

На правах рукописи



Гусев Владислав Евгеньевич

**Каскадные схемы для обогащения регенерированного
урана при его многократном рецикле в топливных
циклах перспективных энергетических реакторов**

Специальность 01.04.14 —
«Теплофизика и теоретическая теплотехника»

Автореферат
диссертации на соискание учёной степени
кандидата физико-математических наук

Москва — 2023

Работа выполнена в Национальном исследовательском ядерном университете «МИФИ» (НИЯУ МИФИ).

Научный руководитель: кандидат физико-математических наук, доцент
Сулаберидзе Георгий Анатольевич

Консультанты: кандидат физико-математических наук
Смирнов Андрей Юрьевич

кандидат технических наук
Невиница Владимир Анатольевич

Официальные оппоненты: **Фамилия Имя Отчество**,
доктор физико-математических наук, профессор,
Не очень длинное название для места работы,
старший научный сотрудник

Фамилия Имя Отчество,
кандидат физико-математических наук,
Основное место работы с длинным длинным
длинным длинным названием,
старший научный сотрудник

Ведущая организация: Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего профессионального образования с длинным длинным длинным длинным названием

Защита состоится DD mmmmmmmmm YYYU г. в XX часов на заседании диссертационного совета Д123.456.78 при Название учреждения по адресу: Адрес.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке НИЯУ МИФИ.

Отзывы на автореферат в двух экземплярах, заверенные печатью учреждения, просьба направлять по адресу: Адрес, ученому секретарю диссертационного совета Д123.456.78.

Автореферат разослан DD mmmmmmmmm YYYU года.

Телефон для справок: +7 (0000) 00-00-00.

Ученый секретарь
диссертационного совета
Д123.456.78,
д-р физ.-мат. наук

Фамилия Имя Отчество

Общая характеристика работы

Актуальность темы.

Подавляющее большинство из ≈ 500 эксплуатируемых и сооружаемых ядерных энергоблоков представляют собой легководные реакторы на тепловых нейтронах [1], работающие на ядерном топливе из низкообогащенного урана (НОУ). Работа каждого из энергоблоков создает необходимость в обеспечении его топливными ресурсами и выборе способа обращения с выгруженным из него облученным ядерным топливом (ОЯТ).

Основным материалом для производства топлива реакторов на тепловых нейтронах является природный уран, обогащаемый в каскадах газовых центрифуг. Но основная часть его мировых запасов (51 из 50 Мт) можно добыть только при высоких операционных затратах (>260 \$/кг), которые оцениваются как неконкурентоспособные для ядерной генерации по сравнению с другими источниками [2–4].

Еще одним вызовом для ядерной промышленности является обращение с ОЯТ, общемировая масса которого превышает 400 килотонн и прирастает ежегодно на ≈ 11 килотонн [5; 6]. При этом, основным материалом облученного ядерного топлива является уран, составляющий $\approx 90\text{--}95\%$ его массы, за вычетом конструкционных материалов, концентрация изотопа ^{235}U в котором, как правило, выше, чем в природном уране, что делает целесообразным его повторное использование [7]. Его вовлечение в производство ядерного топлива реакторов на тепловых нейтронах может позволить существенно сократить объем захоронения радиоактивных отходов и снизить потребности в природном уране.

Вовлечение регенерата сопряжено с рядом проблем, так как при облучении ядерного топлива в активной зоне реактора образуются искусственные изотопы урана, в первую очередь, ^{232}U и ^{236}U . Кроме того, как правило, возрастает и концентрация природного изотопа ^{234}U . Изотоп ^{232}U опасен тем, что является родоначальником цепочки распадов, среди дочерних продуктов которых есть, в частности, ^{208}Tl , представляющий собой источник жесткого гамма-излучения, обуславливающего высокий уровень радиоактивного фона. Поэтому при производстве уранового топлива существуют нормативные ограничения на допустимое содержание ^{232}U в низкообогащенном уране. На текущий момент в РФ допустимые концентрации (в мас. долях) ^{232}U в НОУ не должны превышать предельно допустимых значений: $2 \cdot 10^{-7}\%$ или $5 \cdot 10^{-7}\%$. Проблема, связанная с изотопом ^{236}U состоит в том, что он является паразитным поглотителем нейтронов в ядерном топливе и, следовательно, отрицательно воздействует на реактивность реактора и глубину выгорания топлива. Для компенсации отрицательного влияния ^{236}U и получения заданных ядерно-физических характеристик реактора нужно повышать среднее начальное обогащение

топлива по ^{235}U . При этом, концентрации изотопов ^{232}U , ^{234}U и ^{236}U (четных изотопов), возрастают при обогащении регенерированного урана в ординарных (трехпоточных) каскадах газовых центрифуг, используемых для обогащения природного урана. Фактически это означает необходимость развития способов обогащения регенерированного урана с учетом требований к изотопному составу производимого обогащенного продукта, отвечающих действующим техническим условиям на товарный низкообогащенный уран.

Настоящая диссертационная работа посвящена теоретическому обоснованию эффективных способов решения второй проблемы – обогащения регенерированного урана. Перейдем к анализу проблем, возникающих в ее контексте для технологий разделения изотопов. На сегодняшний день предложен ряд технических решений, позволяющих решить задачу обогащения регенерированного урана до концентраций ^{235}U , требуемых в современных топливных циклах энергетических реакторов на тепловых нейтронах (в частности отечественных ВВЭР), при одновременном выполнении принятых ограничений на содержание ^{232}U в ядерном топливе и реализации необходимого дообогащения регенерата по ^{235}U для компенсации негативного влияния ^{236}U . Тем не менее, далеко не все из них способны решить задачу обогащения регенерата с одновременной коррекцией его изотопного состава в условиях, когда исходное содержание четных изотопов может существенно меняться, например, в сторону увеличения. Последнее обстоятельство особо важно в контексте рассмотрения перспективных реакторов, имеющих относительно высокую глубину выгорания топлива и, как следствие, состав ОЯТ которых может характеризоваться повышенным содержанием четных изотопов. Помимо этого, необходимо учитывать, что замыкание топливного цикла реакторов на тепловых нейтронах подразумевает многократное обращение урана в топливе, что будет обуславливать дополнительное накопление четных изотопов в регенерате от цикла к циклу, учитывая, что при таком подходе исходное топливо на каждом цикле будет содержать четные изотопы еще до загрузки в реактор.

Очевидно, что вопросы коррекции изотопного состава регенерированного урана лежат в области теории и практики разделения изотопных смесей, что делает актуальной для разделительной науки задачу поиска эффективных способов обогащения регенерата урана с одновременной коррекцией его изотопного состава в условиях развития тенденции повышения глубины выгорания топлива и многократного использования урана в нем (многократный рецикл урана). В дополнение к этому важен выбор оптимальной каскадной схемы, которая должна обеспечить максимально эффективное использование ресурса регенерированного урана при минимальных затратах работы разделения.

Для теоретического обоснования возможных способов решения указанных задач целесообразно использовать теорию каскадов для разделения

многокомпонентных изотопных смесей, предлагающую модели массопереноса компонентов в многоступенчатых разделительных установках для анализа ключевых закономерностей изменения интегральных характеристик таких установок в процессе разделения изотопных смесей, включая и смесь регенерированного урана, с целью поиска оптимальных условий такого процесса.

Целью диссертационной работы является теоретическое обоснование эффективных способов обогащения регенерированного урана в каскадах центрифуг при его многократном использовании в регенерированном ядерном топливе для реакторов на тепловых нейтронах.

Для достижения поставленной цели решены следующие **задачи**:

1. Проанализированы предложенные к текущему моменту способы обогащения регенерированного урана с учетом ограничений на концентрации четных изотопов в товарном НОУ. Теоретически оценена возможность их применения для решения задачи оптимального использования поступающей в обогащение массы регенерированного урана;
2. Выявлены физические ограничения решения задачи обогащения регенерата произвольного изотопного состава в одиночном каскаде и простых модификациях двойного каскада при одновременном выполнении условий на концентрации изотопов ^{232}U , ^{234}U и ^{236}U в получаемом продукте – низкообогащенном уране, и расходовании заданной массы регенерата на единицу получаемого продукта;
3. Физически обоснованы принципы построения двойных каскадов, позволяющих корректировать изотопный состав регенерата по концентрациям изотопов ^{232}U , ^{234}U и ^{236}U с одновременным расходом максимального количества подлежащего обогащению регенерата при различных исходных концентрациях четных изотопов в нем. Разработаны и апробированы оригинальные методики расчета и оптимизации предложенной модификации двойного каскада. Показана возможность использования предложенной схемы при различных внешних условиях, а также различных концентрациях четных изотопов в исходном регенерированном уране;
4. Обоснован способ эффективной «утилизации» загрязненной четными изотопами фракции, возникающей в двойных каскадах при очистке от ^{232}U , с учетом полной или частичной подачи данной фракции: а) в третий каскад с предварительным перемешиванием ее с природным, обедненным и/или низкообогащенным ураном; б) в отдельный двойной каскад, осуществляющий наработку низкообогащенного урана для последующей топливной кампании реактора;
5. Изучены физические закономерности изменения изотопного состава регенерата урана в зависимости от выбора параметров

модифицированного двойного каскада при обогащении регенерированного урана с различным исходным содержанием четных изотопов в питающей смеси.

Научная новизна:

1. Впервые предложены оригинальные методики расчета различных модификаций двойных каскадов, позволяющие корректировать изотопный состав регенерата по концентрациям изотопов ^{232}U , ^{234}U и ^{236}U с одновременным расходом всего подлежащего обогащению регенерата при различных исходных концентрациях четных изотопов в нем и различных внешних условиях;
2. Обоснованы физические принципы построения тройных и двойных каскадных схем для «утилизации» фракции, загрязненной четными изотопами при обогащении регенерированного урана в двойных каскадных схемах;
3. Выполнены оригинальные исследования по изучению физических закономерностей изменения изотопного состава регенерата от конфигураций каскадных схем (под конфигурацией каскада понимаем его технологические параметры: количества ступеней в обеднительной и обогатительной части, номера ступеней с подачей питающих смесей, а также функцию распределения потока по длине каскада) и интегральных характеристик модифицированных двойных и тройных каскадах при обогащении регенерированного урана с различным исходным содержанием четных изотопов;
4. Проанализированы различные подходы к утилизации высокоактивного «нештатного» отхода, образующегося в процессе обогащения регенерированного урана в двойном каскаде.

Практическая значимость

1. Разработаны модификации двойных и тройных каскадов, позволяющие обогащать регенерированный уран с одновременным выполнением ограничений на концентрации четных изотопов и вовлечением требуемой массы регенерата;
2. Предложенные методики оптимизации параметров каскадных схем двойного и тройного каскадов позволяют находить наиболее эффективные с точки зрения таких критериев, как расход работы разделения, расход природного урана, степень извлечения ^{235}U , наборы их параметров, позволяющие осуществлять возврат всей массы регенерированного урана в цикл и одновременно удовлетворять ограничения по концентрациям четных изотопов. Предложенные методики оптимизации систем каскадов могут быть адаптированы к расчету и оптимизации параметров различных вариантов каскадных схем для многокомпонентных смесей неурановых элементов;

3. Полученные результаты могут быть использованы в расчетных группах на предприятиях и организациях, связанных как с проектированием и построением разделительных каскадов, так и непосредственным производством изотопной продукции (АО «Уральский электрохимический комбинат», АО «Сибирский химический комбинат», АО «ТВЭЛ», АО «Восточно-Европейский головной научно-исследовательский и проектный институт энергетических технологий», АО «ПО «ЭХЗ» и др.);
4. Предложенные методики расчета могут лечь в основу имитационных моделей топливного цикла реакторов на тепловых нейтронах, использующих регенерированное урановое топливо.

Методология и методы исследования. Исследование проводит систематизацию научно-технической литературы, посвященной заявленной теме. Применены подходы, известные в современной теоретической физике, и в частности, в теории разделения изотопов в каскадах. В работе теоретически обоснованы принципы построения анализируемых каскадов, разработаны программные коды расчета и оптимизации их параметров для различных постановок задач, проведено их компьютерное моделирование. При разработке программных кодов использована теория модельных каскадов – квазиидеального каскада и его разновидности R -каскада, для которого выполняется условие несмешивания относительных концентраций пары выбранных компонентов. При подготовке программных кодов использованы современные программные средства языков программирования Julia и Python и подключаемых библиотек, таких как NLSolve.jl, Optim.jl, SciPy, предназначенных для решения систем нелинейных уравнений и оптимизационных процедур, Matplotlib и PGFPlots.jl для визуализации результатов.

Основные положения, выносимые на защиту:

1. Физико-математические модели, методики расчета и оптимизации модифицированных двойных и тройных каскадных схем для обогащения регенерата урана с одновременным выполнением условий на концентрации четных изотопов и максимальным вовлечением исходного материала;
2. Результаты анализа физических закономерностей массопереноса компонентов смеси регенерированного урана в ординарном каскаде, позволяющие однозначно определить условия при которых возможно/невозможно получение необходимого количества конечного продукта на основе регенерированного урана различного исходного состава путем обогащения в одиночном каскаде;
3. Практические рекомендации по «утилизации» загрязненной четными изотопами фракции, получаемой в двойных каскадах при обогащении регенерата.

Достоверность. Надежность, достоверность и обоснованность научных положений и выводов, сделанных в диссертации, следует из корректности постановки задач, физической обоснованности применяемых приближений, использования методов, ранее примененных в аналогичных исследованиях, взаимной согласованности результатов. Корректность результатов вычислительных экспериментов гарантируется тестами и операторами проверки соответствия ограничениям, верифицирующими строгое выполнение заданных условий и соблюдение условий сходимости балансов (массовых и покомпонентных).

Апробация работы. Результаты, изложенные в материалах диссертации, доложены и обсуждены на конференциях:

- V Международная научная конференция молодых ученых, аспирантов и студентов «Изотопы: технологии, материалы и применение», г. Томск, Россия, 2018;
- VI Международная научная конференция молодых ученых, аспирантов и студентов «Изотопы: технологии, материалы и применение», г. Томск, Россия, 2020;
- 15th International Workshop on Separation Phenomena in Liquids and Gases (SPLG-2019), г. Уси, Китай, 2019;
- 16th International Workshop on Separation Phenomena in Liquids and Gases (SPLG-2021), г. Москва, Россия, 2021;
- XVII International conference and School for young scholars “Physical chemical processes in atomic systems”, г. Москва, Россия, 2020;

По теме диссертации опубликовано 9 печатных работ, в том числе 5 в изданиях, индексируемых в международной системе цитирования Scopus. Автор принимал участие в следующих проектах, поддержанных Российским научным фондом (РНФ), в которых были использованы некоторые из результатов диссертационной работы:

- Разработка каскадных схем для эффективного получения изотопомодифицированных материалов для топливных циклов перспективных ядерных реакторов и других приложений (2018 – 2020 гг.);
- Оптимизация стационарного и нестационарного массопереноса в многокаскадных схемах для получения стабильных изотопов и обогащения регенерированного урана(2020 – 2022 гг.).

Личный вклад. Автор принимал участие разработке каскадных схем, написании программных кодов, проведении вычислительных экспериментов, а также в обработке и в анализе результатов численных экспериментов.

Содержание работы

Во введении обоснована актуальность разработки каскадных схем для обогащения регенерированного урана, вытекающая из задач долгосрочного устойчивого развития ядерной энергетики, а также из существующих на сегодня ограничений/недостатков ранее предложенных схем. Сформулирована цель исследования, состоящая в теоретическом обосновании эффективных способов обогащения регенерированного урана в каскадах центрифуг при его многократном использовании в регенерированном ядерном топливе для реакторов на тепловых нейтронах. Помимо этого во введении сформулированы научная новизна и практическая значимость выполненной работы, изложены основные положения, выносимые на защиту, обоснована достоверность полученных в работе результатов и представлены сведения об их апробации.

Первая глава посвящена критическому анализу ранее предложенных каскадных схем обогащения регенерированного урана, а также краткому обзору источников по промышленному опыту обогащения регенерата урана. Проанализирована проблема четных изотопов $^{232,234,236}\text{U}$ в задаче обогащения регенерированного урана с точки зрения разделительных технологий. Известно, что изотопы $^{232,234}\text{U}$ ухудшают радиационные характеристики ядерного топлива (ЯТ), содержание ^{232}U в НОУ-продукте ограничено мерами радиационной безопасности персонала на разделительном и фабрикационном производстве значениями 2·10⁻⁷% или 5·10⁻⁷%, предельно допустимое отношение $\frac{C_{234,P}}{C_{235,P}} = 0,02$. Изотоп ^{236}U вносит «паразитный» захват тепловых нейтронов в ЯТ, приводя к необходимости повышения его обогащения по ^{235}U , что увеличивает затраты работы разделения в цикле.

Описан процесс многократного использования (рецикла) урана в топливе реакторов на тепловых нейтронах (рис. 1) и подлежащие рассмотрению в диссертационной работе его стадии, а именно: обогащение регенерированного урана в каскадах центрифуг. Одним из факторов, осложняющих многократный рецикл урана является рост концентраций чётных изотопов в процессе рецикла, что требует модификации известных каскадных схем, поскольку концентрации чётных изотопов могут превышать допустимые пределы в несколько раз, что для примера проиллюстрировано взятыми из открытых источников составами регенерированного урана, прошедшего несколько рециклов (табл. 1). Также при реализации схемы рис. 1 подразумевают, что при производстве свежего топлива для реактора используют весь выделенный из ОЯТ этого же реактора регенерат, что проиллюстрировано на схеме рис. 2. Такой подход призван обеспечить: (1) минимизацию потерь ^{235}U в топливном цикле;

(2) максимально эффективно использовать потенциал ОЯТ для воспроизводства топлива; (3) исключить нежелательное накопление регенерата в процессе его многократного рецикла.

Таблица 1 — Изотопные составы регенерата различных циклов.

Состав №	Массовое число	232	233	234	235	236
1	C, %	$6,62 \cdot 10^{-7}$	$1,19 \cdot 10^{-6}$	$3,28 \cdot 10^{-2}$	1,43	0,9932
2	C, %	$1,03 \cdot 10^{-6}$	$1,3 \cdot 10^{-6}$	$3,91 \cdot 10^{-2}$	1,07	1,45

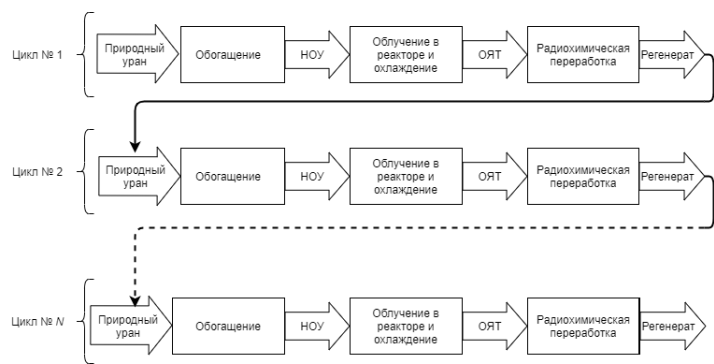


Рис. 1 — Схема многократного рециклирования урана

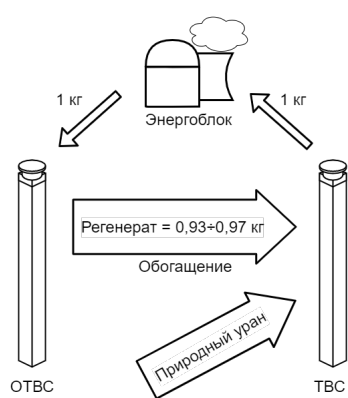


Рис. 2 — Схема замыкания урановой топливной составляющей

Приводится формулировка задачи обогащения регенерата, которой посвящена диссертационная работа: получение заданной массы товарного НОУ требуемого обогащения по ²³⁵U из заданной массы сырьевого регенерата урана (в том числе многократно рециклированного) с одновременным выполнением ограничений на концентрации четных изотопов.

Показана невозможность использования ординарного (трехпоточно-го) каскада (рис. 3) для решения сформулированной выше задачи в условиях многократного рецикла урана. Такой каскад можно использовать только для обогащения составов регенерата, в которых исходные концентрации четных изотопов меньше (на порядок или более), чем их допустимые пределы в товарном НОУ, что заведомо невыполнено при многократном рецикле урана в современных реакторах на тепловых нейтронах (табл. 1).

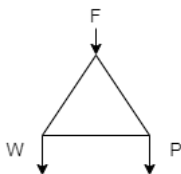


Рис. 3 — Схема ординарного трехпоточного каскада. F — поток питания; P — поток отбора; W — поток отвала.

Анализ ранее предложенных способов обогащения регенерата позволяет условно разделить рассмотренные способы на 3 типа: (1) схемы с разбавлением четных изотопов; (2) схемы с отделением четных изотопов; (3) «гибридные» схемы (комбинируют первые два способа). Показано, что лишь некоторые из известных способов потенциально могут решить поставленную задачу обогащения регенерата в условиях варьирования содержания чётных изотопов в обогащаемом регенерате. Это делает необходимым дальнейший поиск каскадных схем для решения задачи, которые можно применять для различных исходных составов регенерированного урана, а также в случаях возможного изменения внешних условий задачи.

Во второй главе приведены основные понятия и определения теории разделения изотопов в каскадах. Введены понятия разделительного элемента, разделительной ступени, разделительного каскада и возможных вариантов соединения ступеней в каскаде. Изложены основные сведения, необходимые для моделирования разделения многокомпонентных изотопных смесей в каскадах, описаны модели «квазиидеального» каскада, как частного случая симметричного противоточного каскада, и R -каскада. Рассмотрены основные варианты постановок задач расчёта таких каскадов и алгоритмы их решения, которые будут использованы в 3-й и 4-й главах.

Третья глава посвящена анализу причин, затрудняющих или делающих невозможным использование описанных в главе 1 способов обогащения регенерата в условиях многократного рецикла. Рассмотрены различные варианты однокаскадных схем (рис. 4), а также двойной каскад. В качестве схем на основе ординарного каскада рассмотрены:

1. схема с разбавлением природным ураном предварительно обогащенного регенерата (рис. 4.a);
2. схема с разбавлением предварительно обогащенного регенерата низкообогащенным ураном (рис. 4.b);
3. схема с разбавлением предварительно обогащенного природного урана регенератом (рис. 4.c);
4. схема с разбавлением регенерата природным ураном перед подачей в ординарный трехпоточный каскад (рис. 4.d).

Для рассмотренных схем проведена серия вычислительных экспериментов, в которых варьировали параметры каждой из них при решении задачи обогащения регенерата, сформулированной выше. По результатам проведенных расчётов: (1) показана нецелесообразность использования схем на основе ординарных каскадов для обогащения регенерата в условиях многократного рецикла и невозможность решить задачу в большинстве случаев; (2) показана возможность обогащения регенерата с превышенными относительно допустимых пределов концентрациями четных изотопов в двойном каскаде. Однако двойной каскад позволяет только решить задачу, а именно обогатить регенерат по изотопу ^{235}U и снизить концентрации чётных изотопов, не решая, при этом, задачи полного использования регенерата. Другой проблема, связанной с использованием двойного каскада является высокое содержание ^{236}U в получаемом НОУ-продукте (до 3%), что приводит к необходимости повышения обогащения по ^{235}U вплоть до 6-7% и, соответственно, росту затрат работы разделения в топливном цикле на десятки процентов по сравнению с открытым ЯТЦ.

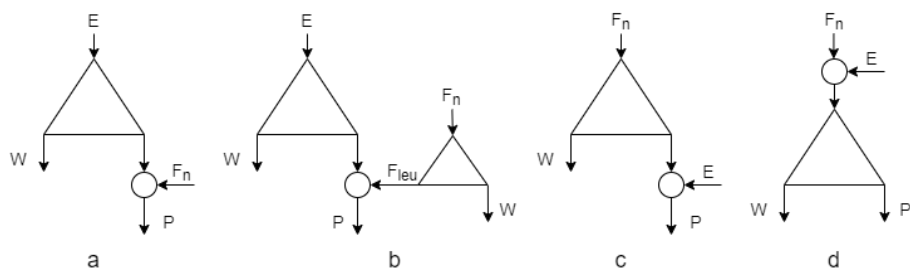


Рис. 4 — Схемы обогащения регенерата на основе одиночного ординарного каскада. Обозначения: E – поток питающего схему регенерата, F_n – поток разбавителя (природного урана или низкообогащенного урана); W – поток отвалного ОГФУ тяжелого конца каскада; P – товарный низкообогащенный уран

В главе также рассмотрен двойной каскад (рис. 5), представляющий собой последовательное соединение двух каскадов, позволяющих сконцентрировать легкие четные изотопы отдельно от изотопа ^{235}U . Для этого сначала в каскаде I обогащают изотоп ^{235}U с одновременным обогащением

изотопов ^{232}U , ^{234}U , ^{236}U , а затем полученную смесь направляют на вход каскада II (рис. 5), где она делится на две группы: в первой обогащены легкие изотопы (^{232}U , ^{234}U и ^{235}U), во второй обедняется ^{235}U с более интенсивным обеднением ^{232}U , ^{234}U , что позволяет в потоке W_2 получить НОУ, отвечающий требованиям по концентрациям изотопов ^{232}U , ^{234}U с одновременной компенсацией ^{236}U . Анализ проведенных расчетов обосновывает необходимость дальнейшего развития каскадных схем для решения задачи возврата регенерированного урана в ЯТЦ.

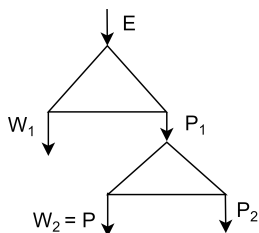


Рис. 5 — Двойной каскад. Обозначения: E — поток питающего схему регенерата, W_1 — поток отвалного ОГФУ тяжелого конца каскада; P — конечный НОУ продукт на основе регенерата; P_2 — отход двойного каскада в виде высокообогащенного урана.

В четвертой главе описаны предлагаемые в диссертации способы решения задачи обогащения регенерата в условиях его многократного рецикла. В качестве базового предложенного способа рассмотрен «двойной модифицированный каскад» (рис. 6). Данный способ можно рассматривать в качестве развития способа, предложенного в патенте АО «СХК» №2282904 [8]. Идея работы предлагаемого в диссертационной работе способа состоит в следующем. В каскаде I обогащают исходный регенерат изотопами $^{232,233,234,235,236}\text{U}$. В каскаде II смесь делится на две фракции, так, чтобы в потоке тяжелой фракции (W_2) было понижено содержание $^{232,233,234}\text{U}$ по отношению к питающей второй каскад смеси — потоку P_1 , при этом обогащение по ^{235}U в потоке W_2 составляет величину несколько выше, чем требуется для товарного НОУ. Затем происходит разбавление потока W_2 смесью, не содержащей искусственных изотопов урана для выполнения ограничений по ^{232}U и ^{236}U , которая нарабатывается в каскаде III. В результате такого смешивания и получают финальный продукт — товарный НОУ заданной массы и отвечающий всем требованиям по концентрациям чётных изотопов.

Для каскадной схемы рис. 6 в диссертационной работе предложена методика расчета и оптимизации её параметров при решении задачи обогащения регенерата со всеми ограничениями. Предложенная методика

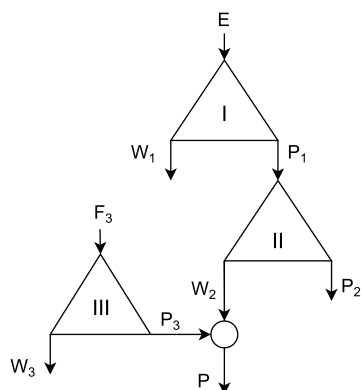


Рис. 6 — Схема модифицированного двойного каскада для обогащения регенерированного урана. Обозначения: E – поток регенерированного урана; P_1 – поток отбора первого каскада, выступающий питанием второго каскада; P_2 – поток отбора второго каскада; W_1 – поток отвала первого каскада; W_2 – поток тяжелой фракции (условный «отвал») второго каскада; P_3 – поток НОУ-разбавителя; P – финальный продукт (товарный низкообогащенный уран (НОУ))

основана на современных методах оптимизации функции многих переменных и может быть обобщена на случай оптимизации по различным критериям эффективности. Следует отметить, что предложенная методика оптимизации ранее не имеет аналогов в литературе, поскольку в ней впервые проведена оптимизация многокаскадной схемы как единой системы, в отличие от ранее использованных подходов с отдельной оптимизацией каждого из каскадов. С использованием разработанной методики оценена эффективность модифицированного двойного каскада при решении задачи обогащения урана в различных условиях и при оптимизации по таким критериям эффективности как:

1. минимум расхода природного урана ($(\delta(\frac{\Delta A}{P}))_{\min}$);
2. минимум затрат работы разделения ($(\delta(\frac{F_{NU}}{P}))_{\min}$);
3. максимум степени извлечения ^{235}U в схеме $((Y_f)_{\max})$;
4. максимум степени извлечения ^{235}U из исходного регенерата $((Y_E)_{\max})$.

В результате проведенных вычислительных экспериментов показано, что с использованием предложенной схемы даже для составов регенерированного урана с концентрациями четных изотопов выше предельных значений для товарного НОУ, возможно добиться экономии природного урана на уровне 15% и выше при практически нулевом перерасходе или даже экономии затрат работы разделения.

Проведено сравнение ранее предложенных каскадных схем и схемы рис. 6 по ключевым характеристикам (расход природного урана, затраты работы разделения), во многом определяющим удельные затраты на товарный НОУ. Сравнение оптимальных параметров модифицированного двойного каскада с аналогичными характеристиками ранее известных способов обогащения регенерата показало преимущества предложенного способа по отношению к ним. Это выражается как в самом факте решения задачи, по отношению к способам, неспособным решить задачу, так и в лучших значениях расхода природного урана и затрат работы разделения по отношению к способам, решающим поставленную задачу. Результаты такого сравнения на примере обогащения регенерата состава № 1 (табл. 1) приведены в табл. 2.

Для предложенного способа обогащения регенерата (рис. 6) проанализирована также его «устойчивость» к изменению внешних условий таких, как:

- требуемое обогащение по изотопу ^{235}U ($C_{235,P}$ от 4,4% до 5,5%);
- величина предельно допустимой концентрации изотопа ^{232}U в НОУ-продукте (варьировалась в интервале от $1 \cdot 10^{-7}\%$ до $1 \cdot 10^{-6}\%$);
- расход регенерированного урана на единицу продукта (E/P от 0,93 до 2,79).

Полученные результаты показали возможность решения задачи в широком диапазоне внешних условий, поскольку для всех рассмотренных комбинаций внешних параметров задачи были найдены решения, т.е. подобраны параметры модифицированного двойного каскада, обеспечившие решение задачи. Такие результаты показали, что схема применима как при текущих параметрах топливного цикла и требованиях к товарному НОУ, так и потенциально может быть применена при их изменении.

Отдельно проработаны способы дальнейшего использования («утилизации») загрязненной легкими изотопами $^{232,234}\text{U}$ фракции (табл. 3), получаемой в потоке P_2 двойного модифицированного каскада (рис. 6), которая в рассмотренном случае составляет 0,5% от массы НОУ-продукта. Использование данной фракции призвано предотвратить нежелательное накопление на разделительном производстве высокоактивных отходов, а также задействовать остаточное содержание ^{235}U в этом потоке, которое может достигать 20% и более. Предложены следующие 3 способа:

- Перемешивание P_2 с регенератом, поступающим на обогащение (рис. 7);
- Получение дополнительной массы товарного НОУ (рис. 8);
- Перемешивание P_2 с обедненным ураном и последующее обогащение (рис. 9).

Проведен сравнительный анализ предложенных вариантов «утилизации» загрязненной чётными изотопами фракции. Каждый из рассмотренных

Таблица 2 — Сравнение интегральных показателей (параметров П) схем для состава 1.

Схема П	1	2	3	4	5	6
Y_f	78,9	$5,3 \cdot 10^{-3}$	40,26	89,0	89,0	86,9
Y_E	78,9	48,2	1,0	—	89,0	86,9
$\delta(\frac{\Delta A}{P}), \%$	1,6	11,0	29,12	11,0	4,17	11,0
$\delta(\frac{F_{NU}}{P}), \%$	21,1	15,2	12,86	17,0	6,172	19,0
$\frac{P_2}{P}$	0	0	0	0	0	0,0051
$\frac{E}{P}$	4,4	0,76	0,6	0,76	4,71	0,93
$C_{232,P} \cdot 10^{-7} \%$	29,0	5,0	3,97	5,0	5,0	5,0
$\frac{C_{234,P}}{C_{235,P}}$	0,024	0,011	0,01085	0,011	0,0195	0,012
$C_{235,P}, \%$	5,95	5,10	5,12	5,12	6,0	5,1
$C_{236,P}, \%$	3,4	0,51	0,596	0,6	3,6	0,68

Таблица 3 — Изотопный состав P_2 .

Массовое число	232	233	234	235	236
C, %	$2,477 \cdot 10^{-5}$	$5,438 \cdot 10^{-5}$	0,694	19,76	7,34

способов вовлечения P_2 в ЯТЦ демонстрирует повышение эффективности использования ^{235}U находящегося в регенерированном уране, что позволяет получить дополнительное увеличение экономии природного урана.

Для способа утилизации легкой фракции путем ее перемешивания с регенератом, поступающим на обогащение (рис. 7), проведены вычислительные эксперименты по топливоподготовке (обогащение регенерата с целью производства низкообогащенного урана) для серии частичных перегрузок топлива в реакторе (замена части ТВС активной зоны реактора)¹. Каждая из серий расчетов отличалась выбранным критерием эффективности, в качестве которых использованы $(Y_f)_{\max}$, $(Y_E)_{\max}$, $(\delta(\frac{\Delta A}{P}))_{\min}$, $(\delta(\frac{F_{NU}}{P}))_{\min}$, $(\frac{P_2}{P})_{\min}$. По результатам анализа полученных закономерностей, с каждой последующей перегрузкой происходит снижение эффективности схемы по каждому из показателей.

Для способа независимого получения дополнительной массы товарного НОУ (рис. 8), была показана возможность получить экономию дополнительное количество природного урана относительно двойного модифицированного каскада.

Для оценки эффективности способа утилизации легкой фракции путем ее перемешивания с обедненным ураном и последующим обогащением, представленного на рис. 9 разработаны методика и алгоритм расчёта такой многокаскадной схемы. Предложенная методика обобщается на случай

¹формулировка задачи последовательного обогащения регенерата для нескольких перегрузок реактора со всеми условиями осуществлена совместно с сотрудниками НИЦ "Курчатовский институт".

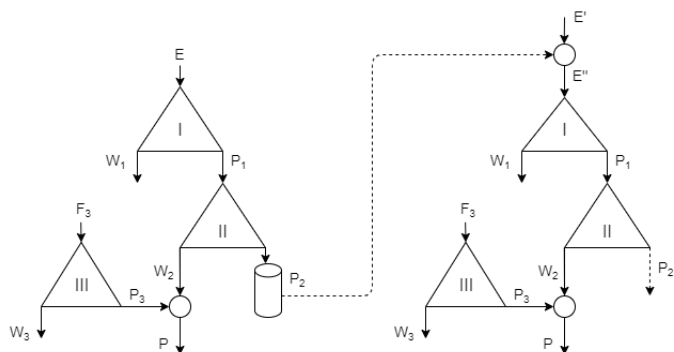


Рис. 7 — Схема передачи загрязненного изотопом ^{232}U состава гексафторида урана в двойном каскаде от первой партии дообогащенного регенерированного урана к последующей. Обозначения: E — поток регенерированного урана; P_1 — поток отбора первого каскада, выступающий питанием второго каскада; W_1 — поток отвала первого каскада; W_2 — поток тяжелой фракции (условный «отвал») второго каскада; P_3 — поток НОУ-разбавителя; P — финальный продукт (товарный низкообогащенный уран (НОУ)); P_2 — поток отбора второго каскада, который подается на питание последующего двойного каскада, перемешиваясь с регенератором очередного рецикла

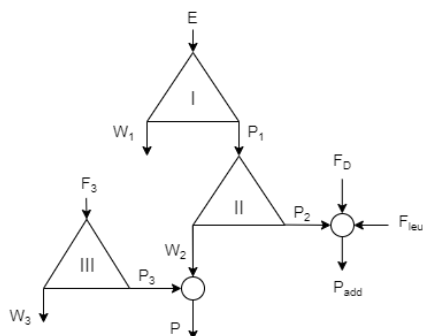


Рис. 8 — Схема независимого вовлечения в производство НОУ загрязненной изотопом ^{232}U фракции, смешанной с обедненным и природным ураном

использования различных критериев эффективности. Проведенные с её помощью серии вычислительных экспериментов показывают возможность обеспечить экономию природного урана и затрат работы разделения по отношению к открытому ЯТЦ даже в случае обогащения регенерата с высоким содержанием ^{232}U (выше предельных значений для товарного НОУ).

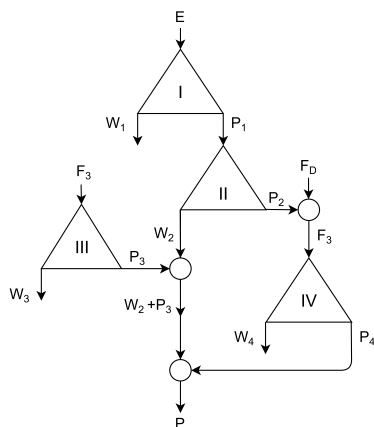


Рис. 9 — Тройной каскад для обогащения регенерированного урана. Обозначения: E — поток регенерированного урана; P_1 — поток отбора первого каскада, выступающий питанием второго каскада; P_2 — поток отбора второго каскада; F_D — поток ОГФУ-разбавителя, смешиваемого с P_2 перед подачей на вход третьего каскада; W_1 — поток отвала первого каскада; W_2 — поток тяжелой фракции (условный «отвал») второго каскада; P_3 — поток НОУ-разбавителя; P — финальный продукт (товарный низкообогащенный уран (НОУ)), полученный смешиванием потоков W_2 , P_3 и P_4 , где P_4 — отбор третьего каскада; W_4 — отвал третьего каскада.

Таблица 4 — Сравнение интегральных показателей схем утилизации загрязненного продукта для состава 1.

П	сх. 1			сх. 2			сх. 3		
	Загр. 1	Загр. 2	ср.	Загр. 1	Загр. 2	ср.	Загр. 1	Загр. 2	ср.
$\frac{F_{NU}}{P}$	6,22	6,49	6,348	6,21	6,37	6,29	6,04	6,04	6,04
$\frac{\Delta A}{P}$	11,25	11,61	11,43	11,25	11,21	11,23	11,65	11,65	11,65
$\frac{P_2}{P}, \%$	1,39	2,96	2,17	1,39	1,19	1,29	0	0	0
$\frac{E}{P}$	0,93	0,95	-	0,93	0,80	-	0,93	0,93	-

По результатам исследования схем, представляющих собой различные способы утилизации побочной фракции P_2 , представлена сравнительная таблица 4.

Как следует из анализа данных табл. 4, использование схемы независимой утилизации P_2 (сх. 2, представленная на рис. 8) для формирования Загр. 2, позволяет, по сравнению со схемой с замыканием (рис. 7), расходовать меньшее удельное количество природного урана и работы разделения (на $\approx 1,7\%$ и $\approx 3,5\%$) на этапе производства НОУ-продукта для осуществления перегрузки топлива в реакторе, а также производить меньшее

количество дополнительного P_2 . Однако на этапе производства НОУ для второй загрузки такая схема расходует не все требуемое количество регенерата. Схема 3 (тройной каскад) позволяет задействовать всё требуемое количество регенерата на каждой перегрузке, а также позволяет добиться наименьшего расхода природного урана, обеспечивая выигрыш практически на 7%, по сравнению со схемой 1 на этапе производства урана для Загр. 2, при этом перерасходуя работу разделения лишь на менее чем 0,5% и не производя побочного отхода с высоким содержанием $^{232,234}\text{U}$.

В **заключении** перечислены полученные результаты ключевые результаты диссертационного исследования и сформулированы его основные выводы.

Проанализирована проблема и известные способы обогащения регенерированного урана в каскадах центрифуг в условиях многократного рецикла урана в топливе легководных реакторов на тепловых нейтронах. По итогам выполнения диссертационной работы сделаны следующие научные и практические выводы.

- I. Показано, что модификации ординарного каскада для обогащения и разбавления регенерированного урана принципиально не решают задачу обогащения регенерированного урана при одновременном выполнении условий на концентрации четных изотопов в товарном НОУ и обеспечения расходования заданной массы регенерата на получение этого НОУ для составов регенерата с исходным содержанием чётных изотопов, превышающим предельные значения для товарного НОУ.

Основная причина невозможности решения задачи состоит в том, что в рассматриваемых схемах число свободных параметров оказывается меньшим, чем число условий, которые необходимо одновременно удовлетворить. В результате такие схемы могут обеспечить решение задачи только в частных случаях, когда в обогащение поступает регенерированный уран с исходными концентрациями четных изотопов ниже предельных значений для товарного НОУ.

- II. Предложена модификация двойного каскада с НОУ-разбавителем из природного урана, применяемая для обогащения регенерированного урана в условиях многократного рецикла урана в топливе легководных реакторов и позволяющая получить продукт, отвечающий всем требованиям на концентрации чётных изотопов. Достоинствами схемы является возможность частичного отделения легких изотопов ^{232}U , ^{234}U от ^{235}U , а также обособленность участков обогащения регенерированного урана и природного урана. Последнее обеспечивает большую вариативность в возможностях практической реализации подобной схемы, а также позволяет избежать загрязнения значительной части разделительного оборудования изотопами $^{232,234}\text{U}$.

На основе теории квазиидеального каскада разработаны методики расчета и оптимизации предложенной каскадной схемы по различным критериям эффективности (затраты работы разделения, расход природного урана, степень извлечения ^{235}U из регенерата, степень извлечения ^{235}U из всех питающих потоков схемы). Показано, что эффективность предложенной каскадной

схемы по тому или иному критерию зависит от выбранного диапазона изменения концентрации ^{235}U в потоке отбора каскада II – P_2 . Наиболее выгодные с точки зрения зрения основных критериев эффективности наборы параметров каскадной схемы лежат в области, где $C_{235,P_2} > 20\%$. Это означает, что при практической реализации модифицированного двойного каскада целесообразно рассматривать возможность получения в отдельных потоках такой схемы концентраций ^{235}U , превышающих 20%, и, в первую очередь, в потоке P_2 .

Анализ эффективности предложенной каскадной схемы с точки зрения потерь ^{235}U показал, что схема позволяет извлечь более 85% от массы ^{235}U из исходного регенерированного урана, поступившего на обогащение. Это обеспечивает экономию природного урана по сравнению с открытым топливным циклом на уровне 15-20% в зависимости от исходного изотопного состава регенерата. Таким образом, эта схема превышает аналогичные показатели для простейших разбавляющих схем практически вдвое.

По результатам серии вычислительных экспериментов показано, что предложенная схема позволяет полностью решить задачу обогащения регенерата в широком диапазоне внешних условий, что создает базис для практической её реализации и поиска наиболее эффективных режимов ее работы.

- III. Обоснованы способы «утилизации» загрязненной четными изотопами фракции, возникающей в двойных каскадах при очистке от ^{232}U , с учетом полной или частичной подачи данной фракции: а) в третий каскад с предварительным перемешиванием ее с природным, обедненным и/или низкообогащенным ураном; б) в отдельный двойной каскад, осуществляющий наработку низкообогащенного урана для последующей топливной кампании реактора; в) перемешивании этой фракции с потоками обедненного урана и низкообогащенного урана для получения дополнительной массы товарного НОУ. Выявлены достоинства и недостатки каждого из способов, что позволяет обозначить возможные области их применения.

Предложенная модификация тройного каскада позволяет утилизировать фракцию отхода каскада II – поток P_2 , обеспечивая при этом отсутствии нештатных отходов, кроме потоков обедненного урана с невысоким содержанием чётных изотопов (в несколько раз ниже допустимых в НОУ-продукте значений). Для такой каскадной схемы разработана методика расчёта и оптимизации её параметров по различным критериям эффективности, что позволило показать, что схема может одновременно

обеспечить экономию как природного урана, так и затрат работы разделения по отношению к открытому ЯТЦ даже в случае обогащения регенерата с концентрацией ^{232}U выше предельных значений, что характерно для регенерата в условиях его многократного рециклирования.

Характерными недостатками схемы двойного каскада с НОУ-разбавителем с возвратом потока загрязненной ^{232}U фракции в цикл является возврат значительной части четных изотопов на вход каскадной схемы. Это приводит к тому, что при повторении такого процесса концентрации четных изотопов в исходном регенерате могут существенно возрасти (до нескольких раз), тем самым снижая эффективность обогащения регенерата в целом. Такой подход целесообразно применять для 1-3 таких возвратов.

Схема утилизации загрязненной ^{232}U фракции через ее разбавление обедненным ураном и НОУ из природного урана обеспечивает возможность наработки дополнительной массы отвечающего всем требованиям товарного продукта. При этом в схеме отсутствуют дополнительные затраты работы разделения. Данный способ утилизации пригоден при обогащении различных вариантов составов исходного регенерата, что делает его перспективным в условиях многократного рецикла.

- IV. Результаты работы создают основу для проведения дальнейшего технико-экономического анализа каждой из схем на основе их интегральных показателей, таких как расход природного урана, затраты работы разделения, потери ^{235}U в цикле в контексте всей цепочки ядерного топливного цикла, а также с учетом возникающих в этой цепочке изменений при использовании регенерата урана по отношению к открытому топливному циклу.
- V. Полученные в диссертации результаты дополняют теорию каскадов для разделения изотопов и могут быть использованы при подготовке студентов по профильным специальностям, а также для повышения квалификации персонала разделительных производств. Предложенные в работе методики оптимизации двойных и тройных каскадов могут быть адаптированы к случаю разделения многокомпонентных смесей неурановых изотопов в каскадах центрифуг.

Список литературы

1. PRIS - Home. — <https://pris.iaea.org/pris/home.aspx>.
2. *Agency, I. A. E. Uranium 2020 / I. A. E. Agency. — 2021. — с. 484.*

3. World Distribution of Uranium Deposits (UDEPO). — Vienna : International atomic energy agency, 2018. — (TECDOC Series ; 1843).
4. Competition and Conflicts on Resource Use / ed. by S. Hartard, W. Liebert. — Cham : Springer International Publishing, 2015.
5. *Кайгородцев, А. А.* Проблемы И Перспективы Развития Атомной Энергетики В Глобализированном Мире / А. А. Кайгородцев // Научное Обозрение. Экономические Науки. — 2021. — № 1.
6. Use of Reprocessed Uranium : Text. — 02/2019. — <https://www.iaea.org/publications>
7. Б.В. Никипелов, В.Б. Никипелов, «Судьбы Уранового Регенерата», Бюллетень По Атомной Энергии, 9 (2002): 34.
8. Способ Изотопного Восстановления Регенерированного Урана - Патент РФ 2282904 - Водолазских Виктор Васильевич ,Козлов Владимир Андреевич ,Мазин Владимир Ильич ,Стерхов Максим Иванович ,Шидловский Владимир Владиславович ,Щелканов Владимир Иванович / В. Водолазских [и др.]. — заявл. 2006.

Список публикаций автора

[1—9]

Список литературы

1. Топливный Цикл Легководного Реактора С Полным Использованием Регенерированного Урана / В. А. Невиница [и др.] // Вестник Национального Исследовательского Ядерного Университета Мифи. — 2019. — т. 8, № 6. — с. 498—506.
2. Обогащение Регенерированного Урана в Двойном Каскаде Газовых Центрифуг с Его Максимальным Возвратом в Воспроизводство Топлива / А. Ю. Смирнов [и др.]. — 2018.
3. Applying Enrichment Capacities for Multiple Recycling of LWR Uranium / A. Y. Smirnov [и др.] // Journal of Physics: Conference Series. — 2018. — сент. — т. 1099. — с. 012001.
4. Анализ технико-экономических характеристик двойной каскадной схемы для обогащения многократно рециклированного регенерированного урана / Е. В. Родионова [и др.] // Вопросы Атомной Науки И Техники. Серия: Физика Ядерных Реакторов. — 2019. — № 5. — с. 62—71.
5. A Method to Enrich Reprocessed Uranium with Various Initial Contents of Even-Numbered Isotopes / A. Smirnov [и др.] // AIP Conference Proceedings. — 2019. — 18 апр. — т. 2101, № 1. — с. 020006.

6. Физико-технические проблемы обогащения регенерированного урана при многократном рецикле в легководных реакторах и пути их решения / А. Ю. Смирнов [и др.] // Атомная Энергия. — 2020. — т. 128, № 4. — Publisher: Редакция журнала "Атомная энергия".
7. *Gusev, V. E.* Multy-cascade enrichment schemes for reprocessed uranium recycling / V. E. Gusev // Journal of Physics: Conference Series. — 2020. — Dec. — Vol. 1696, no. 1. — P. 012009. — Publisher: IOP Publishing.
8. Analysis of the Effect of Restrictions on Isotopes $^{232}, ^{234}, ^{236}\text{U}$ in Marketable LEU on the Choice of Methods for Enriching Reprocessed Uranium in Cascades of Centrifuges / A. Y. Smirnov [и др.] // Phys. Atom. Nuclei. — 2021. — дек. — т. 84, № 8. — с. 1500—1507.
9. *Gusev, V. E.* On the Problems of Reusing Reprocessed Uranium by Enrichment in Schemes Based on Ordinary Cascades / V. E. Gusev // J. Phys.: Conf. Ser. — 2022. — Vol. 2147, no. 1. — P. 012004.

Гусев Владислав Евгеньевич

Каскадные схемы для обогащения регенерированного урана при его
многократном рецикле в топливных циклах перспективных энергетических
реакторов

Автореф. дис. на соискание ученой степени канд. физ.-мат. наук

Подписано в печать _____._____._____. Заказ № _____

Формат 60×90/16. Усл. печ. л. 1. Тираж 1 экз.

Типография _____

