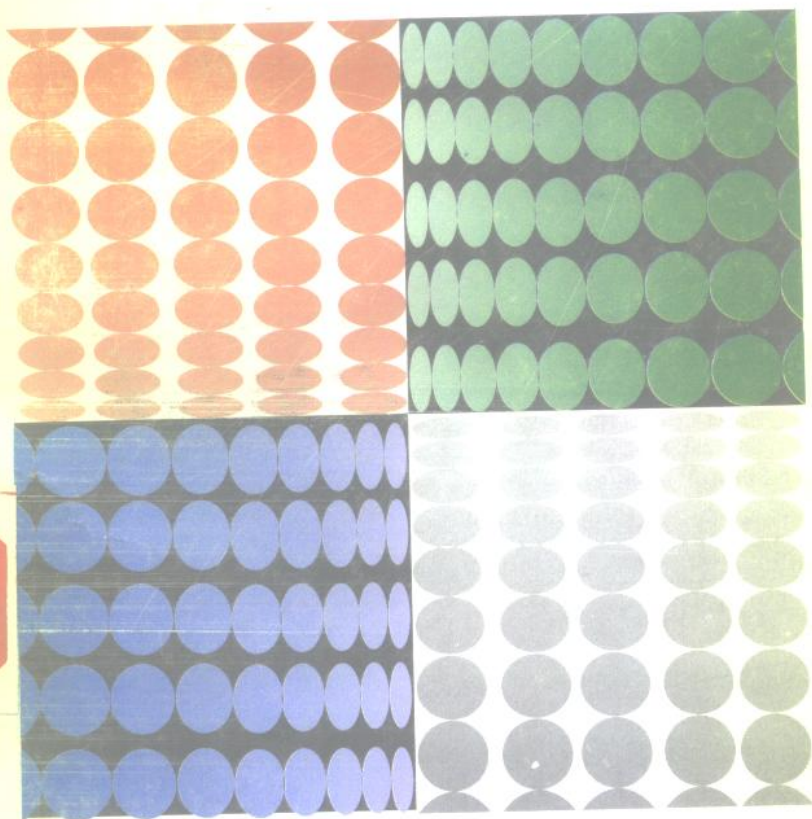


核电站燃料后处理

[苏]B.И. 捷姆利亚努欣

Е.И. 伊利延科 等编

А.Н. 康德拉季耶夫



原子能出版社

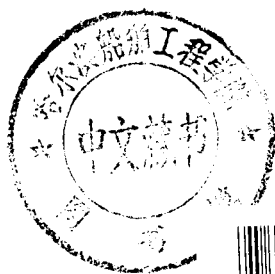
415906

核电站燃料后处理

(第二版)

[苏]B. H. 捷姆利亚努欣 E. H. 伊利延科
L. A. H. 康德拉季耶夫等编

黄昌泰 李光鸿 魏连生 译



00415906

原子能出版社

图字:01-95-720

图书在版编目(CIP)数据

核电站燃料后处理/(苏)捷姆利亚努欣(Землянухин В. И.)
等编;黄昌泰等译. —北京:原子能出版社,1996. 11

书名原文:Радиохимическая переработка ядерного топлива АЭС
ISBN 7-5022-1437-2

I. 核… II. ①捷… ②黄… III. 核电站-辐照过的核燃料-
核燃料后处理 N. TL24

中国版本图书馆 CIP 数据核字(95)第 21206 号

Радиохимическая переработка ядерного топлива АЭС

© Энергоатомиздат, 1989

核电站燃料后处理

黄昌泰 李光鸿 魏连生 译

©原子能出版社,1996

原子能出版社出版 发行

责任编辑:金一一

社址:北京市海淀区阜成路 43 路 邮政编码:100037

原子能出版社印刷厂印刷 新华书店经销

开 本:787×1092mm 1/32 印张 10.25 字数 229 千字

1996 年 11 月北京第 2 版 1996 年 11 月北京第 1 次印刷

印 数:1—500

定 价:17.40 元

内 容 简 介

本书是根据前苏联动力原子能出版社出版的《Радиохимическая переработка ядерного топлива АЭС》一书 1989 年修订版译出,其第一版于 1983 年出版。

本书系统地整理与综合了作为闭合核燃料循环关键环节的核电站乏燃料后处理的工艺,裂变材料再循环的实现,以及核能的发展等有关资料;研究了核电站乏燃料的运输和贮存问题,放化生产工艺流程的主要部件和设备,工艺过程的控制问题,以及与再生的铀和钚在热堆和快中子堆中重复利用的有关问题;讨论了环境保护问题及液体废物、气体废物和固体废物的处理问题。

本书适用于化学工作者、放化工作者及相关专业的大学生和研究生等各类科研工作者。

再版前言

核电站乏燃料的放化后处理,是比较年轻的、正在发展的工业部门,它与核动力的发展有关。处理工艺将承担核动力所提出的全部新的任务。

本书初版(1983年)以来,核动力在许多国家得到了很大发展。到1983年,23个拥有核电站的国家都提高了发电量。还有12个国家加入了发展核动力的行列。正在运行的核电站的总功率由155GW提高到273GW(电能)。实现铀和钍再循环的闭路核燃料循环的想法已进入工业试产阶段。因此,在以前只处理辐照铀燃料的放射化学工业中,紧迫的问题是提高制备铀和铀混合氧化物的规模,以进一步制备燃料元件,并处理在动力堆中重复燃烧过的混合燃料。

在乏燃料后处理工艺中提出了解决某些任务的新方法,建立了新型设备,实现了工艺过程远距离监督和控制自动化。

近年来,出版了一些关于解决核燃料循环某些问题的书,但在这些著作中没有全面探讨核电站乏燃料后处理问题,以及与核动力发展和核燃料循环有关的问题。因此,作者认为本书再版,补充乏燃料后处理工艺中的新问题和研究成果是合适的。

本书新增加两章。一章专门讨论在掌握大规模快中子反应堆情况下,热中子反应堆中裂变材料再循环的合理性问题。另一章涉及工艺过程的监督和控制。这样就必须删去初版中的某些章节,例如放射化学工业的发展历史等。

作者感谢 Ю. М. 柯托夫和 А. В. 李巴托夫在收集材料方面

提供的巨大帮助,并感谢 E. B. 沙鲁克在准备出版中给予的技术上的帮助。

作者

引 言

20 世纪称为原子世纪。在 20 世纪,人们不仅认识了原子和原子核构成的基本规律,而且还找到了核内能量的释放和控制方法。在出色的科学发现中,有决定意义的是 20 世纪初对放射性现象的发现。维尔纳茨基院士在 1910 年这样评价了这个发现:“由于放射性现象的发现,我们知道了新的出人意料的能源。……放射性现象在我们面前展现了原子能源,它比人类设想所描述的所有能源高出百万倍”^[1]。1922 年维尔纳茨基发展了这个见解,他写到:“我们已接近从前人类生活中所经历的却无法与之相比的伟大转变,在不长的时间内,人类将得到原子能,这种能源将使人类能建立起他们所希望建立的生活”^[2]。

1940 年,在发现热中子核裂变和论证了实现自持链式核反应的可能性不久,维尔纳茨基和赫洛宾院士就向苏联政府提出了关于利用这些现象发展动力的问题。这样,首先是苏联科学家从解决人类新能源问题的观点出发,来考虑 20 世纪初这个重要的科学发现。

为加快这方面的研究,苏联科学院主席团根据维尔纳茨基和赫洛宾的建议,在 1940 年 7 月 30 日建立了直属苏联科学院主席团的第一个铀问题委员会,赫洛宾院士被任命为该委员会主任。赫洛宾院士提出的一个首要任务是在苏联领土上组织铀矿普查工作,并建立国家铀储备,后者是在核能利用方面开展工作的物质基础^[3]。

1941 年开始的卫国战争中断了以和平利用原子能为目的的工作,这些工作后来在库尔恰托夫院士领导下继续进行。1954

年6月27日,世界上第一座原子能电站在苏联发出了电,成为世界动力的有机组成部分,并在许多工业部门得到应用^[4,5]。

70年代核动力开始迅猛发展,在这个时期,在远离传统能源的区域,核电站对有机燃料(煤、石油、煤气)电站有明显的竞争力,核电站电价比普通电站电价低。实际上,核电站电能的燃料成本明显低于有机燃料电站^[6]。核动力装置运行经验表明,在正常工作下,它们对周围环境的污染比普通电站要少^[7]。目前在世界实践中已开拓了几类辐射安全和可靠的核反应堆。这些反应堆成了现代核动力的基础。

1987年,全世界26个国家的核电站中有378台机组在运行,总功率为273GW(电能),其中42台机组在苏联。有150台机组在建造中,功率为134GW(电能),其中有14台机组在苏联。还订购了96台机组,功率为94GW(电能)。在世界35个国家中,已在运行、建造和设计的共624台机组,其功率约为600GW(电能)^[8,9]。核电站生产的电能份额超过世界总电能的15%,在有些国家还要高:法国和比利时的核电份额超过65%,在瑞典为50%,在日本为25%,在苏联和美国为15%^[10]。

核能的利用还能解决城市和工业企业的集中供热问题,通过建立核供热站——仅产生热量的专门核装置,或者建立能同时产生电能和热能的核热电站^[6,11-14]。低、中位势反应堆的热量可用于生活供热和工业供热。高温核反应堆可用来获取耗能大的工艺过程(化学、冶金)所需的高位势热能。在苏联的高尔基和沃龙涅什近郊建造两座核供热站。

根据对世界有机燃料储量的估算,发展核动力的迫切性就变得明显了。按照多次预测,再过100—150年有机燃料资源将近于耗尽。而合理地利用铀和钍作核能源可以保证人类数百年

的能源。

这不仅与大量的铀和钍天然储量有关,而且与核反应堆工作的一个重要特点有关:即由于不裂变的核素 ^{238}U 或 ^{232}Th 与反应堆中的热中子相互作用的结果,发生了核反应,分别生成可裂变的核素 ^{239}Pu 或 ^{233}U 。这些核素同天然 ^{235}U 核一样,可作为核燃料。这样,在反应堆中不仅烧掉最初装入的核燃料,而且同时再生出新型核燃料。在这种情况下,反应堆可处于这样的工作状态,即再生的核燃料量多于最初装入反应堆的核燃料量。正是这种核反应堆自身供给核燃料的能力,才使得核动力的大规模发展成为可能。

再生的核燃料量与反应堆的类型和结构特点有关。在热中子反应堆中(铀作燃料)钚的积累是可能的。从原理上来说,热中子反应堆的增殖系数可大于1,但它通常小于1。高的增殖系数和快速获得再生燃料只能在快中子反应堆中达到。因此,建造大规模的核动力与开发快中子反应堆(PBH)相关。但为保障第一代快中子反应堆的工业运行,所需要的钚应该在热中子反应堆中积累。因此,在发展核动力的第一阶段广泛开发各种类型的热中子反应堆。

苏联发展核动力的第一阶段的特点是建设热中子反应堆核电站的罐式堆(BB3P,水-水动力堆)和管式堆(PBMK,大功率压力管式堆),分别采用 ^{235}U 浓缩度为3.6—4.4和2.0%的铀作燃料。美国的核动力是以压水堆(PWR)和沸水堆(BWR)为基础发展起来的;法国以PWR为基础;英国以气冷堆和改进型气冷堆(GGR和AGR)为基础;加拿大以重水堆(HWR)为基础。在发展核动力的第二阶段,计划开发快中子堆,并逐渐增加其在核动力结构中的相对份额。

目前在大多数核电站运行的是轻水水—水热中子反应堆。少数核电站采用重水堆和气冷堆，以石墨作慢化剂。快中子堆的发展没有 80 年代初期预计的那样快。现在世界上有 9 座快中子动力堆在运行（苏联三座，法国两座，英国、联邦德国、日本和印度各一座）。意大利正在建造一座快中子堆，日本有一座处于设计阶段的快中子堆。此外，尚有几座快中子研究堆在运行。苏联的快中子堆机组建在南乌拉尔和别洛雅尔斯克核电站。

核反应堆运行的另一个重要特点是，燃料在反应堆中不完全燃烧。在热中子反应堆中燃料通常为 1.5%—3%。在快中子反应堆中燃耗可达到 10%。余下的初级和次级（再生）核燃料经相应的回收处理后可返回到核反应堆。

与获取核能有关的各个过程的总和就构成核燃料循环。核燃料循环的主要阶段是：

铀矿石开采；

水法冶金处理矿石，以制取二氧化铀；

二氧化铀转化为六氟化铀后，在分离工厂富集 ^{235}U 核素；

燃料元件及其组件的制备；

核燃料在核电站或核供热站的反应堆中燃烧，以获取热能；

乏燃料在贮存库贮存；

乏燃料在放化工厂中处理或者贮藏（这取决于核燃料循环的组织方式）（图 B. 1）。

核燃料循环可以这样组织，即在放化工厂中从辐照过的核燃料中提取未烧完的铀和积累的钚，然后再将它们送去制备新的燃料元件。这个循环称为闭路核燃料循环（图 B. 1, b, c）。这样，乏燃料的放化后处理就成了闭合核燃料循环的主要和最后阶段。

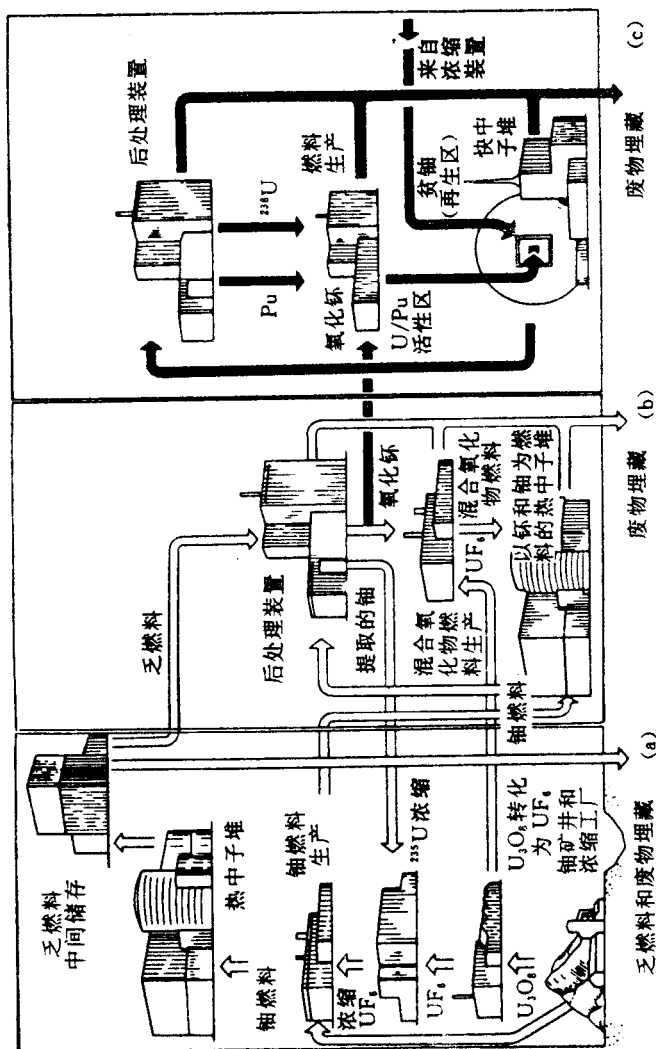


图 B.1 (a) 未闭合的核燃料循环流程图；(b) 重复使用燃料的热中子堆的核燃料循环；(c) 快中子堆的核燃料循环。

如果乏燃料不处理,且裂变材料不返回燃料循环,则核燃料没有闭合,因而称为开放核燃料循环(图 B. 1, a)。

只有以闭合核燃料循环为基础,增殖核燃料铀,并将其并入燃料循环,才能有效地大规模发展核动力^[14]。

核燃料的再生是核电站乏燃料元件放化后处理工艺的主要任务。

在处理流程中,首先分离出铀和钚,并除去放射性裂变产物,其中包括吸收中子的核素(中子毒物),后者在重复利用裂变材料时会妨碍反应堆链式核裂变反应的进行。

铀核裂变时所形成的大量放射性核素与生物圈的隔离是核动力发展的一个最严重和难以解决的问题。

以核燃料组件形式从反应堆卸出的乏燃料,带有很高的放射性。埋藏这些不经处理的组件(开放核燃料循环)并使其与生物圈永久隔离,在技术上具有相当大的困难。其中主要的困难是要消除长期贮存情况下由于燃料元件损坏而释放放射性核素的可能性。

在燃料元件的化学处理过程中,当分离出铀和钚以后,大多数放射性核素被浓集在较小体积的高放废液中。这些废液的进一步化学处理是将其固化,将放射性核素牢牢地固定住。研究得最充分的方法是将高放废液转为不同组分的类玻璃结构。玻璃化的放射性废物具有足够的化学、热和机械稳定性,是目前公认的放射性废物地层永久埋藏并使其与生物圈完全隔离的最合适的形式。

近来,放射化学工艺的发展倾向于对乏燃料进行综合处理。众所周知,放射性产物中含有大量非常有价值的放射性核素,后者可广泛用于所谓的小型核动力(电能热发生器的放射性同位

素热源),以及用来制备各种用途的电离辐射源。乏燃料的综合处理,要求放射化学工艺不仅应保证提取裂变材料,而且还应保证提取其他从实用观点看来有用的或是具有科学意义的放射性核素(锶、铯、钨、稀土和铂族元素、镎、钼、镅等)。

根据核能发展战略,目前放射化学工业的主要任务是处理热中子动力堆燃料,然后转为工业规模处理快中子堆燃料。

经济计算表明,处理核电站乏燃料的放化工厂的最适宜的生产能力为 $1200-1800\text{t/a}$ 。这样的工厂可保证处理总功率为 $40-50\text{GW}$ (电能)的核电站卸下的燃料。虽然生产能力较小的处理厂利润较低,但实践表明建造生产能力较小($400-800\text{t/a}$)的工厂根据国家的需求,有时是合算的^[15]。

对于快中子反应堆的核燃料循环来说,集中式后处理厂的概念,不像热中子反应堆的核燃料循环那样清楚。快中子堆核燃料循环的一个基本要求,是裂变材料在外燃料循环中的停留时间(滞留)最短。因此,对于快中子堆,除采用集中处理乏燃料的概念外,还发展了总功率为 $6-12\text{GW}$ (电能)的核电站燃料再生装置和燃料元件制备结合的综合企业概念,以保证燃料返回核燃料循环^[16,17]。

发展核能及其核燃料循环要求解决的不仅是技术问题,同时还出现了社会和政治问题。这是核能与其他能源不同的一个特点。在核电站燃料元件的化学处理过程中,分离出来的裂变材料钚具有被用来制造核武器的潜在危险。根据苏联的建议曾签订了《不扩散核武器条约》。该条约在获得苏联、美国和英国批准后于1970年3月5日生效。《不扩散核武器条约》禁止核大国向其他国家转让核武器。加入该条约的无核武器国家保证不生产核武器,也不从其他国家获得核武器。

为保证《不扩散核武器条约》在核电站的辐照燃料后处理过程中得以实施,联合国国际原子能机构建立了专门的安全保障体系部门,其任务是对裂变材料,其中包括 ^{239}Pu 的积累和使用进行监督。为此,在处理乏燃料的工厂和装置上建立了“保障监督”,对通过的裂变材料进行精确的分析测定和衡算^[10]。

国际原子能机构特别专家委员会^[19]的工作表明,最安全的核燃料循环组织体系是区域中心和多国中心体系。这个体系拟联合几个国家的力量,建立大型联合体。该联合体包括核电站乏燃料贮存库、年处理量为 750—3000t/W(根据给定区域的需要决定)的放化工厂、废物处理装置和由再生核燃料制备燃料元件的工厂,可能还有铀浓缩工厂^[20]。

全面评价这个大型中心的设计表明,无论是从经济观点来看,还是从环境保护,对核材料的运输、贮存、处理与利用进行监督可能采取的更详细的组织措施,即对 ^{239}Pu 和 ^{235}U 可能无控制使用组织有效的预防监督的观点来看,大型中心都具有优越性。但这种中心暂时还没有出现。

经互会成员国根据其 2000 年前科技进步的综合规划^[21],以加速发展各成员国的核能为富有成果的国际合作实例,全面考虑这些国家发展的民族利益,确立合作计划的长远目标,保证经互会成员国对主要能源、燃料和原料等的需求。

在辐照燃料后处理和将其从经互会成员国运入苏联,以及放射性废物的处理和处置,在综合规划中占有重要地位^[22,26]。

本书讨论了核电站乏燃料后处理工艺流程中各个工序的现代技术方案,根据各种燃料的后处理特点所进行的工艺流程改进研究,以及重复利用再生铀和钍的有关问题。

目 录

再版前言

引言

第一章 乏燃料的特性和放射化学工艺学的任务	(1)
1.1 核燃料循环	(1)
1.2 乏燃料的基本特性	(3)
1.3 核电站乏燃料后处理的特点和基本过程	(9)
第二章 核电站乏燃料的运输和贮存	(13)
2.1 乏燃料的运输	(13)
2.2 乏燃料的贮存	(27)
第三章 乏燃料萃取的准备	(34)
3.1 乏燃料元件脱壳	(34)
3.2 燃料准备溶解的补充操作	(45)
第四章 乏燃料的溶解	(48)
4.1 无包壳燃料的溶解	(49)
4.2 燃料和燃料元件包壳的同时溶解	(53)
4.3 核燃料溶解设备	(57)
4.4 溶解过程中的核安全保证	(64)
第五章 乏燃料萃取料液的制备	(66)
5.1 澄清	(66)
5.2 初始溶液组成的调制	(72)
第六章 铀、钚和镅的分离与净化	(74)
6.1 萃取装置	(76)
6.2 磷酸三丁酯萃取剂	(84)

6.3	第一萃取循环	(90)
6.4	萃取剂的回收	(101)
6.5	铀线	(105)
6.6	钚线	(112)
6.7	镭的分离和净化	(127)
第七章	快中子增殖堆燃料的后处理	(131)
7.1	萃取工艺	(131)
7.2	气体氟化流程	(138)
第八章	放化工厂的工艺过程监测和 自动控制系统	(149)
8.1	在线远距离监测	(153)
8.2	工艺过程的自动监测和控制系统	(158)
8.3	实验室监测	(162)
8.4	工艺监测方法的发展	(166)
第九章	放射性废物管理	(170)
9.1	放化工厂废物的一般特性	(170)
9.2	解决放射性废物管理问题的基本途径	(173)
9.3	高放废液	(180)
9.4	中低放废液	(205)
9.5	气体废物	(213)
9.6	固体废物	(227)
9.7	废物最终处置	(230)
第十章	热中子堆燃料闭合循环问题	(236)
10.1	铀的再循环	(237)
10.2	钚的再循环	(243)
10.3	乏燃料后处理的经济问题	(247)
10.4	实现闭合核燃料循环的方案	(253)
结束语		(257)

附录 1 辐照核燃料后处理的铀钚分离方法	(264)
附录 2 乏燃料后处理工艺流程的主要特性	(273)
附录 3 国外主要放化工厂和装置	(278)
附录 4 氧化物燃料后处理新厂的参数比较	(285)
参考文献	(288)