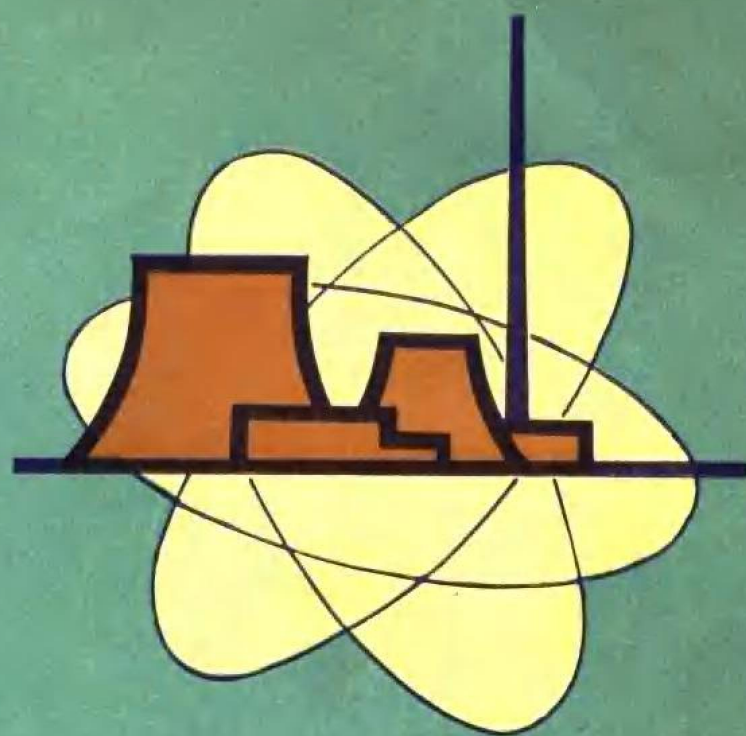


[美] J. T. 朗 著



# 核燃料后处理工程

原子能出版社

## 内 容 简 介

本书译自 J. T. 朗所著的《Engineering for Nuclear Fuel Reprocessing》(1967年版), 重点介绍动力堆燃料后处理的工程问题。全书共分十四章, 不仅提供了工程资料, 而且评述了最广泛采用的和大部分正在发展中的工艺过程。作者特别注意讲述后处理所用的机械和设备, 对仪表、屏蔽、临界控制、废液和废气处置、通风、燃料元件贮存和处理、物料核算、维修等问题都作了概述。每章正文后面附有大量精选过的参考文献。书末附有后处理工程常用数据和资料。

本书可供从事核燃料后处理工业的科研、设计部门和工厂人员作为手册查阅; 也可作为高等学校有关专业的教学参考用书。

J. T. LONG

ENGINEERING FOR NUCLEAR FUEL REPROCESSING

GORDON AND BREACH SCIENCE PUBLISHERS INC.

NEW YORK 1967

核 燃 料 后 处 理 工 程

[美] J. T. 朗著

杨 云 鸿 译

原子能出版社出版

(北京2108信箱)

北京印刷一厂印刷

(北京市西便门)

新华书店北京发行所发行·新华书店经销

☆

开本787×1092 1/16·印张39·字数927千字

1980年12月第一版·1980年12月第一次印刷

印数001—900·统一书号: 15175·186

定价: 5.45元

## 译 者 的 话

迄今，国外有关核燃料后处理的书籍不少，但它们的重点都放在分离化学和工艺化学上面。1967年美国戈登·布里奇科学出版公司出版了《核燃料后处理工程》一书，这是继《反应堆手册》第二卷“燃料后处理”(1961年第二版)之后，唯一的一本系统介绍有关动力堆燃料后处理各种工程问题的专著。本书编著者J. T. 朗博士是原美国原子能委员会技术... 报部人员。他在美国原子能委员会资助下，先主持了一个工程师-作者小组写成了各部分手稿。后来，他担起了作者-编者的角色，对整部手稿及其修改稿作了大量改写，并请各专题领域内有经验的科学家和工程师写了注释和评论。

作者根据许多不同的资料来源，摘录了有关放化分离工厂工程的基本原理。本书不仅提供了工程性资料，而且还评论了最广泛采用的和大部分正在发展中的工艺过程。书中特别注意讲述核燃料后处理所用的设备。对屏蔽、临界控制、废液和废气处置、安全、通风、燃料元件贮存和处理、物料核算、仪表、维修等问题也都作了概述。为方便读者查阅和深入了解细节，每章正文后面选列了大量参考文献。书末附有后处理工程常用数据和资料。

由于种种原因，本书的翻译出版延误了几年时间。但因国外至今尚无一本内容更新、更全的此种专著，而本书所引述的内容目前对我们仍有一定现实意义，因此我们仍将它译出。

本书对一个刚进入核燃料后处理领域的人来说是一本较好的入门书；对那些早已在此领域内从事工作的人来说，则是一本有用的指南。书中某些章节也可供其他从事遥控操作的专业人员参考。

核燃料后处理工程涉及的专业面很广，加之我们水平有限，译文中错讹之处难免，望读者批评指正。

汪家鼎、高钧、柯友之、汪希时等同志对本书的部分章节作过仔细审校，特此致谢。

杨云鸿

1978年6月

# 目 录

第一章	引言	1
第二章	放化处理中的特殊考虑	17
第三章	分离过程	99
第四章	辐照燃料的溶解	174
第五章	机械操作	207
第六章	液体输送	263
第七章	传热操作	297
第八章	溶剂萃取	340
第九章	其他传质过程	401
第十章	检测仪表	459
第十一章	辅助设备	497
第十二章	放化工厂设计	541
第十三章	工厂管理和运行	567
第十四章	放化处理费用	579
附录 A	裂变产物混合物中各种核素的性质	597
附录 B	某些重核素的性质	606
附录 C	屏蔽计算用的数据	607
附录 D	更换废气过滤器的典型操作规程	610
附录 E	核燃料后处理中使用的某些重要合金的组成	612
附录 F	工程设计资料的查找	613

# 第一章 引言

## 目 录

1-1 核能和核燃料循环	1
1-1.1 作为能源的核裂变	2
1-1.2 燃料循环	3
1-2 核燃料后处理的历史	5
1-2.1 铀的回收	5
1-2.2 核燃料后处理方法的发展过程	5
1-3 核燃料后处理的发展趋势	7
1-3.1 决定流程变化的因素	7
1-3.2 核反应堆设计	7
1-3.3 燃料循环的经济问题	7
1-3.4 流程的改进	10
1-4 与核燃料后处理有关的问题	10
1-4.1 问题概要	10
1-4.2 对健康的危害	10
1-4.3 材料损伤	12
1-4.4 远距离操作	13
1-4.5 废物处置	14
1-4.6 临界	14
1-4.7 重同位素积累及其影响	15
1-4.8 化学问题	15

本章论述核燃料后处理——处理工业的一部分——的重要性。其所以重要,原因有二:(1)核燃料做为能源所处的地位,(2)从反应堆燃料中回收裂变物质的必要性(通常是从经济方面考虑的)。这一章介绍核燃料后处理的历史和今后的发展方向,概述核燃料后处理成为独特工业的有关问题,以便读者能够大致了解这种工业的特殊性质。

### 1-1 核能和核燃料循环

今天,每个学生都知道核裂变的发现和核裂变能够释放出巨大的能量。但是只有少数人重视化学工程在使这种能量用于工业生产方面所起的作用。因此,为了解决这一问题,这一节先综述核反应堆的有关性能,并叙述燃料后处理与燃料循环其他部分之间的关系。

1.1.1 作为能源的核裂变 核裂变是今天普遍知道的现象。用核反应堆发电和作船舰动力也是众所周知的。因此，这一节只对核裂变和反应堆做定性的介绍，以明确核燃料后处理在反应堆燃料循环中的地位。详细地讨论燃料循环或各种循环方式，尤其是除燃料后处理外的核燃料循环部分，已经超出了本书的范围。

裂变过程 核裂变是某些核素所特有的一种释放巨大能量的过程。对反应堆有重要意义的裂变物质有  $^{235}\text{U}$ 、 $^{239}\text{Pu}$  和  $^{233}\text{U}$ 。当条件控制适当时，核裂变可以按自持链式反应进行，这种状态称为临界。裂变有四个很重要的特征：(1)释放很多的能量，(2)裂变原子被破坏，(3)释放中子，(4)生成裂变产物。

释放能量是目前建造的大多数反应堆的目的。这种能量可以转变成电能，也可作船舰的动力或给工业供热。有些国家，核能发电已经经济地实现了，就是在美国的一些矿物燃料价格甚高的地区，即使还未实现，在经济上也已接近要实现了\*。

现在，美国每年消耗的能量<sup>[1]</sup>相当于二十亿短吨普通优质煤或700短吨(即约640吨\*\*)  $^{235}\text{U}$ 。每磅 $^{235}\text{U}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ 或 $^{233}\text{U}$ 裂变时放出 $3.6 \times 10^{10}$ 英热单位(Btu)热量。随着可以廉价开采的煤的逐渐减少和核燃料循环在经济上的改善，预计用核材料生产能量将会增长。目前可以获得的售价5—10美元/磅的 $\text{U}_3\text{O}_8$ ，其蕴藏量(假定其中的核燃料原子全部裂变)可以生产 $2.2 \times 10^{19}$  Btu 热量。而大致按目前价格可开采的煤、石油和天然气能源，仅略高于 $5 \times 10^{18}$  Btu；当然总的矿物燃料资源可能高于这个数字的10倍以上。

因此，从长远观点看，核能作为一种能源，有重大意义<sup>[1,2]</sup>。到1963年底，美国运行着的核电站的总发电量(不包括用矿物燃料给过热器加热的功率)，已超过1000兆瓦。预计到2000年时，美国核电站发电量将占总发电量的一半。

裂变原子的破坏对燃料循环有重大意义，因为如果链式反应要继续下去的话，那么最终必须将已破坏的原子更换掉。原子的消耗，或称燃耗，可以原有的裂变原子消耗掉的百分数来量度，也可以原有的一吨裂变物质和潜在的裂变物质放出的兆瓦日能量来量度。所释放的中子和生成的裂变产物对燃料后处理工厂有特殊的重要性。

每个原子裂变时，放出两个或三个中子。这些中子具有1—10兆电子伏的能量。这些中子具有重大意义，因为它们与反应堆中的各种原子核相互作用。在某些情况下，中子被原子核弹回，失去一部分能量，同时，与其作用的原子核的能量增加。在另一些情况下，中子被原子核吸收，这通常带来下列结果之一：(1)该原子核裂变，(2)该原子转变成同一元素的 $\gamma$ 放射性同位素，(3)吸收中子产生的新核经放射性衰变转变成其它元素。

中子的能量与其速度有关。高能中子(即能量约高于0.1兆电子伏的中子)称为快中子，因非吸收碰撞造成能量损失称做慢化。速度与热运动速度相等的中子称为热中子。常温下与此速度相应的能量大约是0.025电子伏，但实际上，小于1电子伏的能量通常均认为在热能范围。由于裂变产生的中子的能量大约为1—10兆电子伏，所以都是快中子。

中子吸收是以其吸收几率表征的，该几率用“截面”定量地表示。有些原子的中子截面很大，很容易吸收中子，有时被看作是中子毒物。对于任一给定的核过程，核的中子截面是中子能量的函数。

\* 目前核电成本已经比火电成本低了。——译者注

\*\* 本书中使用的“吨”，是指公吨，等于1000公斤(或2204.6磅)。

某些物质( $^{238}\text{U}$ 和 $^{232}\text{Th}$ ),在多数情况下自身不会裂变,但是吸收中子后,它们可变成裂变物质。这样的物质称做增殖材料。吸收中子产生裂变或使增殖材料变为裂变物质是两个希望要的过程,而其它形式的吸收(常称做寄生吸收或寄生俘获)都是不希望出现的。

反应堆容纳裂变物质的部分称为堆芯。除裂变物质外,堆芯内还有用来带走释放出的能量的冷却剂和支承裂变物质并使其不受腐蚀的结构材料,有时还有将中子慢化至热能范围的慢化剂。所有这些材料,都有一定的寄生吸收截面,但是,这种截面要尽可能小些。

多数反应堆中的裂变物质是固体(金属或氧化物),而且总是包在包壳材料中,以防裂变产物逸出,并防止裂变物质受冷却剂的侵蚀。裂变物质、包壳及结构材料的组合件称做燃料元件。

**反应堆的类型** 反应堆有几种分类法。所用裂变物质的种类、引起大多数裂变的中子能量和(或)利用增殖材料的程度,这些决定了反应堆的基本类型。使用 $^{239}\text{Pu}$ 和 $^{233}\text{U}$ 的反应堆,仅需标明裂变同位素的种类,而依靠 $^{235}\text{U}$ 裂变的反应堆则是以总铀中 $^{235}\text{U}$ 原子的浓度即加浓度来表征的。天然铀中含有0.72%(原子)的 $^{235}\text{U}$ ,在适当条件下,这个浓度足够维持链式反应。但是,很多反应堆都使用低加浓或高加浓铀。

按照中子速度(能量),反应堆可分为热中子堆或快中子堆。使用介于快中子和热中子之间的中能中子的反应堆已经建成,但是它们似乎没有特别突出的优点。热中子堆容易控制并能利用天然铀作燃料。快中子堆一般尺寸较小,在某些情况下,在增殖材料的转化方面较为有利。

按反应堆对增殖材料的利用情况,反应堆可以分为燃烧堆、转换堆和增殖堆。转换堆和增殖堆还可以根据增殖材料是在堆芯(单区反应堆)还是在堆芯之外的增殖区(双区反应堆)来进一步分类。燃烧堆消耗裂变物质而不显著转化增殖材料。转换堆由增殖材料生产相当大量的裂变物质,但生产的裂变物质的量小于它所消耗的量。增殖堆生产的裂变物质质量大于或等于它所消耗的量。转化堆与增殖堆是按增殖比人为地划分的。增殖比是新生成的裂变物质的原子数与消耗掉的裂变物质原子数的比值。增殖比接近1(大约0.95到1.05)的反应堆叫做近增殖堆。

热转换堆、快增殖堆和热增殖堆等三种堆型对目前或将来有重要的意义。几乎所有在六十年代初建造的动力堆都是热转换堆,用天然铀或低加浓铀作燃料,其增殖比是0.6到0.7。快增殖堆用 $^{239}\text{Pu}$ 或 $^{235}\text{U}$ 做裂变物质,用 $^{239}\text{Pu}$ 时增殖比是1.6,用 $^{235}\text{U}$ 时大约是1.2。虽然 $^{233}\text{U}$ 在热中子堆和快中子堆中都能增殖,但通常认为 $^{233}\text{U}$ 快堆不如其它类型增殖堆有吸引力。从反应堆中实际得到的增殖增益,要小于根据裂变原子每次吸收时所能放出的中子数和增殖材料的裂变俘获截面所推算的数值。这是由于中子在裂变产物、结构材料、控制棒、反射层和慢化剂(如果使用的话)中的寄生损失以及后处理和再生产元件时的损失所致。

**1-1.2 燃料循环** 反应堆中的固体燃料元件,迟早总要因下列一个或几个原因被卸出和更换:(1)补充裂变物质,(2)过分的腐蚀与辐射损伤,(3)回收转换得到的(增殖的)裂变物质,(4)从回收的物质中去除吸收中子的裂变产物。如果辐照燃料中可回收物质的价值低于回收费用,那么就将这种辐照燃料长期贮存起来,以防放射性扩散。但通常对这种燃料要进行后处理,回收的裂变物质用以制作新的燃料元件。后处理之前,燃料要贮存一段时期,使一部分放射性同位素衰变(图1.1)。衰变的目的是使燃料元件运输(如果需要的话)和

后处理过程简化，这是由于：(1)基本上除尽了某些难处理的短寿命裂变产物同位素，(2)减小了高能 $\gamma$ 放射性同位素的量以及总辐射强度，从而降低了屏蔽要求并减少了对工艺试剂和设备的辐照损伤，(3)有时，要让先驱核衰变，以生成所要的同位素(例如由 $^{233}\text{Pa}$ 生成 $^{233}\text{U}$ )。

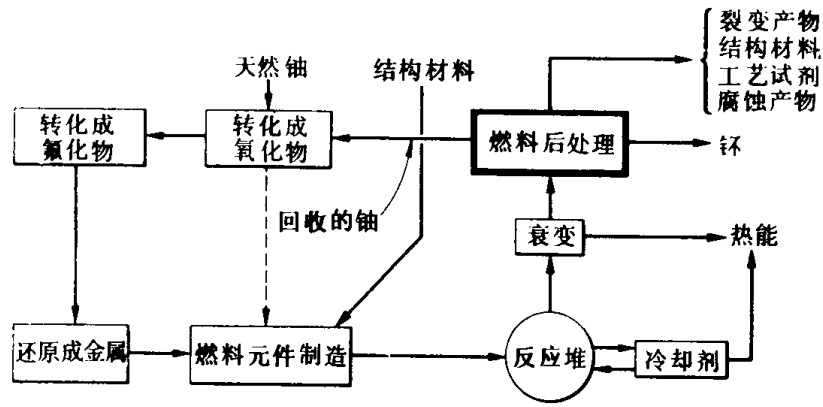


图 1.1 水法燃料后处理的天然铀反应堆燃料循环

在已经确立的水法处理中，铀以硝酸铀酰水溶液的形式被回收，该溶液经蒸发、焙烧制成三氧化铀，然后还原成二氧化铀，转变成四氟化铀，最后还原成金属铀。如果反应堆使用的是氧化物燃料，那就不必转变成氟化物和金属。如果反应堆燃料为天然铀或加浓铀，并在回收之后为了重新加浓而需要返回扩散级联，那么就要把四氟化铀再氟化成六氟化铀(图1.2)。

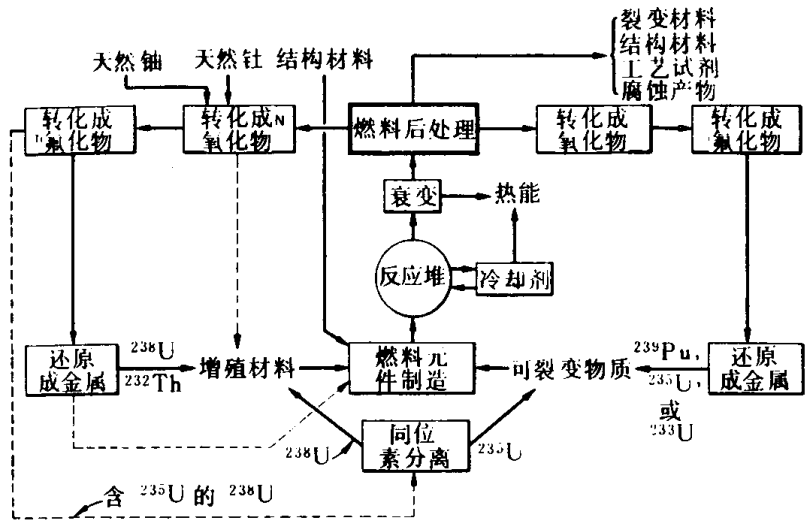


图 1.2 包括增殖材料和裂变物质在内的天然铀、加浓铀和钚的完整燃料循环

若不用溶解和水法后处理过程，可使燃料循环得到某些简化，熔融精制过程(3-9.3节)避免了溶解、转化成氧化物和氟化物以及还原成金属等步骤(图1.3a)；氟化挥发过程(3-9.3节)避免了转化成氧化物和氟化物的步骤(图1.3b)。以上两个过程在再制元件阶段，都必须补加原来的或再加浓的裂变物质。



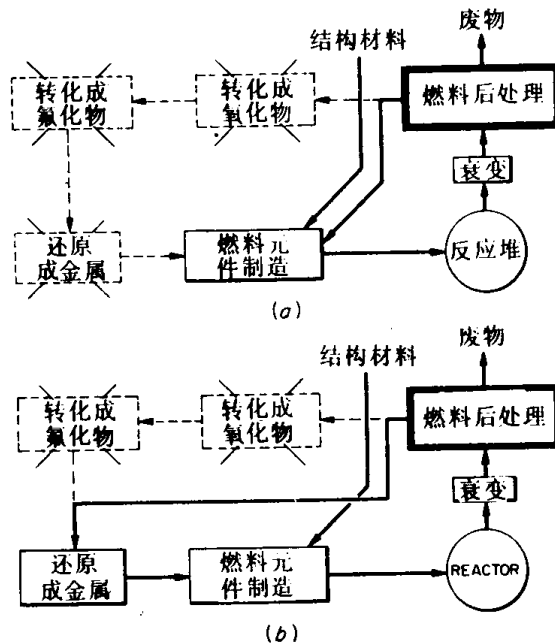


图 1.3 非水处理的两种燃料循环  
(a) 熔融精制, (b) 氟化挥发处理。

## 1-2 核燃料后处理的历史

**1-2.1 铀的回收** 第二次世界大战期间建造了第一批大型反应堆。其任务是生产核武器用的  $^{239}\text{Pu}$ 。因此,对化学后处理的唯一要求是从辐照天然铀燃料中提取无裂变产物沾污的铀。1943年,曾提出了几种从铀和裂变产物中分离比例相当小的铀的方法。选定的方法是沉淀法,这有若干理由。因为最初的化学研究是用微克量级的铀做的,所以选择这种方法主要是认为,沉淀法虽然不一定是最好的方法,但在从实验室转到生产规模的工厂时,它是一个最有可能成功的方法。研究过的沉淀法所涉及的都是化学工程师们很熟悉的操作(沉淀和溶解)。这些为数很少而又重复性的操作,其设备也很简单,因而可使设计、制造和操作问题简化。

铀和钚是锕系中的两个元素。锕系元素与稀土元素中的镧系元素相似。与镧系元素一样,锕系元素的性质彼此也相似。因此,这两个元素之间的化学分离并不象最初想象的那样简单。通常使用的分离方法是基于铀和钚能以四种氧化价态存在;这里只考虑四价和六价两种价态。在这两种氧化价态中,铀和钚同一价态时的化学行为很相似;但四价态的性质与六价态的性质却差别很大。这种情况,再加上铀比钚更容易氧化到六价,或者说,更难于从六价还原到四价,使钚和铀的化学分离具备了实际可能性。

**1-2.2 核燃料后处理方法的发展过程** 1944年下半年,在华盛顿特区的汉福特首次大规模地使用了磷酸铀流程。在当时的紧急情况下,这一流程用于分离钚是成功的,但它存在严重缺点,即不能回收铀。辐照燃料中,每吨铀约含数克钚。在生产堆中,裂变物质  $^{235}\text{U}$  的消耗量略高于  $^{239}\text{Pu}$  的生成量,所以在提取钚之后留下的大量残余物中,尚含有具有回收价值的  $^{235}\text{U}$  和  $^{238}\text{U}$ 。根据经济和安全两方面的理由,这些含有裂变产物、放射性很高

的废液，被贮存在地下贮罐中。战后，研究了一个从这些废液中回收铀的化学流程。

在核能计划中，很早就有人认为，理想的辐照燃料处理流程，应不仅能生产净化的 $^{239}\text{Pu}$ ，即去除了放射性裂变产物的 $^{239}\text{Pu}$ ，而且还能生产净化的铀。回收铀的放射性应当很低，使回收铀在重新加浓之后(如有必要)，能用与天然铀一样的方法安全地制成燃料元件。对一个理想的后处理流程，另一个要求是：含裂变产物的废液量应很小，以便减少或尽可能不用昂贵的地下贮存设施。

甚至在选定沉淀法作汉福特铀分离工厂的设计基础之前，就已经着手研究辐照核燃料的其它处理方法了。那时正在研究的有挥发法，吸附法和溶剂萃取法。在战争刚刚结束后，就在化学后处理方法上，尤其是溶剂萃取法上，取得了重大进展。这些方法所依据的基本原理是：高价铀、钚的硝酸盐易溶于某些有机溶液，主要是醚类、酯类和酮类。它们与水互不混溶。一般说来，裂变产物的硝酸盐基本上不溶于这些有机溶液。

一个处理辐照燃料的典型溶剂萃取过程是，先将燃料转化为硝酸盐混合物的水溶液，再用合适的溶剂进行萃取分离(3-1节)，然后用吸附或离子交换作最终净化处理。溶剂萃取的首端处理包括机械解体(5-6节)和硝酸溶解(第四章)，通常还包括化学预处理或浓度调节(3-6节)。对于已确定的溶剂萃取过程，既可在溶解阶段也可在其后的料液调节阶段，将铀和钚氧化成可萃取价态；铀在六价而钚在四价或六价时最易被萃取。铀、钚被萃入有机相后，再把钚还原成基本上不被有机相萃取的三价而返回水相。 $\text{U(VI)}$ 不易被还原，但能被稍稍酸化的水反萃到水相。

同时回收净化的铀和钚的第一个溶剂萃取流程，是第二次世界大战后不久在国立阿贡实验室研究成功的。该流程用甲基异丁基酮(异己酮)作有机溶剂，并在水相中加入硝酸铝以改善分离。这个流程叫做雷道克斯流程(Redox Process)。1948—1949年期间，国立橡树岭实验室用当时具有的设备进行了这个流程的中间工厂试验；随后，1952年10月在汉福特开始大规模运行。Redox流程比磷酸铀流程优越之处在于(1)连续操作，(2)大大减少废物量，(3)能同时回收铀和钚。

1948年到1950年，在Redox流程还处在研究阶段的时候，就已开始了一种改进的溶剂萃取法的实验室研究。这个新方法称为普雷克斯流程(Purex Process)。与Redox流程的主要差别在于，它用稀释的磷酸三丁酯(TBP)做有机溶剂，水相中加入硝酸而不是硝酸铝。诺尔斯原子动力实验室和国立橡树岭实验室都研究了Purex流程，并在1950—1952年在国立橡树岭实验室进行了中间工厂试验；与Redox流程比较，它有四大优点：(1)废物量减少了，(2)工艺条件和应用方面有较大的灵活性，(3)由于溶剂闪点较高而减小了引起着火的可能性，(4)降低了运行费用。1954年11月在南卡罗来纳州埃肯城的萨凡那河工厂，1956年1月在汉福特工厂，这个新流程先后投入了运行。

Redox和Purex流程主要用于处理铝包壳的天然铀或低加浓铀元件。因为已经证实这两个流程对其他燃料的处理效能也是满意的，所以同样的溶剂又被用于回收加浓铀和 $^{233}\text{U}$ 的其它流程中。对不锈钢、锆或锆合金包壳的燃料(第四章)，已经研究出新的溶解过程和工艺(如切断-浸取技术，5-6.3节)。对一些特殊的燃料，已经研究出几种干法流程，正处在中间工厂试验阶段。有几种燃料也正在考虑用电解法进行溶解。

## 1-3 核燃料后处理的发展趋势

1-3.1 决定流程变化的因素 核燃料后处理的今后发展趋势将由下列三个基本因素决定:

(1) 在动力堆发展时期,反应堆设计的改变必将引起要处理的辐照燃料元件类型的多样化;

(2) 如果要以合理的成本生产电能,就必须仔细考虑整个核燃料循环的经济性,而且必须将燃料后处理与燃料循环的所有其它部分综合起来考虑;

(3) 不断的研究必将导致现有方法的技术改进和处理辐照燃料新方法的出现。

1-3.2 到1-3.4节将阐述这些因素。

1-3.2 核反应堆设计 建造核反应堆有三个主要目的:(1)生产裂变物质,即 $^{239}\text{Pu}$ 和 $^{233}\text{U}$ , (2)产生热能和电能, (3)开展研究工作。过去,反应堆主要用来生产或研究(或两者兼用),但现正在建造的许多反应堆主要为了发电。动力堆可以有一些附带的任务,如(1)生产裂变物质, (2)生产工业用热, (3)促进化学反应, (4)用中子辐照材料, (5)研究,特别是考验燃料元件的研究。

生产裂变物质和研究用的反应堆,一般在相当低的燃料温度下运行。为了包住裂变产物并防止冷却剂侵蚀,这种反应堆的燃料元件用铝或镁作包壳(或作成铝、镁合金燃料)。但在动力堆中,为了有较高的热力学效率,要求必须有较高的燃料温度。因为在 $400^\circ\text{C}$ 以上使用铝和镁是不满意的,所以动力堆元件通常用锆(或锆合金)或不锈钢包壳。也曾研究过用铍和石墨作燃料包壳。正在研制陶瓷材料作高温燃料。

燃料元件中若含有不溶于硝酸的成分,则进行后处理时需要采用特殊方法使其溶解,或者彻底改换回收过程。如果采用的是已确定的溶剂萃取过程,那么铀和钚必须以硝酸盐形式存在。如果用硫酸、盐酸,氢氟酸(或这些酸的混合物)或王水溶解燃料元件,那么为了采用现有的流程,必须把这些溶液转变为硝酸盐形式。

液体燃料反应堆(即均相堆),具有某些特有的优点:不需要将燃料物质制成元件,并且有可能造成有利于增殖的几何形状。正在研究中的液体燃料堆,不仅可使用水溶液燃料而且还可使用液态金属或熔盐。这些燃料的后处理方法必然与固体燃料元件所用的方法不同。

快堆的燃料元件和增殖层都能采用热中子堆不宜采用的某些结构材料,从而使被处理的材料种类增多。

已有多种多样的材料供现在和未来的反应堆选用,其中包括各种的燃料元件材质和外形。除裂变物质和(或)增殖材料外,要处理的材料还有锆及其合金、不锈钢、镍铬合金、钼、铌、铍、石墨以及一些含碳化物和氧化物的陶瓷混合物。液体燃料堆的燃料和燃料载体包括氟化物、金属、水溶液和浆液。设计每一座反应堆都会遇到不同尺寸、形状和结构的燃料及构件(定位格架、卡环、夹子、弹簧、冷却剂折流器等)。燃料本身的形状可以是丝状、针状、棒状、饼状、球状、片状、或粉末状等。

1-3.3 燃料循环的经济问题 燃料循环成本是决定核动力成本的最重要因素之一,后处理又是燃料循环的一个重要组成部分。减少核动力成本问题要在核燃料循环的各个环节

去解决(图1.2),特别是在与燃料元件制造和后处理有关的那些环节上去解决。燃料循环中对燃料后处理总经济指标有影响的几个方面是:(1)燃料元件设计,(2)燃耗值,(3)装运与处理前的衰变时间,(4)废物管理,(5)去污程度,(6)元件再制造厂与后处理厂的位置,规模和复杂程度(规模较为重要)。

**燃料元件设计** 设计燃料元件必须遵守的原则是:(1)确保燃料元件在整个预计使用期限外形完整,(2)采取适当的措施,带走元件外部的热量(靠反应堆冷却剂),并且使元件内部的热量传到表面,(3)使中子的非生产性吸收最小,(4)往往要求裂变物质具有最佳间距,(5)尽可能使制造容易。如果燃料元件的设计还包括另外两个特征——简化和标准化,那就可以不受或少受这些原则的限制,以便节省后处理费用。这里,简化的意思是指设计的元件易于用机械方法拆散,并(或)减少制造燃料元件所用材料的品种和费用。标准化意味着减少各个反应堆之间燃料元件的材料和结构上的差别。

燃料元件的简化会使某一类反应堆燃料的后处理变得比较简单,从而使后处理费用降低。标准化可以减少单一用途后处理厂的数量,或缩短多用途后处理厂的过渡时间。

**燃料的燃耗深度** 提高燃料在后处理前达到的燃耗,往往可以降低后处理的总成本。能达到的燃耗极限由初始燃料元件具有的并由增殖出的燃料保持、补充的过剩反应性决定,还取决于元件的耐腐蚀和耐辐照的性能。这些并不是本质上的极限,而是在现有技术条件下,实际上或经济上能做到什么程度所决定的界限;因而它们随时间而变化。若为达到较高的燃耗而使用耐化学侵蚀的材料,那么就会增加燃料后处理的困难。

**后处理前的衰变时间** 后处理前的最佳衰变时间,在兼顾燃料积存量的条件下,尽可能使最讨厌的裂变产物放射性衰变掉。衰变时间越长,后处理的花费越少,原因是这样做以后,屏蔽要求可降低些,同时某些讨厌的放射性核素也会消失,但这一优点却随着衰变时间的延长而迅速变小(图2.8)。另一方面,裂变物质的积存量却随衰变时间的延长而增多。要使总费用最少就必须兼顾这两个因素。如果在反应堆中的辐照时间长,那么衰变时间对于总积存量只是一个不太重要的因素。放射性起初衰减很快,但随时间的延长就越来越缓慢。由于多方面的考虑,往往把 $^{131}\text{I}$ 基本上消失所需要的时间看作是最短的衰变时间。衰变时间也可能主要取决于嬗变产物(transmutation Product)生成或消失所需要的时间(2-1.5节)。

**废物管理<sup>[3]</sup>** 放射性废物从它在后处理厂中产生直到最终处置过程中的处理费用,是后处理费用的一个重要部分,并一直受到很大的重视。现在设想的后处理废液的最终处理方法是:废液经过临时性贮存之后,先转化成稳定固体(通常是煅烧产物或玻璃状固体);然后把这种稳定固体置于干燥而又在地质上隔离的环境中(如适合放置的盐矿井中)。据信,目前最理想的处理废液的方法包括下列步骤:(1)去除裂变产物(视情况而定),(2)以液体形式临时贮存,(3)把废液转变成稳定固体,(4)固体废物的暂存(视情况而定),(5)把固体废物送到永久贮存地(视情况而定),(6)最终处置。对一特定废液及其处理而言,上述视情况而定的那几个步骤是否需要取决于成本;在某些情况下,它们可能是必须做的,而在另一些情况下,则是完全不需要的。

除去裂变产物并不能那么简单地降低废物的管理费用<sup>[4]</sup>。但是如果现在和将来裂变产物都有销路,从放射性废物的大量杂质中分离出裂变产物来在经济上是合算的,则废物贮存问题就可以减小。废物管理程序各个部分的相对费用列在表1.1中。表1.1的数据基于若

干假定，而且应当认为它仅仅表明在某些情况下的预计费用范围。在表1.1所依据的研究工作中，曾推断出总的废物费用随液体贮存时间的延长而降低；而贮存30年被认为是最长的时间。如果燃料后处理厂建在废物贮存地附近，那么，固体废物就不必装运了。许多论证都推荐这样的厂址。但是这样做以后，辐照燃料在后处理前就要运到废物场附近。运输辐照燃料的费用必定比运输经过相当长时间衰变的固化废物的费用高；而且把辐照燃料运到废物场附近的后处理厂，其距离一定比将它运到靠近反应堆的后处理厂的距离长，也可能会比将它运到位置适中的多用途后处理厂的距离长。

表1.1 去除和不去除裂变产物的Purex酸性废液的处理费用\*[4]

项 目	费用，密尔/1000千瓦小时（电）		
	不除去裂变产物的废液	除去90%裂变产物的废液**	除去99%裂变产物的废液**
废液暂存30年	6.9	2.5	2.3
罐式煅烧	8.1	11.3	11.3
固体废物运输	0.9	1.1	0.6
在盐矿井中永久贮存	8.8	3.9	3.7
总 计	24.7	18.8	17.9

\* 几个重要假定：(1)酸性废液来自处理量为1500吨/年的Purex后处理厂（3-2.7节），铀转换堆燃料的能耗为10000兆瓦日/吨；(2)废物处理费用中没有计入去除裂变产物的费用；(3)煅烧之前废液贮存了30年（贮存时间减少会增加总费用）；(4)固体废物用直径24英寸的容器，永久贮存在盐矿井中。

\*\* 假定所有裂变产物的去除程度相同，如能更有效地去除寿命长而危害大的核素，如 $^{90}\text{Sr}$ 和 $^{137}\text{Cs}$ ，则各项费用还可减少。

由于现在的废物处理过程加入了一些试剂（如 $\text{Na}^+$ ），所以，虽然去除了一部分裂变产物，但废物量更大了，而且更易溶，熔点也更低，比Purex酸性废液更不适于玻璃固化。因此，除非裂变产物现在的或将来的售价足以补偿其回收费用，否则不能认为去除裂变产物是适当的。

运输固化废物的费用，在很大程度上取决于辐照后放射性衰变时间的长短和运输容器的大小。用直径大的（如24英寸）圆筒装运衰变时间长的裂变产物，运费只占废物处理总费用的10%以下；而用直径6英寸的圆筒装运衰变时间短的废物，则运费可达废物处理总费用的25—50%。在岩盐井中最后处置固化废物<sup>[5]</sup>比在花岗岩层中或在混凝土中贮存便宜（比前者便宜一半，比后者便宜4/5—6/7）。

废物煅烧工艺将在7-5节中叙述，放射性废物处理将在2-5节中叙述。

去污程度 从裂变产物中回收裂变物质或增殖材料时的纯化程度可用净化系数度量。一物质B与另一物质（或一组物质）A分离，其净化系数（D.F.）定义为：

$$D.F. = \frac{\text{进料中A与B的质量比}}{\text{产品中A与B的质量比}} \quad (1.1)$$

在一般情况下，即经过一年或更长时间的辐照，大多数裂变产物已达到平衡浓度（2-1节），处理前再经过六个月左右的衰变之后，如果回收的U，Pu或Th要在没有 $\gamma$ 辐射防护的情况下操作〔假定没有 $^{233}\text{U}$ （2-1.5节）〕，则一般要求净化系数为 $10^6$ — $10^8$ 。对于回收物质返回反应堆来说，去除全部 $\gamma$ 放射性裂变产物是不必要的，不过这能减少元件再制造时的辐射危害和费用。但是若元件再制造必须或可能进行远距离操作，则部分去污（D.F.为100

左右),即只去除中子截面大的裂变产物,在经济上可能是合算的。此时必须权衡在远距离操作条件下燃料元件再制造所多花的费用和有限去污所节省的费用。在高燃耗下,会发生重同位素(如 $^{236}\text{U}$ , $^{240}\text{Pu}$ , $^{241}\text{Pu}$ 和 $^{242}\text{Pu}$ )的积累(2-1.4节)。这些同位素不能用化学处理方法分离掉,因此,它们会污染希望得到的铀或钚产品;在某些条件下,如果它们的存在量相当多,则将被迫采用远距离的元件再制造方法。

**工厂的厂址、规模和复杂性** 在燃料循环中,涉及到后处理厂的相对单位费用和后处理工厂性质的最大问题之一是:这个工厂究竟是小规模、单一目的、座落在反应堆附近呢,还是规模大、多用途,建在各反应堆中心位置?这个问题将在12-3.1节详细讨论。如何选择主要是考虑辐照元件的运输费用(对于小而靠近反应堆的工厂,实际上没有这个问题)和扩大生产能力的投资,后一项费用对大厂来说很少,所以大厂在许多方面更加吸引人。此外还要考虑对低去污流程、多种结构的燃料元件(缺乏标准化设计时)以及能达到的燃耗深度的适应能力。

**1-3.4 流程的改进** 经过验证的后处理工艺正在取得进展,预计今后会有更大的进展。已经研制了一些新溶剂(3-4节),它们可应用于非硝酸盐体系的高离子强度水溶液中。这些新溶剂可与为处理锆包壳和不锈钢包壳燃料元件推荐的首端(或溶解)过程结合使用。处理锆包壳和不锈钢包壳元件要使用除硝酸以外的酸进行溶解。

离子交换技术(9-4节)在燃料后处理中将得到更广泛的应用。一种可能是用阴离子交换树脂把由新的首端处理法得到的溶液转换成硝酸盐形式。另一种可能是将离子交换的应用扩大到从元素混合物中分离出特定的元素,第三种可能是研究有用的无机离子交换剂,它比有机离子交换剂和有机萃取剂更耐辐照。

## 1-4 与核燃料后处理有关的问题

**1-4.1 问题概要** 在核燃料后处理工厂中会遇到一些加工工业常常遇到的问题,其中包括腐蚀,物料装卸和最佳经济要求。在设计后处理工厂时,还要考虑辐射对健康的危害以及对材料的损伤等特殊问题。由这两个问题带来一些特殊的操作:设备要远距离操作并要去污,放射性废物要处理,还要预防工艺容器发生临界事故及避免区域污染。工厂的经济性和操作程序也受燃料中由于重同位素(即质量较大、原子序数较高的核素)积累而造成的放射性升高的影响。最后,燃料后处理工厂中还会遇到一些化学问题,即使不是在性质上很特殊,但在程度上也是很严重的。

**1-4.2 对健康的危害** 人体组织吸收电离辐射会使细胞构造发生变化。这些变化如果足够严重,则会损害健康。由于辐射吸收所积存的某一能量而引起的危害程度决定于多种因素,其中包括辐射性质,剂量率(即能量吸收率),以及接受辐射的人体器官。表1.2有选择地列出了几种核素的职业照射的最大容许限度。内容更广的表格和对公众适用数值的讨论,可参看文献[6]。请注意,最大容许浓度按质量计是极低的。一微居(即百万分之一居里)是指以 $3.7 \times 10^4$ 蜕变/秒速度衰变的某放射性物质的量。

一定量的放射性物质,其生物效应取决于内照射还是外照射。在放化工厂中,屏蔽是用于防止过量的外照射;而分区措施和作防护监测是为了防止过量的内照射。 $\alpha$ 粒子很容易被皮肤表层阻止,因此就外照射而言不是严重的威胁。但如果 $\alpha$ 放射性核素经过肺部、

表 1.2 职业照射时某些核素在空气中和水中最大容许浓度 (每周工作40小时)<sup>[6]</sup>

放射性核素及 衰变类型	紧要器官*	人体内最大 容许量, 微居	水中最大容许浓度,		空气中最大容许浓度,	
			微居/厘米 <sup>3</sup>	克/厘米 <sup>3</sup>	微居/厘米 <sup>3</sup>	克/厘米 <sup>3</sup>
<sup>60</sup> Co; $\beta, \gamma$	肠, 胃		$1 \times 10^{-3}$	$8.8 \times 10^{-3}$	$3 \times 10^{-7}$	$2.6 \times 10^{-16}$
<sup>90</sup> Sr; $\beta$						
可溶的	骨骼	2	$4 \times 10^{-6}$	$2.8 \times 10^{-14}$	$3 \times 10^{-10}$	$2 \times 10^{-18}$
不溶的	肺				$5 \times 10^{-9}$	$3.5 \times 10^{-17}$
不溶的	肠, 胃		$1 \times 10^{-3}$	$7 \times 10^{-12}$		
<sup>95</sup> Zr; $\beta, \gamma$						
可溶的	肠, 胃		$2 \times 10^{-3}$	$9 \times 10^{-14}$		
可溶的	全身	20			$1 \times 10^{-7}$	$4.7 \times 10^{-18}$
不溶的	肺				$3 \times 10^{-8}$	$1.4 \times 10^{-18}$
不溶的	肠, 胃		$2 \times 10^{-3}$	$9 \times 10^{-14}$		
<sup>106</sup> Ru; $\beta, \gamma$						
可溶的	肠, 胃		$4 \times 10^{-4}$	$1.2 \times 10^{-13}$	$8 \times 10^{-8}$	$2.4 \times 10^{-17}$
不溶的	肺				$6 \times 10^{-9}$	$1.8 \times 10^{-18}$
不溶的	肠, 胃		$3 \times 10^{-4}$	$9 \times 10^{-14}$		
<sup>131</sup> I; $\beta, \gamma$						
可溶的	甲状腺	0.7	$6.0 \times 10^{-5}$	$4.8 \times 10^{-16}$	$9 \times 10^{-9}$	$7 \times 10^{-20}$
不溶的	肠, 胃		$2 \times 10^{-3}$	$1.6 \times 10^{-14}$	$3 \times 10^{-7}$	$2.4 \times 10^{-18}$
不溶的	肺				$3 \times 10^{-7}$	$2.4 \times 10^{-18}$
<sup>135</sup> Xe; $\beta, \gamma$	全身				$4 \times 10^{-6}$	$4 \times 10^{-17}$
<sup>137</sup> Cs; $\beta, \gamma$	全身	30	$4 \times 10^{-4}$	$4.6 \times 10^{-12}$	$6 \times 10^{-8}$	$7 \times 10^{-16}$
<sup>228</sup> Th; $\alpha, \beta, \gamma$						
可溶的	骨骼	0.02	$2 \times 10^{-4}$	$2.5 \times 10^{-13}$	$9 \times 10^{-12}$	$10^{-20}$
不溶的	肺				$6 \times 10^{-12}$	$7 \times 10^{-21}$
<sup>232</sup> Th; $\alpha, \beta, \gamma$						
可溶的	骨骼	0.04	$5 \times 10^{-5}$	$5 \times 10^{-11}$	$2 \times 10^{-12}$	$1.8 \times 10^{-18}$
不溶的	肺				$10^{-11}$	$10^{-17}$
<sup>239</sup> Pu; $\alpha, \gamma$						
可溶的	骨骼	0.04	$1 \times 10^{-4}$	$1.6 \times 10^{-9}$	$2 \times 10^{-12}$	$3 \times 10^{-17}$
不溶的	肺				$4 \times 10^{-11}$	$6.5 \times 10^{-16}$
不溶的	肠, 胃		$8 \times 10^{-4}$	$1.3 \times 10^{-8}$		
<sup>241</sup> Am; $\alpha, \gamma$						
可溶的	肾	0.1	$1 \times 10^{-4}$	$3 \times 10^{-11}$	$6 \times 10^{-12}$	$2 \times 10^{-18}$
可溶的	骨骼	0.05	$1 \times 10^{-4}$	$3 \times 10^{-11}$	$6 \times 10^{-12}$	$2 \times 10^{-6}$
不溶的	肺				$10^{-10}$	$3 \times 10^{-5}$
不溶的	肠, 胃		$8 \times 10^{-4}$	$2.5 \times 10^{-10}$		
<sup>242</sup> Cm; $\alpha, \gamma$						
可溶的	肠, 胃		$7 \times 10^{-4}$	$2 \times 10^{-13}$		
可溶的	肝	0.05			$1 \times 10^{-10}$	$3 \times 10^{-20}$
不溶的	肺				$2 \times 10^{-10}$	$6 \times 10^{-20}$
不溶的	肠, 胃		$7 \times 10^{-4}$	$2 \times 10^{-13}$		

\* 肠胃指肠胃系统 (包括较下部的大肠)。

消化系统或伤口进入人体, 并在人体某器官浓集, 那它就是有害的了。吸入或吞入显著量的半衰期适中(即几年)的放射性物质, 并在保留这种物质的器官中逐渐浓集, 则会造成最严重的后果, 因为长期地连续的内照射会使人体丧失恢复健康的机能。

$\beta$  粒子进入人体组织后只能穿过很短的距离。由于外来  $\beta$  粒子的效应局限于接近表皮的地方, 所以如果操作粗心的话就会引起烧伤。由于  $\beta$  能量吸收程短, 而且辐射伤害聚集在很小的区域内, 所以当吸入或吞入  $\beta$  放射体时就会产生严重的内照射危害。

$\gamma$ 射线穿透性强，因此，不管辐射源是在体内还是在体外，都能危害健康。由 $\gamma$ 辐射造成的生物危害并不局限在某一部位，而是扩大到 $\gamma$ 射线穿过的整个吸收介质中。辐照燃料中含有大量 $\gamma$ 放射性裂变产物，因此，必须极其小心地在安全距离以外操作，或者在操作人员与辐射源之间有足够的屏蔽(2-2节)。任何能充分减弱裂变产物 $\gamma$ 辐射的屏蔽层都能更有效地防止 $\alpha$ 和 $\beta$ 粒子穿透。但是，由于某些 $\alpha$ 放射性物质在空气中的容许浓度极低(表1.2)。因而必须采取特殊的措施，以保证把 $\alpha$ 放射性物质限制在操作区内(12-4.1节)。

为了不仅在工厂内而且也在周围地区控制放射性物质的扩散，也必须采取措施。周围环境容易受到工厂排出的气体和液体污染。在工厂内部控制辐照，采用按正常情况下主要危害类型进行分区(12-4节)的办法作为辅助手段。将工厂的排放物稀释到容许水平或者贮存起来使放射性衰变到一定水平后再排出，从而控制由空气和水带到厂外的放射性危害。放射性废气排到大气之前，一定要经过高效过滤器，以便尽可能地除掉放射性微粒(5-4节)。

像碘和氙这类放射性气体，其浓度必须降低到初始浓度的 $10^{-18}$ ；这就要靠去除这类放射性物质或用稀释的办法来实现，或者要两者兼用。去除惰性气体和碘可以用吸收(9-2.6节)或吸附的方法(9-3.2和9-3.3节)进行。碘也能用化学法去除(9-3.6节)。使工艺尾气与排风混合，当然会使工艺尾气有一定的稀释，随后由于大气扩散，又进一步得到稀释。因此，专门为了降低放射性气体浓度而需要的额外稀释量是相当小的。

很强的放射性废液也许要在地下大罐(图1.4)中永久贮存(2-5.2节)。但对某些低放废液，用化学处理去除长寿命裂变产物，然后再在河流中充分稀释，可能是一个现实的处理方法(2-5.3节)。

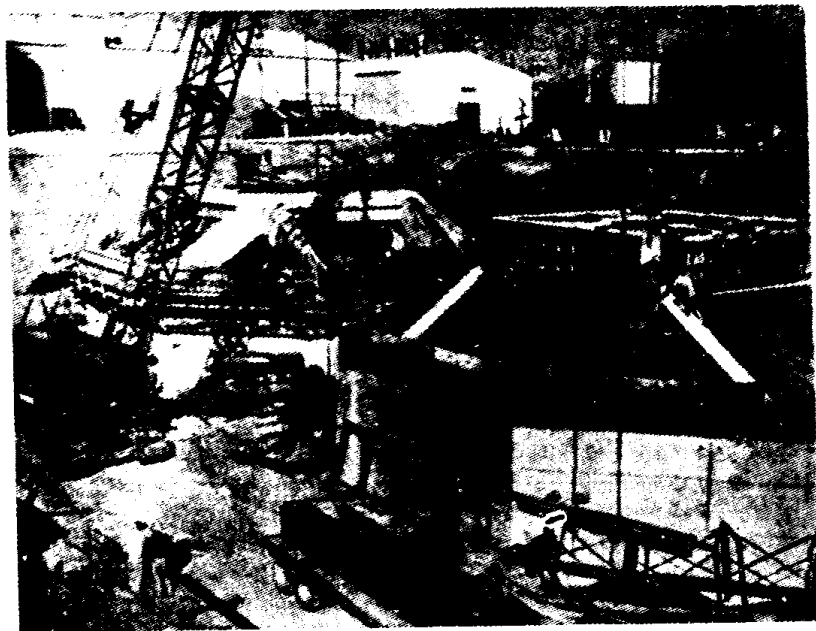


图 1.4 为简化屏蔽而建造在地下的大型废物贮罐

1-4.3 材料损伤 材料吸收了辐射能，其性质就会发生变化。一个 $^{235}\text{U}$ 原子裂变时，平均释放197兆电子伏能量。其中175兆电子伏立即在反应堆中被吸收，其分配是：裂变产物的动能为165兆电子伏，中子的能量为5兆电子伏，裂变 $\gamma$ 射线的能量为5兆电子伏。其



余22兆电子伏是裂变产物的潜能，这些能量在裂变产物衰变时释放出来。其中某些衰变在反应堆内发生。衰变能中，大约有6兆电子伏以 $\gamma$ 射线的形式放出，5兆电子伏由 $\beta$ 粒子释放。其余的11兆电子伏被中微子带走。中微子实际上几乎不与物质作用，因而不产生辐射损伤。

除中微子而外，上述各种能量形式，即运动着的裂变碎片、中子、 $\alpha$ 粒子、 $\beta$ 粒子和 $\gamma$ 射线，在与原子核或原子周围的电子相互作用时就失去其能量。这些相互作用引起置换、电离、电子激发或破坏化学键即化学分解。接着，被置换出来的原子或电子与其它原子碰撞，又可引起一连串另外的变化。因此，物质的各种物理、化学和机械性质实际上都在一定程度上受到辐射的影响。

但是，辐照对材料并不总是有害的。某些塑料经辐照后反而改善了性能。经中子流和 $\gamma$ 射线照射后，某些金属的屈服强度和抗张强度也会提高，但在这种情况下此种效应不足以证明这样做是可取的。因而一般说来，辐射效应是不希望的，而且它的机理还不十分清楚。

幸好，对燃料后处理操作来说，影响最剧烈的两种粒子，即反冲裂变碎片和中子并不存在。但是却有裂变产物衰变放出的 $\beta$ 粒子和 $\gamma$ 射线以及 $^{235}\text{U}$ 、 $^{238}\text{U}$ 和 $^{232}\text{Th}$ 等放出的 $\alpha$ 粒子存在。因为 $\alpha$ 和 $\beta$ 粒子射程小，所以实际上 $\alpha$ 和 $\beta$ 粒子的所有危害都是局部的。相反， $\gamma$ 射线能够对远离发射 $\gamma$ 的物质产生危害。 $\alpha$ 和 $\beta$ 放射体对它们所在的介质损伤最为严重，例如，溶解辐照燃料时水就发生辐解；又如，萃取柱中当溶剂与辐照燃料溶液密切接触时就会发生降解。

一般说来，金属最耐各种辐照；陶瓷的耐辐照性能稍差。最不稳定的是有机化合物，如溶剂，塑料与合成橡胶。辐射会破坏有机化合物的化学键，产生自由基，导致分子的断裂或交联，从而生成新分子。因此，材料经辐照后，其物理与化学性质可能有很大改变。在生成自由基的情况下，若自由基对该体系的结构组分有亲合力，则可能产生不希望的次级效应，如腐蚀。

一种材料降解的程度，取决于(1)总累积剂量，即辐射剂量率与辐照时间的乘积；(2)在若干情况下的剂量率。虽然辐照对某一类材料的各种物质的一般影响是相同的，但也有例外。例如，辐射对有机液体的影响通常是使粘度增加，但有一些液体经辐照后粘度却降低。有时，热处理可以消除辐射所造成的损伤，例如用退火的办法能使辐照暗化的玻璃重新变得透明。12-5.3节总结了燃料后处理中某些重要物质的辐射效应。应当提及的是，产生某一效应所需要的剂量，对不同类的材料是不同的，就是对同一类的相似材料在某种程度上来说也是不同的。

**1-4.4 远距离操作** 由于直接进行后处理操作会危害健康，所以必须在能吸收电离辐射的重屏蔽层后边进行。因此，工艺设备要放在5英尺厚的混凝土墙后边。

对一些工艺状况，诸如温度、液面和比重等，一般不能直接进行观察，而是用仪表进行测量，仪表把它们的读数输送到位于屏蔽层外面一定距离的控制盘上。工艺设备必须很少需要或者根本不需要照看，并且还必须在屏蔽层外操作。例如屏蔽泵，弹簧箱阀门和蒸汽喷射泵等就属这类设备。为了解和控制工艺过程所设的取样系统，需要有带屏蔽的设施，以便能安全输送少量而有代表性的样品(11-4节)。作为权宜之计，远距离操作中也使用铅玻璃窗，电视摄象机、潜望镜等器具(11-1节)。