

# 我国聚变堆氚增殖循环技术最新研究进展与展望

彭述明, 赵林杰, 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:** 氚增殖循环(也称外循环)是实现聚变堆氚燃料自持的关键。氚增殖循环由增殖剂产氚、提氚、氚同位素分离、氚分析检测等多个单元组成,各单元之间相互关联,缺一不可。依托国家重点研发计划“CFETR增殖包层氚提取与测量工程技术”项目,近期在多个氚增殖技术研究中取得了新进展。主要包括:在中国绵阳堆上在线演示了增殖包层百居里级在线产氚与提氚;开展了1:1规模的增殖包层氚提取与氚同位素分离氚模拟实验,动态提取效率达99.1%,停堆提取效率达99.95%,氚同位素分离浓缩倍数达104倍,回收效率达99.26%;开展了基于水精馏的含氚水处理中试试验,贫化大于2000倍,浓缩大于20倍。基于此,对未来聚变堆的氚工厂设计和建设进行了展望。

**关键词:** 氚增殖循环;氚燃料自持;氚增殖技术;氚工厂

中图分类号: TL642; O615.11

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2024)S2-0284-12

doi: 10.7538/yzk.2024.youxian.0365

## Tritium Breeding Technology for Fusion Reactor in China

PENG Shuming, ZHAO Linjie, XIAO Chengjian

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

**Abstract:** In the development roadmap of magnetic confinement fusion energy of China, a fusion engineering test reactor named China Fusion Engineering Test Reactor (CFETR) was proposed. CFETR aims to bridge the gap between International Thermonuclear Experimental Reactor (ITER) and demonstration reactor (DEMO). One of the main goals of CFETR is to achieve tritium fuel self-sustaining, with tritium breeding ratio exceeding 1.0. In order to achieve tritium fuel self-sustaining and safe tritium disposal, it is very important to establish a closed tritium fuel cycle. Therefore, a tritium plant composed of various tritium treatment systems is a necessary condition for the successful operation of CFETR. According to the overall group planning, in the CFETR engineering design stage, it is necessary to give the detailed engineering conceptual design and engineering feasibility verification of CFETR tritium plant system. In the middle of the 'Thirteenth Five-Year Plan', due to the engineering design requirements of tritium plant of CFETR, three major key technical research projects related to tritium plant were deployed in the 'National Research Project on the Development of Magnetic Confinement Nuclear Fusion Energy'. Tritium plant mainly consists of three loops: the inner cycling loop, the outer cycling loop and the confinement and safety loop. The main task of the outer cycling loop of tritium plant is to realize tritium breeding in the breeder blanket, and extract and separate the

breeding tritium for continuous tritium supply. The outer cycling loop consists of several units, including tritium production by breeder, tritium extraction, hydrogen isotope separation and tritium measurement, which are interrelated and indispensable. Relying on the national key research and development plan 'Tritium Extraction and Measurement Engineering Technology for CFETR Breeding Blanket', new progress was made in the research of several tritium breeding technologies. It mainly includes the following aspects. An in-pile tritium production and in-situ tritium extraction demonstration experiment with a total activity level of approximately one hundred curies has been done on CMRR. The 1 : 1 scale demonstration experimental of tritium extraction and hydrogen isotope separation in breeding blanket has been carried out with dynamic extraction efficiency of 99.1%, shutdown extraction efficiency of 99.95%, hydrogen isotope separation concentration multiple of 104 times and recovery efficiency of 99.26%. A pilot experiment of tritium-containing water treatment based on water distillation has been carried out, with dilution exceeding 2 000 times and concentration exceeding 20 times. Based on this, the design and construction of tritium plant of fusion reactor in the future are prospected.

**Key words:** outer cycling loop; tritium fuel self-sustaining; tritium breeding technology; tritium plant

聚变能源是人类社会未来的理想能源。聚变反应堆以氦氦为燃料,氦自持是未来聚变堆商业应用的前提。大规模氦氦燃料循环技术是发展聚变能源的核心技术之一,是聚变堆安全运行和实现氦自持的重要保障<sup>[1]</sup>。

聚变堆中实现氦氦燃料循环的单元称为氦工厂,包括氦氦外燃料循环系统、氦氦内燃料循环系统及氦包容与安全防护系统3部分<sup>[2-3]</sup>,核心功能分别为:聚变堆增殖包层中氦的增殖、提取与分离,以持续供氦;对聚变腔室等离子体排灰气中氦的回收与分离,以实现未燃烧氦氦的回收再利用;对氦的安全封闭和流出物除氦,以实现氦的有效包容防护,控制氦的排放,确保环境、人员安全。

从20世纪七八十年代开始,美、日、欧先后建立大型氦工艺实验室或综合研究设施<sup>[4-6]</sup>,针对聚变堆建设需求开展了长期较大规模的氦氦燃料循环工艺研究和验证,最大投氦量达到百克量级。几十年来,积累了丰富的氦操作经验,基本掌握了聚变堆氦工厂内燃料循环系统设计的核心技术,并承担了国际热核聚变实验堆(ITER)氦工厂系统绝大部分采购包任务。中国是ITER计划成员国之一,但未参与ITER氦工厂的设计与建造任务。

“十三五”中期,国家科技部重点研发计划

“政府间国际科技创新合作专项磁约束核聚变能发展研究专项”以中国聚变工程试验堆(CFETR)氦工厂工程设计需求为牵引,部署了3个重大关键技术攻关项目。其中“CFETR增殖包层氦提取与测量工程技术研究”项目由中国工程物理研究院核物理与化学研究所牵头,联合国内多家单位共同承担。本文重点介绍项目在产氦技术、提氦技术、氢同位素分离技术及氦测量技术等方面取得的最新进展,并基于当前的研究现状对聚变堆氦增殖技术的发展趋势进行展望。

## 1 重要进展

### 1.1 产氦技术

聚变堆是通过在包层中原位产氦来实现氦燃料的增殖。而聚变堆的辐照条件很复杂,包层不同位置的材料将运行在不同的中子能谱、中子通量和辐照温度下,因此没有一种辐照装置能完全模拟聚变堆氦增殖包层中的辐照场。目前主要采用裂变反应堆或加速器来开展辐照产氦科学研究和材料性能考核。

#### 1) 产氦材料

氦增殖剂是聚变堆氦增殖包层的核心功能材料之一。中国工程物理研究院核物理与化学研究所立足于聚变能源氦增殖剂材料的发展需求,发展了冷冻干燥法、熔融喷雾法、滚动成型法等多

种规模化生产技术。基于 ITER HCCB TBM-set 材料工程化认证的主流生产工艺——熔融喷雾法,建立了一体化生产装置(图 1),优化了生产流程,实现了物料经混合研磨后,一次性进料、高温熔融、喷雾滴落成型,实验室年产能达到吨量级。

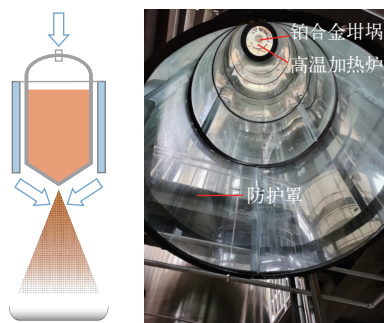


图 1 高温熔融喷雾原理与吨量级氚增殖剂小球制备装置

Fig. 1 Principle of melt spray and preparation device of ton for tritium breeder pebbles

基于  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  陶瓷增殖剂,设计与制备了性能优异的固溶体型新型氚增殖剂<sup>[7-10]</sup>,跟踪研究了复相陶瓷<sup>[11-12]</sup>,获取了其离线氚释放行为;研究了  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  小球的热稳定性及晶粒长大机理<sup>[13]</sup>;发展和完善了陶瓷增殖剂的释氚模型,如图 2 所示<sup>[14-15]</sup>,自主开发了陶瓷增殖剂释氚行为模拟软件(Sim-TRACE)。

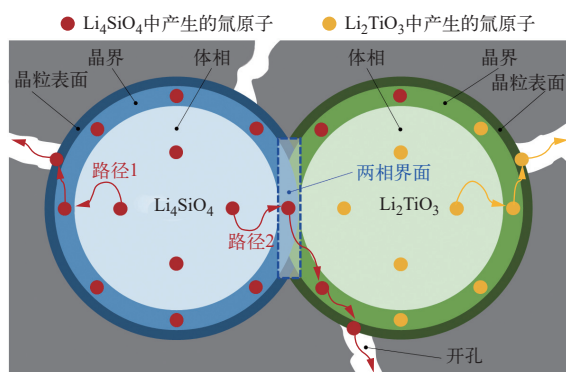


图 2  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ - $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  复相陶瓷释氚模型

Fig. 2 Tritium release model for biphasic  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ - $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  ceramics

开展了氚增殖剂体系化标准研究,从产品技术要求和测试方法两方面,建立了固态氚增殖剂标准体系,编制的两项核聚变采购包专项标准《氚增殖剂 正硅酸锂小球》和《氚增殖剂 钛酸锂小球》已于 2021 年 7 月 15 日发布,2021 年 8 月

12 日正式实施。2022 年 5 月编制完成《氚增殖剂 球床热工力学测试方法 第一部分:力学》,目前正在报批。

## 2) 反应堆在线产氚技术

在没有大型聚变中子源的情况下,在裂变反应堆上开展在线产氚实验是有效评估氚增殖剂氚释放参数的有效手段。为此,在中国绵阳研究堆(CMRR)上,自主设计并研制了集产氚、提氚和在线换料等功能于一体的反应堆在线产氚实验平台<sup>[16]</sup>,解决了颗粒流在复杂组件内的滞留,以及小管道、远距离、高位差输送的阻塞问题,实现了多种产氚材料在线换料,换料率达 99%。该平台分为两个阶段来实施:第一阶段主要用于固态氚增殖剂材料的在线辐照和氚释放行为考核,主要技术指标为产氚量 1 Ci/d,增殖剂最大装载量 500 g;第二阶段主要是实现固态氚增殖包层在线氚提取技术的评估,主要技术指标为产氚量 100 Ci/批次(7~10 d),增殖剂最大装载量 1 000 g。

在第一阶段,针对我国候选氚增殖剂材料开展了一系列在线氚释放行为(in-pile tritium release experiment, IPTRE)研究<sup>[17-18]</sup>,发展了平衡态氚滞留评价方法。该方法通过在线实验结合离线实验获得氚增殖剂在不同温度下的氚滞留量。首先,在线氚释放过程中通过瞬时变温的方法获得变温前后的氚滞留变化;然后,在某一温度下停堆后,对换料出来的增殖剂进行氚滞留量测量,获得停堆温度下的氚滞留量;最终获取不同温度下的氚滞留量。利用该方法获得了 CFETR 候选氚增殖剂  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  和  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  在不同温度下的氚滞留等在线产氚性能参数,并与在荷兰高通量反应堆上开展的系列辐照产氚实验(EXOTIC)结果进行了对比,其中候选氚增殖剂氚滞留时间随温度的变化如图 3 所示。由图 3 可见,自研  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  小球氚滞留时间与 EXOTIC-9 基本一致,但比 EXOTIC-8 偏大,这可能与增殖剂小球的微观结构(开孔率等)密切相关。

在第二阶段,针对聚变堆氚增殖包层和氚工厂工程设计的要求,突破了低温吸附结合多维度变温解吸的一体化耦合技术<sup>[19]</sup>(通过低温深冷吸附,氢同位素气体吸附于变径色谱柱中,氦气通过径向分离柱后回收,然后采用二维控温的方式依次解吸径向与轴向分离柱,造成同位素组分浓度

在吸附分离柱上空间和时间维度分布的差异,进而实现分别回收)、氢氦分离与氦储存一体化<sup>[20]</sup>、高浓度氦的实时测量和监测、催化氧化结合三级净化吸附、气动装卸料结构设计结合正反向换料工艺<sup>[21]</sup>等技术,最终在中国绵阳研究堆上,建立了百居里级反应堆增殖包层在线产氦、提氦的全流程实验平台<sup>[22]</sup>,开展了增殖包层载气中在线氦提取与冷却剂中氦回收外循环双回路氦提取技术的在线验证,实现了百居里级氦的在线提取与储存,验证了增殖包层在线产氦与提氦的技术可行性<sup>[23-24]</sup>。在线提氦与储氦曲线如图4所示。

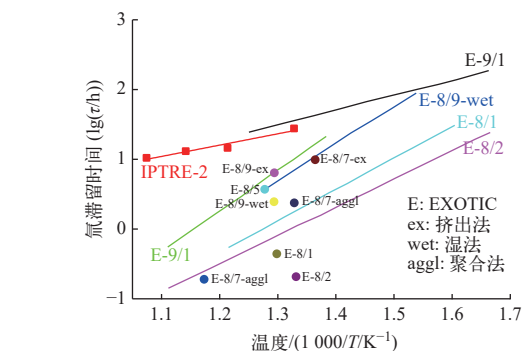
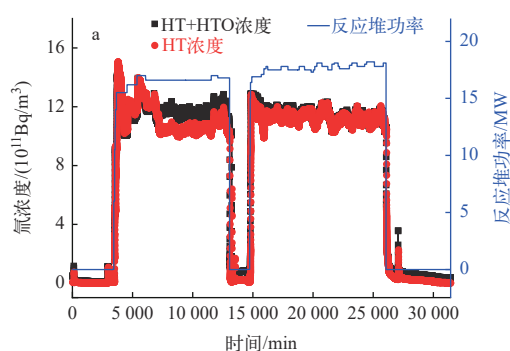


图3 候选氦增殖剂  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  滞留时间随温度的变化

Fig. 3 Variation of tritium residence time of candidate tritium breeder  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  with temperature

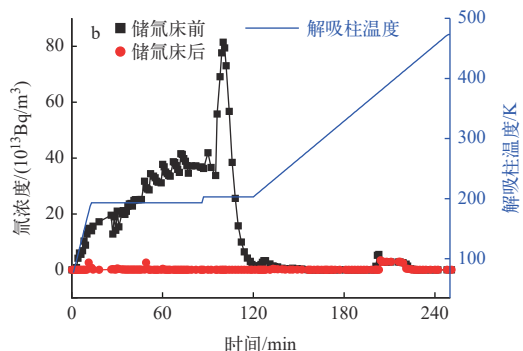


图4 反应堆在线提氦(a)与储氦曲线(b)

Fig. 4 Curves of on-line tritium extraction (a) and tritium storage (b)

综上所述,模块化、紧凑型设计的百居里级反应堆在线产氦实验平台,实现了增殖包层氦提取技术在线评估,并为未来在商用裂变堆上进行在线产氦与氦回收提供了新思路。同时该装置采用气动方式实现增殖剂小球的在线装料和卸料,可实现多种增殖剂材料的考核,还为未来聚变堆增殖包层增殖剂材料和中子倍增剂材料的装卸料提供了新路径。

### 3) 加速器中子辐照产氦技术

在中国工程物理研究院的直流/脉冲两用型的PD-300中子发生器(2#束线的最高中子源强度可达到  $3 \times 10^{10} \text{ s}^{-1}$ ,在40 h的长时间辐照下平均产额可保持在  $1.5 \times 10^{10} \text{ s}^{-1}$ )上,利用D-T中子模拟聚变中子源,自主设计并建成氦冷及水冷两种概念氦增殖包层缩比模块的中子学实验平台,两种概念的缩比模块分别由核工业西南物理研究院和中国科学院合肥物质科学院等离子体物理研究所提供。连续开展了近百小时的加速器中子辐照产氦实验,分别在3层硅酸锂产氦区和2层钛酸锂产

氦区,利用碳酸锂圆片探测器成功获得了氦浓度分布,如图5所示,氦浓度分布整体呈中心高边缘弱、前端高后端弱的趋势,规律自洽。实验氦测量总不确定度约为4.80%。测试平台的建成为后续CFETR包层的持续优化、测量技术水平的持续提升,以及包层中子学实验数据库的丰富奠定了平台和技术基础。

### 1.2 提氦技术

对于固态包层,氦增殖剂材料中产生的氦首先需要通过吹扫气载带至包层外,然后再从吹扫气中进行提取和回收。吹扫气也称为载气,一般采用低压(0.1~0.3 MPa)氦气(He),并在其中添加一定比例氢气( $\text{H}_2$ )。载气中添加氢气的目的是提高固态增殖剂的释氦速率,同时提高载气中氦气(HT)的比例,有利于氦的有效回收。在添加一定比例氢气的氦载气条件下,固态增殖剂中产生的氦大部分(约90%以上)以HT的形式释放,少部分以氦水(HTO)的形式释放。由于包层的温度较高,包层中产生的氦(HT比HTO易渗透)很容易

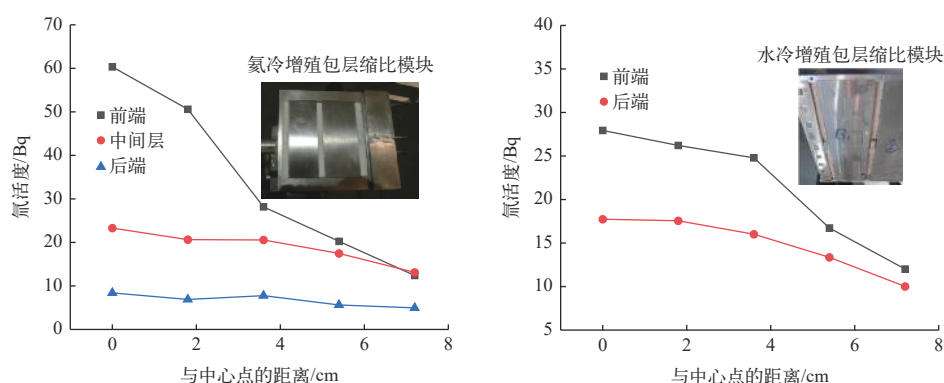


图5 加速器中子辐照下缩比模块中的氚浓度分布

Fig. 5 Tritium concentration distribution in scaled module under neutron irradiation of accelerator

以原子形态渗透的方式进入包层一次侧冷却剂, 然后通过热交换器或蒸汽发生器进入二次侧冷却剂, 最终可能流入到环境中。为了减少氚向环境的释放, 并尽可能地回收渗透的氚, 须对包层一侧冷却剂中的氚进行处理和回收。

#### 1) 载气中氚的提取

载气中氚提取分为两步: 第1步, 从载气中提取水蒸气( $\text{HTO}/\text{H}_2\text{O}$  或  $\text{Q}_2\text{O}$ ); 第2步, 从载气中提取氢气( $\text{HT}/\text{H}_2$  或  $\text{Q}_2$ )。  $\text{Q}_2\text{O}$  和  $\text{Q}_2$  的提取均采用吸附-解吸工艺。对于  $\text{Q}_2\text{O}$  的提取, 采用相对成熟的常温分子筛床(AMSB), 工作温度为室温( $25^\circ\text{C}$ )。  $\text{Q}_2$  的提取采用低温分子筛床(CMSB), 工作温度为  $77\text{ K}$  (即液氮温度)。由于载气是循环使用, 因此为了实现氚连续提取, AMSB 和 CMSB 均配置两套, 一套用于吸附, 另一套用于解吸再生。解吸出的氢气采用成熟的钯合金膜分离技术, 获得的高纯氢气可直接送入氢同位素分离系统。

针对大规模提氚载气中微量氢同位素提取的工程技术问题, 设计了一体化氢氦分离与氢同位素浓缩的双功能耦合系统, 实现氢氦分离和重同

位素气体的预浓集, 较好地简化了现有载气提氚的复杂工艺, 减轻了氚工厂氢同位素分离系统的负荷。增加螺旋预冷单元解决了大流量造成的床体吸附能力弱的技术难题(对  $0.1\%$  的氦中氢的吸附能力从  $3.2\text{ mL/g}$  提升至  $4.4\text{ mL/g}$ ), 通过蜂窝状结构体的设计解决了吸附柱径向温度场分布不均的技术难题, 温差从大于  $300\text{ K}$  降至小于  $30\text{ K}$ 。

开展了从实验室到中试装置的验证试验, 最后在  $1:1$  规模装置(图6)上完成了氢氦分离与氢同位素浓缩实验。验证了氚工厂外循环大规模氚提取工程技术, 载气中氢氦处理规模达到  $1000\text{ m}^3/\text{h}$ , 大面积钯合金分离器处理能力达到  $2\text{ m}^3/\text{h}$ 。实现了大规模氢氦混合气的高效分离与氢同位素预浓缩, 高速氦气流中微量氢的动态提取效率达到  $99.1\%$ , 停堆提取效率达到  $99.95\%$ , 氢同位素预浓缩倍数最高达到  $158$ (图7)。

采用钯合金膜实现氢气的分离纯化是一项非常成熟的技术, 但是钯合金膜高昂的价格及氢脆效应限制了其大规模工业应用。鉴于此, 对电化学氢泵技术在氢氦分离领域的应用进行了研究,

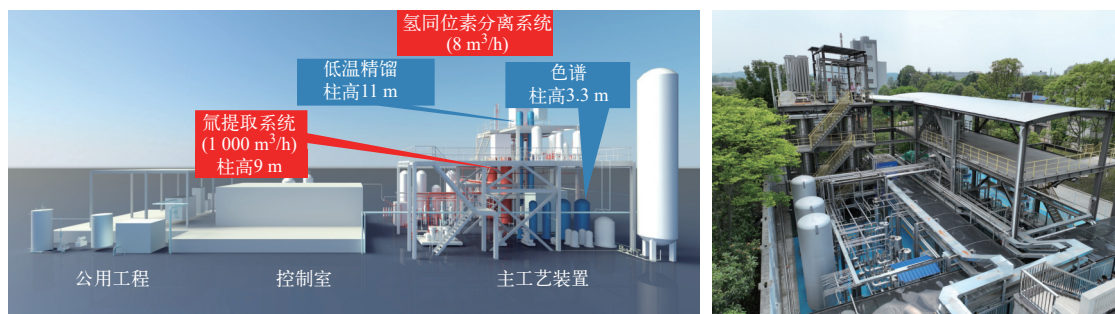


图6 增殖包层氚提取与氢同位素分离演示系统场区三维布局及实物图

Fig. 6 Three-dimensional layout and physical diagram of demonstration system of tritium extraction and hydrogen isotope separation for breeding blanket

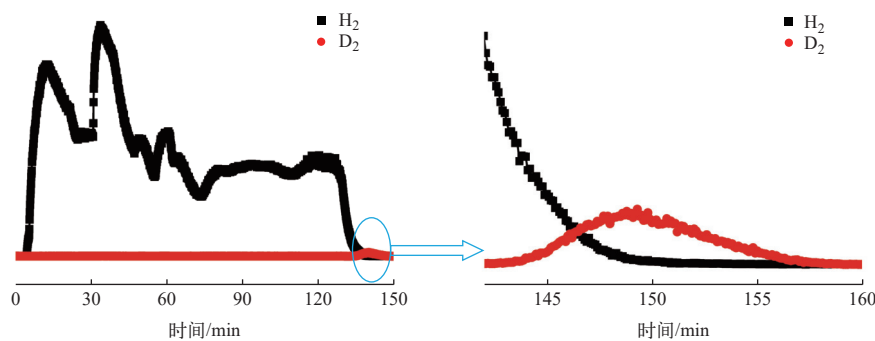


图7 载气中氚提取系统氢同位素预浓缩实验结果

Fig. 7 Experimental results of hydrogen isotope pre-concentration of tritium extraction system in purge gas

考察了其分离效果、分离速度和关键影响因素,以进一步提高其氢氦分离性能,并与传统的钯膜技术进行了比较。使用商业铂基膜电极进行了电

化学氢泵的氢氦分离实验(几十毫升量级),其最大氢气通量为  $11 \text{ mL}/(\text{cm}^2 \cdot \text{min})$ , 氢回收率可达到 97.4%, 回收的氢气纯度可达到 99.99%<sup>[25]</sup>。

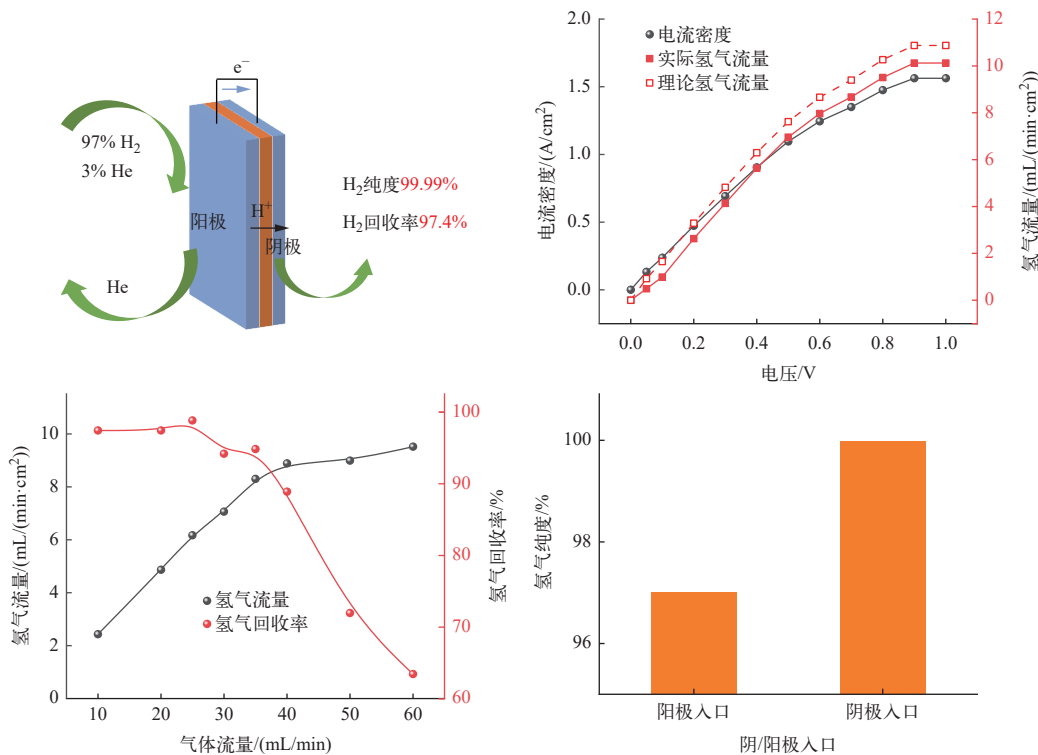


图8 基于质子交换膜的电化学氢泵快速分离氢氦混合气的实验结果

Fig. 8 Rapid separation results of hydrogen and helium by electrochemical hydrogen pump based on proton exchange membrane

## 2) 冷却剂中氦的提取技术

### (1) 氦冷却剂

对于氦冷却剂,主要采用氧化+吸附工艺对氦气中的微量氚进行回收,利用两级氧化工艺能充分将氦气中存在的氢同位素氚以及氚化物氧化为氚水和二氧化碳,实现氢同位素的相转化。通过吸附床回收氦气中的氚水,实现氦气中氚的富

集。通过最后一级热吸附床将残余的含氚物质以及二氧化碳、氧气等杂质进一步吸附,避免活化物质的生成。

通过氢氦模拟实验验证了氧化+低温吸附+热吸附工艺的可行性,氦气中氢同位素的转化效率达到 99.5%,其他杂质组分的净化效率均达到 99.9%。

## (2) 水冷却剂

综合考虑水冷包层冷却剂氚浓度低、处理量大的问题,在1 kg/h的含氚水处理装置<sup>[26]</sup>和化工过程模拟计算的基础上,基于水精馏(WD)-联合电解催化交换(CECE)级联工艺流程,中国工程物理研究院核物理与化学研究所自主设计、建成氚工厂外循环水冷却剂中氚提取中试演示实验装置,处理能力为5~10 kg/h。研制的整套工艺系统如图9所示,该系统较好兼顾了WD处理量大与CECE分离因子高、浓集速度快、可相转换的技术优势,实现了大规模水冷却剂中低浓氚的高效回收。国际上首次通过氚试验验证了WD-CECE级联工艺<sup>[27]</sup>,连续稳定运行状态下含氚水贫化可达2 000倍,氚浓缩可达600倍以上,稳定运行超过800 h,累计处理量达到数吨量级。

其中水精馏子系统为三塔级联<sup>[28]</sup>,在此中试装置上开展了含氚水处理试验。该系统的进出料流程及连续进出料实验结果如图10、11所示,试验过程中精馏塔T653001与精馏塔T653003采用串联模式。该流程分为4个阶段:第1阶段(0~190 h)为全回流阶段,目的是建立精馏塔内的初始浓度分布,此过程中前级塔(T653001与T653003)和后级塔(T653002)均不进料且不采出,故未在图11中标出;第2阶段(190~290 h)为前级塔富集阶段,前级塔以5 kg/h的处理量连续进料,同时前级塔塔顶以5.0 kg/h的速率采出贫氚水,后级塔仍保持全回流,前级塔塔顶采出的贫氚水和塔釜中氚

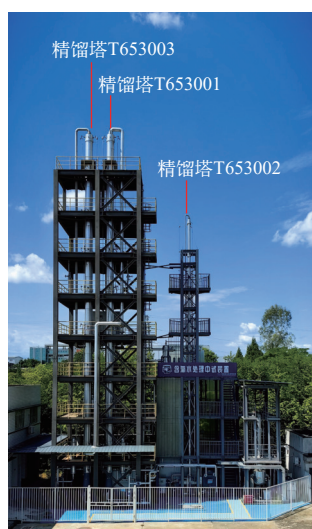


图9 水冷却剂中氚提取系统中试装置

Fig. 9 Pilot plant of tritium extraction system for water coolant

活度浓度随进料时间持续增加;待前级塔塔釜达到目标值后进入第3阶段(290~540 h),该阶段是稳定运行阶段,前级塔以5 kg/h的处理量进行连续进料,由前级塔塔顶采出4.75 kg/h贫氚水,前级塔塔釜采出1.0 kg/h至后级塔,同时后级塔塔顶采出0.75 kg/h至前级塔,后级塔塔釜采出为0.25 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;为考察系统的运行负荷及稳定性,第4阶段(>540 h)的进料量增加为10 kg/h,前级塔塔顶以9.10 kg/h采出贫氚水,前级塔塔釜1.5 kg/h采出至后级塔,同时后级塔塔顶采出0.6 kg/h至前级塔,后级塔塔釜采出为0.9 kg/h浓氚水,系统最终稳定运行超过900 h。

在处理量为5.0 kg/h时,水冷却剂中氚提取中试系统的分离效果如图12所示。该系统能够连续稳定地实现活度浓度为 $7.8 \times 10^5$  Bq/L的冷却剂的脱氚及氚的预浓集。在连续操作条件下,塔顶

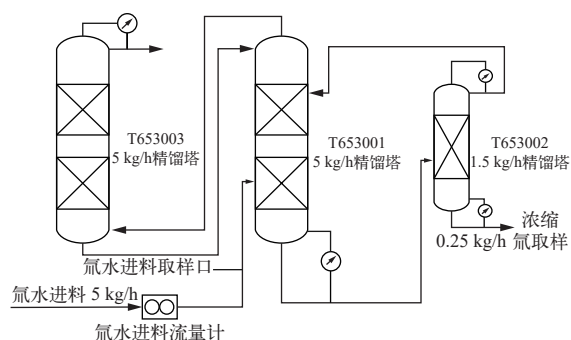


图10 水精馏三塔级联含氚水分离中试系统连续进出料简化流程

Fig. 10 Simplified flow chart of continuous feeding and discharging of tritiated water separation pilot system with three towers cascade of water rectification

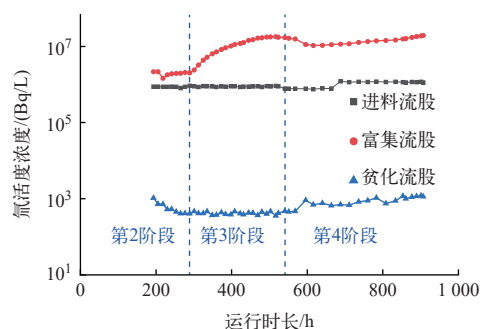


图11 水精馏三塔级联含氚水分离中试系统连续进出料实验结果

Fig. 11 Experimental results of continuous feeding and discharging of tritiated water separation pilot system with three towers cascade of water rectification

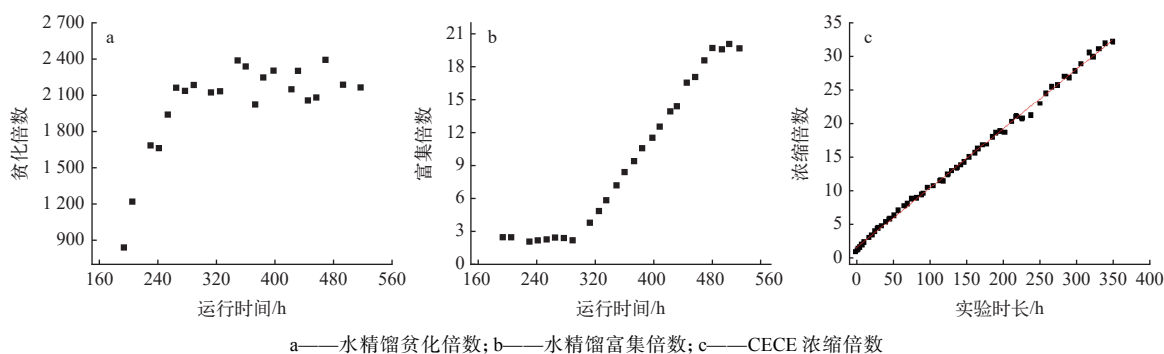


图 12 水冷却剂中氘提取中试系统分离效果

Fig. 12 Separation efficiency of three-column cascade water distillation facility

贫氘水的采出量为 4.75 kg/h, 贫化因子大于 2 000 倍(图 12a); 塔釜浓集氘水以 0.25 kg/h 的流量采出, 氘浓缩因子为 20 倍(图 12b)。联合电解催化交换系统在处理量为 1 kg/h 的情况下, 氘浓缩因子为 32.1(图 12c)。

同时研发了一批具有自主知识产权的超浸润水精馏填料<sup>[29]</sup>和微纳载体结构超疏水催化剂<sup>[30-32]</sup>; 提出了一种氢-水同位素交换串联水汽变换的两级钨膜反应器高浓氘水处理工艺<sup>[33]</sup>, 氘水平衡转化率从 43% 提升至 78%(400 °C); 研发了富氧空位 Pt/TiO<sub>2-x</sub> 催化剂, 氢-水同位素交换催化活性提升了约 50%; 研制了一套处理量为 60 g/h 的处理装置, 具备放大可行性。为聚变堆水冷却剂中氘提取工程技术和裂变堆含氘废水处理工程技术奠定了重要基础。

### 1.3 氢同位素分离技术

外循环氢同位素分离的主要特点是氘浓度低、处理量大和组分相对简单(主要为 H<sub>2</sub>/HT)。氢同位素分离系统采用低温精馏与色谱级联工艺, 将低温精馏作为氢同位素分离的前级, 发挥其处理能力大的工程优势, 实现大量低浓氘的快速浓缩, 在后级充分利用色谱滞留小的优势, 进一步提高氘丰度达到聚变燃料要求。

自主开发了全流程动态模拟设计软件, 集合精馏柱设计、换热设计和控制仿真三个核心功能的一体化集成设计平台, 不但可以为精馏柱、换热器等工程设计和制造提供依据, 而且可以通过控制仿真对系统的稳定性进行考核, 优化控制参数<sup>[34]</sup>。通过分离实验(0.125 m<sup>3</sup>/h 原理装置)对计算模型进行了验证, 实验获得的氘浓缩和贫化曲线与理论预测基本一致。设计并研制了 0.5 m<sup>3</sup>/h

的低温精馏装置, 实验结果与理论设计基本符合, 在此基础上, 形成了 8 m<sup>3</sup>/h 氢同位素分离系统的工程装置的设计。

用 0.6% 的 D<sub>2</sub>/H<sub>2</sub> 混合气(约 50 m<sup>3</sup>)开展了低温精馏分离实验, 其结果如图 13 所示。连续进出料 8.1 m<sup>3</sup>/h, 塔底浓缩气中氘摩尔分数为 62.88%, 浓缩了 104 倍; 塔顶贫化气中氘摩尔分数为 0.004 46%, 回收效率达 99.26%。用 3.0% 的 D<sub>2</sub>/H<sub>2</sub> 混合气开展了色谱分离实验, 结果如图 14 所示。可见经过两级分离, 氘丰度达到 85.0%, 浓缩了 28.3 倍。

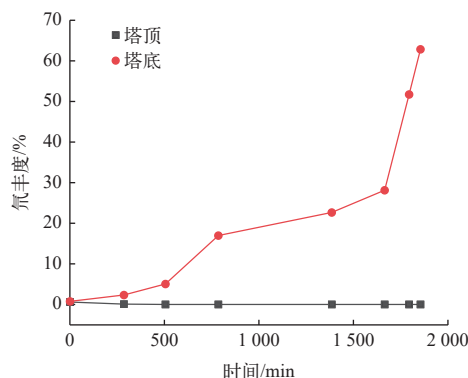


图 13 低温精馏系统塔顶及塔底氘丰度实验结果  
Fig. 13 Experimental results of deuterium abundance at top and bottom of cryogenic distillation system

同时开展了氢同位素量子筛分的新工艺技术研究, 筛选了应用于氢同位素分离的高性能材料, 完善了量子筛分规律, 提出了采用柔性配体修饰微孔金属有机框架, 同时满足高分离因子和高选择性两种应用需求<sup>[35-37]</sup>。

开展了利用低温等离子体技术实现歧化反应的研究<sup>[38]</sup>, 有望在未来应用于低温精馏与色谱技术, 实现无催化剂和极低温度下的高效歧化, 大幅提升氢同位素分离效率。色谱系统的分离效果如

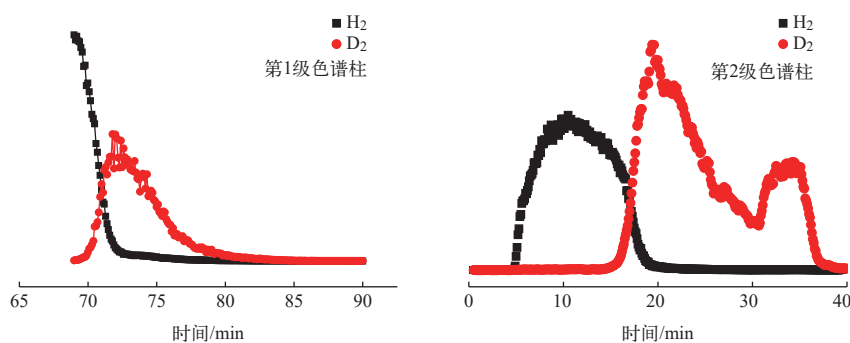


图 14 色谱系统分离效果

Fig. 14 Separation effect of chromatographic system

图 14 所示。

#### 1.4 氚测量技术

基于电离室原理,解决了复杂气氛( $H_2/D_2/T_2/HTO/CH_4/He$  等)响应问题和氚快速响应问题<sup>[39]</sup>,采用全金属法兰结构密封降低漏率,采用镀金丝壁结构抑制记忆效应<sup>[40]</sup>,以满足在线高浓度氚测量的需求。

针对聚变堆高浓度氚测量时电离室非线性响应及响应时间慢的技术难题,建立了气体响应、放射性响应计算方法,自主设计并研制了快响应探测器,如图 15 所示。该探测器灵敏体积约为 0.7 mL,响应时间小于 10 s。



图 15 快响应探测器

Fig. 15 Fast response detector

自主研制了模块化手套箱内嵌式微色谱(图 16)高分辨在线测氚系统<sup>[41]</sup>,实现了连续负压取样,氚消耗少,利用自主开发的微填充柱,在 10 min 内实现了氢同位素六组份( $H_2$ 、HD、HT、 $D_2$ 、DT 和  $T_2$ )及 He 的高分辨在线测量。

针对气体分子拉曼反射截面小、信号强度弱的技术难题,采用独特的光路设计,实现拉曼信号增强,自主研发了氢同位素气体在线激光拉曼光谱分析仪<sup>[42-43]</sup>,如图 17 所示,其中, F 为滤波器, HWP 为半波片, L 为镜片, M 为镜子, PM 为功率计。1 s 时间内对氢同位素检测限(3 倍等效背景

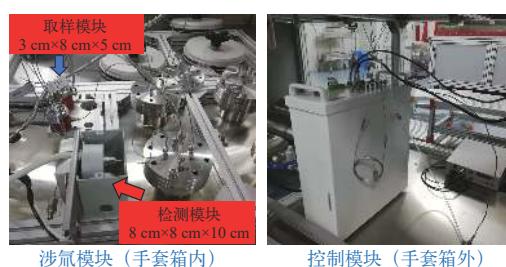


图 16 手套箱内 TCAP 系统的取样阀门和探测器及手套箱外的控制系统

Fig. 16 Sampling valves and TCD in glovebox of TCAP system and control system outside glove box

噪声)达到 5.8 Pa,系统长期稳定性小于 0.5%。

针对氦气氛中氢同位素气体的灵敏检测,基于钯铬(PdCr)合金薄膜的氢同位素效应构建了一种热辅助的电阻式传感器<sup>[44]</sup>,如图 18 所示,有望实际应用于氢氦分离工艺过程监测。

## 2 展望

从 CFETR 氚工厂“外循环”工程设计与建设的需求出发,开展了增殖包层快速高效氚提取工艺的设计,并建成了百居里级反应堆在线产氚实验平台、基于加速器中子源的包层模块测试平台和 1 : 1 规模的增殖包层氚提取和氢同位素分离工程演示系统等三大实验平台,分别从 3 个方面验证了聚变堆氚增殖技术:反应堆原位产氚实验实现了聚变堆增殖包层产氚与提氚的在线演示;加速器中子辐照产氚实验验证了增殖包层缩比模块的产氚技术;1 : 1 工程规模的氢氚模拟实验验证了聚变堆氚增殖技术的工程可行性。掌握了增殖包层中氚的在线准确测量、大规模载气中氚提取、大规模氢同位素分离及冷却剂中低浓氚回收等 4 项关键工程技术,给出了 CFETR 增殖包

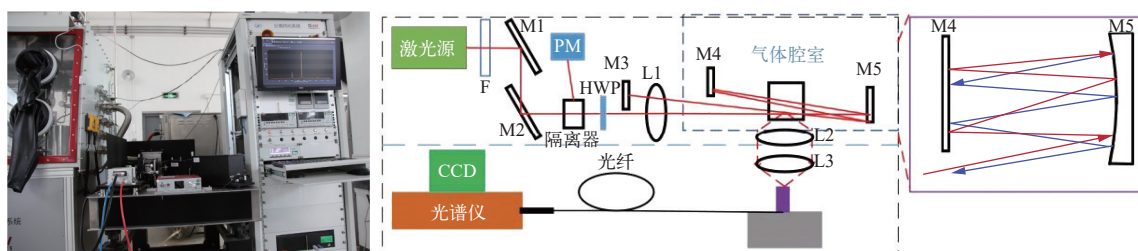
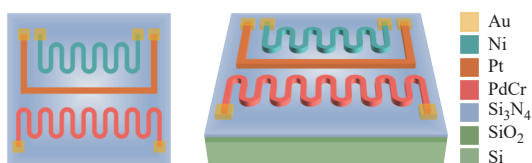


图 17 激光拉曼系统的实物照片和原理图

Fig. 17 Physical photo and schematic diagram of multiple-pass Raman spectroscopy setup

图 18 PdCr 合金薄膜电阻传感器示意图<sup>[44]</sup>Fig. 18 Schematic diagrams of PdCr alloy thin film resistive sensor<sup>[44]</sup>

层氦提取与测量系统详细概念设计及工程可行性评估,为CFETR氦工厂外循环工程设计和建设提供了技术支撑。但氦工厂的建设还面临如下巨大挑战。

1) 工程化技术尚待完善:载气中氦提取、氢同位素分离等工程技术的带氦运行和可靠性还需评估;大规模(100 kg/h)水去氦化和大规模(每小时数千立方米级)氢冷却剂中高效提氦等工程技术还需验证;氦工厂外循环系统数字化和智能化平台需要建设;先进涉氦关键装备与器件国产化有待深入推进。

2) 氦安全技术还有差距:氦工厂外循环本质安全和辐射防护设计、公斤级氦操作情况下的氦快速应急、氦辐射生物效应、氦废物的处置和氦设施的退役等安全技术亟需开展。

3) 经济性还需优化:要建成聚变能源电站,成本的控制必须在工程技术设计中考虑。例如,涉核和非核构成的合理区分,以有效降低建设成本;工程技术和运行方法优化,通过降低能耗有效降低运维成本。

### 3 结束语

未来氦工厂技术研发,应立足以我为主、适度国际合作的模式,基于自主创新,使我国能独立、全面掌握氦循环与自持技术。

针对已建成的若干氦技术研究平台,一是进

一步优化完善这些研究平台的功能,利用其完成大规模工艺的稳定性、可靠性考核和氦验证与优化;二是发挥对外研究平台的窗口作用,加强与ITER国际组织等国外研究机构的国际合作,发展氦工厂新技术,培养技术人才。同时加大氦工厂技术研发和相关能力建设投入,使我国早日具备氦工厂系统工程设计和大型氦操作专用设备与器件的制造能力。

### 参考文献:

- [1] WAN Y, LI J, LIU Y, et al. Overview of the present progress and activities on the CFETR[J]. *Nuclear Fusion*, 2017, 57(10): 102009.
- [2] WANG X, RAN G, WANG H, et al. Current progress of tritium fuel cycle technology for CFETR[J]. *Journal of Fusion Energy*, 2019, 38(1): 125-137.
- [3] 赵林杰,肖建成,龙兴贵,等.聚变能源中的氦化学与氦工艺研究进展及展望[J]. *核化学与放射化学*, 2019, 41(1): 40-59.  
ZHAO Linjie, XIAO Chengjian, LONG Xingguo, et al. Progress of tritium chemistry and technology in fusion energy[J]. *Journal of Nuclear and Radiochemistry*, 2019, 41(1): 40-59(in Chinese).
- [4] TESCH C, CARLSON R, MICHELOTTI R, et al. Tritium systems test assembly (TSTA) stabilization[J]. *Fusion Science and Technology*, 2005, 48(1): 258-261.
- [5] NISHI M, YAMANISHI T, HAYASHI T, et al. Accounting and control of tritium at the tritium process laboratory (TPL) of JAERI-results of 15-year operation and research activity[J]. *Journal of Plasma and Fusion Research*, 2003, 79(10): 1078-1084.
- [6] PENZHORN R D, BEKRIS N, COAD P, et al. Status and research progress at the Tritium Laboratory Karlsruhe[J]. *Fusion Engineering and Design*, 2000, 49/50: 753-767.
- [7] ZHAO L, LONG X, CHEN X, et al. Design, synthesis and characterization of the advanced tritium breeder:

- $\text{Li}_{4-x}\text{Si}_{1-x}\text{Al}_x\text{O}_4$  ceramics[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2015, 467: 911-916.
- [8] ZHAO L, GUAN Q, LI J, et al. First-principles study on the structural and electronic properties of  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  and Al-doped  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ [J]. *Fusion Engineering and Design*, 2016, 113: 331-335.
- [9] ZHAO L, LONG X, PENG S, et al. Tritium release in  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  and  $\text{Li}_{4.2}\text{Si}_{0.8}\text{Al}_{0.2}\text{O}_4$  ceramics[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2016, 482: 42-46.
- [10] 杨茂, 赵林杰, 肖成建, 等.  $\text{Li}_4\text{Ti}_x\text{Si}_{1-x}\text{O}_4$  氚增殖陶瓷制备及力学性能[J]. *核化学与放射化学*, 2021, 43(3): 223-230.
- YANG Mao, ZHAO Linjie, XIAO Chengjian, et al. Fabrication and mechanical property of  $\text{Li}_4\text{Ti}_x\text{Si}_{1-x}\text{O}_4$  ceramic tritium breeders[J]. *Journal of Nuclear and Radiochemistry*, 2021, 43(3): 223-230(in Chinese).
- [11] YANG M, ZHAO L, RAN G, et al. Tritium release behavior of  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  and  $2\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4$  biphasic ceramic pebbles fabricated by microwave sintering[J]. *Fusion Engineering and Design*, 2021, 168: 112390.
- [12] YANG M, ZHAO L, QIN Y, et al. Tritium release property of  $\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4$  biphasic ceramics[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2020, 538: 152268.
- [13] YANG M, ZHAO L, RAN G, et al. Grain growth mechanism and thermal stability of  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  pebbles fabricated by wet method[J]. *Ceramics International*, 2023, 49(23): 38995-39002.
- [14] RAN G, YANG M, ZHAO L, et al. Computer simulation of tritium release behavior of  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  ceramic breeder with an improved packed bed model[J]. *Nuclear Analysis*, 2023, 2(3): 100081.
- [15] RAN G, YANG M, ZHAO L, et al. Modeling of tritium release behavior of biphasic  $\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4$  ceramics[J]. *Ceramics International*, 2024, 50(13): 22421-22429.
- [16] LI R, YANG X, WANG G, et al. An in-pile experimental loop for the irradiation of tritium breeding ceramics in China Mianyang research reactor (CMRR)[J]. *Fusion Engineering and Design*, 2021, 164: 112192.
- [17] ZHAO L, YANG M, XIAO C, et al. *In-situ* tritium release behavior and post-irradiation experiments of  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  pebbles developed by freeze-drying method[J]. *Fusion Engineering and Design*, 2023, 195: 113956.
- [18] ZHAO L, YANG M, XIAO C, et al. In-pile tritium release behavior and the post-irradiation experiments of  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  fabricated by melting process[J]. *Nuclear Engineering and Technology*, 2024, 56(1): 106-113.
- [19] 肖成建, 付小龙, 王和义, 等. 一柱式氢氮分离与浓缩耦合装置及方法: 中国, CN202110120112.0[P]. 2023-06-09.
- [20] 岳磊, 彭述明, 王和义, 等. 常温氢氮分离储存一体化装置: 中国, CN202110278127.X[P]. 2023-02-03.
- [21] 赵林杰, 彭述明, 肖成建, 等. 一种反应堆换料系统、在线装料、卸料及换料方法: 中国, CN202111410437.9[P]. 2024-06-04.
- [22] 彭述明, 龙兴贵, 赵林杰, 等. 一种反应堆在线产氚与氚回收装置: 中国, CN202111473321.X[P]. 2024-06-04.
- [23] ZHAO L, YUE L, LI J, et al. An in-pile demonstrated platform for the evaluation of tritium extraction technologies in China Mianyang Research Reactor[J]. *Fusion Engineering and Design*, 2023, 194: 113732.
- [24] YUE L, CHEN C, ZHAO L, et al. Hydrogen separation from hydrogen/helium mixtures under different pressures by using U-shaped ZrCo getter beds[J]. *Fusion Engineering and Design*, 2021, 169: 112435.
- [25] ZENG Y, LI J, LI M, et al. Electrochemical hydrogen pump based on proton exchange membrane for rapid separation of hydrogen and helium[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2024, 63: 418-423.
- [26] CHEN C, HOU J, LI J, et al. A water distillation detritiation facility and its performance test[J]. *Fusion Engineering and Design*, 2020, 153: 111460.
- [27] 侯京伟, 陈超, 王和义, 等. 一种含氚水的去氟化处理装置及方法: 中国, CN201711095054.0[P]. 2023-06-16.
- [28] 王君妍, 陈超, 李佳懋, 等. 三塔级联水精馏系统分离含氚轻水中试实验研究[J]. *强激光与粒子束*, 2024, 36(1): 156-158.
- WANG Junyan, CHEN Chao, LI Jiamao, et al. Pilot scale experiment of three-column cascade water distillation facility for tritiated water separation[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2024, 36(1): 156-158(in Chinese).
- [29] 陈超, 李佳懋, 彭述明, 等. 一种具有表面微-纳结构的水精馏填料及其制备方法: 中国, CN202110781730.X[P]. 2022-07-05.
- [30] LU Z, FU X, LI J, et al. Superhydrophobic Pt@SBA-15 catalyst for tritium separation in liquid phase catalytic exchange[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2023, 48(5): 1979-1987.
- [31] FU X, HOU J, CHEN C, et al. Superhydrophobic and super-aerophilic hierarchical Pt@MIL-101/PVDF composite for hydrogen water isotope exchange reactions[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2019, 380: 120904.
- [32] LU Z, LI J, FU X, et al. Superhydrophobic Pt@SBA-15 catalyst for hydrogen water isotope exchange reactions[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*,

- 2022, 47(41): 18080-18087.
- [33] YUE L, ZHAO L, HOU J, et al. Efficient processing of tritiated water by using a two-stage Pd membrane reactor with Pt/TiO<sub>2</sub> catalyst[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2024, 50: 493-501.
- [34] WANG X, CHEN C, LI J, et al. Dynamic behavior and control strategy of cryogenic distillation column for hydrogen isotope separation in CFETR[J]. *Fusion Engineering and Design*, 2020, 160: 112018.
- [35] CAO D, REN J, GONG Y, et al. Quantum sieving of H<sub>2</sub>/D<sub>2</sub> in MOFs: A study on the correlation between the separation performance, pore size and temperature[J]. *Journal of Materials Chemistry A*, 2020, 8(13): 6319-6327.
- [36] FU X, GONG Y, LI J, et al. Highly effective quantum sieving of hydrogen isotopes on flexible metal-organic frameworks with mobile ligands[J]. *Separation and Purification Technology*, 2024, 334: 126025.
- [37] CAO D, HUANG H, LAN Y, et al. Ultrahigh effective H<sub>2</sub>/D<sub>2</sub> separation in an ultramicroporous metal-organic framework material through quantum sieving[J]. *Journal of Materials Chemistry A*, 2018, 6(41): 19954-19959.
- [38] LI J, LIU S, WANG X, et al. Experimental activities in view of hydrogen-deuterium equilibrium reaction in dielectric barrier discharge reactor: Effects of plasma treatment parameters and reactor design[J]. *Fusion Engineering and Design*, 2024, 202: 114294.
- [39] CHEN Z, PENG S, CHENG S, et al. CFD calculations of response time for ionization chambers in tritium measurements[J]. *Fusion Engineering and Design*, 2019, 143: 196-200.
- [40] CHEN Z, PENG S, CHEN P, et al. Improvement of ionization chamber for tritium measurements in in-pile tritium extraction experiments[J]. *Fusion Engineering and Design*, 2019, 147: 111222.
- [41] WANG W, XIA L, MAO Y, et al. On-line micro GC testing of protium analysis in DT fuels from TCAP products[J]. *Fusion Engineering and Design*, 2021, 170: 112481.
- [42] WEN C, HUANG X, SHEN C. Multiple-pass enhanced Raman spectroscopy for fast industrial trace gas detection and process control[J]. *Journal of Raman Spectroscopy*, 2020, 51(5): 781-787.
- [43] WEN C, HUANG X, WANG W, et al. Multiple-pass-enhanced Raman spectroscopy for long-term monitoring of hydrogen isotopologues[J]. *Journal of Raman Spectroscopy*, 2019, 50(10): 1555-1560.
- [44] LI M, XIAO C, RAN G, et al. Thermal-assisted resistive sensor based on the PdCr alloy thin film for sensitive detection of hydrogen isotopes in helium atmosphere[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2024, 56: 102-112.