



[美] N. M. 莱维茨 等著

氟化法处理快堆元件

.2

原子能出版社

内 容 简 介

本书叙述了用氟化挥发法处理液态金属冷却的快中子增殖堆燃料的可能性。根据 1969 年以前氟化挥发法研究的进展情况,对工艺流程的物理化学基础做了详细的说明。与其他工艺流程比较,此工艺流程的新特点是采用板形流化床进行连续处理和完全密闭放射性的有毒废气。

工厂设计也是本书的一个重要内容,对工程和设备问题也有较全面的描述。本书还总结了氟化挥发法的发展情况及存在的问题,提出了今后的研究方向。

本书可供从事核燃料后处理的工人、科技和设计人员,以及大专院校有关专业师生参考。

本文译自美国原子能委员会报告 ANL-7583。

A CONCEPTUAL DESIGN STUDY OF A FLUORIDE-VOLATILITY PLANT FOR REPROCESSING LMFBR FUELS (1969)

氟化法处理快堆元件

〔美〕 N. M. 莱维茨 等著

洪 华 茂 等译

雷 有 余 校

☆

原子能出版社出版

北京印刷一厂印刷

新华书店北京发行所发行·新华书店经售

(限国内发行)

☆

开本 $850 \times 1168^{1/32}$ ·印张 $9^{5/8}$ ·字数 250 千字

1977年11月北京第一版·1977年11月北京第一次印刷

统一书号: 15175·107

定价: 1.20 元

摘 要

在本工厂概念设计研究中, 评价了氟化挥发法对快中子增殖反应堆 (FBR) 燃料进行后处理的可能性。根据早期关于轻水堆 (LWR) 燃料的氟化挥发法研究工作中所取得的知识, 设计了本流程, 它包括一些新的特点, 例如, 为了临界安全而采用板形流化床反应器的连续处理法和对放射性废气及有毒废气的完全密闭。

工艺过程是由以下几个步骤组成: (1) 用机械方法使燃料与包壳分离; (2) 燃料经选择性氟化, 以去除 UF_6 ; (3) 残渣在第二个流化床反应器中氟化, 以回收 PuF_6 ; (4) 将 PuF_6 热分解为不挥发的 PuF_4 , 以实现钚的分离和净化; (5) 用蒸馏和吸附技术净化 UF_6 ; (6) UF_6 和 PuF_6 按所需比例混合, 并同时与水蒸气和氢气反应, 以转化成均匀的 $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ 核燃料。

叙述了初步设计和工厂的布置, 包括关键工艺容器的核临界初步分析和工厂的安全分析, 也略述了作为氟化挥发法研究和发

展计划基础的关键问题。

目 录

摘要

第一章 前言	1
第二章 基准	4
2.1 燃料特性	4
2.2 概念流程	4
2.3 燃料元件	5
2.4 燃料负荷	7
2.5 FBR 燃料中重元素的同位素分布	10
2.5.1 铀和镓	10
2.5.2 钚	10
第三章 工艺过程的描述	12
3.1 机械首端处理	12
3.2 燃料粉末的贮存和气动输送	16
3.3 铀的回收——反应器 A 的操作	18
3.4 钚的回收——反应器 B 的操作	24
3.5 钚的净化和与 UF_6 的分离	25
3.6 UF_6 的净化	29
3.7 六氟化物转化为氧化物	31
3.8 排气处理	32
第四章 工艺过程的设计基础和分析	35
4.1 一般性考虑	35
4.1.1 连续和间歇操作	35
4.1.2 工艺容器的设计	36
4.1.2.1 氟化器的设计	37
4.1.2.2 冷阱的设计	37
4.1.2.3 吸附器的设计	38
4.1.3 工艺过程的仪表设备	38
4.2 首端过程	40
4.2.1 首端过程的主要特征	40

4.2.2	首端过程设备的工程设计	41
4.2.2.1	一般设计考虑和技术现状	41
4.2.2.2	机械脱壳用的球磨机	42
4.2.2.3	另一种机械脱壳概念	45
4.2.2.4	燃料粉末的贮存系统	47
4.2.3	首端过程的仪表设备	49
4.2.4	首端过程的物理和化学基础	49
4.2.4.1	氧化物燃料与包壳的分离	50
4.2.4.2	首端过程中燃料颗粒的筛分	51
4.2.4.3	裂变产物气体的释放	51
4.2.4.4	燃料和固体物流的输送与监测	51
4.2.4.5	渗钠燃料的处理	52
4.2.5	首端过程的废物	54
4.3	反应器 A 中的氟化	54
4.3.1	工艺步骤的概述	54
4.3.2	设计考虑	58
4.3.2.1	UF_6 的生产速率	58
4.3.2.2	氟气的消耗	59
4.3.2.3	PuF_6 的生成	59
4.3.2.4	热负荷	59
4.3.3	反应器 A 的描述及其机械特性	60
4.3.3.1	气体分布器	61
4.3.3.2	自由空间	61
4.3.3.3	过滤器	61
4.3.3.4	冷却剂系统	61
4.3.3.4	反应器壁的设计	62
4.3.4	辅助设备	63
4.3.4.1	冷阱	63
4.3.4.2	气体循环压缩机	65
4.3.4.3	气动输送机	65
4.3.4.4	氧化物燃料和氧化铝的输送机	66
4.3.5	工艺过程的仪表设备	66
4.3.6	物料衡算	68

4.3.7	正常和反常操作	69
4.3.8	反应器 A 中的物理和化学过程的描述	72
4.3.8.1	氟化反应	72
4.3.8.2	在 FP-1 阱中裂变产物从 UF_6 物流中的去除	74
4.3.8.3	氟化物在 CT-1 阱中的冷凝	81
4.3.9	固体废物物流	84
4.4	钚在反应器 B 中的氟化	90
4.4.1	工艺步骤的概述	91
4.4.2	氟化器 B 及其辅助设备的设计考虑	90
4.4.3	工艺过程的仪表设备	94
4.4.4	物料衡算	94
4.4.5	反应器 B 中的物理和化学过程的描述	97
4.4.5.1	氟化反应	97
4.4.5.2	裂变产物在 FP-2 阱中的去除	99
4.4.5.3	锕系元素和裂变产物在 CT-2 阱中的冷凝	101
4.4.5.4	从各种气流中回收钚	105
4.4.6	固体废物物流	105
4.5	钚的净化和与 UF_6 的分离	107
4.5.1	工艺步骤的概述	107
4.5.2	PuF_6 净化设备的设计	107
4.5.2.1	料罐	107
4.5.2.2	热分解器-再氟化器	110
4.5.2.3	冷阱 CT-3	111
4.5.2.4	吸附阱 LiF-1	112
4.5.3	工艺过程的仪表设备	113
4.5.4	物料衡算	113
4.5.5	PuF_6 净化的物理和化学过程	113
4.5.5.1	CT-1 阱和 CT-2 阱中的冷凝物至料罐的输送	116
4.5.5.2	料罐中裂变产物的行为和辐解	118
4.5.5.3	PuF_6 在 TD-1 中的热分解	120
4.5.5.4	热分解器流出物中钚的回收	123
4.5.5.5	纯 PuF_6 的生产	124
4.5.6	固体废物处理	125

4.6	UF ₆ 的净化	125
4.6.1	工艺步骤的概述	125
4.6.2	UF ₆ 净化设备的设计	128
4.6.2.1	精馏单元	128
4.6.2.2	MgF ₂ 阱	135
4.6.2.3	NaF-UO ₂ F ₂ 阱	136
4.6.3	UF ₆ 产品的处置	138
4.6.4	UF ₆ 产品的组成	140
4.7	混合六氟化物转化为氧化物	140
4.7.1	工艺步骤的概述	143
4.7.2	工程和仪表设备	143
4.7.3	转化反应的化学	148
4.7.4	PuO ₂ -UO ₂ 产品的包装	150
4.8	废气处理系统	151
4.8.1	工艺系统的概述	151
4.8.2	工程概况和设备设计	152
4.8.2.1	NaF-MgF ₂ 床	152
4.8.2.2	高温活性氧化铝床	153
4.8.2.3	碱石灰床	154
4.8.2.4	低温活性氧化铝床	154
4.8.2.5	分子筛干燥器	154
4.8.2.6	氧-氢反应器	154
4.8.2.7	氙-氪的压缩和贮存	154
4.8.3	仪表设备	155
4.8.4	物料衡算	155
4.8.5	废物处理化学	155
4.8.5.1	裂变产物和铀在 NaF-MgF ₂ 上的保留	155
4.8.5.2	氟化物与加了热的活性氧化铝的反应	157
4.8.5.3	氟化物与碱石灰和低温活性氧化铝的反应	158
4.8.6	废气处理系统中的固体废物	159
第五章	工厂的设计概念	160
5.1	工艺室的设计	160
5.2	工艺室的特性	162

5.2.1 工艺室的高度	162
5.2.2 吊车和机械手	162
5.2.3 窥视窗	163
5.2.4 防护	163
5.2.5 设备的运输	163
5.3 连接器	164
5.4 阀门	165
5.5 氟气供应	166
第六章 辅助部分的考虑	167
6.1 临界控制	167
6.1.1 设计的一般性考虑	170
6.1.1.1 连续氟化	170
6.1.1.2 间歇单元	171
6.1.2 临界分析的数据来源	172
6.1.3 工艺过程的核安全分析	176
6.1.3.1 氟化器 A	177
6.1.3.2 氟化器 B	180
6.1.3.3 冷阱	181
6.1.3.4 料罐	181
6.1.3.5 热分解器	182
6.1.3.6 转化器	182
6.1.3.7 球磨机(首端部分)	182
6.1.3.8 板形贮存容器	183
6.1.4 通风系统的核安全分析	183
6.1.4.1 通风系统中裂变物质的处理	183
6.1.4.2 工艺室空间和连接洗涤器的导管中的临界问题	185
6.1.4.3 洗涤器单元中的临界问题	186
6.1.4.4 过滤器系统中的临界问题	186
6.1.5 临界控制概念的评论	188
6.1.5.1 工艺设备	188
6.1.5.2 通风系统	189
6.2 通风系统的安全分析: 引言和系统的设计概念	190
6.2.1 安全分析: PuF_6 的泄漏	192

6.2.2 安全分析: 裂变产物的泄漏	196
6.2.2.1 气化	196
6.2.2.2 洗涤器	197
6.2.2.3 过滤器	197
6.2.2.4 活性炭过滤器	198
6.2.2.5 烟囱	198
6.2.2.6 最大允许浓度(MPC)	198
6.2.2.7 辐照和结论	198
6.2.3 通风系统安全分析的说明	199
6.3 维修	200
6.4 结构材料的腐蚀	201
6.5 计量	203
6.5.1 化学分析: 进料和产品中铀与钚的测定	204
6.5.2 氧化铝废物中钚的测定	205
6.5.2.1 中子活化分析	205
6.5.2.2 X 射线光谱测定法	208
6.5.2.3 钚的间歇放化测定法	209
6.5.3 能耗的测定	210
第七章 关键问题	211
7.1 燃料与包壳的机械分离	211
7.2 连续氟化	212
7.3 PuF_6 的净化	212
7.4 合格的 $\text{PuO}_2\text{-UO}_2$ 产品的制备	212
7.5 完全密闭的概念	213
7.6 安全	213
7.7 钠	214
第八章 概要	215
8.1 基准	216
8.2 工艺流程	216
8.3 过程分析和工厂设计	219
8.4 结论	221
附录 A 监测钚积累的可能方法	225
1. 噪声测量	225

2. 裂变中子的符合关联	226
3. 基谱方式的空间关系	227
4. 阈探测器	230
附录 B 工艺气体循环	243
1. 隔膜式压缩机	243
2. 圆周式压缩机	244
3. 活塞式压缩机	245
4. 离心式压缩机	246
5. 波纹管式压缩机	247
6. 喷射循环	247
附录 C 铜系元素氧化物和氟化物的性质	249
1. 铀	249
2. 镎	251
3. 钚	253
附录 D 挥发性氟化物的蒸气压	257
附录 E 废物罐中心线温度的计算	258
附录 F 工艺室的设计	263
1. 峡谷型工艺室	263
2. 长方形工艺室	263
3. 圆形或多边形工艺室	264
4. 垂直的或“细高”型工艺室	266
附录 G 机械手和吊车	267
1. 阿贡设计的通用机械厂制造的机械手	267
2. PaR 机电机械手	267
3. 阿贡国立研究所 E-4 型电随动机械手	268
附录 H 放化工厂的连接器	269
1. 法国封特耐欧罗兹核研究中心的新式远距离连接器	269
2. 其他类型的连接器及其操作经验	272
参考文献	275

第一章 前 言

核能领域的主要目标之一是发展能够经济地满足国家能源需要的、用液态金属冷却的快中子增殖反应堆 (LMFBR) 工业。最近计划表明^[1], 这样的工业要到 1980 年末才能出现。LMFBR 燃料循环的主要任务之一是研究较经济的核燃料后处理法。对 LMFBR 核燃料回收工艺的研究估计需要 6 至 10 年, 并且把这种技术用于实际工厂约需 6 年。由于 LMFBR 核燃料的特点及其核发展历史, 看来需要一个广泛的研究和发展计划。

所用燃料是 $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$, 其包壳为不锈钢。预计核反应堆堆芯燃料的比功率约为 200 兆瓦(热)/吨, 燃耗为 100 千兆瓦日/吨。卸下的堆芯燃料约含 20% 的 PuO_2 。由于贮存裂变材料要花费很高的费用, 所以燃料短的堆外停留时间是必要的。因此, 后处理前的短冷却时间也是十分必要的。高裂变产物含量、高钚含量和高放射性衰变热负荷对所选择的处理方法——水法和干法提出了独特要求。燃料后处理技术的最近状况表明, 还没有一种方法能够经济地处理短冷却时间的 LMFBR 燃料。

发展在技术上和经济上可行的后处理流程的最有效的研究和发展计划, 需要有一个能评价有关实验成果的持续计划。深刻地分析和评述所选定的流程和可能采用的综合流程, 是逻辑上的第一步。

本文分析和评价了氟化挥发法用于 LMFBR 燃料后处理的适用性。这种技术的应用意味着: 最近 15—20 年中所建立的有关核燃料循环方面的工艺会有很大的发展。用氟化挥发法精制铀, 是联合化学公司^[2]在伊利诺斯州麦楚波利斯工厂以工业规模运行着的过程 (5000—10000 吨铀/年)。通用电气公司^[3]已计划在它们的中西部核燃料回收工厂 (MERF) 中, 用氟化挥发法第一次以工厂规模对辐照过的轻水堆燃料进行后处理, 以便回收铀。美国

和国外^[4]的工作已表明，用挥发法处理辐照过的全浓缩燃料在技术上和经济上的可能性。但还未完成工厂设计所需要的工程细节研究。

阿贡国立研究所^[5]用工程规模所做的工作和道乌洛基平原工厂^[6]回收铀屑的工作，都证明氟化挥发法工艺能生产和处理公斤量级的 PuF_6 ，这是全挥发流程的一个重要特征。道乌洛基平原工厂目前正设计每天能处理 12 公斤铀屑的原型设备，并预定在 1969 年安装。

爱达荷化学处理工厂^[7]关于用流化床煅烧放射性废液的工厂规模的丰富经验，为在流化床系统中成功地处理吨量级的放射性固体提供了有价值的资料。

本报告所做的研究，至少在两方面有指导意义：(1)挥发法应用于 FBR 燃料再循环在技术和工程上的可能性，同时在研究过程中，如果出现一种较好的方法就把它提出来；(2)确定了关键性问题和和其他性问题，包括问题的数量、要解决它们所需的工作量，以及解决这些问题的先后次序，以便于制定计划。

选择了两种情况进行研究：(1)区域性大型中心后处理厂(FBR的生产能力为 15000 兆瓦电功率)，要能提供高度净化的产品(净化系数为 10^6 — 10^7)；(2)堆旁小型后处理工厂(生产能力为 3000 兆瓦电功率)，总的净化系数约为 10^3 。第二种方案意味着需远距离地进行燃料再制造，或者还要在大的中心工厂设备内进行进一步净化。本报告仅叙述大工厂的情况。报告中的其他内容分为以下几章。

第二章：基准和假定，包括处理对象和处理量。

第三章：工艺过程的描述。

第四章：工艺过程的设计基础和分析，包括工艺过程选择的基础、另一些工艺过程、工艺设备的设计资料、物料衡算和热负荷资料、问题的讨论和其他问题。

第五章：工厂的设计概念，包括工艺室和其他车间的设备布置，以及机械设备的描述。

第六章：辅助部分的考虑，如核临界、通风系统的安全分析、维修、腐蚀和计量。

第七章：关键问题。

第八章：概要。

附录：包括基础资料和论证性资料。

参考文献

本工艺过程是按现有技术水平，用有相当可靠的技术基础的那些步骤进行组合而成。虽然在许多方面考虑了一些可能改进的方案，但并未想通过参数研究来求得最佳化。由于限定了完成研究的时间，所以可供选择的大部分方案就未包括在基本的工厂概念设计研究中。对于个别步骤出现矛盾的意见时，我们适时地中止了争论，并作出判断，以使得计算和设计的研究工作能进行下去。虽然本研究所选择的流程在评价工艺过程的可能性方面是满意的，但如果不做任何修改的话，大概是不会选用此流程进行深入研究的。

第二章 基 准

本概念工厂的设计基准采用以下的基准和假定。

2.1 燃 料 特 性

- (1) 堆芯燃料比功率：200 兆瓦(热)/吨
- (2) 平均堆芯燃料燃耗：100 千兆瓦日/吨
- (3) 平均再生区燃料燃耗：5 千兆瓦日/吨
- (4) 卸出燃料的组成：

堆芯燃料	20% PuO ₂ -UO ₂
再生区燃料	2% PuO ₂ -UO ₂
包壳	不锈钢
结合层	气体，但假定有 1%燃料是渗钠的
- (5) 设计：轴向再生区燃料与堆芯燃料为一整体
- (6) 冷却时间：30 天

2.2 概 念 流 程

本研究的范围从燃料元件抵达后处理厂开始,但不包括运输、运输之前燃料的处理或中子防护部分的机械拆卸。如后面所述,当接受元件时,必须用锯把燃料元件的端部装置去掉。

本流程使用机械首端处理,从不锈钢包壳中把堆芯及再生区的 UO₂-PuO₂ 燃料一起加工成连续流化床氟化器所需的流动性氧化物物料。在氟化器中,控制合适的温度和试剂浓度,首先把铀然后把钚转化成六氟化物,以与裂变产物相分离,裂变产物以不挥发性氟化物形式留在 Al₂O₃ 床料中。用粒状 Al₂O₃ 连续流作为载体,以便把不挥发的裂变产物经氟化器输送到废物接受器中。

从氟化器挥发出来的 UF_6 和 PuF_6 物流用冷阱、选择性吸附、热分解和精馏进行净化。净化过的 UF_6 和 PuF_6 再合并，并转化成粒状的混合氧化物产品。

本流程选择了机械首端过程。选择氟气作为燃料的氟化剂。单一的试剂要比最近用于低钚含量燃料^①研究的卤间化合物-氟组合试剂要简单得多。

堆芯燃料和再生区燃料的处理，一种是把它们混合起来一起处理，另一种则是单独处理。

过程设计能提供两种形式的高纯(净化系数为 10^6-10^7) 产品：(1)适于再制成堆芯燃料的 23%(重量) PuO_2-UO_2 ；(2)便于外运并在其后能转化成所需燃料化合物的纯 UF_6 。设计成的工厂也将具有分别生产 UO_2 和 PuO_2 产品的能力。

为了工厂的安全，把高放废物以固体形式就地贮存，然后运出，有可能运到盐洞里。中放和低放固体废物也转化成适于长期就地贮存的形式。中放和低放的液体废物进行一定程度的处理，以使所有排出液都在规定的限度内。废物浓缩物进行固化并按上述进行处理。气体废物打算用完全密闭的方式处理。在本工艺流程中，排气和排出气流是这样处理的，即把气体转化成稳定的固体废物形式或压缩成相当小的体积送去贮存。废气排放要维持在所规定的范围内。

一般说来，本研究是在已知的工艺技术的基础上发展的，并充分参考了这些技术。在某些方面还要对已有的资料进行重要的推断。本研究确定了关键问题和其他问题的范围(见第七章)，以便作为将来研究和发展计划的基础。

2.3 燃料元件

燃料元件是根据同参加 LMFBR 设计研究的阿贡国立研究所

① 用于轻水反应堆(LWR)的燃料。

的设计工程师们的讨论而设计的^[8]。燃料元件是封闭型。它由许多燃料棒排成六角形。堆芯燃料元件的燃料棒有轴向再生区部分，而在堆芯和再生区之间没有隔板。每根堆芯棒由 4 呎长的堆芯燃料和两端各 1 呎长的再生区燃料组成。每根棒有 6 呎长的充气空间作收集裂变气体用。堆芯燃料元件和径向再生区燃料元件分别在表 2.1 和表 2.2 中叙述。最近描述了国际原子公司 (AI) 对 LMFBR 所作的设计^[9]。

燃料元件的结构要能使每根燃料棒都容易取出。燃料棒的圆

表 2.1 堆芯燃料元件

燃料棒直径	0.25吋
包壳厚度	0.015吋不锈钢
堆芯活性区高度	4.0呎
轴向再生区长度	每端各 1 呎
每根燃料元件中 燃料棒的数目	217
燃料棒之间的间隙	0.05吋
燃料密度	理论密度的80%(堆芯) 理论密度的93%(轴向再生区)
裂变气体处理	不排出
燃料元件形状	正六角形，面间距为5.4吋
套筒厚度	0.17吋不锈钢
包壳长度	144吋(包括裂变气体空间)

表 2.2 径向再生区燃料元件

	内 环	外 环	
		I 型元件	II 型元件
燃料棒直径，吋	0.35	0.35	0.51
每根燃料元件中的燃料棒数目	169	169	91
不锈钢包壳厚度，吋	0.015	0.015	0.015
燃料棒之间的间隙，吋	0.05	0.05	0.05
燃料棒长度，吋	60	48	48
燃料密度，理论密度%	93	93	93
包壳长度，吋	84	72	72

锥形端部(实心塞)插入栅格端板上,使燃料棒按位置固定。端板焊接在套筒上,而燃料棒不焊在端板上也不焊在套筒上。在每根燃料棒上缠绕螺旋状的金属丝,使各个燃料棒沿其长度方向相互隔开,并在堆运转时作为钠冷却剂的通路,在以后的机械拆卸时又是气体冷却剂的通路。

在写这篇报告的时候,燃料元件的设计正在进行;中间固定栅格、弹簧及其附件仍在考虑之中。虽然假定最后的设计基本上将是简单的,但仍能使之适合于这里所描述的处理和操作系统。

2.4 燃 料 负 荷

平均每天的处理量是根据 15000 兆瓦电功率电力系统所需的燃料卸料速度来决定的。每个反应堆一年约进行两次再装料。大约 $\frac{1}{3}$ 个堆芯燃料在这段时间内被更换,给定的平均辐照时间约为一年半。径向再生区元件辐照 2—4 年,燃料的替换量为 $\frac{1}{8}$ 或 $\frac{1}{4}$,

表 2.3 燃料元件的日处理量

燃料成分	每天卸料速度, 公斤				
	堆 芯	轴向再生区	堆芯+ 轴向再生区	径向再生区	总 计
U	223 ^a	178	401	474	875
Pu	72.3 ^a	1.6	73.9	9.6	83.5
U + Pu	295.3	179.6	474.9	483.6	958.5
裂变产物	35.06	1.08	36.14	2.84	38.98
Np, 克	85	20.5	105.5	80.8	186.3

每天处理燃料元件的数目

堆芯+轴向再生区: 6
径向再生区: 内环 2.6
外环 1.5

a. 在本研究的全部计算中,采用了代表 22% PuO₂-UO₂ 堆芯燃料的这些数值。这个 Pu-U 比率比基准中所特定的 20% PuO₂-UO₂ 的比率要高,但不影响本研究的所有计算。