

混合澄清槽的临界安全设计研究

李云龙, 易璇, 杨海峰, 霍小东
(中国核电工程有限公司, 北京 100840)

摘要: 混合澄清槽是乏燃料后处理生产过程中的一种广泛应用的萃取分离设备。从临界安全的角度首先对混合澄清槽的相态、混合状态、相口和浓度分布进行了敏感性分析, 然后分析研究了混合澄清槽的尺寸对临界安全的影响, 并给出了使 Pu 浓度在较大范围内变化时仍具有足够临界安全裕量的尺寸限值, 为混合澄清槽的设计优化提供了参考。

关键词: 混合澄清槽; 临界安全; 后处理厂

中图分类号: TQ133.3

文献标志码: A

文章编号: 2095-8676(2015)04-0138-04

Research on Criticality Safety Design of Mixer-settler

LI Yunlong, YI Xuan, YANG Haifeng, HUO Xiaodong

(China Nuclear Power Engineering Co., Ltd., Beijing 100840, China)

Abstract: Mixer-settler separator is the widely used extraction equipment in spent fuel reprocessing plant. Sensitive Analysis of mixer-settler based on criticality safety is analyzed, including phase states, mixed state, phase interface and concentration distribution. And effect of the mixer-settler size on criticality safety is analyzed. Then the limiting size of mixer-settler is given which has adequate criticality safety allowance in a large range of plutonium concentration. This paper provides a reference for the design of mixer-settler.

Key words: mixer-settler; criticality safety; spent fuel reprocessing plant

随着我国核电装机容量的增加和先进燃料管理方案在核电厂中的实施, 从核电厂卸出的乏燃料组件将日益增多且初始富集度也不断提高, 因而对乏燃料后处理的能力也提出了越来越高的要求。乏燃料后处理是为了从反应堆辐照核燃料中提取核纯的 Pu 及其他核物质, 工艺中广泛使用普雷克斯 (PUREX) 流程, 该流程于 1954 年首次应用在萨凡那河钚生产厂中, 后逐渐应用于世界各国的乏燃料后处理工业, 该流程首先将乏燃料组件进行剪切与溶解, 然后将溶解后合格的料液进行萃取分离, 再进行裂变物质或裂变产物的纯化和尾端处理^[1]。

混合澄清槽是后处理工艺中的一种关键萃取分离设备, 它由混合室和澄清室两部分组成。在混合室中, 借助搅拌作用, 使有机相和水相充分混合, 实现两相间传质。在澄清室中, 利用有机相和水相

的密度差, 使来自混合室的乳状混合液澄清分相。一个混合室和一个澄清室构成一级, 生产上使用的通常是多级混合澄清槽^[1]。

本文基于临界安全的考虑, 采用 MONK^[2]蒙特卡罗方法粒子输运^[3]程序首先对混合澄清槽进行敏感性分析, 然后分析了低浓钚到高浓钚范围内, 混合澄清槽的尺寸对临界安全的影响研究。

1 敏感性分析

对混合澄清槽进行临界安全分析时, 为确定影响系统临界安全的相关参数, 结合混合澄清槽特有的运行工况, 对混合澄清槽开展了多种参数的敏感性分析。计算中采用周期性边界条件, 单级模型见图 1。其中深灰色为有机相, 浅灰色为水相。如无特殊说明, 计算时采用的 Pu 浓度为 0.74 g/L。

1.1 相态的影响

PUREX 流程中, 混合澄清槽采用逆流的方式, 即新鲜的有机相料液和新鲜的水相料液分别从混合澄清槽的两端进入, 这样增大了有机相和水相萃取

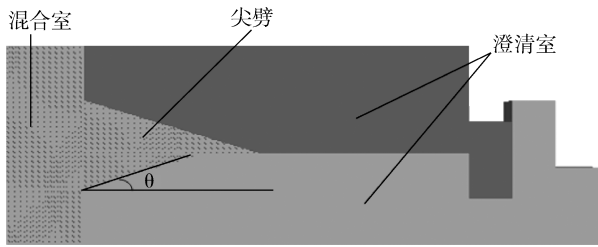


图1 混合澄清槽单级纵截面图

Fig. 1 Longitudinal Section of Mixer-settler

过程中的浓度差, 提高了萃取效率。本节根据水相和有机相料液的浓度差异, 结合可能发生的水相和有机相体积差异, 对混合澄清槽进行了敏感性分析, 结果见图2、图3。

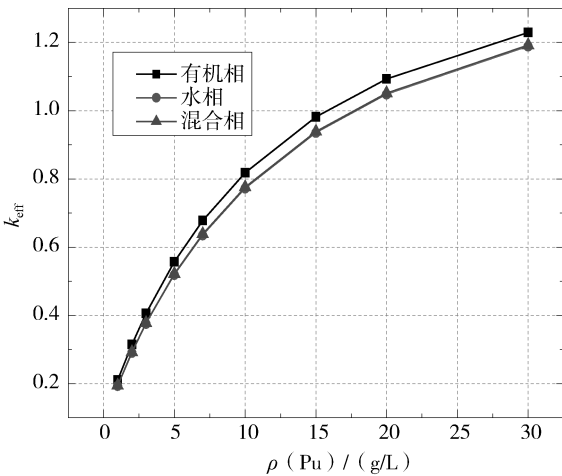


图2 不同相态下 k_{eff} 随 Pu 质量浓度的变化

Fig. 2 k_{eff} as A Function of Plutonium Concentration at Phase States

从2可以看出, 有机相的 k_{eff} 相对于水相而言略大, 混合相 k_{eff} 位于水相和有机相之间。从图3可以看出随着有机相体积占总体积比例的升高, 系统的 k_{eff} 有增大趋势, 这也是由于有机相 k_{eff} 相较水相 k_{eff} 略大引起的。

1.2 混合状态的影响

根据混合室搅拌速度以及料液在混合室的停留时间的不同, 会对混合室中料液的混合程度产生影响, 混合程度主要表现在混合物中两相是否充分接触, 通过某一相在另一相中形成的料液滴的大小对混合程度进行评价。根据料液滴小球半径的不同研究混合状态对混合澄清槽 k_{eff} 的影响, 在计算分析中假定有机相和水相中 Pu 的质量浓度相同, 小球半径为分散在水相中的有机相小球的半径, 见图4。

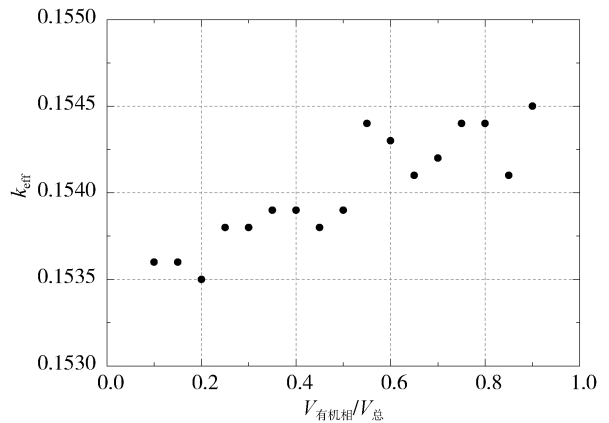


图3 k_{eff} 随有机相占比的变化

Fig. 3 k_{eff} as A Function of The Volume Rate of Organic Phase

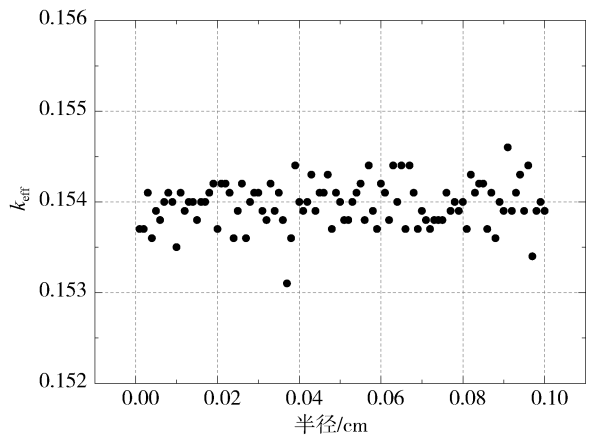


图4 k_{eff} 随小球半径的变化

Fig. 4 k_{eff} as a Function of the Radius of the Globule

可以看出, 当有机相小球半径从 0.01 cm 变化至 0.1 cm 时, 系统 k_{eff} 没有发生明显的变化(变化在 0.001 以内), 在这个范围内, 可以忽略混合室混合状态对 k_{eff} 的影响。同时对水相分散在有机相的情况进行了分析, 可以得出类似结论。

1.3 相口的影响

相口^[4]主要包括混合相口, 有机相口和水相口, 通过有机相口和水相口的料液为单一相, 在 1.1 节中已经讨论过, 这里主要讨论混合相口, 混合相口的主要作用一方面防止未经充分混合的料液进入澄清室, 另一方面防止已进入澄清室的料液返回混合室。混合相口会影响到混合室中料液进入澄清室时, 形成的三角状区域(称之为“尖劈”)的大小, 如图1所示。当相口无挡板或挡板与水平方向夹角 θ 较小时, 形成的“尖劈”较大较平缓, 当相口

的挡板与水平方向夹角 θ 较大时时,形成的“尖劈”较小较尖锐。本节通过设置不同的“尖劈”大小研究相口对混合澄清槽 k_{eff} 的影响,结果见图5,图中角度 θ 越小,“尖劈”越大。

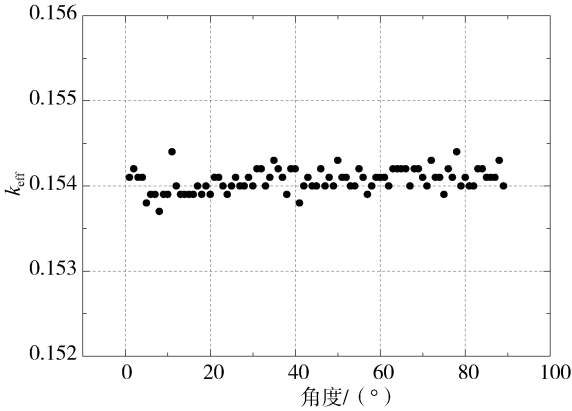


图5 k_{eff} 随“尖劈”角度的变化

Fig. 5 k_{eff} as a Function of the Angle of the Wedge

可以看出,混合澄清槽系统的 k_{eff} 随“尖劈”大小几乎没有变化(变化在0.001以内),可以忽略“尖劈”大小对混合澄清槽 k_{eff} 的影响。

1.4 浓度分布的影响

在混合澄清槽的实际运行中,液料的裂变物质浓度分布往往是不均匀的,特别是在异常停车工况下,会呈现出底部料液的浓度较高,而上部料液的浓度较低,为研究浓度分布的影响,建立了相对较扁平的混合澄清槽模型,使之更接近实际模型,并在高度方向上等分为4层,底层到顶层料液浓度等额减小,并控制其平均浓度相等,研究层间存在浓度差异时,混合澄清槽 k_{eff} 的变化,结果见图6。

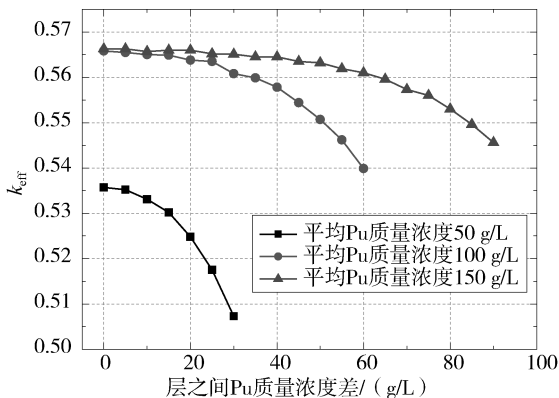


图6 k_{eff} 随层间质量浓度差的变化

Fig. 6 k_{eff} as a Function of Concentration Discrepancy

可以看出,在相同平均Pu质量浓度下,混合澄清槽的 k_{eff} 随层间Pu浓度差的增大而减小,当层间Pu质量浓度差为0时,即料液质量浓度分布均匀时,混合澄清槽的 k_{eff} 最大,因此,为保守起见,采用质量浓度均匀分布的料液进行分析研究。

2 分析研究

根据以上所研究的内容,可以确定所研究的混合澄清槽系统中,有机相的 k_{eff} 相对水相的略大,而混合室的混合状态和澄清室中形成的“尖劈”大小对混合澄清槽 k_{eff} 几乎没有影响。在应用中,我们选取了相对保守的参数对其进行分析研究,为临界安全留出一定的裕量。

分析时假设混合室中需容纳流量为202 L/h的30% TBP—煤油硝酸钚溶液停留1 min,由此确定混合室的体积,根据澄清室和混合室固定的体积比,可得到混合澄清槽尺寸随混合室边长的变化关系。图7显示了不同尺寸下 k_{eff} 随Pu质量浓度的变化关系,图中横坐标为料液中Pu的质量浓度,每一条曲线代表不同的混合澄清槽尺寸下的结果,图例为混合澄清槽中混合室的边长,由于当混合澄清槽的尺寸发生变化时系统的 k_{eff} 相差较大,因此,对不同尺寸下的曲线进行了处理,使其可以清楚的表示在一张图中,这时,纵坐标的数值表示原 k_{eff} 经过数据处理后的值。

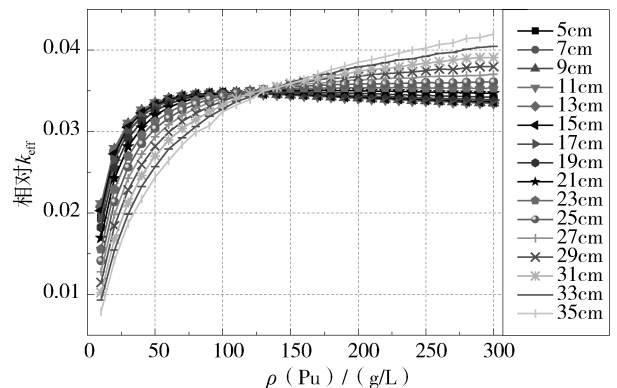


图7 不同尺寸下的系统 k_{eff} 随Pu的质量浓度变化图

Fig. 7 Normalized k_{eff} as a Function of Plutonium Concentration at Mixer-settler Size

可以看出,当混合室边长较小时,即高度较高时,混合澄清槽的 k_{eff} 随Pu的质量浓度呈现出先增大后减小的趋势,其最大值出现在Pu的质量浓度为110 g/L左右时。当混合室边长较大时,即高度

较小时, 混合澄清槽 k_{eff} 随 Pu 的质量浓度呈现出增大的趋势, 因此, 存在一定的尺寸使得混合澄清槽 k_{eff} 随 Pu 的质量浓度先增大到一定程度后保持不变。由于计算时设置一边为周期性边界条件, 因此主要是高度会其产生影响, 本文通过对数据的对比分析, 得出当混合室边长为 23 cm 左右时, 对应高度为 6.36 cm 左右时, 出现上述情况, 见图 8, 同时给出其他尺寸进行对比, 图中纵坐标为真实 k_{eff} 。

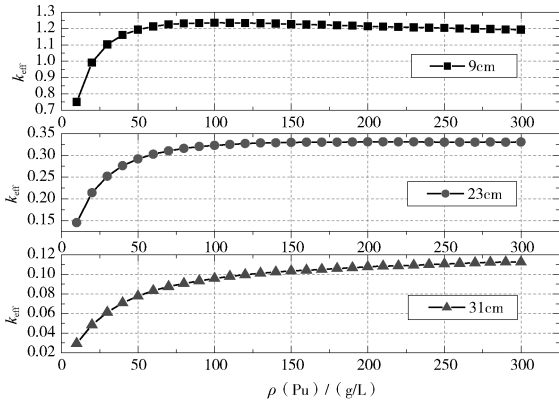


图 8 几组尺寸下 k_{eff} 随 Pu 的质量浓度变化图

Fig. 8 k_{eff} as a Function of Plutonium Concentration at Mixer-settler Size

可以看出, 当边长为 23 cm, 对应高度为 6.36 cm 左右时, 混合澄清槽的 k_{eff} 随 Pu 的质量浓度的升高先增大, 在 Pu 的质量浓度达到 110 g/L 左右以后, 几乎保持不变。

当边长大于 23 cm 时, 对应高度小于 6.36 cm 时, 混合澄清槽系统“扁平”, 中子泄漏率较高, 系统 k_{eff} 普遍较低, 混合澄清槽处于临界安全状态。

当边长小于等于 23 cm 时, 对应高度大于 6.36 cm 时, 混合澄清槽系统在 Pu 浓度为 110 g/L 左右时达到最大值, 在本文所分析的条件下, 如果不对混合澄清槽的尺寸加以限制, 将有临界安全的风险, 为此以一定的临界安全接受限值为目标, 计算了需要进行限制的尺寸值, 分析中为提供足够的裕量, 采用 k_{eff} 等于 0.8 为限值, 得出当边长大于 16 cm, 对应高度小于 13.2 cm 时, 可保证混合澄清槽在 Pu 浓度为 0 ~ 300 g/L 的情况下是临界安全的。

本文同时对流量为 122 L/h, 停留时间为 1 min 的料液和流量为 1 090 L/h, 停留时间为 1 min 的料液进行了分析, 得到了类似的规律, 同样以 k_{eff} 等于 0.8 为限值, 结果见表 1。

表 1 最大 k_{eff} 为 0.8 时不同容积下混合澄清槽尺寸

Table 1 Mixer-settler Size of Different Volume when Maximum k_{eff} is 0.8

尺寸	流量 122 L/h 停留时间 1 min	流量 202 L/h 停留时间 1 min	流量 1 090 L/h 停留时间 1 min
混合室边长/cm	12.5	16	37
对应高度/cm	13.01	13.15	13.27

可以看出, 对于不同的混合室容积, 为保证临界安全, 需要对其中料液的高度进行限制, 若以 k_{eff} 等于 0.8 为条件, 其限值大约为 13.00 cm。

3 结论

本文首先对混合澄清槽的相态、混合状态、相口和质量浓度分布对系统 k_{eff} 的影响进行了分析研究, 得出在易裂变物质浓度相同的情况下, 有机相溶液的 k_{eff} 相比于水相略大, 而混合状态和相口对混合澄清槽的 k_{eff} 几乎没有影响, 浓度分布不均匀会导致混合澄清槽 k_{eff} 减小。

然后研究了混合澄清槽的尺寸对临界安全的影响, 计算分析了不同混合室容积下, 混合澄清槽的临界特性, 得出当混合澄清槽的料液高度小于 6.36 cm 时, 混合澄清槽的 k_{eff} 随 Pu 的质量浓度的增高而增高, 但此时系统“扁平”, 中子泄漏率较高, 系统 k_{eff} 普遍偏低, 满足临界安全特性。当混合澄清槽料液高度大于 6.36 cm 时, 系统在 Pu 的质量浓度为 110 g/L 左右时达到最大值, 通过分析, 以 k_{eff} 等于 0.8 为条件, 给出料液高度的限值大约为 13.00 cm, 通过本文的参数研究和临界分析, 为混合澄清槽的设计提供了参考依据, 若以本文所确定的高度限值进行混合澄清槽的设计, 可保证即使在较大的钚浓度范围内仍具有足够的临界安全裕量, 同时根据本文所确立的模型可以对混合澄清槽的设计进行进一步的优化。

参考文献:

- [1] 任凤仪, 周镇兴. 国外核燃料后处理 [M]. 北京: 原子能出版社, 2006: 106-110.
- [2] MONK User Guide for Version 10 [M]. 2014.
- [3] 邓力, 李刚. 粒子输运蒙特卡罗模拟现状概述 [J]. 计算物理. 2010, 27(6): 791-798.
- [4] 魏士良. 箱式混合澄清器混合相口的设计方法 [J]. 铀矿冶. 1985. 4(3): 43-51.