

## بررسی پارامترهای جذب دینامیکی گاز زنون بر روی جاذب‌های کربن فعال و غربال مولکولی ۵Å

مجید حاجی‌حسینی\*<sup>۱</sup>، محمد سبزیان<sup>۲</sup>، مهدی نصرآبادی<sup>۲</sup>

۱. پژوهشکده‌ی مواد و سوخت هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۸۴۸۶-۱۱۳۶۵، تهران - ایران

۲. گروه مهندسی هسته‌ای، دانشکده علوم و فن‌آوری‌های نوین، دانشگاه اصفهان، صندوق پستی: ۸۱۷۴۶-۷۳۴۴۱، اصفهان - ایران

### مقاله‌ی پژوهشی

تاریخ دریافت مقاله: ۹۷/۱۱/۲۴ تاریخ پذیرش مقاله: ۹۸/۵/۱۳

**چکیده:** رفتار جذبی دینامیکی کربن فعال دانه‌ای و غربال مولکولی ۵Å در فرایند جذب گاز زنون مقایسه شده است. این امر به منظور طراحی و ساخت محفظه‌ی حاوی بستر جاذب گاز زنون با مشخصه‌های بهینه انجام شده است. برای اندازه‌گیری زنون در خروجی ستون حاوی جاذب از دستگاه کروماتوگرافی مجهز به آشکارساز رسانندگی گرمایی استفاده شده است. تأثیر نرخ جریان گاز در دمای ثابت بر جذب دینامیکی و همچنین تغییرات دما در نرخ جریان ثابت مورد مطالعه قرار گرفته است. با استفاده از منحنی‌های شکست، متغیرهایی چون طول ناحیه‌ی انتقال جرم و طول بستر استفاده نشده محاسبه شده است. به منظور تخمین مقدار مورد نیاز جاذب و شرایط بهینه‌ی جذب از مدل لانگمویر برای محاسبه‌ی ظرفیت جذب بهره گرفته شده است. نتیجه‌های آزمایش‌های تجربی و خروجی مدل‌های به کار گرفته شده انطباق مناسبی داشته و جذب بهتر به وسیله‌ی کربن فعال را تأیید نموده‌اند.

**کلیدواژه‌ها:** جذب دینامیکی، گاز زنون، غربال مولکولی، کربن فعال

## Parameteric study of xenon dynamic adsorption on activated charcoal and 5 Å molecular sieve adsorbent

M. Haji Hosseini\*<sup>1</sup>, M. Sabzian<sup>2</sup>, M.N. Nasrabad<sup>2</sup>

1. Materials and Nuclear Fuel Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOI, P.O.Box: 11365-8486, Tehran - Iran
2. Department of Nuclear Engineering, Faculty of Advanced Science and Technology, University of Isfahan, P.O.Box: 81746-73441, Isfahan - Iran

**Abstract:** The dynamic adsorption behavior of granular activated carbon and 5Å molecular sieve adsorbents on xenon adsorption has been studied. The goal was to design and fabricate an adsorbent pack bed with optimized conditions. To measure the xenon in the column output contains adsorbent, a chromatography apparatus equipped with a thermal conductivity detector was used. The effect of isotherm gas flow rate and temperature variations at a constant flow velocity of gas on the dynamic adsorption process were studied. Variables such as range of the mass transfer zone and range of the unused bed have been calculated using breakthrough curves. The Langmuir model was used to predict the required adsorbent quantity and proper adsorption process by calculating the adsorption capacity of the adsorbent. The results have shown an appropriate consistency with the model outputs, and a better adsorption performance was approved for the granular activated carbon adsorbent.

**Keywords:** Dynamic adsorption, Xenon, Molecular sieve, Activated carbon

\*Email: mhajihoseini@aeoi.org.ir

## ۱. مقدمه

زنون پرتوزا یکی از محصول‌های شکافت هسته‌ای است که به صورت معمول از خروجی نیروگاه‌های هسته‌ای، رآکتورهای تحقیقاتی و مراکز تولید رادیوداروها وارد اتمسفر می‌شود. محصورسازی و انتقال این گاز به مخزن‌های مخصوص نگهداری، در مراکز رادیودارو به عنوان یکی از محصول‌های نهایی مورد نیاز است. از سوی دیگر در رآکتورهای تحقیقاتی و نیروگاه‌های هسته‌ای این محصورسازی برای جلوگیری از آلودگی محیط مطلوب است. یکی از راه‌های محصورسازی گاز زنون استفاده از مخزن‌های حاوی جاذب با قابلیت جذب سطحی است. به طور معمول از جاذب‌های کربن فعال و هم‌چنین در موردهایی از غربال‌های مولکولی برای این منظور استفاده می‌شود. در این موردها مقدار جاذب مورد نیاز برای جذب کامل و محصورسازی گاز زنون، از لحاظ کاربردی و اقتصادی دارای اهمیت فراوانی است. یکی از موردهای دیگر استفاده از گاز زنون پرتوزا، آشکارسازی حادثه‌های هسته‌ای است که در آن نیاز به یک آزمایشگاه با توانایی استخراج و حجم‌سنجی گاز زنون پرتوزا در محیط وجود دارد. بنابراین یکی از مرحله‌های اصلی در طراحی و ساخت چیدمان مناسب با قابلیت استخراج و فراوری زنون موجود در نمونه‌های محیطی، طراحی و ساخت ستونی حاوی جاذب مناسب برای جداسازی و فراوری این گاز است [۱]. در انتها گاز زنون جذب‌شده بر روی جاذب، واجذب شده و انتقال گاز پرتوزا به داخل محفظه‌ی آشکارساز با استفاده از روش کروماتوگرافی گازی صورت می‌پذیرد، بنابراین نیاز به طراحی و پیاده‌سازی چیدمانی برای اندازه‌گیری و بهینه‌سازی پارامترهای جذب گاز زنون بر روی جاذب‌های مختلف وجود دارد. براساس سابقه‌های موجود، دو جاذب کربن فعال دانه‌ای و غربال مولکولی  $5 \text{ \AA}$  جاذب‌های مناسبی برای جذب دینامیکی زنون هستند [۲]. بنابراین ضمن استفاده از مدل‌ها و معادله‌های مناسب، پارامترهای فرایندی جذب زنون بر روی این دو جاذب با استفاده از چیدمان طراحی شده و آزمایش‌های مختلف مورد مطالعه و اندازه‌گیری قرار گرفت. علاوه بر این، مقدار مورد نیاز هر دو جاذب در یکای حجم، نیز بررسی شد [۳].

## ۲. نظریه

## ۱.۲ هم‌دمای جذب لانگمویر و منحنی شکست

وقتی جذب‌شونده و جاذب برای مدت زمان کافی با هم در تماس با یکدیگر باشند، بین مقدار ماده‌ی جذب شده و مقدار ماده‌ی باقی‌مانده در محیط واکنش تعادلی برقرار می‌شود. منحنی هم‌دمای جذب رابطه‌ی تعادلی بین غلظت در فاز سیال و مقدار در ذره‌های جامد در دمای مشخص است. برخی از متداول‌ترین مدل‌های ارائه شده برای هم‌دمای جذب عبارت‌اند از: هم‌دمای جذب لانگمویر، هم‌دمای جذب BET، هم‌دمای جذب تمکین، هم‌دمای جذب فروندلیش و ویلر جونز. در این مقاله از هم‌دمای جذب لانگمویر استفاده شده است [۴].

هم‌دمای جذب لانگمویر معادله‌ای مفید برای سیستم‌های عمدتاً گازی است؛ براساس این معادله مقدار ماده‌ی جذب‌شده بر روی یک سطح، زمانی که دما ثابت نگه‌داشته شود، تابعی از فشار در نظر گرفته می‌شود. فرضیه‌ی این معادله، جذب سطحی تک‌لایه‌ی مولکول‌ها در سطح جاذب است. معادله عبارت است از  $f = ap(1+ap)$  که در آن  $f$  کسر سطح پوشیده شده،  $p$  فشار و  $a$  یک ثابت است [۵]. رفتار زمانی جذب ماده‌ی جذب‌شونده در ستون حاوی جاذب و مسیر حرکت جذب‌شونده بر روی جاذب توسط منحنی شکست<sup>۱</sup> در آزمایشگاه قابل بررسی است. منحنی شکست شبیه به حرف S انگلیسی است. این منحنی دارای سه ویژگی است: شیب، نقطه‌ی میانی و شکل. با استفاده از این ویژگی‌ها، زمان شکست، تعادل (نقطه‌ی میانی) و اشباع را می‌توان به دست آورد. با علم به مقدار نرخ جریان گاز، غلظت، حجم ستون حاوی ماده‌ی جاذب و بنابراین جرم ماده‌ی جاذب را می‌توان محاسبه کرد. از حجم منحنی شکست می‌توان دو ویژگی ستون جاذب، طول ناحیه‌ی انتقال جرم و طول بستر استفاده‌نشده<sup>۲</sup> (LUB) را به دست آورد. در مدت زمان جذب، طول ناحیه‌ی انتقال جرم<sup>۳</sup> (LMTZ) طولی از ستون است که در آن مقدار گونه ۹۵٪ حالت اشباع است، یا طولی از ستون است که در آن مقدار گونه به ۵٪ کاهش می‌یابد. طول بستر استفاده‌نشده نیز در لحظه‌ی شکست، طولی از ستون است که در آن مقدار گونه‌ی موجود ۵۰٪ مقدار اولیه است، یا طولی از ستون که مقدار گونه در آن به ۵۰٪ کاهش یافته است [۶].

1. Breakthrough curve
2. Length of unused bed
3. Length of mass transfer zone

## ۲.۲ محاسبه‌ی ثابت‌های جذب تعادلی

معادله‌ی لانگمویر می‌تواند برای هم‌دمای جذب مورد استفاده قرار گیرد. شکلی از معادله‌ی لانگمویر این است.

$$\frac{C_o}{q} = \frac{1}{bq_m} + \frac{C_o}{q_m} \quad (1)$$

که در آن  $b$  ثابتی متناسب با نرخ جذب و واجذب و  $q_m$  مقدار ماده‌ی جذب‌شده به صورت تک‌لایه است. در غلظت‌های پایین، معادله‌ی ۱ را می‌توان به شکل فشرده‌ی زیر نوشت:

$$q = kd_o C_o \quad (2)$$

این معادله، شکلی از معادله‌ی هنری است. ضریب جذب سطحی دینامیکی و مقدار گونه‌ی جذب‌شده یعنی  $k_d$  و  $q$  هر دو متأثر از خاصیت‌های دانه‌بندی جاذب، درجه‌ی حرارت، نرخ جریان، فشار و غیره است [۷].  $k_d$  از موازنه‌ی جرم ستون جاذب قابل محاسبه است. ضریب جذب  $k_d$  می‌تواند چنین محاسبه شود.

$$k_d = \frac{F \times T_{\gamma, \delta}}{W} \quad (3)$$

که در آن  $F$ ،  $T_{\gamma, \delta}$  و  $W$  به ترتیب، نرخ جریان حجمی گاز ورودی، زمان تعادل (زمانی که غلظت خروجی ۵۰٪ غلظت ورودی است) و جرم جاذب برحسب گرم است.  $q$ ، ظرفیت جذب به صورت زیر محاسبه می‌شود [۸]:

$$q = \frac{F \times T_{\gamma, \delta} \times C_o}{W} = k_d \times C_o \quad (4)$$

که در آن  $F$ ،  $T_{\gamma, \delta}$ ،  $W$  و  $C_o$  به ترتیب نرخ جریان حجمی گاز ورودی، زمان تعادل (زمانی که غلظت خروجی ۵۰٪ غلظت ورودی است)، جرم جاذب برحسب گرم و غلظت تعادلی گاز ورودی است.

در مقایسه با قانون هنری  $k_d$  می‌تواند به عنوان ثابت هنری نامیده شود. جذب زنون روی کربن فعال نوعی جذب فیزیکی است. بنابراین دما در آن نقش مهمی دارد. تأثیر دما بر روی  $k_d$  و  $q$  می‌تواند با معادله‌ی زیر توصیف شود:

$$k_d(q) = A_o e^{\frac{Q}{RT}} \quad (5)$$

که در آن  $A_o$  ضریب نمایی،  $Q$  گرمای جذب،  $T$  دمای مطلق، و  $R$  ثابت جهانی گازها است.

طول ناحیه‌ی انتقال جرم، طولی از بستر جاذب را نشان می‌دهد که پس از تشکیل در یک نرخ ثابت پایدار بوده و در مسیر جریان گاز به سمت جلو حرکت می‌کند. مقدار طول ناحیه‌ی انتقال جرم از منحنی‌های شکست قابل محاسبه است. در طراحی و مهندسی عملی، طول بستر جاذب بیش از دو برابر طول ناحیه‌ی انتقال جرم انتخاب می‌شود [۹]. طول ناحیه‌ی انتقال جرم به صورت زیر محاسبه می‌شود:

$$L_{MTZ} = \frac{\tau(T_{\gamma, \delta} - T_{\gamma, \delta}) \times h}{(T_{\gamma, \delta} + T_{\gamma, \delta})} \quad (6)$$

که در آن  $t_{\gamma, \delta}$  و  $t_{\gamma, \delta}$ ، به ترتیب زمان اشباع (زمانی که غلظت خروجی ۹۵٪ غلظت ورودی است)، زمان شکست (زمانی که غلظت خروجی ۵٪ غلظت ورودی است) است.

طول بستر استفاده نشده (LUB) بخشی است که در آن جذبی صورت نگرفته و یک ویژگی اصلی بستر جاذب است. از آنجایی که LUB تحت تأثیر نرخ جریان است، ولی تحت تأثیر طول بستر نیست، می‌توان از آن برای محاسبه‌ها در افزایش مقیاس بستر جاذب از مقیاس آزمایشگاهی به مقدار صنعتی استفاده نمود. کمیت LUB چنین محاسبه می‌شود.

$$LUB = \left(1 - \frac{T_{\gamma, \delta}}{T_{\gamma, \delta}}\right) \times h \quad (7)$$

به‌طور معمول در یک منحنی حجم شکست متقارن، تساوی زیر برقرار است:

$$T_{\gamma, \delta} + T_{\gamma, \delta} = 2T_{\gamma, \delta}$$

$$T_{\gamma, \delta} - T_{\gamma, \delta} = T_{\gamma, \delta} - T_{\gamma, \delta}$$

در این مورد، رابطه‌ی بین  $L_{MTZ}$  و LUB این است.

$$L_{MTZ} = \frac{\tau(T_{\gamma, \delta} - T_{\gamma, \delta} + T_{\gamma, \delta} - T_{\gamma, \delta}) \times h}{(T_{\gamma, \delta} + T_{\gamma, \delta})} = \frac{\tau(T_{\gamma, \delta} - T_{\gamma, \delta}) \times h}{T_{\gamma, \delta}} = 2LUB \quad (8)$$

که در آن  $h$  طول بستر است [۱۰].

### ۳. مواد و تجهیزات

چیدمان ابزار استفاده شده برای اندازه‌گیری میزان جذب زنون بر روی کربن فعال و غربال مولکولی ۵ Å در شکل ۱ نشان داده شده است. این ابزار نه تنها امکان جذب مخلوط گازی حاوی غلظت مشخصی از گاز زنون را فراهم می‌نماید، بلکه به منظور بررسی رفتار دمایی و زمانی جاذب موردنظر در فرایند جذب مواد مدیریت زمان تزریق مخلوط گازی و آشکارسازی غلظت خروجی از مواد جاذب را در دماها و نرخ جریان‌های مختلف نیز امکان‌پذیر می‌سازد.

مواد جاذب به کار رفته شامل پودر زغال فعال (مرک) با خلوص آزمایشگاهی با اندازه‌ی ذره‌ی ۱/۵ mm و غربال مولکولی ۵Å (مرک) پس از آسیاب شدن در آسیاب گلوله‌ای (ساخت شرکت رستک<sup>۱</sup> محصول کشور آلمان) توسط غربال ساخت همان شرکت با اندازه‌ی ۲۸۰ تا ۸۰۰µm مش‌بندی شد. از گاز هلیوم با درجه‌ی خلوص ۹۹/۹۹۹٪ (شرکت گازی تکنیکال امارات) به عنوان گاز حامل استفاده شد. محلول گازی زنون در داخل هلیوم با غلظت ۵۰۰ ppmv تهیه شد. به منظور حذف رطوبت، مواد جاذب قبل از وارد شدن در داخل ستون به مدت ۲ ساعت داخل آون در دمای °C ۲۰۰ حرارت داده شد.

در ابزار استفاده شده، از کنترل‌کننده‌ی جرمی برای کنترل نرخ جریان محلول گازی بر روی جاذب و از پمپ خلاء نیز برای تخلیه‌ی گاز بهره گرفته شده است. ستون‌های پُر شده در مرحله‌ی قبل در داخل یک ژاکت حرارتی از جنس پلی‌مر سیلیکونی قرار داده شد. ضدیخ داخل این شلنگ سیلیکونی، توسط یک دستگاه چرخش مایع مدل Wcf-p8 با قابلیت تنظیم دما، عبور داده شد و بدین ترتیب دمای ستون در مقدار مورد نظر تنظیم شد. سه نوع تله‌ی اکسیژن، رطوبت و تله‌ی ترکیب‌های آلی در مسیر گاز حامل برای حذف آلودگی‌های آن استفاده شد.

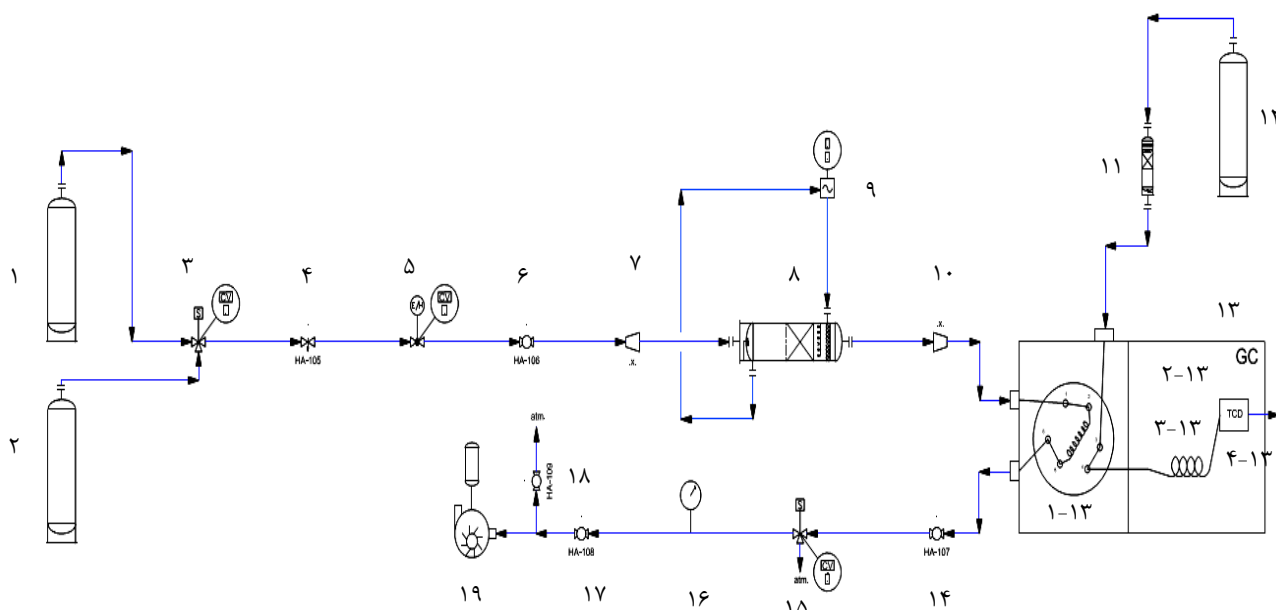
دستگاه کروماتوگرافی گازی ساخت شرکت باک ساینتیفیک<sup>۲</sup> آمریکا، مدل ۹۱۰ مجهز به آشکارساز رسانندگی گرمایی و ستون Porapak q با طول ۴ m است و ورودی شیر چرخان برای تزریق محلول گازی به ستون است. در ابزار استفاده شده با چرخش شیر چرخان از خروجی ستون جاذب

می‌توان در فاصله‌های زمانی مشخص (هر ۵ دقیقه یک بار) ۱ mm از نمونه را به دستگاه کروماتوگرافی گازی تزریق نمود. از یک لوله‌ی استیل ضدزنگ با قطر داخلی  $\frac{3}{8}$  اینچ و طول ۱ m به عنوان ستون جاذب استفاده شد. برای آماده‌سازی اولیه، ستون پُر شده در حضور جریان گاز هلیوم با نرخ جریان  $60 \text{ mL min}^{-1}$  و در دمای °C ۱۷۰ در داخل آون به مدت دو ساعت حرارت داده شد. سپس در حضور جریان گاز هلیوم عملیات خنک‌سازی ستون انجام شد.

### ۴. اندازه‌گیری جذب و واجذب زنون بر روی جاذب

بعد از آماده‌سازی ستون و نصب آن در سیستم طراحی شده در موقعیت ۸ و پس از رساندن دما به مقدار مورد نظر، شیر برقی شماره ۱۵ به جریان متصل و پمپ خلاء روشن شد. در این مرحله هوای موجود در مسیر تخلیه شد. سپس توسط شیر توپی ۱۴، مسیر مسدود شده پمپ خاموش و جریان برق از شیر برقی شماره ۱۵ قطع شد. شیر برقی شماره ۳ به برق متصل و کپسول هلیوم شماره ۱ باز شد تا مسیر با گاز هلیوم پر شده و هوای باقی‌مانده در مسیر تخلیه شود. نرخ جریان هلیوم توسط کنترل‌کننده‌ی جریان جرمی در نرخ جریان مورد آزمایش تنظیم شد. هلیوم به مدت ۱۰ دقیقه با نرخ جریان مورد نظر از مسیر عبور داده شد. سپس جریان برق شیر برقی شماره ۳ قطع و محلول زنون داخل هلیوم با همان نرخ جریان تنظیم شده وارد مسیر شده، از روی جاذب عبور نمود.

همان‌طور که در طراحی نمایش داده شده است از خروجی ستون در فاصله‌های زمانی ۵ دقیقه با سیستم تزریق شیرهای چرخان، ۱ mm نمونه‌گیری و به داخل دستگاه کروماتوگرافی گازی تزریق و کروماتوگرام زنون گازی ثبت شد. در تزریق‌های ابتدایی که جاذب از خروج زنون جلوگیری می‌نمود، قله‌ی مربوط به زنون مشاهده نشد (قله‌ی مربوط به هوای باقی‌مانده قابل رویت بود). با گذشت زمان و پُر شدن ستون با تزریق‌های متوالی، قله‌ی زنون قابل مشاهده شد و با گذشت زمان در تزریق‌های بعدی قله‌ی مربوط به زنون رشد نمود تا این‌که سطح زیر قله به یک مقدار ثابت و ماکزیمم رسید.



شکل ۱. چیدمان ابزار برای اندازه‌گیری مقدار جذب زنون بر روی مواد جاذب کربن فعال و غربال مولکولی (۱). کپسول گاز هلیوم، ۲. کپسول گاز حاوی محلول زنون داخل گاز هلیوم، ۳. شیر برقی سه راهه، ۴. شیر سوزنی میترینگ، ۵. کنترل‌کننده جریان جرمی، ۶. شیر توپی، ۷. مبدل فلزی ۳/۸ به ۱/۴ اینچ، ۸. ستون جاذب و ژاکت حرارتی به طول ۱ متر، ۹. جریان‌دهنده (سیرکولاتور)، ۱۰. مبدل فلزی ۳/۸ به ۱/۴ اینچ، ۱۱. تله، ۱۲. کپسول گاز هلیوم به عنوان گاز حامل، ۱۳. دستگاه کروماتوگرافی گازی، ۱۴. شیر توپی، ۱۵. شیر برقی ۳-۲، ۱۶. اندازه‌گیر فشار و خلاء، ۱۷ و ۱۸. شیر توپی، ۱۹. پمپ خلاء.

۱۸۰، ۲۰۰، ۳۰۰ و  $387 \text{ mL min}^{-1}$ ، و در دماهای ۰، ۵، ۱۵، ۲۵، ۳۵، ۴۵ و با نرخ جریان ثابت طراحی و اجرا شد. وزن جاذب کربن فعال و غربال مولکولی  $5 \text{ \AA}$  به ترتیب ۲۰۹۹ و  $43/32$  گرم می‌باشد.

#### ۵. نتیجه‌های مطالعه‌ی تجربی جذب دینامیکی زنون

با بهره‌گیری از ابزار استفاده شده، هر ۵ دقیقه یک بار خروجی محلول گازی از ستون‌های حاوی غربال مولکولی و کربن فعال توسط دستگاه کروماتوگرافی گازی، مورد تجزیه قرار گرفت. ناخالصی موجود در مسیر باعث تولید یک قله با فاصله‌ی زمانی یک دقیقه بعد از هر تزریق شده و تا پایان تجزیه مشاهده می‌شد. ظهور قله‌ی مربوط به زنون، متناسب با شرایط آزمایش پس از گذشت زمان مشخصی رخ می‌داد، و با همان روند ارتفاع قله افزایش می‌یافت. همان‌طور که در شکل ۲ الف مشاهده می‌شود، زمان متناظر با ۵، ۵۰ و ۹۵٪ قله‌ی پیشینه‌ی زنون برای جاذب کربن فعال در دمای  $50^\circ \text{C}$  و نرخ جریان  $180 \text{ mL min}^{-1}$ ، به ترتیب ۲۵۰، ۲۷۷ و ۳۱۵ دقیقه است. این مدت زمان‌ها برای جاذب غربال مولکولی  $5 \text{ \AA}$  در همین شرایط حدود ۳۰،

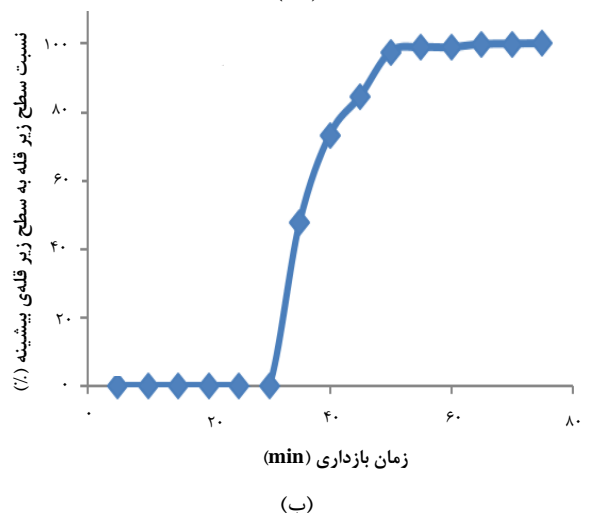
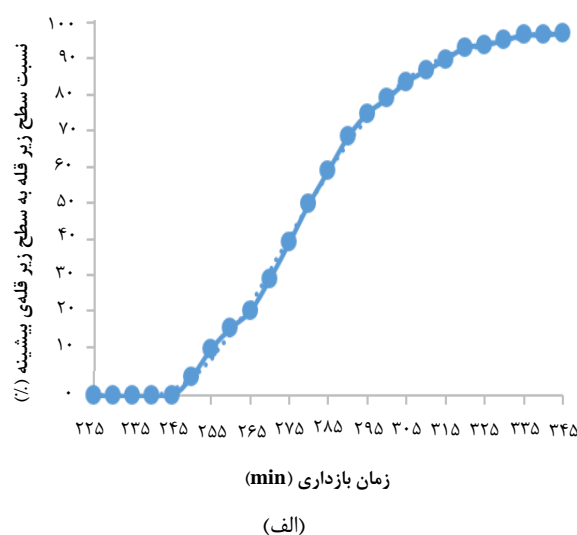
با رسم تغییرات زمانی سطح زیر قله‌ی زنون، منحنی‌های شکست در شرایط دمایی و نرخ جریان خاص به دست آمد. با استفاده از منحنی‌های شکست، زمان شکست ( $t_{r,0}$ ) یعنی مدت زمانی که طول می‌کشد تا غلظت زنون در خروجی ستون جاذب به ۵٪ مقدار یا غلظت ورودی ستون جاذب برسد، زمان تعادل یا نقطه‌ی میانی ( $t_{r,50}$ ) یعنی مدت زمانی که طول می‌کشد تا غلظت زنون در خروجی ستون جاذب به ۵۰٪ غلظت ورودی ستون جاذب برسد و زمان اشباع ( $t_{r,95}$ ) یعنی مدت زمانی که طول می‌کشد تا غلظت زنون در خروجی ستون جاذب به ۹۵٪ غلظت ورودی ستون جاذب برسد، به دست آمد. از  $t_{r,0}$ ،  $t_{r,50}$  و  $t_{r,95}$  ظرفیت جذب مواد جاذب ( $k_d$ ) و  $q$  و گرمای جذب ( $Q$ )،  $LMTZ$ ،  $LUB$  و ثابت سرعت جذب ( $k_v$ ) محاسبه شد. برای این محاسبه‌ها از مدل‌های لانگمویر و ویلر جونز استفاده شد. قبل از انجام هر آزمایش، ستون مجدداً در همان شرایط قبلی شستشو داده شد. برای به‌دست آوردن ثابت‌های جذب و مشخصه‌های  $LMTZ$  و  $LUB$  ستون جاذب با استفاده از دو مدل جذب لانگمویر و ویلر جونز، دو مجموعه آزمایش در شرایط دمایی ثابت و با نرخ جریان‌های ۸۰، ۱۰۰،

بررسی منحنی‌های شکست برای جاذب‌های مختلف نشان می‌دهد که زمان بازداری در ستون حاوی جاذب کربن فعال بیش‌تر از ستون حاوی غربال مولکولی است. از زمان‌های به دست آمده، مقادیر  $L_{MTZ}$  و  $LUB$  براساس معادله‌های ۶ و ۷ محاسبه شد. نزدیک بودن نسبت  $L_{MTZ}/LUB$  به عدد ۲ نشان‌دهنده‌ی متقارن بودن منحنی شکست است. در کارهای عملی، طول ستون را باید دست کم ۲ برابر  $L_{MTZ}$  در نظر گرفت. از آنجایی که  $LUB$  تنها از نرخ جریان فاز عبوری متأثر می‌شود نه از طول ستون، می‌توان برای افزایش مقدار جذب در مقیاس صنعتی زنون بر روی جاذب از  $LUB$  استفاده نمود.

مقدار متوسط  $L_{MTZ}/LUB$  در ستون حاوی جاذب کربن فعال  $۲/۳ \pm ۰/۲۴$  است. مقدار نسبت طول ستون به  $L_{MTZ}$  یعنی  $h/L_{MTZ}$  در مورد این ستون از  $۲/۶$  تا  $۴/۴۰$  و مقدار  $h/LUB$  از  $۵/۰۸$  تا  $۱۰/۲۶$  متغیر است. همان‌طور که مشاهده می‌شود در یک دمای ثابت، با افزایش نرخ جریان محلول زنون،  $L_{MTZ}$  افزایش می‌یابد (آزمایش‌های ۱ تا ۶). به همین ترتیب با افزایش دما در یک نرخ جریان ثابت نیز  $L_{MTZ}$  افزایش می‌یابد (آزمایش‌های ۷ تا ۱۲). رفتار نسبتاً مشابه در مورد ستون حاوی غربال مولکولی  $5\text{Å}$  مشاهده می‌شود. هم‌چنین مقدار  $LUB$  در نرخ جریان‌های بالا و در دماهای بالا نیز افزایش می‌یابد. مقدار متوسط  $k_a$  در دمای  $25^\circ\text{C}$  برای جاذب کربن فعال و غربال مولکولی  $5\text{Å}$  به ترتیب برابر با  $۰/۹۴ \pm ۰/۰۹۶$  و  $۰/۰۶۳ \pm ۰/۰۱۲$  به دست آمد. این نتیجه‌ها به وضوح نشان‌دهنده‌ی قدرت جذب بالاتر کربن فعال است. با توجه به وابسته بودن مقدار  $q$  به  $C_0$ ، برای مقایسه‌ی قدرت جذب از  $q$  استفاده نشد.

رفتار گرمای جذب به دست آمده در این پژوهش تطابق خوبی با کار دیگر پژوهش‌گران داشت [۱۱]. همان‌طور که انتظار می‌رفت، با افزایش دما مقدارهای  $L_{MTZ}$  و  $LUB$  افزایش می‌یابند. این بدان معنی است که کاهش دما نیروی جذب را افزایش داده و باعث کاهش  $L_{MTZ}$  و  $LUB$  خواهد شد. در به کارگیری ستون‌های مواد جاذب، دانستن تأثیر نرخ جریان بر روی فرایند اهمیت زیادی دارد. تأثیر نرخ جریان بر روی  $k_a$  و  $q$ ،  $L_{MTZ}$  و  $LUB$  در مورد جاذب کربن فعال در شکل ۳ نمایش داده شده است. تمام این کمیت‌ها با افزایش نرخ جریان افزایش می‌یابند. رفتار نسبتاً مشابه در مورد جاذب غربال مولکولی  $5\text{Å}$  مشاهده شده است.

۴۲ و ۶۰ دقیقه است (شکل ۲ ب). در همه‌ی کروماتوگرام‌ها قله‌ی حاصل از خروج زنون از ستون حاوی جاذب پس از مدت مشخصی به مقدار ثابتی می‌رسد. این بدان معنا است که در این زمان، ستون جاذب، به حد اشباع رسیده و پس از ۷ قله که مقدار ثابت داشت، روند آزمایش متوقف می‌شود. به منظور رسم منحنی‌های شکست، از تغییرات سطح زیر قله‌ی زنون در کروماتوگرام‌های به دست آمده برحسب زمان استفاده شد. از این منحنی‌های حجم شکست، زمان خروج ۵٪ (زمان شکست) یعنی زمانی که غلظت خروجی ستون ۵٪ غلظت ورودی است، زمان خروج ۵۰٪ (زمان تعادل یا نقطه‌ی میانی) و زمان خروج ۹۵٪ (زمان اشباع) قابل دست‌یابی است.



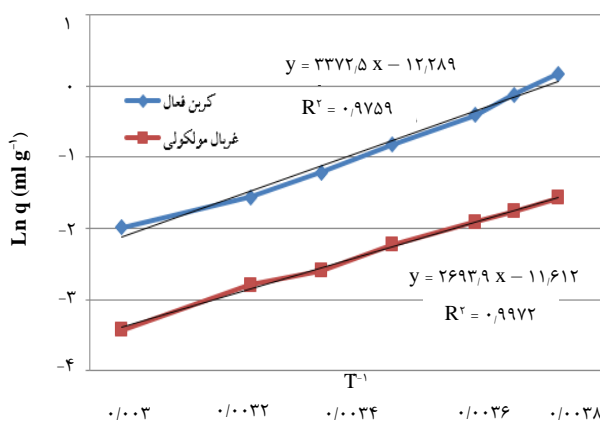
شکل ۲. منحنی شکست برای جاذب‌های الف) کربن فعال و ب) غربال مولکولی در دمای  $25^\circ\text{C}$  و نرخ جریان  $180\text{ mL min}^{-1}$ .

مقدار گرمای جذب آزاد شده‌ی نظیر جاذب کربن فعال بیشتر از غربال مولکولی<sup>۱</sup> (۲۹/۵ kJ mol<sup>-1</sup>Δ) در مقایسه با جاذب (۲۲/۲۶ kJ mol<sup>-1</sup>) است و این امر نشان‌دهنده‌ی قدرت جذب بیشتر کربن فعال برای جذب گاز زنون است. گرمای جذب برای کربن فعال دانه‌ای تطابق خوبی با مقدار ۳۱/۶ kJ mol<sup>-1</sup> گزارش شده در مرجع [۹] دارد.

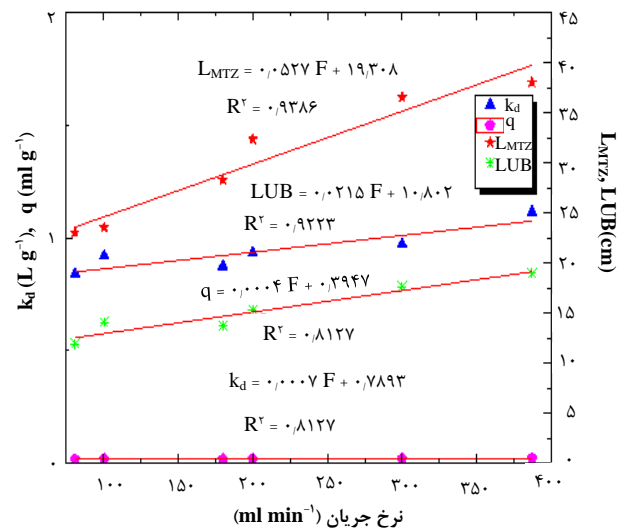
### ۶. نتیجه‌گیری

از منحنی‌های شکست به دست آمده در این مطالعه برای دو جاذب کربن فعال و غربال مولکولی که شامل مشخصه‌های غلظت و زمان فرایند دینامیکی جذب هستند، پارامترهای مربوط به طراحی ستون حاوی جاذب مناسب را می‌توان استخراج نمود. بررسی نتیجه‌های به دست آمده از دوازده آزمایش نشان داد که کربن فعال دانه‌ای زمان بازداری بالاتری از غربال مولکولی نسبت به زنون دارد. این امر بیان‌گر آن است که وزن کمتری از این جاذب را می‌توان برای جذب کامل زنون استفاده نمود. وزن کم‌تر در این بخش به معنای آن است که ستون جاذب می‌تواند با طول و قطر کم‌تری ساخته شود، که توان مصرفی و همچنین پهنای قله‌ی کم‌تری را نتیجه خواهد داد.

علاوه بر این، نتیجه بررسی تأثیر دما و نرخ جریان مخلوط گازی، همان‌طور که پیش‌بینی می‌شد حاکی از آن است که کاهش دمای جذب تا حد امکان فرایند جذب را بهبود خواهد بخشید (شکل ۴). علاوه بر این، یافته‌ها نشان داد که در دمای آزمایشگاه به شرط تنظیم فشار سر ستون یا همان نرخ جریان مخلوط گازی در مقدار خاصی (۵۰ mL min<sup>-1</sup>) می‌توان، جذب دینامیکی مناسبی را به دست آورد (شکل ۳).



شکل ۴. رابطه‌ی بین  $q$  جاذب‌های کربن فعال و غربال مولکولی و دما در نرخ جریان ۱۸۰ mL min<sup>-1</sup>.



شکل ۳. تأثیر نرخ جریان بر  $LMTZ$ ،  $LUB$ ،  $k_d$  و  $q$  در ستون جاذب کربن فعال در دمای ۲۵°C.

همان‌طور که در بخش نظری بیان شد، فرایند جذب یک نوع جذب فیزیکی است. بنابراین دما نقش عمده‌ای در جذب دارد. جذب یک فرایند گرمازا است و ظرفیت جذب جاذب در دماهای پایین، بالاتر از دمای آزمایشگاه است. اثر دما بر روی  $k_d$  و  $q$  با معادله‌ی (۵) بیان شده است. این معادله همان معادله‌ی وانت هوف است. شکل لگاریتمی معادله‌ی (۵) به صورت معادله‌ی ۹ می‌باشد.

$$\ln k_d = \ln A_0 + \frac{Q}{RT} \quad (9)$$

یا

$$\ln q = \ln A_0 + \frac{Q}{RT} \quad (10)$$

با رسم منحنی تغییرات  $\ln k_d$  یا  $\ln q$  برحسب  $1/T$  خط راستی به دست می‌آید، که عرض از مبدأ آن  $\ln A_0$  و شیب آن  $Q/R$  را به دست خواهد داد. معادله‌های وانت هوف برای کربن فعال و غربال مولکولی از برازش خط بر منحنی به دست خواهد آمد: با قرار دادن ثابت عمومی گازها در معادله‌ی فوق، می‌توان  $Q$  یا گرمای جذب را به دست آورد. منحنی تغییرات  $\ln q$  برحسب  $1/T$  مربوط به ستون حاوی جاذب کربن فعال و برای غربال مولکولی در شکل ۴ ارایه شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود، برای جذب زنون، جاذب کربن فعال کم‌تری نسبت به غربال مولکولی مورد نیاز خواهد بود. نتیجه‌ی مقایسه مقادیر  $A_0$  و  $Q$  برای دو جاذب، نیز بدین شکل است که

## مراجع

1. Certification and Surveillance Assessment of Radionuclide Laboratories for Particulate and Noble Gas Sample Analysis. CTBT/PTS/INF.96/Rev.8 (2011).
2. Certification of Noble Gas Equipment at IMS Radionuclide Stations (with Guidelines for Station Installation). CTBT/PTS/INF.921/Rev.3 (2011).
3. P. Karhu, R. Clawson, *Radionuclide laboratories supporting the network of radionuclide stations in verification of the Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty*, Kerntechnik **66**, 126 (2001).
4. A.A. Pota, A.P. Mathews, *Adsorption dynamics in a stratified convergent tapered bed*, Chem. Eng. Sci. **55**, 1399 (2000).
5. P.E. Dresel, S.R. Waichler, *Evaluation of xenon gas detection as a means for identifying buried transuranic waste at the radioactive waste management complex. Idaho National Environmental and Engineering Laboratory*, (Pacific Northwest National Laboratory, Richland, Washington, 2004)
6. G.O. Wood, Quantification and application of skew of breakthrough curves for gases and vapors eluting from activated carbon beds, Carbon. **40**, 1883 (2002).
7. R.E. Adams, W.E. Browning, R.D. Ackley, *Containment of radioactive fission gases by dynamic adsorption*, Ind. Eng. Chem. **51**, 1467 (1959).
8. D.P. Siegworth, et al. In: *Proceedings of 12th AEC Air Cleaning Conference*. (CA. National Technical Information Service, Springfield, VA, San Jose, 1972), 28-47.
9. J.L. Sotelo et al. *Modeling and elimination of atenolol on granular activated carbon in fixed bed column*, Int. J. Environ Res. **64**, 961 (2012).
10. C. Zhou, et al., *The behavior of xenon dynamic adsorption on granular activated carbon packed bed adsorber*, J. Radioanal. Nucl. Chem. **287**, 609 (2011).
11. Y. Jao, W. Cheng, G. Ting, *Chromatographic separation and purification of Xenon-133*, J. Chrom. **462**, 191 (1989).

## COPYRIGHTS

©2021 The author(s). This is an open access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution (CC BY 4.0), which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any medium, as long as the original authors and source are cited. No permission is required from the authors or the publishers.



## استناد به این مقاله

مجید حاجی حسینی، محمد سبزیان، مهدی نصرآبادی (۱۳۹۸)، بررسی پارامترهای جذب دینامیکی گاز زنون بر روی جاذب‌های کربن فعال و غربال مولکولی ۵A،

۹۰، ۴۳-۵۰

DOI: [10.24200/nst.2020.1069](https://doi.org/10.24200/nst.2020.1069)

Url: [https://jonsat.nstri.ir/article\\_1069.html](https://jonsat.nstri.ir/article_1069.html)