

折流板环形脉冲柱用作 Purex 工艺 1A 接触器研究

杨欣 戴为智

李文圣 王健

(清华大学核能技术设计研究院, 北京, 100084)

(兰州核燃料厂, 732850)

该研究跟踪国际先进水平, 首次在我国进行折流板环形脉冲柱应用研究。采用 5cm 柱径, 板间距 2cm, 开孔率 25%, 正弦脉冲波。水力学性能研究表明, 液泛通量高达 2.7cm/s, 可采用 $V_0(1-X) + V_d/X = V_0(1-X)e^{KX}$ 关联分数相存留分数。其 K 值为 4.5-6, 大于零, 为 II 型柱; U 传质结果表明, 理论级当量高度为 70cm, 当在振幅 $a = 2\text{cm}$, 频率 $f = 1.5\text{s}^{-1}$ 的脉冲条件下操作时, 其理论级当量高度将降至 50cm。同脉冲筛板柱的对比试验结果表明, 其传质性能优于脉冲筛板柱。与相同工艺条件下的串级结果对比, 在 $a = 2\text{cm}$, $f = 1.5\text{s}^{-1}$ 条件下, 200cm 的萃取柱可达 4 个理论级。

关键词 核燃料 后处理 萃取 环形柱 折流板

脉冲筛板萃取柱是核化工中广泛采用的 1 种设备, 但在 Purex 流程一循环的 1A 柱中, 由于强放料液的辐照, 萃取剂发生降解, 出现大量的界面污物, 同时由于 1A 柱的料液来自于首端过程, 夹带有固体颗粒, 这些都严重影响了共去污柱的操作性能。鉴于多孔板脉冲柱的优良工艺性能, 同时为克服该柱有些方面的不足, 法国原子能总署^[1]设计并开展了折流板式萃取柱的研究, 并应用于后处理厂的共去污过程。此外, 日本核燃料服务有限公司佐藤等也进行了折流板环形脉冲萃取柱的性能研究。但研究的数据报道不详, 有待进一步深入研究。

鉴于环形结构的萃取柱在核燃料后处理中是生产能力大并能保证临界安全的萃取设备, 加之折流板的选用不仅防止了沟流、增加了操作的稳定性, 更可以处理含有固体颗粒的物料, 放大性能优越, 应用于后处理厂一循环共去污过程将有良好的前景。本文将研究柱中两相的流体力学性能和传质性能, 以期对柱的设计提供参考依据。

1 实验部分

1.1 主要设备

2 吋(1 吋 = 2.54cm)玻璃折流板脉冲萃取柱。柱径: 5cm; 板段高: 200cm; 板段结构: 自由截面为 25%, 板间距为 2cm。

收稿日期: 1994-11-15

折流板环形脉冲柱结构和流动状态示意图分别示于图1和2。

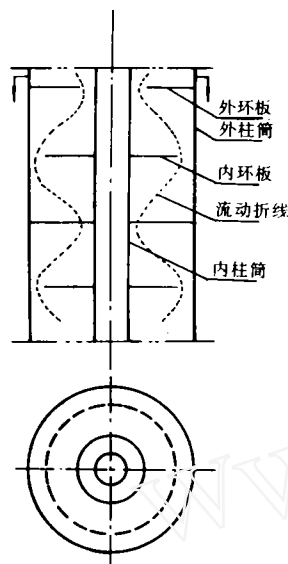


图1 结构简图

Fig.1 Schematic structure diagram

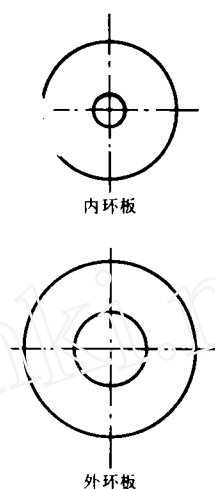


图2 折流板

Fig.2 Baffle plate

1.2 实验体系

实验体系为 HNO_3 -30% TBP(煤油)体系和 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ - HNO_3 -30% TBP(煤油)体系。

2 实验结果与讨论

2.1 环形折流板柱水力学性能研究

2.1.1 HNO_3 -30% TBP(煤油)水力学性能试验 a. 有机相连续水力学试验 图3示出了折流板脉冲柱的液泛特性曲线。在有机相连续时,液泛通量较大。在低频率、低振幅时,最大通量可达2.7cm/s;随着频率增加,分散相液滴变小,通量有所下降,但仍可达1.5cm/s,这与文献[2,3]的结论是一致的。b. 水相连续水力学试验 在水相连续时,由于不锈钢板浸润水相(连续相),使柱子操作在I型柱,通量明显下降,但分散情况非常好。

2.1.2 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ - HNO_3 -30% TBP(煤油)水力学性能试验 两相流动特性的关联用 $V_s = V_c / (1 - X) + V_d / X = V_0 (1 - X) e^{KX}$ 两相流动特性关联式^[4]对折流板环形柱的两相流动进行关联,式中: V_s 为滑动速度($\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$); V_c 为连续相流速($\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$); V_d 为分散相流速($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$); X 为分散相相留分数(%); V_0 为特性速度($\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$); K 为分散-聚合系数。得出 K 值为4.5-6,在多数情况下取得了满意的结果。对于同一脉冲强度,利用 $\ln[V_s / (1 - X)]$ 对 X 作图,获得了几组近于平行的直线。工艺条件为振幅 $a = 2\text{cm}$,流比(水相/有机相) $R = 1/2$ 的关联曲线示于图4a,其 K 值为4.5;特性速度随频率增大而减小,其值范围为1.68-0.39cm/s。工

艺条件为 $a = 2\text{cm}$, $R = 1/3$ 的关联曲线示于图 4b, 其 K 值为 4.5; 同样, 特性速度随频率增大而减少, 其值范围为 $1.43 - 0.46\text{cm/s}$ 。其它条件下 K 值为 4.5 - 6。一般来说, 当分散相浸润筛板时, $K > 0$ 称为 II 型柱操作, 此时特性速度 V_0 随存留分数的增加而增加。分散相对筛板的浸润性越好, K 值就越大, 表明分散相液滴聚结能力越强, 本试验的 K 值在液滴分散-聚合状态的较佳范围内。

2.2 环形折流板柱传质性能实验

$\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2\text{-HNO}_3\text{-30\% TBP}$ (煤油) 体系的传质性能是对新型柱的关键性能检验。其传质单元高度是人们所关心的。在 5 个条件下的传质实验中, 测定传质单元高度和理论级数, 采用了下列 3 种方法。

2.2.1 数学模型计算法 对 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2\text{-HNO}_3\text{-TBP}$ (煤油) 体系的平衡数据已有文献做了充分的报道。本文采用的下述经验公式^[5]是在大量实验数据的基础上回归出来的:

$$c(\text{NO}_3^-) = 2X_u + X_H$$

$$Q = X_u \cdot c(\text{NO}_3^-)$$

$$Q \leq 0.06$$

$$R_u = 4.0321 \cdot c(\text{UO}_2^{2+})^{-0.0896} \cdot c(\text{NO}_3^-)^{-0.7823}$$

$$0.06 < Q \leq 2$$

$$R_u = 0.0357 + 0.4292/Q - 0.0506/Q^2 + 0.0042/Q^3 - 0.0001/Q^4$$

$$Q > 2$$

$$R_u = 0.5036c(\text{UO}_2^{2+})^{-0.9085} \cdot c(\text{NO}_3^-)^{-1.9719}$$

$$R_H = 0.0454^{0.5857} R_u X_H^{-0.3524}$$

这样, $Y_u = R_u \cdot Q$

$$Y_H = R_H \cdot X_H \cdot c(\text{NO}_3^-)$$

上式中, X_u 和 X_H 分别为水相 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ 和 HNO_3 浓度, mol/l; $R_H = \bar{K}_{mH} \cdot c(\text{TBP})^2$; $R_u = \bar{K}_u \cdot c(\text{TBP})^2$; Y_u 为有机相中 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ 浓度, mol/l; Y_H 为有机相中 HNO_3 浓度, mol/l。

用上述经验公式编写计算机程序, 则每知 1 个 X_u 和 X_H , 就可以算出 1 个 Y_u 和 Y_H 。理论级当量高度的计算是通过计算机利用试差

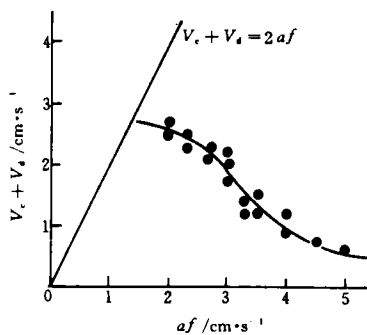


图 3 液泛特性曲线
Fig. 3 Flooding performance curve

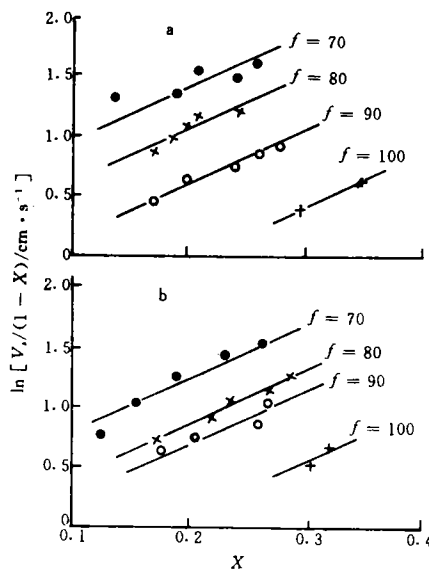


图 4 $\ln[V_s/(1-X)]$ 与 X 的关系曲线
Fig. 4 A plot of $\ln[V_s/(1-X)]$ against X
a— $a = 2\text{cm}$, $R = 1/2$; b— $a = 2\text{cm}$, $R = 1/3$

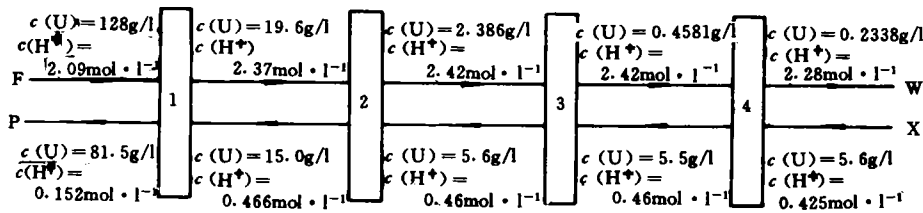


图5 串级实验结果
Fig.5 Cascade test

法得出的。计算程序是用两相进口 U、酸浓度以及流比和假设的理论级数,计算了逐级的两相出口浓度以及分配系数。根据最后一级的水相出口浓度值来判断假设的理论级数是否满足结果要求,如不满足,则再假设 1 个理论级数计算出 1 个出口浓度与实验结果比较,直至满足要求为止。根据数学模型计算法计算的 9 组实验的理论级当量高度为 50 - 70cm,其值小于国外报道的理论级当量高度为 100cm 的数据。

2.2.2 与柱子运行工艺条件相同的串级数据比较确定柱子的理论级数和传质单元高度 流比(水相/有机相) $R = 1:1.49$ 的串级实验结果示于图 5。该串级实验的水相出口浓度为 0.2338g(U)/l,与它工艺条件完全相同的折流板柱($a = 2\text{cm}, f = 1.5\text{s}^{-1}, R = 1:1.49$)的水相出口浓度实验值为 0.2243g(U)/l,可以看出,此条件下柱子的理论级数可达到 4 级。

2.2.3 把折流板换成标准筛板进行对比实验 折流板环形柱的工艺条件为: $a = 2\text{cm}, f = 1.5\text{s}^{-1}$,标准板的工艺条件为: $a = 2.5\text{cm}, f = 1.5\text{s}^{-1}$ 。两者浓度剖面结果比较示于图 7。从图中可以看出,折流板的传质效果优于标准板。

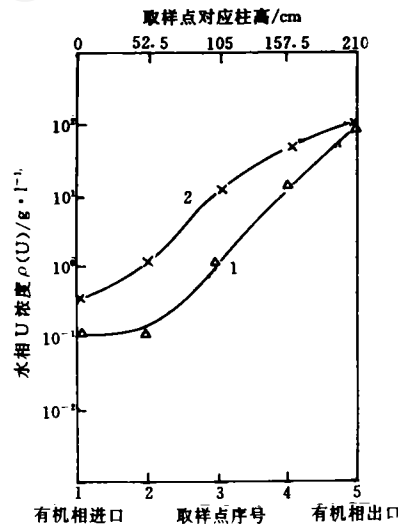


图6 浓度剖面
Fig.6 Concentration cross-section
1——折流板; 2——标准板

3 结论

- 1) 折流板环形脉冲萃取柱结构简单,操作方便,是临界安全的萃取设备。
- 2) 折流板环形脉冲萃取柱是 1 种分散-聚合型柱型,萃取柱两相流动特性可采用 $V_c/(1-X) + V_d/X = V_0(1-X)e^{KX}$ 来关联,得到 $K > 0$,属 II 型柱。
- 3) 该柱的液泛通量较大,操作稳定,操作弹性大。
- 4) 折流板环形柱在 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2\text{-HNO}_3\text{-30\% TBP}$ (煤油)体系下,理论级当量高度为 70cm,在较优的条件下操作时,其理论级当量高度可降至 50cm。
- 5) 在条件完全相同的情况下,折流板环形柱的传质性能优于标准筛板圆形柱。
- 6) 4 级的串级实验证明,在 $a = 2\text{cm}, f = 1.5\text{s}^{-1}$ 时,2m 的萃取柱可达 4 个理论级。

参 考 文 献

- 1 张泉荣,王瑞偏,公锡泰,等.脉冲筛板萃取柱流体力学性能的研究.核科学与工程,1984,3:233.
- 2 秦 炜,戴猷元,雷 夏,等.环形脉冲萃取柱的传质性能研究.核科学与工程,1989,4:350.
- 3 张泉荣,王瑞偏,杨祖辉.筛板结构参数对脉冲传质的影响.核科学与工程,1989,2:143.
- 4 张泉荣,王瑞偏,杨祖辉.脉冲筛板萃取流动特性和液泛研究.核科学与工程,1986,4:331.
- 5 李光鸿,刘秋生,王仍陶,等. $\text{UO}_2\text{-HNO}_3\text{-H}_2\text{O}$ -30% TBP-240 号煤油萃取过程的数学模型.核化学与放射化学,1979,1:42.

THE STUDY OF AN ANNULAR PULSED COLUMN WITH BAFFLE PLATE USED AS THE 1A CONTACTER IN PUREX PROCESS

YANG XIN DAI WEIZHI

LI WENSHENG WANG JIAN

(Institute of Nuclear Energy Technology,
Tsinghua University, Beijing, 100084)

(Lanzhou Nuclear Fuel Plant, 732850)

ABSTRACT

The first development of an annular pulsed column with baffle plate in China follows the cracks of international advanced level, which adopts 5cm-dia. of column, 2cm-distance between plates, 25%-opening hole, and sinusoidal wave. The results of hydraulic tests show that when flooding velocities of the column achieve 2.7cm/s, it is able to adopt $V_c/(1-X) + V_d/X = V_0(1-X)e^{KX}$ to be related hold-up of dispersing phase. When K value is 4.5-6, more than zero, it belongs to II-type column. The results of uranium transfer tests show that HETS is about 70cm. If the column is operated under pulse condition of $a = 2\text{cm}$, $f = 1.5\text{s}^{-1}$, HETS can be reduced to 50cm. According to the results of comparing tests with pulsed sieve-plate column, mass transfer performance of annular column is better than that of sieve-plate one. Judging from the results of cascade tests under the same technological conditions, an equivalent theoretical stage number of 4 is obtained in an annular column of 200 cm effective height with puls intensity of $a = 2\text{cm}$, $f = 1.5\text{s}^{-1}$.

Key words Nuclear fuel Reprocessing Extraction Annular column Baffle plate