

## مطالعه اثر میدان مغناطیسی بر عملکرد سلول‌های رسوبگیری الکتروشیمیایی مس به کمک دینامیک سیالات محاسباتی

مه جبین نجمی نوری<sup>۱</sup>، علی محبی<sup>۱\*</sup>، روح الله صادقی<sup>۲</sup>، کامبیز افروز<sup>۳</sup>، بابک قدمی عربی<sup>۴</sup>

۱. گروه مهندسی شیمی، دانشکده فنی و مهندسی، دانشگاه شهید باهنر کرمان، کرمان، ایران
۲. گروه مهندسی شیمی، دانشکده فنی و مهندسی، موسسه آموزش عالی جهاد دانشگاهی استان اصفهان، اصفهان، ایران
۳. گروه مهندسی برق، دانشکده فنی و مهندسی، دانشگاه شهید باهنر کرمان، کرمان، ایران
۴. مجتمع مس سرچشمه، کرمان، ایران

### مشخصات مقاله

تاریخچه مقاله:

دریافت: ۳۰ آذر ۱۳۹۸

دریافت پس از اصلاح: ۱۴ اسفند ۱۳۹۸

پذیرش نهایی: ۱۳ تیر ۱۳۹۹

### کلمات کلیدی:

رسوبگیری الکتریکی مس  
میدان مغناطیسی  
دینامیک سیالات محاسباتی  
جابه جایی هیدرودینامیک مغناطیسی  
جابه جایی طبیعی

\* عهده دار مکاتبات

amohebbi2002@yahoo.com

amohebbi@uk.ac.ir

### چکیده

در روش‌های رسوبگیری الکتروشیمیایی مس، با اعمال جریان الکتریکی بین دو الکتروود غوطه ور در الکتروولیت شامل  $\text{CuSO}_4\text{-H}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}$ ، مس روی سطح الکتروود کاند رسوب می‌کند. حضور میدان مغناطیسی تاثیر قابل توجهی بر عملکرد سل‌های رسوبگیری الکتروشیمیایی دارد. مهمترین نقش‌های میدان مغناطیسی در این فرآیندها نیروی لورنتز، جابه جایی هیدرودینامیک مغناطیسی (MHD convection) و اثر متقابل آن با جابه جایی طبیعی ناشی از گرادیان غلظت هستند. در این مطالعه به کمک دینامیک سیالات محاسباتی (CFD)، شبیه سازی دو بعدی و ناپایدار سل‌های الکتروولیز (تک فازی) و الکترووینینگ (دو فازی - مایع-گاز)) مس در حضور میدان مغناطیسی انجام شد. معادلات انتقال جرم ذرات نرنست- پلانک، مومنتوم و پتانسیل الکتریکی به کمک روش حجم محدود حل شده‌اند. در شبیه سازی دو فازی سل الکترووینینگ مس روش اولرین-لاگرانژین برای الکتروولیت و گاز اکسیژن به کار برده شد. نتایج شبیه سازی فرآیند الکتروولیز تطابق خوبی با داده‌های آزمایشگاهی ارائه شده توسط مولنهایف و همکارانش داشت. پس از اعتبار سنجی مدل، تغییرات غلظت مس و سرعت الکتروولیت دو فرآیند مطالعه و با هم مقایسه شد. نتایج شبیه سازی نشان داد که اثر متقابل بین جابه جایی MHD و جابه جایی طبیعی و همچنین انباشته شدن لایه‌های غلظتی باعث کاهش سرعت الکتروولیت می‌شود. در نتیجه کاهش سرعت در فرآیند الکترووینینگ دیرتر از فرآیند الکتروولیز اتفاق می‌افتد، اما کاهش سرعت الکتروولیت در مرحله دوم فرآیند الکترووینینگ مس حدود ۹۳٪ و خیلی بیشتر از کاهش ۳۳٪ در فرآیند الکتروولیز مس است.

حقوق ناشر محفوظ است.

۱- مقدمه

در سطح آند مولکول‌های آب هیدرولیز شده و حباب‌های اکسیژن طبق واکنش زیر روی آن تولید می‌شوند:



هرچه اختلاط در محلول الکترولیت بیشتر باشد باعث می‌شود که محلول تخلیه شده از یون‌های مس در لایه‌ی مرزی غلظت با محلول غنی از یون‌های مس سریعتر جایگزین شده و واکنش کاهش روی سطح کاتد سریعتر رخ دهد.

حضور میدان مغناطیسی در فرآیندهای رسوبگیری الکتروشیمیایی فلز سبب ایجاد نیروی لورنتز و جابه‌جایی هیدرودینامیک مغناطیسی (MHD convection) در الکترولیت می‌شود. این نیرو به صورت معادله (۶) بیان می‌شود:

$$\vec{F} = \vec{j} \times \vec{B} \quad (6)$$

که در این معادله  $\vec{j} (\text{A/m}^2)$  چگالی جریان الکتریکی و  $\vec{B} (\text{T})$  بردار میدان مغناطیسی است. طبق قانون دست راست جهت این نیرو بر  $\vec{j}$  و  $\vec{B}$  عمود است. اگر خطوط میدان مغناطیسی عمود بر خطوط میدان الکتریکی باشند نیروی لورنتز ماکزیمم مقدارش را دارد و در صورت موازی بودن خطوط میدان‌ها این نیرو قابل صرف نظر کردن است [۴]. چرخش ایجاد شده در محلول الکترولیت توسط نیروی لورنتز در مقایسه با چرخش مکانیکی تاثیر بیشتری بر عملکرد سل دارد، به دلیل اینکه چرخش مکانیکی باعث انتقال یون‌ها در بالک الکترولیت می‌شود و تاثیر زیادی بر انتقال یون‌ها در لایه‌ی نفوذی نزدیک سطح الکتروود ندارد، در حالیکه چرخش ناشی از حضور میدان مغناطیسی در هر جایی که یون در حرکت باشد مشاهده شده و تاثیر آن حتی در لایه‌ی نفوذی نیز دیده می‌شود [۵]. مزیت دیگر چرخش ناشی از نیروی لورنتز نسبت به چرخش مکانیکی این است که با محلول الکترولیت تماس فیزیکی ندارد [۶]. در نتیجه حضور میدان مغناطیسی در فرآیندهای رسوبگیری الکتروشیمیایی فلز تاثیر قابل توجهی بر کیفیت رسوب، انتقال جرم و بازده جریان دارد.

برای اولین بار راگسدال و همکارانش [۷] در سال ۱۹۹۷ میکروالکتروودها در فرآیند مگنتوالکترولیز را مورد مطالعه قرار دادند. آنها عبارتی برای نیروی مغناطیسی ایجاد شده توسط میدان مغناطیسی یکنواخت در لایه‌ی مرزی بیان کردند. هیندز و همکارانش [۸] در سال ۲۰۰۱ به بررسی و مقایسه‌ی کل نیروهای وارد بر الکترولیت در حضور و عدم حضور میدان مغناطیسی پرداختند. مقایسه‌ی کمی آنها نشان داد که نیروهای

به طور کلی مس از دو روش مهم استخراج می‌شود که شامل روش پیرومتالورژی (خشک) و روش هیدرومتالورژی (تر) می‌باشد. روش پیرومتالورژی برای استخراج مس از کانی‌های سولفیدی به کار می‌رود در حالیکه کانی‌های اکسیدی برای عملیات هیدرومتالورژی مناسب می‌باشند [۱]. فرآیندهای رسوبگیری الکترولیز و الکترووینینگ به ترتیب مراحل نهایی روش‌های پیرومتالورژی و هیدرومتالورژی می‌باشند.

سلول الکترولیز شامل آند مسی با درصد خلوص ۹۹/۶ درصد، کاتد مس خالص ۹۹/۹۹ درصد و الکترولیت  $\text{CuSO}_4\text{-H}_2\text{SO}_4$  می‌باشد. در این روش با اعمال جریان الکتریکی بین الکتروودها مس ناخالص آندی در الکترولیت حل شده (واکنش (۱)) و به صورت خالص بر روی کاتد رسوب می‌کند (واکنش (۲)) و پتانسیل واکنش کلی (۳) از لحاظ تئوری برابر صفر است. در این روش مس خالص تولید شده و از طرف دیگر سبب جداسازی ناخالصی‌های ارزشمندی (برای مثال طلا و نقره) از مس و تولید آنها به صورت محصولات جانبی می‌شود [۲].



سلول الکترووینینگ شامل آند سربی، کاتد مسی و الکترولیت می‌باشد. در این فرآیند بازیابی الکتروشیمیایی مس با درصد خلوص بالا از محلول الکترولیت اسیدی باردار در حضور ناخالصی‌ها انجام می‌شود به طوریکه با اعمال جریان الکتریکی بین دو الکتروود غوطه‌ور در الکترولیت (شامل  $\text{CuSO}_4\text{-H}_2\text{SO}_4$  و  $\text{H}_2\text{O}$ )، یون‌های مس داخل الکترولیت روی کاتد تخلیه و حباب‌های اکسیژن هم روی آند تولید می‌شوند. حباب‌ها از محلول الکترولیت عبور نموده و در فصل مشترک الکترولیت- هوا می‌ترکند [۳].

واکنش کاهش یون‌های مس که روی کاتد اتفاق می‌افتد و سبب رسوب کردن مس روی آن می‌شود همان واکنش (۲) است. واکنش ثانویه کاتدی که سبب رهاسازی هیدروژن می‌شود عبارتست از:



نفودی و مهاجرت الکترونی نقش مهمی در انتقال جرم دارند. همچنین در حضور میدان مغناطیسی یکنواخت، نیروهای لورنتز و الکتروستاتیک تاثیر قابل توجهی در جابه‌جایی و انتقال جرم دارند.

تاثیر نیروی لورنتز بر انتقال‌های جرم و مومنتوم در مگنتوالکترولیز مس به صورت آزمایشگاهی توسط ویر و همکارانش [۹] در سال ۲۰۰۵ مورد بررسی قرار گرفت. نتایج نشان داد در ابتدای واکنش نیروی لورنتز و سرعت ماکزیمم هستند و ضخامت لایه مرزی حداقل مقدار را دارد. ماتشکه و باند [۱۰] در سال ۲۰۰۸ نشان دادند که در رسوبگیری الکتروشیمیایی فلز تحت تاثیر میدان مغناطیسی همگن، دو بعدی در نظر گرفتن جریان باعث می‌شود که تاثیر قسمت سلونوئیدی نیروی لورنتز و در نتیجه جابه‌جایی MHD در نظر گرفته نشود و حتما باید جریان سه بعدی در نظر گرفته شود.

تاثیر نیروی لورنتز در جهت مخالف با نیروی شناوری بر شروع جابه‌جایی طبیعی در فرآیند الکترولیز مس توسط یانگ و همکارانش [۱۱] در سال ۲۰۰۸ مورد بررسی قرار گرفت. سرعت و غلظت الکترولیت به ترتیب با سرعت‌سنج تصویری ذرات<sup>۱</sup> (PIV) و تداخل‌سنج<sup>۲</sup> Mach-Zehnder اندازه‌گیری شدند. نتایج نشان داد که لایه مرزی غلظتی در نبود میدان مغناطیسی به آرامی گسترش پیدا می‌کند در حالیکه گسترش آن در شروع فرآیند الکترولیز در حضور میدان مغناطیسی غیریکنواخت به شدت ناپایدار مشاهده شد. دلیل آن حرکت حباب گونه‌ی الکترولیت با غلظت پایین از پایین کاتد به سمت بالا بود. یانگ و همکارانش [۱۲] در سال ۲۰۰۹ به مطالعه رفتار جابه‌جایی MHD در فرآیند الکترولیز مس در حضور میدان مغناطیسی ناهمگن پرداختند. توزیع‌های سرعت و غلظت الکترولیت قبل و بعد از برعکس کردن جریان الکتریکی اندازه‌گیری شدند. جابه‌جایی MHD با افزایش زمان کاهش پیدا کرد. بعد از معکوس کردن جهت جریان الکتریکی، برای مدت زمان کوتاهی نیروی لورنتز نیروی غالب در سل بود سپس به تدریج به ناحیه‌ی مرکزی سل محدود شد و سرعت الکترولیت کاهش پیدا کرد. ماتشکه و همکارانش [۱۳] در سال ۲۰۱۰ به مرور مطالعات مربوط به شبیه‌سازی مگنتوالکترولیز مس با روش المان محدود در حضور دو میدان مغناطیسی یکنواخت با جهت‌های متفاوت پرداختند.

تاثیر میدان مغناطیسی خطی بر توزیع‌های غلظت و سرعت الکترولیت در فرآیند الکترولیز مس توسط مولنهایف و همکارانش [۶] در سال ۲۰۱۲ مورد بررسی قرار گرفت. آزمایش‌ها در یک سلول مکعبی با الکترودهای عمودی انجام گرفت. آنها همچنین صفحه عمودی میانی سل را توسط نرم‌افزار کامسول شبیه‌سازی کرده و نتایج را با داده‌های آزمایشگاهی مقایسه کردند، تطابق خوبی بین داده‌ها مشاهده شد. در این مطالعه نقش جابه‌جایی MHD در الگوی چرخشی جریان به طور کامل توضیح داده شد. هوانگ و همکارانش [۱۴] در سال ۲۰۱۹ به بررسی آزمایشگاهی و عددی انتقال جرم و جریان الکترولیت در فرآیند رسوبگیری الکتریکی مس روی یک الکتروود دیامغناطیس مخروطی شکل تحت تاثیر میدان مغناطیسی پرداختند. میدان مغناطیسی توسط یک مگنت استوانه ای دائم (NdFeB)<sup>۳</sup> با میدان مغناطیسی سطحی  $0.06\text{ T}$  اعمال شد. اندازه‌گیری غلظت با استفاده از تداخل‌سنج Mach-Zehnder انجام شد. برای اندازه‌گیری سرعت الکترولیت ذرات کرومی پلی استایرن با قطر ۳۶ میکرومتر به الکترولیت اضافه و با استفاده از لیزر داخل سل را روشن کرده و با یک دوربین حرکت الکترولیت در طی زمان S ۹۰ را ضبط کردند. در نهایت این تصاویر را با استفاده از کدهایی در نرم‌افزار متلب بررسی کردند. شبیه‌سازی سل توسط برنامه تحلیل دینامیک سیال<sup>۴</sup> FIDAP که بر اساس روش المان محدود است انجام شد. نتایج نشان داد که جریان رو به بالای بویانسی با جریان ایجاد شده توسط نیروی لورنتز مقابله می‌کند. اثر مطلوب نیروی لورنتز که باعث جابه‌جایی الکترولیت غنی به سمت نوک مخروط و افزایش نرخ رسوبگیری در این ناحیه می‌شود فقط در زمان‌های ابتدایی رسوبگیری غالب است و پس از آن نیروی بویانسی بر جریان سیال غالب است.

مطالعات آزمایشگاهی و عددی متعددی در مورد بررسی اثر حضور میدان مغناطیسی بر عملکرد سل الکترولیز مس صورت گرفته است اما هنوز مطالعاتی در مورد تاثیر حضور میدان مغناطیسی بر عملکرد سل الکترووینینگ مس انجام نشده است. از طرف دیگر اغلب شبیه‌سازی‌ها با استفاده از روش المان محدود<sup>۵</sup> انجام شده‌اند در حالیکه روش حجم محدود<sup>۶</sup> (FVM) خصوصا در مواردی که گرادیان زیاد است، دقیق‌تر می‌باشد [۱۵]. هدف از این مطالعه استفاده از روش دینامیک سیالات محاسباتی به منظور بررسی تاثیر حضور میدان مغناطیسی خطی بر رفتار الگوی جریان الکترولیت، توزیع غلظت

<sup>4</sup> Fluid Dynamics Analysis Program

<sup>5</sup> Finite Element Method

<sup>6</sup> Finite Volume Method

<sup>1</sup> Particle Image Velocimetry

<sup>2</sup> Interferometer

<sup>3</sup> Neodymium- iron- boron

الکتریکی) است. در نتیجه به یک معادله‌ی دیگر که معادله‌ی پتانسیل الکتریکی می‌باشد نیاز است.

پتانسیل الکتریکی را می‌توان با استفاده از قانون بقای بار که در معادله (۸) بیان شده است بدست آورد [۱۶].

$$\nabla \cdot \vec{j} = 0 \quad (8)$$

در مایعات (یا فاز الکترولیت)، چگالی جریان الکتریکی به صورت شار خالص اجزا باردار (i) به صورت زیر بیان می‌شود:

$$\vec{j} = F \sum_i z_i N_i = F \left( - \sum_i z_i D_i \nabla c_i + u \sum_i z_i c_i - \nabla \phi \sum_i z_i^2 m_i F c_i \right) \quad (9)$$

که  $N_i$  چگالی شار تولید شده جز  $i$  توسط نفوذ، جابه‌جایی و همرفت اجزا در میدان الکتریکی است.  $m_i$  ضریب تحرک جز  $i$  است و طبق معادله‌ی زیر حساب می‌شود:

$$m_i = \frac{|z_i| e}{6\pi\mu R_i} \quad (10)$$

در این معادله  $(C \times 10^{-19} \times 1.60217 \times 10^{-19})$ ،  $e$  (kg/m.s) و  $\mu$  (m) و  $R_i$  بار الکترون، ویسکوزیته دینامیکی الکترولیت و شعاع یون هستند. برای ساده کردن معادله (۹) از فرضیه‌ی خنثی بودن محلول از نظر الکتریکی طبق معادله (۱۱) استفاده می‌شود. این معادله بیان می‌کند که محلول الکترولیت در هر زمان در تمام مکان‌ها از نظر الکتریکی خنثی است [۱۷].

$$\sum_i z_i c_i = 0 \quad (11)$$

با این فرض ترم دوم معادله (۹) حذف می‌شود. علاوه بر این، برای الکترولیت‌های به خوبی مخلوط شده اولین ترم این معادله در مقایسه با ترم آخر قابل صرف نظر کردن است. در نتیجه تنها ترم آخر در معادله (۹) باقی می‌ماند. با این فرضیات قانون بقای بار به شکل معادله لاپلاس زیر ساده می‌شود:

$$\nabla \cdot (\kappa \nabla \phi) = 0 \quad (12)$$

در این معادله  $\kappa$  (S/m) ضریب هدایت الکتریکی یونی است و به صورت زیر قابل محاسبه است [۱۶].

$$\kappa = F^2 \sum_i z_i^2 m_i c_i \quad (13)$$

معادله ناویه-استوکس برای حرکت الکترولیت با فرضیات جریان تراکم ناپذیر ( $\nabla \cdot \vec{u} = 0$ )، جریان آرام و تقریب بوزینسک به صورت معادله (۱۴) بیان می‌شود [۸]:

$$\frac{d\vec{u}}{dt} + \vec{u} \cdot \nabla \vec{u} = - \frac{\nabla p}{\rho_0} + \nu \nabla^2 \vec{u} + \vec{f} \quad (14)$$

مس و توزیع سرعت الکترولیت در سل‌های الکترولیز و الکتروپینینگ مس است. در این مطالعه ابتدا سل الکترولیز مس شامل یک جفت الکتروود کاتد و آند با استفاده از نرم‌افزار ANSYS Fluent 18.2 شبیه‌سازی شده و نتایج شبیه‌سازی با داده‌های تجربی اندازه‌گیری شده توسط مولنهایف و همکارانش [۶] اعتبارسنجی شدند. سپس جریان دو فازی الکترولیت و حبابهای گازی اکسیژن در یک سل الکتروپینینگ مس در حضور دو میدان مغناطیسی با جهت‌های مختلف شبیه‌سازی شده و عملکرد آنها با سل الکترولیز مورد بررسی و مقایسه قرار گرفت.

## ۲- معادلات حاکم

در این بخش معادلات حاکم برای دو فاز پیوسته و گسسته آورده می‌شوند. برای حل این معادلات فرضیات دو بعدی، جریان تراکم ناپذیر برای فازهای مایع و گاز، جریان آرام، تقریب بوزینسک، خنثی بودن محلول از نظر الکتریکی (بقای بار)، ناچیز بودن گرادیان میدان مغناطیسی و نیروی ناشی از آن در نظر گرفته شده است.

### ۲-۱- معادلات فاز پیوسته

انتقال جرم ذرات در محلول الکترولیت رقیق طبق معادله نرنست-پلانک (معادله (۷)) بیان می‌شود. این معادله انتقال جرم ذرات (یون‌ها) را به گرادیان غلظت یون‌ها و میدان الکتریکی مرتبط می‌کند.

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} + (u \cdot \nabla) c_i = D_i \Delta c_i + z_i \frac{D_i}{RT} F \nabla \cdot (c_i \nabla \phi) \quad (7)$$

که در این معادله  $c_i$  (mol/L)،  $u$  (m/s)،  $D_i$  (m<sup>2</sup>/s)،  $z_i$  (-)،  $\phi$  (V) به ترتیب غلظت جز  $i$ ، سرعت الکترولیت، ضریب نفوذ جز  $i$ ، تعداد بارهای ابتدایی، ثابت فاراده، ثابت عمومی گازها، دما و پتانسیل الکتریکی هستند [۶]. آخرین ترم در این معادله بیانگر نیروی الکتریکی وارد بر ذرات باردار و مهاجرت آنها در الکترولیت است و به دلیل کوپل کردن معادله نرنست-پلانک با پتانسیل الکتریکی موجب پیچیدگی حل این معادله می‌شود [۱۳]. سیستم معادلات نرنست-پلانک شامل  $i$  معادله است که  $i$  تعداد ذرات باردار (در این مطالعه  $\text{Cu}^{2+}$  و  $\text{SO}_4^{2-}$ ) است، در حالیکه تعداد مجهولات مسئله  $i+1$  تا غلظت یون و ۱ پتانسیل

سمت الکترودها با بار مخالف می‌شود. این انتقال نیرو محرکه‌ای برای مهاجرت یون‌ها است [۱۹].

نیرو محرکه جابه‌جایی طبیعی ناشی از گرادیان غلظت یا گرادیان چگالی ( $\rho_{bulk} > \rho_N$ ) است که این گرادیان چگالی هم نتیجه‌ی تخلیه‌ی الکترولیت از کاتیون‌ها نزدیک کاتد (لایه‌ی نرنست،  $\rho_N$ ) یا حل شدن آن در محلول الکترولیت می‌باشد. در نتیجه‌ی این نیرو محرکه المان‌های حجمی الکترولیت در این لایه‌ی نازک نزدیک کاتد به سمت بالا رانده می‌شوند و در نزدیک آنند به سمت پایین حرکت می‌کنند [۲۰]. لازم به ذکر است که جابه‌جایی طبیعی به عنوان نیروی شناوری مرتبط با غلظت نیز شناخته می‌شود. نیروی جابه‌جایی اجباری ناشی از جریان سیال در رینولدزهای بالا یا وجود الکترودها چرخان است، در این مطالعه الکترودها ساکن بوده و برای وجود یا عدم وجود این نیرو باید مقدار دو عدد بدون بعد رینولدز و رایلی با استفاده از فرمول‌های (۱۵) و (۱۶) محاسبه شوند.

$$Re = \frac{ud}{\nu} \quad (15)$$

$$Ra = \frac{g \cdot \beta \cdot m^0 \cdot H^4}{\nu^2 \cdot D} \quad (16)$$

در این معادلات  $d$  (m) فاصله بین الکترودها،  $\nu$  ( $m^2/s$ ) ویسکوزیته سینماتیک،  $g$  ( $m/s^2$ ) شتاب جاذبه،  $\beta$  ( $m^3/kg$ ) ضریب انبساط فلز،  $m^0$  ( $kg/m^2 \cdot s$ ) شار جرمی فلز مورد نظر،  $H$  (m) ارتفاع الکترودها و  $D$  ( $m^2/s$ ) ضریب نفوذ فلز است [۳].

حضور میدان مغناطیسی در طول فرآیند می‌تواند  $\delta$  نیرو ایجاد کند. زمانیکه میدان مغناطیسی بر یک الکترولیت با غلظت غیر یکنواختی از یون‌ها در لایه‌ی نرنست اعمال می‌شود، گرادیان پذیرفتاری مغناطیسی ( $\chi_m$ ) (به دلیل تخلیه‌ی الکترولیت از یون‌های پارامغناطیس  $Cu^{2+}$  در ناحیه‌ی لایه نرنست نزدیک کاتد و افزایش غلظت این یون‌ها در نزدیکی آنند، در این نواحی گرادیان غلظت و در نتیجه گرادیان پذیرفتاری مغناطیسی ایجاد می‌شود) باعث بوجود آمدن نیروی پارامغناطیس می‌شود. این نیرو در راستای موازی با نیرو محرکه‌ی نفوذی ( $\vec{\nabla}c$ ) اما در خلاف جهت آن اثر می‌کند و در نتیجه باعث کاهش نرخ جرمی رسوبگیری می‌شود. در رسوبگیری‌هایی که نفوذ کنترل کننده است، این نیرو می‌تواند یکی از قویترین نیروهایی باشد که در ناحیه‌ی مجاور الکترودها اثر می‌کند [۲۱].

نسبت نیرو محرکه‌ی نیروی ناشی از گرادیان پذیرفتاری مغناطیسی ( $B^2 \chi_m \vec{\nabla}c / 2\mu_0$ ) به نیرو محرکه گرادیان غلظت

در این معادله  $\rho_0$  ( $kg/m^3$ )،  $p$  ( $N/m^2$ ) و  $\nu$  ( $m^2/s$ ) به ترتیب فشار، چگالی و ویسکوزیته سینماتیکی بالک الکترولیت هستند. ترم  $\vec{F}$  مجموع نیروهای حجمی خارجی است که بر الکترولیت عمل می‌کنند [۱۸]. به طور کلی نیروهای وارد بر سیال به دو نوع سطحی و حجمی تقسیم می‌شوند. نیروهای سطحی شامل نیروهای فشار و ویسکوز می‌باشند که وجودشان به دلیل تنش سطحی و حرکت سیال است. نیروهای سطحی به صورت صریح وارد معادله ممنوم می‌شوند و نیروهای حجمی به صورت ترم چشمه ظاهر می‌شوند. خلاصه‌ای از نیروهای حجمی که می‌توانند به محلول الکترولیت در حضور یا عدم حضور میدان مغناطیسی وارد شوند در جدول (۱) آورده شده است [۸].

جدول (۱) نیروهای وارد شده بر الکترولیت در فرآیند

رسوبگیری الکتروشیمیایی مس [۸]

نیرو	عبارت
نفوذ ( $\vec{F}_D$ )	$-RT\vec{\nabla}c$
مهاجرت	$zFc\vec{\nabla}V$
جابه‌جایی اجباری	$\rho(r\omega)^2 / 2\delta_0$
جابه‌جایی طبیعی	$\rho_0\beta_c g(c-c_0)$
درگ ویسکوز	$\eta\nabla^2 v$
پارامغناطیس ( $\vec{F}_P$ )	$B^2\chi_m\vec{\nabla}c/2\mu_0$
گرادیان میدان مغناطیسی ( $\vec{F}_B$ )	$\chi_m c B \vec{\nabla}B / \mu_0$
لورنتز ( $\vec{F}_L$ )	$\vec{j} \times \vec{B}$
الکتروسینتیک ( $\vec{F}_E$ )	$\sigma_d E_{\square} / \delta_0$
تعدیل مغناطیسی ( $\vec{F}_M$ )	$\sigma \vec{u} \times \vec{B} \times \vec{B}$

چهار نیروی مستقل از حضور میدان مغناطیسی نیروهای نفوذی، مهاجرت، جابه‌جایی‌های طبیعی و اجباری هستند. نیروی محرکه نفوذی فقط در ناحیه‌ی لایه مرزی نزدیک کاتد، جایی که گرادیان غلظت وجود دارد قابل توجه است و مقدار آن در بالک الکترولیت قابل صرف نظر کردن است [۸]. اعمال میدان الکتریکی سبب حرکت ذرات یونی محلول الکترولیت به

چگالی  $\beta_c$  (L/mol) ضریب تراکم است که طبق معادله (۲۰) چگالی الکترولیت را به اختلاف غلظت مرتبط می‌کند.

$$\beta_c = \frac{1}{\rho} \frac{\partial \rho}{\partial c} \quad (20)$$

چگالی الکترولیت برای محلول‌های رقیق دوتایی طبق معادله (۲۱) محاسبه می‌شود.

$$\rho(x, y) = \rho_0 (1 + \beta_c \Delta c) \quad (21)$$

## ۲-۲- معادلات فاز ناپیوسته

نرم افزار ANSYS Fluent 18.2 مسیر حرکت ذرات فاز گسسته را با حل معادله موازنه نیرو روی ذرات در قاب مرجع لاگرانژی پیش بینی می‌کند. این معادله به صورت زیر بیان می‌شود [۱۶]:

$$\frac{d\vec{u}_p}{dt} = F_D(u-u_p) + \frac{g(\rho_p - \rho)}{\rho_p} \quad (22)$$

که در این معادله  $F_D(u-u_p)$  و  $\frac{g(\rho_p - \rho)}{\rho_p}$  به ترتیب بیانگر نیروهای درگ، شناوری و وزن وارد بر ذره به ازای واحد جرم آن هستند.

$u_p$  (m/s) و  $\rho_p$  (kg/m<sup>3</sup>) به ترتیب سرعت و چگالی ذره (حباب اکسیژن) هستند و  $F_D$  برابر است با:

$$F_D = \frac{18\mu C_D Re}{\rho_p d_p^2} \quad (23)$$

در این معادله  $C_D$  ضریب درگ،  $d_p$  (m) قطر ذره (حباب اکسیژن) و  $Re$  عدد رینولدز نسبی است.

$$Re = \frac{\rho d_p |u-u_p|}{\mu} \quad (24)$$

## ۳- روش تحقیق

در این مطالعه سل‌های الکترولیز و الکترووینینگ مس شامل یک جفت الکتروود کاتد و آند در حضور میدان مغناطیسی خطی به کمک نرم‌افزار Ansys Fluent 18.2 و در شرایط دو بعدی، جریان ناپیوسته، جریان آرام و ناپایا شبیه‌سازی شده‌اند. به منظور امکان اعتبارسنجی مدل، شرایط مشابه با شرایط آزمایشگاهی مولنهایف و همکارانش [۶] انتخاب شد. برای کوپل فشار و سرعت از الگوریتم SIMPLE و از روش درونیابی مرتبه دوم برای فشار استفاده شد. روش گسسته سازی ضمنی مرتبه

$RT\bar{v}c$  برابر با  $(B^2\chi_m/2\mu_0RT)$  است. به دلیل اینکه این نسبت مقدار کوچکی دارد تاثیر نیروی پارامغناطیس در مقابل نیروی نفوذی قابل صرف نظر کردن است [۸]. غیر یکنواختی میدان مغناطیسی و وجود گرادیان میدان ( $\nabla B$ ) باعث ایجاد نیروی گرادیان میدان مغناطیسی می‌شود. این نیرو می‌تواند به وسیله منبع میدان مغناطیسی یا الکتروود مغناطیسی (نشست لایه‌های مغناطیسی یا الکتروودهای فرومغناطیس) واقع در یک میدان مغناطیسی یکنواخت ایجاد شود.

در این مطالعه فرض شده است که گرادیان میدان مغناطیسی ناچیز و  $\vec{F}_B$  صفر است.  $\vec{F}_B$  و  $\vec{F}_p$  به خواص مغناطیسی الکترولیت وابسته‌اند و از جهت اعمالی میدان مغناطیسی مستقل‌اند [۲۲]. اثر متقابل بین میدان‌های الکتریکی و مغناطیسی نیروی لورنتز را ایجاد می‌کند، این نیرو اصلی‌ترین تاثیر برداری ناشی از اعمال میدان مغناطیسی خارجی بر یونهای متحرک را دارد. طبق قانون دست راست جهت این نیرو بر  $\vec{J}$  و  $\vec{B}$  و در نتیجه بر  $\nabla c$  عمود است. تحقیقات گذشته نشان می‌دهد که انتقال جرم جابه‌جایی موثر در این حالت رخ می‌دهد [۲۳].

اگر یک میدان غیر الکترواستاتیک،  $\vec{E}_0$  (V/m)، به صورت موازی با سطح الکتروود اعمال شود، تنش برشی الکتروستاتیک بر بارهایی که در لایه نفوذی دو گانه حرکت می‌کنند اثر می‌کند [۸].

$$\vec{S}_E = \sigma_d \vec{E}_0 \quad (17)$$

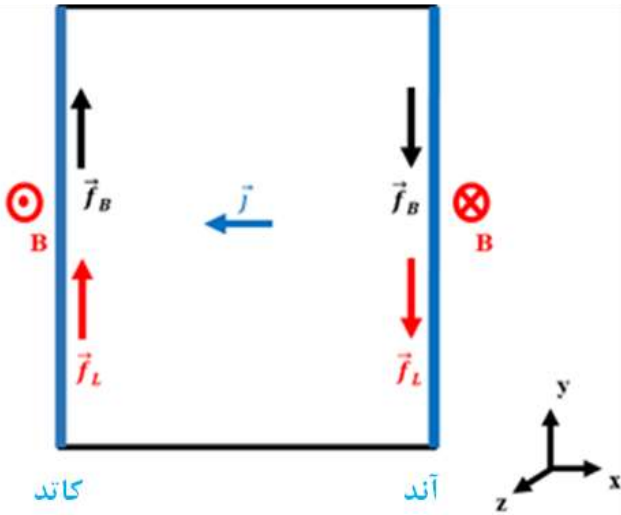
که  $\vec{S}_E$  تنش برشی الکتروستاتیک و  $\sigma_d$  (C/m<sup>2</sup>) چگالی بار هستند. از آنجا که در این مطالعه میدان الکتریکی عمود بر سطح الکتروود است، در نتیجه مقدار این نیرو صفر است. آخرین نیرو ناشی از رسانش الکترولیت است. جریان طولی در جهت B نامحدود است، اما جریان عرضی خنثی می‌شود به دلیل اینکه با نیروی مهار مغناطیسی مخالف است:

$$\vec{F}_M = \sigma \vec{v} \times \vec{B} \times \vec{B} \quad (18)$$

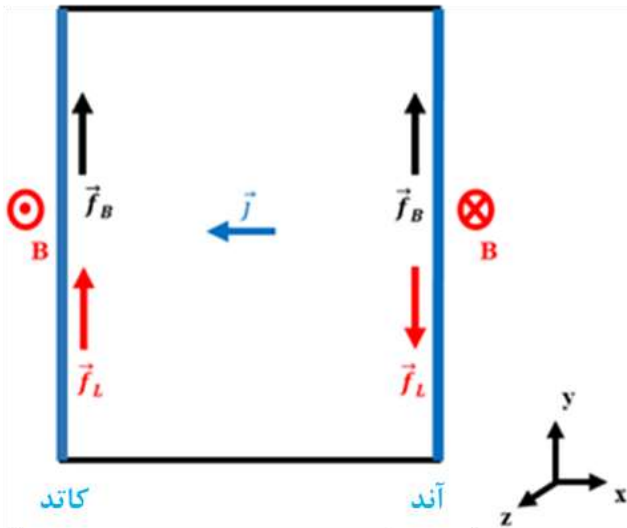
که  $\vec{v} \times \vec{B}$  میدان غیرالکترواستاتیک به علت میدان مغناطیسی اعمال شده است [۸].

در این مطالعه، در شبیه‌سازی، دو نیروی لورنتز و جابه‌جایی طبیعی (نیروی شناوری مرتبط با غلظت) به عنوان نیروهای حجمی وارد بر الکترولیت در نظر گرفته شده‌اند.

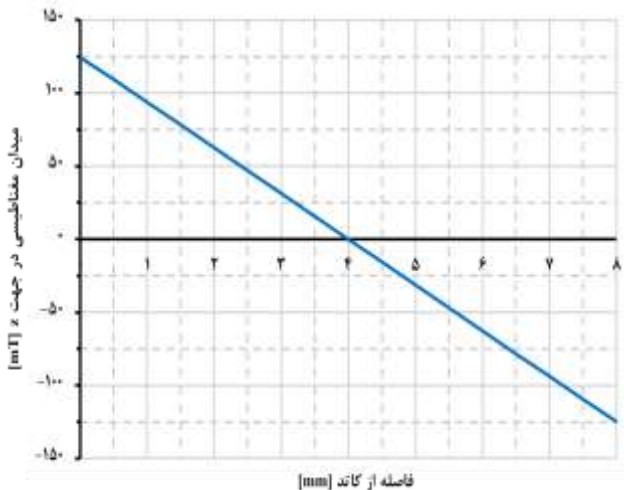
$$\vec{f} = \rho_0 \beta_c \vec{g}(c-c_0) + \vec{j} \times \vec{B} \quad (19)$$



شکل (۱) شماتیک سل الکترولیز مس، میدان مغناطیسی، نیروی لورنتز موازی با نیروی بویانسی نزدیک الکترودها



شکل (۲) شماتیک سل الکتروپینینگ مس، میدان مغناطیسی، نیروی لورنتز به ترتیب موازی و مخالف با نیروی بویانسی نزدیک کاتد و آند



اول تحت حلگر CFD مبتنی بر فشار (pressure-based) استفاده شد. همچنین روش گسسته سازی بالادست مرتبه دوم برای حل معادلات انتقال جرم و مومنتوم به کار گرفته شد. تنها تفاوت سل الکتروپینینگ شبیه سازی شده با سل الکترولیز در دو فاز بودن آن است که فاز دوم ناشی از الکترولیز آب روی آند و تولید گاز اکسیژن است. با توجه به اینکه درصد کسرهای جرمی و حجمی فاز گاز اکسیژن به ترتیب برابر با  $1.8 \times 10^{-5} \%$  و  $1.6 \times 10^{-2} \%$  هستند و شرط استفاده از مدل Discrete phase model (درصد جرمی فاز پراکنده کمتر از  $10 \%$ ) برقرار است، از این مدل دو فاز در شبیه سازی استفاده شده است.

### ۳-۱- هندسه و شرایط عملیاتی فرآیند

مطابق شکل‌های (۱) و (۲) سل الکتروشیمیایی با ابعاد  $(L 8 \text{ mm} \times W 10 \text{ mm})$  در صفحه ی XY قرار دارد و الکترودها به دو سمت مقابل سل به صورت عمودی چسبیده اند. الکترولیت محلول  $0.05$  مولار  $\text{CuSO}_4$  در آب دوبار تقطیر شده است که pH آن توسط اسید سولفوریک روی ۳ تنظیم شده است. جریان الکتریکی نیز  $2 \text{ mA}$  انتخاب شد.

مطابق شکل (۳) یک میدان مغناطیسی در راستای z بر سل الکتروشیمیایی اعمال می شود. همانطور که در معادله (۲۵) نشان داده شده است این میدان به صورت خطی با x (فاصله از الکترودها) تغییر می کند.

$$\vec{B} = B_z(x) \vec{e}_z = (B_0 + b_1 x) \vec{e}_z \quad (25)$$

در این معادله  $B_0 = 125 \text{ mT}$  و  $b_1 = -31.1 \text{ T/m}$  به ترتیب انحراف از میدان مغناطیسی و گرادیان میدان مغناطیسی خطی هستند.

در این حالت میدان‌های مغناطیسی مثبت و منفی نزدیک کاتد و آند به ترتیب باعث ایجاد نیروهای لورنتز رو به بالا و رو به پایینی نزدیک این الکترودها می شود. در سل الکترولیز این نیروها موازی نیروی شناوری مرتبط با غلظت نزدیک الکترودها هستند. در سل الکتروپینینگ این نیرو با نیروی شناوری مرتبط با غلظت در نزدیکی کاتد موازی است اما با نیروی شناوری برای فاز پراکنده (گاز اکسیژن) که به دلیل اختلاف چگالی فاز پیوسته و پراکنده ایجاد می شود و جهت آن رو به بالا است، در جهت مخالف است.

$$j = \left( \frac{c}{c_0} \right)^\gamma j_0 \left[ e^{(\alpha_a F/RT)\eta_s} - e^{-(\alpha_c F/RT)\eta_s} \right] \quad (29)$$

در این رابطه  $\eta_s$  پتانسیل اضافی سطح است که به صورت اختلاف پتانسیل بین الکتروود و الکتروولیت نزدیک سطح الکتروود بیان می‌شود.

$$\eta_s = \phi_{ed} - \phi_{el} \quad (30)$$

ثابت های  $\alpha_a$ ،  $\alpha_c$ ،  $\gamma$  و  $j_0$  به ترتیب بیانگر ضرایب انتقال بار آندی و کاتدی، معرف غلظت در رابطه بوتلر-ولمر و چگالی جریان تبدالی هستند [۶]. برای شبیه‌سازی سل خواص فیزیکی الکتروولیت و پارامترهای سینتیکی معادله بوتلر-ولمر در دمای ۲۹۸ K مورد نیاز است، که در جدول (۲) آورده شده‌اند [۶].

جدول (۲) خواص فیزیکی الکتروولیت و پارامترهای سینتیکی معادله بوتلر-ولمر [۶]

پارامترها	مقدار
چگالی الکتروولیت ( $\text{kg/m}^3$ )	۱۰۳۸
ویسکوزیته دینامیکی الکتروولیت ( $\text{kg/m s}$ )	$1.039 \times 10^{-3}$
ضریب انتقال بار آندی	۱٫۵
ضریب انتقال بار کاتدی	۰٫۵
چگالی جریان تبدالی ( $\text{A/m}^2$ )	۷٫۷۶
عدد بار یون مس	+۲
عدد بار یون سولفات	-۲
ضریب نفوذ یون مس ( $\text{m}^2/\text{s}$ )	$6.5 \times 10^{-10}$
ضریب نفوذ یون سولفات ( $\text{m}^2/\text{s}$ )	$1.0709 \times 10^{-10}$
هدایت الکتروولیت ( $\text{S/m}$ )	$0.454 \pm 0.1$

تمام مشخصات مربوط به واکنش‌ها در قسمت reaction مدل Species transport وارد شده و واکنش‌ها در قسمت مربوط به این مدل در شرایط مرزی فراخوانی می‌شوند. لازم به ذکر است که پس از انتخاب نوع واکنش الکتروشیمیایی در مدل Species transport، قسمت Potential در شرایط مرزی فعال می‌گردد. شکل (۴) خلاصه ای از شرایط مرزی اعمالی فرآیندها را نشان می‌دهد. قسمت DPM فقط برای فرآیند الکتروولیتینگ که دو فازی است در شرایط مرزی فعال می‌شود. گزینه‌های reflect و escape به ترتیب امکان منعکس شدن و خروج حباب‌های اکسیژن از مرزها را فراهم می‌کنند. به منظور خارج شدن حباب‌های اکسیژن از سطح آزاد سل، حالت escape برای این مرز انتخاب شد. قسمت UDS پس از فعال سازی مدل MHD

شکل (۳) تغییرات میدان مغناطیسی در جهت z با فاصله از کاتد ۳-۲- تعیین شرایط مرزی

در شبیه‌سازی هر دو فرآیند الکتروولیز و الکتروولیتینگ مس کاتد، آند، بالا و پایین سل به صورت دیواره تعریف شده‌اند. برای میدان سرعت، شرط مرزی عدم لغزش<sup>۷</sup> روی همه دیواره‌ها تعریف شد. برای یون‌های سولفات روی همه دیواره‌ها و یون‌های مس روی دیواره‌های بالا و پایین در هر دو فرآیند و علاوه بر آن روی آند در فرآیند الکتروولیتینگ هیچ شار جرمی در نظر گرفته نمی‌شود. مقدار شار تولیدی یا مصرفی یون‌های مس در واکنش‌های الکتروشیمیایی روی آند و کاتد با جریان الکتروولیت متناسب است و با استفاده از قانون فاراده (معادله (۲۶)) بدست می‌آید.

$$m_{Cu} = \frac{j \cdot A \cdot t \cdot M_{Cu}}{n \cdot F} \quad (26)$$

که  $m_{Cu}$  (g) جرم تولیدی یا مصرفی مس روی الکتروودها،  $A \cdot m^2$  (چگالی جریان الکتروولیت،  $A$  ( $\text{m}^2$ ) مساحت سطح کاتد،  $t$  (s) زمان انجام فرآیند،  $M_{Cu}$  ( $\text{g} \cdot \text{mol}^{-1}$ ) جرم مولکولی مس،  $n$  تعداد الکترون‌های انتقال و  $F$  ( $\text{A} \cdot \text{s} \cdot \text{mol}^{-1}$ ) ثابت فاراده و برابر با ۹۶۴۸۵ است [۲۴]. با استفاده از این قانون می‌توان مقدار گاز اکسیژن تولیدی روی آند در فرآیند الکتروولیتینگ را نیز محاسبه کرد. اگر فرض شود کل جریان الکتروولیت به گاز اکسیژن روی آند تبدیل می‌شود، سرعت سطحی گاز اکسیژن تولیدی را می‌توان طبق فرمول زیر بدست آورد.

$$v_0 = \frac{1}{4} \frac{iRT}{P_{atm} F} \quad (27)$$

که  $v_0$  ( $\text{m/s}$ ) سرعت سطحی گاز اکسیژن،  $T$  (K) دما و  $P_{atm}$  (Pa) فشار اتمسفری است. سپس با استفاده از معادله (۲۸) نرخ جرمی گاز اکسیژن تولیدی  $\dot{m}_0$  ( $\text{kg/s}$ ) محاسبه می‌شود.

$$\dot{m}_0 = \rho_0 v_0 A_{anode} \quad (28)$$

که  $\rho_0$  ( $\text{kg/m}^3$ ) چگالی اکسیژن و  $A_{anode}$  ( $\text{m}^2$ ) سطح آند است [۲۵].

جریان الکتروولیت روی سطح الکتروودها با استفاده از مدل سینتیکی بوتلر-ولمر که یکی از اساسی‌ترین روابط در سینتیک واکنش‌های الکتروشیمیایی و بیانگر ارتباط بین جریان در سطح مشترک الکتروود-الکتروولیت با پتانسیل اضافی است محاسبه می‌شود [۶].

<sup>7</sup> No-slip

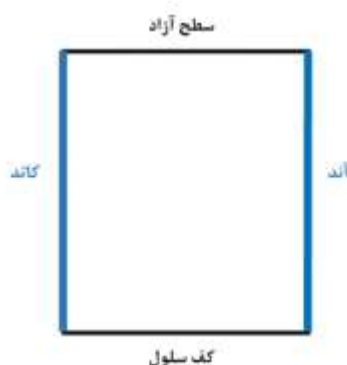


در حالی که در قسمت UDS پتانسیل الکتریکی برای مرز مشخص شود، در قسمت شرایط مرزی مدل MHD مرز به صورت رسانا تعریف می‌شود.

در شرایط مرزی فعال شده و با قسمت تعیین شرایط مرزی در خود این مدل ارتباط مستقیم دارد به طوریکه برای تعریف دیواره به صورت عایق در مدل MHD باید شرط مرزی مربوط به آن در قسمت UDS حتما حالت مربوط به عایق انتخاب شود.

قسمت	مقدار
مونتوم	شرط عدم لغزش
مدل Species	بدون واکنش
مدل DPM	رهايي (Escape)
UDS	udf mhd_bc_insulate::mhd
پتانسیل	دانسیتة جریان الکتریکی -
مدل MHD	دیواره عایق

قسمت	مقدار
مونتوم	شرط عدم لغزش
مدل Species	$Cu^{2+} + 2e^{-} \rightarrow Cu_{cathode}$
مدل DPM	پازتاب (Reflect)
UDS	تعیین مقدار پتانسیل الکتریکی
پتانسیل	تعیین مقدار دانسیته جریان الکتریکی
مدل MHD	دیواره رسانا



قسمت	مقدار
مونتوم	شرط عدم لغزش
مدل Species	تزریق اکسیژن
	الکتروپیننگ الکترولیز
مدل DPM	پازتاب (Reflect)
UDS	تعیین مقدار پتانسیل الکتریکی
پتانسیل	تعیین مقدار دانسیته جریان الکتریکی
مدل MHD	دیواره رسانا

قسمت	مقدار
مونتوم	شرط عدم لغزش
مدل Species	بدون واکنش
مدل DPM	پازتاب (Reflect)
UDS	udf mhd_bc_insulate::mhd
پتانسیل	دانسیتة جریان الکتریکی -
مدل MHD	دیواره عایق

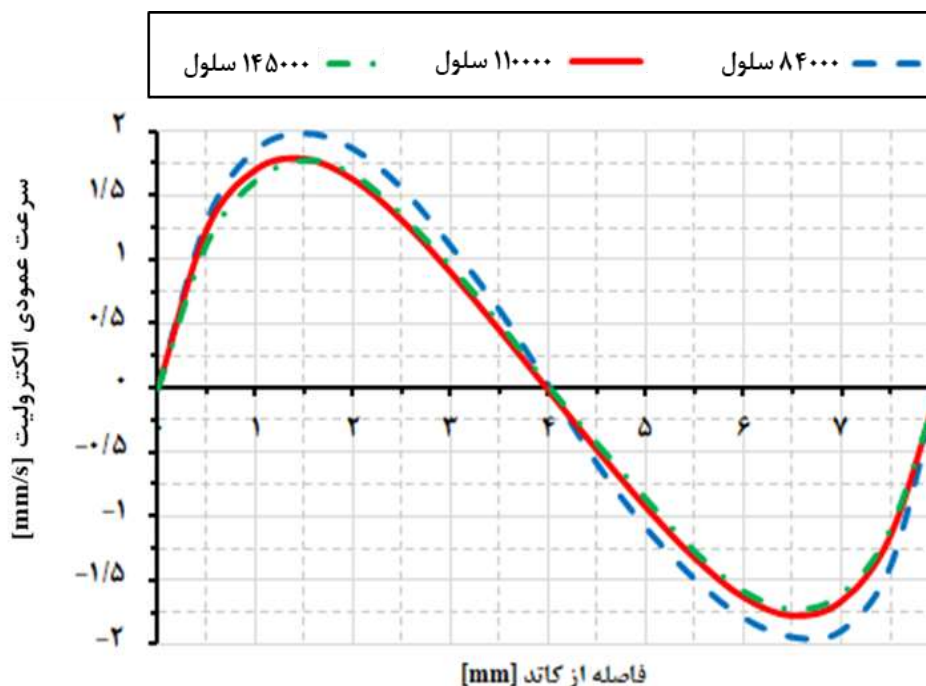
شکل (۴) شرایط مرزی در سل‌های الکترولیز و الکتروپیننگ مس

#### ۴- نتایج و بحث

##### ۴-۱- استقلال حل از تعداد المان‌های شبکه محاسباتی

در این شبیه‌سازی از سه شبکه محاسباتی مختلف با تعداد المان‌های ۸۴۰۰۰، ۱۱۰۰۰۰ و ۱۴۵۰۰۰ و به ترتیب با حداقل سائز المان ۰/۳۱۰، ۰/۲۷۰ و ۰/۲۳۶ میکرومتر استفاده شد. با استفاده از سرعت عمودی الکترولیت در وسط سل الکترولیز با

جریان الکتریکی ۲mA در زمان ۳۲ s استقلال حل از شبکه مورد بررسی قرار گرفت. همانطور که در شکل (۵) مشاهده می‌شود توزیع سرعت در شبکه‌های ریز و متوسط به هم نزدیک هستند در حالیکه توزیع شبکه درشت تفاوت بیشتری با آن دو دارد. به منظور کاهش زمان محاسبات شبکه با تعداد ۱۱۰۰۰۰ المان برای حل مستقل از تعداد المان‌های شبکه انتخاب شد.



شکل (۵) مقایسه توزیع سرعت عمودی الکتروولت برای شبکه‌های مختلف با جریان الکتريکی ۲ mA در زمان ۲۲ s

#### ۲-۴- اعتبارسنجی مدل

برای اعتبارسنجی مدل شبیه‌سازی شده، نتایج شبیه‌سازی توزیع سرعت عمودی الکتروولت بین کاتد و آند در میانه-ی سل، در چگالی جریان‌های مختلف و در زمان ماکزیمم سرعت در سل الکتروولت مس با داده‌های آزمایشگاهی ارائه شده توسط مولنهایف و همکارانش [۶] مقایسه شدند (شکل (۶)). این شکل نشان می‌دهد که تطابق خوبی بین نتایج مدل شبیه‌سازی شده و داده‌های آزمایشگاهی [۶] وجود دارد. همچنین مقایسه بین نتایج دیگر شبیه‌سازی با داده‌های آزمایشگاهی در ادامه تاییدی بر اعتبار مدل هستند. برای هر جریان الکتريکی، درصد خطای انحراف مطلق متوسط<sup>۸</sup> (AAD) بر اساس رابطه (۳۱) محاسبه شده و مقادیر در جدول (۳) آورده شده است.

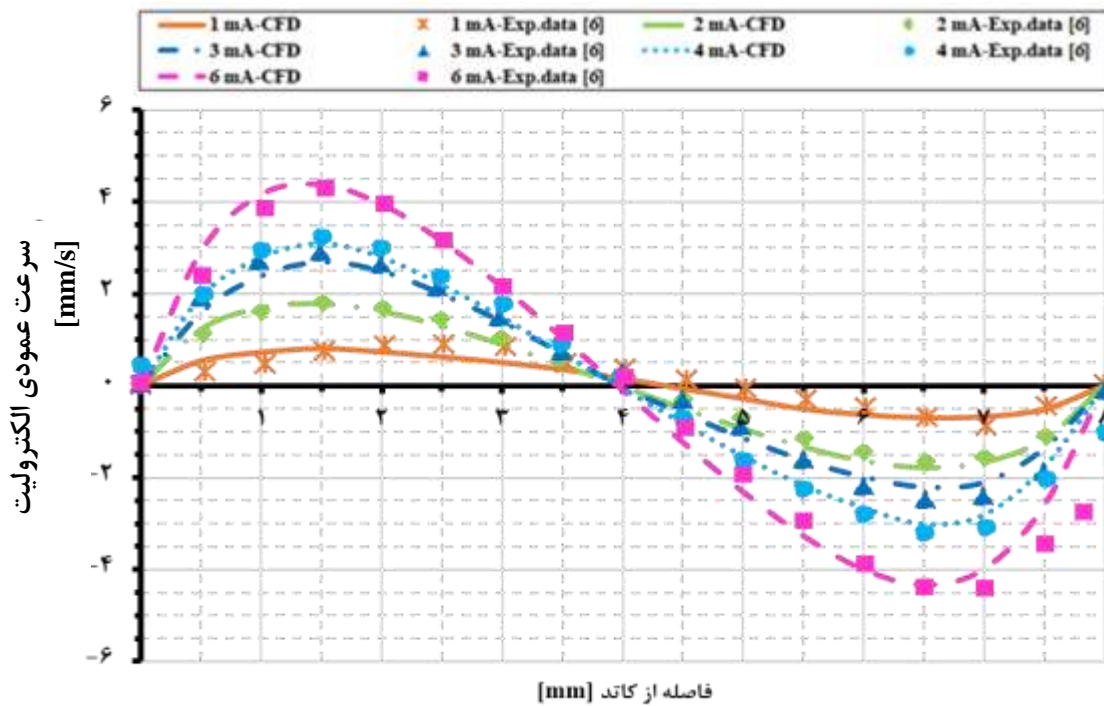
$$AAD = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n |u_{sim} - u_{exp}| \times 100 \quad (31)$$

در این معادله  $u_{sim}$  و  $u_{exp}$  به ترتیب سرعت حاصل از شبیه‌سازی و سرعت اندازه‌گیری شده آزمایشگاهی [۶] هستند. خطای محاسبات را می‌توان ناشی از عوامل مختلفی مانند شبیه‌سازی دو بعدی فرآیند با وجود توزیع نیروی لورنتز در بعد سوم، صرف نظر کردن از نیروی گرادیان میدان مغناطیسی، خطای حل معادلات و شبکه دانست.

جدول (۳) درصد خطای انحراف مطلق متوسط برای توزیع سرعت عمودی الکتروولت برای جریان‌های الکتريکی ۱-۶ mA

جریان الکتريکی (mA)	درصد خطای انحراف مطلق متوسط
۱	۱۶٫۶۳٪
۲	۱۳٫۳۶٪
۳	۲۱٫۱٪
۴	۲۴٫۱٪
۶	۳۹٫۲۶٪

<sup>8</sup> Average Absolute Deviation



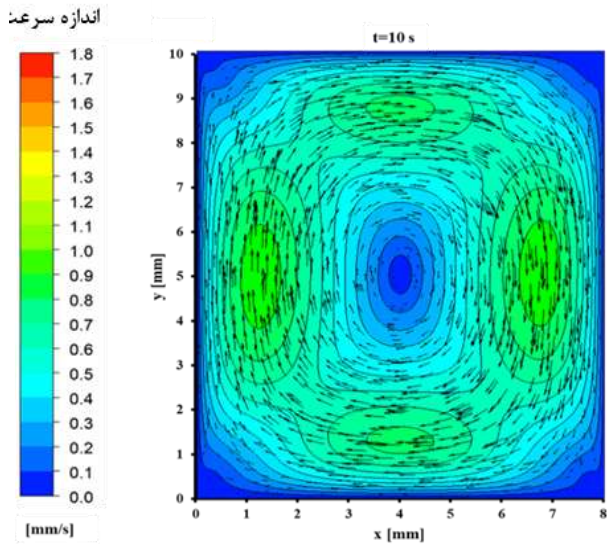
شکل (۶) توزیع سرعت عمودی الکترولیت برای جریان الکتریکی ۱-۶ mA و در زمان ماکزیمم سرعت

داده شده است نیروی لورنتز در کل سلول گسترش یافته و باعث ایجاد یک جریان جابه‌جایی هیدرودینامیک مغناطیسی ساعتگردی می‌شود. همانطور که مشاهده می‌شود در فرآیند الکترولیز ابتدا با گذشت زمان سرعت افزایش می‌یابد و در زمان ۳۲ s سرعت الکترولیت به مقدار ماکزیمم خود می‌رسد. سپس با افزایش زمان سرعت الکترولیت کاهش می‌یابد، این پدیده ناشی از انباشته شدن لایه‌های غلظتی در راستای عمودی است که در ادامه به طور کامل توضیح داده می‌شود. اما تغییرات سرعت با زمان در فرآیند الکتروپلینگ کمی متفاوت است به طوری‌که با گذشت زمان در ابتدای فرآیند الکتروپلینگ تا زمان ۲۰ s سرعت الکترولیت افزایش می‌یابد و از زمان ۲۰ s تا تقریباً ۴۰ s به کندی افزایش یافته و به مقدار ماکزیمم خود می‌رسد. سپس با افزایش زمان سرعت الکترولیت کاهش می‌یابد.

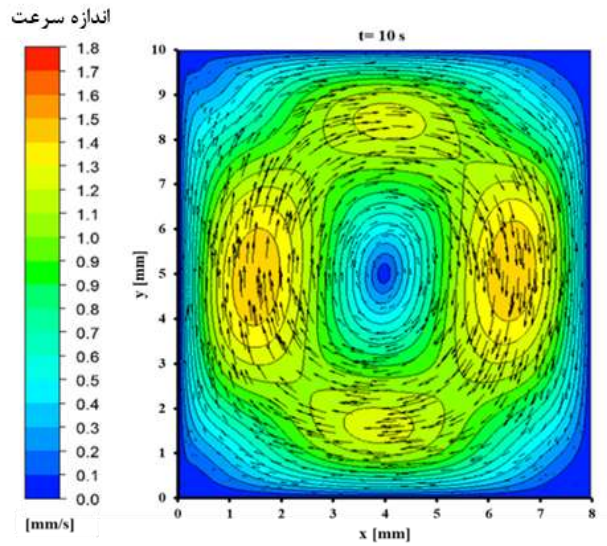
#### ۳-۴- نتایج حاصل از مدل شبیه‌سازی شده

در جداسازی مس از محلول (الکتروپلینگ) یا از ورقه آندی (الکترولیز) و نشست آن روی کاتد در فرآیندهای الکتروشیمیایی در حضور میدان مغناطیسی، اثر متقابل بین جابه‌جایی‌های طبیعی و هیدرودینامیک مغناطیسی باعث ایجاد یک ناحیه‌ی چرخشی بین الکترودها می‌شود. اثر متقابل بین این جابه‌جایی‌ها بر توزیع‌های غلظت و سرعت الکترولیت با گذشت زمان تغییر می‌کند. در شکل (۷) کانتورهای اندازه سرعت الکترولیت در دو فرآیند الکتروپلینگ مس (شکل‌های ۷-۱ و ۷-۲) و الکتروپلینگ مس (شکل‌های ۷-۳ و ۷-۴) با جریان الکتریکی ۲ mA، در حضور نیروی لورنتز موازی و در زمان‌های متفاوت نشان داده شده‌اند. بردارهای سرعت سیاه رنگ روی شکل نشان دهنده‌ی الگوی جریان بین کاتد و آند هستند. در تمام شکل‌های نشان داده شده کاتد و آند به ترتیب در سمت‌های چپ و راست سل قرار گرفته‌اند. همانطور که در شکل نشان

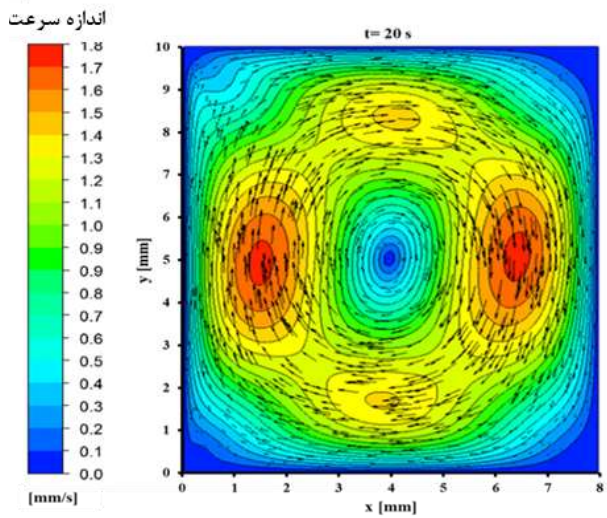




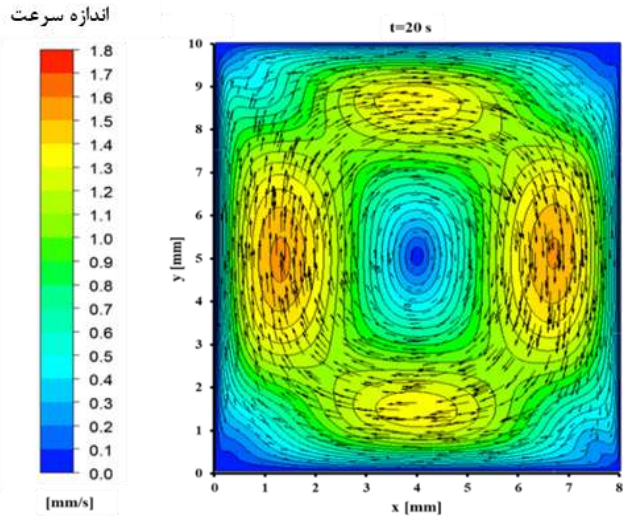
(گ)



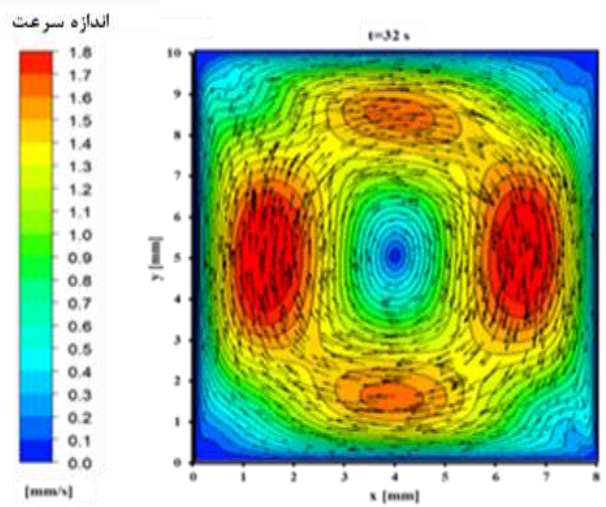
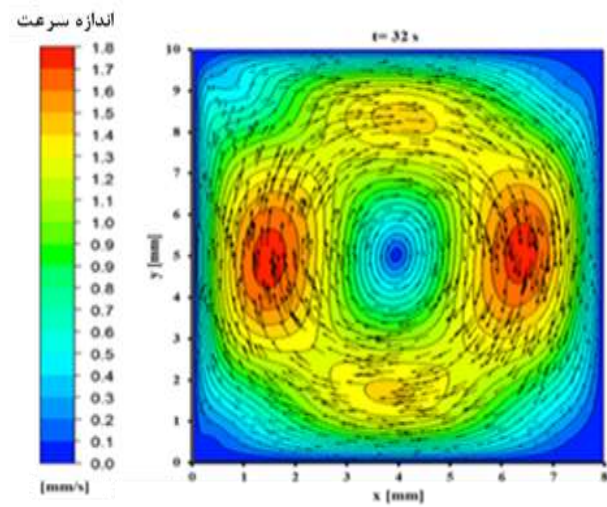
(الف)



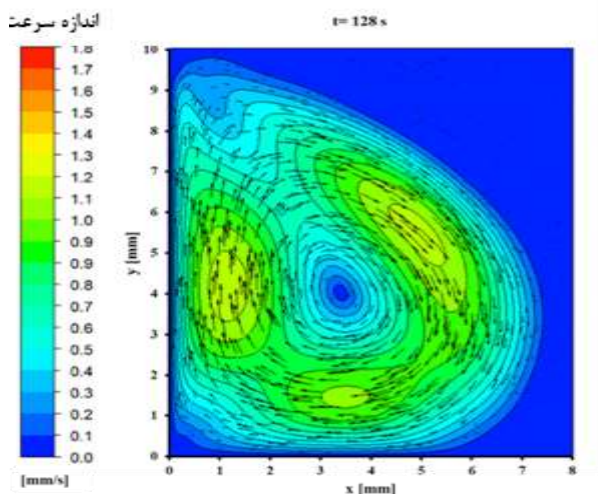
(ز)



(ب)

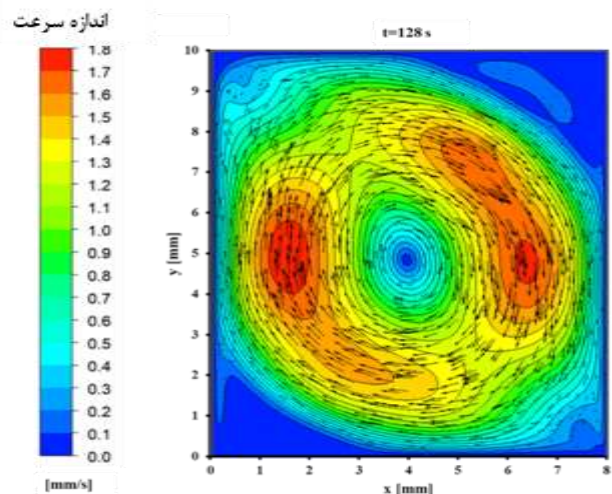


(ح)

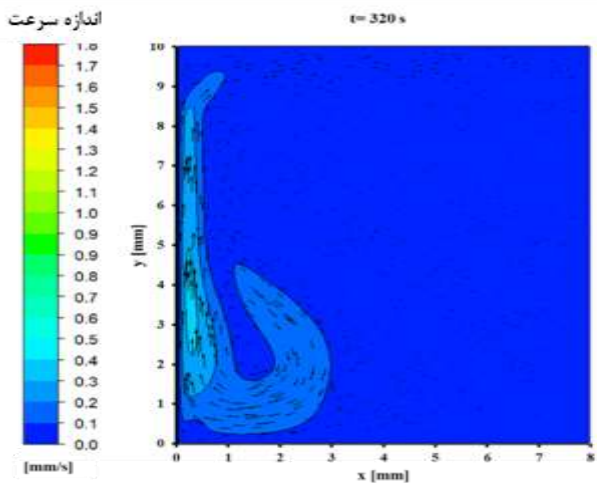


(ط)

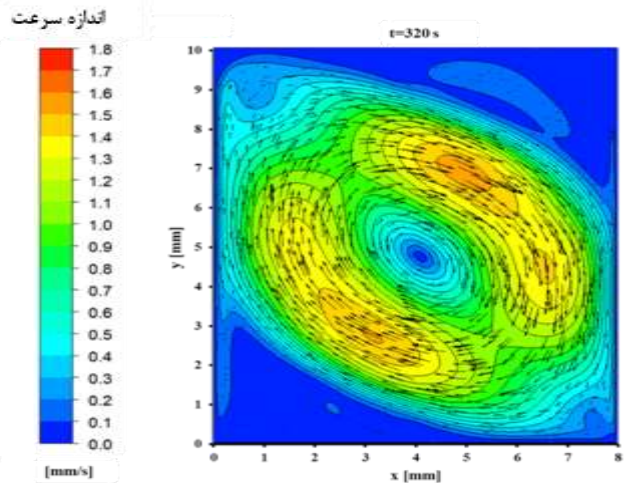
(ج)



(د)



(ی)



(ه)

شکل (۷) کانتور سرعت الکتروولت میان کاتد و آند برای جریان ۲ mA، در حضور نیروی لورنتز و در زمان‌های متفاوت در فرآیند الکتروولت مس (الف-ه) و در فرآیند الکتروولت مس (و-ی)

به داخل لایه‌های افقی انباشته شده رانده می‌شود. در فرآیند الکتروولت لایه‌های غلظتی در نزدیکی هر دو الکترود ایجاد شده و انباشته شدن آنها در بالا و پایین سل اتفاق می‌افتد، اما در فرآیند الکتروولت لایه‌های غلظتی فقط در نزدیکی کاتد ایجاد شده و انباشته شدن آنها فقط در بالای سل رخ می‌دهد. لایه مرزی غلظتی و نیروی جابه‌جایی طبیعی به ناحیه‌ی کوچکی از سل محدود می‌شوند و سرعت رشد لایه‌های غلظتی افقی با گذشت زمان بیشتر است. از طرف دیگر، جابه‌جایی

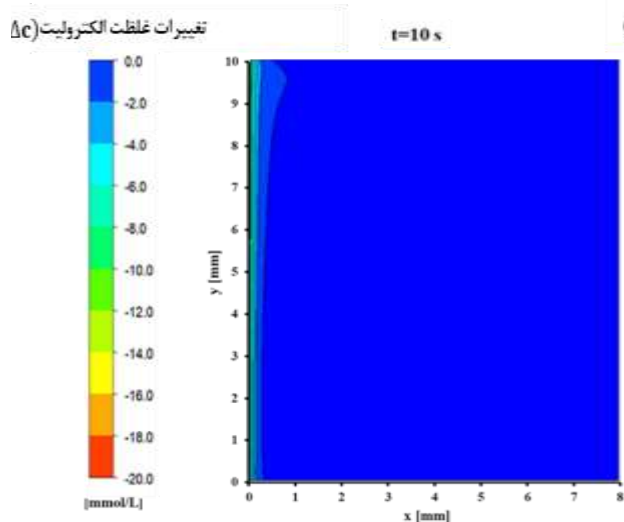
کانتورهای سرعت شکل قبل با کانتورهای گرادیان غلظت مربوط به آنها در شکل (۸) کامل شده‌اند. از آنجا که در الکتروولت مس تنها واکنش مصرف یون‌های مس انجام می‌گیرد و بر خلاف الکتروولت مس در آن یون مسی تولید نمی‌شود، گرادیان غلظت در هیچ ناحیه‌ای از سل الکتروولت مقدار مثبتی ندارد. تغییرات غلظت مس در نزدیکی الکترودها باعث ایجاد نیروی شناوری و در نتیجه آن جابه‌جایی طبیعی می‌شود. با گذشت زمان لایه‌های مرزی غلظتی رشد کرده و محتوای آنها



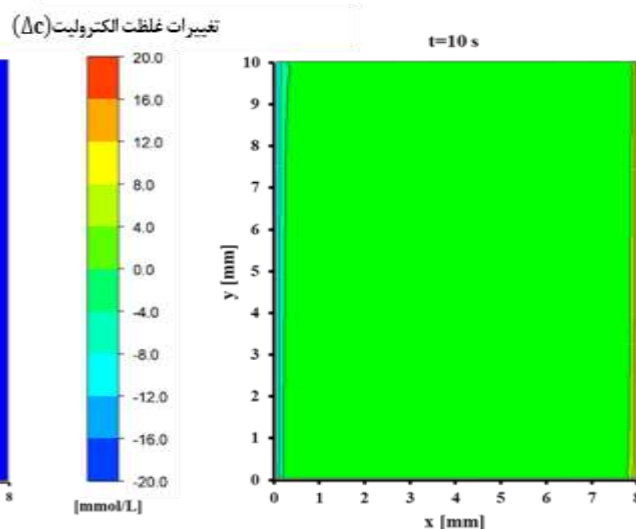
رخ می دهد و ناحیه ی چرخشی دایره ای شکل جابه جایی MHD به طور نامتقارن و به سمت پایین کاتد کوچک می شود (شکل ۷-ط)).

از طرف دیگر، میدان مغناطیسی، نیروی لورنتز و جابه جایی هیدرودینامیک مغناطیسی بیشترین مقدارشان را در ناحیه ی نزدیک الکترودها دارند. در نتیجه با افزایش زمان کار انجام شده توسط نیروی لورنتز و سرعت الکتروولت کاهش می یابند.

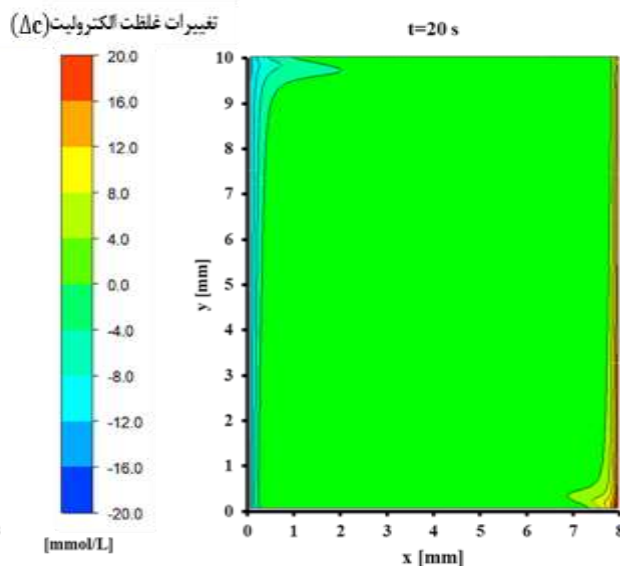
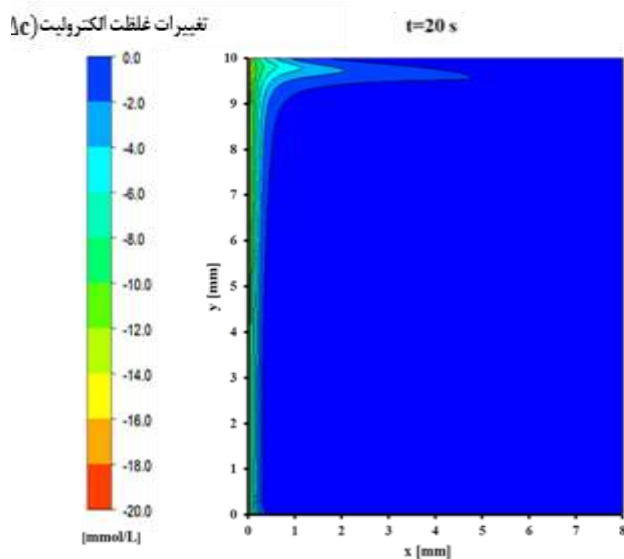
هیدرودینامیک مغناطیسی لایه های غلظتی نزدیک کاتد را به سمت آند حرکت می دهد و برعکس. اما نیروی لورنتز ایجاد شده توسط میدان مغناطیسی ذکر شده برای جابه جایی الکتروولت به صورت کامل خیلی کوچک است. در نتیجه با گذشت زمان لایه های غلظتی انباشته شده و طبقه بندی آنها در راستای عمودی رخ داده و در نتیجه ناحیه ی چرخشی جابه جایی MHD کوچک شده و سرعت الکتروولت کاهش می یابد. همانطور که در شکل (۷) مشاهده می شود، در فرآیند الکتروولت با گذشت زمان ناحیه ی چرخشی دایره ای شکل جابه جایی MHD به شکل بیضی در می آید. اما همانطور که بیان شد در فرآیند الکتروولت انباشته شدن لایه های غلظتی فقط در بالای سل



(گ)

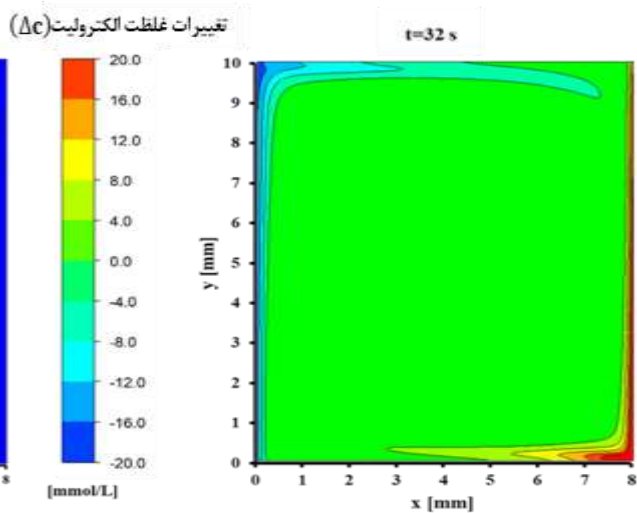
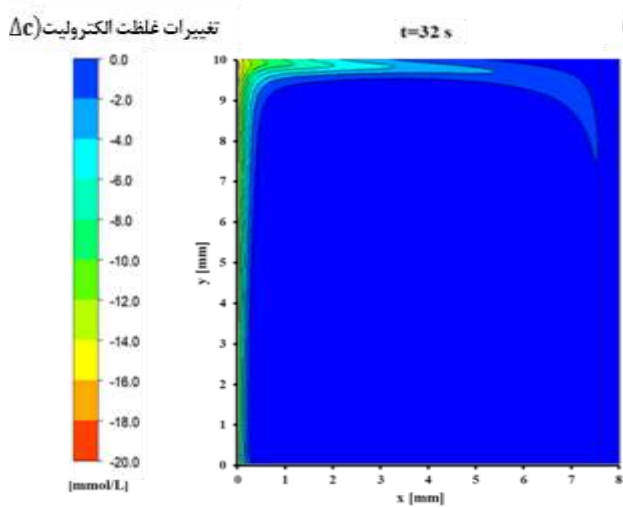


(ف)



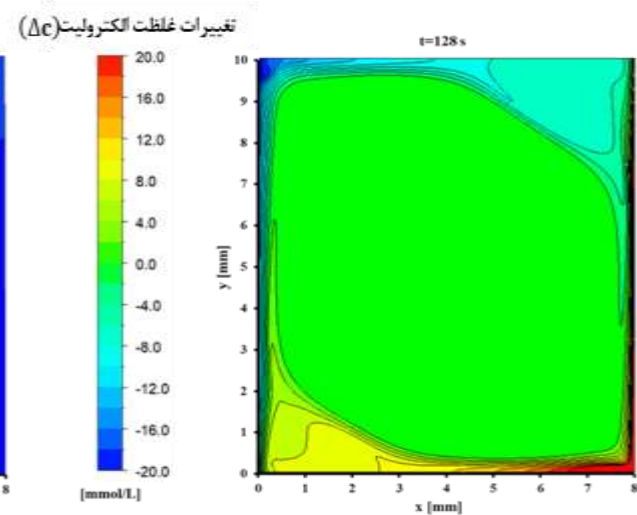
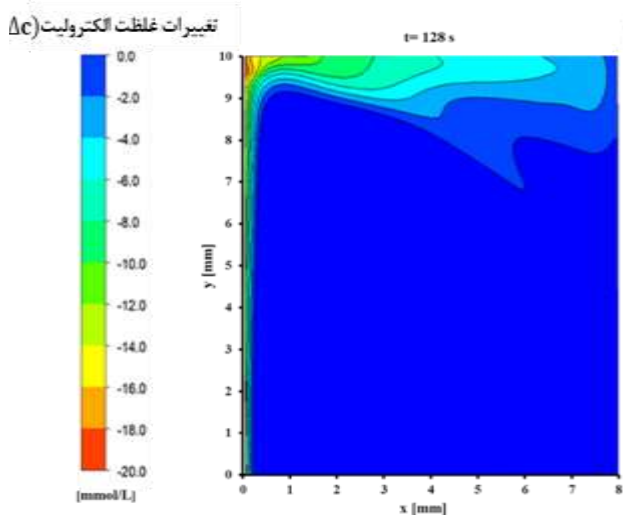
(ز)

(ب)



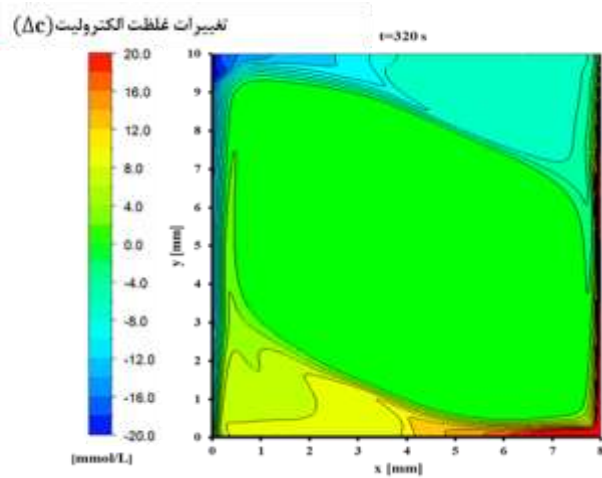
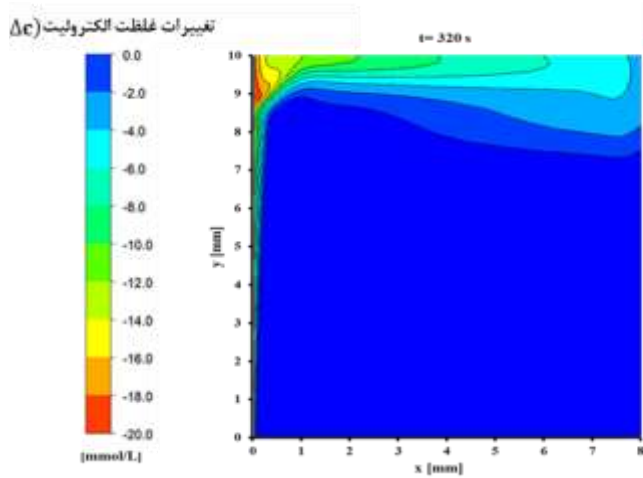
(ح)

(ج)



(ط)

(د)



(ی)

(ه)

شکل (۸) کانتور تغییرات غلظت الکترولیت ( $\Delta C = C - C_0$ )، که  $C_0 = 0.05 \text{ (mol/L)}$  غلظت بالک الکترولیت است) میان کاتد و آند برای جریان  $2 \text{ mA}$ ، در حضور نیروی لورنتز و در زمان‌های متفاوت در فرآیند الکترولیز مس (الف-ه) و در فرآیند الکترووینینگ مس (و-ی)

#### ۴-۳-۱- نتایج سرعت الکترولیت

نمودار سرعت عمودی الکترولیت در ارتفاع‌های متفاوت از کف سل، برای جریان الکترولیتیکی  $2 \text{ mA}$  و در زمان‌های مختلف در شکل (۹) نشان داده شده است.

در زمان‌های اولیه فرآیند الکترولیز نیروی شناوری گسترش زیادی نداشته و تقریباً در کل سل جابه‌جایی هیدرودینامیک مغناطیسی بر جابه‌جایی طبیعی غالب است (تا زمان  $32 \text{ s}$ ). همانطور که در شکل (۹-ج) نشان داده شده است در فاصله  $1.5 \text{ mm}$  از کاتد سرعت از پایین سل ( $V = 0.25 \text{ mm/s}$ ) در  $y = 1$  به سمت مرکز سل ( $V = 1.75 \text{ mm/s}$ ) در  $y = 5 \text{ mm}$  افزایش می‌یابد. روند تغییرات سرعت با افزایش زمان یکسان باقی می‌ماند اما به دلیل انباشته شدن لایه‌های غلظتی و کاهش ناحیه‌ی جابه‌جایی هیدرودینامیک مغناطیسی، ماکزیمم سرعت‌ها نیز کاهش یافته و اکسترمم‌های نمودار سرعت به مرکز سل نزدیکتر می‌شوند به طوریکه در زمان  $320 \text{ s}$  ماکزیمم سرعت نزدیک کاتد در ارتفاع ( $y = 2.5 \text{ mm}$ ) و مینیمم سرعت نزدیک آند در ارتفاع ( $y = 7.5 \text{ mm}$ ) به سمت مرکز سل جابه‌جا می‌شوند. همانطور که در شکل‌های (۹-ج-ه) مشاهده می‌شود تطابق خوبی بین نتایج شبیه‌سازی فرآیند الکترولیز و داده‌های آزمایشگاهی ارائه شده توسط مولنهایف و همکارانش [۶] وجود دارد.

در زمان‌های اولیه فرآیند الکترووینینگ (تا زمان  $40 \text{ s}$ )، تقریباً در کل سل جابه‌جایی هیدرودینامیک مغناطیسی بر جابه‌جایی طبیعی غالب است. در حالت اعمال نیروی لورنتز موازی در فرآیند الکترولیز زمان ماکزیمم سرعت  $32 \text{ s}$  و کمتر از  $40 \text{ s}$  در فرآیند الکترووینینگ است. همانطور که قبلاً بیان شد رشد لایه‌های غلظتی عامل کاهش مساحت ناحیه‌ی جابه‌جایی MHD و سرعت الکترولیت است و در فرآیند الکترووینینگ رشد لایه‌های غلظتی فقط در نزدیکی کاتد رخ می‌دهد، در نتیجه کاهش سرعت در فرآیند الکترووینینگ دیرتر از فرآیند الکترولیز اتفاق می‌افتد. اگرچه مرحله‌ی کاهش سرعت در فرآیند الکترووینینگ با یک تاخیر زمانی کوچک ( $8 \text{ s}$ ) نسبت به فرآیند الکترولیز شروع می‌شود اما مقایسه‌ی کانتورهای سرعت الکترولیت (شکل (۷)) و نمودارهای آن (شکل (۹)) در زمان‌های  $128 \text{ s}$  و  $320 \text{ s}$  نشان می‌دهد که در مرحله‌ی کاهش سرعت، کاهش سرعت

فرآیند الکترووینینگ خیلی بیشتر از فرآیند الکترولیز است. دلیل این تغییرات را می‌توان ناشی از این دانست که در مرحله‌ی دوم (مرحله‌ی کاهش سرعت) گرادینان غلظت بیشتر شده و نیروی شناوری مقدار قابل مقایسه‌ای با نیروی لورنتز دارد. در فرآیند الکترولیز گرادینان غلظت و در نتیجه آن نیروی شناوری نزدیک هر دو الکتروود اتفاق می‌افتد و باعث جابه‌جایی سیال می‌شود در حالیکه در فرآیند الکترووینینگ فقط نزدیکی کاتد رخ داده و باعث کاهش بیشتر سرعت در این فرآیند نسبت به فرآیند الکترولیز می‌شود.

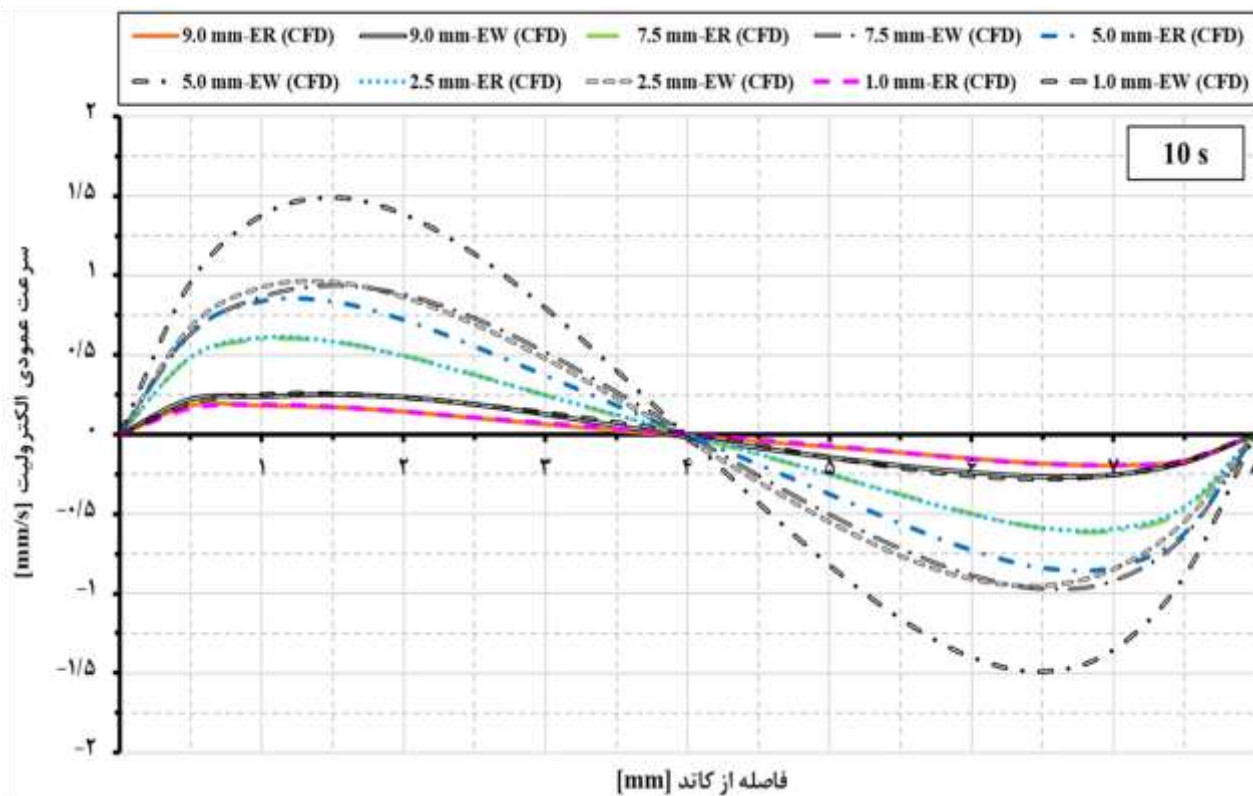
همانطور که در شکل (۹-الف) نشان داده شده است در فاصله‌ی  $1.5 \text{ mm}$  از کاتد سرعت از پایین سل ( $V = 0.25 \text{ mm/s}$ ) در  $y = 1$  به سمت مرکز سل ( $V = 1.75 \text{ mm/s}$ ) در  $y = 5 \text{ mm}$  افزایش می‌یابد. مقایسه‌ی سرعت الکترولیت دو فرآیند در زمان  $10 \text{ s}$  نشان می‌دهد که در میانه‌ی سل ( $y = 5 \text{ mm}$ ) سرعت در فرآیند الکترووینینگ تقریباً  $2$  برابر فرآیند الکترولیز است. در حالیکه در زمان‌های  $20 \text{ s}$  و  $32 \text{ s}$  اختلاف سرعت‌ها در دو فرآیند خیلی کم می‌شود. همانطور که در شکل‌های (۹-ب) و (۹-ج) مشاهده می‌شود، افزایش سرعت در میانه‌ی سل الکترولیز در فاصله‌ی  $1.5 \text{ mm}$  از کاتد در فاصله زمانی  $20$  تا  $32 \text{ s}$  تقریباً  $0.2 \text{ mm/s}$  است در حالیکه در فرآیند الکترووینینگ سرعت در میانه‌ی سل در این بازه زمانی تقریباً ثابت است. با کوچک شدن ناحیه‌ی چرخشی هیدرودینامیک مغناطیسی به سمت کاتد در فرآیند الکترووینینگ اکسترمم‌های نمودار سرعت نزدیک آند به مرکز سل نزدیکتر می‌شوند، به طوریکه در زمان‌های اولیه مینیمم سرعت نزدیک آند در تمام ارتفاع‌ها تقریباً در فاصله  $1.5 \text{ mm}$  از آند ( $x = 6.5 \text{ mm}$ ) اتفاق می‌افتد، در حالیکه در زمان  $128 \text{ s}$  (شکل (۹-ه)) مینیمم سرعت نزدیک آند در ارتفاع‌های ( $5 \text{ mm}$  و  $2.5 \text{ mm}$ ) تقریباً در ( $x = 5.5 \text{ mm}$ ) و در ارتفاع ( $y = 7.5 \text{ mm}$ ) در ( $x = 3.75 \text{ mm}$ ) مشاهده می‌شود.

در نمودارهای فرآیند الکترووینینگ نکته‌ی قابل توجه این است که حرکت رو به پایین ایجاد شده توسط نیروی لورنتز در نزدیکی آند بر حرکت رو به بالای حباب‌های اکسیژن در این ناحیه غالب است، دلیل این امر پایین بودن کسر حجمی و سرعت حباب‌های اکسیژن ( $10^{-3} \times 1.6 \text{ mm/s}$ ) برای جریان الکترولیتیکی  $2 \text{ mA}$  که با استفاده از قانون فارادیه محاسبه می‌شود) در نزدیکی آند است. به دلیل اینکه اکسیژن تولید شده روی آند از سطح بالایی سل

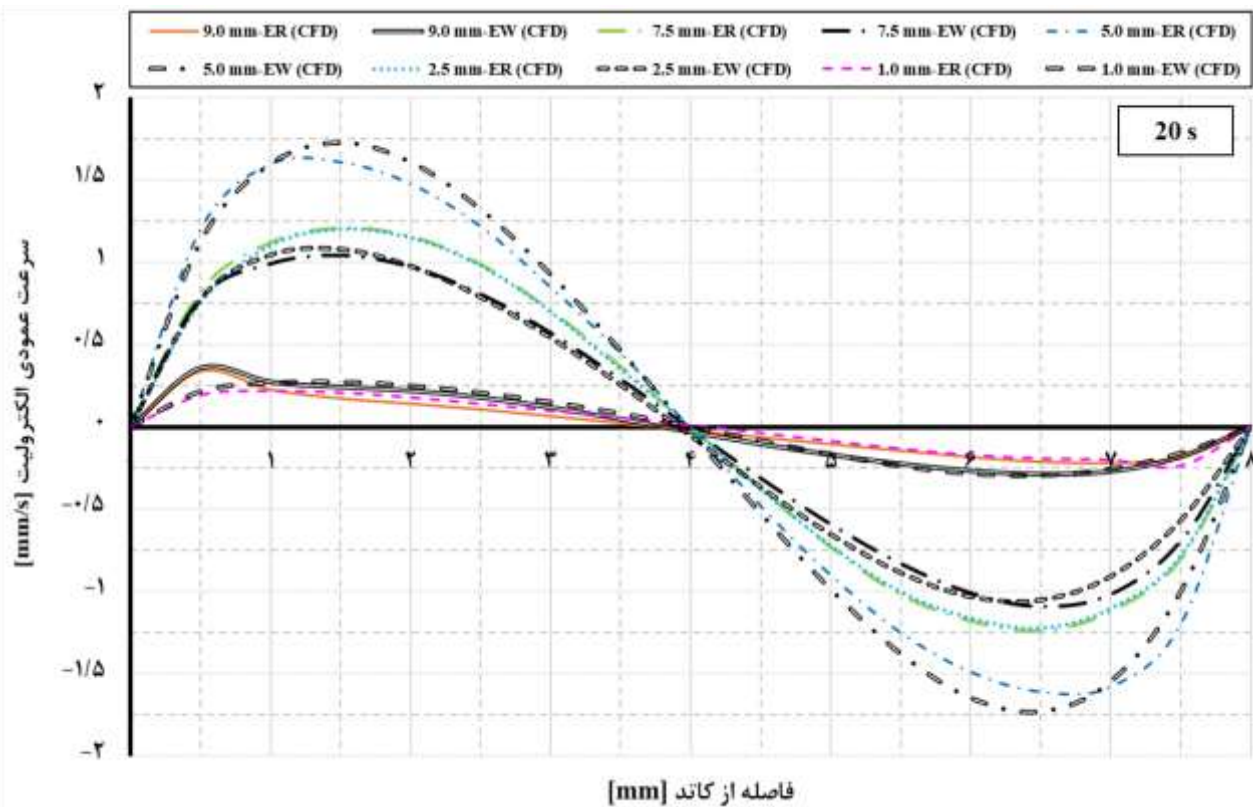


دارد و با توجه به حرکت رو به بالای حبابهای اکسیژن تجمع و کسر حجمی آنها در ارتفاعهای بالاتر از کف سل بیشتر است.

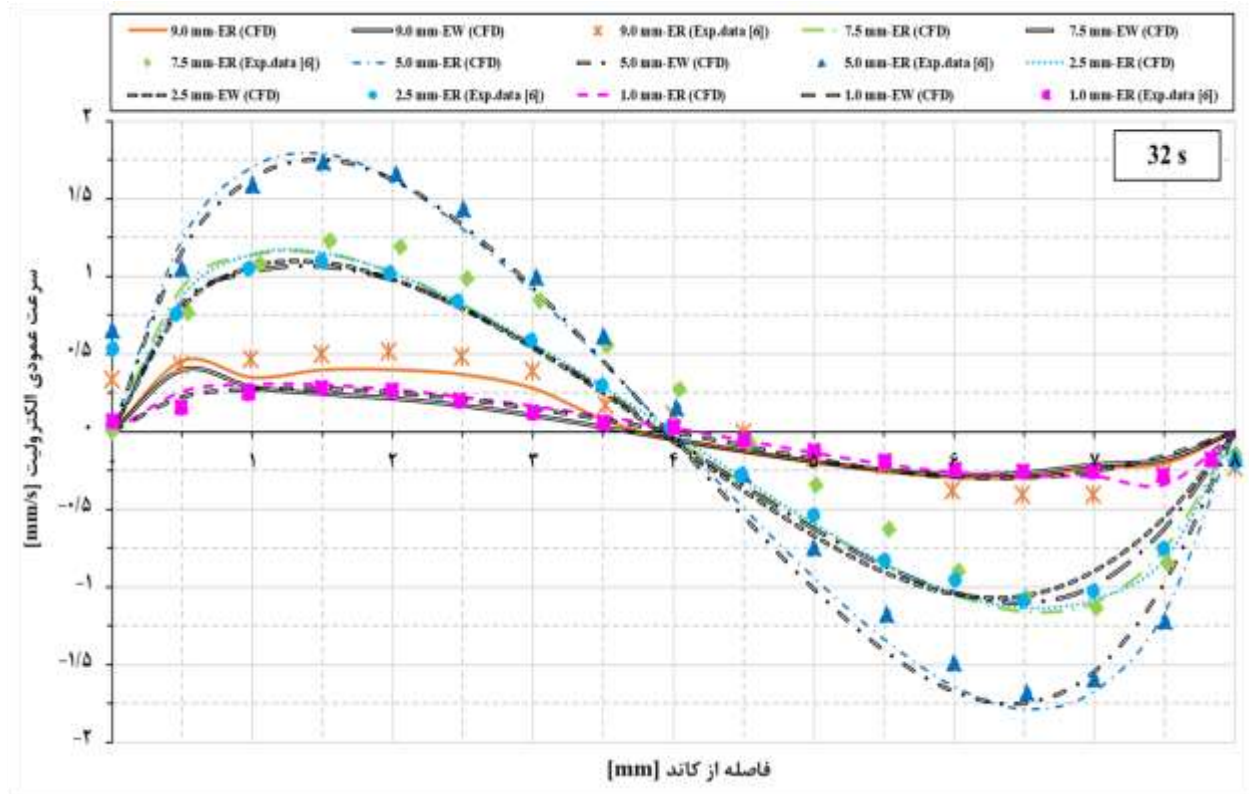
خارج می‌شود و اکسیژن تجمعی در سل ندارد، کسر حجمی اکسیژن با گذشت زمان تغییر قابل توجهی ندارد. همانطور که در شکل (۱۰) مشاهده می‌شود کسر حجمی اکسیژن مقدار کمی



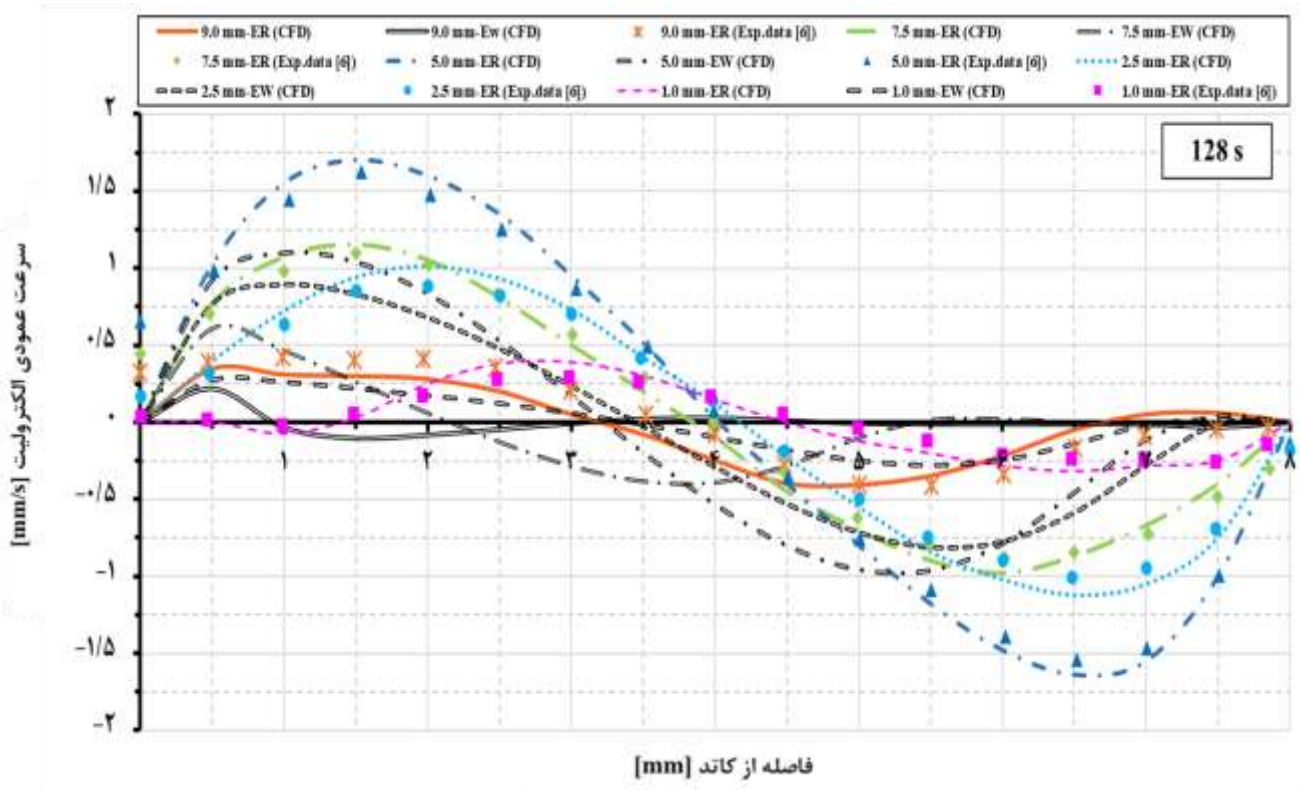
(الف)



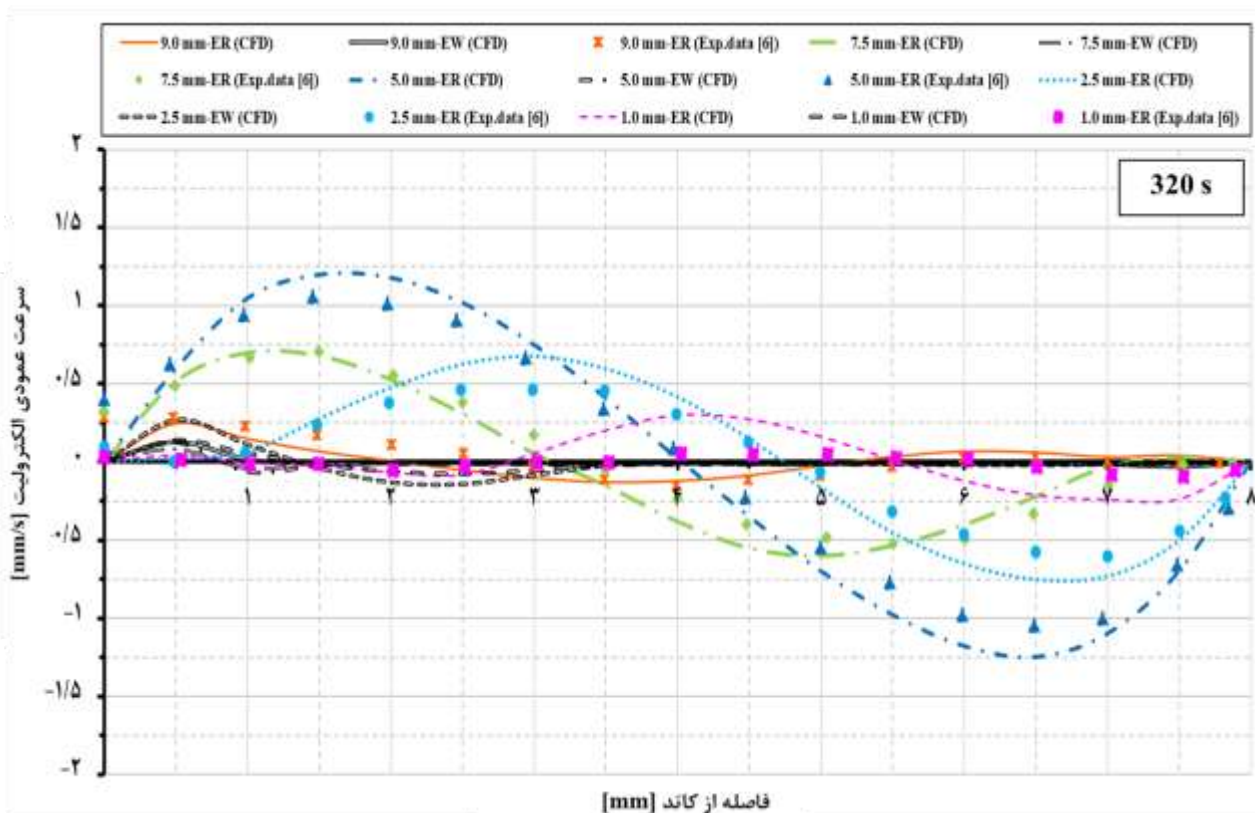
(ب)



(ج)

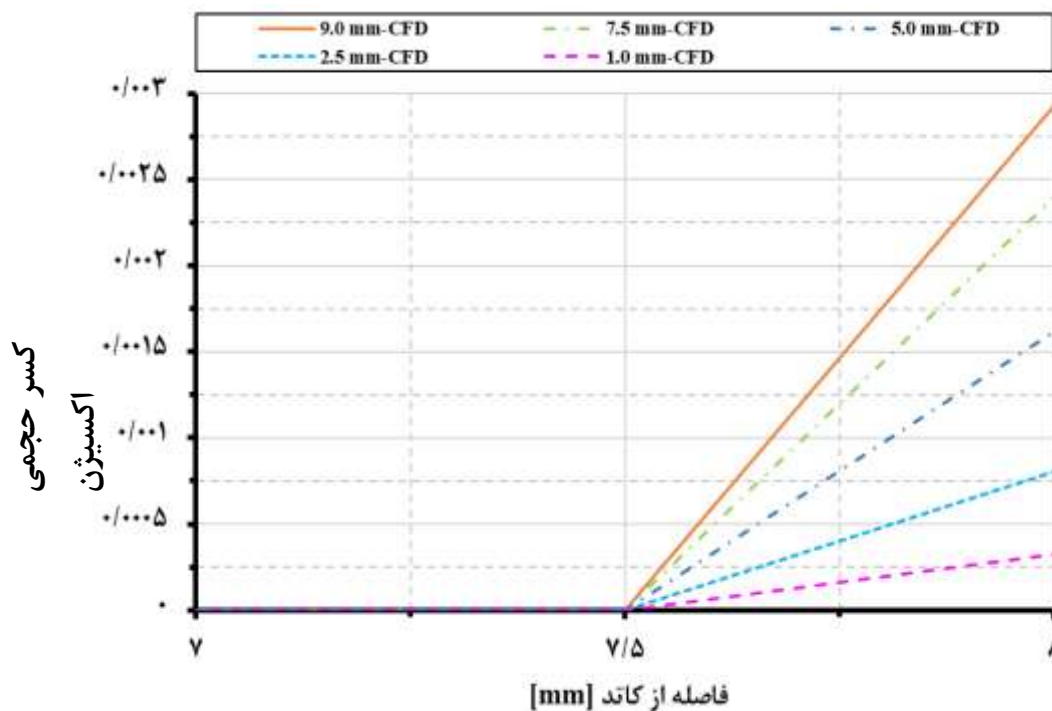


(د)



(۹)

شکل (۹) نمودار سرعت عمودی الکتروولیت میان کاتد و آند برای جریان ۲ mA، در حضور نیروی لورنتز، در ارتفاع‌های متفاوت از پایین سل و در زمان‌های متفاوت (ER (CFD): نتایج شبیه‌سازی الکتروولیز، EW (CFD): نتایج شبیه‌سازی الکتروولینگ و ER (Exp.data [6]): داده‌های آزمایشگاهی ارائه شده برای الکتروولیز [۶])



شکل (۱۰) نمودار کسر حجمی گاز اکسیژن میان کاتد و آند برای جریان ۲ mA، در حضور نیروی لورنتز، در ارتفاع‌های متفاوت از پایین سل (EW (CFD): نتایج شبیه‌سازی الکتروولینگ)

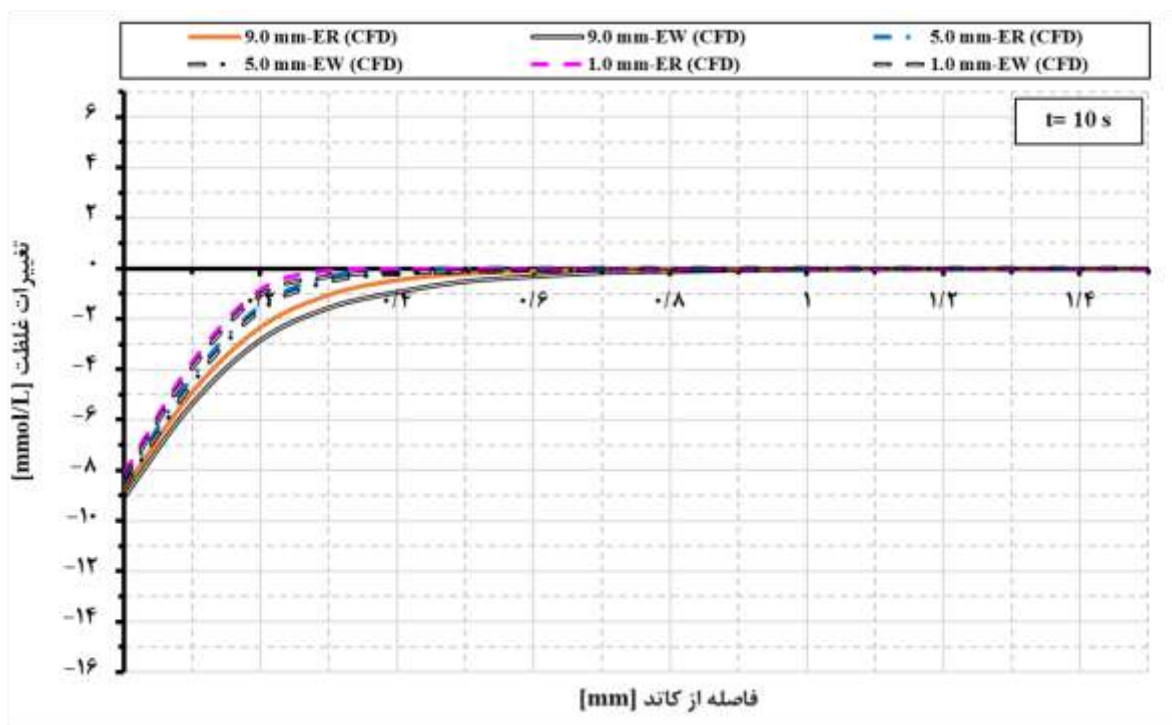
### ۴-۳-۲- نتایج غلظت الکتروولت

شکل (۱۱) تغییرات غلظت  $(\Delta c = c - c_0)$  ( $c_0 = 0.05$ ) غلظت بالک الکتروولت است) نزدیک کاتد در فواصل مختلف از پایین سل را نشان می‌دهد. همانطور که مشاهده می‌شود گرادیان غلظت به سرعت در نزدیکی کاتد گسترش می‌یابد. الکتروولت تخلیه شده از یون‌های مس توسط نیروهای جابه‌جایی طبیعی و لورنتز به سمت بالا رانده می‌شود اما جابه‌جایی MHD برای بالا آوردن کامل الکتروولت غنی از یون‌های مس به سمت بالا ضعیف است و فقط مقدار کمی از الکتروولت پایین سل را به سمت بالا می‌راند، در نتیجه مقدار گرادیان غلظت در ناحیه‌ی چسبیده به کاتد و ضخامت لایه مرزی غلظتی از پایین تا بالای سل افزایش می‌یابد.

در فرآیند الکتروولت در زمان  $3.2s$ ، غلظت الکتروولت بعد از فاصله  $0.6 \text{ mm}$  از کاتد تقریباً ثابت می‌ماند و در زمان  $128 \text{ s}$  گرادیان غلظت در پایین سل ( $y=1 \text{ mm}$ ) از  $8 \text{ mmol/L}$  در ( $x=0 \text{ mm}$ ) به  $5 \text{ mmol/L}$  در ( $x=0.3 \text{ mm}$ ) می‌رسد، این جدایش ناگهانی توزیع گرادیان غلظت ناشی از حضور لایه‌های غلظتی غنی از یون مس در پایین سل و نشان دهنده‌ی بالا بودن گرادیان غلظت در راستای عمودی است. مقایسه‌ی بین شکل‌های (۱۱-د) و (۱۱-ه) نشان می‌دهد که با افزایش زمان

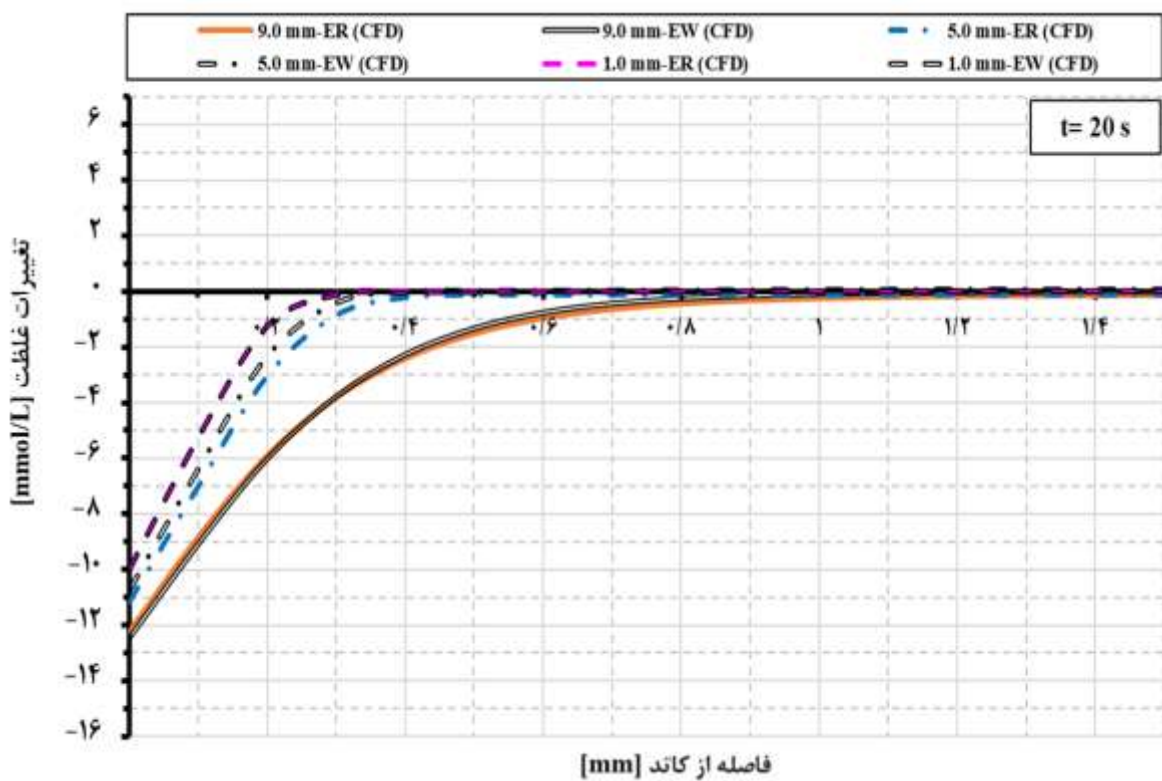
ماکزیمم گرادیان غلظت در نزدیکی کاتد (به خصوص در  $y=1$  و  $y=5 \text{ mm}$ ) افزایش می‌یابد اما ضخامت لایه مرزی تقریباً تغییری نمی‌کند، این افزایش ناشی از گسترش لایه‌های غلظتی در راستای عمودی است. همانطور که در شکل‌های (۱۱-ج-ه) مشاهده می‌شود تطابق خوبی بین نتایج شبیه‌سازی الکتروولت و داده‌های آزمایشگاهی ارائه شده توسط مولنهایف و همکارانش [۶] وجود دارد.

در فرآیند الکتروولت با گذشت زمان فاصله نمودار گرادیان غلظت در بالای سل از نمودارهای پایین و میانی سل افزایش می‌یابد. در زمان  $320 \text{ s}$  گرادیان غلظت در بالای سل ( $y=9 \text{ mm}$ ) از  $20 \text{ mmol/L}$  در ( $x=0 \text{ mm}$ ) به  $1.5 \text{ mmol/L}$  در ( $x=1.5 \text{ mm}$ ) می‌رسد و بر خلاف گرادیان‌های غلظت در زمان‌های قبل به صفر نمی‌رسد. این جدایش توزیع گرادیان غلظت ناشی از حضور لایه‌های غلظتی تخلیه شده از یون مس در بالای سل و نشان دهنده‌ی بالا بودن گرادیان غلظت در راستای عمودی است. این جدایش توزیع غلظت ناشی از این است که در این زمان طبقه بندی لایه‌های غلظتی تخلیه شده از یون مس در بالای سل نسبت به زمان‌های قبل در گستره وسیع‌تری در راستای عمودی رخ می‌دهد.

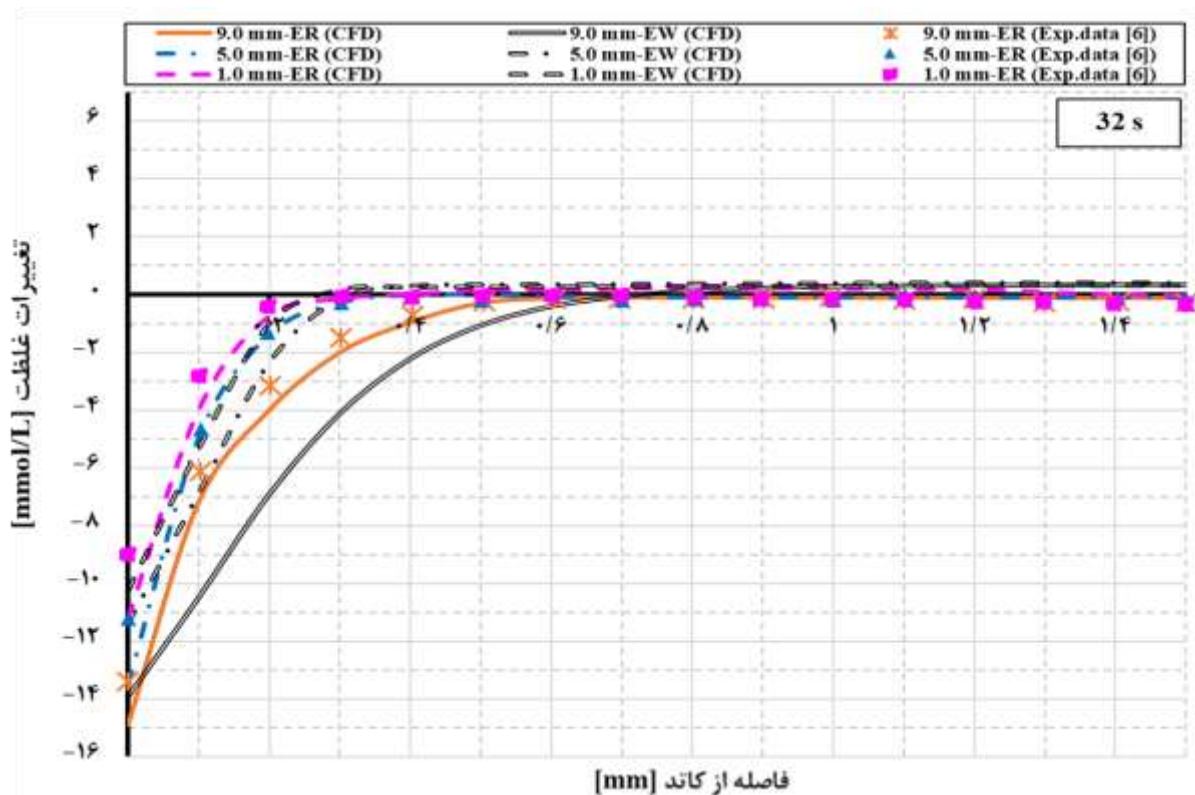


(الف)

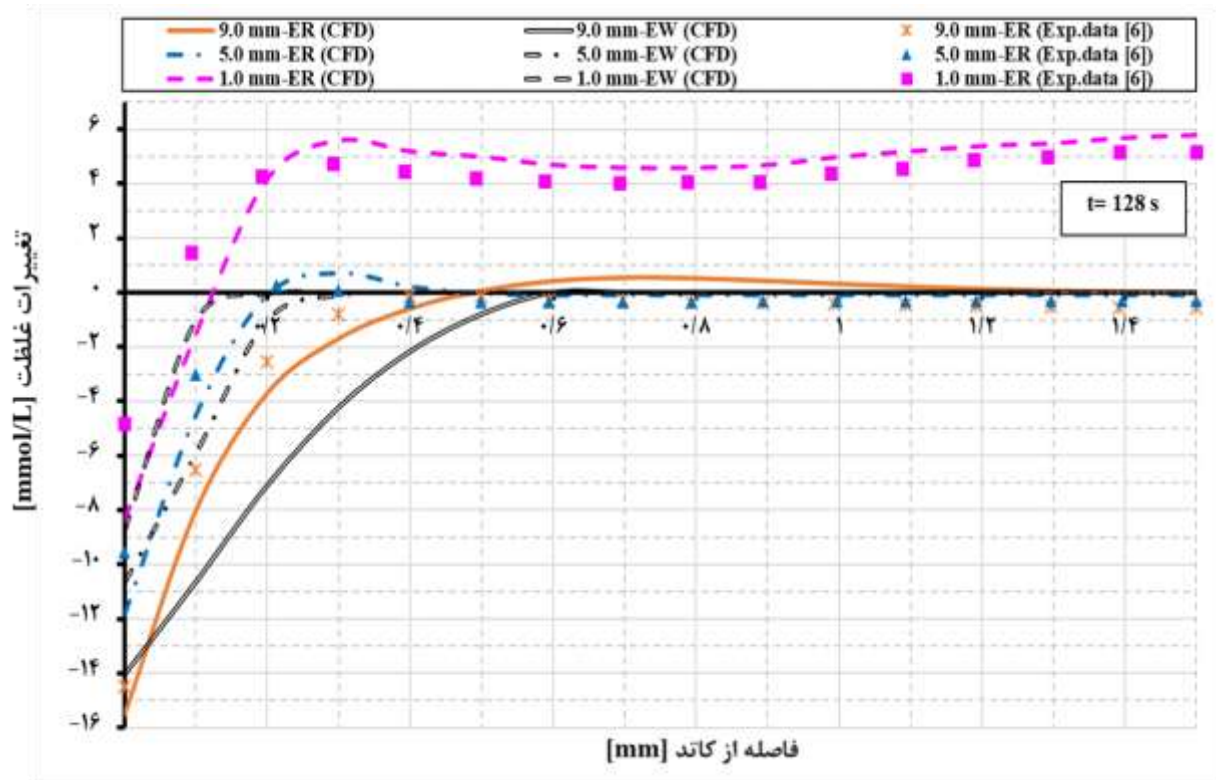




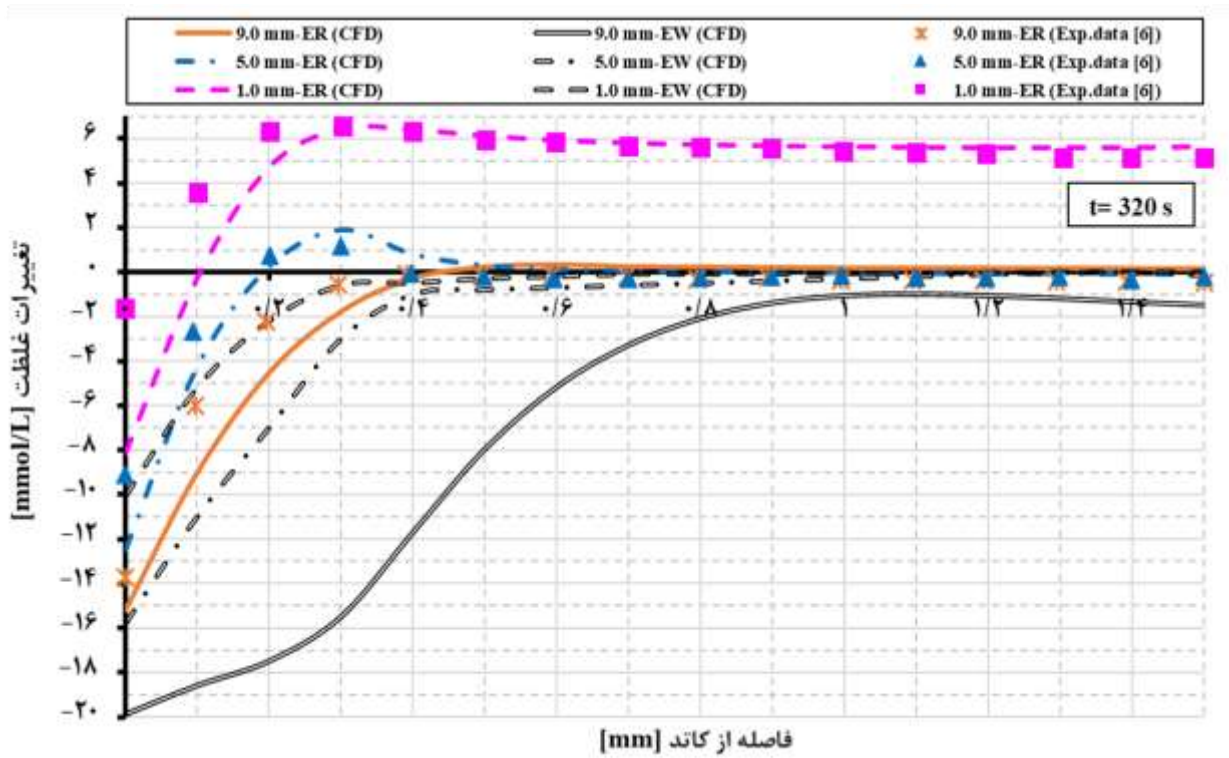
(ب)



(ج)



(د)



(ه)

شکل (۱۱) نمودار تغییرات غلظت  $(\Delta C = C - C_0)$  ( $C_0 = 0.5$ ) غلظت بالک الکترولیت است) نزدیک کاتد برای جریان  $2 \text{ mA}$ ، در حضور نیروی لورنتز، در ارتفاع‌های متفاوت از پایین سل و در زمان‌های متفاوت (ER (CFD): نتایج شبیه‌سازی الکترولیز، EW(CFD): نتایج شبیه‌سازی الکترووینینگ و ER(Exp.data [6]): داده‌های آزمایشگاهی ارائه شده برای الکترولیز [۶])

## ۵- نتیجه‌گیری

e	بار الکترون (C)		
F	ثابت فاراده (A.s/mol)		
$\vec{F}_B$	نیروی گرادیان میدان مغناطیسی ( $N/m^3$ )		در این مطالعه با استفاده از شبیه‌سازی سل‌های الکترولیز و الکترووینینگ مس در حضور میدان مغناطیسی به کمک دینامیک سیالات محاسباتی، الگوی چرخشی جریان، توزیع سرعت و غلظت الکتروولیت بررسی شد. نتایج شبیه‌سازی سل الکترولیز برای غلظت و سرعت الکتروولیت با داده‌های تجربی اندازه‌گیری شده در مطالعه قبلی مقایسه شد و تطابق خوبی بین آنها وجود داشت. نتایج نشان داد که در زمان‌های اولیه فرآیندها، نیروی غالب لورنتز سبب ایجاد جابه‌جایی MHD در کل سل می‌شود. با گذشت زمان گرادیان غلظت و نیروی شناوری بیشتر شده، لایه‌های غلظتی در راستای عمودی انباشته شده، ناحیه‌ی جابه‌جایی MHD کوچک شده و سرعت الکتروولیت دائماً کاهش می‌یابد. از آنجاییکه عامل کاهش سرعت الکتروولیت رشد لایه‌های غلظتی است و در فرآیند الکترووینینگ این پدیده فقط در نزدیکی کاتد رخ داده و انباشته شدن لایه‌های غلظتی فقط در بالای سل اتفاق می‌افتد، ناحیه‌ی جابه‌جایی بر خلاف فرآیند الکتروولیز به صورت نامتقارن کوچک شده و در نتیجه کاهش سرعت در این فرآیند دیرتر از فرآیند الکتروولیز اتفاق می‌افتد. اما کاهش سرعت الکتروولیت در مرحله‌ی دوم فرآیند الکترووینینگ مس خیلی بیشتر از فرآیند الکتروولیز مس است. بیشترین تغییرات غلظت مس نیز در ناحیه‌ی چسبیده به کاتد و ضخامت لایه مرزی غلظتی در بالاترین ارتفاع سل مشاهده شد.
$\vec{F}_D$	نیروی نفوذ ( $N/m^3$ )		
$\vec{F}_E$	نیروی الکتروستاتیک ( $N/m^3$ )		
$\vec{F}_L$	نیروی لورنتز ( $N/m^3$ )		
$\vec{F}_M$	نیروی تعدیل مغناطیسی ( $N/m^3$ )		
$\vec{F}_p$	نیروی پارامغناطیس ( $N/m^3$ )		
f	نیروهای حجمی خارجی وارد بر الکتروولیت ( $N/m^3$ )		
H	ارتفاع الکتروود (m)		
$\vec{j}$	چگالی جریان الکتریکی ( $A/m^2$ )		
$j_0$	چگالی جریان تبدالی ( $A/m^2$ )		
$M_{Cu}$	جرم مولکولی مس (g/mol)		
$m_i$	ضریب تحرک جز i ( $m^2/V.s$ )		
$N_i$	چگالی شار تولید شده جز i		
R	ثابت عمومی گازها (j/mol.k)		
$R_i$	شعاع یونی (m)		
$\vec{S}_E$	تنش برشی الکتروستاتیک ( $j/m^3$ )		
T	دما (K)		
t	زمان (s)		
u	سرعت الکتروولیت (m/s)		
$u_p$	سرعت ذره فاز گسسته (حباب اکسیژن) (m/s)		
$Z_i$	تعداد بارهای ابتدایی (-)		

## فهرست علائم و نشانه‌ها

$\vec{B}$	میدان مغناطیسی (T)
$\vec{B}_0$	انحراف از میدان مغناطیسی (T)
$b_1$	گرادیان میدان مغناطیسی (T/m)
$c_i$	غلظت جز i (mol/L)
$c_0$	غلظت بالک الکتروولیت (mol/L)
D	ضریب نفوذ فلز ( $m^2/s$ )
$D_i$	ضریب نفوذ جز i ( $m^2/s$ )
$d_p$	قطر ذره فاز گسسته (m)
$\vec{E}_0$	میدان غیر الکترواستاتیک (V/m)

Extractive metallurgy of copper., Pergamon, 2002.

### حروف یونانی

[3]	M. Najminoori, A. Mohebbi, B.G. Arabi, S. Daneshpajouh, CFD simulation of an industrial copper electrowinning cell, Hydrometallurgy. 153 (2015) 88–97.	ضریب انتقال بار آندی (-)	$\alpha_a$
		ضریب انتقال بار کاتدی (-)	$\alpha_c$
		ضریب انبساط فلز ( $m^3/kg$ )	$\beta$
[4]	A. Ispas, A. Bund, Influence of a magnetic field on the electrodeposition of nickel and nickel-iron alloys, 15th Riga 6th PAMIR Conf. Fundam. Appl. MHD Magneto-electrolysis. (2005).	ضریب تراکم ( $L/mol$ )	$\beta_c$
		معرف غلظت در رابطه بوتلر-ولمر (-)	$\gamma$
[5]	H. Takeo, Copper electrodeposition in a magnetic field, Portland State University, 1985.	ضخامت لایه مرزی (m)	$\delta_0$
		پتانسیل اضافی سطح (V)	$\eta_s$
[6]	S. Mühlhoff, G. Mutschke, D. Koschichow, X. Yang, A. Bund, J. Fröhlich, S. Odenbach, K. Eckert, Lorentz-force-driven convection during copper magnetoelectrolysis in the presence of a supporting buoyancy force, Electrochim. Acta. 69 (2012) 209–219.	ضریب هدایت الکتریکی یونی (S/m)	$\kappa$
		ویسکوزیته دینامیکی الکترولیت ( $kg/m.s$ )	$\mu$
		نفوذپذیری مغناطیسی ( $H/m$ )	$\mu_0$
		ویسکوزیته سینماتیکی الکترولیت ( $m^2/s$ )	$\nu$
[7]	Steven R. Ragsdale, A. Jeonghee Lee, H.S. White, Analysis of the Magnetic Force Generated at a Hemispherical Microelectrode, Anal. Chem. 69 (1997) 2070–2076.	چگالی الکترولیت ( $kg/m^3$ )	$\rho$
		چگالی ذره فاز گسسته ( $kg/m^3$ )	$\rho_p$
[8]	G. Hinds, J.M.D. Coey, M.E.G. Lyons, Influence of magnetic forces on electrochemical mass transport, Electrochem. Commun. 3 (2001) 215–218.	چگالی بالک الکترولیت ( $kg/m^3$ )	$\rho_0$
		هدایت الکتریکی (S/m)	$\sigma$
[9]	T. Weier, J. Hüller, G. Gerbeth, F.-P. Weiss, Lorentz force influence on momentum and mass transfer in natural convection copper electrolysis, Chem. Eng. Sci. 60 (2005) 293–298.	چگالی بار ( $C/m^2$ )	$\sigma_d$
		پتانسیل الکتریکی (V)	$\phi$
		پتانسیل الکتروود (V)	$\phi_{ed}$
[10]	G. Mutschke, A. Bund, On the 3D character of the magnetohydrodynamic effect during metal electrodeposition in cuboid cells, Electrochem. Commun. 10 (2008) 597–601.	پتانسیل الکترولیت (V)	$\phi_{el}$
		پذیرفتاری مغناطیسی ( $m^3/mol$ )	$\chi_m$
[11]	X. Yang, K. Eckert, K. Seidel, M. Uhlemann, The start-up of natural convection during copper electrolysis in the presence of an opposing Lorentz force, Electrochim. Acta. 54 (2008) 352–359.	سرعت زاویه ای (rad/s)	$\omega$

### مراجع

- [1] M.E. Schlesinger, M.J. King, K.C. Sole, W.G. Davenport, Extractive metallurgy of copper, Elsevier, 2011.
- [2] W.G. (William G. Davenport, A.K. (Anil K. Biswas,
- [12] X. Yang, K. Eckert, S. Mühlhoff, S. Odenbach, On the decay of the Lorentz-force-driven convection in vertical concentration stratification during magnetoelectrolysis, Electrochim. Acta. 54 (2009) 7056–7065.



- [21] A.M. Alfantazi, D. Valic, A study of copper electrowinning parameters using a statistically designed methodology, *J. Appl. Electrochem.* 33 (2003) 217–225.
- [22] A. Krause, J. Koza, A. Ispas, M. Uhlemann, A. Gebert, A. Bund, Magnetic field induced micro-convective phenomena inside the diffusion layer during the electrodeposition of Co, Ni and Cu, *Electrochim. Acta.* 52 (2007) 6338–6345.
- [23] J.M.D. Coey, F.M.F. Rhen, P. Dunne, S. McMurry, The magnetic concentration gradient force—Is it real?, *J. Solid State Electrochem.* 11 (2007) 711–717.
- [24] S. Joy, A. Staley, C. Perkins, J. Uhrig, M. Moats, Understanding and improvement of electrowinning current efficiency at FMI Bagdad, *Proc. Copp.* 2010. 4 (2010) 1379–1392.
- [25] M.J. Leahy, M. Philip Schwarz, Experimental Validation of a Computational Fluid Dynamics Model of Copper Electrowinning, *Metall. Mater. Trans. B.* 41 (2010) 1247–1260.
- [13] G. Mutschke, A. Hess, A. Bund, J. Fröhlich, On the origin of horizontal counter-rotating electrolyte flow during copper magnetoelectrolysis, *Electrochim. Acta.* 55 (2010) 1543–1547.
- [14] M. Huang, G. Marinaro, X. Yang, B. Fritzsche, Z. Lei, M. Uhlemann, K. Eckert, G. Mutschke, Mass transfer and electrolyte flow during electrodeposition on a conically shaped electrode under the influence of a magnetic field, *J. Electroanal. Chem.* 842 (2019) 203–213.
- [15] S.P. Neill, M.R. Hashemi, Ocean Modelling for Resource Characterization, in: *Fundam. Ocean Renew. Energy*, Elsevier Science, (2018): pp. 193–235.
- [16] ANSYS Fluent Theory Guide. ANSYS, Inc. Release 17.2., 2600 Drive Canonsburg, PA 15317, (2016), n.d.
- [17] I. Streeter, R.G. Compton, Numerical Simulation of Potential Step Chronoamperometry at Low Concentrations of Supporting Electrolyte, *J. Phys. Chem. C.* 112 (2008) 13716–13728.
- [18] G. Hinds, F.E. Spada, J.M.D. Coey, T.R. Ní Mhíocháin, M.E.G. Lyons, Magnetic Field Effects on Copper Electrolysis, *J. Phys. Chem. B.* 105 (2001) 9487–9502.
- [19] Y. Loong Hey, *Electrokinetic Applications in Hydrometallurgical Copper Extraction*, (2007).
- [20] A. Bund, S. Koehler, H.H. Kuehnlein, W. Plieth, Magnetic field effects in electrochemical reactions, *Electrochim. Acta.* 49 (2003) 147–152.

# CFD Study of Magnetic Field Effect on the Performance of Copper Electrodeposition Cells

Mahjabin Najminoori <sup>1</sup>, Ali Mohebbi <sup>1,\*</sup>, Roohollah Sadeghi <sup>2</sup>, Kambiz Afrooz <sup>3</sup>, Babak Ghadami Arabi <sup>4</sup>

1. Department of Chemical Engineering, Faculty of Engineering, Shahid Bahonar University of Kerman, Kerman, Iran
2. Department of Chemical Engineering, Faculty of Engineering, ACECR Institute Higher Education (Isfahan Branch), Isfahan, Iran
3. Department of Electrical Engineering, Faculty of Engineering, Shahid Bahonar University of Kerman, Kerman, Iran
4. Sarcheshmeh Copper Complex, Iran

---

## ABSTRACT

In copper electrodeposition methods, by applying an electric current between two electrodes immersed in an electrolyte containing  $\text{CuSO}_4\text{-H}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}$ , copper is deposited on the cathode surface. Presence of magnetic field has a considerable effect on the performance of electrodeposition cells. The most important roles of the magnetic field on these processes are Lorentz force, magnetohydrodynamic (MHD) convection and its interaction with the natural convection induced by the concentration gradient. In this study, an unsteady, two-dimensional copper electrolysis (one phase) and electrowinning (two-phase liquid-gas) cells were simulated in the presence of magnetic field by using Computational Fluid Dynamics (CFD). The equations of Nernst-Planck, momentum and electric potential were solved by finite volume method. The Eulerian-Lagrangian method was used in simulation of two-phase copper electrowinning cell. The simulation results of electrolysis process showed a good agreement in comparison with experimental data of Muhlenhoff et al. After the validation of the model, copper concentration change and velocity profiles of two processes were investigated and compared with each other. The simulation results showed that the MHD interaction with the natural convection and also intrusion layer pile up leads to the velocity decay. As a result, the velocity reduction in the electrowinning process occurs later than in the electrolysis process but its reduction in the second stage of electrowinning process is about 93%, which is much more than 33% in the electrolysis process.

All right reserved.

---

## ARTICLE INFO

Article history:

Received: December 21, 2019

Received in revised form: March 4, 2020

Accepted: June 30, 2020

---

Key words:

Copper electrodeposition

Magnetic field

Computational fluid dynamics

MHD convection

Natural convection

\* Corresponding author

amohebbi2002@yahoo.com

amohebbi@uk.ac.ir