



۱۱۴۳۹۷



دانشگاه اصفهان
دانشکده فنی و مهندسی
گروه مهندسی شیمی

پایان نامه کارشناسی ارشد رشته مهندسی شیمی

مدلسازی و شبیه‌سازی راکتور بستر متحرک تولید تترافلورید اورانیوم

استاد راهنما:

دکتر امیر رحیمی

پژوهشگر:

آرزو نیک‌سیر

وزارت بهداشت، درمان و آموزش پزشکی
سپهر

۱۳۸۸ / ۴ / ۶

اسفند ماه ۱۳۸۷

۱۱۴۳۶۷

کلیه حقوق مادی مترتب بر نتایج مطالعات،
ابتکارات و نوآوری‌های ناشی از تحقیق موضوع
این پایان نامه متعلق به دانشگاه اصفهان است.



پژوه کارشناس پایان نامه
روایت شهاب است
تعمیرات تکمیلی دانشگاه اصفهان

دانشگاه اصفهان

دانشکده فنی و مهندسی

گروه مهندسی شیمی

پایان نامه ی کارشناسی ارشد رشته ی مهندسی شیمی خانم آرزو نیکسیر

تحت عنوان

مدلسازی ریاضی و شبیه سازی یک راکتور بستر متحرک جهت تولید تترا فلوراید اورانیم

به تصویب نهایی رسید.

در تاریخ ۸۷/۱۲/۱۰ توسط هیأت داوران زیر بررسی و با درجه علمی

۱- استاد راهنمای اول پایان نامه دکتر امیر رحیمی با مرتبه ی علمی استادیار

۲- استاد داور داخل گروه دکتر علیرضا سلیمانی نظر با مرتبه ی علمی استادیار

۳- استاد داور خارج از گروه دکتر سیدمحمد قریشی با مرتبه ی علمی دانشیار

امضا
۸۷/۱۲/۱۹
امضا
سید محمد قریشی

امضای مدیر گروه
۸۷/۱۲/۱۹
۱۳۸۸/۴/۶

دین با نچه ای است،

گل در آن باید کاشت تا زوید علف مرزد آن

زحمت کاشتن یک گل سرخ

کتر از زحمت برداشتن مرزگی آن علف است...

میر زندگی را می سیم و گاه به افرادی می ریم که از دل و جان ما را همراه می شوند، حتی به قیمت آهسته تر رفتن خویش و آمان معلمان فدای استاد فرزاد و

دلسوزند چه بسیار منظرگاه کسب کرده ام و بی یاری معلماتی که اقدر نوشته از نوبر داشته و قدم به راه مستقیم ساخته ام... ولیکن مرا استادی است که انبیا و توانا، در

وصف ارزشمندی اش همین بس که در جایگاه پاس و قدر دانی نامش را همیشه می سازم از غیر

تعملاً از زحمت یگانه استاد ماندگار زندگی ام،

جناب آقای دکتر امیر رحیمی

پاسکوارم:

به خاطر آنچه از دانش سرشار خویش مرا آموخت مشکرم،

به خاطر آنچه که در ذات و سرشتم کنجیده بود و مرا آگاه ساخت و آنچه در من کوچک یا قفنی بود و وی از ذات و سرشتم خویش مرا شنید پاسکوارم،

و به خاطر آنچه به ناتوانی در جبران الطاف وی دریغ داشته ام تمنای پوزش و عرض شرمساری دارم.

از خداوند منان خواستارم در ازاء تمامی آن دینی که همواره با من است و در میان آن عاجزم، موت آن استاد فرزاد را پانسی صد چندان گفته و به وی

به کتر از رضیات جاودان خویش در مردو کیتی بخشاید...

و این رساله اگر چه خاتمه فرصت علم آموزی من از آن استاد بزرگوار است، مرا از جایگاه ساگر وی افزون نخواهد بود.

تقدیم به

پدر، مادر و برادران

چکیده

این پژوهش با هدف آشنایی با اصول کلی، قابلیت‌ها و مدلسازی ریاضی عملکرد راکتورهای بستر متحرک جهت انجام فرایند تولید تترافلوتورید اورانیوم انجام شده است. مطالعات مقدماتی نشان می‌دهد اگرچه در پیشینه صنعت هسته‌ای کمتر به راکتورهای بستر متحرک پرداخته شده است، این راکتورها از قابلیت‌ها و ویژگی‌های زیادی جهت فرایندهای فرآوری اورانیوم برخوردارند. از مجموعه مطالعات انجام شده قبلی چنین استنباط می‌شود که مدلسازی راکتورهای بستر متحرک وابستگی بسیار زیادی به تعاملات واکنشی جریان‌های گاز و جامد و مدل‌های توسعه داده شده در این زمینه دارد. در حقیقت مدلسازی این دسته از راکتورها به مقدار زیادی به انتخاب مدل مناسب جهت پیش‌بینی سرعت واکنش‌های گاز-جامد وابسته است. بدین منظور در این پژوهش موضوع مدلسازی واکنش‌های گاز-جامد غیرکاتالیستی مورد توجه قرار گرفته است. این تحقیق شامل دو بخش مطالعات مروری در خصوص شناخت مدل‌های ارائه شده قبلی صورت گرفته و ارائه مدل‌های ریاضی جدید که بر مبنای مدل‌های قبلی توسعه داده شده است، می‌باشد. نتایج حاصل از این مدل‌ها با مقادیر تجربی ارائه شده در خصوص برخی واکنش‌های مهم صنعتی مورد مقایسه قرار گرفته است. مطابق با نتایج، بسیاری از مدل‌ها و فرضیات متداول مورد استفاده در مطالعات، به دلیل اثرات حرارتی قابل توجه واکنش‌ها و نیز تغییرات ساختاری ذرات جامد دچار ضعف هستند.

پس از آن با انتخاب مدل دانه به عنوان یک مدل سینتیکی مناسب، در ادامه یک مدل ریاضی جامع در خصوص عملکرد راکتورهای بستر متحرک ارائه شده است. این مدل به صورت یک‌بعدی و در جهت طول راکتور توسعه داده شده که در آن کلیه مسائل مربوط به پدیده‌های انتقال، واکنش‌های همزمان، توزیع غلظت و دما درون ذرات جامد، انتقال حرارت با سه مکانیسم هدایت، جابجایی و تشعشعی و غیره لحاظ گردیده است. مدل ریاضی به طور جزئی‌تر در مورد راکتور بستر متحرک تولید تترافلوتورید اورانیوم به کار برده شده و با استفاده از داده‌های صنعتی بسیار محدود موجود، دقت مدل ریاضی مورد ارزیابی قرار گرفته و میزان توافق نتایج مدل پیشنهادی با داده‌های تجربی مورد بررسی قرار گرفته است.

برای اولین بار در تاریخچه پژوهش‌های انجام شده بر روی سیستم‌های واکنشی گاز-جامد، روند تغییر مقاومت‌های مختلف در تعیین سرعت کلی واکنش در طول راکتور مورد تجزیه و تحلیل قرار گرفته است. بدین منظور با استفاده از نمودارهای جدیدی مقاومت‌های کنترل‌کننده اصلی موجود در راکتور بستر متحرک شناسایی شده و در خصوص نقش احتمالی برخی پارامترهای عملیاتی در تعیین سرعت کلی واکنش‌ها بحث و تحلیل صورت می‌گیرد. در ادامه با تغییر برخی پارامترهای عملیاتی نظیر دمای جامد ورودی و دبی مولی گاز ورودی به راکتور، به بررسی تاثیر این پارامترها پرداخته شده است. به طور کلی نتایج نشان می‌دهد که نواحی گوناگون راکتور بستر متحرک تولید تترافلوتورید اورانیوم کاملاً با یکدیگر مرتبط بوده و عملکرد هر یک تاثیر مستقیمی بر دیگری دارد، به طوری که با تغییر پارامترهای عملیاتی در یک ناحیه، اثرات آن به خوبی در نواحی دیگر مشاهده می‌شود.

واژگان کلیدی: راکتور بستر متحرک، مدلسازی ریاضی، تترافلوتورید اورانیوم، واکنش‌های گاز-جامد غیرکاتالیستی، مدل دانه

فصل اول: انرژی هسته‌ای، چرخه سوخت و راکتورهای فرآوری اورانیوم

۱-۱ انرژی هسته‌ای	۱
۱-۱-۱- تاریخچه انرژی هسته‌ای	۲
۱-۱-۲- کاربرد انرژی هسته‌ای در تولید جریان الکتریسیته	۳
۲-۱- چرخه سوخت هسته‌ای	۴
۱-۲-۱- فرآوری سنگ معدن اورانیوم	۵
۲-۲-۱- تبدیل و غنی‌سازی اورانیوم	۶
۳-۲-۱- تولید سوخت هسته‌ای	۸
۴-۲-۱- بازفرآوری سوخت مصرف شده	۸
۳-۱- انواع راکتورهای مورد استفاده در فرایندهای فرآوری اورانیوم	۹
۱-۳-۱- راکتورهای بستر سیال	۱۰
۲-۳-۱- کوره‌های دوار	۱۰
۳-۳-۱- راکتورهای بستر متحرک	۱۱

فصل دوم: آشنایی با راکتور بستر متحرک و تاریخچه علمی آن

۱-۲- کاربرد راکتورهای بستر متحرک در فرایند احیاء اکسید آهن	۱۵
۲-۲- کاربرد راکتورهای بستر متحرک در فرایندهای احتراق و گازسازی	۱۷
۳-۲- کاربرد راکتورهای بستر متحرک در فرایند تولید تترافلورئورید اورانیوم	۱۷

فصل سوم: مدلسازی واکنش‌های گاز- جامد غیر کاتالیستی و راکتور بستر متحرک

۱-۳- مدلسازی واکنش‌های گاز- جامد غیر کاتالیستی	۱۹
۱-۱-۳- مهندسی واکنش‌های شیمیایی در سیستم‌های واکنش ناهمگن	۲۰
۲-۱-۳- مهندسی واکنش‌های شیمیایی در سیستم‌های واکنش همگن	۲۱
۳-۱-۳- تغییر ساختار ذره جامد	۲۱

۲۳	۴-۱-۳- اثرات حرارتی در واکنش‌های گاز- جامد
۲۳	۵-۱-۳- بررسی انحراف برخی مدل‌های ارائه شده جهت واکنش‌های گاز- جامد
۴۰	۲-۲- مدلسازی عملکرد راکتور بستر متحرک
۴۲	۱-۲-۳- سینتیک واکنش‌های شیمیایی
۴۸	۲-۲-۳- مدلسازی واکنش‌های گاز- جامد موجود در راکتور بستر متحرک
۴۹	۳-۲-۳- مدلسازی راکتور در بخش عمودی
۵۴	۴-۲-۳- مدلسازی راکتور در بخش افقی
۵۵	۵-۲-۳- معادلات موازنه‌های کلی راکتور
۵۸	۶-۲-۳- پارامترهای مورد نیاز برای حل معادلات حاکم
۶۲	۷-۲-۳- روش حل معادلات حاکم

فصل چهارم: تحلیل نتایج و پیشنهادات

۷۰	۱-۴- نتایج مدلسازی رفتار یک ذره منفرد در واکنش‌های گاز- جامد غیرکاتالیستی
۷۱	۱-۱-۴- واکنش فلوئوراسیون دی‌اکسید اورانیوم
۷۲	۲-۱-۴- واکنش هیدروفلوئوراسیون دی‌اکسید اورانیوم
۷۸	۳-۱-۴- واکنش احیاء هماتیت
۸۰	۲-۴- نتایج مدلسازی راکتور بستر متحرک تولید تترافلورید اورانیوم
۸۱	۱-۲-۴- تبدیل UO_3 در ناحیه احیاء
۸۵	۲-۲-۴- تبدیل UO_2 در ناحیه هیدروفلوئوراسیون عمودی
۸۸	۳-۲-۴- تبدیل UO_2 در ناحیه هیدروفلوئوراسیون افقی
۹۰	۴-۲-۴- ارزیابی دقت مدل پیشنهادی
۹۲	۵-۲-۴- تعیین مقاومت‌های کنترل‌کننده در نواحی مختلف راکتور
۹۶	۶-۲-۴- بررسی تاثیر برخی پارامترهای عملیاتی
۱۰۹	۷-۲-۴- نتیجه‌گیری نهایی
۱۱۱	۳-۴- پیشنهادات
۱۱۲	منابع و مأخذ

فهرست شکل‌ها

صفحه	عنوان
۱۲.....	شکل ۱-۱- راکتور LC برای تولید تترافلوئورید اورانیوم.....
۱۴.....	شکل ۱-۲- شماتیک یک راکتور بستر متحرک.....
۲۲.....	شکل ۱-۳- تغییر ساختار جامد بر اثر ذوب شدن دانه‌ها.....
۲۴.....	شکل ۲-۳- واکنش یک جامد فاقد تخلخل اولیه بر اثر مدل هسته واکنش نداده کوچک‌شونده.....
۲۶.....	شکل ۳-۳- واکنش حجمی در توده جامد متخلخل.....
۲۷.....	شکل ۴-۳- مدل دانه در یک ذره جامد متخلخل.....
۳۱.....	شکل ۵-۳- مدل دانه اصلاح شده در یک ذره جامد متخلخل در حالت انبساط دانه‌ها.....
۳۴.....	شکل ۶-۳- ذره جامد تحت کنترل مقاومت واکنش شیمیایی.....
۳۶.....	شکل ۷-۳- ذره جامد تحت کنترل مقاومت نفوذ گاز واکنشگر درون خلل و فرج آن.....
۴۱.....	شکل ۸-۳- شماتیک راکتور بستر متحرک تولید تترافلوئورید اورانیوم.....
۴۶.....	شکل ۹-۳- تغییرات درجه واکنش $UO_2 \rightarrow U_3O_8$ ، بر حسب دما و غلظت هیدروژن.....
۵۴.....	شکل ۱۰-۳- مدل هندسی به کار رفته در ناحیه هیدروفلوئوراسیون افقی.....
۵۵.....	شکل ۱۱-۳- جریان‌های گاز و جامد موجود در راکتور بستر متحرک و نامگذاری مقاطع مختلف آن.....
۶۵.....	شکل ۱۲-۳- الگوریتم مراحل حدس و خطا در نواحی مختلف راکتور.....
۶۸.....	شکل ۱۳-۳- الگوریتم حل معادلات در طول برج در دو نواحی احیاء و هیدروفلوئوراسیون عمودی.....
۷۲.....	شکل ۱-۴- مقایسه کسر مولی UO_2 ، UO_2F_2 و UF_6 محاسبه شده با مقادیر تجربی.....
	شکل ۲-۴- مقایسه تغییرات درصد تبدیل دی‌اکسید اورانیوم منتج از حل مدل‌های مختلف با مقادیر تجربی ارائه شده توسط ادواردو و اسمیت.....
۷۳.....	شکل ۳-۴- مقایسه تغییرات دمای سطح و مرکز ذره دی‌اکسید اورانیوم منتج از حل مدل‌های مختلف با مقادیر تجربی ارائه شده توسط ادواردو و اسمیت.....
۷۴.....	شکل ۴-۴- مقایسه تغییرات درصد تبدیل دی‌اکسید اورانیوم منتج از حل مدل‌های مختلف با مقادیر تجربی ارائه شده توسط ادواردو و اسمیت.....
۷۵.....	شکل ۵-۴- مقایسه تغییرات درصد تبدیل دی‌اکسید اورانیوم منتج از حل مدل‌های مختلف با مقادیر تجربی ارائه شده توسط ادواردو و اسمیت.....

- شکل ۴-۵- مقایسه تغییرات دمای سطح و مرکز ذره دی‌اکسید اورانیوم منتج از حل مدل‌های مختلف با مقادیر تجربی ارائه شده توسط ادواردو و اسمیت ۷۵
- شکل ۴-۶- مقایسه تغییرات درصد تبدیل دی‌اکسید اورانیوم منتج از حل MGM با مقادیر تجربی ارائه شده توسط نیکول و همکاران ۷۶
- شکل ۴-۷- تغییرات دمای ذره منتج از MGM در طول زمان در واکنش هیدروفلوئوراسیون ۷۷
- شکل ۴-۸- مقایسه تغییرات درصد تبدیل اکسید آهن II منتج از حل GM و ARTM با مقادیر تجربی ارائه شده توسط آهمی و همکاران ۷۸
- شکل ۴-۹- دبی مولی اجزاء جامد در طول ناحیه احیاء (حالت مینا) ۸۱
- شکل ۴-۱۰- درصد تبدیل مواد مختلف در طول ناحیه احیاء ۸۲
- شکل ۴-۱۱- تغییرات دمای گاز و دمای متوسط جامد در طول ناحیه احیاء (حالت مینا) ۸۳
- شکل ۴-۱۲- تغییرات درصد تبدیل دانه‌های درون ذره UO_3 در طول ناحیه احیاء ۸۴
- شکل ۴-۱۳- تغییرات درصد تبدیل دانه‌های درون ذره U_3O_8 در طول ناحیه احیاء ۸۵
- شکل ۴-۱۴- دبی مولی اجزاء جامد در طول ناحیه هیدروفلوئوراسیون عمودی (حالت مینا) ۸۶
- شکل ۴-۱۵- تغییرات دمای گاز و جامد در طول ناحیه هیدروفلوئوراسیون عمودی (حالت مینا) ۸۷
- شکل ۴-۱۶- تغییرات درصد تبدیل دانه‌های درون ذره UO_3 در طول ناحیه هیدروفلوئوراسیون عمودی ۸۸
- شکل ۴-۱۷- درصد تبدیل متوسط واکنش در طول ناحیه هیدروفلوئوراسیون عمودی (حالت مینا) ۸۸
- شکل ۴-۱۸- تغییرات درصد تبدیل واکنش در طول ناحیه هیدروفلوئوراسیون افقی (حالت مینا) ۸۹
- شکل ۴-۱۹- تغییرات دمای جریان‌های گاز و جامد در طول ناحیه هیدروفلوئوراسیون افقی (حالت مینا) ۹۰
- شکل ۴-۲۰- مقادیر حداکثر و حداقل دمای اندازه‌گیری شده در طول بخش عمودی راکتور در واحد عملیاتی ۹۲
- شکل ۴-۲۱- تغییرات ثوابت زمانی مختلف واکنش تبدیل UO_3 در طول ناحیه احیاء ۹۳
- شکل ۴-۲۲- تغییرات ثوابت زمانی مختلف واکنش تبدیل U_3O_8 در طول ناحیه احیاء ۹۴
- شکل ۴-۲۳- تغییرات ثوابت زمانی مختلف واکنش تبدیل UO_2 در طول ناحیه هیدروفلوئوراسیون عمودی ۹۵
- شکل ۴-۲۴- تغییرات دمای گاز و دمای متوسط جامد در طول ناحیه احیاء (دمای خوراک جامد $700^\circ C$) ۹۷

عنوان

صفحه

- شکل ۴-۲۵- تغییرات دمای گاز و جامد در طول ناحیه هیدروفلوئوراسیون عمودی ۹۷
- شکل ۴-۲۶- درصد تبدیل متوسط واکنش در طول ناحیه هیدروفلوئوراسیون عمودی ۹۸
- شکل ۴-۲۷- تغییرات درصد تبدیل واکنش در طول ناحیه هیدروفلوئوراسیون افقی ۹۹
- شکل ۴-۲۸- تغییرات دمای گاز و جامد در طول ناحیه هیدروفلوئوراسیون افقی ۱۰۰
- شکل ۴-۲۹- درصد تبدیل متوسط واکنش در طول ناحیه هیدروفلوئوراسیون عمودی ۱۰۱
- شکل ۴-۳۰- تغییرات دمای گاز و دمای متوسط جامد در طول ناحیه احیاء ۱۰۲
- شکل ۴-۳۱- تغییرات درصد تبدیل واکنش در طول ناحیه هیدروفلوئوراسیون افقی ۱۰۲
- شکل ۴-۳۲- دبی مولی جریان مواد جامد در طول ناحیه احیاء ۱۰۳
- شکل ۴-۳۳- تغییرات دمای گاز و جامد در طول ناحیه هیدروفلوئوراسیون عمودی ۱۰۴
- شکل ۴-۳۴- اثر تغییر دبی مولی HF در خوراک ورودی بر طول مورد نیاز بخش‌های مختلف راکتور ۱۰۵
- شکل ۴-۳۵- اثر تغییر دبی مولی HF در خوراک ورودی بر کسر مولی UF₄ در جریان خروجی از راکتور ۱۰۶
- شکل ۴-۳۶- اثر تعداد تانک‌های همزده سری بر طول مورد نیاز بخش‌های مختلف راکتور ۱۰۸

فهرست جدول‌ها

عنوان

صفحه

- جدول ۱-۱- مراحل مختلف تولید کیک زرد یا کربنات اورانیل آمونیوم (AUC) از سنگ معدن..... ۵
- جدول ۱-۳- واکنش‌های شیمیایی مختلف به همراه معادلات سرعت آن‌ها..... ۴۳
- جدول ۲-۳- معادلات سرعت واکنش‌های گاز- جامد موجود در راکتور تولید تترافلوراید اورانیوم..... ۴۸
- جدول ۳-۳- معادله موازنه جرم جزئی اجزاء جامد در نواحی احیاء و هیدروفلوئوراسیون عمودی..... ۵۲
- جدول ۴-۳- معادله موازنه جرم جزئی اجزاء گاز در نواحی احیاء و هیدروفلوئوراسیون عمودی..... ۵۲
- جدول ۵-۳- عبارات مربوط به معادله موازنه انرژی فاز گاز در نواحی احیاء و هیدروفلوئوراسیون عمودی..... ۵۳
- جدول ۶-۳- ضرایب ثابت معادله $C_i(J\text{ mol}^{-1}\text{K}^{-1}) = a_i + b_iT + c_iT^2 + d_iT^{-2}$ مواد مختلف درون راکتور..... ۵۹
- جدول ۷-۳- معادله گرمای واکنش هر یک از واکنش‌های درون راکتور به صورت تابعی از دما..... ۶۱
- جدول ۸-۳- دانسیته واقعی اجزاء جامد درون راکتور..... ۶۲
- جدول ۹-۳- ضرایب ثابت معادله $\mu_{gi}(kg\text{ m}^{-1}\text{ s}^{-1}) = a_i + b_iT_g$ برای اجزاء مختلف گازی درون راکتور..... ۶۲
- جدول ۱-۴- خطای مقادیر محاسبه شده و تجربی کسر مولی اجزاء مختلف از دو مدل همگن و ناهمگن..... ۷۲
- جدول ۲-۴- پارامترهای عملیاتی گزارش شده در خصوص راکتور بستر متحرک تولید تترافلوراید اورانیوم..... ۸۰
- جدول ۳-۴- مقادیر ورودی و خروجی جرم و انرژی مربوط به موازنه‌های کلی راکتور..... ۹۱

کوتاه‌نوشت‌ها

واکنشگر گازی و واکنشگر جامد	A, B
سطح مقطع راکتور، m^2	A_b
ضریب استوکیومتری	b
غلظت گاز A و R ، $mol\ m^{-3}$	C_A, C_R
غلظت اجزاء گازی A و R در توده گازی، $mol\ m^{-3}$	C_{Ab}, C_{Rb}
غلظت تعادلی گاز A ، $mol\ m^{-3}$	C_A^*
غلظت جامد واکنشگر B ، $mol\ m^{-3}$	C_B
گرمای ویژه گاز و جامد، $J\ mol^{-1}\ K^{-1}$	C_g, C_s
گرمای ویژه متوسط گاز و جامد، $J\ mol^{-1}\ K^{-1}$	\bar{C}_g, \bar{C}_s
محصول جامد	D
ضریب نفوذ موثر گاز A درون ذره، $m^2\ s^{-1}$	\mathcal{D}_A
ضریب نفوذ موثر گاز A درون ذره بدون تغییر ساختار، $m^2\ s^{-1}$	\mathcal{D}_{A0}
ضریب نفوذ موثر منافذ، $m^2\ s^{-1}$	\mathcal{D}_{pore}
ضریب نفوذ جزء i در مخلوط گازی، $m^2\ s^{-1}$	$\mathcal{D}_{i,m}$
ضریب نفوذ ناسن جزء i ، $m^2\ s^{-1}$	$\mathcal{D}_{i,Kn}$
ضریب استوکیومتری	d
قطر ذره، m	d_p
قطر مبدل داخلی در ناحیه هیدروفلوئوراسیون، m	$d_{h,in}$
قطر خارجی راکتور در ناحیه هیدروفلوئوراسیون، m	$d_{h,out}$
قطر خارجی راکتور در ناحیه احیاء، m	d_r
قطر راکتور، m	d_t
انرژی فعال‌سازی واکنش، $J\ mol^{-1}$	E
ضریب انتقال حرارت، $W\ m^{-2}\ K^{-1}$	h
ضریب انتقال حرارت جابجایی، $W\ m^{-2}\ K^{-1}$	h_g
ضریب انتقال حرارت تشعشعی، $W\ m^{-2}\ K^{-1}$	h_r
ثابت تعادل واکنش، $mol^{1-m}\ m^{3(1-m)}$	K_{eq}
ضریب هدایت حرارتی موثر جامد، $W\ m^{-1}\ K^{-1}$	k_{eff}
ضریب انتقال جرم اجزاء گازی، $m\ s^{-1}$	k_g
ثابت سرعت واکنش، $mol^{1-m}\ s^{-1}\ m^{2-3m}$	k
ثابت سرعت واکنش برگشت، $mol^{1-n}\ s^{-1}\ m^{2-3n}$	k^{-1}
دبی مولی جریان گاز و جامد، $mol\ s^{-1}$	\dot{m}_g, \dot{m}_s
دبی مولی کلی جریان گاز و جامد، $mol\ s^{-1}$	$\dot{m}_{gt}, \dot{m}_{st}$
درجه واکنش نسبت به اجزاء گازی	m, n

تعداد ذرات جامد بر واحد زمان، s^{-1}	\dot{n}_p
شار نفوذ جزء A، $mol\ m^{-2}\ s^{-1}$	N_A
محیط راکتور، m	P
سرعت انتقال حرارت، W	Q
ثابت عمومی گازها، $J\ mol^{-1}\ K^{-1}$	R
سرعت واکنش، $mol\ m^{-3}\ s^{-1}$	R_A
شعاع ذره جامد و شعاع دانه، m	R_p, R_g
شعاع اولیه دانه، m	R_{g0}
ضریب استوکیومتری	r
شعاع هسته واکنش نداده برای دانه، m	r_c
شعاع معادل هسته واکنش نداده برای ذره، m	r'_c
دمای مینا، K	T_0
دمای گاز و جامد، K	T_g, T_s
زمان، s	t
سرعت جریان گاز، $m\ s^{-1}$	u_g
سرعت جریان جامد، $m\ s^{-1}$	u_s
ضریب انتقال حرارت کلی، $W\ m^{-2}\ K^{-1}$	U_w
حجم راکتور همزده، m^3	V_{CSTR}
درصد تبدیل دانه و ذره، بدون بعد	X_g, X_B
کسر مولی اجزاء گازی	y
کسر مولی گاز A و R در توده گازی	y_{Ab}, y_{Rb}
نسبت حجم مولی محصول و ماده اولیه	Z
مولفه طولی راکتور، m	z

گروه‌های بدون بعد

عدد ناسلت ذره	Nu_p
عدد پراوندل	Pr
عدد رینولدز ذره، $Re_p = \rho_g u_g d_p / \lambda_g$	Re_p
عدد اشمیت	Sc
عدد شروود ذره	Sh_p
عدد شروود اصلاح شده، $Sh^* = 2k_g R_p / \mathcal{D}_{A0}$	Sh^*

حروف یونانی

تخلخل موضعی ذره، بدون بعد	ε_p
تخلخل اولیه ذره، بدون بعد	ε_{p0}

تخلخل بستر، بدون بعد	ε_b
زمان مصرف کامل جامد در رژیم سینتیکی، s	τ_{ch}
زمان مصرف کامل جامد در رژیم نفوذ درونی، s	τ_{diff}
زمان مصرف کامل جامد در رژیم نفوذ درونی، s	τ_p
زمان مصرف کامل جامد در رژیم نفوذ خارجی، s	τ_{ext}
ضریب تیلی، $\hat{\sigma}^2 = \tau_p / \tau_{ch}$	$\hat{\sigma}^2$
گرمای واکنش، J mol^{-1}	$\Delta H_{rxn}, \Delta H_r$
زمان ماند ذرات جامد در یک راکتور همزده، s	Δt_{CSTR}
آنتالپی آزاد، J mol^{-1}	ΔG_r
ویسکوزیته گاز، $\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$	μ_g
دانسیته مولی واقعی جامد اولیه و محصول، mol m^{-3}	ρ_B, ρ_D
غلظت مولی UO_3 در بستر، mol m^{-3}	$\rho_{\text{UO}_3}^*$
دانسیته گاز، mol m^{-3}	ρ_g

زیروندها

واکنش شکست حرارتی نیتروژن	cr
واکنش تجزیه حرارتی UO_3	cal
واکنش هیدروفلوئوراسیون	f
گاز	g
واکنش هیدروفلوئوراسیون ثانویه	hfs
واکنش احیاء اول	red_1
واکنش احیاء دوم	red_2
جامد	s

پیشگفتار

هم‌اکنون با آشکار شدن محدودیت منابع فسیلی انرژی و افزایش روزافزون مصرف سوخت در کشورهای صنعتی لزوم بکارگیری منابع جدید انرژی بیش از پیش احساس می‌شود. استفاده از انرژی هسته‌ای برای تولید برق روشی پیچیده اما کارآمد برای تامین انرژی مورد نیاز بشر است. بدین منظور در سال‌های اخیر فرایندهای تبدیل اورانیوم با توجه به قدمت نسبتاً بالای آن‌ها دچار تحولات و تغییرات تکنولوژی بسیاری گردیده است. استفاده از فناوری‌های جدید در عرصه صنایع شیمیایی جهت اصلاح فرایندهای اورانیوم در بسیاری از کشورهای صاحب صنعت هسته‌ای به شدت پیگیری می‌شود. این فناوری‌ها شامل استفاده از راکتورهای بستر متحرک، سیالی شده و جریان‌های برخوردی به دلایل متعدد از قبیل سهولت کنترل، ایجاد یکنواختی در محصولات و افزایش سرعت‌های تبادل جرم و حرارت که منجر به کوچک شدن اندازه دستگاه‌ها می‌گردد از اهمیت بسزایی برخوردار است. از سویی دیگر در دو دهه اخیر و با توجه به پیشرفت‌های شگرف در عرصه حل عددی معادلات تبادل (CFD) موضوع شبیه‌سازی و مدلسازی به عنوان ابزاری موثر جهت انجام تحقیقات اولیه و دقیق در زمره فعالیت محققان قرار گرفته است. این ابزار کارآمد مسیر مناسبی را جهت کاهش هزینه‌های ساخت دستگاه‌های نیمه‌صنعتی و انجام آزمایش‌های متعدد فراهم آورده است.

در صنعت هسته‌ای فرایند تولید ماده تترافلورئورید اورانیوم از جمله مراحل گلوگاهی در مسیر غنی‌سازی سوخت و تولید انرژی است. امروزه کشورهای دارای فناوری هسته‌ای غالباً از راکتورهای بستر سیال یا کوره‌های دوار برای انجام فرایندهای مختلف تولید تترافلورئورید اورانیوم بهره می‌گیرند. اگرچه مطالعات مقدماتی انجام شده صرفه اقتصادی قابل توجه عملیات در سیستم‌های بستر متحرک را آشکار می‌سازد، با این وجود این راکتورها در مقایسه با انواع مذکور جهت انجام مراحل گوناگون فرآوری اورانیوم چندان مورد توجه قرار نگرفته‌اند. این مسئله لزوم انجام مطالعات بنیادی در زمینه شناخت، معرفی و استفاده بهینه از این راکتورها در صنعت هسته‌ای را آشکار می‌سازد.

این پژوهش با هدف آشنایی با اصول کلی، قابلیت‌ها و مدلسازی ریاضی عملکرد راکتورهای بستر متحرک جهت انجام فرایند تولید تترافلورئورید اورانیوم انجام شده است. بدین منظور در فصل اول با نگاهی به فرایندهای مختلف مرتبط با فرایندهای فرآوری اورانیوم و چرخه سوخت هسته‌ای جایگاه حیاتی فرایند مذکور در مسیر غنی‌سازی اورانیوم معرفی گردیده است. آشنایی با معیارهای انتخاب راکتورهای مربوط به فرایندهای فرآوری اورانیوم که در فصل اول آورده شده است تطبیق قابلیت‌های راکتورهای بستر متحرک با اهداف مورد نظر را آشکار می‌سازد. در نتیجه لزوم انجام مطالعات مروری پیرامون جایگاه راکتورهای بستر متحرک در صنایع مختلف شیمیایی و هسته‌ای چه در مقیاس صنعتی و تجاری و چه از منظر تحقیقاتی احساس می‌شود. بنابراین فصل دوم این پژوهش به آشنایی با اصول عملکرد راکتورهای بستر متحرک و گردآوری خلاصه‌ای از مطالعات انجام شده قبلی در رابطه با کاربرد این دسته از راکتورها می‌پردازد. اگرچه راکتورهای بستر متحرک از جایگاه ویژه‌ای در صنایع شیمیایی برخوردارند، مطالعات آزمایشگاهی و مدلسازی ریاضی این راکتورها کمتر مورد توجه محققین قرار گرفته است.

از مجموعه مطالعات صورت گرفته چنین استنباط می‌شود که مدل‌سازی راکتورهای بستر متحرک وابستگی بسیار زیادی به تعاملات واکنشی جریان‌های گاز و جامد و مدل‌های توسعه داده شده در این زمینه دارد. در حقیقت عواملی نظیر محدودیت‌های ترمودینامیکی واکنش‌ها، نقش پراهمیت پدیده‌های انتقال، واکنش‌های همزمان چندین ترکیب گاز- جامد و غیره که در هر یک از مطالعات انجام شده قبلی به چشم می‌خورد مدل‌سازی راکتور را به انتخاب و توسعه مدل مناسبی جهت پیش‌بینی سرعت واکنش گاز- جامد وابسته می‌سازد. بدین منظور موضوع مدل‌سازی واکنش‌های گاز- جامد غیر کاتالیستی در بخش اول از فصل سوم این پژوهش مورد توجه قرار گرفته است. مطالب این فصل در واقع از دیدگاه کلی به دو مجموعه قابل طبقه‌بندی است: (الف) مطالعات مروری که در خصوص شناخت مدل‌های ارائه شده قبلی صورت گرفته و به عنوان مکمل مطالعات کتابخانه‌ای مورد نیاز در این فصل به آن اشاره شده است و (ب) توسعه مدل‌های ریاضی جدید بر مبنای مدل‌های قبلی که از جمله دستاوردهای پژوهش حاضر محسوب می‌گردد.

با توجه به آنچه در بالا ذکر شد، به طور خلاصه می‌توان گفت موضوع پژوهش مورد نظر به گونه‌ای است که در آن مطالعات انجام شده قبلی به دو دسته مجزا قابل طبقه‌بندی است: مطالعات انجام شده در خصوص کاربردهای راکتورهای بستر متحرک که در فصل دوم به آن اشاره شده است؛ و مطالعات انجام شده در خصوص واکنش‌های گاز- جامد غیر کاتالیستی که در فصل سوم به آن‌ها پرداخته می‌شود. اگرچه مباحث فصل سوم به طور بارزی مشتمل بر توسعه مدل‌های جدید نیز می‌باشد.

پس از بحث پیرامون مدل‌های ریاضی واکنش‌های گاز- جامد و انتخاب یک مدل ریاضی مناسب با توجه به نقاط ضعف و قوت آن، در بخش دوم از فصل اول مدل‌سازی ریاضی عملکرد راکتورهای بستر متحرک مورد توجه قرار گرفته است. در این بخش بر مبنای قوانین بقا مدل ریاضی جدیدی در خصوص این راکتورها توسعه داده شده که به طور جزئی‌تر در مورد راکتور بستر متحرک تولید تترافلورید اورانیوم مورد استفاده قرار گرفته است.

نتایج حاصل از این پژوهش در فصل چهارم آورده شده است. در این فصل در ابتدا به تحلیل نتایج مدل‌سازی واکنش‌های گاز- جامد غیر کاتالیستی پرداخته می‌شود. در این بخش به کمک مدل‌های سینتیکی توسعه داده شده در فصل سوم و داده‌های تجربی ارائه شده در مراجع، رفتار برخی واکنش‌های مهم در مقیاس صنعتی مورد شبیه‌سازی قرار گرفته است. بخش دوم این فصل مشتمل بر بحث و تحلیل در خصوص نتایج حاصل از مدل‌سازی عملکرد راکتور بستر متحرک تولید تترافلورید اورانیوم است. در این بخش عملکرد راکتور در واحد عملیاتی نمونه با استفاده از داده‌های صنعتی بسیار محدودی که در مراجع گزارش شده است شبیه‌سازی می‌شود. همچنین تاثیر برخی پارامترهای عملیاتی نظیر دمای جامد ورودی و دبی مولی گاز ورودی بر رفتار بخش‌های مختلف راکتور و راندمان کلی آن مورد بحث و تحلیل قرار گرفته است.

فصل اول

انرژی هسته‌ای، چرخه سوخت و راکتورهای فرآوری اورانیوم

۱-۱ انرژی هسته‌ای

انرژی هسته‌ای یکی از منابع پراهمیت انرژی در دنیای صنعتی است و گستره متنوعی از کاربردهای مختلف شامل تولید برق هسته‌ای، تشخیص و درمان بسیاری از بیماری‌ها، کشاورزی و دامداری، کشف منابع آب و غیره را دربرمی‌گیرد. بدون تردید بر اساس تحلیل سطح تقاضا و منابع عرضه انرژی در جهان، توجه به توسعه تکنولوژی‌های موجود و حقایقی نظیر روند کاهش منابع فسیلی در دهه‌های آینده، مزایای زیست‌محیطی انرژی هسته‌ای، ضریب بالای ایمنی نیروگاه‌های هسته‌ای، مضرات کمتر چرخه سوخت هسته‌ای در مقایسه با سایر گزینه‌های سوخت انرژی هسته‌ای یکی از مطمئن‌ترین حامل‌های انرژی جهان در هزاره سوم میلادی به شمار می‌رود.

استفاده از انرژی هسته‌ای برای تولید برق روشی پیچیده اما کارآمد برای تامین انرژی مورد نیاز بشر است. مقایسه‌ای ساده میان نیروگاه‌های هسته‌ای و غیرهسته‌ای که از سوخت‌های فسیلی برای گرم کردن آب و تولید بخار بهره می‌برند، صرفه اقتصادی قابل توجه نیروگاه‌های هسته‌ای را آشکار می‌سازد. در مورد مسائل پسمانداری، با توجه به کم بودن حجم زباله‌های هسته‌ای و پیشرفت‌های به دست آمده در خصوص دفن نهایی این زباله‌ها در صخره‌های عمیق زیرزمینی با رعایت کامل نکات ایمنی، مشکلات مرتبط با کاربرد انرژی هسته‌ای تا حدود زیادی رفع شده است.

در مورد مزایای نیروگاه‌های هسته‌ای در مقایسه با نیروگاه‌های فسیلی صرفنظر از مسائل اقتصادی و همچنین اندک بودن زباله‌های آن می‌توان به تمیزتر بودن نیروگاه‌های هسته‌ای و عدم آلاینده‌گی محیط زیست به آلاینده‌های خطرناکی نظیر SO_2 ، NO_2 ، CO و گاز گلخانه‌ای CO_2 ، پیشرفت تکنولوژی و استفاده هرچه بیشتر از این علم جدید، افزایش کارایی و کاربرد تکنولوژی هسته‌ای در سایر زمینه‌های صلح‌آمیز در کنار نیروگاه‌های هسته‌ای اشاره نمود.

۱-۱-۱ تاریخچه انرژی هسته‌ای

اورانیوم در سال ۱۷۸۹ توسط یک شیمیدان آلمانی به نام مارتین هنریچ کلاپروس^۱ از نوعی اورانیت کشف شد. وی اورانات زرد را رسوب داد و با زغال چوب احیاء نمود ولی تنها اکسید سیاه‌رنگی به دست آورد که احتمالاً دی‌اکسید اورانیوم (UO_2) بوده است. کلاپروس در سال ۱۷۹۰ فلز مذکور را اورانیوم نامید زیرا کشف آن هشت سال پس از کشف سیاره اورانوس در سال ۱۷۸۱ توسط هرشچل^۲ بوده است. پلیگوت^۳ در سال ۱۸۴۱ فلز اورانیوم را با احیاء حرارتی تتراکلرید اورانیوم آبکی توسط پتاسیم در یک بوته پلاتینی به دست آورد. وی در سال ۱۸۵۶ از طریق احیاء تتراکلرید اورانیوم با سدیم به تولید فلز خالص اورانیوم به شکل فشرده نائل آمد (Bohnet et al., 2003).

مویسان^۴ در دهه ۱۸۹۰ روش‌های جدیدی برای تولید اورانیوم فلزی ارائه داد. وی توانست خالص‌ترین فلز اورانیوم (بیش از ۹۹٪ خلوص) را با الکترولیز کلرید اورانیل سدیم به دست آورد. در اواخر قرن ۱۹ میلادی برخی کاربردهای صنعتی اورانیوم که تا به حال مورد توجه قرار نگرفته بودند نیز آشکار گردید. در این خصوص می‌توان به امکان استفاده از اورانیوم در ساخت شیشه و سرامیک به خاطر رنگ‌های زیبای ترکیبات مختلف آن اشاره نمود.

همزمان با کشف اورانیوم، پی‌یر و ماری کوری^۵ در سال ۱۸۹۸ دو عنصر رادیواکتیو دیگر موسوم به پلانیوم و رادیوم را کشف کردند. هان^۶ و استراسمن^۷ در سال ۱۹۳۸ موفق به شکافت هسته‌ای ایزوتوپ ^{235}U شدند. این کشف با فعالیت‌های تحقیقاتی متعددی همراه بود که به اولین واکنش زنجیره‌ای هسته‌ای ساخته شده به دست انسان منجر شد.

۱- Martin Heinrich Klaproth

۲ - Herschel

۳ - Eugne Melchior Peligot

۴ - H. Moissan

۵ - P. & M. Curie

۶ - O. Hahn

۷ - F. Strassmann