

CALIFICACIÓN CFD DEL EFECTO SEPARADOR ISOTÓPICO [⁶Li/⁷Li] DE UN SERPENTÍN HELICOIDAL EN RÉGIMEN HÍBRIDO MOLECULAR-VISCOZO

Autor: D. José Luis Herranz García

Director: Dr. Luis Ángel Sedano Miguel

Tutor: Dr. Jorge Luis Parrondo Gayo

UO64923@uniovi.es

Departamento de Energía

Universidad de Oviedo

ABSTRACT

Lithium appears in the nature as two major abundant isotopic forms: ⁶Li with 7.5%at and ⁷Li as rest balanced. The n-⁶Li capture reaction (n(⁶₃Li, ⁴₂He)³₁H) is the most effective nuclear reaction in the nature to produce tritium: the fuel of first generation fusion reactors. Thus, ⁶Li isotope production appears as having strong interest for Fusion Technology developments, taking into account that the present reserves of tritium are scarce and tritium should be bred in large amounts and managed in closed cycles in the coming Fusion reactors. Short-term demands as ITER-base of design-material justify the industrial interest on this Master Project. ⁶Li ITER Market targets 1 TN⁰ and 50 TN for a next DEMO⁰. Techniques at laboratory scale to produce ⁶Li are well known and established³⁰⁻⁴¹⁻⁴²⁻⁴³⁻⁴⁶⁻⁴⁹⁻⁵⁰⁻⁵¹⁻⁵²⁻⁵³. There are techniques with 100% proven efficiency but costly in terms of scaling and energy consumption; case of (AVLIS, "Atomic Vapor Laser Isotope Separation") or "in beam" techniques. Chemical techniques (OREX/COLEX processes) are doubtfully scalable and unacceptable from an

environmental viewpoint driving to its discarding. Electrophoretic techniques based on the use of ionic super conductor membranes in lithium electrolytes are doubtfully scalable in terms of power consumption demands for simple plant schemes.

Vapor centrifugation, high temperature distillation or both combined appear as robust simple and scalable techniques⁵²⁻⁵³.

In this MASTER PROJECT document it is intended to:

- (1) Generate and propose an optimized design and a new separation process for a Prototypical ⁶Li production cell based on ⁶Li / ⁷Li separation technique using an helical coil flowing Li vapor at hybrid molecular-viscous regimes;
- (2) Qualify through CFD numerical modeling its nominal efficiency for ⁶Li - ⁷Li separation in vapor phase in order to be capable to justify its potential industrial scaling.

The needed developments towards the projection of the activity towards the construction and the demonstration of the principle in a possible future PhD Thesis are anticipated. In other level, the set of consolidated specifications for a future centrifugal-

destilator can pursue an industrial patent of huge industrial value.

Keywords:

Lithium, fusion, CFD, two-phase vapor mixtures, isotope separation.

RESUMEN

El Litio aparece en la naturaleza en dos formas isotópicas mayoritariamente abundantes: 7.5% de fracción atómica como ${}^6\text{Li}$ con y el ${}^7\text{Li}$ en un 92.5%. La reacción de captura $n({}^6_3\text{Li}, {}^4_2\text{He}){}^3_1\text{H}$ es la reacción más eficiente en la naturaleza para producir tritio [${}^3_1\text{H}$]. El tritio representa un combustible no-primigenio a producirse y gestionarse en ciclo cerrado para la primera generación de reactores de fusión nuclear como ITER. Así, el isótopo ${}^6\text{Li}$ tiene interés en desarrollos clave de la Tecnología Nuclear de Fusión en su camino de demostración como opción energética. Las demandas de producción ${}^6\text{Li}$ a escala en el llamado Mercado de Industria de la Ciencia como material base de diseño de dispositivos justifican el interés industrial de este TFM. El ${}^6\text{Li}$ como producto resultante del proceso de separación tiene un mercado particular, identificado y no cubierto a escala de demanda, de aproximadamente 1 Tn en ITER⁰, y cerca de 50 Tn para cada reactor DEMO⁰ futuro. Las técnicas de producción de ${}^6\text{Li}$ son bastante conocidas y han sido establecidas a escala de laboratorio³⁰⁻⁴¹⁻⁴²⁻⁴³⁻⁴⁶⁻⁴⁹⁻⁵⁰⁻⁵¹⁻⁵²⁻⁵³, existiendo técnicas de eficiencia demostrada al 100% aunque de imposible escalabilidad industrial a costes justificables. Un ejemplo son las técnicas láser (AVLIS: "Atomic Vapor Laser Isotope Separation") o en haz deflectado: "Accelerator in beam".

Existen algunas técnicas químicas⁵⁷ basadas en el uso de resinas iónicas de intercambio y amalgamas (OREX/COLEX) que han sido ya demostradas en el pasado, que son dudosamente escalables y del todo inaceptables desde un punto de vista medio ambiental lo que indujo con anterioridad a su descarte. Las técnicas electroforéticas basadas en la utilización de membranas iónicas súperconductoras en electrolitos litiados para separar mediante electromigración no están aún demostradas como viables para trabajar con litio, presentando diversas

limitaciones técnicas y serias dudas de su escalabilidad industrial por lo que a consumos nominales de planta se refiere. La centrifugación en fase vapor, la destilación de alta temperatura o una posible combinación de ambas; aparecen prospectivamente como técnicas robustas y bien fundamentadas en principios físicos demostrados y escalables industrialmente vía sencillos modelos de unidades repetidas en planta.

Este TFM del Máster de Ingeniería Energética (MIE) de la Universidad de Oviedo pretende:

- 1) Generar y proponer un diseño optimizado y un nuevo proceso para una Celda / Unidad Prototípica de producción de ${}^6\text{Li}$, por separación ${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$ en fase vapor del Litio natural sobre la base de diseño de un serpentín helicoidal en régimen optimizado molecular-viscoso.
- 2) Aproximar mediante una simulación numérica (CFD) la eficiencia nominal para la separación ${}^6\text{Li}$, ${}^7\text{Li}$ en fase vapor para su posterior escalamiento industrial.

Se anticipan los desarrollos necesarios de continuidad del Proyecto hacia la construcción de la Unidad Experimental de Demostración prototípica como parte del Trabajo a desarrollar en una posible Tesis Doctoral futura. Por otro lado, el conjunto de especificaciones de un serpentín centrifugador - destilador pueden dar lugar a una patente de gran valor industrial.

Palabras clave:

Litio, Fusión, CFD, Mezclas de vapores bifásicas, Separación isotópica.

1. Justificación Técnica del TFM

El Litio-6 (${}^6\text{Li}$) es considerado como "Material de Defensa y Doble Uso" con Salvaguardias Nucleares y Control de Exportación⁰ dado su potencial uso en la producción de tritio para bombas termonucleares o su potencial uso actual militar en formas de $\text{D}{}^6\text{Li}$ para tal fin. Este hecho añade una especial dificultad a la hora de desarrollar aplicaciones de uso civil como es el caso de este Proyecto.

Atendiendo a las características neutrónicas ya expuestas, el Deuterio y el ${}^6\text{Li}$ son los combustibles

primarios de los futuros reactores de fusión. El isótopo ${}^6\text{Li}$ tiene interés en desarrollos clave de la Tecnología Nuclear de Fusión en su camino de demostración como opción energética en las próximas décadas por resultar el elemento de regeneración de combustible (tritio) en ciclo cerrado dentro del propio reactor. Las demandas de producción a escala en el llamado Mercado de Industria de la Ciencia como material base de diseño de reactores de fusión nuclear (aprox.: 1 Tn en ITER (2020), aprox.: 50 Tn/GW en DEMO (2035) usarán ${}^6\text{Li}$ en grandes cantidades. No existe, hoy por hoy, garantías de aprovisionamiento ni industrial ni existe oferta de Mercado capaz de proporcionar ${}^6\text{Li}$ en las cantidades requeridas. La contratación industrial europea de materiales litiados para ITER se realiza hoy desde España (Agencia Euratom F4E, Barcelona).

Tabla 1. Demandas evaluadas de aprovisionamiento de ${}^6\text{Li}$ a corto plazo (ITER) y a largo plazo (DEMO).

ITER [Kg de ${}^6\text{Li}$]		DEMO [Ton de ${}^6\text{Li}$ /reactor 1.5GW _e]
UE	[226]	47
UE y otros Socios ITER	[1000]	(consumos de 500 kg/ 3GW _{th} -año)

Un enorme interés emergente complementario de la producción y separación industrial de los isotopos del Litio está en el mercado de una nueva generación baterías de ión-litio. Las llamadas *baterías isotópicas* se fundamentan sobre la base de las características electroquímicas diferenciadas de ambos átomos, para aplicaciones estáticas domésticas, para el mercado de las comunicaciones y para el sector del transporte (Vehículo Eléctrico).

Dichas mejores prestaciones predichas (*tensión de alimentación, menores tiempos de recarga, mayores ciclos o vida útil*) radican en las mejores características teóricas de los electrolitos litiados con ${}^6\text{Li}$ (mejores características de electromigración en electrolito) y las mejores prestaciones de los cátodos litiados (con ${}^7\text{Li}$) por su menor potencial de ionización (diferencias espectroscópicas en los niveles electrónicos de origen *nuclear hiperfina* al ser el ${}^7\text{Li}$ un bosón y el ${}^6\text{Li}$ un fermión).

Este ámbito de aplicación abriría una dimensión enorme a la separación de isotopos del litio en su aplicación energética y en el sector del transporte.

1.1. Objetivos

Este Trabajo Fin de Máster se estructura en los siguientes 8 puntos:

- 1) Se justifica con detalle la demanda civil de aprovisionamiento del material ${}^6\text{Li}$ para reactores de Fusión Nuclear a modo de racionalidad e interés, más allá de lo académico, del estudio⁴⁵,
- 2) Se propone y se describe en detalle los fundamentos conceptuales de un serpentín separador de vapores de litio en régimen híbrido molecular-viscoso,
- 3) Se realiza un exhaustivo esfuerzo documental y una sistemática búsqueda bibliográfica de datos experimentales relativos a las *propiedades constitutivas bifásicas isotópicas* del Litio; viscosidades dinámicas [$\mu_{6,7}$] y difusividades atómicas [$D_{6,7}$]:
 - a. dada la inexistencia de datos publicados, se describen los procedimientos físico-estadísticos para su obtención de magnitudes isotópicas para ambas especies ${}^6\text{Li}$ y ${}^7\text{Li}$ justificando como comportamiento clave para la separación,
 - b. se construyen de manera original los diferentes diagramas de fase y evoluciones de las presiones de vapor isotópicas ($p_{6,v}$, $p_{7,v}$).
- 4) Se proponen puntos óptimos de operación termodinámica (P, V, T) y especificaciones de diseño iniciales para un sistema consistente en: VACÍO - VASO DE VAPORIZACIÓN - SERPENTÍN SEPARADOR – VASO DE CONDENSACIÓN DIFERENCIAL – VACÍO.
- 5) Se explicita un Modelo VF estacionario de 2-fluidos independientes compresible ($Mach \ll 0.3$) de solución de las Ecuaciones de Navier Stokes, para caudales de Re crítico [$(Re)_c$] en la transición *laminar-turbulento* y en zonas térmicas híbridas de régimen "molecular-viscoso" (*Número de Schmidt*: $Sc \approx 0.1-1$) en los que el flujo másico presenta ambas componentes de arrastre viscoso y auto-difusión atómica que hace factible tanto el

arrastre del vapor contra la caída de presión como la centrifugación rotacional diferencia ${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$ en el serpentín¹²,

- 6) Se implementa dicho modelo parametrizando la geometría 3D del serpentín y del helicoide central de simetría para el cálculo 2D (computacionalmente factible en un PC) con el uso de la herramienta de mallado GID12.0²¹ y del solucionador CFD de Tdyn¹⁰,
- 7) Se presentan resultados numéricos de la simulación justificando resultados preliminares de separación nominal por paso y;
- 8) Se anticipan los desarrollos necesarios para dar continuidad al Proyecto hacia la construcción de la Unidad Experimental de Demostración en prototipo como parte del Trabajo a desarrollar en una posible Tesis Doctoral futura.

1.2. Metodología empleada

Este TFM tiene, indudablemente, un importante componente funcional de trabajo de investigación e innovación radical. Esto se justifica en:

- a) La novedad y originalidad del tema y su ámbito de aplicación;
- b) La diversidad de áreas de conocimiento implicadas que van desde:
 - La físico-química nuclear fina (isotópica),
 - La concepción de nuevos procesos de ingeniería química avanzada,
 - La ciencia de nuevos materiales,
 - La computación fluido-dinámica avanzada y los métodos mecánico-estadísticos para la evaluación de las propiedades básicas inaccesibles sin las debidas capacidades experimentales,
 - La concepción energética de procesos, etc.

Una importante dificultad afrontada se refiere a las dificultades de acceso a bases de datos científicas respecto a las propiedades isotópicas por las características de los materiales: novedad y doble uso. Esto ha exigido un importante y sistemático esfuerzo de gestión documental (Mendeley) y búsqueda de información en diversas fuentes (p.ej. www.google scholar.org, ScienceDirect, etc.)

Tabla 2. Resumen de técnicas de enriquecimiento y su posible escalabilidad¹⁴.

TÉCNICA	ESCALABILIDAD
Centrifugación en gas	ESCALABLE
Electroforesis en membranas de superconductor iónicas	DUDAS
Intercambio iónico en amalgamas (COLEX)	NO
Separaciones en haz	NO
Separación láser (AVLIS).	NO
Destilación alta temperatura	ESCALABLE
Métodos combinados escalables	ESCALABLE

2. Estado General de la Técnica

2.1. Tecnologías de separación

Las tecnologías de separación isotópicas son comunes a diversos elementos de la Tabla periódica y en particular al Uranio, lo que extiende el interés y rango de aplicaciones posibles de este TFM. Existen tres tipos de técnicas disponibles para realizar separaciones isotópicas:

- a) Las basadas directamente en el peso atómico del isótopo;
- b) Las basadas en las pequeñas diferencias en el tipo de reacción química producida por diferentes pesos atómicos, y;
- c) Las basadas en otras propiedades no directamente relacionadas con el peso atómico, tales como resonancia nuclear, la espectroscopia fina, etc.

Las técnicas de laboratorio para la producción de ${}^7\text{Li}$ [${}^6\text{Li}$ como subproducto] son bien conocidas y establecidas. En laboratorio existen técnicas de eficiencia demostrada 100% aunque muy costosas tanto técnica como energéticamente y NO escalables (**Tabla 2**). Un ejemplo son las técnicas láser o en haz deflectado ya comentadas previamente. Las técnicas químicas son dudosamente escalables y sucias desde un punto de vista medioambiental lo que induce a su no consideración como técnicas de interés. Las técnicas electroforéticas que podríamos utilizar para separar los isótopos del litio por electromigración en membranas:

- 1) Necesitan demostración de principio con el Li;

- 2) Están limitadas por los valores de superconductividad de las membranas electroforéticas y;
- 3) Son dudosamente escalables en demandas de potencia en esquemas sencillos de planta.

La centrifugación en gas, la destilación de alta temperatura o la combinación de ambas técnicas, se muestran potencialmente como técnicas robustas; con base en principios físicos demostrados e industrialmente escalables vía sencillos modelos de Planta.

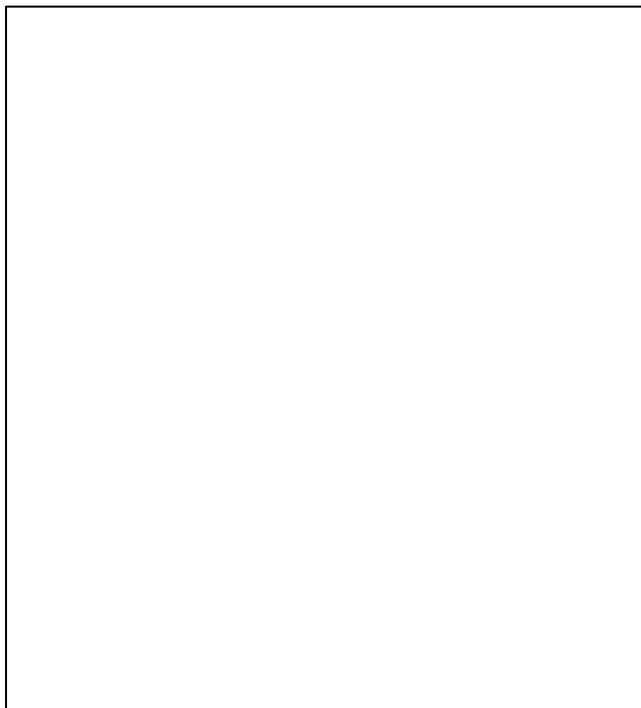


Figura 1. Esquema conceptual de instalación (E-16: deposito liquido de Li natural; E-17: volumen de expansión del vapor; E-10 cavidad serpentín; E-15 / E-14 / E-11 volúmenes de producción diferenciada ^6Li / ^7Li).

E-16	Caldera sublimadora de litio
E-17	Tanque de vapor de litio (*)
V1	Válvula principal electro pilotada
E-10	Celda de separación isotópica
E-15	Condensador, int. de calor ^7Li (*)
E-14	Condensador, int. de calor ^6Li (*)
CA	C.A. para accionar la bomba
E-13	Bomba de vacío
E-18	Tanque de vacío (*)
V-5/V-6	Válvulas
^7Li M	Tubería a tanques de ^7Li (**)
^6Li M	Tubería a tanques de ^6Li (**)
E11/E12	Tanques de almacenamiento $^6\text{Li}/^7\text{Li}$

La propuesta de proceso para evaluación en este TFM supone la calificación de un proceso / modelo / unidad conceptual prototípico (Unidad E-10, **Figura 1**) para la demostración de producción de algunas decenas de gramos de ^7Li respectivamente (^6Li) puro. La escalabilidad de la técnica se justifica por un sencillo modelo de planta de celdas E-10 repetidas en serie conectadas en líneas de producción paralelas.

La actividad técnica concreta en este TFM se centra en la concepción de proceso, las especificaciones de diseño de ingeniería y la evaluación numérica de dicho componente E-10.

2.2. Centrifugación/destilación en el serpentín.

En regímenes de difusión atómica en fase vapor, los factores de separación $^6\text{Li}/^7\text{Li}$ están en proporción a sus masas isotópicas: (6/7). Dicho factor de separación es de manera natural y sencilla superior a la de cualquier otro proceso físico-químico conocido.

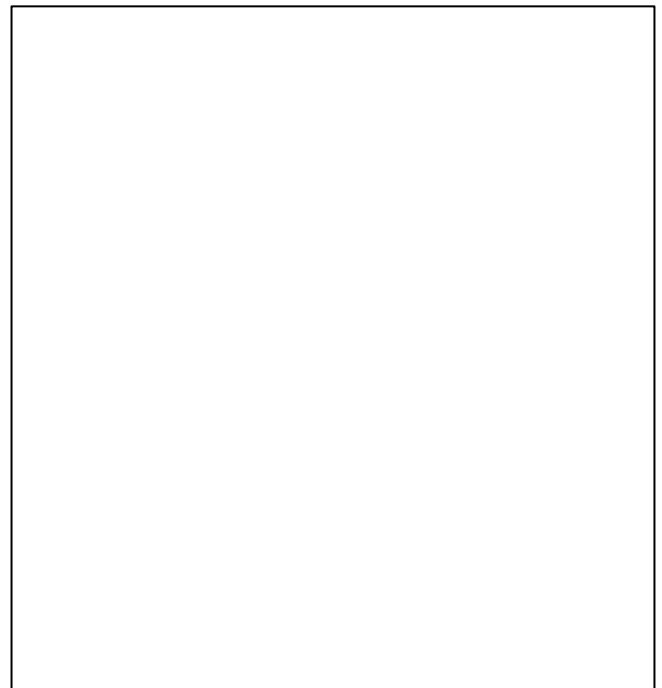


Figura 2. Circulación y caídas de presión de flujo de vapor de litio y caudal crítico en la transición laminar-turbulento en el serpentín separador¹⁵.

Existen dos mecanismos físicos identificados que explotarían dicho factor: *la centrifugación* y *la termo-difusión*. Una posibilidad conceptual -de alto interés- a explorar aparece si se combina una técnica de centrifugación con una destilación a alta temperatura que condensa selectivamente una de las especies, asistida por la *termo-difusión* dentro de un serpentín diseñado *-ad hoc-*. Se trataría de combinar dichos procesos ganando compacidad, en eficiencias nominales y reducción *- a priori -* en los consumos energéticos del proceso de separación.

2.3. Concepción de principio

Vaporizamos Litio natural desde E-16 a E-17 (**Figura 1**). A 1 bar de presión absoluta las temperaturas de vaporización del litio natural están alrededor de 1.333 °C. Esta temperatura es de 1.342 °C para el ${}^7\text{Li}$ y de 1.329 °C para ${}^6\text{Li}$. Reduciendo la presión en los volúmenes E-16 a E-17 a una presión de referencia p_1 (Pat/α), bajamos de manera sensible los puntos de vaporización y aumentamos la horquilla de diferencias isotópicas de las presiones de vapor de ambos isótopos. A una T_0 dada; la presión de vapor $p_{v,6}(T_0) > p_{v,7}(T_0)$.

Por el serpentín generamos caudal másico de vapor de litio a cierta velocidad por vía de una presión diferencial [p_1 contra nivel de casi-vacío (ej.: 10^{-5} bar) en salida p_0]; $\Delta p = p_1 - p_0 = (p_{v,6}(T_0) + p_{v,7}(T_0)) - p_0$.

Establecidos los flujos másicos y dadas unas especificaciones geométricas del tubo helicoidal estos caudales pueden regularse manualmente con reguladores de caudal y ajustarse a valores de un Re crítico [$(\text{Re})_c$] de transición laminar-turbulento que justifica una caída de presión mínima ($\Delta p \rightarrow 0$). Dicho [$(\text{Re})_c$] es estimable en base a correlaciones existentes en la literatura¹⁶⁻¹⁷⁻¹⁸ para otros fluidos en función de parámetros geométricos del serpentín [radio: a , radio exterior: R , paso: θ].

Operar el serpentín con $(\text{Re})_c$ tiene notables ventajas: homogeneiza helicoidalmente el flujo y las presiones de vapor, genera compacidad, circulación natural y minimiza consumos energéticos de bombeo y vaporización; y a su vez haciendo más representativa la simulación numérica ulterior de un estado estacionario sin condensaciones no-térmicas del vapor.

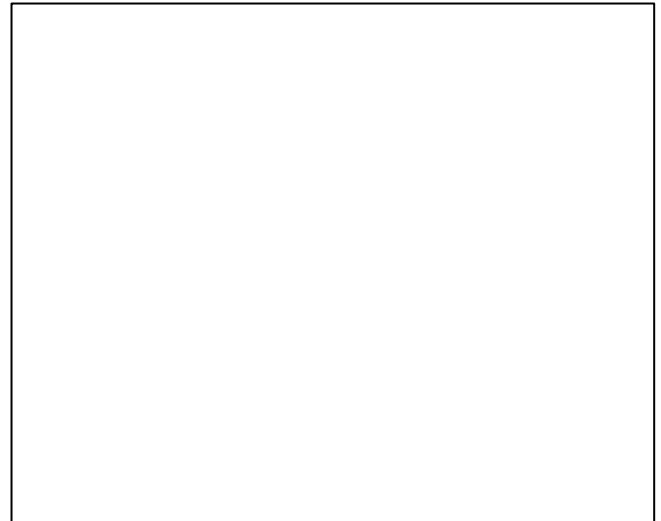


Figura 3. Hélice tubular concéntrica (3 pasos) [imagen izquierda] y Visualización del efecto separador por centrifugación y condensación en pared exterior por paso de hélice. A un caudal próximo al caudal crítico (U_c) para la transición laminar a turbulento, el arrastre a contra la alta viscosidad del vapor metálico genera diferentes fuerzas de centrifugación (factores aproximados a $\approx 7/6$) [efecto centrifugador] junto a una difusión diferencial radial contra concentración de vapor $c_{v,7}$ nula por condensación [efecto destilador] favorecido por una difusividad diferencial de ambos vapores isotópicos.

El control de la temperatura de la pared exterior: un valor T_p próximo pero inferior a la temperatura $T_{1,7}$ de condensación del ${}^7\text{Li}$ en la pared induce un efecto de termo-difusión que combina con centrifugación-condensación del ${}^7\text{Li}$ en la pared, enriqueciendo espira a espira el título en ${}^6\text{Li}$ en circulación hasta la salida del serpentín tubular con terminación en un separador radial cónico (a tipo de embudo separador radial).

Como proceso integrado puede considerarse el dispositivo como solución "3 en 1" en el que la centrifugación radial en cada espira del serpentín, la condensación (destilación) de una de las especies en la pared exterior (${}^7\text{Li}$) y la propia termo-difusión (la diferente dependencia de coeficientes de auto-difusión con la temperatura, el efecto del gradiente térmico radial y la condición de contorno para la presión de vapor de ${}^7\text{Li}$ en la pared) operan de manera acoplada en aras de la eficiencia global del proceso y de los consumos nominales.

Tabla 3. Propiedades del litio⁵⁹.

Propiedad	Ud.	Valor
Punto de Ebullición	K	1608.20
Punto de Fusión	K	453.64
Temperatura Crítica (T _c)	K	3494.00
Presión Crítica (P _c)	MPa	37.78
Densidad Crítica (ρ _c)	Kg/m ³	118.00

2.4. Propiedades de Li vapor e isótopos

Los metales líquidos tienen propiedades de cuasi-cristal y sus vapores tienen propiedades físicas muy singulares⁵; en particular una relativamente alta viscosidad (similar al agua líquida), propiedad que favorece su arrastre hidrodinámico.

Para el progreso del análisis y optimización conceptual inicial resulta del mayor interés detenerse en el conjunto de propiedades físicas constitutivas de dichos vapores y sus dependencias isotópicas.

• DENSIDAD [ρ]

Calculable desde la hipótesis del gas ideal:

$$\rho_{v,M}(P, T) = \frac{M P_{v,M}}{RT}$$

• PRESIONES DE VAPOR DE LITIO [p_v]

Calculamos las presiones de vapor respectivas [p_{v,6}(T), p_{v,7}(T)] a partir de la expresión para el material natural²¹:

$$\ln p_1 [Pa] = 26.89 - 18880/T - 0.4942 \cdot \ln T$$

Y sus proporciones estequiométricas. Así:

$$p_1 [Pa] = p_{v,6}(T)^{0.065} \cdot p_{v,7}(T)^{0.935}$$

$$\frac{p_{v,6}(T)}{p_{v,7}(T)} \approx \left(\frac{7}{6}\right)^{\frac{1}{2}}$$

La búsqueda de valores de magnitudes isotópicas para el ⁶Li/⁷Li en la literatura abierta produce resultados infructuosos.

Tabla 4. Coeficientes de Ω^{(l,s)*}(T*)²².

	(l,s)	
	(1,1)	(2,2)
A	1.06036	1.16145
B	0.15610	0.14874
C	0.19300	0.52487
D	0.47365	0.77320
E	1.03587	2.16178
F	1.52996	2.43787
G	1.76747
H	3.89411
R x10⁴	-6.435
S	18.032
W	-0.768
P	7.27730

Podemos obtener algunas de las magnitudes teóricas clave para el diseño por vía teórica (modelos colisionales mecánico-estadísticos) donde los potenciales colisionales: Ω^{(1,1)*}(T*) y Ω^{(2,2)*}(T*) se expresan:

$$\Omega^{(l,s)*}(T^*) = \frac{A}{T^*} + [Ce^{-DT^*}] + [Ee^{-FT^*}] + [Ge^{-HT^*}] + RT^{*B} \sin(ST^{*W} - P)$$

Donde el potencial se refiere a un potencial de esferas duras Lennard-Jones:

$$\varphi(r) = 4\varepsilon \left[\left(\frac{\sigma}{r}\right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r}\right)^6 \right]$$

Los valores de [σ, ε] se relacionan con valores de temperaturas (T_c) y presiones críticas (P_c):

$$\sigma = 2.43 \cdot \left(\frac{T_c}{P_c}\right)^{1/3} \quad \text{y} \quad \frac{\varepsilon}{k_B} = 0.77 \cdot T_c$$

Siendo: T* = T/(ε/k_B); [k_B: constante de Boltzmann]

Los parámetros críticos aparecen tabulados como propiedades básicas del material en la literatura abierta²³ pudiendo comprobarse la excelente calidad predictiva del modelo teórico para el Litio natural. No obstante, son conocidos ni han sido encontrados

en la literatura valores de (T_c, P_c) diferenciado para cada isótopo; por lo que la única corrección isotópica que justificamos proviene de la dependencia de las magnitudes fluido-dinámicas con dichos potenciales a través de las masas atómicas M como:

- **CONDUCTIVIDAD TERMICA $[\lambda]$** ⁵⁹

$$\lambda_M = 8.3254 \cdot 10^{-2} \frac{\sqrt{\frac{T}{M}}}{\sigma^2 \Omega^{(2,2)}}$$

- **ρC_p LITIO VAPOR $[\text{kJ}/\text{m}^3\text{K}]$**

$$\rho C_p^{(0)} = \frac{5}{2} \cdot \frac{P}{T}$$

(Gas monoatómico sin dependencia isotópica)

- **VISCOSIDAD DINAMICA $[\mu]$** ⁵⁹

$$\mu = 2.6693 \cdot 10^{-6} \frac{\sqrt{MT}}{\sigma^2 \Omega^{(2,2)}}$$

- **DIFUSIVIDAD TERMICA $[D]$** ⁵⁹

$$D(T) = \frac{26.28 \cdot 10^{-2} \sqrt{T^3/M}}{p \sigma^2 \Omega^{(1,1)}}$$

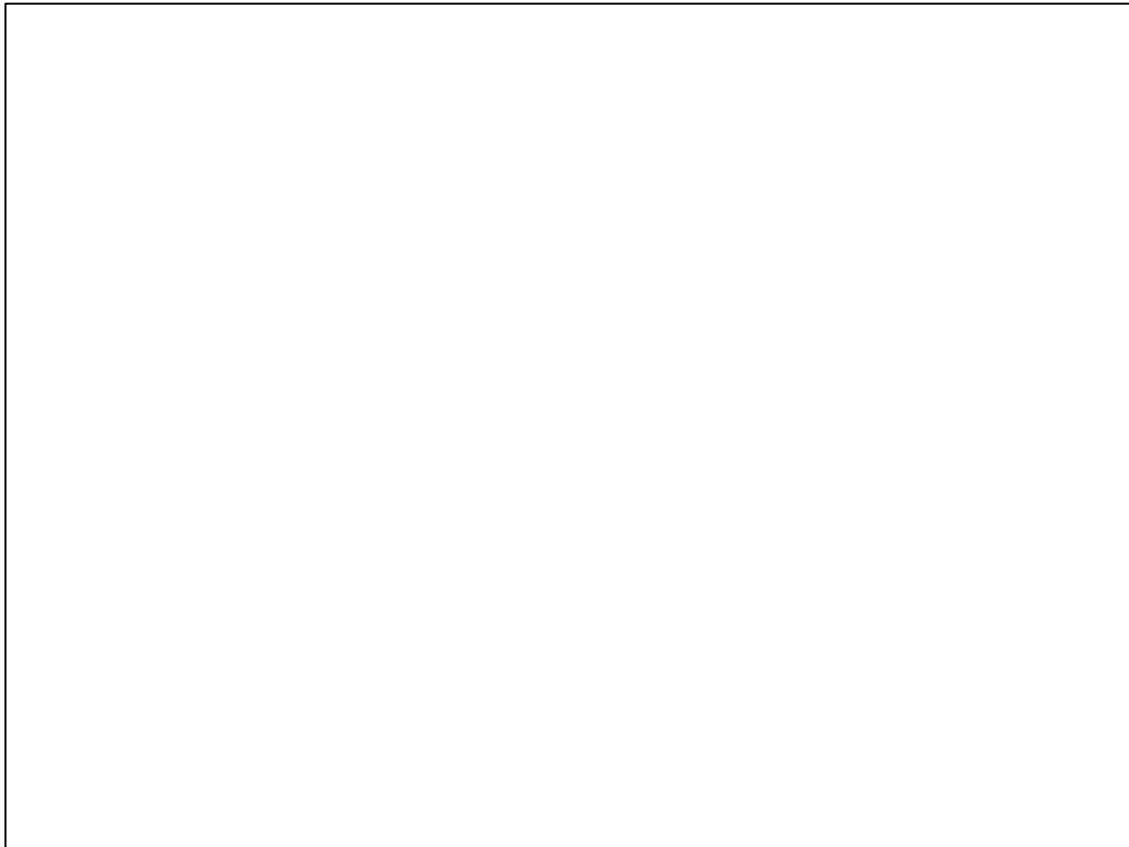


Figura 4. Representación de números de Schmidt isotópicos (Sc) [razón entre viscosidad cinética μ/ρ sobre coeficientes de difusión atómicos (D)] para Litio en función de la temperatura y a presiones de trabajo de referencia (cuadrados: Li-6; rombos: Li-7).

En la Figura 4 se representan los valores de Sc (número de Schmidt: razón entre viscosidad cinética y la difusividad) entorno a unidad y sus variaciones isotópicas para Li-6 y Li-7. De dicha grafica adelantamos las siguientes conclusiones:

- (1) Existe un rango operativo al alcance técnico e inferior a valores críticos en el que se justifican $Sc \approx 1$ (régimen híbrido molecular viscoso en los que existe arrastre y centrifugación diferenciada)
- (2) Existe una horquilla isotópica cuantitativamente marcada (a relativamente baja temperatura) el efecto y puede permitir un juego térmico para destilación diferenciada de decenas o algún centenar de grados a temperaturas superiores.

2.5. Geometría y puntos operativos

Parametrizamos la doble superficie tubular helicoidal que genera el volumen de paso de fluido entre los tubo helicoidales concéntricos (a : radio de sección; R : radio helicoidal; b : elevación o paso (pitch)):

$$x(u, v) = a \cdot \cos(u) - R \cdot \cos(u) \cdot \cos(v) + R \frac{b}{\sqrt{a^2 + b^2}} \sin(u) \cdot \sin(v), \text{ con } 0 < u < 4\pi$$

$$y(u, v) = a \cdot \sin(u) - R \cdot \sin(u) \cdot \cos(v) - R \frac{b}{\sqrt{a^2 + b^2}} \cos(u) \cdot \sin(v), \text{ con } 0 < v < 4\pi$$

$$z(u, v) = b \cdot u + R \frac{b}{\sqrt{a^2 + b^2}} \sin(v)$$

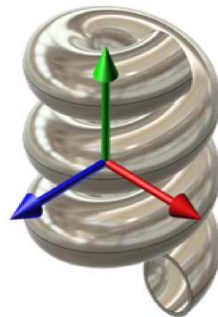
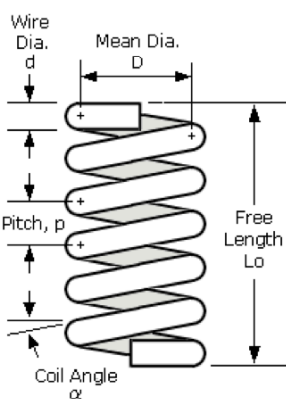


Figura 5. Parámetros fundamentales de una tubería helicoidal y parametrización para ulterior mallado.

Para el tanteo de diseño inicial del serpentín nos apoyamos en correlaciones existentes en la literatura para números de Dean (De) que justifican un $(Re)_c$ para una caída de presión quasi-nula²:

$$(Re)_c = 2300 \left[1 + 8.6 \left(\frac{a}{R} \right)^{0.45} \right]$$

Con $10^3 < Re < 10^5$ y $10 < R/a < 10^4$.

Desde estas correlaciones rangos podemos estimar un caudal óptimo de tanteo inicial desde valores de a , R dados dentro de dichos rangos:

$$a = 5 \text{ cm}; \quad R = 75 \text{ cm}; \quad (Re)_c = 8147$$

Así:

$$U = 3.95 \text{ m/s con } \mu = 0.0011 \text{ Pa}\cdot\text{s}$$

3. Simulación CFD

3.1. Modelo físico

Para la solución de las ecuaciones de *Navier-Stokes* consideramos un Modelo Físico formado por dos fluidos independientes, algoritmo **RANS [Solución Navier Stokes promediadas por Reynolds]**.

Los métodos RANS se han ido perfeccionando con el tiempo y han surgido diversos modelos basados en éste método²⁴. De entre ellos, elegimos en nuestra simulación el **modelo k-epsilon (k-ε)** [Launder y Spalding, 1972] que es el método simple más completo para simular la turbulencia en proximidad de Reynolds crítico.

En la simulación del efecto separador asumimos las siguientes hipótesis físicas:

- 1) Los vapores isotópicos circulantes se asumen como vapores compresibles independientes (si bien prácticamente incompresible; $Mach \ll 0.3$), es decir densidad constante a lo largo del serpentín.
- 2) Para el caudal crítico justificamos la inexistencia de fluctuaciones locales de presión no generándose condensaciones.

3.2. Solucionadores numéricos e inputs

Tabla 6: Características del modelo numérico.

Geometría	Autodesk SimStudio 2016
Mallado	Autodesk© CFD 2016 con herramienta Void Fill. Volúmenes Finitos: 300.000
Código CFD	Autodesk© CFD 2016
Mallado 3D	Autodesk© CFD 2016
Modelo físico	Modelo compuesto de un Fluido compresible pero prácticamente incompresible
Condiciones de contorno	Velocidad/Presión a la entrada Presión a la salida Periodicidad Entrefase Pared/rugosidad: tubo liso
Condiciones iniciales	a) Presión inicial b) Temperatura inicial
Turbulencia	k-ε Realizable
Solver	Estacionario (SS)

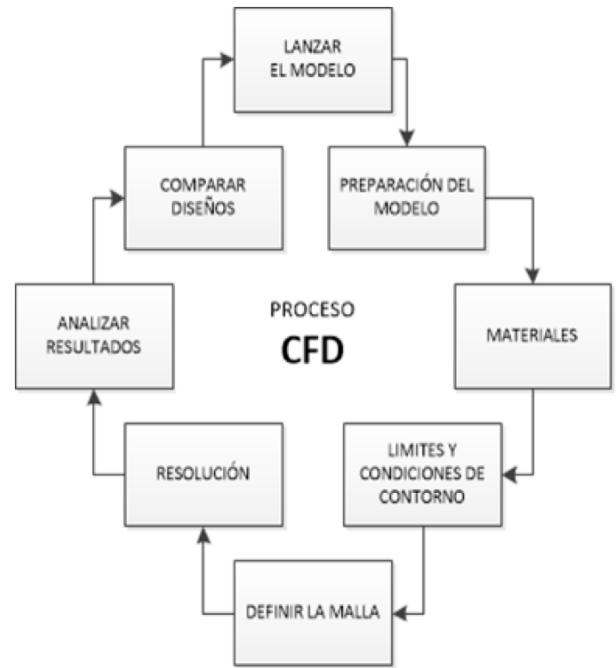


Figura 7. Detalle de proceso de elaboración del modelo CFD.



Figura 6. Relación del software matemático y de simulación utilizado para la realización de este trabajo.

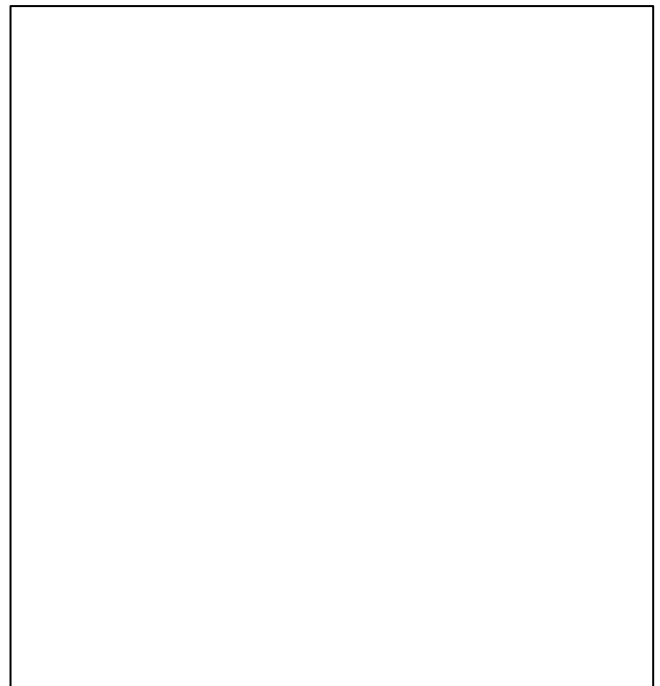


Figura 8. Detalle del mallado generado por Autodesk® CFD 2016. Mallado automático, adaptativo de un paso del helicoide tubular.

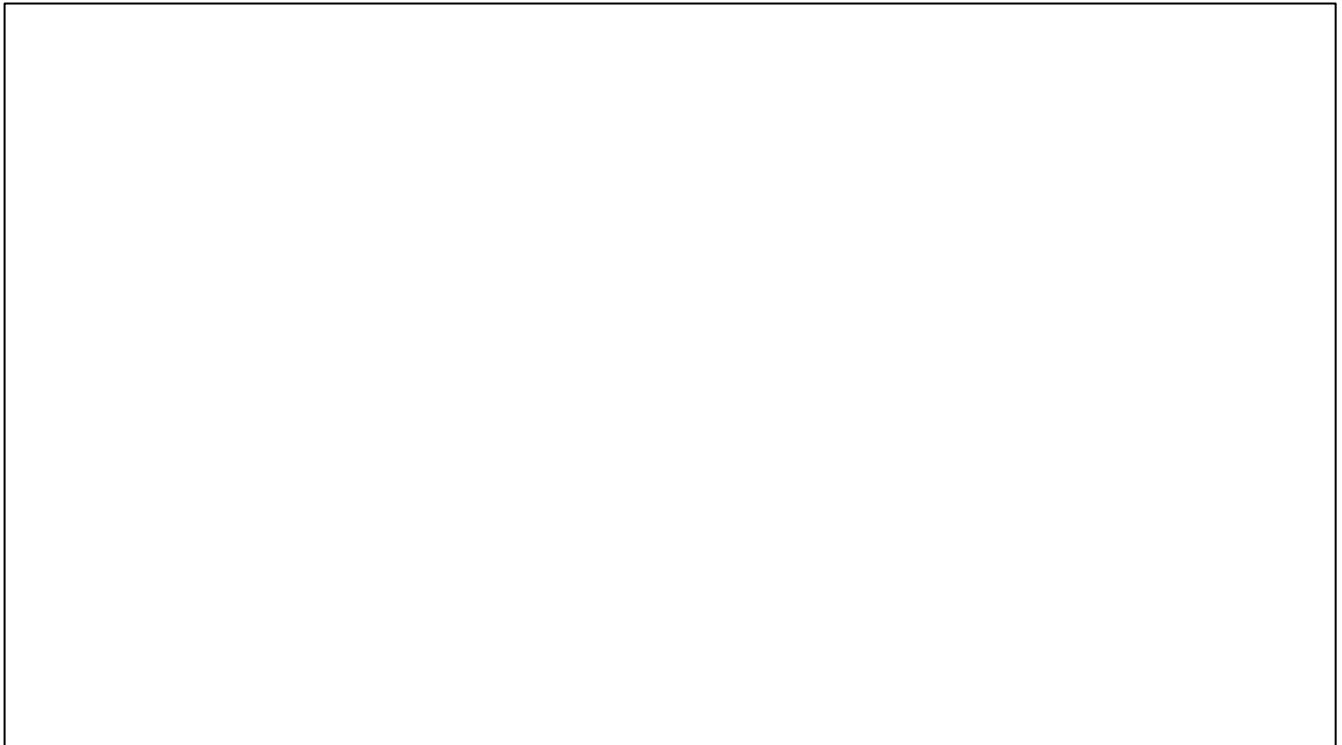


Figura 9. Detalle de resolución del modelo en 3D en Autodesk CFD 2016. (Presión y vorticidad en el inlet).

Field Variable Results

Variable	Max	Min
cond	0.522995 W/cm-K	0.522995 W/cm-K
dens	0.480562 g/cm ³	0.480562 g/cm ³
econd	66.0272 W/cm-K	0.522995 W/cm-K
emiss	1.0	1.0
evisc	4.65345 g/cm-s	0.032886 g/cm-s
gent	38290.5 1/s	25.4515 1/s
press	131668.0 dyne/cm ²	-106222.0 dyne/cm ²
ptotl	131668.0 dyne/cm ²	-106222.0 dyne/cm ²
scal1	0.0	0.0
seebeck	0.0 V/K	0.0 V/K
shgc	0.0	0.0
spech	14.31 J/g-K	14.31 J/g-K
temp	0.0 C	0.0 C
transmiss	0.0	0.0
turbd	60009400.0 cm ² /s ³	312.462 cm ² /s ³
turbk	63003.6 cm ² /s ²	3.2886e-05 cm ² /s ²
ufactor	0.0	0.0
visc	0.032886 g/cm-s	0.032886 g/cm-s
vx vel	275.165 cm/s	-283.757 cm/s
vy vel	275.404 cm/s	-395.0 cm/s
vz vel	25.4394 cm/s	-161.202 cm/s
wrough	0.0 cm	0.0 cm

Figura 10. Detalle de resolución del modelo en 3D en Autodesk CFD 2016. (Resultados numéricos)



Figura 11. Detalle de solución de la evolución de la presión en un paso del helicoide en 3D (Autodesk CFD 2016).

Con el uso de la herramienta GID12.0²¹ de CIMNE para resolver las ecuaciones en coordenadas (u, v) aprovechando al máximo la simetría cilíndrico-rotacional y resolviendo entre dos pasos consecutivos obtenemos los siguientes resultados:

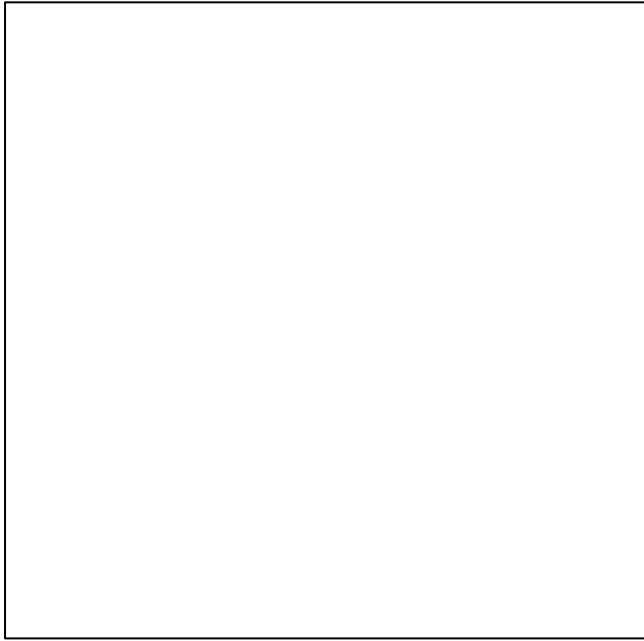


Figura 11. Mallado alabeado plano para Tdyn.

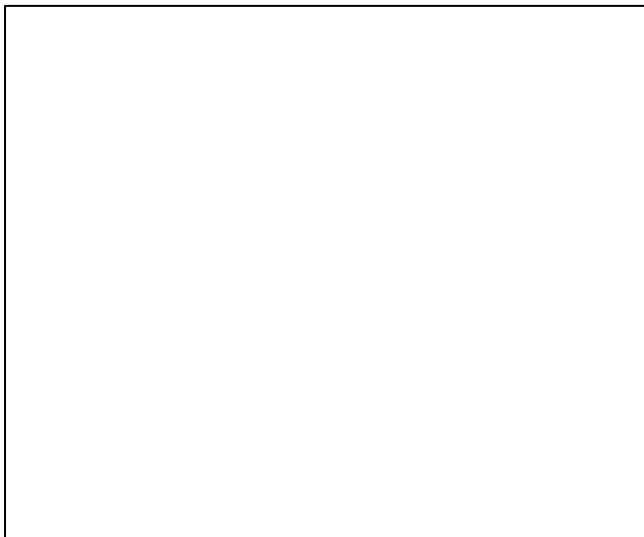


Figura 12. Resultados de la simulación en 2D mostrando la distribución y la evolución por paso de helicoide de la razón de separación $c_{v,6}/c_{v,7}$. El análisis se ha realizado a una unidad de simetría rotacional (plano helicoide central de corte) en Tdyn 2D].

4. Resultados y conclusiones

En este Proyecto se han realizado tanteos iniciales para la definición de primeras especificaciones de diseño para ulterior construcción de un serpentín separador operando en regímenes híbridos molecular/viscoso y en dominios hidráulicos de transición laminar-turbulento que justifican operatividad de principio en geometrías accesibles.

Se justifica la existencia de un dominio operativo ($Sc = 1$) y horquillas isotópicas que justifican efectos separadores para posible uso combinado de la centrifugación destilación.

En base a propiedades justificadas en la literatura abierta se ha buscado una confirmación del principio via simulación; tanto de los aspectos hidrodinámicos Figuras 8, 9,10 como en la visualización numérica de los efectos de separación en 2D (Figura 11, 12). La falta de capacidad de cálculo no ha permitido la visualización 3D del efecto separador que queda pendiente a la continuidad del trabajo iniciado.

Los tanteos geométricos iniciales, necesarios para la demostración prototípica, anticipan características viables de funcionamiento que confirman el interés de proseguir en esta línea de desarrollo industrial.

DECLARACIÓN

Las partes iniciales de este trabajo fueron objeto de una ponencia en la Reunión Anual de la Sociedad Nuclear Española en A Coruña, en Septiembre de 2015.:

0. Herranz, J. L., Sedano, L. A., Batet, L., & Laine, G. (2015). Modelización CFD del efecto separador isotópico [6/7] Li de un serpentín helicoidal en régimen híbrido molecular-viscoso. 41ª Reunión Anual de La SNE, 23-25 Sep. 2015, 1-8.

AGRADECIMIENTOS

A todo el profesorado del MIE (Master de Ingeniería Energética) por su excelente labor didáctica y a mi mujer Mercedes por su comprensión. Extensivamente al resto de mi familia.

REFERENCIAS

- Aleksandrov, O. E. (Ural F. U. of T. P. (2013). The Upper Limit of the Separation Efficiency of a Gas Centrifuge. *Separation Science and Technology*, 486, 833–839. <http://doi.org/10.1080/01496395.2012.745001>
- Ali, S. (2001). Pressure drop correlations for flow through regular helical coil tubes. *Fluid Dynamics Research*, 28(4), 295–310. [http://doi.org/10.1016/S0169-5983\(00\)00034-4](http://doi.org/10.1016/S0169-5983(00)00034-4)
- Alvizú Fiedler, I. (Universidad C. de C. (n.d.). *Estudio de un flujo de Lennard-Jones*.
- ASME DC | Journal of Heat Transfer | Large Eddy Simulation of Turbulent Heat Transfer in Curved-Pipe Flow. (n.d.). Retrieved February 3, 2016, from <http://heattransfer.asmedigitalcollection.asme.org/Mobile/article.aspx?articleid=2389866>
- Belashchenko, D. K. (Russian A. of S. (2013). Computer simulation of liquid metals. *Phys.-Uspekhi*, 56, 1176–1216. Retrieved from <http://iopscience.iop.org/1063-7869/56/12/1176>
- Borisevich, V. D. (National R. N. U. Mep., & Wood, H. G. (2013). *Reference Module in Chemistry, Molecular Sciences and Chemical Engineering. Reference Module in Chemistry, Molecular Sciences and Chemical Engineering*. <http://doi.org/10.1016/B978-0-12-409547-2.04802-2>
- Bushaw, B. A., Nörtershäuser, W., Drake, G. W. F., & Kluge, H.-J. (2007). Ionization energy of Li 6,7 determined by triple-resonance laser spectroscopy. *Physical Review A*, 75(5), 052503. <http://doi.org/10.1103/PhysRevA.75.052503>
- Chirita, V. (University of S. of P., Pailthorpe, B. A., & Collins, R. E. (1997). Gas-surface interactions in the thermal and sub-thermal regime: a molecular dynamics study. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 24, 12–22.
- Colombo, M. (Politecnico di M. of E., Colombo, L. P. M., Cammi, A., & Ricotti, M. E. (2015). A scheme of correlation for frictional pressure drop in steam-water two-phase flow in helicoidal tubes. *Chemical Engineering Science*, 460–473. <http://doi.org/10.1016/j.ces.2014.11.032>
- Compass Software - Productos/Tdyn CFD HT. (n.d.). Retrieved February 3, 2016, from <http://www.compassis.com/compass/es/Productos/Tdyn+CFD%2BHT>
- Corace, J. J. (2011). *El equilibrio termodinámico*.
- Das, S. K. (1993). Water flow through helical coils in turbulent condition. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 71(6), 971–973. <http://doi.org/10.1002/cjce.5450710620>
- Dauison, H. W. (NASA). (1968). *Compilation of Thermophysical Properties of Liquid Lithium*.
- Del Valle Azócar, R. (Universidad del N. (2009). *Estudio del Comportamiento hidráulico de un flujo dentro de una tubería helicoidal utilizando las técnicas de dinámica de fluidos computacional*.
- Dept., F. y Q. (2009). *Termodinámica Estadística de Sistemas Reales*.
- Faliagas, A. C. (2015). Certain issues related to the equations of molecular transport by P. Kerkhof and M. Geboers. *Chemical Engineering Science*, 665–668. <http://doi.org/10.1016/j.ces.2014.10.017>
- Fan, J. (Laboratory of H. T. G. D., & Shen, C. (2001). Statistical Simulation of Low-Speed Rarefied Gas Flows. *Journal of Computational Physics*, 167, 393–412. <http://doi.org/10.1006>
- Feinaueri, A. (Max P. I., Majert, G. (Max P. I., & Seeger, A. (Stuttgart U. (1994). The diffusion of 6 Li and 7 Li and the isotope effect in liquid lithium. *J. Phys.: Condens. Matter*, 6, 355–360. Retrieved from <http://iopscience.iop.org/0953-8984/6/26/003>
- Fialho, P. S., Fareleira, J., Ramires, M. L. V., & Nieto de Castro, C. A. (1993). Thermophysical properties of alkali metal vapours part I.A - Prediction and Correlation of Transport Properties for Monatomic Systems. *Berichte Der Bunsengesellschaft*, 97(11), 1487–1492. <http://doi.org/10.1002/bbpc.19930971111>
- Gehm, M. E. (2003). *Propiedades del 6Li*.
- GiD – The personal pre and post processor. (n.d.). Retrieved February 3, 2016, from <http://www.gidhome.com/>
- Green, D. W. (Kansas U., & Perry, R. H. (Oklahoma U. (2008). *Perry's Chemical Engineers' Handbook* (8th Edition). Mc Graw-Hill. <http://doi.org/10.10360071422943>
- Hanfland, M. (ESRF), Syassen, K. (Max P. I., Christensen, N. E. (Institute of P. and A. U., & Novikov, D. L. (Cambridge). (2000). New high-pressure phases of lithium. *Nature*, 408, 174–178.
- Hanfland, M., Loa, I., Syassen, K., Schwarz, U., Takemura, K., & Cardona, M. (1999). Equation of state of lithium to 21 GPa. *Solid State Communications*, 123–127.
- INDUCIENCIA - Plataforma Tecnológica Española de la Industria de la Ciencia. (n.d.). Retrieved February 3, 2016, from <http://induciencia.es/>
- Informe Litio 2010 IGME. (n.d.). Retrieved February 3, 2016, from <http://www.igme.es/PanoramaMinero/Historico/2010/LITIO10.pdf>
- Lagos, G. (Universidad de C. (1986). *El litio, un nuevo recurso para Chile*.
- Lasers, Photonics, and Fusion Science: Bringing Star Power to Earth. (n.d.). Retrieved February 3, 2016, from <https://lasers.llnl.gov/>
- Lazicki, A., Fei, Y., & Hemley, R. J. (2010). High-pressure differential thermal analysis measurements of the melting curve of lithium. *Solid State Communications*, (150), 625–627. <http://doi.org/10.1016/j.ssc.2009.12.029>
- Lee, D. A., & Drury, J. S. (1965). The enrichment of lithium isotopes by ion exchange chromatography. *Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry*, 27(6), 1405–1407. [http://doi.org/10.1016/0022-1902\(65\)80104-X](http://doi.org/10.1016/0022-1902(65)80104-X)
- Liu, B., Wang, M., Liu, J., Qian, L., & Jin, Z. (2015). Experimental study on micromixing characteristics of novel large-double-blade impeller. *Chemical Engineering Science*, 641–647. <http://doi.org/10.1016/j.ces.2014.11.056>
- Luo, L., Wei, M., Fan, Y., & Flamant, G. (2015). Heuristic shape optimization of baffled fluid distributor for uniform flow distribution. *Chemical Engineering Science*, 542–556. <http://doi.org/10.1016/j.ces.2014.11.051>
- McMahon, M. I., McBride, E. E., & Husband, R. J. (2012). *A Determination of the Zero-Point Energy of Lithium Under Pressure*.
- Metya, A. K., Hens, A., & Singh, J. K. (2012). Molecular dynamics study of vapor-liquid equilibria and transport properties of sodium and lithium based on EAM potentials. *Fluid Phase Equilibria*, 313, 16–24. <http://doi.org/10.1016/j.fluid.2011.08.026>



35. Moeini, V., Cabrerizo, F. M., Reis, H., & Starikov, E. B. (2012). Calculation of Thermal Pressure Coefficient of Lithium Fluid by pVT Data. *International Scholarly Research Network ISRN Physical Chemistry*, 11. <http://doi.org/10.5402/2012/724230>
36. Moreno Brieva, F. J. (2014). *Cadena De Valor Global Del Litio: Países E Ingresos Nacionales Brutos* (No. 2015/20). Retrieved from <http://www.uam.es/docencia/degin/catedra/>
37. Musser, J., Syamlal, M., Shahnam, M., & Huckaby, D. (2015). Constitutive equation for heat transfer caused by mass transfer. *Chemical Engineering Science*, 123, 436–443. <http://doi.org/10.1016/j.ces.2014.11.036>
38. N.D. (n.d.). *Métodos de simulación*.
39. N.D. (2014). *Algunos Métodos de Estimación para Viscosidad*.
40. N.D. (2016). Calculation of Thermal Pressure Coefficient of Lithium Fluid. Retrieved January 4, 2016, from <http://www.hindawi.com/journals/isrn/2012/724230/tab2/>
41. Navigant Research. (n.d.). Retrieved February 3, 2016, from <http://www.navigantresearch.com/>
42. Nishizawa, K., Watanabe, H., Ishino, S., Shinagawa, M., & Nishiza A, K. W. (1984). Lithium Isotope Separation by Cryptand (2B, 2, 1) Polymer. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 21(212), 133–138. <http://doi.org/10.1080/18811248.1984.9731024>
43. Nortershauser, W., Sanchez, R., Ewald, G., Dax, A., Behr, J., Bricault, P., ... Zimmermann, C. (2011). Isotope-shift measurements of stable and short-lived lithium isotopes for nuclear-charge-radii determination. *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*, 83(1). <http://doi.org/10.1103/PhysRevA.83.012516>
44. Nörtershäuser, W., Sánchez, R., Ewald, G., Dax, A., Behr, J., Bricault, P., Zimmermann, C. (2011). Isotope-shift measurements of stable and short-lived lithium isotopes for nuclear-charge-radii determination. *Physical Review A*, 83(1), 012516. <http://doi.org/10.1103/PhysRevA.83.012516>
45. Obermüller, H. R., & Salas, X. S. (1993). *Chile y el Litio*.
46. Ohse, R. W. (Commission of the E. C. J. R. C., Babelot, J.-F. (Commission of the E. C. J. R. C., Magill, J. (Commission of the E. C. J. R. C., & Tetenbaum, M. (Argonn. N. L. (1985). *An assessment of the melting, boiling, and critical point data of the alkali metals*.
47. Olivares, I. E., Duarte, A. E., Saravia, E. A., & Duarte, F. J. (2002). Lithium isotope separation with tunable diode lasers. *Applied Optics*, 41(15), 2973. <http://doi.org/10.1364/AO.41.002973>
48. Ondze, F., Boutin, O., Ruiz, J. C., Ferrasse, J. H., & Charton, F. (2015). Supercritical water gasification of beet residues: From batch to continuous reactor. *Chemical Engineering Science*, 123, 350–358. <http://doi.org/10.1016/j.ces.2014.11.026>
49. Psychogios, I., & Hatzivramidis, D. (2015). Two-nozzle hydrodynamic focusing. *Chemical Engineering Science*, 123, 429–435. <http://doi.org/10.1016/j.ces.2014.11.028>
50. Raizen, M. G., & Klappauf, B. (2012). Magnetically activated and guided isotope separation. *New Journal of Physics*, 14, 1–11. <http://doi.org/10.1088/1367-2630/14/2/023059>
51. Saleem, M., Hussain, S., Zia, M. A., & Baig, M. A. (2007). An efficient pathway for Li6 isotope enrichment. *Applied Physics B*, 87(4), 723–726. <http://doi.org/10.1007/s00340-007-2662-2>
52. Scott Kemp, R. (Princeton U. (2009). Gas Centrifuge Theory and Development: A Review of U.S. Programs. *Science and Global Security*, 17, 1–19.
53. Symons, E. A. (AEOC). (1985). *Lithium Isotope Separation A Review of Possible Techniques*.
54. Xu, J., Li, X., Hou, C., Wang, L., Zhou, G., Ge, W., & Li, J. (2015). Erratum to: “Engineering molecular dynamics simulation in chemical engineering.” *Chemical Engineering Science*, 121, 200–216. <http://doi.org/10.1016/j.ces.2014.11.049>
55. Yao, C., Dong, Z., Zhao, Y., & Chen, G. (2015). Gas-liquid flow and mass transfer in a microchannel under elevated pressures. *Chemical Engineering Science*, 123, 137–145. <http://doi.org/10.1016/j.ces.2014.11.005>
56. Yoon, D.-H., Park, J.-Y., & Seul, K.-W. (2012). Numerical Study of Turbulent Heat Transfer in Helically Coiled Tubes. *Transactions of the Korean Society of Mechanical Engineers B*, 36(8), 783–789. <http://doi.org/10.3795/KSME-B.2012.36.8.783>
57. Zhang, X. (2015). *Computational Modeling of Li Diffusion Using Molecular Dynamics*. Wake Forest University.
58. Zhou, X., & Collins, R. E. (1995). Condensation in a gas-loaded thermosyphon. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 38, 1605–1617. [http://doi.org/10.1016/0017-9310\(94\)00287-6](http://doi.org/10.1016/0017-9310(94)00287-6)
59. Zinkle, S. J. (ORNL). (1998). *Summary of Physical Properties for Lithium, Pb-17Li, and (LiF)_n-BeF₂ Coolants*.