

核燃料工艺技术丛书

# 放射性同位素提取及 制源工艺

丛书主编 王俊峰

主 编 陆治美

副主编 王 邵 卢建荣 蔡 清

013033703

TL92  
04

核燃料工艺技术丛书

# 放射性同位素提取及 制源工艺

丛书主编 王俊峰

主 编 陆治美

副 主 编 王 邵 卢建荣 蔡 涛



本书由中核四〇四有限公司资助出版



北航 C1641143

中国原子能出版社

TL92  
04

## 图书在版编目(CIP)数据

放射性同位素提取及制源工艺/陆治美主编.  
—北京:中国原子能出版社,2012.6  
(核燃料工艺技术丛书/王俊峰主编)  
ISBN 978-7-5022-5533-6

I. ①放… II. ①陆… III. ①放射性同位素—提取  
②放射性同位素—制备 IV. ①TL92

中国版本图书馆 CIP 数据核字(2012)第 110991 号

## 内 容 简 介

本书系统、详细地介绍了放射性同位素提取、分离与制源原理、方法。主要内容包括放射性同位素的来源,高放废液与放射性同位素提取的关系,放射性同位素提取,分离中常用的工艺技术——溶剂萃取和离子交换工艺原理,超铀同位素和裂片元素(包括<sup>237</sup>Np、<sup>241</sup>Am、<sup>242</sup>Cm、<sup>244</sup>Cm、<sup>252</sup>Cf、<sup>137</sup>Cs、<sup>90</sup>Sr、<sup>147</sup>Pm、<sup>99</sup>Tc、<sup>85</sup>Kr等)生产工艺原理、方法和应用,放射性同位素源制备原理和方法等。

本书可供从事放射性同位素生产和研究的专业技术人员、管理人员阅读,也可供大专院校相关专业的师生参考。

## 放射性同位素提取及制源工艺

**出版发行** 中国原子能出版社(北京市海淀区阜成路 43 号 100048)  
**责任编辑** 杨树录 卫广刚  
**技术编辑** 丁怀兰  
**责任印制** 潘玉玲  
**印 刷** 北京盛通印刷股份有限公司  
**经 销** 全国新华书店  
**开 本** 787 mm×1092 mm 1/16  
**印 张** 22.75    **字 数** 593 千字  
**版 次** 2012 年 12 月第 1 版 2012 年 12 月第 1 次印刷  
**书 号** ISBN 978-7-5022-5533-6              **定 价** 106.00 元

## 《核燃料工艺技术丛书》 编 委 会

### 编审委员会

主 编 王俊峰  
副 主 编 张天祥 姚守忠 胡晓丹 韩建平 李江颖 张燕春  
常务副主编 张天祥 胡晓丹  
委 员 (按姓氏笔画为序)  
丁戈龙 于红箭 王 健 王春生 王剑英 车明生  
卢明义 任凤仪 刘坤贤 闫心智 李天福 杨掌众  
吴 伟 吴印清 吴秋林 张 伟 张文祥 张慧忠  
陆治美 陈永红 周镇兴 栗万仁 贾瑞和 高义伦  
高天祥 陶精言 第五永清 章泽甫 梁淑珍 董俊明  
韩秉魁 惠宏伟 景风坤 程沁澄

### 办公室

主 任 丁戈龙  
副 主 任 刘文彬 代云水  
成 员 (按姓氏笔画为序)  
王 邵 王海峰 刘大伟 吴艳平 余东昌 徐玉杰  
蒋建国

## 《核燃料工艺技术丛书》 编辑出版委员会 (中国原子能出版社)

主 任 侯惠群

副 任 杨树录

成 员 (按姓氏笔画为序)

丁怀兰 卫广刚 王 丹 王 青 王艳丽 刘 岩  
刘 朔 张关铭 张锐清 赵志军 侯革方 韩 霞  
谭 俊

《放射性同位素提取及制源工艺》  
编 审 人 员

主 编 陆治美

副 主 编 王 邵 卢建荣 蔡 涛

参与编写人员 (按姓氏笔画为序)

丁戈龙 王朝阳 代云水 孙志杰 余东昌

审 校 人 员 (按姓氏笔画为序)

马栩泉 杨掌众 徐长林 章泽甫 焦荣洲

## 总序

核燃料循环产业是核工业发展的基础。核燃料循环产业的工业体系建设是核工业核心能力的重要组成部分。掌握核燃料循环工业体系各环节的专门工艺和技术是实现核燃料循环的理论向实践、科研实验向工业生产转化的关键环节。

经过五十多年的努力奋斗,特别是经过老一辈核燃料循环专家的刻苦攻关,我国相继突破了铀转化、核燃料后处理、铀钚冶金、氟生产等核燃料循环中的关键工艺环节,取得了一大批创新成果,积累了大量的宝贵经验和工艺技巧,为我国核工业的快速发展奠定了坚实的基础。

为了系统地总结我国核燃料循环领域工艺技术的自主创新成果,借鉴吸收国外同行的最新进展,在广泛吸取我国核燃料各领域专家意见的基础上,中国核工业集团公司所属中核四〇四有限公司、中国原子能科学研究院联合清华大学,历时四年,终于将《核燃料工艺技术丛书》编辑出版。

作为一名长期从事核燃料循环领域科研和生产的科技工作者,我对于核燃料循环技术在向工业化转化中突破工艺和掌握技术的复杂性和艰巨性有着深刻的体会,对于殚精竭智、献身于我国核燃料循环的众多专家学者怀有由衷的敬意和深厚的感情,对于我国核燃料循环产业的发展壮大充满无限的期望和信心。

我相信,此套丛书的出版必将促进我国核燃料循环领域工艺技术的系统化和科学化发展,推动核燃料循环产业的不断技术创新与进步,鼓舞和激励核燃料循环科研生产一线的广大干部职工,薪火相传,奋发图强,为我国核燃料循环产业的持续健康发展做出更大的贡献。

最后,感谢长期以来大力支持中国核工业集团公司核燃料循环产业的国家相关部委和地方政府的各级领导,感谢长期关心指导中国核工业集团公司核燃料循环产业发展的各领域的专家学者。

祝我国核燃料循环领域的工艺技术不断取得新的突破,我国核燃料循环产业取得更大的发展。

中国核工业集团公司总工程师

雷增光

2011年12月

## 序

随着国民经济和核技术的发展,放射性同位素的应用越来越广泛,而放射性同位素的提取与制源是放射性同位素应用的基础。目前,国内有关放射性同位素提取与制源的书籍较少,因而《放射性同位素提取及制源工艺》一书的出版可以说是恰逢其时。该书的出版对推动我国同位素生产、应用技术的发展将会产生较大的影响。

本书系统、详细地介绍了高放废液与放射性同位素的提取方法以及二者的关系,放射性同位素提取,分离中常用的工艺技术——溶剂萃取和离子交换工艺原理;超铀同位素和裂片元素(包括<sup>237</sup>Np、<sup>241</sup>Am、<sup>242</sup>Cm、<sup>244</sup>Cm、<sup>252</sup>Cf、<sup>137</sup>Cs、<sup>90</sup>Sr、<sup>147</sup>Pm、<sup>99</sup>Tc、<sup>85</sup>Kr等)生产工艺原理、方法和应用,放射性同位素源制备原理和方法等。

作者多年来从事放射性同位素生产与制源的研究与实践,本书是他们在多年的研究和生产实践的基础上,综合国内外本领域的最新研究成果和应用经验编纂而成的,内容丰富、数据翔实,具有较强的实用性。

《放射性同位素提取及制源工艺》一书对于从事相关工作的生产技术人员、工程技术人员等了解、掌握和应用相关理论和技术,指导生产和应用将有重要作用,对大、专院校相关专业的师生也具有参考价值。

我衷心祝贺本书的出版发行,也非常愿意向广大读者推荐此书。

中国工程院院士



2012年11月

## 前　　言

随着我国国民经济快速发展,放射性同位素在工业、农业、医疗卫生、航空航天、科学等领域中的应用越来越广泛。近年来,放射性同位素生产技术得到了快速发展。在放射性同位素生产、应用中,放射性同位素提取、分离及制源处于重要地位。本书结合多年的同位素生产、应用经验,在广泛调研的基础上,总结了从高放废液中提取、分离各种常用同位素的技术和制源方法。

全书共分 11 章和 3 个附录。第 1 章介绍了放射性同位素的来源、乏燃料后处理的重要性、高放废液与放射性同位素提取的关系、裂变产物与超铀同位素的用途;第 2 章和第 3 章介绍了放射性同位素提取、分离中常用的工艺技术——溶剂萃取和离子交换,重点介绍了两种工艺的基本原理和工艺技术设备及其操作方法;第 4 章至第 10 章介绍了超铀同位素和裂片元素(包括<sup>237</sup>Np、<sup>241</sup>Am、<sup>242</sup>Cm、<sup>244</sup>Cm、<sup>252</sup>Cf、<sup>137</sup>Cs、<sup>90</sup>Sr、<sup>147</sup>Pm、<sup>99</sup>Tc、<sup>85</sup>Kr 等)的生产工艺原理、过程和应用技术;第 11 章介绍了放射性同位素源的制备工艺,包括  $\gamma$  辐射源、 $\beta$  辐射源、 $\alpha$  辐射源、中子辐射源、低能光子辐射源等的制备工艺。3 个附录分别介绍了常用放射性核素的衰变纲图、密封放射源泄漏检验方法、密封放射源的一般要求和分级等。

本书由多位具有丰富理论知识和实践经验的技术人员合作编写。具体执笔的同志有蔡涛(第 1 章),王邵、代云水(第 2~3 章),王朝阳(第 4~5 章),陆治美(第 6~10 章),卢建荣(第 11 章),孙志杰、余东昌(附录)。蔡涛、王邵、丁戈龙、卢建荣同志对全书进行了认真的统稿。

中国工程院院士陈念念为本书作了序。马栩泉、徐长林、焦荣洲、章泽甫、杨掌众等专家分别对全书进行了认真审阅,并提出了许多宝贵的建议和修改意见。中核四〇四有限公司核信息中心的诸位同志及余东昌、黄莹同志为本书出版做了大量的工作,对此我们一并表示衷心感谢。

在本书的编写过程中,也得到了有关领导和专家的大力支持和帮助,谨向他们表示谢意。

由于编者水平有限,不足之处在所难免,敬请读者批评指正。

编著者

2011 年 10 月

# 目 录

<b>第 1 章 概 论 .....</b>	( 1 )
1.1 放射性同位素的来源 .....	( 1 )
1.2 核燃料后处理简介 .....	( 2 )
1.2.1 核燃料后处理在核工业发展中的重要性及地位 .....	( 2 )
1.2.2 普雷克斯流程简述 .....	( 2 )
1.2.3 放射性同位素提取与高放废液处理的关系 .....	( 3 )
1.3 核燃料后处理中放射性同位素的特性 .....	( 4 )
1.4 裂变产物和超铀同位素的用途 .....	( 6 )
1.5 核燃料后处理中放射性同位素提取的基本情况 .....	( 7 )
参考文献 .....	( 8 )
<b>第 2 章 溶剂萃取工艺 .....</b>	( 9 )
2.1 溶剂萃取的基本原理 .....	( 9 )
2.1.1 溶剂萃取基本概念 .....	( 9 )
2.1.2 分配定律与萃取平衡 .....	( 10 )
2.1.3 溶剂萃取体系分类 .....	( 14 )
2.2 萃取剂与稀释剂 .....	( 18 )
2.2.1 萃取剂 .....	( 18 )
2.2.2 稀释剂 .....	( 24 )
2.3 溶剂萃取的工艺过程 .....	( 25 )
2.3.1 溶剂萃取体系的组成及一般流程 .....	( 25 )
2.3.2 萃取操作方式 .....	( 26 )
2.4 萃取动力学 .....	( 30 )
2.4.1 溶剂萃取的界面传质速率 .....	( 30 )
2.4.2 溶剂萃取的化学反应速率 .....	( 31 )
2.4.3 溶剂萃取体系的相分离速率和乳化 .....	( 32 )
2.5 萃取设备 .....	( 33 )
2.5.1 混合澄清槽 .....	( 34 )
2.5.2 脉冲萃取柱 .....	( 47 )
2.5.3 离心萃取器 .....	( 55 )
参考文献 .....	( 60 )
<b>第 3 章 离子交换工艺 .....</b>	( 61 )
3.1 离子交换剂 .....	( 62 )
3.1.1 天然无机离子交换剂 .....	( 62 )
3.1.2 合成无机离子交换剂 .....	( 63 )

3.1.3 天然有机离子交换剂 .....	( 64 )
3.1.4 合成有机离子交换剂 .....	( 65 )
3.1.5 无机离子交换剂和有机离子交换剂比较 .....	( 65 )
3.2 离子交换树脂 .....	( 66 )
3.2.1 离子交换树脂分类 .....	( 66 )
3.2.2 离子交换树脂性能 .....	( 67 )
3.3 离子交换平衡 .....	( 71 )
3.3.1 离子交换选择性 .....	( 72 )
3.3.2 分配比与分离系数 .....	( 74 )
3.3.3 络合剂对分离系数的影响 .....	( 75 )
3.4 离子交换动力学 .....	( 76 )
3.4.1 离子交换速度 .....	( 76 )
3.4.2 影响离子交换速度的主要因素 .....	( 77 )
3.5 离子交换分离技术 .....	( 78 )
3.5.1 树脂的选择 .....	( 79 )
3.5.2 树脂的预处理 .....	( 80 )
3.5.3 交换柱的选择、装柱和转型 .....	( 80 )
3.5.4 离子交换分离操作 .....	( 81 )
3.5.5 离子交换设备 .....	( 89 )
3.6 高压离子交换法 .....	( 90 )
3.6.1 高压离子交换法的特点 .....	( 90 )
3.6.2 高压离子交换排代分离装置 .....	( 91 )
参考文献 .....	( 94 )
<b>第4章 <math>^{237}\text{Np}</math> 的回收及应用 .....</b>	<b>( 95 )</b>
4.1 $^{237}\text{Np}$ 的性质 .....	( 95 )
4.2 锝的萃取化学 .....	( 96 )
4.2.1 锝的水溶液化学 .....	( 97 )
4.2.2 锝的 TBP 萃取化学 .....	( 100 )
4.2.3 锝的 TRPO 萃取化学 .....	( 102 )
4.2.4 其他萃取剂对镎的萃取性能 .....	( 104 )
4.3 回收 $^{237}\text{Np}$ 的途径和工艺流程 .....	( 104 )
4.3.1 Purex 流程中分离镎 .....	( 105 )
4.3.2 从高放废液中提取镎 .....	( 108 )
4.3.3 两种提取镎方法的比较 .....	( 111 )
4.4 锝的最终纯化与转化 .....	( 113 )
4.4.1 阴离子交换法纯化镎 .....	( 113 )
4.4.2 阳离子交换法除钍 .....	( 122 )
4.4.3 锝的沉淀 .....	( 123 )
4.4.4 草酸镎的焙烧 .....	( 125 )

4.5 $^{237}\text{Np}$ 的应用 .....	(126)
4.5.1 锋靶的照射 .....	(127)
4.5.2 $^{237}\text{Np}$ 和 $^{238}\text{Pu}$ 的分离 .....	(128)
4.5.3 钚的沉淀及转化 .....	(129)
参考文献 .....	(129)
<b>第 5 章 其他超铀同位素的提取及应用 .....</b>	(132)
5.1 $^{241}\text{Am}$ 的提取及应用 .....	(132)
5.1.1 $^{241}\text{Am}$ 的性质 .....	(132)
5.1.2 $^{241}\text{Am}$ 的提取 .....	(134)
5.1.3 $^{241}\text{Am}$ 的应用 .....	(140)
5.2 $^{242}\text{Cm}$ 、 $^{244}\text{Cm}$ 的提取及应用 .....	(141)
5.2.1 性质及制备方法 .....	(141)
5.2.2 提取工艺 .....	(143)
5.2.3 应用 .....	(146)
5.3 其他超铀同位素的回收及应用 .....	(146)
5.3.1 $^{252}\text{Cf}$ 的性质 .....	(146)
5.3.2 $^{252}\text{Cf}$ 的合成和生产 .....	(149)
5.3.3 化学分离 .....	(153)
5.3.4 $^{252}\text{Cf}$ 的应用 .....	(158)
参考文献 .....	(159)
<b>第 6 章 <math>^{137}\text{Cs}</math> 的提取及应用 .....</b>	(162)
6.1 $^{137}\text{Cs}$ 的性质及应用 .....	(162)
6.2 锶的提取方法 .....	(163)
6.2.1 沉淀法 .....	(163)
6.2.2 萃取法 .....	(164)
6.2.3 离子交换法 .....	(164)
6.3 磷酸锆提取 $^{137}\text{Cs}$ 的工艺流程 .....	(166)
6.3.1 吸附条件的选择及吸附过程的影响因素 .....	(168)
6.3.2 杂质元素的去除 .....	(170)
6.3.3 锶的洗提 .....	(170)
6.3.4 ZrP 交换剂的再生及循环使用 .....	(171)
6.4 $^{137}\text{Cs}$ 的沉淀转型 .....	(171)
6.4.1 甲醛脱硝 .....	(171)
6.4.2 从硝酸体系中结晶四草酸铯 .....	(173)
6.4.3 四草酸铯焙烧转化成碳酸铯 .....	(175)
6.4.4 氯化铯的制备 .....	(175)
参考文献 .....	(176)
<b>第 7 章 <math>^{90}\text{Sr}</math> 的提取及应用 .....</b>	(177)
7.1 $^{90}\text{Sr}$ 的性质及应用 .....	(177)

7.2 锶和稀土元素提取、分离的基本原理.....	(178)
7.2.1 D <sub>2</sub> EHPA 的结构和物理性质 .....	(178)
7.2.2 D <sub>2</sub> EHPA 的萃取性能 .....	(179)
7.2.3 D <sub>2</sub> EHPA 共萃取锶和稀土元素的基本原理 .....	(180)
7.2.4 D <sub>2</sub> EHPA 分离锶和稀土元素的工艺流程 .....	(180)
7.2.5 萃取设备和主要控制参数 .....	(181)
7.3 锶和稀土元素提取、分离的工艺过程.....	(183)
7.3.1 料液的调制 .....	(183)
7.3.2 1A 共萃取槽 .....	(185)
7.3.3 1B 锶反萃槽 .....	(189)
7.3.4 1C 稀土反萃槽 .....	(191)
7.3.5 溶剂再生 .....	(191)
7.4 <sup>90</sup> Sr 的纯化 .....	(191)
7.4.1 EDTA 的络合性能 .....	(192)
7.4.2 <sup>90</sup> Sr 纯化的基本原理 .....	(192)
7.4.3 <sup>90</sup> Sr 纯化的工艺流程 .....	(194)
7.5 钛酸锶的制备 .....	(202)
7.5.1 纯度要求 .....	(203)
7.5.2 钛酸锶的制备过程 .....	(203)
参考文献.....	(206)
<b>第8章 <sup>147</sup>Pm 的提取及应用 .....</b>	(207)
8.1 <sup>147</sup> Pm 的性质及应用 .....	(207)
8.2 <sup>147</sup> Pm 的提取纯化原理 .....	(209)
8.2.1 络合剂的选择 .....	(211)
8.2.2 排代剂的组成 .....	(211)
8.2.3 阻滞离子(又称延缓离子) .....	(212)
8.2.4 过程原理 .....	(213)
8.3 <sup>147</sup> Pm 的提取纯化工艺 .....	(214)
8.3.1 <sup>147</sup> Pm 提取纯化工艺流程 .....	(214)
8.3.2 影响钷纯化过程的主要因素 .....	(217)
8.4 氧化钷的制备与性质 .....	(219)
8.4.1 氧化钷的制备 .....	(219)
8.4.2 氧化钷的性质 .....	(222)
参考文献.....	(223)
<b>第9章 <sup>99</sup>Tc 的提取及应用 .....</b>	(224)
9.1 <sup>99</sup> Tc 的性质及应用 .....	(224)
9.2 <sup>99</sup> Tc 的提取方法 .....	(225)
9.2.1 萃取法 .....	(225)
9.2.2 离子交换法 .....	(226)

9.3 阴离子交换法提取 <sup>99</sup> Tc .....	(226)
9.3.1 影响 <sup>99</sup> Tc 分配系数的因素 .....	(226)
9.3.2 <sup>99</sup> Tc 的洗提 .....	(228)
9.3.3 <sup>99</sup> Tc 提取的工艺流程 .....	(228)
9.4 <sup>99</sup> Tc 的纯化 .....	(229)
9.5 硫化锝的制备工艺 .....	(230)
参考文献.....	(230)
<b>第 10 章 <sup>85</sup>Kr 的回收及应用 .....</b>	<b>(231)</b>
10.1 <sup>85</sup> Kr 的性质 .....	(231)
10.2 乏燃料溶解尾气中 <sup>85</sup> Kr 的回收方法 .....	(232)
10.2.1 活性炭吸附法 .....	(232)
10.2.2 低温精馏法 .....	(234)
10.2.3 溶剂吸收法 .....	(236)
10.2.4 选择性渗透膜法 .....	(238)
10.3 回收 <sup>85</sup> Kr 的工艺流程 .....	(239)
10.3.1 原料气的预处理 .....	(240)
10.3.2 炭床吸附 .....	(242)
10.3.3 炭床的解吸 .....	(244)
10.3.4 氖的精制 .....	(245)
10.4 <sup>85</sup> Kr 的应用 .....	(245)
10.4.1 核子灯 .....	(245)
10.4.2 <sup>85</sup> Kr 探漏 .....	(246)
10.4.3 测量计 .....	(246)
参考文献.....	(247)
<b>第 11 章 放射性同位素源的制备工艺 .....</b>	<b>(248)</b>
11.1 放射源的设计和制备 .....	(249)
11.1.1 放射性同位素 .....	(250)
11.1.2 源芯设计和制备 .....	(250)
11.1.3 包壳设计和密封 .....	(253)
11.1.4 包装容器设计 .....	(256)
11.1.5 质量控制 .....	(256)
11.2 $\gamma$ 放射源制备工艺 .....	(257)
11.2.1 氯化铯法 .....	(258)
11.2.2 铯玻璃法 .....	(259)
11.2.3 陶瓷法 .....	(260)
11.2.4 其他不同源芯形式的 <sup>137</sup> Cs 放射源 .....	(263)
11.3 $\beta$ 放射源制备工艺 .....	(264)
11.3.1 陶瓷法 .....	(265)
11.3.2 粉末冶金法 .....	(266)

11.4 $\alpha$ 放射源制备工艺 .....	(268)
11.4.1 粉末冶金法 .....	(270)
11.4.2 电镀法 .....	(270)
11.5 中子放射源制备工艺 .....	(272)
11.6 低能光子放射源制备工艺 .....	(275)
11.6.1 $^{238}\text{Pu}$ 低能光子源的制备 .....	(277)
11.6.2 $^{241}\text{Am}$ 低能光子源的制备 .....	(279)
参考文献 .....	(282)
附录 I 常用核素衰变纲图 .....	(283)
附录 II 密封放射源的泄漏检验方法(GB 15849—1995) .....	(322)
附录 III 密封放射源 一般要求和分级(GB 4075—2009) .....	(333)

# 第1章 概论

## 1.1 放射性同位素的来源

放射性同位素是指某种元素中发生放射性衰变的同位素。按其来源可分为天然放射性同位素和人工放射性同位素。前者存在于自然界的矿石中,如<sup>232</sup>Th、<sup>235</sup>U、<sup>226</sup>Ra等。人工放射性同位素是借助于核反应堆或带电粒子加速器等手段,采用人工方法制备的,如<sup>11</sup>C、<sup>32</sup>P、<sup>131</sup>I等。一些天然放射性同位素(如<sup>235</sup>U、<sup>238</sup>U)与人工放射性同位素(如<sup>3</sup>H、<sup>239</sup>Pu、<sup>237</sup>Np等)都是当前具有重要应用价值的核材料,而其他更多的放射性同位素则制成密封放射源或示踪物质(包括标记化合物),广泛用于工业、农业、医学、资源、环保、军事与科学等领域之中。

1919年,英国物理学家卢瑟福(E. Rutherford)利用 $\alpha$ 粒子轰击<sup>14</sup>N,生成了<sup>17</sup>O和质子,首次实现了人工核反应,完成了由一种原子核向另一种原子核的转变。1932年,劳伦斯(E. D. Lawrence)发明回旋加速器,为制备人工放射性同位素提供了重要工具。1942年,美国建成了世界上第一座核反应堆,实现了人类历史上首次自持链式反应。核反应堆的建成成为放射性同位素的规模化生产奠定了基础。图1-1给出了反应堆链式反应原理示意图。

总体来说,反应堆、加速器、核试验是当前人工放射性同位素的主要获取途径。其中,利用反应堆的中子核反应及母体核素的裂变可以获取大量的人工放射性同位素,如一些重要的超铀、钚元素和裂变产物核素。从核动力堆卸出的乏燃料元件,经过一段时间冷却后,通常在后处理厂采用普雷克斯流程进行化学处理,其主要目的是回收铀和钚,几乎全部的裂变产物和超铀元素被转入废液中,因而核燃料后处理已成为工业规模提取人工放射性同位素的最主要途径。

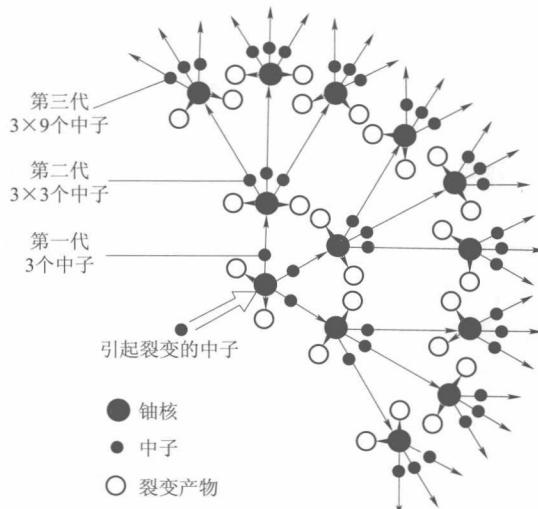


图1-1 反应堆链式反应原理示意图

## 1.2 核燃料后处理简介

### 1.2.1 核燃料后处理在核工业发展中的重要性及地位

随着核工业的快速发展,每年从核电厂卸出的乏燃料数量超过1万吨重金属(HM),其中大部分储存在水池或干式储存设施中。如何处置这些放射性强、毒性大的乏燃料,长期以来一直存在着争议。分歧主要集中在经济性、安全性和防止核扩散等方面。各国制定出了适应各自战略需求的技术路线:一种是采取一次通过式核燃料循环,即乏燃料经过冷却、包装后作为最终废物直接深埋在地质处置库中,以防止乏燃料中钚的扩散;另一种是采取闭式核燃料循环,即对乏燃料进行处理,从中回收约占96%的铀和1%的钚,并通过再循环加以充分利用,而只约占3%的长寿命裂变产物和次锕系核素(镎、镅、锔等)才作为高放废物经玻璃固化后作最终地质处置;还有一种就是观望策略,将乏燃料暂存,依据前两种方式的发展趋势,待国际上形成较成熟的路线后再做决定。这3种技术路线中,一次通过式核燃料循环是美国卡特政府1977年做出的决定;闭式核燃料循环是英、法、俄、日、印以及中国等国家坚持的政策;还有些有核国家处于观望状态。

随着世界核电发展需求的不断增加,对乏燃料进行处理和铀钚再循环的技术路线越来越受到重视,因为如果不这样做,全世界已探明的铀资源在不到一百年之内就会枯竭,核裂变能利用的可持续发展就无法实现。尤其是随着科学技术的进步,相信在不久的将来,可以通过嬗变技术把那些在后处理过程中分离出来的长寿命裂变产物和次锕系核素转变为短寿命或稳定的核素,从而大大地减少或消除放射性对环境的危害,使核能变得更加清洁。

核燃料后处理的任务是:

- 1) 提取和纯化新生成的可裂变物质,如<sup>239</sup>Pu。
- 2) 回收和纯化没有用完的可裂变物质和尚未转化的转化材料。
- 3) 提取有用的裂变产物 Sr、Cs、Pm 和 Np、Am、Cm 等超铀元素。
- 4) 对放射性废物进行妥善处理和安全处置。

由此可以看出,核燃料后处理是核燃料循环中的重要环节,它的重要性可归纳为以下3个方面:

- 1) 从乏燃料中回收有价值的易裂变物质<sup>235</sup>U、<sup>233</sup>U 和<sup>239</sup>Pu,把它们制造成各种形式的堆用燃料,可节约铀资源,促进核能工业的发展。
- 2) 从核燃料后处理所产生的高放废液(1AW)中,提取<sup>137</sup>Cs、<sup>90</sup>Sr、Np、Am、Cm 和重金属等同位素作为辐射源和能源,可应用于工业、农业、医疗、航天等方面。
- 3) 核燃料后处理对环境安全至关重要,通过从高放废液中分离长寿命的裂片元素和超铀元素,可以大大减少高放废物的体积以及长期储存的潜在危险。

### 1.2.2 普雷克斯流程简述

普雷克斯(Purex, Plutonium Uranium Recovery by Extraction)流程是基于溶剂萃取的一种工艺流程,在20世纪50年代与其他萃取流程相竞争的基础上,经多年的发展和运行

后, Purex 流程在反应堆核燃料后处理占据了主导地位。

早期的 Purex 流程共有 4 个萃取循环, 即共去污循环、分离循环、钚净化循环和铀净化循环。共去污循环实现铀、钚与裂变产物的分离, 分离循环实现铀与钚的分离, 钚净化循环和铀净化循环进一步纯化和浓缩钚和铀的硝酸溶液, 因此称作 Purex 三循环流程。

目前, 各国采用的 Purex 流程主体部分大多是三循环流程, 即把四循环流程中的共去污和分离循环合并, 叫做共去污分离循环, 然后再经历两个铀线纯化循环和两个钚线纯化循环。后来各个后处理厂根据料液的活度浓度和去污要求等具体情况, 在流程组合方面有所改变, 但所有这些变体流程均以 TBP 萃取铀和钚, 还原反萃钚为分离基础, 把几乎全部的裂变产物和超铀元素都赶入到废液 1AW 中, 因此, Purex 流程是今后发展核燃料后处理提取铀、钚进而回收分离一些重要超铀元素和裂变产物的技术基础。图 1-2 为 Purex 二循环流程示意图。

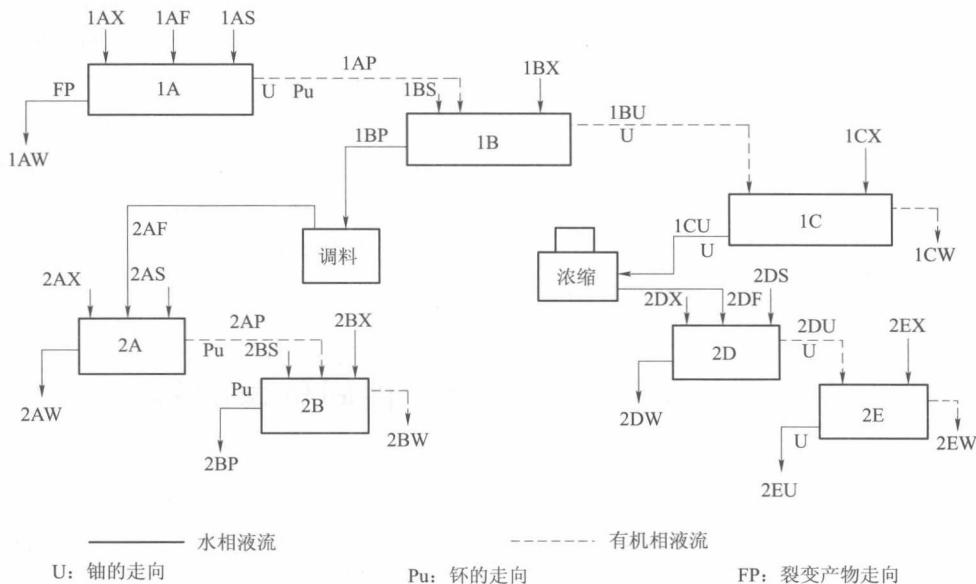


图 1-2 Purex 二循环流程示意图

### 1.2.3 放射性同位素提取与高放废液处理的关系

从高放废液中提取放射性同位素往往和高放废液的处理密切相关, 而高放废液的处理是世界公众十分关注的问题。早在 20 世纪 60 年代, 美国曾有人提出, 以提取裂片同位素作为高放废液处理的一种途径, 法国也曾有人认为分离和回收裂片同位素是高放废液处理的唯一途径, 其他国家也提出过类似的主张。

随着核电事业的发展, 核燃料后处理产生的高放废液数量将急剧增加。据估算, 从核电厂获得 1 度电能, 就会产生  $3.7 \times 10^{10}$  Bq 的放射性物质, 一座 30 万 kW 的核电厂, 每年将产生  $6.66 \times 10^{17}$  Bq 的 $^{137}\text{Cs}$  和 $^{90}\text{Sr}$  及  $1.11 \times 10^{14}$  Bq 的长寿命锕系核素。这些大部分集中在高放废液中的同位素有很大危害性, 必须妥善处理, 以确保人类生存环境的安全。但是, 从高放废液中回收同位素存在不少问题, 一是产生了大量二次废液; 二是同位素生产厂的运行对