

先进后处理技术研究进展

张 虎, 林如山, 唐洪彬, 乔 璐, 高子腾, 罗方祥, 肖松涛, 王 辉, 刘 方,
于 婷, 王 博, 常志远, 晏太红, 何 辉, 郑卫芳, 叶国安*

(中国原子能科学研究院, 北京 102413)

摘要: 本文系统综述了国内外核燃料后处理技术的最新进展, 重点剖析了水法与干法后处理的技术特点、面临的挑战及未来发展趋势。水法后处理以 Purex 流程为核心技术, 目前已实现工业化应用, 但在处理高燃耗燃料时仍存在能力不足的问题, 同时还面临溶剂辐解、废物最小化等技术挑战。干法后处理凭借耐辐照、适配快堆金属燃料等显著优势, 成为当前的研究焦点。美国、俄罗斯、韩国、日本等国家已开展工程验证, 相关技术成熟度已达到 7 级。在我国, 水法后处理领域提出了新一代先进无盐二循环流程 (APOR), 该流程采用二甲基羟胺为还原剂, 有效提升了铀分离的效率与安全性; 同时在首端环节研发高温氧化挥发、激光剪切等技术, 可实现氚的高效捕集及包壳的精准分离。干法后处理领域确定了熔盐电解技术路线, 建立了主工艺概念流程, 成功实施了铀钚物料的电解分离、蒸馏纯化、废盐处理等关键技术验证。未来需进一步增强技术对高燃耗燃料的适应性, 推动 APOR 流程的工程化应用, 加快干法后处理热实验及工程化设备研发进程, 并积极探索人工智能在工艺优化中的应用, 为我国“热堆-快堆-聚变堆”的核能“三步走”战略提供有力支撑。

关键词: 乏燃料; 后处理; 水法后处理; 干法后处理; 分离

中图分类号: TL941

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2025)09-1851-19

doi: 10.7538/yzk.2025.youxian.0551

Research Progress of Advanced Spent Nuclear Fuel Reprocessing Technology

ZHANG Hu, LIN Rushan, TANG Hongbin, QIAO Lu, GAO Ziteng, LUO Fangxiang, XIAO Songtao,
WANG Hui, LIU Fang, YU Ting, WANG Bo, CHANG Zhiyuan, YAN Taihong,
HE Hui, ZHENG Weifang, YE Guoan*

(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

Abstract: This paper provides a systematic review of recent advances in spent nuclear fuel reprocessing technologies both domestically and internationally, with a focused analysis on the technical characteristics, challenges, and future development trends of hydrometallurgical and pyrochemical reprocessing methods. The hydrometallurgical approach, which centers on the Purex process, has achieved industrial-scale application. However, it still exhibits limitations in processing high-burnup fuels and faces technical challenges such as solvent radiolysis and waste minimization. In contrast, pyrochemical reprocessing has garnered significant research attention due to its notable advantages, including high radiation tolerance and compatibility with metallic fuels for fast reactors. Countries such as the United States, Russia, South Korea, and Japan have initiated engineering validation efforts, with

收稿日期: 2025-07-15; 修回日期: 2025-08-20

* 通信作者: 叶国安

the relevant technologies having reached Technology Readiness Level (TRL) 7. In China, the field of hydrometallurgical reprocessing has seen the proposal of a novel Advanced Salt-Free Two-Cycle Process (APOR), which utilizes dimethylhydroxylamine as a reductant to enhance the efficiency and safety of plutonium separation. Concurrently, front-end technologies such as high-temperature oxidative volatilization and laser cutting have been developed to achieve efficient tritium capture and precise cladding separation. In the area of pyrochemical reprocessing, a technical route based on molten salt electrolysis has been established, along with a conceptual flowsheet for the main process. Key technological verifications have been successfully conducted, including electrolytic separation of uranium and plutonium, distillation purification, and treatment of waste salts. Future efforts should focus on improving the adaptability of these technologies to high-burnup fuels, promoting the engineering application of the APOR process, accelerating the development of hot testing and engineering-scale equipment for pyrochemical reprocessing, and actively exploring the application of artificial intelligence in process optimization. These advancements will provide robust support for China's three-step nuclear energy strategy, encompassing "thermal reactor, fast reactor, fusion reactor".

Key words: spent nuclear fuel; reprocessing; hydrometallurgical; pyrochemical; separation

在全球气候变化加剧背景下,核能因安全、清洁、低碳、高能量密度的特性被视为能源转型的重要选项。核能发展对我国实现“双碳”目标、构建新型能源体系具有关键支撑作用。按照我国核能“热堆-快堆-聚变堆”三步走的发展战略,目前,以“华龙一号”为代表的第三代自主压水堆仍是规模化发展核能的依托,四代核电技术(如钠冷快堆)已进入工程验证阶段,有望在2030年前实现商业化。随着核电装机容量的扩大,我国乏燃料年增加量已突破1 000 t,预计2030年累积量将超过2万t,对后处理的需求日益迫切^[1]。当前我国后处理的突出问题是能力不足,处理能力仅50 t/a,在建(运行)项目的处理能力为200 t/a。后处理技术作为核燃料循环体系的核心环节,不仅关系到核电的经济性与安全性,更是实现闭式燃料循环和核废物最小化的关键^[2]。

近年来,随着快堆技术的发展——尤其是高增殖比金属燃料技术的进步,干法后处理技术受到广泛关注并取得显著进展。本文通过梳理国内外后处理工艺流程及研究进展,总结当前技术瓶颈与未来发展方向,旨在为我国先进后处理技术的发展路径提供参考建议。

1 后处理技术面临的挑战

1.1 技术特点

后处理的目的是从乏燃料中回收铀钚等核材

料,将其返回反应堆中复用,以充分利用核裂变能资源,实现燃料闭式循环。根据介质的特性,乏燃料后处理可分为水法后处理和干法后处理,其中水法后处理一般以硝酸为水相介质,有机试剂为萃取剂;干法后处理以熔盐和/或液态(熔融)金属作为介质,常用氯化钾-氯化锂的混合物。水法后处理在国际上已实现商业化应用,干法后处理尚处于关键技术攻关和验证阶段^[3]。

目前,轻水堆核电厂燃料的燃耗深度普遍达到40~55 GW·d/tU,乏燃料中包含95%铀、1%钚、0.1%次锕系、4%裂片等40多种元素,其中属于裂变产物的200多种放射性同位素是强放射性的主要来源,即使乏燃料经过长期“冷却”,每公斤铀中仍有高达上百TBq(数千Ci)的 β 、 γ 放射性活度。为了回收铀钚,一般要求钚中铀的净化系数(或称去污因子)大于 10^7 ,铀中钚的净化系数大于 10^8 。后处理具有强放射性、高毒性和存在临界安全的特点,对工艺运行的稳定性和自动化水平有极高要求。后处理技术从实验室研究到工程应用,需要历经冷热实验、放大试验、中间规模热实验等多个环节的考验,研发周期长、难度大。

1.2 面临的挑战

提高铀资源利用率、实现核废物最小化既是核裂变能可持续发展的关键,也是后处理技术面临的巨大挑战。目前普遍采用的热堆核电站,主要使用天然铀中占比0.7%的 ^{235}U ,99.3%的 ^{238}U 尚

未得到充分利用, 铀资源利用率不足 1%, 而乏燃料中仍含有 96% 的可回收铀、1% 的钚及次锕系元素。为了提高铀资源的利用率, 法国、俄罗斯等国家将压水堆乏燃料后处理得到的钚与铀(天然铀, 堆后铀或贫铀)混合后制成 MOX 燃料, 重新返回压水堆使用, 可使天然铀的利用率提高 10%~20%。但要从根本上解决这一问题, 关键在于将后处理回收的钚用于快堆, 通过核燃料增殖实现 ^{238}U 的充分利用——这相当于激活了天然铀中占比 99.3% 的 ^{238}U , 能将铀资源利用率提升 60 倍^[4]。当前, 核裂变能虽仍以热堆为主导, 但已开始逐步向快堆过渡。面对这一发展趋势, 后处理技术需在分离技术、燃料供给模式等工艺环节进行改进, 以适应新的要求与挑战。

为了发展快堆, 首先需要通过处理轻水堆乏燃料, 积累工业钚, 为快堆提供 MOX 燃料。目前, 轻水堆燃耗普遍已经达到 45 GW·d/tU, 高燃耗带来的强辐射问题是溶剂萃取面临的严峻挑战。在处理 MOX 乏燃料时, 还需要解决高钚含量带来的工艺调整和临界安全等问题, 为此, 需要不断改进和调整处理后工艺, 以满足对铀、钚或 MOX 等燃料的不同需求。

目前后处理的方式是通过 Purex 流程分离回收铀钚, 而裂变产物和次锕系元素则固定在玻璃或陶瓷等固体基质中, 作为高放射性废物处理。由于高放废物长期放射性毒性很高, 待其衰变到天然铀矿的放射性水平需要处置上万年的时间, 在此过程中存在诸多不可预见的不确定因素^[5]。为了解决高放废物长期放射性毒性所带来的处置问题, 未来考虑通过分离和嬗变回收所有长寿命放射性核素, 将其转化为短寿命核素或稳定核素, 其中次锕系元素分离是技术关键, 其难点在于 An(III) 与 Ln(III) 的分离, 回收所有锕系元素(回收率大于 99.9%)将是先进后处理技术面临的重要挑战^[6-7]。

干法(或非水法)工艺使用熔盐等非水介质, 由于所使用的介质可耐高辐射剂量, 因此可处理短冷却期的乏燃料。由于无慢化剂(在水法工艺中水是中子慢化剂), 其临界风险低, 可处理高浓度易裂变材料。对于高燃耗、短冷却时间的快堆乏燃料处理, 干法工艺具有技术优势。尽管干法后处理已历经长期研究, 但目前在技术成熟度与

实际应用水平上, 仍无法与商业化水法后处理相抗衡。其中, 金属电解精炼、氧化物电沉积等高温化学方法是最具发展前景的干法后处理技术; 不过, 干法工艺的批式操作特性, 对相关设备的可靠性及检维修工作提出了全新要求

2 国外先进后处理技术研究进展

2.1 水法后处理

水法后处理工艺过程主要包括首端处理、化学分离和铀钚尾端等步骤。其中首端的目的是去除燃料芯体以外的包壳及非燃料构件, 防止它们干扰后续的化学分离, 减少这类物质进入高放射性废液, 从而降低废物处理量。经此步骤得到的乏燃料溶解液作为化学分离环节的原料液^[8]。化学分离作为后处理的主要工艺阶段, 其核心任务是清除铀-钚燃料中的裂变产物, 并实现铀钚之间的相互分离。目前后处理厂广泛采用的流程为以磷酸三丁酯(TBP)为萃取剂的 Purex 流程。化学分离后得到的纯硝酸铀酰溶液和硝酸钚溶液分别进入铀、钚尾端, 最终转化为铀氧化物(铀产品)和钚氧化物(钚产品)^[9]。

迄今为止, 大部分商业乏燃料都是由法国和英国处理的。法国拥有全球最大的商业后处理设施——阿格后处理厂(La Hague), 该后处理厂有 UP3 和 UP2-800 两个车间, 综合处理能力为 1 700 tHM/a, 采用先进的 Purex 流程, 除可处理轻水堆乏燃料外, 还可处理高燃耗燃料组件和 MOX 燃料组件^[10]。英国有镁诺克斯和 THORP 两座后处理厂, 但目前均已步入关闭阶段。其中镁诺克斯厂(1 500 tHM/a)专门处理镁诺克斯反应堆的乏燃料; 而 THORP 厂(1 200 tHM/a)则负责处理来自改进型气冷堆(AGR)和压水堆(PWR)的乏燃料。俄罗斯唯一的商业后处理厂是马雅克化学联合体的 RT-1 厂, 年处理能力为 400 t, 主要处理轻水堆和快堆乏燃料, RT-1 厂正在考虑扩大轻水堆乏燃料后处理能力。日本六个所后处理厂的设计年处理能力达 800 t 重金属, 该厂早已建成并通过热调试, 但由于技术、政策等因素, 其正式投运时间被多次推迟。印度拥有 3 座后处理厂, 总处理能力为 410 t/a。目前, 世界各国商业后处理厂总计已处理 10 万吨乏燃料, 后处理厂经过几十年的运行, 已经积累了大量实践经验, 充分证明水法后

处理是成熟的工业技术^[11]。

1) 首端

首端的作用是拆卸元件(组件)、捕集在剪切和溶解过程中释放的挥发性组分和气体产物、制备合格的溶解液。首端虽然不生产任何最终产品,但是必须要满足下一个工段的需求,首端工艺的改变将会影响到最终产品。未来后处理更加关注超铀锕系元素回收、环境排放限值、非燃料成分回收、减少放射性废物量和降低临界风险等关键指标,因此,首端工艺必须要适应未来后处理厂的发展需求^[12-13]。目前,在后处理厂的首端,锕系元素(主要是铀)的损失量约为0.05%~0.5%,未来提高锕系元素的回收率,需要改进首端工艺技术;目前氚(³H)分布于后处理厂的废气、固体废物和溶解液中,为了回收氚,需要对工艺步骤进行重大改变;在首端,还需要改进对¹⁴C、¹²⁹I等放射性气体的捕获能力^[14];对燃料元件中的一些有价值成分,如包壳中的锆,合金中的钼可以考虑回收复用^[15]。

采用高温氧化挥发法能够显著提高乏燃料中挥发性成分的释放能力,其工艺流程如图1所示。在480~600℃的空气或氧气中,陶瓷氧化物燃料(UO₂)转化为易在硝酸或熔融盐中溶解的氧化物粉末(U₃O₈)^[16]。UO₂的氧化会导致晶格膨胀,伴随着燃料颗粒的破碎形成细粉,燃料破碎又增加了反应的有效表面积,并使燃料从包壳短段中脱离。在此过程中,超过99.9%的氚从燃料中释放出来,约1/2的¹⁴C和少量的其他裂变产物(包括约5%的氪和氙,约1%的碘和溴,<0.2%的

钆、铈和铯)也会挥发。由于U₃O₈粉末中铀处于高氧化态,因此在随后的硝酸溶解时能够降低硝酸的消耗量和氮氧化物的产生量^[17]。此外,高温氧化挥发法在回收铀、超铀元素、锆合金燃料包壳中的锆以及有价值的裂变产物方面具有潜在的优势。氧化后的燃料(如U₃O₈)可直接用于干法后处理,通过熔盐中电脱氧,铀和超铀元素的回收率可达99%,通过更高温度分离高释热裂变产物(如⁹⁰Sr、¹³⁷Cs),可大幅降低高放废物的衰变热和长期放射性^[18]。此外通过氧化挥发分离出锆包壳,高温氯化转化为挥发性四氯化锆可实现锆材料的回收。

2) 铀钚分离与回收

目前,法国UP2-800、UP3与日本六个所后处理厂均以水法Purex流程为核心工艺。该流程首先对燃料组件进行机械切割,得到若干短段,再经硝酸浸出使燃料芯体与包壳脱离。随后利用磷酸三丁酯(TBP)作为萃取剂,通过共去污分离循环获得铀、钚粗产品,再经纯化循环处理,最终产出硝酸铀酰和硝酸钚溶液,并可进一步制成铀或钚的氧化物固体产物。

为制造MOX燃料并强化防扩散保障,法国原子能委员会(CEA)对UP3的工艺进行了升级,提出COEX流程(图2)。该工艺在U(VI)和Pu(IV)共萃取后,采用低酸还原性反萃取将钚及部分铀同时转移至水相,剩余的铀仍保留在有机相,这样就获得U和Pu+U两种液流,它们各自经过萃取与反萃的纯化过程,最终可分别得到纯净的铀产品和铀钚混合溶液^[19]。COEX流程的显著特点是整个系统中不会产生纯钚,铀和钚实行共同管理

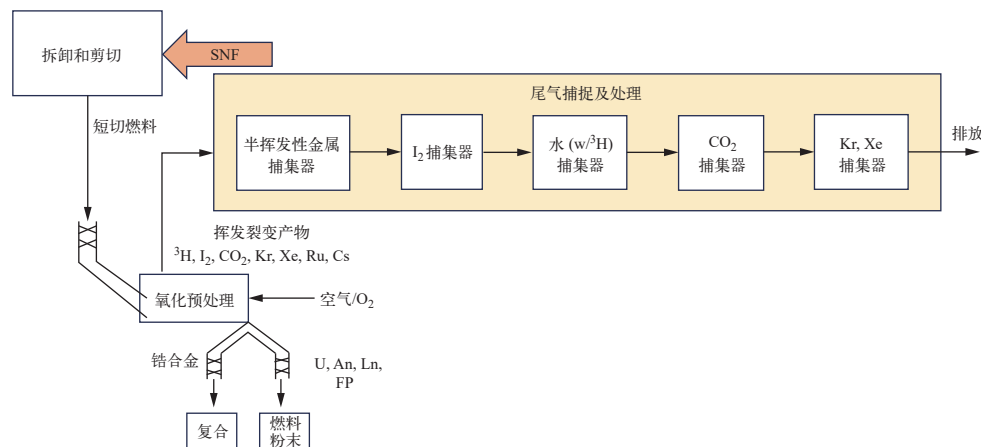


图1 高温氧化挥发工艺流程示意图

Fig. 1 Process flowsheet of high-temperature oxidation volatilization

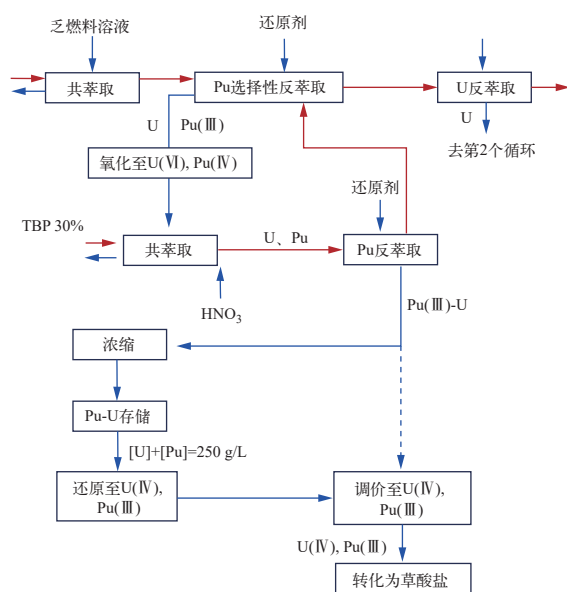


图2 COEX后处理的基本流程(法国CEA)

Fig. 2 Flowsheet of COEX reprocessing system of CEA, France

(包括共萃取、共转化等环节),二者经共沉淀后形成的共结晶体可直接用于MOX燃料的制备。COEX流程目前已达到可实际应用的成熟度,能够满足大型后处理厂的运行需求。

针对第四代乏核燃料水法后处理和锕系元素的共循环,法国CEA提出了GANEX(group actinides extraction)流程^[20-21],该流程采用两个萃取循环:第一个萃取循环用DEHiBA(N,N-二(乙基-2-己基)异丁酰胺)作萃取剂,分离出乏燃料中的主要成分铀,以减少重金属质量和溶液体积,既有助于第二个萃取循环的流体力学性能研究,又可以调整铀和超铀元素的比例;第二个萃取循环采用TPH稀释丙二酰胺(DMDOHEMA)和烷基磷酸(HDEHP)的混合物作为有机溶剂,从硝酸溶液中定量萃取所有锕系元素^[22]。2008年,在CEA的Atalante设施中,使用真实乏燃料溶液(其中铀含量为176 g/L,钚含量为2.5 g/L),用实验室规模混合澄清槽进行了流程测试,铀的回收率和净化系数均达到了目标,铀进入到萃残液和废有机相中的损失率分别低于0.002%和0.003%,铀的回收率高于99.99%。2009年使用真实料液完成了二循环试验,结果表明An回收率达99%,但是An与Ln的分离性能需改善。CEA将GANEX流程作为第四代快堆系统中锕系元素再循环关键工艺。

近年来,美国认为通过核燃料后处理回收有

用核素,能够充分利用铀裂片能资源,减少核废物体积、降低放射性毒性、减少地质处置库的需求。美国于2001年提出了先进核燃料循环研究的构想(AFCI),开展核燃料处理先进技术的研究,其中化学分离技术是AFCI的重要组成部分。美国在先进燃料循环倡议的计划下开发了UREX流程^[23]。UREX是Purex流程的改进,其设计初衷就是用于铀和钚的提取,目标是回收>99.9%的U和>95%的Tc,而钚与次锕系元素和裂变产物则保留在萃残液中。UREX流程如图3所示,在萃取阶段采用AHA作为络合/还原剂将钚、镅络合还原,与次锕系元素镅、钼一起进入萃残液。但由于AHA在高酸下化学性质不稳定,必需在低酸下使用,使得Tc(以 TcO_4^-)与铀共同萃取,因此,需要进行U/Tc分离,为此,首先用硝酸将钚洗涤下来,然后用稀硝酸反萃铀,分别得到钚产品(>99%的Tc)和铀产品(>99.9%的U)。

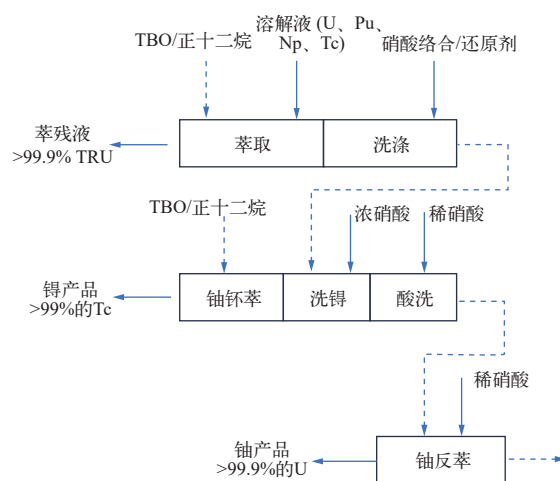


图3 UREX流程示意图

Fig. 3 Flowsheet of UREX process

美国针对防核扩散的不同策略,在UREX流程的基础上进行了改进,提供了多个UREX+版本^[24],其根本原则是不单独分离出钚产品。表1列出了所有版本的UREX+工艺以及产品的组合形式。UREX+流程的主要优点如下:1)铀和钚回收率均>99.9%;2)通过分离铀可大幅降低废物体积;3)通过分离回收Tc和Cs/Sr,可降低核废物的放射性毒性和释热量。

为了减少废物流,俄罗斯联邦放化中心(镭研究所、无机材料研究所及其他研究所)2002年启

表 1 不同版本的 UREX 流程
Table 1 Different versions of UREX process

工艺	产品 1	产品 2	产品 3	产品 4	产品 5	产品 6	产品 7
UREX+1	U	Tc	Cs/Sr	TRU/Ln	FP		
UREX+1a	U	Tc	Cs/Sr	TRU	FP/Ln		
UREX+1b	U	Tc	Cs/Sr	U/TRU	FP/Ln		
UREX+2	U	Tc	Cs/Sr	Pu/Np	Am/Cm/Ln	FP	
UREX+2a	U	Tc	Cs/Sr	U/Pu/Np	Am/Cm/Ln	FP	
UREX+3	U	Tc	Cs/Sr	Pu/Np	Am/Cm	FP/Ln	
UREX+4	U	Tc	Cs/Sr	Pu/Np	Am	Cm	FP/Ln
UREX+4a	U	Tc	Cs/Sr	U/Pu/Np	Am	Cm	FP/Ln

注: TRU 为超铀元素 Am、Cm、Np 和 Pu; FP 为裂变产物; Ln 为镧系裂变产物

动了改进现有后处理技术的研究计划,开发了长寿命放射性核素管理的新技术(P&T)和后处理新工艺技术。俄罗斯计划在 Krasnoyarsk 地区的采矿化工联合企业(MCC)建造中间试验工厂,用于开发和测试 VVER-1000 反应堆乏燃料的新型后处理工艺,以及快堆乏燃料后处理技术的开发。VVER-1000 乏燃料后处理技术的基础是镭研究院开发的创新技术——简化的 Purex 流程^[25],其所有的关键技术已在热室内进行了验证^[26]。在简化的 Purex 流程中,在溶剂萃取-循环的铀钚共萃取段,利用硝酸的氧化作用,使铀、钚、铀、钚共萃取到有机相。然后分别采用 U(IV)+肼、肼和 U(IV) 为还原剂,将钚还原反萃到水相,铀则随钚进入钚液流,而铀和钚保留在有机相。然后在铀的萃取和反萃循环中用 U(IV)+DTPA 作为络合还原剂分离出铀。在下一个铀反萃段,用 V(V) 将分离出的铀氧化到 Np(VI),并利用 H₂O₂ 将 Np(VI)还原到 Np(V),从而使铀以 Np(V) 的形式分离回收。采用回流萃取提高铀产品的浓度。该流程的主要任务之一是作为目标产品获得 U+Pu+Np 和大部分铀,以便在快堆中循环使用。

日本原子能机构(JAEA)在“快堆燃料循环技术发展”项目(FaCT)的框架内,为处理快堆乏燃料开发了 NEXT 工艺,如图 4 所示^[27]。NEXT 流程包括 3 部分:1) 采用低温结晶法从溶解液中回收大部分 U;2) 采用 TBP 共萃取 U-Pu-Np;3) 采用萃取色谱回收 Am 和 Cm。在低温结晶步骤,为了回收 70% 的铀,需要将硝酸溶液中的铀浓度提高至大于 400 g/L,为此,配套开发了乏燃料粉末化技术,以及圆柱状环形连续式结晶器、

带洗涤篮和螺旋输送机的固液分离器等专用设备,并完成工程规模试验。该步骤将硝酸溶液中铀结晶分离,大幅降低了后续流程的处理量,直接推动了设备的简化与小型化。基于快堆(FBR)再循环燃料对裂片元素含量的容忍性,取消了传统 Purex 流程中铀钚分离和净化环节^[28],采用 TBP 共萃取 U-Pu-Np 的单一循环模式。这一调整不仅减少了工艺步骤,还缩短了流程周期,降低了设备复杂度和运行成本^[29-30]。

3) 三价锕系元素与镧系元素的分离

分离出铀和钚后,次锕系元素(首先镅,然后是锔和镎)成为乏燃料放射性毒性的最大贡献者。由于 Am、Cm 和三价锕系元素之间的化学性

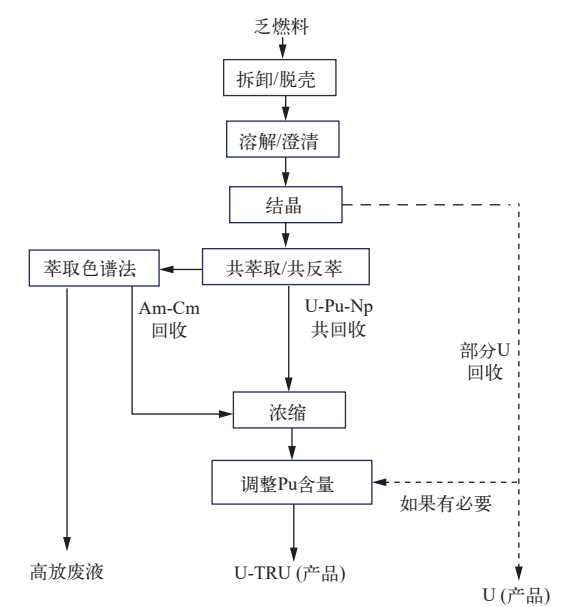


图 4 日本 JAEA 开发的 NEXT 后处理流程
Fig. 4 Flowsheet of NEXT reprocessing for nuclear fuel of JAEA, Japan

质极为相似,使得铀钼分离成为非常困难的化学问题。

TRUEX 工艺由美国阿贡国家实验室于 20 世纪 80 年代开发,其核心是采用 CMPO(烷基氧化膦)从硝酸溶液中萃取三价铀系和铀系元素,同时加入 TBP 作为溶剂改性剂以防止第三相形成^[31]。该工艺流程的基本步骤^[32]包括:1) 铀系与铀系元素共萃取;2) 洗涤;3) 铀系与铀系元素反萃;4) 溶剂洗涤。该工艺可实现 99.9% 以上的超铀元素和铀系元素萃取进入有机相。负载有机相的洗涤阶段包含 3 个步骤:首先用 $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4/\text{HNO}_3$ 混合液去除所萃取的裂变产物(尤其是 Zr);接着用 HNO_3 洗涤进一步净化;最后用稀 HNO_3 降低有机相中残留的硝酸浓度。洗涤完成后,采用稀硝酸或含二乙撑三胺五乙酸(DTPA)的 $\text{pH}=5$ 乳酸缓冲液,对铀系和铀系元素进行共反萃。

20 世纪 60 年代,美国橡树岭国家实验室成功开发出 TALSPEAK 流程^[33]。在该流程中,使用二(2-乙基己基)磷酸(HDEHP)将铀系元素萃取至有机相中;而水相因添加了 DTPA,能够与铀系元素形成稳定络合物,从而使铀系元素得以留存于水相中,就此实现了铀钼分离。

值得注意的是,乳酸在此流程中作为缓冲剂,不仅起精准调控 pH 的核心作用,还有助于改善萃取动力学性能。在 TRUEX 流程与 TALSPEAK 流程联用的热试验中,已取得了显著成果:Pu、Np、Cm 的回收率均超过 99.99%,Am 的回收率也达到了 99.97%。

日本原子能研究所(JAEA)在 2000 年代初研发了 ARTIST 分离流程^[34]。该技术以酰胺类化合物为萃取介质,依次分离铀和超铀元素(TRU)。首先借助 DH_2EHA 或 D_2EHBA 等带有支链结构的单酰胺萃取剂,在第一循环中选择性提取乏燃料溶解液中的六价铀;随后在第二循环中利用 TODGA 实现铀系和铀系元素的共同萃取。实验结果显示, TODGA 在高浓度硝酸环境中对三价铀系元素(如 Am^{3+} 、 Cm^{3+})及铀系元素均具有显著萃取能力。

法国在原子委员会主持下,开展了长寿命放射性核素的 P&T 研究,计划到 2025 年建造用于 MA 分离的工业设施和用于铀系焚烧的反应堆。欧洲在过去 20 年中,通过 NEWPA RT、PART-

NEW、EUROPA RT、ACSEPT 和 SACSESS 等项目的研究,发展出了 DIAMEX+SANEX、innovative-SANEX、1-cycle-SANEX 等流程。基于 CHON 原则,设计开发了以二甲基-二丁基-十四烷基-丙二酰胺(DMDBTDMA)为萃取剂的 DIAMEX 工艺,并成功用于真实 HLLW 的测试。DIAMEX 流程的优点是可以在高酸下萃取 $\text{An(III)} + \text{Ln(III)}$,使其与除铀系外的大多数裂变产物分离。对于 $\text{An(III)}/\text{Ln(III)}$ 分离循环(SANEX 工艺),最初考虑使用 2,4,6-三(2-吡啶)-1,3,5-三嗪(TPTZ)和 α -溴代十二烷基羧酸的混合物进行 $\text{An(III)}/\text{Ln(III)}$ 分离,但由于分离需要相对较高的 pH ,且 TPTZ 是水溶性试剂,而溴代十二烷基羧酸具有不完全燃烧的特性,因此,该方案很快被 BTP(双三嗪基吡啶)取代。但 BTP 的化学稳定性不足,使得 SANEX 工艺难以工业应用。之后开发了双三嗪基联吡啶(BTBP)配体 $\text{CyMe}_4\text{-BTBP}$ 。该化合物比 BTP 更具化学和辐射稳定性,但是传质动力学缓慢,需要加入二酰胺作为相转移剂。尽管在 ITU 成功进行了“ $\text{An(III)} + \text{Ln(III)}$ ”放射性试验,但是 $\text{CyMe}_4\text{-BTBP}$ 的辐照稳定性依然不足。在 EUROPART 项目中提出了在 DIAMEX 流程中,使用 TODGA 萃取 An(III) 和 Ln(III) ^[35]。基于 $\text{CyMe}_4\text{-BTBP}$ 研究了两种 SANEX 流程:1-cycle-SANEX 和 innovative-SANEX。

2.2 干法后处理

干法后处理是指在非水介质中处理乏燃料,回收铀钚等铀系元素,并妥善处理放射性废物的一种化工过程。干法后处理技术是为匹配快堆闭式燃料循环而发展起来的。与压水堆乏燃料相比,快堆乏燃料钚含量高(10wt%~20wt%)、燃耗高(10at%~30at%),其比放射性活度、衰变热、中子强度均高出 1~2 个数量级。若采用水法后处理工艺处理快堆乏燃料,将面临溶剂辐解导致的萃取分离工艺问题、高钚含量导致的临界安全问题、需长时间冷却导致的监管费用问题等。为匹配快堆燃料循环的特点和要求,宜采用干法后处理技术处理快堆乏燃料。

针对快堆乏燃料处理,干法后处理技术具有以下优势:溶剂耐辐照,可接受短冷却期乏燃料,显著缩短堆外循环时间;工艺流程短,设备紧凑,适合临堆建设;适用对象广,可处理金属、MOX

等多种乏燃料类型;不引入慢化剂,临界风险低等;具有高增殖比的金属乏燃料,化学活性强。

干法后处理属于高温化学工艺,主要包括金属电解精炼、氧化物电沉积及氟化挥发等方法。其中,熔盐金属电解精炼与氧化物电沉积均经过真实乏燃料吨级规模工程验证,技术成熟度达到7级,而氟化挥发工艺仅为4级。

1) 金属电解精炼

20世纪60年代,美国的实验增殖堆采用的是钠结合的金属燃料,阿贡国家实验室(ANL)采用熔融精炼工艺完成了快堆闭式燃料循环验证,但熔融精炼这种简单的干法工艺存在铀系元素回收率低、裂片元素分离系数低、铀钚比例无法调节等问题,无法进一步工业化。为此,20世纪80年代,美国开发了熔盐电解精炼工艺。该工艺流程包括乏燃料的首端处理、铀系元素分离、产物纯化及废物处理等环节,最终产出为铀金属与超铀金属两类产品,以及金属态和陶瓷态两类高放废物。其核心技术在于通过精确控制电化学电位实现高效分离:铀元素通过不锈钢固体阴极回收,超铀元素则借助液态镉阴极进行提取。该策略不仅显著提高了铀系元素的回收效率及对裂变产物的去污能力,还可将获得的金属铀系产品输送至燃料制造工序,经喷射铸锭工艺再加工为新型燃料^[36-37]。

经过10余年持续探索,干法后处理技术已实现重要突破。20世纪90年代后期,美国成功完成了针对金属乏燃料的干法后处理全流程工程示范,处理了来自EBR-II实验增殖堆的辐照燃料(包括堆芯及增殖层燃料),验证了电解精炼工艺在工程应用中的可行性^[38]。该技术经美国能源部与国家科学院评估,可作为处理EBR-II反应堆剩余钠结合金属乏燃料的首选技术^[39]。

为推进金属电解精炼的工程化应用,美国多家机构持续对液态镉阴极提取超铀元素、熔盐循环利用、设备放大及废物最小化等关键环节进行优化,以提高铀系元素回收率并降低二次废物产生量^[40-42]。同时,为将电解精炼技术扩展至MOX及氧化铀等氧化物乏燃料的处理,相应氧化物还原工艺也得到系统研究与开发^[43-45]。美国爱达荷国家实验室(INL)开展了真实压水堆乏燃料的电解还原实验,在每批50 g规模、LiCl-Li₂O熔盐介质中,实现了UO₂ 99.7%和氧化钚 97.8%的高还

原率,验证了该工艺处理氧化物燃料的可行性^[46]。

2) 氧化物电沉积

俄罗斯针对快堆氧化物燃料,开发了氧化物电沉积方法^[47]。该工艺首先通过氯化使氧化物燃料溶解在熔盐中,然后通过铀预电解、MOX电解、补充电解等步骤可分别获得铀、钚氧化物或MOX产品。获得的氧化物产物,能直接用于快堆混合氧化物(MOX)燃料元件的制备,实现了后端处理与前端燃料制造的有效衔接。氧化物电沉积工艺还可依据目标产物灵活调整熔盐体系,如生产UO₂和PuO₂时多选用NaCl-KCl体系,而生产MOX原料时则采用NaCl-2CsCl体系^[48]。

俄罗斯利用氧化物电沉积技术生产UO₂与MOX燃料,并借助振动密实工艺完成燃料元件的封装成型。截至目前,俄罗斯已处理约6 t乏燃料,将氧化物电沉积与振动密实燃料制造技术相匹配,所得铀、钚氧化物或MOX产品可直接投入快堆中复用,成功实现了核燃料的循环再利用,整体技术成熟度已达到半工业化水平^[49]。针对快堆氧化物燃料循环,氧化物电沉积流程是有竞争力的选择^[50]。

3) 氟化挥发

氟化挥发工艺是利用铀钚等铀系元素可形成高价态的气体氟化物,关键裂片元素无法形成挥发性氟化物的特点,通过氟化反应实现铀钚与关键裂片元素的分离。

20世纪60年代,美国首次应用氟化挥发技术对辐照燃料进行了分离验证,成功回收铀材料达数百公斤^[51]。俄罗斯基于BOR-60反应堆乏燃料开展了工程级热试验,取得铀回收率超99%、钚回收率介于89%~91%的成果,回收铀经加工后已实际用于堆芯燃料循环^[52]。近年来,俄罗斯仍在持续推进该技术的实验室研究^[53]。2019年,日本完成了公斤级氧化物乏燃料的热实验,初步证实氟化挥发工艺的可行性^[54]。此外,捷克也实现了熔盐堆乏燃料在工程规模上的示范验证^[55]。俄罗斯与日本合作研发的FLUOREX流程,先用氟化挥发技术回收大部分铀,再用水法Purex流程处理氟化残渣,解决氟化挥发技术Pu收率较低的问题^[56]。

氟化挥发工艺在多个方面展现出显著优点,例如工序较少、系统结构紧凑、铀的提取效率及净化效果突出(接近水法工艺水平),且产生的二次废物量较低。然而,该工艺目前仍存在一定的技

术局限,主要包括铀的回收率不高(通常维持在90%左右)、材料在强腐蚀环境下耐久性不足,以及难以实现镅、钔与难挥发裂变元素的有效分离。

2.3 后处理技术发展趋势分析

从工业化应用历程来看,后处理技术的发展可划分为4个主要阶段(图5)。第一阶段以提取特殊领域铀为主要目标,被视为第一代后处理技术。为了满足核电站乏燃料后处理的需求,在对早期 Purex 流程进行改进后,形成了第二代后处理技术。第二代技术目前仍在各国商业后处理厂中

广泛使用,其产品通常为 PuO_2 和 UO_3 。早期生产堆的燃耗低于 $1\,000\text{ MW}\cdot\text{d/tU}$,而动力堆的燃耗提高至数万 $\text{MW}\cdot\text{d/tU}$,因此,动力堆乏燃料中裂变产物与超铀元素的含量大幅上升,放射性强度和 neutron 通量也增大约 $1\sim 2$ 个数量级。虽然第二代技术是基于 Purex 流程,但在铀钚分离效率、净化程度以及多项关键工艺参数上均有显著提升。此外,在辐射安全、环境保护、核临界控制、工艺稳定性及运行经济性等方面,第二代后处理技术也实施了诸多工程技术改进。

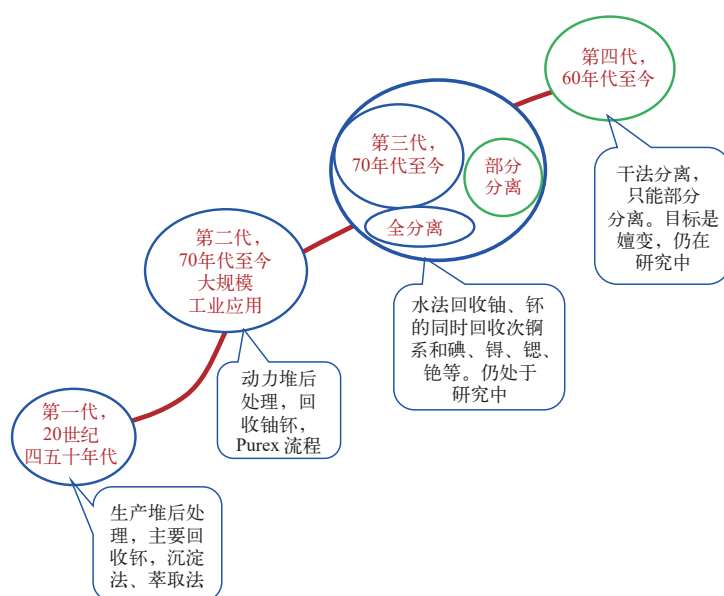


图5 后处理技术发展阶段

Fig. 5 Development stages of reprocessing technology

当前,第三代与第四代后处理技术尚处于研发阶段。这些技术旨在处理更高燃耗的乏燃料,除回收铀、钚外,还致力于提取次锕系元素(如镅、钔、钷)、长寿命裂变产物核素(如 ^{99}Tc 与 ^{129}I)以及高释热核素(如 ^{137}Cs 和 ^{90}Sr)等,因而已成为国际上的重点研究方向。

动力堆乏燃料的处理需求促进了 Purex 流程的改进。此外,防核扩散的目标也推动了 Purex 流程的发展。值得一提的是,法国 CEA 开发的 COEXTM 工艺、英国开发的先进 Purex 工艺,以及美国开发的 UREX 工艺,尽管目前尚未工业应用,但是这些工艺的共同点是,使钚产品与其他元素混合,以减少钚用于核武器生产的可能性。例如,COEXTM 工艺允许一定量的铀保留在钚液流中,从而使 COEXTM 工艺的两个主要产品是纯铀和

铀-钚混合物,这样做的另一个好处是, U-Pu 混合物可以用于制造 MOX 燃料。而先进 Purex 和 UREX 工艺则依靠调整工艺条件,通过在水相进料中加入乙异羟肟酸(AHA),使镅与钚一起被输送到 Np-Pu 产品流中,从而获得纯铀产品和镅/钚混合物产品。

近年来,在美俄燃料循环策略的推动下,干法后处理技术得到了长足发展,金属电解精炼和氧化物电沉积均通过了工程规模真实乏燃料热试验的验证,国际经济合作与发展组织(OECD)对这两项技术的成熟度评价均达到7级。尽管干法技术尚未达到工程应用的水平,但在各国的积极推动与国际合作的助力下,目前正处于从示范验证向工程应用推进的阶段。特别是韩国、日本借助与美国一体化快堆项目的合作,在干法后处理技术

研发与工程化探索方面积累了丰富的经验并取得了多项进展。韩国于2016年建成一座干法后处理冷铀试验设施(年处理能力为10 t铀)^[57],用于开展工程规模验证与技术可行性研究,并已完成年处理400 t铀的商业规模干法后处理厂的初步概念设计^[58]。日本积极与美国、俄罗斯及欧洲等多方合作,共同推动干法后处理技术的商业化进程^[59-60]。此外,欧盟^[61]、英国^[62]、法国^[63]、印度^[64]等也在持续推进干法后处理技术的相关研发工作。

3 我国先进后处理技术研究进展

我国坚持闭式核燃料循环的战略。目前,水法后处理已经实现工业化,其工艺技术向着流程更简化、废物量更少、更经济、更安全的方向发展。随着我国快堆技术的发展,处理深燃耗MOX乏燃料,尤其是金属乏燃料对干法后处理技术提出了迫切需求。

3.1 水法后处理

我国在先进水法核燃料后处理技术方面已取得显著技术突破,但仍面临着工业化应用与规模化发展的挑战。动力堆乏燃料后处理中试厂的处理对象为燃耗33 GW·d/tU的UO₂燃料,设计处理能力为300 kg/d。中试厂工艺特点为,在一循环采用U(IV)-肼体系实现铀钚初级分离,在钚铀二循环使用硝酸羟胺还原反萃钚,在铀纯化循环主要去除钆和镅。在中试厂的基础上又建成了200 t/a工业规模的后处理示范厂。

尽管我国后处理工艺已经取得了重大突破,但是在运行过程中仍存在问题:1)在共去污铀钚分离段(1B),由于钆大量消耗还原剂U(IV)和肼,必须加入过量的还原剂才能维持萃取柱的

稳定;钚的浓缩倍数不高;铀中除铀净化系数难以进一步提高。2)由于大部分钚进入铀线,需要在铀纯化循环强化对钚的去污,但从目前运行结果来看,铀产品指标很难达到。3)在钚纯化循环中,使用羟胺作为钚的还原反萃取剂,钚浓缩倍数难以超过2倍,且由于羟胺还原速率低,需要加热(约50℃),温度提高后溶剂降解严重。

针对多种类型、燃耗更高的乏燃料,为更好地衔接后续铀钚循环利用,基于多年的研究基础,原子能院提出了新一代先进水法后处理概念流程,包括激光剪切、高温氧化挥发、粉末燃料溶解、简化的化学分离、铀钚尾端、有价值核素提取、废物处理等工艺过程,如图6所示。

1) 激光剪切

“十三五”期间原子能院研制了快堆组件激光解体样机(图7),采用模拟组件开展了快堆组件激光解体验证实验,验证了技术可行性并初步建立组件解体工艺路线方案。“十四五”期间进一步对激光解体、单棒切割开展了较系统的研究。针对热室封闭环境和后处理强辐射场下设备的适用性需求,研制了激光在热室内外传输专用的激光穿墙光耦,以及耐辐照的全金属激光切割头两个关键核心部件,建立了激光解体和单棒切割的工艺方案和全流程激光操纵参数和成套设备。同时完成了与以上设备匹配的大功率激光器的国产化研制。

2) 氧化挥发

近年来,原子能院在先进分离化学和工艺方面取得了多项研究成果。在首端,针对UO₂燃料元件,在400~600℃温度区间开展了氧化动力学研究,同步优化氢同位素及气态碘吸附捕集工

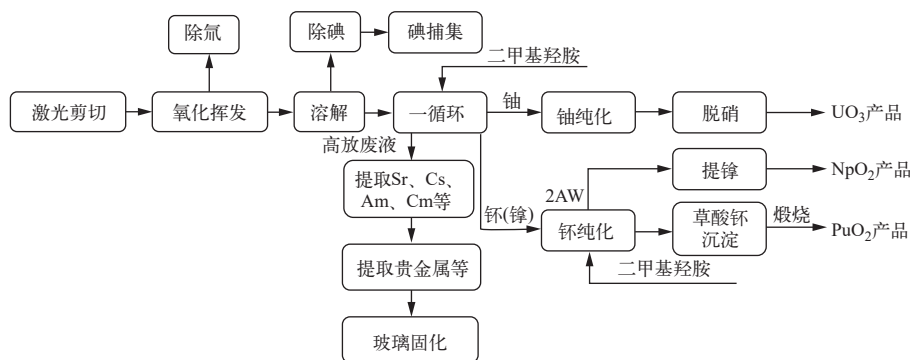


图6 新一代大厂乏燃料后处理概念流程图(铀钚分离)

Fig. 6 Flowsheet of new generation large factory reprocessing (uranium plutonium separation)

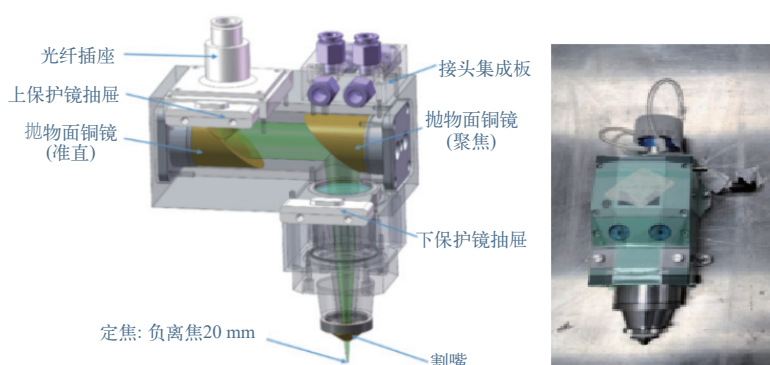


图7 全金属激光切割头原理及实物图

Fig. 7 Principle and physical image of all metal laser cutting head

艺^[18], 系统研究了多个因素对芯块氧化速率产物物性等的影响, 研制了处理规模为 kg/h 的样机, 通过数十小时的连续氧化实验(图8), 验证了设备功能, 获取了连续氧化速率、粉末与包壳分离效果等数据。十四五期间又进一步开展了真实乏燃料氧化挥发实验, 获取了乏燃料短段氧化速率、氧化过程氙去除率、包壳漂洗氙浸出率、包壳与芯块中氙的分布等诸多关键数据。

3) 化学分离

针对大型乏燃料后处理厂碘的控制管理, 为提升后处理厂的经济性和安全性, 原子能院开展了溶解液中碘驱除和尾气中碘捕集工艺和设备研究。建立了以空气-氨氧化物混合气驱除碘、含胍氢氧化钠溶液循环捕集碘的工艺。研制出扁平槽式碘驱除工程样机和喷淋捕集碘捕集工程样机, 该样机经 72 h 连续模拟试验验证, 处理量分别达到 $1 \text{ m}^3/\text{h}$ 和 $200 \text{ m}^3/\text{h}$, 碘驱除率大于 95.6%, 碘捕集率大于 97.2%。为了进一步捕集尾气中残余的碘, 采用蚀刻法制备了碘吸附容量大于 700 mg/g 的附银八面沸石吸附材料, 实验结果显示, 该材料

可以有效实现对碘的控制管理。

针对高燃耗乏燃料的后处理, 原子能院改进了 Purex 流程, 发展出以二甲基羟胺为还原剂的先进无盐二循环流程(APOR, 图9), 该流程主要包括共去污分离循环、铀纯化循环和铯纯化循环, 其关键在于利用水溶性有机还原剂二甲基羟胺, 在常温下还原反萃取 Pu(IV) , 使铀与铯相互分离^[65]。二甲基羟胺作为还原剂在替代传统试剂方面表现出多方面的优势: 不引入金属杂质; 分解产物为气体, 符合“CHON”原则; 在室温条件下即可进行反应, 能够显著降低能耗与溶剂降解; 工艺过程不产生叠氮酸, 提升了工艺安全性; 有利于对铯走向的调控^[66]; 铯的存在不会干扰铀铯分离^[67]。此外, 该试剂的使用也简化了工艺流程与试剂管理, 并进一步降低了废物产生量。APOR 流程经过多次台架规模热实验验证和中试规模热验证, 共去污分离循环铀收率达 99.98%, 铀收率达 99.95%; 铀铯分离(1B)采用 DMHAN-胍为还原剂, 铀浓缩倍数为 5~6 倍, 铀中除铯分离系数($\text{SF}_{\text{Pu/U}}$)和铀中除铯分离系数($\text{SF}_{\text{U/Pu}}$)均取得满意结果。铀纯化



图8 乏燃料短段氧化前、后(粉末与包壳)实物

Fig. 8 Physical samples of spent fuel before and after short section oxidation (powder and cladding)

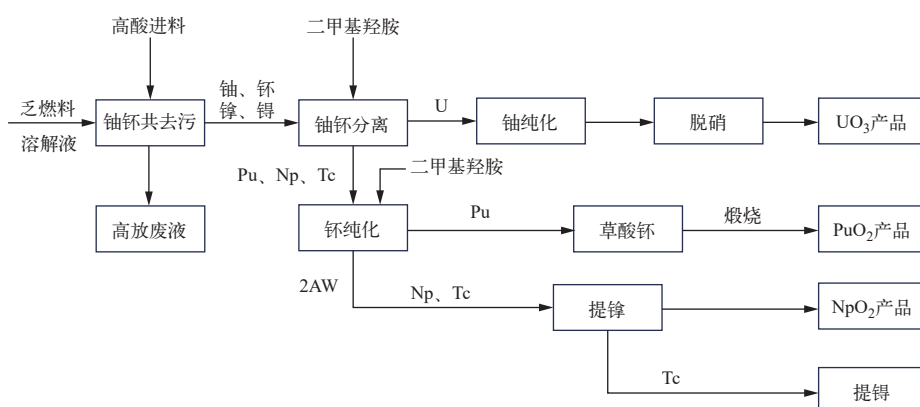


图9 先进无盐二循环流程(APOR)

Fig. 9 Flowsheet of Advanced Salt-Free Two-Cycle Process (APOR)

循环环节钚总收率达 99.98%，钚总浓缩倍数达 14，钚中除铀分离系数性能优异，钚产品中杂质含量全部达标。铀纯化循环环节铀总收率达 99.97%；铀纯化循环对钚、镅的净化系数进一步提高。APOR 有望作为未来我国商业后处理大厂的主工艺流程。

在有机无盐还原剂安全性方面，按照《危险化学品目录(2015 版)》中我国危险化学品的确定原则和目录清单，30% 的 N,N-二甲基羟胺不属于爆炸品、易燃液体、氧化性液体和腐蚀性品，可不按危化品管理。使用 N,N-二甲基羟胺的 APOR 已在中试厂进行了验证，其辐解和氧化破坏的气体产物中主要可燃产物为甲烷，尾气由工艺尾气系统进行处理和排放。二甲基羟胺作为一种新的还原剂投入使用，工艺系统核临界安全受控，满足次临界安全要求；同时，正常工况和异常工况下的事故分析表明，未改变中试厂原事故分析性结论，能够满足安全要求。

在钚尾端，原子能院自主研发了草酸钚连续沉淀装置，并建立了草酸钚连续沉淀工艺，全面深入研究了草酸钚晶体的成核及生长化学行为，实现了提高钚沉淀率、控制晶体粒径、达到平稳连续处理能力的需求，完成了 1/10 规模的真实钚溶液运行验证，达到了国际先进水平。相对于我国目前采用的批式沉淀技术，大幅降低了停留时间，提高了生产通量，为后处理厂钚尾端连续沉淀器及连续沉淀工艺的设计提供了技术支撑。此外，采用该连续沉淀装置，建立了草酸铀钚连续共沉淀工艺，国内首次制备出铀钚分布达分子级混匀的草酸铀钚沉淀及铀钚氧化物 MOX 燃料粉末。

相对于现有的机械研磨法，其铀钚混匀度更高，避免了富钚问题。

在 Np 和 Tc 的提取方面，由于 APOR 流程从 2AW 中提取钚和镅，具有源项组成简单、辐照剂量中等(中放水平)以及经济性显著的优势，主要采用“先提钚、再提镅”的工艺方案。(1) 钚的提取。采用亚硝酸催化氧化结合溶剂萃取技术，以 30% TBP/煤油为萃取剂，从真实 2AW 物流中可实现钚的萃取率达 98.8%；随后以肼-HNO₃ 混合溶液作为反萃剂，对负载有机相进行反萃，钚的反萃率达 99.3%，成功回收至水相。所得钚产品具有较高的纯度：对裂片元素 γ 射线的净化系数大于 1 900，对镅的净化系数超过 2 000。(2) 镅的提取。在上述钚萃取过程中，99.9% 的镅留存于萃余液中，可进一步从中提取。对该萃余液首先进行脱硝-氧化-调酸预处理，将镅统一氧化为可萃取的高镅酸盐(Tc(VII))形态，继而采用 NTAamide(C8)为萃取剂，经萃取-草酸洗涤-碳酸铵反萃的全流程处理，镅的总回收率达到 99.89%。该工艺对 γ 射线具有优异的去污性能，去污系数达到 6 500，最终镅产品中的 α 活度低于 25 Bq/g。

针对快堆 MOX 乏燃料钚含量高和裂变产物含量高的特点，原子能院设计了两条水法后处理技术路线：混合处理和单独处理。混合处理路线是将 MOX 乏燃料溶解液按一定比例掺入压水堆乏燃料溶解液中，对现有流程进行适当调整，在现有设施中进行后处理。以中试厂为依托，通过临界安全评估，提出了合适混合比例和工艺参数，并通过台架温实验进行了验证。单独处理路线是单独处理 MOX 乏燃料，设计了包含“共萃取-共反

萃”及“共萃取-铀钚分离”两个共去污循环的工艺流程,提出并验证了各工艺段的工艺参数。

4) 有价值核素提取与应用

原子能院创新性提出了基于茝醚试剂的高放废液全分离流程:首先采用四辛基二甘酰胺(TODGA)对锶、钡及镭系元素进行协同萃取,随后利用茝醚/TBP 混合体系选择性萃取铯,最后借助杯冠化合物分离回收铯。该流程结构合理,无需酸碱调节即可实现各阶段高效衔接,并能与后处理主工艺无缝对接。结合先进无盐二循环技术,该茝醚分离流程构建出一套完整的全分离方案,已被采纳为核燃料后处理实验平台的基准流程,并通过实验验证表现出良好性能。这一具有自主知识产权的技术不仅可实现高放废液的减容与低放化,还具备分离效率高和二次废物量少的显著优势。

清华大学在高放废液分离领域持续推进 TRPO 流程的研发,在完成三轮热试验的基础上,进一步推动了该流程的工程化试验与配套装备研发。研究团队研制出新型杯冠化合物以实现铯的高效提取,并通过引入冠醚及杯冠化合物对原有铯钡分离工艺进行了系统性优化,显著提升了分离效能与工艺稳定性^[68]。

3.2 干法后处理

我国快堆乏燃料干法后处理技术起步于 20 世纪 90 年代,这一时期开展了文献跟踪和原理性测试。进入 21 世纪,干法后处理技术研发先后得到国家“863”计划、“973”计划和国家自然科学基金及其他渠道支持,积累了干法后处理技术基础数据,验证了干法后处理关键工艺原理可

行性,建立了干法后处理专用研究平台,形成了一支干法后处理技术研究专业团队。“十四五”以来,在中核集团集中研发渠道项目支持下,基于我国快堆闭式燃料循环的特点及要求,实施了干法后处理示范设施标准初步设计,系统开展了干法后处理工艺、设备、材料、分析检测、废物处理、辐射防护、临界安全等关键技术攻关,完成了熔盐电解精炼等主工艺的铀钚物料验证,建立了我国干法后处理主工艺概念流程(图 10),该工艺流程涵盖物料拆解剪切、电解精炼、阳极/阴极处理、逆流萃取等关键环节,最终产出喷射铸锭产品,并产生金属废物与陶瓷废物两类废物。其核心是通过电解精炼实现物料分离,阳极处理产生金属废物并开展后续处理,阴极处理后的物料直接进行喷射铸锭成型;同时,电解精炼后的物料经逆流萃取、沸石柱工艺,最终产生陶瓷废物。三条分支以电解精炼为核心节点,分别对应废物处理与产品成型,形成完整的物料处理与资源回收体系。

1) 分离纯化主工艺

我国快堆燃料循环体系具备发电、增殖与嬗变等多重功能,因而要求其干法后处理工艺能够高效回收全部锕系元素,包括次锕系元素。熔盐电解精炼技术因其可实现对次锕系元素的同步回收,适用于金属及氧化物等多种类型乏燃料,并具备较高的技术成熟度,已被确定为主要工艺路线。该技术流程包括乏燃料首端处理、铀的分离与纯化、超铀元素的分离与纯化、熔盐再生以及废物预处理等环节。在处理氧化物燃料时,需增加化学首端处理步骤,将其转化为金属形态后再

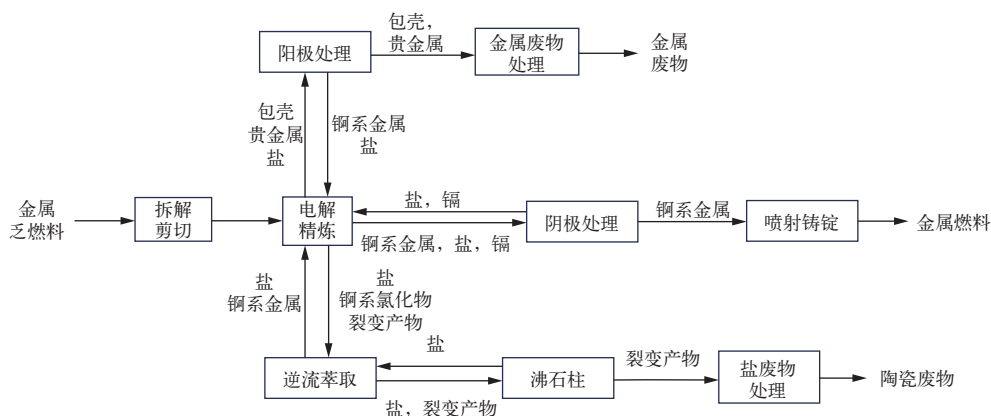


图 10 乏燃料干法后处理金属电解精炼流程示意图

Fig. 10 Flowsheet of electrolyrefining process for dry reprocessing of spent fuel

进行后续处理。

基于对 Ce-Zr 和 U-Zr 合金模拟物料(以铀为超铀元素代表)的研究,通过金属电解精炼和氧化物电解还原等工艺,系统获取了熔盐电解过程的热力学与动力学参数,明确了关键元素的走向分布规律^[69-70],验证了干法后处理技术原理的可行性。在此基础上,集成干法后处理主工艺科研样机形成台架系统,完成设备系统集成,为后续设计验证和工程化研发提供支撑。铀物料放大试验进一步验证了工艺可行性及设备结构放大设计的合理性,此外还测试了材料在放大工况下的性能,为工程化研发提供了关键输入。为降低放射性废盐量,开展了液态镉阴极和铝阴极的彻底电解工艺测试,净化后熔盐中铀残留量降至约 100 ppm^[71]。结合氧化沉淀和区域结晶方法,验证了熔盐中稀土元素和锶铯等活泼裂变元素的净化,90% 熔盐得到回收,稀土元素净化系数大于 100,锶铯的净化系数均大于 10^[72]。

2) 专有废物处理技术

干法后处理产生的废盐渣和阳极泥等特殊废物,均属于 α 污染高放废物,需经固化处理以满足地质处置库接收要求。对于废盐渣,原子能院系统开展了陶瓷固化及脱氯-玻璃固化技术的相关研究^[73-75]。成功开发出百公斤级陶瓷固化原理样机,实现了对废盐渣达 16% 的高包容量,所制备的固化体浸出率低,表现出良好的稳定性。对于阳极泥,则通过自主设计公斤级高温真空感应熔炉,开发出铁-锆基固化配方,验证了高温熔融固化技术路线的可行性。

3) 专用分析检测技术

干法后处理以熔融盐为工作介质,其处理源项与回收产物均呈固态。为满足熔盐介质中锕系元素及重要裂变元素的定量分析要求,原子能院分析团队系统研究了 X 射线荧光(XRF)和多边界密度计在固体样品中的适用性,并积极探索了激光诱导击穿光谱(LIBS)与分子光谱法在熔盐体系内铀及稀土元素定量分析中的应用潜力^[76-77]。在干法后处理衡算技术方面,团队系统开展了基础方法研究,结合工艺流程完成了平衡区划分、物料流向解析、关键测量点布设及 MUF 仿真模拟,构建了物料存量监测仿真平台,并研发了基于 ²⁴⁴Cm 平衡的铀钚含量分析技术^[78]。

4) 干法后处理研发条件保障

为推进干法后处理技术的深入研究,原子能院建设了实验室级别铀物料试验平台和中试规模铀物料工艺试验系统,为铀行为机理研究和铀工艺参数优化提供了关键实验支撑。还集成构建了干法后处理主工艺科研样机综合试验台架,实现了从单元设备研制到全流程系统集成的重要突破,不仅为后续工程验证与热实验研究奠定了坚实基础,也为未来热实验设施的设计与建设提供了重要技术依据。

4 我国后处理技术发展思考

后处理技术路线的选择应符合国家核燃料循环策略。我国核能采用“热堆-快堆-聚变堆”三步走的发展战略,压水堆是 2030 年前我国核电发展的主力,快堆及第四代堆是核能下一步的发展方向,与快堆配套的燃料循环是快堆规模化发展的关键。在我国示范快堆发展过程中,计划选用 MOX 燃料,并协同推进具有较高增殖性能的金属燃料快堆技术。为实现该目标,首要任务是对轻水堆乏燃料进行后处理,以逐步建立工业铀储备,从而为轻水堆及快堆提供 MOX 燃料保障。与此同时,我国正致力于研发水法全分离与干法分离等先进后处理技术,以全面支撑快堆体系的可持续发展。

1) 水法后处理

水法后处理涉及复杂的物理和化学机理,反应过程具有高度非线性和相互依赖关系,工艺过程存在多种不确定因素,温度、浓度或组分比例的波动都可能显著影响最终产品质量,不同工序之间存在复杂耦合关系,参数相互影响,单一环节的波动可能影响整体工艺的稳定性。为此需要重点解决在后处理的复杂环境下,特别是涉及锕系元素的热力学、化学反应动力学、辐射化学等关键科学问题。在技术发展方面,应对现有工业化后处理工艺加以优化,增强其对高燃耗乏燃料的处理能力,还需显著提高体系的净化和分离效能,以获得符合标准的铀、钚产物。

立足于我国后处理工艺的发展需求,尤其考虑到大型后处理厂多建于内陆的现实,应在首端采用高温氧化技术实现燃料中氙的回收,遏制其扩散风险。将高温氧化挥发工艺与先进无盐二循

环技术相结合,还有助于推动工艺废水和硝酸的高效回用,显著减少二次废液产生。在主工艺方面,推进基于二甲氨基胺(DMHAN)的 APOR 流程工程应用,采用无盐还原剂与络合剂,通过两个萃取循环获取合格的铀、钚产品,这样可以缩短工艺流程并提升效率。在高放废液处理方面,应考虑对次锕系元素及镭、铯的分离,以提升处置库利用效率,降低高放废物的长期放射毒性。深化研究堆等多种来源乏燃料的后处理研发,聚力突破剪切、溶解及铀钚净化等关键技术,完成热试验验证。同时,应发展适用于 MOX 乏燃料的后处理技术,开发匹配不锈钢包壳的新型剪切装备,优化首端处理以降低不溶残留。此外,需完善临界安全调控手段,延缓试剂降解,并持续提升铀钚分离效率及产品杂质净化能力。

2) 干法后处理

干法后处理是一体化快堆闭式循环的关键环节,我国已确定熔盐电解干法后处理主工艺路线,其关键路径的原理已得到验证,工艺已打通。为匹配一体化快堆整体技术成熟度和工程进度计划,干法后处理需加快锕系分离等关键技术热实验研究和工程化研发,尽快释放技术风险,提高技术成熟度。重点关注以下几个方面。

(1) 热实验工艺研究: 尽快推动干法后处理热实验设施建设,开展干法后处理热实验工艺研究,获取铀钚等锕系元素收率、产品净化系数、重要元素走向分布等关键数据,支撑干法后处理工艺物料平衡图构建。

(2) 工程材料开发: 面向干法后处理主工艺所处的高温、强腐蚀性氯化物熔盐及氧化气氛等极端环境,需全面考量材料腐蚀对设备长期运行可靠性及产物质量的影响。围绕工程化应用需求,应加速推进适用工程材料的研发、制备及其在真实工况下的耐蚀性能评估与验证。

(3) 工程化设备研制: 工程设备需同时满足化工工艺放大要求和热室工况操作要求。为实现产能放大,需关注电流强度增大与电解槽结构放大的匹配。干法后处理工艺因其间歇性操作特性,对设备的长期稳定运行及维护便捷性提出了更高要求。在工程设备设计中,应优先采用模块化结构方案,以确保核心部件能够便捷地进行更换与吊装。

3) 人工智能赋能乏燃料后处理技术

人工智能(AI)正逐步赋能乏燃料后处理工艺,以应对复杂的多相化学反应和辐射环境挑战。借助人工智能,有望显著提升后处理流程的效率、安全性和对复杂现象的认知水平。原子能院利用机器学习方法建立的分配比模型已展示出人工智能对后处理复杂体系萃取行为的优秀预测能力,可作为未来实验设计的重要支撑。然而,当前 AI 应用于后处理流程仍面临数据获取困难、实验数据匮乏、机理耦合复杂、在线监测受限等多方面技术难点,特别是放射性强、实验周期长、数据质量难以保障,这些问题显著制约了模型的构建及准确性。未来,应着重提升 AI 模型的泛化和可解释能力,进一步加强数据采集手段和实验平台建设,融合多源数据,构建更完备的数字孪生系统,实现模型与实验装置的闭环耦合,从而持续优化后处理工艺、增强流程的自主调控和安全保障。

参考文献:

- [1] 赵远,肖朝凡,戴定,等. 国际快堆乏燃料后处理技术发展现状及趋势展望[C]//中国核科学技术进展报告(第八卷)——中国核学 2023 年学术年会论文集 第 7 册. 北京: 中国原子能出版社, 2023.
- [2] 叶国安, 蒋云清. 我国核燃料后处理技术的现状与发展[J]. 中国核工业, 2015(12): 26-30.
YE Guoan, JIANG Yunqing. Present situation and development of nuclear fuel reprocessing technology in China[J]. China Nuclear Industry, 2015(12): 26-30(in Chinese).
- [3] 叶国安, 郑卫芳, 何辉, 等. 我国核燃料后处理技术现状和发展[J]. 原子能科学技术, 2020, 54(增刊): 75-83.
YE Guoan, ZHENG Weifang, HE Hui, et al. Present situation and development of nuclear fuel reprocessing technology in China[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2020, 54(Suppl.): 75-83(in Chinese).
- [4] 张东辉, 王松平, 代智文. 我国快堆的创新与发展[J]. 核科学与工程, 2024, 44(5): 980-988.
ZHANG Donghui, WANG Songping, DAI Zhiwen. Innovation and development of fast reactors in China[J]. Nuclear Science and Engineering, 2024, 44(5): 980-988(in Chinese).
- [5] ANDERSSON D A, STANEK C R, MATTHEWS C, et al. The past, present, and future of nuclear fuel[J]. MRS Bulletin, 2023, 48(11): 1154-1162.

- [6] 李金英, 石磊, 胡彦涛. 我国乏燃料后处理大厂建设的几点思考[J]. 核化学与放射化学, 2011, 33(4): 204-210.
LI Jinying, SHI Lei, HU Yantao. Some considerations on the construction of a spent nuclear fuel reprocessing plant in China[J]. Journal of Nuclear and Radiochemistry, 2011, 33(4): 204-210(in Chinese).
- [7] JIANG T, NING S, YU T, et al. Separation of minor actinides from high-level liquid waste using novel silica-based butyl-BTP adsorbents[J]. *Toxics*, 2022, 10(12): 741.
- [8] 张生栋, 严叔衡. 乏燃料后处理湿法工艺技术基础研究发展现状[J]. 核化学与放射化学, 2015, 37(5): 266-275.
ZHANG Shengdong, YAN Shuheng. Progress in research of hydrometallurgical processes in spent fuel reprocessing[J]. Journal of Nuclear and Radiochemistry, 2015, 37(5): 266-275(in Chinese).
- [9] 刘海军, 陈晓丽. 国内外乏燃料后处理技术研究现状[J]. 节能技术, 2021, 39(4): 358-362.
LIU Haijun, CHEN Xiaoli. Research status of spent fuel reprocessing technology at home and abroad[J]. *Energy Conservation Technology*, 2021, 39(4): 358-362(in Chinese).
- [10] 韦悦周. 国外核燃料后处理化学分离技术的研究进展及考察[J]. 化学进展, 2011, 23(7): 1272-1288.
WEI Yuezhou. Progress and discussion on chemical separation technologies for nuclear fuel reprocessing developed abroad[J]. Progress in Chemistry, 2011, 23(7): 1272-1288(in Chinese).
- [11] 王辉, 刘方. 国外乏燃料后处理 PUREX 流程简析[C]//中国核科学技术进展报告(第五卷)——中国核学会2017年学术年会论文集第6册(核化工分卷、核化学与放射化学分卷、辐射物理分卷). 北京: 中国原子能出版社, 2017.
- [12] JONES S, BOXALL C, MAHER C, et al. A review of the reprocessability of uranium nitride based fuels[J]. *Progress in Nuclear Energy*, 2023, 165: 104917.
- [13] MOMOTOV V N, ERIN E A, VOLKOV A Y, et al. Dissolution of mixed nitride uranium-plutonium spent nuclear fuel[J]. *Radiochemistry*, 2023, 65(3): 311-322.
- [14] BOYARINTSEV A V, STEPANOV S I, KOSTIKOVA G V, et al. Reprocessing of simulated voloxidized uranium-oxide SNF in the CARBEX process[J]. *Nuclear Engineering and Technology*, 2019, 51(7): 1799-1804.
- [15] 陈靖, 文明芬. 高温气冷堆乏燃料后处理首端过程[C]//中国化学会第29届学术年会摘要集. 北京: 中国化学会, 2014.
- [16] 李辉波, 何辉, 叶国安, 等. 高温氧化挥发法——一种先进乏燃料后处理的首端工艺技术[J]. 原子能科学技术, 2015, 49(5): 780-786.
LI Huibo, HE Hui, YE Guoan, et al. An advanced head-end process for reprocessing of spent fuel by high temperature vol-oxidation treatment[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2015, 49(5): 780-786(in Chinese).
- [17] 赵云峰, 陈靖. 高温气冷堆乏燃料后处理首端技术研究进展[J]. 原子能科学技术, 2008, 42(5): 416-422.
ZHAO Yunfeng, CHEN Jing. Progress in head-end reprocessing of spent fuels from high-temperature gas-cooled reactor[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2008, 42(5): 416-422(in Chinese).
- [18] 谈存敏, 陈德胜, 王洁茹, 等. 模拟乏燃料的氧化挥发首端工艺研究[J]. 核化学与放射化学, 2021, 43(5): 387-396.
TAN Cunmin, CHEN Desheng, WANG Jieru, et al. Head-end process of simulated spent fuels by vol-oxidation treatment[J]. *Journal of Nuclear and Radiochemistry*, 2021, 43(5): 387-396(in Chinese).
- [19] DRAIN F, EMIN J L, VINOCHÉ R, et al. COEX-process: Cross-breeding between innovation and industrial experience[C]//WM Symposia. USA: [s. n.], 2008.
- [20] SÁNCHEZ-GARCÍA I, GALÁN H, NÚÑEZ A, et al. Development of a gamma irradiation loop to evaluate the performance of a EURO-GANEX process[J]. *Nuclear Engineering and Technology*, 2022, 54(5): 1623-1634.
- [21] VERLINDEN B, WILDEN A, van HECKE K, et al. Solvent optimization studies for a new EURO-GANEX process with 2,2'-oxybis(N,N-di-n-decylpropanamide) (mT-DDGA) and its radiolysis products[J]. *Solvent Extraction and Ion Exchange*, 2023, 41(1): 59-87.
- [22] LYSEID-AUTHEN T, WILDEN A, SCHNEIDER D, et al. Batch flowsheet test for a GANEX-type process: The CHALMEX FS-13 process[J]. *Solvent Extraction and Ion Exchange*, 2022, 40(3): 189-202.
- [23] KUMARI I, KUMAR B V R, KHANNA A. A review on UREX processes for nuclear spent fuel reprocessing[J]. *Nuclear Engineering and Design*, 2020, 358: 110410.
- [24] BARROS G, dos SANTOS A A C, VASCONCELOS V, et al. Fuel breeding and waste burnup capabilities of an accelerator-driven system using thorium and reprocessed fuels[J]. *International Journal of Energy Research*, 2021, 45(8): 11882-11891.
- [25] FAGHIHI F, MIRVAKILI S M, SAFAEI S, et al. Neutronics and sub-channel thermal-hydraulics analysis of the Iranian VVER-1000 fuel bundle[J]. *Progress in Nuclear Energy*, 2016, 87: 39-46.

- [26] ABDEL-LATIF S H, WASFY S A, REFAEY A M. A study of VVER-1000 fuel rod integrity during LOFA[J]. *Progress in Nuclear Energy*, 2023, 159: 104650.
- [27] TAKATA T, KOMA Y, SATO K, et al. Conceptual design study on advanced aqueous reprocessing system for fast reactor fuel cycle[J]. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 2004, 41(3): 307-314.
- [28] SANO Y, MIURA S, NAKAHARA M, et al. Plutonium and other actinides behaviour in NEXT process[J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2007, 444: 397-403.
- [29] NAKAHARA M, SANO Y, NOMURA K, et al. Uranium, plutonium and neptunium co-recovery with irradiated fast reactor MOX fuel by single cycle extraction process, DEN/UCCAP, BP 17171, F-30207[R]. France: CEA, 2008.
- [30] NAKAHARA M, SANO Y, KOMA Y, et al. Actinides recovery by solvent extraction in NEXT process[J]. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 2005. doi: 10.1080/18811248.2007.9711297.
- [31] MINCHER B J, SCHMITT N C, CASE M E. A TRUEX-based separation of americium from the lanthanides[J]. *Solvent Extraction and Ion Exchange*, 2011, 29(2): 247-259.
- [32] CHAMBERLAIN D B, CONNER C, HUTTER J C, et al. TRUEX processing of plutonium analytical solutions at Argonne National Laboratory[J]. *Separation Science and Technology*, 1997, 32(1/2/3/4): 303-326.
- [33] WEAVER B, KAPPELMANN F A. Preferential extraction of lanthanides over trivalent actinides by monoacidic organophosphates from carboxylic acids and from mixtures of carboxylic and aminopolyacetic acids[J]. *Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry*, 1968, 30(1): 263-272.
- [34] TACHIMORI S, SASAKI Y, MORITA Y, et al. Recent progress of partitioning process in JAERI: Development of amide-based artist process[C]//OECD-NEA Proceedings of the Jeju IEM Symposium. France: OECD-NEA, 2001.
- [35] MALMBECK R, COURSON O, PAGLIOSA G, et al. Partitioning of minor actinides from HLLW using the DI-AMEX process, Part 2: Hot continuous counter-current experiment[J]. *Radiochimica Acta*, 2000, 88(12): 865-872.
- [36] CHANG Y I. The integral fast reactor[J]. *Nuclear Technology*, 1989, 88(2): 129-138.
- [37] TILL C E, CHANG Y I, HANNUM W H. The integral fast reactor—An overview[J]. *Progress in Nuclear Energy*, 1997, 31(1/2): 3-11.
- [38] BENEDICT R W. EBR-II spent fuel treatment demonstration project[J]. *Transactions of the American Nuclear Society*, 1997, 77: 75-76.
- [39] U. S. Department of Energy. Record of decision for the treatment and management of sodium-bonded spent nuclear fuel[J]. *Federal Register*, 2000, 65: 56565-56570.
- [40] VADEN D, LI S X, WESTPHAL B R, et al. Engineering-scale liquid cadmium cathode experiments[J]. *Nuclear Technology*, 2008, 162(2): 124-128.
- [41] HERRMANN S D, LI S X. Separation and recovery of uranium metal from spent light water reactor fuel via electrolytic reduction and electrorefining[J]. *Nuclear Technology*, 2010, 171(3): 247-265.
- [42] ACKERMAN J P, JOHNSON T R. New high-level waste management technology for IFR pyroprocessing wastes, ANL/CMT/CP-78666; CONF-930913-31[R]. USA: Argonne National Laboratory, 1993.
- [43] HERRMANN S D, LI S X, SIMPSON M F, et al. Electrolytic reduction of spent nuclear oxide fuel as part of an integral process to separate and recover actinides from fission products[J]. *Separation Science and Technology*, 2006, 41(10): 1965-1983.
- [44] HERRMANN S D, LI S X, SELL D A, et al. Electrolytic reduction of spent nuclear oxide fuel—Effects of fuel form and cathode containment materials on bench-scale operations[C]//Proceedings of Global 2007. [S. l.]: [s. n.], 2007.
- [45] LI S X, HERRMANN S D, GOFF K M, et al. Actinide recovery experiments with bench-scale liquid cadmium cathode in real fission product-laden molten salt[J]. *Journal of Nuclear Technology*, 2009, 165(2): 190-199.
- [46] HERRMANN S D, LI S X, WESTPHAL B R. Separation and recovery of uranium and group actinide products from irradiated fast reactor MOX fuel via electrolytic reduction and electrorefining[J]. *Separation Science and Technology*, 2012, 47: 2044-2059.
- [47] KIKOIN K, DEM'YANOVICH M A, IVANOV P M, et al. Pilot plant reprocessing of the BOR-60 spent uranium fuel by using fluoride volatility method, IAEA-AG-63-21[R]. Vienna: IAEA, 1976.
- [48] KOFUJI H, SATO F, MYOCHIN M, et al. MOX co-deposition tests at RIAR for SF reprocessing optimization [J]. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 2007, 44(3): 349-353.
- [49] Pyrochemical separations in nuclear applications—A status report[R]. France: OECD-NEA, 2004.

- [50] COLLINS E D, DELCUL G D, SPENCER B B, et al. State-of-the-art report on the progress of nuclear fuel cycle chemistry, NEA-7267[R]. France: OECD-NEA, 2018.
- [51] HAUBENREICH P N, ENGEL J R. Experience with the molten-salt reactor experiment[J]. *Nuclear Applications and Technology*, 1970, 8(2): 118-136.
- [52] ZEMLYANUKHIN V I, NIKIFOROV A S, NOVOSELOV G P, et al. Present status of investigations on reprocessing of nuclear fuel elements of nuclear power plants with fast reactors[J]. *Radiokhimiya*, 1981, 23(5): 743-752.
- [53] TROTSSENKO N M, LEBEDEV O G, CHUVILIN D Y. Mobile systems for fluoride reprocessing of spent nuclear fuel[J]. *Atomic Energy*, 2017, 122(4): 257-262.
- [54] FUKASAWA T, HOSHINO K, WATANABE D, et al. Application of fluoride volatility method to the spent fuel reprocessing[J]. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 2020, 57(1): 49-56.
- [55] UHLÍŘ J, MAREČEK M, JAN Š. Current progress in R&D of fluoride volatility method[J]. *Procedia Chemistry*, 2012, 7: 110-115.
- [56] AMANO O. New reprocessing technology, FLUOREX, for LWR fuel cycle[C]//Proceedings of Global 2001. [S. l.]: [s. n.], 2001.
- [57] IM K, LEE M, WOO S M. Technical overview of pyroprocessing and policy considerations[J]. *Korean Journal of Chemical Engineering*, 2024, 41(10): 2881-2899.
- [58] KO W I, LEE H H, CHOI S, et al. Preliminary conceptual design and cost estimation for Korea Advanced Pyroprocessing Facility Plus (KAPF+)[J]. *Nuclear Engineering and Design*, 2014, 277: 212-224.
- [59] INOUE T, KOYAMA T, ARAI Y. State of the art of pyroprocessing technology in Japan[J]. *Energy Procedia*, 2011, 7: 405-413.
- [60] KOYAMA T, SAKAMURA Y, IIZUKA M, et al. Development of pyro-processing fuel cycle technology for closing actinide cycle[J]. *Procedia Chemistry*, 2012, 7: 772-778.
- [61] GLATZ J P, BIRGIT C, RIKARD M, et al. Advanced reprocessing research at ITU[R]. [S. l.]: [s. n.], 2001.
- [62] LEWIN R G, HARRISON M T. International developments in electrorefining technologies for pyrochemical processing of spent nuclear fuels[M]//Reprocessing and Recycling of Spent Nuclear Fuels. USA: Woodhead Publishing, 2015.
- [63] LACQUEMENT J, BOUSSIER H, LAPLACE A, et al. Potentialities of fluoride-based salts for specific nuclear reprocessing: Overview of the R&D program at CEA[J]. *Journal of Fluorine Chemistry*, 2009, 130(1): 18-21.
- [64] NATARAJAN R. Reprocessing of spent nuclear fuel in India: Present challenges and future programme[J]. *Progress in Nuclear Energy*, 2017, 101: 118-132.
- [65] XIAO Songtao, LI Li, YE Guoan, et al. An improvement in APOR process, I: Uranium/plutonium separation process[J]. *Nuclear Science and Techniques*, 2015, 26(4): 123-128.
- [66] 李小孩, 叶国安, 何辉, 等. APOR 流程 1B 槽中铀的走向行为研究[J]. *原子能科学技术*, 2010, 44(2): 129-137.
LI Xiaogai, YE Guoan, HE Hui, et al. Study on neptunium behavior in 1B tank of APOR process[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2010, 44(2): 129-137(in Chinese).
- [67] 王辉, 魏艳, 刘方, 等. APOR 后处理流程 1B 槽中铀的走向[J]. *核化学与放射化学*, 2012, 34(2): 109-113.
WANG Hui, WEI Yan, LIU Fang, et al. Technetium behavior in 1B tank of APOR reprocessing process[J]. *Journal of Nuclear and Radiochemistry*, 2012, 34(2): 109-113(in Chinese).
- [68] 王建晨, 陈靖. 我国高放废液中铯分离研究进展[J]. *核化学与放射化学*, 2019, 41(1): 27-39.
WANG Jianchen, CHEN Jing. Research progress on cesium separation from high-level liquid waste in China[J]. *Journal of Nuclear and Radiochemistry*, 2019, 41(1): 27-39(in Chinese).
- [69] 林如山, 何辉, 唐洪彬, 等. 我国乏燃料干法后处理技术研究现状与发展[J]. *原子能科学技术*, 2020, 54(增刊): 115-125.
LIN Rushan, HE Hui, TANG Hongbin, et al. Research status and development of dry reprocessing technology for spent fuel in China[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2020, 54(Suppl.): 115-125(in Chinese).
- [70] 张磊. 基于金属铈还原的熔盐电解过程及相关机理研究[D]. 北京: 中国原子能科学研究院, 2020.
- [71] 刘雅兰. LiCl-KCl 熔盐体系中钍、铀及镧系元素的铝、锌合金化分离研究[D]. 北京: 中国原子能科学研究院, 2015.
- [72] 伍思达. LiCl-KCl 熔盐中镧系和铈、铈裂片元素净化工艺基础研究[D]. 北京: 中国原子能科学研究院, 2022.
- [73] 刘雅兰, 柴之芳, 石伟群. 干法后处理含盐废物陶瓷固化技术研究进展[J]. *无机材料学报*, 2020, 35(3): 271-276.
LIU Yalan, CHAI Zhifang, SHI Weiqun. Research progress on ceramic solidification of salt-bearing waste from pyroprocessing[J]. *Journal of Inorganic Materials*,

- 2020, 35(3): 271-276(in Chinese).
- [74] 董要港. 熔盐核废物脱氯处理及玻璃固化研究[D]. 武汉: 武汉理工大学, 2022.
- [75] 乔延波, 孙亚平, 钱正华, 等. 熔盐堆废物氟磷灰石玻璃陶瓷固化体的制备与性能研究[C]//2015 年中国核学会核化学与放射化学分会论文集. 北京: 中国核学会, 2015: 115-116.
- [76] 康晓燕, 朱海巧, 左臣, 等. 激光诱导击穿光谱在乏燃料后处理中的应用研究进展[J]. 冶金分析, 2024, 44(5): 38-46.
- KANG Xiaoyan, ZHU Haiqiao, ZUO Chen, et al. Research progress on application of laser-induced breakdown spectroscopy in spent fuel reprocessing[J]. Metallurgical Analysis, 2024, 44(5): 38-46(in Chinese).
- [77] 白雪, 常志远. 乏燃料干法后处理研究中的分析方法[J]. 核化学与放射化学, 2016, 38(3): 145-153.
- BAI Xue, CHANG Zhiyuan. Analytical methods in dry reprocessing research of spent fuel[J]. Journal of Nuclear and Radiochemistry, 2016, 38(3): 145-153(in Chinese).
- [78] ZHAO Jinlei, HE Lixia, ZHAO Haocheng, et al. A mathematical model design for Pu content analyzed by ^{244}Cm in spent fuel of fast reactors[J]. Journal of Nuclear Engineering and Radiation Science, 2025, 11(3): 1-8.