

The Fast Removal Techniques of a Small Amount of Protium from Hydrogen Isotopes Gas

Yifu Xiong, Yan Shi, Rong Li, Yongjun Wei, Tao Tang, Wenyong Jing

Institute of Materials, China Accdemy of Engineering Physics, Mianyang Sichuan
Email: xiongyifu@yeah.net

Received: Mar. 29th, 2017; accepted: Apr. 12th, 2017; published: Apr. 20th, 2017

Abstract

Based on the early stage of the palladium interact with hydrogen isotopes of basic research and related technical research, a kind of new method was proposed which can quickly remove a small amount of protium from the deuterium-tritium gas—palladium retention method. The method makes full use of the isotope effect of palladium-hydride system. When hydrogen isotopes gas with a small amount of protium flows through the separation column at normal temperature or low temperature, a small amount of protium priority can be detention in palladium separation material, so as to achieve the gas phase protium dilution, and protium enrichment in solid phase. Results show that compared with palladium thermal displacement method, under the same processing time and the loading amount of palladium, by about 10 times the separation ability, product gas extraction efficiency from 40% to 60%, greatly reduce the intensity of the operating staff and improve work efficiency.

Keywords

Palladium Retention Method, Hydrogen Isotopes, Fast Removal, Separation

含氘氢同位素中少量氕的去除技术研究

熊义富, 石岩, 李嵘, 蔚勇军, 唐涛, 敬文勇

中国工程物理研究院材料研究所, 四川 绵阳
Email: xiongyifu@yeah.net

收稿日期: 2017年3月29日; 录用日期: 2017年4月12日; 发布日期: 2017年4月20日

摘要

基于前期钯与氢同位素间的基础研究以及相关的工艺实验探索结果, 提出了一种能从氘气体中快速去

除少量气的新方法—钚留滞法。该方法充分利用常温或低温下钚氢化物的同位素效应，使含气的氘气气体流经钚分离柱后，能将少量气优先留滞在钚分离材料中，从而达到气相气贫化、固相气富集的分选效果。实验结果表明，与钚热置换法相比，在相同的处理时间及装钚量下，分选能力提高了近10倍，产品气的提取效率由40%提高至50%~60%左右，大大降低了工作人员的操作强度，提高了工作效率。

关键词

钚留滞法，氢同位素，去除，分选

Copyright © 2017 by authors and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

氢同位素分选是聚变反应堆氘核燃料循环和尾气处理的核心技术之一，不仅因为通过同位素分选可使反应堆运行中大量未燃烧的氘气重新使用，而且还可实现对聚变反应堆运行过程中氘的环境释放量的有效控制。诸如 ITER 这样大规模的聚变反应堆，其氘工厂中氘处理系统运行过程中会产生大量不同含氘量的氢同位素混合气体，需要大规模连续操作的氢同位素分选配套技术进行批次处理。同时，在氘的生产、贮存等工艺过程中，氘不可避免会与环境中的 H_2O 等环境气氛接触，由于氢同位素气体之间的同位素交换作用，环境中的气容易与氘混合。对于氘-氘聚变堆而言，氘核燃料中对氘的含量有严格限制，要求对排灰气进行除氘去杂质处理后方可注入环形室，实现氘核燃料闭合循环。

迄今为止，国内外已发展了多种氢同位素分选方法，主要包括热扩散柱法[1] [2] (TD-Thermal Diffusion Column)、低温蒸馏法[2] [3] [4] [5] (LHD)、洗提色谱法(Elution Chromatography) [6]、热循环吸附法(TCAP) [7] [8]等。其中低温蒸馏法是目前公认的分选能力最大的氢同位素分选技术，但分选系统体积较大，很难进行二次密封，运行控制要求高。热循环吸附法分选氢同位素的技术是美国氘工厂萨凡那河场地(SRS)于 1980 年发明，具有操作条件温和、分选纯度高、分选能力大等优点，不仅可以用于氢同位素气体的分选，也可用于含氘废气的净化、低浓度氘气的富集；若是多个 TCAP 单元级联，还可以直接分选三元氢同位素气体。

本文提出了一种能从含氘氢同位素气体中快速去除少量气的方法—钚留滞法，该法充分利用了常温或低温下钚氢化物的同位素效应，使含气的氘气气体流经钚分离柱后，能将少量气优先留滞在钚分离材料中，从而达到气相气贫化、固相气富集的分选效果。本法与其它氢同位素分选方法相比，具有操作模式简单、体积小、批处理能力大、工作温度低等特点，减少了氘的高温渗透及降低了操作人员的个人吸收剂量。

2. 原理及方法

2.1. 钚留滞法降氘原理

利用钚氢体系的氢同位素效应可实现氘气中少量气的富集分选，方法是，在一根填充了载钚材料的分离柱内，在常温或低温下，从分离柱的入口端送入一定量的氢同位素混合气体，使之形成一混合吸附段，随后继续送入氘混合气体，由于同位素效应，原先混合吸附段内的重同位素被氢置换出来，并推向前面，在前面形成新的吸附段，随着分选过程的发展，整个分离柱内渐渐地形成较纯的 D_2/T_2 同位

素谱带,最易被置换出来的 D_2/T_2 同位素色层处在谱带的最前端,而气处在谱带的最后端并滞留在载钯材料。如图 1 所示。

2.2. 钯留滞法除气装置

图 2 给出了钯留滞法降气的流程示意图。钯留滞法除气主要由除杂净化器、钯留滞柱、循环泵、循环罐、贮氢铀床等构成。实验中,可通过两种气流流向的控制来完成氘氚气体中气在分离柱上的富集,即 $A \rightarrow C$ 法和 $C \rightarrow A$ 法。采用 $A \rightarrow C$ 法时,氘氚气体在分离柱进口端(A 端)的压力由循环泵控制;采用 $C \rightarrow A$ 法时,氘氚气体在分离柱进口端(C 端)的压力由加热贮氢铀床直接控制。两种方法最大的区别为在氘氚混合气体分离过程中,分离柱的固相钯粉气体吸附饱和度不一样。对于 $A \rightarrow C$ 法,由于 C 柱内径较小,气阻处于分离柱末端,使得在分离过程中三个分离柱柱内气体压力增大,分离柱内固相钯粉的气体吸附趋于饱和状态;对于 $C \rightarrow A$ 法,气阻处于分离柱前端,分离柱内气体压力明显小于 $A \rightarrow C$ 法,使得柱内固相钯粉气体吸附饱和度大大降低。

3. 结果与讨论

3.1. 钯留滞法降气原理验证

为了验证钯留滞法降气的可行性,进行了原理性探索实验,让三级联的钯床在实温下吸气,再在实温下放气。钯床的外形尺寸为: $\phi 60 \text{ mm} \times 190 \text{ mm}$; 装钯量: 1#床: 721.45 g; 2#床: 788.68 g; 3#床: 738.11 g。实验结果如表 1 所示。结果表明,在上述实验条件下,产品气的提取率可达到 44.5%, 单次处理气量较现役钯热置换分离装置提高了约 8 倍,虽然,产品气中的气含量仍高于 1%, 但此实验验证了钯留滞法

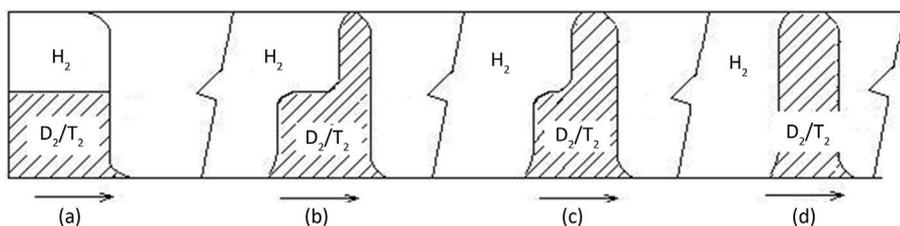


Figure 1. The principle of palladium retention method

图 1. 钯留滞法降气原理图

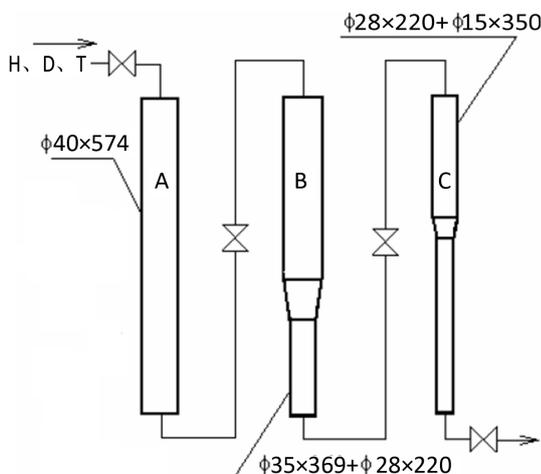


Figure 2. Scheme for the assembly of experimental setup

图 2. 钯留滞降气柱的级联方式示意图

Table 1. The original rational experiment results**表 1.** 原理性验证实验结果

| 次数 | | 同位素丰度, % | | | 气体量, L | 产品提取率, % | 处理时间, h |
|----|-----|----------|-------|-------|---------------|-------------|----------|
| | | C_H | C_D | C_T | | | |
| 1 | 原料气 | 4.18 | 75.92 | 16.30 | 106.67 | 44.5 | 6 |
| | 产品气 | 0.73 | 78.84 | 20.43 | 47.44 | | |
| | 尾气 | 5.43 | 81.54 | 13.03 | 59.23 | | |

Table 2. The experimental results to drop protium by palladium retention method**表 2.** 钯留滞结合置换色谱法降气实验结果

| 次数 | | 同位素丰度, % | | | 气体量, L | 产品提取率, % | 处理时间, h |
|----|-----|----------|-------|-------|--------------|-------------|----------|
| | | C_H | C_D | C_T | | | |
| 1 | 原料气 | 2.70 | 79.61 | 17.69 | 99.52 | 55.3 | 6 |
| | 产品气 | 0.88 | 79.04 | 20.08 | 53.98 | | |
| | 尾气 | 6.06 | 80.93 | 13.03 | 45.54 | | |
| 2 | 原料气 | 2.01 | 78.65 | 19.37 | 78.37 | 63.5 | 6 |
| | 产品气 | 0.75 | 76.54 | 22.71 | 49.10 | | |
| | 尾气 | 5.48 | 80.79 | 13.73 | 29.27 | | |
| 3 | 原料气 | 1.84 | 77.12 | 21.04 | 93.23 | 62.4 | 6 |
| | 产品气 | 0.80 | 75.85 | 23.35 | 57.57 | | |
| | 尾气 | 3.44 | 78.85 | 17.71 | 35.66 | | |

降低含氘氢同位素中的氘含量完全是可行的。同时, 此实验也验证了钯留滞法是和其它氢同位素分离方法是有本质区别的。

3.2. 钯留滞法降气实验

按照图 2 所示的钯留滞法降气流程, 进行了低氘含量的大量氘氘混合气体的降气处理实验。其实验过程为:

a) 将贮存于铀床中的待处理的低氘含量氘氘混合气体解吸并贮存于循环罐中;

b) 在循环泵的驱动下(压力控制在 0.25 MPa 左右), 解吸气通过常温下的钯分离柱, 分离后的产品气用铀床吸收;

c) 分离完毕后, 分别取样分析产品气和尾气, 计算其回收率。结果见表 2。

结果表明, 在相同的分离时间及装钯量下, 留滞法降气气体分离量较钯热置换法提高了约 7 倍, 产品气提取比例约为 50%~60%左右, 大大提高了工作效率, 提升了氢同位素气体分离规模。

4. 结论

1) 首次采用钯留滞法进行了低氘量的氘氘气体分离, 通过工艺参数的优化, 直接让净化气通过常温钯分离柱并用铀床直接吸收。在相同的处理时间及装钯量下, 分离能力提高了近 10 倍, 产品气的提取效率由 40%提高至 50%~60%左右, 降低了工作人员的操作强度, 提高了工作效率。

2) 采用钯留滞法, 能快速地将大量的低氘含量的氘氘混合气体中的氘降低使产品气中的氘含量小于

1%，使氙得到回收再利用，具有重要的军事和经济效益。

3) 钚留滞法主要在常温或较低温度的工况下运行，大大地降低了氢同位素的高温渗透，提升了装置运行的安全性，减少了氙的环境释放，为大规模氙氙分离系统的工程化研制提供了行之有效的方法。

致 谢

在实验过程中，711 室郭文胜、宋晓晶、齐连柱等进行了大量的氢同位素分析；712 室丁海城、扬鹏飞进行了大量器件的焊接；714 室张学森、苏温良进行了现场剂量检测，在此一并感谢！

参考文献 (References)

- [1] 蒋国强, 罗德礼, 陆光达, 孙灵霞. 氙和氙的工程技术[M]. 北京: 国防工业出版社, 2007: 11.
- [2] Lee, M.W. (1993) Hydrogen Isotope Separation Experience at the Savannah River Site (U): WSRC-MS-93-255. Westinghouse Savannah River Company.
- [3] Iwai, Y. and Yamanishi, T. (2002) H-D-T Cryogenic Distillation Experiments at TPL/JAERI in Support of ITER. *Fusion Engineering and Design*, **61-62**, 553-560.
- [4] 夏修龙, 王和义. 低温精馏氢同位素分离全回流模式研究[J]. 原子能科学技术, 2008, 42(4): 314-317.
- [5] Golubkov, A.N., Vedenev, A.I., Tenyaev, B.N., *et al.* (2000) Counterflow Hydrogen Isotope Separation Facility—Data on Tritium Activities. *Fusion Engineering and Design*, **49-50**, 825-829.
- [6] Ducret, D., Ballanger, A., Steimetz, J., *et al.* (2001) Hydrogen Isotopes Separation by Thermal Cycling Absorption Process. *Fusion Engineering and Design*, **58-59**, 417-421.
- [7] Lu, G.D, Jiang, G.Q. and Shen, C.S. (1995) An Experiment Investigation for Hydrogen and Deuterium Separation by Thermal Cycling Absorption Process. *Fusion Science and Technology*, **28**,672-675.
- [8] 钱晓静. 热循环吸附法分离氢同位素初步研究[D]: [硕士学位论文]. 绵阳: 中国工程物理研究院, 2006.

期刊投稿者将享受如下服务:

1. 投稿前咨询服务 (QQ、微信、邮箱皆可)
2. 为您匹配最合适的期刊
3. 24 小时以内解答您的所有疑问
4. 友好的在线投稿界面
5. 专业的同行评审
6. 知网检索
7. 全网络覆盖式推广您的研究

投稿请点击: <http://www.hanspub.org/Submission.aspx>

期刊邮箱: nst@hanspub.org