогазовой смеси протекает на охлаждаемой поверхности. Такая десублимация является наиболее распространенным технологическим приёмом выделения продукта из парогазовой смеси. Сами десублиматоры – простые по конструкции, но имеют ряд недостатков. Например, периодическое действие рабо-

ты, значительные габариты (для получения развитой охлаждаемой поверхности), что снижает удельную производительность оборудования. Для съёма продукта со стенок, аппараты периодически обстукивают деревянными молотками или специальными вибраторами. Десублимат выгружают через нижние люки аппаратов. Продукт получается в виде кусков, что требует дополнительные операции по дроблению, измельчению и классификации. Поверхностные десублиматоры могут работать и в непрерывном режиме, что определяет способ удаления десублимата. К аппаратам непрерывного действия можно отнести десублиматоры сдвигающейся насадкой, с псевдооживленным слоем и с непрерывным удалением слоя десублимата со стенок аппарата различными щётками, обметателями или скребками. В этом случае недостатком десублиматора является получение части десублимата в виде пыли, которую надо удавливать в циклонах, фильтрах и т.п. Для десублимации используют также регенераторы: парогазовую смесь подают в цикле намораживания, а после заполнения аппарата создают в нём более низкое давление; выделенный слой десублимата удаляют десублимацией [57, 58]. Выгрузка десублимата возможна выплавкой продукта: после заполнения десублиматора в его охлаждающую рубашку подают теплоноситель и увеличивают давление в аппарате. При этом продукт переходит из твёрдого состояния в жидкое, стекает со стенок и его сливают в приёмную ёмкость.

Существует конструкция поверхностной десублимационной установки, в которой десублимация происходит при отводе тепла через стенки аппарата от парогазовой смеси (ПГС), медленно движущейся вдоль аппарата. Для более полного улавливания паров устанавливают несколько одинаковых аппаратов, в каждом из которых по ходу ПГС последовательно снижают температуру десублимации. Продукт выделяется как на стенках аппаратов, так и в их объёме. Для улавливания продукта, выделенного в объёме, используют циклоны или скрубберы [17].

Известны аппараты с принудительным охлаждением, например колонного типа с наружными охлаждающими рубашками, позволяющие интенсифицировать процесс десублимации. Для увеличения поверхности охлаждения предусмотрены полые сегментные перегородки, через которые циркулирует хладагент. Образующийся десублимат снимают вращающимися вокруг центральной оси П-образными скребками [17].

Объёмные десублиматоры сочетают простоту конструкции и непрерывность процесса с большой эффективностью. Образование и рост твердой фазы происходит во всём рабочем объёме аппарата, что позволяет получить продукт в виде порошка заданного гранулометрического состава.

Классификация конструкций объёмных десублиматоров показана на рисунке 2.2.

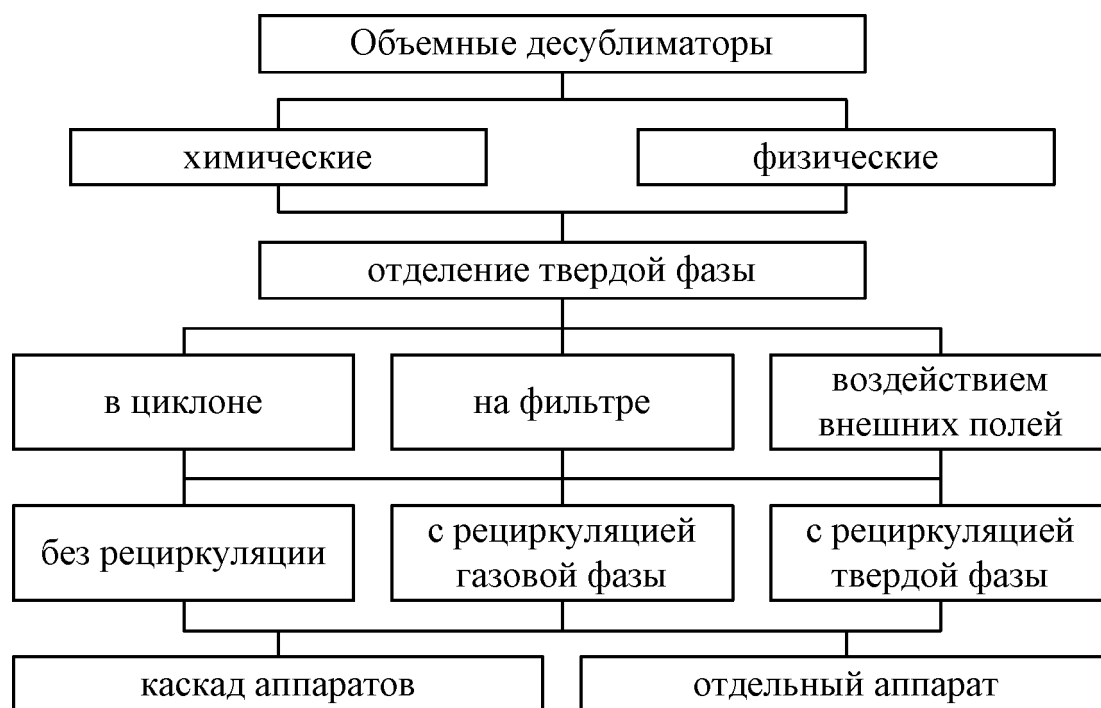


Рисунок 2.2 – Классификация объёмных десублиматоров

Десублимация в объёме происходит в результате пересыщения парогазовой смеси с выделением твердой фазы в виде аэрозоля – дисперсной системы, состоящей из мелких частиц, взвешенных в газе.

При небольших расходах парогазовой смеси десублимация в объёме является одним из самых простых методов выделения вещества, особенно если применение других методов десублимации затруднено, например, вследствие высокой температуры процесса. Десублимация в объёме протекает в аппаратах с охлаждаемыми стенками при достаточно медленном движении ПГС. В то же время, даже при небольших скоростях потока часть продукта выносится из десублиматора в виде аэрозоли, поэтому для более полного улавливания продукта устанавливают дополнительные аппараты, например инерционного осаждения, фильтры и т.п.

В аппаратах с объёмной десублимацией происходит и нежелательная в данном случае десублимация на поверхности элементов аппаратов, причём соотношение этих процессов существенно зависит от линейной скорости ПГС. При высокой скорости газов увеличивается количество продукта, выделившегося на охлаждаемых стенках; продукт имеет большую плотность, возрастает адгезия к стенке. При низких скоростях получается более рыхлый слой, легко отделяющийся от стенок аппаратов.

Десублимацию в объёме можно осуществлять простым способом – путём смешивания ПГС с газообразным хладагентом, например инертным газом. Недостатком такого метода объёмной десублимации является существенное разбавление парогазовой смеси. Часть продукта выделяется в виде тонкодисперсного аэрозоля, который трудно улавливается. Даже в оптимальных лабораторных условиях не удавалось добиться степени выделения десублимата выше 96 % [59, 60].

Более эффективна объёмная десублимация при выделении вещества из концентрированных ПГС или пара, когда возможно использовать рециркуляцию газового потока. В этих процессах пары десублимируемого

вещества смешивают с более холодным инертным газом, при охлаждении образуются кристаллы десублимата. Крупные частицы улавливают в аппарате типа отстойника, либо на фильтрах. Унесенный газовым потоком мелкодисперсный десублимат снова возвращается в цикл десублимации, частицы, являясь центрами десублимации, значительно увеличиваются в размерах и после этого выводятся из десублиматора. Избыток инертного газа, содержащий некоторое количество вещества в виде пара и аэрозоля, охлаждается в теплообменнике и рециркулирует в системе. Преимуществом таких схем является возможность регулирования дисперсного состава образующегося десублимата изменением соотношения пар – инертный газ или температуры инертного газа. Недостатком данного процесса является теплообменник, где может происходить поверхностная десублимация, что вызывает необходимость периодической очистки охлаждаемой поверхности от десублимата.

Потоки пара инертного газа можно смешивать в соплах Вентури, в аппаратах с перегородками или вентиляторах, однако и в этих случаях существует опасность десублимации на стенках смесителя и его забивка продуктом. В некоторых конструкциях для очистки стенок смесителя от десублимата применяют скребки. При больших потоках газа эффективным средством, позволяющим предотвратить образование отложений на стенках смесителя, является обогрев их выше точки образования инея десублимирующего вещества.

К третьей группе можно отнести десублиматоры, в которых процесс происходит на поверхности насадки, помещенной в аппарат.

Следует отметить, что в реальных аппаратах всегда имеют место два, а то и все три упомянутых вида десублимации, но в зависимости от конструктивного оформления аппарата и режима работы один из видов процессов преобладает, а другой вид ухудшает показатели работы десублима-

тора, и требует дополнительных мер по снижению отрицательного влияния второстепенного фактора десублимации.

Наиболее эффективным способом десублимации является такой, при котором в условиях изменяющегося режима десублимации удавалось бы подавить процесс образования аэрозолей и контролировать нарастание слоя десублимата, обеспечивая при этом максимальное заполнение аппарата и гарантировать его проходимость для ПГС. В этом случае удалось бы снизить проскок улавливаемого компонента через аппарат и существенно увеличить продолжительность его эксплуатации в устойчивом режиме.

При конструировании установок для уменьшения потерь продукта в технологических коммуникациях сублиматор и десублиматор располагают как можно ближе один к другому, соединяя их короткой трубой большого диаметра или располагая сублимационную и десублимационную камеры в одном корпусе аппарата.

В отдельную группу десублиматоров можно выделить аппараты для извлечения из парогазовой смеси высокообогащённого гексафторида урана (ГФУ). Сам гексафторид урана получают путём фторирования оксидов урана в шнековых реакторах, реакторах псевдоожиженного или виброкипящего слоя, реакторах падающего слоя, пламенных или плазмохимических реакторах. Следующей операцией в этой технологии является выделение гексафторида урана из парогазовой смеси путём его десублимации [61, 62]. Основным требованием в ядерно-топливной технологии, является соблюдение правил ядерной безопасности. Эти требования распространяются и на десублимационное оборудование для ГФУ. В соответствии с этими требованиями в зависимости от степени обогащения ГФУ корпус десублиматора может иметь геометрическую форму в виде цилиндра с внутренним (или эквивалентным) диаметром от 120 мм или в виде цилиндрического кольца (или плоской пластины) шириной от 30 мм. В центральной части

кольцевого корпуса может быть установлена нейтронопоглощающая вставка.

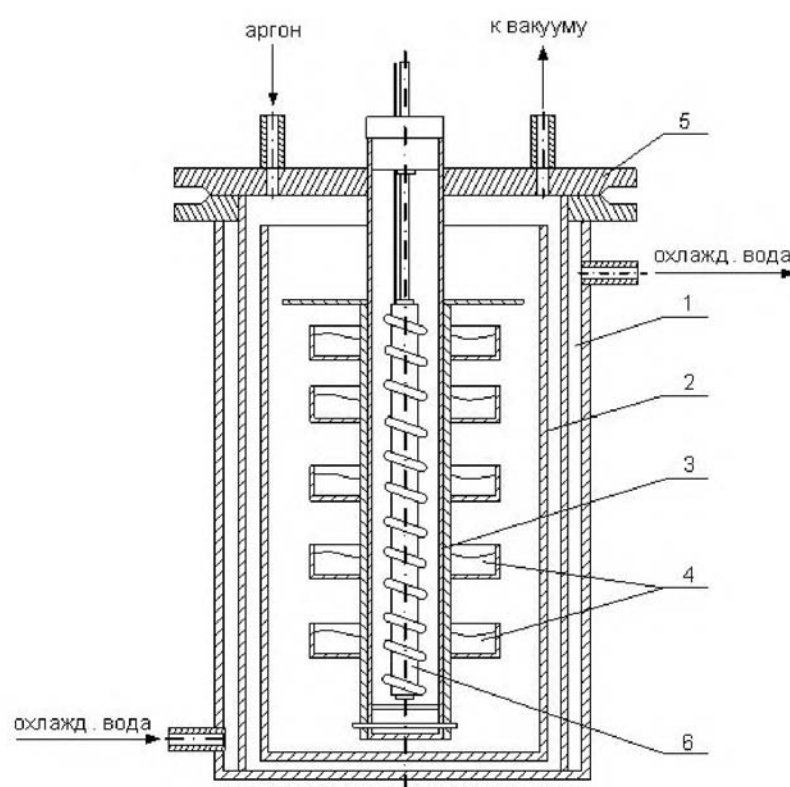
2.3 Сублимационно-десублимационное оборудование для переработки фторидов РЗМ

Основными причинами отсутствия типового оборудования пригодного для проведения процесса сублимационной переработки фторидов редких элементов являются тяжёлые условия эксплуатации оборудования, обусловленные параметрами процесса: коррозионно-активная среда (фтор, фтороводород, фторидные соединения) при достаточно высокой температуре (до 1181 К). Кроме того аппарат должен обеспечивать максимальную степень сублимации исходного материала при минимальном времени пребывания его в аппарате, а в случае “глубокой” очистки продукта не должен загрязнять пары исходного продукта и обеспечивать полное улавливание (десублимацию) паров очищенного продукта без уноса его из аппарата в виде аэрозолей. Также должны обеспечиваться условия соблюдения обычных правил техники безопасности и промышленной санитарии, предъявляемых при конструировании химических аппаратов: гарантировать надёжность и герметичность установки, а оборудование для гексафторида урана должно дополнительно соответствовать правилам ядерной безопасности. Основными принципами, которых придерживались при проектировании сублимационных установок, были: корпус должен иметь простую форму; минимальное количество или полное исключение движущихся или трущихся частей и узлов, подверженных нагреву; реакционные зоны (сублимации и десублимации) должны размещаться на минимальном расстоянии друг от друга; простота обслуживания установки.

Разработка конструкций установок для сублимационной переработки фторидов редких металлов велась последовательно и каждая последующая

конструкция аппарата, учитывала опыт разработки предыдущих конструкций. Предлагаемый обзор конструкций сублимационных аппаратов составлен в хронологическом порядке и конструкция каждого из этих аппаратов учитывает специфику процесса сублимации для конкретно заданного продукта в соответствии с задачей, поставленной при конструировании.

Для очистки тетрафторида циркония от различных примесей путём вакуумной сублимации был изготовлен аппарат периодического действия [63], показанный на рисунке 2.3.



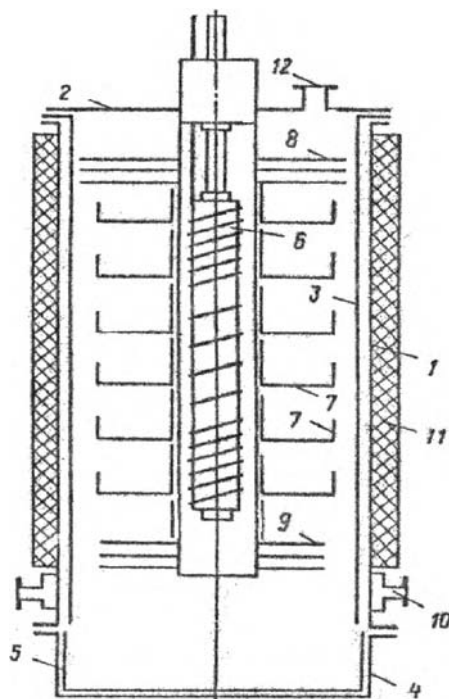
- 1 – корпус; 2 – десублиматор; 3 – сублиматор;
4 – тарелки с очищаемым материалом; 5 – крышка аппарата;
6 – электронагреватель

Рисунок 2.3 – Вакуумный сублимационный аппарат

Корпус 1 сублимационного аппарата снабжён водяной рубашкой. Десублиматор 2 в виде стакана, установлен на минимальном расстоянии от внутренней поверхности охлаждаемого корпуса аппарата. Сублиматор 3

выполнен в виде трубы из жаропрочной стали с установленными на ней тарелками 4, на которые загружают исходный очищаемый продукт. Сублиматор крепится к крышке 5 аппарата. Внутри сублиматора установлен съёмный электронагреватель 6. Посредством термопары, внутри аппарата, контролируют температуру продукта на тарелке в средней части сублиматора. Давление в аппарате контролируют мановакууметром.

Загруженный и плотно закрытый аппарат вакуумируют и нагревают до 500-550 °С. Затем аппарат заполняют инертным газом. После этого температуру в сублиматоре доводят до рабочей (750-800 °С), аппарат снова вакуумируют и проводят процесс сублимации. После окончания процесса отключают нагрев, аппарат заполняли инертным газом до атмосферного давления. Охладив сублиматор, снимали крышку вместе с сублиматором и из корпуса извлекали десублиматор с продуктом. Десублимат снимают со стенок десублиматора ударным способом, а из тарелок сублиматора удаляли несублимируемый остаток. Затем процесс повторялся.



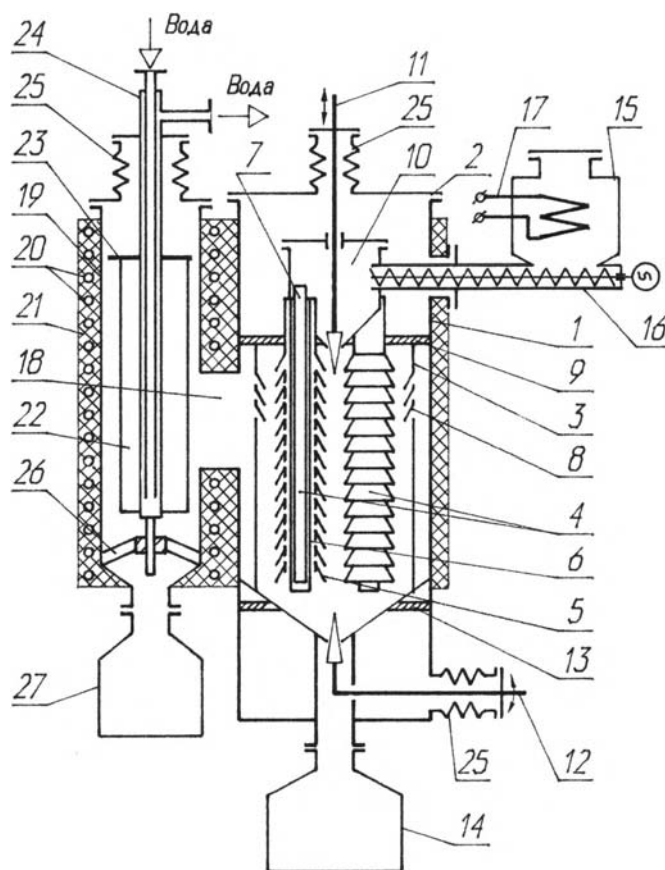
- 1 – корпус; 2 – крышка;
- 3 – десублиматор; 4 – съёмное днище;
- 5 – приёмник продукта; 6 – нагреватель;
- 7 – съёмные тарелки;
- 8, 9 – тепловые экраны;
- 10 – охлаждающая рубашка;
- 11 – теплоизоляция;
- 12 – патрубок для вакуумирования

Рисунок 2.4 – Сублимационный вакуумный аппарат

Сублимационный вакуумный аппарат [64], показанный на рисунке 2.4, предназначен для получения веществ высокой степени чистоты, например тетрафторида циркония.

Десублимат конденсировался в нижней части десублиматора 3 напротив охлаждающей рубашки 10. После окончания сублимации десублимат снимали путём ударного воздействия и он собирался в приёмнике продукта 5, а для удобства выгрузки предусмотрено съёмное днище 4.

С целью увеличения производительности аппарата за счёт непрерывности ведения процесса был разработан сублимационный аппарат, для получения высокочистого тетрафторида циркония, показанный на рисунке 2.5 [65].



- 1 – корпус; 2 – крышка; 3 – корпус сублиматора; 4 – испаритель; 5 – обечайки;
6 – трубчатый корпус; 7 – нагреватель; 8 – конусные обечайки; 9 – нижняя крышка;
10 – узел загрузки; 11, 12 – затвор; 13 – днище; 14 – бункер для остатка;
15 – загрузочный бункер; 16 – шнек 17 – подогреватель; 18 – паропровод;
19 – конденсатор; 20 – обогреватель; 21 – теплоизоляция; 22 – насадка; 23 – крышка;
24 – узел охлаждения; 25 – сильфоны; 26 – упор; 27 – бункер для продукта

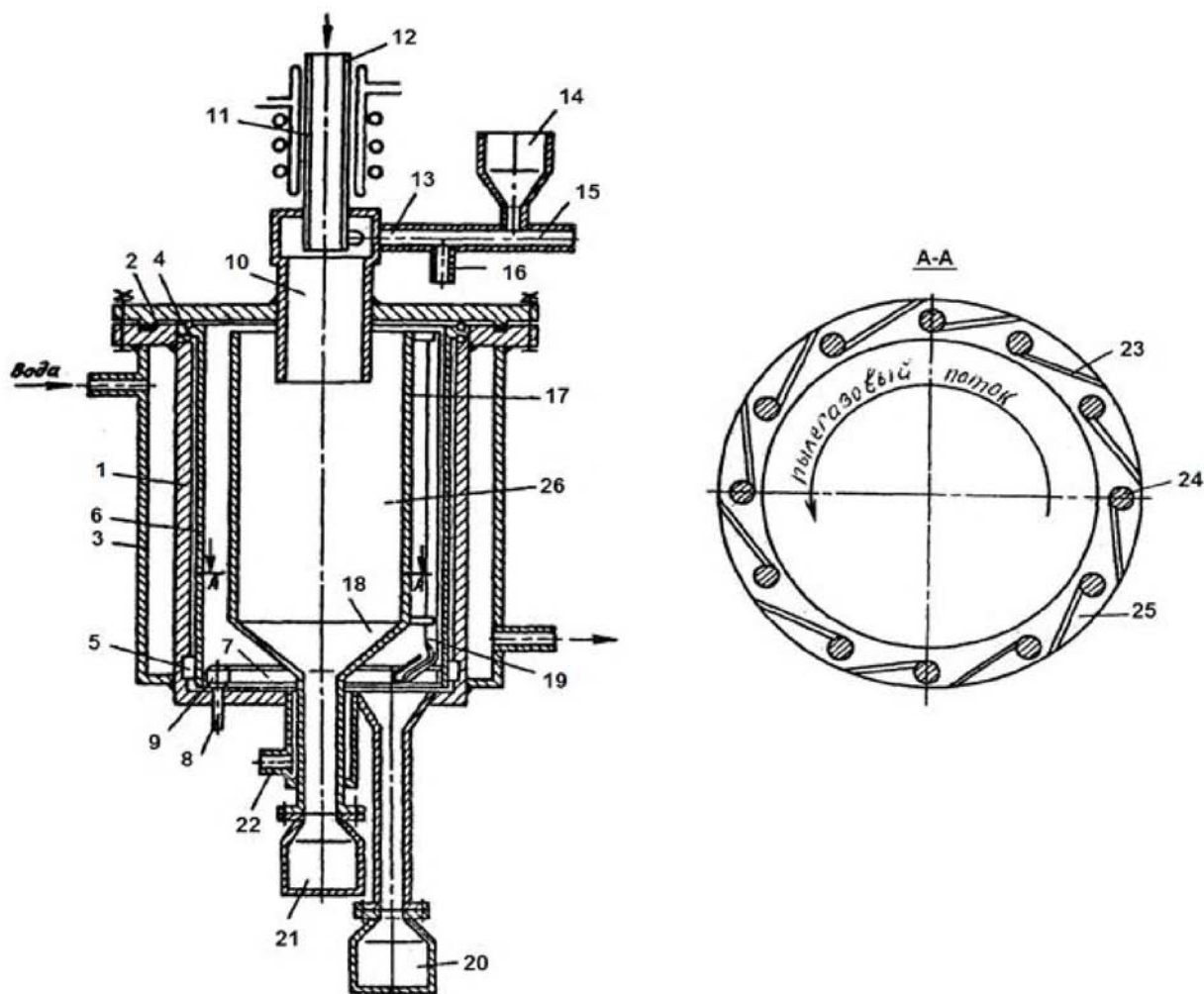
Рисунок 2.5 – Сублиматор

Аппарат имеет отдельные камеры сублимации и десублимации. Сублимационная камера состоит из загрузочного узла 10, разгрузочного устройства 12, цилиндрического корпуса 3 и конического днища 13. На внутренней верхней части корпуса установлены три конусных козырька 8, под которыми расположены отверстия для выхода пара из сублимационной камеры в десублимационную. В сублиматоре установлены четыре секционных испарителя 4 для рассредоточенного нагрева сублимируемого вещества. Нагрев обеспечивают нагревателями расположенными коаксиально в каждом испарителе. Стенки десублимационной камеры 19 обогревают снаружи нагревателями 20. Десублимация паров происходит на конденсационной насадке 22 с водяным охлаждением. Съём десублимата производят путём ударного встряхивания насадки об упор 26. Конечный продукт собирается в бункере 27.

Исходный продукт в сублиматорах можно нагревать плазмообразными газами. Этот способ известен и широко применяется на практике [66].

Конструкция сублимационного аппарата [67], показанного на рисунке 2.6, обеспечивает непрерывность работы за счёт нагревания исходного сыпучего фторида редких металлов ионизированным газом (плазмой).

Аппарат содержит корпус 1 с крышкой 2 и охлаждающей рубашкой 3. Коаксиально корпусу, в опорах 4 и 5 установлен вращающийся конденсационный экран 6, выполненный в виде цилиндрической обечайки, в нижней части которого расположено зубчатое колесо 7. Вращение экрана 6 производится приводом (на рис. не показан) через вал 8, ведущую шестерню 9 и зубчатое колесо 7. Экран установлен с зазором между ним и внутренней стенкой корпуса аппарата. На крышке 2 установлена смесительная камера 10 соосно с плазмотроном 11 и патрубком 12 для подачи плазмообразного газа. Патрубок 13 для подачи исходного материала установлен



- 1 – корпус; 2 – крышка; 3 – охлаждающая рубашка; 4, 5 – опоры; 6 – экран;
 7 – зубчатое колесо; 8 – вал; 9 – шестерня; 10 – камера смесительная; 11 – плазмотрон;
 12, 13, 15, 16, 22 – патрубки; 14 – бункер загрузки; 17 – пылеотбойник инерционный;
 18 – воронка приёмная; 19 – скребок; 20, 21 – бункер; 23 – пластины; 24 – стержни;
 25 – кольца; 26 – камера сублимационная

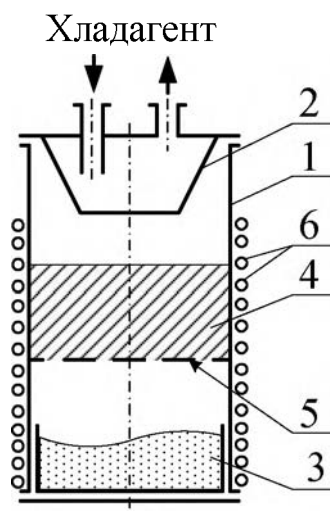
Рисунок 2.6 – Сублимационный аппарат непрерывного действия

тангенциально в верхней части смесительной камеры. Материал подают в аппарат посредством транспортирующего газа через патрубок 15. Бункер 14 предназначен для загрузки исходного газа через патрубок 15. Бункер 14 предназначен для загрузки исходного материала. Регулирование температуры в аппарате производят путём изменения расходов транспортирующего газа и дополнительного газа, вводимого через патрубок 16. Нижняя часть смесительной камеры 10 установлена внутри инерционного пылеотбойника 17, размещенного по оси аппарата и опирающегося на приёмную воронку 18. На внешней поверхности пылеотбойника неподвижно установлен скребок 19 для съёма десублимата с экрана в бункер 20. Бункер 21

предназначен для сбора твёрдых несублимируемых примесей. Патрубок 22 предназначен для выхода газов из аппарата. Пылеотбойник выполнен в виде пластин 23, перекрывающих друг друга и установленных на стержнях 24 и закреплённых в кольцах 25. Направление движения обрабатываемого материала показано стрелкой. Внутри пылеотбойника 17 образована сублимационная камера 26.

При работе аппарата поток плазмы при температуре (4500-5000) К из плазмотрона 11 поступает в смесительную камеру 10. В неё же через патрубок 13 подают смесь исходного материала и транспортирующего газа. Патрубок 13 установлен тангенциально, и поступающий материал движется вдоль стенок смесительной камеры, в центральной части смесительной камеры смешивается с плазмой и разогревается. При дальнейшем движении обрабатываемый материал уже в виде смеси пара и частиц несублимированных примесей попадает в сублимационную камеру 26, образованную полостью пылеотбойника и разделяется на два потока. Один поток, состоящий из паров целевого продукта и несущего газа, проходит через щели инерционного пылеотбойника 17 и продукт десублимируется на экране 6, который медленно вращается в опорах 4 и 5. Неподвижный скребок 19 срезает с экрана десублимат, который сыпается в бункер 20. Второй поток, состоящий из ионизированного газа и несублимируемого остатка, перемещается вниз аппарата по спирали вдоль стенки пылеотбойника до воронки 18. Остатки собираются в бункере 21, а отработанный теплоноситель и транспортирующий газ выводят через патрубок 22.

На рисунке 2.7 показан аппарат [68] для сублимационной очистки (разделения) тетрафторида циркония (ТФЦ) от тетрафторида гафния с использованием сорбента (активной насадки).



- 1 – реторта; 2 – десублиматор; 3 – стакан-испаритель; 4 – сорбционная камера;
5 – пористая перегородка; 6 – нагреватель

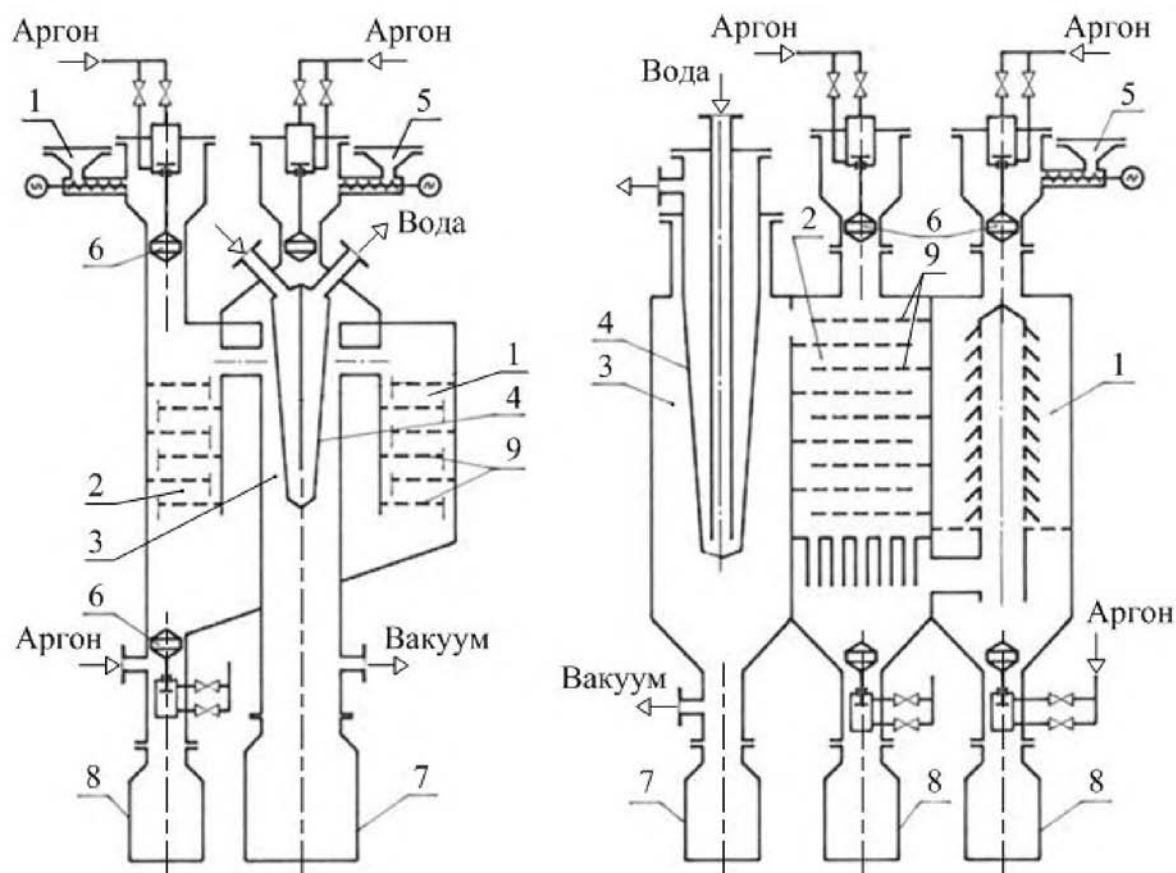
Рисунок 2.7 – Вакуумный сублимационный аппарат периодического действия

Аппарат состоит из реторты 1 с крышкой, на которой расположен десублиматор 2, со стаканом-испарителем 3, сорбционной камеры 4 с перегородкой 5, проницаемой для паров ТФЦ, и нагревателя 6. Исходный продукт засыпают в стакан-испаритель и нагревают реторту. Пары ТФЦ, проходят через сорбционную камеру, заполненную активной порошкообразной насадкой, очищаются от примесей и конденсируются на десублиматоре. Аппарат периодического действия и требует достаточно много ручного труда.

Аналогичные по назначению сублимационные аппараты, показанные на рисунке 2.8 [69].

Технологический процесс в этих аппаратах организован непрерывно в потоке инертного газа-носителя. Пары сублимированного вещества поступают из сублимации зоны 1 в сорбционную зону 2, находящуюся в корпусе этого же аппарата. Здесь сорбент расположен на перфорированных полках и перемещается под действием потока парогазовой смеси. На выходе из сорбционной зоны получают сорбент максимально насыщенный

извлекаемыми примесями, а пары очищенного целевого продукта поступают в зону конденсации 3.



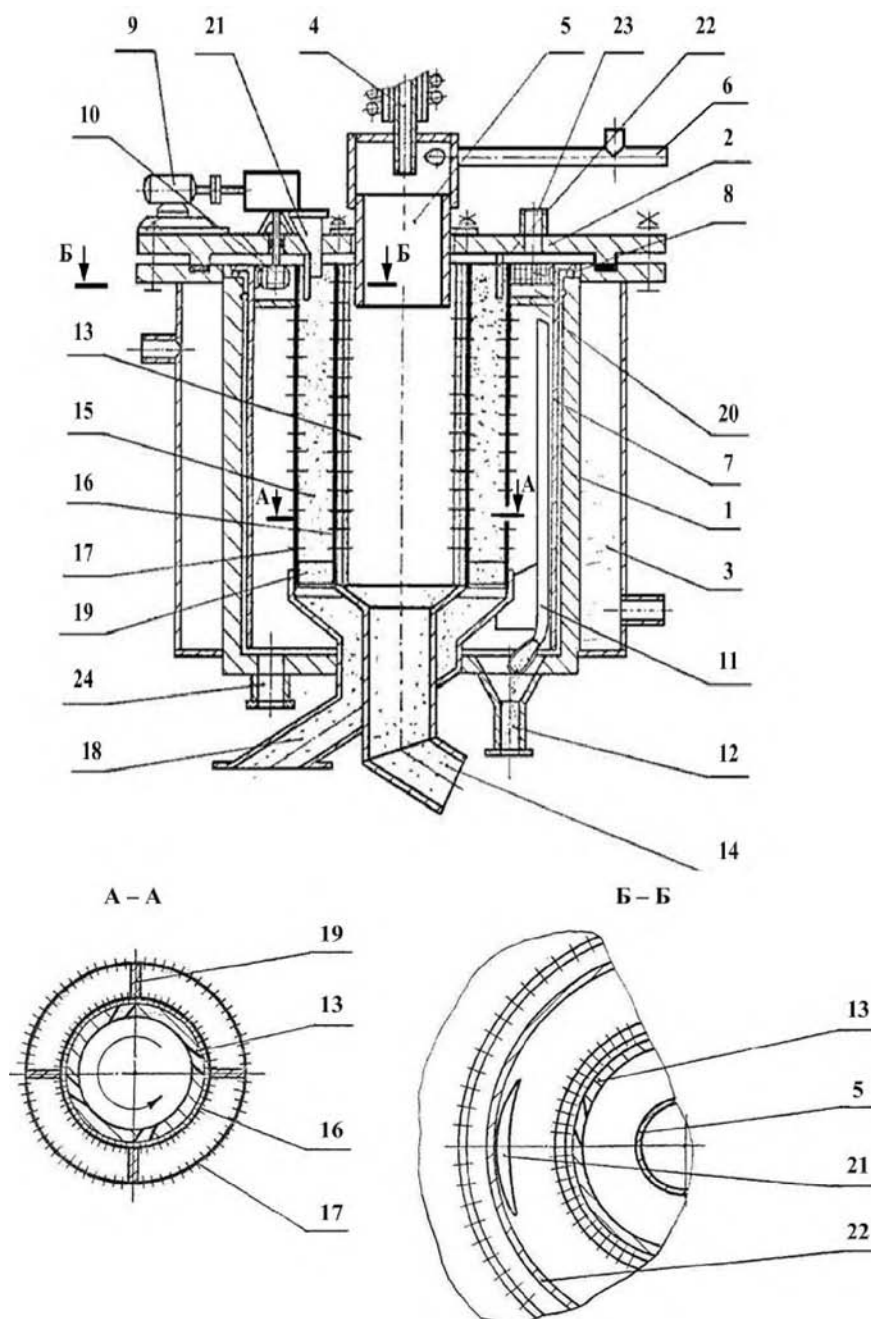
- 1 – сублимационная зона; 2 – сорбционная зона; 3 – зона конденсации;
 4 – десублиматор; 5 – бункер с ТФЦ; 6 – клапан; 7 – бункер для продукта;
 8 – бункер для отработанного сорбента и остатков; 9 – перфорированные полки

Рисунок 2.8 – Сублимационные аппараты для непрерывной очистки веществ

Недостатками этих аппаратов является необходимость использования активной насадки только в виде мелкодисперсного порошка; для организации псевдооживленного слоя необходимо создание либо паровой фазы большой плотности либо большое разбавление паров продукта инертным газом; затруднённая контроль перемещения сорбента по сорбционной зоне.

Для очистки тетрафторида циркония (ТФЦ) от фторида гафния был разработан аппарат [67], с использованием потока ионизированного (плазмо-

образного) теплоносителя и сорбционной насадки. Конструкция аппарата показана на рисунке 2.9.



1 – корпус; 2 – крышка; 3 – охлаждающая рубашка; 4 – плазмотрон, 5 – смесительная камера; 6 – патрубок для подачи исходного материала; 7 – экран конденсационный; 8 – опора; 9 – привод; 10 – шестерня; 11 – скребок; 12 – патрубок для выгрузки десублимата; 13 – пылеотбойник; 14 – патрубок для выхода отходов; 15 – сорбционная камера; 16, 17 – перфорированные обечайки; 18 – патрубок для выгрузки сорбента; 19 – распорки; 20 – кольцо; 21 – патрубок для загрузки сорбента; 22 – обечайка кольцевая; 23 – патрубок для подачи инертного газа; 24 – патрубок для выхода отработанного теплоносителя

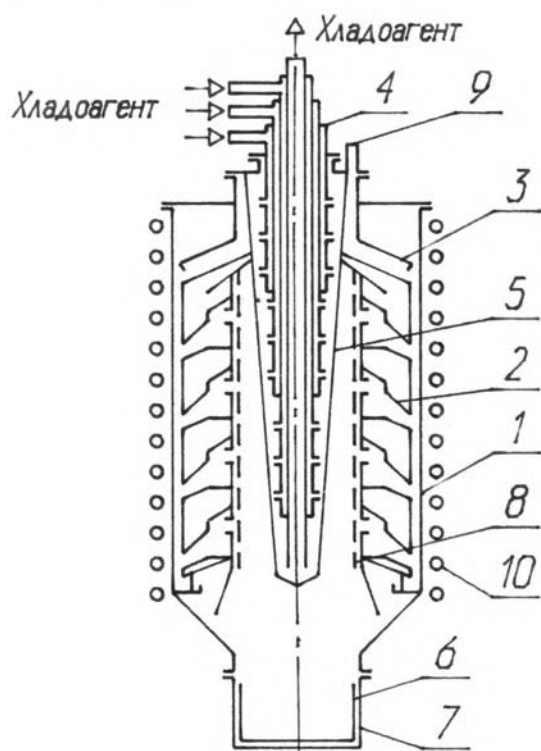
Рисунок 2.9 – Сублимационный аппарат непрерывного действия для разделения тетрафторидов циркония и гафния

Аппарат содержит корпус 1, крышку 2, охлаждающую рубашку 3 и плазмотрон 4, у которого смесительная камера 5 имеет тангенциальный патрубок 6 для подачи исходного материала. Конденсационный экран 7 с зубчатым венцом, установлен в корпусе на опорах 8 и вращается от привода 9 посредством приводной шестерни 10. Скребок 11 примыкает к экрану 7 и установлен над патрубком 12 для выгрузки десублимата. В корпусе коаксиально установлен инерционный пылеотбойник 13, нижняя часть которого соединяется с патрубком 14 для вывода твёрдых примесей. Сорбционная камера 15, выполнена в виде кольцевой полости, которая образована перфорированными обечайками 16 и 17, и сообщается с патрубком 18 для выгрузки отработанного сорбента. Обечайки 16 и 17 соединяются между собой распорками 19, а экран 7 жёстко соединён с обечайкой 17 кольцом 20. Патрубок 21 предназначен для загрузки свежего сорбента, а кольцевая обечайка 22 закрывает сорбционную камеру 16 от проскока паров ТФЦ. Патрубок 23 предназначен для подачи инертного газа, а патрубок 24 – для выхода отработанного теплоносителя.

Аппарат работает следующим образом. Через патрубок 6 сублимируемый порошкообразный материал вводят в смесительную камеру 5 посредством транспортирующего газа. В этой камере поток закручивается, смешивается с плазмой из плазмотрона 4, нагревается до температуры сублимации и поступает в сублимационную камеру, образованную пылеотбойником 13, в виде смеси газообразного сублимата и твёрдых несублимирующихся примесей. В процессе перемещения закрученного потока вниз по пылеотбойнику твёрдые частицы примесей перемещаются вниз и выводятся через патрубок 14, а газообразный сублимат проходит через перфорированные стенки пылеотбойника и далее через перфорированные обечайки 16 и 17 сорбционной камеры 15. При этом пары ТФЦ, проходят через слой сорбента в сорбционной камере, очищаются от примесей, оставляя их в сорбенте. Далее очищенные пары сублимата достигают

охлаждаемой поверхности конденсационного экрана 7 и десублимируются на нём. В процессе вращения конденсационного экрана приводом 9 десублимат срезается скребком 11 и выгружается из аппарата через патрубок 12. Отработанный газ-теплоноситель выходит из аппарата через патрубок 24. В процессе работы сорбент, насыщается примесями и теряет свои сорбционные свойства. При вращении конденсационного экрана 7 через кольцо 20 вращение передается и сорбционной камере 15. Нижний торец камеры 15 открыт и соединен с патрубком 18, через который сорбент с заданным расходом, выводится из аппарата. Свежий сорбент загружают в сорбционную камеру через патрубок 21, и в процессе её вращения сорбент распределяется по всей камере. Кольцевая обечайка 22, закреплена на крышке 2 и постоянно погружена в сорбент, что предотвращает возможность проскока газообразного ТФЦ через зазор между крышкой и сорбционной камерой.

На рисунке 2.10 показан десублимационный аппарат [70], позволяющий получать порошкообразный ТФЦ за счёт проведения десублимации в объёме аппарата.

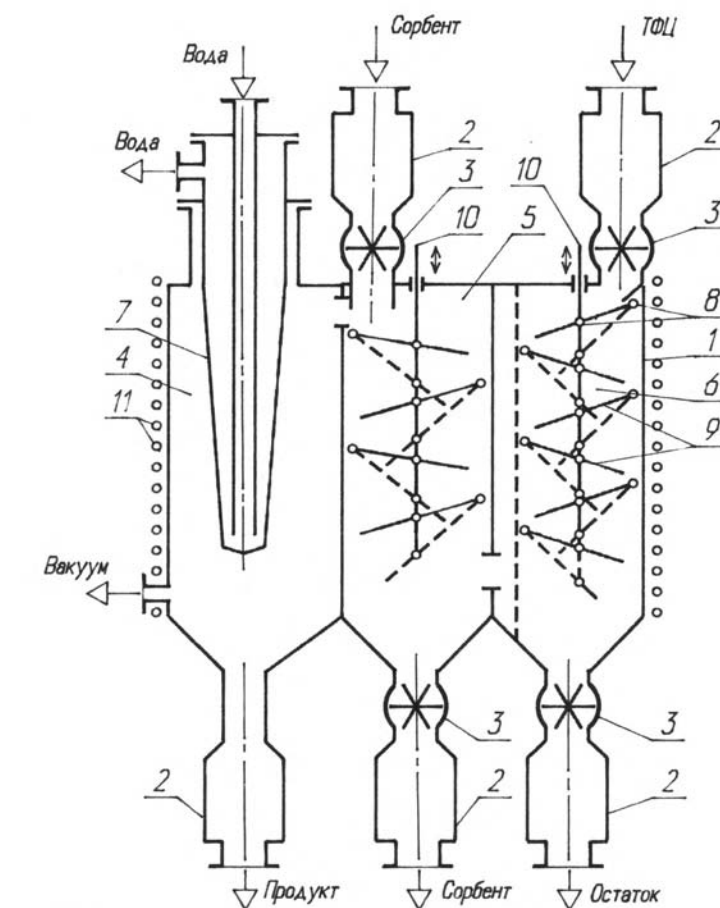


- 1 – корпус;
- 2 – перфорированный стакан с коническими радиальными щелями;
- 3 – экран;
- 4 – система подачи хладагента,
- 5 – десублиматор;
- 6 – приёмник продукта;
- 7 – днище; 8 – фильтр;
- 9 – подача инертного газа;
- 10 – нагреватель

Рисунок 2.10 – Сублимационный испаритель

Исходный продукт загружают в кольцевое пространство между корпусом 1 аппарата и внутренним перфорированным стаканом 2. Аппарат нагревают. Охлаждаемый водой десублиматор 5 создаёт условия для возникновения объёмной десублимации: температура стенок десублиматора выше температуры сублимации материала, но ниже температуры его паров, за счёт чего происходит пересыщение пара в парогазовой смеси. Пары сублимированного материала проходят через отверстия в стакане, десублимируются в пространстве вокруг десублиматора и в виде порошка собираются в приёмнике.

На рисунке 2.11 показан аппарат [71] непрерывного действия, предназначенный для очистки ТФЦ в присутствии сорбирующей насадки.



- 1 – корпус; 2 – шлюзовой бункер; 3 – питатель; 4 – десублимационная зона;
 5 – сорбционная зона; 6 – сублимационная зона; 7 – десублиматор; 8 – шарниры;
 9 – полки; 10 – штанга; 11 – нагреватель

Рисунок 2.11 – Аппарат для очистки сублимирующихся веществ

Аппарат состоит из обогреваемого корпуса 1, разделённого перегородками на три зоны: сублимации 6, сорбции 5 и десублимации 4. Камеры сообщаются между собой. В камерах сублимации и сорбции расположены полки 9, шарнирно закреплённые с одной стороны к стенке аппарата. С помощью вертикальных штанг 10, шарнирно закреплённых в центральной части полок, последние могут изменять угол наклона. При движении штанги вниз угол наклона полки к горизонту увеличивается и происходит перемещение продуктов с полки на полку. Пары исходного тетрафторида циркония, образующиеся в сублимационной 6, поступают в сорбционную зону 5, где проходят над слоем насадки, взаимодействуют с ней и конденсируются в десублимационной зоне 4. Из аппарата посредством шлюзовых бункеров выгружают несублимируемый остаток, прореагировавшую активную насадку и десублимат. Аппарат может работать под вакуумом и в среде инертных газов в непрерывном режиме. К недостаткам этого аппарата можно отнести: наличие шарниров 8 в обогреваемых зонах аппарата и отсутствие контроля за перемещением продуктов по наклонным полкам.

Сублиматор [72] не имеет трущихся узлов в зоне обогрева. Схема аппарата показана на рисунке 2.12.

Из сублимационной зоны 1, находящейся в нижней части аппарата, пары сублимированного ТФЦ поднимаются в сорбционную зону 2, где на тарелях (полках) 7 находится сорбирующая насадка. Тарели имеют радиальные прорезы и закреплены на вращающемся полом валу, расположенным коаксиально с цилиндрическим корпусом аппарата. Насадка перемещается, сделав один оборот, на тарель, расположенную ниже, с помощью транспортирующей трубы 6, через радиальную прорезь. Пары ТФЦ, проходя над слоем насадки, очищаются от примесей и через перфорацию в верхней части вращающейся трубы поступают в десублимационную зону 3, где происходит объёмная десублимация. Конечный продукт получают в

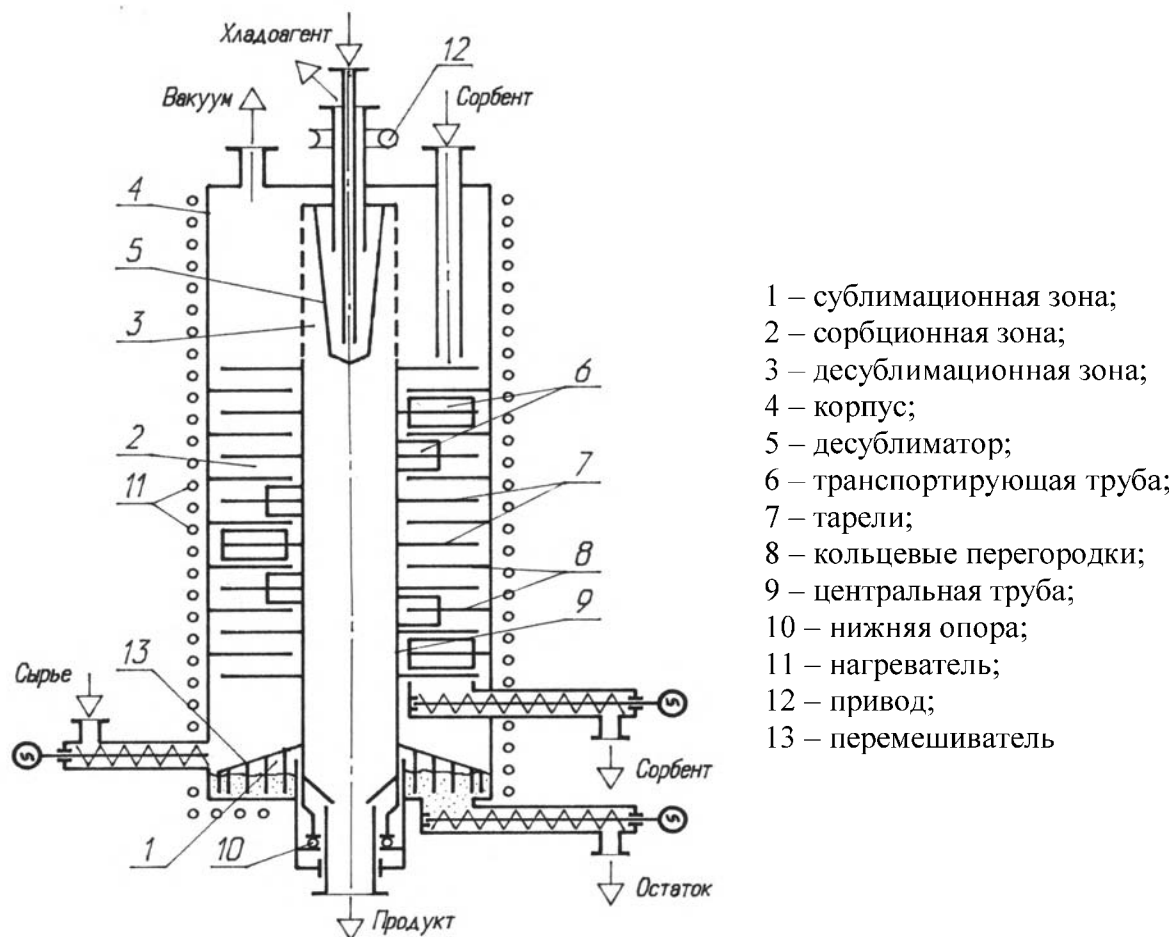
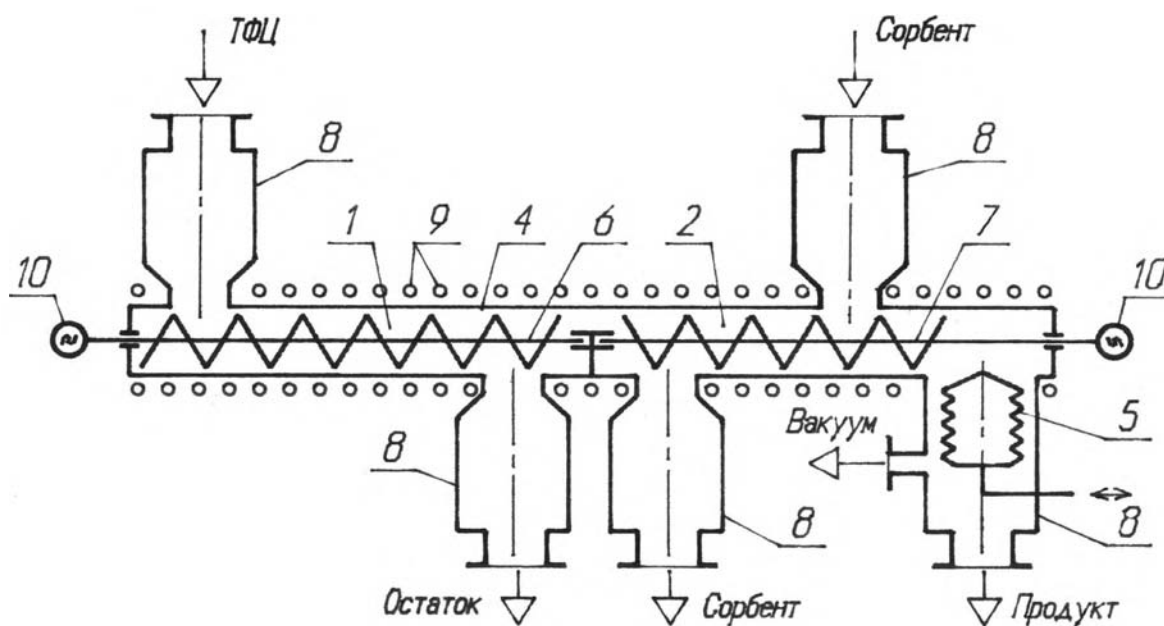


Рисунок 2.12 – Сублимационный аппарат непрерывного действия

виде порошка. Недостатками сублимационного аппарата является высокая точность сборки тарелей, которая может нарушиться в результате тепловых деформаций.

Сублимационный аппарат [73], показанный на рисунке 2.13 более простой по конструкции.

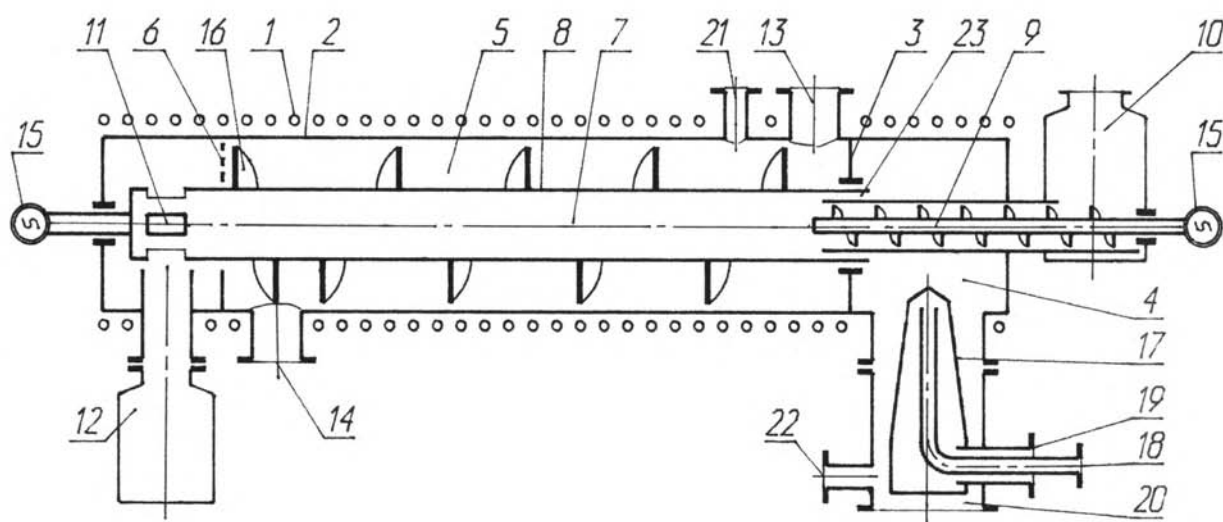


1 – зона сублимации; 2 – зона разделения; 3 – зона десублимации; 4 – корпус;
5 – десублиматор; 6, 7 – шнек-мешалка; 8 – шлюзовые бункеры; 9 – нагреватель;
10 – привод

Рисунок 2.13 – Сублимационный аппарат непрерывного действия

Аппарат состоит из обогреваемого цилиндрического корпуса 4 и шнеков 6, 7, которые перемещают навстречу друг другу сублимируемый тетрафторид циркония и сорбционную насадку. Пары ТФЦ, после взаимодействия с насадкой, конденсируются на десублиматоре 5. Аппарат непрерывного действия, простой в обслуживании и надёжен. Недостаток – наличие опоры для шнеков в обогреваемой части корпуса.

Сублимационный аппарат [74], показанный на рисунке 2.14, также шнекового типа, но более компактный по конструкции.



- 1 – электронагреватель; 2 – корпус; 3 – перегородка; 4 – камера десублимации;
 5 – камера сублимации; 6 – перфорированная перегородка; 7 – камера разделения;
 8 – шнек; 9 – питатель; 10 – бункер для насадки; 11 – отверстия; 12 – сборник для отработанной насадки; 13 – патрубок подачи исходного ТФЦ; 14 – патрубок выгрузки несублимируемого остатка; 15 – привод; 16 – отбойный виток; 17 – охладитель;
 18, 19 – патрубки входа и выхода охладителя; 20 – выгрузка очищенного ТФЦ;
 21, 22 – патрубки входа и выхода газа; 23 – кольцевое отверстие

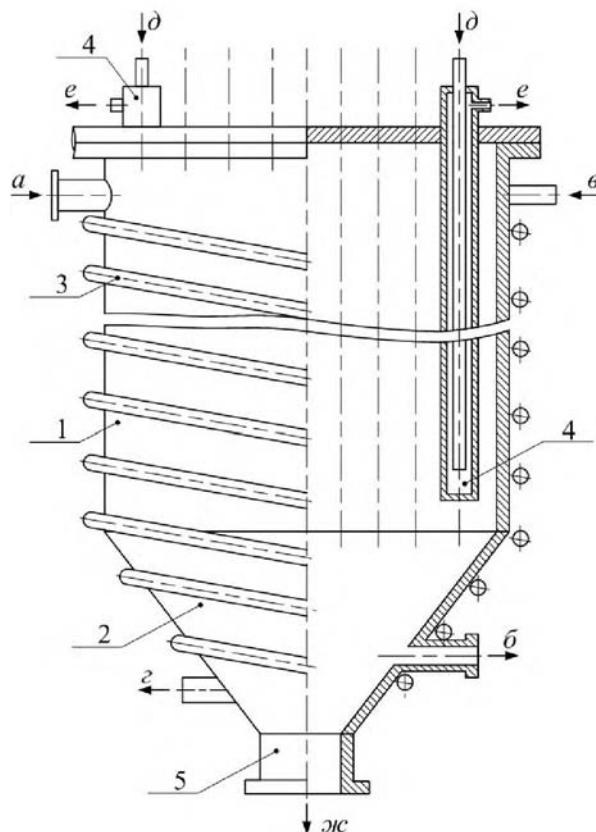
Рисунок 2.14 – Сублимационный аппарат

Камера сублимации 5 расположена в корпусе 2 аппарата со шнеком 8, имеющим полый вал, а камера разделения 7 расположена в полом вале шнека. Исходный ТФЦ сублимируется при периодическом перемешивании шнеком 8. Затем, пары ТФЦ через отверстия 11 поступают в камеру разделения 7 и противотоком проходят над слоем насадки, которая постоянно перемешивается за счёт вращения вала шнека. Очищенные пары ТФЦ поступают в камеру десублимации 4, расположенную в корпусе сублимационного аппарата. Одна опора аппарата расположена в обогреваемой зоне, но она более доступна для осмотра и ремонта, чем в сублиматоре на рис. 2.13.

Аппараты, конструкции которых представлены ниже, разработаны для десублимации гексафторида урана (ГФУ) с различной степенью обогащения. Основным требованием к оборудованию, используемому в ядерно-топливном цикле, является соблюдение правил ядерной безопасности,

поэтому некоторые из этих аппаратов корпус имеет кольцевую геометрическую форму.

На рисунке 2.15 показан аппарат с тепловым сбросом [75] для десублимации низкообогащённого гексафторида урана. Аппарат состоит из цилиндрического корпуса 1 и конического днища 2, обогреваемых змеевиком 3.



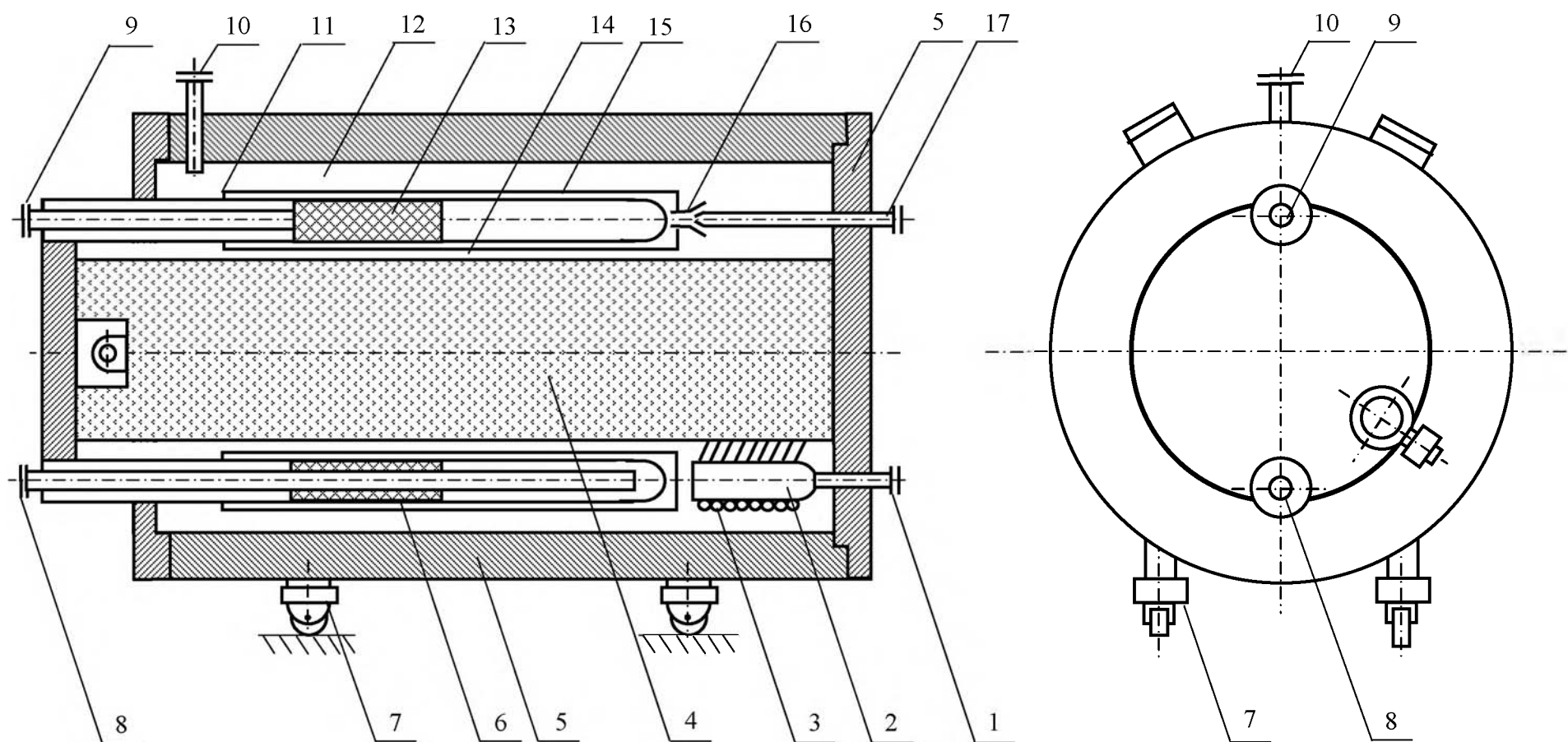
Назначение патрубков: a, b – вход и выход технологического газа; c, d – вход и выход теплоносителя; e, f – вход и выход хладагента; $жс$ – выход твёрдого продукта.

Рисунок 2.15 – Аппарат с тепловым сбросом

На крышке корпуса расположено несколько рядов трубок Фильда 4, в которые подаётся хладагент или теплоноситель. В аппарат подаётся технологический газ, содержащий пары продукта, из которого на трубках Фильда выделяется десублимат. Периодически, по мере накопления десублимата, в один из рядов трубок Фильда подаётся теплоноситель и с поверхности трубок этого ряда твёрдый ГФУ свободно «сползает» в транспортную ёмкость через патрубок 5. В технологической схеме стоит три ап-

парата с тепловым сбросом: два основных и один контрольный. Сбросные газы после основных аппаратов направляются на доулавливание ГФУ в контрольный аппарат. Это позволяет исключить потери продукта. Транспортные емкости по мере их заполнения отправляют потребителю. Такие аппараты целесообразно применять в крупнотоннажном производстве.

На рисунке 2.16 показан десублимационный аппарат с кольцевым корпусом [76]. Аппарат работает попеременно в двух режимах: сублимации и десублимации. Для работы аппарата в режиме десублимации его охлаждают до температуры десублимации гексафторида высокообогащенного урана (ГФУ) из парогазовой смеси. Для этого хладагент (жидкий азот) подают через патрубок 1 в испаритель 2, откуда газообразный хладагент через сопловые каналы эжектора 16 направляется в камеру для теплоносителей 15 и движется, обеспечивая охлаждение кольцевого корпуса 6. Далее газообразный азот выходит из камеры 15 через открытый торец 11 в камеру 15 и по зазорам 12, 14 за счёт разрежения, создаваемого эжектором, возвращается к эжектору 16, где смешивается со свежей порцией хладагента, поступающего из испарителя 2. Часть отработавшего хладагента выводится из аппарата через патрубок 10. После охлаждения кольцевого корпуса 6 до температуры десублимации гексафторида урана, последний подают в корпус 6 через патрубок 8. Сублимируемая часть (ГФУ) из парогазовой смеси осаждается на внутренней поверхности кольцевого корпуса 6. Образующиеся аэрозоли ГФУ частично оседают в фильтрующей вставке 13 из колец Рашига, оставшаяся газовая часть парогазовой смеси выходит из аппарата через патрубок 9. После заполнения десублиматора гексафторидом урана, аппарат нагревают и ГФУ сублимируют из аппарата в контейнер для готовой продукции. Для этого, сначала нагревают корпус 6 до температуры 20 °С воздухом, подаваемым в эжектор 16 через патрубок 17 из атмосферы. Затем включают кабельный электрический нагреватель 3 и доводят температуру в аппарате до температуры сублимации гексафторида



1 – ввод жидкого азота; 2 – испаритель; 3 – электронагреватель; 4 – нейтронопоглощающая вставка; 5 – теплоизоляция;
 6 – кольцевой корпус; 7 – опоры; 8 – вход ГФУ; 9 – выход ПГС; 10 – отвод хладагента; 11 – открытый торец;
 12, 14 – зазоры; 13 – фильтрующая вставка; 15 – камера для теплоносителя; 16 – эжектор; 17 – подача сжатого воздуха

Рисунок 2.16 – Десублимационный аппарат

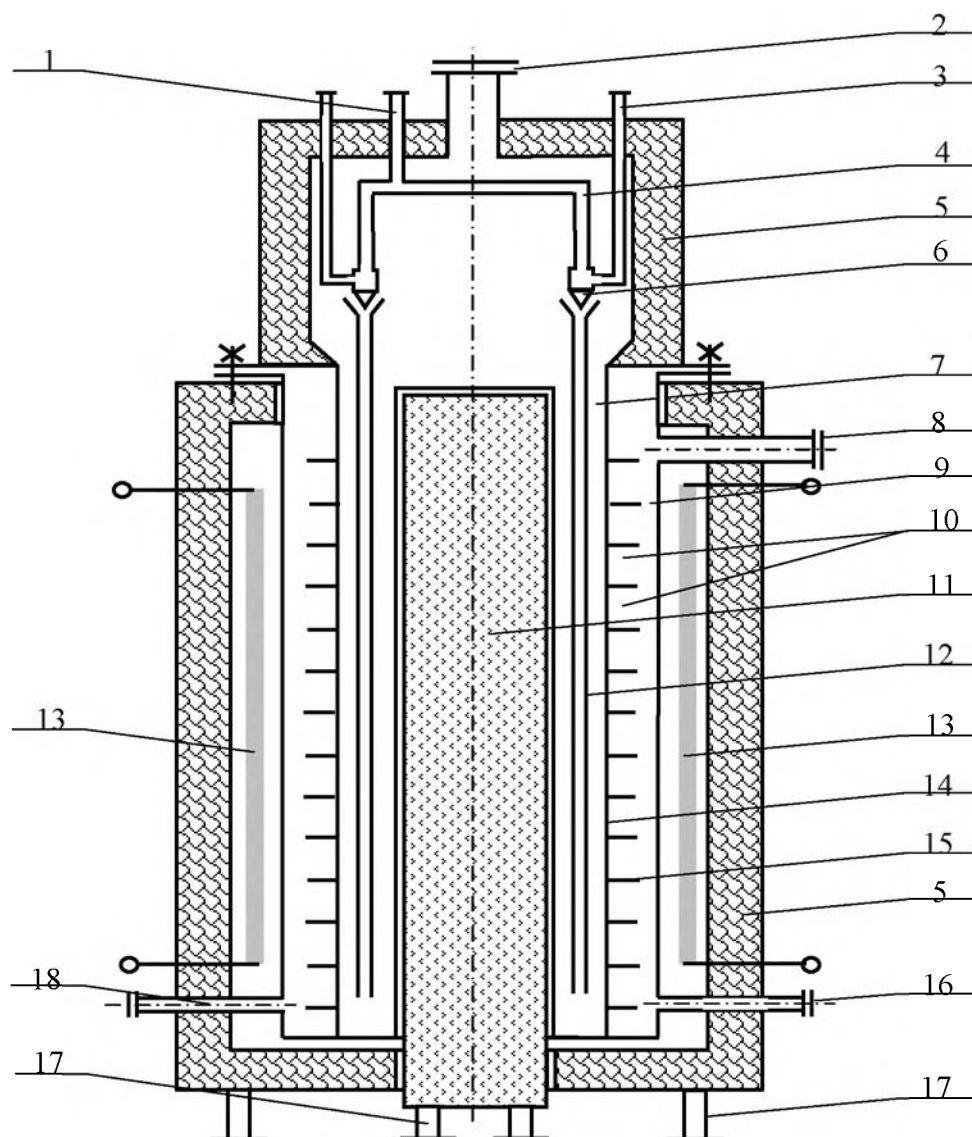
урана. Пары ГФУ выводят из аппарата через патрубок 9, а воздух (теплоноситель), поступающий через эжектор 16, направляется через кольцевую камеру для теплоносителя 15 и по зазорам 12, 14 частично возвращается в камеру 15 эжектором 16, а другая часть воздуха выводится из аппарата через патрубок 10. Наличие центральной поглощающей нейтроны вставки 4, и геометрическая (кольцевая) форма рабочего пространства аппарата позволяют выполнить требования ядерной безопасности при значительной ёмкости аппарата. В аппарате поверхностная десублимация сопровождалась объёмной десублимацией, что приводило к потерям продукта.

Для предотвращения потерь ГФУ в виде аэрозолей, было предложено подвергнуть эти аэрозоли вторичной сублимации путём их контакта с теплообменными поверхностями, имеющими температуру более высокую, чем температура сублимации ГФУ.

Это предложение было реализовано в ряде конструкций десублиматоров с обогреваемыми наружными стенками.

На рисунке 2.17 показан десублимационный аппарат [77] с кольцевым корпусом у которого обогревается одна наружная стенка.

Аппарат периодического действия работает в двух режимах: сублимации и десублимации. При работе в режиме десублимации жидкий хладагент через патрубок 1 подают в испаритель 4, из которого через эжекторы 6 газообразный азот направляется по трубам 12 в кольцевую камеру 7 для охлаждения внутренней поверхности кольцевого корпуса 14. Через патрубок 8 подают ГФУ в виде парогазовой смеси. Внутри корпус 14 разделен кольцевыми перегородками 15 на кольцевые ячейки 10. Избыток хладагента удаляется из аппарата через патрубок 2. Процесс десублимации проводят при включенном электронагревателе 13, обогревающим наружную стенку корпуса 14. Парогазовая смесь в корпусе проходит через кольцевые



1 – вход жидкого азота; 2 – отвод хладагента; 3 – вход воздуха; 4 – испаритель;
 5 – теплоизоляция; 6 – эжектор; 7 – теплообменная камера; 8 – вход ПГС;
 9 – кольцевые зазоры; 10 – кольцевые ячейки; 11 – нейтронопоглощающая
 вставка; 12 – трубки; 13 – электронагреватель; 14 – корпус; 15 – кольцевые ребра;
 16 – выход ГФУ; 17 – опоры; 18 – выход ПГС

Рисунок 2.17 – Десублимационный аппарат

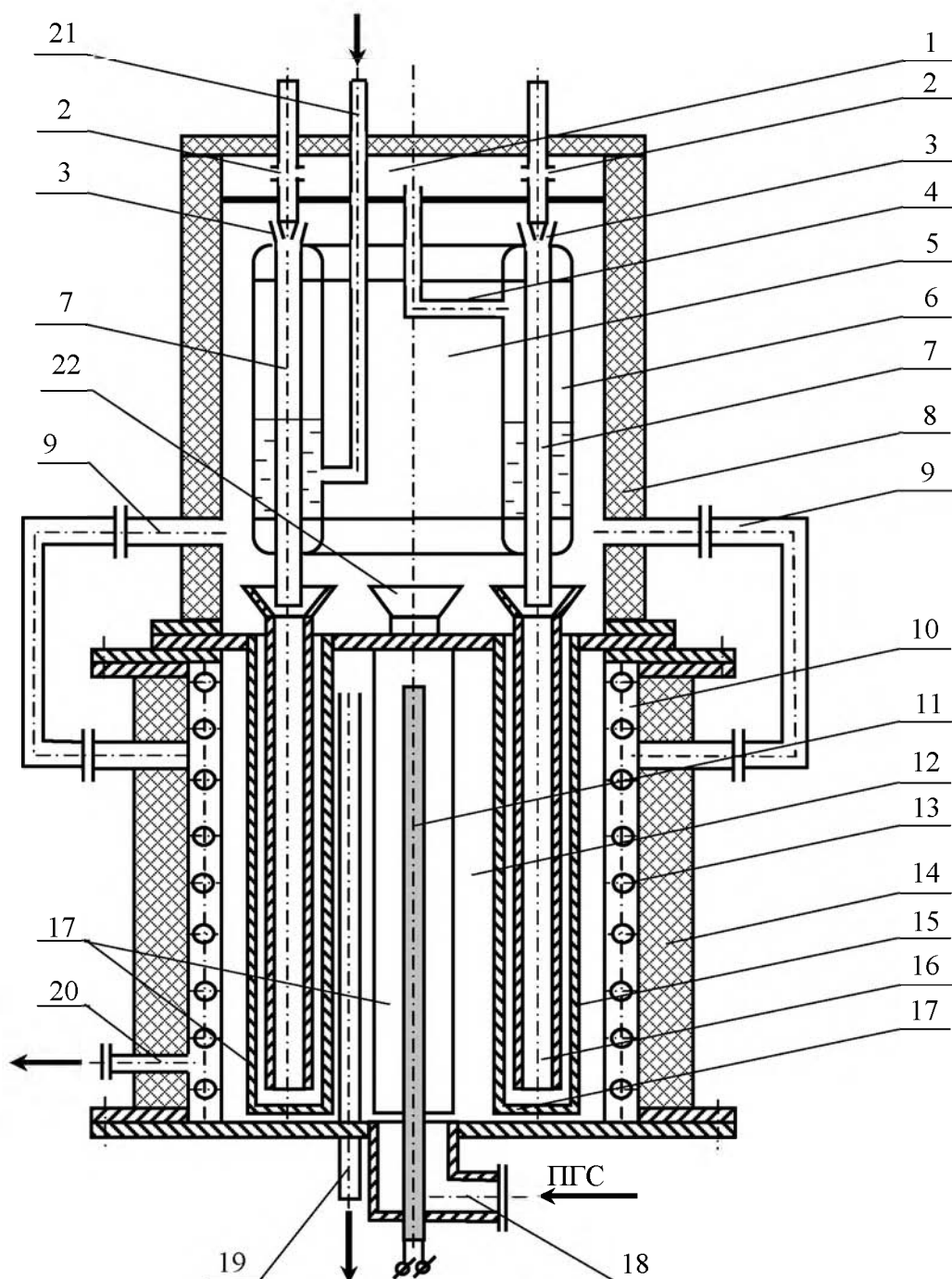
зазоры 9, последовательно поступает в кольцевые ячейки 10. Гексафторид урана осаждается на холодных внутренних поверхностях ячеек сублимационной камеры и перегородках 15. Часть паров ГФУ сублимируется в объеме. Эти образующиеся аэрозоли при прохождении в зазоре 9 контактируют с теплой стенкой корпуса 14 и вторично испаряются. Концентрация ГФУ в ПГС при последовательном продвижении последней из ячейки в

ячейку снижается в несколько раз, поэтому степень насыщения не достигает критического значения, и десублимация в последних ячейках протекает, в основном, на поверхности. Степень улавливания гексафторида урана поддерживается на уровне величины, обусловленной термодинамически, вплоть до заполнения аппарата ГФУ. Остатки парогазовой смеси отводят из аппарата через патрубок 18. Наличие тёплой стенки в сублимационной камере препятствует закупориванию проходного сечения кольцевых зазоров 9 гексафторидом урана, обеспечивая свободное прохождение парогазовой смеси. Для перевода аппарата в режим сублимации подачу хладагента и исходной парогазовой смеси прекращают. Включают нагреватель 13 на большую мощность и доводят температуру в корпусе до температуры сублимации гексафторида урана. Пары ГФУ отводятся из аппарата через патрубок 16. Для ускорения процесса сублимации подают тёплый воздух в камеру 7 для теплоносителей через патрубки 3 с помощью эжекторов 6. Отработанный воздух удаляется из аппарата через патрубок 2 для сдувки. Сублимационный аппарат надежен в работе, позволяет эффективно и достаточно полно улавливать гексафторид урана из ПГС, но имеет не достаточно развитую поверхность десублимации.

На рисунке 2.18 показан аппарат [78], в котором десублимация гексафторида урана проводится на охлаждаемых трубчатых элементах.

Для десублимации гексафторида урана аппарат сначала охлаждают. Для этого жидкий хладагент подают в испаритель 6 через патрубок 21. Образующиеся пары хладагента через трубчатый элемент 4 поступают в коллектор 1, а из него через отверстия 2 – на вход эжекторов 3. При этом пары жидкого азота выполняют функцию эжектирующего газа (потока), создавая на входе труб 7 разрежение. Из внутренних труб 16 пары жидкого азота поступают в наружные трубы 15, вместе образующие двухтрубные теплообменники 17, и далее в камеру 5. Из этой камеры часть газообразного азота направляется в трубы 7 за счет разрежения, создаваемого эжекторами

3, другая часть – через рециркуляционные трубы 9 в камеру для теплоносителя 10 и через патрубок 20 выводится из аппарата. Таким образом,



- 1 – коллектор; 2 – отверстия; 3 – эжектор; 4 – трубчатый элемент; 5 – камера;
 6 – испаритель; 7 – труба; 8, 14 – теплоизоляция; 9 – рециркуляционная труба;
 10 – камера для теплоносителя; 11, 13 – электронагреватель; 12 – сублимационная
 камера; 15 – наружная труба; 16 – внутренняя труба; 17 – теплообменник;
 18 – вход ПГС; 19 – выход ГФУ; 20 – выход хладагента; 21 – вход жидкого азота;
 22 – выход ПГС

Рисунок 2.18 – Десублимационный аппарат

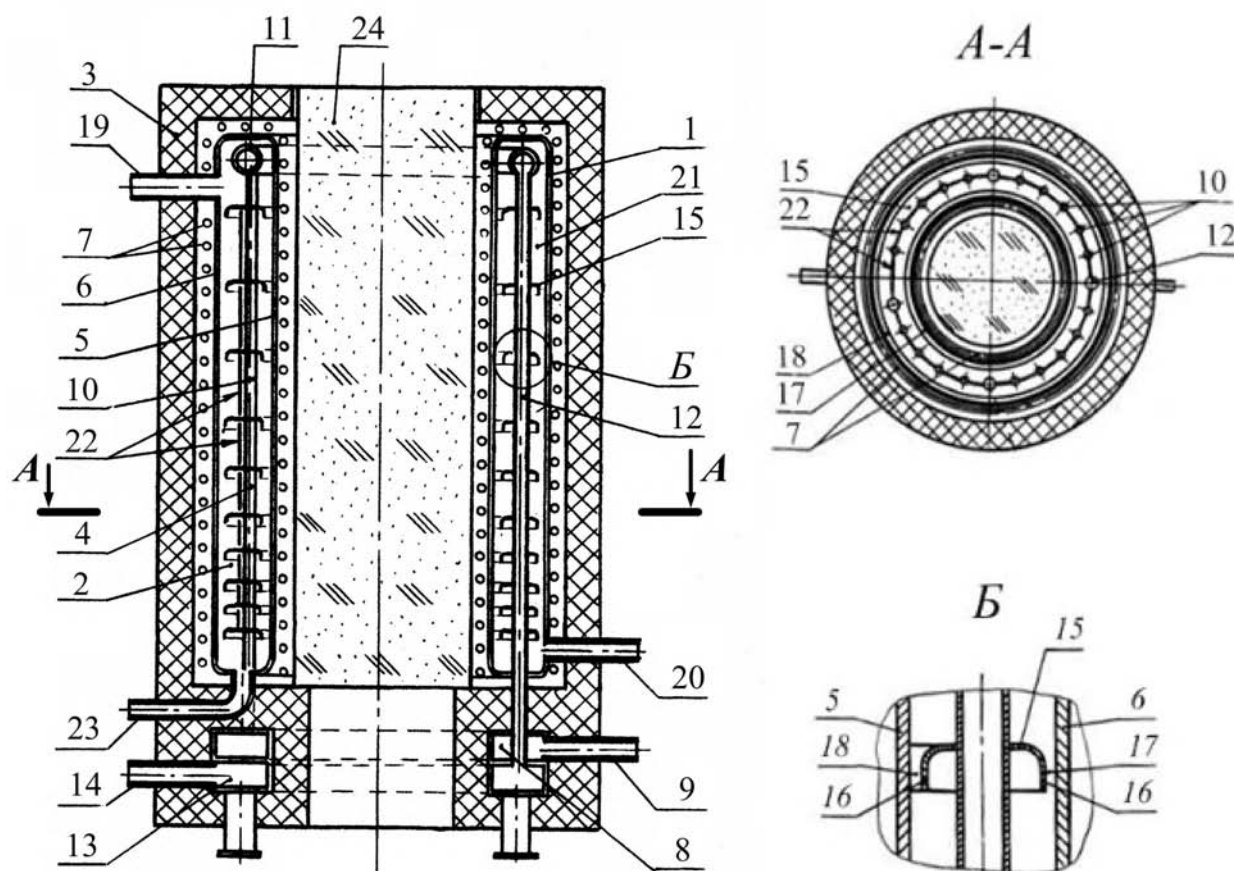
сублимационная камера 12 охлаждают парами жидкого азота через поверхности двухтрубных теплообменников 17, и через поверхность камеры для теплоносителя 10, ограничивающей сублимационную камеру 12. При этом пары жидкого азота циркулируют в аппарате по двум теплообменным контурам. После достижения в сублимационной камере температуры, соответствующей температуре десублимации гексафторида урана, подают исходную парогазовую смесь через патрубок 18. Гексафторид урана конденсируется на наружных поверхностях труб 15 двухтрубных теплообменников 17 и на поверхности камеры для теплоносителя 10, примыкающей к сублимационной камере 12. Оставшиеся газы ПГС выводятся из аппарата через патрубок 22 из верхней зоны сублимационной камеры 12. С целью предотвращения забивки патрубка 18 продуктом, периодически включают электронагреватель 11.

Для обеспечения режима сублимации гексафторида урана из аппарата включают на большую мощность нагреватели 11 и 13 и осуществляют прогрев сублимационной камеры 12 до температуры сублимации гексафторида урана. Пары ГФУ удаляются из аппарата через патрубок 19.

Успешно прошел полупромышленные испытания десублиматор с двумя “тёплыми” стенками [79], показанный на рисунке 1.19. Аппарат имеет более развитую поверхность десублимации.

Десублиматор содержит кольцевой цилиндрический корпус 1, с сублимационной камерой 2, заключённый в теплоизолирующий кожух 3. Теплообменная камера 4 расположена соосно с корпусом. Теплообменная камера имеет внутреннюю стенку 5 и наружную стенку 6, обогреваемые нагревателем 7. Камера 4 содержит кольцевой коллектор 8 с патрубком 9 для ввода теплоносителя, теплообменные трубки 10, кольцевой сборный коллектор 11, трубки 12 для отвода теплоносителя в кольцевой коллектор 13 с патрубком 14 для вывода теплоносителя из камеры. Трубки 10 и 12

установлены по окружности в сублимационной камере, а коллекторы 8 и 13



- 1 – корпус; 2 – сублимационная камера; 3 – теплоизолирующий кожух; 4 – теплообменная камера; 5, 6 – стенки корпуса; 7 – нагреватель; 8 – кольцевой коллектор; 9 – ввод теплоносителя; 10 – теплообменные трубки; 11 – кольцевой сборный коллектор; 12 – трубки для отвода теплоносителя; 13 – кольцевой коллектор; 14 – отвод теплоносителя; 15 – перегородки; 16 – отбортовка перегородок; 17, 18 – зазоры; 19 – вход парогазовой смеси; 20 – выход парогазовой смеси; 21 – сублимационные ячейки; 22 – перемычки; 23 – выход десублимата; 24 – нейтронопоглощающая вставка.

Рисунок 2.19 – Десублиматор кольцевой с двумя тёплыми стенками

расположены вне этой камеры. На трубках 10 и 12 установлены кольцевые перегородки 15 с отбортовкой 16, которая направлена по ходу технологического газа. Перегородки 15 установлены с зазорами 17 и 18 относительно обогреваемых стенок 5 и 6 и с шагом, убывающим в направлении от патрубку 19 для входа исходного технологического газа к патрубку 20 для

выхода остатка технологического газа. С помощью перегородок 15 сублимационная камера 3 разделена на ряд последовательно расположенных кольцевых сублимационных ячеек 21, объём которых уменьшается по мере уменьшения расстояния между перегородками. Трубки 10 и 12 снабжены перемычками 22, выполненными из листовой стали. Патрубок 23 предназначен для вывода десублимата из сублимационной камеры. В аппарате осуществляется противоток хладагента и технологического газа и регулирование нагрева стенок 5 и 6 сублимационной камеры. Десублиматор может быть иметь при необходимости центральную поглощающую нейтроны вставку 24 размещенную в корпусе 1.

Аппарат периодического действия работает в двух режимах: десублимации и сублимации. При работе в режиме десублимации хладагент (пары жидкого азота, хладона или рассол) через патрубок 9 подают в кольцевой коллектор 8, где он распределяется по теплообменным трубкам 10. Отработанный хладагент, посредством сборного коллектора 11, отводящих трубок 12 и кольцевого коллектора 13 через патрубок 14 выводят из теплообменной камеры 4. Расход хладагента регулируют в зависимости от разности температур хладагента на входе и выходе из камеры 4. Процесс десублимации проводят при включённом нагревателе 7, который обогревает стенки 5 и 6 сублимационной камеры до температуры, не допускающей десублимацию гексафторида урана. Технологический газ, представляющий собой смесь паров ГФУ и инертных газов, поступает через патрубок 19, распределяется по кольцевому пространству в верхней части сублимационной камеры 3, проходит через зазоры 17, 18 и последовательно поступает в кольцевые ячейки 21. Гексафторид урана, десублимируясь, осаждается на поверхности трубок 10 и с двух сторон на перемычках 22. Часть паров ГФУ за счёт объёмной десублимации образует аэрозоли, которые сублимируются вторично при контакте с обогреваемыми стенками 5 и 6 при прохождении технологического газа в зазорах 17 и 18. Отбортовка 16 на

перегородках 15 увеличивает время контакта аэрозолей с обогреваемыми стенками, что позволяет гарантированно сублимировать аэрозоли, предотвращая их унос из сублимационной камеры, увеличивая тем самым степень десублимации ГФУ из технологического газа. Перемычки 22 увеличивают поверхность десублимации аппарата. При последовательном прохождении технологического газа из ячейки в ячейку концентрация гексафторида урана снижается и становится ниже критического значения, поэтому десублимация его в нижней части сублимационной камеры происходит только на охлаждаемой поверхности. Наличие обогреваемых стенок сублимационной камеры препятствует закупориванию зазоров 17 и 18 десублиматором, обеспечивая свободное прохождение технологического газа вдоль всей сублимационной камеры, а наличие двух этих зазоров уменьшает сопротивление прохождению технологическому газу.

Для перевода аппарата в режим сублимации подача хладагента и технологического газа прекращается. Нагревателем 7 доводят температуру в аппарате до температуры плавления ГФУ и продукт выводится из сублимационной камеры через патрубок 23. Для ускорения процесса плавления в теплообменную камеру 4 подают тёплый сухой воздух через патрубок 9, а отработанный воздух удаляется из камеры через патрубок 14. Плавление ГФУ начинается со стороны патрубка 23 выхода десублимата, что способствует минимизации сопротивления для выхода продукта.

Десублиматоры [80, 81], показанные на рисунке 2.20, предназначены для работы с низкообогащённым ураном или другими нерадиоактивными фторидами редких металлов и с целью увеличения производительности имеют большую вместимость. Для условий работы с нерадиоактивными веществами кольцевая форма аппарата способствует более развитой поверхности десублимации и свободному прохождению ПГС в аппарате. Оба аппарата аналогичные по конструкции, но при большой высоте аппарата более предпочтительна конструкция, показанная на рисунке 2.19,б. Она

позволяет дополнительно подавать хладагент в теплообменную камеру по патрубкам 23 и тем самым поддерживать по всей высоте зоны десублимации необходимый перепад температуры между хладагентом и ПГС.

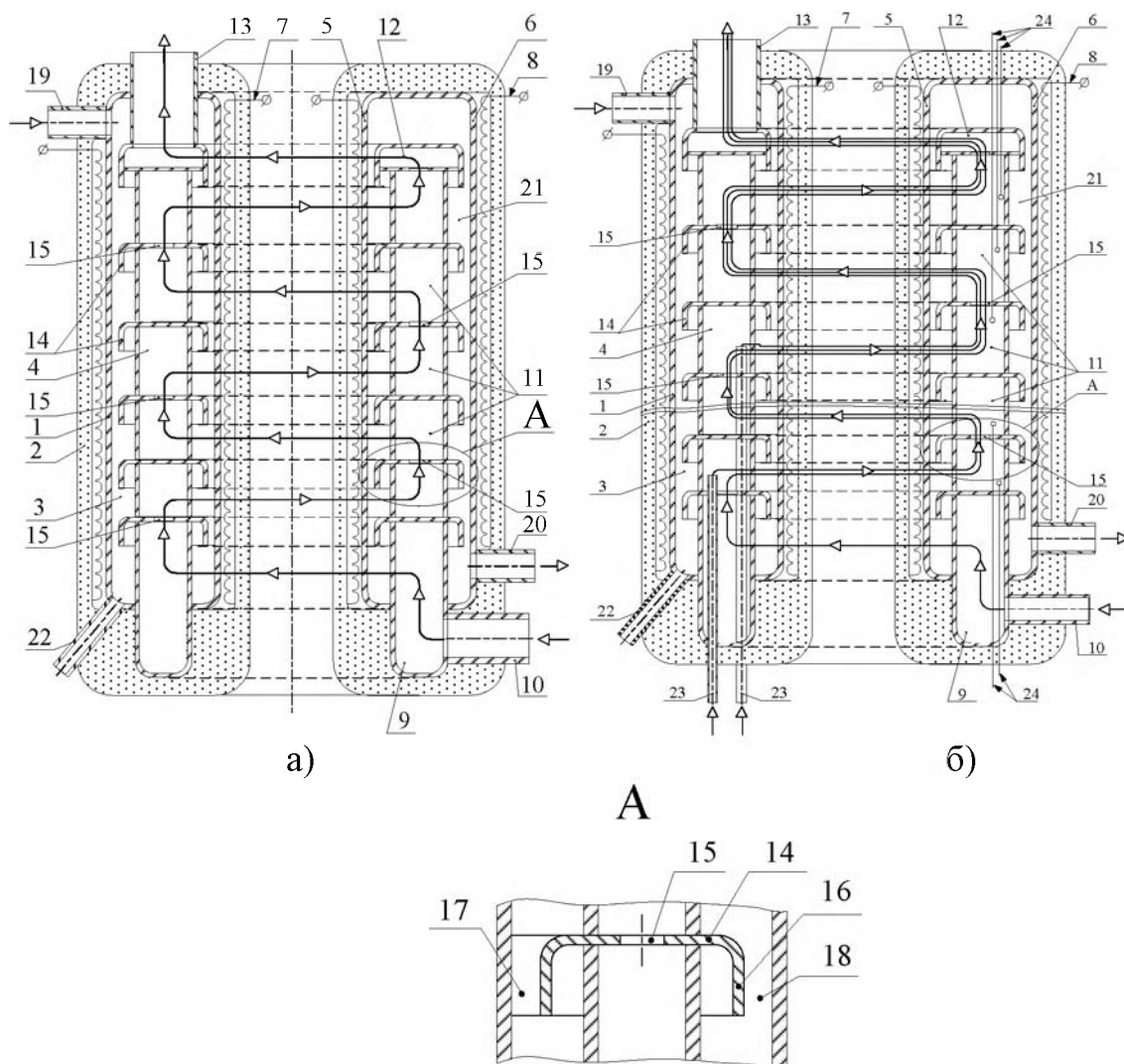


Рисунок 2.20 – Десублиматоры с увеличенной вместимостью

Аппарат содержит цилиндрический кольцевой корпус 1, заключённый в теплоизолирующий кожух 2. В корпусе соосно расположены кольцевая сублимационная камера 3 и камера 4 для теплоносителей. Сублимационная камера имеет внутреннюю стенку 5 и наружную стенку 6, обогреваемые нагревателями 7 и 8. Камера 4 для теплоносителей содержит нижний кольцевой элемент 9 с патрубком 10 для ввода теплоносителя, кольце-

вые секции 11 и верхний кольцевой элемент 12 с патрубком 13 для вывода теплоносителя из камеры. Кольцевые элементы 9, 12 и секции 11 разделены поперечными кольцевыми перегородками 14. В кольцевых перегородках 14 имеются отверстия 15, посредством которых последовательно сообщаются между собой кольцевой элемент 9, секции 11 и кольцевой элемент 12. Отверстия расположены диаметрально друг напротив друга на двух соседних перегородках. Кольцевые перегородки 14 имеют отбортовки 16 (см. выносной элемент А), которые расположены в сублимационной камере 3 и направлены по ходу технологического газа. Между отбортовками 16 и обогреваемыми стенками 5 и 6 имеются зазоры 17 и 18. Перегородки 14 установлены с шагом, убывающим в направлении от патрубка 19 для ввода технологического газа к патрубку 20 для вывода технологического газа. Перегородки 14 делят сублимационную камеру 3 на кольцевые ячейки 21. Патрубок 22 предназначен для вывода десублимата из сублимационной камеры. Регулирование нагрева стенок 5 и 6 сублимационной камеры осуществляется электронагревателями 7 и 8. Для регулирования температуры стенок секций 11, каждая (или некоторые) из них имеет патрубок 23 для подачи (или отбора) дополнительного теплоносителя в эти секции. При этом температура теплоносителя, и соответственно стенки секции 11, контролируется датчиками 24 для измерения температуры.

При работе в режиме десублимации хладагент (пары жидкого азота, хладона или рассол) через патрубок 10 подают в нижний кольцевой элемент 9, где он распределяется по всему элементу и через отверстие 15 поступает в кольцевую секцию 11, расположенную выше. Проходя последовательно все секции и верхний кольцевой элемент 12, отработанный (нагретый) хладагент выходит через патрубок 13 из камеры 4 для теплоносителей. Процесс десублимации проводят при включённых нагревателях 7 и 8, обогревающих стенки 5 и 6 сублимационной камеры до температуры, не допускающей десублимацию гексафторида урана. Технологический газ,

представляющий собой смесь паров ГФУ и инертных газов, поступает через патрубок 19, распределяется по кольцевому пространству в верхней части сублимационной камеры 3, проходит через зазоры 17, 18 и последовательно поступает в кольцевые ячейки 21. Гексафторид урана, десублимируясь, осаждается на охлаждаемых поверхностях кольцевых элементов 12, 9 и секций 11. Часть паров ГФУ за счёт объёмной десублимации образует аэрозоли, которые сублимируются вторично при контакте с обогреваемыми стенками 5 и 6 во время прохождения технологического газа в зазорах 17 и 18. Отбортовка 16 на перегородках 14 увеличивает время контакта аэрозолей с обогреваемыми стенками, что позволяет гарантированно сублимировать аэрозоли, предотвращая их унос из сублимационной камеры и увеличивая тем самым степень десублимации ГФУ из технологического газа. Наличие обогреваемых стенок сублимационной камеры препятствует закупориванию зазоров 17 и 18 десублиматом, обеспечивая свободное прохождение технологического газа вдоль всей сублимационной камеры, а наличие двух этих зазоров уменьшает сопротивление прохождению технологическому газу.

Так как концентрация паров ГФУ уменьшается по высоте аппарата сверху вниз, то существует необходимость регулировать и температуру десублимации, предупреждая таким образом, критические параметров системы “температура – концентрация паров ГФУ”. Для регулирования температуры конденсации каждая (или некоторые) секции 11 имеют патрубок 23 для дополнительной подачи теплоносителя. Подавая (или отбирая) теплоноситель в секцию 11, в камере 4 для теплоносителя по высоте аппарата можно регулировать температуру стенок секции 11 в диапазоне, предотвращающем образование аэрозолей. Температура в камере 4 по высоте контролируется датчиками 24, установленными в каждой секции 11. Регулируя расходы хладагента в патрубках 10 и 23 по разности температур в

камере 4 и стенок 5 и 6 можно добиться максимального и равномерного по высоте заполнения аппарата десублиматом.

Для перевода аппарата в режим сублимации подача хладагента и технологического газа прекращают. Нагревателями 7 и 8 доводят температуру в аппарате до температуры плавления ГФУ при соответствующем повышении давления паров ГФУ в аппарате. Расплавленный ГФУ через патрубок 22 сливают из сублимационной камеры. Для ускорения процесса плавления в камеру 4 можно подавать тёплый сухой воздух через патрубок 10, а отработанный воздух удаляют из камеры через патрубок 13. Плавление ГФУ начинается со стороны патрубка 22 вывода десублимата, что способствует минимизации сопротивления для отходящего продукта.

С целью сокращения времени нагрева и опорожнения десублиматора возможна дополнительная подача тёплого воздуха через патрубки 23.

3 Расчёт сублимационных аппаратов

В данной главе приведены методики расчёта сублимационных аппаратов, в которых используют различные способы воздействия на сублимирующийся слой исходного продукта:

- аппараты периодического действия с неподвижным слоем продукта;
- барабанные аппараты;
- шнековые аппараты.

В общем случае расчёт сублимационного аппарата должен содержать [60, 82]:

- 1) материальный расчёт;
- 2) тепловой расчёт;
- 3) конструктивный расчёт;
- 4) прочностной расчёт;
- 5) проверку обеспечения условий техники безопасности при работе оборудования (теплоизоляция, заземление и т.п.).

3.1 Расчёт сублиматоров с неподвижным слоем продукта

3.1.1 Исходные данные для расчёта

Вначале необходимо определить конструкцию рассчитываемого аппарата и его основные размеры. В нашем случае расчёт будем проводить для аппаратов, конструкция которых показана на рисунках 2.3 и 2.4. Эти аппараты мало отличаются друг от друга с точки зрения расчёта.

Кроме того, для расчёта сублимационного аппарата необходимо знать:

- состав исходного и конечного продуктов;

- условия проведения сублимации (в вакууме или при каком-либо давлении, в спокойной атмосфере или в потоке инертного газа, при наличии активной сорбционной насадки и т.п.);
- способ подвода тепла (электрический, индукционный или другой тип нагревателя, внутренний или наружный обогрев и т.д.);
- температуру нагрева аппарата (не ниже температуры сублимации целевого продукта);
- степень сублимации продукта;
- производительность аппарата по исходному или конечному продукту;
- разовую загрузку аппарата;
- теплофизические свойства исходного продукта, конечного продукта и среды, в которой проводится процесс сублимации (определяют по справочной литературе или с помощью ПЭВМ, используя специальные базы данных, например, программа HSC Chemistry [83]);
- кинетические характеристики рассчитываемого процесса (определяют по справочной литературе либо устанавливают экспериментальным путём, либо с помощью ПЭВМ, используя специальные базы данных [83]).

3.1.2 Материальный расчёт

В материальном расчёте по заданной производственной мощности аппарата определяют массовые потоки основного и сопутствующих продуктов и неизбежные потери продукта процесса (например, в виде пылеуноса, несублимированного остатка и т.п.).

Уравнение материального баланса имеет вид

$$G_{HO} + G_{HH} = G_D + G_{KH} + G_{KO} + G_P, \quad (3.1)$$

где G_{HO} – начальная масса сырья;

G_{HH} – начальная масса насадки;

G_D – масса десублимата;

G_{KH} – конечная масса насадки;

G_{KO} – масса остатка после сублимации;

G_{Π} – потери продукта.

Уравнение (3.1) можно применять для расчёта аппаратов периодического и непрерывного действия. В случае для периодически работающих аппаратов в уравнение подставляют массу продукта в килограммах на один цикл загрузки, а для непрерывно действующих аппаратов подставляют расход продуктов в единицу времени (кг/ч, кг/с).

Уравнение материального баланса по распределённому компоненту можно записать в виде

$$G_{HO} \cdot x_{HO} + G_{HH} \cdot x_{HH} = G_D \cdot x_D + G_{KH} \cdot x_{KH} + G_{KO} \cdot x_{KO} + G_{\Pi} \cdot x_{\Pi}, \quad (3.2)$$

где x_{HO} , x_{HH} , x_D , x_{KH} , x_{KO} , x_{Π} – концентрация распределяемого компонента в исходном сырье, в исходной насадке, десублимате, насадке после сублимации и потерях, соответственно, % мас.

Если имеются несколько распределённых компонентов, то составляется баланс по каждому из компонентов, а правильность расчётов проверяют по уравнению

$$\sum_{i=1}^n x_{iH} = \sum_{j=1}^h x_{jK} = 1, \quad (3.3)$$

где $\sum_{i=1}^n x_{iH}$, $\sum_{j=1}^h x_{jK}$ – суммарная концентрация распределяемых компонентов в

начальных и конечных продуктах, % мас.;

i, j – порядковый номер распределённых компонентов в исходных и конечных продуктах, соответственно;

n, h – количество распределённых компонентов в исходных и конечных продуктах, соответственно.

Если сублимация проводится без использования сорбционной насадки, то принимают $G_{HH} = G_{KH} = 0$.

По результатам материального расчёта составляют таблицу материального баланса.

Для расчёта материального баланса можно использовать термохимическое программное обеспечение HSC Chemistry 6.0 [83], а именно функцию «Heat and Material Balance». Пример расчёта показан в приложении П.

3.1.3 Тепловой расчёт

Целью теплового расчёта является определение требуемых поверхностей для массопередачи и теплопередачи, а также тепловой мощности, необходимой для проведения процессов сублимации.

Тепловой расчёт сублимационной и десублимационной частей аппарата лучше проводить по отдельности, так как при сублимации тепло подводится к системе, а при десублимации – отводится от продукта. Однако, если сублимационная и десублимационная зоны аппарата расположены в одном корпусе, то весь аппарат необходимо нагревать до температуры сублимации продукта и при определении общей мощности нагревателя, принимать отвод тепла из зоны десублимации, как тепловые потери.

Рассмотрим более сложный случай, то есть когда сублимационная и десублимационная зоны расположены в одном корпусе аппарата. Для случая, когда зоны сублимации и десублимации являются отдельными аппаратами, тепловой расчёт каждого из них также можно провести по нижеприведённой методике, рассматривая каждый процесс отдельно.

При расчёте следует учитывать, что сублимация и десублимация может проводиться как в периодическом, так и в непрерывном режимах. В соответствии с этим несколько отличаются и методики теплового расчёта. Об этих различиях будет говориться по ходу рассмотрения расчёта.

Общую продолжительность процесса сублимационной очистки τ , с, определяют по формуле

$$\tau = \tau_1 + \tau_2 + \tau_3 + \tau_4 + \tau_5 + \tau_6, \quad (3.4)$$

где τ_1 – продолжительность загрузки исходных веществ;

τ_2 – продолжительность нагревания продукта до температуры сублимации;

τ_3 – продолжительность сублимации;

τ_4 – продолжительность охлаждения продуктов до температуры выгрузки;

τ_5 – продолжительность выгрузки и текущего (профилактического) ремонта аппарата;

τ_6 – продолжительность разогрева печи.

Длительность периодов τ_1 и τ_5 для периодически действующих аппаратов точно не могут быть рассчитаны, так как зависят от степени механизации работ и других причин организационного характера. Поэтому их подбирают опытным путём или задают по нормативам.

Для непрерывно действующих аппаратов в рабочем режиме принимают $\tau_1 = \tau_2 = \tau_4 = \tau_5 = \tau_6 = 0$.

3.1.3.1 Расчёт продолжительности нагревания исходных продуктов

Расчёт можно проводить двумя методами: аналитическим и графоаналитическим. Рассмотрим оба этих метода.

а) Аналитический метод.

Продолжительность нагревания продукта зависит от толщины его слоя l , расположенного на греющей поверхности (тарелке). С целью упрощения расчёта принимают некоторые допущения, которые не вносят значительной ошибки в конечный результат:

- исходный слой продукта имеет форму бесконечной пластины, нагреваемой с одной из её двух поверхностей;

- нагревание слоя происходит при постоянной температуре греющей поверхности.

Эти допущения позволят использовать относительно простые дифференциальные уравнения теплопроводности [84]. Время нагревания определяют по формуле

$$Fo = \frac{\lambda \cdot \tau_H}{c_p \cdot \rho_n \cdot l^2}, \quad (3.5)$$

где Fo – критерий гомохронности Фурье, равный

$$Fo = \frac{1}{\eta_1^2} \cdot \ln \frac{B_1}{\theta}, \quad (3.6)$$

где λ – коэффициент теплопроводности материала нагреваемого слоя, Вт/(м·К);

τ_H – время нагревания, с;

c_p – удельная теплоёмкость нагреваемого материала, Дж/(кг·К);

ρ_n – насыпная плотность материала, кг/м³;

l – толщина слоя, м;

η_1 – первый корень характеристического уравнения

$$\eta_m = (2m - 1) \cdot \frac{\pi}{2};$$

Θ – относительная температура, равная

$$\theta = \frac{T_c - T_d}{T_{II} - T_o};$$

$$B_1 = \frac{1}{\cos \mu} \left[\frac{\sin(\mu - \eta_1)}{\mu - \eta_1} + \frac{\sin(\mu + \eta_1)}{\mu + \eta_1} \right] - \frac{2}{\eta_1} \cdot \sin \eta_1;$$

T_c – температура сублимации продукта, К;

T_d – температура десублимации продукта, К;

T_{II} – температура поверхности нагрева, К;

T_o – начальная температура слоя, К;

μ_1 – первый корень характеристического уравнения

$$\operatorname{ctg} \mu = \mu / Bi;$$

Bi – критерий Био, равный

$$Bi = \frac{\alpha_{\text{Л}} \cdot l}{\lambda};$$

$\alpha_{\text{Л}}$ – коэффициент теплопередачи лучеиспусканием от поверхности нагрева к слою продукта, Вт/(м²·К).

Значения коэффициента $\alpha_{\text{Л}}$ приведены в приложении А, зависимость корня характеристического уравнения μ и параметра B_l от критерия Био – в приложении Б. Температуру десублимации $T_{\text{д}}$, исключающую образование аэрозолей продукта, можно определить по методике, изложенной в работах [17, 85], а также используя термохимическое программное обеспечение HSC Chemistry [83].

б) Графоаналитический метод.

Аналитический метод расчёта теплофизических характеристик процесса нагревания или охлаждения тел различной формы весьма сложен, к тому же аналитическое решение получено только для тел простейшей формы – пластина, цилиндр, сфера.

В работах [84, 86] приводятся номограммы и графики для определения текущей температуры, средней температуры тела и других теплофизических характеристик в зависимости от времени, координаты, коэффициента температуропроводности и других независимых переменных, входящих в условие однозначности. К условиям однозначности относятся следующие характеристики:

- геометрическая форма тела;
- граничные условия между нагреваемым телом и теплоотдающей средой;
- начальные условия задачи, т.е. распределение температур, в начальный момент времени, когда $\tau = 0$;
- интенсивность и местоположение внутренних источников тепла (если они есть);
- теплофизические характеристики нагреваемого материала.

Анализ конструкций сублимационных аппаратов показал, что нагреваемый материал в различных аппаратах имеет первоначальную форму в виде либо пластины, либо цилиндра полого или сплошного. В том случае, когда форма нагреваемого материала несколько отлична от этих геометрических фигур, вводится понятие о приведённом размере тела, который следует подставить в расчёт уравнения вместо толщины пластины или радиуса цилиндра [87].

Для тел близких по форме к пластине

$$R = \frac{V_0}{F_{CP}}, \quad (3.7)$$

где R – приведённая толщина пластины, м;

V_0 – объём тела, м³;

F_{CP} – площадь средней плоскости тела, м².

Для тел близких по форме к цилиндру

$$R = \left(\frac{f_0}{\pi} \right)^{0,5}, \quad (3.8)$$

где f_0 – площадь поперечного сечения тела, м².

Ниже приводится последовательность расчёта температурного поля и времени нагрева исходных продуктов при постоянной температуре поверхности нагрева для различных форм сублимируемого материала.

1 Геометрическая форма материала имеет вид пластины или близка к ней.

Расчёт производят по номограммам, приведённым в приложении В:

1) задают время нагревания τ_1 ;

2) рассчитывают критерий гомохронности Фурье по формуле

$Fo = \frac{a \cdot \tau_1}{R^2}$, где $a = \frac{\lambda}{c \cdot \rho}$ – коэффициент температуропроводности тела, м²/с;

3) выбирают расчётные сечения $\eta_i = \frac{x_i}{R}$, где x_i – текущая координата, отсчитываемая от нагревающей поверхности, м;

4) по рассчитанному критерию Фурье и выбранному сечению η_i определяют по номограмме на рисунке В.1 значения относительной избыточной температуры θ_i ;

5) рассчитывают текущие температуры для времени нагревания τ_1 , с, и для выбранных сечений η_i по формуле

$$t_i = t_C - \theta_i \cdot (t_C - t_0), \quad (3.9)$$

где t_C – температура нагревающей среды, $^{\circ}\text{C}$;

t_0 – начальная температура материала, $^{\circ}\text{C}$;

η_i – выбранное для расчёта сечение, находится в пределах $0 \leq \eta_i \leq 1$;

6) задают новое значение времени τ_2 и повторяют расчёт.

Номограмма на рисунке В.2 предназначена для определения средней по объёму температуры тела. Порядок расчёта средней температуры такой же, как и текущей температуры тела, только среднюю температуру нагреваемого тела t^* , $^{\circ}\text{C}$, рассчитывают по формуле

$$t^* = t_C - \theta_i^* \cdot (t_C - t_0), \quad (3.10)$$

где θ_i^* – относительная средняя температура тела, $^{\circ}\text{C}$.

Расчёт проводят до достижения средней температуры тела заданной температуры сублимации.

2 Геометрическая форма материала в виде цилиндра или близкая к ней.

Расчёт производят по номограммам, приведённым в приложении Г. По номограмме на рисунке Г.1 определяют текущую температуру в любом сечении цилиндра, а по номограмме на рисунке Г.2 – среднюю по сечению цилиндра температуру. Порядок определения текущей и средней температуры такие же, как и для пластины. Текущую и среднюю температуры рассчитывают по формулам (3.9) и (3.10).

3 Геометрическая форма материала в виде полого (кольцевого) цилиндра, нагреватель находится снаружи цилиндра.

Расчёт ведут по номограмме в приложении Д в следующей последовательности:

- 1) задают время нагревания, например, τ_1 ;
- 2) рассчитывают критерий гомохронности Фурье по формуле $Fo = \frac{a \cdot \tau_1}{R^2}$, где R – наружный радиус цилиндра, м;
- 3) определяют значение η_0 по формуле $\eta_0 = \frac{R_0}{R}$, где R_0 – внутренний радиус полого цилиндра, м;
- 4) рассчитывают значение относительного сечения по формулам

$$\eta = \frac{1 + \eta_0}{2} \text{ и } \eta = \frac{x}{R}; \quad (3.11)$$

- 5) по номограмме на рис.Д.1 определяют относительную температуру θ_1 ;

- 6) текущую температуру t_1 полого цилиндра для сечения η , найденного по уравнению (3.11), рассчитывают по формуле

$$t_1 = t_c + \theta_1 \cdot (t_c - t_o), \quad (3.12)$$

где t_o – начальная температура внутренней поверхности цилиндра, $^{\circ}\text{C}$;

- 7) задают новое значение времени τ_2 , расчёт повторяют и так до достижения нагреваемым телом заданной температуры сублимации.

4 Геометрическая форма материала в виде полого (кольцевого) цилиндра, нагреватель находится внутри цилиндра.

Расчёт ведут по номограмме в приложении Д на рисунке Д.2. Последовательность определения температуры та же, что и для полого цилиндра с наружным обогревом, текущую температуру для сечения η определяют по формуле (3.12).

3.1.3.2 Расчёт продолжительности сублимации

Время сублимации неподвижного слоя материала рассчитывают по формуле [60, 82]

$$\tau = \frac{\gamma \cdot (1 + E) \cdot C_0 + \frac{1 - (1 - \alpha)^{1-n}}{1-n} + E \cdot \alpha}{K_T}, \quad (3.13),$$

где K_T – постоянная скорости стадии теплопередачи, кг/(м²·с), равная

$$K_T = \frac{5,67 \cdot F_0 \cdot \varepsilon_T}{m_0 \cdot \Delta H} \cdot \left[\left(\frac{T_H}{100} \right)^4 - \left(\frac{T_C}{100} \right)^4 \right]; \quad (3.14)$$

γ – эмпирический коэффициент смещения, равный

$$\gamma = 1,0 \text{ при } P \leq 290 \text{ Па}, \quad \gamma = 0,30 - \frac{115}{P} + \frac{9,0 \cdot 10^4}{P^2} \text{ при } P > 290 \text{ Па};$$

$$E = \frac{F_0}{F_H} \left(\frac{1}{\varepsilon_H} - 1 \right) \cdot \varepsilon_T;$$

F_0, F_H – начальная площадь поверхности материала и площадь поверхности нагревателя, м². В первом приближении можно принять $F_0 = F_H$, и величину F_H задать конструктивно, а затем уточнить расчётом;

m_0 – начальная масса продукта, кг;

ΔH – энтальпия сублимации продукта, Дж/кг;

T_H – температура греющей поверхности (тарелки), К;

T_C – температура сублимации, К, при остаточном давлении P , равная

$$T_C = \frac{11600}{14,82 - \lg P};$$

C_0 – содержание десублимата в исходном продукте, при $\alpha = 0$, равное

$$C_0 = \frac{1}{a_0 + a_1 \cdot P},$$

α – выход десублимата, доли;

a_0, a_1 – эмпирические константы, равные

$$a_0 = 2,8, \quad a_1 = 9,0 \cdot 10^{-3} \text{ при } P < 610 \text{ Па};$$

$$a_0 = 7,7, a_1 = 1,7 \cdot 10^{-3} \text{ при } P \geq 610 \text{ Па};$$

n – коэффициент сокращения формы, равный 0, 0,50 и 0,667 при сокращении объёма в одном, двух и трёх измерениях, соответственно;

ε_H – коэффициент черноты сублимирующегося материала, для фторидов металлов IV группы, равен 0,332 [69];

ε_T – коэффициент черноты материала поверхности нагревателя, например, для никеля $\varepsilon_T = 0,48$ [87];

τ – продолжительность сублимации, с.

С другой стороны, продолжительность сублимации τ для периодически действующих аппаратов в первом приближении можно определить по формуле

$$\tau = \tau_{ц} - \tau_n - \tau_{ох} - \tau_з - \tau_p - \tau_{\theta}, \quad (3.15)$$

где $\tau_{ц}$ – продолжительность цикла работы аппарата, ч;

τ_n – время нагревания аппарата, ч;

$\tau_{ох}$ – время охлаждения аппарата, ч;

$\tau_з$ – время загрузки аппарата, ч;

τ_p – время разгрузки аппарата, ч;

τ_{θ} – продолжительность вакуумирования аппарата до требуемого остаточного давления, ч.

Учитывая опыт работы с действующими сублимационными аппаратами, можно принять, что $\tau_{ох} = 2 \cdot \tau_n$, тогда уравнение (3.15) примет вид

$$\tau = \tau_{ц} - 3\tau_n - \tau_з - \tau_p - \tau_{\theta}, \quad (3.16)$$

Продолжительность времени вакуумирования τ_{θ} можно рассчитать по литературе [88-94] или по номограмме, приведённой в приложении Е.

Продолжительность сублимации, определённую по уравнениям (3.13), (3.16) необходимо уточнить после определения основных геометрических размеров аппарата и площади тепловоспринимающей поверхности F_{θ} по п. 3.1.3.2

При определении продолжительности сублимации в периодически действующих аппаратах по формуле (3.15) следует учитывать и время разогрева самого нагревателя, если аппарат работает периодически.

3.1.3.3 Расчёт поверхности нагрева и основных размеров аппарата

Определение необходимой площади поверхности нагрева состоит из предварительного и уточнённого расчётов. Предварительный расчёт производят исходя из условия равенства поверхности нагревателя и начальной поверхности нагреваемого слоя, т.е. $F_H = F_0$.

Уточнённый расчёт ведут с учётом принятых размеров аппарата.

Площадь поверхности нагрева неподвижного слоя продукта в периодически действующем аппарате с центральным нагревателем (рис. 2.3) можно увеличить, установив на каждой тарелке радиальные рёбра. Размер этой площади, при соблюдении условия $F_H = F_0$, определяют по формуле [84]

$$F_H = F_0 = \frac{K_T \cdot m_0 \cdot \Delta H}{5,67 \cdot \varepsilon_T} \left[\left(\frac{T_H}{100} \right)^4 - \left(\frac{T_C}{100} \right)^4 \right]^{-1}. \quad (3.17)$$

В этом случае величину K_T определяют по формуле (3.14), а время сублимации – по формуле (3.13).

Зная площадь нагрева неподвижного слоя продукта, определяют его исходную высоту H_0 , м, по формуле

$$H_0 = \frac{1}{\pi \cdot L^2} \cdot \left[\frac{m_0}{\rho_H} - \frac{L \cdot F_0 \cdot \alpha_C}{\alpha_H} + \frac{\delta \cdot F_H \cdot (\alpha_H - \alpha_C)}{2 \cdot \alpha_H \cdot E} \right], \quad (3.18)$$

где ρ_H – насыпная плотность продукта, кг/м³;

α_H – коэффициент теплоотдачи от нагревателя к стенке тарелки, Вт/(м²·К), равный

$$\alpha_H = 0,19 \cdot \left[\left(\frac{T_{CH} + T_H}{2} \right) \cdot \frac{1}{100} \right]^3;$$

T_{CH} – температура спирали у нагревателя, К;

δ – толщина ребра, м, принимаемая конструктивно;

L – длина ребра, м;

E_P – коэффициент эффективности ребра, зависящий от геометрических характеристик, материала ребра и условий теплопередачи; изменяется в пределах от 0 до 1. Для хорошо теплопроводящих материалов можно принять $E_P = 0,8-1,0$.

С другой стороны, поверхность нагревателя связана с параметрами аппарата соотношением

$$F_H = H_0 \cdot (\pi \cdot D_1 + 2 \cdot n_P \cdot E_P \cdot L), \quad (3.19)$$

где n_P – количество рёбер на одной тарелке;

D_1 – диаметр слоя продукта в аппарате со стороны нагревателя, м.

Параметры n_P и D_1 связаны между собой соотношением

$$n_P = \frac{\pi \cdot D_1 \cdot (\alpha_H - \alpha_C)}{2 \cdot \alpha_C \cdot E_P \cdot L}. \quad (3.20)$$

Для определения величины этих параметров один задают конструктивно, например D_1 , а второй, n_P , – рассчитывают, либо наоборот.

После определения суммарной высоты слоя исходного продукта в испарителе (H_0) по формуле (3.18) определяют поверхность нагревания.

Наружный диаметр тарелки D_2 , м, равен

$$D_2 = D_1 + 2L. \quad (3.21)$$

Полезный объём испарителя V_0 , м³, определяют из выражения

$$V_0 = \frac{m_0}{\rho_H} = \frac{\pi}{4} \cdot H_0 \cdot (D_2^2 - D_1^2) - n_P \cdot L \cdot \delta \cdot H_0. \quad (3.22)$$

Далее определяют внешний диаметр внутренней обечайки тарелки

$$D_1 = \frac{F_H \cdot \alpha_C}{\pi \cdot H_0 \cdot \alpha_H}. \quad (3.23)$$

Внешний диаметр тарелки определяют по формуле (3.21). Высоту тарельчатой части аппарата H_T , м, определяют по формуле

$$H_T = \frac{H_0}{k_3 \cdot k_K}, \quad (3.24)$$

где k_3 – коэффициент заполнения тарелки, равный $k_3 = 0,2-0,6$;

k_K – коэффициент, учитывающий наличие конструктивных элементов, сокращающих полезный объём тарелки, принимается конструктивно.

Высоту одной тарелки h_T , м, определяют по эмпирической формуле

$$h_T = (0,6 \pm 0,1) \cdot (D_2 - D_1). \quad (3.25)$$

Однако, экспериментами по сублимации фторидов редких металлов [69], было установлено, что глубина сублимирующегося слоя в условиях вакуума не превышает 7,5 мм. Поэтому, для ведения эффективного процесса сублимации, высота слоя материала на тарелке не должна значительно превышать эту величину, особенно в периодически действующих аппаратах. Отсюда, число тарелок N в сублиматоре будет равняться

$$N = \frac{H_T}{h_T}. \quad (3.26)$$

Полученное значение N округляют до целого числа в большую сторону, а затем уточняют высоту тарелки.

После определения основных размеров и параметров испарителя, уточняют начальную площадь тепловоспринимающей поверхности слоя по формуле

$$F_0 = [k_3 \cdot F_{\text{ц}} + E_P \cdot (k_3 \cdot F_P + F_{\text{д}})] \cdot N \quad (3.27)$$

и площадь поверхности нагрева F_H , м²,

$$F_H = [F_{\text{ц}} + E_P \cdot (F_P + F_{\text{д}})] \cdot N, \quad (3.28)$$

где $F_{\text{ц}}$ – площадь внутренней поверхности обечайки тарелки, м², равная

$$F_{\text{ц}} = \pi \cdot D_1 \cdot h_T;$$

F_P – площадь оребрения, м², равная $F_P = 2 \cdot n_P \cdot L \cdot (h_T - s)$;

s – толщина стенки тарелки, м;

$F_{\text{д}}$ – площадь поверхности днища тарелки, м^2 , равная

$$F_{\text{д}} = \frac{\pi \cdot (D_2^2 - D_1^2)}{4}.$$

Площадь тепловоспринимающей поверхности материала уменьшается со временем по мере сублимации продукта. Текущую площадь тепловоспринимающей поверхности F , м^2 , определяют по формуле

$$F = F_0 \cdot (1 - \alpha)^n, \quad (3.29)$$

где α – степень сублимации продукта, доли;

n – показатель сокращения поверхности, зависящий от геометрической формы аппарата, высоты слоя продукта и т.д. Значения его от различных факторов приведены в приложении Ж.

Далее уточняют время процесса сублимации по уравнению (3.13).

Теоретическое время процесса сублимации τ_T , с, можно определить также по формуле

$$\tau_T = \frac{m_c}{W_T \cdot F_0}, \quad (3.30)$$

где m_c – масса десублимата, кг;

W_c – теоретическая скорость сублимации, $\text{кг}/(\text{м}^2 \cdot \text{с})$, равная

$$W_T = \frac{C_{\text{ПР}}}{\Delta H} (T_H^4 - T_C^4);$$

$C_{\text{ПР}}$ – приведённый коэффициент лучеиспускания. Для системы “фторид РЗМ – сталь (или никель)” $C_{\text{ПР}} = 1,49 \cdot 10^{-9} \text{ Вт}/(\text{м}^2 \cdot \text{К}^4)$;

T_H , T_C – температуры нагревателя и сублимации, К.

Если нагрев производят снаружи аппарата, со стороны большего диаметра, то расчёт греющей площади и основных размеров аппарата производят по тем же уравнениям (3.27) и (3.28), только размеры D_1 и D_2 следует переставить местами, т.е. D_1 – наружный диаметр тарелки, а D_2 – внутренний диаметр тарелки. Уравнения (3.27) и (3.28) справедливы для случая, когда внутренний диаметр тарелки равен нулю.

3.1.3.4 Расчёт мощности нагревателя

Наибольшее значение полезной мощности $P_{пол}$ имеет место в период максимальной скорости сублимации. Исходя из этого, можно записать

$$\left(\frac{dm}{d\tau}\right)_{\max} = \frac{K_T \cdot m_0}{1 + E_p}. \quad (3.31)$$

Отсюда следует, что

$$P_{пол} = \frac{K_T \cdot m_0 \cdot \Delta H}{1 + E_p}. \quad (3.32)$$

Общая потребная мощность нагревателя W_{II} , Вт, должна быть равна затраченной мощности

$$W_{II} = \frac{K_T \cdot m_0 \cdot \Delta H}{(1 + E_p) \cdot \eta}, \quad (3.33)$$

где η – коэффициент использования тепла или к.п.д. печи.

Коэффициент использования тепла рассчитывают по формуле

$$\eta = \frac{P_{пол}}{W_{II} \cdot K} \cdot 100\%, \quad (3.34)$$

где K – коэффициент избытка мощности.

Общая потребная мощность нагревателя состоит из суммы слагаемых

$$W_{II} = P_{пол} + P_{всп} + P_{пот}, \quad (3.35)$$

где $P_{всп}$ – мощность, затрачиваемая на нагрев вспомогательных устройств, Вт;

$P_{пот}$ – суммарные тепловые потери, Вт.

Определим значения этих величин.

а) Полезная мощность для периода нагревания исходных продуктов для периодически действующих аппаратов определяют по формуле

$$P_{пол} = \frac{c_c \cdot m_z \cdot (t_K - t_H)}{\tau_H}, \quad (3.36)$$

где c_c – средняя теплоёмкость нагреваемого материала, Дж/(кг·К);

m_3 – масса нагреваемого материала, кг;

t_K, t_H – конечная и начальная температуры материала, К;

τ_H – время нагревания материала до температуры сублимации, с.

За расчётную полезную мощность следует принимать большее из двух значений, полученных по уравнениям (3.32) и (3.36).

Установленную мощность печи K_Y , Вт, определяют по максимальной потребной мощности

$$K_Y = K \cdot W_{II}. \quad (3.37)$$

Избыток установленной мощности против максимальной потребной мощности необходим по следующим причинам:

1) из-за колебания сетевого напряжения фактическая мощность печи уменьшается, например, при падении напряжения сети на 5% мощность печи уменьшается на 10%;

2) во время работы нагревателей за счёт так называемого “старения”, нагревательные элементы увеличивают своё сопротивление, что ведёт к уменьшению мощности печи. “Старение” вызывается уменьшением активного сечения нагревателя вследствие поверхностного окисления, а также изменением с течением времени структуры нагревательного сплава;

3) для обеспечения возможности повышения производительности аппарата (печи) против расчётной за счёт увеличения массы загрузки и сокращения времени нагрева.

При проектировании промышленных электрических печей сопротивления коэффициент K принимают в следующих пределах:

$K = 1,3 - 1,4$ для печей с потребной мощностью 300 кВт и выше;

$K = 1,3 - 1,6$ для печей с потребной мощностью 100-300 кВт;

$K = 1,3 - 1,8$ для печей с потребной мощностью до 100 кВт.

При выборе установленной мощности печи следует иметь в виду, что излишне установленная мощность не только не даёт повышения удельного расхода электроэнергии, но, наоборот, в ряде случаев позволяет снизить

расход энергии за счёт форсирования режима нагрева и сокращения длительности разогрева печи. В печах специального назначения иногда возникает необходимость нагрева веществ, для осуществления некоторых физических процессов или химических реакций с поглощением или выделением тепла. В таких случаях необходимо учитывать этот тепловой эффект реакции.

б) К вспомогательным устройствам относятся устройства, подверженные нагреву вместе с загрузкой: тара и элементы транспортных устройств (тигли, короба, этажерки, поддоны, цепи и лента конвейера и т.п.).

Определение мощности на нагрев вспомогательных устройств ведут по формуле

$$P_{всп} = \frac{(m_1 \cdot c_1 + m_2 \cdot c_2 + \dots + m_n \cdot c_n) \cdot (t_K - t_0)}{\tau}, \quad (3.38)$$

где $m_1, m_2, \dots, m_n$ – массы различных вспомогательных устройств, кг;

$c_1, c_2, \dots, c_n$ – соответствующие средние теплоёмкости вспомогательных устройств, Дж/(кг·К);

t_0, t_K – начальная и конечная температуры вспомогательных устройств, К;

τ – время нагревания вспомогательных устройств, с.

в) Тепловые потери можно разделить на группы:

- потери через футеровку и теплоизоляцию;
- потери через тепловые мосты;
- потери через отверстия и неплотности конструкции.

Основными причинами тепловых потерь в большинстве электрических печей сопротивления являются потери через футеровку q_f , Вт, и потери излучением через отверстия q_u

$$P_{ном} = q_f + q_u. \quad (3.39)$$

Потери через футеровку, с достаточной для технических расчётов точностью, можно определить как потери через плоскую стенку

$$q_{\phi} = q_0 \cdot F_P, \quad (3.40)$$

где q_0 – удельные тепловые потери, Вт/м²;

F_P – расчётная площадь поверхности печи, м².

Удельные тепловые потери определяют по формуле

$$q_0 = \frac{t_1 - t_2}{\frac{s_1}{\lambda_1} + \frac{s_2}{\lambda_2} + \dots + \frac{s_n}{\lambda_n}}, \quad (3.41)$$

где t_1, t_2 – температуры внутренней и внешней поверхностей теплоизоляции печи, К;

$s_1, s_2, \dots, s_n$ – толщины каждого слоя футеровки, м;

$\lambda_1, \lambda_2, \dots, \lambda_n$ – коэффициенты теплопроводности материалов каждого слоя футеровки, Вт/(м·К).

Значения коэффициентов теплопроводности $\lambda_1, \lambda_2, \dots, \lambda_n$ принимают в зависимости от теплофизических свойств материала слоя футеровки с приблизительным учётом средних температур, ожидаемых в слое.

За расчётную площадь поверхности печи при определении тепловых потерь целесообразно принимать площадь внешней поверхности футеровки, т.к. при таком подходе, результат расчёта потерь получается с некоторым запасом.

Потери тепла излучением через отверстия в футеровке рассчитывают по формуле [88]

$$q_u = C_{np} \cdot F_A \cdot \left[\left(\frac{T_1}{100} \right)^4 - \left(\frac{T_2}{100} \right)^4 \right], \quad (3.42)$$

где T_1, T_2 – температуры печи и окружающей среды, К;

C_{np} – приведённый коэффициент излучения, равный 4,64 Вт/(м·К);

$F_A = F_O \cdot \varphi$ – активная поверхность тепловых потерь, м²;

F_O – площадь отверстия, м²;

φ – коэффициент диафрагмирования, зависящий от отношения геометрических размеров отверстия и толщины стенки. Значения коэффициента φ приведены в приложении И.

После определения потерь мощности на нагрев вспомогательных устройств и тепловых потерь определяют общую потребную мощность по формуле (3.35), установленную мощность по формуле (3.37) и коэффициент полезного действия печи по формуле (3.34).

3.1.3.5 Определение продолжительности разогрева печи

Исходя из теплового баланса периода разогрева, время разогрева печи $\tau_{раз}$, с, определяют по формуле [88]

$$\tau_{раз} = \frac{Q_{акк}}{W'_y - P'_{ном}}, \quad (3.43)$$

где $Q_{акк}$ – количество тепла, аккумулируемого за время разогрева печи, кДж;

W'_y – средняя мощность нагревателей печи в период разогрева, кВт;

$P'_{ном}$ – средние потери мощности на тепловые потери за время разогрева, кВт.

В качестве средней мощности в период разогрева рекомендуют принимать 80% установочной мощности нагревательных элементов. Этим учитываются падение напряжения в сети и “старение” нагревателей.

Для разогрева холодной печи средние потери мощности принимают равными 50% тепловых потерь печи при установившемся тепловом режиме.

Тогда, время разогрева печи от холодного состояния до установившегося режима с номинальной работой температурой будет определяться формулой

$$\tau_{раз} = \frac{Q_{акк}}{0,8 \cdot W_y - 0,5 \cdot P_{ном}}. \quad (3.44)$$

Тепло, необходимое на разогрев печи (т.е. тепло, аккумулируемое печью), рассчитывают в следующем порядке:

1) определяют ориентировочно массы основных элементов футеровки (огнеупорной части и теплоизоляции) и внутренних металлических конструкций печи;

2) по данным расчёта тепловых потерь через футеровку определяют средние температуры огнеупорной и теплоизоляционной частей футеровки, температуру внутренних металлических конструкций принимают равной рабочей температуре печи;

3) по теплофизическим характеристикам огнеупорных материалов и теплоизоляции выбирают коэффициенты теплопроводности отдельных элементов футеровки и коэффициенты теплоёмкости или удельные теплосодержания материалов внутренних металлических конструкций;

4) суммарное количество аккумулируемого тепла печью $Q_{акк}$, кДж, при её рабочей температуре определяют как разность теплосодержания до разогрева $Q_{акк}^{t_0}$, кДж, и после разогрева $Q_{акк}^t$, кДж

$$Q_{акк} = Q_{акк}^t - Q_{акк}^{t_0}. \quad (3.45)$$

В случае разогрева холодной печи, для упрощения расчёта, принимают, что $Q_{акк}^{t_0} = 0$. Тогда аккумулируемое тепло рассчитывают по формуле

$$Q_{акк}^t = m_1 \cdot c_1 \cdot t_{1cp} + m_2 \cdot c_2 \cdot t_{2cp} + m_3 \cdot c_3 \cdot t_3, \quad (3.46)$$

где m_1 , m_2 , m_3 – массы огнеупорной части футеровки, теплоизоляции и внутренних металлоконструкций, соответственно, кг;

t_{1cp} , t_{2cp} – средние температуры огнеупорной части футеровки и теплоизоляции, соответственно, К;

t_3 – температура внутренних металлоконструкций, К.

Если огнеупорная и теплоизоляционная футеровка состоит из нескольких слоёв материалов с различными объёмными массами и коэффициентами затраченную на тепловые потери, определяют по формуле (3.39), а продолжительность разогрева печи – по формуле (3.44).

3.2 Конструктивный расчёт сублиматоров непрерывного действия

В непрерывно действующих аппаратах одной из важных характеристик процесса теплоёмкости и теплопроводности, то для большей точности расчёт ведут для каждого слоя отдельно.

Обычно основной составляющей аккумулированного тепла печью является теплосодержание огнеупорной кладки, поскольку она выполняется из материалов с большими объёмными массами, а также потому, что средняя температура огнеупорной части футеровки значительно выше, чем средняя температура теплоизоляции. Поэтому для ускорения разогрева и охлаждения печи необходимо стремиться выполнять огнеупорную часть футеровки из возможно более легковесных материалов, допустимых по условиям механической прочности и термической стойкости огнеупорной кладки. При определении аккумулированного тепла теплосодержанием внешних металлических конструкций пренебрегают.

Мощность, является время пребывания материала в аппарате τ , с. Применительно к сублимационному процессу, должно выполняться неравенство

$$\tau \geq \tau_H + \tau_C, \quad (3.47)$$

где τ_H – время нагревания исходного продукта до температуры сублимации, с;

τ_C – время сублимации продукта, с.

Время нагревания продукта до температуры сублимации определяют по методике, изложенной в п.3.1.3.1, а время сублимации – по уравнениям в п.3.1.3.2. С другой стороны, время пребывания материала в аппарате является функцией геометрической формы аппарата, его размеров, вида привода и т.д. Ниже рассмотрены методики расчётов некоторых типов аппаратов, используемых для сублимации фторидов РЗМ.

3.2.1 Расчёт барабанных (трубчатых) аппаратов

Барабанные печи в настоящее время весьма распространены в производстве редких металлов. Конструкция печи предусматривает вращающийся корпус (барабан), установленный с наклоном к горизонту под углом $(1-6)^0$. Наличие угла наклона и вращение печи обеспечивают интенсивное перемешивание продукта и его перемещение внутри корпуса от загрузочного конца к разгрузочному. Внутри печи могут быть установлены специальные насадки и устройства, которые способствуют улучшению тепло- и массообмену, изменяют время пребывания продукта в аппарате.

Для расчёта печей производства оксидов, фторидов и ряда других соединений в работах [89, 90] получено эмпирическое уравнение, связывающее время пребывания материала в аппарате τ , с, с геометрическими размерами аппарата и его рабочими параметрами

$$\tau = \frac{L_p}{\pi \cdot D \cdot K_{сц} \cdot m \cdot n \cdot \operatorname{tg} \alpha}, \quad (3.48)$$

где L_p – рабочая длина барабана, м;

D – внутренний диаметр барабана, м;

n – частота вращения барабана, с^{-1} ;

m – коэффициент, характеризующий режим движения газа относительно материала;

α – угол наклона оси барабана к горизонту, град ($1^0 \leq \alpha \leq 6^0$);

$K_{сц}$ – коэффициент формы и сцепления, равный

$K_{сц} = 0,8$ – для кристаллических материалов;

$K_{сц} = 0,6$ – для частично спекающихся материалов;

$K_{сц} = 0,4 - 0,6$ – для очистки и разделения фторидов;

$K_{сц} = 0,1 - 0,2$ – для частично оплавливающих материалов.

Для комкующихся материалов с увеличением размеров частиц коэффициент сцепления уменьшается.

При противоточном движении твёрдого продукта и газа некоторые частицы твёрдого материала могут быть увлечены потоком газа и затем вновь осажены в печи. Суммарная скорость движения твёрдого материала вдоль оси корпуса барабана при этом уменьшается, а время пребывания в печи возрастает. В этом случае коэффициент m изменяется. Величина коэффициента m при противотоке фаз газ-твёрдое тело и рекомендуемой для трубчатой печи скорости движения газа 1-2 м/с, составляет 0,8-0,9. При меньших скоростях газового потока значение коэффициента m приближается к единице. При прямотоке фаз время пребывания материала в аппарате уменьшается из-за ускорения движения частиц при попутном потоке газа, и в этом случае $m = 1,1-1,2$. Частоту вращения барабана рекомендуют принимать не более $0,13 \text{ с}^{-1}$, причём частоту вращения надо согласовывать с диаметром барабана так, чтобы окружная скорость вращения не превышала 1 м/с. Скорость твёрдой частицы вдоль оси барабана W_0 , м/с, равна

$$W_0 = \pi \cdot D \cdot n \cdot \operatorname{tg} \alpha. \quad (3.49)$$

По найденной продолжительности пребывания материала в аппарате (уравнение (3.47)) из уравнения (3.48) определяют рабочую длину барабана и его диаметр с учётом соотношения $L_p / D = 6-12$. Действительная длина барабана L из конструктивных соображений может быть увеличена на (5-15)%, например, для подсоединения к нему питателя, узла выгрузки, патрубков для подачи газа и т.п.

Производительность трубчатых аппаратов не влияет на время пребывания материала, изменение производительности обычно связано со степенью его заполнения γ , которая равна отношению площади поперечного сечения, заполненного материалом, к полной площади сечения барабана. Обычно принимают $0,08 \leq \gamma \leq 0,15$.

Отсюда, массовую производительность m_H , кг/с, по исходному продукту для трубчатых аппаратов рассчитывают по формуле

$$m_H = \gamma \cdot \frac{\pi \cdot D^2}{4} \cdot W_0 \cdot \rho_H, \quad (3.50)$$

где ρ_H – насыпная плотность материала, кг/м³.

Зная, что толщина слоя сублимирующегося фторида редких металлов не превышает 7,5 мм, толщину слоя материала в барабане желательно принимать не более этой величины. Тогда, массовую производительность можно определить по формуле

$$m_H = \frac{l_{\text{хор}} \cdot \delta \cdot L \cdot \rho_H}{\tau}, \quad (3.51)$$

где δ – толщина слоя материала в барабане, м;

$$l_{\text{хор}} = \frac{\pi \cdot D}{360} \cdot \varphi \text{ – длина хорды сегмента, занимаемого в поперечном трубе}$$

материалом, м;

φ – угол наклона поверхности материала, т.е. хорды сегмента к линии горизонта, град.

Угол φ обычно имеет значения близкие к величине угла естественного откоса материала. При небольших скоростях вращения барабана этот угол составляет (25-45)⁰.

Для трубчатых аппаратов длина хорды сегмента должна удовлетворять условию

$$l_{\text{хор}} = (0,7 - 0,8) \cdot D. \quad (3.52)$$

За истинную массовую производительность аппарата следует принимать меньшее из значений, полученных при расчёте по формулам (3.50) и (3.51).

После определения массовой производительности уточняют значение коэффициента заполнения барабана γ

$$\gamma = \frac{m_H \cdot \tau}{V \cdot \rho_H} = \frac{4 \cdot m_H \cdot \tau}{\pi \cdot D^2 \cdot L \cdot \rho_H}, \quad (3.53)$$

где V – объём барабана, м³.

Для расчёта длины и диаметра барабана можно использовать эмпирические зависимости, полученные в результате анализа работы большого количества промышленных печей [89, 90]

$$L = 25,9 \cdot M^{0,447}, D = 1,82 \cdot M^{0,340}, \quad (3.54)$$

где M – суточная производительность печи по исходному продукту, т/сут.

После определения геометрических размеров аппарата определяют площадь нагрева $F = \pi \cdot D \cdot L$ и проверяют количество твёрдого материала, уносимого газами m_y , кг/с

$$m_y = 0,7833 \cdot D^2 (1 - \gamma) \cdot W_G \cdot \rho_{II}, \quad (3.55)$$

где $W_G = V_G / S$ – скорость газового потока, м/с;

V_G – объём газа, поступающего в аппарат или образующегося в результате сублимации, м³/с;

S – площадь поперечного сечения аппарата, м²;

ρ_{II} – концентрация твёрдых частиц в газе, кг/м³.

Для определения ρ_{II} можно использовать выражение

$$\rho_{II} = K \cdot \rho_G \cdot \left(\frac{W_G^2}{g \cdot D} \right)^{0,75} \cdot \left(\frac{W_G \cdot \nu \cdot \rho_G}{g \cdot d^2 \cdot \rho_T} \right)^{1,5}, \quad (3.56)$$

где ρ_T, ρ_G – плотности газа и твёрдого материала, соответственно, кг/м³;

ν – кинематическая вязкость газа, м²/с;

d – диаметр твёрдых частиц, м;

g – ускорение свободного падения, м/с²;

$K = (0,2-0,5)$ – коэффициент, учитывающий разброс частиц по фракциям и размерам.

Во избежание больших потерь с пылью скорость газов, с учётом того их количества, которое поглощается или выделяется в процессе сублимации-десублимации, а также с учётом температурного расширения, следует принимать на выходе из печи не более 2 м/с.

По скорости газов в аппарате можно проверить достаточность объёма аппарата по формуле

$$V = \frac{\pi \cdot D^2}{4} \cdot (1 - \gamma) \cdot W_{\Gamma}. \quad (3.57)$$

После окончательного принятия геометрических размеров трубчатого аппарата рассчитывают мощность привода N , кВт, необходимую для вращения барабана

$$N = 0,0013 \cdot D^3 \cdot L \cdot \rho_H \cdot \gamma. \quad (3.58)$$

3.2.1.1 Расчёт мощности нагревателя

Общую потребную мощность нагревателя для непрерывно действующих сублимационных аппаратов определяют из общего уравнения теплового баланса (3.35).

Полезную мощность нагревателя $P_{пол}$, Вт, для непрерывно действующих аппаратов определяют по формуле

$$P_{пол} = c_c \cdot m_z \cdot (t_K - t_0) + m_c \cdot \Delta H, \quad (3.59)$$

где m_z , m_c – производительности сублиматора по исходному материалу и десублимату, соответственно, кг/с;

c_c – средняя теплоёмкость исходного материала, Дж/(кг·К).

Мощность, затраченную на нагрев вспомогательных устройств, для непрерывно действующих аппаратов принимают равной нулю, т.е. $P_{всп} = 0$.

Тепловые потери и установленную мощность для непрерывно действующих аппаратов, как и для периодических аппаратов, определяют по уравнениям (3.34), (3.37), (3.39)-(3.42).

3.3 Расчёт шнековых аппаратов

Для расчёта камеру сублимации (см. рисунок 2.14) условно можно разделить на две зоны. В первой зоне по ходу продвижения сублимируемого продукта шнеком происходит непрерывное изменение его температуры и температуры инертного газа-носителя до температуры сублимации

при сохранении агрегатного твёрдого продукта. Во второй зоне продукт, достигнув температуры сублимации, интенсивно переходит в парообразное состояние. Образующиеся пары отводятся с сублимирующей поверхности потоком инертного газа, который имеет ту же температуру, что и продукт.

3.3.1 Математическое моделирование зоны нагрева

Расчёт проводят для элементарного объёма мелкодисперсного продукта, который располагается в корпусе аппарата между двумя соседними витками шнека, в виде цилиндрического клина, показанного на рисунке 3.1.

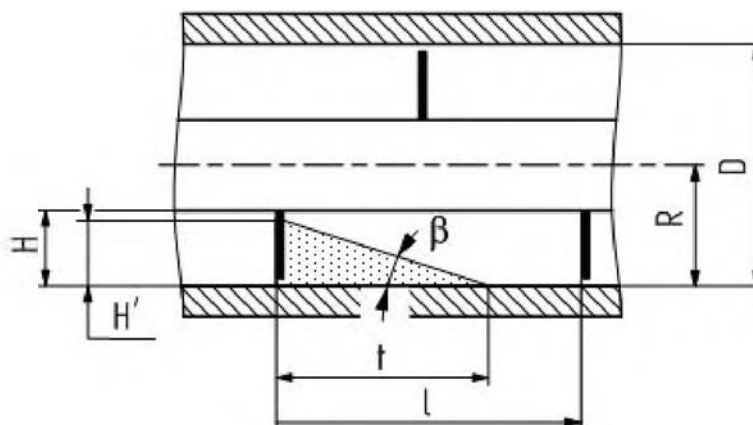


Рисунок 3.1 – Схема расчётного элементарного объёма сублиматора

Количество тепла, накопленного газовой фазой за время dt , будет определяться тепловым потоком, полученным от стенки сублиматора и интенсивностью теплоотдачи от газа-носителя к продукту согласно уравнению

$$L_{\Gamma} \cdot C_{\Gamma} \cdot \frac{dT}{dt} = \alpha_T \cdot F_{\Gamma} \cdot (T_{CT} - T) - \alpha_{\Gamma T} \cdot F_{\Gamma T} \cdot (T - \theta), \quad (3.60)$$

где L_{Γ} – масса инертного газа в элементарном объёме, кг;

C_{Γ} – теплоёмкость инертного газа, Дж/(кг·К);

α_{Γ} – коэффициент теплоотдачи от стенки сублиматора к газовому потоку, Вт/(м²·К);

F_{Γ} – площадь контакта газового потока со стенкой сублиматора, м²;

T_{CT} – температура стенки сублиматора, К;

T – температура газа, К;

$\alpha_{\Gamma T}$ – коэффициент теплоотдачи от газа к тетрафториду циркония, Вт/(м²·К);

$F_{\Gamma T}$ – площадь контакта газового потока и тетрафторида циркония, м²;

θ – температура продукта, К.

Количество тепла, накопленного продуктом, находящимся в элементарном объёме, за тот же период времени dt определяется тепловыми потоками от газовой среды и от стенки сублиматора

$$G_T \cdot C_T \cdot \frac{d\theta}{dt} = \alpha_{\Gamma T} \cdot F_{\Gamma T} \cdot (T - \theta) + \alpha_T \cdot F_T \cdot (T_{CT} - \theta), \quad (3.61)$$

где G_T – масса тетрафторида циркония в элементарном объёме, кг;

C_T – теплоёмкость тетрафторида циркония, Дж/(кг·К);

α_T – коэффициент теплоотдачи от стенки сублиматора к тетрафториду циркония, Вт/(м²·К);

F_T – площадь контакта ТФЦ со стенкой сублиматора, м².

Температуры инертного газа-носителя и продукта определяют решением совместно уравнений (3.60) и (3.61). Для этого разбивают первую зону на n участков длиной l , равной шагу витков шнека (см. рисунок 3.1). Допустим, что на элементарном участке за время Δt температура газа изменится на температуру ΔT , а температура продукта – на $\Delta \theta$. Тогда уравнения (3.60) и (3.61) примут вид

$$L_{\Gamma} \cdot C_{\Gamma} \cdot \frac{\Delta T}{\Delta t} = \alpha_T \cdot F_{\Gamma} \cdot (T_{CT} - T) - \alpha_{\Gamma T} \cdot F_{\Gamma T} \cdot (T - \theta) \quad (3.62)$$

$$G_T \cdot C_T \cdot \frac{\Delta \theta}{\Delta t} = \alpha_{\Gamma T} \cdot F_{\Gamma T} \cdot (T - \theta) + \alpha_T \cdot F_T \cdot (T_{CT} - \theta) \quad (3.63)$$

Решение этих уравнений возможно шаговым методом, принимая за шаг время Δt . Продолжительность пребывания инертного газа и продукта на элементарном участке определяется их скоростями. Общее время пребывания этих веществ определяется суммированием продолжительностей пребывания их на элементарных участках.

Для газа-носителя

$$\tau' = \sum_0^L \frac{l}{W_i} \quad (3.64)$$

где L – длина первой зоны сублиматора, м;

W_i – скорость газа на элементарном участке, м/с.

Для продукта

$$\tau'' = \tau \cdot \frac{L}{Z \cdot S_K} \quad (3.65)$$

где τ – время одного оборота шнека, с;

S_K – путь, пройденный частицей ТФЦ за один оборот шнека, м;

L – длина шнека, м;

Z – количество заходов шнека.

Площади контакта между продуктом и газом F_{IT} , между газом и стенкой сублиматора F_I и между продуктом и стенкой сублиматора F_T определяют по формулам

$$F_{IT} = \left[R^2 \cdot \arccos \frac{R-H}{R} - (R-H) \cdot \sqrt{2RH - H^2} \right] \cdot \frac{1}{\cos(90 - \beta)}, \quad (3.66)$$

$$F_T = 2R^2 \cdot \operatorname{tg}(90 - \beta) \cdot \left(\sqrt{\left(2 - \frac{H}{R}\right) \cdot \frac{H}{R}} - \left(1 - \frac{H}{R}\right) \cdot \arccos \frac{R-H}{R} \right), \quad (3.67)$$

$$F_I = 2\pi \cdot R \cdot l - F_T, \quad (3.68)$$

где R – внутренний радиус корпуса сублиматора, м;

H – высота слоя элемента продукта, м;

β – угол естественного откоса продукта, град.

Для решения уравнений (3.62) и (3.63) необходимо знать величину коэффициентов теплоотдачи α_G , α_{TG} , α_T . Их определяют допуская, что за

время между двумя ворошениями Δt тетрафторид циркония находится в покое, а скорость инертного газа W_i имеет постоянное значение по длине всего элементарного объёма.

Массовые расходы инертного газа L_G и продукта G_T определяются из материального баланса с учётом заданной производительности аппарата и степени сублимации ТФЦ. Значения температур инертного газа и тетрафторида циркония в конце первой зоны сублиматора являются начальными условиями для расчёта второй зоны аппарата.

3.3.2 Математическое моделирование зоны сублимации

Во второй зоне сублиматора происходит основной процесс – сублимация продукта. Математическая модель этой зоны имеет более сложный характер вследствие наложения на тепловой процесс массообменного процесса. Частицы продукта, предварительно нагретые в первой зоне до температуры сублимации, порциями поступает во вторую зону. Каждая порция тетрафторида циркония имеет форму цилиндрического клина и расположена между витками шнека. Во второй зоне начинается сублимация продукта с поверхности его частиц, которая приводит к уменьшению их линейных размеров. Можно принять, что сублимация происходит со всей поверхности частиц дисперсного продукта, так как каждая порция прогрета по всему объёму благодаря перемешиванию шнеком.

Надёжный расчёт массообмена затруднён не только сложным характером массообмена, но и трудностью расчёта суммарной поверхности сублимации из-за полидисперсности исходного гранулометрического состава продукта и различной скорости уменьшения линейных размеров частиц с различным диаметром.

Анализ настоящей ситуации показывает, что расчёт процесса сублимации невозможен без знания пофракционной массы всего элемента слоя.

Масса сублимирующегося элемента слоя будет определяться заданной производительностью, степенью заполнения аппарата и временем пребывания (определённой интенсивностью процесса сублимации) в нём частиц продукта различных по размерам, начиная от момента попадания их во вторую зону и до полной сублимации.

Среднее время пребывания продукта зависит от температуры инертного газа-носителя и стенки корпуса аппарата, от величины коэффициентов тепло- и массообмена в потоке инертного газа.

Обозначив производительность шнекового аппарата по продукту через q_{np} и считая эту величину заданной, получим, что элемент слоя в аппарате имеет массу

$$G_T = \frac{q_{np}}{N}, \quad (3.69)$$

где N – количество элементов слоя во второй зоне аппарата.

Изменение массы выбранного элемента слоя за время dt , равно

$$\frac{dG_T}{dt} = \frac{q_{np}}{N} - G_{исп}, \quad (3.70)$$

где $G_{исп}$ – количество продукта, испарившегося за время dt , кг.

Из формулы (3.70) следует, что изменение массы элемента слоя можно определить, зная количество испарившегося тетрафторида циркония за время dt . Для расчёта за время dt удобнее принять промежуток, равный времени вращения одного оборота шнека. Периодически, через интервал времени Δt , весь элемент слоя продукта подвергается перемешиванию с одновременным перемещением вдоль оси аппарата. Между перемешиваниями продукт находится в покое на теплоподводящей поверхности и на этой поверхности оседают несублимирующиеся примеси в виде рыхлого шлака. В конце каждого периода времени Δt осевший шлак равномерно перемешивается с находящимся над ним слоем продукта. Процесс смешивания шлака с продуктом повторяется при каждом обороте шнека, изменяя соотношение содержания в элементе шлака и продукта, до полной субли-

мации продукта из элемента. Для неподвижного продукта массу продукта, сублимируемого с единицы поверхности слоя, определяем по формуле [46]

$$m = M_{CO} \cdot \left[1 - \left(1 - \frac{\tau}{2M_{CO}} \cdot \sqrt{\frac{A}{\Delta t}} \right)^2 \right], \quad (3.71)$$

где

$$A = \frac{2 \cdot (T_W - T_S) \cdot \lambda_P \cdot \rho_P \cdot q_0}{\Delta H}; \quad (3.72)$$

$$\tau = \frac{L}{\omega \cdot l}; \quad \Delta t = \frac{t}{\omega \cdot l} = \frac{H \cdot \operatorname{ctg} \beta}{\omega \cdot l}; \quad (3.73)$$

$$M_{CO} = \frac{g_0 \cdot M_0}{1 + g_0}; \quad M_O = \frac{v \cdot \rho}{F_T}; \quad (3.74)$$

$$g_0 = \frac{m_C}{m_P}, \quad (3.75)$$

где g_0 – относительное содержание сублимата и примесей в неочищенном продукте;

m_C – масса сублимата, кг/м²;

m_P – масса рыхлого шлака, кг/м²;

M_{CO} – масса ТФЦ в неочищенном материале в начальный момент времени, кг/м²;

M_O – масса продукта в неочищенном материале в текущий момент времени, кг/м²;

v – объём элемента слоя, м³;

F_T – площадь контакта элемента слоя продукта с греющей поверхностью, м²;

ρ – насыпная плотность исходного продукта, кг/м³;

L – длина зоны сублимации, м;

t – длина элемента слоя ТФЦ, м (см. рисунок 1.35);

l – шаг ленты шнека, м;

ω – частота вращения шнека, с⁻¹;

H – высота элемента слоя продукта, м;

β – угол естественного откоса продукта, град;

τ – время сублимации, с;

dt – время одного цикла сублимации, с;

T_W – температура греющей поверхности, К;

T_S – температура сублимации, К;

λ_p – коэффициент теплопроводности рыхлого шлака, Вт/(м·К);

ρ_p – плотность рыхлого шлака, кг/м³;

ΔH – теплота сублимации продукта, Дж/кг.

Формула (3.71) позволяет определить количество продукта, сублимируемого с единицы поверхности слоя. Поэтому для определения скорости сублимации необходимо знать, в первую очередь, экстенсивную характеристику – поверхность сублимации, которая меняется в следствие уменьшения массы продукта в зоне сублимации и интенсивную характеристику – разность давлений насыщенных паров над поверхностью сублимации и парциальных паров в атмосфере инертного газа-носителя, зависящую от расхода и температуры газа-носителя.

Площадь поверхности сублимации определяем как сумму площадей всех частиц [91]

$$F_r = 4\pi \cdot [(r_{01})^2 \cdot N_1 + (r_{02})^2 \cdot N_2 + \dots + (r_{0n})^2 \cdot N_n]. \quad (3.76)$$

Массы отдельных частиц каждой фракции в исходном продукте определяем по формуле

$$m_n = \frac{3}{4} \cdot \pi \cdot (r_{0n})^3 \cdot \rho_{T.\Phi.}, \quad (3.77)$$

а количество частиц каждой фракции по формуле

$$N_n = \frac{G_T \cdot f_{0n}(r)}{m_n \cdot \rho_{T.\Phi.}}, \quad (3.78)$$

где $f_{0n}(r)$ – массовые доли частиц продукта, доли;

$\rho_{T.\Phi.}$ – плотность частиц продукта, кг/м³.

Кинетика сублимации дисперсного материала в потоке газовой фазы в выбранном элементарном объёме сублиматора (см. рис. 3.1) описывается уравнением массоотдачи [91]

$$J = \frac{dG_r}{d\tau} = \frac{\beta}{R_n \cdot T} \cdot (P_H - P_{II}) \cdot F_r(r), \quad (3.79)$$

где β – коэффициент массоотдачи, м/с;

R_n – газовая постоянная для пара, Дж/(кг·К);

T – температура газа-носителя, К;

P_H – давление пара ТФЦ над поверхностью частиц, Па;

P_{II} – давление пара ТФЦ в атмосфере газа, Па;

$F_r(r)$ – площадь поверхности частиц, м².

В уравнение (3.79) входят неизвестные величины: движущая сила ($\Delta P = P_H - P_{II}$), поверхность сублимации и коэффициент массоотдачи. Для расчёта поверхности сублимации необходимо учитывать изменение линейных размеров частиц продукта вследствие сублимации. При расчёте радиуса частиц продукта принимаем, что всё тепло, подведённое к массе твёрдой фазы, идёт на парообразование. Тепловой баланс на границе раздела фаз записывается в следующем виде

$$G_{уч} \cdot \Delta H = [\alpha_{IT}(r) \cdot F_r(r) \cdot (T - \Theta) + \Theta_M] \cdot \Delta \tau, \quad (3.80)$$

где Θ_M – тепло, получаемое тетрафторидом циркония за счёт конвективного теплоподвода от потока газа.

Условно можно принять, что все частицы продукта имеют шарообразную форму, тогда уравнение (3.80) примет вид

$$\begin{aligned} \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot (r_{in})^3 \cdot \rho_{TF} \cdot N_n \cdot \Delta H - \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot (r_{in+1})^3 \cdot \rho_{TF} \cdot N_n \cdot \Delta H = \\ = [\alpha_{IT}(r) \cdot F_r(r) \cdot (T - \Theta) + \Theta_M] \cdot \Delta \tau \end{aligned} \quad (3.81)$$

и решая его относительно r_{in+1} , получим

$$r_{in+1} = \sqrt[3]{(r_{in})^3 - \frac{3}{4} \cdot \frac{[\alpha_{IT}(r) \cdot F_r(r) \cdot (T - \Theta) + \Theta_M] \cdot \Delta \tau}{\pi \cdot \rho_{TF} \cdot N_n \cdot \Delta H}}. \quad (3.82)$$

Паросодержание в выбранном элементарном объёме сублиматора с поверхности, определяемой массой материала и гранулометрическим составом, определится по формуле

$$\lambda = \frac{J \cdot \Delta \tau}{L_{\Gamma}}, \quad (3.83)$$

где L_{Γ} – масса газовой фазы в элементарном объёме, кг.

Коэффициент массоотдачи определяем из критериальных уравнений. Уравнений, описывающих условия массоотдачи для сублимационных аппаратов с активными газовыми потоками, нет, но для расчёта можно использовать уравнения, описывающие аналогичные процессы в вихревых сушильных аппаратах. Обобщённое уравнение по массообмену, пригодное для инженерной практики имеет вид [92]

$$Nu = 2 + 0,51 \cdot Re^{0,52} \cdot Pr^{0,33}$$

Коэффициент теплоотдачи α_T определяем из уравнения [93]

$$\alpha_T = \frac{Ki \cdot \lambda}{d_{cp}}, \quad (3.84)$$

где λ – теплопроводность продукта, Вт/(кг·К);

d_{cp} – средний диаметр частиц продукта, м;

Ki – критерий Кирпичёва, равный

$$Ki = 2,63 \cdot 10^{-5} \cdot Fo^{-1,8} \cdot \xi^{0,51} \cdot \left(\frac{b}{d_{cp}}\right)^{2,9};$$

Fo – критерий Фурье, равный

$$Fo = \frac{a \cdot \tau_1}{d_{cp}^2};$$

ξ – комплекс, характеризующий толщину слоя материала в аппарате

$$\xi = \frac{m_M}{\rho \cdot \omega \cdot Z \cdot D^3};$$

ω – угловая скорость шнека, с⁻¹;

τ_1 – время взаимодействия частиц материала с греющей поверхностью,

с;

a – температуропроводность продукта, м²/с;

b – высота витков шнека, м;

D – внутренний диаметр аппарата, м;

Z – число заходов витков шнека;

m_M – массовый расход материала, кг/с.

Основными уравнениями математической модели процесса сублимации во второй зоне шнекового сублиматора являются уравнения (3.70)-(3.80), (3.82) и (3.83).

3.3.3 Пример расчёта сублиматора шнекового типа

Экспериментальные исследования с тетрафторидом циркония (ТФЦ) показали, что на переход продукта в сублимированное состояние в аппарате шнекового типа оказывают влияние многие технологические параметры: соотношение газовой и твёрдой фаз, размеры частиц ТФЦ, начальные температуры и физико-химические характеристики веществ и т.д.

Большинство из этих факторов учтены в математической модели, описывающей процесс сублимации. Поэтому эта модель была принята за основу инженерного метода расчёта сублиматоров шнекового типа.

Исходными данными для инженерного расчёта являются следующие параметры:

- расход тетрафторида циркония;
- температуры ТФЦ и инертного газа на входе в аппарат;
- гранулометрический состав ТФЦ;
- физико-химические свойства ТФЦ и инертного газа;
- скорость вращения шнека;
- температура стенки корпуса сублиматора.

Кроме того, необходимо провести предварительный конструктивный расчёт аппарата для выполнения рекомендаций, полученных из экспериментальных исследований сублимации ТФЦ:

1) обеспечить степень заполнения аппарата около 35%. При этом желательно использование ленточного шнека с высотой ленты больше высо-

ты засыпки, что позволит получать более интенсивное перемешивание ТФЦ на греющей поверхности. Также с целью более полного перемешивания желательно иметь увеличенное расстояние между витками шнека в осевом направлении. Чтобы не происходило сокращения времени пребывания в аппарате ТФЦ, шаг шнека должен иметь величину, при которой угол подъёма винтовой линии витка находился в пределах [93]

$$0 < \beta < \nu,$$

где ν – угол трения между частицами и витком шнека;

β – угол наклона витка шнека к образующей корпуса шнека;

$(90 - \beta)$ – угол подъёма винтовой линии.

2) обеспечить время взаимодействия частиц ТФЦ с теплообменной поверхностью в пределах (0,01-0,4) секунды [94]. При этом существует рекомендация [95], что частоту вращения шнека выбирают в диапазоне (3,14-10,5) рад/с (30-100 об/мин). Учесть эти рекомендации можно изменяя число заходов шнека.

Предлагаемая методика расчёта была проверена применительно к сублимационному аппарату шнекового типа, показанного на рис.2.14. Для ускорения расчёта использовали ПЭВМ. Блок-схема алгоритма расчёта показана в приложении К, а вся программа приводится в работе [56]. Исходные данные для расчёта приведены в таблице 3.1, а результаты расчёта – в таблице 3.2.

Таблица 3.1 – Исходные данные для расчёта шнекового сублиматора

Наименование параметра	Значение параметра
Внутренний диаметр корпуса, м	0,050
Наружный диаметр вала шнека, м	0,022
Шаг витков шнека, м	0,040
Коэффициент полезного действия шнека	0,90
Скорость вращения шнека, с ⁻¹	0,167
Температура стенки корпуса аппарата, К	1225
Степень заполнения аппарата, доли	0,32

Окончание таблицы 3.1

Наименование параметра	Значение параметра
Угол естественного откоса ТФЦ, град	34
Массовый расход ТФЦ, кг/с	0,0091
Порозность ТФЦ	0,525
Средний размер частиц ТФЦ, м	0,00012
Степень сублимации, доли	0,92
Теплоёмкость ТФЦ, Дж/(кг·К)	620,4
Начальная температура ТФЦ, К	293
Насыпная плотность, кг/м ³	2175
Теплота сублимации, Дж/кг	1293500
Температуропроводность ТФЦ, м ² /с	$1,912 \cdot 10^{-7}$
Теплопроводность ТФЦ, Вт/(м·К)	0,258
Температура сублимации, К	1181
Степень черноты ТФЦ, доли	0,332
Содержание примесей в исходном ТФЦ, доли	0,02
Относительное движение фаз	противоток
Скорость инертного газа в аппарате, м/с	0,076
Плотность газа (азот) при нормальных условиях, кг/м ³	1,25
Динамический коэффициент вязкости газа при н.у., Па·с	$17 \cdot 10^{-6}$
Теплопроводность газа при н.у., Вт/(м·К)	0,0233
Теплоёмкость газа при н.у., Дж/(кг·К)	1038,9
Начальная температура газа, К	293

Таблица 3.2 – Результаты расчёта

Наименование параметра	Значение параметра
Длина зоны нагрева, м	0,161
Длина зоны сублимации, м	0,206
Скорость сублимации, кг/(м ² ·час)	8,82
Время сублимации, с	51,5
Производительность установки, кг/час	39,61

Результаты расчёта сравнили с результатами экспериментов на лабораторной установке со шнековым сублиматором. Получили, что удельная скорость сублимации, т.е. отнесённая к единице поверхности слоя ТФЦ, по результатам эксперимента, составляет 8,35 кг/(м²·час), а рассчитанная по составленной методике – 8,82 кг/(м²·час). Расхождение результатов соста-

вило 6%, что является допустимой погрешностью для технических расчётов.

3.4 Расчёт электронагревателей

Для расчёта электронагревателей исходными данными являются:

- установленная мощность печи W_y , кВт;
- напряжение сети, к которой подключается печь U , В;
- максимальная температура нагрева материала t_H , К;
- сведения о взаимном расположении нагревательных элементов и материала в печи, которыми определяется характер теплоотдачи от нагревателей к материалу;
- величина удельных тепловых потерь в зоне размещения нагревательных элементов $q_{ном}$, кВт/м².

Существует два метода расчёта электронагревателей [96, 97].

1) Первый метод заключается в том, что по известным исходным данным определяют размер поперечного сечения, а затем длину нагревателя.

Для определения диаметра нагревателей d , м, имеющих круглое поперечное сечение, можно использовать формулу [97]

$$d = 1 \cdot 10^{-3} \sqrt[3]{\frac{4 \cdot 10^5 \cdot \rho_t \cdot P_\Phi^2}{\pi^2 \cdot U_\Phi^2 \cdot w_D}}, \quad (3.85)$$

для нагревателя прямоугольного сечения, толщина нагревателя a , мм, равна

$$a = 1 \cdot 10^{-3} \sqrt[3]{\frac{10^5 \cdot \rho_t \cdot P_\Phi^2}{2 \cdot m \cdot (m+1) \cdot U_\Phi^2 \cdot w_D}}, \quad (3.86)$$

где m – отношение ширины к толщине прямоугольного сечения;

ρ_t – удельное электрическое сопротивление материала при рабочей температуре, Ом·мм²/м;

$P_{\phi} = W_Y / n$ – расчётная мощность нагревателя на одну фазу, кВт;

n – количество фаз;

$U_{\phi} = \frac{U_L}{\sqrt{3}}$ – расчётное напряжение печи на фазу, В, при подключении

нагревателей звездой; при подключении нагревателей треугольником $U_{\phi} = U_L$;

U_L – линейное напряжение сети, В;

$w_D = w_{\text{эфф}} \cdot \alpha_{\text{эфф}}$ – допустимая удельная поверхностная нагрузка нагревателя, Вт/см²;

$w_{\text{эфф}}$ – эффективная удельная поверхностная мощность нагревателя, Вт/см², равная

$$w_{\text{эфф}} = 1 \cdot 10^{-4} \cdot C_{\text{пр}} \cdot \left[\left(\frac{T_1}{100} \right)^4 - \left(\frac{T_2}{100} \right)^4 \right],$$

$C_{\text{пр}}$ – приведённый коэффициент излучения, равный 4,66 Вт/(м²·К⁴);

T_1 – абсолютная температура нагревателя, К;

T_2 – абсолютная температура тепловоспринимающей поверхности, К;

$\alpha_{\text{эфф}} = F_{\text{эфф}} / F$ – коэффициент эффективности излучения нагревателя;

$F_{\text{эфф}}$ – эффективная поверхность нагревателя, м²;

F – полная поверхность нагревателя, м².

Истинное значение $\alpha_{\text{эфф}}$ определяют только после установления конкретных размеров нагревателя с учётом особенностей его конструктивного исполнения.

Для предварительных расчётов используют следующие значения коэффициента эффективности излучения:

- проволочные спирали, полузакрытые в пазах футеровки – 0,16-0,24;
- проволочные спирали на полочках и трубах – 0,30-0,36;
- проволочные зигзагообразные (стержневые) нагреватели – 0,60-0,72.

Рекомендуемые значения $\alpha_{\text{эфф}}$ относятся к плотному размещению нагревателей для обеспечения максимальной мощности на один квадратный метр внутренней поверхности печной камеры. Значения эффективной удельной поверхностной мощности $w_{\text{эфф}}$ приведены в приложении Л.

Чтобы убедиться в правильности принятой в расчёте величины удельной поверхностной нагрузки нагревателя, w_d , после выбора конструктивных размеров нагревателя необходимо проверить фактическую величину $\alpha_{\text{эфф}}$ или $F_{\text{эфф}}$.

После определения диаметра нагревателя d , последовательно определяют площадь поперечного сечения нагревателя $s = \pi \cdot d^2 / 4$, сопротивление нагревателя на одну фазу $R = U_{\phi}^2 / P_{\phi}$, длину нагревателя на одну фазу $L = R \cdot s / \rho$, поверхность нагревателя на одной фазе $F_H = \pi \cdot d \cdot L$, фактическую удельную поверхностную нагрузку нагревателя $w_{\phi} = P_{\phi} / F_H$.

В заключении проверяют возможность размещения нагревателя на известной площади поверхности печи. Для этого, предварительно задают средний диаметр спирали $D = 10 \cdot d$ с шагом распределения витков $\delta = 110$ мм и определяют суммарную длину оси спирали $L_{\text{СП}}$, м, которую надо разместить на стене

$$L_{\text{СП}} = \frac{F_{\text{СТ}}}{\delta} = \frac{h \cdot b}{\delta}, \quad (3.87)$$

где $F_{\text{СТ}}$ – площадь обогреваемой поверхности печи (аппарата), м²;

b, h – длина и высота обогреваемой площади печи, м.

Длину одного развёрнутого витка спирали определяют по формуле $l = \pi \cdot D$, суммарное число витков спиралей для всех фаз: $N = 3 \cdot L_{\text{СП}} / l$, шаг витка спирали: $t = L_{\text{СП}} / N$.

По соображениям эксплуатационной надёжности для нагревателей высокотемпературных (700 °С и выше) промышленных электрических печей сопротивления рекомендуют принимать проволоку диаметром не менее 5 мм и ленту толщиной не менее 2 мм. Неудовлетворительная работа нагревательных элементов с малыми размерами поперечного сечения объ-

ясняется местными перегревами, приводящих к быстрому выходу нагревателя из строя. Нагревательный сплав практически всегда имеет в отдельных участках неувимые при внешнем осмотре и не являющиеся основанием для браковки изъяны в сплошности поперечного сечения. Даже незначительное уменьшение поперечного сечения приводит к местному повышению плотности тока, следствием чего является повышение температуры в отдельных сечениях нагревателя. Другой причиной местных перегревов нагревателя является его соприкосновение с опорными устройствами, поддерживающими нагреватель. Третьим источником местных перегревов является неодинаковое расстояние между отдельными витками, неизбежное как условиями изготовления и монтажа нагревателей, так и из-за коробления нагревателей в результате нагрева. Все указанные причины местных перегревов нагревателей имеют место при любом сечении нагревателей, но их вредное влияние оказывается значительно меньше при больших сечениях.

2) Второй метод расчёта нагревателей заключается в том, что задают размер поперечного сечения нагревателя, определяют его длину и проверяют величину удельной поверхностной мощности для принятого сечения. Если получили, что удельная поверхностная мощность существенно отличается от допустимой (особенно в большую сторону), то изменяют поперечное сечение нагревателя или расчётное напряжение за счёт пересмотра схемы включения и повторяют расчёт нагревателя. При кажущейся на первый взгляд сложности способа он оказывается вполне целесообразным для практических расчётов промышленных электрических печей сопротивления.

Расчёт электронагревателей ведут при отсутствии стандартных ТЭНов или невозможности использования последних из-за конструктивных особенностей аппарата. Более предпочтительно использовать стандартные ТЭНы, тогда их расчёт будет состоять из следующих этапов

- определяют количество и мощность нагревателей по необходимой мощности, определённой из теплового расчёта;
- определяют габаритные, присоединительные и установочные размеры выбранных ТЭНов, используя каталоги и другую нормативно-техническую документацию [97-100].

4 Расчёт десублимационных аппаратов

В данной главе рассмотрены общая методика расчёта поверхностных десублиматоров с и методики расчёта десублимационных аппаратов с различными конструкциями и способами организации десублимации:

- поверхностная десублимация в горизонтальном кольцевом аппарате;
- поверхностная десублимация в вертикальном кольцевом аппарате;
- аппарат с объёмной десублимацией.

4.1 Методика расчёта поверхностного десублиматора

Поверхностные десублиматоры могут быть периодического или непрерывного действия, что определяется конструкцией аппарата и способом удаления образующегося слоя десублимата. К аппаратам непрерывного действия относятся десублиматоры с движущейся насадкой, с псевдооживленным слоем и с непрерывным удалением слоя десублимата со стенок аппарата различными способами.

При расчёте десублиматоров определяют площадь требуемой поверхности десублиматора и количество теплоты, отводимого от десублимирующегося продукта.

Площадь поверхности десублиматора рассчитывают из условия вместимости десублимата либо во всём десублиматоре (если десублимационная часть аппарата расположена в отдельном корпусе), либо в свободном пространстве между сублимационной и десублимационной частями аппарата (если эти части находятся в одном корпусе).

Перед определением площади поверхности десублиматора необходимо определиться геометрической формой десублиматора. Исходя из конструктивных соображений, поверхность десублимации может иметь

форму цилиндра, усечённого конуса, конуса, гофрированного цилиндра и др.

Для принятой геометрической формы десублиматора рассчитывают требуемую площадь поверхности. Например, для десублиматора в форме полого цилиндра с десублимацией на наружной поверхности, уравнение материального баланса для периодически действующего аппарата имеет вид

$$M_{\partial} = \alpha \cdot m_n = \frac{\pi}{4 \cdot \xi} \cdot (D_{\partial}^2 - D_{\kappa}^2) \cdot H_{\kappa} \cdot \rho_{\partial}, \quad (4.1)$$

где M_{∂} – общая масса десублимата, кг;

α – заданная степень сублимации исходного продукта, доли;

m_n – исходная загрузка сублимируемого материала, кг;

ξ – коэффициент, учитывающий возможную волнообразность формы внутренней структуры десублимата, вызванную неравномерностью потока парогазовой смеси в аппарате. Значение коэффициента определено экспериментально и составляет $1,2 \leq \xi \leq 2,0$ [82];

D_{∂} – максимальный наружный диаметр десублимата, м;

D_{κ} – наружный диаметр десублиматора (конденсатора), м;

H_{κ} – высота десублиматора (конденсатора), м;

ρ_{∂} – плотность десублимата, кг/м³.

Для непрерывно действующих аппаратов уравнение (4.36) примет вид

$$M_{\partial} = m_{\partial} \cdot \Delta \tau = \frac{\pi}{4 \cdot \xi} \cdot (D_{\partial}^2 - D_{\kappa}^2) \cdot H_{\kappa} \cdot \rho_{\partial}, \quad (4.2)$$

где m_{∂} – производительность аппарата по десублимату, кг/с;

$\Delta \tau$ – время между двумя соседними циклами удаления десублимата с поверхности десублиматора, с, причём, если удаление десублимата происходит непрерывно, то принимают $\Delta \tau = 1$.

При определении площади десублиматора целесообразно принимать максимальную степень сублимации $\alpha = 1$ и величину коэффициента $\xi = 2$. Тогда из уравнений (4.1), (4.2) имеем

$$D_{\kappa}^2 = D_{\partial}^2 + \frac{8 \cdot M_{\partial}}{\pi \cdot \rho_{\partial} \cdot H_{\kappa}}. \quad (4.3)$$

Диаметр десублимата D_{∂} определяют с учётом теплофизических свойств десублимата и конструктивных особенностей аппарата. При этом должно выполняться условие

$$D_{\partial} = D_c + 2 \cdot \delta, \quad (4.4)$$

где D_c – внутренний диаметр испарителя (сублиматора), м;

δ – минимальный зазор между корпусом аппарата и слоем десублимата, м. Эту величину задают конструктивно, с учётом удобства извлечения из аппарата сублиматора (обычно определяют учитывая опыт эксплуатации аналогичных аппаратов).

Отсюда, величина рабочей поверхности десублиматора F_{κ} будет равна

$$F_{\kappa} = \pi \cdot D_{\kappa} \cdot H_{\kappa} + \frac{\pi \cdot D_{\kappa}^2}{4}. \quad (4.5)$$

Далее расчётным путём проверяют достаточность этой поверхности десублимации с целью обеспечения необходимой скорости десублимации. Уравнение для определения скорости процесса десублимации (конденсации) пара S_{κ} , м³/с, в присутствии неподвижного газа имеет вид [101]

$$S_{\kappa} = A \cdot \frac{M_{CM}}{M_{II}} \cdot \left(\frac{J_{II}}{4} \cdot \bar{C}_{II} + \frac{J_{\Gamma}}{4} \cdot \bar{C}_{\Gamma} \right) \cdot \left(1 - \frac{P_{\kappa}}{P_c} \right) \cdot F_{\kappa} \cdot f, \quad (4.6)$$

где
$$A = \frac{P_c + \sqrt{P_c \cdot P_{\Gamma}}}{P_c};$$

M_{CM} – кажущаяся молекулярная масса смеси, равная

$$M_{CM} = M_{II} \cdot \frac{P_c}{P_c + P_{\Gamma}} + M_{\Gamma} \cdot \frac{P_{\Gamma}}{P_c + P_{\Gamma}};$$

M_{II} – молекулярная масса сублимируемого вещества;

P_C – давление паров вещества при температуре сублимации T_C , Па;

P_G – парциальное давление остаточных газов, Па;

P_K – давление паров вещества при температуре десублимации (конденсации) T_K , Па;

$$J_{II} = \frac{P_C}{P_C + P_G}; J_G = \frac{P_G}{P_C + P_G};$$

$\bar{C}_{II}, \bar{C}_G$ – среднеарифметические скорости молекул пара и неподвижного газа, соответственно, м/с;

$$\bar{C}_{II} = \sqrt{\frac{8 \cdot R \cdot T_C}{\pi \cdot M_{II}}}; \bar{C}_G = \sqrt{\frac{8 \cdot R \cdot T_C}{\pi \cdot M_G}};$$

M_G – молекулярная масса неподвижного газа;

f – коэффициент затвердевания. Величина этого параметра определяется экспериментально и для фторидов металлов равна $1,06 \cdot 10^{-3}$ [101].

При определении скорости сублимации по уравнению (4.6) значения температуры сублимации T_C , парциального давления остаточных газов P_G и молекулярная масса неподвижного газа M_G задаются. Величины давлений P_C и P_K рассчитывают из уравнений зависимости упругости паров соответствующих фторидов от температуры [102].

Для расчёта массовой скорости десублимации v_K , кг/с, можно использовать уравнение состояния газа Менделеева-Клайперона

$$v_K = \frac{P_C \cdot S_K}{R \cdot T_C}, \quad (4.7)$$

После подстановки всех известных величин в уравнения (4.6) и (4.7) определяют массовую скорость десублимации.

Для определения температуры конденсации T_K необходимо решить уравнение теплопередачи от поверхности конденсации к потоку воды или газа, охлаждающему конденсатор

$$q_{KH} + q_{K\partial} + q_{из} + q_n = K \cdot (T_K - T_в) \cdot F_K, \quad (4.8)$$

где $q_{кн}$ – конвективный поток тепла от узла сублимации к поверхности конденсации, Вт;

$q_{кд}$ – теплота конденсации, Вт;

$q_{из}$ – тепло передающееся излучением от узла сублимации к поверхности конденсации, Вт;

q_n – тепло, передаваемое поверхности конденсации парообразным продуктом при его охлаждении до температуры конденсации, Вт;

K – коэффициент теплопередачи, Вт/(м²·К);

$T_{\text{с}}$ – средняя температура хладагента (воды или воздуха), К.

Тепловой поток, передающийся излучением, рассчитывают по формуле

$$q_{из} = C_{np} \cdot \left[\left(\frac{T_c}{100} \right)^4 - \left(\frac{T_k}{100} \right)^4 \right] \cdot F_T, \quad (4.9)$$

где C_{np} – приведённый коэффициент теплопередачи, Вт/(м·К);

$$C_{np} = 5,76 \cdot \left[\frac{1}{\varepsilon_M} + \frac{F_T}{F_K} \cdot \left(\frac{1}{\varepsilon_K} - 1 \right) \right]^{-1}, \quad (4.10)$$

где F_T – площадь излучающих поверхностей, м²;

$\varepsilon_M, \varepsilon_K$ – относительные коэффициенты лучеиспускания материала аппарата (никель) и сублимирующегося вещества, равные $\varepsilon_M = 0,48$ [103], $\varepsilon_K = 0,337$ [70].

Значение коэффициента теплопередачи от поверхности конденсации к потоку охлаждающей воды рассчитывают по уравнению

$$K = \left(\frac{\delta_K}{\lambda_K} + \frac{\delta_M}{\lambda_M} + \frac{1}{\alpha_B} \right)^{-1}, \quad (4.11)$$

где δ_K – средняя толщина десублимата, м;

λ_K – коэффициент теплопроводности сублимирующегося материала, Вт/(м·К). Для фторидов металлов IV группы $\lambda_K = 0,26$ Вт/(м·К) [43];

δ_M – толщина стенки конденсатора, м;

λ_M – коэффициент теплопроводности материала конденсатора, Вт/(м·К);

α_B – коэффициент теплоотдачи от стенки конденсатора к хладагенту, Вт/(м²·К).

Значение α_B зависит от режима движения охлаждающей среды и определяется по критериальным уравнениям конвективного теплообмена [104]. В уравнении (4.8) можно пренебречь слагаемыми $q_{кн}$ и q_n вследствие малости этих величин по сравнению с величинами $q_{кд}$ и $q_{из}$. Тогда, после подстановки $q_{из}$ из уравнения (4.9) в уравнение (4.10) и проведения необходимых преобразований, получим уравнение

$$v_k = \frac{K \cdot (T_k - T_v) \cdot F_k - C_{np} \cdot \left[\left(\frac{T_c}{100} \right)^4 - \left(\frac{T_k}{100} \right)^4 \right] \cdot F_T}{\Delta H}. \quad (4.12)$$

По уравнениям (4.6) – (4.8) и (4.12) методом последовательных приближений определяются значения F_k и v_k .

В заключение расчёта, необходимо сравнить массовую скорость десублимации (v_k) и массовую скорость сублимации (v_c). Если первая больше второй, то расчётное значение площади десублимации (F_k) достаточно для обеспечения проектной производительности аппарата, если нет – то, следует увеличить поверхность десублимации и повторить расчёт до выполнения условия

$$v_c \leq v_k. \quad (4.13)$$

Если десублиматор имеет форму поверхности, которая отличается от цилиндрической, то в этом случае основные расчётные уравнения остаются в силе, а площадь поверхности десублимации определяется по формулам, соответствующим для принятой геометрической формы десублиматора.

4.2 Расчёт десублимации обогащённого гексафторида урана (ГФУ) в горизонтальном кольцевом аппарате

Конструкция аппарата, для которого проводится расчёт, показана на рис. 2.16. Десублимация ГФУ происходит на двух внутренних поверхностях кольцевого корпуса поз. 6, который охлаждается снаружи хладагентом, поступающим в камеру поз.15 для теплоносителя.

4.2.1 Постановка задачи

Задача расчёта заключается в определении массовых, тепловых и гидродинамических потоков внутри аппарата, а сам расчёт состоит из нескольких этапов:

- составление материального баланса аппарата;
- определение коэффициентов тепло- и массопередачи;
- определение времени охлаждения парогазовой смеси от начальной температуры до температуры десублимации ГФУ;
- расчёт массы ГФУ, выделяющейся из газового потока в твёрдую фазу на единицу поверхности десублиматора;
- определение изменений тепло- и гидродинамических потоков внутри аппарата, происходящих за счёт увеличения толщины слоя продукта на его стенках в процессе десублимации.

4.2.2 Материальный расчёт

Материальный расчёт проводится на основе схемы материальных потоков, поступающих в десублиматор и выходящих из него. Результаты этого расчёта используют при тепловом и гидродинамическом расчётах процесса охлаждения парогазовой смеси, содержащей ГФУ.

Парогазовая смесь, выходящая из реактора для фторирования оксидов урана, имеет сложный состав. Вместе с целевым продуктом реакции –

гексафторидом урана – в ней присутствуют избыток фтора и фтороводород. Кроме того, в газовую смесь вместе с фтором и ГФУ попадают примеси, присутствующие в оксидах урана, а также пары образующихся дифторида кислорода (OF_2) и нитроксилфторида (NOF). Учитывая сложность процесса десублимации вообще и гексафторида урана в частности, для упрощения расчёта можно принять некоторые допущения:

- гексафторид урана десублимируется из смеси полностью ($\alpha = 100\%$);
- газообразные фтор, кислород и примеси, содержащиеся в гексафториде урана, не претерпевают химических превращений и остаются в газовой фазе;
- в виду невысокого содержания HF , OF_2 и NOF в парогазовой смеси их концентрации принимаем равным нулю.

Для конкретизации расчёта состава реакционных газов принимаем, что загрузка октооксида триурана (U_3O_8) в реактор фторирования составляет 3,2 кг/ч, а подача газообразного фтора в реактор – 1,57 кг/ч.

Состав парогазовой смеси на входе в десублиматор и после десублиматора, с учётом принятых допущений, приведен в таблице 4.1, а результаты материального баланса десублимации ГФУ показаны в таблице 4.2.

Таблица 4.1 – Состав парогазовой смеси до и после десублимации ГФУ

Компонента газовой смеси	До десублимации M_i		После десублимации M_i	
	% об.	% мас.	% об.	% мас.
Гексафторид урана (UF_6)	34,0	84,2	0	0
Кислород (O_2)	46,0	10,3	70,0	65,3
Фтор (F_2)	20,0	5,5	30,0	34,7

Таблица 4.2 – Материальный баланс процесса десублимации ГФУ

Приход			Расход		
Статьи прихода	кг/ч	% мас.	Статьи расхода	кг/ч	% мас.
1 Газ на входе в десублиматор, в том числе:	4,77	100	1 Твердый продукт (UF_6)	4,02	84,20
UF_6	4,02	84,20	2 Газ на выходе из десублиматора, в том числе:	0,75	15,80
O_2	0,49	10,30	O_2	0,49	10,30
F_2	0,26	5,50	F_2	0,26	5,50
ИТОГО:	4,77	100	ИТОГО:	4,77	100
Примечание – $\rho_{UF_6(z)} = 11,824 \text{ кг/м}^3$; $\rho_{F_2} = 1,275 \text{ кг/м}^3$; $\rho_{O_2} = 1,074 \text{ кг/м}^3$ при $T = 298 \text{ К}$					

4.2.3 Тепловой и гидродинамический расчёты

Расчёт охлаждения парогазовой смеси и десублимации ГФУ проводят в следующем порядке:

- 1) определяют интегральные характеристики парогазовой смеси на входе и выходе десублиматора;
- 2) проводят оценку переноса теплоты для осесимметричной задачи.

Среднюю скорость движения парогазовой смеси, $W_{см}$, м/с, по сечению аппарата, F_k , определяют по формуле

$$W_{см} = \frac{Q_{см}}{F_k}, \quad (4.14)$$

где $Q_{см}$ – объёмный расход газовой смеси, $\text{м}^3/\text{с}$.

Основные критерии теплового и гидродинамического подобия для исходной парогазовой смеси при температуре десублимации – это критерии Рейнольдса Re , Прандтля Pr и Пекле Pe , равные [104, 105]

$$Re = \frac{W_{см} \cdot \rho_{см} \cdot d_{\varnothing}}{\eta_{см}}; \quad (4.15)$$

$$Pr = \frac{c_{p_{см}} \cdot \eta_{см}}{\lambda_{см}}; \quad (4.16)$$

$$Pe = Re \cdot Pr, \quad (4.17)$$

где $\eta_{см}$ – коэффициент вязкости динамический смеси газов, Па·с;

$\lambda_{см}$ – коэффициент теплопроводности смеси газов, Вт/(м·К).

Критерий Нуссельта, Nu , и коэффициент теплоотдачи, $\alpha_{см}$, для ламинарного режима течения парогазовой смеси на входе в аппарат определяют по формулам

$$Nu = 0,66 \cdot Pr^{0,33} \cdot \sqrt{Re}; \quad (4.18)$$

$$\alpha_{см} = \frac{Nu \cdot \lambda_{см}}{d_г}. \quad (4.19)$$

Дифференциальное уравнение переноса теплоты для осесимметричного ламинарного течения имеет вид [106]

$$\frac{\partial T}{\partial \tau} + W \frac{\partial T}{\partial x} = a \cdot \left(\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial T}{\partial r} + \frac{\partial^2 T}{\partial r^2} \right). \quad (4.20)$$

Принимая, что изменение температуры по толщине стенки происходит по линейному закону можно записать, что

$$W = \text{const}, \quad \frac{\partial T}{\partial x} = \frac{T - T_0}{x}, \quad \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} = \frac{T - T_0}{x^2}.$$

Тогда

$$\left(W \frac{\partial T}{\partial x} \right) / \left(a \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} \right) = \frac{W \cdot x}{a} = \frac{W \cdot d_г \cdot \eta}{\eta \cdot a \cdot d_г} = Re \cdot Pr \frac{x}{d_г} = Pe \frac{x}{d_г} \gg 1, \quad (4.21)$$

где a – коэффициент температуропроводности, м²/с;

x – расстояние вдоль продольной оси аппарата, м;

$W \frac{\partial T}{\partial x}$ – конвективный перенос теплоты, К/с;

$a \frac{\partial^2 T}{\partial x^2}$ – диффузионный перенос, К/с.

Проведённая оценка показывает, что отношение конвективного переноса теплоты к переносу теплоты теплопроводностью много больше 1 во всей расчётной области. Поэтому переносом теплового потока вдоль про-

дольной оси (x) за счёт теплопроводности можно пренебречь, по сравнению с переносом конвекцией.

Учитывая соотношение между значениями коэффициентов теплопроводности ($\lambda_{см}$) и теплоотдачи ($\alpha_{см}$), а также геометрические размеры области течения парогазовой смеси, можно сделать допущение о том, что газовый поток в десублиматоре сначала охлаждается до постоянной температуры, равной температуре десублимации ГФУ ($56,5\text{ }^{\circ}\text{C}$), а весь поток тепла, выделяющийся в процессе десублимации, отводится через стенки десублиматора, как показано на рисунке 4.1.

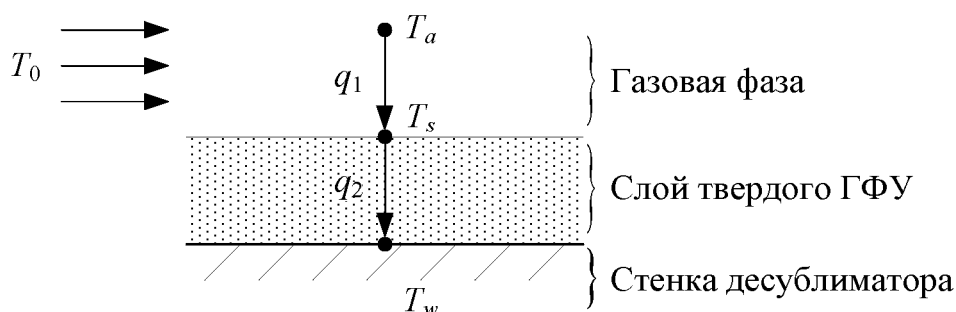


Рисунок 4.1 – Схема тепловых потоков при десублимации ГФУ

Для оценки длины начального участка (зоны охлаждения) парогазовой смеси, l_i , м, используем формулу [107]

$$\frac{l_i}{d_э} = 0,055 \cdot Re, \quad (4.22)$$

где $d_э$ – эквивалентный диаметр кольцевого сечения десублиматора.

Тепловой баланс в системе можно описать уравнением

$$Q = dm \cdot dH = \alpha \cdot dT \cdot dF \cdot d\tau, \quad (4.23)$$

где Q – тепловой поток, кДж;

dH – теплота десублимации ГФУ, кДж/кг;

dF – площадь элементарной ячейки поверхности десублимации, м^2 ,
равная

$$dF = \frac{\pi}{4} \cdot (D_1^2 - D_0^2) \cdot dx, \quad (4.24)$$

dx – приращение длины аппарата, м;

D_1 – внутренний диаметр наружной обечайки корпуса, м;

D_0 – наружный диаметр внутренней обечайки корпуса, м.

Физический смысл уравнения (4.23) состоит в том, что поток теплоты, выделяющейся в результате десублимации ГФУ из парогазовой смеси (левая часть уравнения) равна теплоте, отводимой через охлаждаемые поверхности (правая часть уравнения).

Массу ГФУ, десублимированного из парогазовой смеси, определяют по формуле

$$dm = dV \cdot \rho_{me} = dF \cdot d\delta \cdot \rho_{me}, \quad (4.25)$$

где $d\delta$ – изменение толщины слоя ГФУ на охлаждаемой поверхности десублиматора за время $d\tau$, м;

dV – объём ГФУ, выделившегося в твёрдую фазу, m^3 , равный

$$dV = dF \cdot d\delta. \quad (4.26)$$

Отсюда

$$dH \cdot d\delta \cdot \rho_{me} \cdot dF = \alpha \cdot dT \cdot dF \cdot d\tau, \quad (4.27)$$

$$\frac{dm}{d\tau} = \frac{\alpha \cdot dT \cdot dF}{dH} = \dot{m}, \quad (4.28)$$

$$\frac{\dot{m}}{\rho_{me}} = \dot{V} = dF \cdot \beta = \frac{\alpha \cdot dT \cdot dF}{dH \cdot \rho_{me}}, \quad (4.29)$$

где $\dot{m}$ – скорость выделения массы, кг/с;

$\dot{V}$ – скорость выделения объема ГФУ, $m^3/с$.

Тогда

$$\beta = \frac{d\delta}{d\tau} = \frac{\alpha \cdot dT}{dH \cdot \rho_{me}}, \quad (4.30)$$

где β – коэффициент массопередачи от парогазовой смеси к охлаждаемой поверхности, м/с [105-108].

Интегрируя уравнение (4.30) по температуре получаем уравнение для массопередачи от газа к поверхности десублимации

$$\beta = \frac{\alpha \cdot (T_a - T_s)}{\Delta H \cdot \rho_{m6}}. \quad (4.31)$$

Из закона Ньютона для теплоотдачи выражаем тепловой поток, передаваемый газом поверхности десублимации

$$q_1 = \alpha \cdot (T_s - T_a), \quad (4.32)$$

а из закона Фурье для теплопередачи определяем тепловой поток, передаваемый через слой гексафторида урана к стенке аппарата

$$q_2 = -\lambda_{m6} \cdot \frac{T_s - T_w}{\delta} = -\frac{\lambda_{m6}}{\delta} \cdot (T_s - T_w). \quad (4.33)$$

На основании принятого допущения (см. рис. 4.1) можно записать, что $q_1 = q_2$, тогда

$$\alpha \cdot (T_s - T_a) = -\frac{\lambda_{m6}}{\delta} \cdot (T_s - T_w). \quad (4.34)$$

Выражаем из уравнения (4.34) температуру поверхности десублимации

$$T_s = \left(\alpha + \frac{\lambda_{m6}}{\delta} \right) = \alpha \cdot T_a + \frac{\lambda_{m6}}{\delta} \cdot T_w. \quad (4.35)$$

Тогда

$$T_s = \frac{\alpha \cdot T_a + \frac{\lambda_{m6}}{\delta} \cdot T_w}{\alpha + \frac{\lambda_{m6}}{\delta}} = \frac{T_w}{1 + \frac{\alpha \cdot \delta}{\lambda_{m6}}} + \frac{\frac{\alpha \cdot \delta}{\lambda_{m6}} T_a}{1 + \frac{\alpha \cdot \delta}{\lambda_{m6}}}. \quad (2.36)$$

Для описания стационарного теплообмена между каким-либо телом и окружающей средой (в нашем случае – между твёрдым ГФУ и парогазовой смесью) вместо критерия Нуссельта используют критерий Био [105, 107]

$$Bi = \frac{\alpha \cdot \delta}{\lambda_{m6}}, \quad (4.37)$$

тогда подставив уравнение (4.37) в выражение (4.36) получим

$$T_s = \frac{T_w}{1 + Bi} + \frac{Bi \cdot T_a}{1 + Bi}. \quad (4.38)$$

Критерий Био характеризует соотношение между перепадом температуры δT и температурным напором ΔT

$$\delta T = T_2 - T_1, \quad (4.39)$$

где T_1, T_2 – температуры в двух точках тела, находящихся на характерном расстоянии L друг от друга, К,

$$\Delta T = T_s - T_a, \quad (4.40)$$

где T_s – температура поверхности тела, К;

T_a – температура окружающей среды, К.

Число Био представляет собой отношение термического сопротивления стенки $1/\lambda$ к термическому сопротивлению передачи тепла на поверхности $1/\alpha$. Для геометрически подобных тел равенство чисел Био определяет подобие распределений температуры (температурных полей).

Для лучистого теплообмена используют радиационное число Био, определяемое формулой

$$Bi_{rad} = \frac{\sigma_0 \cdot T_n^3 \cdot l}{\lambda}, \quad (4.41)$$

где $\sigma_0 = 5,6704 \cdot 10^{-8}$ Дж/(с·м²·К⁴) – постоянная Стефана-Больцмана;

T_n – характерная (начальная) температура тела, К;

l – характерный размер тела, м.

Для описания нестационарного теплообмена используем критерий Фурье, который характеризует соотношение между скоростью изменения тепловых условий в окружающей среде и скоростью перестройки поля температуры внутри рассматриваемой системы (тела), которое, в свою очередь, зависит от размеров тела и коэффициента его теплопроводности. Критерий Фурье является критерием гомохронности тепловых

процессов, то есть связывает времена различных эффектов и определяется по формуле

$$Fo = \frac{a \cdot \tau}{l^2}, \quad (4.42)$$

где τ – характерное время изменения внешних условий, с;

a – коэффициент температуропроводности, м²/с, равный

$$a = \frac{\lambda}{\rho \cdot c_p}. \quad (4.43)$$

Критерий Фурье вместе с критерием Био являются определяющими при решении задач нестационарной теплопроводности, описываемых уравнением теплопроводности. В таких задачах определяемым критерием является безразмерная температура Θ

$$\Theta = \frac{T - T_f}{T_0 - T_f}, \quad (4.44)$$

где T – текущая температура тела, К;

T_f – температура среды, К;

T_0 – начальная температура тела, К.

Тогда безразмерная температура в точке выражается как функция от критериев Био и Фурье и безразмерной координаты точки:

$$\Theta = f(Bi, Fo, r/l_0). \quad (4.45)$$

Расчёт гидродинамического режима в рабочем объёме аппарата проводят на основе системы полных стационарных осесимметричных осреднённых дифференциальных уравнений Навье-Стокса эллиптического типа [109], записанных в переменных завихрённости Ω и функции тока Ψ

$$u_r \frac{\partial \Psi}{\partial r} + u_z \frac{\partial \Psi}{\partial z} = \frac{1}{\text{Re}} \cdot \frac{1}{r} \left[\frac{\partial}{\partial r} \left(r \eta_t \frac{\partial \Psi}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(r \eta_t \frac{\partial \Psi}{\partial z} \right) \right] + F_j, \quad (4.46)$$

$$\frac{\partial^2 \Psi}{\partial r^2} + \frac{\partial^2 \Psi}{\partial z^2} = \Omega \cdot r^2 + \frac{1}{r} \cdot \frac{\partial \Psi}{\partial r}, \quad (4.47)$$

где
$$\Omega = \frac{1}{r} \cdot \left[\frac{\partial u_r}{\partial z} - \frac{\partial u_z}{\partial r} \right], \quad u_r = \frac{1}{r} \cdot \frac{\partial \Psi}{\partial z}, \quad u_z = -\frac{1}{r} \cdot \frac{\partial \Psi}{\partial r}.$$

Уравнения (4.46) и (4.47) записаны в цилиндрической системе координат, где r – радиальная; z – аксиальная координаты.

Левая часть уравнения (4.46) описывает конвективный перенос субстанции (газообразного ГФУ) за счёт скорости среды (парогазовой смеси). Первый член правой части уравнения (4.46) описывает диффузионный перенос субстанции за счёт вязкости η_i среды по координатам r и z . Член F_j описывает аддитивные источниковые составляющие, обусловленные изменением объёмного расхода среды по сечению в результате убыли массы ГФУ из парогазовой смеси в процессе его десублимации. Уравнение Пуассона (4.47) для определения функции тока Ψ получено из уравнения неразрывности [111].

Учитывая многовариантность задачи, расчёт десублимации по приведённой методике лучше делать с использованием ПЭВМ. Поэтому, используя уравнения (4.14)-(4.47), была разработана программа для расчёта процесса охлаждения и десублимации гексафторида урана из парогазовой смеси.

4.2.4 Численная реализация математической модели

Численную реализацию математической модели проводят в следующей последовательности [111 – 113]:

1) задают начальные геометрические размеры десублиматора (D_0, D_1, L); физические свойства и расходные параметры каждого из компонентов исходной парогазовой смеси $(\rho, \eta, \lambda, c_p, dm)_{UF_6, O_2, F_2}$ и кристаллического ГФУ ($\rho_{тв}, \lambda_{тв}, \Delta H$); граничные условия по скорости и температуре (Q_0, T_0, T_w); время технологического процесса ($\tau_{кон}$);

2) организуют глобальный расчётный цикл по времени с заданным шагом $d\tau$ и определяют соответствующие этому интервалу значения массового расхода dm_{UF_6} ;

3) организуют внутренний расчётный цикл с учётом условий: $x \leq L$ и $dm_{UF_6} > 0$, где x – текущая координата по расчётной области, изменяющаяся в пределах $0 \leq x \leq L$; где L – длина охлаждаемой части десублиматора.

Внутри этого цикла вычисляют физико-химические характеристики газовой смеси, критерии подобия для процесса течения смеси Re , Pr , Nu , Bi , Fo и определяют коэффициент теплоотдачи α .

Так как на участке охлаждения парогазовой смеси процесс протекает в нестационарном режиме, то расчёт десублимирующейся массы ГФУ ведут с учётом поправочного коэффициента Θ , полученного из уравнения (4.44)

$$\Theta = 1 - \frac{T_i - T^*}{T_0 - T^*}, \quad (4.48)$$

где T_i – текущая температура, К;

T_0 – начальная температура парогазовой смеси, К;

T^* – температура десублимации ГФУ, К.

Здесь разность $T_0 - T^*$ характеризует долю газа, остывшего до температуры десублимации ГФУ.

Поправку Θ учитывают до момента времени, когда будет $T_i > T^*$, и в дальнейшем предполагают, что $\Theta = 1$ и температура газовой смеси остаётся постоянной и равной T^* , до тех пор, пока $dm_{UF_6} > 0$.

На основании найденных параметров вычисляют коэффициент массопередачи β с учетом Θ . По значениям W и $d\tau$ “раскладывают” выделившийся материал ГФУ по боковой поверхности расчетной зоны и на эту величину уменьшают dm_{UF_6} , а также увеличивают x .

Внутренний цикл программы продолжает расчёт с учётом нарастания слоя ГФУ и изменения температуры на поверхности этого слоя T_s (рисунок 4.1);

4) после окончания внешнего цикла строят графики функции $\delta = f(x)$.

Расчёт позволяет качественно и количественно определить влияние всех факторов, указанных в исходных данных, на рассмотренные процессы. Например, получены графики изменения температуры парогазовой смеси в направлении поперечной (y) и продольной (x) координат в кольцевом пространстве десублиматора в начальной нестационарной области охлаждения. Для случая подачи в десублиматор исходной парогазовой смеси с расходом 4,77 кг/ч (см. табл. 4.2) рассчитанные графические зависимости, показаны на рисунках 4.2 и 4.3. Из графиков следует, что длина нестационарной зоны охлаждения парогазовой смеси до температуры десублимации ГФУ вдоль оси аппарата не превышает 0,1 м.

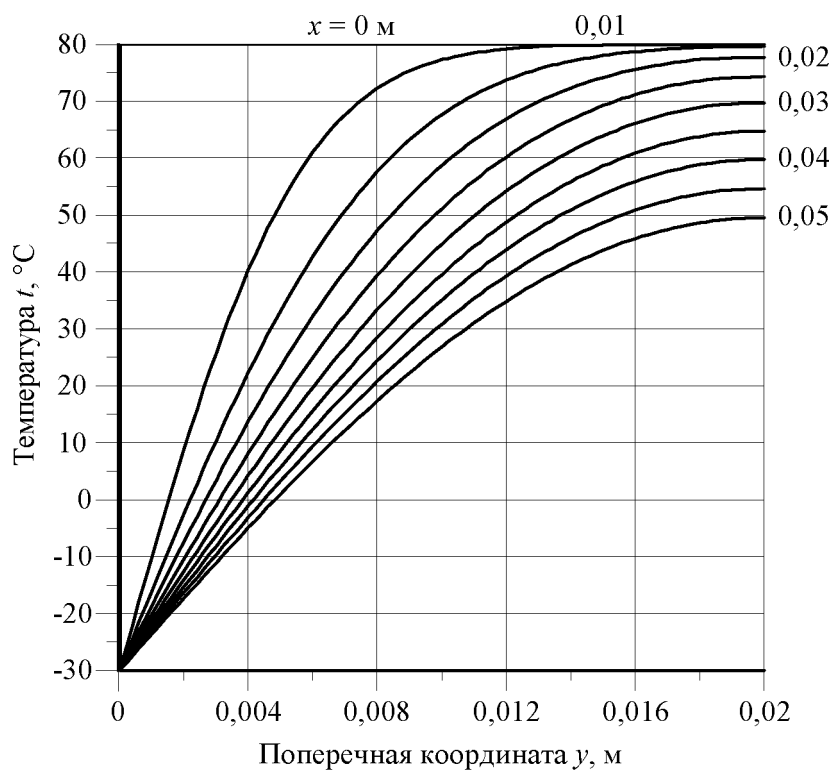


Рисунок 4.2 – Зависимость температуры парогазовой смеси от поперечной координаты при различных значениях x

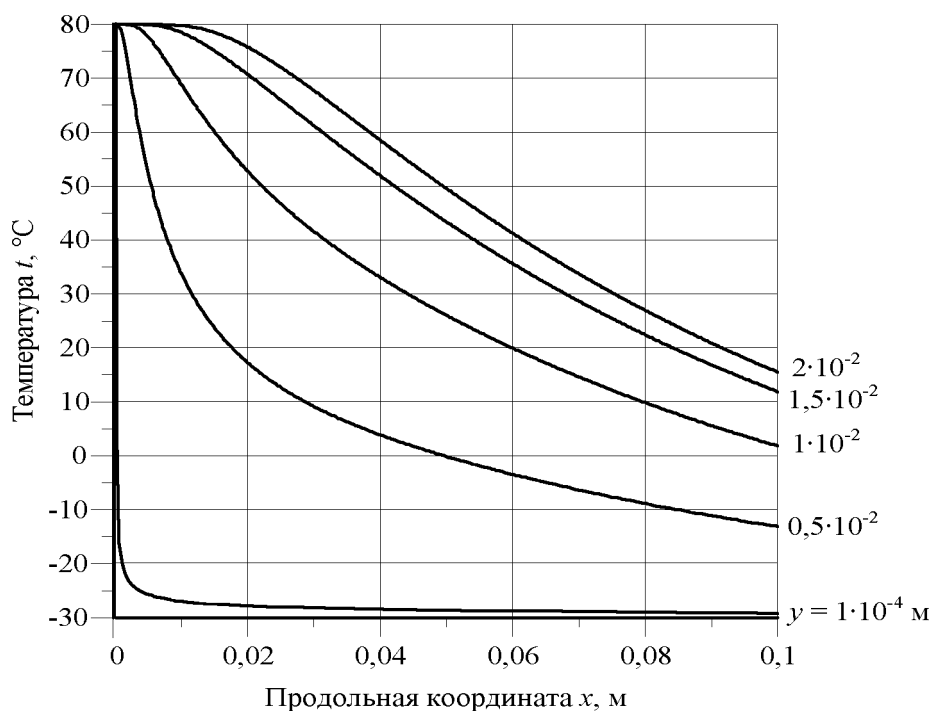


Рисунок 4.3 – Зависимость температуры парогазовой смеси от продольной координаты при различных значениях y

Так как в кольцевом сечении десублиматора скорость газа мала ($W \approx 6$ мм/с) и режим течения парогазовой смеси ламинарный ($Re = 20$), то в поперечном направлении аппарата, т.е. вдоль оси y не происходит перемешивания газов. Поэтому в поперечном направлении теплоперенос в газовом потоке происходит только за счёт теплопроводности.

Длина зоны аппарата, в которой происходит десублимация всего ГФУ при температуре стенки десублиматора минус 30°C , подаче газовой смеси $4,77$ кг/ч и заполнении десублиматора до 120 кг по ГФУ, составляет $0,8$ м при отсутствии области нестационарного охлаждения парогазовой смеси (рисунок 4.4). При наличии области нестационарного охлаждения длина зоны десублимации составляет $1,25$ м (см. рисунок 4.5).

Толщина слоя ГФУ на внутренней и внешней стенках кольцевого корпуса составила 20 мм (см. рисунок 4.4) и $16,5$ мм (см. рисунок 4.5), соответственно.

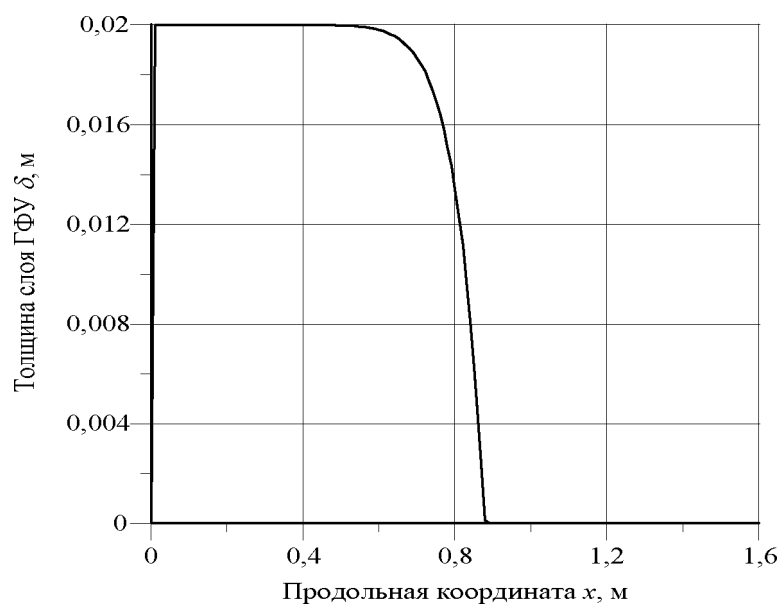


Рисунок 4.4 – Зависимость толщины десублимата ГФУ от продольной координаты для области стационарного охлаждения парогазовой смеси при температуре стенки аппарата минус 30 °С

Дополнительно была рассчитана длина зоны десублиматора в присутствии области нестационарного охлаждения парогазовой смеси, в которой десублимируется весь ГФУ при различных температурах стенки аппарата: минус 20, минус 10 и 0 °С. Результаты расчёта приведены на рисунке 4.5.

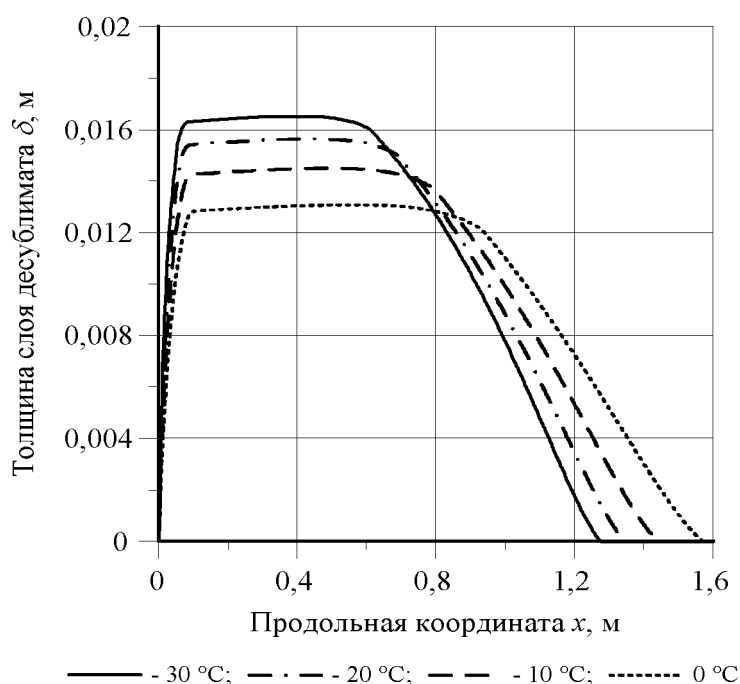


Рисунок 4.5 – Зависимость толщины десублимата ГФУ от продольной координаты для области нестационарного охлаждения парогазовой смеси при различных температурах стенки аппарата

Из рисунка 4.5 следует, что длина зоны аппарата, в которой десублимируется весь ГФУ в присутствии нестационарного охлаждения, при температурах стенки десублиматора минус 20, минус 10 и $0\text{ }^{\circ}\text{C}$, составляет 1,33, 1,42 и 1,58 м, соответственно. При этих температурах десублимации толщина слоя ГФУ на каждой внутренней поверхности стенках кольцевой полости составит 15,5; 14 и 13 мм, соответственно.

4.3 Расчёт вертикального десублиматора кольцевого типа

4.3.1 Условия и данные для расчёта

Методика расчёта поверхностного десублиматора рассмотрена на конкретном примере расчёта кольцевого многокамерного десублиматора с двумя тёплыми стенками (см. рисунок 2.19). Десублиматор предназначен

для десублимации высокообогащённого гексафторида урана из парогазовой смеси. Схема аппарата и описание его работы приведены в разделе 2. Данные для расчёта приведены в таблице 4.3.

Таблица 4.3 – Данные для расчёта десублиматора

Наименование параметра	Обозначение	Единица измерения	Численное значение
1 Поверхность десублимации	F	м^2	3,6
2 Температура: - поступающей парогазовой смеси - выходящей парогазовой смеси при десублимации - выходящих паров ГФУ при сублимации хладагента на входе хладагента на выходе стенки аппарата при десублимации ГФУ стенки аппарата при сублимации ГФУ	$T_z^{ex}, (t_z^{ex})$ $T_z^{ex}, (t_z^{ex})$ $T_{паров}$ $(t_{паров})$ $T_x^{ex}, (t_x^{ex})$ $T_x^{ex}, (t_x^{ex})$ $T_{cm}^o, (t_{cm}^o)$ $T_{cm}^c, (t_{cm}^c)$	$\text{К (}^{\circ}\text{C)}$	363 (90) 213 (– 60) 363 (90) 173 (– 100) 193 (– 80) 333 (60) 373(100)
3 Давление: - поступающей парогазовой смеси - хладагента	p_z p_x	МПа (кгс/см^2)	атмосферное
4 Массовая производительность аппарата по ГФУ	M_{UF_6}	кг/с (кг/час)	$9,72 \cdot 10^{-4}$ (3,5)
5 Состав парогазовой смеси до и после десублимации	-	-	см. табл. 3.2

В качестве хладагента используем газообразный азот, подаваемый в теплообменную систему десублиматора.

4.3.2 Определение геометрических размеров десублиматора

По условиям расчёта задана поверхность десублимации. Геометрические размеры аппарата выбираем с учётом особенностей процесса десублимации высокообогащенного урана и опыта работы специализированных предприятий.

Конденсатор гексафторида урана имеет форму кольцевого аппарата. Ширину кольцевого зазора $\Delta = (37 \pm 3)$ мм принимаем с учётом правил по ядерной безопасности [114]. Внутренний диаметр D наружного корпуса десублиматора принимаем конструктивно равным 0,5 м. Увеличение размера диаметра приведет к неоправданному увеличению площади для установки аппарата, а уменьшение – увеличит высоту десублиматора, что затруднит обслуживание внутреннего нагревателя.

Для проектируемого аппарата выбираем теплообменные трубки: для подачи хладагента – труба $14 \times 2,5$ мм, для отвода хладагента – труба 20×2 мм. Уменьшение диаметра первых труб приводит к утонению их стенок (и, следовательно, уменьшает надежность аппарата) в соответствии с сортаментом на трубы, а увеличение диаметра вторых – затруднит их установку в кольцевой зазор. Количество трубок выбираем из условия, что суммарная площадь поперечного сечения трубок для подачи хладагента f_{Σ} , м², должна быть не более, чем суммарная площадь поперечного сечения трубок для отвода хладагента F_{Σ} , м²

$$f_{\Sigma} \leq F_{\Sigma},$$

$$f_{\Sigma} = \frac{\pi \cdot (d_1^{en})^2}{4} \cdot n, \quad F_{\Sigma} = \frac{\pi \cdot (D_1^{en})^2}{4} \cdot N,$$

где d_1^{en} , D_1^{en} – внутренние диаметры трубок, подводящих и отводящих хладагент, соответственно, мм;

n , N – количество трубок, соответственно, подводящих и отводящих хладагент.

$$f_{\Sigma} = \frac{3,14 \cdot 0,009^2}{4} \cdot 31 = 19,72 \cdot 10^{-4} \text{ м}^2,$$

$$F_{\Sigma} = \frac{3,14 \cdot 0,016^2}{4} \cdot 10 = 20,10 \cdot 10^{-4} \text{ м}^2,$$

$$19,72 \cdot 10^{-4} \text{ м}^2 \leq 20,10 \cdot 10^{-4} \text{ м}^2.$$

Общее количество трубок N_{Σ} равно сумме подводящих и отводящих хладагент трубок и одного дополнительного «места», (рис. 4.6, поз. а), необходимого для установки патрубка для выгрузки готового продукта

$$N_{\Sigma} = n + N + 1 = 31 + 10 + 1 = 42.$$

Размещение этих трубок целесообразно выполнить на среднем диаметре D_{cp} кольцевого зазора, равном 0,463 м.

Поперечное сечение проектируемого аппарата показано на рисунке 4.6.

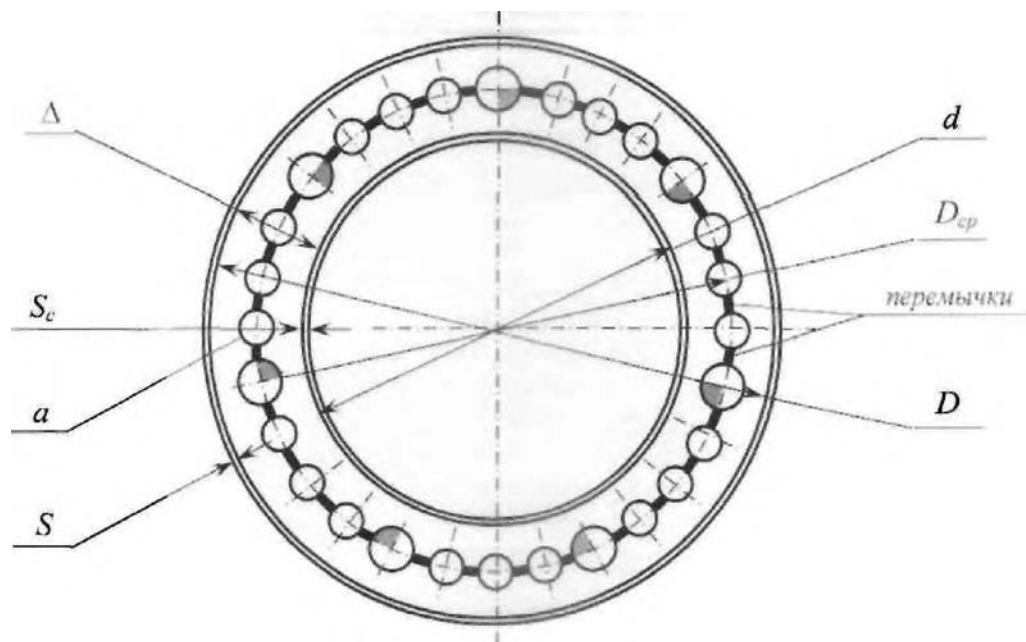


Рисунок 4.6 – Поперечное сечение десублиматора

С целью увеличения поверхности десублимации целесообразно между трубками разместить перемычки из листовой стали.

Зная поверхность десублимации, можно определить высоту H десублимационной камеры. Сначала определяем длину периметра P теплообменной поверхности по среднему диаметру кольцевого зазора:

- суммарная длина зазоров между трубками

$$L_{\Sigma} = \pi \cdot D_{cp} - (d_1^{нар} \cdot n + D_1^{нар} \cdot N), \quad (4.49)$$

- суммарная длина окружностей по наружному диаметру трубок (учитываются также отводящие хладагент трубки, т.к. температура их стенок ниже температуры десублимации ГФУ)

$$D_{\Sigma} = \pi \cdot d_1^{нар} \cdot n + \pi \cdot D_1^{нар} \cdot N, \quad (4.50)$$

где $d_1^{нар}$, $D_1^{нар}$ – наружный диаметр подводящих и отводящих трубок соответственно, м.

Длину периметра P теплообменной поверхности по среднему диаметру с учетом, что десублимация на перемышках происходит с двух сторон, определяем по формуле

$$P = 2 \cdot L_{\Sigma} + D_{\Sigma}, \quad (4.51)$$

Подстановка численных значений величин в формулы (4.49)-(4.51) даёт следующие результаты:

$$L_{\Sigma} = 3,14 - 0,463 \cdot (0,014 \cdot 31 + 0,020 \cdot 10) = 0,82 \text{ м},$$

$$D_{\Sigma} = 3,14 \cdot 0,463 \cdot 31 + 3,14 \cdot 0,020 \cdot 10 = 1,99 \text{ м},$$

$$P = 2 \cdot 0,82 + 1,99 = 3,63 \text{ м}.$$

Тогда высота десублимационной камеры будет равна

$$H = \frac{F}{P} = \frac{3,6}{3,63} = 0,99 \text{ м}.$$

Принимаем высоту камеры $H = 1 \text{ м}$.

4.3.3 Материальный расчёт десублимации ГФУ

Материальный расчёт проводим с целью составления схемы материальных потоков и определения их количества, влияющих в дальнейшем на

тепловой и прочностной расчёты, определения состава потоков и составления таблицы материального баланса процесса десублимации гексафторида урана.

Состав реакционного газа до и после десублимации ГФУ приведён в таблице 4.4.

Таблица 4.4 – Расчётный состав реакционных газов в процессе десублимации ГФУ (с учётом 30% избытка фтора)

Компоненты газовой смеси	До десублимации $M_i^{\%}$, % об.	После десублимации $M_i^{\%}$, % об.
Гексафторид урана (UF_6)	31,3	0
Фтор (F_2)	18,8	29,4
Кислород (O_2)	41,6	64,7
Фтороводород (HF)	5,8	2,5
Дифторид кислорода (OF_2)	2,0	3,4
Нитроксилфторид (NOF)	0,5	0

При заданной массовой производительности конденсатора по основному продукту и состава реакционных газов, массовую производительность по каждой составляющей смеси до десублимации проводим в следующей последовательности:

а) определяем объёмный расход гексафторида урана

$$V_{UF_6} = \frac{M_{UF_6}^{mac}}{\rho_{UF_6}}, \quad (4.52)$$

где $M_{UF_6}^{mac}$ – массовый расход гексафторида урана, кг/ч;

ρ_{UF_6} – плотность паров гексафторида урана при температуре поступающей парогазовой смеси, кг/м³, определяем по формуле [115]

$$\rho_{UF_6} = 13,28 \cdot \frac{323,2}{T_z^{ex}} \cdot \frac{P_z}{760}, \quad (4.53)$$

где P_z – давление паров ГФУ, мм рт. ст.

б) определяем объёмный расход каждой составляющей газовой смеси

$$V_i = \frac{V_{UF_6}^{\%} \cdot M_i^{\%}}{M_{UF_6}^{\%}}, \quad (4.54)$$

где V_i - объемный расход i -той составляющей смеси, м³/ч;

в) определяем массовый расход каждой составляющей газовой смеси

$$M_i^{mac} = V_i \cdot \rho_i, \quad (4.55)$$

где ρ_i – плотность i -той составляющей смеси при заданных температуре T и давлении P , кг/м³ [104], равная

$$\rho_i = \frac{M_i}{22,4} \cdot \frac{273 \cdot P}{T_z^{ex} \cdot P_0}. \quad (4.56)$$

В этом уравнении M_i – молярная масса i -той компоненты газа, кг/моль.

Результаты расчётов, проведённых по формулам (4.52)-(4.56) приведены таблице 4.5.

Таблица 4.5 – Массовый расход компонентов в исходной парогазовой смеси

Компоненты парогазовой смеси	Молярная масса M_i , кг/кмоль	Плотность P_i , кг/м	Объёмный расход V_i , м ³ /ч	Массовый расход, M_i^{max} , кг/ч
Гексафторид урана (UF_6)	349	11,824	0,296	3,500
Фтор (F_2)	38	1,275	0,178	0,227
Кислород (O_2)	32	1,074	0,393	0,422
Фтороводород (HF)	20	0,671	0,055	0,037
Дифторид кислорода (OF_2)	54	1,813	0,019	0,034
Нитроксилфторид (NOF)	49	1,645	0,005	0,008
Всего	—	—	0,946	4,228

Массовые расходы компонентов газовой смеси после десублиматора определяем с использованием уравнения материального баланса. Это уравнение имеет вид

$$\Sigma M_{прих} = \Sigma M_{расх}, \quad (4.57)$$

где $\Sigma M_{\text{прих}}$ – массовый расход веществ до десублимации (приход), кг/ч,
равный

$$\Sigma M_{\text{прих}} = M_{\text{UF}_6}^{\text{мас}} + M_{\text{F}_2}^{\text{мас}} + M_{\text{O}_2}^{\text{мас}} + M_{\text{HF}}^{\text{мас}} + M_{\text{OF}_2}^{\text{мас}} + M_{\text{NOF}}^{\text{мас}} ; \quad (4.58)$$

$\Sigma M_{\text{расх}}$ – массовый расход веществ после десублимации (расход), кг/ч,
равный

$$\Sigma M_{\text{расх}} = (M_{\text{F}_2}^{\text{мас}})' + (M_{\text{O}_2}^{\text{мас}})' + (M_{\text{HF}}^{\text{мас}})' + (M_{\text{NOF}}^{\text{мас}})' + M_{\text{UF}_6(\text{тв})} . \quad (4.59)$$

Подставляя численные значения величин в формулу (3.10), получаем

$$\Sigma M_{\text{прих}} = 3,5 + 0,227 + 0,422 + 0,037 + 0,034 + 0,008 = 4,228 \text{ кг/ч.}$$

Суммарный массовый расход газовой смеси после десублиматора
равен

$$\Sigma M_z^{\text{мас}} = (M_{\text{F}_2}^{\text{мас}})' + (M_{\text{O}_2}^{\text{мас}})' + (M_{\text{HF}}^{\text{мас}})' + (M_{\text{NOF}}^{\text{мас}})' = \Sigma M_{\text{прих}} - M_{\text{UF}_6} ;$$

$$\Sigma M_z^{\text{мас}} = 4,228 - 3,5 = 0,728 \text{ кг/ч.}$$

Зная концентрацию компонентов смеси после десублиматора (см. таблицу 4.4), массовый расход определяем по формуле

$$(M_i^{\text{мас}})' = \frac{\Sigma M_z^{\text{мас}} \cdot (M_i^{\circ\%})'}{100} ,$$

откуда

$$(M_{\text{F}_2}^{\text{мас}})' = \frac{0,728 \cdot 29,4}{100} = 0,214 \text{ кг/ч,}$$

$$(M_{\text{O}_2}^{\text{мас}})' = \frac{0,728 \cdot 64,7}{100} = 0,471 \text{ кг/ч,}$$

$$(M_{\text{HF}}^{\text{мас}})' = \frac{0,728 \cdot 2,5}{100} = 0,018 \text{ кг/ч,}$$

$$(M_{\text{OF}_2}^{\text{мас}})' = \frac{0,728 \cdot 5,4}{100} = 0,025 \text{ кг/ч.}$$

Результаты материального расчёта по формулам (4.53)-(4.59) приведены в таблице 4.6.

Таблица 4.6 – Материальный баланс процесса десублимации ГФУ в конденсаторе

Приход			Расход		
Статьи прихода	кг/ч	% мас.	Статьи расхода	кг/ч	мас. %
1 Газ на входе в десублиматор,	4,228	100	1 Твёрдый продукт (UF_6)	3,500	82,78
в том числе: UF_6	3,500	82,78	2 Газ на выходе из десублиматора,	0,728	17,22
F_2	0,227	5,37	в том числе: F_2	0,214	5,06
O_2	0,422	9,98	O_2	0,471	11,14
HF	0,037	0,88	HF	0,018	0,43
OF_2	0,034	0,80	OF_2	0,025	0,59
NOF	0,008	0,19	NOF	0	0
Итого	4,228	100	Итого	4,228	100

Учитывая сложность процесса десублимации гексафторида урана и поведения при этом примесей, принимаем ряд допущений:

- гексафторид урана десублимируется полностью;
- примеси F_2 , O_2 , HF и OF_2 , содержащиеся в гексафториде урана, не претерпевают химических превращений и остаются в газовой фазе.

При этих условиях материальный баланс десублимации гексафторида урана можно записать в виде таблицы 4.7.

Таблица 4.7 – Материальный баланс процесса десублимации ГФУ

Приход			Расход		
Статьи прихода	кг/ч	% мас.	Статьи расхода	кг/ч	мас. %
Газ на входе в десублиматор,	4,228	100	1 Твёрдый продукт (UF_6)	3,500	82,78
в том числе: UF_6	3,500	82,78	2 Газ на выходе из десублиматора,		
F_2	0,227	5,37	в том числе: F_2	0,227	5,37
O_2	0,422	9,98	O_2	0,422	9,98
HF	0,037	0,88	HF	0,037	0,88
OF_2	0,034	0,80	OF_2	0,034	0,80
NOF	0,008	0,19	NOF	0,008	0,19
Итого	4,228	100	Итого	4,228	100

4.3.4 Тепловой расчёт аппарата, работающего в режиме десублимации

Цель теплового расчёта – определить необходимую поверхность теплопередачи (или проверить достаточность заданной поверхности теплопередачи), определить расход хладагента и произвести расчёт мощности нагревателей, применяемых для обогрева стенок аппарата, работающего в режиме десублимации.

4.3.4.1 Определение тепловых потоков

В десублиматоре рассматриваемой конструкции (см. рисунок 2.19) применяется наиболее простой и эффективный способ десублимации гексафторида урана, при котором практически предотвращается появление мелкодисперсных аэрозолей ГФУ на выходе из десублиматора и их унос из аппарата. При этом обеспечивается максимальное заполнение аппарата при стабильной проходимости парогазовой смеси вдоль поверхности теплообмена.

При входе в десублиматор, парогазовая смесь (ПГС) распределяется по всему кольцевому пространству первой (верхней) камеры (см. рисунок 2.19). Здесь происходит охлаждение ПГС и пересыщение её парами ГФУ с последующей десублимацией, преимущественно на охлаждаемых трубках и перемычках между трубами. В первой и второй камерах остается большая часть десублимата ГФУ. Другая часть ГФУ в виде паров и аэрозолей, образовавшихся в объеме парогазовой смеси, через кольцевые зазоры между обогреваемыми стенками и отбортовкой ребра поступает в кольцевые камеры, расположенные ниже. При этом, находясь в зазоре рядом с нагретой стенкой, образующиеся аэрозоли ГФУ вторично сублимируются и вновь контактируют с охлаждаемыми трубками в камере, расположен-

ной ниже. Таким образом, в нескольких соседних кольцевых камерах формируется динамический десублимационный фронт, который по мере заполнения первых (верхних) по ходу парогазовой смеси перемещается к нижнему разгрузочному патрубку (рисунок 4.7).

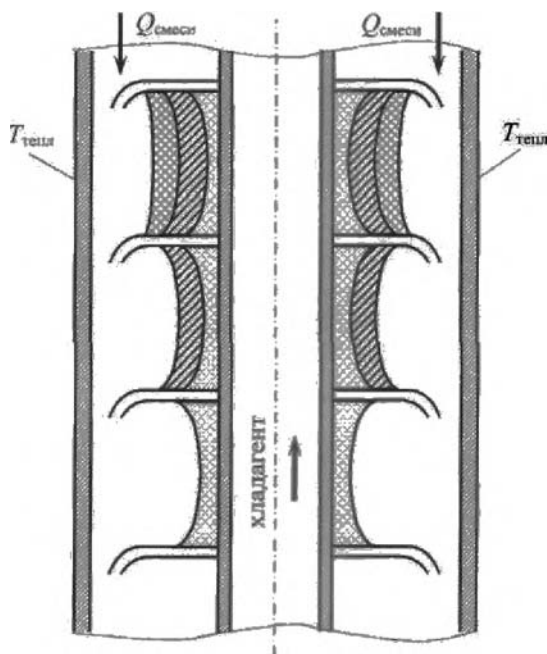


Рисунок 4.7 – Распределение десублимата ГФУ в многокамерном десублиматоре с тёплыми стенками

Предотвращение десублимации ГФУ на стенках аппарата и стабильную проходимость парогазовой смеси в зазоре между внутренней поверхностью стенки аппарата и отбортовкой кольцевой перегородки обеспечивают путём поддержания в пристеночном пространстве температуры выше, чем температура десублимации гексафторида урана. Кроме того, в кольцевом зазоре за счёт резкого изменения скорости парогазовой смеси происходит интенсивное перемешивание аэрозолей ГФУ в подогретом газе, что обеспечивает дополнительно более полную их повторную сублимацию.

Общее уравнение теплового баланса имеет вид

$$\Sigma Q'_{\text{прих}} = \Sigma Q'_{\text{расх}}, \quad (4.60)$$

где $\Sigma Q'_{\text{прих}}$ – суммарный приход от всех источников тепла, Вт, равный

$$\Sigma Q'_{\text{прих}} = Q'_{\text{газа}} + Q'_{\text{десуб}} + Q'_{\text{пост}} + Q'_{\text{нагр}}; \quad (4.61)$$

$\Sigma Q'_{\text{расх}}$ – суммарное тепло, отводимое из аппарата, Вт, равное

$$\Sigma Q'_{\text{расх}} = Q'_{\text{отв}} + Q'_{\text{ГФУ}} + Q'_{\text{хлад}} + Q'_{\text{потерь}}, \quad (4.62)$$

где $Q'_{\text{газа}}$ – тепло, поступающее с исходной газовой смесью, Вт;

$Q'_{\text{десуб}}$ – тепло, выделяемое при десублимации ГФУ, Вт;

$Q'_{\text{пост}}$ – тепло, поступающее в десублиматор с хладагентом, Вт;

$Q'_{\text{нагр}}$ – тепло, поступающее в десублиматор от тёплых стенок, Вт;

$Q'_{\text{отв}}$ – тепло, отводимое газами, выходящими из десублиматора, Вт;

$Q'_{\text{ГФУ}}$ – тепло, затрачиваемое на охлаждение твёрдого ГФУ, Вт;

$Q'_{\text{хлад}}$ – тепло, отводимое из десублиматора хладагентом, Вт;

$Q'_{\text{потерь}}$ – потери тепла в окружающую среду, Вт.

Количество тепла, поступающего с исходной парогазовой смесью, определяем как сумму тепла, поступающего с каждым компонентом смеси, т.е.

$$Q'_{\text{газа}} = \Sigma Q'_i, \quad (4.63)$$

$$Q'_i = c_i \cdot G_i \cdot t_z^{\text{вх}}, \quad (4.64)$$

где c_i – удельная теплоёмкость i -ого компонента парогазовой смеси, Дж/(кг·К);

G_i – производительность по i -му компоненту парогазовой смеси, кг/с;

$t_z^{\text{вх}}$ – температура парогазовой смеси на входе в десублиматор, °С.

Значения удельной теплоёмкости для каждого компонента парогазовой смеси приведены в таблице 4.8.

Таблица 4.8 – Удельная теплоёмкость компонентов смеси

Компонент парогазовой смеси	Удельная теплоемкость $c_{\text{моль}_i}$, Дж/(моль·град)	Литературный источник
Гексафторид урана (UF_6) _{газ}	129,90	[116, 117]
Фтор(F_2)	31,32	[117]
Кислород (O_2)	29,35	[117]
Фтороводород (HF)	29,14	[117]
Дифторид кислорода (OF_2)	43,30	[117]
Нитроксилфторид (NOF)	41,34	[104]

Перевод удельной мольной теплоёмкости в удельную массовую теплоёмкость осуществляем по формуле

$$c_i = \frac{c_{\text{моль}_i}}{MM_i} \cdot 1000,$$

где c_i – удельная массовая теплоемкость, Дж/(кг · К);

$c_{\text{моль}_i}$ – удельная мольная теплоемкость, Дж/(моль · К);

MM_i – молекулярная масса вещества.

Исходя из вышесказанного, количества тепла, поступающего с компонентами, определяем по уравнениям (4.62)-(4.64):

$$Q'_{UF_6} = \frac{129,9}{349} \cdot 1000 \cdot \frac{3,5}{3600} \cdot 90 = 32,57 \text{ Вт},$$

$$Q'_{F_2} = \frac{31,32}{38} \cdot 1000 \cdot \frac{0,227}{3600} \cdot 90 = 4,63 \text{ Вт},$$

$$Q'_{O_2} = \frac{29,35}{32} \cdot 1000 \cdot \frac{0,422}{3600} \cdot 90 = 9,68 \text{ Вт},$$

$$Q'_{HF} = \frac{29,14}{20} \cdot 1000 \cdot \frac{0,037}{3600} \cdot 90 = 1,35 \text{ Вт},$$

$$Q'_{OF_2} = \frac{43,3}{54} \cdot 1000 \cdot \frac{0,034}{3600} \cdot 90 = 0,68 \text{ Вт},$$

$$Q'_{NOF} = \frac{41,34}{49} \cdot 1000 \cdot \frac{0,008}{3600} \cdot 90 = 0,17 \text{ Вт},$$

$$Q_{\text{аха}} = 32,57 + 4,63 + 9,68 + 1,35 + 0,68 + 0,17 = 49,08 \text{ Вт}.$$

Тепло, выделяющееся при десублимации гексафторида урана, определяем по формуле [116]

$$Q'_{\text{десуб}} = \frac{r \cdot m}{\tau_{\text{десуб}}},$$

где $r = 1,38 \cdot 10^5$ Дж/кг – теплота десублимации ГФУ [117];

m – полная масса ГФУ в десублиматоре, кг;

$\tau_{\text{десуб}}$ – время десублимации, с.

Массу гексафторида урана в заполненном десублиматоре определяем исходя из габаритных размеров аппарата и степени его заполнения $\varphi_{\text{ан}}$ (для нашего случая принимаем $\varphi_{\text{ан}} = 0,8$). При внутреннем свободном объёме кольцевого пространства десублиматора (за вычетом объёма, занимаемого теплообменными трубками) $V_{\text{ан}} = 0,0459 \text{ м}^3$ и при плотности твёрдого ГФУ $\rho_{\text{ГФУ}} = 5060 \text{ кг/м}^3$ [118], масса гексафторида урана в аппарате составит

$$m = V_{\text{ан}} \cdot \rho_{\text{ГФУ}} \cdot \varphi_{\text{ан}} = 0,0459 \cdot 5060 \cdot 0,8 = 185,8 \text{ кг}.$$

Время конденсации при заданной степени заполнении аппарата определяем по формуле

$$\tau_{\text{кон}} = \frac{m}{M_{\text{UF}_6}} = \frac{185,8}{3,5} = 53,086 \text{ часа} \approx 191109 \text{ с}.$$

Тогда

$$Q'_{\text{десуб}} = \frac{1,38 \cdot 10^5 \cdot 185,8}{101109} = 134,17 \text{ Вт}.$$

Тепло, поступающее в десублиматор от стенок, подогреваемых электронагревателями для обеспечения свободного прохода парогазовой смеси вдоль стенок, рассчитывают как тепловые потери этих стенок по формуле [104]

$$Q' = F \cdot \alpha_{\Sigma} \cdot (t_{\text{ст}} - t_{\text{нр}})$$

где F – площадь обогрева, м²;

α_{Σ} – суммарный коэффициент теплоотдачи лучеиспусканием и конвекцией, Вт/(м²·К);

t_{cm} – температура стенки, °С;

t_{np} – температура пространства около обогреваемой стенки, °С.

Десублиматор содержит две обогреваемые цилиндрические стенки: наружную и внутреннюю, поэтому количество тепла, поступающего в аппарат, определяем для двух источников тепла

$$Q'_{нагр} = Q'_{вн} + Q'_{нар},$$

где $Q'_{вн}$ – тепло, поступающее в аппарат со стороны внутренней стенки,

Вт;

$Q'_{нар}$ – тепло, поступающее в аппарат со стороны наружной стенки, Вт.

Площадь внутренней $F_{вн}$ и наружной $F_{нар}$ стенок, соответственно, равны

$$F_{вн} = \pi \cdot D \cdot H = 3,14 \cdot 0,5 \cdot 1 = 1,571 \text{ м}^2,$$

$$F_{нар} = \pi \cdot d \cdot H = 3,14 \cdot 0,426 \cdot 1 = 1,338 \text{ м}^2.$$

Для теплопередачи от тёплой стенки к внутреннему пространству аппарата суммарный коэффициент теплоотдачи, при температуре ниже 150 °С определяем по приближенной формуле В.П. Линчевского [104], учитывающей конвективную и радиационную составляющие

$$\alpha_{\Sigma} = 9,74 + 0,07 \cdot (t_{cm} - t_{np}).$$

Температура пространства в аппарате около обогреваемой стенки должна быть не ниже температуры сублимации продукта. Для гексафторида урана температура сублимации при атмосферном давлении составляет 56,6 °С [118]. Чтобы гарантированно вторично сублимировать аэрозоли ГФУ, поступающие в пристеночное пространство, принимаем $t = 57$ °С. Температура стенки аппарата при режиме десублимации задана (см. таблицу 4.3): $t_{cm} = 60$ °С. Тогда

$$\alpha_{\Sigma} = 9,74 + 0,07 \cdot (60 - 57) = 9,95 \text{ Вт}/(\text{м}^2 \cdot \text{К}),$$

$$Q'_{вн} = 1,338 \cdot 9,95 \cdot (60 - 57) = 40 \text{ Вт},$$

$$Q'_{нар} = 1,571 \cdot 9,95 \cdot (60 - 57) = 47 \text{ Вт},$$

$$Q'_{нагр} = 40 + 47 = 87 \text{ Вт.}$$

Мощность нагревателя рассчитываем по формуле

$$N = \frac{Q'}{\eta},$$

где η – коэффициент полезного действия электронагревателя, из экспериментальных данных равен 0,85.

Таким образом, мощность каждого электронагревателя десублиматора, работающего в режиме конденсации, будет равна

$$N_{ен} = \frac{40}{0,85} = 47,1 \text{ Вт,}$$

$$N_{нар} = \frac{47}{0,85} = 55,3 \text{ Вт.}$$

Тепло, отводимое из десублиматора с отходящими газами, определяем по формуле (4.63) с использованием данных из таблицы 4.6

$$\Sigma Q'_{омв} = Q'_{F_2} + Q'_{O_2} + Q'_{HF} + Q'_{OF_2}$$

$$Q'_i = c_i \cdot G_i \cdot t_2^{66ix}, \quad (4.65)$$

где t_2^{66ix} – температура парогазовой смеси на выходе из десублиматора, $^{\circ}\text{C}$, равная (минус 60) $^{\circ}\text{C}$. Тогда по формуле (4.65)

$$Q'_{F_2} = \frac{31,32}{38} \cdot 1000 \cdot \frac{0,214}{3600} \cdot (-60) = -2,94 \text{ Вт;}$$

$$Q'_{O_2} = \frac{29,35}{32} \cdot 1000 \cdot \frac{0,471}{3600} \cdot (-60) = -7,20 \text{ Вт;}$$

$$Q'_{HF} = \frac{29,14}{20} \cdot 1000 \cdot \frac{0,018}{3600} \cdot (-60) = -0,44 \text{ Вт;}$$

$$Q'_{OF_2} = \frac{43,30}{54} \cdot 1000 \cdot \frac{0,025}{3600} \cdot (-60) = -0,36 \text{ Вт;}$$

$$Q'_{омв} = -2,94 - 7,20 - 0,44 - 0,36 = -10,94 \text{ Вт.}$$

Тепло, затрачиваемое на охлаждение твёрдого гексафторида урана, определяем по формуле (4.65) при теплоёмкости твёрдого ГФУ $c_{ГФУ} = 459$ Дж/(кг·К) [117]

$$Q'_{ГФУ} = 495 \cdot \frac{3,5}{3600} \cdot (-60) = -26,78 \text{ Вт.}$$

Тепловые потери в окружающую среду при охлаждении определяем из уравнения теплового баланса

$$Q'_{потерь} = [(Q'_{отв} + Q'_{ГФУ}) - (Q'_{газа} + Q'_{десуб})] \cdot \varepsilon,$$

где ε – коэффициент для потерь тепла хладагентом, равный 0,2 и определённый из экспериментальных данных.

В рассматриваемом случае

$$Q'_{потерь} = [(-10,94 - 26,78) - (49,08 - 134,17)] \cdot 0,2 = -44,20 \text{ Вт.}$$

Количество теплоты, подводимой в десублиматор газообразным хладагентом (в нашем случае - азот), определяем по формуле [104]

$$Q'_{хлад} = G_{хлад} \cdot i_x,$$

где $G_{хлад}$ – расход хладагента, кг/с;

i_x – энтальпия хладагента при начальной температуре, Дж/кг.

Тепло, отводимое из десублиматора хладагентом, определяем по формуле [104]

$$Q'_{хлад} = G_{хлад} \cdot (i_x - i_k),$$

где i_k – энтальпия хладагента при конечной температуре, Дж/кг.

Численные значения термодинамических величин для парообразного азота приняты из литературы [119]

$$i_x = 424286 \text{ Дж/кг, } i_k = 444196 \text{ Дж/кг.}$$

Расход хладагента определяют из уравнения теплового баланса (4.60), подставляя в формулы (4.61), (4.62) известные численные значения величин

$$\begin{aligned} &49,08 + 134,17 - G_{хлад} \cdot 424286 + 87 = \\ &= -10,94 - 26,78 + G_{хлад} \cdot (424286 - 444196) - 44,20. \end{aligned}$$

Отсюда

$$G_{\text{хлад}} = 8,7 \cdot 10^{-4} \text{ кг/с} = 3,13 \text{ кг/час.}$$

В уравнении теплового баланса тепло, поступающее с хладагентом, берём со знаком "–", т.к. хладагент имеет отрицательную температуру и он поглощает тепло. Тепло, отводимое из десублиматора хладагентом, имеет знак "+", т.к. хладагент на выходе из аппарата ещё имеет отрицательную температуру.

Зная расход хладагента, определяем тепловые потоки:

- тепло, поступающее с хладагентом

$$Q'_{\text{хлад}} = 8,7 \cdot 10^{-4} \cdot (-424286) = -369,49 \text{ Вт};$$

- тепло, отводимое хладагентом из аппарата

$$Q'_{\text{хлад}} = 8,7 \cdot 10^{-4} \cdot (424286 - 444196) = -17,32 \text{ Вт.}$$

Результаты теплового расчёта десублиматора, работающего в режиме десублимации ГФУ, сведены в таблицу 4.9.

Таблица 4.9 – Тепловой баланс для процесса десублимации ГФУ

Приход			Расход		
Статья прихода	Количество тепла		Статья расхода	Количество тепла	
	Вт	%		Вт	%
Тепло, поступающее с исходной парогазовой смесью	49,08	– 6,69	Тепло, отводимое газовой смесью из аппарата	– 10,94	11,02
Тепло, выделяющееся при десублимации	134,17	– 18,30	Тепло, затрачиваемое на охлаждение	– 26,78	26,99
Тепло, поступающее с хладагентом	– 369,49	136,85	Тепло, отводимое из аппарата хладагентом	– 17,32	17,45
Тепло, поступающее от обогреваемых	87,00	– 11,86	Тепловые потери в окружающую среду	– 44,20	44,54
Всего:	– 99,24	100	Всего:	– 99,24	100

4.3.4.2 Определение количества хладагента

Процесс десублимации гексафторида урана в каждой из кольцевых камер десублиматора проходит в несколько этапов, каждому из которых соответствуют свои определенные температурные и тепловые параметры. Изменение температуры ГФУ в каждой из кольцевых камер зависит от количества переданного тепла хладагентом и схематически показано на рисунке 4.8.

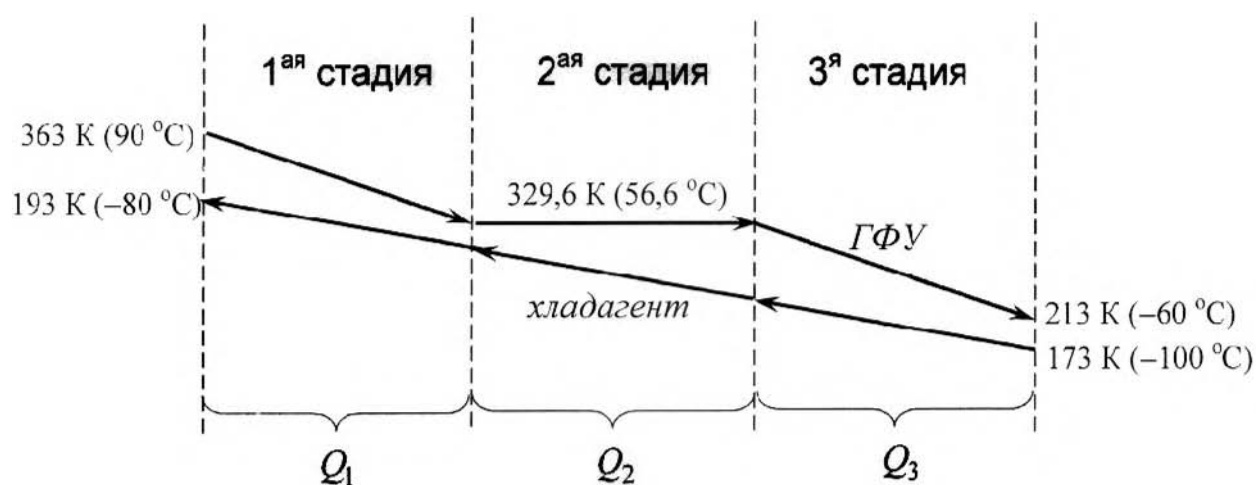


Рисунок 4.8 – Изменение температур гексафторида урана и хладагента в кольцевой камере

Целью расчёта является определение количества хладагента (газообразный азот), необходимого для проведения десублимации в заданных температурных пределах. Параметры исходной парогазовой смеси, поступающей в десублиматор, те же, что и в тепловом расчёте (п. 4.3.4).

Десублимация ГФУ проходит 3 стадии (см. рисунок 4.8):

- первая стадия – охлаждение исходной парогазовой смеси до температуры десублимации ГФУ;
- вторая стадия – конденсация ГФУ при постоянной температуре охлаждения;

- третья стадия – охлаждение десублимата до заданной температуры при одновременном охлаждении оставшейся газовой смеси.

Общую тепловую нагрузку определяем как сумму количеств тепла, соответствующих каждой стадии

$$Q' = Q'_1 + Q'_2 + Q'_3 + Q'_4,$$

где Q' – общая тепловая нагрузка десублиматора, Вт;

Q'_1 – тепло, отводимое при охлаждении исходной парогазовой смеси, Вт;

Q'_2 – тепло, отводимое при десублимации ГФУ, Вт;

Q'_3 – тепло, отводимое при охлаждении ГФУ, Вт;

Q'_4 – тепло, отводимое при охлаждении оставшейся газовой смеси, Вт.

Тепло, отводимое при охлаждении исходной парогазовой смеси, определяем по формулам [104]

$$Q'_1 = \Sigma Q'_i, \quad (4.66)$$

$$Q'_i = c_i \cdot M_i \cdot (t_n - t_{\text{конд}}) \quad (4.67)$$

или

$$Q'_i = M_i \cdot (t_n^i - t_{\text{конд}}^i), \quad (4.68)$$

где Q'_i – тепло, отводимое каждым компонентом парогазовой смеси, Вт;

c_i – удельная теплоемкость каждого компонента смеси, Дж/(кг·К);

M_i – массовый расход каждого компонента смеси, кг/с;

t_n – температура исходной парогазовой смеси, К;

$t_{\text{конд}}$ – температура десублимации ГФУ, К;

t_n^i – удельная энтальпия компонента смеси при температуре исходной парогазовой смеси, Дж/кг;

$t_{\text{конд}}^i$ – удельная энтальпия компонента смеси при температуре десублимации ГФУ, Дж/кг.

Для гексафторида урана тепло, отводимое при охлаждении парогазовой смеси, определяем по формуле (4.68).

Удельную энтальпию газообразного ГФУ, в зависимости от температуры, определяем по формуле [117]

$$i_{\text{газ}} = 8460 + 32,43 \cdot T + 0,003968 \cdot T^2 + 320680 \cdot T^{-2} \quad (4.69)$$

где T – температура ГФУ, К.

Для начальной температуры $T = 363$ К (90°C) парогазовой смеси удельную энтальпию гексафторида урана определяем по формуле (4.69)

$$\begin{aligned} i_n^{UF_6} &= (8460 + 32,43 \cdot 363 + 0,003968 \cdot 363^2 + 320680 \cdot 363^{-2}) \times \\ &\times \frac{1000}{352} \cdot 4,19 = 247,083 \cdot 10^3 \text{ Дж/кг.} \end{aligned}$$

Для температуры десублимации $T = 329,6$ К ($56,6^\circ\text{C}$)

$$\begin{aligned} i_{\text{конд}}^{UF_6} &= (8460 + 32,43 \cdot 329,6 + 0,003968 \cdot 329,6^2 + 320680 \cdot 329,6^{-2}) \times \\ &\times \frac{1000}{352} \cdot 4,19 = 233,104 \cdot 10^3 \text{ Дж/кг.} \end{aligned}$$

Следовательно, теплота охлаждения газообразного гексафторида урана до температуры конденсации по уравнению (4.68) равна

$$Q'_{UF_6} = 9,72 \cdot 10^{-4} \cdot (247083 - 233104) = 13,58 \text{ Вт.}$$

Для остальных компонентов газовой смеси количество отводимого тепла по формуле (4.67) равно

$$Q'_{F_2} = \frac{31,32}{38} \cdot 1000 \cdot \frac{0,227}{3600} \cdot (90 - 56,6) = 1,74 \text{ Вт,}$$

$$Q'_{O_2} = \frac{29,35}{32} \cdot 1000 \cdot \frac{0,422}{3600} \cdot (90 - 56,6) = 3,59 \text{ Вт,}$$

$$Q'_{HF} = \frac{29,14}{20} \cdot 1000 \cdot \frac{0,037}{3600} \cdot (90 - 56,6) = 0,50 \text{ Вт,}$$

$$Q'_{OF_2} = \frac{43,30}{54} \cdot 1000 \cdot \frac{0,034}{3600} \cdot (90 - 56,6) = 0,25 \text{ Вт},$$

$$Q'_{NOF} = \frac{41,34}{49} \cdot 1000 \cdot \frac{0,008}{3600} \cdot (90 - 56,6) = 0,06 \text{ Вт},$$

Суммарное количество тепла, отводимое при охлаждении исходной парогазовой смеси, по формуле (4.66) равно

$$Q'_1 = 13,58 + 1,74 + 3,59 + 0,50 + 0,25 + 0,06 = 19,72 \text{ Вт}.$$

Тепло, отводимое при десублимации ГФУ, определяем как и в п.4.3.4.1, и оно будет равно

$$Q'_2 = Q'_{\text{десуб}} = 134,17 \text{ Вт}.$$

Тепло, отводимое при охлаждении твёрдого ГФУ, определяем по формуле

$$Q'_3 = M_{UF_6} \cdot (i_{\text{конд.тв}}^{UF_6} - i_{\kappa}^{UF_6}),$$

где M_{UF_6} – массовый расход ГФУ, кг/с;

$i_{\text{конд.тв}}^{UF_6}$ – удельная энтальпия твердого ГФУ при температуре десублимации, Дж/(кг·К);

$i_{\kappa}^{UF_6}$ – удельная энтальпия твердого ГФУ при конечной температуре, 213К (минус 60 °С), Дж/(кг·К).

Удельную энтальпию твёрдого ГФУ в зависимости от температуры T , определяем по формуле [115]

$$i_{\text{конд.тв}}^{UF_6} = 9865 - 20,082 \cdot T + 0,080790 \cdot T^2 - 1047920 \cdot T^{-1}. \quad (4.70)$$

Подставляя численные значения температуры по формуле (4.70) и переводя результат в систему измерений СИ, получим

$$\begin{aligned} i_{\text{конд.тв}}^{UF_6} &= (9865 - 20,082 \cdot 329,6 + 0,080790 \cdot 329,6^2 - 1047920 \cdot 329,6^{-1}) \times \\ &\times \frac{1000}{352} \cdot 4,19 = 105266 \text{ Дж / кг} \end{aligned}$$

$$i_{\kappa}^{UF_6} = (9865 - 20,082 \cdot 213 + 0,080790 \cdot 213^2 - 1047920 \cdot 213^{-1}) \times \\ \times \frac{1000}{352} \cdot 4,19 = 51579 \text{ Дж / кг}$$

$$Q'_3 = \frac{3,5}{3600} \cdot (105266 - 51579) = 52,20 \text{ Вт.}$$

Количество тепла, отводимое при охлаждении газовой смеси, выходящей из десублиматора, определяем по формуле 4.67

$$Q'_{F_2} = \frac{31,32}{38} \cdot 1000 \cdot \frac{0,214}{3600} \cdot (56,6 - (-60)) = 5,71 \text{ Вт,}$$

$$Q'_{O_2} = \frac{29,35}{32} \cdot 1000 \cdot \frac{0,471}{3600} \cdot (56,6 - (-60)) = 1,40 \text{ Вт,}$$

$$Q'_{HF} = \frac{29,14}{20} \cdot 1000 \cdot \frac{0,018}{3600} \cdot (56,6 - (-60)) = 0,85 \text{ Вт,}$$

$$Q'_{OF_2} = \frac{43,30}{54} \cdot 1000 \cdot \frac{0,025}{3600} \cdot (56,6 - (-60)) = 0,65 \text{ Вт,}$$

$$Q'_4 = 5,71 + 1,40 + 0,85 + 0,65 = 8,61 \text{ Вт.}$$

Общая тепловая нагрузка десублиматора равна

$$Q = 19,72 + 134,17 + 52,20 + 8,61 = 214,70 \text{ Вт.}$$

Необходимый расход газообразного азота G_{N_2} определяем из уравнения (4.67):

$$214,70 = G_{N_2} \cdot 1073 \cdot (193 - 173),$$

откуда

$$G_{N_2} = \frac{214,70}{1073 \cdot (193 - 173)} = 0,01 \text{ кг/с.}$$

При средней температуре азота $T = 183 \text{ К}$ и нормальном давлении p_0 , плотность газообразного азота будет равна [104]

$$\rho = \frac{M}{22,4} \cdot \frac{273 \cdot p}{T \cdot p_0} = \rho_0 \cdot \frac{273 \cdot p}{T \cdot p_0},$$

где ρ_0 – плотность газа при нормальных условиях, кг/м³, ($\rho_0^{N_2} = 1,25 \text{ кг/м}^3$);

M – молярная масса газа, кг/моль, ($M_{N_2} = 28 \text{ кг/моль}$);

p, p_0 – давления при заданных и при нормальных условиях соответственно, Па.

$$\rho_{N_2} = \frac{28}{22,4} \cdot \frac{273 \cdot 1 \cdot 10^5}{183 \cdot 1 \cdot 10^5} = 1,865 \text{ кг/м}^3.$$

Тогда объёмный расход азота составит

$$V_{N_2} = \frac{G_{N_2}}{\rho_{N_2}} = 5,363 \cdot 10^{-3} \text{ м}^3/\text{с} = 19,31 \text{ м}^3/\text{час}.$$

4.3.4.3 Определение поверхности теплоотдачи

Если в исходных данных для расчёта десублиматора не задана площадь поверхности десублимации, то её необходимо определить расчётным путём. При этом площадь поверхности десублимации определяем для каждой из стадий, показанных на рисунке 4.8 с учётом рассчитанных тепловых нагрузок.

Надо отметить, что при десублимации вещества на охлаждаемой поверхности образуется кристаллический слой продукта, который со временем постепенно увеличивается по толщине и уплотняется. Следовательно, изменяются площадь поверхности теплопередачи и теплофизические свойства (теплопроводность, теплоёмкость, плотность и т.д.) материала. Учесть эти изменения можно методом моделирования с введением поправочных эмпирических коэффициентов, но это значительно усложняет расчёт. Поэтому поверхность десублимации будем рассчитывать по упрощенному варианту с использованием уравнения теплопередачи [104]

$$Q = k \cdot F \cdot \Delta t_{cp}, \quad (4.71)$$

где k – коэффициент теплопередачи, определяющий среднюю скорость передачи тепла вдоль всей поверхности теплообмена, Вт/(м·К);

F – поверхность теплообмена, м²;

Δt_{cp} – средняя разность температур между теплоносителями, определяющая среднюю движущую силу процесса теплопередачи, К.

Коэффициент теплопередачи от парогазовой смеси к холодной стенке принимаем постоянным. Он не меняется при скорости движения газа в пределах от 0,04 до 0,6 м/с. Для нашего расчёта, при принятых размерах десублиматора (см. п. 4.3.2) и заданном расходе исходной парогазовой смеси (см. таблицу 4.5), скорость этой смеси в аппарате определяем по формуле [104]

$$w = \frac{V}{S_c}$$

где V – объёмный расход парогазовой смеси, м³/с;

S_c – площадь проходного сечения десублиматора (см. рис. 4.6), м².

$$S_c = \frac{\pi}{4} \cdot (D^2 - d^2) - n \cdot \frac{\pi \cdot (d_1^{нар})^2}{4} - N \cdot \frac{\pi \cdot (D_1^{нар})^2}{4}.$$

После подстановки всех известных величин, получаем

$$S_c = \frac{3,14}{4} \cdot (0,50^2 - 0,42^2) - 31 \cdot \frac{3,14 \cdot 0,014^2}{4} - 10 \cdot \frac{3,14 \cdot 0,020^2}{4} = 4,989 \cdot 10^{-2} \text{ м}^2.$$

Максимальная скорость парогазовой смеси в десублиматоре составит

$$w = \frac{0,946}{3600 \cdot 4,989 \cdot 10^{-2}} = 5,27 \cdot 10^{-3} \text{ м/с}.$$

При теплопередаче от газа к газу, невысоких давлениях и свободном движении потоков, что соответствует рассматриваемому случаю, коэффициент теплопередачи k в формуле 4.71 рекомендуют принимать в пределах 4-12 Вт/(м²·К) [104]. Принимаем $k = 8 \text{ Вт/(м}^2 \cdot \text{К)}$.

Среднюю разность температур Δt_{cp} , входящую в уравнение теплопередачи (4.71), определяем по формуле [104]

$$\Delta t_{cp} = \frac{\Delta t_{\delta} - \Delta t_{\text{м}}}{\ln \frac{\Delta t_{\delta}}{\Delta t_{\text{м}}}}, \quad (4.72)$$

где Δt_{δ} , Δt_m – большая и меньшая разности температур на концах тепловых потоков, К.

Если отношение $\frac{\Delta t_{\delta}}{\Delta t_m} < 2$, то с достаточной точностью вместо уравнения (4.72) можно применять уравнение

$$\Delta t_{cp} = \frac{\Delta t_{\delta} + \Delta t_m}{2}. \quad (4.73)$$

Поверхность теплообмена десублиматора рассчитывают как сумму поверхностей для каждой стадии, проходящей в аппарате при десублимации (см. рисунок 4.8).

Для первой стадии охлаждения парогазовой смеси при постоянном давлении, равном атмосферному, от температуры 90°C до начала десублимации при температуре $56,6^{\circ}\text{C}$, необходимо отвести количество тепла, определенное в п. 4.3.4.2, $Q'_1 = 19,72$ Вт.

Среднюю разность температур для этой стадии можно определить по графику изменения температур теплоносителей, построенном в масштабе (см. рисунок 4.9).

Из графика следует, что $\Delta t_{\delta} = 170^{\circ}$, $\Delta t_m \approx 138,6^{\circ}$, тогда $\frac{\Delta t_{\delta}}{\Delta t_m} = \frac{170}{138,6} = 1,23$, следовательно, для расчёта средней разности температур можно использовать формулу (4.73). Тогда

$$\Delta t_{cp} = \frac{170 + 138,6}{2} = 154,3^{\circ},$$

а поверхность теплообмена для первой стадии процесса охлаждения газа из уравнения теплопередачи (4.71) равна

$$F_1 = \frac{19,72}{8 \cdot 154,3} \approx 0,02 \text{ м}^2.$$

Для второй стадии количество тепла, отводимого из аппарата при десублимации, рассчитано в п.4.3.4.2 и равно количеству тепла, выделяемому при десублимации ГФУ

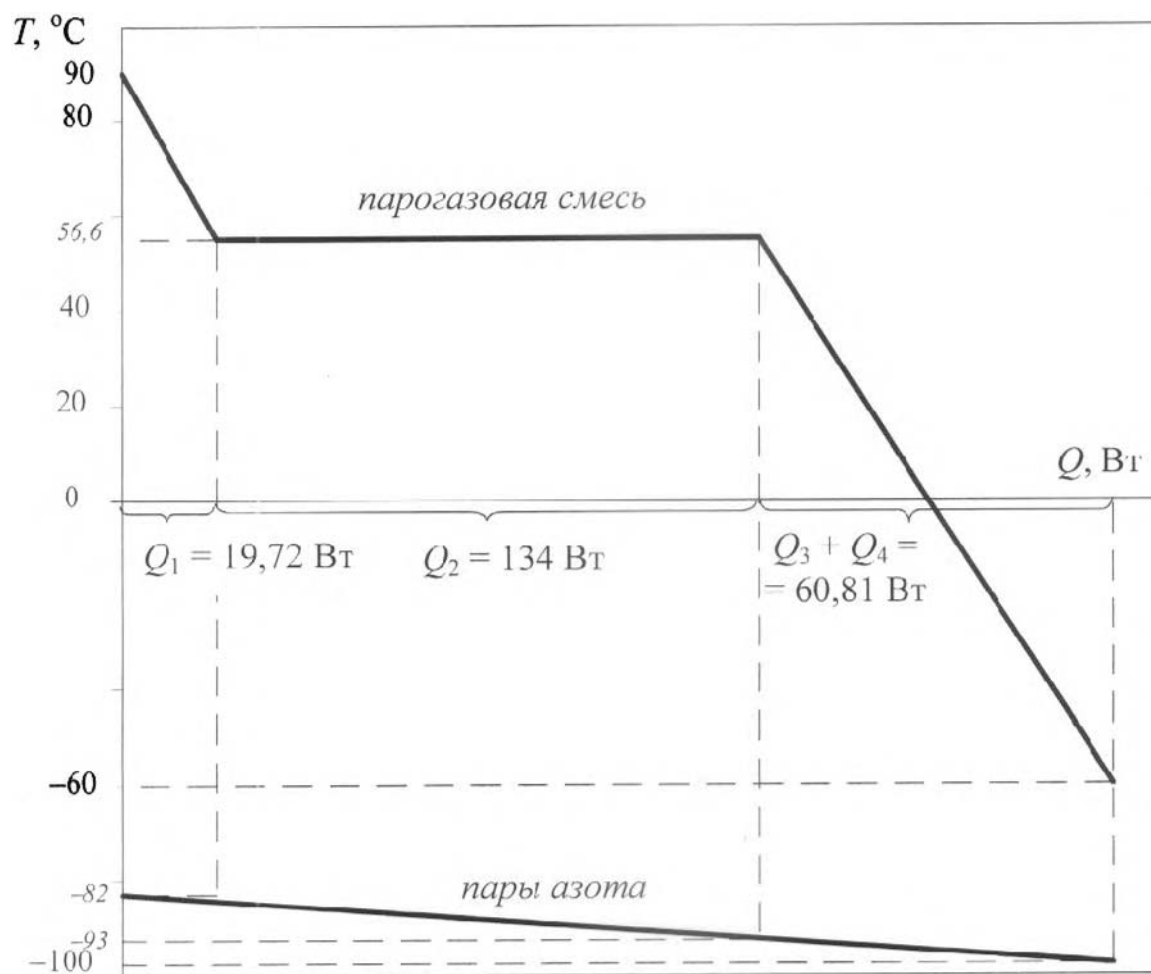


Рисунок 4.9 – Изменение температуры потоков при десублимации ГФУ

$$Q'_2 = Q'_{\text{десуб}} = 134,17 \text{ Вт}.$$

Из графика на рисунке 4.9: $\Delta t_m = 138,6^{\circ}$, $\Delta t_{\bar{o}} = 149,6^{\circ}$.

$$\frac{\Delta t_{\bar{o}}}{\Delta t_m} = \frac{149,6}{138,6} = 1,08, \quad 1,08 < 2.$$

Тогда по формуле (4.73)

$$\Delta t_{cp} = \frac{149,6 + 138,6}{2} = 144,1^{\circ},$$

а поверхность теплопередачи для стадии десублимации будет равна

$$F_2 = \frac{134,17}{8 \cdot 144,1} = 0,88 \text{ м}^2.$$

Для третьей стадии охлаждения гексафторида урана и оставшейся части газовой смеси отводимое тепло рассчитано нами выше

$$Q_3 + Q_4 = 52,20 + 8,61 = 60,81 \text{ Вт.}$$

Из графика на рис. 4.9 определяют: $\Delta t_{\delta} = 149,6^{\circ}$, $\Delta t_m = 40^{\circ}$.

$$\frac{\Delta t_{\delta}}{\Delta t_m} = \frac{149,6}{40} = 3,74, \quad 3,74 > 2,$$

следовательно, средняя разность температур между теплоносителями будет определяться по формуле (4.72)

$$\Delta t_{cp} = \frac{149,6 - 40}{\ln \frac{149,6}{40}} = 83,1^{\circ},$$

а поверхность теплопередачи для этой стадии составит

$$F_3 = \frac{60,81}{8 \cdot 83,1} = 0,091 \text{ м}^2.$$

Общая поверхность теплопередачи процесса десублимации гексафторида урана определится как сумма поверхностей, рассчитанных для каждой стадии десублимации

$$F = F_1 + F_2 + F_3, \quad (4.74)$$

$$F = 0,02 + 0,88 + 0,091 = 0,991 \text{ м}^2.$$

Таким образом, геометрическая поверхность десублиматора гексафторида урана заданной производительности превосходит необходимую поверхность, полученную из условий теплопередачи, что позволит применять данную конструкцию десублиматора и для более высокой производительности по газовому потоку.

4.3.5 Материальный расчёт процесса сублимации ГФУ

После заполнения десублиматора гексафторидом урана, его необходимо освободить от продукта. Продукт выгружают в транспортные контейнеры, которые присоединяют к разгрузочному патрубку (см. рисунок 2.18, поз. 23) или перевозят заполненный десублиматор на завод по разделению изотопов урана, где он разгружается непосредственно в технологи-

ческую линию. Разгрузку осуществляют путём нагрева аппарата, что позволяет перевести гексафторид урана из твёрдой фазы в газообразную и удалить его из аппарата.

Уравнение материального баланса для режима сублимации имеет вид

$$\Sigma M_{\text{прих}} = \Sigma M_{\text{расх}},$$

$$\Sigma M_{\text{прих}} = \Sigma M_{\text{тв.пр}},$$

$$\Sigma M_{\text{расх}} = \Sigma M_{\text{газ.пр}},$$

где $M_{\text{тв.пр}}$ – масса твёрдого продукта в аппарате (см. п. 4.3.4.2), кг;

$M_{\text{газ.пр}}$ – масса газообразного продукта, выходящего из аппарата, кг.

Так как в десублиматоре находится только гексафторид урана, то материальный баланс десублиматора ведётся по данному продукту и поэтому таблица материального баланса имеет простой вид (см. таблицу 4.10).

Таблица 4.10 – Материальный баланс аппарата в режиме сублимации

Приход			Расход		
Статья прихода	кг	%	Статья расхода	кг	%
Твёрдый ГФУ	185,8	100	Газообразный ГФУ	185,8	100
Всего	185,8	100	Всего	185,8	100

Задаваясь временем сублимации $\tau_{\text{суб}}$, т.е. временем разгрузки (например, 6 часов – продолжительность одной рабочей смены), определяем производительность аппарата по гексафториду урана

$$m' = \frac{M_{\text{газ.пр}}}{\tau_{\text{суб}}}$$

или

$$m' = \frac{185,8}{6} = 30,97 \text{ кг/час} = 8,6 \cdot 10^{-3} \text{ кг/с.}$$

Зная производительность десублиматора по газообразному ГФУ, определяем тепловые потоки для режима сублимации.

4.3.6 Тепловой расчёт сублимации ГФУ

Процесс сублимации ГФУ состоит из трех стадий, показанных на рисунке 4.10:

- первая стадия – это нагрев слоя десублимата до температуры сублимации;
- вторая стадия – процесс перехода ГФУ в газообразную фазу;
- третья стадия – нагрев паров гексафторида урана до заданной температуры.

Рассмотрим каждую из этих стадий отдельно.



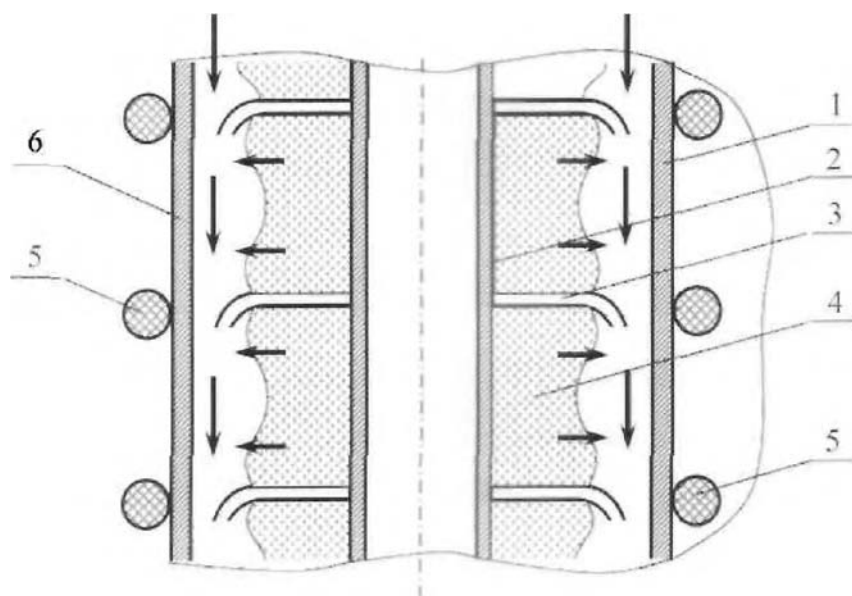
Рисунок 4.10 – Изменение температуры потоков при сублимации ГФУ

Организация процесса сублимации в десублиматоре показана на выносном элементе поперечного сечения десублиматора, заполненного ГФУ (рисунок 4.11). Стрелками на рисунке показано направление потоков ГФУ, переходящего в парообразное состояние.

Для десублимации ГФУ в аппарате создают пониженное давление, а нагреватели на внутренней и наружной стенках кольцевого корпуса аппарата включают на мощность, большую, чем при режиме десублимации.

Нагрев десублимата от внутренней поверхности стенок происходит за счёт конвекции и лучеиспускания. С целью ускорения нагрева и сублимации продукта можно подавать в трубное пространство десублиматора какой-либо теплоноситель, например, предварительно нагретый воздух. При достижении десублиматом температуры сублимации $56,6^{\circ}\text{C}$ он начинает переходить в газообразное состояние.

Движущей силой процесса является разность парциальных давлений возле обогреваемых стенок и над поверхностью десублимата. Поэтому для поддержания этой разности давлений важное значение имеет своевременный отвод образующихся паров ГФУ из десублиматора. Это достигается путем более глубокого разрежения в приёмном (транспортном) контейнере для ГФУ (или в технологической линии), чем в десублиматоре.



1 – внутренняя стенка; 2 – трубка для подачи (или выхода) хладагента (теплоносителя);
3 – кольцевые перегородки; 4 – слой десублимата; 5 – электронагреватели; 6 – наружная стенка

Рисунок 4.11 – Элемент поперечного сечения десублиматора

Уравнение теплового баланса при сублимации имеет вид

$$\Sigma Q'_{\text{прих}} = \Sigma Q'_{\text{расх}}, \quad (4.75)$$

$$\Sigma Q'_{прих} = Q'_{нагр} + Q'_{то},$$

$$\Sigma Q'_{расх} = Q'_{ан} + Q'_{ГФУ} + Q'_{субл} + Q'_{пара} + Q'_{потерь},$$

где $Q'_{нагр}$ – тепло, поступающее от электронагревателей, Вт;

$Q'_{то}$ – тепло, поступающее от теплоносителя в трубном пространстве, Вт;

$Q'_{ан}$ – тепло, расходуемое на нагрев десублиматора, Вт;

$Q'_{ГФУ}$ – тепло, расходуемое на нагрев десублиматора, Вт;

$Q'_{субл}$ – тепло, поглощаемое при сублимации ГФУ, Вт;

$Q'_{пара}$ – тепло, затрачиваемое на нагрев паров ГФУ, Вт;

$Q'_{потерь}$ – тепловые потери при сублимации, Вт.

Определим численные значения каждого из этих тепловых потоков.

Тепло, расходуемое на нагрев десублиматора, определяют по формуле

$$Q'_{ан} = \frac{M_{ан}}{\tau_{ан}} \cdot c_{ан} \cdot (t_{к} - t_{н}) \quad (4.76)$$

где $M_{ан}$ – масса аппарата, кг;

$\tau_{ан}$ – время разогрева аппарата, с;

$c_{ан}$ – теплоёмкость металла аппарата, Дж/(кг · К);

$t_{н}, t_{к}$ – начальная и конечная температуры аппарата, °С.

Массу аппарата определяют по формуле

$$M_{ан} = m_1 + m_2 + 2 \cdot m_3 + k \cdot m_4 + m_5 + m_6, \quad (4.77)$$

где m_1 – масса наружной обечайки корпуса, кг;

m_2 – масса внутренней обечайки корпуса, кг;

m_3 – масса крышки и днища корпуса, кг;

m_4 – масса кольцевых перегородок, кг;

k – количество штук кольцевых перегородок;

m_5 – общая масса трубок для подачи теплоносителя, кг;

m_6 – общая масса трубок для отвода теплоносителя, кг.

Здесь

$$\left. \begin{aligned} m_1 &= \pi \cdot (D + s) \cdot H_1 \cdot s \cdot \rho, \\ m_2 &= \pi \cdot (d - s) \cdot H_1 \cdot s \cdot \rho, \\ m_3 &= \frac{\pi}{4} [(D + 2s)^2 - (d - 2s)^2] \cdot s \cdot \rho, \\ m_4 &= \frac{\pi}{4} \cdot (D^2 - s^2) \cdot s' \cdot \rho, \\ m_5 &= n \cdot H \cdot m_L, \\ m_6 &= N \cdot H \cdot m_L, \end{aligned} \right\} \quad (4.78)$$

где D – внутренний диаметр наружной обечайки (см. рис. 4.6), м;

d – наружный диаметр внутренней обечайки, м;

s – толщина обечаек, м;

H_1 – высота цилиндрической части корпуса десублиматора, м;

ρ – плотность материала десублиматора, кг/м³, (для стали 12X18H10T $\rho = 7850$ кг/м³);

s' – толщина кольцевых перегородок, м;

n, N – количество трубок, подводящих и отводящих теплоноситель (см. п. 4.3.2);

H – высота десублимационной камеры (см. п. 4.3.2), м;

m_L – масса одного метра трубы, кг/м, (для трубы 14×2,5 мм $m_L = 0,71$ кг/м; для трубы 20×2 мм $m_L = 0,89$ кг/м).

После подстановки численных значений величин в формулы (4.78) определяются массы элементов десублиматора

$$m_1 = 3,14 \cdot (0,5 + 0,004) \cdot 1,1 \cdot 0,004 \cdot 7850 = 54,69 \text{ кг},$$

$$m_2 = 3,14 \cdot (0,426 - 0,004) \cdot 1,1 \cdot 0,004 \cdot 7850 = 45,79 \text{ кг},$$

$$m_3 = \frac{3,14}{4} [(0,5 + 2 \cdot 0,004)^2 - (0,426 - 2 \cdot 0,004)^2] \cdot 0,004 \cdot 7850 = 2,06 \text{ кг},$$

$$m_4 = \frac{3,14}{4} (0,5^2 - 0,426^2) \cdot 0,002 \cdot 7850 = 0,85 \text{ кг},$$

$$m_5 = 31 \cdot 1 \cdot 0,71 = 22,01 \text{ кг},$$

$$m_6 = 10 \cdot 1 \cdot 0,89 = 8,90 \text{ кг.}$$

Тогда общая масса аппарата по формуле (4.77) составит

$$M_{an} = 54,69 + 45,79 + 2 \cdot 2,06 + 12 \cdot 0,85 + 22,01 + 8,9 = 145,71 \text{ кг.}$$

Принимая время разогрева аппарата $\tau_m = 1 \text{ час} = 3600 \text{ с}$, теплоёмкость материала десублиматора для стали $c_{an} = 500 \text{ Дж/(кг·К)}$ [104], начальную температуру $t_n = \text{минус } 90^\circ\text{С}$ и конечную температуру $t_k = 90^\circ\text{С}$, определяем количество тепла, затрачиваемое на разогрев пустого аппарата по формуле (4.76)

$$Q'_{an} = \frac{145,71}{3600} \cdot 500 \cdot (90 - (-90)) = 3642,75 \text{ Вт.}$$

Тепло, расходуемое на нагрев десублимата, определяем по формуле

$$Q'_{десуб} = m' \cdot c_{ГФУ}^{мс} \cdot (t_c - t_n),$$

где m' – производительность аппарата по сублимату (см. п. 4.3.7), кг/с;

$c_{ГФУ}^{мс}$ – теплоёмкость твёрдого ГФУ, Дж/(кг · К), ($c_{ГФУ}^{мс} = 404 \text{ Дж/(кг · К)}$ [115]);

t_n, t_c – начальная температура и температура сублимации ГФУ, соответственно, $^\circ\text{С}$.

Тогда

$$Q'_{десуб} = 8,6 \cdot 10^{-3} \cdot 404 \cdot (56,6 - (-60)) = 405,16 \text{ Вт.}$$

Теплоту сублимации ГФУ определяем по формуле:

$$Q'_{суб} = \frac{r \cdot m}{\tau_{суб}},$$

где r – теплота сублимации ГФУ, Дж/кг, ($r = 1,38 \cdot 10^5 \text{ Дж/кг}$);

m – полная масса ГФУ в аппарате (см. п. 4.3.4.2), кг;

$\tau_{суб}$ – время сублимации (см. п.4.3.5), с.

После подстановки

$$Q'_{суб} = \frac{1,38 \cdot 10^5 \cdot 285,8}{6 \cdot 3600} = 1187,06 \text{ Вт.}$$

Тепло, затрачиваемое на нагрев паров ГФУ, определяем по формуле

$$Q'_{\text{пар}} = m' \cdot c_{\text{ГФУ}}^{\text{пар}} \cdot (t_{\text{пар}} - t_c),$$

где $c_{\text{ГФУ}}^{\text{пар}}$ – теплоёмкость парообразного ГФУ (см. таблицу 4.8),

Дж/(кг·К);

$t_{\text{пар}}$ – температура паров ГФУ, °С.

Тогда

$$Q'_{\text{пар}} = 8,6 \cdot 10^{-3} \cdot 129,9 \cdot \frac{1000}{349} \cdot (90 - 56,6) = 106,91 \text{ Вт.}$$

Тепловые потери принимаем равными 10 % от общих энергозатрат для данного процесса, т.е.

$$Q'_{\text{потерь}} = 0,1 \cdot (Q'_{\text{ан}} + Q'_{\text{ГФУ}} + Q'_{\text{субл}} + Q'_{\text{пара}})$$

$$Q'_{\text{потерь}} = 0,1 \cdot (4642,75 + 405,16 + 1187,06 + 106,91) = 534,19 \text{ Вт.}$$

Необходимую тепловую мощность для проведения процесса сублимации ГФУ определяем из теплового баланса процесса согласно уравнению (4.75)

$$Q'_{\text{пара}} + Q'_{\text{то}} = 5876,07 \text{ Вт.}$$

Результаты теплового расчёта приведены в таблице 4.11.

Таблица 4.11 – Тепловой баланс процесса сублимации ГФУ

Приход			Расход		
Статья прихода	Вт	%	Статья расхода	Вт	%
Тепло, поступающее в десублиматор от источников тепла	5876,07	100	Тепло для нагрева аппарата	3642,75	61,99
			Тепло для нагрева десублиматора	405,16	6,90
			Тепло, расходуемое на сублимацию	1187,16	20,20
			Тепло для нагрева паров ГФУ	106,91	1,82
			Тепловые потери	534,19	9,09
Всего	5876,07	100	Всего	5876,07	100

Расчёт мощности электронагревателя без подачи теплоносителя производим следующим образом: если в режиме сублимации в аппарат не подается теплоноситель, т.е. $Q'_{то} = 0$, то по полученному значению необходимой теплоты определяем мощность электрического нагревателя

$$N'_{нагр} = \frac{Q'_{нагр}}{\eta},$$

где η – коэффициент полезного действия нагревателя.

Тогда

$$N'_{нагр} = \frac{5876,07}{0,85} = 6902,44 \text{ Вт.}$$

Округляя полученное значение, принимаем $N'_{нагр} = 7000 \text{ Вт.}$

Если при сублимации ГФУ в трубное пространство подают теплоноситель, то необходимо определить его расход. Для этого, по усмотрению конструктора, общие затраты тепла делят на две части: тепло, поступающее от нагревателя, и тепло, поступающее от теплоносителя. В зависимости от величины второй части ведут расчёт расхода теплоносителя.

Если за счёт электрообогрева поступает 4000 Вт тепла (при этом мощность электронагревателя будет равняться

$$N'_{нагр} = \frac{4000}{0,85} = 4705,8 \approx 4700 \text{ Вт}), \text{ то с теплоносителем в аппарат должно по-}$$

ступать тепло в количестве

$$Q'_{то} = Q' - Q'_{нагр}$$

или

$$Q'_{то} = 5867,07 - 4000 = 1867,07 \text{ Вт.}$$

Расход тёплого воздуха, подаваемого в трубное пространство десублиматора, определим по формуле

$$Q'_{то} = G_{возд} \cdot c_{возд} \cdot (t_{нв} - t_{кв}),$$

где $G_{возд}$ – расход воздуха, кг/с;

$c_{возд}$ – теплоёмкость воздуха, Дж/(кг·К), $c_{возд} = 1005 \text{ Дж/(кг·К)}$, [104];

$t_{нв}$ – температура воздуха при входе в аппарат, К, $t_{нв} = 373$ К;

$t_{кв}$ – температура воздуха при выходе из аппарата, К, $t_{кв} = 273$ К.

Тогда

$$G_{возд} = \frac{Q'_{то}}{c_{возд} \cdot (t_{нв} - t_{кв})},$$
$$G_{возд} = \frac{1867,07}{1005 \cdot (373 - 273)} = 1,86 \cdot 10^{-2} \text{ кг/с}.$$

Плотность воздуха при температуре 373 К и атмосферном давлении составляет $1,016 \text{ кг/м}^3$, тогда объёмный расход нагретого воздуха будет равен $G_{возд} = 1,86 \cdot 10^{-2} \text{ м}^3/\text{с} = 65,9 \text{ м}^3/\text{час}$.

В случае сублимации ГФУ только за счёт поступления тепла от теплоносителя задаём значение $Q'_{нагр} = 0$, тогда

$$\Sigma Q'_{прих} = Q'_{то}.$$

Дальнейший расчёт расхода теплоносителя проводим по аналогии с расчётом, описанным выше.

4.3.7 Расчёт теплоизоляции

Основной задачей расчёта тепловой изоляции является определение потерь тепла и температур в изоляционном слое при заданной изоляционной конструкции или толщине изоляционного слоя, удовлетворяющих определенным требованиям. Обычно толщину изоляционного слоя определяют по заданной температуре на поверхности изоляции для случаев, когда тепловая потеря изолированного объекта не регламентирована, а изоляция необходима как средство, обеспечивающее нормальную температуру воздуха в рабочих помещениях или предохраняющее обслуживающий персонал от термического воздействия. При этом температуру на поверхности изоляции принимают равной $45\text{-}50^\circ\text{C}$ в закрытых помещениях [120].

В отдельных случаях могут быть заданы и другие значения температур на поверхности.

Десублиматор в режиме сублимации имеет температуру наружных стенок 100 °С, поэтому корпус аппарата необходимо теплоизолировать. Аппарат изолируется двумя элементами конструкции: цилиндрической изоляцией вокруг корпуса и плоской изоляцией в форме диска с торцов этого корпуса. В качестве изоляционного материала используют, например, перлит вспученный в засыпке – песок марки 150 [121], представляющий собой пористый материал в виде песка, получаемый термической обработкой дробленых водосодержащих вулканических стекол. Перлит применяют для засыпки изолируемых поверхностей от минус 200 до +875 °С.

Для плоской поверхности толщину изоляционного слоя $\delta_{из1}$ определяем по формуле [104]

$$\delta_{из1} = \frac{\lambda_{из} \cdot (t - t_k)}{\alpha_{н1} \cdot (t_k - t_n)},$$

где $\lambda_{из}$ – коэффициент теплопроводности изоляционного материала, Вт/(м·К);

t_k – температура на поверхности изоляции, К;

t_n – температура под изоляцией, К;

$\alpha_{н1}$ – коэффициент теплоотдачи для плоской поверхности изоляции в окружающий воздух от поверхности, находящейся в помещении, Вт/(м·К), равный [122]

$$\alpha_{н1} = 9,74 + 0,07 \cdot (t_k - t_n);$$

t_n – температура окружающего воздуха, К.

Изоляционный материал выбираем из имеющейся литературы [122].

Для перлита

$$\lambda_{из} = 1,163 (0,05 + 0,0001 t_{cp}).$$

Среднюю температуру изоляции определяем по формуле

$$t_{cp} = \frac{t + t_k}{2}.$$

Тогда

$$t_{cp} = \frac{373 + 318}{2} = 345,5 K = 72,5 \text{ } ^\circ\text{C},$$

$$\lambda_{из} = 1,163 (0,05 + 0,0001 \cdot 72,5) = 0,067 \text{ Вт/(м}^2\cdot\text{К)},$$

$$\alpha_{н1} = 9,74 + 0,07 \cdot (318 - 298) = 11,14 \text{ Вт/(м}^2\cdot\text{К)};$$

$$\delta_{из1} = \frac{0,067 \cdot (373 - 318)}{11,14 \cdot (318 - 298)} = 16,54 \cdot 10^{-3} \text{ м.}$$

Принимаем $\delta_{из1} = 20 \text{ мм.}$

Для цилиндрической поверхности при расчете теплоизоляции применяем формулу [122]

$$\frac{d_{\kappa}}{d_{\text{н}}} \cdot \ln \frac{d_{\kappa}}{d_{\text{н}}} = \frac{2 \cdot \lambda_{из} \cdot (t - t_{\kappa})}{\alpha_{н2} \cdot d_{\text{н}} \cdot (t_{\kappa} - t_{\text{н}})},$$

где $\alpha_{н2}$ – коэффициент теплоотдачи для цилиндрической поверхности изоляции в окружающий воздух от поверхности, находящейся в помещении, Вт/(м²·К), равный [104]

$$\alpha_{н2} = 9,74 + 0,07 \cdot (t_{\kappa} - t_{\text{н}}).$$

После определения по $x \cdot \ln x$ значения $x = \frac{d_{\kappa}}{d_{\text{н}}}$, толщину изоляции определяем по формуле

$$\delta_{из2} = \frac{d_{\text{н}}}{2} \cdot \left(\frac{d_{\kappa}}{d_{\text{н}}} - 1 \right),$$

где $d_{\text{н}}$ - наружный диаметр изолируемого объекта, м;

d_{κ} - наружный диаметр изоляционной конструкции, м.

Тогда

$$\alpha_{н2} = 9,74 + 0,07 \cdot (318 - 298) = 11,14 \text{ Вт/(м}^2\cdot\text{К)};$$

$$\frac{d_{\kappa}}{d_{\text{н}}} \cdot \ln \frac{d_{\kappa}}{d_{\text{н}}} = \frac{2 \cdot 0,067 \cdot (373 - 318)}{11,14 \cdot 0,53 \cdot (318 - 298)} = 0,0624.$$

Этому значению функции соответствует $x = 1,0606$, тогда

$$\delta_{из2} = \frac{0,53}{2} \cdot (1,0606 - 1) = 16 \cdot 10^{-3} \text{ м.}$$

Принимаем $\delta_{из2} = 20 \text{ мм.}$

Определение потерь тепла в окружающую среду производим в следующем порядке.

Тепловые потери с единицы поверхности изоляции определяем по формулам [122]

- для однослойной плоской стенки

$$q = \frac{\lambda_{из} \cdot (t - t_k)}{\delta_{из}};$$

- для однослойной цилиндрической стенки на единицу длины цилиндра

$$q_l = \frac{2 \cdot \pi \cdot \lambda_{из} \cdot (t - t_k)}{\ln \frac{d_k}{d_n}}.$$

После подстановки численных значений величин получаем

$$q = \frac{0,067 \cdot (373 - 318)}{0,02} = 184,25 \text{ Вт/м}^2,$$

$$q_l = \frac{2 \cdot 3,14 \cdot 0,067 \cdot (100 - 45)}{\ln \frac{0,57}{0,53}} = 318,06 \text{ Вт/м.}$$

Площадь наружной поверхности изоляции для верхней плоской крышки будет равна

$$f_1 = \frac{\pi \cdot d_k^2}{4} = \frac{3,14 - 0,57^2}{4} = 0,255 \text{ м}^2.$$

Потери тепла составят:

- для двух плоских поверхностей (торцы аппарата)

$$Q'_1 = 2 \cdot q \cdot f_1 = 2 \cdot 184,25 \cdot 0,255 = 93,97 \text{ Вт};$$

- для цилиндрической поверхности

$$Q'_2 = 2 \cdot q_l \cdot H_{cm} = 318,06 \cdot 1,4 = 445,28 \text{ Вт},$$

где H_{cm} - высота корпуса десублиматора, м.

Общие потери тепла составят

$$Q'_{потерь} = Q'_1 + Q'_2 = 93,97 + 445,28 = 539,25 \text{ Вт.}$$

Из расчёта следует, что рассчитанные тепловые потери и потери тепла, принятые в п.4.3.6 ($Q'_{потерь} = 534,19$ Вт) практически совпадают, следовательно, расчёт выполнен верно.

Результаты расчёта сведены в таблицу 4.12.

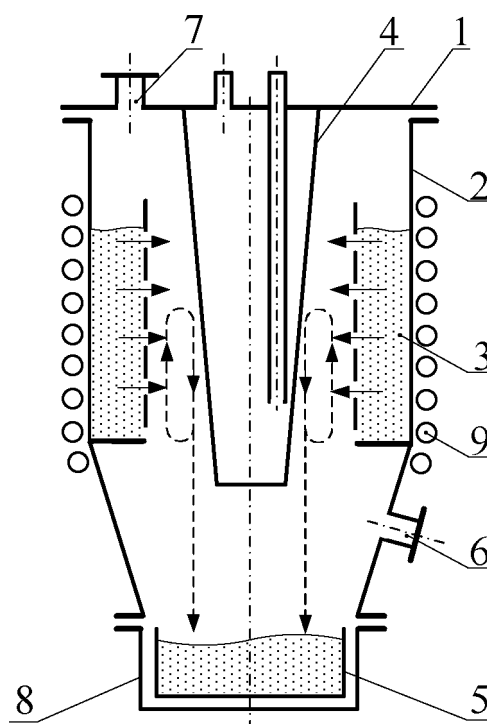
Далее проводят конструктивный расчёт десублиматора, заключающийся в расчёте диаметра патрубков для подвода и отвода продуктов и хладагента (теплоносителя) по их объёмным расходам, подбор фланцев к этим патрубкам и проверочный расчёт на прочность при гидравлических испытаниях аппарата в соответствии с [104].

Таблица 4.12 – Таблица основных рассчитанных параметров вертикального десублиматора кольцевого типа

№ п/п	Параметр	Единица измерений	Величина
1	Вместимость по ГФУ (при степени заполнения 80 %)	кг	186
2	Площадь теплообмена	м ²	3,6
3	Расход хладагента (пары азота)	кг/час	3,13
4	Температура хладагента на входе	К (°C)	173 (–100)
5	Температура хладагента на выходе	К (°C)	193 (–80)
6	Время десублимации (заполнения)	час	53
7	Время десублимации (опорожнения)	час	6
8	Общая мощность электронагревателя при опорожнении (для случая нагрева ТЭНами)	кВт	5,6
9	Расход нагретого воздуха при опорожнении (для случая нагрева теплоносителем)	м ³ /час	65,9.
10	Температура нагретого воздуха	К (°C)	373 (100)
11	Толщина стенок аппарата	мм	4
12	Высота зоны десублимации	м	1,0
13	Наружный диаметр аппарата (с теплоизоляцией)	м	0,562
14	Внутренний диаметр аппарата (с теплоизоляцией)	м	0,366
15	Общая высота аппарата	м	1,45
16	Масса аппарата (без теплоизоляции)	кг	145,7

4.4 Расчёт объёмного десублиматора

Объёмные десублиматоры сочетают простоту конструкции и непрерывность процесса с большой эффективностью. Образование и рост твёрдой фазы в таких аппаратах происходит во всем рабочем объёме и позволяет получать продукт в порошкообразном виде с заданным гранулометрическим составом. Схема десублиматора, в котором используется объёмная десублимация, показана на рисунке 4.12.



1 – крышка; 2 – корпус; 3 – камера для исходного продукта; 4 – охлаждаемый десублиматор; 5 – приёмник десублимата; 6 – патрубок для подачи охлаждающего газа; 7 – сброс газа; 8 – днище; 9 – нагреватель

Рисунок 4.12 – Схема объёмного десублиматора

Инициирование объёмной десублимации в аппарате можно производить одним из следующих способов [17]:

- а) смешением горячей парогазовой смеси с охлаждающим газом;
- б) протеканием химической реакции;
- в) адиабатическим расширением газов.

Проведённые исследования [123] процесса десублимации фторидов металлов IV группы (например, тетрафторида циркония) показали возможность получения сыпучего продукта со значительной очисткой от примесей путём адиабатического расширения газа, который нагревают до той же температуры, что и парогазовую смесь. В результате адиабатического расширения начинается образование зародышей, которые уносятся восходящим потоком газа в камеру роста. В этой камере зародыши задерживаются, начинают расти и, достигнув определенных размеров, твёрдые частицы опускаются в сборник готового продукта. Размеры получаемых твёрдых частиц продукта зависят от условий десублимации и скорости восходящего потока газа.

Процесс десублимации парогазовой смеси в объёме аппарата – это сложный и мало изученный процесс. Из-за отсутствия надежных методик расчёта новые конструкции объёмных десублиматоров разрабатывают, в основном, путём анализа экспериментальных исследований, направленных на обеспечение получения продукта требуемого гранулометрического состава при заданной производительности.

4.4.1 Определение скорости гомогенного зародышеобразования

При образовании твёрдой фазы из газообразной важное место занимают процессы переноса в пределах этих фаз, зародышеобразования и роста отдельных кристаллов.

Для образования зародышей требуется поверхность для десублимации. Такую поверхность образуют маленькие кластеры молекул пара, ионы, ионные кластеры и небольшие частицы различных веществ, называемые ядрами десублимации; в общем случае их можно назвать зародышем. Зародыш – это минимальное скопление новой фазы, находящейся в равновесии с газовой средой. Если десублимация происходит исключительно на

зародышах, образованных молекулами этого же пара, процесс называется спонтанной или гомогенной нуклеацией. Если же пар десублимируется на зародышах из другого вещества, то процесс носит название гетерогенной нуклеации. Гомогенная нуклеация происходит в три стадии [124]:

- 1) образование пересыщенного пара, происходящее при расширении пара;
- 2) образование малых молекулярных зародышей;
- 3) десублимация пара на зародышах и рост этих зародышей.

Интенсивность протекания фазового перехода из газовой в твёрдую фазу определяется возможностью осуществления начала фазового перехода. Десублимация протекает в условиях отклонения от равновесного состояния и образования новой фазы – кристаллических зародышей.

Скорость образования зародышей зависит от степени пересыщения пара. Зная критическую степень пересыщения пара $S_{кр}$, можно рассчитать скорость гомогенного (спонтанного) зародышеобразования I , используя теории Фольмера и Вебера [25].

При гомогенной десублимации под критическим пересыщением понимают такое состояние парогазовой смеси, когда скорость образования зародышей, способных к дальнейшему росту, равна единице, то есть $I = 1 \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$.

Скорость гомогенного зародышеобразования определяется выражением [125]

$$I = K \cdot e^{\left(\frac{\Delta G}{k \cdot T}\right)}, \quad (4.79)$$

где K – кинетический множитель;

e – основание натурального логарифма;

ΔG – энергия Гиббса, дин/см;

k – постоянная Больцмана, эрг/К;

T – температура смеси, К.

Кинематический множитель K определяют из выражения

$$K = \frac{\alpha}{\rho} \cdot \left(\frac{2 \cdot m \cdot \sigma}{\pi} \right)^{1/2} \cdot \left(\frac{P}{k \cdot T} \right)^2 = 10^{26} \cdot \frac{\alpha}{\rho} \cdot \left(\frac{P}{T} \right)^2 \cdot (M \cdot \sigma)^{1/2}, \quad (4.80)$$

где α – коэффициент десублимации, равный от 0 до 1,0;

ρ – плотность десублимата, г/см³;

m – масса продукта, г;

σ – поверхностное натяжение, дин/см;

P – давление парогазовой смеси, мм. рт. ст.;

M – молекулярная масса десублимата, г/моль.

Энергия Гиббса в случае гомогенного зародышеобразования равна [125]

$$\Delta G = \frac{16 \cdot \pi \cdot \sigma^3 \cdot V^2}{3 \cdot \left[k \cdot T \cdot \ln \left(\frac{P}{P_{\infty(T)}} \right) \right]^2} = \frac{16 \cdot \pi}{3 \cdot \ln^2(S_{kp})} \cdot \left(\frac{M}{\rho} \right)^2 \cdot \left(\frac{\sigma}{T} \right)^3, \quad (4.81)$$

где V – удельный объём десублимата, м³;

$P_{\infty(T)}$ – давление над плоской поверхностью десублимата при данной температуре, мм рт. ст.

Величина давления $P_{\infty(T)}$ связана с температурой процесса десублимации соотношением [124, 126]

$$\ln P_{\infty(T)} = A - \frac{\varepsilon}{T}, \quad (4.82)$$

где A , ε – коэффициенты, присущие для данного вещества.

Поверхностная энергия определяется по уравнению [126]

$$\sigma = \frac{\Delta H - R \cdot T}{V^0} \cdot \frac{\Delta n}{n} \cdot h, \quad (4.83)$$

где ΔH – изменение энтальпии, кДж/моль;

R – универсальная газовая постоянная, Дж/(моль·К);

V^0 – мольный объём, см³/моль;

n – координационное число;

h – толщина монослоя молекулы (для фторидов 0,2 – 0,3 нм) [123].

4.4.2 Кинетика роста частиц

Кинетика роста частиц является важной характеристикой процесса десублимации. Количество и размеры твердой фазы, получающейся при непрерывной десублимации, зависят от скорости процессов зародышеобразования и роста частиц. Незначительное возрастание пересыщения парогазовой смеси приводит к заметному увеличению числа новых зародышей, которые затем растут и, обладая большой суммарной поверхностью роста, способствует значительному уменьшению концентрации парогазовой смеси. Частицы критического размера в каждый момент времени имеют нулевые скорости роста, однако сам критический радиус со временем увеличивается, что объясняется уменьшением пересыщения в парогазовой смеси [26].

Существует определённый энергетический барьер, который препятствует росту частиц с размером меньше критического.

Величина степени пересыщения связана с радиусом образующихся при этом зародышей соотношением [124, 126]

$$\ln S = \frac{2 \cdot \sigma \cdot M}{R \cdot T \cdot \rho \cdot r_{кр}}, \quad (4.84)$$

где S – степень пересыщения;

M – масса одного моля вещества, г;

$R = 8,314$ Дж/(моль·К) – универсальная газовая постоянная;

$r_{кр}$ – критический радиус зародыша, см.

Пересыщению S , существующему в системе в каждый момент времени, соответствует определенный критический размер частицы. Радиус критического сферического зародыша $r_{кр}$ определяют из уравнения Томсона [124, 127]:

$$r_{кр} = \frac{2 \cdot \sigma \cdot M}{\rho \cdot R \cdot T \cdot \ln S}. \quad (4.85)$$

После достижения зародышем критического размера $(1-0,1) \cdot 10^{-3}$ мкм, которому соответствует максимальное значение энергии Гиббса, зародыш имеет тенденцию к неограниченному росту [124].

При движении частицы в парогазовой среде скорость её роста может изменяться. Кинетика роста частиц зависит от многих факторов: концентрации, пересыщения, температуры, продолжительности витания, скорости газоносителя и т.д. Теоретически выявить зависимости скорости роста частиц одновременно от всех факторов невозможно. Поэтому для исследования кинетики изменения размеров (массы) частиц применяют прямые и косвенные методы.

Сущность прямых методов заключается в непосредственном измерении масс (размеров) частиц в процессе их роста. Эти методы применяют при исследовании кинетики роста отдельных частиц.

Косвенные методы исследования роста твёрдых частиц заключаются в измерении в процессе эксперимента каких-либо параметров, связанных известным соотношением с кинетикой этих процессов. Например, скорость роста частиц можно определить из уравнения движения, если знать скорость её падения и ускорение при свободном движении частицы [128].

Скоростью роста частиц в реальных условиях можно управлять путём изменения каких-либо параметров процесса: скорости газа-носителя, температуры, времени нахождения частиц в зоне десублимации аппарата и т.д.

4.4.3 Осаждение твёрдых частиц под действием силы тяжести

4.4.3.1 Свободное осаждение

Осаждение твёрдых частиц в стационарной газовой среде широко используют для разделения двухфазных и многофазных систем. Физиче-

ские характеристики движения твёрдых частиц в газе зависят не только от свойств системы, но и от ряда других факторов, связанных с условиями обтекания, то есть с теорией граничного слоя и с законом сопротивления [104].

Движение частиц в движущейся среде изучено недостаточно. Обычно предполагают, что сопротивление среды аналогично сопротивлению, испытываемому частицей при её движении в стационарной среде. Выражение, связывающее скорость движения частицы и сопротивление среды, является уравнением в частных производных, которое имеет сложный вид и для практических расчётов малоприспособно.

В работе [123] рассмотрены методы определения скорости падения частиц сферической или неправильной формы и управления этим процессом путём изменения скорости газа-носителя (скорости противоточного поддува). При таком движении частиц принимают следующие допущения:

- при небольших концентрациях частиц в газовом потоке их движение можно рассматривать как движение одиночной частицы. В этом случае можно пренебречь эффектом коагуляции частиц, что позволяет рассматривать частицы монодисперсными и не влияющими при движении друг на друга [129];

- частица падает под действием силы тяжести и будет увеличивать свою скорость до тех пор, пока сила сопротивления среды не уравновесит силу тяжести. Затем частица будет продолжать движение равномерно с постоянной скоростью, которую называют скоростью свободного осаждения.

В основе всех динамических расчетов дисперсных двухфазных потоков лежит второй закон Ньютона [130]:

$$m \frac{d\bar{U}}{d\tau} = \sum \bar{F}_i, \quad (4.86)$$

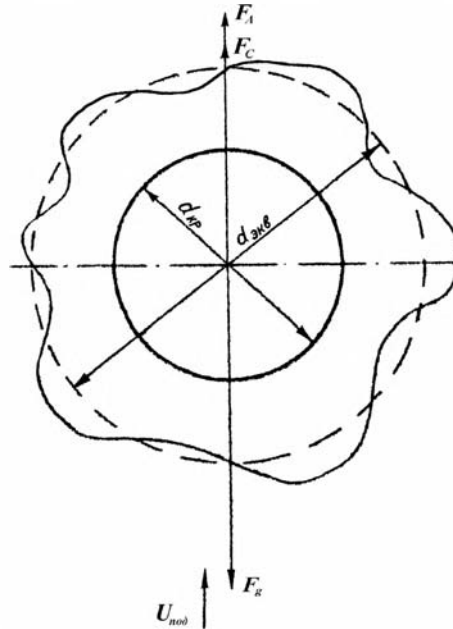
где m – масса частицы, кг;

$\bar{U}$ – вектор скорости частицы, м/с;

τ – время движения частицы, с;

$\sum \vec{F}_i$ – сумма векторов сил, действующих на частицу, Н.

При движении частицы подвергаются воздействию ряда сил [131], показанных на рисунке 4.13, которые способствуют удалению этих частиц из потока.



F_g – сила тяжести; F_a – подъёмная сила Архимеда; F_c – сила сопротивления Стокса

Рисунок 4.13 – Схема сил, действующих на частицу в подвижной среде

Для определения режима осаждения частиц и, следовательно, выбора формул для расчёта скорости осаждения, можно использовать критерий Рейнольдса

$$Re = \frac{U \cdot d_r \cdot \rho_T}{\mu}, \quad (4.87)$$

где U – скорость осаждения, м/с;

d_r – диаметр частицы, м;

ρ_T – плотность твердых частиц, кг/м³;

μ – динамический коэффициент вязкости, Па·с.

Значение критерия Re определяют через критерий Архимеда, который равен

$$Ar = \frac{d_r^3 \cdot \rho_{cp} \cdot g \cdot (\rho_T - \rho_{cp})}{\mu^2}, \quad (4.88)$$

где ρ_{cp} – плотность среды, кг/м^3 ;

g – ускорение свободного падения, м/с^2 .

Тогда уравнение движения для вертикального дисперсного двухфазного потока с учётом сил тяжести частиц F_g , Н, гидравлического сопротивления среды F_c , Н, и подъемной силы F_a , Н, при ламинарном потоке имеет вид [131]

$$m \frac{dU}{d\tau} = F_g - F_a - F_c, \quad (4.89)$$

где F_g – сила тяжести, равная $F_g = m \cdot g$, Н;

F_a – подъёмная сила Архимеда, $F_a = \frac{m \cdot \rho_{cp} \cdot g}{\rho_T}$, Н;

F_c – сила сопротивления Стокса, $F_c = 3 \cdot \pi \cdot d_r \cdot \mu \cdot U_{oc}$, Н.

Конечная скорость, которой может обладать частица, это скорость, достигаемая при условии, что сопротивление среды $(\overline{F}_c + \overline{F}_a)$ становится равным внешней силе, действующей на частицу. В случае, если внешней силой является сила тяжести, скорость установившегося движения, U_{oc} , определяется из уравнения [132]

$$U_{oc} = \frac{d_r^2 \cdot g \cdot (\rho_T - \rho_{cp})}{18 \cdot \mu}. \quad (4.90)$$

Выражение (4.90) называется формулой Стокса. Оно справедливо для области ламинарного движения частиц при $Re < 2$ [130].

Скорость же осаждения одиночной частицы во всех режимах обтекания приближенно можно рассчитать по формуле, предложенной О. Тоде-сом [132]

$$\text{Re} = \frac{Ar}{18 + 0,61\sqrt{Ar}}, \quad (4.91)$$

здесь

$$Ar = \frac{U_{oc} \cdot d_r \cdot \rho_{cp}}{\mu}. \quad (4.92)$$

При расчёте можно определить либо диаметр частицы d_r , задаваясь скоростью осаждения U_{oc} , либо определить скорость осаждения U_{oc} , задаваясь диаметром частиц d_r .

Диаметр частицы d_r по известной скорости осаждения U_{oc} рассчитывают в следующем порядке:

1) вычисляют критерий Лященко Ly по уравнению [104]:

$$Ly = \frac{U_{oc}^3 \cdot \rho_{cp}^2}{\mu \cdot (\rho_T - \rho_{cp}) \cdot g}; \quad (4.93)$$

2) определяют значение критерия Архимеда по графической зависимости $Ar = f(Ly)$ (см. приложение Н);

3) рассчитывают диаметр частиц d_r , осаждающихся со скоростью U_{oc} , по формуле [104]

$$d_r = \sqrt[3]{\frac{Ar \cdot \mu^2}{(\rho_T - \rho_{cp}) \cdot \rho_{cp} \cdot g}}. \quad (4.94)$$

Скорость свободного осаждения U_{oc} по известному диаметру частицы d_r определяют в следующем порядке:

1) рассчитывают значение критерия Архимеда по уравнению (4.88);

2) вычисляют значение критерия Рейнольдса по уравнению (4.91);

3) определяют скорость осаждения частицы по формуле

$$U_{oc} = \frac{\mu \cdot \text{Re}}{d_r \cdot \rho_{cp}}. \quad (4.95)$$

При осаждении частиц неправильной формы необходимо учитывать отклонение их формы от шарообразной, вводя в расчёт вместо d_r эквивалентный диаметр $d_{э\kappa\text{в}}$ (см. рис. 4.13), который определяют по формуле [113]

$$d_{\text{эКБ}} = \sum_{i=1}^n \Delta_i \cdot d_i, \quad (4.96)$$

где Δ_i – массовая доля i -той фракции в слое;

d_i – средний диаметр i -той фракции, м;

n – количество фракций.

Сферическая форма частиц – это одно из допущений, сделанных при выводе закона Стокса. В реальных случаях частицы могут иметь различные формы, зависящие от условий их образования. Для частиц в виде длинных цепочек или хлопьевидной формы возможны большие отклонения от закона Стокса. В этом случае в формулу Стокса вводят поправочный динамический коэффициент формы f_q , определяемый по формулам [133]

$$f_q = \begin{cases} \left(0,843 \cdot \lg \frac{1}{0,065 \cdot f} \right)^{-1}, & \text{при } \text{Re}_{om} < 0,2; \\ f^{0,9} \cdot \text{Re}_{om}^{0,15 \sqrt{f-1}}, & \text{при } 0,2 < \text{Re}_{om} < 2 \cdot 10^3; \\ 1 + 11,6 \cdot (\sqrt{f} - 1), & \text{при } \text{Re} > 2 \cdot 10^3, \end{cases} \quad (4.94)$$

где f – коэффициент формы (см. таблицу 4.12);

$\text{Re}_{om} = |U_{om}| \cdot d \cdot \rho_{cp} / \mu$ – критерий Рейнольдса;

U_{om} – относительная скорость между частицей и газом, м/с.

Таблица 4.13 – Значения коэффициентов формы и сферичности для различных форм десублимирующихся частиц

Форма частиц	Коэффициент формы, f	Коэффициент сферичности, φ
Круглые	1,30	0,77
Угловатые	1,52	0,66
Продолговатые	1,72	0,58
Пластинчатые	2,33	0,43

При оценке скорости осаждения твёрдых частиц взаимодействием между ними обычно пренебрегают, так как расстояние между частицами велико относительно их размера. При стесненном осаждении частиц коэффициент сопротивления за счёт соударения твёрдых частиц друг о друга будет больше, чем в случае осаждения одиночной частицы. Для характеристики слоя частиц вводят понятие порозности слоя ε , которая определяется как доля объёма пустот между частицами в общем объёме слоя

$$\varepsilon = \frac{V_{сл} - V}{V_{сл}}, \quad (4.98)$$

где $V_{сл}$ – объём взвешенного слоя, м^3 ;
 V – объём, занимаемый частицами, м^3 .

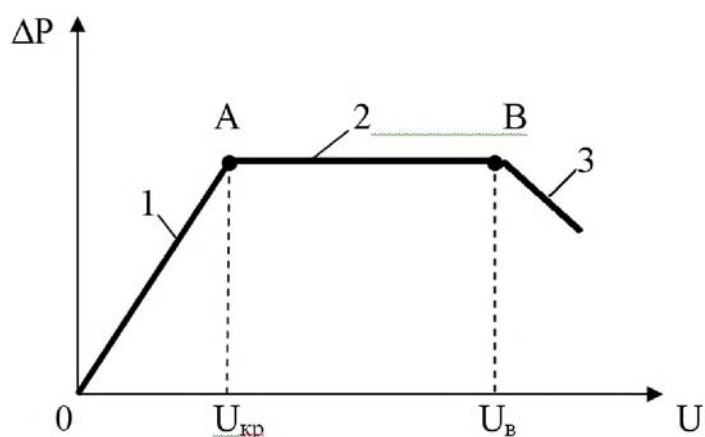
4.4.3.2 Осаждение из псевдооживленного слоя

Для организации непрерывного технологического процесса десублимации, а также его интенсификации применяют десублиматоры с псевдооживленным слоем. Механизм таких процессов складывается из следующих стадий:

- 1) смешение реагентов в пределах псевдооживленного слоя и создание пересыщенного состояния парогазовой смеси;
- 2) десублимация парогазовой смеси на частицах слоя и в газовой фазе;
- 3) осаждение твёрдых частиц, достигших заданных размеров.

Взвешенный (или псевдооживленный) слой образуется в бинарных гетерогенных системах при пропускании с определенными скоростями потока менее плотной фазы снизу вверх через слой более твердой фазы [133]. Взвешенный слой характеризуется тем, что масса тяжелой фазы (силы тяжести) уравнивается трением газа о частицы. Тяжёлая фаза не лежит на опоре, а "подвешена" в потоке лёгкой фазы. Частицы твёрдого материала витают в потоке легкой фазы, пульсируют, совершают вихревые движе-

ния, но не покидают пределов слоя при значительном увеличении линейной скорости лёгкой фазы вследствие одновременного увеличения порозности, то есть доли лёгкой фазы в слое. В процессе псевдооживления можно выделить три режима. При очень малых линейных скоростях непрерывного потока газа слой частиц неподвижен. По мере возрастания скорости увеличивается сила трения газа о частицы и давление частиц на газораспределительную решётку уменьшается. При первой критической скорости, называемой скоростью взвешивания или скоростью псевдооживления, масса слоя частиц уравнивается силой трения газа и архимедовой подъёмной силой и не оказывает давления на решетку. При дальнейшем увеличении скорости газа порозность слоя возрастает пропорционально скорости газа, высота слоя увеличивается, а гидравлическое сопротивление остается неизменным во всем диапазоне скоростей газа, соответствующих существованию кипящего слоя. Зависимость перепада давления ΔP от скорости оживающего газа-носителя показана на рисунке 4.14.



1 – стационарное состояние; 2 – псевдооживленное состояние; 3 – унос частиц

Рисунок 4.14 – Зависимость гидравлического сопротивления слоя твёрдого продукта от скорости газа-носителя

Согласно рисунку 4.14, линия 1 соответствует стационарному слою твёрдого продукта, в точке A слой переходит в псевдооживленное состоя-

ние и сохраняет это состояние по линии 2 ($\Delta P = \text{const}$). Точка В соответствует началу уноса материала из слоя, что происходит при скорости газа, равной скорости витания частиц U_g .

Для полидисперсного материала псевдоожижение для различных фракций будет начинаться при различных критических скоростях и основная задача расчёта сводится к нахождению таких условий, при которых процесс псевдоожижения полидисперсного материала будет ограничиваться точками А и В (см. рисунок 4.14).

Для частиц с одинаковой плотностью и небольшим показателем полидисперсности, $d_{\max}/d_{\min}$, для расчёта $U_{кр}$ можно использовать формулу [133]

$$\text{Re}_{кр} = \frac{Ar}{150 \cdot \frac{1 - \varepsilon_{кр}}{\varepsilon_{кр}^3} + \left(\frac{1,75}{\varepsilon_{кр}^3} Ar \right)^{1/2}}, \quad (4.99)$$

где $\varepsilon_{кр}$ – порозность слоя в момент начала псевдоожижения.

Для расчёта начала псевдоожижения слоя из несферических частиц, при неизвестной величине $\varepsilon_{кр}$, можно использовать приближённую зависимость:

$$f / \varepsilon_{кр}^3 \approx 14. \quad (4.100)$$

Коэффициент формы рассчитывают по формуле

$$f = \frac{F_{\Gamma}}{F_{III}} = \left(\frac{d_F}{d_V} \right)^2, \quad (4.101)$$

где F_{Γ} , F_{III} – поверхности несферической и сферической частицы, м^2 ;

d_F , d_V – диаметры шаров, эквивалентные частице по поверхности и по объёму, м.

При расчёте скоростей начала псевдоожижения $U_{кр}$ и уноса U_g для частиц, по форме отличающихся от сферической, вместо диаметра сферической частицы d_{Γ} подставляют величину d_V/f .

В общем случае $f \geq 1$. Для частиц неправильной формы коэффициент формы определяют экспериментально, но для приблизительной оценки этого коэффициента можно использовать данные из таблицы 4.12.

Для расчёта начала скорости псевдооживления полидисперсных частиц получено следующее критериальное уравнение [104]:

$$\text{Re}_{кр} = 0,0736 \cdot Ar^{0,625} \cdot \varepsilon_{кр} \cdot \left(\frac{d_{\max}}{d_{\text{экв}}} \right)^{0,375}, \quad (4.102)$$

где $d_{\text{экв}}$ – эквивалентный диаметр частиц, определяемый для полидисперсных частиц по формуле (4.96), м;

$d_{\max}$ – максимальный диаметр частиц, м.

Формула (4.100) верна при критерии Рейнольдса $20 < \text{Re} < 1,5 \cdot 10^3$.

Верхний предел существования кипящего слоя ограничивается скоростью витания частиц, при которой начинается массовый унос частиц данного размера, формы и плотности (см. рис. 4.14, линия 3). Расчёт скорости газа, соответствующий началу уноса U_y , производят по универсальной формуле (4.91) С. Тодеса, приближенно пригодной для всех режимов движения частиц ($\text{Re} \leq 2 \cdot 10^5$) в виде [127]

$$\text{Re}_y = \frac{Ar}{18 + 0,61 \cdot \sqrt{Ar}}. \quad (4.103)$$

Таким образом, при осаждении твёрдых частиц в газовом потоке из псевдооживленного слоя, скорость процесса зависит от режима обтекания твёрдых частиц газом, формы частиц, стесненности движения и ряда других факторов.

Для ускорения расчётов разработаны математические программы «SKOR V» и «SKOR I», предназначенные для определения скорости осаждения твёрдых частиц или их диаметров, в зависимости от скорости противоточно двигающегося газа-носителя (скорости поддува). Алгоритм расчётов составлен с использованием формул, приведённым в п. 4.4.3.

4.4.4 Тепловой баланс объёмной десублимации

В объёмных десублиматорах возможно использование проточного и противоточного движений парогазовой смеси и образующихся в объёме частиц десублимата. В обоих случаях тепло отводится охлаждающим газом. Поэтому уравнение теплового баланса для периодически работающих аппаратов имеет вид

$$m_G \cdot c_G \cdot (t_K - t_H) = m_C \cdot \Delta H + m_D (t_D - t_K) \cdot c_C, \quad (4.104)$$

где m_G – масса охлаждающего газа, кг;

c_G – средняя теплоёмкость охлаждающего газа, Дж/(кг·К);

t_K, t_H – конечная и начальная температуры охлаждающего газа, К.

Для непрерывно действующих аппаратов в уравнении (4.104) вместо m_G и m_C используют массовую производительность в кг/с.

Из уравнения теплового баланса определяют либо расход газа m_G , либо конечную температуру десублимата.

4.4.5 Контрольные примеры

Рассмотрены два контрольных примера расчёта:

1) Определение скоростей осаждения, витания и уноса частиц с использованием программы SKOR V.

2) Определение скорости зародышеобразования и критического радиуса зародыша с использованием программы SKOR I.

Задачей первого расчёта является определение скорости витания, уноса и осаждения частиц по заданной скорости поддува газовой смеси и диаметрам частиц. Программа SKOR V позволяет:

- определять режим движения частиц;
- определять скорость падения частиц;
- определять скорость витания и скорость уноса частиц;

- определять диаметр частиц;
- строить графические зависимости определяемых величин.

Целью второго расчёта является определение скорости зародышеобразования и критического радиуса зародыша при объёмной десублимации тетрафторида циркония. Программа SKOR I в автоматическом режиме решает следующие задачи:

- определение степени пересыщения парогазовой смеси;
- определение скорости зародышеобразования;
- определение критического радиуса зародыша;
- вычисление диаметра частиц;
- построение графиков зависимости определяемых величин.

Данные для расчёта, подготовленные для ввода в ЭВМ, и примеры расчёта приведены ниже.

Пример расчёта по программе SKOR V

Таблица 4.14 – Данные для расчёта по программе SKOR V

Наименование величины	Размерность	Обозначение в формулах	Значения для контрольного примера
Коэффициент (в формуле (4.109) для определения давления $P_{\infty(T)}$)	—	A	12,7
Коэффициент (в формуле (4.109) для определения давления $P_{\infty(T)}$)	—	ε	11600
Число недостающих соседей в поверхностном слое	—	Δn	1
Толщина монослоя галогенида (определяется расчетным путем по длине связи в молекулах галогенида)	нм	h	0,2
Изменение энтальпии	Дж/моль	ΔH	215858
Координационное число	—	n	8
Плотность среды	г/см ³	ρ	4,55
Молекулярная масса	г	M	167,22
Температура сублимации	К	T_1	1310
Температура десублимации	К	T_2	1050
Число узлов табулирования	—	i	от 1 до 9

Исходные данные

Коэффициент A $A := 12.7$
 Коэффициент ε $\varepsilon := 11600$
 Температура сублимации, °C $T1 := 1310$
 Температура десублимации, °C $T2 := 1050$
 Плотность сублимата, г/см³ $\rho := 4.55$
 Молекулярная масса десублимата, г $M := 167.22$
 Число недостающих соседей $\Delta n := 1$

Результаты расчетов

Фактические вязкость μ_t и плотность ρ_t системы (в зависимости от температуры), и порозность слоя $\varepsilon_{кр}$ (в момент начала псевдоожижения):

$$\mu_t = 6.73365 \cdot 10^{-5}$$

$$\rho_t = 930.94629$$

$$\varepsilon_{кр} = 0.49519$$

Диаметры
частиц,
м

Скорости, м/с:

	Стокса	Витания	Критическая	Уноса
$d_i \cdot 10^6$	$U_{c_i} \cdot 10^3$	$U_{в_i} \cdot 10^4$	$U_{кр_i} \cdot 10^6$	$U_{ун_i} \cdot 10^2$
10	0.248315	0.041561	0.120307	-5.751685
20	0.993258	0.165205	0.480683	-5.006742
30	2.234831	0.368727	1.079953	-3.765169
40	3.973032	0.649339	1.916595	-2.026968
50	6.207863	1.003867	2.988814	0.207863
60	8.939323	1.428865	4.29459	2.939323
70	12.167412	1.920716	5.831711	6.167412
80	15.89213	2.475695	7.597795	9.89213
90	20.113477	3.090035	9.590312	14.113477
100	24.831453	3.759966	11.806599	18.831453
110	30.046058	4.481761	14.243877	24.046058
120	35.757292	5.251761	16.899261	29.757292
130	41.965155	6.0664	19.769775	35.965155
140	48.669647	6.922228	22.852358	42.669647
150	55.870769	7.815919	26.14388	49.870769
160	63.568519	8.744288	29.641144	57.568519
170	71.762898	9.704294	33.340896	65.762898

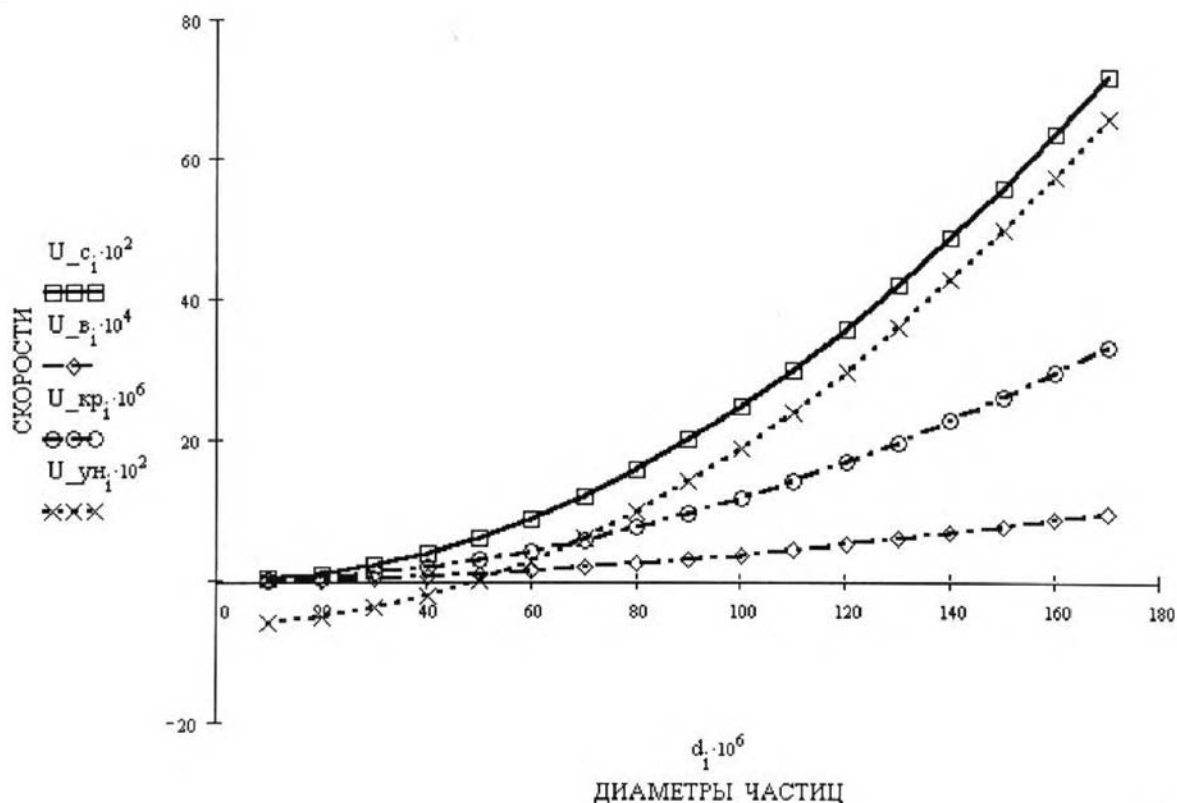


Рисунок 4.15 – Графическая зависимость скорости Стокса (осаждения) U_c , скорости витания $U_в$, критической скорости псевдооживления $U_{кр}$ и скорости уноса $U_{ун}$ от диаметра частиц d_i по результатам расчёта

Пример расчёта по программе SKOR I

Таблица 4.15 – Данные для расчёта по программе SKOR I

Наименование величины	Размерность	Обозначение в формулах	Значение для контрольного примера
Плотность системы (вещества)	кг/м ³	ρ_m	4000
Плотность среды (газа)	кг/м ³	ρ_{cp}	1,2
Коэффициент формы	—	f	1,7
Температура исходной системы (сублимации)	град	T	900
Вязкость среды	Па·с	μ_{cp}	$24,7 \cdot 10^{-6}$
Постоянная Сатерленда	—	h	124
Скорость поддува	м/с	$U_{под}$	0,06
Шаг по диаметру частиц	мкм	Δd	от 10 до 170

Исходные данные

Плотность системы ρ_T , кг/м³ $\rho := 4000$

Плотность среды ρ_{cp} , кг/м³ $\rho_{cp} := 1.2$

Коэффициент формы частицы, f $f := 1.7$

Температура среды T, °C $T := 900$

Вязкость среды μ_{cp} , Па·с $\mu := 24.7 \cdot 10^{-6}$

Постоянная Сатерленда $h := 124$

Скорость поддува $U_{под}$, м/с $U_{под} := 0.06$

Шаг по диаметру частицы Δd , м $i := 0..16$

$$d_i := (10 \cdot i + 10) \cdot 10^{-6}$$

Ускорение свободного падения, м/с² $g := 9.80665$

Результаты расчетов

T_i , °C	S_i	σ_i , н/м	I_i , 1/(см ³ ·с)	r_{xp_i} , м
1076	8.9144	0.14075	$4.04147 \cdot 10^{21}$	$5.28597 \cdot 10^{-8}$
1102	9.62478	0.1406	$1.19401 \cdot 10^{23}$	$4.98128 \cdot 10^{-8}$
1128	8.1715	0.14046	$1.8077 \cdot 10^{23}$	$5.24018 \cdot 10^{-8}$
1154	6.35699	0.14031	$5.53751 \cdot 10^{22}$	$5.81141 \cdot 10^{-8}$
1180	4.75658	0.14016	$2.5313 \cdot 10^{21}$	$6.73324 \cdot 10^{-8}$
1206	3.49637	0.14001	$3.7669 \cdot 10^{18}$	$8.1995 \cdot 10^{-8}$
1232	2.55219	0.13987	$1.55206 \cdot 10^{12}$	$1.07117 \cdot 10^{-7}$
1258	1.86127	0.13972	$6.91077 \cdot 10^{-7}$	$1.58043 \cdot 10^{-7}$
1284	1.361	0.13957	0	$3.11779 \cdot 10^{-7}$

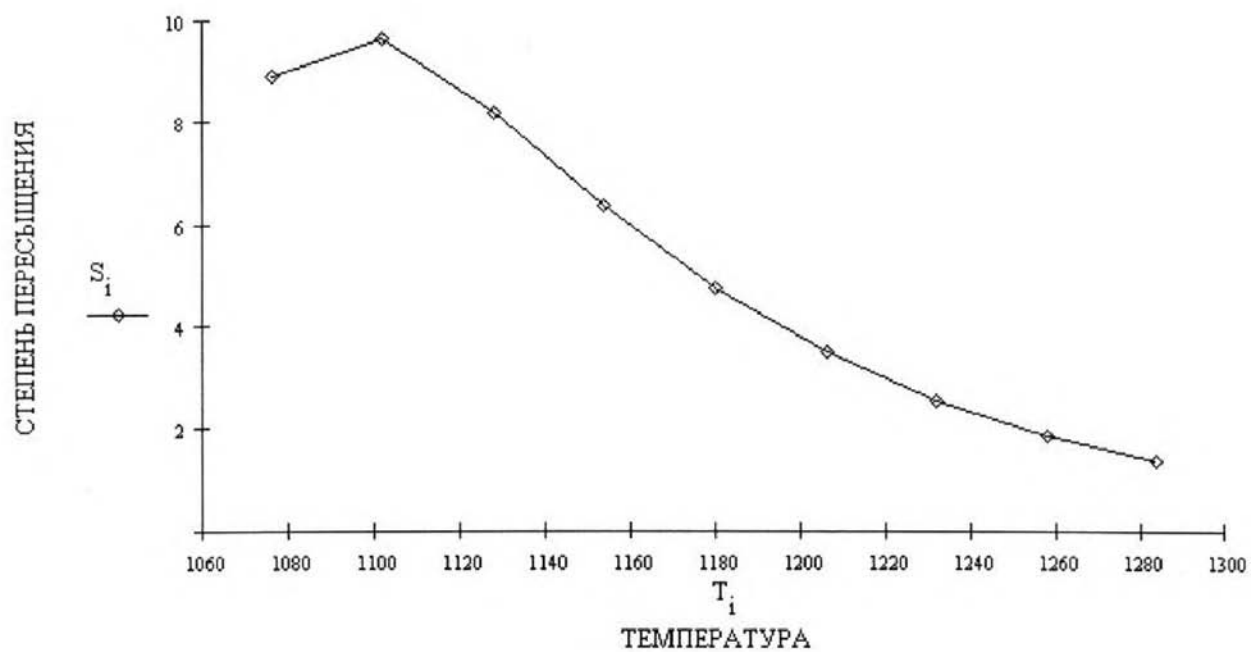


Рисунок 4.16 – График зависимости степени пересыщения S_i от температуры T_i

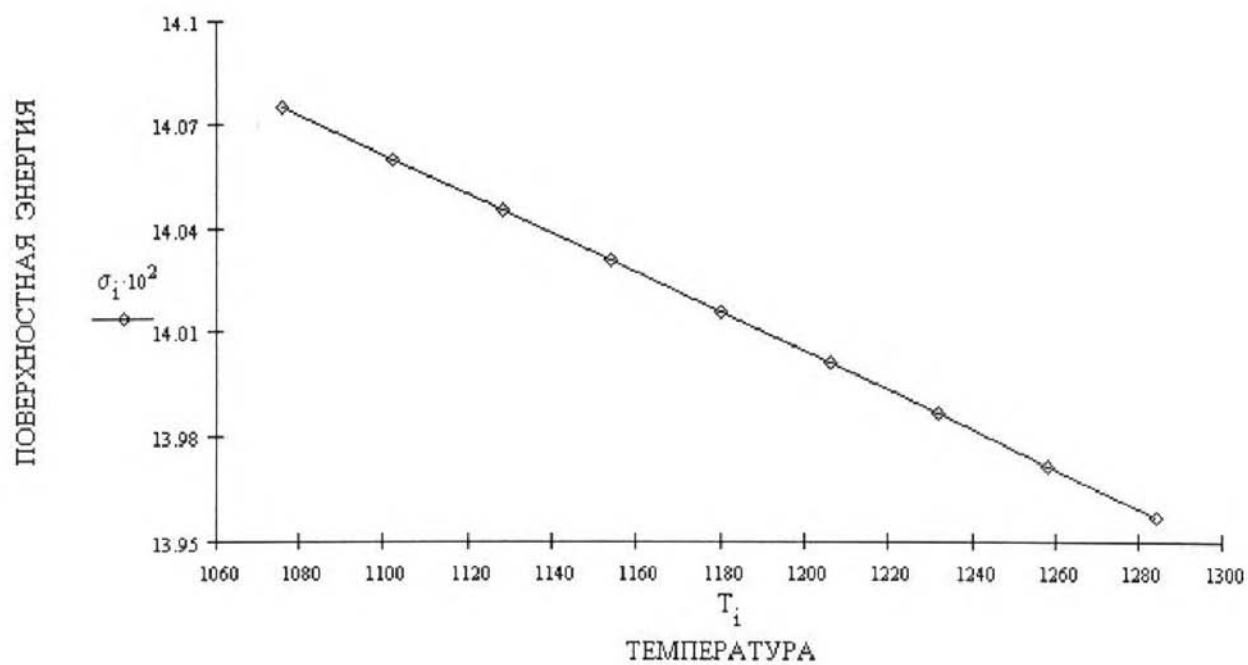


Рисунок 4.17 – График зависимости поверхностной энергии σ_i от температуры T_i

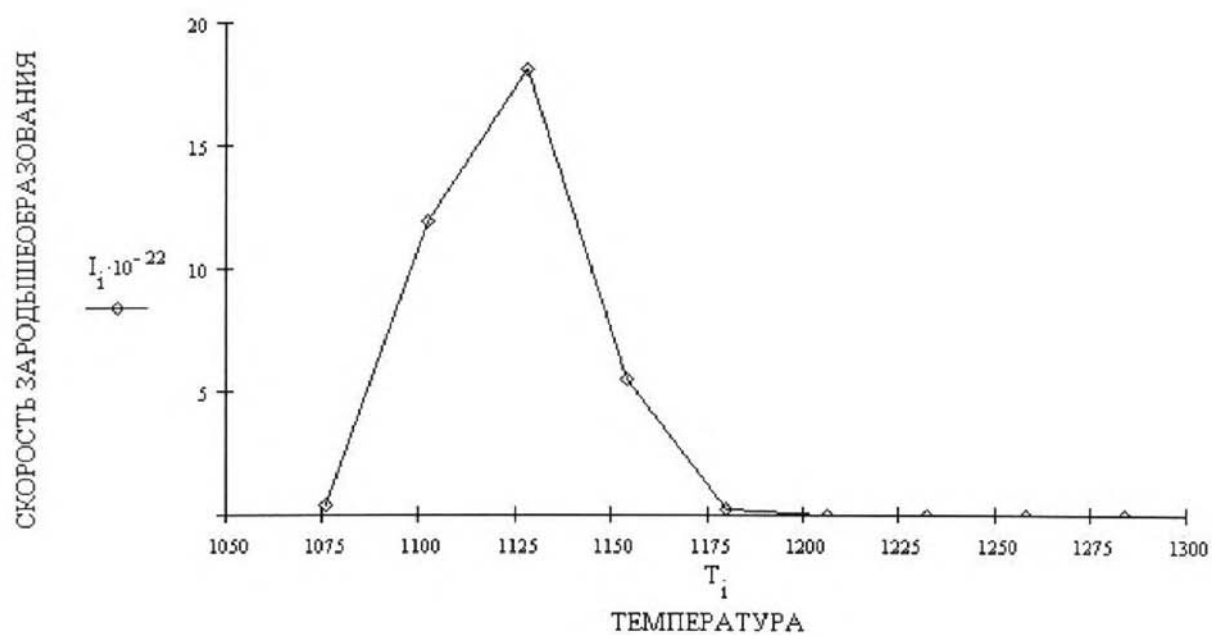


Рисунок 4.18 – График зависимости скорости зародышеобразования I_i от температуры T_i

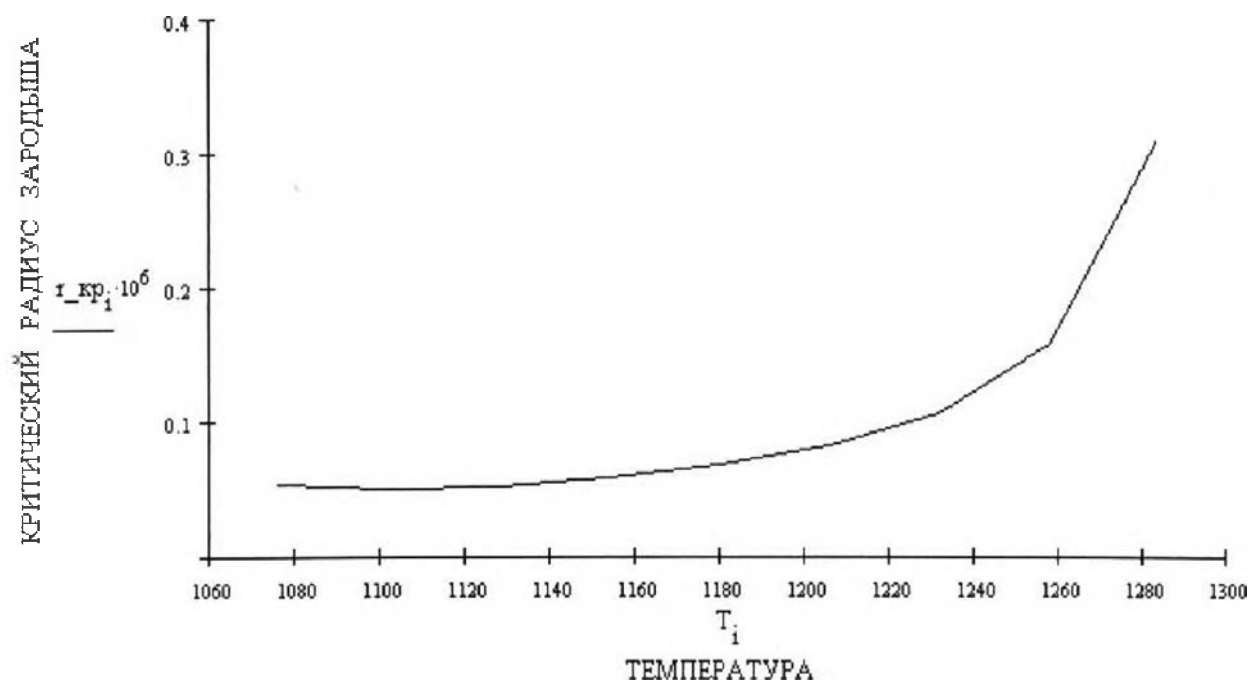


Рисунок 4.19 – График зависимости критического радиуса зародыша $r_{кр}$ от температуры T_i

Заключение

Значительный научно-технический прогресс, достигнутый в настоящее время в металлургии, машиностроении, радиоэлектронике, атомной промышленности и других областях техники преимущественно основан на использовании материалов на основе редких металлов и их соединений. Редкие высокочистые металлы и конструкционные керамические материалы с добавками редких и редкоземельных металлов позволяют проектировать и изготавливать детали и устройства, работающие в условиях высоких механических, термических и радиационных нагрузок.

Как показывают исследования перспективными способами получения высокочистых редких и редкоземельных металлов и их соединений являются неводные технологии с применением элементного фтора. Фторидные технологии появились в конце второй мировой войны применительно к атомной промышленности. Закрытость этой отрасли тормозила использование научных достижений в области фтора для других областей промышленности. В 60-80-е годы XX столетия в России и за рубежом велись интенсивные научно-изыскательские работы по фторидным технологиям с целью получения редких и редкоземельных металлов. Были изучены принципиальные возможности технологии и аппаратного оформления процессов.

Монография является ещё одной попыткой обобщить сведения, касающиеся сублимационных способов очистки и получения редких и редкоземельных металлов во фторидных технологиях с использованием элементного фтора и его соединений. Упор сделан на конструкции и расчёты сублимационно-десублимационного оборудования, которые разработаны с учётом особенностей фторидной технологии. Приведённые конструкции аппаратов, в основном, защищены авторскими свидетельствами и патентами РФ, и не встречаются в учебниках и популярной научно-технической литературе. Часть аппаратов соответствует правилам ядерной безопасно-

сти и их можно использовать для десублимации гексафторида урана различной степени обогащения.

Список использованной литературы

- 1 Путин В.В. Минерально-сырьевые ресурсы в стратегии развития Российской экономики //Записки горного института. 1999 Т.144 (1). С.3-7.
- 2 Редкие земли в катализе. Под ред. Рубинштейна М.Ф. – М.: Наука, 1972. 262 с.
- 3 Ерофеев И.А., Соловьев А.И., Восьмериков В.А., Коробицина Л.Л. Превращение нефтяных газов на цеолитовых катализаторах // Нефтехимия. – 1990. – Т.30. № 4. С.496-500.
- 4 Усова Т.Ю. Редкоземельные металлы. Новое в развитии минерально-сырьевой базы редких металлов. Сырьевая база, производство и потребление редких металлов.– М.: ИМГРЭ, 1991. – С.125-247.
- 5 Евдокимов А.А., Ефремов В.В., Трунов В.К. и др. Соединения редкоземельных элементов. Молибдаты и вольфраматы. – М.: Наука, 1991. – с.227-240.
- 6 Зверева, В.И. Современное состояние производства высокочистых фторидов металлов для волокнистой оптики // Высокочистые вещества. – 1992. – №2. – С.105-113.
- 7 Рябов А.С. Азотнокислая технология переработки ортитовых рудных концентратов: дис. ... канд. техн. наук : 05.17.02; защищена 05.12.2003. / Рябов Александр Сергеевич. – Северск, 2003. – 193 с. – Библиогр.: с.176 – 190.
- 8 Комисарова, Л.Н. Гафний. Сборник / под ред. Комисаровой Л.Н. – М.: ИЛ, 1962.-324с.
- 9 Karlsson, O.N., Schmidt F.A., Wilhelm N.A. //J. Electrochemical Society. – 1957. – v.104.-№1. – p.52-56.
- 10 Галкин, Н.П. Улавливание и переработка фторсодержащих газов / Н.П.Галкин, В.А.Зайцев, М.Б.Серёгин – М.: Атомиздат, 1975. – 240с.
- 11 Рихванов, Л.П. Циркон-ильменитовые россыпные месторождения – как потенциальный источник развития Западно-Сибирского региона /

Л.П.Рихванов, С.С.Кропанин, С.А.Бабенко, А.И.Соловьёв, В.М.Советов, Т.Ю.Усова, М.А.Полякова; отв. ред. Е.Н.Трибунский, М.С.Паровинчак – Кемерово: ООО “Сарс”, 2001. – 214с. : ил.

12 Дьяченко, А.Н. Фтороаммонийная технология переработки минерального сырья : дис. ... докт. техн. наук : 05.17.02; / Дьяченко Александр Николаевич. – Томск., 2007.

13 Пат. 2615848 Франция, МКИ⁴ C01G 25/04, 1988.

14 Древаль, А.Н. Исследование процессов очистки тетрафторида циркония от гафния и других примесей: дис. ... канд. техн. наук : 05.17.02 / Древаль Анатолий Николаевич. – Томск, 1982. – 211 с. – Библиогр.: с.179-192.

15 Пат. 2457265 Российская федерация, МПК C22B 34/14, C01G 25/04, B01D 7/00. Способ очистки циркония от гафния / Буйновский А.С., Русаков И.Ю., Софронов В.Л.; заявитель и патентообладатель Буйновский А.С., Русаков И.Ю., Софронов В.Л. – опубл. 27.07.2012, Бюл. № 24. – 4 с. : ил.

16 Пат. 2434957 Российская федерация, МПК C22B 34/14, C01G 25/04, C01G 27/04. Технологический каскад для разделения и обогащения тетрафторидов циркония и гафния / Буйновский А.С., Русаков И.Ю., Софронов В.Л.; заявитель и патентообладатель Буйновский А.С., Русаков И.Ю., Софронов В.Л. – опубл. 27.11.2011, Бюл. № 33. – 7 с. : ил.

17 Горелик, А.Г. Десублимация в химической промышленности. / А.Г. Горелик, А.В.Амитин – М.: Химия, 1986. – 272с., ил. (Процессы и аппараты химической и нефтехимической технологии) – Библиогр.: с.258-268. – 2000 экз.

18 Кнаке О., Странский И.Н. Механизм испарения / Успехи физических наук, 1959. – Т.68. – Вып. 2 – С.261-305.

19 Stansky I.N., Kaicschew R. Gleichgewichtsformen homöopolarer Kristalle. – Zeits. Krist. 1931. – V.78 – S.373.

20 Фришберг И.В., Афанасьева М.Н. Скорость испарения с твёрдой и жидкой поверхности / Труды института металлургии. 1966. – Вып.11 – 14-29.

21 Volmer M. Kinetik der Phasenbildung. Dresden-Leipzig, 1939. – S.221.

22 Михеев М.А. Методы определения коэффициентов лучеиспускания твёрдых тел // Журн. техн. физ., 1933 – Т.3 – Вып.5 – С.698-711.

23 Лыков А.В., Грязнов А.А. Молекулярная сушка. – М.: Пищепромиздат, 1957. – 272 с.

24 Альтгаузен А.П. Применение электронагрева и повышение его эффективности. – М.: Энергоиздат, 1987. – 128 с.: с ил.

25 Гуйго Э.И., Журавская Н.К., Каухчешвили Э.И. Сублимационная сушка пищевых продуктов. – М.: Пищ. Пром-ть, 1966. – 360 с.

26 Гуйго Э.И. О механизме лучистого теплоподвода при сублимационной сушке // Инж. физ. журн., 1964. – Т.7 – №5 – С.119-120.

27 Фомин Н.И., Затуловский Л.М. Электрические печи и установки индукционного нагрева. – М.: Металлургия, 1979. – 247 с.: с ил.

28 Анисимов С.И., Рахматуллина А.Х. Динамика расширения пара при испарении в вакууме // Журн. exper. и теор. физ., 1973. – Т.64 – Вып.3 – С.869-876.

28 Анисимов С.И. Об испарении металла, поглощающего лазерное излучение // Журн. exper. и теор. физ., 1963. – Т.54 – Вып.1 – С.339-342.

30 Анисимов С.И., Бонч-Бруевич А.М., Павленко Н.А. и др. Действие мощных световых потоков на металлы // Журн. exper. и теор. физ., 1966. – Т.34 – Вып.7 – С.1273-1284.

31 Гухман А.А. Применение теории подобия к исследованию процессов теплообмена. – М.: Высш. школа, 1974. – 328 с.

32 Эккерт Э.Р., Хейдей А.А., Минкович В.К. Теплообмен, температура восстановления и поверхностное трение на плоской пластине с пода-

чей водорода в ламинарный пограничный слой // Тепломассоперенос АН БССР. Ин-т тепло- и массообмена, 1963. – Т.3 – С.65-78.

33 Исаченко В.П., Взоров В.В., Ветроградский В.А. Теплопередача при испарении воды из пористой стенки, смываемой воздухом // Теплоэнергетика, 1961. – №1 – С.65-71.

34 Кутателадзе С.С. Основы теории теплообмена. 5-е изд. перераб. и доп. – М.: Атомиздат, 1979. – 416 с.

35 Лыков А.В. Исследование тепло- и массопереноса в пограничном слое при испарительном пористом охлаждении // АН БССР Ин-т тепло- и массообмена, 1963. – Т.3 – С.21-29.

36 Эккерт Э.Р., Дрейк Р.М. Теория тепло- и массообмена. – М.: Энергоиздат, 1961. – 683 с.

37 Ирисов А.С., Итинская Н.И. Топливо и смазочные материалы. – М.: Сельхозиздат, 1959б – 470 с.

38 Гухман А.А. О механизме влияния массообмена на теплообмен при испарении // Сб. научн. тр. / Моск. научно-иссл. ин-т хим. маш., 1961. – Вып.36 – С.40-46.

39 Ермакова Е.А. О механизме тепло- и массообмена при сублимации льда под вакуумом // Инж. физ. журн., 1958. – Т.1 – №12 – С.73-79.

40 Ермакова Е.А. Некоторые результаты экспериментального исследования теплообмена при сублимации льда // Инж. физ. журн., 1958. – Т.1 – №12 – С.54-58.

41 Лыков А.В. Теория сушки. – М.: Энергия, 1972. – 520 с.

42 Бушковский А.Л. Исследование процессов получения тетрафторида циркония из бадделеита и металлургических отходов с применением элементного фтора: : дис. ... канд. техн. наук : 05.17.02; / Бушковский Александр Леонидович. – Томск, 1984. – 184 с. – Библиогр.: с.176 – 180.

43 Буйновский А.С. Переработка элементарным фтором сырья и отходов, содержащих титан, цирконий, гафний и ее физико-химические осно-

вы: дисс. ...докт. техн. наук : 05.17.02 / Буйновский Александр Сергеевич. – Томск, 1988. – 403 с. – Библиогр.: с.318-361.

44 Соловьёв А.И. Исследование фторидных способов переработки цирконовых концентратов: дис. ... канд. техн. наук : 05.17.02 / Соловьёв Александр Иванович. – Томск, 1971. – 143 с. – Библиогр.: с.130-136.

45 Волынец, А.З. Непрерывный процесс сублимационной очистки дисперсных веществ / А.З.Волынец, И.М.Скачко, А.В.Черняков, А.Г.Щетинин // Теоретические основы химической технологии. – 1984. – № 5, том XVIII. – С.615-622. – Библиогр.: с.622.

46 Исследование процессов сублимации и десублимации тетрафторида циркония в шнековом аппарате непрерывного действия: Отчёт о НИР (промежуточ.) ТПИ, Отд. №1; Руководители: А.С.Буйновский, В.Л.Софронов; № ГР Х-13251. – Томск. – 1991. – 57 с.: ил. – Отв. исполн. И.Ю.Русаков.

47 Теор. основы хим. технол. – 1983. – Т.17, №6. – С.848-850.

48 Амелин А.Г. Теоретические основы образования тумана при конденсации пара. – М.: Химия, 1972.

49 Френкель Я.И. Кинетическая теория жидкостей. – Л.: Наука, 1975. – 592 с.: ил.

50 Тодес О.М. / Проблемы кинетики и катализа. – М.: АН СССР, 1949. – Вып.7. – 137 с.

51 Сутугин А.Г., Лушников А.А. / Теор. основы хим. технол. – 1975. – Т.9, №2. – С.210.

52 Лиршиц И.М., Слезов В.В. / ЖЭТВ. 1958. Т.35, №2(8). – С.479.

53 Чернов А.А. Современная кристаллография. Образование кристаллов. – М.: Наука. – 1890. – Т.3. – 407 с.: ил.

54 Буйновский, А.С. Расчёт на ЭВМ скорости зародышеобразования, роста и осаждения частиц: Практическое руководство для студентов /

А.С.Буйновский, Н.Д.Великосельская, П.А.Смолкин. – Изд. 2, перераб. и доп. – Северск: СТИ ТПУ, 1999. – 29с.

55 Русаков, И.Ю. Исследование процессов и разработка оборудования сублимационной очистки тетрафторида циркония : дис. ... канд. техн. наук : 05.17.02: защищена 30.09.94 : утв. 22.09.95 / Русаков Игорь Юрьевич. – Томск, 1993. – 170 с. Библиогр.: с. 149-162.

56 Пат. 2012131 Российская федерация, МПК С 22 В 34/14, С22В 9/00. Способ очистки тетрафторида циркония от примесей / Русаков И.Ю., Буйновский А.С., Софронов В.Л., Молоков П.Б. ; заявитель и патентообладатель Русаков И.Ю., Буйновский А.С., Софронов В.Л., Молоков П.Б. – № №2012131775/02; заявл. 24.07.2012 ; опубл. 27.01.2014, Бюл. № 3. – 6 с. : ил.

57 Клогина, Л.И. Массовая кристаллизация / Л.И.Клогина, А.В.Чеховский, С.Н.Булатов и др. – М.: ИРЭА, 1975, №1, 119с.

58 Хаузен, Х. Теплопередача при противотоке, прямотоке и перекрёстном токе : [пер с англ.] / Х. Хаузен. – М.: Энергоиздат, 1981. – 383с.

59 Исследование процесса переработки отходов металлургического производства редких металлов методом фторирования и очистка получаемых фторидов от примесей. Исследование процессов сублимации-десублимации тетрафторида титана : отчет о НИР (промежуточ.) : Х-10018 / ЦНИИАтоминформ, ТПИ ; рук. А.С. Буйновский, А.И. Карелин. – Томск, 1985. – 49 с.

60 Буйновский, А.С. Расчет сублимационно-десублимационных аппаратов : руководство для студентов / А.С. Буйновский, В.Л. Софронов, И.Ю.Русаков. – Томск : Отд. №1 ТПИ, 1987. – 121 с.

61 Пищулин, В.П.. Десублиматоры гексафторида урана : учебное пособие / В.П.Пищулин, И.Ю.Русаков. – Северск: Изд. СГТИ, 2004. – 66 с.

62 Мариненко, Е.П. Неводные методы переработки оксидных тепловыделяющих элементов. Ч.І. Фторирование оксидов урана и десублимация

гексафторида урана / Е.П.Мариненко, В.И.Сачков, В.А.Хохлов. – Томск: Изд-во Томск. гос. ун-та систем упр. и радиоэлектроники, 2010. – 123 с. ISBN 978-5-86889-534-0.

63 А.с. 710565 СССР, МКИ² В 01 D 7/00. Сублимационный вакуумный аппарат периодического действия / П.В. Лапин, А.И. Соловьев, А.Я. Сваровский, Г.Г.Шелудченко, Г.А.Панков (СССР). – № 2565181/23-26 ; заявл. 06.01.78 ; опубл. 25.01.80, Бюл. № 3. – 3 с. : ил.

64 А.с. 1818130 СССР, МКИ⁵ В 01 D 7/00. Сублимационный вакуумный аппарат для глубокой очистки веществ / А.С.Буйновский, И.Ю.Русаков, В.Л.Софронов, и др. (СССР). – № 4721483/26 ; заявл. 24.07.89 ; опубл. 30.05.93, Бюл. № 20. – 2 с. : ил.

65 Разработка и освоение сублиматора непрерывного действия для получения высокочистого тетрафторида циркония : отчёт о НИР (промежуточ.) : / АН Каз.ССР. Институт металлургии и обогащения ; рук. Е.С.Есютин. – Алма-Ата – М. – 30 с. – № ГР 01830054330. – Инв. № 02850020071.

66 Крапивина, С.А. Плазмохимические технологические процессы / С.А.Крапивина. – Л.: Химия, 1981. – 248 с.

68 А.с. 1311747 СССР, МКИ³ В 01 D 7/02. Вакуумный сублимационный аппарат периодического действия / А.С.Буйновский, А.И.Карелин, В.А.Федюнин, Ю.Ф.Коровин, А.Н.Кузнецов (СССР). – № 3938776/31-26 ; заявл. 31.07.75 ; опубл. 23.05.87, Бюл. № 19. – 4 с. : ил.

69 Федюнин, В.А. Разработка безводных способов очистки тетрафторида циркония : дис. ... канд. техн. наук : 05.17.02 / Федюнин Владимир Александрович. – Томск, 1984. – 257 с. Библиогр.: с. 170-190.

70 А.с. 1579516 СССР, МКИ⁵ В 01 D 7/00. Сублимационный испаритель / А.С.Буйновский, А.Н.Кузнецов, В.Л.Софронов, (СССР). – № 4467237/31-26; заявл. 26.07.88 ; опубл. 23.07.90, Бюл. № 27. – 5 с. : ил.

71 А.с. 1464328 СССР, МКИ⁴ В 01 D 7/00. Сублимационный аппарат / И.Ю.Русаков, А.С.Буйновский, Е.М.Фролова, В.Л.Софронов, (СССР). – № 4183493/31-26; заявл. 20.01.87. – 3 с. : ил.

72 А.с. 1517974 СССР, МКИ⁴ В 01 D 7/00. Аппарат для очистки сублимирующихся веществ / И.Ю.Русаков, А.С.Буйновский, А.И.Карелин, Ю.Ф.Коровин, А.Н.Кузнецов, Мухачёв А.Н., В.Л.Софронов, (СССР). – № 4282073/31-26 ; заявл. 13.07.87 ; опубл. 30.10.89, Бюл. № 40. – 4 с. : ил.

73 А.с. 1560258 СССР, МКИ⁵ В 01 D 7/00. Сублиматор / И.Ю.Русаков, А.С.Буйновский, А.И.Карелин, Ю.Ф.Коровин, А.Н.Кузнецов, Мухачёв А.Н., В.Л.Софронов, (СССР). – № 4310362/31-26 ; заявл. 13.07.87 ; опубл. 30.04.90, Бюл. № 16. – 4 с. : ил.

74 А.с. 1577121 СССР, МКИ⁴ В 01 D 7/02. Сублимационный аппарат / И.Ю.Русаков, А.С.Буйновский, В.Л.Софронов, (СССР). – № 4311310/23-26 ; заявл. 01.10.87. – 2 с. : ил.

75 Анализ процесса и аппаратуры для десублимации гексафторида урана и других летучих фторидов / Б.П.Белозёров, И.Ю.Русаков, Г.Г.Андреев и др. // Цветные металлы, №1, 2012. С.58-61

76 Пат. 2106890 Российская федерация, МПК⁶ В 01 D 7/00, 7/02. Сублимационный аппарат / Володин А.Н., Белозёров Б.П., Гущин А.А., Коробцев В.П., Кораблёв А.М., Красько О.В. ; заявитель и патентообладатель ОАО “Сибирский химический комбинат”. – № 96110756/25 ; заявл. 28.05.96 ; опубл. 20.03.98, Бюл. № 8. – 8 с. : ил.

77 Пат. 2106890 Российская федерация, МПК⁷ В 01 D 7/00. Сублимационный аппарат / Володин А.Н., Белозёров Б.П., Гущин А.А., Короткевич В.М., Коробцев В.П., Лазарчук В.В., Мариненко Е.П., Малый Е.Н., Рудников А.И., Хохлов В.А. ; заявитель и патентообладатель ОАО “Сибирский химический комбинат”. – № 99100213/12 ; заявл. 10.01.99 ; опубл. 10.01.00, Бюл. № 1. – 4 с. : ил.

78 Пат. 2143940 Российская федерация, МПК⁷ В 01 D 7/00, 7/02. Сублимационный аппарат /Белозёров Б.П., Володин А.Н., Гущин А.А. и др. ; заявитель и патентообладатель ОАО “Сибирский химический комбинат”. – № 99100213/12 ; заявл. 10.01.99 ; опубл. 10.01.2000, Бюл. № 33. – 6 с. : ил.

79 Пат. 2244582 Российская федерация, МПК⁷ В 01 D 7/02, 59/08. Сублимационный аппарат / Гущин А.А., Русаков И.Ю., Лазарчук В.В., Хохлов В.А., Белозёров Б.П. ; заявитель и патентообладатель ОАО “Сибирский химический комбинат”. – № 2001108204/15 ; заявл. 26.03.01 ; опубл. 20.02.03, Бюл. № 2. – 6 с. : ил.

80 Пат. 2336112 Российская федерация, МПК⁷ В 01 D 7/00, С 01G 43/06. Десублимационный аппарат / Русаков И.Ю., Хохлов В.А., Гущин А.А., Белозёров Б.П. ; заявитель и патентообладатель Русаков И.Ю., Хохлов В.А., Гущин А.А., Белозёров Б.П. ; пат. поверенный Русаков И.Ю. – № 2007105471/15 ; заявл. 13.02.07 ; опубл. 20.10.08, Бюл. № 29. – 6 с. : ил.

81 Пат. 2339423 Российская федерация, МПК⁷ В 01 D 7/00. Конденсатор-испаритель стационарный / Русаков И.Ю., Хохлов В.А., Гущин А.А., Белозёров Б.П. ; заявитель и патентообладатель Русаков И.Ю., Хохлов В.А., Гущин А.А., Белозёров Б.П. ; пат. поверенный Русаков И.Ю. – № 2007125288/15 ; заявл. 04.07.07 ; опубл. 27.11.08, Бюл. № 33. – 6 с. : ил.

82 Буйновский, А.С. Очистка веществ методом сублимации и десублимации : учеб. пособие / А.С.Буйновский, В.Л.Софронов – Томск : Изд. ТПИ, 1989. – 94 с. – Библиогр.: с. 75-78. – 300 экз.

83 Сайт: www.outotec.com/HSC.

84 Лыков, А.В. Теория теплопроводности / А.В.Лыков. – М.: Высш. шк., 1967. – 600 с.

85 Буйновский, А. С. Расчёт энергии Гиббса, константы равновесия, степени пересыщения при сублимации фторида металлов четвёртой группы на микро-ЭВМ “Электронника-60” и “Искра-226” : руководство для

студентов / А. С. Буйновский, В. Л. Софронов, В. А. Федюнин, Г.А. Ша-мин. – Томск: Отд. №1 ТПИ, 1986. – 60 с.

86 Пехович, А.Н. Расчёты теплового режима твёрдых тел. / А.Н.Пехович, В.М.Жидких. – Изд. 2-е, перераб. и доп. – Л.: Энергия, 1976. – 352 с. – Библиогр.: с.347-349. – 10000 экз.

87 Брамсон, М.А. Справочные таблицы по инфракрасному излучению нагретых тел / М.А Брамсон – М.: Наука, 1964. – 320с.

88 Теплотехнический справочник: В 2 т. Т.1. / Общ. ред. В. Н. Юре-нев, П. Д. Лебедев . – 2-е изд., перераб. – М. : Энергия, 1975. – 744 с.

89 Судариков, Б.Н. Процессы и аппараты урановых производств. / Б.Н.Судариков, Э.Г.Раков. – М.: Машиностроение, 1969. – 382с.

90 Давыдов, В.И. Термические процессы и аппараты для получения окислов редких и радиоактивных металлов. / В.И.Давыдов, М.Н.Гамрекели, П.Г.Добрыгин. – М.: Атомиздат, 1977. – 208с.

91 Дрязгова С.В. Сублимация органических веществ в роторном вихревом сублиматоре : дис. ... канд. техн. наук : / Дрязгова Светлана Влади-мировна. – Иваново, 1984.

92 Муштаев, В.И. Сушка дисперсных материалов. / В.И. Муштаев, В.М.Ульянов. – М.: Химия, 1988. – 352 с.

93 Беднягин Г.В. Теплоотдача сыпучего материала к стенке в бара-банных холодильниках с механическим перемешивающим устройством шнекового типа : дис. ... канд. техн. наук : / Беднягин Геннадий Василье-вич. – М.: МИХМ, 1982.

94 Тамарин А.И., Дунский В.Д., Горбачёв Л.В. Исследование тепло-обмена между поверхностью и слоем движущихся частиц // ИФЖ, 1967, Т.13, №14, С.450-454.

95 Вайсон, А.А. Подъёмно-транспортные машины / А.А. Вайсон. – М.: Машиностроение, 1989. – 536 с.

96 Бакластов, А.М. Проектирование, монтаж и эксплуатация теплопользующих установок. / А.М.Бакластов. – М.: Энергия, 1970. – 568с.

97 Кацевич, Л.С. Расчёт и конструирование электрических печей. / Л.С.Кацевич. – М.-Л.: Госэнергоиздат, 1956. – 437с. – 11000 экз.

98 ГОСТ 13268-88 Электронагреватели трубчатые. – М.: Издательство стандартов, 1989. – 15 с.

99 Каталог Минского завода ТЭНов ЗАО «Адиполь», сайт: WWW.ADIPOL.BY.

100 Каталог Московской фирмы «Термокерамика», сайт: <http://lanterm.ru>.

101 Шумский К.П. Вакуумные аппараты и приборы химического машиностроения. – М.: Машиностроение, 1974. – 576 с.

102 Буйновский А.С., Софронов В.Л., Федюнин В.А. и др. Расчёт энергий Гиббса, константы равновесия, степени пересыщения при сублимации фторидов металлов четвёртой группы на микро-ЭВМ «Электроника-60» и «Искра-226». Руководство для студентов. – Томск: Отделение №1 ТПИ, 1986. – 60 с.

103 Брамсон, М.А. Справочные таблицы по инфракрасному излучению нагретых тел / М.А.Брамсон. М.: Наука, 1964. – 318 с.

104 Павлов К.Ф., Романов П.Г., Носков А.А. Примеры и задачи по курсу процессов и аппаратов химической технологии: учебное пособие для ВУЗов / Под ред. член-корреспондента АН СССР П.Г. Романова. – 9-е издание, переработанное и дополненное. – Л.: Химия, 1981. – 560 с.

105 Перри, Д. Справочник инженера-химика. – Л.: Химия, 1969. – Т.1 – 640с.

106 Левич, В.Г. Физико-химическая гидродинамика. – М.: Издательство физико-математической литературы, 1959. – 699 с.

107 Франк-Каменский, Д.А. Диффузия и теплопередача в химической кинетике / Д.А. Франк-Каменский. – М.: Наука, 1987. – 492с.

- 108 Касаткин, А.Г. Основные процессы и аппараты химической технологии: Учебник для ВУЗов. – М.: Химия, 1971. – 784 с.
- 109 Самарский А.А., Гулин А.В. Численные методы: Для вузов. – М.: Наука, 1989. – 432 с.
- 110 Фролов Ю.Г. Курс коллоидной химии. Поверхностные явления и дисперсные системы: Для вузов. – М.: Химия, 1983. – 464 с.
- 111 Самарский А.А., Гулин А.В. Численные методы: Для вузов. – М.: Наука, 1989. – 432 с.
- 112 Самарский А.А. и др. Разностные схемы с операторными множителями. – Минск: Инст. матем. моделирования Росс. ак. наук, Инст. математики Нац. академии наук Беларуси, 1998. – 442 с.
- 113 Смолкин П.А., Брендаков В.Н., Лазарчук В.В., Буйновский А.С. Моделирование процесса десублимации гексафторида урана // Технология и автоматизация атомной энергетики. Научные труды отраслевой НТК, посвященной 45-летию СГТИ. – Северск: СГТИ, 2004. – Т. 1. – С. 103-107.
- 114 ПБЯ-06-00-96 Основные отраслевые правила ядерной безопасности при использовании, переработке, хранении и транспортировании ядерноопасных делящихся материалов.
- 115 Кац Дж., Рабинович Е. Химия урана / Пер. с англ. – М.: Изд-во иностр. литературы, 1954. – 580 с.
- 116 Громов Б.В. Введение в химическую технологию урана: Учебник для ВУЗов. – М.: Атомиздат, 1978 – 336 с.
- 117 Галкин Н.П. Химия и технология фтористых соединений урана. – М.: Атомиздат, 1961. – 345 с.
- 118 Рабинович В.А., Хавин З.Я. Краткий химический справочник. – Ленинградское отделение: Химия, 1977. – 376 с.
- 119 Техника низких температур. Атлас под ред. Н.П.Усюкина. – М.: Пищевая промышленность, 1977. – 150 с.

120 Правила устройства и безопасной эксплуатации трубопроводов пара и горячей воды. ПБ-03-75-94. – М.: Госгортехнадзор России, 1994. – 130 с.

121 ГОСТ 10832-91 Песок и щебень перлитовые вспученные. Технические условия

122 Тепловая изоляция: Справочник монтажника. / Под ред. Г.Ф.Кузнецова. – 3-е изд., исправленное. – М.: Стройиздат, 1976. – 439 с.

123 Буйновский, А. С. Расчёт скорости зародышеобразования, роста и осаждения частиц : методические указания / А.С. Буйновский, Н.Д. Велюсильская, П.А.Смолкин, И.Ю.Русаков. – Северск: Изд-во СТИ НИЯУ МИФИ, 2015. – 34с.

124 Райст П. Аэрозоли Введение в теорию. – М.: Мир, 1987. – 280 с., ил.

125 Амелин, А.Г. Теоретические основы образования тумана при конденсации пара. – М.: Химия, 1972. – 304с.

126 Буйновский А.С., Софронов В.Л., Федюнин В.А., Шамин Г.А. Расчёт энергий Гиббса, константы равновесия, степени пересыщения при сублимации фторидов металлов четвёртой группы на микро-ЭВМ «Электроника-60» и «Искра-226» : руководство для студентов. – Томск: Отделение №1 ТПИ, 1986. – 60 с.

127 Чернов, А.А. Современная кристаллография. (в четырёх томах) Т. 3 Образование кристаллов. / А. А. Чернов, Е. И., Гиваргизов, Х. С. Багдасаров и др. М.: Наука, 1980. – 403 с.

128 Кафаров В.В., Дорохов И.Н., Кольцова Э.М. Системный анализ процессов химической технологии. Процессы массовой кристаллизации из растворов и газовой фазы — М.: Наука, 1983. – 368 с.

129 Спокойный Ф.Е., Горбис З.Р. Особенности осаждения тонкодиспергированных частиц из охлаждённого газового потока на поперечно об-

текаемой поверхности теплообмена / Теплофизика высоких температур. Т.19, №1, 1981.

130 Муштаев В.И., Ульянов В.М., Тимонин А.С. Сушка в условиях пневмотранспорта. – М.: Химия, 1984. – 232 с.

131 Горбис З.Р., Спокойный Ф.Е. Физическая модель и математическое описание процесса движения мягких частиц в турбулентном потоке газовзвеси / Теплофизика высоких температур. Т.15, №2, 1977.

132 Романков П.Г., Курочкина М.И. Гидромеханические процессы химической технологии / 2-е изд. пер. и доп. – Л.: Химия, 1974. – 286 с.

133 Расчёты аппаратов кипящего слоя: Справочник. / Под ред. И.П.Мухленова, Б.С.Сажина, В.Ф.Фролова. – Л.: Химия, 1986. – 352 с.

Приложение А (справочное)

Таблица А.1 – Зависимость коэффициента теплоотдачи излучением α_L , Вт/(м²·К), в системе никель-фторид РЗМ при его сублимации от температуры поверхности T_n , К, и остаточного давления P , Па [70]

Температура поверхности, T_n	Коэффициент теплоотдачи α_L при остаточном давлении P					
	10	50	100	500	1000	2000
700	27,0	29,6	30,8	34,2	35,8	37,7
750	29,6	32,2	33,5	37,0	38,8	40,6
800	32,3	35,1	36,5	40,1	41,9	43,8
850	35,4	38,3	39,7	43,4	45,3	47,3
900	38,7	41,7	43,1	47,0	48,9	51,0
950	42,2	45,3	46,8	50,9	52,9	55,0
1000	46,0	49,3	50,8	55,0	57,2	59,3
1050	50,1	53,5	55,1	59,4	61,6	63,9
1100	54,5	58,0	59,7	64,2	66,7	68,8
1150	59,2	62,8	64,6	69,2	71,5	74,0
1200	64,2	68,0	69,8	74,6	76,9	79,5
1250	69,5	73,4	75,3	80,3	82,7	85,4
1300	75,2	79,2	81,2	86,3	88,8	91,6

Примечание. Коэффициент теплоотдачи лучеиспусканием при больших остаточных давлениях можно определять экстраполяцией данных, приведённых в таблице.

Приложение Б (справочное)

Таблица Б.1 – Зависимость параметров μ и B_I от критерия Био [70]

Bi	μ	B_I	Bi	μ	B_I
0	0	0	8,117	1,4000	4,918
0,001	0,0316	$5,155 \cdot 10^{-4}$	9,000	1,4149	5,476
0,002	0,0447	$1,031 \cdot 10^{-3}$	10,000	1,4289	6,108
0,004	0,0632	$2,064 \cdot 10^{-3}$	10,947	1,4400	6,704
0,006	0,0774	$3,099 \cdot 10^{-3}$	13,123	1,4600	8,082
0,008	0,0893	$4,128 \cdot 10^{-3}$	15,000	1,4729	9,270
0,01	0,0998	$5,160 \cdot 10^{-3}$	16,255	1,4800	10,068
0,02	0,1410	$1,034 \cdot 10^{-2}$	20,000	1,4961	12,44
0,04	0,1987	0,0210	21,152	1,5000	13,18
0,06	0,2425	0,0311	24,806	1,5100	15,50
0,08	0,2791	0,0415	30,000	1,5202	18,81
0,1	0,3111	0,0520	33,276	1,525	20,89
0,2	0,4328	0,1046	37,482	1,5300	23,56
0,3	0,5218	0,1587	40,000	1,5325	25,16
0,4	0,5932	0,2118	41,670	1,534	26,22
0,5	0,6533	0,2663	44,125	1,5360	27,79
0,6	0,7051	0,3213	46,878	1,5380	29,54
0,7	0,7506	0,3768	50,000	1,5400	31,52
0,8	0,7910	0,4326	53,533	1,5420	33,78
0,9	0,8274	0,4889	57,607	1,5440	36,37
1,0	0,8603	0,5456	60,000	1,5451	37,96
1,5	0,9882	0,8340	62,335	1,5460	39,38
2,0	1,0769	1,129	67,893	1,5480	42,91
3,0	1,1925	1,732	74,521	1,5500	47,13
4,0	1,2646	2,345	80,000	1,5514	50,60
5,0	1,3138	2,964	82,559	1,5520	52,25
6,0	1,3498	3,590	87,255	1,5530	55,24
7,0	1,3766	4,216	92,510	1,5540	58,58
8,0	1,3978	4,844	100,00	1,5552	68,16

Приложение В (справочное)

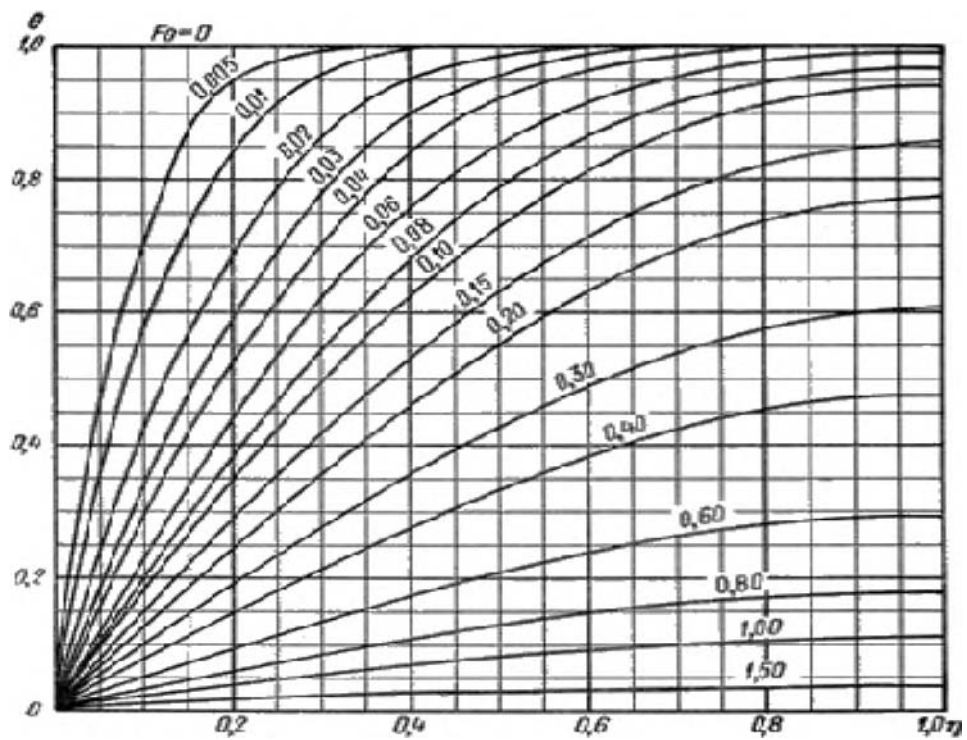


Рисунок В.1 – Определение температуры тела в форме пластины [86]

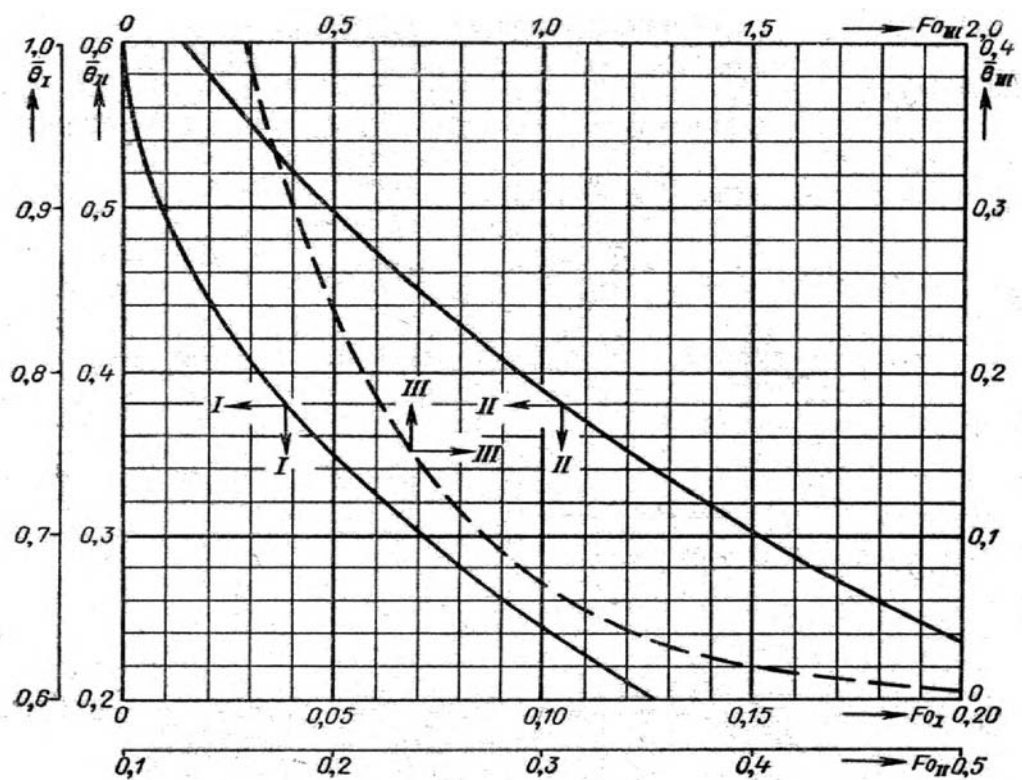


Рисунок В.2 – Определение средней температуры тела в форме пластины [86]

Приложение Г (справочное)

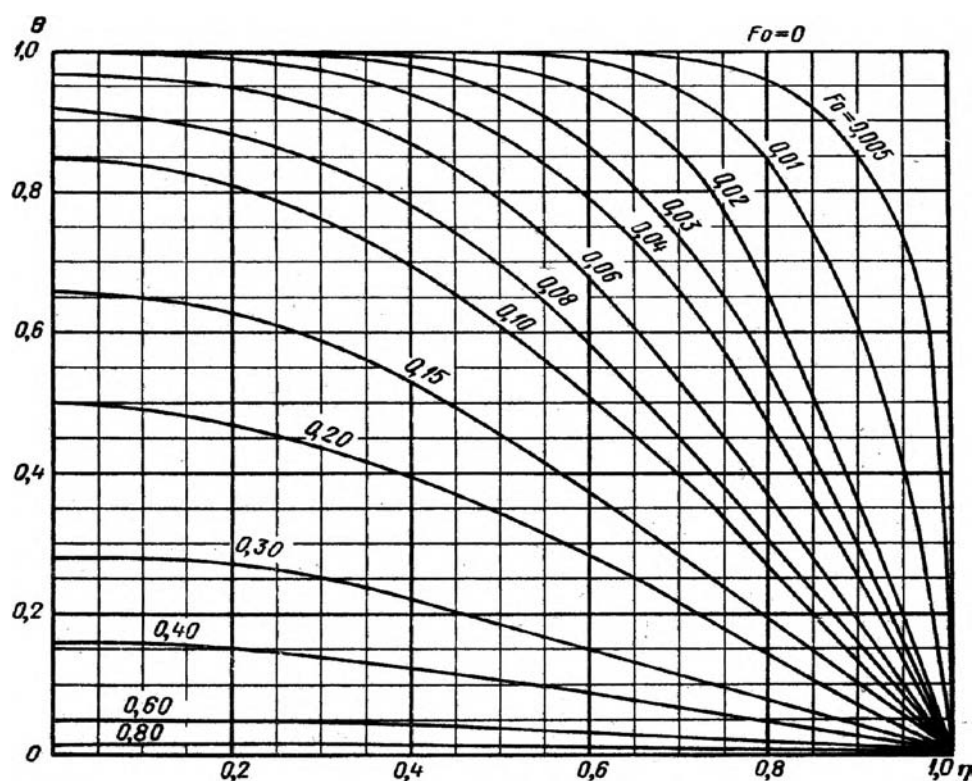


Рисунок Г.1 – Определение температуры сплошного цилиндра [86]

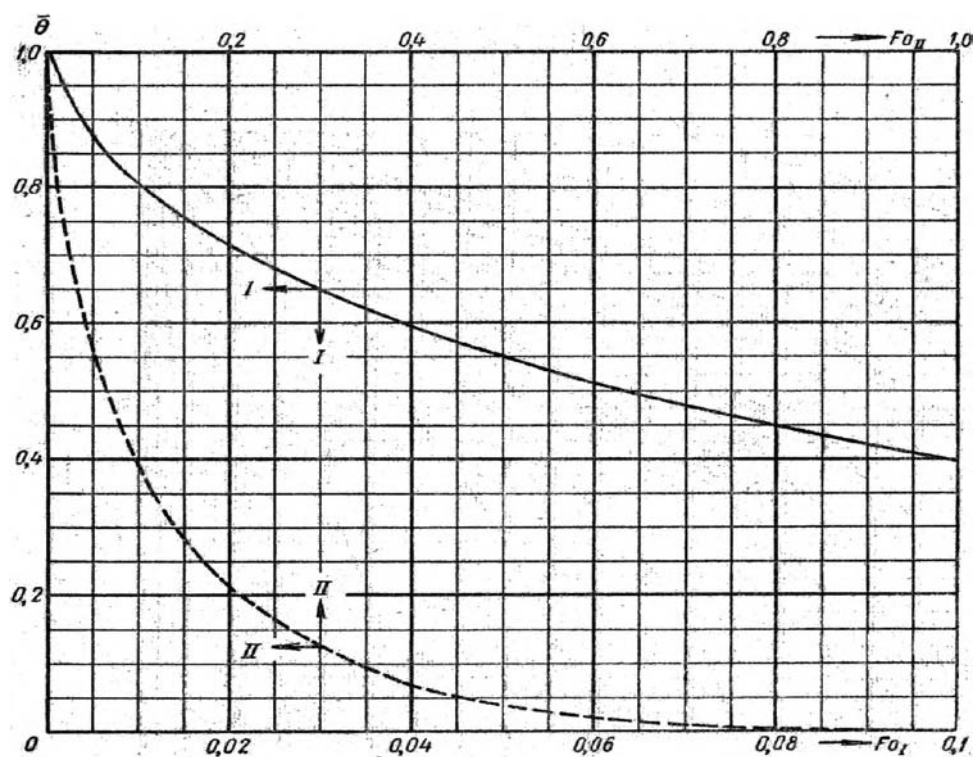


Рисунок Г.2 – Определение средней температуры сплошного цилиндра [86]

Приложение Д (справочное)

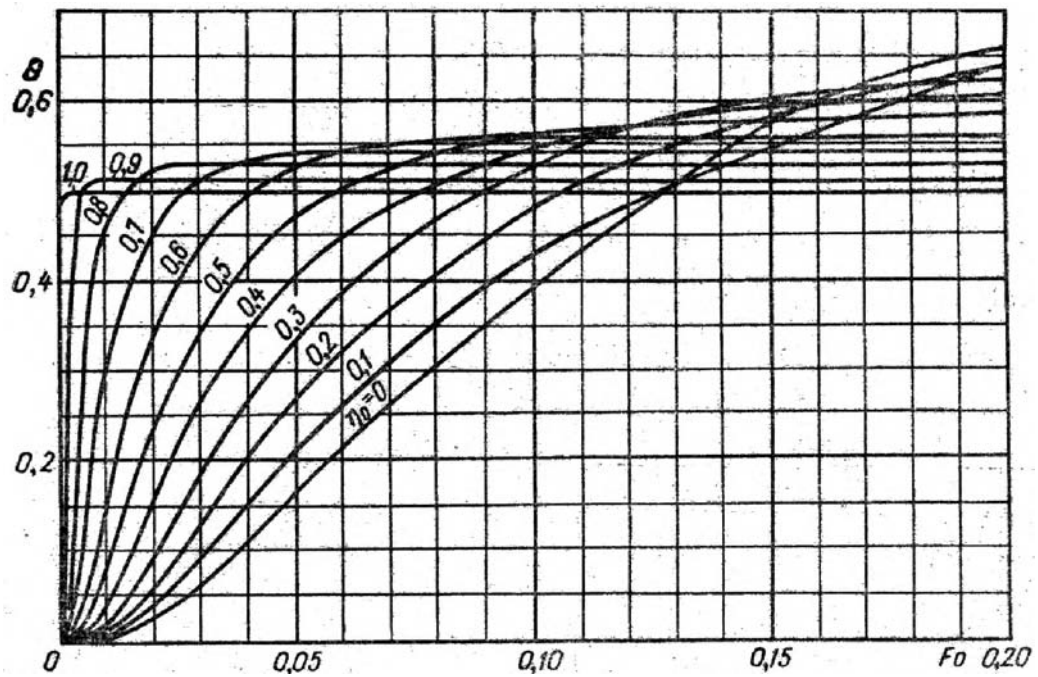


Рисунок Д.1 – Определение температуры полого цилиндра
с наружным обогревом [86]

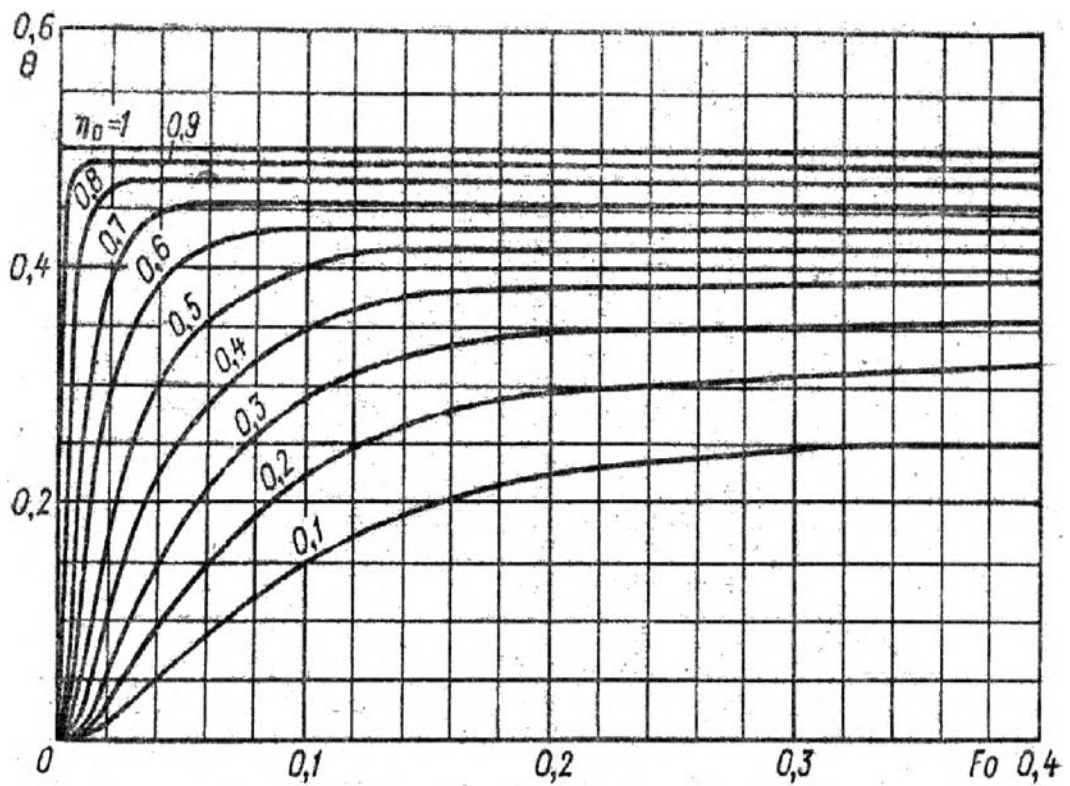


Рисунок Д.2 – Определение температуры тела в виде полого цилиндра
с внутренним обогревом [86]

Приложение Е (справочное)

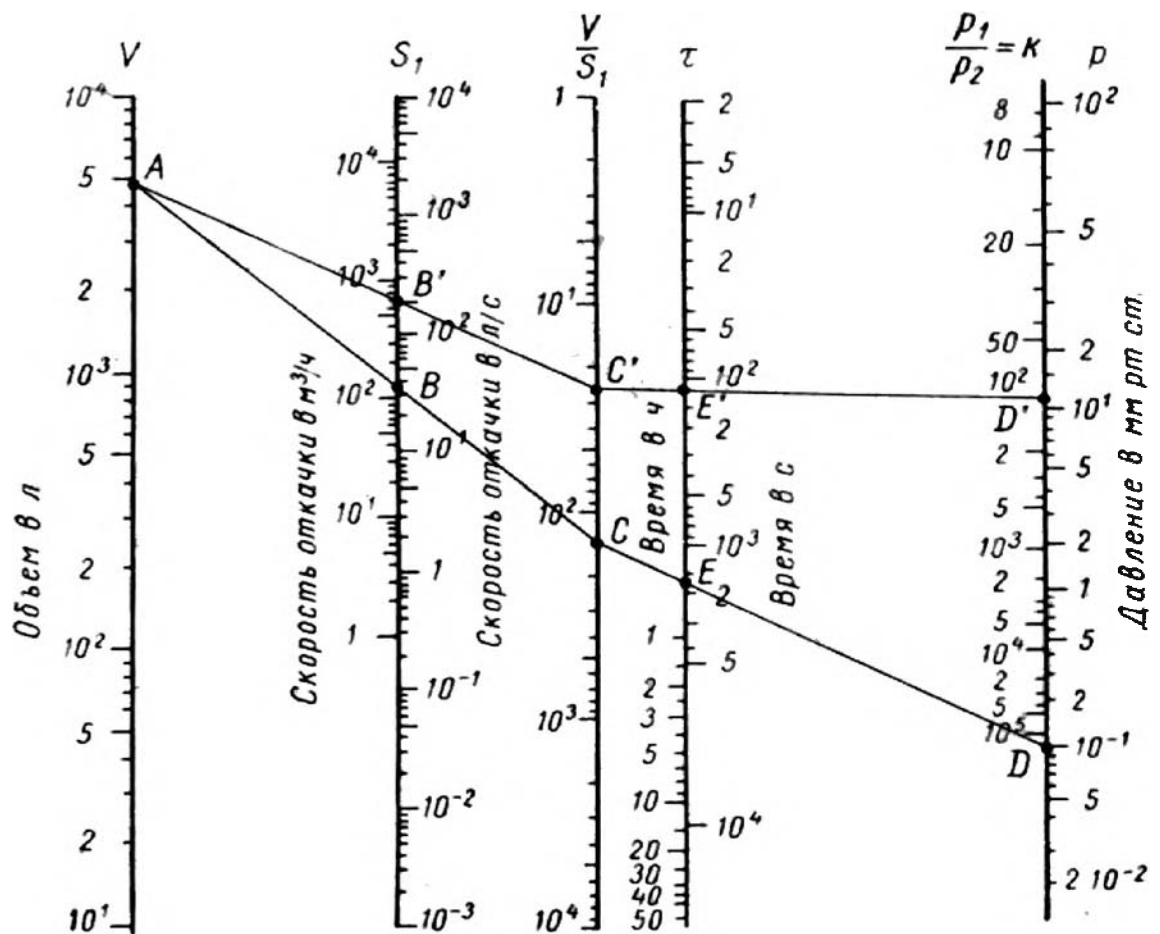


Рисунок Е.1 – Номограмма для определения времени откачки в зависимости от конечного давления [101]

Вначале определяют величину V/S_1 , соединяя точки с отложенными значениями V и S_1 и продлевая полученную линию до пересечения с линией V/S_1 . Полученную точку соединяют с точкой на линии P , соответствующей конечному давлению, до которого нужно откачать систему. На пересечении полученной прямой с линией τ находят необходимое время откачки.

Таким образом, определяют время, если откачка начинается от атмосферного давления.

Если же откачка начинается от давления P_1 и проводится до конечного давления, то подсчитывают значение $k = P_1/P_2$ и соединяют линию V/S_1 с точкой, отложенной на шкале k .

Приложение Ж (справочное)

Таблица Ж.1 – Зависимость показателя сокращения поверхности n отношения начальных размеров цилиндрического слоя материала, спекающегося при сублимации [70]

H_0/D_0	$\gg 10$	10	5	3	2	1,6	1,5	1,2
n	0,5000	0,5352	0,5654	0,5990	0,6305	0,6472	0,6515	0,6631

Продолжение таблицы Ж.1

H_0/D_0	1,0	0,8	0,6	0,4	0,2	0,005	$\ll 1$
n	0,6667	0,6598	0,6260	0,5349	0,3409	0,0200	0

Таблица Ж.2 – Зависимость показателя сокращения поверхности n для кольцевого слоя материала, не спекающегося при сублимации [70]

h_1/h_2	Параметр n при соотношении D_2/D_1					
	1,2	1,4	1,6	2,0	3,0	4,0
0,1	0,785	0,778	0,771	0,758	0,735	0,718
0,2	0,640	0,628	0,618	0,598	0,562	0,538
0,3	0,541	0,526	0,512	0,489	0,446	0,417
0,4	0,471	0,454	0,439	0,413	0,366	0,334
0,5	0,423	0,405	0,389	0,361	0,310	0,277
0,676	0,374	0,354	0,336	0,306	0,253	0,228
0,8	0,361	0,341	0,322	0,291	0,235	0,199
1,0	0,357	0,334	0,315	0,281	0,222	0,183
1,5	0,380	0,356	0,334	0,296	0,228	0,183
2,0	0,416	0,390	0,366	0,325	0,250	0,200
3,0	0,485	0,458	0,432	0,388	0,305	0,247
5,0	0,588	0,563	0,538	0,492	0,403	0,337
10,0	0,734	0,712	0,691	0,652	0,568	0,501

Окончание приложения Ж

Таблица Ж.3 – Зависимость показателя сокращения поверхности n для кольцевого слоя материала, спекающегося при сублимации [70]

h_1/h_2	Параметр n при соотношении D_2/D_1					
	1,2	1,4	1,6	2,0	3,0	4,0
0,1	0,084	0,081	0,078	0,073	0,065	0,061
0,2	0,125	0,118	0,113	0,103	0,088	0,073
0,3	0,164	0,154	0,146	0,132	0,110	0,096
0,4	0,201	0,188	0,178	0,160	0,131	0,113
0,5	0,235	0,220	0,207	0,186	0,151	0,129
0,6	0,268	0,250	0,235	0,211	0,169	0,144
0,8	0,324	0,304	0,285	0,255	0,203	0,170
1,0	0,372	0,348	0,326	0,291	0,230	0,190
1,5	0,446	0,417	0,386	0,346	0,268	0,213
2,0	0,465	0,431	0,401	0,348	0,251	0,186
3,0	0,412	0,369	0,329	0,260	0,132	0,048
5,0	0,326	0,272	0,224	0,138	0	0
10,0	0,211	0,147	0,089	0	0	0

Примечание. В таблицах Ж.1 – Ж.3 приняты следующие обозначения:

H_0 – начальная высота цилиндрического слоя продукта, м;

h – высота слоя материала на тарелке, м;

$h_1 = (D_2 - D_1)/2$ – расчётный параметр, м;

D_0 – начальный диаметр цилиндрического слоя продукта, м;

D_1 – внутренний диаметр кольцевого слоя, м;

D_2 – внешний диаметр кольцевого слоя, м.

Приложение И (справочное)

Таблица И.1 – Значения коэффициента диафрагмирования φ для определения тепловых потерь излучением через отверстия [122]

Толщина теплоизоляции печи, δ , мм	Ширина окна, b , м	Высота окна, h , мм				
		150	200	450	600	750
115	150	0,55	0,63	0,66	0,68	0,69
	300	0,63	0,70	0,73	0,76	0,78
	600	0,68	0,76	0,80	0,82	0,84
	900	0,71	0,79	0,83	0,85	0,87
	1200	0,72	0,81	0,84	0,87	0,89
	1500	0,73	0,82	0,86	0,89	0,91
230	150	0,43	0,49	0,52	0,55	0,56
	300	0,49	0,56	0,60	0,63	0,64
	600	0,55	0,63	0,67	0,70	0,72
	900	0,57	0,66	0,70	0,73	0,75
	1200	0,59	0,68	0,72	0,76	0,78
	1500	0,61	0,69	0,74	0,77	0,79
345	150	0,36	0,43	0,45	0,47	0,49
	300	0,42	0,48	0,52	0,55	0,57
	600	0,47	0,55	0,59	0,62	0,64
	900	0,50	0,58	0,63	0,66	0,70
	1200	0,52	0,60	0,65	0,68	0,71
	1500	0,53	0,61	0,66	0,70	0,72
460	150	0,31	0,36	0,39	0,42	0,43
	300	0,36	0,43	0,46	0,49	0,51
	600	0,42	0,49	0,53	0,56	0,58
	900	0,45	0,52	0,57	0,60	0,62
	1200	0,47	0,55	0,59	0,63	0,65
	1500	0,48	0,56	0,61	0,64	0,67

Приложение К (справочное)

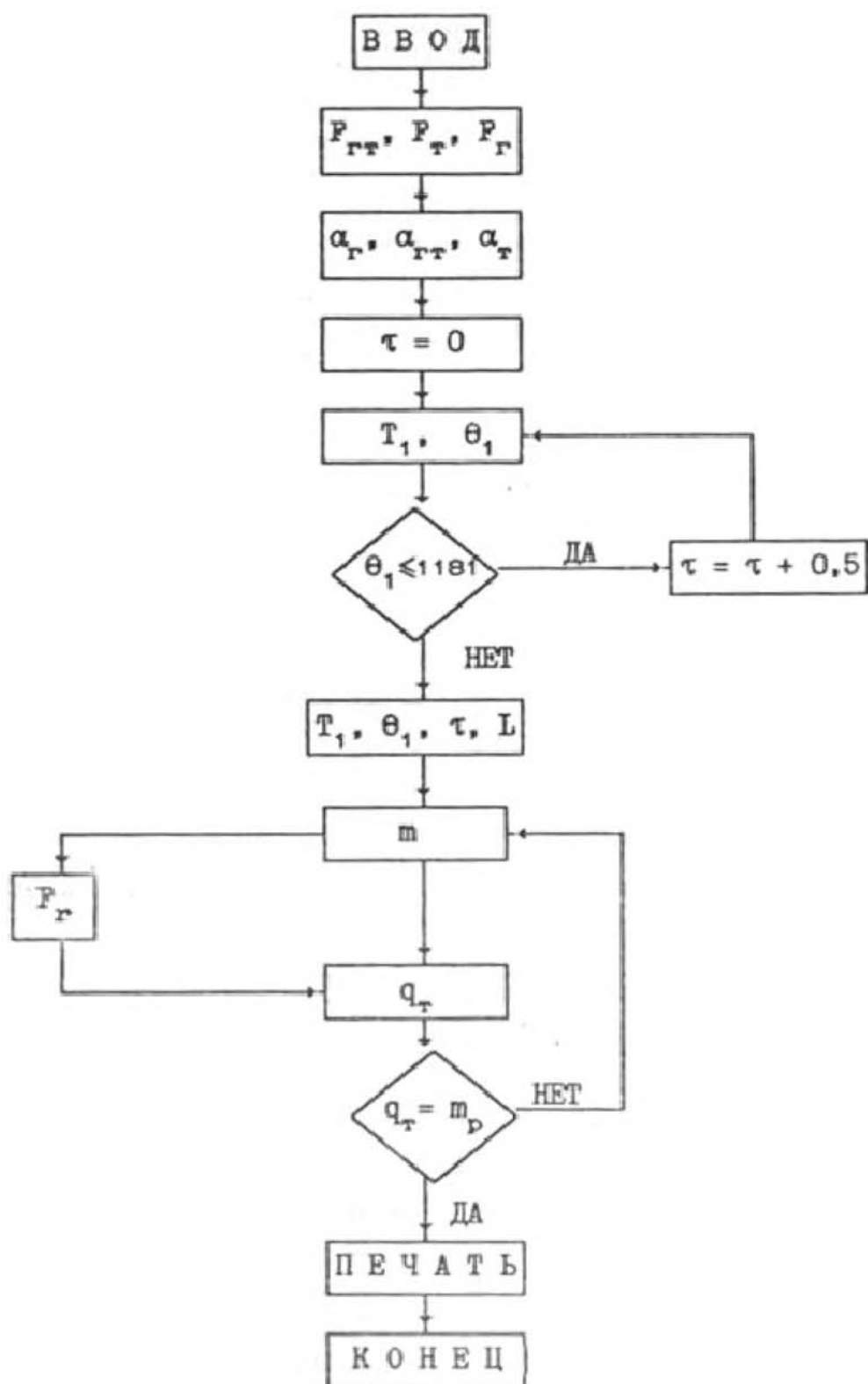


Рисунок К.1 – Блок-схема алгоритма расчёта сублимационного аппарата шнекового типа

Приложение Л (справочное)

Таблица Л.1 – Эффективная удельная поверхностная мощность нагревателей в зависимости от температуры теплопринимающей поверхности [23]

Температура теплопринимающей поверхности, t_2 , °C	Температура нагревателя, t_1 , °C					
	800	850	900	950	1000	1050
100	6,10	7,30	8,70	10,30	12,15	14,15
200	5,90	7,15	8,55	10,15	12,00	14,00
300	5,65	6,85	8,30	9,90	11,70	13,75
400	5,20	6,45	7,85	9,45	11,25	13,30
500	4,50	5,70	7,17	8,80	10,55	12,60
600	3,50	4,70	6,10	7,70	9,50	11,50
700	2,00	3,20	4,60	6,25	8,05	10,00
800	-	1,25	2,65	4,20	6,05	8,10
850	-	-	1,40	3,00	4,80	6,85
900	-	-	-	1,55	3,40	5,45
950	-	-	-	-	1,80	3,85
1000	-	-	-	-	-	2,05

Продолжение таблицы Л.1

Температура теплопринимающей поверхности, t_2 , °C	Температура нагревателя, t_1 , °C						
	1100	1150	1200	1250	1300	1350	1400
100	16,40	19,00	21,80	24,90	28,40	32,20	36,30
200	16,25	18,85	21,65	24,74	28,20	32,00	36,10
300	16,00	18,60	21,35	24,50	27,90	31,70	35,80
400	15,55	18,10	20,90	24,00	27,45	31,25	35,40
500	14,85	17,40	20,20	23,30	26,80	30,60	34,60
600	13,80	16,40	19,30	22,30	25,70	29,60	33,70
700	12,40	14,90	17,70	20,80	24,30	28,00	32,20
800	10,40	12,90	15,70	18,80	22,30	26,00	30,20
850	9,10	11,70	14,50	17,60	21,00	24,90	29,00
900	7,75	10,30	13,00	16,20	19,60	23,50	27,60
950	6,15	8,65	11,50	14,50	18,10	21,80	26,00
1000	4,30	6,85	9,70	12,75	16,25	20,00	24,20
1050	2,30	4,80	7,65	10,75	14,25	18,00	22,20
1100	-	2,55	5,35	8,50	12,00	15,75	19,80
1150	-	-	2,85	5,95	9,40	13,20	17,55
1200	-	-	-	3,15	6,55	10,40	14,55
1250	-	-	-	-	3,45	7,25	11,40
1300	-	-	-	-	-	3,80	7,95
1350	-	-	-	-	-	-	4,15

Приложение М

(справочное)

Физико-химические свойства летучих продуктов реакции фторирования оксидов урана элементарным фтором [115]

Гексафторид урана (UF_6) – твёрдое при нормальных условиях, легколетучее вещество, образует бесцветные прозрачные ромбические кристаллы с плотностью 5060 кг/м^3 , температура плавления $64,05^\circ\text{C}$ (в тройной точке), плотность жидкости 3660 кг/м^3 .

В молекуле UF_6 центральный катион U^{6+} с радиусом $0,83 \text{ \AA}$ полностью экранирован окружающими его шестью ионами фтора (ионный радиус $1,33 \text{ \AA}$). Это обуславливает молекулярный (а не ионный) характер кристаллической решетки гексафторида урана, его низкую температуру плавления и высокую летучесть. Правильная октаэдрическая структура газообразного UF_6 подтверждается нулевым значением дипольного момента.

Плотность UF_6 в газообразном состоянии по отношению к водороду совершенно точно отвечает половине молекулярной массы, то есть $352/2 = 176$. Это свидетельствует о том, что газообразный гексафторид урана ведёт себя подобно идеальному газу и никакой ассоциации молекул в газообразном состоянии не наблюдается.

Критическая точка для гексафторида урана характеризуется следующими параметрами: $t = 245^\circ\text{C}$; $P = 63 \text{ атм.}$; $\rho = 1,39 \text{ кг/м}^3$.

Так как для газообразного UF_6 ассоциации молекул не наблюдается, плотность его можно вычислить по уравнению:

$$\rho_z = 13,28 \cdot \frac{323,2}{T_z} \cdot \frac{P}{760} \cdot 10^{-3},$$

где ρ_z – плотность газа, кг/м^3 ;

P – давление паров ГФУ, мм рт. ст.;

T_z – температура паров ГФУ, К.

Теплопроводность твёрдого гексафторида урана (криоосадка) может изменяться от $0,09$ до $0,2 \text{ Вт/м}\cdot\text{К}$ в зависимости от условий десублимации.

Продолжение приложения М

Теплопроводность λ , вязкость паров μ , теплоёмкость при постоянном давлении c_p газообразного гексафторида урана вычисляются по формулам:

$$\lambda^n = a + bT + cT^2 + dT^3, \text{ мВт/(м·К)},$$

$$\eta^n = a + bT + cT^2, \text{ мкПа·с},$$

$$c_p = a + bT + cT^{-2}, \text{ Дж/(моль·К)},$$

где T – температура, К;

a, b, c, d – эмпирические коэффициенты, равные:

- для λ^n : $a = -0,910$; $b = 2,5741 \cdot 10^{-2}$; $c = 0 \cdot 10^{-5}$, $d = 0 \cdot 10^{-8}$;

- для η^n : $a = 7,176$; $b = 2,267 \cdot 10^{-2}$; $c = 36,67 \cdot 10^{-6}$;

- для c_p : $a = 135,752$; $b = 0,03322$; $c = 1342366$.

Давление пара гексафторида урана при различных температурах описывается уравнениями (P , мм рт. ст.):

$$\lg P = 6,38363 + 0,0075377 \cdot t - \frac{942,76}{t + 183,416},$$

$$\lg P = -\frac{3123,479}{T} + 21,87103 - 3,77962 \cdot \lg T.$$

Некоторые физические и физико-химические свойства гексафторида урана и сопутствующих газов, образующихся в процессе фторирования оксидов урана, представлены в таблицах М.1 и М.2.

Окончание приложения М

Таблица М.1 – Свойства компонентов парогазовой смеси на входе в десублиматор и выходе из него

Компонент газовой смеси	Массовая доля	Плотность ρ_i , кг/м ³	Вязкость $\mu_i \cdot 10^5$, Па·с	Теплоёмкость C_{p_i} , Дж/(кг·К)	Теплопроводность, λ_i , Вт/(м·К)
Вход газа в десублиматор					
UF_6	0,842	11,824	12,0	400	0,06
O_2	0,103	1,275	2,02	1000	0,03
F_2	0,055	1,074	2,2	900	0,03
Смесь	1,0	10,146	10,43	489	0,06
Выход газа из десублиматора					
UF_6	0	–	–	–	–
O_2	0,653	1,275	2,02	1000	0,03
F_2	0,347	1,074	2,2	900	0,03
Смесь	1,0	1,205	2,08	965	0,03

Таблица М.2 – Фазовые переходы и некоторые термодинамические и теплофизические характеристики гексафторида урана

Свойство UF_6	Значение параметра
Температура (К)	
сублимации	329,55
в тройной точке	337,17
в критической точке	503,35
Энтальпия образования (кДж/моль) при 298 К	
$-\Delta H_{f(кр)}^0$	2197,0
$-\Delta H_{f(г)}^0$	2147,4
Энтропия (кДж/(моль·К)) и теплоёмкость (Дж/(моль·К)) при 298 К	
$S_{(кр)}^0$	227,6
$S_{(г)}^0$	377,5
$C_{p(кр)}^0$	166,8
$C_{p(г)}^0$	129,6
Изменение энтальпии (кДж/моль) и энтропии (кДж/(моль·К)) в фазовых переходах	
$\Delta H_{пл}$	19,2
$\Delta S_{пл}$	56,9
$\Delta H_{исп}$	28,7
$\Delta S_{исп}$	84,6
$\Delta H_{субл}$	49,5
$\Delta S_{субл}$	165,8
Коэффициент температуропроводности (м ² /ч) в конденсированной фазе	
α	$(7,46 \dots 7,85) \cdot 10^{-4}$
Коэффициент теплопроводности, Вт/(м·К)	
λ	0,43...0,46

Приложение Н (справочное)

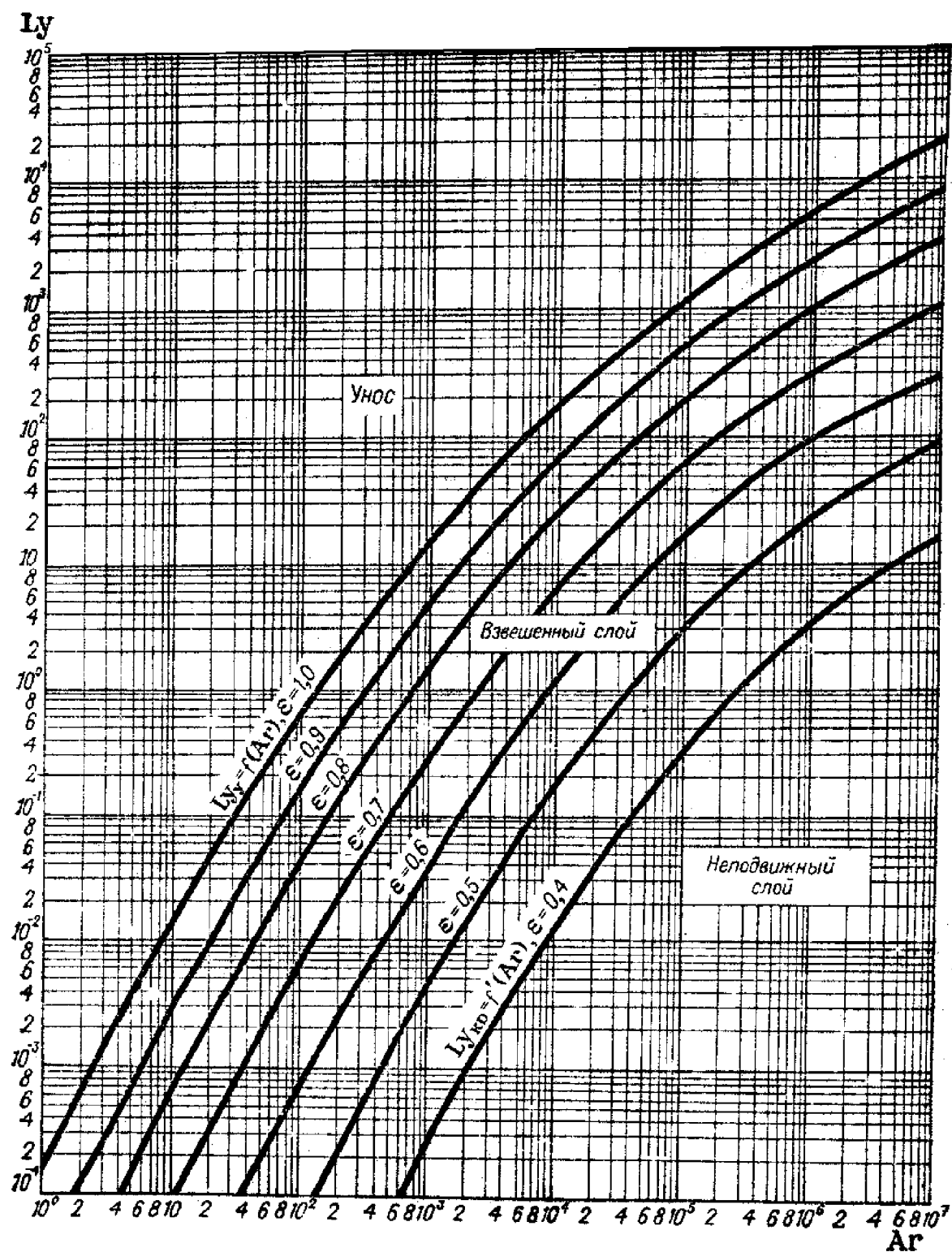


Рисунок Н.1 – Зависимость критерия Лященко Ly от критерия Архимеда Ar

[104]

Приложение II (справочное)

Пример расчёта с использованием программы HSC Chemistry 7.0

File Edit View Insert Delete Format Units Calculate Target Diagram Options Help							
A5	ZrF4						
	INPUT SPECIES (1) Formula	Temper. K	Amount kmol	Amount kg	Amount Nm ³	Latent H kWh	Total H kWh
1	Нагрев	298.150	1.794	300.000	0.068	0.00	-952.52
2	ZrF4	298.150	1.794	300.000	0.068	0.00	-952.52
3							
4	Сублимация	1181.951	1.794	300.000	0.068	56.93	-895.59
5	ZrF4	1181.951	1.794	300.000	0.068	56.93	-895.59
6							
7							

Надписи в столбцах: «Amount kmol» – количество исходных веществ, кмоль;

«Amount kg» – количество, кг;

«Amount Nm³» – количество, нормальных м³;

«Latent H kWh» – энтальпия фазовых переходов, кВт·ч;

«Total H kWh» – общая энтальпия, кВт·ч;

остальные столбцы – служебные

Рисунок П.1 – Лист исходных веществ (IN1):

File Edit View Insert Delete Format Units Calculate Target Diagram Options Help							
A56							
	OUTPUT SPECIES (1) Formula	Temper. K	Amount kmol	Amount kg	Amount Nm ³	Latent H kWh	Total H kWh
1	Нагрев	1181.951	1.794	300.000	0.068	56.93	-895.59
2	ZrF4	1181.951	1.794	300.000	0.068	56.93	-895.59
3							
4	Сублимация	1181.951	1.794	300.000	36.198	45.97	-799.94
5	ZrF4(g)	1181.951	1.615	270.000	36.191	40.28	-710.38
6	ZrF4	1181.951	0.179	30.000	0.007	5.69	-89.56

Рисунок П.2 – Лист продуктов (OUT1)

Окончание приложения П

File Edit View Insert Delete Format Units Calculate Target Diagram				
A54				
	A	B	C	D
1				
2	Степень сублимации, доли	0.9		
3	Давление P, Па	101325		
4				
5	Формула для определения температуры сублимации Tc, K:			
6		$T_c = 11600 / (14.82 - \lg P)$		
7				
8		Tc =	1181.95	K
9				

Рисунок П.3 – Лист с введёнными дополнительными данными

File Edit View Insert Delete Format Units Calculate Target Diagram Options Help												
A72												
	BALANCE	Temper. K	Amount kmol	Amount kg	Amount Nm³	Latent H kWh	Total H kWh	S kWh	G kWh	Ex Phys kWh	Ex Chem kWh	EXERGY kWh
1	IN1		3.588	600.000	0.135	56.93	-1848.12	177.761	-2025.878	0.000	0.000	0
2	OUT1		3.588	600.000	36.286	102.90	-1695.53	420.611	-2116.144	0.000	0.000	0
3	BALANCE		0.000	0.000	36.130	45.97	152.58	242.850	-90.266	0.000	0.000	0

	kmol	kg	Nmi	kWh	kWh
BALANCE (1)	0.000	0.000	36.130	45.97	152.58

Рисунок П.4 – Лист с результатами материального расчёта и теплового баланса (BAL)

Русаков Игорь Юрьевич
Буйновский Александр Сергеевич
Софронов Владимир Леонидович

Сублимационно-десублимационные процессы для фторидных технологий и их аппаратурное оформление

Монография

Редактор

М. В. Ворожейкина

ISBN 978-5-93915-129-0



Подписано к печати ____ Формат 60x84/32.
Гарнитура Times New Roman. Бумага писчая №2.
Плоская печать. Усл. печ. л. 6,68. Уч. изд. л. 12,11.
Тираж 30 экз. Заказ ____

Отпечатано в ИПО СТИ НИЯУ МИФИ
636036, Томская обл., г. Северск,
пр. Коммунистический, 65.