

## بررسی ضریب انتقال جرم در یک سلول الکترووینینگ صنعتی در شرایط کاری متفاوت

سید علی اکبر پوراحمدی <sup>\*</sup> دانشجوی دکترا، گروه مهندسی مکانیک، دانشگاه یزد، یزد، ایران، aliakbar211@gmail.com  
 شهرام طالبی <sup>\*</sup> دانشیار، گروه مهندسی مکانیک، دانشگاه یزد، یزد، ایران، talebi\_s@yazd.ac.ir

### چکیده

الکترووینینگ، فرآیند نشانیدن یون‌های مس محلول از الکترولیت داخل سلول به روی کاتد توسط ایجاد جریان الکتریکی است. در پژوهش حاضر، با استفاده از شبیه‌سازی سلول الکترووینینگ مجتمع مس میدوک به بررسی ضریب انتقال جرم روی تمام سطح کاتد پرداخته شده است. شبیه‌سازی این سلول‌ها با استفاده از دینامیک سیالات و نرم‌افزار Ansys-cfx انجام شده است. تعداد ۱۱ معادله دیفرانسیل جزئی سیالاتی با شرایط مرزی خاص توسط این نرم‌افزار حل شده است. مقدار ضریب انتقال جرم کاتد در سلول واقعی مس با استفاده از اندازه‌گیری جرم مس ورق‌های کاتد تولیدی هر سلول و شرایط کاری سلول در شرایط واقعی به دست آمد. نتایج، اختلاف ۱/۹٪ مقدار واقعی در مس میدوک و مقدار مدل‌سازی را نشان می‌دهد. با این مدل‌سازی مقادیر ضریب انتقال جرم برای فواصل بین الکترودی مختلف به دست آمد، که در مقایسه با روابط آزمایشگاهی مربوط به جریان سیال آشفته غیرتوسعه‌یافته در سلول، با مقدار انحراف ۰/۵٪ اعتبارسنجی شد. با استفاده از این مدل‌سازی برای حالات کاربردی تزریق حباب اکسیژن از ورودی الکترولیت با کسر جرمی‌های مختلف، تغییر دما و تغییر دبی الکترولیت ورودی، ضریب انتقال جرم تعیین شده است.

**واژه‌های کلیدی:** شبیه‌سازی هیدرووینامیکی، دینامیک سیالات محاسباتی، سلول الکترووینینگ، ضریب انتقال جرم، اعتبارسنجی صنعتی و روابط آزمایشگاهی، تغییر هندسه و مشخصات کارکرد سلول.

## Investigation of the mass transfer coefficient in an industrial electrowinning cell under different operating conditions

S. A. Akbar Pourahmadi  
 Sh. Talebi

Department of Mechanical Engineering, Yazd University, Yazd, Iran.  
 Department of Mechanical Engineering, University of Yazd, Yazd, Iran

### Abstract

Electrowinning is the process of copper depositing from the intracellular electrolyte solution to the cathode. In the present study, using hydrodynamic cell simulation of the Miduk Copper Complex, mass transfer coefficient on the entire cathode surface are investigated. The hydrodynamic simulation of these cells in the Miduk Copper Complex is studied using computational fluid dynamics. Ansys-CFX is used for this modeling. The Navier-Stokes equations and the continuum are considered as two-phase liquid and gas, turbulent, incompressible, and steady state, and the equation for the concentration of copper in the electrolyte will be solved by considering its specific boundary condition. The perturbation of the flow will be modeled using  $k-\omega$  relations. The cathode mass transfer coefficient of the industrial copper cell was evaluated by measuring the copper mass of the cathode sheets produced in each cell and the operating conditions of the cell under real conditions. The results show 1.9% difference between the actual amount in copper and the modeling value. With this modeling, the mass transfer coefficient were obtained for different electrode intervals. Comparing the modeling results with the laboratory results for turbulent and undeveloped fluid flow in the cell with a deviation of only 0.5% has also been validated for this case. After validation on the model, this model has been used to determine the mass transfer coefficient for different applications such as electrolyte mixing mode with different oxygen mass fraction at the inlet, effect of inlet electrolyte temperature change, effect of different inlet flowrate.

**Keywords:** Hydrodynamic simulation, computational fluid dynamics, electrowinning cell, mass transfer coefficient, experimental validation, Change the geometry and cell characteristics.

### ۱- مقدمه

عبور جریان الکتریکی از میان الکترولیت به‌منظور جذب یون‌های مس روی کاتد صورت می‌گیرد. الکترووینینگ مس در سلول الکترووینینگ شامل صفحات الکترودی که روبه‌روی هم قرار دارند، اتفاق می‌افتد (شکل ۱). در شکل ۱-الف، شکل ۱-ب و شکل ۱-پ جزئیات سلول الکترووینینگ، مانند ورودی و خروجی، آندها و کاتدها نشان داده شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود جریان الکترولیت از لوله‌ای با سوراخ‌های تحت زاویه ۴۵ درجه نسبت به افق در کف سلول وارد سلول شده و بعد از جریان یافتن داخل سلول، مس خود را تخلیه کرده و سپس به‌صورت کم غلظت از مس از کانال محفظه خروجی بالای سلول خارج می‌شود. ابعاد به‌شکل  $x \times y \times z$  نشان داده شده است که به ترتیب طول، عرض و ارتفاع می‌باشد. ابعاد داخل سلول الکترووینینگ  $1335 \text{ mm} \times 1200 \text{ mm} \times 408 \text{ mm}$ ، ابعاد الکترود  $105 \text{ mm}$

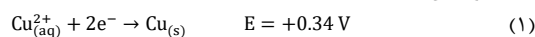
مس میدوک یکی از مجتمع‌های مس کشور در استان کرمان در نزدیکی مجتمع مس سرچشمه می‌باشد. فرآیند تولید مس عموماً به دو روش پیرومتالورژی برای کانی سولفیدی مس و هیدرومتالورژی<sup>۱</sup> برای کانی اکسیدی مس است. در فرآیند هیدرومتالورژی، مس با حل شدن در محلول رقیق الکترولیت اسیدی، از کانی استخراج می‌شود. مزایای این روش مانند آلودگی کم و مصرف انرژی پایین، باعث شده استفاده از این روش به‌شدت در صنعت گسترش یابد. الکترووینینگ<sup>۲</sup> مس فرآیند بازیابی مس از الکترولیت به‌صورت جامد روی صفحه کاتد است که با

<sup>1</sup> Hydrometallurgy

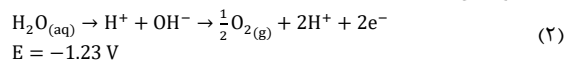
<sup>2</sup> Electrowinning

۹۴۰ mm × ۶ mm ابعاد الکتروود کاتد در معرض الکتروولت ۱۰۹۰ mm × ۱۰۱۸ mm × ۳ mm است. فواصل بین الکتروودی ۴۷/۵ mm و تعداد الکتروود آند و کاتد به ترتیب ۴۰ و ۳۹ عدد می‌باشد. همان‌طور که در شکل ۱-ت مشخص است، جریان سیال هنگام عبور از بین دو الکتروود، یون‌های مس را روی کاتد تخلیه می‌کند. حباب‌های اکسیژن تولید شده روی آند از محلول الکتروولت عبور نموده و در سطح آزاد الکتروولت می‌ترکند. مشخص است که حباب‌های اکسیژن باعث ایجاد یک ناحیه چرخشی بزرگ می‌شوند و این چرخش به دلیل داشتن طبیعت اختلاط، اثر زیادی در انتقال جرم مس روی کاتد دارد [۱].

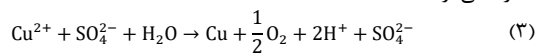
در فرآیند الکتروولتینگ واکنش‌های (۱) و (۲) انجام می‌شود [۱]:



واکنش کاتدی:



واکنش (۳)، واکنش کلی الکتروولتینگ مجموع واکنش‌های آندی و کاتدی به اضافه یون سولفات است. با تولید هر مول مس، یک مول اسید سولفوریک به الکتروولت اضافه می‌شود و ۰/۵ مول اکسیژن نیز آزاد می‌گردد [۱].



ضریب انتقال جرم، عاملی است که کمیت و کیفیت مسی را که روی کاتد می‌نشیند به‌طور خلاصه بیان می‌کند. با داشتن ضریب انتقال جرم در یک سلول الکتروولتینگ صنعتی می‌توان مقدار تولید مس را برحسب شرایط کاری به‌دست آورد و همین‌طور اگر این ضریب برای هر نقطه روی سطح کاتد موجود باشد، می‌توان از مشکلات نایک‌خواختی سطح کاتد، ایجاد ندول<sup>۱</sup> و مشکلات کیفی کاتد جلوگیری کرد. برای داشتن ضریب انتقال جرم در الکتروولتینگ، به میدان سرعتی و غلظتی در داخل سلول‌های الکتروولتینگ نیاز است. در ارتباط با انتقال جرم در سلول الکتروولتینگ آزمایش‌های زیادی انجام شده است در ادامه به برخی از آن‌ها پرداخته می‌شود.

سیگریت و دوسنباخ [۲] انتقال جرم در یک سلول خاص عمودی الکتروولتینگ که تزریق هوا در درون آن صورت می‌گرفت را بررسی کرده و نشان دادند که ضریب انتقال جرم به مقدار کسر حجمی هوا به الکتروولت ارتباط دارد. در این مقاله، عدد انتقال جرم شروود<sup>۲</sup> توسط آزمایش به عدد ارشمیدسی تصحیح شده<sup>۳</sup> ارتباط داده شده است. در مطالعات انجام شده توسط تعدادی از پژوهش‌گران [۳-۶] به ترتیب استفاده از مخلوط‌کننده جریان سیالاتی، پالس‌کننده جریان سیالاتی، برگشت‌دادن جریان الکتریکی، و فلوتاسیون به‌عنوان برخی از راهکارها جهت افزایش انتقال جرم بررسی شده است. گریدون و کیرک [۸] نشان دادند که صعود اکسیژن در فضای بین الکتروودی باعث ایجاد چرخش در این ناحیه می‌شود که تأثیر بزرگی در انتقال جرم دارد.

<sup>۱</sup> ندول یا گره، دانه‌های بزرگ ایجاد شده روی سطح کاتد در نشست مس روی آن است که یکی از علل محدودیت شدت انتقال جرم مس در نزدیکی کاتد هستند [۱۳]. ندول‌ها اثر کیفی مخربی روی سطح کاتد دارند و راندمان تولید را به‌علت اتصال کوتاه کاهش می‌دهند.

<sup>۲</sup> Sherwood Number

<sup>۳</sup> Corrected Archimedes Number

نجیم و همکاران [۹]. با استفاده از تکنیک آزمایشگاهی جریان الکتریکی محدود، ضریب انتقال جرم سلول الکتروولتینگ مورد آزمایش خود را در دماها و غلظت‌های مختلف در بازه آزمایشگاهی خاصی به‌دست آوردند. در این مقاله، رابطه‌ای برای عدد شروود ارائه شده است که به جذر حاصل‌ضرب عدد گراشف در عدد اشویت ارتباط پیدا می‌کند.

بوکس و بدنورتس [۱۰] در مقاله‌ای به بررسی روابط، معادلات و ضرایب انتقال جرم در سلول‌های مختلف صنعتی پرداخته‌اند. سیفوننتس و آریاگادا [۱۱] به بررسی عواملی چون دما، جریان الکتریکی، غلظت و سرعت چرخش بستر بر روی انتقال جرم نوعی الکتروولتینگ با بستر متحرک پرداختند و نیز نشان دادند که افزایش دما و غلظت مس باعث افزایش انتقال جرم می‌شود.

با توجه به مطالعات انجام شده در زمینه بررسی ضریب انتقال جرم در سلول الکتروولتینگ، بیش‌تر مطالعات به‌صورت آزمایشگاهی به موضوع ضریب انتقال جرم پرداخته‌اند در صورتی که با انجام مدل‌سازی روی سلول می‌توان ضریب انتقال جرم را هم به‌صورت متوسط کل سلول و هم به‌صورت محلی روی هر نقطه از آن به‌دست آورد. در زمینه مدل‌سازی الکتروولتینگ، کارهای انگشت‌شماری انجام شده است که در ادامه به‌صورت مختصر توضیح داده خواهند شد. در مطالعه فیلیزویسر [۱۳ و ۱۴]، سلول الکتروولتینگ آزمایشگاهی خاصی شامل یک آند و کاتد برای بررسی سرعت و لایه مرزی بین دو الکتروود برقرار شده است و توسط روش بادسنج لیزری دوپلری<sup>۴</sup> داده‌های آزمایشگاهی دقیقی برای میدان سرعتی بین الکتروودها به‌دست آورده شده است که از این میدان سرعتی جهت محاسبات مربوط به لایه مرزی غلظتی و چگالی جریان الکتریکی حدی استفاده شده است. این سلول شامل یک آند و کاتد با ورودی و خروجی بوده است. لیهی و شوارتز [۱۵] با شبیه‌سازی سیالاتی دوبعدی میدان سرعتی را برای سلول آزمایشی فیلیزویسر با خطای ۲۰٪ به‌دست آورده‌اند. مقاله آن‌ها جزء اولین مقالات شبیه‌سازی سلول الکتروولتینگ بوده است.

لیهی و شوارتز [۱۷] با جزئیات بیش‌تری به شبیه‌سازی سلول الکتروولتینگ پرداخته‌اند. در مقاله آن‌ها برای مدل‌کردن جریان سیال و انتقال جرم در فضای بین الکتروودی یک جفت صفحه تکی (یک آند و کاتد) با هندسه و پارامترهای عملیاتی فرآیند الکتروولتینگ مس، مدل دوبعدی، دوفازی گاز-مایع، اوپلری-اوپلری و آشفته به‌کار برده شده است. مدل آن‌ها یک ناحیه چرخشی را پیش‌بینی کرده است. مدل آشفته‌گی که برای حل در مقاله ایشان به‌کار گرفته شده است، مدل  $k-\omega$  می‌باشد. نتایجی مانند محاسبه میدان سرعت، کانتورهای غلظت مس، کانتورهای کسر حجمی اکسیژن، کانتورهای مربوط به لزجت آشفته جریان سیال به‌دست آورده شده است. آن‌ها هم‌چنین ناپایداری جریان سیال را در لایه مرزی الکتروودها مدل‌سازی کرده‌اند. در مطالعه سلول‌های الکتروولتینگ صنعتی به مدل‌سازی سه‌بعدی نیاز می‌باشد،

<sup>۴</sup> Laser Doppler Anemometer (LDA)

روش مدل‌سازی کلی و محلی یک سلول الکتروپینینگ صنعتی به‌صورت کامل و سه‌بعدی مدل‌سازی کرده‌اند. مدل‌سازی محلی، مدل‌سازی بسیار دقیق نواحی بین کاتد و آند با توجه به شبکه محاسباتی ریز در این ناحیه است. مدل‌سازی کلی نیز مدل‌سازی بادقت متوسط در نواحی بین آند و کاتد و دقیق برای بقیه سلول باتوجه به فیزیک مسئله و شبکه محاسباتی متوسط آن برای این نواحی می‌باشد. برای ارزیابی دقت این روش، مدل با مدل‌سازی کلی مقایسه شده و برای اعتبارسنجی، نتایج مدل‌سازی با نتایج آزمایشی سلول واقعی که در واحد الکتروپینینگ مس میدوک انجام شده است، مقایسه و تطابق داده شده است. از آن‌جا که مدل‌سازی به‌صورت کامل و با فرضیات کم‌تر انجام شده مدل‌سازی واقعی‌تر و شرایط مرزی فضاهای موضعی، دقیق‌تر بوده است.

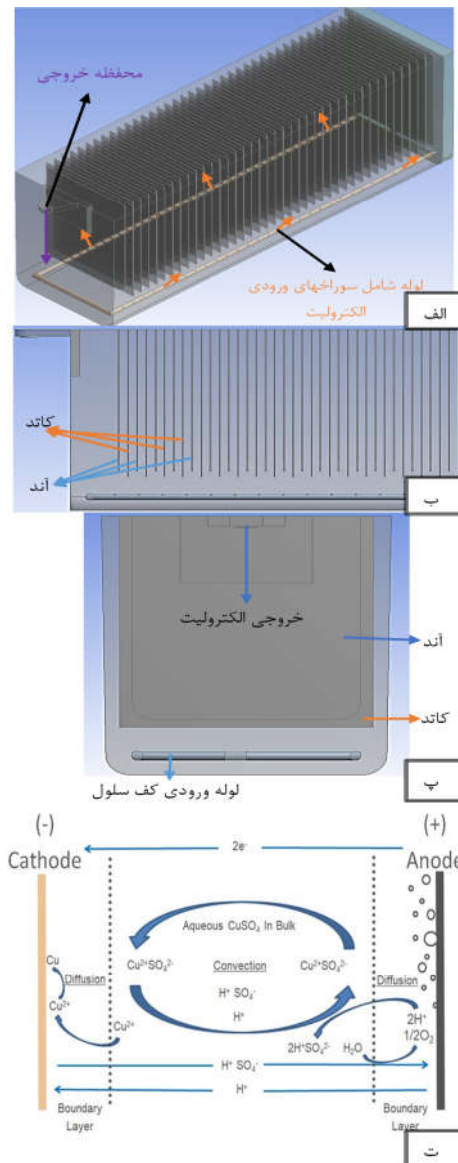
در پژوهش‌هایی که به شبیه‌سازی سلول صنعتی الکتروپینینگ پرداخته‌اند، ضریب انتقال جرم سلول مورد بررسی قرار نگرفته است؛ از این‌رو در پژوهش حاضر سعی شده است تا در سلول الکتروپینینگ صنعتی با توجه به روش مدل‌سازی انجام شده توسط پوراحمدی و طالبی [۱۹]، به بررسی انتقال جرم پرداخته شود. با توجه به اهمیت کاربردی ضریب انتقال جرم سلول برای کمیت و کیفیت تولید مس، این ضریب برای شرایط کاری مختلف به‌دست آمده و با روابط آزمایشی ارائه‌شده در دیگر پژوهش‌ها مقایسه گردیده است. جهت اعتبارسنجی نتایج غیر از مقایسه با روابط آزمایشی، با داده‌های به‌دست آمده از سلول واقعی الکتروپینینگ مس میدوک، نیز مقایسه شده است. در گام آخر نیز ضریب انتقال جرم به صورت موضعی در تمام نقاط روی یک صفحه کاتد مورد بررسی قرار گرفته است.

## ۲- مبانی و روش‌ها

در این بخش به بیان روش مدل‌سازی، معادلات حاکم، پارامترها و شرایط مرزی سلول پرداخته می‌شود.

### ۲-۱- مدل‌سازی

برای شروع شبیه‌سازی ابتدا مراحل قدم به قدم در نرم‌افزار طراحی Ansys-cfx [۲۰] پیاده شده است. در مقاله پوراحمدی و طالبی [۱۹] مراحل اولیه به دقت توضیح داده شده است. شکل ۱ نشان‌دهنده هندسه سلول الکتروپینینگ مدل‌سازی شده است. سلول الکتروپینینگ هم از لحاظ فیزیکی و هم هندسی متقارن می‌باشد. قدم بعد در شبیه‌سازی تولید شبکه محاسباتی روی میدان حل بوده است که با قواعدی که در مقاله پوراحمدی و طالبی [۱۹] بیان شده، انجام گرفته است. مش نزدیک مرز به‌صورت سازمان‌یافته با تراکم زیاد برای دقت بیشتر و در فاصله دورتر به‌صورت غیرسازمان‌یافته و تراکم کم‌تر، جهت سرعت بیشتر می‌باشد. تعداد مش در طول حل برای همگرایی سریع‌تر، متغیر در نظر گرفته شد و در طول حل بر اساس گرادیان غلظت در ۴ مرحله تراکم مش افزایش یافته است. برای استقلال از شبکه محاسباتی تغییرات ریشه میانگین مربعات اختلافات برای میدان سرعت، غلظت و فشار در تغییر اندازه مش‌ها در این ۴ مرحله در نظر گرفته شده است. حل مسئله ابتدا با تعداد مش  $10^6$  شروع و در آخر حل به حداکثر تعداد مش  $10^8 \times 6/3$  با مش‌ریزی دوباره روی مدل رسیده است. مقدار تغییر ریشه متوسط مربعات خطاها

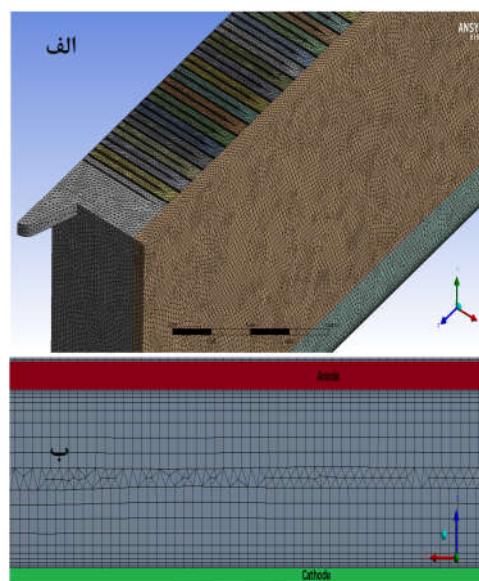


شکل ۱- الف) فضای کلی سلول الکتروپینینگ مس، ب) نما در جهت طولی کف سلول، پ) نمای عرضی سلول، ت) فضای بین دو الکترود

تا بتوان اثرات لبه‌های الکترودها، مکان و هندسه ورودی و خروجی، جریان‌های اجباری ناشی از ورود و خروج سیال از داخل سلول، آشفتگی واقعی که در سه بعد وجود دارد را مدل‌سازی کرد و اثرات پارامترهای مختلف را بر روی هم مانند اثر غلظت و دبی الکترولیت ورودی سلول به مقدار مس تولیدی به‌دست آورد. مدل‌سازی سه‌بعدی سلول الکتروپینینگ صنعتی به‌صورت کامل و با جزئیات دقیق در صنعت بسیار بااهمیت می‌باشد؛ از این‌رو لازم است مورد مطالعه قرار گیرد. نجمی‌نوری [۱۸] به مدل‌سازی فضای سه‌بعدی ناشی از ۹ عدد الکترود از سلول الکتروپینینگ مس سرچشمه پرداخته است. در آن مطالعه قسمتی از سلول مس سرچشمه با فرض تکراری بودن شرایط مرزی قسمت‌های دیگر و به‌صورت سه‌بعدی مدل‌سازی شده و مدل آشفتگی به‌کار گرفته شده، مدل آشفتگی  $k-\omega$  است. پوراحمدی و طالبی [۱۹] برای رفع مشکل دقت و زمان‌بر بودن حل، با توجه به

از  $10^{-2}$  به  $10^{-5}$  تغییر کرده است و مقدار غلظت برای چند نقطه نمونه متفاوت در تغییرش از ۱۳٪ تا مقدار ۳٪ برای دامنه تغییرش اول و آخر تغییر کرده است. به همین دلیل افزایش تعداد مش بیش‌تر از مقدار  $10^6 \times 6/3$  داده نشد. رعایت این عوامل باعث می‌شود که با کم‌ترین تعداد مش، بیش‌ترین دقت در حل و همچنین همگرایی حل وجود داشته باشد.

در شکل ۲ مش‌بندی فضای محاسباتی نصف حجم سلول و فاصله بین دو کاتد نشان داده شده است. به دلیل این‌که در روی کاتد، لایه مرزی غلظتی نزدیک به  $550 \mu m$  است، لایه اول مش روی الکترودها در مدل دارای عرض  $300 \mu m$  می‌باشد. مقدار ضخامت لایه مرزی غلظتی نزدیک الکترودها در این مقاله بر اساس نتایج مدل‌سازی به‌دست آمده و در مقاله کینگ [۲۱] نیز به‌صورت آزمایشی به‌دست آمده است. لایه‌های مش با ضریب هندسی مناسب روی الکترودها گسترده شده است. این مقدار گستردگی هم از طرف آند و هم کاتد باعث می‌شود قسمت اعظم ناحیه با گرادیان غلظتی و سرعتی بزرگ را شامل شود و همین‌طور در لایه مرزی غلظتی برای ایجاد طرح مناسب، حداقل ۲ لایه مش و ۳ گره وجود داشته باشد.



شکل ۲- الف) مش بندی نصف سلول ب) مش‌بندی صفحه بین دو الکتروده کاتد و آند، الکتروده قرمز رنگ آند و سبز رنگ کاتد

## ۲-۲- معادلات حاکم

مدل شبیه‌سازی این سلول مدل اویلری- اویلری می‌باشد. این مدل، معادلات ممنتوم<sup>۱</sup> و پیوستگی را برای هر فاز حل می‌کند. توصیف جریان سیال چندفازی به عنوان محیط پیوسته و در هم نفوذکننده، بیان‌کننده مفهوم کسرهای حجمی فازی می‌باشد که با  $\alpha_n$  نشان داده می‌شود. کسر حجمی بیان‌گر فضای اشغال‌شده توسط هر فاز است و قوانین بقای جرم و ممنتوم برای هر فاز به طور جداگانه ارضاء می‌شود. رابطه (۴) با توجه به تعریف کسرهای حجمی برای جریان سیال

دوفازی موجود است [۲۲]:

$$\alpha_1 + \alpha_2 = 1 \quad (4)$$

در صورتی که مسئله دائم باشد، معادلات پیوستگی به‌صورت کلی با رابطه (۵) بیان خواهند شد [۲۲]:

$$\frac{\partial(\rho_N \alpha_N u_{Ni})}{\partial x_i} = S_N \quad (5)$$

$N = 1, 2$  به‌ترتیب نماینده فاز الکترولیت و گاز اکسیژن است.  $\rho_N$  چگالی فاز،  $u_{Ni}$  مولفه سرعت در جهت  $i$  سیال به‌عنوان جمله چاه مس در کاتد و یا جمله چشمه اکسیژن در آند است که توسط رابطه فارادی در شرط مرزی تعریف می‌شود. در بخش شرط مرزی توضیح داده شده است.

رابطه ممنتوم هر فاز در شرایط پایا توسط رابطه (۶) بیان شده است [۲۲] که در آن،  $\sigma$  تانسور تنش در میدان سیال دوفازی است و توسط رابطه  $\frac{\partial \sigma_{Cki}^p}{\partial x_i} = \mu_N \frac{\partial^2 \alpha_N u_{Nk}}{\partial x_i^2}$  ساده می‌شود.

(۶)  $\frac{\partial}{\partial x_i} (\rho_N \alpha_N u_{Ni} u_{Nk}) = \alpha_N \rho_N g_k + F_{Nk} - \delta_N \left\{ \frac{\partial p}{\partial x_k} - \frac{\partial \sigma_{Cki}^p}{\partial x_i} \right\}$

$N=1$  نمایش‌دهنده فاز پیوسته، یعنی الکترولیت و  $N=2$  نماینده فاز گسسته، یعنی حباب‌های گازی می‌باشند. در نتیجه طبق [۲۳] در رابطه (۶) خواهیم داشت،  $\delta_1 = 1, \delta_2 = 0$ .  $F_{Nk}$  نیروی عکس‌العمل از طرف دیگر فازها روی فاز  $N$  و در جهت  $k$  می‌باشد که طبق قانون سوم نیوتن یعنی، رابطه (۷) بیان گردیده است [۲۲]:

$$\sum_N F_{Nk} = 0 \quad (7)$$

با استفاده از رابطه پیوستگی یک فاز در میان فازهای دیگر، رابطه ممنتوم، رابطه (۶)، برای یک تک فاز  $N$  به‌صورت رابطه (۸) ساده شده است [۲۲ و ۱۸]:

$$\rho_N \alpha_N \left\{ u_{Ni} \frac{\partial u_{Nk}}{\partial x_i} \right\} = \alpha_N \rho_N g_k + F_{Nk} - \gamma_N u_{Nk} - \delta_N \left\{ \frac{\partial p}{\partial x_k} - \frac{\partial \sigma_{Cki}^p}{\partial x_i} \right\} \quad (8)$$

که در رابطه فوق،  $\gamma_N$  شدت انتقال جرم به فاز  $N$  است.  $F_{Nk}$  از برابری چهار نیروی موجود در رابطه (۹) به‌دست آمده است [۲۲ و ۱۸]:

$$F_{Nk} = F_{N,drag k} + F_{N,turb k} + F_{N,grav k} + F_{N,conc k} \quad (9)$$

برای نیروی پسا<sup>۲</sup> حباب در حجم کنترلی که کسر حجمی  $\alpha_D$  از آن را حباب تشکیل داده باشد، رابطه ساده‌شده شیلر-نیومن در رابطه (۱۰) نشان داده شده است [۱۸]:

$$F_{N,drag k} = -\frac{3 C_D}{4 d} \rho_C \alpha_D |W_k| W_k \quad (10)$$

در رابطه (۱۰)،  $W$  بردار اختلاف سرعت بین فازهای دیگر غیر از فاز  $N$  می‌باشد و ضریب پسا نیز با استفاده رابطه (۱۱) محاسبه گردیده است [۱۸]:

$$C_D = \frac{24}{Re} (1 + 0.15 Re^{0.687}) \quad (11)$$

قطر حباب توسط آزمایش‌های دقیق در دامنه  $40 \mu m$  تا  $160 \mu m$  قرار دارد. اما حباب‌های با قطر  $67 \mu m$  بیش‌ترین فراوانی را دارد [۱] و تقریباً میانگین کل قطرهای حباب موجود در فاصله بین الکتروده در شرایط کاری نزدیک به میدوک است؛ از این‌رو برای افزایش دقت، قطر حباب برابر  $67 \mu m$  در نظر گرفته شده است. اختلاف غلظت ایجادشده در یک فاز پیوسته می‌تواند باعث ایجاد تفاوت چگالی و در نتیجه اختلاف وزن نقاط مختلف سیال شود؛ در نتیجه نیروی گرانشی که بر

<sup>2</sup> Drag

<sup>1</sup> Momentum

جدول ۱- پارامترهای صنعتی میدوک [۱۹]

پارامتر	مقدار	پارامتر	مقدار
چگالی جریان الکتریکی $i$	$۱۹۶ \frac{A}{m^2}$	ضریب نفوذ $D$	$۸/۶۲ \times ۱۰^{-۱۰} \frac{m^2}{s}$
دبی ورودی سیال	$۳/۵ \frac{lit}{s}$	عدد انتقال $t_+$	$۰/۰۸۴۹$
چگالی الکترولیت $\rho_1$	$۱۲۰۰ \frac{Kg}{m^3}$	ضریب انبساط $\beta$	$۰/۰۰۱۹ \frac{m^3}{Kg}$
چگالی اکسیژن $\rho_2$	$۱/۲ \frac{Kg}{m^3}$	غلظت ورودی و مرجع $C_{ref}$	$۳۶ \frac{Kg}{m^3}$
لزجت الکترولیت $\mu_1$	$۱/۱۸ \times ۱۰^{-۳} \frac{Kg}{m.s}$	غلظت اسید	$۱۸ \frac{Kg}{m^3}$
لزجت اکسیژن $\mu_2$	$۲/۱۸ \times ۱۰^{-۵} \frac{Kg}{m.s}$		

برای بررسی انتقال جرم در سلول الکتروکرومینگ، به بررسی اعداد بی بعد مطرح شده برای انتقال جرم نیاز است. انتقال گونه‌ها از محلول بالک به سطح الکترود به سه روش انجام می‌شود:

- جابه‌جایی طبیعی ناشی از اختلاف چگالی
- نفوذ ناشی از گرادیان غلظت مس
- مهاجرت یونی ناشی از میدان الکتریکی

به علت وجود مقدار زیاد الکترولیت خنثی در فرآیند الکتروکرومینگ نقش مهاجرت یونی قابل چشم‌پوشی خواهد بود و تنها مس از دو حالت مؤثر جابه‌جایی و نفوذ، به سطح الکترود راه می‌یابد. شار شدت انتقال جرم ماده  $N$ ، توسط رابطه (۱۷) رابطه فارادی بیان شده است [۱۰].

$$N = \frac{M_{Cu} dM}{A dt} = \frac{IM_{Cu}}{nFA} = \frac{M_{Cu}i}{nF} \quad (17)$$

در این رابطه،  $M_{Cu}$  جرم مولی مس و  $n$  تعداد الکترونی است که یون مس می‌گیرد و  $F$  ثابت فارادی است. در لایه مرزی نفوذ، مسئله کاملاً پایدار با فرض اختلاط کامل، رابطه (۱۸) برای شار جرمی برقرار است [۱۰]:

$$N = -D \frac{dC_{Cu}}{dx} \quad (18)$$

با استفاده از روابط (۱۷) و (۱۸)، رابطه (۱۹) برای لایه نزدیک الکترود به دست می‌آید [۱۰].

$$i = -n \times F \times \frac{D}{M_{Cu}} \frac{dC_{Cu}}{dx} \quad (19)$$

ضریب انتقال جرم به صورت رابطه (۲۰) تعریف می‌شود [۱۰].

$$kd = \frac{-D}{(C_{Cu(bulk)} - C_{Cu(surface)})} \left. \frac{dC_{Cu}}{dx} \right|_{x=0} \quad (20)$$

$C_{Cu(bulk)}$  غلظت بالک یا حجمی مس با فاصله دور از سطح کاتد است و  $C_{Cu(surface)}$  غلظت مس در نقطه چسبیده به سطح کاتد می‌باشد. واحد ضریب انتقال جرم، متر بر ثانیه است. در سلول‌های الکتروکرومینگ این واحد بسیار بزرگ است و معمولاً ضریب انتقال جرم با واحد کوچک میکرومتر بر ثانیه بیان می‌شود. رابطه جریان سیال به صورت رابطه (۲۱) ساده شده است [۱۰].

$$i = \frac{n \times F \times kd}{M_{Cu}} \times (C_{Cu(bulk)} - C_{Cu(surface)}) \quad (21)$$

هنگامی که تمام یون‌های مسی که به سطح الکترود می‌رسند جذب

این اختلاف وزن اثر گذاشته، نیروی شناوری غلظتی را بر فاز پیوسته وارد می‌کند که طبق رابطه (۱۲) بیان شده است [۱۷]:

$$\vec{F}_{N,conc} = \delta_{N,1} \alpha_N [-\rho_N \vec{g} \beta (C - C_{ref})] \quad (12)$$

در رابطه (۱۲)،  $\beta$  ضریب انبساط غلظتی،  $C$  غلظت مس و  $C_{ref}$  غلظت مس ورودی می‌باشد. در معادله انتقال ممنتوم بخشی از نیرو ناشی از تفاوت غلظت است، در نتیجه رابطه دیگری که باید حل شود و با معادله ممنتوم کوپل است، معادله انتقال گونه‌ها است که طبق رابطه (۱۳) با غلظت ارتباط دارد [۱۸].

$$\vec{v} \cdot (\alpha_1 C_{Cu} \vec{U}_1) = \vec{v} \cdot \left( \alpha_1 \left( \rho_1 D_1 + \frac{\mu_{T,1}}{Sc_T} \right) \vec{v} \left( \frac{C_{Cu}}{\rho_{Cu}} \right) \right) + S_{Cu} \quad (13)$$

این معادله نشان می‌دهد که یون‌های مس چگونه در اثر وجود اختلاف غلظتی در میدان سیال جابه‌جا می‌شوند و در واقع جرم انتقال می‌یابد.  $D$ ،  $Sc_T$  و  $S_{Cu}$  به ترتیب ضریب نفوذ یون مس، عدد اشمیت آشفته‌گی و جمله چشمه شار جرمی هستند، برای مثال در آند و چاه شار انتقال جرم در کاتد است. عدد اشمیت آشفته‌گی  $Sc_T = 0.9$  در نظر گرفته شده است [۱۷].

برای جمله ناشی از نیروی شناوری تغییر چگالی رابطه (۱۴) برقرار است [۱۸]:

$$\vec{F}_{N,grav} = \alpha_N (\rho_N - \rho_{ref}) \vec{g} \quad (14)$$

در این رابطه،  $\rho_N$  چگالی فاز  $N$ ،  $\rho_{ref}$  چگالی مرجع یا ورودی الکترولیت و  $\vec{g}$  شتاب جاذبه زمین است. در نهایت جمله ناشی از نیروی توربولانسی توسط رابطه (۱۵) به دست خواهد آمد [۱۷]:

$$\vec{F}_{N,turb} = (-1)^N C_{td} \rho_N K \vec{v} \alpha_N \quad (15)$$

در رابطه (۱۵)،  $C_{td}$  ضریب نیروی پراکندگی آشفته است که مقدار آن یک در نظر گرفته می‌شود [۱۸]. در جریان سیال دو فازی می‌توان جریان سیال هر فاز، از نوع لایه‌ای یا آشفته باشد. در جریان سیال داخل سلول الکتروکرومینگ از آن‌جا که عدد رینولدز<sup>۱</sup> برای حالت گاز و مایع کوچک است [۱۸] جریان سیال لایه‌ای به نظر می‌رسد؛ اما به دلیل وجود جریان طبیعی بزرگ ناشی از اختلاف غلظت و درگ حرکت حباب دارای عدد رابلی<sup>۲</sup> بسیار بزرگی می‌باشد؛ از این رو جریان سیال فاز الکترولیت آشفته و فاز گاز به دلیل کوچک بودن حباب، لایه‌ای فرض شده است [۱۸].

برای تحلیل آشفته‌گی، مدل‌های متفاوتی وجود دارد. یکی از بهترین مدل‌ها برای مسئله الکتروکرومینگ به علت وجود دیواره‌ها و جریان طبیعی غالب، مدل دو معادله‌ای  $k - \omega$  است. معادلات آن برای یک فاز به صورت روابط (۱۶) است [۲۴]:

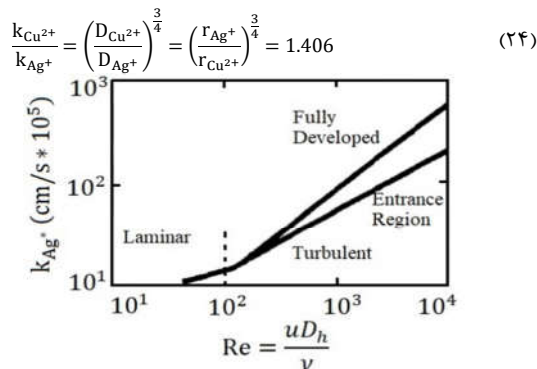
$$\begin{aligned} \frac{\partial(\rho k)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho u_j k)}{\partial x_j} &= \rho P - \beta' \rho \omega K + \frac{\partial}{\partial x_j} \left[ \left( \mu + \frac{1}{\sigma_K} \rho \frac{K}{\omega} \right) \frac{\partial(K)}{\partial x_j} \right] \\ \frac{\partial(\rho \omega)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho u_j \omega)}{\partial x_j} &= \frac{\alpha \omega}{K} P - \beta \rho \omega^2 + \frac{\partial}{\partial x_j} \left[ \left( \mu + \frac{1}{\sigma_\omega} \rho \frac{K}{\omega} \right) \frac{\partial(\omega)}{\partial x_j} \right] + \frac{\rho \sigma_d}{\omega} \frac{\partial(K)}{\partial x_j} \frac{\partial(\omega)}{\partial x_j} \end{aligned} \quad (16)$$

در  $\sigma_\omega = 1.2$  و  $\sigma_K = 1.2$ ،  $\beta = 0.075$ ،  $\alpha = \frac{5}{9}$ ،  $\beta' = 0.09$ ،  $\mu_t = \rho \frac{K}{\omega}$  نظر گرفته شده‌اند. این ثوابت بر اساس روابط نیمه تجربی به دست آمده‌اند [۲۴]. در جدول ۱ پارامترهای صنعتی واقعی مورد نیاز برای سلول الکتروکرومینگ میدوک آورده شده است.

<sup>1</sup> Reynolds number

<sup>2</sup> Rayleigh number

شده است. ضریب انتقال جرم مس و نقره طبق رابطه (۲۴) با هم ارتباط دارند [۲۵]. در این رابطه،  $\tau$  شعاع یون می‌باشد.



شکل ۳- نمودار تعیین نوع جریان سیال بین الکترودهای داخل سلول بر اساس عدد رینولدز و ضریب انتقال جرم [۲۵]

برای سلول‌های الکترووینینگ قطر معادل ناحیه بین الکترودی یا به عبارت دیگر طول مشخصه با استفاده از رابطه (۲۵) به دست می‌آید [۱۰].

$$de = \frac{2LW}{(L+W)} \quad (25)$$

در رابطه (۲۵)،  $L$  و  $W$  به ترتیب طول و عرض کانال بین دو الکترودی می‌باشند. در صورتی که جریان سیال لایه‌ای روی صفحه برقرار باشد برای عدد بی بعد شروود رابطه (۲۶) برقرار است [۲۵].

$$Sh_1 = 1.85 \times \left(Re \times Sc \times \frac{de}{L}\right)^{\frac{1}{3}} \quad (26)$$

در صورتی که جریان سیال آشفته باشد با توجه به جریان محصور در بین دو صفحه الکترودی دو نوع جریان سیال توسعه یافته و یا غیر توسعه یافته وجود دارد. برای جریان سیال آشفته غیر توسعه یافته رابطه آزمایشی (۲۷) برای عدد شروود برقرار است [۱۰].

$$Sh_2 = 0.0356 \times Re^{0.8} \times Sc^{\frac{1}{3}} \quad (27)$$

و برای جریان سیال آشفته توسعه یافته رابطه (۲۸) برقرار است [۱۰].

$$Sh_3 = 0.0789 \times f^{\frac{1}{2}} \times Re \times Sc^{\frac{1}{4}} \quad (28)$$

مقدار  $f$  در رابطه (۲۸)، ضریب اصطکاک است که از رابطه (۲۹) به دست آمده است [۱۰].

$$f = \frac{0.079}{Re^{\frac{1}{4}}} \quad (29)$$

رابطه (۳۰) با توجه به روش چیلتون-کولبرن به دست آمده و برای انتقال جرم در جریان سیال لایه‌ای کاربرد دارد [۱۰].

$$j_D = j_H = 0.023Re^{-0.2} \quad (30)$$

که  $j_D$  و  $j_H$  به ترتیب عامل کولبرن برای انتقال جرم و گرما می‌باشند. برای عامل کولبرن انتقال جرم، رابطه (۳۱) وجود دارد [۱۰].

$$j_D = \frac{Sh}{Re \times (Sc)^{\frac{1}{3}}} \quad (31)$$

در نتیجه عدد شروود به صورت رابطه (۳۲) است [۱۰]:

$$Sh_4 = 0.023Re^{0.8}Sc^{\frac{1}{3}} \quad (32)$$

در الکترووینینگ صنعتی میدوک با توجه به محدوده عدد رینولدز بالای ۲۳۰۰ و ضریب انتقال جرم مس کم‌تر از  $\frac{6 \mu m}{s}$  طبق شکل می‌توان نتیجه گرفت که جریان سیال داخل سلول‌ها و بین الکترودها

کاتد شوند و یا انتقال جرم یون‌های مس به سطح الکترودی کاهش یابد، نشان‌دهنده شدت محدودکننده برای تولید مس است. شدت جریان الکترودی محدود شده، جریان الکترودی است که با افزایش پتانسیل در شدت واکنش تغییری رخ نمی‌دهد. به این دلیل تعیین جریان الکترودی محدود نفوذ برای طراحی و بهینه‌سازی راکتور مهم است. هنگامی که شدت جریان الکترودی محدود  $i_{lim}$  برقرار باشد، تمام غلظت مس سطح کاتد مصرف می‌شود در نتیجه رابطه (۲۲) برقرار خواهد بود [۱۰].

$$i_{lim} = n \times F \times kd \times C_{Cu(bulk)} \quad (22)$$

از این رابطه دو نکته مشاهده می‌شود:

- افزایش غلظت توده‌ای می‌تواند میزان شدت جریان الکترودی محدود را افزایش دهد که آن با بهینه‌کردن قسمت استخراج محلول (SX) حاصل می‌شود.
- افزایش ضریب انتقال جرم سلول می‌تواند جریان الکترودی محدود نفوذ آن را افزایش دهد که این خود تابعی از هیدرودینامیک سلول، مشخصات الکترولیت ورودی، دمای کارکرد و ... می‌باشد.

ضرایب انتقال جرم معمولاً با روابط آزمایشگاهی که بر پایه اعداد بی‌بعد هستند، به دست می‌آیند. در ادامه برخی اعداد بی‌بعد و پارامترهای مورد استفاده در این پژوهش در جدول ۲ آورده شده است.

جدول ۲- پارامترهای مهم مورد استفاده جهت به دست آوردن ضریب انتقال جرم با مقادیر جدول ۱

مقدار پارامتر	رابطه	پارامتر
۲۵۰۰	$Re = \frac{\rho \cdot v \cdot L}{\mu}$	عدد رینولدز
۱۵۵۵	$Sc = \frac{\mu}{D}$	عدد اشمیت
$2/5 \times 10^8$	$Gr = \frac{g \cdot \beta \cdot (C_s - C_{\infty}) L^3}{\nu^2}$	عدد گرافش
$5/6 \times 10^{14}$	$Ra = \frac{g \cdot \beta \cdot \Delta T \cdot H^4}{\nu^2 \cdot D}$	عدد رایلی تصحیح شده
۰/۰۸۹ (m)	$de = \frac{2 \cdot L \cdot W}{(L+W)}$	قطر هیدرولیکی بین الکترودی
	$Sh = \frac{kd \cdot de}{D}$	عدد شروود

در مقاله‌های مختلف روابط تجربی بسیاری در مورد انتقال جرم به الکترودی کاتد، در هندسه مکعب مستطیلی بین صفحات الکترودی داخل سلول الکترووینینگ، به فرم رابطه (۲۳) ارائه شده‌اند [۱۰]:

$$Sh = C \cdot Re^o Sc^m \left(\frac{de}{L}\right)^p \quad (23)$$

که پارامترهای  $C, o, m, p$  دارای مقادیر ثابت هستند. در مقاله ارائه شده توسط گندرون و همکاران [۲۵] نوع جریان سیال داخل سلول توسط نموداری که در شکل آمده است، مشخص شده است. به این صورت عدد رینولدز به عنوان ممین جریان سیال لایه‌ای یا آشفته می‌باشد و عدد رینولدز در کنار ضریب انتقال جرم کاتدی می‌تواند ناحیه ورودی بودن یا توسعه یافته بودن جریان سیال آشفته را مشخص کند.

گندرون و همکاران در مقاله‌شان از یون نقره برای ردیابی استفاده کرده‌اند [۲۵]. از این رو نمودار برای ضریب انتقال جرم یون نقره آورده

فاردی،  $M_{O_2}$  جرم مولی اکسیژن و  $z_{O_2}$  تعداد الکترون‌های آزاد شده توسط یون اکسیژن می‌باشد. برای شرط مرزی کاند نیز رابطه (۴۰) وجود دارد (۱ و ۱۸).

$$\text{Flux}_{Cu} = \eta \frac{IM_{Cu}}{nF} \quad (40)$$

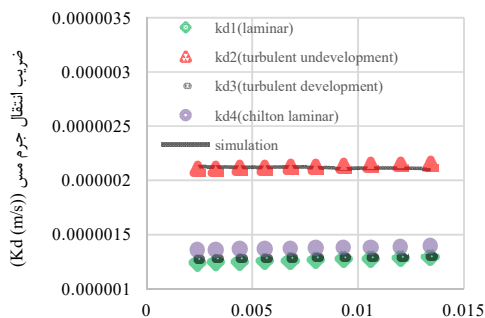
$\eta$  بازده جریان الکتریکی کاتدی می‌باشد که معمولاً مقدار آن حدود ۸۸٪ تا ۹۲٪ است [۱] و به شرایط کاری سلول‌ها ارتباط دارد. ذکر این نکته دارای اهمیت است که الکترولیت به صورت مخلوط تک‌فاز متغیر پیوسته شامل دو ترکیب یون مس و اسید سولفوریک رقیق شده در نظر گرفته شده است تا بتوان تغییر کسر جرمی مس را در آن نشان داد. برای شرط مرزی ورودی، دبی ثابت یکنواخت با شرایط واقعی صنعتی در نظر گرفته شده است که تنها شامل الکترولیت با غلظت مس واقعی است. لوله ورودی در گوشه پایین سلول قرار دارد و دارای سوراخ‌های موربی است که الکترولیت از آن خارج می‌شود. شرایط فازی ماده خروجی تنها الکترولیت و با غلظت مس واقعی صنعتی در نظر گرفته شده است. صفحه عمودی طولی وسط سلول به عنوان مرز صفحه تقارن در نظر گرفته شده است. علت انتخاب این مرز وجود تقارن فیزیکی و همچنین تقارن هندسی در آن است، شرط مرزی تقارن طبق روابط (۴۱) نشان داده شده است [۱ و ۱۸]:

$$\frac{\partial \phi}{\partial n} = 0 \text{ و } U_n = 0 \quad (41)$$

که در رابطه فوق،  $\phi$  همه پارامترهای اسکالر مانند فشار، غلظت و کسر حجمی را شامل می‌شود. روش حل عددی مورد استفاده در نرم‌افزار تجاری Ansys-cfx بر اساس الگوریتم حل گر تمام کوپل می‌باشد [۲۰]. در مقاله [۲۱] به صورت کامل در مورد نوع الگوریتم‌های حل و نوع گسسته‌سازی و سیستم مورد استفاده جهت حل توضیح داده شده است.

### ۳- نتایج

در این بخش به بررسی نتایج مدل‌سازی سلول پرداخته شده است. غلظت مس در ورودی  $C_{in} = 36 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$  است و با از دست دادن مس خود روی صفحات کاتد از خروجی خارج می‌شود. در شکل ۳، مقادیر مختلف  $kd_n$  نشان داده شده است.  $kd_n$  نشان‌دهنده ضریب انتقال جرم مس به کاتد در جریان‌های سیالاتی مختلف ارائه شده در رابطه (۳۳) در هنگام افزایش ضخامت کاتد با معادل آن با کم شدن فاصله بین کاتدی می‌باشد.



ضخامت کاتد برابر با کاهش فاصله بین الکترودها (متر)

شکل ۳- ضریب انتقال جرم میانگین مدل‌سازی شده سلول مس نسبت به تغییر ضخامت کاتد (معادل آن کم شدن فاصله بین الکترودی)

در ناحیه آشفته غیرتوسعه یافته قرار دارد. ضریب انتقال جرم متوسط الکترودها در سلول با رابطه (۳۳) به عدد شروود مرتبط می‌شوند:

$$kd_{mn} = Sh_{mn} \times \frac{D}{de} \quad (33)$$

در رابطه (۳۳)،  $mn$  نشان‌دهنده نوع رابطه استفاده شده برای عدد شروود است که در واقع نوع جریان را مشخص می‌کند.

برای در نظر گرفتن تغییر دمای الکترولیت داخل سلول به روابطی برای چگالی، لزجت و ضریب نفوذ مس در الکترولیت نیاز می‌باشد که در ادامه تعریف شده‌اند. چگالی الکترولیت طبق رابطه پرایس [۲۶]، رابطه (۳۴)، به دست می‌آید.

$$\rho = 1018.56 + 0.151C_{Cu} + 0.54C_{H_2SO_4} - 0.59T \quad (34)$$

لزجت گاز اکسیژن در تغییر دما با رابطه ساترلند، رابطه (۳۵)، محاسبه می‌شود [۲۷].

$$\mu_0 = C \frac{T_0^3}{0.555T+120} \quad (35)$$

که  $T$  دمای الکترولیت به کلین می‌باشد. برای لزجت الکترولیت در تغییرات دما، رابطه (۳۶) وجود دارد [۲۸].

$$\mu = \frac{1}{1000} (-1989.46 + 0.010353C_{Cu^{2+}} + 0.0014685C_{H_2SO_4} + 1983.72e^{\frac{1}{T}}) \quad (36)$$

برای ضریب نفوذ مس درون الکترولیت، بر حسب دما از رابطه (۳۷) استفاده می‌شود [۲۸].

$$D = D_0 e^{-\frac{E_D}{RT}} \quad (37)$$

که در این رابطه،  $E_D$  انرژی فعال‌سازی نفوذ،  $R$  ثابت جهانی گازها و  $D_0$  ضریب نما می‌باشد.

### ۲-۳- پارامترها و شرایط مرزی سلول

شرط مرزی دیواره از نظر محدودیت می‌تواند به دو نوع شرط عدم لغزش و شرط لغزش آزاد تقسیم شود، شرط عدم لغزش که  $U_{Wall} = 0$  است و شرط لغزش آزاد که طبق رابطه (۳۸) تعریف می‌شود.

$$U_{n,Wall} = 0 \text{ و } \tau_w = 0 \quad (38)$$

کلیه دیواره‌های سلول و آند و کاتد دارای شرط مرزی دیواره عدم لغزش برای فاز الکترولیت و شرط لغزش آزاد برای فاز اکسیژن گازی می‌باشند. در بسیاری از مقالات با اعتبار آزمایشی شرط لغزش آزاد برای حباب گازی در جریان سیال دوفازی در نظر گرفته شده است [۲۹].

سطح آزاد بالای سلول دارای شرط مرزی گاززدا می‌باشد [۲۰]؛ در نتیجه حباب گاز اکسیژن با همان سرعتی که به سطح آزاد می‌رسد آن را ترک می‌کند. آند و کاتد دارای شرط مرزی دیواره عدم لغزش برای فاز الکترولیت و دیواره لغزش آزاد برای فاز اکسیژن گازی می‌باشد و از آن‌جا که واکنش تولید اکسیژن نیز در آند رخ می‌دهد چشمه تولید اکسیژن نیز می‌باشد. مقدار جرمی که هنگام اکسیداسیون از سیال مجاور الکترود به واسطه میدان الکتریکی جذب الکترود می‌شود و یا از آن دفع می‌شود، طبق قانون فارادی به جریان الکتریکی سلول ارتباط دارد. حجم کلی اکسیژن تولید شده در آند با جریان الکتریکی آن به طور خطی ارتباط دارد. با توجه به قانون فارادی، دبی ظاهری گاز تولیدی کلی توسط رابطه (۳۹) به دست خواهد آمد [۱ و ۱۸].

$$\text{Flux}_{O_2} = \frac{IM_{O_2}}{z_{O_2}F} \quad (39)$$

که در آن،  $I$  جریان الکتریکی کلی روی سطوح آند و کاتد،  $F$  ثابت

جدول ۳- ضریب انتقال جرم متوسط سالانه برای چند کارخانه استخراج مس به روش هیدرومتالورژی و مقایسه آن با میدوک

ردیف	نام مجتمع مس	ضریب انتقال جرم $\left[\frac{\mu m}{s}\right]$
۱	Nullabar m	۲/۱۸
۲	CM cerro Colorado	۲/۱۸
۳	Nico sarcheshmeh	۲/۱۲
۴	Miduk	۲/۱۰

بعد از اعتبارسنجی، به بررسی حالت‌های مختلف پرداخته خواهد شد. یکی از راهکارهای جلوگیری از مه آلودگی اسیدی، تزریق حباب هوا به داخل سلول می‌باشد. تزریق هوا به داخل سلول به دلیل ایجاد فضای بین الکترودی آشفته‌تر و چرخشی‌تر می‌تواند ضریب انتقال جرم را نیز افزایش دهد؛ در نتیجه چگالی جریان الکتریکی محدود افزایش یافته و بنابراین ایجاد ندول روی سطح کاتد را کم کرده و می‌تواند باعث افزایش کیفیت سطح آن شود. از آن‌جا که شرایط سیالاتی حباب اکسیژن با هوا در سیال تقریباً یکی است؛ از این‌رو در ادامه به بررسی افزایش ضریب انتقال جرم مس با اضافه کردن حباب اکسیژن از راه ورودی به جای هوا پرداخته می‌شود. دلیل این فرض، ساده‌سازی جهت افزایش سرعت حل ناشی از سه‌فازی‌نشدن مدل‌سازی است. در مقاله حاضر به شبیه‌سازی اکسیژن تزریق شده از ورودی به داخل سلول پرداخته می‌شود. در اضافه کردن حباب اکسیژن از ورودی برای ساده‌سازی فرض‌های زیر در نظر گرفته شده است.

- اندازه حباب‌ها در حد حباب‌های ایجاد شده در فرآیند الکترووینینگ و برابر می‌باشد.
- اکسیژن مستقیماً از ورودی با شرایط فیزیکی اکسیژن و سرعت سیال وارد سلول می‌شود.

با فرضیات صورت‌گرفته تنها تغییر در مدل‌سازی، تغییر شرط مرزی ورودی از سیال یک‌فازی به دوفازی خواهد بود. این تغییر باعث تغییر در مقدار  $S_H$  در معادله (۵) برای شرط مرزی ورودی خواهد شد. همان‌طور که در شکل ۴ نشان داده شده است، با تزریق حدود ۱۶ لیتر بر ثانیه اکسیژن معادل با کسر جرمی ۰/۰۰۴ از طریق ورودی به داخل سلول‌های الکترووینینگ، ضریب انتقال جرم سریعاً تا مقدار ۰/۰۷٪ افزایش یافته اما بعد از آن تقریباً با افزایش بیش‌تر تزریق حباب، ثابت خواهد ماند.

اثر افزایش دبی الکترولیت ورودی به سلول در شکل ۵ بررسی شده است. افزایش دبی ورودی باعث بالا رفتن سرعت جریان سیال داخل سلول در اطراف الکترودها شده اما در فضای بین الکترودها اثر بسیار کمی دارد. دلیل آن اثر زیاد جریان طبیعی ناشی از اختلاف غلظت نزدیک کاتد و جریان سیال چرخشی ناشی از نیروی درگ حرکت حباب‌ها می‌باشد؛ در نتیجه انتظار نمی‌رود که ضریب انتقال جرم افزایش یابد. همان‌طور که در شکل ۵ نیز مشاهده می‌شود ضریب انتقال جرم اثر مثبت بسیار کم و قابل چشم‌پوشی در افزایش دبی الکترولیت ۰/۱۰٪ اعمال شده در سلول‌های الکترووینینگ خواهد داشت.

همان‌طور که مشاهده می‌شود، تغییر ضخامت کاتد در دامنه داده‌شده اثر کوچک قابل صرف‌نظری روی ضریب انتقال جرم دارد. دامنه ضخامت کاتد، از حالت اولیه برابر ۳/۲ میلی‌متر تا ضخامت کاتد برابر ۱۴ میلی‌متر است که در حالت نهایی محصول مس روی صفحات کاتد به وزن نهایی خود رسیده و آن را در صنعت جدا می‌کنند. این دامنه، شامل حداکثر ۱۵٪ تغییر در فاصله بین الکترودی سلول‌ها می‌باشد. در واقع این نمودار نشان می‌دهد که در طول افزایش ضخامت کاتد تا حد نهایی تولید محصول، در ضریب انتقال جرم سلول تغییر قابل توجهی ایجاد نخواهد شد. طبق رابطه (۲۰)، ضریب انتقال جرم به پروفیل غلظت در نزدیک کاتد ارتباط دارد. در مرجع [۱۸] نشان داده شده که این پروفیل هنگام کاهش فاصله کاتد با دامنه‌های کوچک، در حد ۱۵٪ تا ۲۰٪، تغییری نمی‌کند. دلیل ثابت‌ماندن ضریب انتقال جرم در دامنه تغییر ضخامت کاتد مذکور عدم تغییر پروفیل غلظت می‌باشد. که در مدل‌سازی انجام شده در این مقاله نیز بر اساس ضریب انتقال جرم به‌دست آمده است. دومین نکته قابل مشاهده، همخوانی نتایج با نتایج رابطه آزمایشی ضریب انتقال جرم ناحیه آشفته غیرتوسعه‌یافته می‌باشد. مقدار انحراف نتایج شبیه‌سازی از نتایج رابطه آزمایشی در این کاربرد تنها ۰/۵٪ است که نشان‌دهنده دقت رابطه آزمایشگاهی در حالت محاسبه انتقال جرم میانگین کل سلول است.

جهت اعتبارسنجی مقدار ضریب انتقال جرم مدل‌سازی، ضریب انتقال جرم سلول‌های الکترووینینگ صنعتی را می‌توان به‌صورت میانگین از تولید سالیانه نیز تخمین زد. دلیل استفاده از میانگین سالیانه، کاهش اثر ناپایداری‌های فراوان و تغییرات شرایطی از جمله جریان الکتریکی، غلظت، دما، دبی ورودی و خروجی و ورود یون‌های مزاحم در طول تولید مس می‌باشد. مقدار تولید روزانه متوسط بر طبق آمار سالیانه مس میدوک ۱۸/۷ تن بوده است. با استفاده از معادلات (۱۸) و (۲۰)، ضریب انتقال جرم میانگین یک‌ساله طبق رابطه (۴۲) به‌دست می‌آید.

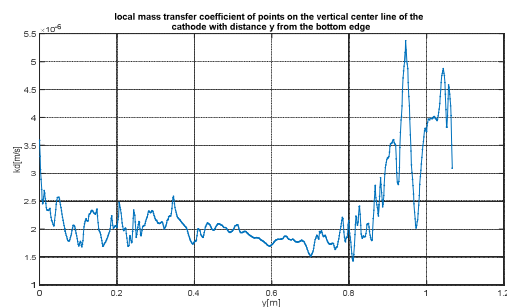
$$\bar{k}d = \frac{N_{20}}{(C_{Cu(bulk)} - C_{Cu(surface)})_{20}} \quad (42)$$

$$= \frac{18.7 \frac{\text{ton}}{\text{day}} \times 3.86 \times 10^{-6} \frac{\text{kg} \cdot \text{day}}{\text{ton} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^2}}{(38.2 - 4) \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}} = 2.1 \times 10^{-6} \frac{\text{m}}{\text{s}}$$

در این رابطه،  $N_{20}$  میانگین پیراسته ۲۰ درصدی پارامتر  $x$  می‌باشد. علت استفاده از این میانگین، حذف داده‌های غیرعادی مانند مشکلات تولید، توقفات و قطعی برق است. ضریب انتقال جرم متوسط سالانه بر این اساس در مقاله [۱۰] برای چند کارخانه استخراج مس در جهان به‌دست آمده است. در جدول ۳ داده‌های این مقاله با ضریب انتقال جرم به‌دست آمده برای مجتمع مس میدوک مقایسه شده است. این مقایسه نشان‌دهنده نزدیکی بین ضرایب انتقال جرم متوسط در مقیاس صنعتی بین کارخانه‌های مختلف و کارخانه میدوک می‌باشد. با توجه به اینکه مقدار ضریب انتقال جرم توسط مدل برابر با  $2/06 \frac{\text{m}}{\text{s}}$  است، مقدار انحراف با مقدار صنعتی تنها ۱/۹٪ خواهد بود.

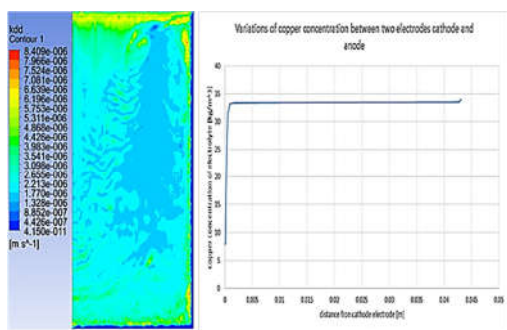


کاتد می‌باشد. در این شکل مشاهده می‌شود از پایین کاتد به سمت بالا در ۱۰٪ پایین کاتد، ضریب انتقال جرم روند کاهشی دارد سپس تقریباً ثابت شده و تقریباً در ۳۰٪ بالای کاتد روند افزایشی پیدا می‌کند. در حدود ۱۰ سانتی‌متری بالای کاتد ناحیه کوچکی وجود دارد که در آن ضریب انتقال جرم شدیداً افت پیدا کرده است و بعد از آن افزایش یافته است که ناشی از جریان سیال چرخشی برگشتی از سطح آزاد سلول و کاهش سرعت موقت جریان سیال سطح کاتد می‌باشد. تغییر موضعی شدید در ضریب انتقال جرم برای سطح کاتد ایجاد مشکلی کیفی تحت عنوان برآمدگی می‌کند که در مطالعه ورنر [۲۶] با بررسی نموداری مشابه با شکل ۷ بیان شده است.



شکل ۷- ضریب انتقال جرم موضعی خط وسط کاتد از پایین کاتد

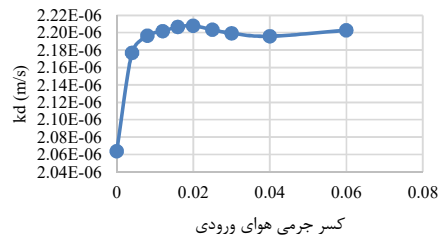
شکل ۹ سمت چپ، کانتور ضریب انتقال جرم را روی سطح کاتد نشان می‌دهد. همان‌طور که دیده می‌شود در ناحیه وسط کاتد، دامنه تغییرات ضریب انتقال جرم کم است. در اطراف کاتد ناحیه باریکی وجود دارد که ضریب انتقال جرم آن نزدیک به صفر است. در نزدیک سطح آزاد نیز ناحیه‌ای با تغییرات زیاد در ضریب انتقال جرم به علت جریان چرخشی برگشتی از سطح آزاد وجود دارد. شکل ۹ سمت راست، نمودار غلظت مس روی خط عمودی بین آند و کاتد در وسط کاتد را نشان می‌دهد.



شکل ۸- سمت راست) غلظت مس الکترولیت روی خط عمودی بین دو الکتروود. سمت چپ) کانتور ضریب انتقال جرم روی سطح کاتد با غلظت مس الکترولیت ورودی ۳۵ کیلوگرم بر مترمکعب

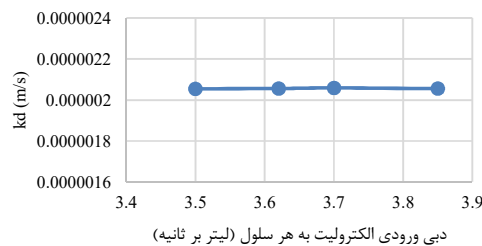
#### ۴- نتیجه‌گیری

در این مقاله، با استفاده از شبیه‌سازی انجام‌شده روی سلول الکترووینینگ میدوک، به بررسی انتقال جرم در سلول الکترووینینگ



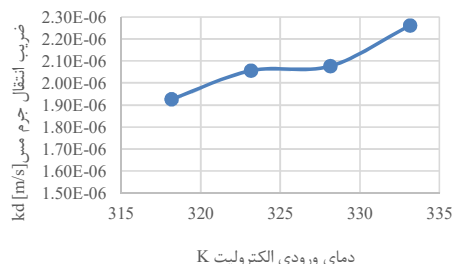
شکل ۴- ضریب انتقال جرم میانگین مقابل کسر جرمی هوای ورودی

اثر افزایش دبی الکترولیت ورودی به سلول در شکل ۵ بررسی شده است. افزایش دبی ورودی باعث بالا رفتن سرعت جریان سیال داخل سلول در اطراف الکتروودها شده اما در فضای بین الکتروودها اثر بسیار کمی دارد. دلیل آن اثر زیاد جریان طبیعی ناشی از اختلاف غلظت نزدیک کاتد و جریان سیال چرخشی ناشی از نیروی درگ حرکت حباب‌ها می‌باشد؛ در نتیجه انتظار نمی‌رود که ضریب انتقال جرم افزایش یابد. همان‌طور که در شکل ۵ نیز مشاهده می‌شود ضریب انتقال جرم اثر مثبت بسیار کم و قابل چشم‌پوشی در افزایش دبی الکترولیت ۱۰٪ اعمال‌شده در سلول‌های الکترووینینگ خواهد داشت.



شکل ۵- اثر دبی ورودی روی ضریب انتقال جرم متوسط سلول

در شکل ۶ اثر دمای الکترولیت ورودی به سلول بر روی ضریب انتقال جرم متوسط سلول شبیه‌سازی‌شده، بررسی شده است. مقادیر چگالی گاز، چگالی الکترولیت، ضریب انتقال جرم نفوذی مس در الکترولیت، لزجت الکترولیت و گاز در افزایش دمای الکترولیت ورودی، تابعی از دما خواهند بود که توسط روابط مربوطه در نظر گرفته شده‌اند.



شکل ۶- نتایج شبیه‌سازی اثر دمای الکترولیت ورودی سلول بر روی ضریب انتقال جرم میانگین سلول

شکل ۷ نشان‌دهنده تغییرات ضریب انتقال جرم روی خط وسط

*Hydrometallurgy Conference 2009*, The Southern African Institute of Mining and Metallurgy, 2009 .

- [10] Cifuentes L. and Arriagada P., Copper Electrowinning in a Moving-bed Cell Based on Reactive Electrodialysis. *Revista de Metalurgia* p. 11, 2008.
- [11] Filzwieser A., *Modelling of the Processes Close to Cathodes in Copper Electrolysis (Modellierung der kathodennahen Vorgänge in der Kupferelektrolyse)*. Ph. D. thesis, Montanuniversität Leoben, 2000.
- [12] Filzwieser A., Hein K., and Mori G., Current Density Limitation and Diffusion Boundary Layer Calculation Using CFD Method. *JOM*, Vol. 54, pp. 28-31, 2002.
- [13] Leahy M. J. and Schwarz M. P., Experimental validation of a computational fluid dynamics model of copper electrowinning. *Metallurgical Materials Transactions B*, Vol. 41, No. 6, pp. 1247-1260, 2010.
- [14] Schwarz M. P., Improving Zinc Processing Using Computational Fluid Dynamics Modelling –Successes and Opportunities. *Minerals Engineering*, Vol. 30, pp. 12-18, 2012.
- [15] Leahy M. J. and Schwarz M. P., Flow and mass transfer modelling for copper electrowinning: development of instabilities along electrodes. *Hydrometallurgy*, Vol. 147-148, pp. 41-53, 2014.
- [16] Pourahmadi S. A. A. and Talebi S., Hydrodynamic Simulation of Two Phase Flow in an Industrial Electrowinning Cell. *Modares Mechanical Engineering*, Vol. 20, No. 1, pp. 1-12, 2020.
- [17] "ANSYS CFX-Solver Theory Guide, Release 15," ed, 2016.
- [18] König J., Velocity Measurements Inside the Concentration Boundary Layer during Copper-Magneto-Electrolysis Using a Novel Laser Doppler Profile Sensor. *Electrochimica Acta*, Vol. 56, No. 17, pp. 6150-6152, 2011
- [19] Geankoplis C., *Transport Processes and Separation Process Principles*. PTR Prentice Hall, 2003.
- [20] Brennen C. E., *Fundamentals of multiphase flow*. Cambridge university press, 2005.
- [21] Celik I. B., "Introductory turbulence modeling," ed: Virginia, Western Virginia University, 1999.
- [22] Gendron A. and Ettel V., Hydrodynamic Studies in Natural and Forced Convection Electrowinning Cells. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, Vol. 53, No. 1, pp. 36-40, 1975.
- [23] Werner J. M., *Modeling and Validation for Optimization of Electrowinning Performance*. Doctor of Philosophy, The University of Utah, 2017.
- [24] Sutherland W., The Viscosity of Gases & Molecular Force. *Philosophical Magazine*, Vol. 36, pp. 507-531, 1893.
- [25] Moats M. S., Hiskey J. B., The Effect of Copper, Acid, and Temperature on the Diffusion Coefficient of Cupric Ions in Simulated Electrorefining Electrolytes. *Hydrometallurgy*, Vol. 56, No. 3, pp. 255-268, 2000.
- [26] Poutousi M. Combination of Computational Fluid Dynamics (CFD) & Adaptive Neuro-fuzzy System (ANFIS) for Prediction of the Bubble Column Hydrodynamics. *Powder Technology*, Vol. 274, pp. 466-481, 2015.

پرداخته شده است. به دست آوردن ضرایب انتقال جرم نیاز مهمی جهت بهینه سازی سلول های الکترووینینگ در جهت کمیت و کیفیت تولید مس می باشد. جهت اعتبارسنجی ضرایب انتقال جرم به دست آمده از یک سلول با روابط آزمایشگاهی که در مقالات مختلف انعکاس یافته، مقایسه شده است. نتایج حاکی از خطای بیشینه ۰/۵٪ بود. جهت اعتبارسنجی همچنین این مقدار با ضرایب انتقال جرم واقعی سلول میدوک مقایسه شده است. با به دست آوردن اطلاعات تولید و وزن کاتد و متوسط شرایط کاری و به کارگیری آنها در مدل، این ضریب در سلول واقعی به دست آمد که نتایج نشان از انحراف کم تر از ۲٪ بین ضریب انتقال جرم واقعی صنعتی در مقایسه با ضرایب انتقال جرم شبیه سازی داشت. در قدم بعد جهت بهره بردن از مدل به دست آمده به مطالعه اثر کاهش فاصله بین الکترودها در سلول، اثر استفاده از تزریق اکسیژن از طریق ورودی الکترولیت به داخل سلول روی ضریب انتقال جرم سلول، اثر افزایش دبی ورودی سلول الکترووینینگ و اثر تغییر دمای الکترولیت ورودی به سلول الکترووینینگ پرداخته شده است. نتایج حاکی از آن است که تزریق اکسیژن به مقدار ۱۶ لیتر بر ثانیه داخل سلول از ورودی الکترولیت ضریب انتقال جرم را ۷٪ افزایش می دهد. افزایش دبی ورودی الکترولیت روی ضریب انتقال جرم مس به کاتد بی تأثیر است و افزایش دمای الکترولیت ورودی، ضریب انتقال جرم آن را افزایش می دهد به این ترتیب که با افزایش ۱۵ درجه سلسیوس در دامنه کاری حدود ۱۰٪ ضریب انتقال جرم افزایش یافته است. در پایان ضریب انتقال جرم محلی روی سطح کاتد و خط وسط کاتد از پایین به بالا، به دست آمده است. نتایج نشان از تغییرات ضریب انتقال جرم در حدود ۱۰ سانتی متری بالای کاتد می دهد که روی کیفیت سطح کاتد، مؤثر است.

## ۵- مراجع

- [1] Al Shakarji R., *Mechanisms of Acid Mist Formation in Electrowinning*. PhD. thesis, James Cook University, 2012.
- [2] Sigrist L. and Dossenbach O., Mass Transport in Electrolytic Cells with Gas Sparging. *International Journal Heat and Mass Transfer*, Vol. 22, p. 7, 1979.
- [3] Raju G. J. V. J., Venkateswarlu P., Rao S. S., and Sarma C. B., Effect of Longitudinal Distance of Electrode on the Ionic mass Transfer on the Confining Wall of a Stirred Vessel. *Indian J. Technol.*, Vol. 5, p. 5, 1979.
- [4] Raju C. R., Raju G. J., and Rao C. V., Effect of pulsation on mass transfer coefficients Ionic mass transfer. *indian J. Technol.*, Vol. 5, p. 5, 1967.
- [5] Fisher K. G. and Hughes R. G., Application of Periodic Current Reversal (P.C.R.) to Electrolytic Copper Refining at Mufulira. *Trans. Inst. Min. metall*, p. 12, 1971.
- [6] Rao V. P., *Mass Transfer Cylinders Rotating about Parallel Axes*. Ph. D. thesis, Andhra university, 1974.
- [7] Graydon J. and Kirk D., Suspension Codeposition in Electrowinning Cells: The Role of Hydrodynamics. *Can. J. Chem. Eng.* Vol. 69, p. 7, 2001.
- [8] Najim S. T., Estimation of Mass Transfer Coefficient for Copper Electrowinning Process. *Journal of Engineering*, Vol. 22, p. 11, 2016.
- [9] Beukes N. T. and Badenhorst J., Copper Electrowinning: Theoretical and Practical Design. presented at the