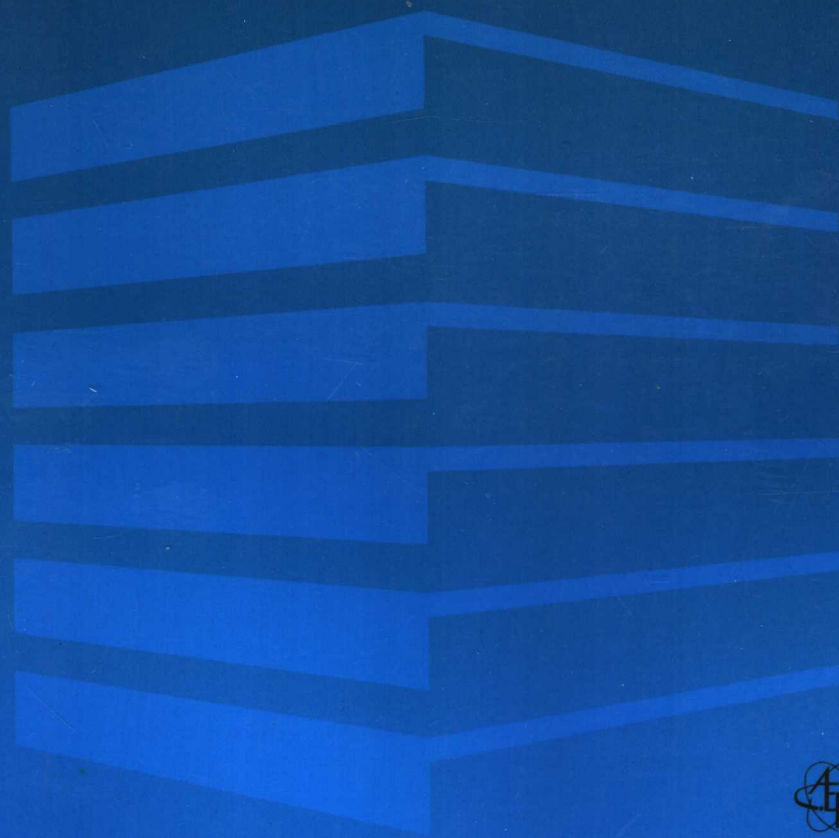


# 国外核燃料后处理

FOREIGN NUCLEAR FUEL REPROCESSING

任凤仪 周镇兴 编著 袁良本 审校



原子能出版社

# 国外核燃料后处理

Foreign Nuclear Fuel Reprocessing

任凤仪 周镇兴 编著

袁良本 审校

原子能出版社

## 图书在版编目(CIP)数据

国外核燃料后处理/任凤仪,周镇兴编著. —北京:原子能出版社,2004.9

ISBN 7-5022-3207-9

I. 核… II. ①任…②周… III. 国外核燃料后处理 IV. TL248

中国版本图书馆 CIP 数据核字(2004)第 077283 号

## 内 容 简 介

这是一本比较全面系统地论述国外核燃料后处理成就和经验的书籍。全书共十五章,前四章为首端处理,包括乏燃料的运输、贮存、剪切、溶解芯块,以及溶剂萃取料液的制备;第五章到第十章概述了磷酸三丁酯(TBP)萃取、分离、纯化铀、钍、镅的主要成就和工厂操作经验;第十一章到第十四章介绍了工厂的主要设备、监测与控制、辐射防护与临界安全,以及三废治理的进步和发展;最后一章扼要叙述了工厂设施的去污和维修。为了比较全面系统地了解核燃料后处理技术发展的最新成就,本书在附录中介绍了法国 UP3 厂和英国 THORP 厂的概况。

本书主要为动力堆核燃料后处理厂职工培训和安全生产操作而编著的。

本书也可供放射化工、放射化学、放化分析、仪器仪表与控制、核安全、三废治理、环境保护、核工程设计、核技术开发与应用的工程技术人员、科研设计人员参考,也可供大专院校的有关专业师生参考。

## 国外核燃料后处理(Foreign Nuclear Fuel Reprocessing)

出版发行 原子能出版社(北京市海淀区阜成路 43 号 100037)

责任编辑 刘 朔

责任校对 徐淑惠

责任印制 丁怀兰

印 刷 保定市中画美凯印刷有限公司

经 销 全国新华书店

开 本 787 mm×1092 mm 1/16

字 数 707 千字

印 张 28.625

版 次 2006 年 8 月第 1 版 2006 年 8 月第 1 次印刷

书 号 ISBN 7-5022-3207-9

印 数 1—1200 定 价 66.00 元

版权所有 侵权必究(如有缺页、倒装,请与出版社联系调换)

网址: <http://www.aep.com.cn>

# 序

在讨论核能、环境和安全等问题时，如何处置从核电厂卸出的乏燃料，一直是人们关注的焦点之一。

目前，全世界每年产生的乏燃料数量超过1万吨重金属(tHM)。截止到2002年底累计产生的乏燃料总量已达25万tHM，其中大部分仍贮存在水池或干式贮存设施中。

怎样处置这些放射性强、毒性大的乏燃料，长期存在着争议。分歧主要集中在经济性、安全性和核扩散这几方面上。于是，不同国家制订出了适应各自战略需求的技术路线：一种是采取开环式或称“一次通过”式燃料循环，即将乏燃料在经过一段时间的贮存后，作为最终废物直接深埋在地质处置库中，以防止乏燃料中的钚的扩散；另一种是采取闭合式燃料循环，即对乏燃料进行化学处理(或称后处理，以区别于核燃料在进入反应堆前的化学处理过程)，从中回收总量占96%左右的铀和1%左右的钚，并通过再循环加以充分利用，而只占总量3%左右的长寿命裂变产物和次锕系核素(镅、镎、钷等)才作为高放废物经玻璃固化后作最终地质处置。两种技术路线中，前者是美国卡特政府1977年的决策，后者是英、法、德、俄、日等国家坚持不变的政策。

这一争议至今虽尚未结束，但不难看出，已有愈来愈多的人们倾向于后一种，即乏燃料后处理和铀钚再循环的技术路线，因为不这样做，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。况且，在不断再循环中使用的钚要比分散埋存在各废物处置库中的钚更易于控制和管理，从而更难于搞非法的核扩散。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 $^{99}\text{Tc}$ 、 $^{129}\text{I}$ 等裂变产物和次锕系核素“焚毁”，使之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。

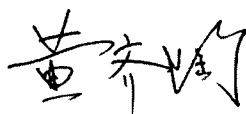
我国早在1983年就已做出决定，采用乏燃料后处理的政策，走核燃料闭合循环之路。

由于乏燃料的放射性很强，有些核素的毒性又大，所以整个后处理过程必须在屏蔽和密闭的条件下远距离操作运行，这就给后处理过程带来很大的难度。

后处理技术的研发始于20世纪40年代,首先是为军用服务的,即从低能耗的生产堆乏燃料中提取军用钚。由于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)的乏燃料以及各类研究堆的少量乏燃料,所以后处理技术的发展从未停止过。核电站乏燃料的后处理迄今也有近40年的历史了。40年来,这方面的技术取得了长足的进步。今天,我们有充分的理由说,乏燃料后处理技术是完全成熟的技术。美国虽在20世纪70年代放弃了,但法、英、俄、日等国一直在运行着大型的商业性后处理工厂。从它们的运行业绩看,这些工厂的工艺、技术、安全、管理、经济性等各方面都是成功的。通过大型后处理厂的长期实践已积累了十分丰富和宝贵的运行经验。

我们的核电事业正在稳步、健康地发展中。到2005年,我国将有11个核电机组(870万千瓦装机容量)投入运行。当然,这样的核电规模还不能算大。但到2020年,当我国的核电规模发展到3000~4000万千瓦时,建设一座与之配套的、年处理能力为几百吨乏燃料的后处理厂实为必要。由此看来,建设中国第一座大型后处理工厂并不是一件十分遥远之事,而建厂之前要做的准备工作又非常之多。当前,我们的第一个后处理中试厂即将建成,这对于掌握后处理技术、培养后处理专业人才十分必要。

为配合后处理中试厂的建成投运,任凤仪、周镇兴等同志大量、广泛地收集了世界各国后处理厂的技术和经验,编著了《国外核燃料后处理》一书,我认为很有意义,很有实用价值,他们为我国的核能事业做了一件十分有益的工作。在此,我谨向编著者、审校者以及为出版此书而忙碌过的同志们表示感谢。同时,我也衷心地希望有更多的人士来共同关心我国核燃料后处理事业的发展。



2003年盛夏

# 前言

我们在编著《核燃料后处理工学》一书时，中国科学院院士、著名的化学与核工程专家姜圣阶先生曾多次强调，在写完《核燃料后处理工学》一书后，要把世界各国核燃料后处理的经验收集起来，进行分类整理，写成一本较全面介绍乏燃料处理经验方面的书籍是很有意义的。因为，经过50多年的发展，无论是生产堆乏燃料的处理，还是动力堆乏燃料的处理都积累了大量丰富的经验。可是，这些宝贵的经验却分散在各种专业会议的会议报告、各种核科技文献以及各种核科技书籍之中，目前，还没有见到比较全面系统地介绍核燃料后处理经验的书籍。为此，我们编著了这本以动力堆（包括生产堆）乏燃料处理经验为主要内容的书籍。

现在，正值我国核电事业蓬勃发展之际，动力堆核燃料后处理中试厂即将建成运营之时，为进行职工技术培训，提高生产操作的质量和效率，也是我们编著本书的目的之一。

本书按照普雷克斯工艺流程的安排，将乏燃料的运输和贮存、剪切与溶芯、溶剂萃取分离、纯化易裂变材料钚、铀、镅，工厂的主体设备、监测与控制、辐射防护与临界安全、三废治理，以及工厂设施的去污与维修等内容分为15个专题，将我们收集到的美国、俄罗斯、法国、英国、日本、德国、比利时、印度等国家的核燃料后处理工程技术资料和生产实践经验汇编于其中，构成本书的主题。

英国原子能管理局 J. H. Miles 先生认为，英国的 THORP 厂和法国的 UP3 厂投入运营应是核燃料后处理技术发展的里程碑。为比较全面系统地理解这样大范围的技术发展，本书特将 UP3 厂和 THORP 厂的概况编为附录，以饷读者。

在编写本书时，原核工业副部长、国家科委副主任、著名的核专家黄齐陶先生给予了热忱的鼓励和支持；中国核工业集团公司核燃料局、科技局、核科技信息与经济研究院、原子能出版社、中国原子能科学研究院、核二院、核四院的领导、专家和同事们给予了大力支持和帮助；袁良本、蒋云清等先生提供了许多专业技术资料，侯朝勤先生审校了本书第十二章书稿；严叔衡、蒋云清、郑华铃、马艳钦、施进、苏广莉、黄润平、贾国顺等先生给予许多指导和帮

助,在此我们一并表示衷心的感谢。

在此,我们还应特别感谢核工业兰州核燃料厂的赞助和支持。

由于本书涉及的专业面很广,加之我们的水平有限,书中缺点和错误之处在所难免,尚盼读者不吝批评指正。

编著者

2003年6月于北京

# 目 录

<b>第一章 乏燃料的运输和贮存</b> .....	1
第一节 乏燃料的基本特性.....	1
第二节 乏燃料的运输.....	6
第三节 接收乏燃料.....	16
第四节 乏燃料的贮存.....	20
一、湿法贮存.....	20
二、干法贮存.....	26
三、几种乏燃料贮存技术的比较.....	30
第五节 乏燃料运输和贮存过程中的事故、事件与经验教训.....	31
<b>参考文献</b> .....	35
<b>第二章 去壳</b> .....	37
第一节 化学法去壳.....	37
第二节 电解法去壳.....	38
第三节 机械法去壳.....	39
一、切割机的发展概况.....	39
二、切割前的准备.....	43
三、切割端头和燃料组件.....	44
第四节 废包壳的处理与处置.....	47
第五节 乏燃料的激光切割及氧化挥发法预处理.....	50
<b>参考文献</b> .....	51
<b>第三章 溶解燃料芯</b> .....	52
第一节 溶解金属铀芯.....	52
一、溶解金属铀芯的化学原理.....	52
二、影响溶芯的主要因素.....	53
第二节 溶解二氧化铀芯块.....	57
第三节 二氧化铀和二氧化钚混合氧化物(MOX)燃料的溶解.....	60
第四节 铀钼、铀铝合金燃料的溶解.....	63
第五节 回收氧化氮和复用硝酸.....	64
一、一氧化氮的氧化.....	65
二、二氧化氮的吸收.....	66



第六节 溶解尾气的处理 .....	67
一、除碘 .....	68
二、除氟 .....	72
三、除 <sup>14</sup> C .....	72
四、除钷 .....	73
五、除氦 .....	73
第七节 溶解器 .....	77
一、间歇溶解器 .....	78
二、连续溶解器 .....	82
三、溶解器的腐蚀问题 .....	85
参考文献 .....	86
第四章 溶解液的预处理与萃取料液的制备 .....	88
第一节 溶解液中裂变产物与残渣的组分 .....	88
第二节 溶解液的预处理 .....	93
一、明胶絮凝 .....	94
二、用气体处理溶解液 .....	95
三、用清洁剂处理溶解液 .....	96
四、用有机物处理溶解液 .....	96
第三节 制备萃取料液 .....	98
第四节 料液的过滤或离心澄清 .....	99
参考文献 .....	104
第五章 铀和钷的共去污 .....	106
第一节 普雷克斯流程及其共去污循环 .....	106
第二节 影响铀和钷萃取和去污的因素 .....	110
一、铀、钷、锆、铈、钷等核素在共去污循环中的萃取行为 .....	111
二、料液放射性活度对净化的影响 .....	115
三、TBP 中铀饱和度对净化的影响 .....	117
四、溶剂质量对净化的影响 .....	118
五、洗涤对净化的影响 .....	122
六、氟离子对共去污循环净化的影响 .....	123
第三节 1A 槽低酸进料和高酸进料运行效能的比较 .....	123
第四节 从共去污萃取液中除去氟和钷 .....	125
参考文献 .....	130
第六章 铀和钷的分离 .....	132
第一节 亚铁离子还原分离铀和钷 .....	132
一、亚铁离子还原 Pu(IV) 的机制 .....	132

二、氨基磺酸亚铁的应用 .....	133
三、硝酸亚铁的应用 .....	135
第二节 四价铀还原分离铀和钚 .....	136
一、U(IV)还原 Pu(IV)的机制 .....	136
二、U(IV)-N <sub>2</sub> H <sub>4</sub> 的应用 .....	138
三、电解法制备 U(IV) .....	141
四、U(IV)水溶液的稳定性 .....	147
第三节 硝酸羟胺还原分离铀和钚 .....	148
一、影响硝酸羟胺还原 Pu(IV)的因素 .....	149
二、硝酸羟胺的应用 .....	152
三、硝酸羟胺的制备 .....	155
第四节 电解还原分离铀和钚 .....	156
一、基本原理 .....	157
二、影响电解还原的因素 .....	158
三、电解还原四价钚的研究与应用概况 .....	160
四、关于腐蚀问题 .....	165
第五节 在铀与钚分离过程中亚硝酸、胼与叠氮化物的行为 .....	167
一、胼的加入 .....	168
二、亚硝酸的来源 .....	169
三、叠氮酸的生成 .....	171
四、防止叠氮化物的危害 .....	172
参考文献 .....	173
第七章 钚的纯化和尾端处理 .....	175
第一节 TBP 萃取纯化钚 .....	175
第二节 回流萃取纯化浓缩钚 .....	182
第三节 钚的沉淀 .....	184
一、过氧化氢沉淀钚 .....	185
二、草酸沉淀钚(III) .....	187
三、草酸沉淀钚(IV) .....	188
四、三种沉淀方法的比较 .....	191
五、沉淀过程中出现的问题及其解决办法 .....	192
第四节 制备二氧化钚 .....	193
一、草酸钚(IV)的煅烧 .....	195
二、钚溶液脱硝 .....	197
三、二氧化钚的性质 .....	197
第五节 制备铀—钚混合氧化物燃料 .....	200
参考文献 .....	200

<b>第八章 铀的纯化和尾端处理</b> .....	202
第一节 铀的纯化方法概述.....	202
第二节 TBP 萃取纯化铀 .....	206
第三节 硅胶吸附法纯化铀.....	208
第四节 硝酸铀酰的脱硝和还原.....	212
一、概述 .....	212
二、流化床脱硝 .....	214
三、流化床还原 .....	217
四、脱硝还原过程中出现的问题及解决办法 .....	219
<b>参考文献</b> .....	221
<b>第九章 镓的提取、纯化和转化</b> .....	223
第一节 镓的性质.....	223
第二节 提取镓的工艺过程.....	225
一、从高放废液中提取镓 .....	226
二、TBP 从溶解料液中同铀、钚一起萃取镓 .....	228
第三节 从 Purex 流程中分离镓 .....	233
一、从 1AP 中分离镓 .....	233
二、从 1B 分离柱中分离镓 .....	234
三、从铀的净化循环中分离镓 .....	236
四、从 1BP 中分离镓 .....	237
第四节 镓的纯化和转化.....	238
<b>参考文献</b> .....	243
<b>第十章 磷酸三丁酯和稀释剂的复用</b> .....	244
第一节 磷酸三丁酯和几种常用稀释剂的性能.....	244
第二节 有机溶剂的降解与界面污物的形成.....	248
一、有机溶剂的降解 .....	248
二、界面污物的形成 .....	255
第三节 溶剂复用的措施.....	257
一、洗涤法净化污溶剂 .....	257
二、精馏法纯化污溶剂 .....	263
第四节 TBP-NO <sub>2</sub> 的热分解与爆炸 .....	267
<b>参考文献</b> .....	268
<b>第十一章 溶剂萃取设备</b> .....	270
第一节 概述.....	270
第二节 混合澄清槽.....	271
一、概述 .....	271

二、混合澄清槽的操作经验 .....	273
三、运行过程中可能出现的问题及解决办法 .....	277
第三节 脉冲筛板柱 .....	278
一、脉冲筛板柱的结构与应用 .....	279
二、脉冲筛板柱的操作特性 .....	282
三、影响脉冲筛板柱传质效率的因素 .....	283
四、液泛及防止液泛的措施 .....	289
第四节 离心萃取器 .....	293
参考文献 .....	297
<b>第十二章 生产过程的监测与控制</b> .....	298
第一节 分析 .....	298
一、概述 .....	298
二、几种分析技术 .....	303
第二节 在线分析技术 .....	308
一、在线分析装置的设置 .....	308
二、发展及应用情况 .....	309
第三节 乏燃料燃耗的检测 .....	311
一、基本测量原理 .....	311
二、燃耗监测装置 .....	314
第四节 工艺过程的监测 .....	319
一、燃料元件切割—溶解工艺过程的监测 .....	319
二、溶液的测量 .....	321
三、若干物理参数的测量 .....	321
四、脉冲柱的工艺监测 .....	322
五、放射性排气的监测 .....	324
第五节 核材料衡算及核保障技术 .....	326
一、核材料平衡区和关键测量点 .....	326
二、平衡区关键点的测量 .....	327
第六节 生产过程的控制系統 .....	332
参考文献 .....	336
<b>第十三章 核辐射防护与临界控制</b> .....	337
第一节 辐射防护 .....	337
一、概述 .....	337
二、辐射防护措施 .....	339
三、辐射监测 .....	349
四、辐射防护的经验 .....	354
第二节 核临界控制 .....	356

一、临界及其影响因素 .....	356
二、临界控制的原则与措施 .....	358
三、主要工序的临界控制 .....	361
四、吸取临界事故的经验和教训 .....	365
<b>参考文献</b> .....	369
<b>第十四章 放射性废物管理</b> .....	370
第一节 概述 .....	370
第二节 高放废液 .....	372
一、浓缩 .....	372
二、贮存 .....	373
三、固化 .....	374
第三节 中低放废液 .....	379
一、概述 .....	379
二、处理 .....	380
第四节 气体废物 .....	384
第五节 固体废物 .....	388
一、废包壳及其组件 .....	388
二、其他固体废物 .....	390
第六节 放射性废物的处置 .....	391
<b>参考文献</b> .....	392
<b>第十五章 工厂设施的去污和维修</b> .....	394
第一节 去污 .....	394
一、去污方法 .....	394
二、设备去污 .....	398
三、设备室(热室)去污 .....	399
第二节 设备故障 .....	402
第三节 维修 .....	404
一、维修的原则和方法 .....	404
二、维修设备及机具 .....	407
<b>参考文献</b> .....	409
<b>附录</b> .....	411
<b>附录 A 法国 UP3 厂的概况</b> .....	412
一、设计与建设 .....	412
二、乏燃料的运输和贮存 .....	412
三、工厂的启动与试运行 .....	413
四、工艺流程 .....	414

五、废物处理 .....	417
六、检测与控制 .....	419
七、维修 .....	420
八、核保障 .....	421
九、产品的运输 .....	423
十、阿格联合企业对环境的影响 .....	423
<b>参考文献</b> .....	424
<b>附录 B 英国热堆氧化物燃料后处理厂 (THORP) 概况</b> .....	426
一、建设规模 .....	426
二、乏燃料的运输与贮存 .....	426
三、首端处理 .....	428
四、铀、钚的萃取、分离及尾端处理 .....	429
五、调试与热运行 .....	431
六、测量与控制 .....	434
七、更换溶解器篮筐 .....	436
八、废物管理及工厂的安全性 .....	438
九、问题与改进 .....	439
<b>参考文献</b> .....	439

# 第一章 乏燃料的运输和贮存

本章主要论述经过核反应堆辐照并且经过一定时间冷却的乏燃料的基本特性；乏燃料的运输方法、运输容器；乏燃料的接收和贮存技术。

## 第一节 乏燃料的基本特性

核燃料按其物理状态可分为固体、液体和气体三类。应用最广泛的为固体燃料元件，固体燃料元件有棒状、棒束、板(片)状、管状、球状、环状等。使用得最多的当属棒状和棒束状燃料元件。某些核反应堆所用燃料的形状及其基本结构如图 1-1 和图 1-2 所示<sup>[1,2]</sup>。

对于后处理，人们最关注的是乏燃料的组成、裂变物质的含量和放射性活度值等参数。乏燃料的这些特性主要取决于反应堆类型、装料、反应堆的功率、运行时间、燃料在反应堆中的燃料深度、次级裂变材料的增殖系数和卸出后的冷却时间等因素。表 1-1 给出了热中子堆各种燃料的若干基本数据<sup>[1,3]</sup>。轻水堆(LWR)包括压水堆(PWR)、沸水堆(BWR)和水-水堆(VVER)；重水堆(HWR)包括加拿大重水铀反应堆(CANDU)和阿根廷阿图查堆(Atucha)；气冷堆(GCR)包括镁诺克斯燃料堆(Magnox)和改进型气冷堆(AGR)。

众所周知，核燃料在反应堆中燃烧是指铀或钚核在中子的轰击下发生裂变，释放出能量并生成裂变产物的过程。易裂变的<sup>235</sup>U 吸收一个中子发生裂变释放出新的中子和能量，这是主要的核反应，但是，也进行一些俘获反应生成不可裂变的<sup>236</sup>U 等。<sup>236</sup>U 是一种中子“毒物”，它能吸收中子生成<sup>237</sup>U，再衰变为易裂变的<sup>237</sup>Np。

<sup>235</sup>U 裂变产生的中子被<sup>238</sup>U 吸收经两次 $\beta$ 衰变生成易裂变的<sup>239</sup>Pu。<sup>239</sup>Pu 吸收一个中子后主要的反应是裂变，但也有一些原子俘获中子生成可转换的<sup>240</sup>Pu，<sup>240</sup>Pu 再吸收一个中子生成易裂变的<sup>241</sup>Pu。<sup>241</sup>Pu 吸收一个中子既可发生裂变又可能生成<sup>242</sup>Pu，<sup>241</sup>Pu 也可能衰变为易裂变的<sup>241</sup>Am。<sup>242</sup>Pu 再吸收中子生成的也是一种“毒物”，它生成的<sup>243</sup>Pu 可很快衰变为易裂变的<sup>243</sup>Am。

表 1-2 给出了锕系核素在热中子堆和快中子堆乏燃料中的浓度<sup>[4]</sup>。

在反应堆中易裂变的<sup>235</sup>U 和<sup>239</sup>Pu 发生裂变反应，生成一系列的裂变产物。现已观察到的裂变产物有 300 多种。由反应堆卸出的乏燃料经过一段时间的冷却，才能送去后处理。这是因为在裂变产物中有大量短寿命的放射性核素。因此乏燃料在后处理前经过长时间冷却，使短寿命的核素尽可能多地衰变掉，降低乏燃料元件的总活度。这样可以减少后处理过程中操作的困难，降低辐射防护要求和各种试剂(包括 TBP—稀释剂等)的辐射损伤。经过 2~5 年的冷却后，乏燃料的放射性活度仅取决于长寿命的裂变产物和 $\alpha$ 放射性核素。表 1-3 给出了轻水堆乏燃料中裂变产物的放射性活度<sup>[4]</sup>。表 1-4 给出了在不同冷却时间下，主要裂变产物在乏燃料中的含量<sup>[4]</sup>。

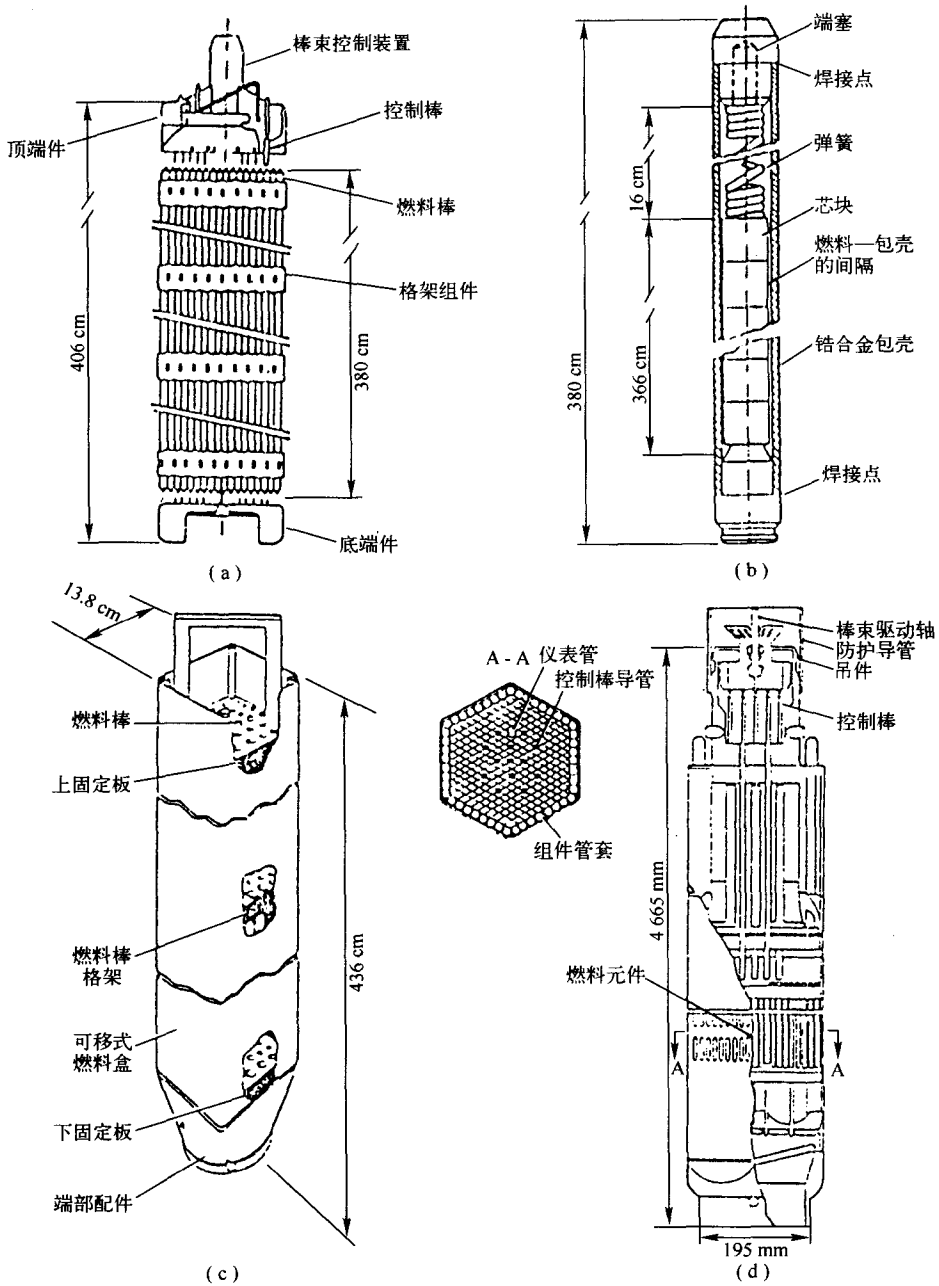


图 1-1 典型的轻水堆燃料

- (a) 压水堆燃料组件; (b) 轻水堆燃料棒;  
 (c) 沸水堆燃料组件; (d) VVER 燃料组件



