

乏燃料后处理厂批式溶解器残渣处理技术研究

李杰 牛小惠

中核龙安有限公司 浙江 台州 318000

【摘要】：乏燃料后处理厂的批式溶解器在剪切溶解工序中，除产生化学不溶性残渣外，还会因剪切过程导致包壳碎片掉落至溶解器底部，形成以锆合金或不锈钢为主的固体残渣。该类残渣比活度高、数量可观，且会吸附铀钚等锕系元素，长期堆积会严重影响溶解器的传热性能和工艺生产。本文以溶解器底部残渣为研究对象，分析了其形成机制、工程危害，调研国内外主流处理技术，并针对国内处理技术特点，提出了相应的改进建议。可为国内后处理厂溶解器残渣处理系统的优化提供参考。

【关键词】：乏燃料后处理；批式溶解器；剪切包壳；包壳残渣；锆合金

DOI:10.12417/2705-0998.26.07.015

1 引言

乏燃料后处理厂的剪切溶解工序是 PUREX 流程的首端环节。剪切机将乏燃料组件切成短段，使芯块暴露于硝酸中而发生溶解反应。批式溶解器由于结构紧凑、临界安全性好，被广泛应用于中试规模及部分商业后处理厂。在剪切进料过程中，燃料芯块溶解后进入溶液，而包壳段因化学惰性不溶于硝酸，部分以固体碎片形式沉降于溶解器底部。这部分残渣被称为“溶解器残渣”。

目前，国内外对于化学不溶性残渣的研究较多，但对于溶解器底部残渣的专项处理技术论述尚不系统。我国动力堆乏燃料后处理中试厂虽已成功运行，但溶解器底部包壳残渣的常态化清理和后续处理工艺仍有待完善。本文聚焦于批式溶解器底部包壳残渣的形成、危害及处理技术，结合国际经验与工程实践，对国内后处理厂的处理技术提出建议。

2 溶解器残渣的形成与特性

2.1 溶解器结构及工作原理

在批式溶解器中，剪切短段从溶解器溜槽管投入，进入溶解器大吊篮，燃料芯块 UO_2 在大吊篮中与 HNO_3 发生反应溶解，包壳留在大吊篮中，为防止包壳碎屑从大吊篮孔进入溶解器底部，造成出料管线堵塞，在大吊篮下方增加小吊篮，进一步过滤包壳碎屑。

UO_2 溶解在硝酸中的主要的化学反应为：

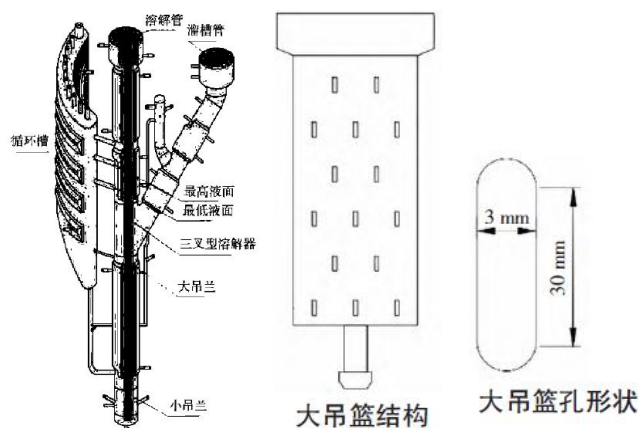
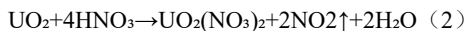
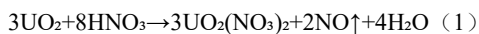


图1 批式溶解器简图

2.2 残渣的形成机制

在低燃耗组件溶解过程中，大部分裂变产物都溶解于硝酸溶液中。但溶解液中不溶性残渣含量与乏燃料燃耗深度有关，燃耗增加不溶残渣量随之增加，当燃耗大于 $30000 MW \cdot d/tU$ 时，有些元素，如钼、锆、钇、铈、钡、铷等在燃料中的含量可能高于该元素在溶解液中的溶解度，因此会有不溶性残渣存在，不溶残渣量大约为轴量的 $0.1\% \sim 0.3\%$ 。溶解液中 Zr 和 Mo 还会以 $Zr(MoO_4)_2 \cdot nH_2O$ 化合物产生沉淀，我们称之为二次沉淀，它与料液的存放时间、酸度、温度都有关系。

同时，组件经辐照后，包壳材料有显著的脆化现象，经剪切机剪切后，包壳破碎较多，碎裂程度显著，包壳碎屑会通过大吊篮细孔进入底部的小吊篮，同时部分包壳碎屑沉积在小吊篮和基座间隙中，后续包壳吊篮在起吊过程中会落入溶解器底部。

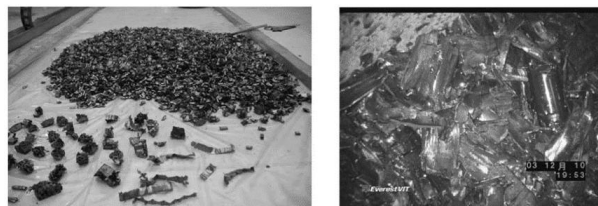


图2 包壳图

2.3 残渣放射性来源及水平

乏燃料组件在堆内辐照过程中，裂变产物会通过反冲和扩散沉积在包壳内壁。芯块破损时，燃料碎片也会粘附于包壳外壁。溶解后，这些表面污染物部分脱落进入溶液，但仍有一定量牢固吸附于包壳基体上。主要核素包括长寿命裂变产物⁹⁰Sr、¹³⁷Cs、⁹⁹Tc及部分稀土元素。

实测数据显示，典型压水堆锆包壳残渣的表面接触剂量率可达10~100 Gy/h，比活度约 $1 \times 10^5 \sim 1 \times 10^6 \text{Bq/g}^{[8]}$ 。其中约70%的 γ 活度来自¹³⁷Cs和⁶⁰Co。

2.4 残渣累积影响

剪切包壳残渣在批式溶解器底部的长期堆积会导致以下问题：

- (1) 传热恶化：残渣层导热率低，阻碍溶解器夹套加热介质向溶液的热量传递，延长溶解时间；
- (2) 残渣中含有的裂变产物释放衰变热，可能导致局部过热；
- (3) 设备腐蚀风险：长期压实的包壳碎屑与器壁发生点蚀、缝隙腐蚀甚至烧结；
- (4) 工艺运行风险：包壳碎屑长时间积累会堆积在倒料蒸汽喷射泵吸入管口，造成泵的喉管堵塞，导致工艺停车的风险。
- (5) 随溶解器运行批次增加，残渣层不断压实，底部可能形成致密的“硬底”，导致后续清理困难。

3 国内外处理技术

3.1 法国阿格后处理厂

法国是乏燃料后处理领域的技术领先者，其阿格后处理厂采用的是连续溶解器，溶解器结构与批式有很大的区别，通过溶解器内部的排渣系统进行残渣处理。

排渣系统处理残渣的过程为：向脉冲吹扫装置内通入一定量的压缩空气，在压缩空气的推动下，脉冲吹扫装置内的液体从喷嘴射流而出，形成的液体射流将沉积在扁平槽底部斜面的残渣吹扫到扁平槽底部的最低处。再用空气提升装置将扁平槽底部最低处的溶液连同残渣向上输运，经气液分离后，携带残渣的溶液经回流管进入分料装置的进料仓，然后进入装有短段的接料斗内，随包壳进入下一环节的处理。

3.2 俄罗斯 RT-1 厂

俄罗斯马亚克联合体的 RT-1 后处理厂处理 VVER-440 乏燃料，包壳为锆合金。其特点是在溶解器底部设置旋转刮刀和吸出泵，在溶解过程中即可持续抽出包壳碎片，送至筒式破碎机和酸洗罐。碎片最终与熔融的铅或硼硅酸盐玻璃混合，铸造成金属固化体，埋入地下混凝土窖^[9]。

3.3 国内后处理厂

国内后处理厂采用自然循环批式溶解器，配套沉降离心机用于去除溶解料液中的悬浮不溶物。对于溶解器残渣，国内后处理厂目前主要依赖人工远程清理。清理流程如下：

(1) 物资准备：

准备情况如表 1 所示：

表 1 物资准备

序号	名称	规格	数量
1	压空喷射器	/	1 台
2	中间容器	/	1 台
3	软管	(与中间容器、压空喷射器接口匹配)	2 卷
4	临时摄像头		2 台

(2) 打开热室人孔门，将组装好的回取装置及摄像头转入热室，操作热室吊车将溶解器塞子打开，连接压空喷射管线及软管深入溶解器底部。

(3) 开启压空喷射器，进行残渣回取，并通过摄像头观察残渣清理情况。

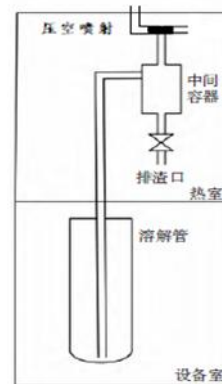


图 3 残渣回取示意图

清理效果：经操作员通过临时摄像头对溶解器底部进行观察，出料口附近除底部边缘外无明显残渣，启动溶解器出料操作，料液在规定时间内完成出料，满足生产运行需求。

存在的问题：

(1) 压空喷射器出口位于热室内，可能给热室负压调节带来挑战，严重时可能造成热室负压不满足要求，导致热室不同排风梯度出现紊乱，污染热室较低区域。

(2) 中间容器只能使用一次，增加了固体废物的产生。

4 结论与建议

(1) 剪切包壳残渣沉积在溶解器底部，如不及时处理，将会堵塞出料管线，严重时造成出料管线失效，生产停车，根

据残渣形成的机制及累计危害性,建议批式溶解器在临时停车时,尽快倒空溶解液,避免溶解液在底部停留时间过长,产生二次沉淀。同时不宜等到大修再处理包壳残渣,而应建立每5~10批次排出一小吊兰残渣,每年至少两次清理底部残渣的规程,排出前需用惰性气体吹扫溶解器,带走放射性气溶胶。

(2) 国外溶解器是连续溶解器,与国内溶解器原理结构有很大的区别,残渣处理技术可参考内容较少。国内残渣处理技术已自有特色,但还是存在对热室气氛影响及不满足固体废

物最小化原则等问题,建议将压空喷射器出口通过活连接引出热室,同时将中间容器接口改为便于拆卸的活接头,方便二次利用,减少固体废物量。

(3) 在满足后续工序要求的情况下,尽量提高组件剪切机长度,避免产生过碎的包壳段。在保证芯块完全溶解的前提下,适当降低酸浓度和温度,可减弱包壳表面的腐蚀和点蚀,减少放射性核素的吸附面积。

参考文献:

- [1] 刘郢,夏良树,陈勇.乏燃料后处理工程工艺设计[M].北京:中国原子能出版社,2016.
- [2] 郑瑞堂,张平,李华.乏燃料溶解器底部残渣清理技术研究[J].核化学与放射化学,2018,40(5):321-327.
- [3] 姜小刚,王伟,刘洋.铅包壳残渣酸洗去污及压缩减容试验研究[J].辐射防护,2021,41(4):340-346.
- [4] 日本原子力研究開発機構.使用済燃料再処理施設におけるせん断クラッド処理技術の開発[R].JAEA-Research 2015-012.
- [5] OECD/NEA.Management of Recyclable Fissile and Fertile Materials[R].NEA No.7326,2020.
- [6] 李金英,赵永刚.乏燃料后处理技术概论[M].北京:中国环境出版社,2012.
- [7] 阎昌琪,曹夏昕.核燃料后处理工程[M].哈尔滨:哈尔滨工程大学出版社,2017.
- [8] Salazar E,Rodriguez A,Fernandez M.Zircaloy cladding hulls treatment by hot pressing and cementation[J].Waste Management,2012,32(3):486-492.
- [9] 中国核工业集团.动力堆乏燃料后处理中试厂运行报告[R].北京:中核集团,2017.
- [10] IAEA.Management of Radioactive Waste from the Reprocessing of Spent Nuclear Fuel[R].IAEA-TECDOC-1878,Vienna,2019.
- [11] 文正伟,李鸿祥.核化工行业溶解器溶解过程控制研究[J].化机与设备.2026年第1期.
- [12] 孟俊红,任正茂.中试厂剪切机系统阶段性剪切功能验证及调整[J].中国核科学技术进展报告(第二卷).核化工分卷.2011.
- [13] 刘郢,马敬.动力堆乏燃料溶解设计问题探讨[J].产业与科技论坛.2014年第13卷第8期.