



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

Научный руководитель: кандидат физико-математических наук, до-

цент

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, профес-

cop,

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 об-

разовательное учреждение высшего профессионального образования с длинным длинным

длинным длинным названием

Защита состоится DD mmmmmmmm YYYY г. в XX часов на заседании диссертационного совета Д 123.456.78 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 Д 123.456.78.

Автореферат разослан DD mmmmmmmm YYYY года. Телефон для справок: +7 (0000) 00-00-00.

Ученый секретарь диссертационного совета Д 123.456.78, д-р физ.-мат. наук

Фамилия Имя Отчество

Общая характеристика работы

Актуальность темы.

Построение ядерной энергетики нового типа, устойчивой к ресурсным ограничениям и предусматривающей решение проблемы обращения с радиоактивными отходами, связано с реакторами на быстрых нейтронах, нацеленными на воспроизводство делящегося материала — энергетического плутония. Однако, по оценкам [1], в ближайшие десятилетия переходного периода к двухкомпонентной ядерно-энергетической системе, делящиеся материалы будут повторно использованы в топливном цикле реакторов на тепловых нейтронах, так как они составляют основную часть парка энергоблоков.

На сегодняшний день мире в состоянии эксплуатации и сооружения насчитывают около 500 ядерных энергоблоков, подавляющее большинство из которых представляют собой легководные реакторы не тепловых нейтронах [2], 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).

Как известно, основным материалом для производства топлива реакторов на тепловых нейтронах является природный уран, который предварительно обогащают на разделительных производствах, как правило, с использованием газовых центрифуг. В соответствии с доступными данными, мировые запасы урана оценивают в 59 мегатонн [3]. Но большую часть этих запасов, составляют ресурсы урана, для которых на сегодняшний день отсутствуют отработанные технологии добычи и, соответственно, стоимость такого урана не определена. По текущим оценкам лишь ≈ 8 мегатонн природного урана можно добыть с операционными затратами, не превышающими порогового значения в 260 \$/кг [4], которое оценивается как предельное для сохранения конкурентоспособности ядерной генерации по сравнению с другими источниками (на этом уровне затраты на топливную составляющую при генерации одного кВт*ч превысят 1 евроцент (по данным 2015 года)) [5]. По существующим прогнозам, предсказывающие неизбежен разрыв между добычей и потреблением природного урана в будущем, что может привести к значительным проблемам с обеспечением топливом реакторов на тепловых нейтронах в перспективе 15–20 лет [6].

Дополнительным, а, возможно, и главным вызовом для ядерной промышленности является обращение с ОЯТ в долгосрочной перспективе. На текущий момент общемировая масса хранимого ОЯТ составляет более 400 килотонн [7]. С каждым годом эта масса прирастает примерно на 11 килотонн [8]. Учитывая сложности поиска новых мест для строительства хранилищ ОЯТ, а также негативное отношение общества к этой проблеме во многих странах, очевидно, что без выработки приемлемого со всех

точек зрения решения, это затруднит развитие ядерной энергетики в будущем. Следует отметить, что основным материалом облученного ядерного топлива является уран, составляющий $\approx 90-95\%$ его массы, за вычетом конструкционных материалов. Оставшаяся часть делится между плутонием и продуктами (осколками) деления. В большинстве случаев регенерированный уран содержит изотоп $^{235}\mathrm{U}$ с концентрацией на уровне >0.85% (мас. доли), то есть долю делящегося изотопа выше, чем в природном уране, что делает целесообразным его повторное использование и обогащение на изотопно-разделительном производстве [9]. Вовлечение регенерированного урана отдельно или совместно с плутонием в производство ядерного топлива реакторов на тепловых нейтронах может позволить существенно сократить объем захоронения радиоактивных отходов и снизить потребности в природном уране. Однако стоит отметить, что реакторы на тепловых нейтронах являются реакторами-«сжигателями», то есть в среднем воспроизводят делящихся материалов значительно меньше, чем распадается в активной зоне реактора в процессе облучения топлива. Этот факт говорит о том, что для реакторов данного типа невозможно полное замыкание ядерного топливного цикла, поскольку для их полноценного обеспечения топливом потребуются внешние источники делящихся материалов.

Следует также отметить существование проблем, связанных с переработкой ОЯТ и использованием регенерата урана в топливном цикле легководных реакторов на тепловых нейтронах.

Во-первых, переработка ОЯТ сама по себе представляет технологически сложную, капиталоемкую, радиационно-опасную и затратную процедуру. Лишь немногие страны на текущий момент обладают промышленными технологиями переработки и соответствующими мощностями, позволяющими рассматривать возможность замыкания топливного цикла.

Во-вторых, при облучении ядерного топлива в активной зоне реактора образуются искусственные изотопы урана, в первую очередь, ²³²U и ²³⁶U . Кроме того, как правило, возрастает и концентрация природного изотопа $^{234}\mathrm{U}$. Изотоп $^{232}\mathrm{U}$ опасен тем, что является родоначальником цепочки распадов, среди дочерних продуктов которых есть, в частности, ²⁰⁸Tl, представляющий собой источник жесткого гамма-излучения, обуславливающего высокий уровень радиоактивного фона. Поэтому при производстве уранового топлива существуют нормативные ограничения на допустимое содержание ²³²U в низкообогащенном уране. На текущий момент в РФ допустимые концентрации (в мас. долях) 232 U в НОУ не должны превышать предельно допустимых значений, в качестве которых в Российских нормативных документах приняты следующие величины: $2 \cdot 10^{-7}$ % и $5 \cdot 10^{-7}$ %. 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. При наличии в загружаемом в реактор топливе

²³⁶U для компенсации его отрицательного влияния и получения заданных ядерно-физических характеристик реактора нужно повышать среднее начальное обогащение топлива по ²³⁵U. Отдельно стоит подчеркнуть, что концентрации изотопов ²³²U, ²³⁴U и ²³⁶U (четных изотопов), возрастают при обогащении регенерированного урана в ординарных (трехпоточных) каскадах газовых центрифуг, используемых для обогащения природного урана. Под «ординарным» каскадом понимают каскад, имеющий три внешних потока – питание, отбор и отвал. 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 — обогащение регенерированного урана. Что касается переработки ОЯТ, предваряющей стадию обогащения восстановленного посредством нее регенерата, то в данной работе не будут затронуты теоретические и практические вопросы переработки ОЯТ. При этом отметим, что на текущий момент в РФ и некоторых странах существуют отработанные технологии переработки ОЯТ, что дает основания рассматривать и анализировать вопросы эффективного обогащения регенерированного урана, считая, что проблема его выделения из ОЯТ решена [10-13].

Перейдем к анализу проблем, возникающих для технологий разделения изотопов в контексте обогащения регенерированного урана. На сегодняшний день предложен ряд технических решений, позволяющих решить задачу обогащения регенерированного урана до концентраций ²³⁵U , требуемых в современных топливных циклах энергетических реакторов на тепловых нейтронах (в частности отечественных ВВЭР), при одновременном выполнении принятых ограничений на содержание ²³²U в ядерном топливе и реализации необходимого дообогащения регенерата по $^{235}{
m U}$ для компенсации негативного влияния ²³⁶U. 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 относительно высоким 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. Данное обстоятельство 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 отдельно стоит вопрос выбора оптимальной каскадной схемы для дообогащения регенерированного урана, которая должна обеспечить максимально эффективное использование ресурса регенерированного урана при минимальных затратах работы разделения.

Для теоретического обоснования возможных способов решения указанных задач целесообразно использовать активно развивающуюся в последние десятилетия теорию каскадов для разделения многокомпонентных изотопных смесей. Существующие в этой теории модели массопереноса компонентов в многоступенчатых разделительных установках позволяют анализировать ключевые закономерности изменения интегральных характеристик таких установок в процессе разделения изотопных смесей, включая и смесь регенерированного урана, с целью поиска оптимальных условиях такого процесса.

<u>Целью</u> 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 ²³²U, ²³⁴U и ²³⁶U в получаемом продукте низкообогащенном уране, и расходовании заданной массы регенерата на единицу получаемого продукта.
- Физически обоснованы принципы построения двойных каскадов, позволяющих корректировать изотопный состав регенерата по концентрациям изотопов ²³²U, ²³⁴U и ²³⁶U с одновременным расходованием 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 ²³²U, 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 расходованием 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 ²³⁵U, 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.il 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).

<u>Личный вклад.</u> 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 схем для обогащения регенерированного урана, вытекающая из задач долгосрочного развития ядерной энергетики, а также из существующих на сегодня ограничений 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.

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 ²³²U, ²³⁴U и ²³⁶U 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 ²³²U, ²³⁴U и ²³⁶U с одновременным расходованием 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 ²³²U, 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 представленной работы состоит в следующем:

- 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 расходованием 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 работы:

- 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 ²³⁵U, 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.

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.

На защиту были вынесены следующие положения:

- 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.

<u>Первая глава</u> посвящена теоретическому введению в проблему поиска схем каскадов для обогащения восстановленного урана. Проанализирована проблема четных изотопов в задаче обогащения регенерированного урана с точки зрения разделительных технологий, а также рассмотрен промышленный опыт возврата урана в ядерный топливный цикл легководных реакторов. Представлен обзор каскадных схем, посвященных возврату регенерированного урана в ядерный топливный цикл, известных к началу написания диссертационной работы. Проведен анализ применимости существующих схем для решения задачи в условиях многократного рецикла урановой составляющей, на основе которого сделан вывод о необходимости дальнейшего поиска каскадных схем.

Во второй главе приведены основы теории разделения изотопов в каскадах. Вводятся ключевые понятия теории каскадов, такие как понятия разделительного элемента, разделительной ступени, а также раскрываются основные принципы коммутации разделительных элементов в

каскаде. Смесь изотопов регенерированного урана, в отличие от природного урана является многокомпонентной (>2 изотопов) смесью, поэтому для нее теория разделения бинарной смеси не является удовлетворительной для моделирования процессов массопереноса. Исходя из этого, в главе изложены основные теоретические сведения, необходимые для моделирования разделения многокомпонентных изотопных смесей в каскадах. Для рассматриваемого типа изотопной смеси приводится понятие модельного каскада, позволяющего упростить вычислительную процедуру расчета параметров каскада, при этом сохранив адекватность процессу разделения. Для поставленных задач обосновывается выбор модели R-каскада с несмешиванием относительных концентраций двух заданных компонентов смеси как частного случая квазиидеального каскада. В завершении, в главе осуществляется анализ типичных постановок задач расчёта параметров ординарного каскада на примере модельных каскадов.

На основе обзора, приведенного в первой главе, в **третьей главе** выявляются ограничения известных схем. Исследование, проводимое в этой главе показывает нецелесообразность использования схем на основе ординарных каскадов. Также исследуются границы применимости двойного немодифицированного каскада для решения поставленной задачи. Выявлены физические принципы, на основании которых можно априорно судить о неприменимости некоторых каскадных схем для задачи возврата восстановленного регенерата в топливный цикл легководных реакторов в режиме многократного рециклирования. В этой главе формулируется рекомендация перехода к составным схемам на основе двойного каскада, обеспечивающим «пространственное» разделение для отделения изотопов легкой фракции ^{232,234,236}U в получаемом продукте – низкообогащенном уране. В главе:

- 1. описывается расчетная методика и ее основные предположения для используемых математический моделей.
- 2. выявляются физические причины затруднений при решении задачи обогащения регенерата произвольного изотопного состава в одиночном каскаде при одновременном выполнении условий на концентрации нецелевых изотопов.
- 3. рассматриваются ограничения двухкаскадной схемы и устанавливается необходимость ее модификации.

Четвертая глава вытекает из анализа ограничений известных схем, проведенного во второй главе и из намеченного в ней пути решения задачи возврата в ЯТЦ регенерата в условиях многократного рецикла. В главе демонстрируется способ решения поставленной во введении задачи с помощью двойного модифицированного каскада, который испытывается для различных исходных смесей питающего регенерата, характерных для легководного реактора. Для этой схемы исследуются закономерности массопереноса изотопов урана при разных условиях и разрабатываются

подходы к ее оптимизации на различные критерии. Далее прорабатываются способы устранения основной проблемы расмотренной схемы двойного модифицированного каскада - загрязненной легкими изотопами 232,234 U побочно производимой фракции. Рассматриваются известные способы утилизации изотопной композиции схожего состава, а также, исходя из присутствия в побочной фракции большого количества ²³⁵U, предлагаются способы его вовлечения с помощью схем с замыканием или дополнительных одиночных каскадов (построение тройного каскада). Для предлагаемых каскадных схем описывается методика расчета и оптимизации. В данной главе исследуются как возможности решения задачи полного возврата массы регенерированного урана, так и варианты замыкания ядерного топливного цикла по урановой компоненте вне рамок этого условия. Тогда как первый вариант нацелен на рециклирование топлива в системе отдельно взятого энергоблока, второй предлагает рассмотрение воспроизводимого топливообеспечения для парка реакторов как единой системы. Итак, в четвертой главе:

- 1. рассмотрены способы обращения с загрязненной четными изотопами фракции, возникающей в двойных каскадах. В первую очередь исследуется путь вовлечения этой фракции в производство свежего низкообогащенного урана, что позволяет избежать потерь ²³⁵U, сконцентрированного в этом побочном потоке. Как альтернатива анализируется возможность вывода из системы части загрязненного потока легкой фракции второго каскада в контексте потерь ²³⁵U, стоимости обращения с нештатным отходом, а также технической реализуемостью достижения в этом потоке концентрации изотопа ²³⁴U на уровне по порядку величины сопоставимом с ²³⁵U.
- 2. рассматривается область применения схемы двойного каскада с замыканием, ввиду ограничения, связанного с накоплением легких четных изотопов 232,234 U в загрязненной фракции с ростом числа рециклов.
- 3. рассматривается вопрос целесообразности выхода за верхние пороговые значения концентрации $^{235}{
 m U}$ для HOУ.
- 4. анализируются потенциальные преимущества решения задачи рециклирования урана вне условия эквивалентного возврата.
- 5. осуществляется сопоставление рассмотренных схем по критериям:
 - а) расход природного урана
 - б) затраты работы разделения
 - в) степень извлечения $^{235}{
 m U}$ в схеме
 - г) степень извлечения $^{235}{
 m U}$ из исходного регенерата

В качестве выводов, относящихся ко всем рассмотренным в главе 4 схемам, приведем следующие:

1. схемы на основе двойного каскада, использующие НОУ-разбавитель, принципиально пригодны для решения задачи обогащения

- регенерированного урана в рамках многократного рецикла урановой составляющей топлива легководных реакторов. При этом каждая из схем имеет собственные достоинства и недостатки;
- 2. характерным недостатком схемы, не предполагающей утилизацию нештатного отхода, образующегося в потоке P_2 , является проблема с обращением с этим материалом, с высоким содержанием как четных изотопов (на 1-2 порядка выше, чем пределы для товарного HOV) и 235 U (до 20% или, в некоторых случаях, до 90%, в зависимости от выбранного режима работы каскадной схемы). Одним из вариантов обращения с ним, помимо схемы независимой утилизации побочного продукта легкой фракции второго каскада схемы двойного каскада с HOV-разбавителем (рис. ??), может стать его перемешивание с отвалом первого каскада при обогащении регенерата. Оценки показали, что в этом случае возможно получить обедненный уран с приемлемым содержанием 232 U (не выше $5 \cdot 10^{-7}$ %);
- 3. характерными недостатком схемы двойного каскада с НОУ-разбавителем с возвратом потока P_2 в цикл (рис. ??) является возврат значительной части четных изотопов на вход каскадной схемы;
- 4. характерным недостатком схемы тройного каскада (рис. ??) являются дополнительные затраты работы разделения по отношению к схемам двойного каскада с НОУ-разбавителем, возникающие при обогащении разбавленного обедненным ураном отхода второго каскада схемы, загрязненного четными изотопами.

Итак, ключевая из предложенных схем – схема двойного каскада с НОУ-разбавителем – на каждом из рассмотренных рециклах позволяет извлечь более 80% от массы ²³⁵U из исходного регенерированного урана, поступившего на обогащение. Таким образом, глава посвящена анализу предложенных в диссертации каскадных схем для решения задачи замыкания ядерного топливного цикла легководных реакторов по урану.

В <u>заключении</u> приведены основные выводы, сделанные в ходе диссертационного исследования и перечислены полученные результаты.

По итогу исследования выдвигаются рекомендации по использованию результатов работы для обогащения регенерированного урана в условиях однократного и многократного рецикла в различных видах топлива.

Перспективы дальнейшей разработки темы состоят в проведении технико-экономического анализа для оценки эффективности представленных схем 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. Помимо этого, необходима проработка технологических проблем каждой из схем, в частности, с точки зрения возможности эксплуатации и обслуживания оборудования в условиях работы с материалами, имеющими более высокую,

чем природный уран удельную активность. Например, подобные условия возникают в каскадах, концентрирующих в легкой фракции α -активные изотопы $^{232,234}{
m U}.$

Теоретически обоснованы способы обогащения регенерированного урана с одновременной коррекцией его изотопного состава по содержанию четных изотопов, основанных на модификациях двойных каскадов. Показана применимость предложенных модификаций двойного каскада в условиях обогащения регенерированного урана с исходным содержанием четных изотопов выше допустимых пределов, что в несколько раз превышает содержание указанных изотопов в составах регенерата ранее рассмотренных в теоретических исследованиях. Это означает возможность успешного использования предложенных подходов в условиях многократного рецикла, когда концентрации четных изотопов возрастают от рецикла к рециклу.

По результатам проведенного исследования можно сформулировать следующие конкретные выводы.

1. В работе предложена модификация двойного каскада с НОУразбавителем из природного урана, применимая для обогащения регенерированного урана в условиях многократного рецикла урана в топливе легководных реакторов и позволяющая получить продукт, отвечающий всем требованиям на концентрации четных изотопов для регенерата различного исходного состава. Достоинствами схемы является возможность частичного отделения легких изотопов ²³²U, ²³⁴U от ²³⁵U, 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 четными изотопами урана.

Процесс обогащения регенерата урана различного исходного состава в предложенной схеме смоделирован с использованием теории квазиидеального каскада. Разработаны оригинальные методики расчета и оптимизации предложенной каскадной схемы по различным критериям эффективности, таким как минимум расхода природного урана, минимум затрат работы разделения на получение конечного продукта, максимум степени извлечения целевого изотопа ²³⁵U из исходного регенерата и др. Проведена серия вычислительных экспериментов, позволившая оценить ключевые интегральные характеристики предложенной модификации двойного каскада (удельный расход природного урана, затраты работы разделения) в широком диапазоне изменение как ее параметров, так и внешних условий. Анализ результатов проведенных вычислительных экспериментов показал, что схема оказывается

устойчивой в случаях, когда внешние ограничения «ужесточаются». Например, уменьшается предельно допустимая концентрация 232 U в товарном НОУ или кратно (до трех раз) возрастает масса исходного регенерированного урана, которую нужно израсходовать для получения заданной массы товарного продукта. Анализ полученных результатов создает базис для дальнейшей практической реализации подобной схемы и поиска наиболее эффективных режимов ее работы.

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.

- 2. Обоснован способ эффективной «утилизации» загрязненной четными изотопами фракции, возникающей в двойных каскадах при очистке от ²³²U, 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. Для каждого из предложенных способов проведены вычислительные эксперименты, анализ результатов которых позволил сформулировать достоинства и недостатки каждого из способов и очертить возможные области их применения. В качестве основных выводов по этой части приведем следующие:
 - а) Характерными недостатками схемы двойного каскада с НОУ-разбавителем с возвратом потока загрязненной ²³²U фракции в цикл является возврат значительной части четных изотопов на вход каскадной схемы. Это приводит к тому, что при повторении такого процесса несколько раз концентрации четных изотопов в исходном регенерате могут существенно возрастать (до нескольких раз), тем самым снижая эффективность обогащения регенерата в целом. Следовательно, такой подход применим для 1-3 таких возвратов, далее целесообразно рассмотреть возможность реализации одного из других предложенных способов утилизации отхода.
 - б) Характерным недостатком схемы тройного каскада для утилизации загрязненной ²³²U фракции является увеличение затрат работы разделения по отношению к другим

рассмотренным модификациям, возникающее при обогащении разбавленного обедненным ураном загрязненного четными изотопами отхода. Анализ результатов серии вычислительных экспериментов, проведенных для данной схемы позволяет говорить, что она хорошо применима для составов регенерированного урана, когда исходное содержание 232 U еще не превысило предельно допустимых значений для продукта. Иными словами, такой подход может подойти для обогащения регенерата 1-го и 2-го рецикла, позволяя вернуть в цикл более 90% массы 235 U из регенерированного урана.

- в) Схема утилизации загрязненной ²³²U 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 каскады, что исключает дополнительные затраты работы разделения. Показано, что данный способ утилизации пригоден при обогащении различных вариантов составов исходного регенерата, что делает его перспективным в условиях многократного рецикла.
- 3. Результаты работы дают основу для проведения дальнейшего технико-экономического анализа каждой из схем на основе их интегральных показателей, таких как расход природного урана, затраты работы разделения, потери ²³⁵U 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. Помимо этого, необходима проработка технологических проблем каждой из схем, в частности, с точки зрения возможности эксплуатации и обслуживания оборудования в условиях работы с материалами, имеющими более высокую, чем природный уран удельную активность.

Список литературы

- 1. Андрианова, Е. А. Перспективные топливные загрузки реакторов для замкнутого топливного цикла ядерной энергетики / Е. А. Андрианова, В. Д. Давиденко, В. Ф. Цибульский // Атомная энергия. 2015. июнь. т. 118, № 5. с. 243—247.
- 2. PRIS Home. https://pris.iaea.org/pris/home.aspx.
- 3. Agency, I. A. E. Uranium 2020 / I. A. E. Agency. 2021. c. 484.

- 4. World Distribution of Uranium Deposits (UDEPO). Vienna: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, 2018. (TECDOC Series; 1843).
- 5. Competition and Conflicts on Resource Use / ed. by S. Hartard, W. Liebert. Cham: Springer International Publishing, 2015.
- 6. Storing Spent Fuel until Transport to Reprocessing or Disposal. Vienna: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, 2019. (Nuclear Energy Series; NF-T—3.3).
- 7. *Кайгородцев*, *А. А.* Проблемы И Перспективы Развития Атомной Энергетики В Глобализированном Мире / А. А. Кайгородцев // Научное Обозрение. Экономические Науки. 2021. № 1.
- 8. Use of Reprocessed Uranium : Text. -02/2019. https://www.iaea.org/publication.
- 9. Б.В. Никипелов, В.Б. Никипелов, «Судьбы Уранового Регенерата», Бюллетень По Атомной Энергии, 9 (2002): 34.
- 10. Концепция По Обращению с Отработавшим Ядерным Топливом Госкорпорации «Росатом», Утвержденная Приказом Госкорпорации «Росатом» От 29.12.2008 № 721, с Изменениями От 15.09.2014 №1/871-П.
- 11. Economic Potential of Fuel Recycling Options: A Lifecycle Cost Analysis of Future Nuclear System Transition in China / R. Gao [et al.] // Energy Policy. 2017. Feb. Vol. 101. P. 526—536.
- 12. Recycling versus Long-Term Storage of Nuclear Fuel: Economic Factors / B. Y. Moratilla Soria [et al.] // Science and Technology of Nuclear Installations. -2013. July. Vol. 2013. e417048.
- 13. ECONOMICS OF NUCLEAR ENERGY PRODUCTION SYSTEMS : REACTORS AND FUEL CYCLE / J. Bouchard [et al.]. —.

Список публикаций автора

[1-11]

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, N 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. Proliferation Resistance Analysis of LWR Fuel in Terms of IAEA Safeguards Implementation / V. Gusev [μ др.] // AIP Conference Proceedings. 2019. anp. τ . 2101, N 1. c. 020007.
- 9. Influence of Uncertainties of Isotopic Composition of the Reprocessed Uranium on Effectiveness of Its Enrichment in Gas Centrifuge Cascades / A. Y. Smirnov [et al.] // J. Phys.: Conf. Ser. 2017. Jan. Vol. 781. P. 012018.
- 10. Features of Light-Water Reactor Fuel Made of Reprocessed Uranium in Terms of IAEA Safeguards Implementation / V. E. Gusev [et al.] // J. Phys.: Conf. Ser. -2018. Nov. Vol. 1133. P. 012041.
- 11. 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. физмат. наук					
Подписано в печать Заказ № Формат 60×90/16. Усл. печ. л. 1. Тираж 1 экз.					
Формат 60 х 90/10. Эсл. печ. л. 1. 1 ираж 1 экз. Типография					