



核科学与工程·研究快报·

## 三塔级联水精馏系统分离含氚轻水中试实验研究

王君妍, 陈超, 李佳懋, 黎名昭, 侯京伟, 龚宇, 赵林杰, 杨茂, 岳磊,  
冉光明, 付小龙, 王鑫, 高娇, 黄洪文, 王和义, 肖成建

(中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 四川绵阳 621900)

**摘要:** 针对大体量含氚水分离净化的需求, 自主设计建设了三塔级联水精馏系统, 内部装填有自研高性能填料。在中试实验过程中, 以5~10 kg/h的处理量, 完成了吨量级含氚轻水的分离处理, 实现了贫化倍数高于2000倍、富集倍数高于20倍的分离效果。测得规整填料等板高度为14 cm, 散堆填料等板高度为4 cm, 运行过程各关键参数稳定, 全系统已稳定运行超过900 h, 可满足规模化工程放大的要求。

**关键词:** 水去氚化; 水精馏; 氚化水; 氢同位素分离; 等板高度

中图分类号: O628.1<sup>†</sup>

文献标志码: A doi: 10.11884/HPLPB202436.230451

## Pilot scale experiment of three-column cascade water distillation facility for tritiated water separation

Wang Junyan, Chen Chao, Li Jiamao, Li Mingzhao, Hou Jingwei, Gong Yu, Zhao Linjie,  
Yang Mao, Yue Lei, Ran Guangming, Fu Xiaolong, Wang Xin, Gao Jiao,  
Huang Hongwen, Wang Heyi, Xiao Chengjian

(Institute of Nuclear Physics and Chemistry, CAEP, Mianyang 621900, China)

**Abstract:** Aiming at the demand for separation and purification of tritiated water, a three-column cascade water distillation system has been independently designed and constructed, which is filled with self-developed high-performance packing. During the pilot scale experiment, the treatment of ton level tritiated water was completed at the processing capacity of 5–10 kg/h. The separation effect has been achieved at the detritiation factor higher than 2000 times and the enrichment factor higher than 20 times. The height equivalent to a theoretical plate of regular packing is 14 cm, and that of random packing is 4 cm. The key parameters vary in a minuscule range during the operation, and the entire system has been running stably for more than 900 h, which can meet the requirements of large-scale engineering application.

**Key words:** water detritiation, water distillation, tritiated water, hydrogen isotope separation, height equivalent to a theoretical plate

福岛核事故水排海问题引发公众广泛关注, 其重要原因之一就是核事故水中含有难以去除的放射性核素氚。除了核事故水, 核电站的运行和乏燃料后处理过程中也会产生大量的含氚废水, 但由于缺少合适的处理技术, 全球的核电体系大多将含氚废水直接稀释排海。但是含氚水及其蒸汽可以通过呼吸、渗入等方式进入人体并参与新陈代谢, 造成内照射, 对健康造成长期危害, 诱发癌症等疾病<sup>[1]</sup>。因此开发大规模含氚水处理技术, 对于促进核电行业尤其是内陆核电的发展, 保障核电设施运行安全和应急处置具有重要意义。

含氚废水的分离净化是分离技术领域极具挑战的难题, 其主要原因包括: 1) 分离对象 H<sub>2</sub>O 和 HTO 的动力学直径、沸点、扩散系数等理化性质极其接近, 在常压下, H<sub>2</sub>O 和 HTO 的分离系数仅为 1.03<sup>[2]</sup>, 常用的絮凝、过滤、反渗透等水处理技术无法实现分离; 2) 含氚水中氚含量极低, 以活度浓度在 10<sup>7</sup> Bq/L 量级的含氚水为例, 其氚含量仅 10<sup>-7</sup> 量级; 3) 含氚水处理量较大, 对于单一核电机组年处理量在千吨级, 而福岛核事故至今已产生近 140 万吨核事

\* 收稿日期: 2023-12-20; 修订日期: 2024-01-11

基金项目: 国家自然科学基金项目 (22209159)

联系方式: 王君妍, jyyang@caep.cn.

故水<sup>[3]</sup>。因此,含氚水体系性质差异极小、浓度差异极大、处理对象体量极大,对于分离技术的传质速率和效率都具有极高的要求。

现有可规模化处理含氚水的技术主要为催化交换、电解、低温精馏和水精馏四种,除水精馏外均涉及到大量氢气的操作,安全风险相对较大。而水精馏具有处理量大、运行可靠、无腐蚀性、不额外引入其他分离介质等优点,在大规模含氚水处理领域极具应用前景。水精馏分离原理为利用一定压力下  $H_2O$  和  $HTO$  间沸点的微小差异,通过连续多级气液平衡实现氚向塔顶的贫化和向塔釜的富集。为达到较好的分离效果,通常需要达到数百个平衡级,在实际应用过程中,则需要通过较高的填料装填高度或多塔级联实现。因此高性能填料制备方法和多塔级联控制技术的开发是实现水精馏技术工程化应用的基础和关键。

研究团队突破了高性能水精馏填料规模化制备及其处理工艺和操作参数耦合控制的多塔级联系统控制方法,通过化工过程模拟计算进行工艺流程建立及优化,自主设计、建设了中试水平三塔级联水精馏系统,系统处理能力为  $5\sim 10\text{ kg/h}$ ,其工艺流程示意图及系统实物图如图 1 所示。系统由前级塔和后级塔组成,塔内分别装有自研的规整填料和散堆填料。通过多参数耦合控制方法,保障塔内气液通量、温度、压力、液位、流量等参数基本稳定。基于此,研究团队开展了含氚水分离三塔级联水精馏系统中试实验,实验共分为三个阶段进行,第一阶段( $0\sim 190\text{ h}$ )为全回流阶段,前级塔和后级塔分别以不进料且不采出的全回流方式建立塔内的初始浓度分布;第二阶段( $190\sim 290\text{ h}$ )为前级塔富集阶段,以  $5\text{ kg/h}$  的处理量向前级塔进行连续进料,同时由前级塔塔顶采出贫氚水  $5.0\text{ kg/h}$ ,随进料时间增加,前级塔塔顶采出的贫氚水和塔釜中氚活度浓度持续增加,后级塔仍保持全回流;待前级塔塔釜达到目标值后进入第三阶段( $> 290\text{ h}$ ),仍以  $5\text{ kg/h}$  的处理量向前级塔进行连续进料,由前级塔塔顶采出  $4.75\text{ kg/h}$  贫氚水,前级塔塔釜采出  $1.0\text{ kg/h}$  至后级塔,同时后级塔塔顶采出  $0.75\text{ kg/h}$  至前级塔,后级塔塔釜采出为  $0.25\text{ kg/h}$  浓氚水,该过程中贫化倍数基本稳定,富集倍数持续增加至稳定状态。全过程实验结果如图 2 所示,运行稳定状态下,达到将活度浓度为  $7.8\times 10^5\text{ Bq/L}$  的含氚水贫化 2 000 倍,富集 20 倍的分离效果。实验后期以  $8.5\sim 10\text{ kg/h}$  处理量对含氚水进行处理,以考察系统的运行负荷及稳定性。

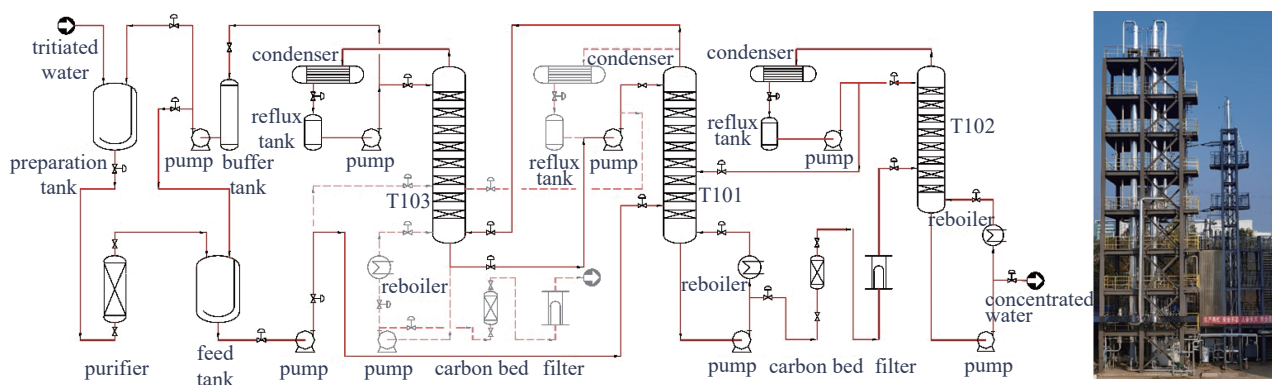


Fig. 1 Three-column cascade water distillation facility and its technological process flowsheet

图 1 三塔级联水精馏系统工艺流程示意图及系统实物图

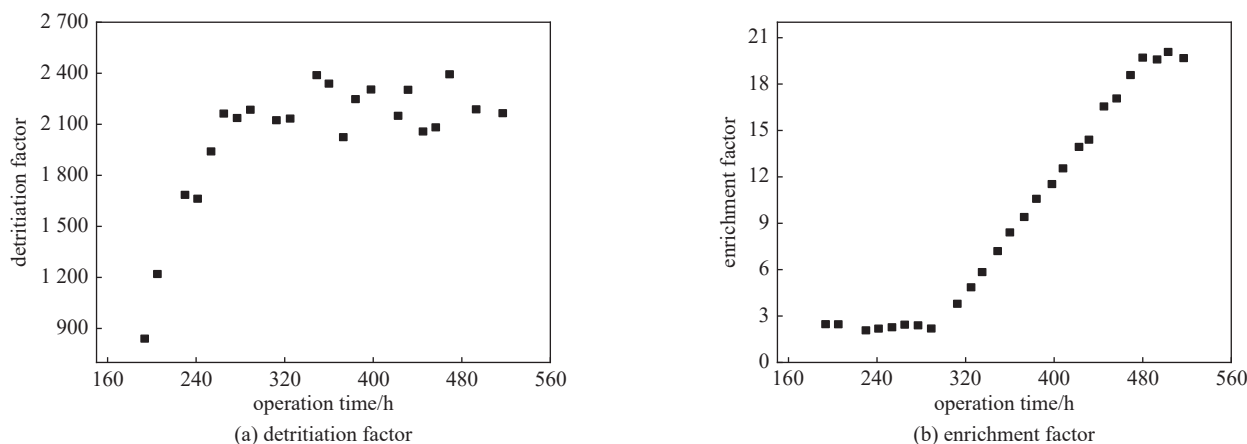


Fig. 2 Separation efficiency of the three-column cascade water distillation facility

图 2 三塔级联含氚水分离中试系统分离效果

在精馏过程中,一级理论板是指离开塔板的气液两相组成上互成平衡、温度相等的理想塔板,与一级理论塔板传质作用相当的填料层高度被定义为等板高度(HETP),是评价塔内填料分离性能的重要指标<sup>[4]</sup>。对于该三塔级联水精馏系统,据 5 kg/h 的处理量下稳定运行状态数据可以计算得到,前级塔 HETP 为 14 cm,较俄罗斯 RRSP 填料性能提高 20%<sup>[5]</sup>;后级塔等板高度为 4 cm,较国际水平提升 28%<sup>[6-7]</sup>。运行过程中关键参数稳定,温度波动范围不超过 0.3 ℃,压力波动范围不超过 0.5 kPa,液位波动范围不超过 1%,流量波动范围不超过 5%。三塔级联合含氚水分离中试系统现已稳定运行超过 900 h,累计处理量达到数吨量级。目前取得的贫化及浓缩技术指标已可以满足现有核电站及内陆核电站含氚废水达标排放的需求,亦可满足福岛核事故水处理及类似核事故应急处置的要求。

#### 参考文献:

- [1] 李圣日,崔凤梅,刘玉龙,等. 氚水致癌、致突变和致畸效应研究进展[J]. 辐射防护通讯, 2019, 39(5): 32-35. (Li Shengri, Cui Fengmei, Liu Yulong, et al. Advances in research on carcinogenic, mutagenic and teratogenic effects of tritiated water[J]. Radiation Protection Bulletin, 2019, 39(5): 32-35)
- [2] Yamamoto I, Kaba A, Kanagawa A. H<sub>2</sub>O-HTO isotope separation by distillation of water—a dynamics of HETP of SUS Dixon ring in a small packed column[J]. *Fusion Engineering and Design*, 1989, 10: 315-318.
- [3] 林武辉,余克服,杜金秋,等. 日本福岛核废水排海情景下海洋生态环境影响与应对[J]. 科学通报, 2021, 66(35): 4500-4509. (Lin Wuhui, Yu Kefu, Du Jinqu, et al. Consequences of marine ecological environment and our preparedness for Fukushima radioactive wastewater discharge into the ocean[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2021, 66(35): 4500-4509)
- [4] 贾绍义,柴诚敬. 化工传质与分离过程[M]. 2版. 北京: 化学工业出版社, 2007. (Jia Shaoyi, Chai Chengjing. Mass transfer and separation process of chemical engineering[M]. 2nd ed. Beijing: Chemical Industry Press, 2007)
- [5] Magomedbekov E P, Belkin D Y, Selivanenko I L, et al. Characteristics of the mass transfer of structured rolled ribbon-screw packings in isotope exchange columns during vacuum water distillation[J]. *Theoretical Foundations of Chemical Engineering*, 2016, 50(4): 398-403.
- [6] Magomedbekov E P, Belkin D Y, Selivanenko I L, et al. Mass-transfer characteristics of spiral prismatic packings in isotope exchange columns of vacuum water distillation[J]. *Theoretical Foundations of Chemical Engineering*, 2016, 50(5): 684-689.
- [7] Zhang Weijiang, Zhang Bing, Shi Zhiqiang. Study on hydrodynamic performance and mass transfer efficiency of nickel foam packing[J]. *Procedia Engineering*, 2011, 18: 271-276.