



## ارایه‌ی یک روش برای اندازه‌گیری HF خروجی از تله‌های شیمیایی تحت شرایط خلأ در تأسیسات غنی‌سازی اورانیم

کیانوش کریم‌پور\*<sup>۱</sup>، سیدجابر صفدری<sup>۲</sup>، سیدمحمدعلی موسویان<sup>۱</sup>

۱- گروه مهندسی شیمی، دانشکده فنی، دانشگاه تهران، صندوق پستی: ۴۵۶۳-۱۱۳۶۵، تهران - ایران

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

**چکیده:** جریان عبوری از تله‌های شیمیایی در فرایند غنی‌سازی اورانیم هگزافلورید، شامل مخلوطی از گازهای سبک، هیدروژن فلورید و اورانیم هگزافلورید است. برای اطمینان از عملکرد درست تله‌های شیمیایی، عدم اشباع جاذب، میزان جذب مناسب و در حد مجاز بودن غلظت اورانیم هگزافلورید و هیدروژن فلورید خروجی از سیستم لازم است از این جریان در فواصل زمانی معین نمونه‌گیری شود. ولی با توجه به پیوستگی فرایند جذب و تحت خلأ بودن سیستم، امکان انجام نمونه‌گیری‌های عادی میسر نمی‌باشد. در این مقاله با فرض عدم وجود اورانیم هگزافلورید در خروجی تله‌های شیمیایی یک سیستم نمونه‌گیری برای نمونه‌برداری از خروجی تله‌های شیمیایی پیشنهاد شده و پارامترهای مؤثر بر افزایش دقت نمونه‌گیری بهینه شده‌اند. براین اساس زمان و فشار مورد نیاز برای نمونه‌گیری (به عنوان مهم‌ترین پارامترهای نمونه‌گیری) تخمین زده شده و سپس مقادیر بهینه‌ی آن‌ها مشخص شده است.

**واژه‌های کلیدی:** تله‌ی شیمیایی، نمونه‌گیری، خلأ، هیدروژن فلورید

## Study on a HF Measurement Procedure at Chemical Traps Output of Uranium Enrichment Facilities, under Medium Vacuum

K. Karimpour\*<sup>1</sup>, J. Safdari<sup>2</sup>, M.A. Mousavian<sup>1</sup>

1- Department of Chemical Engineering, Faculty of Engineering, University of Tehran, P.O.Box: 11365-4563, Tehran – Iran

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

**Abstract:** The flow passed chemical traps is a mixture of light gas, hydrogen fluoride and uranium hexafluoride. It is necessary to take samples from the chemical traps output flow, to assure the accurate operation, non-saturation of adsorbent, proper loading and to control the output concentration of hydrogen fluoride and uranium hexafluoride. The routine approach for sampling is impossible because of the process of continuity and vacuum conditions. A procedure for the chemical traps output sampling is introduced in this paper under the assumption of the lack of uranium hexafluoride at the output of the chemical trap, and its effective parameter was optimized. As a result, the sampling time and pressure which are considered as the most important parameter were evaluated and their optimized values were estimated.

**Keywords:** Chemical Trap, Sampling, Vacuum, Hydrogen Fluoride

\*email: Kian\_karimpour@ut.ac.ir

**۱- مقدمه**

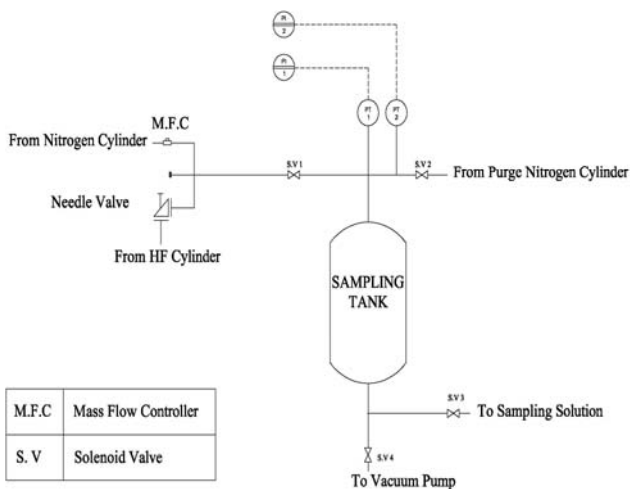
(محدوده‌ی فشارهای  $10^{-3}$  تا  $1\text{mbar}$ )، خلاء بالا (محدوده‌ی فشارهای  $10^{-7}$  تا  $10^{-3}\text{mbar}$ ) و خلاء خیلی بالا (محدوده‌ی فشارهای پایین‌تر از  $10^{-7}\text{mbar}$ ). فشار عملیاتی تله‌های شیمیایی در محدوده‌ی خلاء متوسط و گاهی خلاء بالا قرار دارد. در این شرایط هر گونه افت فشار و یا وقوع نشت منجر به افزایش شدید فشار و آسیب به سیستم فرایندی می‌شود [۸ و ۹]. بنابراین لازم است فرایند نمونه‌گیری از خروجی تله‌های شیمیایی، فرایندی دقیق و قابل اطمینان باشد.

در این مقاله با فرض نبود اورانیم هگزافلورید در جریان خروجی تله‌های شیمیایی با ارایه‌ی یک فرایند نمونه‌گیری در محدوده‌ی غلظت  $1$  تا  $5000\text{mg/m}^3$  برای هیدروژن فلورید، پارامترهای مهم برای تجزیه‌ی نمونه بررسی شده و مناسب‌ترین شرایط فرایندی و عملیاتی بیان گردیده است. محاسبات مورد نیاز برای این امر با استفاده از رابطه‌ی زیر انجام شده است.

$$F \text{ Concentration} = [(mg \text{ Fluoride/L}) \times \text{liquid flow (l/min)}] \times 1.05 \text{ (convert F to HF)} \times 1000 \text{ (l/m}^3\text{)} / [\text{flow rate (l/min)}]$$

**۲- شرح دستگاه**

در این کار تحقیقاتی برای نمونه‌گیری از جریان خروجی تله‌های شیمیایی، تحت شرایط خلاء متوسط یک واحد نیمه‌صنعتی نمونه‌گیری طراحی و ساخته شد که به صورت طرح وار در شکل ۱ نشان داده شده است.



شکل ۱- طرح واره‌ی فرایند نمونه‌گیری از خروجی تله‌ی شیمیایی.

جریان گاز خروجی از فرایندهای غنی‌سازی اورانیم، شامل مخلوطی از گازهای سبک (از قبیل  $N_2$ ،  $O_2$ ،  $HF$  و ...) و اورانیم هگزافلورید است. جداسازی اورانیم هگزافلورید از جریان موجود و خالص‌سازی آن بسیار حایز اهمیت است. در اولین گام برای جداسازی مقادیر زیاد اورانیم هگزافلورید از تله‌های سرد استفاده می‌شود. در این تجهیزات با استفاده از فرایند انجماد و تصعید، اورانیم هگزافلورید از مخلوط گازی جدا شده و از طریق یک سیلندر جمع‌آوری می‌شود. بخش عمده‌ی اورانیم هگزافلورید موجود در مخلوط گاز خروجی به این ترتیب جداسازی می‌شود. با این وجود، مقدار اندکی از این گاز در جریان خروجی تله‌های سرد هم‌چنان وجود دارد که با توجه به ارزش بالای اقتصادی، تمهیدات زیست‌محیطی و مسایل حساسیتی و پادمانی و جلوگیری از تخریب پمپ‌های خلاء لازم است این مقدار هر چند اندک نیز از جریان خروجی تله‌های سرد جدا شود. غلظت پایین اورانیم هگزافلورید در جریان گاز خروجی تله‌های سرد (حدود  $1\text{ppm}$ ) سبب شده است فرایند جداسازی و خالص‌سازی آن با مشکلات فراوانی مواجه شود [۱، ۲ و ۳]. مناسب‌ترین روش برای این منظور استفاده از فرایند جذب سطحی است [۴]. در این فرایند با استفاده از جاذب‌های سدیم فلورید، زغال و آلومینای فعال در تله‌های شیمیایی<sup>(۱)</sup> گازهای اورانیم هگزافلورید و هیدروژن فلورید از جریان گازهای سبک جدا شده و جریان گاز خروجی تا حد امکان آمایش می‌گردد [۱، ۲ و ۳]. برای اطمینان از نبود گازهای سمی (اورانیم هگزافلورید و هیدروژن فلورید) در جریان گاز خروجی لازم است از این جریان نمونه‌گیری شده و تجزیه‌ی دوره‌ای انجام شود [۵، ۶ و ۷]. اما تحت خلاء بودن سیستم عملیاتی، نمونه‌گیری از خروجی تله‌های شیمیایی را با مشکل مواجه ساخته است. در صورت شکست خلاء، احتمال آسیب به تجهیزات و ایجاد برخی مشکلات فرایندی از جمله جامد شدن  $UF_6$  و غیره وجود خواهد داشت.

تله‌های شیمیایی در صنایع غنی‌سازی تحت شرایط خلاء فعالیت می‌کنند. محدوده‌ی فشار عملیاتی در شرایط خلاء به چهار دسته تقسیم می‌شود که عبارت‌اند از: خلاء پایین یا ابتدایی (محدوده‌ی فشارهای  $1$  تا  $1000\text{mbar}$ )، خلاء متوسط



اجزای اصلی این سیستم عبارت‌اند از:

موردنظر، مخلوط HF و نیتروژن از طریق مسیر شیر SV1 به مخزن تزریق و سپس شیر SV1 بسته می‌شود. زمان مشخصی (در حدود ۲ تا ۳ دقیقه) به عنوان زمان ماند و برای پایداری جریان داخل مخزن در نظر گرفته شد. در این حالت فشار مخزن توسط فشارسنج، ۱۰ mbar اندازه‌گیری شد. پس از پایدار شدن جریان داخل مخزن و کاهش نوسانات فشاری، از طریق مسیر شیر SV2 نیتروژن به مخزن وارد و مقدار آن به کمک شیر میکروسکوپی قرار گرفته در مسیر تنظیم گردید. پس از رسیدن فشار سیستم نمونه‌گیری به یک مقدار معین، شیر SV3 باز شده و محتویات مخزن به داخل محلول نمونه‌گیری تخلیه شد. زمان و فشار تخلیه به عنوان مهم‌ترین پارامترهای عملیاتی فرایند نمونه‌گیری محسوب می‌شوند. پس از طی زمان مشخصی از آغاز تخلیه‌ی مخلوط، شیرهای SV2 و SV3 بسته شده و شیر SV4 باز شد تا سیستم مجدداً تخلیه شده و برای نمونه‌گیری بعدی آماده شود. یون  $F^-$  محلول نمونه با استفاده از دستگاه Ion Meter اندازه‌گیری شد.

### ۳-۲ روش محاسباتی

در این روش با استفاده از معادله‌ی گازهای کامل ( $PV=nRT$ )، تعداد مول‌های HF و غلظت آن در مخزن نمونه‌گیری و در مخلوط محاسبه شد. با توجه به این که مخلوط استاندارد HF و  $N_2$  در فشارهای پایین تهیه می‌گردید، استفاده از این رابطه کاملاً توجه‌پذیر بوده و از دقت مناسبی برخوردار است [۱۰].

### ۴- نتایج تجربی

همان‌طور که اشاره شد زمان و فشار تخلیه به عنوان مهم‌ترین پارامترهای عملیاتی مؤثر بر نمونه‌گیری محسوب می‌شوند. بر همین اساس لازم است این پارامترها بهینه شده و بهترین شرایط عملیاتی تعیین گردد. فشار محیط در آزمایشگاه ۸۶۴ mbar بوده و برای آن که امکان تخلیه‌ی مخلوط نیتروژن و HF به داخل محلول نمونه‌گیری وجود داشته باشد باید فشار مخلوط نیتروژن و HF بالاتر از فشار جو باشد. به همین منظور فشارهای ۸۷۰ و ۹۰۰ میلی‌بار مورد توجه قرار گرفته‌اند. زمان تخلیه نیز با توجه به فشار تخلیه متغیر بوده است. زمان‌های ۵، ۱۰، ۱۵ و ۲۰ دقیقه به عنوان زمان تخلیه لحاظ شده و نمونه‌گیری تحت شرایط مذکور انجام

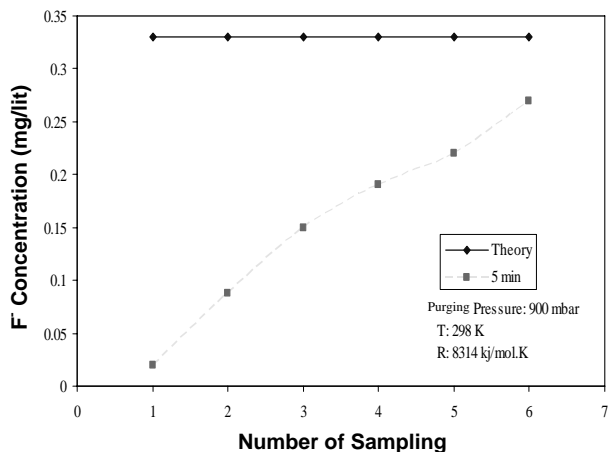
- پمپ خلاء: پمپ استفاده شده در این واحد از نوع روتاری و روتس می‌باشد که ظرفیت مکش آن  $21 m^3/hr$  است. با استفاده از این پمپ می‌توان به فشاری در حد  $10^{-2} mbar$  رسید.
- مخزن نمونه‌گیری: در این سیستم از یک مخزن نمونه‌گیری از جنس فولاد زنگ‌نزن با حجم تقریبی ۴/۵ لیتر استفاده شده است.
- فشارسنج‌های خلاء: محدوده‌ی اندازه‌گیری فشار، توسط فشارسنج‌های نصب شده بر روی مخزن نمونه‌گیری  $10^{-3}$  تا  $10 mbar$  و  $10^{-1}$  تا  $1000 mbar$  می‌باشد.
- شیرهای سلونویدی: در این واحد از چهار شیر سلونویدی با قابلیت کنترل اتوماتیک استفاده شده است.
- شیر میکروسکوپی: شیر میکروسکوپی استفاده شده در این واحد از نوع دو طرفه بوده و برای تنظیم دبی عبوری نیتروژن در نظر گرفته شده است.
- محلول نمونه‌گیری: این محلول یک بافر است که برای به دام انداختن HF از آن استفاده می‌شود. برای این منظور ۱۳ گرم سدیم دی‌هیدروژن فسفات و ۱۲ گرم سدیم کلرید در ۵۰۰ میلی‌لیتر آب مقطر حل و با استفاده از سود ۵ نرمال pH آن در ۶/۵ تنظیم شده و سپس تا حجم یک لیتر رقیق می‌شود.
- دستگاه pH/Ion Meter: این دستگاه با استفاده از مخلوط‌های استاندارد، درجه‌بندی شده و برای اندازه‌گیری غلظت  $F^-$  در محلول نمونه‌گیری مورد استفاده قرار می‌گیرد.

### ۳- روش کار

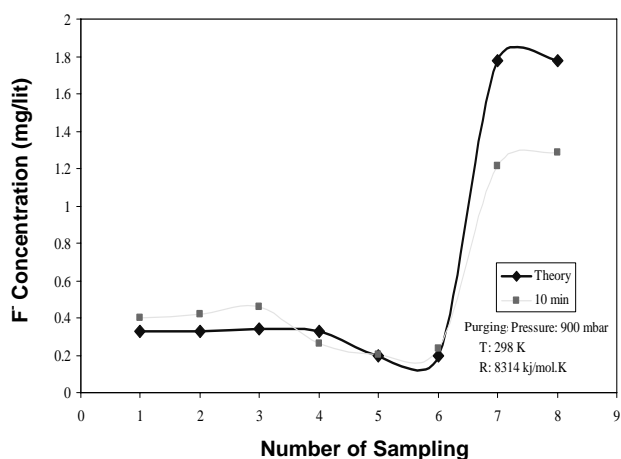
با توجه به عدم استفاده‌ی قبلی از این سیستم و برای اطمینان از اطلاعات به دست آمده از آن، ابتدا یک مخلوط استاندارد تهیه و غلظت  $F^-$  در آن به دو روش محاسباتی و تجربی تعیین گردیده است.

### ۳-۱ روش تجربی

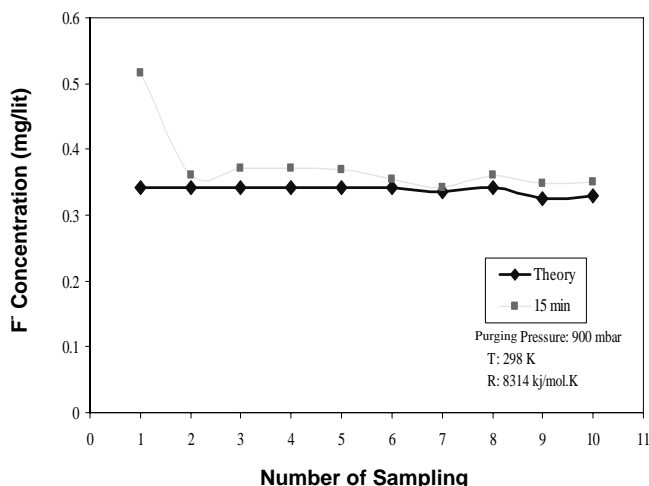
در این روش کلیه‌ی آزمایش‌ها در دمای محیط انجام گرفت. ابتدا در سیستم نمونه‌گیری خلاء ایجاد شد. میزان خلاء مورد نیاز این سیستم  $10^{-2} mbar$  است. پس از رسیدن فشار سیستم به مقدار



شکل ۳- مقایسه‌ی مقادیر به دست آمده از محاسبه و داده‌های تجربی در فشار ۹۰۰ mbar و برای زمان تخلیه ۵ دقیقه.



شکل ۴- مقایسه‌ی مقادیر به دست آمده از محاسبه و داده‌های تجربی در فشار ۹۰۰ mbar و برای زمان تخلیه ۱۰ دقیقه.



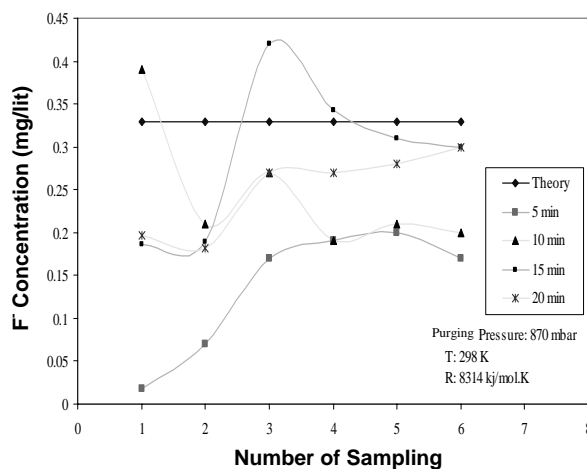
شکل ۵- مقایسه‌ی مقادیر حاصل از محاسبه و داده‌های تجربی در فشار ۹۰۰ mbar و برای زمان تخلیه ۱۵ دقیقه.

گرفته است. نتایج به دست آمده از این آزمایش‌ها با مقادیر پیش‌بینی شده توسط معادله‌ی گازهای کامل مقایسه شده است. در تعیین فشار و زمان تخلیه توجه به این نکته ضروری است که امکان افزایش فشار به بیش از ۹۵۰ میلی‌بار برای مدت طولانی وجود ندارد زیرا این مسئله منجر به آسیب دیدن فشارسنج‌ها می‌گردد؛ از طرف دیگر زمان تخلیه‌ی بیش‌تر از ۲۰ دقیقه نیز منجر به افزایش زمان کل نمونه‌گیری و در نتیجه کاهش امکان تعداد نمونه‌گیری در یک بازه‌ی زمانی می‌گردد.

در شکل ۲ نتایج حاصل از نمونه‌گیری با فشار تخلیه‌ی ۸۷۰ mbar و در دوره‌های زمانی ۵، ۱۰، ۱۵ و ۲۰ دقیقه با مقادیر محاسباتی مقایسه شده‌اند.

در شکل‌های ۳ تا ۶ نتایج حاصل از نمونه‌گیری با فشار ۹۰۰ mbar و در دوره‌ی زمانی ۵، ۱۰، ۱۵ و ۲۰ دقیقه نشان داده شده است.

به سبب آن که در فشار تخلیه‌ی ۸۷۰ mbar اختلاف داده‌های تجربی با مقادیر پیش‌بینی شده بسیار زیاد بود کلیه‌ی تست‌ها در یک مقدار ثابت انجام گرفت تا تکرارپذیری تجزیه‌ها نیز بررسی شود. ولی در فشار تخلیه‌ی ۹۰۰ mbar به جز در دوره‌ی زمانی ۵ دقیقه که مقادیر پیش‌بینی شده توسط معادله‌ی گازهای کامل از داده‌های تجربی انحراف زیادی دارند، در سایر دوره‌های زمانی شرایط مناسب‌تری وجود دارد. به همین علت غلظت‌های مختلف  $F$  مورد بررسی و تجزیه قرار گرفته است.



شکل ۲- مقایسه‌ی مقادیر محاسباتی و داده‌های تجربی در فشار تخلیه‌ی ۸۷۰ mbar و در زمان‌های مختلف تخلیه.



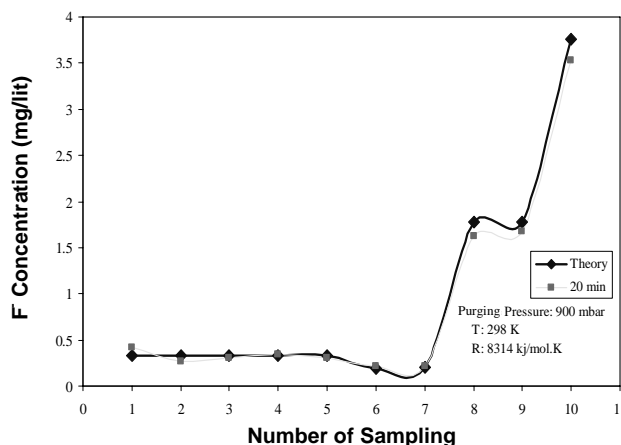
بوده است. با توجه به این که این میزان خطا از مقبولیت نسبی برخوردار است لذا در دوره‌ی زمانی ۱۰ دقیقه مقایسه بین غلظت‌های مختلف  $F^-$  انجام گرفته است. در دوره‌های زمانی ۱۵ و ۲۰ دقیقه نیز میزان خطا به ترتیب ۱۰٪ و ۱۰٪ بوده است. بنابراین با توجه به این مسئله که افزایش زمان تخلیه در ورای ۱۵ دقیقه تأثیر بسیار محدودی بر میزان خطا داشته است زمان تخلیه‌ی ۱۵ دقیقه به عنوان زمان تخلیه‌ی مبنا تعیین گردید. نکته‌ای که باید به آن توجه داشت این است که در کلیه‌ی زمان‌های لحاظ شده به عنوان زمان تخلیه، در آزمایش‌های ابتدایی تفاوت بین مقادیر تجربی و نظری زیاد بوده ولی با ادامه‌ی روند آزمایش و پایدار شدن شرایط سیستم از میزان خطا کاسته می‌شود. این امر در رابطه با زمان تخلیه‌ی ۱۵ دقیقه نیز وجود دارد. در این زمان هم با افزایش تعداد نمونه‌گیری‌ها از مقدار خطا کاسته می‌شود. نکته‌ی حایز اهمیت دیگر این است که اگرچه افزایش فشار در این حالت منجر به کاهش دوره‌ی زمانی تخلیه و افزایش دقت نمونه‌گیری می‌شود ولی وجود فشارسنج‌های خلاء و عدم امکان استفاده‌ی مستمر از این تجهیزات در فشارهای بالا و هم‌چنین محدودیت‌هایی که برای تنظیم جریان خروجی و ورودی به محلول شیمیایی در فشارهای بالا وجود دارد سبب می‌شود افزایش فشار نیز به عنوان یک عامل نامطلوب لحاظ گردد.

### تشکر و قدردانی

بدین وسیله نویسندگان از زحمات آقایان مهندسین جلال جان‌نشاری، فردین احمدی و دکتر محمدحسن ملاح از کارشناسان شرکت کالاکتریک و پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای به خاطر همکاری و ارایه‌ی نظرات، سپاسگزاری و قدردانی می‌نمایند.

### پی‌نوشت:

#### ۱- Chemical Traps



شکل ۶- مقایسه‌ی مقادیر به دست آمده از محاسبه و داده‌های تجربی در فشار ۹۰۰ mbar و برای زمان تخلیه‌ی ۲۰ دقیقه.

### ۵- بحث و نتیجه‌گیری

دقت نمونه‌گیری از خروجی تله‌های شیمیایی در شرایط خلاء متوسط با فشار و دوره‌ی زمانی تخلیه‌ی مخلوط نمونه به داخل محلول نمونه‌گیری رابطه‌ی مستقیم دارد. در این میان بهینه‌سازی مقادیر فشار و زمان به منظور کاهش دوره‌ی زمانی نمونه‌گیری و افزایش دقت نمونه‌گیری از اهمیت بسیاری برخوردار بوده است. میزان خطای سیستم نمونه‌گیری ارایه شده در شرایطی که فشار تخلیه‌ی مخلوط نمونه ۸۷۰ mbar می‌باشد بیش‌تر از ۵۰٪ بوده است که این میزان خطا مبین عدم کارآیی مناسب سیستم در فشار تخلیه‌ی مذکور می‌باشد. اگرچه در این حالت میزان خطا با افزایش زمان تخلیه کاهش می‌یابد ولی افزایش زمان تخلیه یک عامل نامطلوب است که سعی می‌شود تا حد امکان کم‌تر مورد توجه قرار گیرد چرا که این امر منجر به افزایش کل دوره‌ی نمونه‌گیری می‌شود. در فشار ۹۰۰ mbar و در دوره‌ی زمانی ۵ دقیقه متوسط خطای سیستم نمونه‌گیری در حدود ۵۵٪ بوده است. در این حالت با افزایش تعداد نمونه‌گیری بر غلظت سیستم نمونه‌گیری افزوده می‌شود که این امر به علت کاهش دوره‌ی زمانی تخلیه و در نتیجه باقی ماندن مقداری  $F^-$  از نمونه‌گیری‌های قبلی در سیستم است که منجر به افزایش غلظت  $F^-$  در نمونه‌ی بعدی می‌گردد. البته این امر پس از طی یک روند صعودی در چند نمونه‌ی اول در نمونه‌های بعدی روندی ثابت را طی می‌کند. میزان اختلاف بین مقادیر تجربی و مقادیر پیش‌بینی شده توسط معادله‌ی گازهای کامل در دوره‌ی زمانی ۱۰ دقیقه حدود ۲۳٪



## References:

1. K. Karimpour, M.A. Mousavian, S.J. Safdari, O. Zadakbar, "Study on sodium fluoride dimensions in  $UF_6$  & HF chemical traps," The 5<sup>th</sup> International Chemical Engineering Congress, Kish, I.R. Iran (ICHEC 2008).
2. R.M. Schultz, W.E. Hobbs, J.L. Norton, M.J. Stephenson, "Sorbent selection and design consideration for uranium trapping," K/ET-5025 (1981).
3. M.J. Stephenson, "A design model for dynamic adsorption of uranium hexafluoride on fixed beds of sodium fluoride," K-L-6195 (1968).
4. L.E. McNeese, "An experimental study of sorption of uranium hexafluoride by sodium fluoride pellets and mathematical analysis of diffusion with simultaneous reaction," ORNL-3494 (1983).
5. L.E. Mc Neese and S.H. Jury, "Removal of uranium hexafluoride from gas streams by sodium fluoride pellets," ORNL-1-281 (1964).
6. W.A. Johnston, "Designing fixed-bed adsorption columns," Chemical Eng. Nov. 27 (1972).
7. E.B. Munday, "Preconceptual design of the gas-phase decontamination demonstration cart," K/TCD-1076 (1993).
8. W. Umrath, "Fundamental of vacuum technology," Leybold Vacuum Ind, Cologne, (1998).
9. L.N. Rozanov, "Vacuum technique," 1st ed, Taylor & Francis, London (2002).
10. Perry's Chemical Engineers Handbook, 7<sup>th</sup> ed. McGraw Hill Co, New york (1999).