

热室内设备远程操作评估及干法工艺验证

牛永生^{1,2} 孙理鑫^{1,2} 王保柱^{1,2} 张 晗^{1,2} 付海英^{1,2} 窦 强^{1,2}
周 伟^{1,2} 钱 渊^{1,2} 李晴暖^{1,2}

1(中国科学院上海应用物理研究所 上海 201800)

2(中国科学院先进核能创新研究院 上海 201800)

摘要 干法后处理技术是国际上公认的可实现核燃料闭式循环的技术之一。在过去的十几年中,中国科学院上海应用物理研究所(Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, SINAP)一直专注于干法后处理技术的开发。热室及热室内的远程操作系统是实施乏燃料干法后处理工艺的重要技术保障,也是 SINAP 在乏燃料后处理领域内主要的研究方向之一。本研究以氟化挥发、减压蒸馏两项干法技术的工艺设备为研究对象,开展了热室内设备的远程操作评估和干法工艺验证实验。实验结果表明:在热室内工艺设备布置合理的基础上,工艺单元操作中,装料和出料的工作负荷较大,其负荷值在 2.0 以上;在两种工艺实验过程中,开/关操作的负荷值均较小,分别为 0.07 和 0.14;螺栓旋紧/旋松、装料和出料等耗时较长,操作效率低;热室内干法工艺验证实验中,熔盐体系铀氟化分离工艺实现了铀转化率为 99.8%,铀产物回收率大于 99%;熔盐减压蒸馏工艺实现了较高熔盐蒸发量和 100% 熔盐蒸馏回收率。本研究工作将为实现热室内真实乏燃料的干法后处理提供重要参考依据。

关键词 热室, 远程操作, 干法工艺, 氟化挥发, 减压蒸馏

中图分类号 TL241.2

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2024.hjs.47.120301

CSTR: 32193.14.hjs.CN31-1342/TL.2024.47.120301

The evaluation of equipment remote operation and pyroprocessing verification in hot cell

NIU Yongsheng^{1,2} SUN Lixin^{1,2} WANG Baozhu^{1,2} ZHANG Han^{1,2} FU Haiying^{1,2}
DOU Qiang^{1,2} ZHOU Wei^{1,2} QIAN Yuan^{1,2} LI Qingnuan^{1,2}

1(Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

2(CAS Center for Excellence on TMSR Energy System, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

Abstract [Background] Reprocessing technology is recognized internationally as one of the most promising technologies to realize the closed cycle of nuclear fuel. Shanghai Institute of Applied Physics (SINAP) of Chinese Academy of Sciences (CAS) has been focusing on the development of this technology, as well as the corresponding support systems engineering in the past decade. The hot cell is an important guarantee for the practical application of

国家自然科学基金(No.12175303, No.12275349, No.U2267226)、新疆维吾尔自治区重点研发任务专项(No.2022B01039)、中国科学院上海应用物理研究所自主部署重点创新项目(No.SINAP-QJYS-202201)资助

第一作者: 牛永生, 男, 1985 年出生, 2021 年于中国科学院大学获博士学位, 研究领域为核化工、钍铀循环、乏燃料后处理及同位素分离等

通信作者: 孙理鑫, E-mail: sunlixin@sinap.ac.cn

收稿日期: 2024-01-23, 修回日期: 2024-04-10

Supported by National Natural Science Foundation of China (No.12175303, No.12275349, No.U2267226), Xinjiang Uygur Autonomous Region Key R&D Task Special Project (No.2022B01039) and the Independent Deployment of Key Innovation Projects of Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences (No.SINAP-QJYS-202201)

First author: NIU Yongsheng, male, born in 1985, graduated from University of Chinese Academy of Sciences with a doctoral degree in 2021, focusing on the chemical engineering, thorium-uranium cycle, pyroprocessing technology and isotope separation

Corresponding author: SUN Lixin, E-mail: sunlixin@sinap.ac.cn

Received date: 2024-01-23, revised date: 2024-04-10

nuclear fuel reprocessing technology, therefore, a remote operation system suitable for reprocessing post-treatment process equipment is developed so that the pyroprocessing experiments of molten salt can be conducted in hot cell. **[Purpose]** This study aims to evaluate equipment remote operation and pyroprocessing verification in hot cell. **[Methods]** Main focus of this study was the fluoride volatility and vacuum distillation process of molten salt reactor fuel salts, and the remote operation evaluation of hot cell equipments and pyroprocessing verification experiments were carried out using multi-view coordination. The workload of the operation of the fluoride volatility and vacuum distillation process units was analyzed and evaluated, and the operation efficiency was obtained based on the frequency and time spent on the basic movements of the manipulator in pyroprocessing verification experiments. On this basis, experiments were conducted on the uranium fluoride volatility in the $\text{LiF-BeF}_2\text{-ZrF}_4\text{-UF}_4$ salt, and vacuum distillation process in LiCl-KCl , LiF-NaF-KF molten salts. Then, before and after the fluoride volatility experiments, inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS) was used to determine the uranium content in molten salt, and the conversion rate and reaction rate of uranium were calculated. The uranium content in the base solution downstream of adsorption column was analyzed to obtain the recovery rate of uranium product. Finally, the molten salts evaporation was calculated by the residual mass after the vacuum distillation experiments. The evaporated salts were collected through the condensing cover, and the collection rate was calculated. **[Results]** The results of reprocessing validation experiments in hot cell show that the workload of feed and discharge in the operation unit is large than 2.0 on the basis of reasonable arrangement of process equipments in hot cell. The load values for the on/off operation are relatively small, with values of 0.07 and 0.14, respectively. In the operations of processes, due to the various types and frequency of the manipulator operation, the feed and discharge units take a long time with a time-consuming of 20 min and 19 min respectively. The operational efficiency of the pyroprocessing in the hot cell can be improved by optimizing processes and reducing unnecessary operations. A uranium conversion rate of 99.8% and recovery rate of over 99% in molten salt are achieved in the uranium fluoride separation experiment. By improving distillation temperature and sealing of components, a higher evaporation rate and a 100% recovery rate of molten salt distillation are achieved in the vacuum distillation experiments. **[Conclusions]** The designed small-scale fluoride volatility and vacuum distillation devices can be used for remote operation and process experimental research in the hot cell, and the experimental results meet the key process targets. The research work can provide a reference basis for the pyroprocessing of real spent fuel in hot cell.

Key words Hot cell, Pyroprocessing, Remote operation, Fluoride volatility, Vacuum distillation

核能作为一种能量密度高、洁净、低碳的能源，近年来得到了前所未有的重视和发展机遇。核燃料后处理技术不仅可实现资源的充分利用，而且能够减少需要进行最终地质处置的废物量，确保核能可持续发展。因此，后处理技术也是熔盐堆核能系统（Thorium Molten Salt Reactor Nuclear Energy System, TMSR）的重要研究内容之一^[1-3]。随着我国新建核电和乏燃料后处理规模的增加，以核燃料高效利用为目的的先进核燃料循环体系，对后处理工艺提出了较高的要求。

干法后处理技术具有耐辐照、低临界风险和放射性废物少等优点，因而适宜处理高燃耗、短冷却期乏燃料，能够满足先进核燃料循环中对乏燃料的分离要求^[4]。世界上主要的核能国家都将干法后处理技术列入了本国的核能发展计划，并加大了研究投入。美国橡树岭国家实验室（Oak Ridge National Laboratory, ORNL）在20世纪50年代便开始进行氟

化挥发和减压蒸馏等干法后处理技术研究，并设计了一整套工艺流程，对熔盐实验反应堆（Molten Salt Experimental Reactor, MSER）的真实燃料盐进行工艺研究^[5-6]。近十年来，以中国科学院上海应用物理研究所（Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, SINAP）为主的国内科研机构，对氟化挥发和减压蒸馏等干法技术进行了核心工艺开发和工艺设备研发工作，并取得了一系列重要结果^[7-10]。

由于后处理对象为放射性材料，这些材料必须在特定的屏蔽区（热室）或负压围封手套箱内进行处理。美国阿贡国家实验室（Argonne National Laboratory, ANL）基于熔盐电化学分离技术开发了适用于热室内的乏燃料干法后处理工艺与关键设备^[11]。韩国原子能研究所（Korea Atomic Energy Research Institute, KAERI）主要利用3D仿真技术进行热室内设备的远程访问、控制和可维护等分

析^[12-13]。国内科研机构主要开展了热室内装置设计、燃料元件溶解、分离去污工艺、样品制备和特定分析技术等方面的研究^[14-17]。SINAP 不仅致力于开发先进的干法后处理技术,同时也专注于研发适合于干法工艺实施的相关热室保障系统。热室内工艺设备所需的所有操作和维护,都必须依托相应的远程操作系统或工具予以实施,其中机械手是非常有用的远程操作工具,用于执行各种热室设备和工艺操作任务。热室内工艺设备的空间布局、设备自身的远程可操作性以及干法工艺的远程操作实验验证,是乏燃料后处理工艺在热室内成功运行的重要技术基础,目前,此方面的相关研究鲜有报道。

本文主要以熔盐堆燃料盐的氟化挥发、减压蒸馏处理工艺为评估对象,开展了热室内设备远程操作评估和干法工艺验证实验。重点分析评估了氟化挥发和减压蒸馏工艺单元操作的工作负荷,并基于干法工艺验证实验中机械手基本动作的频率和耗时,获得了工艺单元的远程操作效率,在此基础上,开展了氟盐体系铀的氟化挥发、LiCl-KCl、LiF-NaF-KF 熔盐减压蒸馏工艺的热室内验证实验,为实现真实乏燃料的干法后处理提供参考依据。

1 实验与方法

1.1 热室和机械手系统

热室是一个高度屏蔽的空间,操作人员可以使用机械手进行放射性物质的远程操作。SINAP 建有后处理工艺研究专用热室,为操作人员提供必要的生物屏蔽、密封操作空间和基本操作条件,以便在操作放射性物质时防止放射性污染扩散并使操作人员免受外照射伤害。图1为热室正面屏蔽墙与机械手结构示意图。热室在屏蔽墙上布置有铅玻璃窥视

窗,用于观察热室内的操作。每个窗口上方安装有一对主从机械手,主要由主动臂、从动臂和用于确保主从臂之间连接的穿墙连接管构成。主从机械手操作自由度高(7个自由度),在特定环境中操作起来具有灵活性;其不足是被固定在墙上,操作范围受限,因此在进行热室内工艺设备布置时,需要考虑到机械手的可操作范围。

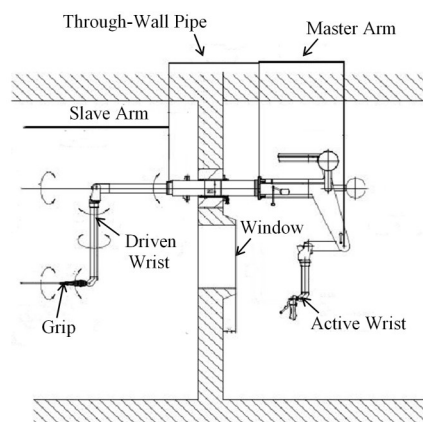


图1 热室屏蔽墙和机械手结构示意图
Fig.1 Schematic diagram of hot cell shielding wall and manipulator structure

在远程操作过程中,操作人员在热室外操控机械手,并透过窥视窗进行远距离观察,因此。操作员的视觉感知和操作动作之间的联系会被大幅削弱。为了实现对目标设备距离的估计和机械手的准确操作,在观察方式上,我们在远程操作过程中,采用了全景三维摄像系统的全局视角、机械手手部摄像的局部视角和窥视窗视角相结合,使操纵员能够实时观察操作对象在热室中的位置、姿态和细部结构,从而显著提升热室内远程操作的准确性。图2示意了多视角配合下,机械手进行热室内设备和干法工艺实验的远程操作。

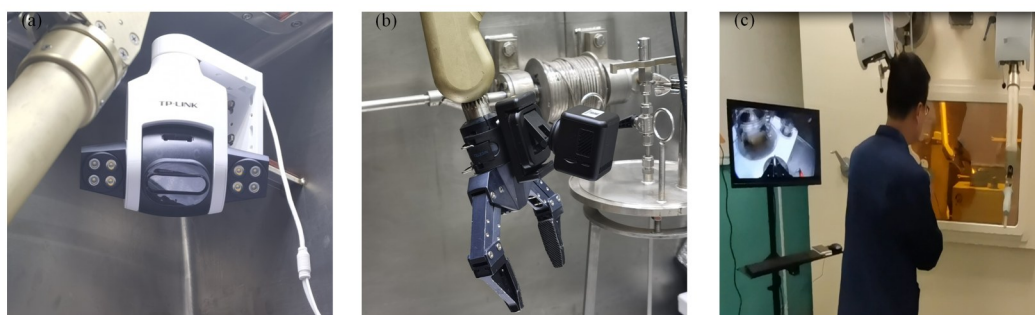


图2 多视角机械手远程操作示意图 (a) 全局视角, (b) 机械手的手部视角, (c) 窥视窗视角

Fig.2 Schematic diagram of remote operation of manipulator by multi view

(a) Global view, (b) Manipulator view, (c) Window view

1.2 工艺设备布局

操作员主要通过移动机械手的主操纵器来控制

机械手进行远程操作,机械手的操作能力也会随操纵员手臂姿势的变化而出现显著变化。因此,在远程操作过程中,需要考虑热室内机械手的操作范围

与设备布局之间的匹配性。图3示意了热室内,机械手理论上可操作的空间范围。虚线椭圆框出的空间分别是左右两只机械手的操作范围。机械手在执行某项操作时,可能会存在机械手不能到达的作业死区。对于工作区域I而言,是属于左侧机械手的操作范围(区域III则为右侧机械手)。区域II则为两只机械手均能顺利操作的区域,因此,主要工艺设备应布置在区域II内,以便操作员能够快捷地进行设备操作。图3中间的横向虚线示意的是热室内吊车的行进路线。需要进行起吊的设备及配件,应该放置在吊车行进路线上或附近,有利于吊装操作。

基于上述考虑,进行了氟化挥发和减压蒸馏工艺设备的热室内布局。图4为热室内工艺设备的实际布置照片和平面布置图。氟化反应釜、减压蒸馏

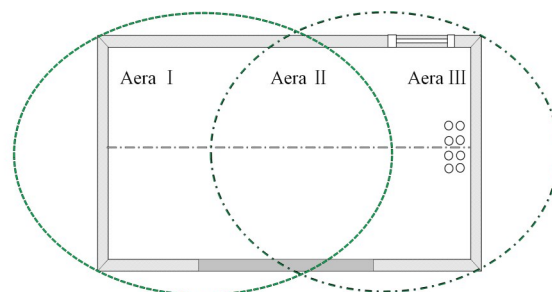


图3 热室机械手操作范围示意图
Fig.3 Schematic diagram of operating range of hot cell manipulator

釜和产物吸附柱等主工艺设备均放置在机械手便于操作的区域II,置物架放置在吊车行进路线附近,工艺所需气路与热室内气体连接口相连,尾气处理装置由于操作频率较少,放置在区域III的右下方。

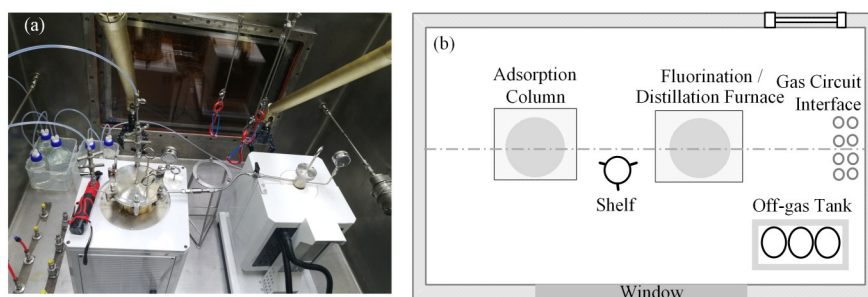


图4 热室内干法工艺设备的实际布置(a)和平面布置图(b)
Fig.4 Actual equipment layout (a) and plane layout (b) of reprocessing devices in hot cell

1.3 干法工艺验证实验

氟化挥发和减压蒸馏实验,主要验证在自主设计设备上,基于热室远程操作的工艺可行性。

氟化挥发工艺步骤:利用热室内机械手将UF₄ (1.165 g,中国核电集团包头二O二工厂提供)与LiF-BeF₂-ZrF₄ (65-30-5 mol%)熔盐(49.028 g,自制)混合后置于坩埚内,随后将坩埚置于提篮中,再通过机械手将提篮置于氟化器中,反应釜加热至550℃,实验过程中通入0.2 L·min⁻¹ 20% F₂(上海茂图特种气体有限公司,纯度99.9%)进行铀的氟化分离。反应产生的气态产物由反应釜气体出口流至100℃ NaF(自制圆柱状吸附剂颗粒)吸附器中被吸附固定。残余气体经尾气处理单元后排出,尾气处理由片状NaOH(国药化学试剂,GR)与活性Al₂O₃(国药化学试剂,GR)吸收罐,缓冲罐和多级KOH-KI(国药化学试剂,GR)碱液吸收罐组成。工艺流程如图5所示。

实验前、后利用电感耦合等离子体质谱(Inductively Coupled Plasma-Mass Spectroscopy, ICP-MS, PerkinElmer NexION 300D)进行熔盐中铀含量测定,根据式(1)和(2)分别计算U元素的氟化

转化率和反应速率;对吸附柱后碱液中铀含量进行分析,推算得到铀产物的回收率。

$$\eta = \frac{m_0 - m}{m_0} \times 100\% \quad (1)$$

$$v = \frac{m_0 - m}{t} \quad (2)$$

式中: m_0 为反应前熔盐中U元素质量,g; m 为氟化反应后熔盐中剩余的U元素质量,g; t 为氟化反应时间,h。

减压蒸馏工艺步骤:将一定质量的LiCl-KCl (59-41 mol%,自制)和FLiNaK (LiF-NaF-KF分别为46.5-11.5-42 mol%)熔盐分别置于蒸馏组件(图6)中,再利用机械手吊装蒸馏组件,置于电阻炉炉膛。设备密封后进行抽真空,组件内压力控制为1~30 Pa,蒸馏釜加热,最后在设定的实验温度下进行熔盐蒸馏回收实验。通过实验后熔盐剩余质量,计算熔盐蒸发量;通过冷凝罩收集盐称重,基于熔盐蒸发量,计算回收率。

2 结果与讨论

2.1 机械手远程操作工作负荷分析

热室内工艺设备的远程可操作性评估对设备的

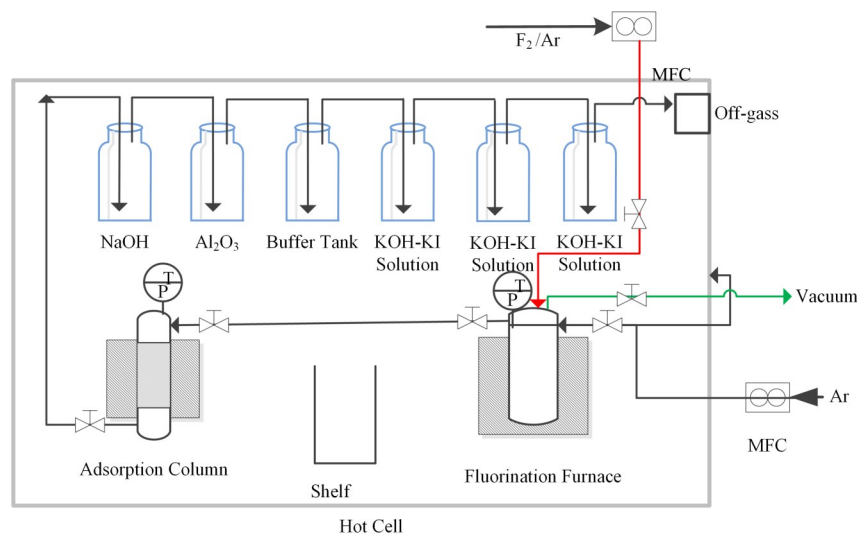


图5 热室内氟化挥发工艺流程图
Fig.5 Fluorination volatility process flow chart in hot cell

结构设计、干法处理工艺的优化都具有重要意义。机械手是热室内最核心的操作设备,在执行各种操作时,由于任务的多样性和对象复杂性,对机械手操作的灵活性和适应性提出了较高的要求。基于热室内氟化挥发和减压蒸馏工艺和设备的特点,本研究工作将机械手的远程操作分为6个基本动作,如表1所示(表中耗时为平均值),分别为螺栓旋紧/旋松、挂钩/摘钩、配件移动、机械手旋转、插入/拔出、开/关等。由于每种基本动作的复杂度不同,其操作耗时也大为不同。其中,由于工艺设备的螺栓旋紧/旋松时,需进行螺栓正位、电动扳手定位和旋紧/旋松等一系列操作,动作复杂,因此该动作耗时最长,旋紧/旋松一个螺栓需90 s。而对于设备的开/关动作,只需机械手钳头点按即可完成,耗时最短约10 s。

机械手操作时主要基于人力完成各项操作工作,操作人员必须具备一定的力量和操作技能,因此,主要从物理负荷因素(机械手的自由度和强度)和精神负荷因素(操纵人员的集中度)两个方面,对上述6种基本动作给出了相应的负荷分析,并得到每种基本动作的归一化负荷系数,以便后续对操纵人员完成每项操作工作的负荷进行定量评估。如螺栓的旋紧/旋松动作,由于使用电动扳手,动作强度要求不高,但该操作对机械手的自由度和操纵员的集中度要求较高,相应的负荷分数值和归一化负荷系数结果列于表2中。

在氟化挥发、减压蒸馏工艺验证实验中,主要涉及装料、气体置换、氟化反应、气体吹扫、抽真空和出料等工序,而每一工序的操作任务均是由操作人员利用机械手完成不同频率和类型的基本动作实现的,具体情况如表3所示。

根据表2和表3结果,将基本动作的归一化负荷系数乘以操作频率,得出完成不同工序操作(如装料、气体置换、出料等)的工作负荷。图7是机械手完成不同工序操作的工作负荷分析结果。由图7和表3的数据结果可以得出:在各种工序操作中,氟化反应和抽真空操作的工作负荷值较小(FR负荷值为0.6;VC为0.34);装料、出料操作的工作负荷值较大(氟化挥发工艺的FD负荷值为6.92,减压蒸馏为7.03;氟化挥发工艺的DC为6.04,减压蒸馏为6.28)。其中,在装料、出料操作中螺栓旋紧/旋松、挂钩/摘钩、配件移动等三种基本动作的操作频率较高,且是工作负荷总值的主要组成部分。因此,在后续工艺实验流程设计时,需对干法工艺的装料/出料工序进行重点优化,以降低操作人员的工作总体

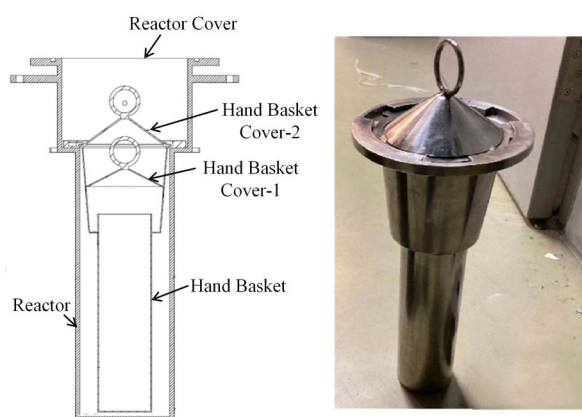
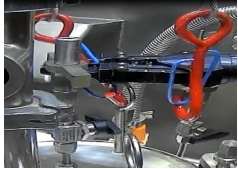
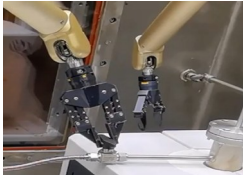
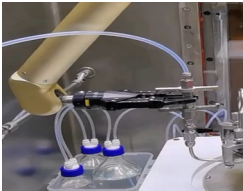
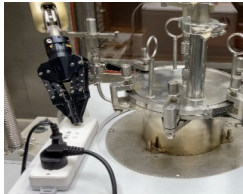


图6 适用于热室操作的蒸馏组件
Fig.6 Distillation components suitable for hot cell operations

结合表1中基本动作的特点,进行了工艺设备的操作工作负荷评估与分析。工作负荷主要指机械手在单位时间内所担负的设备操作的工作量。由于

表1 机械手的6种基本操作动作
Table 1 Six basic operation actions of manipulator

序号 Number	操作动作 Operation action	动作描述 Action description	耗时 Time-consuming / s	操作实例 Operation example
1	螺栓旋紧/旋松 BT, Bolt tighten / loosen	使用电动扳手将设备上的螺栓固定(或松开) Use an electric wrench to fix the bolts on the equipment (or loosen)	90	
2	挂钩/摘钩 HK, Hook /unhook	通过机械手将钩子挂到(或摘离)目标设备的吊环 Hang (or remove) the hook to the lifting ring of the target equipment through the manipulator	30	
3	配件移动 FM, Fittings move	将目标物体从原始位置移动至其他位置 Move the target object from its original position to another position	15	
4	机械手 旋转 MR, Manipulator rotate	通过机械手手腕的旋转,使阀门打开(或关闭) To open or close a valve by means of a rotating hand of manipulator	20	
5	插入/拔出 IS/DI, Insert/disengage	在公差范围内将连接件的两端插入(或反向拔出) Insert (or disengage) both ends of the connector within the tolerance	40	
6	开/关 OP/CO, Open/close	通过机械手前端点按,打开(或关闭)电源开关 Press the front end of the manipulator to open(or close) the power switch	10	

负荷。

2.2 不同工序的操作效率分析

与工序的工作负荷不同,各种工序的操作效率(即操作耗时)分析,更有助于优化工艺流程设计,进而使得工艺操作更加高效。基于氟化挥发、减压蒸馏工艺验证实验,结合表1和表3中数据,系统评估了不同工序的操作效率。将基本动作单次操作耗时与操作频率相乘,进而得到不同工序的总体耗时结果(图8)。通过分析图8可以明显得出:1)在氟化挥发和减压蒸馏工艺单元操作中,由于装料和出料工艺过程中,涉及的机械手动作类型和操作频率均较

多,因此装料和出料是比较耗时的。氟化挥发工艺和减压蒸馏工艺中,装料约20 min,出料约19 min;2)抽真空工序耗时最少,约为1 min;3)氟化反应、气体置换和气体吹扫等工序,2~5 min即可完成远程操作。为了提高操作效率,在后续工艺单元设计时,对工艺流程进行优化,尽量减少或剔除流程中不重要的或是可以合并的操作动作。如通过优化工艺设备结构,减少装料和出料工序中相关配件的移动动作,进而降低操作频率,提高工序的操作效率。

2.3 热室内干法分离工艺验证实验研究

在自主设计反应装置的基础上,基于热室机械

表2 远程操作动作的典型负荷分数
Table 2 Typical load scores of remote operation actions

操作动作 Operation action	负荷因素 Workload factors			负荷分数 Workload scores	归一化负荷系数* Normalized workload ratio*
	物理负荷 Physical load		精神负荷 Mental load		
	自由度 DOF motion	强度 Strength	集中度 Concentration		
BT	3	3	3	9	0.31
HK	2	1	3	6	0.21
FM	3	1	1	5	0.17
MR	1	0	1	3	0.10
IS/DI	1	1	2	4	0.15
OP/CO	1	1	0	2	0.07

注：* 某一操作动作的负荷分数与各操作动作负荷分数和的商,即为归一化负荷系数

Note: * The quotient of the load score of a operation action and the sum is the normalized load coefficient

表3 不同工艺单元机械手动操作频率
Table 3 Operation frequency of manipulator in different process units

工艺单元 Process unit		操作动作 Operation action					
		BT	HK	FM	MR	IS/DI	OP/CO
氟化挥发 Fluoride volatility Process, FVP	装料 Feed, FD	6	8	14	4	4	—
	气体置换 Gas replacement, GR	—	—	—	12	—	2
	氟化反应 Fluorination reaction, FR	—	—	—	6	—	—
	气体吹扫 Gas purge, GP	—	—	—	15	—	2
	出料 Discharge, DC	6	8	10	2	4	—
减压蒸馏 Vacuum distillation process, VDP	装料 Feed, FD	6	8	16	4	2	1
	抽真空 Vacuum, VC	—	—	—	2	—	2
	出料 Discharge, DC	6	8	12	4	2	—

注：“—”表示该基本动作不适用于某工序

Note: “—” Indicates that the basic action is not applicable to a certain process

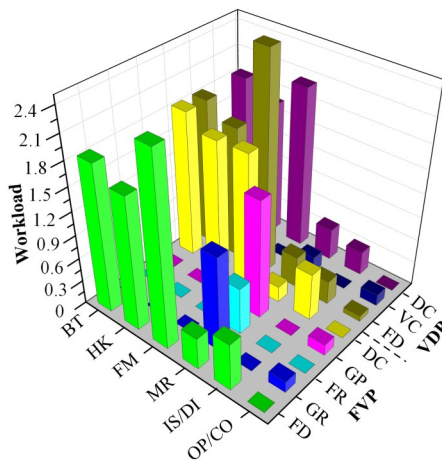


图7 氟化挥发和减压蒸馏工艺机械手远程操作工作负荷
Fig.7 Workload of manipulator remote operation of fluoride volatility and vacuum distillation process

手的远程操作,开展了氟化挥发和减压蒸馏工艺验证实验研究。

热室内氟化挥发工艺验证实验中,使用热室内机械手,吊车以及辅助工具,可以顺利地完氟化反应釜、吸附器吊装,釜盖打开和闭合,气体管路连接

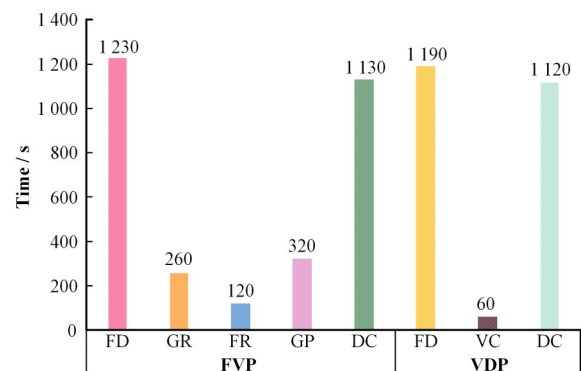


图8 不同工序操作耗时图示
Fig.8 Illustration of different process operation time consumption

和断开,管路阀门开闭等远程操作。实验使用FLiBeZrU熔盐(U质量分数为17.6%),氟化反应共计进行1 h,氟化后熔盐呈淡黄棕色(图9(a))。将冷却后的固体熔盐,磨成粉末进行取样分析。经分析检测,其U含量为 35×10^{-5} 。由此计算可得熔盐中铀的氟化转化率为99.8%,反应速率为 $0.88 \text{ gU} \cdot \text{h}^{-1}$ 。氟化反应产生的 UF_6 产物由NaF吸附剂吸附回收,氟

化反应后发现,入口段NaF吸附剂颗粒呈淡黄色(图9(b)),对吸附器出口处的尾气碱液进行铀元素含量分析,计算得到铀产物的吸附回收率大于99%。由实验验证结果可见,设计的小型氟化挥发装置可用于热室内远程操作和工艺实验研究,实验结果也均达到了工艺关键指标要求。

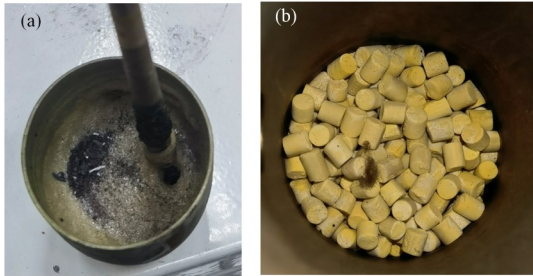


图9 氟化反应后熔盐(a)和NaF吸附剂吸附铀产物后(b)外观图片
Fig.9 Appearance photos of molten salt after fluorination (a) and NaF adsorbed uranium products (b)

热室内减压蒸馏工艺验证实验中,采用LiCl-KCl(59-41 mol%)和FLiNaK(46.5-11.5-42 mol%)两种熔盐分别进行减压蒸馏。利用50 g LiCl-KCl熔盐,在7 Pa的环境气压下,分别在700 °C和770 °C的蒸馏温度,考察了熔盐的蒸发率、冷凝物分布和熔盐回收率(实验结果见表4)。采用64 g FLiNaK熔盐,在7 Pa的环境气压,800 °C蒸馏温度下,也考察了熔盐的蒸发率、冷凝物分布和熔盐回收率(实验结果见表4)。由实验结果可以看出:1)对于LiCl-KCl熔盐,在蒸馏温度较低(700 °C)时,蒸发量低;当蒸馏温度升高(770 °C),可实现熔盐的全部蒸发,同时通过改进蒸馏组件的密封性,可实现熔盐蒸馏回收率100%;2)FLiNaK熔盐则需要更高的蒸馏温度(800 °C),才能实现较高的蒸发量(84%),同时可全部回收蒸馏的熔盐。研究结果表明,自主设计的蒸馏工艺装置适用于热室内远程操作和实验研究,熔盐蒸发量和回收率等均达到了工艺指标要求。

表4 LiCl-KCl和FLiNaK熔盐蒸馏实验
Table 4 Distillation experiments of LiCl-KCl and FLiNaK molten salt

熔盐 Molten salt	蒸发量(蒸发比例) Evaporation mass (evaporation ratio)	冷凝物分布 Distribution of condensate	熔盐回收率 Recovery ratio / %
LiCl-KCl, 700 °C	11 g (22%)	组件外盐 2 g(炉膛,炉盖) Outside the component-2 g (burner and cover) 冷凝罩收集盐 9 g Condensing cover collect salt-9 g	82
LiCl-KCl, 770 °C	50 g (100%)	冷凝罩收集盐约 50 g Condensing cover collect salt-50 g	100
FLiNaK, 800 °C	54 g (84%)	冷凝罩收集盐约 54 g Condensing cover collect salt-54 g	100

3 结语

本文研究和评估了热室内氟化挥发和减压蒸馏工艺设备远程可操作性和工艺实验验证。基于工艺实验的实际操作和对操作负荷的考虑,进行了工作负荷和工艺单元操作效率分析,同时也实现了热室内铀氟化分离和熔盐蒸馏回收工艺验证。工作负荷评估中,出料、装料等工艺单元,由于需要进行多次配件移动操作,造成工作负荷值较大,约为2.0及以上。两种工艺实验过程中,开/关操作的负荷值均较小,分别为0.07和0.14。氟化挥发和减压蒸馏工艺操作中,由于装料和出料工序涉及的机械手动作类型和操作频率均较多,因此比较耗时,装料约20 min,出料约19 min。在后续流程和工艺单元设计时,减少或剔除不重要的或是可合并的操作流程,可一定程度提高工艺设备的操作效率。FLiBeZrU熔盐体系进行的铀氟化分离实验,实现了铀转化率为99.8%,铀产物的吸附回收率大于99%,反应速率

较快,为0.88 gU·h⁻¹。LiCl-KCl和FLiNaK熔盐蒸馏实验中,通过改进蒸馏温度和蒸馏组件密封性,可实现较高熔盐蒸发量和100%熔盐蒸馏回收率。设计的小型氟化挥发和减压蒸馏装置可用于热室内远程操作和工艺实验研究,实验结果也均达到了工艺关键指标要求。

作者贡献声明 牛永生负责工艺设备设计,热室机械手操作,实验数据处理与分析,论文撰写;孙理鑫负责实验方案设计,实验指导和论文修改;王保柱负责热室机械手操作指导;张晗负责热室内管路连接和搭建指导;付海英负责设备设计,实验指导和论文修改;窦强负责工艺流程设计,论文结构润色及经费支持;周伟负责热室装置布置指导;钱渊负责论文审阅及研究经费支持;李晴暖负责论文审阅。

参考文献

1 江绵恒, 徐洪杰, 戴志敏. 未来先进核裂变能: TMSR 核

- 能系统[J]. 中国科学院院刊, 2012, **27**(3): 366 - 374. DOI: 10.3969/j.issn.1000-3045.2012.03.016.
- JIANG Mianheng, XU Hongjie, DAI Zhimin. Advanced fission energy program-TMSR nuclear energy system[J]. Bulletin of Chinese Academy of Sciences, 2012, **27**(3): 366 - 374. DOI: 10.3969/j.issn.1000-3045.2012.03.016.
- 2 李文新, 李晴暖. 熔盐反应堆: 放射化学创新发展的新源泉[J]. 核化学与放射化学, 2016, **38**(6): 327 - 336. DOI: 10.7538/hhx.2016.38.06.0327.
 - LI Wenxin, LI Qingnuan. Molten salt reactor: a new source of innovation development for radiochemistry[J]. Journal of Nuclear and Radiochemistry, 2016, **38**(6): 327 - 336. DOI: 10.7538/hhx.2016.38.06.0327.
 - 3 徐洪杰, 戴志敏, 蔡翔舟, 等. 钍基熔盐堆和核能综合利用[J]. 现代物理知识, 2018, **30**(4): 25 - 34. DOI: 10.13405/j.cnki.xdwz.2018.04.007.
 - XU Hongjie, DAI Zhimin, CAI Xiangzhou, *et al.* Thorium-based molten salt reactor and comprehensive utilization of nuclear energy[J]. Modern Physics, 2018, **30**(4): 25 - 34. DOI: 10.13405/j.cnki.xdwz.2018.04.007.
 - 4 李晴暖, 张岚, 周伟, 等. 钍基熔盐堆核能系统燃料循环技术研究进展[C]. 第十三届全国核化学与放射化学学术讨论会, 云南大理, 2014.
 - LI Qingnuan, ZHANG Lan, ZHOU Wei, *et al.* Research progress on fuel cycle technology of thorium based molten salt reactor nuclear power system[C]. The 13th National Symposium on nuclear and radiochemistry, Dali, Yunnan, 2014.
 - 5 Lindauer R. Processing of the MSRE flush and fuel salts [R]. ORNL-TM-2578, USA: Oak Ridge National Laboratories (ORNL), 1969.
 - 6 Rosenthal M W, Haubenreich P N, Briggs R B. The development status of molten-salt breeder reactors[R]. ORNL-4812, USA: ORNL, 1972.
 - 7 Niu Y S, Sun L X, Fu H Y, *et al.* Preliminary research on selective extraction of ⁹⁹Mo from fuel salt for molten salt reactor[J]. Separation and Purification Technology, 2024, **345**: 127424. DOI: 10.1016/j.seppur.2024.127424.
 - 8 Sun L X, Niu Y S, Hu C W, *et al.* Behavior and distribution of nuclides in the fluoride volatility process of uranium containing molten salt fuel[J]. Journal of Fluorine Chemistry, 2022, **261**: 110016. DOI: 10.1016/j.jfluchem.2022.110016.
 - 9 郑小强, 窦强, 程明, 等. 减压蒸馏法对熔盐堆载体盐中氧的去除研究[J]. 核技术, 2022, **45**(4): 040302. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2022.hjs.45.040302.
 - ZHENG Xiaoqiang, DOU Qiang, CHENG Ming, *et al.* Study on removal of oxide from carrier salt in molten salt reactor by vacuum distillation[J]. Nuclear Techniques, 2022, **45**(4): 040302. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2022.hjs.45.040302.
 - 10 付海英, 耿俊霞, 杨洋, 等. 乏燃料干法后处理中的熔盐减压蒸馏技术[J]. 核技术, 2018, **41**(4): 040001. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2018.hjs.41.040001.
 - FU Haiying, GENG Junxia, YANG Yang, *et al.* Low pressure distillation technology of molten salt in spent fuel pyroprocessing field[J]. Nuclear Techniques, 2018, **41**(4): 040001. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2018.hjs.41.040001.
 - 11 Benedict R, Goff M, Teske G, *et al.* Progress in electrometallurgical treatment of spent nuclear fuel[J]. Journal of Nuclear Science and Technology, 2002, **39**(sup3): 749 - 752. DOI: 10.1080/00223131.2002.10875575.
 - 12 Park H S, Chang H C, Kim K H, *et al.* 3D simulation for the device arrangement and the remote accessibility analysis in a hot cell[J]. Transactions of the American Nuclear Society, 2011, **105**: 897-898.
 - 13 Park H S, Choi C H, Kim S H, *et al.* Deployment analysis and remote accessibility verification for a maintenance task in a PRIDE digital mock-up[J]. Annals of Nuclear Energy, 2011, **38**(4): 767 - 774. DOI: 10.1016/j.anucene.2010.12.003.
 - 14 武文广, 宋长飞, 陈明驰. 热室模块支撑旋转装置研制[J]. 核技术, 2013, **36**(2): 020602. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2013.hjs.36.020602.
 - WU Wenguang, SONG Changfei, CHEN Mingchi. Research and design of module supporting and rotary device in hot cell[J]. Nuclear Techniques, 2013, **36**(2): 020602. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2013.hjs.36.020602.
 - 15 谢小龙, 王广开, 唐庆, 等. 乏燃料后处理厂退役用远距离操作技术探索[J]. 核科学与工程, 2016, **36**(3): 398 - 403. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0918.2016.03.016.
 - XIE Xiaolong, WANG Guangkai, TANG Qing, *et al.* Assessment and expectation for overall design requirements of remote handling technologies for decommissioning of spent nuclear fuel reprocessing plant [J]. Nuclear Science and Engineering, 2016, **36**(3): 398 - 403. DOI: 10.3969/j.issn.0258-0918.2016.03.016.
 - 16 贾昊鹏, 滕磊, 王帅, 等. 面向强放热室退役的高效复合去污技术研究[J]. 核动力工程, 2021, **42**(3): 193 - 196. DOI: 10.13832/j.jnpe.2021.03.0193.

JIA Haopeng, TENG Lei, WANG Shuai, *et al.* Research on efficient compound decontamination technology for decommissioning of highly radioactive hot cell[J]. Nuclear Power Engineering, 2021, **42**(3): 193 – 196. DOI: 10.13832/j.jnpe.2021.03.0193.

17 刘方, 李高亮, 罗方祥, 等. CRARL 设施真实乏燃料的首次溶解[R]. 中国原子能科学研究院年报, 2015.
LIU Fang, LI Gaoliang, LUO Fangxiang, *et al.* The first dissolution of real spent fuel in CRARL[R]. Annual Report of China Institute of Atomic Energy, 2015.