

بررسی پارامتر هیدرودینامیکی موجودی فاز پراکنده در ستون ضربه‌ای افقی نوع سینی دار با نرم‌افزار طراحی آزمایش به روش پاسخ سطح

فرشته خان‌رمکی

پژوهشکده مواد و سوخت هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، تهران-ایران

چکیده

فرآیند استخراج و خالص‌سازی اورانیوم یکی از فرآیندهای اصلی در چرخه سوخت می‌باشد. کاربردترین روش خالص‌سازی اورانیوم در صنعت، روش استخراج حلالی می‌باشد. ستون‌های ضربه‌ای یکی از مهمترین استخراج‌کننده‌های مایع-مایع می‌باشند که کاربرد وسیعی در صنایع مختلف دارند. از جمله ستون ضربه‌ای افقی به دلیل راندمان بالا و دسترسی راحت به اجزاء ستون در صنایع هسته‌ای مورد توجه قرار گرفته‌اند. از این رو ستون‌های ضربه‌ای افقی در استخراج مواد رادیواکتیو به خاطر کم بودن هزینه حفاظ‌گذاری از اهمیت بالایی برخوردارند. برای شناخت هر چه بهتر عملکرد و افزایش مقیاس ستون‌های استخراج، مطالعه پارامترهای هیدرودینامیکی امری ضروری است. در این مقاله، استخراج اورانیوم از محلول فروشویی بندرعباس با استخراج‌کننده آل‌امین ۳۳۶ در ستون ضربه‌ای افقی نوع سینی‌دار انجام شد و تاثیر پارامترهای عملیاتی ستون بر پارامتر هیدرودینامیکی موجودی فاز پراکنده که نقش مهمی را در طراحی و بزرگ‌نمایی ستون‌های فوق‌دارا می‌باشند، به کمک نرم‌افزار طراحی آزمایش با روش پاسخ سطح مورد بررسی قرار گرفت.

کلیدواژه‌ها: استخراج حلالی، ستون ضربه‌ای افقی نوع سینی‌دار، اورانیوم، موجودی فاز پراکنده، روش پاسخ سطح

Investigation of Hold-up as Hydrodynamic Parameter in Horizontal Pulsed Sieve-Plate Column with Design Expert Software by Surface Response Method

Fereshte Khanramaki*

Nuclear Materials and Fuel Research Institute, Nuclear Science and Technology Research Institute, Tehran-Iran

Abstract

The uranium extraction and purification process is one of the main processes in the fuel cycle. The most widely used method of uranium purification in industry is solvent extraction. Pulsed columns are one of the most important liquid-liquid extractors that are widely used in various industries. Horizontal pulsed sieve-plate columns have been considered in the nuclear industry due to their high efficiency and easy access to column components. Therefore, the horizontal pulsed columns are of great importance in the extraction of radioactive materials due to the low cost of shielding. The study of hydrodynamic parameters is necessary to understand the function and scale of these extraction columns. In this paper, the uranium extraction from the leach liquor of Bandar Abbas was done by using Alamine 336 in a horizontal pulsed sieve-plate column. Then, the effect of operating parameters of column on the hold-up of dispersed phase as hydrodynamic parameters, which play an important role in the design of the above columns, has been investigated by experimental design with response surface method (RSM).

Keywords: Solvent extraction, Horizontal Pulsed Sieve-Plate Column, Uranium, Hold-up, Response Surface Method

* Email: fkhanramaki@aeoi.org.ir

۱- مقدمه

موجودی فاز پراکنده از جمله مهمترین پارامترهای هیدرودینامیکی در طراحی ستون‌های ضربه‌ای می‌باشند [۱]. از این پارامتر برای تعیین سطح ویژه^۱ انتقال جرم استفاده می‌شود. از طرفی سطح ویژه در طراحی برای محاسبه ارتفاع ستون بکار می‌رود. در استخراج‌کننده‌های مایع- مایع، نسبت حجم فاز پراکنده به مجموع حجم فاز پیوسته و پراکنده در داخل ستون موجودی فاز پراکنده گفته می‌شود که با استفاده از رابطه زیر بیان می‌شود:

$$\varphi = \frac{V_d}{V_d + V_c} \quad (1)$$

برای پیش‌بینی موجودی فاز پراکنده در ستون‌های ضربه‌ای عمودی و افقی در شرایط بدون واکنش شیمیایی معادلات متعددی پیشنهاد شده است که در جدول (۱) بخشی از این معادلات برای ستون‌های ضربه‌ای سینی‌دار به طور خلاصه آورده شده است. با توجه به مطالعات انجام شده، مشاهده می‌شود تاکنون به منظور پیش‌بینی موجودی فاز پراکنده در شرایط با انتقال جرم و در صورت وجود واکنش شیمیایی در ستون ضربه‌ای افقی نوع سینی‌دار برای سیستم استخراج اورانیوم از محیط سولفات به روش طراحی آزمایش مطالعه‌ای صورت نگرفته است.

جدول ۱- روابط پیشنهادی برای تعیین موجودی فاز پراکنده در ستون‌های ضربه‌ای

مرجع	ملاحظات	رابطه تجربی
برای ستون‌های عمودی و بدون واکنش شیمیایی		
Miyauchi and Oya [2]	$\psi = \frac{Af}{(\beta h)^{1/3}} \left(\frac{\mu_d^2}{\sigma \Delta \rho} \right)^{1/4}$	$\varphi = 4.93 \times 10^2 \psi^{0.84} V_d^{2/3} \text{ for } \psi < 0.0031 \text{ m}^{11/12} \text{ s}^{-1}$ $\varphi = 3.42 \times 10^6 \psi^{0.24} V_d^{2/3} \text{ for } \psi > 0.0031 \text{ m}^{11/12} \text{ s}^{-1}$ $\beta = \frac{\alpha^2}{(1-\alpha)(1-\alpha^2)}$
Tung and Luecke [2]	No transfer: C=3.98×105 With transfer: C=2.52×105	$\varphi = C \left[\frac{Af}{(\beta h)^{1/3}} \right]^{1.90} \left(\frac{\mu_d^2}{\sigma \Delta \rho} \right)^{0.36} V_d^{1.1} \text{ for } \frac{\rho_c (Af)^3}{(2\alpha^2)} > 0.06 \text{ kg/s}^2$
برای ستون‌های افقی و بدون واکنش شیمیایی		
Melnyk [3]	-	$\varphi = 0.87 \left(\frac{A^2 \rho_c g}{\sigma} \right)^{-0.26} \left(\frac{f^4 \sigma}{\rho_c g} \right)^{-0.09} \left(\frac{V_d \rho_c}{g \sigma} \right)^{0.12} \left(1 + \frac{V_c}{V_d} \right)^{0.27}$
Khajenoori et al. [4]	-	$\frac{V_d}{\varphi} + \frac{V_c}{1-\varphi} = 0.088 \left(\frac{af}{V_d} \right)^{-0.568} \left(1 + \frac{V_c}{V_d} \right)^{0.374} \left(\frac{\rho_d}{\rho_c} \right)^{0.053} \left(\frac{\mu_d V_d}{\sigma} \right)^{0.06}$
Panahinia et al. [5]	c→d: C=0.101 d→c: C=0.089	$\varphi = C \left(1 + \frac{Q_c}{Q_d} \right)^{0.124} \left(\frac{af^4 \rho_c}{\sigma g} \right)^{-0.286} \left(\frac{\rho_c}{\Delta \rho} \right)^{-0.783} \left(\frac{\mu_d^4 g}{\rho_c \sigma^3} \right)^{-0.071} \left(\frac{af^3 Q_d \rho_d^2}{\sigma^2} \right)^{0.282}$

۲- روش انجام آزمایش‌ها در مقیاس پیوسته در ستون نیمه‌صنعتی

استخراج اورانیوم از محلول فروشویی بندرعباس در ستون ضربه‌ای افقی نوع سینی‌دار با استخراج‌کننده آلومین ۳۳۶ انجام شد. در آزمایش‌ها، فاز پیوسته محلول فروشویی بندرعباس با غلظت ۰/۲۲ M سولفات و حاوی اورانیوم با غلظت ۲۵۰ ppm بود و از فاز آلی آلومین ۳۳۶ با غلظت ۰/۱۲۵ M، ۵٪ حجمی ایزودکانول بعنوان اصلاح‌کننده و کروزن بعنوان رقیق‌کننده بعنوان فاز پراکنده استفاده شد. خواص فیزیکی محلول‌های استفاده شده در جدول (۲) گزارش شده است.

جدول ۲- خواص فیزیکی سیستم به کار رفته در ستون ضربه‌ای افقی نوع سینی‌دار

فاز	چگالی (kg/m ³)	گرانروی (×۱۰ ^{-۲} kg/m.s)	کشش بین فازی (×۱۰ ^{-۲} N/m)
پیوسته	۱۰۵۸	۰,۸۶۱	۹,۹
پراکنده	۸۲۰	۱,۸۴۱	

پس از کالیبراسیون دستگاه‌های اندازه‌گیری و رسیدن سیستم به شرایط پایا، پارامترهای موجودی فاز پراکنده به روش تجربی جابجایی سطح مشترک، دبی فازهای سبک و سنگین، فرکانس و دامنه ضربه اندازه‌گیری شدند.

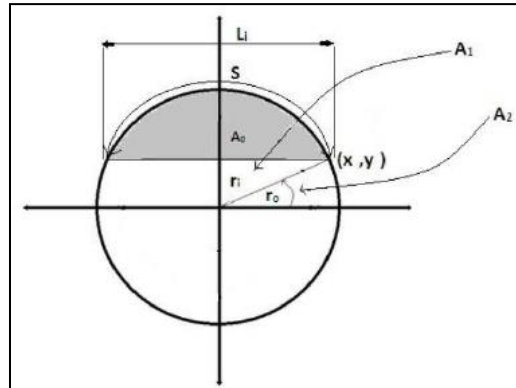
¹ Specific interfacial area

روش‌های مختلفی برای تعیین موجودی فاز پراکنده وجود دارد که در این تحقیق از روش shut down به منظور اندازه‌گیری موجودی فاز پراکنده استفاده گردید. به این ترتیب که پس از خاموشی سیستم شدت ضربه و پس از گذشت زمان کافی، طول قوس فاز آلی در ستون (S) با استفاده از متر اندازه‌گیری شد و با بکارگیری روابط (۶) الی (۸) برای ستون ضربه‌ای نوع افقی مطابق شکل (۱)، موجودی فاز پراکنده در هر آزمایش محاسبه شد [۶].

$$L_i = 2r_i \cos \left[\frac{1}{2} \left(\pi - \frac{S}{r_i} \right) \right] \quad (۶)$$

$$A_0 = \frac{1}{2} \pi r_i^2 - r_i^2 \cos^{-1} \left(\frac{L_i}{2r_i} \right) - \frac{L_i}{2} \left(r_i^2 - \left(\frac{L_i}{2} \right)^2 \right)^{1/2} \quad (۷)$$

$$\varphi = \frac{A_0}{\pi r_i^2} \quad (۸)$$



شکل ۱- نحوه تعیین موجودی فاز پراکنده در ستون‌های ضربه‌ای افقی سینی‌دار

۳- یافته‌ها و نتایج

طراحی آزمایش یکی از مهم‌ترین مباحثی است که امروزه در فعالیتهای آزمایشگاهی مطرح می‌شود. تحلیل نتایج و توجیه رفتار فرآیند و بهینه‌سازی آن به وسیله نرم افزارهای تحلیل آماری انجام می‌شود که معروفترین آنها Minitab و Design Expert می‌باشند. روش پاسخ سطح^۱ یک راهکار پیشنهادی آماری است که می‌تواند اثر تقابل فاکتورهای مختلف را نشان دهد. در این تحقیق نرم افزار DESIGN EXPERT برای رگرسیون و آنالیزهای گرافیکی داده‌ها مورد استفاده قرار گرفت [۷].

تاثیر پارمترهای عملیاتی مانند شدت ضربه (۱٫۲ - ۰٫۸ cm/sec)، دبی فاز پیوسته (۵ l/h - ۱) و دبی فاز پراکنده (۵ l/h - ۱) مورد بررسی قرار گرفتند. محدوده تغییرات پارمترهای عملیاتی بر اساس شرایط کاری ستون در حالت پراکندگی و دور از نقطه طغیان در نظر گرفته شد. نتایج بدست آمده برای موجودی فاز پراکنده از انجام آزمایش‌ها تعیین شده توسط نرم افزار در جدول (۳) آورده شده است.

جدول ۳- مشخصات آزمایش‌های طراحی شده با نرم افزار و نتایج بدست آمده

موجودی فاز پراکنده (-)	پارمترهای عملیاتی			شماره آزمایش
	دبی فاز پراکنده (l/h)	دبی فاز پیوسته (l/h)	شدت ضربه (cm/sec)	
۰٫۲۳۸	۲٫۰۰	۲٫۰۰	۰٫۹۰	۱
۰٫۲۸۴	۳٫۰۰	۳٫۰۰	۱٫۰۰	۲
۰٫۱۷۷	۳٫۰۰	۱٫۰۰	۱٫۰۰	۳
۰٫۱۱۸	۲٫۰۰	۲٫۰۰	۱٫۱۰	۴
۰٫۱۷۰	۴٫۰۰	۲٫۰۰	۱٫۱۰	۵
۰٫۱۲۲	۲٫۰۰	۴٫۰۰	۰٫۹۰	۶

¹ Response Surface Method

۰,۱۶۴	۳,۰۰	۵,۰۰	۱,۰۰	۷
۰,۱۵۲	۳,۰۰	۳,۰۰	۰,۸۰	۸
۰,۱۶۱	۴,۰۰	۲,۰۰	۰,۹۰	۹
۰,۲۴۸	۲,۰۰	۴,۰۰	۱,۱۰	۱۰
۰,۲۲۴	۱,۰۰	۳,۰۰	۱,۰۰	۱۱
۰,۲۴۴	۵,۰۰	۳,۰۰	۱,۰۰	۱۲
۰,۱۳۱	۳,۰۰	۳,۰۰	۱,۰۰	۱۳
۰,۲۹۱	۴,۰۰	۴,۰۰	۰,۹۰	۱۴
۰,۲۲۸	۳,۰۰	۳,۰۰	۱,۲۰	۱۵
۰,۲۵۹	۴,۰۰	۴,۰۰	۱,۱۰	۱۶
۰,۱۶۶	۳,۰۰	۳,۰۰	۱,۰۰	۱۷

۳-۱- بررسی موجودی فاز پراکنده

نتایج تحلیل واریانس و صحت مدل (ANOVA) برای موجودی فاز پراکنده در جدول‌های (۴) و (۵) آورده شده است. با توجه به مقادیر موجود در ستون p-value می‌توان گفت که پارامترهای شدت ضربه، دبی فاز پیوسته و پراکنده مهم‌ترین فاکتورهای اثرگذار بر موجودی فاز پراکنده بودند. بطوریکه عملکرد متقابل فاکتورهای عملیاتی تاثیر چندان قابل ملاحظه‌ای بر این پارامتر ندارند. همچنین می‌توان گفت که مدل پیشنهادی نرم‌افزار صحت قابل ملاحظه‌ای برای برازش داده‌ها دارد.

جدول ۴- تحلیل واریانس اثر متغیرهای عملیاتی بر موجودی فاز پراکنده با نرم‌افزار Design Expert

Source	Sum of Squares	df	Mean Square	F Value	p-Value	
Model	0.047	9	5.27E-03	14.29	0.0021	significant
A-af	0.027	1	0.027	73.75	0.0001	
B-Qc	7.50E-03	1	7.50E-03	20.33	0.0041	
C-Qd	0.012	1	0.0102	27.61	0.0019	
AB	7.86E-04	1	7.86E-04	2.13	0.1947	
AC	1.86E-05	1	1.86E-5	0.05	0.8297	
BC	9.29E-05	1	9.29E-05	0.25	0.6336	
A^2	1.44E-03	1	1.44E-03	3.89	0.0959	
B^2	9.81E-04	1	9.81E-04	2.66	0.1541	
C^2	5.15E-04	1	5.15E-04	1.4	0.2820	
Residual	2.21E-03	6	3.69E-04			
Lack of Fit	2.20E-03	5	4.40E-04	32.05	0.1333	not significant
Pure Error	1.37E-05	1	1.37E-05			
Cor Total	0.05	15				

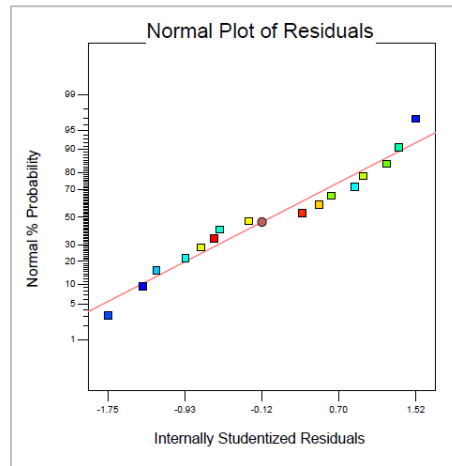
جدول ۵- خروجی نرم‌افزار Design Expert به منظور بررسی صحت مدل برای موجودی فاز پراکنده

R-Squared	0.97
Adj R-Squared	0.92
Pred R-Squared	0.88

بنابراین رابطه زیر برای تعیین موجودی فاز پراکنده بر اساس ترم‌های عملیاتی واقعی توسط نرم‌افزار پیشنهاد گردید:

$$\begin{aligned}
 Hold\ up(\varphi) = & 1.893 - 2.651(af) - 0.135(Q_c) - 0.0343(Q_d) + 0.0991(af \times Q_c) \\
 & + 0.0153(af \times Q_d) + 0.00341(Q_c \times Q_d) + 0.948(af^2) + 0.00783(Q_c^2) \\
 & + 0.00658(Q_d^2)
 \end{aligned}$$

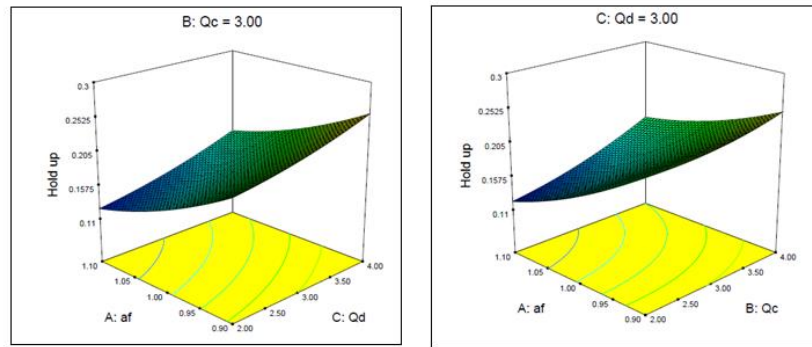
مهم‌ترین فرضیه که در زمینه کفایت مدل، فرض نرمال بودن داده‌ها است. با توجه به شکل (۲) بصورت چشمی می‌توان نتیجه گرفت باقیمانده‌ها در هر دو شرایط آزمایش نسبتاً از توزیع نرمال پیروی می‌کنند.



شکل ۲- نمودار بررسی فرض نرمال بودن داده‌ها برای پارامتر موجودی فاز پراکنده

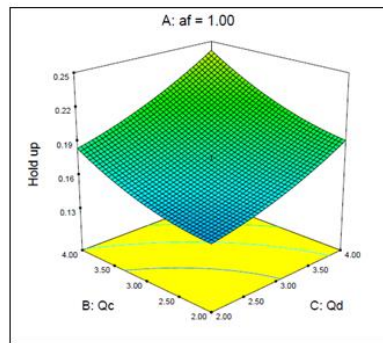
۳-۲- بررسی تاثیر پارامترهای عملیاتی (شدت ضربه، دبی فاز پیوسته و پراکنده) بر موجودی فاز پراکنده

اثر پارامترهای عملیاتی بر روی موجودی فاز پراکنده در شکل (۳) نشان داده شده است. با توجه به شکل ۳-الف، افزایش شدت ضربه منجر به افزایش تنش برشی و به دنبال آن شکست بیشتر قطرات می‌گردد از طرفی با افزایش شدت ضربه رژیم جریان از حالت کاملاً مجزا به رژیم شبه‌پراکنده و سپس رژیم امولسیون تغییر پیدا می‌کند. با توجه به اینکه موجودی فاز پراکنده در رژیم کاملاً مجزا به علت وجود لایه‌ای مجزا از فاز پراکنده بیشتر از دو رژیم دیگر است. با تغییر رژیم جریان از شبه‌پراکنده به امولسیون اندازه قطرات به علت افزایش نیروهای برشی کوچکتر شده، بنابراین مقاومت سوراخ سینی‌ها در برابر حرکت قطرات کمتر می‌شود که این امر نیز باعث کاهش موجودی فاز پراکنده می‌گردد.



ب

الف



ج

شکل ۳- اثر تغییرات پارامترهای عملیاتی بر موجودی فاز پراکنده

بر اساس شکل ۳-ب، با افزایش دبی فاز پیوسته نیروی دراگ بین قطرات فاز پراکنده و پیوسته افزایش می‌یابد بنابراین حرکت قطرات کندتر می‌شود و زمان ماند قطرات افزایش می‌یابد. بنابراین با افزایش دبی فاز پیوسته موجودی فاز پراکنده افزایش می‌یابد. مطابق با تعریف موجودی فاز پراکنده و نتایج نشان داده شده در شکل ۳-ج، می‌توان گفت که با افزایش دبی فاز پراکنده موجودی فاز پراکنده افزایش قابل ملاحظه‌تری نسبت به افزایش دبی فاز پیوسته خواهد داشت، بنابراین دبی فاز پراکنده نسبت به فاز پیوسته تاثیر بیشتری بر روی موجودی فاز پراکنده در ستون‌های افقی ضربه‌ای نوع سینی‌دار دارد.

۳-۳- بهینه‌سازی مدل ارائه شده توسط نرم‌افزار Design Expert

بهینه‌سازی مدل برای تاثیر پارامترهای عملیاتی بر روی موجودی فاز پراکنده انجام پذیرفت و خطای مقادیر پیش‌بینی شده با استفاده از مدل و مقادیر بدست آمده در آزمایش واقعی در جدول (۶) آورده شده است. می‌توان گفت، مدل ارائه شده بوسیله نرم‌افزار دقت قابل قبولی برای پیش‌بینی موجودی فاز پراکنده با مقادیر بدست آمده در ستون دارد.

جدول ۶- تعیین خطای مقادیر پیش‌بینی شده با مدل و مقادیر بدست آمده برای موجودی فاز پراکنده در آزمایش

شدت ضربه (cm/sec)	دبی فاز پیوسته (l/h)	دبی فاز پراکنده (l/h)	موجودی فاز پراکنده
۱٫۱	۴	۲	واقعی ۰٫۱۷۶۶۱۵
			پیش‌بینی شده ۰٫۱۷۲۸۶۱
			خطا (%) ۲٫۱

۴- نتیجه‌گیری

نتایج بررسی پارامترهای عملیاتی ستون استخراج ضربه‌ای افقی نوع سینی‌دار برای استخراج اورانیوم از محلول فروشویی بندرعباس با آلومین ۳۳۶ بر موجودی فاز پراکنده به روش طراحی آزمایش نشان داد که با افزایش شدت ضربه، موجودی فاز پراکنده کاهش و با افزایش دبی حجمی فازها، موجودی فاز پراکنده افزایش می‌یابد.

۵- مراجع

1. E. Bender, P. Berger, W. Leuckel, and D. Wolf, "studies on the operating characteristics of pulsed packed columns for Liquid-liquid extraction," *Chem. Eng.*, vol. 21, pp. 29-38, 1981.
2. R. L. Yadav and A. W. Patwardhan, "Design aspects of pulsed sieve plate columns," *Chemical Engineering Journal*, vol. 138, pp. 389-415, 2008.
3. A. J. Melnyk, "Hydrodynamic behavior of a horizontal pulsed solvent extraction column, part 1: flow characterization, throughput capacity and holdup," *Can. J. Chem. Eng.*, vol. 70, pp. 417-425, 1992.
4. M. Khajenoori, J. Safdari, A. Haghghi-Asl, and M. H. Mallah, "Slip and Characteristic Velocities in a Horizontal Pulsed-Plate Extraction Column," *Chem. Eng. Technol.*, vol. 38, pp. 1783-1792, 2015.
5. F. Panahinia, M. Ghannadi-Maragheh, J. Safdari, P. Amani, and M. H. Mallah, "Experimental investigation concerning the effect of mass transfer direction on mean drop size and holdup in a horizontal pulsed plate extraction column," *RSC Advances*, vol. 7, pp. 8908-8921, 2017.
6. A. J. Melnyk, "Hydrodynamic Characteristics of a Horizontal Pulsed Solvent Extraction Column," Philosophy McMaster University Hamilton, A Thesis Submitted to the School of Graduate Studies in Partial Fulfillment of the Requirements for the Degree Doctor, Ontario, Canada, 1989.
7. D. C. Montgomery, *Design and Analysis of Experiments*, 5th ed. New York: John Wiley & Sons, 2001.