

文章编号:1006-2467(2021)07-0842-08

DOI: 10.16183/j.cnki.jsjtu.2020.223

超高纯氙去除氪低温精馏塔 HYSYS 模拟优化

沙海东¹, 黄沛尧³, 王 舟⁴, 崔祥仪⁵
巨永林², 严 锐², 李帅杰⁴, 王秀丽²

(1. 上海电力大学 能源与机械工程学院, 上海 200090; 2. 上海交通大学 制冷与低温工程研究所, 上海 200240; 3. 上海交通大学 巴黎高科卓越工程师学院, 上海 200240; 4. 上海交通大学 粒子与核物理研究所, 上海 200240; 5. 上海交通大学 李政道研究所, 上海 200240)

摘 要: 为满足大型暗物质探测器 PandaX-4T 低本底及高灵敏度的要求, 探测介质氙(Xe)中氪(Kr)含量要求为 $n_{\text{Kr}}/n_{\text{Xe}} \leq 1 \times 10^{-13}$ (n 为物质的量). 本文以超高纯氙去除氪低温精馏塔为例, 首先简单介绍精馏塔及其结构设计. 其次, 对该塔的精馏塔参数进行 HYSYS 模拟及优化, 得出现有运行工况下精馏塔内压力、温度以及氪浓度的分布, 并研究了进料位置、回流比、进料流量、再沸器加热量、废品氙流量及进料压力等操作因素对精馏纯度的影响. 提出优化提纯效果的精馏操作参数, 即塔压为 221 kPa、回流比为 145 时, 原料氙中氪含量可从 5×10^{-7} 提纯到 4.1×10^{-14} , 这对超高纯氙去除氪低温精馏的产品纯度进一步提高有重要指导意义.

关键词: 低温精馏; 暗物质探测; HYSYS 模拟

中图分类号: TB 657.6 **文献标志码:** A

Simulation and Optimization of Ultra-High Purity Krypton/Xenon Cryogenic Distillation System Based on HYSYS

SHA Haidong¹, HUANG Peiyao³, WANG Zhou⁴, CUI Xiangyi⁵
JU Yonglin², YAN Rui², LI Shuaijie⁴, WANG Xiuli²

(1. College of Energy and Mechanical Engineering, Shanghai University of Electric Power, Shanghai 200090, China; 2. Institute of Refrigeration and Cryogenics, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China; 3. Paris Tech Elite Institute of Technology, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China; 4. Institute of Particle and Nuclear Physics, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China; 5. Tsung-Dao Lee Institute, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China)

Abstract: To meet the requirements of the low background and high sensitivity of the large-scale dark-matter detector PandaX-4T, $n_{\text{Kr}}/n_{\text{Xe}} \leq 1 \times 10^{-13}$ (n is the amount of substance) is required. The ultra-high purity krypton/xenon cryogenic distillation tower was used as an example in this paper. First, the distillation tower and the construction design of the distillation system were briefly introduced. Then, the operation parameters of the distillation tower were simulated and optimized by using HYSYS, and the distributions of the pressure, temperature and Kr concentration in the distillation tower were obtained. After that, the influences of those operational conditions including the feeding point position, the reflux

收稿日期: 2020-07-14

基金项目: 国家重点研发计划(2016YFA0400301), 上海市科学技术委员会重点基础研究项目(18JC1410200)

作者简介: 沙海东(1991-), 男, 河北省唐山市人, 硕士生, 研究方向为低温精馏与低温传热.

通信作者: 巨永林, 男, 教授, 博士生导师, 电话(Tel.): 021-34206532; E-mail: yju@sjtu.edu.cn.

ratio, the feeding flowrate, the heat of the reboiler, the flowrate of the off-gas, and the feeding pressure to the xenon purity of the distillation system were studied, and the optimized operation parameters were proposed. When the column pressure is set at 221 kPa and the reflux ratio is set at 145, the krypton content in xenon can be purified from 5×10^{-7} to 4.1×10^{-14} , which has an important guiding significance for further improvement of the purity of the xenon product of the xenon/krypton cryogenic distillation system.

Key words: cryogenic distillation; dark matter detection; HYSYS simulation

近百年来,天文观测从宇宙各个时间和距离尺度发现了很多证据,表明有一种神秘的、不发光的、全新未知物质充斥在宇宙里,质量是普通物质的 5 倍多.这类物质不参与电磁和强相互作用,被统称为暗物质.但是至今暗物质还未被实验探测发现,成为现代物理学中最难解释的谜团之一.

氙具有高原子序数($Z=54$),且液氙的密度较高,能够阻止外界大部分 γ 射线,产生“自屏蔽”效应,同时液氙还具有高发光强度、低能阈及高能分辨率等优点,即氙本身具有较低的本底,故氙非常适合用作暗物质探测器的探测介质. PandaX 实验是中国首个大型液氙暗物质直接探测实验^[1-2],探测灵敏度处于国际领先地位,并分别于 2016 年、2017 年取得了当时国际对暗物质截面最领先的限制结果^[3-4]. 由于暗物质与普通物质相互作用非常微弱,需要不断的提高暗物质探测器的灵敏度. 近年国际暗物质探测器规模不断升级, PandaX 暗物质探测器中液氙的质量也由 500 kg 升级为 4 t(PandaX-4T).

暗物质直接探测实验对探测介质的本底要求非常高,即氙中的杂质需要非常低以免干扰探测结果. 其中氪-85(^{85}Kr)对探测结果影响尤其大, ^{85}Kr 属于放射性同位素,会产生 β 射线,干扰暗物质信号. 当液氙中的 $n_{\text{Kr}}/n_{\text{Xe}}$ 低于 1×10^{-12} 时才能保证暗物质探测器的灵敏度. 而国内商业氙中氪的含量约 5×10^{-7} ,并不能满足暗物质探测实验要求,因此需要对商业氙进行精馏提纯,以降低其中的氪含量.

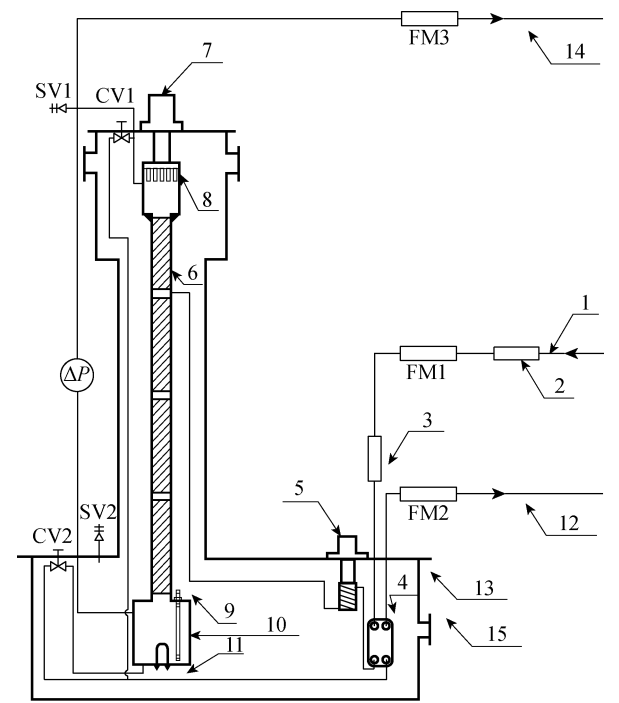
超高纯氙氪低温精馏系统^[5]于 2019 年在中国锦屏地下实验室完成了搭建工作,并于 2019 年 1 月完成调试运行,后经 1.5 个月稳定运行,共提纯 5.75 t 氙. 该精馏塔可以 99% 的回收率,10 kg/h 的速率将氙中氪含量从约 5×10^{-7} 降低到约 1×10^{-14} .

1 超高纯氙氪精馏塔的结构与操作流程

1.1 精馏系统

超高纯氙除氪低温精馏^[6]是根据氙氪混合物沸

点和挥发性的差异来实现的. 在 1 标准大气压下,氙(难挥发组分)的沸点是 165 K,氪(易挥发组分)的沸点是 120 K. 氙氪低温精馏系统工艺流程如图 1 所示^[7],由精馏塔^[8]塔柱 6、塔顶冷凝器 8 和塔底再沸器 10 构成,塔体外设置真空罩 14 防止热对流和热传导^[9]. 图中 FM1、FM2 及 FM3 为流量控制器,阀 CV1、CV2 为低温阀,阀 SV1、SV2 分别为内塔与外真空罩的安全阀. 原料氙气由进口 1 进入,经过过滤器 2 去除其固体杂质,经气体纯化器 3 除去其中的水蒸气、氧气等气体杂质后进入换热器 4,并由制冷机 5 预冷,随后从塔上部进入. 氙气上升经过填料,与从塔顶冷凝器 8 中回流的液态氙以气液两相^[10]的方式进行传热传质,进行气液平衡交换,上



1—原料氙,2—过滤器,3—气体纯化器,4—热交换器,5—PT60 制冷机,6—精馏塔,7—AL300 制冷机,8—冷凝器,9—液位计,10—再沸器,11—加热器,12—产品氙,13—真空罩,14—废品氙,15—真空抽口

图 1 氙氪低温精馏系统工艺流程图
Fig. 1 Flowchart of Xe/Kr cryogenic distillation system

升至塔顶冷凝器时,氙气成为含氮量较高的饱和气,称为废品氙,废品氙由塔顶引出后,进入废品氙储罐.在冷凝器中被制冷机液化的液氙回流后重新进入塔,在填料中与上升的氙气作用,两相进行传热传质和气液交换,使得液氙纯度进一步提升并流向塔底再沸器 10,再沸器中的液氙一部分经加热器加热后汽化,重新进入塔内循环^[11-12],另一部分从底部被引出,作为产品氙进入产品氙储罐.

1.2 精馏塔运行操作流程

精馏塔运行分为 5 个阶段:预冷阶段→进料阶段→全回流阶段→提纯阶段→停机回收阶段^[9,13].预冷阶段是指在精馏塔正式运行前,向塔内充入一定量的原料氙,同时开启预冷制冷机和冷凝器上的制冷机,通过温度控制器控制制冷机的温度为 178 K,为保证制冷和液化过程中精馏塔内压力维持在预设压力,需继续充入原料氙,直至塔底的再沸器开始出现液氙.此时进入进料阶段,在冷凝器制冷机维持 178 K 的情况下,向精馏塔继续补充原料氙,使再沸器内液位达到 15 cm.随后进入全回流阶段,全回流阶段停止氙的进出,设定塔底再沸器的加热量 (119 W),使精馏塔精馏段的部分液相氙汽化,塔顶

冷凝器制冷机的温度仍为 178 K,使得塔顶的氙气冷凝回流,塔内的氙气最终会达到比较稳定的气液平衡状态,纯度高的产品氙在再沸器中,纯度低的废品氙在冷凝器中.之后进入提纯阶段,以 10 kg/h 的速率提纯,设定原料氙、产品氙与废品氙的流量比值为 100 : 99 : 1,这是个动态提纯过程,从塔顶和塔底不断流出废品氙和采出产品氙.最后是停机回收阶段,关闭制冷机和加热装置后将塔内剩余的气氙与液氙分别回收到液氮冷却的废品氙不锈钢气瓶和产品氙不锈钢气瓶中.

2 HYSYS 稳态模拟计算及分析

2.1 数学模型

本文模拟的精馏塔塔径是 125 mm,一般情况下,可假设认为塔板上液体与塔板间气体完全混合,即其具有均匀的组成、温度和压力,且精馏塔的设计计算是运用典型的 M-T 方法,如图 2 所示,图中 Q_c 为制冷机制冷量; Q_R 为再沸器加热量.可假设每一块塔板汽、液两相接触后迅速达到平衡状态,离开塔板的汽液混合物也处于相平衡.故精馏塔中的每一块塔板都可以建立下列方程组^[14]:

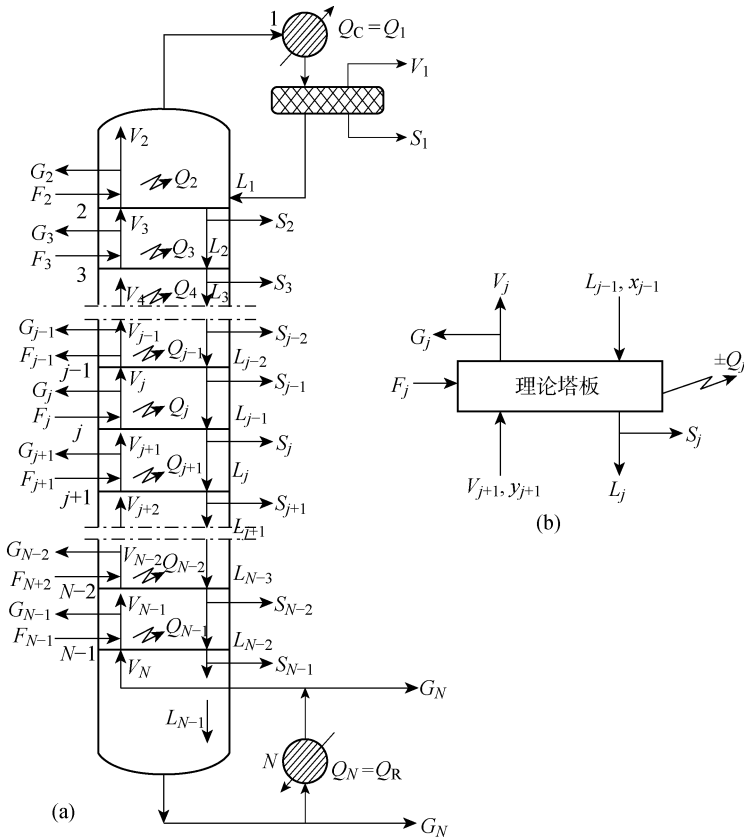


图 2 精馏塔模型^[14]
Fig. 2 Model of distillation tower

(1) 组分物料衡算方程

$$s_{ij} + l_{ij} + g_{ij} + v_{ij} - v_{i,j+1} - l_{i,j-1} - f_{ij} = 0 \quad (1)$$
$$(i = 1, 2, \dots, d; j = 1, 2, \dots, N)$$

式中: s_{ij} 为液相侧线抽出 S_j 的摩尔流率; l_{ij} 为组分 i 在塔中液流 L_j 的摩尔流率; g_{ij} 为气相侧线抽出 G_j 的摩尔流率; v_{ij} 为组分 i 在精馏塔中气流 V_j 的摩尔流率; f_{ij} 为组分 i 在进料 F_j 中的摩尔流率; 下角标 j 为塔板号, i 为组分号。

(2) 组分相平衡方程

$$v_{ij} = \frac{K_{ij} V_j l_{ij}}{L_j} \quad (2)$$

式中: K_{ij} 为组分 i 在 j 板的平衡常数。

(3) 摩尔分率加和归一方程

$$\sum_i \frac{l_{ij}}{L_j} = \sum_i \frac{v_{ij}}{V_j} = \sum_i \frac{f_{ij}}{F_j} = 1 \quad (3)$$

(4) 热量衡算方程

$$(S_j + L_j)h_j + (G_j + V_j)H_j - V_{j+1}H_{j+1} - L_{j-1}h_{j-1} - F_jh_{F_j} - Q_j = 0 \quad (4)$$

式中: H 和 h 为汽、液相摩尔焓; h_F 为加料的摩尔焓; Q_j 为加入 j 板的热量。当 $j = 1$ 时, 表示冷凝器, $l_{i0} = L_0 = 0$; 当 $j = N$ 时, 表示再沸器, $V_{N+1} = v_{i,N+1} = 0$ 。

在计算过程中,除了上述方程组外,还需要添加 K_{ij} 、 h_j 及 H_j 的关系式,分别为

$$K_{ij} = K_{ij}(p_j, T_j, v_{ij}, l_{ij}) \quad (5)$$

$$h_j = h_j(p_j, T_j, l_{ij}) \quad (6)$$

$$H_j = H_j(p_j, T_j, v_{ij}) \quad (7)$$

式中: T_j 为第 j 块塔板处温度。

还需以下计算式:

$$g_{ij} = \frac{G_j v_{ij}}{V_j} \quad (i = 1, 2, \dots, d; j = 2, 3, \dots, N) \quad (8)$$

$$s_{ij} = \frac{S_j l_{ij}}{L_j} \quad (i = 1, 2, \dots, d; j = 1, 2, \dots, N - 1) \quad (9)$$

因上述方程组与 K_{ij} 、 h_j 及 H_j 全为非线性关系,需要运用迭代法进行求解。Aspen Plus 化工模拟软件通用于大型化工系统流程模拟,包含了近万种纯组分的物理数据以及多种专业的单元操作模块和特性方法。本文使用 SRK 特性方法进行模拟。该方法对所有热力学特性使用 SRK 状态方程^[15]。该方程基于标准 RKS 状态方程和标准 α 函数:

$$p = \frac{RT}{V_m - b} - \frac{a}{V_m(V_m + b)} \quad (10)$$

$$b = \sum_i x_i b_i \quad (11)$$

$$b_i = \frac{0.086\ 64RT_{ci}}{p_{ci}} \quad (12)$$

$$a = a_0 + a_1 \quad (13)$$

$$a_0 = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n x_i x_j (a_i a_j)^{0.5} (1 - k_{ij}) \quad (14)$$

$$k_{ij} = k_{ij}^{(1)} + k_{ij}^{(2)} T + \frac{k_{ij}^{(3)}}{T}, \quad k_{ij} = k_{ji} \quad (15)$$

$$a_1 = \sum_{i=1}^n x_i \left\{ \sum_{j=1}^n x_j [(a_i a_j)^{0.5} h_{ij}]^{1/3} \right\}^3 \quad (16)$$

$$r_{ij} = r_{ij}^{(1)} + r_{ij}^{(2)} T + \frac{r_{ij}^{(3)}}{T}, \quad r_{ij} \neq r_{ji} \quad (17)$$

$$a_i = 0.427\ 47 \frac{R^2 T_{ci}^2}{p_{ci}} \alpha_i(T) \quad (18)$$

$$\alpha_i(T) = [1 + m_i(1 - T_{ri}^{1/2})]^2 \quad (19)$$
$$\alpha_i(T_{ci}) = 1.0$$

$$m_i = 0.485\ 08 + 1.551\ 7\omega_i - 0.156\ 13\omega_{2i} \quad (20)$$

式中: p 为压力; R 为气体常数; T 为温度; V_m 为原始 SRK 状态方程估算的摩尔体积; a_0 为标准二次混合项; a_1 为一个附加的不对称极性项; x_i 为组分 i 的摩尔分数; a_i 、 a_j 为计算过程中的求解变量; T_{ci} 为组分 i 的临界温度; p_{ci} 为组分 i 的临界压力; k_{ij} 、 r_{ij} 分别为组分 i 、 j 的二元相互作用分数; $k_{ij}^{(1)}$ 、 $k_{ij}^{(2)}$ 、 $k_{ij}^{(3)}$ 及 $r_{ij}^{(1)}$ 、 $r_{ij}^{(2)}$ 、 $r_{ij}^{(3)}$ 是由数据回归获得的参数; T_{ri} 为对应温度比, $T_{ri} = T/T_{ci}$; ω_i 为偏心因子。

通过 SRK 状态方程,可以准确地计算出工质的物性,而精馏塔内的温度和压力的变化与精馏塔内氦氩组分的传热机理及理论塔板数的确定方法密切相关。汽液两相混合物平衡模型的温度、压力及浓度的关系为^[16]

$$-X(\Delta H/T)dT - XVdp + RTdX = 0 \quad (21)$$

式中: X 为混合物浓度; ΔH 为 1 mol 混合物在温度下从气态变为液态时的焓变; V 为混合物体积。

当压力一定时,即在式(21)中 $dp=0$ 时,则有:

$$\frac{d \ln X}{dT} = \frac{\Delta H}{RT^2} \quad (22)$$

进一步求解式(22),可得混合物温度和浓度间的关系式为

$$\ln X = -\frac{\Delta H}{RT^2} \Delta T \quad (23)$$

当浓度一定时,即在式(21)中 $dX=0$ 时,则有:

$$\frac{dp}{dT} = -\frac{p \Delta H}{RT^2} \quad (24)$$

对式(24)进行积分,可得混合物温度和压力的关系式为

$$\ln \frac{p_2}{p_1} = \frac{\Delta H}{R} \left(\frac{1}{T_2} - \frac{1}{T_1} \right) \quad (25)$$

基于以上数学模型,进行边界条件设置及模拟分析^[17],与实验结果对比后优化了运行参数。

2.2 边界条件

根据设计,总塔板层数为 17,从冷凝器记作第 0

块塔板,再沸器为第 18 块塔板,原料氙气进气位置为自上至下 1/3 处,即第 5 层塔板处进料. 根据运行参数,选取冷凝器处压强为 220.0 kPa,再沸器处压强为 222.0 kPa,原料为气相,进气压强为 221.0 kPa,进料流量设置为 10 kg/h. 原料氙为两元混合物,其中 Kr 的物质的量浓度为 5×10^{-7} ,Xe 的物质的量浓度则为 0.999 999 5. 最后设置其他参数:在参数设置窗口中设置回流比 R' 为 145,回流液体流量为 14.5 kg/h,产品氙流量为 9.9 kg/h,即进料流量的 99%,废品氙流量为 0.1 kg/h,设置再沸器中的加热量为 119 W,即 428.4 kJ/h,精馏塔模型流程图如图 3 所示.

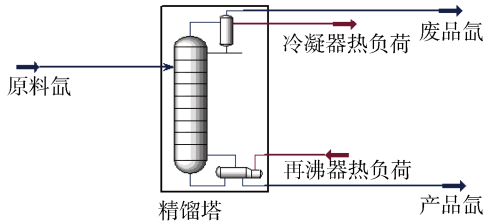


图 3 精馏塔的模型流程图
Fig. 3 Flowchart of model of distillation tower

2.3 结果与分析

应用 HYSYS 软件对实验操作参数进行模拟,并与实验测试结果^[18]对比,结果列于表 1.

表 1 实验结果与模拟结果对比
Tab. 1 Comparisons of test and simulation results

项目	塔板数	理论塔板高度/cm	产品氙中氙的摩尔分数	废品氙中氙的摩尔分数	再沸器负荷/W	再沸器温度/K	塔内压力/kPa	进料流量/(kg·h ⁻¹)	塔顶流量/(kg·h ⁻¹)
实验结果	17	35	$<7.8\times 10^{-12}$	1×10^{-6}	118	179.8	221	10	0.1
模拟结果	17	35	4.1×10^{-14}	8×10^{-5}	119	179.7	221	10	0.1

由表 1 可以看出,模拟结果与实验结果相差不大,基本上可以真实反映实验情况,模拟方法可靠.

本实验测量系统采用基于残余气体分析仪 RGA 对氙氙组分进行浓度测量的方法. 目前 RGA 测量下限(1×10^{-13})的限制导致测量结果可能无法准确反映产品氙的纯度,推测实际产品氙中的氙含量低于 1×10^{-13} .

2.3.1 压力和温度分布 精馏塔中压力和温度随塔板数 n' 的计算结果如图 4 所示. 精馏塔中压力 p_i 和温度 T 呈梯度分布,随着塔板数的增大,压力由冷凝器的 220 kPa 线性增加至再沸器处的 222 kPa,而温度也逐渐小幅升高,由冷凝器的 179.48 K 增加

至再沸器处的 179.67 K.

2.3.2 进料位置对精馏纯度的影响 保持加热量和回流比(数值为 145)不变,中部进料(第 8 层塔板)和上部进料(第 5 层塔板)时各层塔板的氙气相摩尔分数的变化如图 5 所示. 上部进料时氙气摩尔分数从第 6 块塔板开始明显低于中部进料,并且气相氙的摩尔分数小一个数量级甚至更多,同时上部进料在再沸器处(塔板 18)得到的氙含量更低,产品氙更纯. 从第 5 层板进料和第 8 层板进料时氙含量随塔板数的变化对比可以看出,第 5 层塔板进料为最优选,氙含量在塔底可达到约 1×10^{-14} .

2.3.3 回流比对精馏纯度的影响 回流比 R' 为

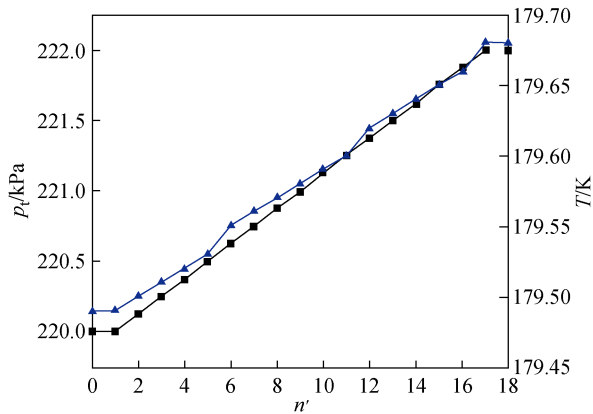


图 4 精馏塔内温度与压力分布
Fig. 4 Temperature and pressure distribution in distillation tower

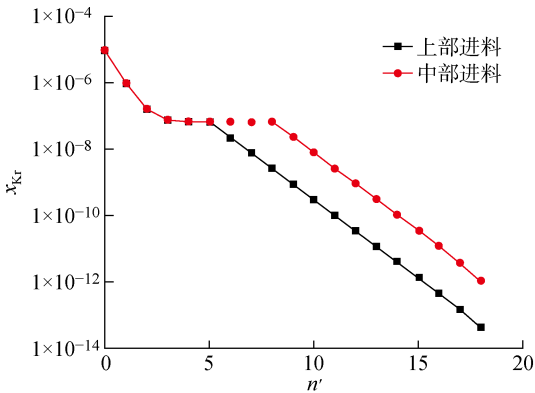


图 5 上部进料和中部进料的各塔板气相氙摩尔分数对比
Fig. 5 Comparisons of Kr concentration for the up and middle feeding in corresponding tray

100、123、145、167 及 190 时各塔板气相氙摩尔分数的变化如图 6 所示。回流比由 100 逐渐增大到 190 的过程中,再沸器(第 18 块塔板)处气相 Kr 的摩尔分数逐渐减小,说明当其它条件不变时,回流比越大,产品氙纯度越高,提纯效果更好。回流比为 145 时,氙含量可降低到约 1×10^{-14} ,回流比为 190 时氙含量可降低到约 1×10^{-16} 。

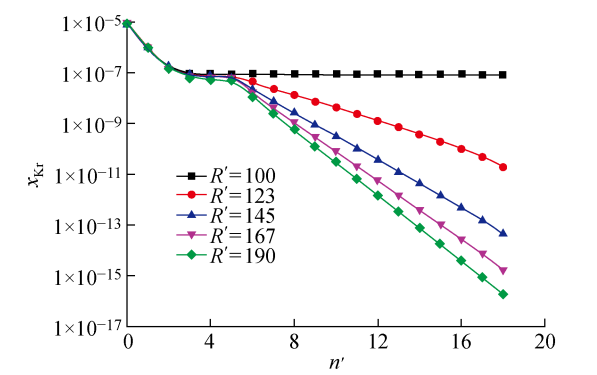


图 6 不同回流比对应的各塔板气相 Kr 摩尔分数
Fig. 6 Kr mole fraction in gas phase of each tray corresponding to different reflux ratios

2.3.4 进料量和再沸器加热量对精馏纯度的影响
当加热量和回流比不变,进料流量 q 为 1~14 kg/h,废品氙流量为 0.1~1.4 kg/h(即进料流量的 1%)时,再沸器处气相氙的摩尔分数如图 7 所示。随着进料流量由 1 kg/h 增大到 14 kg/h,再沸器处气相氙的含量从 2.35×10^{-20} 上升到 4.7×10^{-8} ,增大 幅度逐渐减弱。

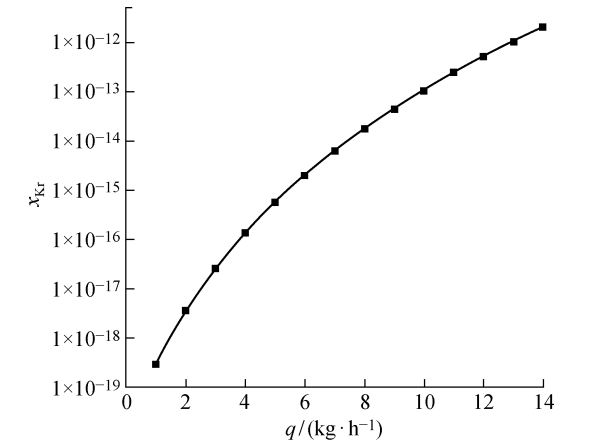


图 7 进料流量和再沸器处气相氙摩尔分数的关系
Fig. 7 Feeding flowrate versus Kr concentration in reboiler

再沸器加热量为 119 W,进料流量 q 分别为 6、8、10 及 14 kg/h 时,回流比的变化如图 8 所示。进料流量为 10 kg/h 和废品氙流量为 0.1 kg/h,再沸

器加热量 Q 分别为 100、110、119、130 及 140 W(即 360、376、428.4、468 及 504 kJ/h), R' 的变化如图 9 所示。

由图 8、9 可知,加热量一定时,进料流量越大,回流比越小,产品氙中氙含量越大,产品氙纯度越差;而在进料流量一定时,再沸器加热量越大,回流比越大,产品氙中氙含量越小,产品氙纯度越好。

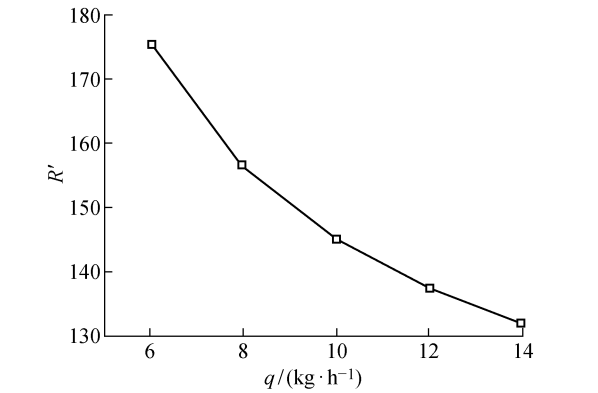


图 8 加热量一定时进料流量和回流比的关系
Fig. 8 Feeding flowrate versus reflux ratio at a constant heating amount

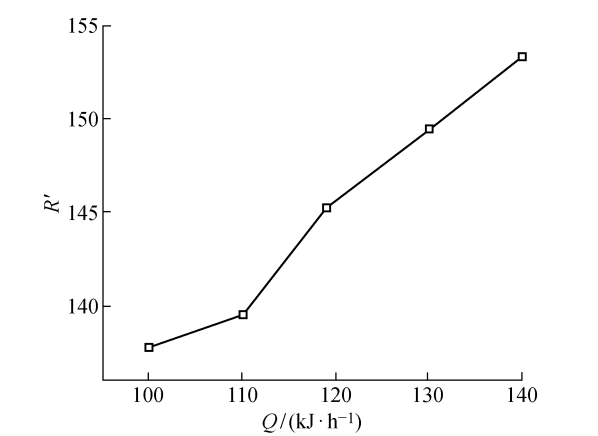


图 9 进料流量一定时再沸器加热量和回流比的关系
Fig. 9 Heating capacity of reboiler versus reflux ratio at a constant feeding flowrate

2.3.5 废品氙流量、进料压力和冷凝器压力加热量对精馏纯度的影响 图 10 为进料流量为 10 kg/h,回流比为 145 时,废品氙流量 q 、进料压力 p_1 和冷凝器压力 p_2 对产品氙中氙含量的影响。产品氙中氙的含量随废品氙的流量增大有明显的下降,在 0.1~0.2 kg/h 处下降明显,氙含量从约 1×10^{-14} 降低到约 1×10^{-18} ,之后随流量的增大下降趋于平缓,在废品氙流量达到 1 kg/h 时,氙含量已下降到 10^{-20} 量级以下,增大废品氙流量可以有效的提高产品纯度。进料压力和冷凝器压力均选取 200~300 kPa 进行

模拟,产品氙中氦含量随进料压力和冷凝器压力的升高均增大,进料压力的升高使得产品氙中氦含量从 2.52×10^{-14} 增大到 2.97×10^{-14} ,冷凝器压力的升高使得产品氙中氦含量从 2.03×10^{-14} 增大到 6.57×10^{-14} ,但对其影响并不大且均在实验要求范围内。

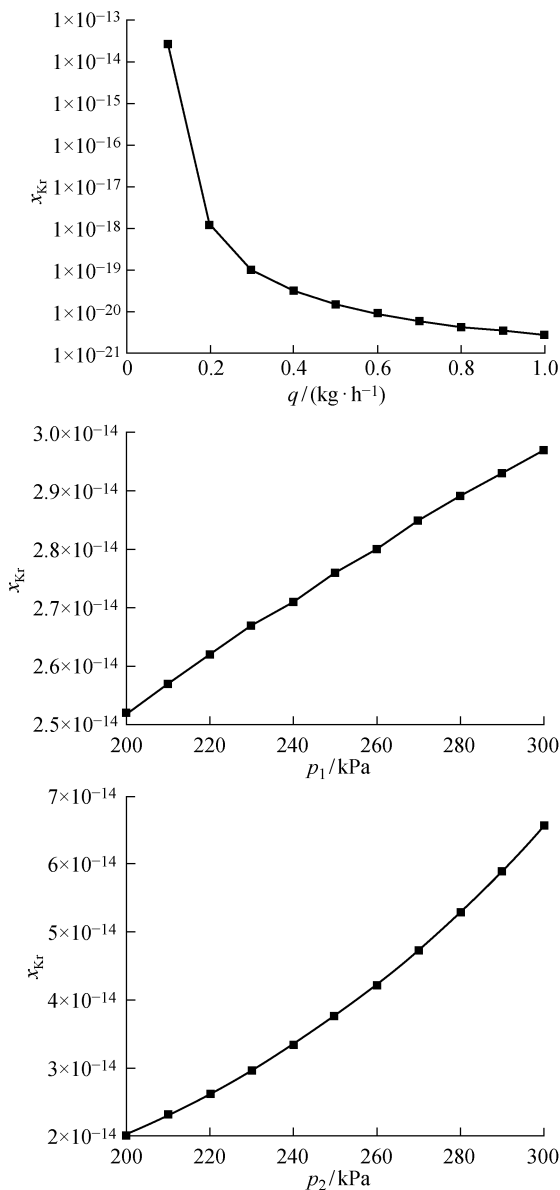


图10 废品氙流量、进料压力及冷凝器压力与产品氙中氦摩尔分数的关系

Fig. 10 Kr concentration versus flowrate of off-gas Xe, feeding pressure, and pressure in flowrate condenser

3 结论

本文首先简单介绍了超高纯氦氙精馏塔的结构设计及操作流程,结合 HYSYS 模拟的方法对 Pan-

daX-4T 暗物质探测实验的精馏塔进行了模拟计算和优化,其中包括数学模型、实验结果对比和进料位置、回流比、进料流量、再沸器加热量、废品氙流量、进料压力等操作因素对精馏纯度的影响。结果表明:再沸器加热量为 119 W、塔压为 221 kPa、回流比为 145 时可达到最优化操作条件。从上部(第 5 层塔板)进料可得到最优提纯效果。在实验条件允许的范围内,增大回流比明显有助于提纯效果,在确保进料流量即提纯速率为 10 kg/h 的情况下,建议用增大再沸器加热量的方法来增大回流比,以提高产品氙的纯度。当再沸器的功率受限于实验条件时,可考虑通过适当减小进料流量的方法提高产品氙纯度。与此同时,通过降低冷凝器压力、进料压力以及提高废品氙流量的方法也可以起到很好的提纯效果。

参考文献:

- [1] 季向东, 刘江来, 湛勋. PandaX 实验介绍和进展[J]. 科学通报, 2016, 61(20): 2264-2272.
JI Xiangdong, LIU Jianglai, CHEN Xun. Status and plan of the PandaX experiment[J]. **Chinese Science Bulletin**, 2016, 61(20): 2264-2272.
- [2] CAO X G, CHEN X, CHEN Y H, *et al.* PandaX: A liquid xenon dark matter experiment at CJPL[J]. **Science China Physics, Mechanics & Astronomy**, 2014, 57(8): 1476-1494.
- [3] TAN A, XIAO M, CUI X, *et al.* Dark matter results from first 98.7 days of data from the PandaX-II experiment[J]. **Physical Review Letters**, 2016, 117(12): 121303.
- [4] CUI X Y, ABDUKERIM A, CHEN W, *et al.* Dark matter results from 54-ton-day exposure of PandaX-II experiment[J]. **Physical Review Letters**, 2017, 119(18): 181302.
- [5] WANG Z, BAO L, HAO X H, *et al.* Large scale xenon purification using cryogenic distillation for dark matter detectors [J]. **Journal of Instrumentation**, 2014, 9(11): 11024.
- [6] 王舟, 张华, 巨永林. 暗物质探测器的液氦低温精馏系统研制[J]. 上海交通大学学报, 2013, 47(8): 1282-1286.
WANG Zhou, ZHANG Hua, JU Yonglin. Design and construction of a cryogenic distillation system of liquid xenon for dark matter detector[J]. **Journal of Shanghai Jiao Tong University**, 2013, 47(8): 1282-1286.
- [7] 崔祥仪. PandaX-II 暗物质实验与 PandaX-4T 制冷循环与精馏系统[D]. 上海: 上海交通大学, 2019.
CUI Xiangyi. PandaX-II dark matter experiment and

the PandaX-4T cryogenics, circulation and distillation system[D]. Shanghai: Shanghai Jiao Tong University, 2019.

[8] WANG Z, BAO L, HAO X H, *et al.* Design and construction of a cryogenic distillation device for removal of krypton for liquid xenon dark matter detectors[J]. **The Review of Scientific Instruments**, 2014, 85(1): 015116.

[9] ABE K, HOSAKA J, IIDA T, *et al.* Distillation of liquid xenon to remove krypton [J]. **Astroparticle Physics**, 2009, 31(4): 290-296.

[10] 刘洁净, 张华, 王经. 垂直管道低温汽液两相流流型识别的实验研究[J]. **上海交通大学学报**, 2010, 44(8): 1135-1139.

LIU Jiejing, ZHANG Hua, WANG Jing. Study on flow regime identification of cryogenic vapor-liquid two phase flows in vertical pipes [J]. **Journal of Shanghai Jiao Tong University**, 2010, 44(8): 1135-1139.

[11] MAITI D, JANA A K, SAMANTA A N, *et al.* Heat integration in batch distillation column[J]. **AIP Conference Proceeding**, 2010, 1298: 244-249.

[12] PULIDO J L, MARTÍNEZ E L, WOLF M R, *et al.* Heat transfer study of Heat Integrated Distillation Column (HIDC) using simulation techniques[J]. **AIP Conference Proceeding**, 2011, 1373: 242-254.

[13] 李虎林. 低温精馏分离¹³C 的耦合传递理论与试验研究[D]. 上海: 上海交通大学, 2011.

LI Hulin. Theoretical and experimental study on the coupling transfer of ¹³C separation by cryogenic distillation[D]. Shanghai: Shanghai Jiao Tong University, 2011.

[14] 邓修, 吴俊生. 化工分离工程 [M]. 北京: 科学出版社, 2002: 41-42.

DENG Xiu, WU Junsheng. Chemical separation engineering[M]. Beijing: Science Press, 2002: 41-42.

[15] SOAVE G. Equilibrium constants from a modified Redlich-Kwong equation of state[J]. **Chemical Engineering Science**, 1972, 27(6): 1197-1203.

[16] 袁春伟. 一种统一处理稀溶液的温度、压力和浓度关系的方法[J]. **大学化学**, 1993, 8(5): 16-18.

YUAN Chunwei. A method to deal with the relationship among temperature, pressure and concentration of dilute solution[J]. **University chemistry**, 1993, 8(5): 16-18.

[17] 黄沛尧. 超高纯气体低温精馏塔内气相负荷的热力分析[D]. 上海: 上海交通大学, 2019.

HUANG Peiyao. Thermal analysis of gas phase load in ultra-high purity gas cryogenic distillation column [D]. Shanghai: Shanghai Jiao Tong University, 2019.

[18] 严锐. PandaX-4T 超高纯氦氦低温精馏系统运行分析[DB-OL]. [2020-11-28]. <https://kns.cnki.net/kns8/defaultresult/index>.

YAN Rui. Operation analysis of pandaX-4T ultra-high purity xenon cryogenic distillation system for removal of Krypton[DB-OL]. [2020-11-28]. <https://kns.cnki.net/kns8/defaultresult/index>.

(本文编辑:陈晓燕)