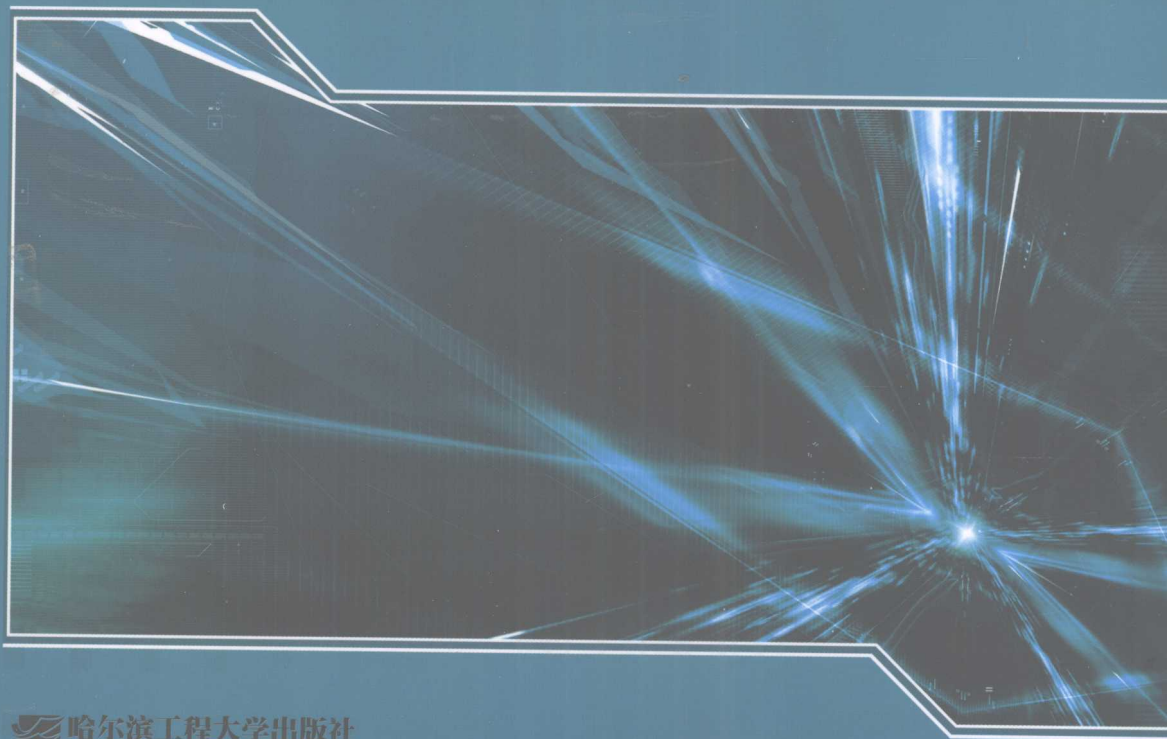





国防特色教材·核科学与技术

# 核燃料后处理工程

周贤玉 编



 哈尔滨工程大学出版社  
Harbin Engineering University Press

北京航空航天大学出版社 北京理工大学出版社  
哈尔滨工业大学出版社 西北工业大学出版社



国防特色教材·核科学与技术

# 核燃料后处理工程

周贤玉 编

哈尔滨工程大学出版社

北京航空航天大学出版社 北京理工大学出版社  
哈尔滨工业大学出版社 西北工业大学出版社

## 内容简介

核燃料后处理是裂变核能可持续利用的关键环节。本书全面、系统地介绍了核燃料后处理工程的科学管理、技术细节、尚存问题及研究前沿,核燃料循环概念、各种反应堆乏燃料元件的基本特性、核燃料后处理的任务、核燃料后处理厂的特点、核燃料后处理工艺发展简史,溶剂萃取工艺的化学原理,乏燃料元件的类型、运输、贮存及后处理工艺的基本过程,乏燃料元件的首端处理,铀钚共去污分离循环,钚的净化循环和尾端处理,铀的净化循环和尾端处理,溶剂萃取循环的主要设备,放射性三废的处理与处置,后处理厂的监测手段,辐射防护与核临界安全控制。

本书可作为高等院校核工程专业、核化工专业、核燃料工程专业及环境保护专业的主干课教材,也可作为相关专业的选修课教材。

### 图书在版编目(CIP)数据

核燃料后处理工程/周贤玉编. —哈尔滨:哈尔滨  
工程大学出版社,2009.5

ISBN 978-7-81133-403-6

I.核… II.周… III.核燃料后处理 IV.TL24

中国版本图书馆 CIP 数据核字(2009)第 067218 号

## 核燃料后处理工程

周贤玉 编

责任编辑 杨秀华

\*

哈尔滨工程大学出版社出版发行

哈尔滨市南岗区东大直街 124 号 发行部电话:0451-82519328 传真:0451-82519699

<http://press.hrbeu.edu.cn> E-mail:heupress@hrbeu.edu.cn

哈尔滨工业大学印刷厂 各地书店经销

\*

开本:787×960 1/16 印张:18 字数:331千字

2009年5月第1版 2009年5月第1次印刷 印数:1000册

ISBN 978-7-81133-403-6 定价:48.00元

# 前 言

核燃料后处理技术的研究开发始于 1943 年,从低能耗的生产堆乏燃料中提取<sup>239</sup>Pu,制造核武器。第二次世界大战后,核能利用已由核武器研制转向核电的开发与利用,特别是由于 20 世纪 70 年代不扩散核武器条约的限制,军用钚已不准再生产了,于是后处理的对象转向动力堆(首先是核电站)的乏燃料以及各种类型的研究性反应堆的乏燃料。

核能利用的物质基础是核燃料。为了确保裂变核能利用的可持续发展,必须充分利用现有的铀资源。目前,充分利用现有铀资源的最有效途径有两条:(1)发展更有效利用核燃料的反应堆(如快中子增殖反应堆);(2)实施核燃料后处理,从乏燃料中回收、利用剩余的核燃料。

核电是目前唯一现实的可大规模发展的替代能源。我国 1983 年就制定了反应堆乏燃料后处理-核燃料闭式循环的战略方针。21 世纪初,国家发展改革委员会提出了“积极推进核电建设”的方针,并预计到 2020 年,我国大陆核电装机容量将达到 40 GW,即占全国电力总装机容量的 4%左右。

发展核电是一项系统工程。核电的建设和发展需要配套的核燃料循环设施来支持。压水堆核电站卸出的乏燃料中含有约 96%铀、1%钚及 3%的裂变产物和次锕系元素,要通过后处理回收铀、钚使其再循环加以利用,并从高放废液中提取长半衰期裂变产物和次锕系元素、研发嬗变技术,实现核燃料的闭式循环。

我国大陆反应堆核燃料后处理工程的科研工作于 1956 年在前苏联援助下从沉淀法起步。根据 20 世纪 60 年代初的国际国内政治形势,为了增强我国的国防实力,在外援断绝以后,1964 年第二机械工业部(后称核工业部)决定抛弃沉淀法流程,改用先进的萃取法工艺。二机部决定从 1965 年 1 月起,从中国科学院原子能研究所、清华大学、二机部设计院、二机部某核燃料厂抽调人员在原子能所先后组织两批(共 81 人次)技术攻关突击队,进行萃取法热铀(即经辐照过的铀)处理小型试验。1968 年 9 月,我国生产堆乏燃料后处理中间规模试验厂建成并投入运行。1970 年 4 月,我国首座大型生产堆乏燃料后处理厂建成并投入运行。随后对工艺流程进行了改进,1975 年还对燃耗较深的研究试验堆乏燃料元件进行了后处理,并开展了从高放废液中提取裂变产物和次锕系元素的研究工作。《核燃料后处理厂工程研究、设计和成功运行》获 1978 年全国科学大

会重大科技成果奖。

化学分离是核燃料后处理厂的主要生产工艺,以磷酸三丁酯为萃取剂的 Purex 流程仍是现代核燃料后处理厂采用的唯一流程。由于动力堆乏燃料元件与生产堆乏燃料元件在结构和化学组成上有较大差异,我国于 2003 年建成了动力堆乏燃料元件后处理中间规模试验厂。当前,培养核燃料后处理工程专业技术人才的任务已提到了议事日程。

核燃料后处理的对象是放射性极强的乏燃料元件,对铀、钚金属的回收率和净化系数要求很高,必须借助于化工作业与机械作业高度协同进行的手段以实现这些指标。从工艺的本质上看,它仍属精细化工范畴,但由于存在能生产核武器装料<sup>239</sup>Pu 和处理动力堆乏燃料元件的功能并隐含核临界安全问题和核武器扩散问题,使核燃料后处理厂的规模大大超过了一般的精细化工厂。

核燃料后处理工程是应用自然科学原理和社会科学原理设计、验证工艺流程,研制适用的设备以实现物质转化并使物料闭式循环的系统工程。因此,核燃料后处理工程拥有较大的知识容量。核燃料后处理工程在核化学工程和核燃料循环产业中有较重要的地位,核化学工程应用的科学原理、工艺过程及其设备、工艺参数的监测手段、放射性三废的处理与处置、辐射防护与核临界安全控制等理论和实践在核燃料后处理工程中比较集中地得到了体现;为了减少铀、钚产品的安全运输费用,后处理厂可直接将钚产品加工成铀钚氧化物混合物燃料,同时把六氟化铀作为最终铀产品形式,使后处理产业链得到延伸。

本书在内容的选择和编排上基于下述考虑:

(1)各国后处理厂的最佳流程,通常都要经过长时间的实验室和中间规模试验后选定,因此,各国在新厂设计中所采用的工艺细节和设备均与该国第一批新建的厂非常相似,故本书主要介绍了我国后处理厂的运行经验。

(2)以磷酸三丁酯为萃取剂的 Purex 流程仍是现代核燃料后处理厂采用的唯一流程,也是将来改进和发展核燃料后处理工艺的基础,因此,本书全面、深入地介绍了 Purex 主体工艺。

(3)为培养综合型、创新型人才,需全面、系统地介绍核燃料后处理厂的主工艺和辅助工艺的协同运行。

全书共 9 章,全面、系统地介绍了核燃料后处理工程的科学原理、技术细节、尚存问题、研究前沿、核燃料循环概念、各种反应堆乏燃料元件的基本特性、核燃料后处理的任务、核燃料后处理厂的特点、核燃料后处理工艺发展简史;溶剂萃取工艺的化学原理;乏

燃料元件的类型、运输、贮存及后处理工艺的基本过程;乏燃料元件的首端处理;铀、钚、钚共去污分离循环;钚的净化循环和尾端处理;铀的净化循环和尾端处理;溶剂萃取循环的主要设备;放射性三废的处理与处置。

本书可作为高等院校核工程专业、核化工专业、核燃料工程专业及环境保护专业的主干课教材(58学时),也可作为相关专业的选修课教材。

作为国防特色“十一五”规划教材,本书在编写过程中得到了南华大学校长文格波教授、副校长吴移谋教授、教务处长阳小华教授及核科学技术学院副院长于涛博士的大力支持;在编写、出版中得到了国家国防科技工业局教育司的大力支持与资助;哈尔滨工程大学出版社在本书的编辑、出版中付出了辛勤的劳动;在本书编写过程中,参考了本书末所列作者的有关文献,从中得到了许多启发,在此一并对他们表示衷心的感谢。

编写本教材对我本人来说也是一种尝试,由于涉及的学科(专业)较多,有些问题有待于进一步推敲,故书中缺点、错误或不妥之处难以避免,恳请读者批评指正。

编 者  
2008年深秋

# 目 录

<b>第 1 章 绪论</b> .....	1
1.1 核燃料循环 .....	1
1.2 反应堆乏燃料元件的基本特性 .....	4
1.3 核燃料后处理的任務 .....	7
1.4 核燃料后处理厂的特点 .....	11
1.5 核燃料后处理工艺发展简史 .....	14
复习思考题 .....	19
<b>第 2 章 溶剂萃取工艺的化學原理</b> .....	20
2.1 铜系元素与裂片元素的水溶液化学 .....	20
2.2 磷酸三丁酯的萃取性能 .....	38
2.3 有机溶剂的降解及其对萃取工艺的影响 .....	57
2.4 多级逆流萃取 - 洗涤过程及其定量描述 .....	59
复习思考题 .....	66
<b>第 3 章 核燃料元件的类型及后处理工艺的基本过程</b> .....	67
3.1 不同类型反应堆乏燃料元件对后处理工艺的影响 .....	67
3.2 核燃料后处理工艺原理流程 .....	72
3.3 乏燃料元件的运输与贮存 .....	80
复习思考题 .....	82
<b>第 4 章 乏燃料元件的首端处理</b> .....	83
4.1 乏燃料元件的脱壳方法 .....	83
4.2 乏燃料元件的首端处理 .....	85
4.3 燃料芯体的溶解设备 .....	93
4.4 铀钚共萃取料液的制备 .....	97
复习思考题 .....	100

<b>第 5 章 铀钚共去污 - 分离循环</b> .....	101
5.1 铀钚共去污 - 分离工艺过程 .....	101
5.2 铀钚共萃取共去污 1A 槽(柱) .....	101
5.3 铀钚分离 1B 槽(柱) .....	110
5.4 铀的反萃取 1C 槽(柱) .....	123
复习思考题 .....	124
<b>第 6 章 钚的净化循环和尾端处理</b> .....	125
6.1 概述 .....	125
6.2 钚的第二萃取净化循环 .....	127
6.3 草酸钚(IV)的沉淀 .....	134
6.4 几种沉淀钚的方法比较 .....	138
6.5 草酸钚(IV)的煅烧 .....	140
6.6 二氧化钚的性质 .....	142
6.7 铀钚氧化物混合燃料的制备 .....	143
6.8 工艺设备中聚积的草酸钚(IV)沉淀及含钚有机相的处理 .....	144
复习思考题 .....	145
<b>第 7 章 铀的净化循环和尾端处理</b> .....	146
7.1 概述 .....	146
7.2 铀的萃取净化循环 .....	147
7.3 硅胶吸附法净化铀 .....	150
7.4 硝酸铀酰的脱硝与还原 .....	156
7.5 一步法脱硝 - 还原生产二氧化铀 .....	159
复习思考题 .....	163
<b>第 8 章 溶剂萃取循环的主要设备</b> .....	164
8.1 对溶剂萃取设备的要求 .....	164
8.2 混合澄清槽 .....	165
8.3 脉冲萃取柱 .....	178
8.4 离心萃取器 .....	191
8.5 其他设备 .....	194
复习思考题 .....	201



---

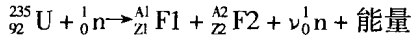
<b>第 9 章 放射性三废的处理与处置</b> .....	202
9.1 概述 .....	203
9.2 放射性废水的处理技术 .....	204
9.3 高放废液的综合利用与最终处置 .....	227
9.4 污溶剂的净化与再生 .....	244
9.5 放射性废气的处理 .....	256
9.6 放射性固体废物的处理与处置 .....	265
复习思考题 .....	268
<b>附录</b> .....	269
<b>参考文献</b> .....	275

# 第 1 章 绪 论

## 1.1 核燃料循环

### 1. 核燃料循环

核燃料是用于维持反应堆链式反应的材料,由易裂变核素(吸收中子后能净增中子)和可转换核素(吸收中子后能产生易裂变核素)组成。核燃料的“燃烧”是指铀或钍核的裂变、释放出能量并产生裂片核素和中子的过程。例如,铀核裂变



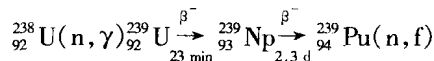
式中,F1,F2 表示生成的裂片核素; $\nu$  表示每次裂变放出的中子数。

核燃料循环概念的产生是基于反应堆运行的下述两个特点:

(1)核燃料在反应堆中不是一次就完全燃烧耗尽的(在热中子反应堆中,燃耗通常为 1.5%~3%,在快中子反应堆中燃耗可达 10%);

(2)反应堆运行中产生次级易裂变核素,反应堆的中子作用于可转换核素 ${}^{238}\text{U}$ , ${}^{232}\text{Th}$ ,分别产生易裂变核素 ${}^{239}\text{Pu}$ , ${}^{233}\text{U}$ 。后两者同 ${}^{235}\text{U}$ 一样,是易裂变核素。

装在堆内的裂变燃料必须经常保持(或大于)临界质量,否则不可能维持链式反应。为了要在一定的运行周期内发出额定功率,堆内需留有超过临界质量的易裂变燃料,使反应堆活性区具有后备反应性。当燃料达到一定的燃耗深度,由于燃料的消耗以及运行期间产生并积累的裂变产物的毒化效应,待后备反应性接近消失时,虽然燃料元件中尚含有相当数量的易裂变燃料,也得将其从堆内卸出,换入新燃料。卸出的燃料元件称为乏燃料元件(Spent fuel element),其中含有大量的易裂变核素和可转换核素,包括原先装入但未燃耗的和运行周期中在堆内转换生成的易裂变核素,例如



因此,需要对乏燃料进行化学处理,提取、回收易裂变核素和可转换核素,除去裂变产物,重新制成可用的燃料元件返回反应堆复用,从而形成核燃料循环体系。

对经反应堆中子辐照过的铀燃料的这种化学处理,通常称为核燃料后处理(Nuclear fuel reprocessing),或核燃料放化后处理(радиохимическая переработка ядерного топлива),以区别于核燃料在进入反应堆前从铀矿石中提取铀的化学处理过程(称为前处理)。由于乏燃料的放射性活度很强,裂变产物不断衰变转变为大量的热,故曾称之为热铀处理(Hot uranium processing)

或辐照铀处理 (Irradiated uranium processing)。但是, 现在人们也习惯称之为乏燃料后处理 (Spent fuel reprocessing)。

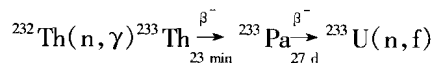
## 2. 核燃料循环的类型

根据核反应堆使用的核燃料中易裂变核素与可转换核素组合方式的不同, 可分成三种类型的核燃料循环方案, 每种核燃料循环方案采用一定类型的反应堆来实施。如果核反应堆采用的燃料中易裂变核素是 $^{235}\text{U}$ , 可转换核素是 $^{238}\text{U}$ , 则称之为铀燃料循环。这时反应堆中易裂变核素的再生是由于副核反应 $^{238}\text{U}(n, \gamma)$ 生成放射性核素, 其衰变链导致生成易裂变核素 $^{239}\text{Pu}$ 。铀燃料可以由天然铀(约 0.7%  $^{235}\text{U}$ )、低富集铀(1% ~ 5%  $^{235}\text{U}$ )或高富集铀(达 93%  $^{235}\text{U}$ )制备。天然铀(Natural uranium)和低富集铀(Low - enriched uranium)用于热中子反应堆, 高富集铀(High - enriched uranium)用于快中子堆活性区, 该堆在转换状态下运行。

如果反应堆最初装入天然铀, 则乏燃料中剩下 0.2% ~ 0.3%  $^{235}\text{U}$ 。重新富集这种铀在经济上是不合算的, 因此它以所谓贫铀形式留下。贫铀可进一步用作快中子堆的增殖材料。用低富集铀装载核反应堆时, 乏燃料中通常约含有 1%  $^{235}\text{U}$ 。这种铀可再富集到其在核燃料中最初的含量并重新制成可用的燃料元件返回反应堆复用。

为恢复核燃料的反应性能, 可通过往其中加入其他易裂变核素—— $^{239}\text{Pu}$  或  $^{235}\text{U}$ , 即次级核燃料来实现。如果在天然铀或贫铀中加入的  $^{239}\text{Pu}$  量相当于燃料中  $^{235}\text{U}$  的相应富集度, 则可实现铀 - 钚循环。铀钚氧化物混合燃料既可用于热中子反应堆, 又可用于快中子堆活性区。这样铀 - 钚燃料循环可以最大限度地保证铀资源的充分利用和裂变资源的扩大再生。

在铀 - 钍燃料循环中,  $^{235}\text{U}$  或  $^{233}\text{U}$  可作为易裂变材料



$^{232}\text{Th}$  是转换材料。铀燃料循环、铀 - 钚燃料循环已实现工业规模的生产, 因钍基燃料的后处理和工程经济问题, 故铀 - 钍燃料循环尚处于研究试验阶段, 但钍被认为是具有前途的转换材料, 钍的天然储量是铀的天然储量的 3 ~ 5 倍。现在运行中的压水堆、沸水堆、重水堆和石墨堆均采用铀燃料循环或铀 - 钚燃料循环。热中子反应堆在燃料转换比  $C < 1$  的情况下复用铀和钚, 仍可大大减少对天然铀及对  $^{235}\text{U}$  富集能力的需求。

除铀、钚外, 次锕系元素 (minor actinides, MA) 也是裂变核能的资源, 研究它们的利用价值, 无疑是关系到裂变核能可持续发展的重要课题。

## 3. 核燃料循环的方式

从上述可见, 核燃料循环体系是指铀裂变资源的开采和使用的全过程, 其根本目的是提供能源。从核素转化迁移的观点看, 核燃料循环体系是由铀矿开采、各种类型的核燃料加工厂、反应堆工厂、后处理厂组成的核素转变、迁移的工业体系。因此, 核燃料循环设施是核工业的

主体产业。

近些年来,许多国家积极开展先进核燃料循环体系或洁净核能体系的研究,其目的是降低核能生产成本,提高核能生产体系的经济性;减少废物排放量,促成生态和谐;充分利用铀资源;确保核不扩散。

在核燃料循环体系中,反应堆工厂(Reactor plant)是中心环节,它提供中子、实现各种核反应、释放并输出核能;后处理厂(Reprocessing plant)是实现核燃料循环的关键环节,它使乏燃料中未充分燃烧的铀和生成的钚能重复利用,它也是确保环境安全的重要手段。

核燃料通过反应堆的循环方式大体上可分为两种。

#### (1)一次通过的开式循环

一次通过的开式循环(Once-through cycle),核燃料元件在反应堆内使用后作为乏燃料长期贮存,在可预计的时间内不再处理。一次通过的燃料循环的首端是投入从铀资源中提取、加工、制造的新燃料元件,铀钚不再循环,裂变产物、超铀元素不利用,燃料循环的末端输出的是现在被称为核废料的乏燃料元件。这种元件要进行深地层处置,在深埋以前要进行处理,以确保在长期埋藏中放射性核素不会通过任何途径透过设置的屏障进入生物圈。这种处置方法很复杂,费用很高。乏燃料中还含有未耗尽的 $^{235}\text{U}$ 和新产生的 $^{239}\text{Pu}$ ,不将其回收很可惜。此外,目前热中子堆只利用占天然铀0.7%的 $^{235}\text{U}$ ,绝大部分铀未被利用。这种循环方式铀资源利用率不到1%。

#### (2)后处理-分离-嬗变燃料循环

后处理-分离-嬗变燃料循环(Reprocessing-partitioning-transmutation fuel cycle)将燃料循环末端卸出的乏燃料元件进行后处理,除提取铀钚外,还从高放废液中提取次锕系元素(如Np, Am, Cm)和长寿命裂变产物(LLFP)并制成元件或靶件,再将其置于反应堆或加速器驱动系统(ADS)进行中子引发的核反应,通过裂变或俘获中子方式实现核素的转化(Nuclear transmutation,即核嬗变),使长寿命放射性核素转变为短寿命核素或稳定核素,从而消除潜在的放射性威胁并利用嬗变过程中所释放的能量。理想的闭式核燃料循环体系(见图1.1)只需要从前端补充铀资源,末端排出的仅是短寿命裂变产物。欲实现理想的闭式核燃料循环,需研究开发分离工艺和嬗变技术。

现在,热中子反应堆核燃料的再循环规模已能节约10%~35%的天然铀,如果用铀钚氧化物混合燃料代替铀燃料,将使热中子反应堆燃料循环费用降低9%~12%。

因此,核能开发是一项系统工程,核燃料循环是核电正常运行和实现可持续发展不可缺少的条件。

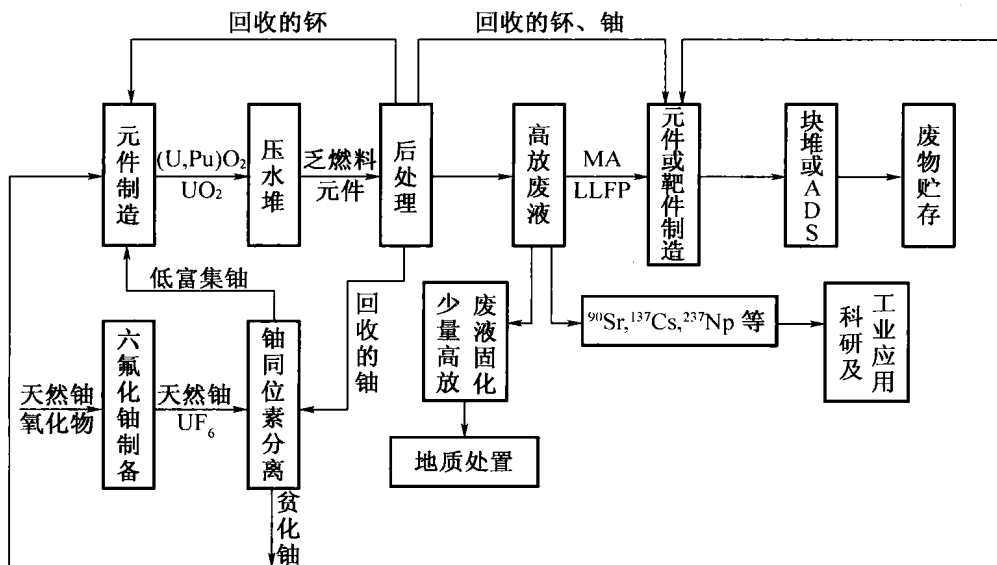


图 1.1 理想的闭式核燃料循环体系

## 1.2 反应堆乏燃料元件的基本特性

核燃料通常以燃料元件形式装入堆内。所谓燃料元件(Fuel element)是在反应堆内,以核燃料为主要成分,用合适的金属或其他材料加以包覆、密封,结构上独立的最小构件(即核燃料单元体=核燃料+包壳),其具体形式有棒状、板状、管状和球状等。燃料组件(Fuel assembly)是将若干棒状核燃料元件以格架形式排列,组装成便于装卸、搬运及更换的棒束组合体。核燃料的特点之一是能量密度高,为了充分利用核能,通常要求燃料元件在堆内停留较长时间:压水堆 3~4 年;核潜艇堆 10 年以上。

核燃料后处理所关注的反应堆乏燃料元件的基本特性是,乏燃料元件包壳材料的种类、燃料芯体的化学组成和放射化学组成、乏元件放射性活度水平等参数。乏燃料的这些特性主要取决于反应堆的类型、功率、运行时间和卸出后的冷却时间等因素。表 1.1 列出了压水堆乏燃料元件的基本特性。核燃料的燃耗(Burnup)是指核燃料中已消耗的易裂变核素的原子百分数或用每吨核燃料产生的能量表示。通常以兆瓦日/吨金属铀(MWd/tU)或兆瓦日/吨重金属(MWd/tHM)表示乏燃料的燃耗(或称燃耗深度)。压水堆已成为核电站的主导堆型,因此,待处理的动力堆乏燃料主要是这种堆型的燃料。压水堆燃料是低富集度( $^{235}\text{U}$  同位素丰度小于 5%)的烧结二氧化铀,有代表性的燃料 $^{235}\text{U}$  富集度为 3.2%,燃耗为 33 000 MWd/tHM,包壳材料

为锆-2合金。

现在,为了进一步提高压水堆的经济效益,核电站通过在反应堆内对元件的优化安排以及元件制造技术的提高,正在逐步实现1/4卸料制。组件燃料芯块的铀-235富集度已提高到3.9%,燃耗可达43 000 MWd/t,甚至更高些。因此,乏燃料中裂变产物和超铀元素份额增加较多,从而使料液中不溶性裂变产物明显增多,加大了料液澄清的负荷。随着燃耗的增加,裂变产物 $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^3\text{H}$ 以及超铀元素 $^{237}\text{Np}$ 等核素,都会给工艺过程带来困难或提出更高的分离净化要求。

反应堆卸出的乏燃料在后处理前要在专用贮存库中放置(冷却)足够长的时间,直到大部分短寿命放射性核素衰变掉(因为裂变产物中有大量短寿命放射性核素,这些核素的放射性活度在卸出燃料时占很大的份额),以便大大减轻生物防护、降低乏燃料后处理工艺溶液的辐解作用。经过2~5年冷却后,乏燃料的放射性活度主要由长寿命裂变产物和超铀元素贡献。表1.2至表1.4列出了有代表性的乏燃料的放射化学组成。

表 1.1 压水堆乏燃料组(元)件的基本特性

特性项目	数 值
外形尺寸/mm	214×214×4 100
包壳材料	Zr-2合金
燃料芯体	UO <sub>2</sub> (3.2% <sup>235</sup> U)
燃耗/(MWd/tHM)	33 000
冷却时间/d	> 365
裂变产物/(质量)	3
$\beta$ 放射性活度/(Bq/tHM)	$1.86 \times 10^{16}$
$^3\text{H}$ /(Bq/tHM)	$2.53 \times 10^{12}$
$^{129}\text{I}$ /(Bq/tHM)	$1.71 \times 10^9$
$^{85}\text{Kr}$ /(Bq/tHM)	$3.49 \times 10^{12}$
$^{99}\text{Tc}$ /(g/tHM)	811
Ru/(g/tHM)	2 199.98
超铀元素/(质量)	$\approx 1$
$\alpha$ 放射性活度/(Bq/tHM)	$2.77 \times 10^{14}$
Pu/(g/tHM)	$\approx 10 500$
$^{237}\text{Np}$ /(g/tHM)	548
Am/(g/tHM)	369
Cm/(g/tHM)	31

表 1.2 压水堆乏燃料裂变产物的比放射性活度(燃耗深度为 33 GWd/tU)

核素	半衰期	冷却不同时间后的比放射性活度/(Bq/tU)		
		0.5 a	1 a	10 a
$^{85}\text{Kr}$	10.8 a	$4.1 \times 10^{14}$	$4.1 \times 10^{14}$	$2.3 \times 10^{14}$
$^{90}\text{Sr}$	29 a	$2.96 \times 10^{15}$	$2.9 \times 10^{15}$	$2.3 \times 10^{14}$
$^{90}\text{Y}$	2.6 d	$2.96 \times 10^{15}$	$2.9 \times 10^{15}$	$2.3 \times 10^{14}$
$^{91}\text{Y}$	57 d	$4.8 \times 10^{15}$	$5.5 \times 10^{14}$	
$^{95}\text{Zr}$	65 d	$8.1 \times 10^{15}$	$1.1 \times 10^{15}$	
$^{95}\text{Nb}$	35 d	$1.6 \times 10^{16}$	$2.4 \times 10^{15}$	
$^{106}\text{Ru}$	369 d	$1.4 \times 10^{16}$	$9.6 \times 10^{15}$	$2 \times 10^{13}$
$^{106}\text{Rh}$	30 s	$1.4 \times 10^{16}$	$9.6 \times 10^{15}$	$2 \times 10^{13}$
$^{125}\text{Sb}$	2 a	$2.7 \times 10^{14}$	$2.4 \times 10^{14}$	$2.4 \times 10^{13}$
$^{125m}\text{Te}$	58 a	$1.1 \times 10^{14}$	$1 \times 10^{14}$	$9.6 \times 10^{12}$

表 1.2(续)

核素	半衰期	冷却不同时间后的比放射性活度/(Bq/tU)		
		0.5 a	1 a	10 a
<sup>85</sup> Kr	10.8 a	$4.1 \times 10^{14}$	$4.1 \times 10^{14}$	$2.3 \times 10^{14}$
<sup>127m</sup> Te	105 a	$1.9 \times 10^{14}$	$5.9 \times 10^{13}$	
<sup>129</sup> I	$1.7 \times 10^7$ a	$1.2 \times 10^9$	$1.2 \times 10^9$	$1.2 \times 10^9$
<sup>134</sup> Cs	2.3 a	$7.0 \times 10^{14}$	$5.9 \times 10^{14}$	$2.8 \times 10^{14}$
<sup>137</sup> Cs	30 a	$3.7 \times 10^{15}$	$3.6 \times 10^{15}$	$2.9 \times 10^{14}$
<sup>137m</sup> Ba	156 s	$3.7 \times 10^{15}$	$3.6 \times 10^{15}$	$2.9 \times 10^{15}$
<sup>144</sup> Ce	284 d	$2.9 \times 10^{16}$	$1.8 \times 10^{16}$	$6.3 \times 10^{12}$
<sup>144</sup> Pr	17 min	$2.9 \times 10^{16}$	$1.8 \times 10^{16}$	$6.3 \times 10^{12}$
<sup>147</sup> Pr	2.6 a	$4 \times 10^{15}$	$3.5 \times 10^{15}$	$3.2 \times 10^{14}$
<sup>154</sup> Eu	8.8 a	$2.2 \times 10^{14}$	$2.1 \times 10^{14}$	$1.4 \times 10^{14}$
<sup>155</sup> Eu	1.7 a	$2.1 \times 10^{14}$	$1.7 \times 10^{14}$	$5.5 \times 10^{12}$
其他核素		$1.6 \times 10^{16}$	$6.7 \times 10^{14}$	$6.3 \times 10^{13}$
合计		$1.5 \times 10^{17}$	$8.5 \times 10^{16}$	$1.2 \times 10^{16}$

表 1.3 经不同时间冷却后,压水堆乏燃料中的裂变元素含量  
(燃耗深度为 33 GWd/tHM)

裂变元素	经不同冷却时间后的含量/(g/tHM)			
	90 d	150 d	1 a	10 a
Tc	835	835	835	835
Ru	2 280	2 260	2 220	2 140
Rh	384	389	392	392
Pd	1 280	1 290	1 330	1 410
Ag	60	60	60	60
Ce	2 920	2 880	2 760	2 660
Pr	1 190	1 200	1 200	1 200
Nd	3 870	3 910	4 000	4 150
Pm	12	107	96	8.7
Sm	803	808	824	904
Eu	182	182	180	164
Gd	102	103	105	123

表 1.4 铀系元素在乏燃料中的含量

核素	在乏燃料中的含量/(g/tU)		核素	在乏燃料中的含量/(g/tU)	
	热中子堆	快中子堆		热中子堆	快中子堆
$^{235}\text{U}$	8 000	7 000	$^{242}\text{Pu}$	340	9 020
$^{236}\text{U}$	4 520	1 000	$^{237}\text{Np}$	450	180
$^{238}\text{U}$	940 000	719 000	$^{241}\text{Am}$	50	1 460
$^{238}\text{Pu}$	168	1 840	$^{243}\text{Am}$	92	711
$^{239}\text{Pu}$	5 300	117 000	$^{242}\text{Cm}$	8	42.3
$^{240}\text{Pu}$	2 140	52 400	$^{244}\text{Cm}$	31	41.9
$^{241}\text{Pu}$	1 100	14 400			

注:热中子堆燃耗为 33 Gwd/tU,快中子堆燃耗为 80 Gwd/tU。

### 1.3 核燃料后处理的任務

核燃料后处理的目的是,用化学方法分离除去乏燃料中的裂变产物,以回收并净化铀钚,也可以回收镓、镉、铜等超铀元素及有价值的裂片元素 Sr, Cs, Pm。

核燃料后处理的主要任务是:

(1)回收铀和钚,作为核燃料重新使用。将回收的铀和钚返回热中子堆再循环,可使核能工业对铀的需求量减少 20% ~ 30%,这意味着可减少铀的开采及富集铀(Enriched uranium)的生产;

(2)去除铀、钚中的放射性裂变产物和吸收中子的裂变产物;

(3)综合处理放射性废物,使其适合于长期安全贮存。回收某些可作热源、辐射源用的裂变产物(如 $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ),以及作为副产品提取超铀元素(如镓、镉、和铜)以便发展放射性同位素在工业、科研和医疗等方面的应用;分离出长半衰期裂片元素( $^{129}\text{I}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ 等)和长半衰期超铀元素制成元件或靶件在快中子反应堆(或加速器驱动系统, ADS)进行嬗变,使长半衰期核素转变为短半衰期核素或稳定核素。

因此,乏燃料后处理厂主要的商业产品是铀和钚。要确保这些铀钚核燃料在随后的核燃料循环工序(铀同位素分离,燃料元件制造等)中可在无屏蔽的条件下直接进行操作。

后处理厂的产品形式,首先取决于乏燃料中易裂变核素的种类和数量(这与反应堆的类型有关),另一个因素是产品的用途。后处理厂的产品形式应是满足后续工序使用要求的形式,而且是既能满足安全运输、贮存的形式,又是经济上合算的形式。

钚是后处理厂最主要的产品,目前有两种产品形式:二氧化钚和硝酸钚溶液。由于快堆商业化进程的推迟,有相当数量的工业钚要制成铀钚氧化物混合燃料在热中子动力堆中循环。



所以,今后的后处理厂也会把钚制成铀钚氧化物混合燃料。

后处理回收的铀的产品形式有三种:三氧化铀(二氧化铀)、硝酸铀酰和六氟化铀。早期的动力堆乏燃料后处理厂多以硝酸铀酰为铀产品。但后来证明,即使残留微量的裂变产物和超铀元素,使前处理厂也难以完成铀转化任务,仍需建立新的回收铀转化设施。因此,后处理厂实际上是以六氟化铀作为最终铀产品形式。

关于后处理厂产业链的延伸可从三方面考虑:①开发裂变核能的关键问题是钚的利用。目前,核电站中有 1/3 左右的电能是由钚的裂变所提供的。由于快中子增殖堆商业化的推迟,有相当数量的工业钚要制成(U,Pu) $O_2$  燃料。钚以铀钚氧化物混合燃料(MOX)形式在压水堆中循环利用,这种形式燃料的设计以  $UO_2$  燃料的当量为参照点。MOX 燃料中 $^{239}\text{Pu}$ , $^{241}\text{Pu}$  是易裂变核素, $^{240}\text{Pu}$  是中子吸收剂,同时也能转换成 $^{241}\text{Pu}$ , $^{242}\text{Pu}$  及 $^{241}\text{Pu}$  的衰变子体 $^{241}\text{Am}$  也是中子吸收剂,10年后,将有 38%的 $^{241}\text{Pu}$  转变为 $^{241}\text{Am}$ 。因此,MOX 燃料的制备应当与其后处理工艺很好地衔接。②由于回收的铀产品仍有微量的裂变产物和超铀元素,前处理厂难以完成  $UO_2$  的氟化任务。③目前商用后处理厂乏燃料元件的设计冷却时间为 2~3 年,但实际上冷却期大于 3 年。从钚燃料循环利用看,冷却期太长, $^{241}\text{Pu}$  因衰变成 $^{241}\text{Am}$  而损失,同时因 $^{241}\text{Am}$  积累成为强  $\gamma$  辐射源。故轻水堆中回收的钚应在 2~3 年内制成新的燃料元件返回堆中使用。

后处理厂的产品暂无国际标准,国际贸易中多采用美国国家标准局颁布的规格(见表1.5),生产厂家也多参照这些标准规格来控制产品质量。产品的放射性活度是一项主要的质量指标,对产品放射性活度的要求应根据乏燃料的特性、产品的用途、元件加工技术以及经济安全等方面综合考虑。通常规定铀产品的放射性比活度应不超过天然铀的放射性比活度( $\beta$ , $2.5 \times 10^4$  Bq/g(U); $\gamma$ , $9 \times 10^3$  Bq/g(U))的两倍;钚产品的  $\alpha$  放射性比活度小于  $3.7 \times 10^5$  Bq/g(Pu)。

后处理厂产品对轻元素的要求。 $^{239}\text{Pu}$  是一个较强的  $\alpha$  放射体,对原子序数小于 20 的原子核可能引发( $\alpha$ ,n)反应。因此,如果 $^{239}\text{Pu}$  中含有较多的轻元素杂质,将增加中子本底,从而导致钚在进一步加工时,使操作人员受到更多的中子照射,而且用这种钚作核武器装料,有提前爆炸的可能。

后处理厂产品对中子毒物的要求,其中主要是 $^{149}\text{Sm}$ , $^{155}\text{Eu}$ , $^{155}\text{Gd}$ , $^{10}\text{B}$ , $^{112}\text{Cd}$  及 $^{135}\text{Xe}$ ,一般要求产品中杂质的总中子宏观俘获截面小于 $^{235}\text{U}$  宏观俘获截面的 1/50。

后处理厂产品对重元素的要求。与轻元素相比,对重元素杂质含量限制较宽,但对某些具有较大热中子俘获截面的元素(如 Co, Ag, Cd, Mn 和 RE 等)也应严格控制。

关于钚产品的同位素组成。反应堆生产出来的钚是多种同位素的混合物,各种同位素在混合物中所占份额与反应堆功率、辐照时间、燃料初始同位素组成等多种因素有关。从低燃耗热中子堆获得的钚,其同位素组成为: $\approx 95\% ^{239}\text{Pu}$ , $\approx 5\% ^{240}\text{Pu}$ , $\approx 0.3\% ^{241}\text{Pu}$ 。

后处理厂铀产品中,因 $^{235}\text{U}$ , $^{238}\text{U}$  半衰期很长,故对轻元素杂质含量限制可放宽些,铀产品中杂质总量控制在 0.02%~0.06% 范围。