乏燃料贮运容器干燥技术研究

翁晨阳,黄尚青,廖家麒,邵长磊,刘永骏,李雷

(上海核工程研究设计院股份有限公司,上海 200233)

摘要:目的 防止乏燃料包壳与容器的性能退化,需在乏燃料装入贮运容器之后,执行干燥除湿程序,并回填氦气以构建惰性气体环境,故深入探讨了乏燃料贮运容器干燥技术相关的关键问题。方法 通过规范调研确定容器干燥准则,按非结合态水和结合态水 2 个类别估算残余水量,基于残余水自身及其分解产物研究其对贮运安全性的影响,并分析真空干燥系统以及强制氦循环干燥系统 2 种主要干燥系统的特点。结果 在干燥过程中,容器须遵循包壳温度控制准则和最终干燥度准则;残余水以未结合态和结合态 2 种形态存在,其残余量的估算值分别约为 50 mL 和 18 mL~1.8 L。残余水可能通过包壳氧化、芯块氧化、包壳吸氢、可燃气体产生、水性腐蚀等机制对乏燃料贮运安全性产生影响。真空干燥系统由于结冰和热工安全性,其干燥效率受到限制;而强制氦循环干燥系统消除了容器及管路中冰形成的可能,通过强制对流热传递保持乏燃料处于较低温度。结论 强制氦循环干燥系统可缩短干燥时间,减少职业辐照剂量,可靠保障乏燃料热工安全,在高燃耗乏燃料贮运场景中更具优势。

关键词:残余水;包壳温度;干燥度;强制氦循环

中图分类号: TL93; TB485.3 文献标志码: A 文章编号: 1001-3563(2025)07-0240-09

DOI: 10.19554/j.cnki.1001-3563.2025.07.028

Dry Technology for Spent Fuel Transport and Storage Containers

WENG Chenyang, HUANG Shangqing, LIAO Jiaqi, SHAO Changlei, LIU Yongjun, LI Lei (Shanghai Nuclear Engineering Research and Design Institute Co., Ltd., Shanghai 200233, China)

ABSTRACT: After the spent fuel is loaded into the storage container, the drying and dehumidification procedure must be performed and the helium gas should be backfilled to build an inert gas environment, to prevent the performance degradation of the fuel cladding and container, so the work aims to discuss the key issues related to the drying technology of the spent fuel storage container. The drying criteria of the container were determined through standard research, the residual water quantity was estimated according to the two categories of the unbound water and the bound water, and the effect of the residual water and its decomposition products on the storage and transport safety was studied, and the characteristics of vacuum drying and forced helium circulating drying systems were analyzed. In the drying process, the container must follow the cladding temperature limit and dryness criteria. The residual water existed in both unbound and bound states, and the estimated residual value was about 50 mL and 18 mL to 1.8 L respectively. Residual water might affect the safety of storage and transport of spent fuel through mechanisms such as cladding oxidation, fuel pellet oxidation, cladding hydrogen absorption, combustible gas generation and aqueous corrosion. The drying efficiency of the vacuum drying system was limited due to the icing and thermal safety problems. The forced helium cycle drying system eliminated the possibility of ice formation in the container and pipeline, and kept the spent fuel at a low temperature by forced convective heat transfer. The forced helium cycle drying system can shorten the drying time, reduce the

收稿日期: 2024-11-20

基金项目: 国家电力投资集团有限公司科研项目(KY-B1-2020-HN-05)

occupational radiation dose, reliably guarantee the safety of fuel heat, and have more advantages in the storage and transport scenario of high burning fuel.

KEY WORDS: residual water; cladding temperature; dryness; forced helium cycle

我国核电行业已迈入规模化发展的新阶段,截至2024年8月我国大陆地区正在运营的核电机组数量达到56台,总装机容量高达5.81×10⁷ kW。此外,还有46台机组已获核准并处于建设进程中,其装机容量为5.50×10⁷ kW。综合核准在运与在建的核电机组总量达102台,总装机容量达1.13×10⁸ kW(见图1),该规模在全球位居榜首。

据统计,2024年1—6月,我国全社会用电量高达 4.66×10¹² kW·h,与 2023年同期相比,实现了8.09%的显著增长。全国运行的核电机组,在同期内累计发电量达到 2.12×10¹¹ kW·h,较 2023年上升0.18%(见图 2)。预计至 2035年,核电发电量在我国总发电量中的占比将进一步提升至 10%,为我国能源结构的优化和可持续发展贡献更大力量。

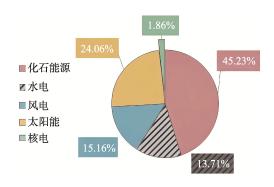


图 1 我国发电装机容量结构(截至 2024 年 8 月) Fig.1 Structure of China's installed capacity for power generation (as of August 2024)

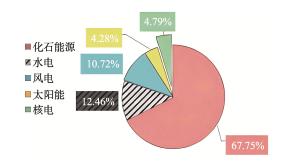


图 2 我国发电量结构(2024 上半年) Fig.2 Structure of China's power generation (first half of 2024)

由核电机组反应堆堆芯卸出的乏燃料,首先会放置于机组配套的乏燃料水池内,进行湿法贮存。水池接近容量上限时,乏燃料便需妥善装入密封容器进行干法贮存,或装入专用的厂外运输容器进行厂外运输。对于装机容量为百万千瓦级别的压水堆核电机组,每台机组每年的乏燃料卸料量约为45组。

据此推算,102台机组每年的乏燃料卸料总量将达到约4590组。

乏燃料装入贮运容器后,可借助虹吸、压气排水或水泵抽水等手段排出容器内绝大部分水分,随后通过专用的干燥系统,遵循特定的工艺流程,进一步去除容器内残余的水分。当前业界采用的干燥系统主要包括2种类型,分别为真空干燥系统和强制氦循环干燥系统[1]。最后在容器中充入氦气,为贮运容器中的乏燃料创造惰性环境。这一系列干燥与充氦操作的核心目的在于避免乏燃料及容器性能退化。若干燥不充分,将显著增大乏燃料在贮运期间的风险。

与乏燃料贮运容器干燥技术紧密相关的问题包括 干燥准则的界定、残余水量的评估、残余水可能带来 的影响,以及 2 种主要干燥系统各自特点等。本文深 人探讨了这些与乏燃料贮运容器干燥技术相关的问 题,以期为该领域的研究与实践提供有价值的参考。

1 干燥准则界定

容器干燥过程的主要准则包含 2 个方面,即包壳 温度控制准则与最终干燥度准则。

1.1 包壳温度控制准则

ISG-11 的规范明确规定,对于全部燃耗范畴的乏燃料组件(涵盖低燃耗组件及高燃耗组件),在经历常规贮存流程及短期装载作业(干燥处理、惰性气体回填作业及容器向贮存区域的转移等)时,乏燃料包壳所承受的最高理论计算温度须严格控制在 400 ℃以下^[2]。针对低燃耗燃料,经申请方能依据详尽计算提供确凿证据,表明在设定的温度阈值,包壳所承受的环向应力最佳估算值≤90 MPa 的临界值,可适度提升短期温度上限。

依据上述要求,将乏燃料包壳温度≤400 ℃作为 干燥过程中的包壳温度控制准则。

1.2 最终干燥度准则

NUREG-1536 第 9.5.1 节明确要求尽可能彻底排空容器水分,随后抽真空至容器压力≤400 Pa。完成抽真空后,为验证水分已充分移除,需在约 30 min内保持压力恒定,其间不操作真空泵,或将真空泵与容器隔离^[3]。

2 残余水量估算

容器中的残余水形态可分为未结合的残余水和

结合态的残余水2种。

2.1 未结合的残余水

未结合的残余水能以液态或气态(水蒸气)的形式存在,且在物理或化学上并未与另一种材料(例如燃料棒包壳或二氧化铀芯块)相结合。

2.1.1 液态水

未结合的液态水能借助表面张力,在容器中以多样化的形态存在:首先,可存在于孔隙、缝隙等细微空间;其次,它以薄膜的形态覆盖于容器内部组件的表面;再者,它还可能隐藏于破损燃料棒的包壳内部。在开放环境下,水的蒸发过程尤为迅速,但在相对封闭的空间内,真空干燥的效果却不如开放系统显著,这可能导致残留更多的水分,从而增添了不确定性。以下将重点聚焦于相对封闭空间内破损燃料棒包壳内的残余水量的估算。

Kohli 等^[4]针对 2 根直径为 1.44 cm 浸水破损的沸水堆燃料棒进行了详细的水分释放试验。2 根燃料棒分别安置在密封的胶囊状测试管内部,随后对测试管腔室进行真空处理(见图 3)。试验过程中,从 2 根燃料棒中分别收集到 3 mL 和 2 mL 的水分。

为进一步释放可能滞留在燃料棒气腔内的水分,研究人员在每根燃料棒的气腔区域钻制了直径约为3 mm 的微小孔洞。之后,将2条加热带紧密缠绕在测试管的真空室周围,并重复执行真空抽取操作。在约100 ℃温度,真空抽取过程持续约1h,其间分别额外收集到7 mL和3 mL的水分,使2根燃料棒中释放出的水分总量分别达到约10 mL和5 mL。

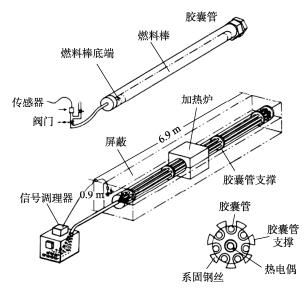


图 3 测试中使用的胶囊管和加热炉^[4] Fig.3 Capsule tube and furnace used in the test^[4]

Kohli 及其团队随后对 2 个燃料棒进行更高温度 条件的水分释放试验。将胶囊管装进屏蔽加热炉进行 加热处理。不锈钢胶囊管经历多次抽真空与氮气(其 中氢气、氧气含量< 10^6)或高纯度氩气(纯度>99.997%)的回填过程。屏蔽加热炉加热稳定于325°C,并持续运行2100h(合87.5d)。在高温测试中,2根燃料棒均显著释放出水蒸气,该放气过程长达650h(合27d)。所释放的水蒸气总量折合为液态水,分别达到1.5 mL和1 mL。

Ahn 等^[5]报告指出,当 1 根浸水破损的燃料棒在 160 ℃历经 7 h 加热,随后在 200 ℃再持续加热 24 h,累计收集到的水分总量为 0.1~0.2 mol,换算为体积约为 1.9~3.8 mL。紧接着,燃料棒在干燥后,于 400 ℃条件下贮存 2 个月,又额外收集到 0.03~0.23 mol 的水,其体积约为 0.5~4.1 mL。

试验表明,相当量的水分能保留在破损的燃料棒中。在完成排水步骤后,单个破损燃料棒内仍可收集到约11.5 mL(3 mL+7 mL+1.5 mL)的残余水分。经干燥处理,单个破损燃料棒内的残余水分仍能维持在约4.1 mL(取1.5、1、0.5、4.1 mL这几个试验结果数据中的最大值)的水平。

当将此结果推广至 14 英尺(约 4.27 m)乏燃料组件(对应活性区长度为 4 267 mm)中的燃料棒时,可估算出干燥处理后,每个 14 英尺乏燃料组件燃料棒的残余水量约为 4.8 mL。

对于装载 21 组乏燃料组件的贮运容器,每组组件包含 264 根燃料棒,故容器内燃料棒总数为 5 544 根。按照 0.01%~0.1%的破损率^[6]估算,在完成干燥操作后,整个容器中燃料棒中的残余水分总量约为 26.6 mL。

2.1.2 水蒸气

借助理想气体状态方程可估算容器空腔水蒸气量。在 NUREG-1536 中,经干燥处理的名义气体压力严格限定在 400 Pa 以下 $^{[3]}$ 。保守假设容器内腔温度维持在 $25 \, ^{\circ}$ C,则容积为 $7 \, \text{m}^3$ 的容器空腔内部大约会残留 $1.13 \, \text{mol}$ 的水蒸气(合 $20.35 \, \text{mL}$ 液态水)。

2.2 结合态的水

结合态的水主要分为物理吸附形态和化学吸附 形态 2 种形态。在干燥过程中,物理吸附的水分相对 容易去除。化学吸附的水分则较难去除,它常以乏燃 料包壳或容器结构材料表面的氧化物、氢氧化物或水 合物等形式存在。

锆包壳在特定条件下能转变为水合锆氧化物;在辐照环境下,锆更倾向于生成如 $Zr(OH)_4$ 或 $Zr_4(OH)_8$ $(H_2O)_{16}$ 的锆氢氧化物。Powers 等[7]研究指出,锆氧化物八水合物 $(Zr(OH)_2\cdot 8H_2O)$ 的脱水过程始于 150 ℃以上,并在 700 ℃时完全脱水[7]。尽管容器干燥过程中可能达到的温度>150 ℃,足以启动去除锆氢氧化物或水合物中的水的进程,但干燥时间可能不足以消除所有化学吸附的水分。若锆合金表面附着化学吸附的水,则在干式贮存过程中,合金表面的高温条件可

能触发这些水分的释放。

考虑装载 21 组乏燃料组件的容器,其中每组组件均含有 264 根燃料棒,21 组组件共有 5 544 根燃料棒。若以每根燃料棒直径为 1 cm、高度为 4.2 m 进行估算,则所有燃料棒总外表面积约为 700 m²。进一步假设,在堆芯运行期间及乏燃料水池贮存阶段,燃料棒的包壳外表面会自然形成一层厚度约为 10 μm 的锆氢氧化物 ZrO(OH)。薄膜层。

该薄膜层密度按 2 g/cm³估算,在高温条件下, 锆氢氧化物 ZrO(OH)₂有可能发生分解反应,并释放 出水蒸气,反应方程式为

$$ZrO(OH)_2 \rightarrow ZrO_2 + H_2O$$
 (1)

基于上述数据,可估算铝包壳上化学形态吸附水的总量。当这些化学吸附水全部分解释放时,预计约为1.8 L(合100 mol)。若仅有1%的化学吸附水分解释放,则将释放出约18 mL(1 mol)的水。但在乏燃料贮运的温度条件下,锆包壳上化学吸附水释放的比例难以界定,仍缺乏相关试验数据支持,这导致锆的化学吸附水释放到乏燃料贮运容器空腔中的份额估算值存在显著的不确定性。

2.3 残余水的总量估算

根据可获取的数据及计算结果,内部容积为 7 m³ 且装载有 21 组乏燃料组件的容器,在充分考虑浸水破损燃料棒中所含水量的情况下,排水操作完成后,容器内自由状态的残余水量为 46.95 mL(26.6 mL+20.35 mL),为计算方便,可估算为 50 mL。

关于锆包壳上化学吸附水的释放量数据,目前存在显著不确定性。据初步估算,化学吸附水的释放量为 18 mL(1 mol)~1.8 L(100 mol)。

3 容器中残余水分的影响

容器内的残留水分对容器本体及其所装载的乏 燃料会产生多方面的负面影响。在乏燃料释放的高能 射线作用下,残留水分发生分解反应,产生氢气和氧 气。该化学反应方程式为:

$$2H_2O \longleftrightarrow 2H_2+O_2$$
 (2)

该反应方程式为一系列复杂反应过程的简化表述,其完整反应机制涉及包括过氧化氢 (H_2O_2) 在内的多种中间产物^[5]。

3.1 氧化性产物对乏燃料包壳的影响

在乏燃料贮运容器中,残余水辐照分解产物中包含氧化性物质,如氧气和过氧化氢。这些氧化性物质能与燃料棒的锆合金包壳发生化学反应,在包壳外表面形成氧化层。由于该氧化过程并非强氧化过程,形成的氧化层通常较为疏松。这种疏松氧化物层的生长会减少包壳壁厚,降低包壳的力学性能,使包壳因厚

度变薄而更容易发生力学失效。典型的化学反应过程可以表示为 Zr+O₂→ZrO₂。

研究指出,相较于反应堆堆芯内产生的初始包壳氧化层厚度,额外的包壳氧化层厚度相对较小。基于辐射分解产生的氧所导致的包壳氧化,预计不会对乏燃料的安全贮运产生显著影响。长期贮存过程中形成的额外包壳氧化层厚度预计≤7.5 μm,而初始包壳厚度为 0.6~0.9 mm。因此,在容器环境中,氧化作用导致的包壳材料损耗预计<1%,且由包壳氧化形成的ZrO₂层预计不会对包壳的力学强度造成影响^[5]。

3.2 氧化性产物对乏燃料芯块的影响

容器贮存的乏燃料的包壳存在破损时,包壳中的二氧化铀芯块将与容器内残留水分辐射分解产生的氧化剂产物发生反应,二氧化铀芯块可能氧化形成U₄O₉、U₃O₇和U₃O₈等,当容器中湿度较大(相对湿度>40%)或在水环境中,二氧化铀芯块还可能与水反应形成水合铀氧化物,如UO₃·xH₂O,其中 x=0.5~8^[8]。

温度对二氧化铀芯块的氧化过程具有显著影响(见图 4)。在 230 °C以上,二氧化铀主要氧化产物为 U_3O_8 ;而在 230 °C以下的干燥空气环境中,主要的氧化产物则是 U_4O_9 。氧化反应速率随温度升高而显著加快 $^{[5]}$ 。

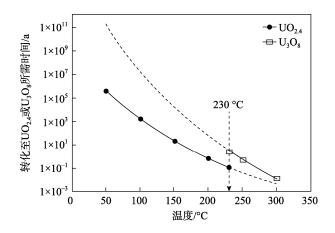


图 4 二氧化铀氧化时间与温度关系图 Fig.4 Relationship between the oxidation time of uranium dioxide and temperature

在 UO₂ 向 U₃O₈ 转化过程中,会发生体积膨胀。假设 UO₂ 颗粒呈球形,且在氧化过程中尺寸变化具有各向同性特征。对体积膨胀、半径变化及壳层应变进行定量分析,结果见表 1。结果显示,在 50%的二氧化铀(UO₂) 转化为八氧化三铀(U₃O₈) 的过程中,包壳材料将经历约 2%的应变。由于 UO₂ 芯块内部存在约 5%的孔隙度,这些孔隙能够消减部分体积增加,因此包壳所承受的应变通常低于 UO₂ 颗粒本身的应变。然而,当 UO₂ 芯块中的所有颗粒完全转化为 U₃O₈时,计算得到的膨胀率为 36%。这种膨胀效应引起的锆合金包壳应变可达到 6.5%,导致燃料棒包壳的缺

陷区域(假设存在宽 1 mm、长 3.5 cm 的初始包壳缺陷)可能会出现裂纹的扩展^[9]。

表 1 UO2芯块氧化为 U3O8时引起的应变 Tab.1 Strain induced by the oxidation of UO2 pellets to U3O8

U ₃ O ₈ 转化比例	体积变化率 Δ V	半径增加率 (引发的应变) Δ r
100	36	10.8 (6.5)
50	18	5.7 (2)
20	7.2	2.3 (1)

若 1 个或多个 UO_2 芯块完全氧化成 U_3O_8 ,则乏燃料氧化问题值得关注。由于在 6.5%的应变下就会发生扩展传播进而导致包壳破裂,这可能导致乏燃料芯块的散落,从而污染容器腔体环境并使乏燃料的回收、运输和最终处置复杂化^[10]。

 UO_2 氧化成 U_3O_8 的过程为 $3UO_2+O_2 \rightarrow U_3O_8$ 。每 810 g UO_2 的氧化过程需消耗 32 g O_2 。考虑 1 个直 径为 1 cm、高度为 1 cm 的二氧化铀芯块,密度为 10.96 g/cm³,其完全氧化需消耗 0.34 g 氧气。100 g 水完全分解可产生 88 g 氧气,这些氧气可将 250 多个二氧化铀芯块完全氧化。

3.3 乏燃料锆合金包壳对 H₂的吸收

容器内的水辐照分解产生的氢气分子通过包壳表面的锆氧化层进入锆合金包壳并被吸收的过程在<400℃的条件下受到显著限制。氢在氧化锆中的吸收率极低,每摩尔氧化物仅吸收 10⁻⁵~10⁻⁴ mol氢^[11]。因此,包壳上的氧化层在阻碍氢吸收方面发挥着显著作用。即便氧化层遭受损伤,锆合金亦能在氧化产物的作用下迅速重新钝化,形成新的保护层。因此,辐射分解产生的氢气分子被锆合金包壳吸收的量预计将极为有限。

3.4 可燃气体 H₂的影响

乏燃料贮运容器中的残余水分在辐照分解作用下,除了生成 O₂ 等氧化性产物外,还会产生可燃性气体 H₂。在预计的容器内腔温度范围内,H₂ 无法通过乏燃料锆合金包壳表面的氧化层扩散进而被锆合金包壳吸收。因此,辐射分解产生的氢气将以气体形式存在于容器空腔中,在后续顶盖通风口盖板焊接、顶盖排水口盖板焊接等环节可能带来可燃性风险。NUREG-1609 的可燃性标准要求任何可燃性气体的体积分数<5%^[12]。

氧气是氢气燃烧的关键因素,但目前尚无统一标准规定在氦气作为惰性气体存在时,氢气燃烧所需的氧气与氢气的混合比例。Zlochower等[13]开展了一系列试验,旨在明确在氦气作为惰性气体存在的情况下,氢气燃烧所需的氧气浓度界限。限制性氧气浓度

定义为能支持火焰传播的最低氧气浓度。Zlochower 等的研究结果指出,在氢气摩尔分数变化范围为 4%~76%时,限制性氧气浓度的摩尔分数接近 5%。 此处借鉴该准则判断是否满足可燃条件。

对于空腔体积为 7 m³的容器,假设其在 25 ℃所充氦气的压力为 304 kPa,则容器中氦气的量为

$$n_{\rm He} = \frac{pV}{RT} = 859 \text{ mol} \tag{3}$$

保守假设容器中干燥后残余水量为 100 mol,该残余水将产生 100 mol 氢气与 50 mol 氧气,则氢气摩尔分数为 9.91%,而氧气摩尔分数为 4.96%<5%,由此可见在该参数下容器内部不满足可燃性条件。

3.5 密封容器对 H。的吸收

在辐射分解产物氢气被容器金属基体吸收过程中,若氢气浓度超过金属基体中的临界氢浓度阈值,则可能会对不锈钢燃料篮及容器包容边界结构的力学性能产生影响并造成力学性能降低。相关研究指出,铁基体吸收的氢体积分数需达到 10×10^6 才会引发显著的力学性能退化,表现为起泡和开裂等现象。利用西韦特定律进行估算,在室温及 0.1 MPa 的 H_2 环境中,铁基体中的氢体积分数预计为 0.9×10^9 。随着温度升高,氢浓度将依据阿伦尼乌斯温度依赖关系而增加。相关研究显示,在 300 °C和 H_2 压力为 8 MPa 时,铁基体中的氢体积分数最大值< 1×10^{-6} 1×10^{-6}

3.6 腐蚀

在蒸汽环境中,当相对湿度超过某个阈值时,可能会发生水性腐蚀。水性腐蚀包含一般性腐蚀、电偶腐蚀、应力腐蚀开裂等。对于锆而言,发生水性腐蚀的相对湿度阈值为20%;当残余水在容器中凝结时,包壳和乏燃料定位格架材料之间可能会发生电偶腐蚀;应力腐蚀开裂一般出现在异种金属材料连接处^[5]。

在乏燃料贮存初期,相对湿度大多《20%,除去残余水量过大(>50 mol)以及容器温度过低等特殊组合情况,容器内的相对湿度一般可维持<5%。容器内部结构组件、包壳及芯块将主要与氧气发生缓慢氧化反应,一方面,容器内腔、容器内部构件以及容器内所贮存的乏燃料组件总表面积大;另一方面,容器内的相对湿度低,辐照分解效应所能提供的氧气量有限,在均匀氧化腐蚀条件仅发生有限的一般性腐蚀,不会对这些组件造成危及结构安全的损伤。

当残余水在容器中凝结时,包壳和乏燃料定位格架材料之间可能发生电偶腐蚀。然而该电偶腐蚀不大可能导致燃料棒形成穿透壁的裂纹和孔洞,对组件的损害程度有限,因而不大可能影响密封容器的完整性。

在长期贮存期间,容器内部结构组件若由不同构件组成,特别是由碳钢和不锈钢组成,可能会发生应力腐蚀开裂(Stress Corrosion Cracking, SCC)。然而大部分密封容器及内部的燃料篮均采用不锈钢材料制作,不锈钢在纯水中的 SCC 仅在较高温度(通常为290℃)观察到。此时,水的饱和蒸气压高达7.5 MPa,而100 mol 残余水全部气化所引起的水蒸气分压仅为0.07 MPa,相对湿度仅为0.9%,不会形成水性腐蚀条件。

4 干燥系统

在乏燃料装载过程中,容器的干燥过程是关键步骤,其完成通常需较长时间。该过程需使用2种主要的干燥系统:真空干燥系统和强制氦循环干燥系统。前者通过降低容器内部的压力,促进残余水分的蒸发;而后者则利用循环氦气在回路中对容器进行吹扫,实现水分的去除。

4.1 真空干燥系统

4.1.1 系统简介

真空干燥过程简单有效,可去除容器中的残留水分。真空干燥系统包括真空泵、真空管道、阀门、压力表、粒子过滤器和冷阱。该系统连接容器通风口及排水口,通过降低容器内的压力,蒸发并去除残留的湿气。通过多次抽真空和充气循环,直到满足压力和保持时间的接受标准。图 5 展示了典型的真空干燥系统。

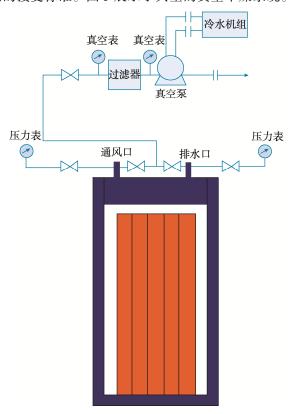


图 5 典型真空干燥系统 Fig.5 Typical vacuum drying system

该系统的干燥机制可依据水的三相平衡相图进行阐释,具体如图 6 所示。在高温低压的条件下,水蒸气作为稳定相存在,而液态水则处于不稳定状态,表现出向气态转变的倾向。因此,通过实施真空抽气操作可降低容器内的压力,促进残余水分向水蒸气的转化。

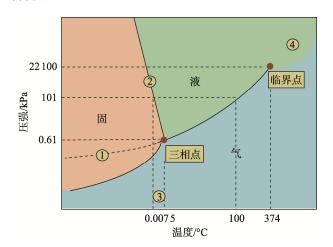


图 6 水的三相平衡相图 Fig.6 Phase diagram of the triple equilibrium of water

4.1.2 结冰

在真空干燥过程中,特别值得关注的现象是:在 压力迅速下降的情况下,密封容器内部的局部区域会 出现结冰现象。

结冰现象的机制: 当容器内的水蒸气分压降至低于液态水的饱和蒸气压时,根据道尔顿蒸发定律,液态水的蒸发速率与当前温度下水的饱和蒸气压和容器内水蒸气分压之差正相关。因此,当容器内压力迅速降低时,液态水的蒸发速率亦相应增加。

水的蒸发过程是吸热过程,所需热量通常由液态水周围的环境提供。然而,如果压力下降过快,周围环境可能无法及时提供足够热量以满足液态水快速蒸发所需的吸热量,气化所需热量差额将从直接邻近的液态水中获取,导致剩余液体温度降低发生冻结。在干燥过程中,结冰现象尤其容易发生在一些受限的空间和区域,例如管道、阀门、燃料棒包壳或乏燃料组件导向管的破损处等。

燃料棒包壳存在一定的破损率,包壳中可能存在 细小的裂纹或者孔洞。当乏燃料组件处于核电厂反应 堆堆芯高压环境中时,乏燃料包壳和内部芯块之间的 间隙会被水填满。如果小孔结冰,会导致其中的水流 出受阻或延缓,部分残余水滞留在包壳中。这在衰变 热负载较低的乏燃料组件上发生的可能性较大。

为避免结冰,真空干燥过程通常采用分阶段实施 策略,逐步降低系统压力至特定的设定点。在这些设 定点,需将容器与真空泵系统断开连接,确保容器内 部的相态变化达到相对平衡状态。待内腔压力稳定 后,重新开启真空泵阀门,继续抽提真空。根据内腔压力上升的速率与幅度,可能需多次重复上述操作。当内腔压力达到并稳定在 400 Pa 时,真空干燥过程即告完成。

4.1.3 影响乏燃料包壳的热工安全

根据法规标准,乏燃料组件包壳干燥过程的温度 $= 400 \, \circ \! \circ \! \circ$

真空干燥法面临的一项主要挑战涉及乏燃料包壳的热工安全性,该问题在高燃耗组件中尤为突出。由于高燃耗组件较中等或低燃耗组件具有更高的衰变热,因此对热工安全的限制因素更为敏感。

在容器内腔达到或接近真空状态时,其传热性能显著下降,导致乏燃料组件产生的热量无法迅速传导至容器表面。若抽真空过程持续过久,可能会引起乏燃料组件包壳温度的持续上升,进而超出其设定的温度阈值。因此,在实施抽真空干燥法时,需对干燥过程的持续时间进行严格限制。干燥时间超过预定限值时,立即向容器内腔充入干燥氦气以加速散热,并采取相应的紧急应对措施。

美国核管理委员会(Nuclear Regulatory Commission, NRC)针对 3 种不同衰变热功率组件的真空干燥过程进行了试验,未进行回充氦气冷却组件的操作,但测量了试验过程中乏燃料组件包壳轴向不同位置的最高温度^[15]。3 种模拟乏燃料组件的衰变热功率分别为 250、500、1 000 W。结果表明乏燃料包壳温度始终保持在 400 ℃的监管限值以下。值得注意的是,当在 1 000 W 衰变热负载下干燥时,包壳峰值温度约为 378 ℃,已接近限值。同时 NRC 还开展了 2 kW模拟乏燃料组件的真空干燥试验,试验过程中的乏燃料包壳温度高达 475 ℃,该温度值已显著超过 NRC规定的温度限值。

4.1.4 工作效率

由以上分析可知,为避免结冰现象并控制容器内装载的乏燃料组件温度上升,真空干燥过程不宜持续进行,需在特定压力设定点暂停,以待系统内部达到相对平衡状态。同时,可能需间歇性地停止抽取真空并注入氦气至容器腔体,以改善容器内的热传递性能。上述2种操作均会对真空干燥效率产生影响。根据行业实际操作经验,典型的乏燃料运输容器或密封容器干燥过程耗时约为20h。

4.2 强制氦循环干燥系统

4.2.1 系统简介

强制氦循环干燥过程的设备系统由压缩模块、除湿模块、氦循环模块和预热模块组成,如图 7 所示。 压缩模块的冷凝器将从容器中排出的潮湿氦气冷却 至低于其露点的温度,以降低氦气的含水量。然后, 除湿模块接收来自压缩模块的半冷却氦气,并持续将 循环氦气冷却至与水蒸气在 400 Pa 压力下的部分压力相对应的低温。此外,预热模块将循环的氦气预热至所需温度,以提高其吸收容器中的残留水分的能力。

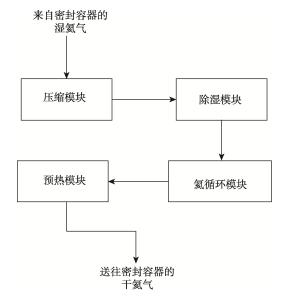


图 7 强制氦循环干燥系统^[16] Fig.7 Forced helium cycling drying system^[16]

图 8 显示了强制氦气干燥过程的压力-温度循环。潮湿的氦气从容器的通风口流出后,通过冷凝器和冷阱,其中的水分沿着路径 C-D-A 提取出来。冷阱的温度应<-6°C(在 101.3 kPa下),以便将水蒸气压力控制在 400 Pa 以下。气体循环和水分去除过程继续进行,直到沿路径 $A-B-C-D_{final}$ 的蒸汽压力<400 Pa。氦气使用预热器沿路径 A-B 加热,然后通过容器。相对干燥的氦气在容器中循环,直到氦气的露点温度达到接受标准。

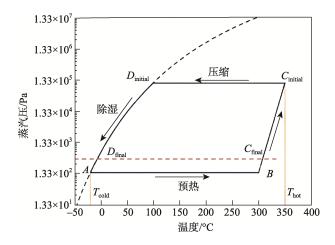


图 8 氦气干燥过程的压力-温度循环^[17] Fig.8 Pressure-temperature cycle in the helium drying process^[17]

4.2.2 结冰问题

使用氦循环强制干燥系统进行除湿包含 2 个阶

段,在第1阶段除湿模块不工作,容器中出来的氦气 携带了容器中残余水沸腾或大量蒸发所产生的水蒸 气,容器腔室内的水蒸气处于饱和状态或者接近饱和 状态,此阶段主要依靠压缩模块将氦气中所携带的水 蒸气压缩冷凝出来,当容器中的残余液态水完成气化 时,第1阶段结束;在第2阶段,除湿模块投入运行, 氦气的相对湿度持续下降,同时循环介质氦气的温度 也持续下降,除湿模块起到主要的干燥作用。

上述操作方式既可保证除湿效率,又可有效避免除湿模块可能引发的结冰问题。如果在开始时运行除湿模块的制冷单元,由于大量蒸汽冻结,系统发生结冰堵塞的可能性较高。

4.2.3 热工安全性

相关研究展示了强制氦循环冷却系统的热工安全性,分别基于衰变热功率为 1、3 kW 的模拟乏燃料开展了强制氦循环干燥试验,乏燃料包壳的温度均保持在 400 $^{\circ}$ C的监管限值以下,其中 1 kW 的模拟乏燃料最高温度约为 180 $^{\circ}$ C,3 kW 的模拟乏燃料最高温度约为 378 $^{\circ}$ C。前文所述真空干燥系统,其 2 kW 模拟乏燃料的最高温度即已高达 475 $^{\circ}$ C。这表明相对于真空干燥系统,强制氦循环干燥系统具有显著的热工安全性[15]。

4.2.4 工作效率

相关研究表明,腔室出口选择、质量流量和人口 气体温度等因素是干燥效率的主要影响因素。

基于 7 m³ 容器内腔所开展的等比例样机强制氦循环干燥试验表明,约 7 h即可完成容器的干燥操作,效率显著高于真空干燥系统的业界平均水平。

4.2.4.1 质量流量

强制氦循环干燥系统对回路的质量流量有明确的要求,质量流量应足够大,以保证在容器空腔中产生湍流,具体质量流量需依据回路、容器及其内部构件的特性分析确定。在容器腔室内形成湍流而非层流,对于保障干燥效率至关重要。

4.2.4.2 人口气体温度

通过增加容器的最大入口气体温度可缩短干燥时间。当容器入口气体温度更高时,氦气单位时间内传递给容器内残余水的热量更多,残余水分更早开始大量蒸发或沸腾。

4.2.4.3 容器腔室出口选择

选择容器的排水口作为进气口具有更高的干燥效率。因为排水和吹扫操作后,腔室内大部分水分积聚于腔室底部。因此,当加热后的气体进入排水管时,腔室底部的水分温度迅速上升。相比之下,在加热气体进入通风口的情况下,气体热量会向腔室顶部的多种表面传递,导致热量损失(即气体温度降低)。这使腔室底部的大量水分无法立即蒸发,需腔室整体积累足够的热能^[15]。

5 结语

在乏燃料贮运容器的装载过程中, 腔室的干燥操作是至关重要的环节, 其对确保贮运过程的安全性发挥着关键作用。

基于调研分析对腔室内残余水量进行了估算。以标准腔室容积为 7 m³、装载 21 组乏燃料组件的容器为例,干燥完成后,腔室内的自由态水量约为 50 mL,而结合态水量为 18 mL~1.8 L。

残余水的存在可能通过多种机制对乏燃料贮运安全性产生影响,包括包壳氧化、芯块氧化、包壳吸氢、容器结构材料吸氢、可燃气体产生以及水性腐蚀等。鉴于包壳在反应堆核心已遭受强烈氧化,预计此阶段的包壳氧化不会对安全性产生显著影响;然而,在存在破损组件的情况下,芯块氧化可能成为关注焦点,可能导致包壳破损及芯块散落;氢在包壳和容器结构材料中的吸收率极低,预计不会对安全性产生显著影响;可燃气体的产生情况因容器容积和氦气回充压力的不同而异,需针对具体案例进行分析;水性腐蚀的影响总体可忽略不计。

本研究还对 2 种典型的容器干燥系统进行了深入分析。真空干燥系统以其系统配置简单而具有优势,但存在结冰、热工安全性以及干燥效率受限等问题;而强制氦循环干燥系统虽系统配置较为复杂,但能有效避免结冰问题,确保乏燃料组件在干燥过程中有效散热,并具有更高的干燥效率。影响强制氦循环干燥系统效率的因素包括系统质量流量、容器入口气体温度、容器腔室出口选择等。

参考文献:

- [1] 卢可可,张白茹. 乏燃料运输容器排水及干燥方法浅析[J]. 科技视界, 2017(35): 78-79.

 LU K K, ZHANG B R. Analysis of Drainage and Drying Methods of Spent Fuel Transport Container[J]. Science &
- [2] Spent Fuel Project Office. Cladding Considerations for the Transportation and Storage of Spent Fuel: Interim Staff Guidance-11[R]. Washington, DC, USA: US Nuclear Regulatory Commission, 2001.

Technology Vision, 2017(35): 78-79.

- [3] US Nuclear Regulatory Commission. Standard Review Plan for Spent Fuel Dry Storage Systems at a General License Facility: NUREG-1536[R]. Washington, DC, USA: US Nuclear Regulatory Commission, 2010.
- [4] KOHLI R, STAHL D, PASUPATHI V, et al. The Behavior of Breached Boiling Water Reactor Fuel Rods on Long-Term Exposure to Air and Argon at 598 K[J]. Nuclear Technology, 1985, 69(2): 186-197.

- [5] AHN T, JUNG H, SHUKLA P, et al. Extended Storage and Transportation: Evaluation of Drying Adequacy: NRC-02-07-006[R]. Washington, DC, USA: US Nuclear Regulatory Commission, 2011.
- [6] USA Department of Energy's Office of Civilian Radioactive Waste Management. Initial Cladding Condition: ANL-EBS-MD-000048[R]. Las Vegas, Nevada, USA: Office of Civilian Radioactive Waste Management, the USA Department of Energy, 2000.
- [7] POWERS D A, GRAY H B. Characterization of the Thermal Dehydration of Zirconium Oxide Halide Octahydrates[J]. Inorganic Chemistry, 1973, 12(11): 2721-2726.
- [8] MCEACHERN R J, TAYLOR P. A Review of the Oxidation of Uranium Dioxide at Temperatures below 400 °C[J]. Journal of Nuclear Materials, 1998, 254(2/3): 87-121.
- [9] EINZIGER R E, COOK J A. Behavior of Breached Light Water Reactor Spent Fuel Rods in Air and Inert Atmospheres at 229 °C[J]. Nuclear Technology, 1985, 69(1): 55-71.
- [10] US Nuclear Regulatory Commission. Classifying the Condition of Spent Nuclear Fuel for Interim Storage and Transportation Based on Function: Interim Staff Guidance-1[R]. Rockville, Maryland, USA: US Nuclear Regulatory Commission, 2007.
- [11] MIYAKE M, UNO M, YAMANAKA S. On the Zirco-

- nium-Oxygen-Hydrogen Ternary System[J]. Journal of Nuclear Materials, 1999, 270(1/2): 233-241.
- [12] US Office of Nuclear Material Safety and Safeguards. Standard Review Plan for Transportation Packages for Radioactive Material: NUREG-1609[R]. Washington, DC, USA: US Nuclear Regulatory Commission, 2020.
- [13] ZLOCHOWER I A, GREEN G M. The Limiting Oxygen Concentration and Flammability Limits of Gases and Gas Mixtures[J]. Journal of Loss Prevention in the Process Industries, 2009, 22(4): 499-505.
- [14] SANCHEZ J, RIDRUEJO A, DE ANDRES P L. Diffusion and Trapping of Hydrogen in Carbon Steel at Different Temperatures[J]. Theoretical and Applied Fracture Mechanics, 2020, 110: 102803.
- [15] PERRY J E. Experimental Evaluation of Drying Spent Nuclear Fuel for Dry Cask Storage through Vacuum and Forced Helium Dehydration[D]. Columbia, SC, USA: University of South Carolina, 2021.
- [16] D'ENTREMONT A, SMITH R, RIRSCHL C, et al. Drying of Spent Nuclear Fuel: Considerations and Examples[J]. Nuclear Technology, 2024, 210(9): 1639-1647.
- [17] LEE J C, BANG K S, YU S H, et al. Comparison of Vacuum and Forced Helium Drying Methods for Dry Storage of Spent Nuclear Fuel[C]//Transactions of the Korean Nuclear Society Spring Meeting. Jeju, Korea: the Korean Nuclear Society, 2017: 17S-384.