



غنى‌سازی ايزوتوب پايدار گوگرد ۳۶ توسط زنجيره مربعی تکخروجی

علیرضا کشتکار^{۱*}، عباس رشیدی^۲، جواد کریمی ثابت^۱، علی نوروزی^۳

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

۲. دانشکده مهندسی، دانشگاه مازندران، صندوق پستی: ۴۱۶، بابلسر- ایران

۳. شركت فناوري هاي پيشروفت، سازمان انرژي اتمي، صندوق پستي: ۱۴۳۹۹۵-۵۹۳۱، تهران- ایران

*Email: akeshtkar@aeoi.org.ir

مقاله‌ی پژوهشی

تاریخ دریافت مقاله: ۹۹/۸/۲۶ تاریخ پذیرش مقاله: ۹۹/۱۲/۱۵

چکیده

عنصر گوگرد ۴ ايزوتوب پايدار است که سنتگين ترين ايزوتوب آن، گوگرد ۳۶، در توليد راديوايزوتوب و فعال‌سازی نوتروني کاربرد دارد. در اين پژوهش با توجه به غلظت بسيار پايان گوگرد ۳۶ در خوراک طبيعي، از زنجيره گذرائي تکخروجي جهت جداسازی اين ايزوتوب استفاده شده است. برای شبیه‌سازی زنجيره، معادلات توزيع غلظت در حالت گذران با استفاده از روش لاسونن گسته‌سازی شده و با روش تكرار q خطلي مي‌شوند. کد نوشته شده با استفاده از نتایج تجربی موجود صحت‌سنجي مي‌شود. برای جداسازی ايزوتوب گوگرد به غنای بالاي ۹۰ درصد توسيع تعداد ماشين سانتريفيجو معيين، چيدمان‌هاي مختلف از زنجيره مربعی تک‌زنجره، مرحله ورود خوراک و شدت جريان خوراک بررسی شده است. در چيدمان با ۱۵ مرحله و ۸ ماشين سانتريفيجو در هر مرحله، غلظت ايزوتوب گوگرد ۳۶ در مخزن پس از ۱۴۶۰ ساعت به ۹۵ درصد مي‌رسد. نتایج نشان داد كاهش جريان خوراک زنجيره و افزایش فاصله مرحله ورود خوراک از مخزن، باعث افزایش غلظت گوگرد ۳۶ در مخزن مي‌شود.

کلیدواژه‌ها: زنجيره ناپايدار تکخروجي، چيدمان مربعی، ايزوتوب گوگرد ۳۶، حالت گذران، شبیه‌سازی، روش تكرار q

Simulation of ^{36}S stable isotope enrichment by square single withdrawal cascade

A.R. Keshtkar^{۱*}, A. Rashidi^۲, J. Karimi Sabet^۱, A. Noroozi^۳

۱. Nuclear Fuel Cycle Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOI, P.O.Box: 11365-8486, Tehran-Iran

2. Faculty of Engineering and Technology, University of Mazandaran, P.O.Box: 416, Babolsar-Iran

3. Iran Advanced Technologies Compony, AEOI, P.O.Box: 143995-5931, Tehran-Iran

Research Article

Received 16.11.2020, Accepted 5.3.2021

Abstract

Among the four stable isotopes of sulfur, the heaviest isotope, ^{36}S , has found many applications in radioisotope production and neutron activation. In the present work, due to the very low natural abundance of ^{36}S , the single withdrawal cascades are used to separate this isotope. The concentration distribution equations in the transient state are separated using the Laasonen method and linearized by the q iteration method to simulate the cascade. The code is validated using existing experimental results. To separate the ^{36}S isotope to a high concentration of 90% by a fixed number of centrifuge machines, different arrangements of the square single withdrawal cascades, the feed stage location, and the feed flow rate were investigated. In the arrangement with 15 stages and eight centrifuge machines at each stage, the concentration of ^{36}S in the reservoir reaches 95% after 1460 hours. The results showed that reducing the feed flow of the cascade and increasing the distance of the feed stage from the reservoir leads to an increment in the concentration of ^{36}S in the reservoir.

Keywords: Single withdrawal cascades, Square arrangement, ^{36}S isotope, Transient condition, Simulation, q iteration method

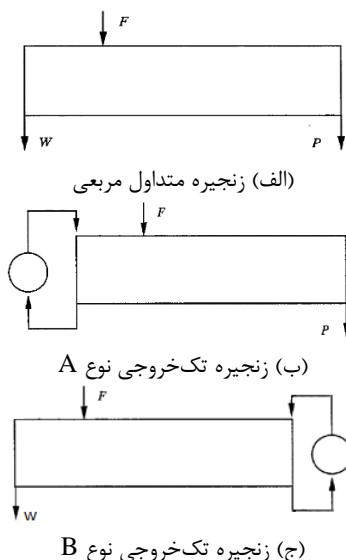


معادلات توزیع غلظت زنجیره در حالت گذرا با استفاده از روش ضمنی لاسونن^۱ گسسته‌سازی شده و توسط روش تکرار ۹ خطی می‌شوند. برای صحت‌سنجی کد نوشته شده، نتایج تجربی آزمایش انجام شده توسط زنگ بر روی زنجیره تکخروجی با ۴ مرحله با گاز SF₆ با نتایج شبیه‌سازی کد مقایسه می‌شود. با استفاده از کد نوشته شده، زنجیره‌های مربعی تکخروجی با چیدمان‌های مختلف و تعداد ماشین‌های سانتریفیوژ یکسان جهت جداسازی ایزوتوب گوگرد ۳۶ تا غلظت بالای ۹۰ درصد شبیه‌سازی می‌شوند و در چیدمانی که این غلظت قابل دست‌یابی باشد، اثر شدت جریان خوراک و مرحله ورود خوراک بررسی می‌شود.

۲. تئوری و روش حل

۱.۲ زنجیره‌های گذرا تکخروجی

در زنجیره‌های گذرا تکخروجی برحسب این که هدف جداسازی ایزوتوب‌های سبک و یا ایزوتوب‌های سنگین باشد، یکی از جریان‌های خروجی زنجیره قطع می‌شود. به عنوان مثال در شکل ۱ در زنجیره‌های تکخروجی نوع A با توجه به قطع جریان پسماند و قرارگیری مخزن در این سمت، ایزوتوب‌های سنگین در این زنجیره در مخزن جمع‌آوری می‌شوند. در زنجیره‌های تکخروجی نوع B با توجه به قطع جریان محصول و قرارگیری مخزن در سمت محصول زنجیره ایزوتوب‌های سبک در مخزن جمع‌آوری می‌شوند.



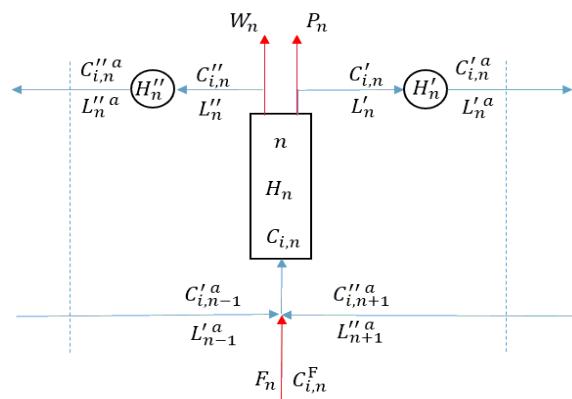
شکل ۱. مقایسه طرح‌واره زنجیره‌های متداول مربعی و زنجیره‌های گذرا تکخروجی.

۱. مقدمه

یکی از روش‌های کارآمد در بحث جداسازی ایزوتوب‌های پایدار که امروزه مورد توجه قرار گرفته است، استفاده از زنجیره‌های سانتریفیوژ گازی می‌باشد [۱]. از روش سانتریفیوژ گازی برای جداسازی ایزوتوب‌های گوگرد استفاده می‌شود. گوگرد شامل ۴ ایزوتوب ۳۲، ۳۳، ۳۴ و ۳۶ می‌باشد. گوگرد ۳۶ سنگین‌ترین ایزوتوب پایدار گوگرد بوده و در تولید رادیو ایزوتوب گوگرد ۳۷ و ۳۸ و همچنان فعال سازی نوترن کاربرد دارد. ایزوتوب گوگرد ۳۸ تولید شده، توسط گوگرد ۳۶ با توجه به نیمه‌عمر مناسب و عدم انتشار پرتو گاما در پزشکی برای درمان بیماری‌ها کاربرد دارد [۲، ۳]. غنای خوراک طبیعی گوگرد ۳۶ بسیار پایین و برابر ۰.۰۱۳ درصد می‌باشد. با توجه به غنای پایین خوراک ورودی گوگرد ۳۶ جداسازی این ایزوتوب توسط روش‌های متداول بسیار پرهزینه بوده و در چند مرحله صورت می‌پذیرد [۴]. به عنوان مثال در سال ۲۰۱۳ چلتسو و همکاران، تمامی ایزوتوب‌های گوگرد را توسط روش زنجیره‌های متداول جداسازی نمودند که در روش ارایه شده توسط آن‌ها، ایزوتوب گوگرد ۳۶ در چهارمین مرحله تا غلظت ۹۹ درصد جداسازی می‌شود [۵]. با توجه به معایب زنجیره‌های متداول در جداسازی ایزوتوب‌ها با غلظت پایین، زنجیره‌های غیرمتداول گذرا، ابداع شدند [۶-۸]. زنجیره‌های گذرا ابتدا توسط محقق روس در سال ۱۹۹۹ در جداسازی ایزوتوب تلویریم تا غنای ۹۹ درصد استفاده شدند [۹]. زنجیره‌های گذرا به دو دسته زنجیره‌های گذرا تکخروجی (SW) و زنجیره‌های گذرا تکخروجی بدون جریان خوراک (NFSW) تقسیم‌بندی می‌شوند [۱۰]. زنجیره‌های تکخروجی برای جداسازی ایزوتوب‌های سبک و سنگین و زنجیره‌های تکخروجی بدون جریان خوراک عمده‌تاً در جداسازی ایزوتوب‌های میانی استفاده می‌شوند. زنگ و بینگ در سال ۲۰۰۲ بین زنجیره‌های متداول و زنجیره‌های گذرا در جداسازی ایزوتوب زنون ۱۲۴ مقایسه انجام دادند. مقایسه آن‌ها نشان‌دهنده برتری زنجیره‌های گذرا در جداسازی ایزوتوب سبک زنون ۱۲۴ بود [۱۱]. در سال ۲۰۰۳ زنگ و همکاران معادلات زنجیره گذرا تکخروجی را توسط روش تفاضل محدود کرنک نیکلسون حل کرده و نتایج شبیه‌سازی را با نتایج تجربی یک زنجیره تکخروجی مربعی با چهار مرحله مقایسه نمودند. نتایج شبیه‌سازی آن‌ها با نتایج تجربی مطابقت داشت [۱۲].

در این مقاله هدف جداسازی ایزوتوب گوگرد ۳۶ طی یک مرحله با استفاده از زنجیره گذرا تکخروجی و رسیدن به غلظت بالای ۹۰ درصد توسط یک تعداد معین ماشین سانتریفیوژ می‌باشد. برای شبیه‌سازی زنجیره تکخروجی،

1. Laasonen Implicit Method



شکل ۲. برش یک مرحله از زنجیره.

$$\frac{\partial H_n \hat{C}_{i,n}}{\partial t} = L_{n+1}'' \alpha + C_{i,n+1}'' + L_{n-1}' C_{i,n-1}' + F_n C_{i,n}^F - (L_n'' + W_n) C_{i,n}'' - (L_n' + P_n) C_{i,n}' \quad (4)$$

در اين رابطه، C غلظت جرمي ايزوتوب i در مرحله شماره n مى باشد. به طور مشابه برای لوله‌هاي جريان غنى‌شده و تهی‌شده قانون پايستگی جرم برای ايزوتوب i به صورت زير نوشته مى شود [۱۴].

$$\frac{\partial H_n' \hat{C}_{i,n}'}{\partial t} = L_n' C_{i,n}' - L_n'^a C_{i,n}^{\prime a} \quad (5)$$

$$\frac{\partial H_n'' \hat{C}_{i,n}''}{\partial t} = L_n'' C_{i,n}'' - L_n''^a C_{i,n}^{\prime\prime a} \quad (6)$$

در روابط ۴، ۵ و ۶، بالانويس a نشان‌دهنده پارامتر پس از لوله‌ها، $C_{i,n}'$ غلظت ايزوتوب i در جريان محصول، $C_{i,n}''$ غلظت ايزوتوب i در جريان پسماند H موجودی گاز، $\hat{C}_{i,n}$ متوسط غلظت ايزوتوب i در مرحله، $\hat{C}_{i,n}'$ متوسط غلظت موجودی لوله‌هاي غنى‌شده خروجي از مرحله و $\hat{C}_{i,n}''$ متوسط غلظت موجودی لوله‌هاي تهی‌شده خروجي از مرحله مى باشد. متوسط غلظت در مرحله (غلظت موجودی مرحله) به صورت ميانگين غلظت جريان‌هاي خروجي از مرحله تخمين زده مى شود [۱۱].

$$\hat{C}_i \cong \frac{(L_n'' + W_n) C_{i,n}'' + (L_n' + P_n) C_{i,n}'}{(L_n'' + W_n + L_n' + P_n)} \quad (7)$$

برای متوسط غلظت جريان‌هاي لوله‌هاي غنى‌شده و تهی‌شده (موجودي لوله‌ها) به صورت تقريب غلظت خروجي لوله‌ها در نظر گرفته مى شود. اين تقريب سخت‌گيرانه مى باشد و اطمینان بيش‌تری به محاسبات مى بخشد.

$$\hat{C}_{i,n}' \cong C_{i,n}^{\prime a} \quad (8)$$

در شبیه‌سازی زنجیره مربعی گذراي تکخروجی از فرض پايا بودن جريان‌ها استفاده مى شود و تنها شبیه‌سازی گذراي توزيع غلظت زنجیره صورت مى پذيرد. اين فرض به دليل كوتاه بودن زمان تعادل جريان‌ها در زنجیره در برابر زمان تعادل غلظتها صورت مى پذيرد [۱۴، ۱۳]. در اين شبیه‌سازی غلظت ايزوتوب‌ها در جريان ورودي، غنى‌شده و تهی‌شده هر مرحله با گذراي زمان محاسبه مى شود. با توجه به مجھول بودن غلظت ايزوتوب‌ها در جريان ورودي، غنى‌شده و تهی‌شده هر مرحله، تعداد کل مجھولات سه برابر تعداد مراحل برای هر ايزوتوب مى باشد، که به همين ميزان معادله برای انجام محاسبات نياز است.

۲.۰۲ تعبيين جريان‌هاي بين مراحل

توزيع غلظت در زنجیره تنها زمانی که شرایط هيدروليکي زنجیره مشخص باشد، تعبيين مى شود. به دليل فرض پايا بودن جريان‌ها در زنجیره، شرایط هيدروليکي مستقل از زمان مى باشد. به جريان‌هاي خوارک خارجي مرحله (F_n)، جريان پسماند خروجي مرحله (W_n) و جريان محصول خروجي مرحله (P_n) پارامترهای هيدروليکي خارجي و به جريان محصول مرحله (L_n') و جريان پسماند مرحله (L_n'') پارامترهای هيدروليکي داخلی مى گويند. پارامتر هيدروليکي داخلی ديگر، ضريب برش مراحل (θ_n) مى باشد، با معلوم بودن پارامتر ضريب برش مراحل مى توان با قرار دادن دو معادله ضريب برش و معادله پايستگي مرحله در يك دستگاه معادلات خطی، ساير پارامترهای هيدروليکي داخلی را محاسبه نمود (L_n'' و L_n') [۱۵].

$$\theta_n = \frac{(L_n' + P_n)}{(L_n'' + W_n + L_n' + P_n)} \quad (1)$$

$$0 = L_n'' + W_n + L_n' + P_n - F_n - L_{n-1}' - L_{n+1}'' \quad (2)$$

اگر در زنجیره اتلاف و واکنش شيميايی رخ ندهد قانون پايستگي برای جريان‌هاي خارجي به صورت زير برقرار است [۱۳].

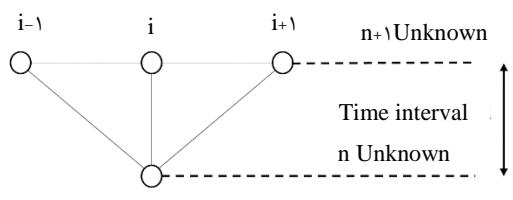
$$\sum_n (F_n - P_n - W_n) = 0 \quad (3)$$

به دليل پايا درنظر گرفتن جريان‌هاي زنجيره، جريان ورودي و خروجي به لوله‌هاي جريان تهی‌شده و غنى‌شده مراحل با يكديگر يكسان خواهد بود ($L_n'^a = L_n'$ و $L_n''^a = L_n''$) و ضريب برش زنجيره در زنجيره‌هاي تکخروجي نوع A برابر يك و در زنجيره‌هاي تکخروجي نوع B برابر صفر خواهد بود [۱۳].

۳.۰۲ مدل‌سازی و شبیه‌سازی توزيع غلظت در زنجيره

با درنظر گرفتن يك مرحله از زنجيره مطابق شکل ۲ قانون پايستگي جرم برای ايزوتوب i در حالت گذرا به صورت رابطه ۴ نوشته مى شود.





شکل ۳. نقاط درگیر در روش لاسون.

با اعمال این روش به سمت چپ رابطه ۴ و فرض مستقل از زمان بودن موجودی مراحل، رابطه زیر حاصل می‌شود:

$$\frac{\partial H_n \hat{C}_{i,n}}{\partial t} = \frac{H_n}{\Delta t} (\hat{C}_{i,n}^{(m+1)} - \hat{C}_{i,n}^{(m)}) \quad (12)$$

در این رابطه، بالاترینس m نشان‌دهنده گام زمانی می‌باشد. با نام‌گذاری سمت راست رابطه ۴ به g و اعمال روش لاسون بر روی آن، رابطه زیر حاصل می‌شود:

$$g = (g^{(m+1)}) \quad (13)$$

$$\hat{C}_{i,n}'' \cong C_{i,n}''^{\alpha} \quad (9)$$

رابطه مورد استفاده دیگر رابطه فاکتور جداسازی مراحل می‌باشد که به صورت زیر نوشته می‌شود:

$$\frac{C_{i,n}' / C_{i,n}''}{C_{j,n}' / C_{j,n}''} = \alpha^{M_j - M_i} \quad (10)$$

در کنار روابط ذکر شده، برای محاسبات باید شروط زیر برای غلظت جریان‌های ورودی و خروجی مراحل برقرار باشد.

$$\sum_i C_{i,n}'' = 1 \quad \sum_i C_{i,n}' = 1 \quad \sum_i C_{i,n} = 1 \quad (11)$$

در جدول ۱ تعداد مجھولات و معادلات برای شبیه‌سازی به طور کامل لیست شده است و طبق جدول ارایه شده تعداد مجھولات با تعداد معادلات هم خوانی دارد.

برای حل معادله (۴) از روش تفاضل محدود ضمنی لاسون استفاده می‌شود. در شکل ۳ نقاط مورد استفاده در روش لاسون نمایش داده شده است.

جدول ۱. تعداد معادلات و مجھولات و فرضیات

تعداد مجھولات			
تعداد	نماد	مجھول	شماره
$N * N_c \Leftarrow (N_c)$	$C_{i,n}'$	غلظت محصول خروجی از مرحله	۱
$N * N_c \Leftarrow (N_c)$	$C_{i,n}''$	غلظت پسماند خروجی از مرحله	۲
$N * N_c \Leftarrow (N_c)$	$C_{i,n}^{'a}$	غلظت محصول پس از لوله‌ها	۳
$N * N_c \Leftarrow (N_c)$	$C_{i,n}^{''a}$	غلظت پسماند پس از لوله‌ها	۴
$4 * N * N_c$		جمع مجھولات در هر بازه زمانی	
تعداد معادلات			
تعداد	معادلات		شماره رابطه
$N * (N_c - 1)$	رابطه فاکتور جداسازی چند جزیی		رابطه (۹)
$N * N_c$	معادله پایستگی جرم برای ایزوتوپ i بر روی مرحله n		رابطه (۴)
$N * N_c$	معادله پایستگی جرم برای ایزوتوپ i بر روی لوله محصول مرحله n		رابطه (۵)
$N * N_c$	معادله پایستگی جرم برای ایزوتوپ i بر روی لوله محصول مرحله n		رابطه (۶)
N	شرط محدودیت غلظت‌ها		رابطه (۱۱)
$4 * N * N_c$		جمع روابط در هر بازه زمانی	
فرضیات			
تغییرات جریان در برابر تغییرات غلظت کوتاه بوده و در حل جریان‌ها در حالت پایا در نظر گرفته می‌شوند.		۱	
غلظت اولیه کل زنجیره برابر غلظت خوارک ورودی می‌باشد.		۲	



برای حل معادله بالا در هر بازه زمانی باید از روش تکرار q استفاده شود. در این روش پارامتری به اسم q تعریف می‌شود که برابر نسبت غلظت یک ايزوتوب در جريان غنی‌شده به غلظت همان ايزوتوب در جريان تمی‌شده می‌باشد [۱۶]:

$$q = \frac{C'_{i,n}}{C''_{i,n}} \quad (19)$$

با به کارگیری اين تعريف در رابطه فاكتور جداسازي، رابطه زير حاصل خواهد شد:

$$\frac{C'_{i,n}}{C''_{i,n}} = \frac{q_{i,n}}{q_{j,n}} = \alpha_{\circ}^{M_j - M_i} \quad (20)$$

$$q_{i,n} = q_{j,n} \alpha_{\circ}^{M_j - M_i} \quad (21)$$

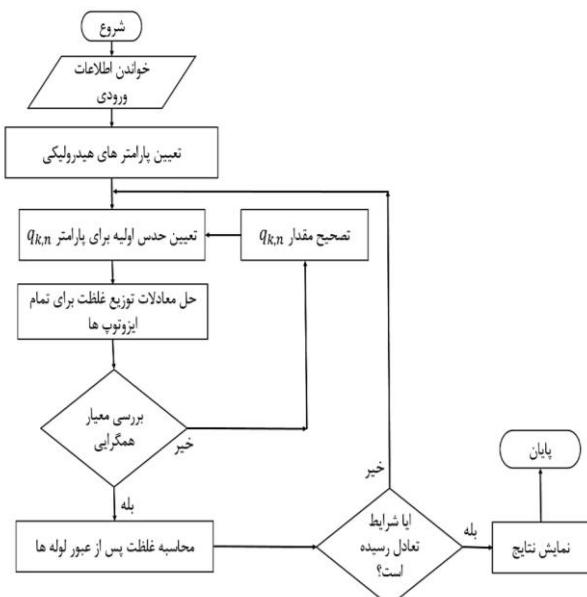
با استفاده از رابطه ۲۱، مقدار غلظت $C'_{i,n}$ را می‌توان به صورت زير نوشت:

$$C'_{i,n} = C''_{i,n} q_{i,n} = C''_{i,n} q_{j,n} \alpha_{\circ}^{M_j - M_i} \quad (22)$$

با جاي‌گذاري رابطه بالا در سمت چپ رابطه ۱۸، رابطه زير حاصل می‌شود:

$$-\varphi_{i,n-1} C''_{i,n-1} + \omega_{i,n} q_{i,n} C''_{i,n} + \delta_{i,n} C''_{i,n} - \gamma_{i,n+1} C''_{i,n+1} = \gamma_{i,n} \quad (23)$$

معادله بالا باید در هر بازه زمانی برای هر ايزوتوب حل شود تا غلظت تمامی اجزا محاسبه شود. در شکل ۴ الگوريتم شبيه‌سازی زنجيره‌های گذراي تکخروجي ارایه شده است.



شکل ۴. الگوريتم کد شبيه‌سازی زنجيره گذراي تکخروجي.

با استفاده از روابط ۱۲ و ۱۳، رابطه ۴ به صورت رابطه ۱۴ تبدیل خواهد شد.

$$-L'_{n-1} \alpha_{\circ}^{(m-1)} + \left(\frac{H_n}{\Delta t} \frac{L'_n + P_n}{(L''_n + W_n + L'_n + P_n)} + L'_n + P_n \right) C'_{i,n}^{(m+1)} + \\ \left(\frac{H_n}{\Delta t} \frac{L''_n + W_n}{(L''_n + W_n + L'_n + P_n)} + L''_n + W_n \right) C''_{i,n}^{(m+1)} - L''_{n+1} \alpha_{\circ}^{(m+1)} C''_{i,n+1}^{(m+1)} = \\ \left(\frac{H_n}{\Delta t} \frac{L'_n + P_n}{(L''_n + W_n + L'_n + P_n)} \right) C'_{i,n}^{(m)} + \left(\frac{H_n}{\Delta t} \frac{L''_n + W_n}{(L''_n + W_n + L'_n + P_n)} \right) C''_{i,n}^{(m)} \quad (14)$$

در رابطه ۱۴ مقادير معلوم، که غلظتها در بازه زمانی قبل می‌باشند در سمت راست معادله و مقادير غلظتهاي مجھول برای بازه زمانی جاري در سمت چپ معادله قرار دارند. بهطور مشابه با اعمال روش کرنک نیکلسون به معادلات ۵ و ۶ اين معادلات به فرم زير حاصل خواهند شد:

$$\left(\frac{H'_n}{\Delta t} + L'^{\alpha}_{n-1} \right) C'_{i,n}^{(m+1)} - L'^{\alpha}_n C'_{i,n}^{(m)} \quad (15)$$

$$\left(\frac{H''_n}{\Delta t} + L''^{\alpha}_n \right) C''_{i,n}^{(m+1)} - L''^{\alpha}_n C''_{i,n}^{(m)} = \left(\frac{H''_n}{\Delta t} \right) C''_{i,n}^{(m)} \quad (16)$$

با استفاده از روابط ۱۵ و ۱۶ می‌توان مقادير $C'_{i,n}^{(m+1)}$ و $C''_{i,n}^{(m+1)}$ را در رابطه ۱۴ جاي‌گذاري نمود. با اين کار غلظتها با بالاپيوس a^m در بازه زمانی $m+1$ حذف خواهند شد.

$$-L'_{n-1} L'^{\alpha}_{n-1} \left(\frac{H'_{n-1}}{\Delta t} + L'^{\alpha}_{n-1} \right)^{-1} C'_{i,n-1}^{(m+1)} + \\ \left(\frac{H_n}{\Delta t} \frac{L'_n + P_n}{(L''_n + W_n + L'_n + P_n)} + L'_n + P_n \right) C'_{i,n}^{(m+1)} + \\ \left(\frac{H_n}{\Delta t} \frac{L''_n + W_n}{(L''_n + W_n + L'_n + P_n)} + L''_n + W_n \right) C''_{i,n}^{(m+1)} - \\ L''_{n+1} L''^{\alpha}_{n+1} \left(\frac{H''_{n+1}}{\Delta t} + L''^{\alpha}_{n+1} \right)^{-1} C''_{i,n+1}^{(m+1)} = \\ L'^{\alpha}_{n-1} \left(\frac{H'_{n-1}}{\Delta t} + L'^{\alpha}_{n-1} \right)^{-1} \left[\frac{H'_{n-1}}{\Delta t} \right] C'_{i,n-1}^{(m)} + \\ \left(\frac{H_n}{\Delta t} \frac{L'_n + P_n}{(L''_n + W_n + L'_n + P_n)} \right) C'_{i,n}^{(m)} + \left(\frac{H_n}{\Delta t} \frac{L''_n + W_n}{(L''_n + W_n + L'_n + P_n)} \right) C''_{i,n}^{(m)} + \\ L''^{\alpha}_{n+1} \left(\frac{H''_{n+1}}{\Delta t} + L''^{\alpha}_{n+1} \right)^{-1} \left[\frac{H''_{n+1}}{\Delta t} \right] C''_{i,n+1}^{(m)} + F_c C_{i,n}^F \quad (17)$$

در رابطه ۱۷ می‌توان ضرایب را نام‌گذاری نمود و رابطه را به فرم ساده شده زير نوشت:

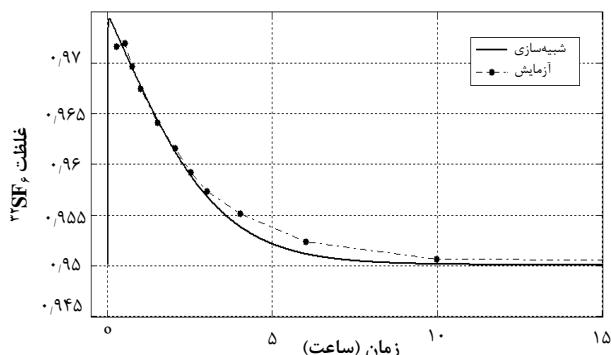
$$-\varphi_{i,n-1} C'_{i,n-1} + \omega_{i,n} C'_{i,n} + \delta_{i,n} C''_{i,n} - \gamma_{i,n+1} C''_{i,n+1} = \gamma_{i,n} \quad (18)$$

جدول ۲. غلظت طبیعی ایزوتوپ‌های گوگرد

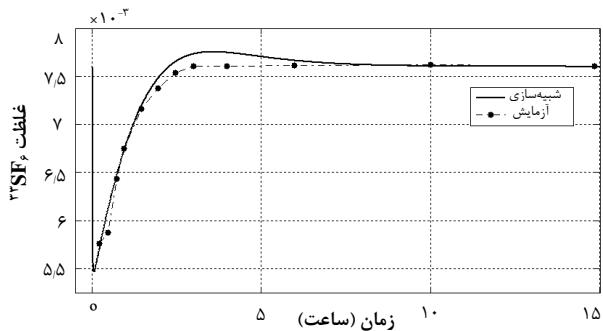
^{73}S	^{73}S	^{74}S	^{76}S
۰,۹۵۰۰۶	۰,۰۰۷۶	۰,۰۴۲۲	۰,۰۰۰۱۳

جدول ۳. مشخصات زنجیره اجرا شده به صورت آزمایشگاهی توسط زنگ و همکاران (پارامترها بی بعد است) [۱۲]

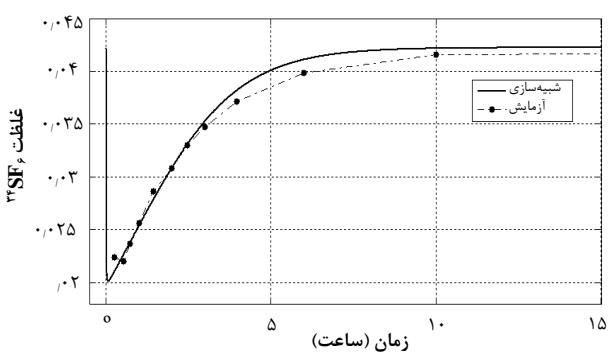
α_0	$L_{n=0,1,2,3,4}$	P_4	F_4	$H_{n=2,3,4}$	H_1	H_1''
۱,۵	۱	۱	۱	۰,۰۱	۰,۰۲	۰,۰۹



شکل ۶. مقایسه نتایج تجربی زنگ و همکاران و شبیه‌سازی کد نوشته شده برای غلظت ایزوتوپ گوگرد ۳۲ در جریان خروجی.



شکل ۷. مقایسه نتایج تجربی زنگ و همکاران و شبیه‌سازی کد نوشته شده برای غلظت ایزوتوپ گوگرد ۳۳ در جریان خروجی.



شکل ۸. مقایسه نتایج تجربی زنگ و همکاران و شبیه‌سازی کد نوشته شده برای غلظت ایزوتوپ گوگرد ۳۴ در جریان خروجی.

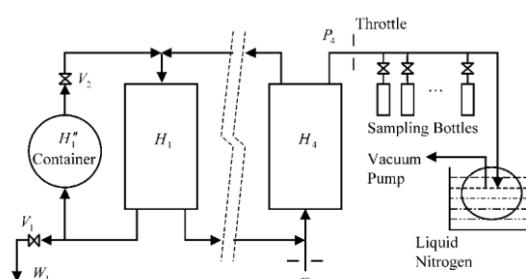
۳. صحت سنجی

برای بررسی صحت کد نوشته شده از نتایج زنگ و همکاران، که نتایج یک زنجیره تک خروجی نوع A با چهار مرحله می‌باشد، استفاده می‌شود. طرحواره زنجیره مورد استفاده در شکل ۵ نمایش داده شده است.

خوراک ورودی به این زنجیره گاز هگزاfluoride گوگرد است. غلظت طبیعی ایزوتوپ‌های عنصر گوگرد در جدول ۲ گزارش شده است. با توجه به این که زنجیره، تک خروجی نوع A می‌باشد، ایزوتوپ‌های سنگین در مخزن جمع‌آوری می‌شوند. در جدول ۳ مشخصات زنجیره ارایه شده است.

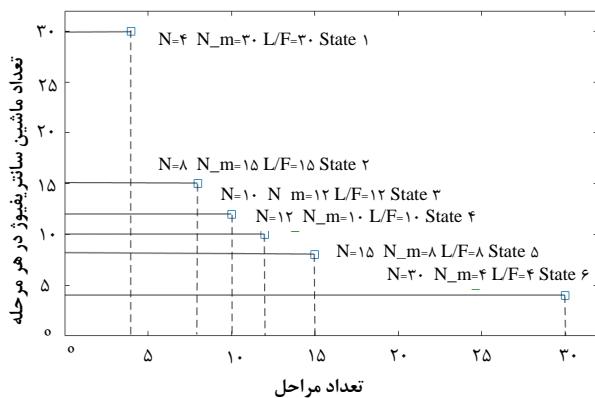
در این زنجیره خوراک از مرحله ۴ وارد شده و جریان خروجی زنجیره نیز در مرحله شماره ۴ می‌باشد. برای راهاندازی این زنجیره، ابتدا زنجیره در شرایط خلاً بوده و گازدهی می‌شود. در شروع فرایند گازدهی شیر ۱ باز بوده و شیر ۲ بسته می‌باشد. در این شرایط زنجیره همانند زنجیره‌های متداول بوده و دو جریان خروجی دارد. بخشی از جریان پسماند مرحله ۱ به مخزن و بخشی از زنجیره خارج می‌شود. با گذشت زمان و وارد شدن جریان گاز به مخزن H_1'' ، فشار مخزن افزایش پیدا کرده و مخزن پر می‌شود. با پر شدن مخزن (هم‌فشار شدن با جریان پسماند مرحله ۱)، شیر ۱ بسته و شیر ۲ باز می‌شود. در این حالت زنجیره در حالت تک خروجی قرار گرفته و به مرور غلظت ایزوتوپ‌های سنگین در مخزن افزایش می‌یابد [۱۲]. در شکل ۶ غلظت ایزوتوپ اول در خروجی زنجیره بر حسب زمان ارایه شده است.

همان‌طور که در شکل ۶ مشاهده می‌شود، در ابتدای فرایند جداسازی زنجیره، غلظت ایزوتوپ گوگرد ۳۲ در جریان خروجی به سرعت افزایش پیدا کرده و سپس به مرور کاهش پیدا می‌کند. کاهش غلظت تا زمانی که شرایط پایا حاصل شود ادامه خواهد داشت. در شرایط پایا غلظت جریان خروجی برابر غلظت جریان خوراک ورودی خواهد شد. برای ایزوتوپ دوم و سوم عنصر گوگرد نیز، مقادیر غلظت در جریان خروجی در شکل‌های ۷ و ۸ ترسیم شده و با نتایج تجربی مقایسه شده است.



شکل ۵. زنجیره تک خروجی راهاندازی شده توسط زنگ و همکاران [۱۲].

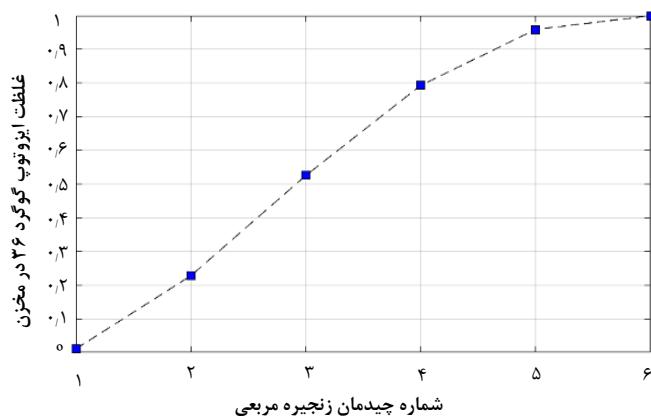




شکل ۹. حالات مختلف از زنجیره‌های مربعی با ۱۲۰ ماشین سانتریفیوژ.

جدول ۴. مشخصات ماشین سانتریفیوژ فرضی در نظر گرفته شده و پارامترهای زنجیره

پارامتر	مقدار	پارامتر	مقدار	پارامتر	مقدار
F	۵۰ g/h	P	۵۰ g/h	مرحله ورود خوارک	N
α_0	۱۳۵	$H'_{n=1,\dots,N}$	۰.۰۵ g	ضریب برش زنجیره	۱
نرخ خوارک بهینه به ماشین	۵۰ g/h	$H''_{n=1,\dots,N-1}$	۰.۰۵ g	تعداد کل ماشین	۱۲۰
موجودی گاز ماشین	۰.۱ g	H''_1	۱ g	نسبت خوارک مراحل به خوارک زنجیره (F/F)	۱۰



شکل ۱۰. غلظت ايزوتوب گوگرد ۳۶ در مخزن در حالت پایا برای چیدمان‌های مختلف زنجیره مربعی تکخروجی.

همان‌طور که در شکل ۱۰ مشاهده می‌شود، از بین چیدمان‌های انتخاب شده، تنها در حالت ۵ و ۶ غلظت ايزوتوب هدف در مخزن به بالای ۹۰ درصد می‌رسد. در چیدمان‌های انتخاب شده، چیدمان ۶ بیشترین تعداد مرحله و چیدمان ۱ بیشترین میزان نسبت L/F را دارند. بنابراین از شکل ۱۰ می‌توان دریافت افزایش تعداد مراحل تأثیر بیشتری نسبت به افزایش نسبت L/F در میزان جداسازی و غلظت دارد. بنابراین در یک تعداد مشخص ماشین سانتریفیوژ، برای دستیابی به

به علت این‌که غلظت ايزوتوب چهارم در جریان خروجی بسیار پایین بوده (کمتر از غلظت خوارک) و قابلیت اندازه‌گیری آن وجود نداشته است، نتایج آزمایشگاهی توسط زنگ و همکاران برای این ايزوتوب ارایه نشده است [۱۲]. با مقایسه نتایج می‌توان مشاهده کرد نتایج شبیه‌سازی انجام شده با نتایج تجربی مطابقت دارد.

۴. نتایج

برای جداسازی ايزوتوب گوگرد ۳۶ توسط زنجیره‌های مربعی تکخروجی، باید چیدمان‌های مختلف به ازای تعداد ماشین‌های سانتریفیوژ معین بررسی شده و زنجیره‌ای که غلظت هدف را تولید می‌کند، انتخاب شود. در این مقاله هدف جداسازی ايزوتوب گوگرد ۳۶ به غلظت بالای ۹۰ درصد می‌باشد و تعداد ماشین سانتریفیوژ ۱۲۰ عدد در نظر گرفته شده است.

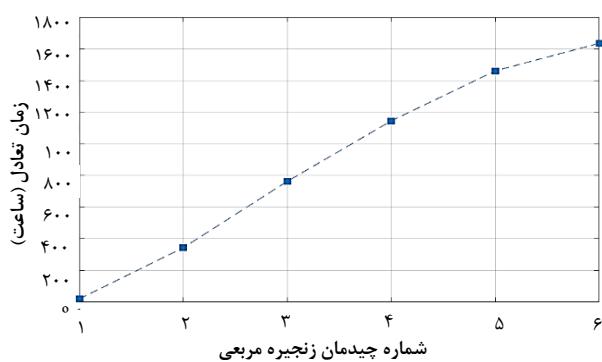
۱.۴ انتخاب چیدمان زنجیره مربعی تکخروجی برای جداسازی ايزوتوب گوگرد ۳۶

با توجه به ثابت بودن تعداد ماشین‌ها، باید زنجیره‌های مربعی با چیدمان‌های متفاوت، که همگی دارای ۱۲۰ ماشین می‌باشند، را طراحی کرده و زنجیره‌ای که غلظت مدنظر را تولید کند انتخاب نمود. بر همین اساس در شکل ۹ حالات مختلف زنجیره مربعی با ۱۲۰ ماشین ارایه شده است.

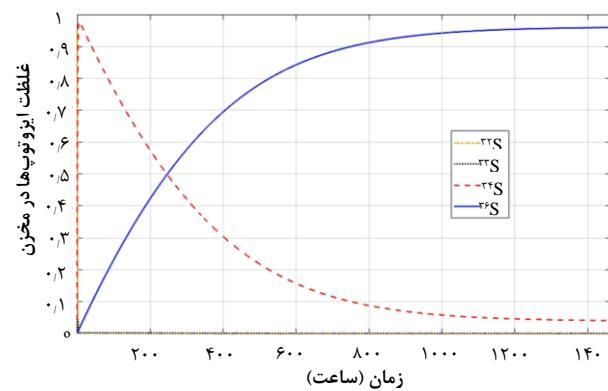
در شکل ۹، ۶ چیدمان مختلف از زنجیره با ۱۲۰ ماشین به همراه نسبت L/F هر حالت نمایش داده شده است (حالات ۶۰ مرحله و ۱۲۰ مرحله به این دلیل که ضرایب برش بین مرحلی از مقدار 0.5 به شدت فاصله گرفته و افت فشار در زنجیره زیاد می‌باشد، غیرعملیاتی بوده و انتخاب نشده‌اند). در این شکل N_m نشان‌دهنده تعداد ماشین‌های موجود در هر مرحله می‌باشد. با توجه به سنگین بودن ايزوتوب هدف، مخزن در سمت پسمان قرار دارد. در زنجیره‌های مربعی تعداد مراحل و نسبت L/F در میزان جداسازی تأثیرگذار هستند و مرحله ورود خوارک در این زنجیره‌ها در آخرین مرحله می‌باشد. دلیل انتخاب این مرحله در بخش ۱.۴ ارایه شده است. پارامترهای استفاده شده در انجام شبیه‌سازی‌ها مطابق جدول ۴ است. موجودی گاز در مرحله از حاصل ضرب تعداد ماشین‌های مرحله در موجودی گاز درون تک ماشین محاسبه می‌شود.

با انجام شبیه‌سازی، غلظت ايزوتوب گوگرد ۳۶ در مخزن در حالت پایا برای چیدمان‌های ارایه شده در شکل ۱۰ نمایش داده شده است.

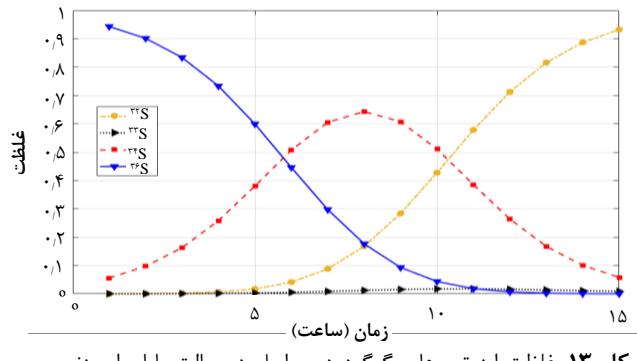




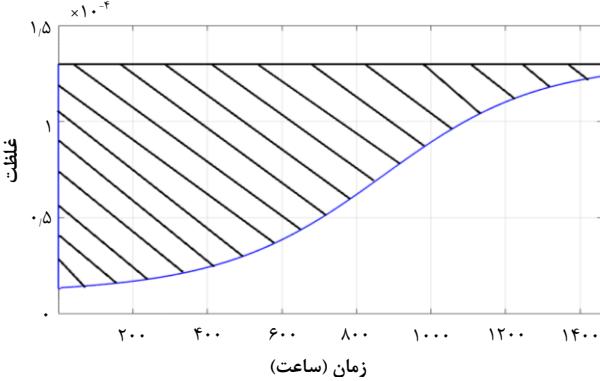
شکل ۱۱. زمان تعادل غلظت ایزوتوپ گوگرد ۳۶ در مخزن برای اشکال مختلف زنجیره.



شکل ۱۲. غلظت ایزوتوپ‌های گوگرد در مخزن بر حسب زمان برای زنجیره شماره ۵.



شکل ۱۳. غلظت ایزوتوپ‌های گوگرد در مراحل در حالت پایا برای زنجیره شماره ۵.



شکل ۱۴. غلظت ایزوتوپ گوگرد ۳۶ در جریان خروجی بر حسب زمان برای زنجیره شماره ۵.

غنای بالاتر افزایش تعداد مرحله نسبت به افزایش نسبت L/F برتری دارد. در شکل ۱۱ زمان به تعادل رسیدن غلظت در مخزن، برای هر ۶ نوع چیدمان زنجیره، نمایش داده شده است. بنابراین با توجه به این که از بین حالت‌های ۵ و ۶، چیدمان شماره ۵ زمان تعادل کمتری دارد و غلظت ایزوتوپ هدف در آن بالای ۹۰ درصد می‌باشد، می‌توان از آن برای جداسازی ایزوتوپ گوگرد ۳۶ استفاده نمود.

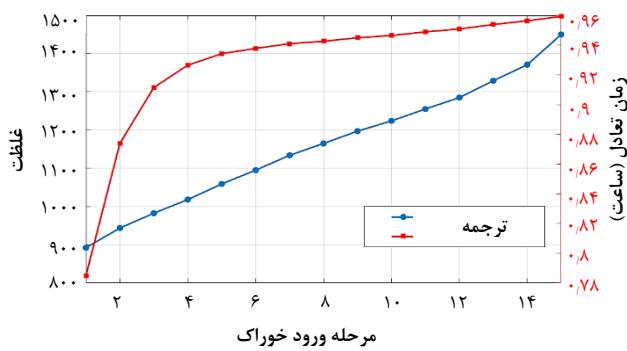
۲.۴ توزیع غلظت در چیدمان انتخاب شده

با انجام شبیه‌سازی توزیع غلظت برای چیدمان زنجیره شماره ۵، غلظت ایزوتوپ‌ها در مخزن بر حسب زمان در شکل ۱۲ نمایش داده شده است. مطابق این شکل به مرور زمان ایزوتوپ‌های سبک‌تر از مخزن خارج شده و غلظت ایزوتوپ سنگین گوگرد ۳۶ افزایش می‌یابد. با رسیدن به حالت تعادل، افزایش غلظت در مخزن متوقف می‌شود و می‌توان مخزن را از زنجیره جدا نمود. در شکل ۱۳ توزیع غلظت ایزوتوپ‌ها در طول زنجیره در حالت تعادل ارایه شده است. ایزوتوپ سبک در سمت محصول و ایزوتوپ سنگین در سمت پسماند (مخزن) بیشترین غلظت را دارند. برای ایزوتوپ میانی گوگرد ۳۴، همان‌گونه که مشاهده می‌شود بیشترین غلظت در مراحل میانی زنجیره می‌باشد.

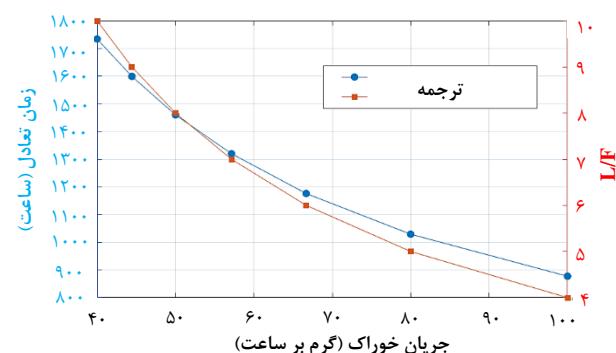
در شکل ۱۴ غلظت ایزوتوپ گوگرد ۳۶ در جریان خروجی زنجیره نمایش داده شده است. همان‌گونه که مشاهده می‌شود، در لحظات ابتدایی جداسازی زنجیره غلظت جریان خروجی کاهش می‌یابد و به مرور زمان غلظت افزایش پیدا کرده و در زمان بی‌نهایت غلظت جریان خروجی با غلظت جریان خروجی برابر می‌شود. مساحت سطح هاشور خورده در شکل برابر با میزان تجمع جرم در مخزن، مراحل و لوله‌ها می‌باشد. میزان اختلاف غلظت مشاهده شده در زمان صفر و زمان تعادل، ناشی از شرط توقف برنامه و خطای $|C^{m+1} - C^m| \langle \text{error} \rangle$ در نظر گرفته شده است. میزان شرط توقف در برنامه ۰/۰۰۰۵ در نظر گرفته شده است.

در شکل ۱۵ غلظت سه ایزوتوپ گوگرد ۳۶، ۳۲ و ۳۴ در جریان خروجی بر حسب زمان نمایش داده شده است. با توجه به این که نسبت غلظت ایزوتوپ‌ها متفاوت می‌باشد، تغییر غلظت محسوس این سه ایزوتوپ در ۱۵ ساعت اول رخ داده و در ساعت بعد، تغییر غلظت این ایزوتوپ‌ها قابل مشاهده نمی‌باشد. تغییر غلظت این ایزوتوپ‌ها از ساعت ۱۵ تا ساعت ۱۴۶۰ برابر تغییر غلظت ایزوتوپ گوگرد ۳۶ در جریان خروجی است.

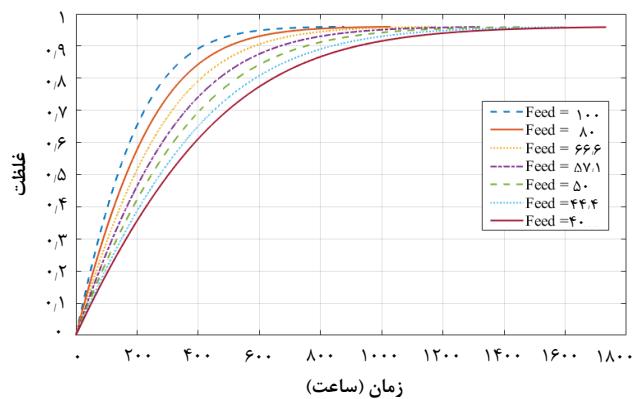




شکل ۱۶. زمان تعادل و غلظت ايزوتوب گوگرد ۳۶ در مخزن برای مراحل مختلف خوراک در زنجیره شماره ۵.



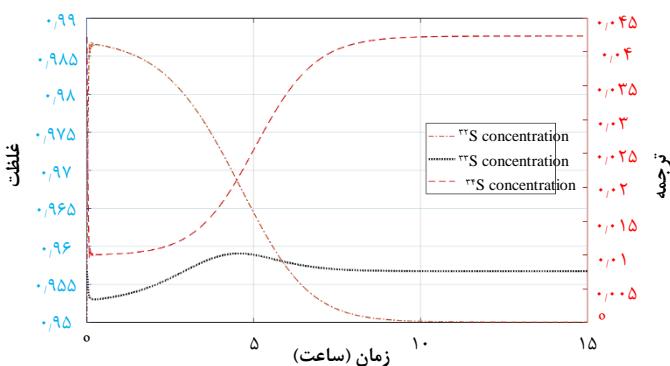
شکل ۱۷. زمان تعادل و نسبت L/F برای جريان‌های خوراک ورودی مختلف در زنجیره شماره ۵.



شکل ۱۸. غلظت جرمی ايزوتوب گوگرد ۳۶ در مخزن برای جريان‌های خوراک ورودی مختلف در زنجیره شماره ۵.

۵. نتیجه‌گیری

در این مقاله شبیه‌سازی توزیع غلظت در حالت گذرا برای زنجیره‌های مربعی تکخروجی، به منظور شناخت پارامترهای تأثیرگذار بر روند جداسازی، ارایه شد. برای حل معادلات، روش عددی تفاضل محدود ضمنی لاسونن به کار گرفته شد و معادلات با استفاده از روش تکرار q خطی شدند. برای جداسازی، مقدار غلظت گوگرد ۳۶ بالای ۹۰ درصد و تعداد



شکل ۱۹. غلظت ايزوتوب گوگرد ۳۶، ۲۲ و ۳۴ در جريان خروجی بر حسب زمان برای زنجیره شماره ۵.

۳.۴ بررسی تأثیر مرحله ورود خوراک
در زنجیره شماره ۵ برای بررسی تأثیر مرحله ورود خوراک بر روی میزان غلظت ايزوتوب گوگرد ۳۶ و زمان تعادل زنجیره، تنها مرحله ورود خوراک تغییر داده شده و شبیه‌سازی انجام شده است. همان‌طور که در شکل ۱۶ مشاهده می‌شود، هرچه مرحله ورود خوراک در مراحل انتها ای انتخاب شود ($NF=15$) میزان جداسازی بیشتر بوده و غلظت ايزوتوب گوگرد ۳۶ در مخزن بیشتر شده و زمان تعادل زنجیره نیز افزایش می‌یابد. همان‌طور که مشاهده می‌شود بین زنجیره با مرحله ورود خوراک ۱ و زنجیره با مرحله ورود خوراک ۱۵ از لحاظ غلظت ايزوتوب گوگرد ۳۶، ۲۲ درصد و از لحاظ زمان تعادل زنجیره ۵۵ درصد اختلاف وجود دارد.

۴.۰ بررسی تأثیر شدت جريان خوراک ورودی
برای بررسی تأثیر شدت جريان خوراک ورودی، میزان خوراک ورودی به زنجیره شماره ۵ تغییر داده می‌شود. برای ثابت ماندن تعداد ماشین در زنجیره و ثابت نگاهداشتن چیدمان زنجیره، نسبت L/F زنجیره تغییر داده می‌شود. در شکل ۱۷ با تغییر جريان خوراک، زمان تعادل زنجیره نمایش داده شده است. در این شکل میزان نسبت L/F هر جريان خوراک نیز نشان داده است. همان‌گونه که مشاهده می‌شود، با افزایش شدت جريان خوراک ورودی، میزان نسبت L/F کاهش داده شده و زمان تعادل زنجیره کاهش می‌یابد. با افزایش ۱۰۰ درصدی جريان خوراک از ۵۰ g.h^{-1} به ۱۰۰ g.h^{-1} ، زمان تعادل زنجیره ۶۸ درصد کاهش می‌یابد.

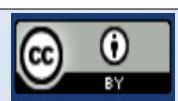
در شکل ۱۸ تغییرات غلظت ايزوتوب هدف در مخزن به ازای تغییر جريان خوراک نمایش داده شده است. با افزایش شدت جريان خوراک میزان غلظت ايزوتوب هدف در حالت پایا تغییر نخواهد کرد و تنها زمان تعادل زنجیره کاهش می‌یابد.



7. Sosnin, L.Yu., et al, *Centrifugal extraction of highly enriched ^{120}Te and ^{122}Te using the non-steady state method of separation*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. 480. 36-39. 10.1016/S0168-9002(01)02044-7 (2002).
8. N. Tcheltsov, A, Yu. Sosnin, L. *Centrifugal enrichment of selenium isotopes and their application to the development of new technologies and to the experiments on physics of weak interaction*. Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section A-accelerators Spectrometers Detectors and Associated Equipment – Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A. (2004).
9. L.Yu. Sosnin, A.N. Tcheltsov, *Centrifugal extraction of highly enriched ^{123}Te for the production ^{123}I at a cyclotron*. Nucl. Istr. Meth. in Phys. A. 438, 14–19 (1999).
10. Yanfeng Cao, et al, *Study of a Nonstationary Separation Method with Gas Centrifuge Cascade*, Separation Science and Technology, 39 (14), 3405-3429 (2004).
11. S. Zeng, C. Ying, *Separating isotope components of small abundance*, Sep. Sci. Technol. 37 (15), 3577–3598 (2002).
12. Shi Zeng, Mingshen Zhou, Chunlong Ying, *Theoretical and Experimental Study of a Non-stationary Isotope Separation Process in a Gas Centrifuge Cascade*, Separation Science and Technology, 38(11), 2375-2394, DOI: 10.1081/SS-120022278 (2003).
13. S. Zeng, C. Ying, *Transient process in gas centrifuge cascades for separation of multicomponent isotope mixtures*, Sep. Sci. Technol. 36 (15), 3439–3457 (2001).
14. S. Zeng, C. Ying, *A second-order time-accurate method for determining the distribution of concentration distribution of multicomponent mixtures in separation cascades*, Sep. Sci. Technol. 35 (5), 729–741 (2000).
15. P.J. Migliorini, *Modeling and Simulation of Gas Centrifuge Cascades for Enhancing the Efficiency of IAEA Safeguards*, May (2013).
16. S. Zeng, C. Ying, *A robust and efficient calculation procedure for determining concentration distribution of multicomponent mixture*, Sep. Sci. Technol. 35 (4), 613–622 (2000).

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**

علیرضا کشتکار، عباس رشیدی، جواد کریمی ثابت، علی نوروزی (۱۴۰۰)، غنی سازی ایزوتوپ پایدار گوگرد ۳۶ توسط زنجیره مربعی تک خروجی، ۹۷، ۱۷-۸

DOI: 10.24200/nst.2021.1291
Url: https://jonsat.nstir.ir/article_1291.html



ماشین‌ها ۱۲۰ عدد در نظر گرفته شد. با بررسی چیدمان‌های مختلف مشاهده شد که برای دست‌یابی به غنای بالاتر، افزایش تعداد مرحله نسبت به افزایش نسبت L/F برتری دارد و بر همین اساس زنجیره مربعی تک خروجی با ۱۵ مرحله و ۸ ماشین سانتریفیوژ در هر مرحله، توانایی جداسازی ایزوتوپ گوگرد تا غلظت ۹۵ درصد را دارد. با بررسی تأثیر مرحله ورود خوارک مشاهد شد دور شدن مرحله ورود خوارک از مخزن باعث افزایش غلظت و زمان تعادل زنجیره می‌شود. همچنین با بررسی شدت جریان خوارک ورودی به زنجیره مشاهده شد با افزایش ۱۰۰ درصدی شدت جریان خوارک، تنها زمان تعادل زنجیره ۶۸ درصد کاهش پیدا کرده و غلظت مخزن تعییری پیدا نمی‌کند.

مراجع

1. T.H. Benedict, *Nuclear Chemical Engineering*, New York: McGraw-Will book Co., (1981).
2. Adina Paytan, et al, *Application of sulphur isotopes for stratigraphic correlation*, Isotopes in Environmental and Health Studies, DOI:10.1080/10256016.2011.625423 (2011).
3. Gornitz, Vivien. *Encyclopedia of Paleoceanography and Ancient Environments*. 10.1007/978-1-4411-4411-3 (2008).
4. A.L. Rudnev, A.N. Tcheltsov, L.Yu. Sosnin, *On the use of non-stationary methods in the centrifuge separation of small quantities of isotopic mixtures*. In Proceedings of the 4th All-Russian (International) Scientific Conference: Physical-Chemical Processes at Selection of Atoms and Molecules, Zvenigorod, Baranov, V.Yu., Kolesnikov, Yu.A., Eds.; Russian Research Center' Kurchatov Institute', Russia, October 4–8, (1999).
5. N. Cheltsov, et al, *Centrifugal enrichment of sulfur isotopes*. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. 299. 10.1007/s10967-013-2650-4 (2014).
6. N. Cheltsov, A, Yu. Sosnin, L, Vyacheslav, Khamylov, *Centrifugal enrichment of nickel isotopes and their application to the development of new technologies*. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. 299. 10.1007/s10967-013-2755-9 (2014).