我国动力堆乏燃料后处理中间试验厂热调试进展

张天祥, 王健, 吴涛, 陈广军, 第五永清, 茹发全

中核四〇四有限公司, 兰州 732850

E-mail: cgjwhut@163.com

2011-04-16 收稿, 2011-05-31 接受

摘要 通过热调试, 打通了动力堆乏燃料后处理中间试验厂(简称中试厂)的流程, 获得了剪切、溶解、料液澄清、共去污循环、铀钚纯化循环、铀钚尾端的操作参数和工艺参数。此外, 萃取等工艺设备和机电仪设备及辅助系统得到验证, 具备安全性和适应性。调试结果表明, 各系统收率和净化系数均满足设计指标要求, 最终制备出合格的三氧化铀产品和二氧化铀产品; 辐射防护系统各监测点监测值在控制范围内; 废水、废气的排放符合相关标准。这标志我国掌握了自主创新的动力堆乏燃料后处理技术。

关键词

乏燃料后处理
中试厂
调试
收率
纯化

经过近 7 年的努力, 在先后经过水调试、酸调试、冷铀调试、5%热调试和 50%热调试及 100%热调试后, 拥有自主创新的我国中试厂于 2010 年 12 月 21 日取得热调试成功。

在经过多年科研试验和工程建设后, 我国于 2004 年正式对后处理设施进行调试。后处理设施的共去污分离循环、铀纯化循环、钚纯化循环、铀尾端和钚尾端先后进行水调试、酸调试和冷铀调试, 并对流程及机、电、仪设备进行验证, 获得诸多水调试、酸调试和冷铀调试重要数据。在此基础上对暴露出的问题进行了相应整改, 随后相继完成了 5%热调试和 50%热调试及 100%热调试三个阶段的热调试工作。

目前, 世界上正在运行或曾经运行的大型商业后处理厂, 如法国的 UP2 和 UP3 厂^[1,2]、英国的 THORP 厂^[3]、美国的西谷厂^[4], 他们都有多年的运行经验。日本的 6 个所后处理厂也于 2006 年 3 月开始热调试^[5]。与国外先进后处理技术相比, 我国乏燃料后处理技术的部分环节还有待进一步提高。

本文主要介绍了我国动力堆乏燃料后处理热调试状况, 热调试的成功标志我国已经掌握了相关核心技术, 这将为我国先进后处理工程技术的开发提

供重要平台, 同时也为我国培养了一支专业化后处理人才队伍。

1 热调试

1.1 热调试任务

(i) 对乏燃料元件进行剪切、溶解、沉降离心及料液制备, 验证系统的运行性能, 获取热料体系下的运行参数;

(ii) 获得热运行参数, 验证化学分离部分萃取设备的运行性能和各系统的收率、净化和铀钚分离系数是否能达到设计指标;

(iii) 验证和选择中放废液蒸发器在热料体系下的工作条件和安全性能指标;

(iv) 确保铀尾端关键设备——铀浓缩蒸发器、电解槽和流化床能稳定运行, 以满足工艺要求;

(v) 验证钚尾端工艺过程——草酸钚沉淀、过滤、干燥焙烧等是否满足工艺要求;

(vi) 确保固体废物能够得到安全暂存, 流出物排放符合相关管理规定;

(vii) 考察辐射防护系统在 5%, 50%, 100%热调

英文版见: Zhang T X, Wang J, Wu T, et al. The active commissioning process for a power reactor spent fuel reprocessing pilot plant in China. Chinese Sci Bull, 2011, 56, doi: 10.1007/s11434-011-4600-2

试过程中的运行情况, 确认其安全性、有效性, 获取必要的辐射防护数据;

(viii) 考察机、电、仪等设备、设施在热运行时的适应性.

1.2 热调试目标

通过若干组乏燃料元件的剪切, 打通热调试的工艺流程, 验证工艺流程和工艺设备的适应性、安全性、可靠性, 优化调整操作、工艺参数, 最终制备出合格的铀产品和钚产品.

2 结果与讨论

2.1 主工艺系统

(i) 首端. 热调试期间, 利用我国自主研发的剪切机, 在前期模拟元件剪切试验基础上, 经过对真实元件的剪切及剪切参数试验性调整, 优化了剪切和溶解过程的匹配性, 保证了溶解过程的平稳, 确定最终的剪切参数. 剪切的元件短段在溶解器内进行溶解, 溶解器内的负压和料液温度均能维持在一定范围内. 随后按一定的进料流量及离心分离转速, 采用我国自主设计和研发的沉降式离心机对溶解液进行沉降澄清, 以实现溶解液的液固分离. 对沉降在转鼓壁上的残渣, 在一定离心机转速下进行冲渣操作, 冲渣水经检测分析后与 1AW(1A 柱出来水相)合并, 送入高放废液贮槽暂存.

实现液固分离的溶解液将用于 1AF 料液(调酸、调价后进入 1A 柱的澄清溶解液)的调料, 5%和 50%热调试期间所用的放射性料液由溶解液和冷铀料液按一定体积比混合配制而成, 100%热调试所用放射性料液全由溶解液直接配制. 调料合格后的 1AF 料液经计量槽进行精确计量, 以满足物料衡算要求.

整个热调试期间, 剪切机、溶解器、沉降离心机运行平稳, 标志我国自主研发的首端设备成功应用于后处理中, 填补了国内在此领域内一项空白.

(ii) 共去污分离循环. 共去污分离循环的主要任务是实现铀钚共萃取、共去污, 加强对锝的去除和分离铀钚. 在热调试期间, 共去污分离关键设备 1A 柱(铀钚共萃取、共去污柱)、TcS 柱(除锝洗涤柱)、1B 柱(铀钚分离柱)、1C 柱(铀反萃柱)的柱重和界面均能够控制在设定范围内, 混合澄清槽界面保持稳定.

共去污分离循环的铀钚收率、净化和分离系数均能满足工艺指标要求. 特别是 1A 柱, 能够连续稳定运行, 铀钚收率和净化系数均满足工艺指标, 放射性净化系数是设计值的若干倍以上, 大大减轻了后续工序的净化负担.

在热料运行期间, 共去污分离循环的水力学与传质性能均满足工艺要求.

(iii) 铀纯化循环. 铀纯化循环的主要任务是除钚、钆和镅, 实现对铀的进一步纯化. 铀纯化循环的关键设备为 2D 槽(二循环铀萃取混合澄清槽)、2E 柱(二循环铀反萃柱)、3D 柱(三循环铀萃取柱)、3E 柱(三循环铀反萃柱). 在热调试中, 2D 槽的界面能够保持稳定, 上述脉冲萃取柱的柱重和界面均能够控制在设定范围内.

铀纯化循环的铀收率、净化系数满足工艺指标要求. 由于共去污循环的净化系数远高于设计值, 铀纯化的净化负担大大减轻, 使得 2EU(2E 柱出来的含铀水相)经脱硝制备的三氧化铀产品已经达到产品质量要求.

(iv) 钚纯化循环. 钚纯化循环的主要任务是除铀、钆和铈, 实现对钚的进一步纯化和浓缩. 钚纯化二循环关键设备 2A 柱(钚萃取柱)、2B 柱(钚反萃柱)和除油柱的柱重稳定, 界面能够控制在设定范围之内. 在冷铀调试阶段用冷铀代替冷“铀”进行了萃取设备的调试, 初步确定的工艺条件为热试奠定了基础.

热调试期间, 钚纯化循环的钚收率、净化系数均满足工艺指标要求. 回流萃取技术可行, 2BP(2B 柱出来的含钚水相)钚浓度满足草酸盐沉淀要求.

(v) 铀尾端. 来自铀纯化循环的含铀水相料液将进入铀尾端料液浓缩蒸发器进行蒸发浓缩, 浓缩后的料液将有两个去处(密度控制): 一是进入铀尾端的电解槽进行电解制备四价铀, 二是进入流化床进行脱硝制备三氧化铀产品. 热调试期间, 铀浓缩蒸发器在设定的操作条件下, 温度和压力稳定, 密度、液位均在工艺控制要求范围内.

50%和 100%热调试期间, 经过槽体整改, 电解槽在前期试验优化的工艺和操作条件下进行, 电解出来的四价铀浓度达到设计值, 总铀浓度、酸度和肼浓度也均在设计值范围内, 满足 1B 系统铀钚分离工艺的要求.

在前期冷铀调试基础上对流化床加热系统、喷嘴

和风帽进行优化和整改,在5%,50%和100%热调试期间,流化床的脱硝温度,供料流量和流化气、雾化气、反吹气的压力、流量、温度均在控制范围内,流化床脱硝系统稳定运行.制备出总铀含量、放射性水平及主要杂质含量均满足相关标准的三氧化铀产品.

(vi) 铀尾端. 来自铀纯化循环的含铀料液进入铀尾端依次进行沉淀过滤和干燥焙烧,干燥和焙烧过程中温度和负压运行稳定,制备出铀含量、放射性水平及主要杂质含量均满足相关标准的二氧化铀产品.在冷铀调试阶段,采用硝酸铀酰溶液代替四价铀溶液进行模拟验证,初步确定了沉淀过滤和焙烧等工艺过程的工艺参数,为调试的顺利进行奠定了基础.

2.2 取样分析系统

热试期间,分析岗位共接收几千个工艺样品,获取和报出上万个分析数据.取样和送样设备及分析仪器整体运行正常.分析数据审核、报出符合质保要求,岗位操作环境符合辐射防护安全要求.

取样系统采用真空辅助的空气提升方式实现放射性料液采集,在经过系列整改后,解决了取样困难、样品缺乏代表性的问题.自主研发的收发器、换向器、启盖器等气动送样系统的关键设备运行可靠,实现了放射性样品气动输送系统的国产化.

2.3 辐射防护系统

经过热调试验证,各辐射监测系统运行良好,临界、中子、气态流出物监测等重要设备运行稳定.5%热调试后整改和新建的工艺尾气气溶胶监测、氮氧化物监测和 I-129/Kr-85 监测系统运行正常,能够满足热试期间辐射监测需求;现场辐射安全管理和控制措施有效;工作场所辐射水平均小于控制标准;进入控制区的个人剂量全部进行了监测,单次作业个人所受最大剂量为 273 μSv ,小于单次作业 1 mSv 的控制标准,控制措施合理.

区域辐射水平监测情况:绿区为 1.32~2.33 $\mu\text{Sv/h}$,小于 5 $\mu\text{Sv/h}$ 的控制标准;橙区为 1.83~14.8 $\mu\text{Sv/h}$,小于 25 $\mu\text{Sv/h}$ 的控制标准,说明外照射水平受控状态良好.各区之间建立了负压梯度,气流流向正确,满足设计指标(绿区为 20~40 Pa,橙区为 40~60 Pa,设备室为 100~150 Pa,箱室为 200~300 Pa);专用中子监测系统测量数据表明工艺运行稳定,且临界

事故报警系统运行正常,上述监测结果均远低于设定的报警限值.厂房内气溶胶和表面污染均按计划进行了监测,全部低于规定限值.

2.4 “三废”系统

为减少废液体积,中放废液经蒸发处理.中放废液蒸发过程中甲醛破坏硝酸可以采用间歇式或连续方式运行.热调试过程中主要采用间歇式破坏硝酸,蒸发器运行稳定,负压和液位等关键参数能够控制在设定范围内,能够确保蒸发器蒸发过程中安全受控.液体流出物实行槽式排放,排放之前进行取样分析,结果均低于限值.厂房排风、工艺排气系统运行正常,净化系数高于设计值.

热试期间,产生的高放废液和中放废液按批对铀钚等核素进行监测分析,达标后送专用设施暂存.

热试期间,固体废物经监测按要求进行了分类收集、包装、标识、暂存,产生、管理处于受控状态.固体废物主要有未溶解的元件废包壳、过滤器芯、防护手套、口罩、塑料布和去污用品等.

2.5 其他系统

试剂配制以及水、电、风、压空、蒸气、通信、消防、实体保护等辅助设施和系统在热调试过程中运行良好,均能满足工艺系统安全稳定运行要求,保证了热调试的顺利进行.

3 结论

热调试期间,工艺系统运行稳定,积累了大量调试数据,获取了各设备稳定运行的控制参数和操作参数,生产出合格的三氧化铀和二氧化铀产品.通过热调试,打通了中试厂的流程,辐射防护系统、机电仪设备等的适应性得到全面验证和确认.

(i) 首端的剪切机、溶解器、沉降离心机等运行稳定,1AF 料液配制和精确计量满足工艺要求;

(ii) 化学分离循环的脉冲柱、混合澄清槽、脉冲发生器、空气升液器、计量泵等设备运行稳定,铀钚收率、净化和分离系数满足设计指标,尤其是 1A 柱,其放射性净化系数是设计值的若干倍以上,大大减轻后续工序净化负担;

(iii) 铀尾端、钚尾端的蒸发器、脱硝流化床、沉淀反应器、过滤器、焙烧炉、称量包装设备、污染监测设备等运行稳定,测量精度满足物料衡算和

辐射防护要求,并最终制备出了合格的铀产品和钚产品;

(iv) 各种流出物属于受控状态,可以确保低于限值排放;放射性废液、固体废物分类收集,安全暂存;

(v) 机、电、仪系统整体运行良好,能够满足工艺连续稳定运行的要求;

(vi) 辐射防护系统运行正常,辐射安全控制措施有效,工作场所辐射污染水平和人员受照剂量得到较好控制.

参考文献

- 1 Emin J L, Pechard C, Tribout-Maurizi A, et al. AREVA NC experience of industrial scale MOX treatment in UP2-800. In: Proceedings of Global Conference, Pairs, France, 2009. 9024
- 2 Debreuille M F. Reprocessing at La Hague: Industrial experience and perspectives. In: Proceedings of Global Conference, New Orleans, USA, 2003. 119
- 3 Schneider M, Coeytaux X, Faïd Y B, et al. Possible toxic effects from the nuclear reprocessing plants at Sellafield and Cap de la Hague. Scientific and Technological Options Assessment. European Parliament, 2001. 11
- 4 Rippon S. Reprocessing—What went wrong? Nucl Eng Inter, 1976, 24: 21–27
- 5 Sugiyama H, Nago T, Ishihara N, et al. Summary of active test at ROKKASHO reprocessing plant. In: Proceedings of Global Conference, Pairs, France, 2009. 9190