МИНИСТЕРСТВО НАУКИ И ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ

Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования

«Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ» (НИЯУ МИФИ)



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» Диссертация на соискание учёной степени кандидата физико-математических наук

Научный руководитель: кандидат физико-математических наук, доцент Сулаберидзе Георгий Анатольевич Консультанты: кандидат физико-математических наук Смирнов Андрей Юрьевич кандидат технических наук Невиница Владимир Анатольевич

Оглавление

			Стр.
Введен	ние .		5
Глава	1. Ана	ализ литературы, патентов и обзор практики	
	обо	гащения регенерированного урана в	
	раз	вделительных каскадах	13
1.1	Пробл	иема $^{232,234,236}\mathrm{U}$ при обогащении регенерированного урана	13
1.2	Задач	а обогащения регенерированного урана с точки зрения	
	разде.	лительных технологий	15
1.3	Промі	ышленный опыт	19
1.4	Обзор	способов обогащения регенерата урана в каскадах	
	центр	ифуг	20
	1.4.1	Каскадные схемы с разбавлением четных изотопов	21
	1.4.2	Схемы с очисткой от $^{232}\mathrm{U}$. Двойные каскады	29
1.5	Вывод	цы из анализа предложенных способов обогащения	
	регене	ерированного урана	39
Глава	2. Осн	новные понятия и определения теории каскадов	41
2.1	Основ	вы теории разделения в каскадах	41
	2.1.1	Понятие разделительной ступени	41
	2.1.2	Симметричный противоточный каскад и система	
		уравнений, описывающих для него массоперенос в общем	
		виде	45
	2.1.3	«Квазиидеальный» каскад	47
	2.1.4	Каскад с несмешиванием относительных концентраций	
		двух заданных компонентов смеси (R -каскад)	49
	2.1.5	Анализ типичных постановок задач расчёта параметров	
		ординарного каскада на примере модельных каскадов	52
Глава	3. Ана	ализ физических ограничений для решения задачи	
	В О	рдинарных и двойных каскадах	55

			Стр.		
3.1	Модификации каскадных схем на основе ординарного каскада:				
	методическая часть				
	3.1.1	Схема с разбавлением природным ураном			
		предварительно обогащенного регенерата	60		
	3.1.2	Схема с разбавлением предварительно обогащенного			
		регенерата низкообогащенным ураном	64		
	3.1.3	Анализ схемы с разбавлением предварительно			
		обогащенного природного урана регенератом	66		
	3.1.4	Анализ схемы с разбавлением регенерата природным			
		ураном перед подачей в ординарный трехпоточный каскад	68		
	3.1.5	Аналитический подход к оценке возможности			
		использования модификаций ординарного каскада для			
		обогащения регенерированного урана в условиях			
		многократного рецикла	70		
	3.1.6	Общий вывод для схем возврата регенерата в ЯТЦ на			
		основе ординарного каскада	72		
3.2	Обосн	ование необходимости составных схем	73		
3.3	Двойн	ной каскад	74		
Глава	4. Mo	дификация двойного каскада для обогащения			
		енерированного урана в условиях многократного			
	-	цикла	79		
4.1	-	отка каскадной схемы для обогащения регенерированного			
		с одновременным выполнением условия на отношение			
	используемого регенерата по отношению к производимому				
		кту, а также ограничений на концентрации четных изотопов	79		
	4.1.1	Описание предлагаемой схемы			
	4.1.2	Анализ постановок задач и методика расчета каскадной			
		Схемы	84		
	4.1.3	Пример использования схемы для обогащения	01		
	11113	регенерированного урана с повышенным содержанием			
		четных изотопов	91		
4.2	Опенк	ка эффективности модифицированного двойного каскада	01		
1.4			93		
	по раз	вличным критериям	93		

			Стр.		
	4.2.1	Анализ закономерностей массопереноса изотопов урана в			
		двойном модифицированном каскаде	. 97		
	4.2.2	Выводы по результатам исследования эффективности			
		схемы модифицированного двойного каскада	. 103		
4.3	Анали	из «устойчивости» предложенного подхода обогащения			
	регенерата к изменению внешних условий				
	4.3.1	Анализ влияния ограничений предельно допустимой			
		концентрации ²³² U в товарном НОУ	. 104		
4.4	Общи	е выводы по результатам анализа схемы двойного каскада			
	с НОЯ	У-разбавителем	. 107		
4.5	Рассм	отрение различных возможностей утилизации легкой			
	фракі	ции второго каскада в схеме	. 109		
	4.5.1	Анализ возможности утилизации легкой фракции путем			
		ее перемешивания с регенератом, поступающим на			
		обогащение	. 109		
	4.5.2	Анализ возможности независимой утилизации побочного			
		продукта легкой фракции второго каскада схемы			
		двойного каскада с НОУ-разбавителем	. 118		
	4.5.3	Анализ возможности утилизации легкой фракции путем			
		ее перемешивания с обедненным ураном и последующим			
		обогащением	. 121		
Глава	5. Hoi	вые результаты	139		
Заклю	чение		. 133		
Списо	к сокр	ащений и условных обозначений	. 137		
Списо	к лите	ратуры	. 140		
Прило	жение		. 151		

Введение

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 к Br^* 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 ²³⁵U с концентрацией на уровне $\geq 0.85\%$ (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, $^{232}{\rm U}$ и $^{236}{\rm U}$. Кро-

ме того, как правило, возрастает и концентрация природного изотопа $^{234}\mathrm{U}.$ Изотоп ²³²U 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) ²³²U 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 $^{236}{
m U}$ 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 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. 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 сегодняш-

ний 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 $^{236}{
m U}.$ 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 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.

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 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:

- 1. Впервые предложены оригинальные методики расчета различных модификаций двойных каскадов, позволяющие корректировать изотопный состав регенерата по концентрациям изотопов ²³²U, ²³⁴U и ²³⁶U 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 про-изводством 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).

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

Объем и структура работы. Диссертация состоит из введения, четырёх глав, заключения и двух приложений. Полный объём диссертации составляет 159 страниц, включая 75 рисунков и 5 таблиц. Список литературы содержит 109 наименований.

Глава 1. Анализ литературы, патентов и обзор практики обогащения регенерированного урана в разделительных каскадах

1.1 Проблема ^{232,234,236}U при обогащении регенерированного урана

Регенерированный уран, являющийся основным источником делящихся материалов ОЯТ, может быть обогащен с использованием передового промышленного метода обогащения природного урана — газовой центрифуги — для производства на его основе так называемого регенерированного уранового топлива (РУТ).

Интерес к проблеме вовлечения регенерированного урана в топливный цикл существует уже не одно десятилетие. Первые работы, посвященные этой проблеме, относятся к 1970–1980-м годам [14—22]. Одновременно начали развиваться и подходы к обогащению регенерированного урана. В результате за последние 20 лет предложены различные варианты каскадных схем для обогащения регенерированного урана. Помимо этого, с использованием некоторых из предложенных каскадных схем проведен ряд исследований, направленных на изучение закономерностей многократного рецикла урана в составе РУТ и смешанных видов топлива легководных реакторов, в частности, типа ВВЭР [14; 23—25].

С обогащением регенерата связаны и некоторые сложности, обусловленные появлением в уране в процессе его облучения в реакторе нежелательных искусственных изотопов ^{232,234,236}U. Эти «четные» изотопы усложняют обогащение регенерата урана, поскольку их содержание в конечном товарном продукте – низкообогащенном уране – строго регламентировано, что требует очистки от них в процессе обогащения.

Наличие строгих ограничений на «четные» изотопы обусловлено их нейтронно-физическими и радиационными свойствами [23; 26; 27].

Для примера приведём изотопные составы регенерированного урана, соответствующего однократному облучению в реакторах ВВЭР-440 и ВВЭР-1000 (таблица 1).

Следует подчеркнуть, что нежелательные изотопы $^{232,234,236}{\rm U}$ не могут быть отделены от целевого $^{235}{\rm U}$ химическим путём. Поэтому единственная

ВВЭР	Массовое число	232	233	234	235	236
440	C, %	$6,62 \cdot 10^{-7}$	$1,19 \cdot 10^{-6}$	$3,28 \cdot 10^{-2}$	1,43	0,9932
1000	C, %	$1,03 \cdot 10^{-6}$	$1,3 \cdot 10^{-6}$	$3,91 \cdot 10^{-2}$	1,07	1,45

Таблица 1 — Изотопные составы регенерата первого цикла.

возможность решения проблемы состоит в коррекции изотопного состава регенерата в процессе его обогащения до нужного содержания $^{235}{
m U}.$

Кратко проанализируем нежелательные свойства изотопов 232,234,236 U. Изотоп 232 U является родоначальником длинной цепочки распадов, в которую входят нуклиды-излучатели жёстких гамма-квантов. Основным дочерним источником интенсивного гамма-излучения (2,6 МэВ) является короткоживущий 208 Tl ($t_{\frac{1}{2}}=3,65$ мин.) [28; 29]. Гамма активность облученного урана достигает своего пикового значения через ≈ 10 лет после извлечения облученной тепловыделяющей сборки (ОТВС) из активной зоны реактора [30].

Изотоп 234 U является активным α -источником, который присутствует и в уране природного происхождения. Однако в регенерированном уране его содержание оказывается выше, чем в природной смеси [28; 31]. При этом, 234 U, лишь частично выгорает в ходе облучения на протяжении реакторной кампании [30]. Поэтому действующие технические условия ограничивают содержанием данного изотопы во избежании осложнения радиационной обстановки при обращении с низкообогащенным ураном, в первую очередь, на заводах по изготовлению ядерного топлива.

 236 U, являясь паразитным поглотителем тепловых нейтронов, препятствует развитию цепной ядерной реакции, тем самым ухудшая нейтронно-физические свойства ядерного топлива. Кроме того, после захвата нейтрона изотопом 236 U конечным продуктом цепочки его распада является изотоп 232 U [32]. Этот фактор способствует росту концентрации 232 U при многократном рецикле урана. Эффект отравления реактора, заключающийся в снижении его реактивности из-за захвата нейтронов изотопом 236 U, должен быть скомпенсирован дополнительным количеством делящегося 235 U в топливе. Для обеспечения требуемого эквивалента уровня обогащения по 235 U, к заданной концентрации 235 U в продукте для случая обогащения природного урана необходимо обеспечить добавку делящегося 235 U. Ее величина определяется концентрацией 236 U: $(C_{235,P})_{\mathfrak{RE}} = (C_{235,P})_{npup} + \Delta C_{235}$, где ΔC_{235} соответствует некоторой функции. В простейшем случае компенсирующую добавку рассчитывают как линейную

функции от концентрации 236 U: $f(C_{236,P}) = K_{236} \times C_{236,P}$, где K_{236} – это коэффициент компенсации реактивности. Его значение в зависимости от нейтронных характеристик топливной кампании может находиться в пределах 0,2–0,6 [18; 33; 34].

Отметим также, что 234 U имеет тенденцию захватывать нейтрон и превращаться в делящийся 235 U, что должно уменьшить необходимую компенсацию 236 U [35]. Однако во многих расчетных исследованиях этот фактор не учитывается ввиду его слабого влияния.

1.2 Задача обогащения регенерированного урана с точки зрения разделительных технологий

Специфика задачи обогащения регенерированного урана заключается в том, что она представляет собой более сложную разделительную проблему, чем, обогащение природного урана. Это обусловлено тем, что, регенерированный уран нельзя рассматривать как квазибинарную изотопную смесь, что усложняет процесс разделения. Кроме того, помимо обогащения целевого изотопа – 235 U, при решении этой задачи необходимо одновременно выполнить ограничения на еще три изотопа – 232 U, 234 U и 236 U.

В этой связи, начиная с 1980-х годов появляются публикации и патенты, направленные на поиск эффективного решения задачи обогащения регенерированного урана [14; 15; 17; 18; 36—39]. Однако для многих из них теоретическое обоснование проводили, опираясь на относительно «чистый» состав регенерата, соответствующий ОЯТ реакторов ВВЭР-440 или РБМК. С развитием новых поколений реакторов и изменением характерных для них глубин выгорания и уровней обогащения используемого топлива многие из предложенных на текущий момент способов не могут эффективно решить рассматриваемую задачу. Другим немаловажным фактором является то, что в большинстве предложенных способов подразумевается, что обогащению подлежит регенерат, который получен из облученного топлива, изготовленного из природного урана. В настоящий же момент активно изучают вопросы многократного рециклирования урана, когда регенерированное урановое топливо восстанавливается и исполь-

зуется несколько раз [40; 41]. Суть этого процесса можно пояснить на схеме рисунка 1.1.



Рисунок 1.1 — Схема многократного рециклирования урана



Рисунок 1.2 — Схема ординарного трехпоточного каскада. F – поток питания; P – поток отбора; W – поток отвала.

В соответствии со схемой рис. 1.1 предполагаем, что первичная загрузка реактора осуществлена топливом, изготовленном из обогащенного природного урана. Далее, при обогащении регенерированного урана природный уран используется в качестве материала подпитки, обеспечивающего необходимое количество дополнительного 235 U для изготовления требуемой массы свежего топлива. Далее, процесс рецикла урана с добавлением природного сырья повторяют N раз. Заметим, что материал подпитки необходим в рассматриваемой принципиальной схеме рецикла, так как в реакторе на тепловых нейтронах не достижимо расширенное воспроизводство ядерного топлива, из-за того, что

коэффициент воспроизводства делящегося нуклида ²³⁵U в таком типе реакторов меньше единицы [42]. При этом очевидно, что природный уран является наиболее удобным материалом для добавлению к регенерату при производстве топлива новой загрузке. Тем не менее, вместо природного урана можно использовать и другие доступные урановые смеси, в которых либо очень низкая, либо нулевая концентрация четных изотопов. Например, это может быть НОУ с обогащением 1-1,5%, обедненный уран и др.

Как следует из анализа результатов исследований, посвященных вопросам многократного рецикла урана в топливе легководных реакторов, в ходе рециклирования происходит рост (до нескольких раз) концентраций четных изотопов в регенерате после облучения в реакторе [23]. При этом ввиду относительной малости концентрации 232 U на первом (или, в некоторых случаях, на первых двух) рециклах не происходит достижения концентрацией этого изотопа предельных значений в финальном продукте [43]. После роста концентраций четных изотопов на первых рециклах, наблюдается их постепенный выход на «плато», начиная с \approx 3-го рецикла, что обусловлено фиксацией концентрации изотопа 232 U в продукте на уровне $5\cdot 10^{-7}\%$, что доказывает возможность многократного рециклирования облученной урановой топливной составляющей.

Таким образом, при анализе вопросов замыкания топливного цикла реакторов на тепловых нейтронах с использованием регенерированного урана необходимо учитывать такие факторы, как общая тенденция к повышению глубины выгорания в современных реакторах, так и рост концентраций четных изотопов в процессе рециклирования урана [44]. Это факторы делают актуальными разработку каскадных обогатительных схем, позволяющих эффективно использовать регенерированный уран при производстве товарного НОУ с учетом всех описанных выше требований и ограничений, в том числе, в условиях многократного рецикла урана.

Отметим ещё один важный фактор. Очевидно, что для извлечения максимальной выгоды из осуществляемой переработки ОЯТ, целесообразно максимально вовлекать в повторное использование весь выделенный из него регенерат. Это означает, что если рассматривать отдельный реактор, то логично при получении НОУ из регенерированного урана использовать при его производстве весь выделенный из ОЯТ этого же реактора регенерат. Это будет означать, во-первых, минимизацию потерь ²³⁵U в топливном цикле, во-вторых, максимально эффективное использование потенциала ОЯТ для воспроизвод-

ства топлива, а, в-третьих, отсутствие нежелательного накопления регенерата на складах [45]. При этом следует сделать акцент на том, что подобное условие не является физическим требованием, а скорее призвано повысить эффективность замыкания топливного цикла реакторов на тепловых нейтронах по урановой составляющей. Схематично это условие иллюстрирует рисунок 1.3.



Рисунок 1.3 — Схема замыкания урановой топливной составляющей

Учитывая сказанное выше, задача обогащения регенерата в общем случае может быть сформулирована как: получение заданной массы товарного НОУ требуемого обогащения по ²³⁵U из сырьевого регенерата урана (в том числе многократно рециклированного) с одновременным выполнением ограничений на концентрации четных изотопов при условии расходования всей массы регенерата, выделенного из ОЯТ данного реактора.

Таким образом, с обогащением регенерата урана в каскадах газовых центрифуг связаны определенные сложности, требующие модификации подходов, принятых на разделительных производствах при обогащении природного урана. Все перечисленные факторы обуславливают актуальность разработки в области поиска оптимальных каскадных схем для обогащения регенерированного урана с учетом требований, предъявляемых к получаемому продукту — НОУ.

Оптимальность той или иной каскадной схемы зависит от выбранных критериев эффективности. В качестве таких критериев, как правило, используют минимум затрат работы разделения и расхода природного урана для получения единицы товарного НОУ. Эти характеристики в значительной мере определяют величину удельных затрат на получение товарного НОУ.

1.3 Промышленный опыт

Возврат урана в топливный цикл по представленной выше схеме опирается на три ключевые технологии:

- 1. Радиохимическую переработку ОЯТ;
- 2. Изотопное обогащение регенерированного урана;
- 3. Изготовление топлива на основе восстановленного отработавшего топлива.

Что касается первого пункта, в странах, лидирующих в развитии ядерных технологий, с середины прошлого века широко используется технология гидрометаллургической переработки облученного топлива, называемая PUREX [46]. В России, технологии связанные с переработкой ОЯТ развиваются особенно успешно благодаря ориентированности отрасли на замыкание ЯТЦ [47; 48]. В виду такого стратегического курса отечественной атомной отрасли, запланирован ввод новых мощностей, которые расчитаны на переработку принимаемого ОЯТ из-за рубежа [49]. С 2016 г. на «ФГУП ПО «МАЯК» осуществляется переработка партий ОТВС ВВЭР-1000 [50].

Что касается технологии изотопного обогащения урановых смесей, российская атомная промышленность имеет опыт обогащения регенерированного урана из реакторов ВВЭР-440, который затем использовался в качестве топлива РБМК [51]. Для этого используют метод прямого обогащения в трехпоточной каскадной схеме. Такая схема реализована для производства исходного сырья для изготовления топлива РБМК на заводе РТ-1 [52]. Этот вариант также апробирован для изготовления опытных тепловыделяющих сборок (ТВС) для реакторов ВВЭР, требующих более высокого уровня обогащения [26].

Что касается заключительного пункта, Росатом на одном из заводов фабрикации ядерного топлива осуществлял изготовление опытных образцов

тепловыделяющих сборок в том числе на основе зарубежного облученного топлива (из Франции) с повышенным содержанием ²³²U [53].

Имеющийся в России опыт рециклирования ядерного топлива базируется на смешении регенератов урана, извлекаемых из ОЯТ ВВЭР и ОЯТ транспортных реакторов с высоким содержанием ²³⁵U [54].

При этом зарубежный опыт базируется на однократном использовании MOX-топлива [54].

Таким образом, сложившаяся к текущему моменту в России научно-производственная база с наращиваемыми объемами промышленных разделительных мощностей, основанных на центробежном методе разделения, является основным аргументом в пользу готовности к вовлечению регенерата в топливный цикл легководных реакторов.

Однако, для практической реализации долгосрочных планов отрасли по замыканию ЯТЦ и расширению предложения международных топливных поставок, что предусматривает многократное рециклирование делящихся материалов, необходимо решить задачу возврата регенерата в ЯТЦ, подразумевая наличие вышеизложенных ограничений [55; 56].

Для анализа возможности решения задачи рецикла урана в рамках поставленных ограничений с помощью ранее предложенных схем, перейдем к их подробному рассмотрению.

1.4 Обзор способов обогащения регенерата урана в каскадах центрифуг

Ниже приведены результаты критического анализа основных из предложенных к настоящему моменту каскадных схем, что позволяет охарактеризовать их достоинства и недостатки, и сделать вывод о возможности их использования для решения задачи обогащения регенерата урана в условиях его многократного рецикла в топливе современных реакторов на тепловых нейтронах.

Очевидно, что непосредственное применение штатной схемы обогащения – ординарного или трехпоточного каскада имеет в рассматриваемом случае существенные ограничения и в общем случае поставленную задачу не решает.

Главная причина состоит в том, что подобный каскад имеет всего один выходящий поток отбора, в котором, одновременно будут концентрироваться, как целевой ²³⁵U, так и четные изотопы. В результате ординарный каскад позволяет лишь обогащать относительно «чистые» составы регенерата, в которых исходные содержания четных изотопов меньше (на порядок или более), чем их допустимые пределы в товарном НОУ. Однако эти условия, очевидно, невыполнимы при многократном рецикле урана. Проведенные сравнительный анализ предложенных способов обогащения регенерата позволяет условно разделить их на 3 типа: схемы с разбавлением четных изотопов, схемы с отделением четных изотопов, «гибридные» схемы. Ниже проанализированы каскадные схемы каждого из указанных типов. В Приложении представлены результаты тестовых расчётов обогащения регенерата различного исходного состава для большинства рассмотренных ниже схем с целью оценки их эффективности для решения поставленной задачи.

1.4.1 Каскадные схемы с разбавлением четных изотопов

Ряд из предложенных каскадных схем обогащения регенерата в качестве основного фактора, корректирующего изотопный состав регенерата в процессе его обогащения, используют разбавление четных изотопов урановой смесью, которая их не содержит. В качестве таких разбавителей чаще всего рассматривают природный уран, однако это могут быть также обедненный или низкообогащенный уран.

Простейшие схемы с разбавлением основаны на использовании штатного ординарного каскада. Рассмотрим такие схемы, которые могут быть реализованы следующими способами (рис. 1.4) [17; 18; 36; 37]:

- 1. Смешивание регенерированного урана и природного (или обедненного) урана перед подачей в каскад рис. (рис. 1.4.1).
- 2. Получение обогащенной фракции из регенерата и последующее ее разбавление природной урановой смесью (рис. 1.4.2).
- 3. Получение НОУ из природного урана путем его прямого обогащения, с последующим разбавлением регенератом (рис. 1.4.3).

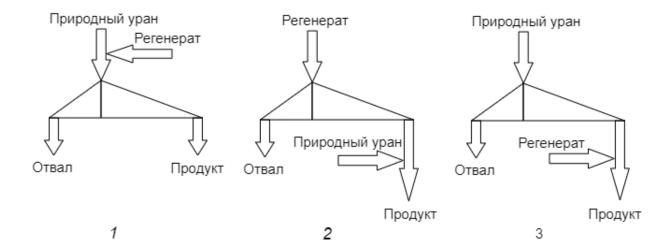


Рисунок 1.4 — Схемы на основе ординарного каскада

Для всех вариантов схем рис. 1.4 сотношение между расходом регенерата и разбавителем природного происхождения определяется пределом допустимой концентрации 232 U в конечном продукте — низкообогащенном уране. Также компенсируется отрицательная реактивность 236 U с помощью добавочной концентрации 235 U к той, что требуется для НОУ-топлива с заданными свойствами.

Основным преимуществом таких схем является простота реализации, поскольку нет необходимости в модификации самого каскада, так как операции разбавления осуществляются за его пределами.

В качестве недостатков таких схем можно выделить:

- 1. отсутствие возможности очищать регенерированный уран от четных изотопов, так как такие схемы основаны исключительно на разбавлении четных изотопов до допустимых концентраций;
- 2. потери работы разделения, возникающие из-за смешения потоков с различными изотопными концентрациями $^{235}\mathrm{U};$
- 3. невозможность выполнения условия «полного использования регенерированного урана» при многократном рецикле [43] (см. Приложение/глава 3);
- 4. выполнение ограничений по концентрации ²³²U в продукте напрямую зависит от концентрации указанного изотопа в поступившем на обогащение регенерате;
- 5. для схем рис. 1.4.1–1.4.2 имеет место загрязнение 100% задействованных в обогащении регенерированного урана разделительных мощностей, что делает проблематичным их дальнейшее «перепрофили-

рование» на обогащение природного урана, по крайней мере в случае длительной (в течение нескольких лет) работы с регенерированным ураном.

Подытоживая рассмотрение простейших разбавляющих схем обогащения регенерата можно отметить, что их использование не позволяет очищать регенерат от чётных изотопов, вся масса которых в значительной мере переносится в отбор каскада, что затрудняет использование таких схем в условиях многократного рецикла, когда концентрации чётных изотопов возрастают. Поэтому такие каскадные схемы потенциально применимы только для обогащения относительно «чистого» состава регенерата, в котором содержание ²³²U меньше допустимой нормы на порядок и более, что нехарактерно для изотопных составов выгружаемого из активной зоны современных ВВЭР облученного топлива при многократном рецикле урана [57].

Другие варианты каскадных схем с разбавлением чётных изотопов основаны на использовании так называемых многопоточных каскадов [58]. В отличие от предыдущих вариантов в рассматриваемом случае разбавление регенерата осуществляют непосредственно в каскаде путем подачи одного или нескольких разбавителей в качестве дополнительного питания каскада параллельно с самим регенерированным ураном. Подобное разбавление одним или несколькими разбавителями можно осуществить в каскадах с двумя или тремя внешними питаниями (рисунки 1.5, 1.6).



Рисунок 1.5 — Каскад с дополнительным потоком питания

Ключевые отличие от рассмотренных выше схем на основе ординарного каскада в этих случаях состоит в том, что разбавление регенерата происходит



Рисунок 1.6 — Каскад с тремя потоками питания

непосредственно внутри каскада. При этом подача разбавителя (лей) в каскад в виде дополнительных потоков питания преследует цель минимизации потерь работы разделения при смешивание потоков с различным содержанием изотопа 235 U. Это достигается за счет подачи потоков регенерированного урана и разбавителя в ступени каскада с близкими концентрациями изотопа 235 U. На рисунке 1.5 изображен вариант каскада с двумя питаниями: обогащаемый регенерированный уран, разбавитель – природный уран. Как следует из результатов исследования [23] в условиях многократного рецикла в топливе ВВЭР данная схема не способна обеспечить выполнение условия «полного использования регенерата», начиная со второго или третьего рецикла в зависимости от заданной величины допустимой концентрации 232 U в товарном НОУ ($2 \cdot 10^{-7}$ % или $5 \cdot 10^{-7}$ %) [40; 41].

Схема, представленная на рисунке 1.5 является чуть более сложной, но также является разбавляющей. Основное отличие от предыдущего варианта состоит в том, что разбавление регенерированного урана осуществляют с использованием комбинации разбавителей [59]. В одном из вариантов наряду с природным ураном для разбавления в каскад подают обедненный уран. В других случаях, наоборот, природный уран может быть заменен НОУ с обогащением 1,0–2,0% [60].

Использование комбинации разбавителей позволяет при заданных требованиях к продукту варьировать ключевые интегральные характеристики схемы: удельный расход природного урана и затраты работы разделения при получении товарного НОУ. Однако как и в случае с другими разбавляющими каскадными схемами при увеличении исходных концентраций четных изотопов в регенерате эффективность рассматриваемых схем с дополнительными питаниями снижается, а начиная с определенных концентраций ²³²U подобные схемы не могут обеспечить условие полного использования регенерата, тем самым не решая сформулированную выше в общем случае задачу обогащения регенерата. Ключевая причина снижения эффективности состоит в том, что данная схема, как и все предыдущие варианты имеет лишь один выводной поток, обогащенный по легким компонентам. В этом потоке неминуемо одновременно с целевым изотопом ²³⁵U концентрируются и все четные изотопы, включая ²³⁶U. Таким образом, комбинирование разбавителей лишь дает возможность варьировать расходные характеристики схемы, но не корректировать изотопный состав получаемого продукта. Невозможность решения задачи обогащения регенерированного урана произвольного состава в разбавляющих каскадных схемах легко проиллюстрировать аналитической оценкой, основанной на условии баланса материальных потоков в каскаде. Как известно, в стационарном режиме работы, в отсутствии потерь или источников рабочего вещества, внешние параметры ординарного каскада подчиняются следующим условиям, выражающим закон сохранения вещества [61]:

Как известно, в стационарном режиме работы, в отсутствии потерь или источников рабочего вещества, внешние параметры ординарного каскада подчиняются следующим условиям, выражающим закон сохранения вещества:

$$F = P + W,$$

$$FC_{i,F} = PC_{i,P} + WC_{i,W}, i = 1,2,...,m.$$
(1.1)

где F – поток питания каскада, P – поток отбора каскада, W – поток отвала каскада, $C_{i,F},\,C_{i,P},\,C_{i,W},\,$ – концентрации і-го компонента в потоках F, P и W, соответственно, m – число компонентов разделяемой смеси.

В случае, если регенерат подают в каскад совместно с разбавителем (например, природным ураном), независимо от способа его подачи в каскад выполняется следующее соотношение, выражающее закон сохранения і-го компонента смеси:

$$EC_{i,F} + E_{nat} \cdot C_{i,F_{nat}} = PC_{i,P} + WC_{i,W}, i = 1,2,...,m.$$
 (1.2)

где E – поток питающего каскад регенерата, $F_{nat.}$ – поток природного урана с концентрациями компонентов, которые равны нулю для изотопов 232 U, 233 U, 236 U. Следует отметить, что 233 U является еще одним искусственным изотопом урана, однако его присутствие не оказывает негативного влияния на характеристики НОУ. Напротив, его свойства близки к 235 U, но в силу малости его содержания (на уровне $10 \cdot 10^{-8}$ – $10 \cdot 10^{-7}$ %), данным фактором можно пренебречь.

Довольно очевидно, что изотоп 232 U, как наиболее легкий в разделяемой смеси, будет наиболее интенсивно обогащаться в отборе каскада и обедняться в его отвале. При этом для стандартных значений концентраций 235 U в отвале каскада (0,1–0,2%) для концентрации 232 U в этом потоке будет справедливо условие (индекс «1» соответствует изотопу 232 U). Учитывая условие W<F, из соотношения 1.2 легко получить следующее:

$$C_{232,P} \approx \frac{E}{P} C_{232,E}$$
 (1.3)

Из соотношения 1.3 следует, что если необходимо выполнить условие «полного использования регенерата» и обеспечить величину $\frac{E}{P}\approx 0,95,$ что характерно для случая возврата регенерата из ОЯТ реакторов ВВЭР, то величина концентрации может быть только больше соответствующего значения в исходном регенерате. По этой причине с использованием «разбавляющих» схем каскадов возможно обогащение только некоторых составов регенерата, соответствующих малым (до 40 МВт сут/кг) глубинам выгорания топлива и характеризующихся приемлемым исходным содержанием изотопа 232 U.

Однако для современных величин глубины выгорания топлива, концентрация 232 U даже в исходном регенерате может изначально превосходить величину ограничения. Например, это характерно для многократно рециклированного урана. Изменить эту ситуацию невозможно ввиду отсутствия параметров, позволяющих уменьшать относительную концентрацию изотопов 232 U и 235 U одновременно с обогащением последнего (и здесь и далее под относительной концентрацией компонентов понимаем отношение их абсолютных массово-долевых концентраций).

Проделанный анализ показывает, что выполнение условия «полного использования регенерата» возможно только, если концентрация ²³²U в исходном регенерате не превышает требуемого ограничения на выходе из каскада. Это может оказаться невыполнимым условием для случая многократного рецикла урана в топливе ВВЭР, при котором концентрация ²³²U в исходном регенерате, как правило, превышает допустимые ограничения уже начиная со второго

рецикла [40; 41]. Данное обстоятельство фактически делает невозможным использование любого из описанных выше вариантов разбавляющих схем для решения сформулированной выше задачи обогащения регенерата урана в условиях многократного рецикла.

Помимо описанных выше вариантов разбавляющих каскадных схем, предложены и более сложные подходы, позволяющие с оговоркой получить очищенный регенерированный уран. Эффект очистки состоит в том, что в таком способе возможно получить регенерированный уран с концентрацией ²³⁵U, как в исходной смеси, но существенно сниженным содержанием четных изотопов. Пример такой каскадной схемы представлен на рисунке 1.7. Она представляет собой каскад с дополнительными питанием и дополнительным отбором [62]. Основным питанием каскада выступает разбавитель, в предложенном варианте - природный уран. Дополнительным питанием выступает обогащаемый регенерат. В отборе на конце такого каскада получают поток НОУ товарного качества. Поток дополнительного отбора представляет собой «очищенный» от чётных изотопов регенерат. Из полученного в дополнительном отборе полупродукта в дальнейшем может быть наработан товарный НОУ, для чего схему надо будет модифицировать, добавив еще один каскад.

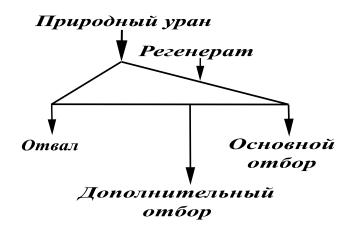


Рисунок 1.7 — Каскад с дополнительным потоком отбора для очистки регенерированного урана от минорных изотопов

По существу своей работы представленная на рисунке 1.7 каскадная схема является модификацией рассмотренной ранее схемы с двумя потоками питания. Отличие заключается в наличии потока дополнительного отбора, в котором получают очищенный регенерат. Однако наличие этого потока накладывает

определенные ограничения на соотношения между потоками природного урана и регенерата, поступающих в каскад. Это обусловлено тем, что заметного снижения содержания минорных изотопов в дополнительном отборе можно добиться лишь при значительном разбавлении регенерата природным сырьем, в соотношениях, лежащих в диапазоне (1-25)/100 [36; 62]. Фактически это означает, что основной эффект «очистки» здесь также обусловлен разбавлением и включением дополнительного отбора на ступени с концентрацией ²³⁵U, близкой к таковой в исходном регенерате. При этом в схеме не происходит фактического отделения ²³⁵U от четных изотопов. Важно также отметить, что в представленных в [62] расчётных примерах эффективность такой схемы проверяли на примере состава регенерата с относительно невысоким содержанием изотопа ²³²U. Проведенные в рамках настоящей работы тестовые расчёты на примере обогащения повторно рециклируемого регенерата показали её неспособность решить в общем случае задачу обогащения регенерата, что затрудняет использование такой схемы для его многократного рецикла (см Приложение 1).

Таким образом, рассматриваемая каскадная схема не может обеспечить решение сформулированной выше задачи обогащения регенерата в условиях многократного рецикла по тем же причинам, по которым подобную задачу не решают и другие «разбавляющие» схемы. Отдельного анализа требует также вопрос использования получаемого в дополнительном отборе очищенного регенерированного урана. В зависимости от входящего состава обогащаемого регенерированного урана данный материал может быть не пригоден для последующего прямого обогащения в ординарном каскаде, что ставит под сомнение целесообразность получения такого материала в принципе. Подытоживая проведенный краткий анализ способов обогащения регенерата, основанных на его разбавлении, отметим их общие достоинства и недостатки.

К достоинствам подобных схем можно отнести следующее:

- 1. позволяют снижать концентрацию четных изотопов при обогащении регенерата различного исходного состава;
- 2. относительная простота реализации на основе центробежного метода разделения;
- 3. в большинстве вариантов реализации «разбавляющие» схемы позволяют осуществить процесс обогащения без превышения допустимых концентраций четных изотопов на отдельных ступенях каскада.

К недостаткам «разбавляющих» схем можно отнести следующее:

- 1. эффект снижения концентрации четных изотопов в таких схемах связан преимущественно с их разбавлением продуктами, не содержащими четных изотопов (природный уран, обедненный уран, НОУ из природного урана), что делает невозможным решение сформулированной выше задачи обогащения регенерированного урана в условиях многократного рецикла урана в топливе современных реакторов на тепловых нейтронах;
- 2. для большинства вариантов разбавляющих схем происходит загрязнение 100% разделительного оборудования, что может затруднить последующее его использование для обогащения смесей урана, не содержащих изотопов 232 U и 236 U.

Описанные выше недостатки «разбавляющих» схем стимулировали развитие иных подходов к обогащению регенерированного урана, которые описаны ниже.

1.4.2 Схемы с очисткой от ²³²U. Двойные каскады

Простейшим вариантом каскада, реализующим отделение ²³²U от ²³⁵U в процессе обогащения регенерата является двойной каскад – последовательное соединение двух каскадов (рис. 3.12).



Рисунок 1.8 — Двойной каскад

Подобные каскадные схемы можно условно назвать «очищающими» от чётных изотопов. Идея работы подобных каскадов заключается в том, чтобы сконцентрировать нежелательные четные изотопы отдельно от целевого изотопа — 235 U. В отличие от рассмотренных выше схем с разбавлением четных изотопов в данном случае действительно может быть реализована очистка от них (хотя бы частично).

В простейшем варианте реализации отделение четных изотопов от 235 U может быть осуществлено следующим образом. Сначала, в первом каскаде обогащают изотоп 235 U с одновременным обогащением изотопов 232 U, 234 U и 236 U, затем полученную смесь направляют на вход второго каскада, 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. Таким образом, в условном «отвале» второго каскада возможно получить низкообогащенный уран, отвечающий требованиям по концентрациям изотопов 232 U, 234 U с одновременной компенсацией 236 U.

Возможны варианты реализации двойного каскада, в которых изотоп 235 U) обогащают в потоке тяжелой фракции второго каскада. Например, в одной из модификаций двойного каскада перед отделением «легких» изотопов от 235 U во втором каскаде, на выходе из первого каскада максимально обедняют изотоп 236 U по отношению к изотопам 232 U 235 U. В этом случае во втором каскаде 235 U можно обогащать на «тяжелом» конце каскада с последующим разбавлением материалом, не содержащим четных изотопов, например, обедненным ураном. В результате в получаемом товарном НОУ снижены не только концентрации изотопов 232 U и 234 U, но и 236 U, что крайне важно в условиях многократного рецикла урана, в котором 236 U, будучи предшественником 232 U в цепочке превращений, определяет динамику накопления изотопа 232 U в ОЯТ [23].

Однако заметного эффекта очистки удается достичь только при высоких обогащениях по 235 U на выходе из первого каскада (вплоть до 90%). Это оказывается крайне нежелательным с учетом того, что согласно нормативным документам МАГАТЭ урановая смесь с концентрацией 232 U более 20% считается материалом прямого использования [63]. Кроме того, в загрязненной фракции второго каскада концентрации 232 U и 234 U возрастают на несколько порядков по отношению к исходной смеси, тем самым делая затруднительным обращение с подобной фракцией из-за существенного уровня удельной активности.

К основным достоинствам схем на основе двойных каскадов следует отнести:

- 1. возможность очистки (хотя бы частично) продукта от изотопов 232 U и 234 U, а не разбавления как в случае с ранее рассмотренными схемами;
- 2. возможность обеспечить выполнение условия компенсации ²³⁶U в получаемом товарном продукте.

Среди основных недостатков схем на основе двойных каскадов можно выделить следующие:

- 1. получаемый в отборе второго каскада изотопный материал представляет собой «концентрат» изотопов ²³²U и ²³⁴U, что усложняет радиационную обстановку на разделительном производстве;
- 2. из-за высоких обогащений в схеме возникают потери работы разделения, поскольку высокообогащенный в первом каскаде поток урана приходится обеднять во втором каскаде, а в некоторых случаях ещё и разбавлять обедненным ураном;
- 3. в наиболее простых модификациях двойные каскады не решают проблему очистки от изотопа $^{236}\mathrm{U};$
- 4. в простейшем варианте данная схема не обеспечивает заданного отношения между исходным регенератом и продуктом, что делает невозможным выполнение условия полного использования регенерата.

Тем самым схема фактически не решает задачу обогащения урана в наиболее общей постановке. Отметим, что ввиду отсутствия в простейших вариантах двойных каскадов других источников ²³⁵U, кроме самого регенерата, для наработки требуемой массы товарного НОУ для фабрикации комплекта ТВС на загрузку реактора, необходимо привлечение НОУ, полученного из других источников. В частности, недостающее количество НОУ может быть получено путем прямого обогащения природного урана до эквивалентной концентрации ²³⁵U.

Помимо описанного выше варианта двойных каскадов предложены и более сложные. Рассмотрим кратко наиболее характерные варианты. В работе [39] предложена модификация двойного каскада, состоящая в том, что для эффективного удаления 232 U из обогащаемой смеси предложено использовать так называемый «газ-носитель» или «буферный газ» — инертное соединение, имеющее массовое число, близкое к молекуле 232 UF₆ (рис. 1.9) [64; 65]. Процесс удаления 232 U в такой схемы осуществляют следующим образом: первый каскад выделяет 235 U в отборную фракцию, при этом в этом же потоке обогащен и

 232 U, а во втором каскаде 232 U вместе с потоком буферного газа концентрируют на «легком» конце каскада, а товарный продукт (обогащенный изотопом 235 U) отбирают на его отвальном («тяжелом») конце (рисунок 1.9). «Газ-носитель», примешиваемый к отбору первого каскада перед подачей его во второй каскад увеличивает долю легкой фракции в каскаде и способствует более интенсивному концентрированию 232 U в потоке отбора второго каскада. В результате, это уменьшает концентрацию данного изотопа в потоке тяжелой фракции второго каскада, из которого получают требуемый НОУ. В качестве «газа-носителя» предложено использовать фреон $C_8H_3F_{13}$, среднее массовое число для которого практически совпадает с массовым числом компонента 232 UF₆.



Рисунок 1.9 — Каскад с газом-носителем

Данная каскадная схема имеет схожие достоинства и недостатки с описанным выше вариантом двойного каскада. Характерным отличием схемы с газом-носителем является более высокая степень извлечения ²³⁵U и более высокая степень очистки от ²³²U. С другой стороны, рассматриваемая схема имеет и характерные недостатки, которые заключаются в следующем:

1. отделение ²³²U от ²³⁵U за счет использования «газа-носителя» провоцирует рост концентрации ²³⁶U в получаемом товарном НОУ. Данное обстоятельство может иметь негативные последствие в условиях много-кратного рецикла урана в топливе реакторов на тепловых нейтронах. Это связано с тем, что рост концентрации ²³⁶U на каждом рецикле будет способствовать росту концентрации ²³²U [23];

2. использование «газа-носителя» на разделительном производстве требует создания отдельной инфраструктуры по обращению с ним, а также отделению от него товарного гексафторида урана, что может сказаться на величине удельных затрат на получение товарного НОУ;

Рассмотрим некоторые другие модификации двойных каскадов. В работе [66] предложен вариант двойного каскада, состоящего из последовательно соединенных ординарного каскада и каскада с двумя внешними питаниями и дополнительным (промежуточным) потоком отбора (рис. 1.10).

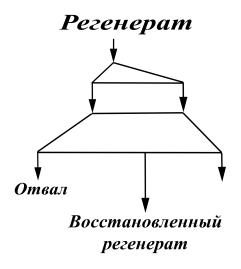


Рисунок 1.10 — Двойной каскад на основе пятипоточного каскада, производящий восстановленный регенерат в промежуточном потоке отбора

Как следует из рисунка 1.10 потоки отбора и отвала первого каскада поступают в качестве двух питаний второго каскада. Такая организация потоков между каскадами позволяет добиться разделения исходной смеси на группы, компоненты которых концентрируются в различных частях второго каскада. В итоге на внутренних ступенях оказывается сконцентрирован ²³⁵U, откуда его можно отобрать, использую включенный здесь дополнительный поток отбор. На концевых ступенях происходит отбор обедненного урана в потоке отвала второго каскада, а на другом конце каскада, в потоке лёгкой фракции получают поток, загрязненный изотопами ²³²U, ²³⁴U, который фактически является

отходом рассматриваемой каскадной схемы. Тем не менее, в отличие от ранее рассмотренных вариантов двойного каскада в рассматриваемой схеме возможно избежать появления фракции, высокообогащенной по 235 U, что важно с точки зрения вопросов обеспечения ядерного нераспространения. Однако, в соответствии с результатами [66] поток легкой фракции второго каскада имеет обогащение по 235 U на уровне 20,0%, что означает потери изотопа 235 U в этом потоке. При этом обогащение 235 U в потоке отбора первого каскада составляет величины в диапазоне 5,0-10,0%.

Таким образом, в данной схеме удается снизить потери работы разделения по сравнению с простейшими модификациями двойных каскадов. Однако остальные недостатки двойных каскадов присущи также и данной схеме.

Завершая обзор наиболее характерных вариантов двойных каскадных схем, отметим следующее. Ключевым достоинством двойных каскадов является то, что они позволяют менять соотношения между концентрациями четных изотопов и ²³⁵U. Иными словами в них происходит очистка, а не разбавление регенерата. Это обстоятельство особенно важно при рассмотрение вопросов обогащения регенерата в условиях его многократного рецикла, когда концентрации чётных изотопов урана возрастают от рецикла к рециклу.

Однако двойные каскады имеют и ряд общих недостатков, среди которых можно выделить:

- наличие отхода в виде фракции, загрязненной четными изотопами. Выработка стратегии по обращению с этой фракцией требует отдельных исследований. При этом наличие таких загрязненных фракций приводит к необходимости введения дополнительных мер радиационной безопасности на производстве. В результате практическая реализации подобных мер может изменить технологические подходы, принятые на разделительных производствах и, соответственно, повлиять на удельные затраты при производстве товарного НОУ;
- двойные каскады сами по себе принципиально не могут решить задачу «полного использования регенерата», поскольку принципиально производят продукта, в несколько раз меньше, чем требуется. Это обусловлено тем, что они не практически не используют других источников изотопа ²³⁵U, кроме регенерированного урана, содержания ²³⁵U в котором недостаточно для формирования новой загрузки реактора из ОЯТ которого он был выделен. Учитывая выше сказанное, с использованием

двойных каскадов возможно обеспечить получение только части ТВС для новой загрузки реактора. Недостающая масса НОУ может быть получена, например, из природного урана путём его обогащения в ординарном каскаде.

Гибридные схемы каскадов для обогащения регенерата урана

Учитывая, что двойные каскады в общем случае не могут полностью решить сформулированную выше задачу обогащения регенерата, к настоящему моменту предложены способы обогащения регенерата урана, в которых сочетаются характерные особенности каскадных схем с разбавлением чётных изотопов и двойных каскадов. Ниже кратко проанализированы подобные способы. Одним из вариантом таких гибридных схем является последовательное соединение одиночного каскада с двумя питаниями и ординарного каскада (рис.1.11) [67]. Подобную схему можно реализовать двумя способами, отличающимися тем, какой из выходящих потоков первого каскада подают на вход второго (рис. 1.5).

В рассматриваемой схеме в первом каскаде получают НОУ промежуточного обогащения, меньшего, чем требуется для получения товарного НОУ. Затем, во втором каскаде данный промежуточный материал обогащают/обедняют в одном из выходящих потоков до уровня концентрации в исходном регенерированном уране, в зависимости от того из какого потока первого каскада был получен промежуточный материал. В результате с помощью схемы на выходных потоках второго каскада производится как обогащенный товарный продукт, так и урановая смесь с концентрацией ²³⁵U на уровне исходного регенерата, но с пониженным содержанием четных изотопов. Ключевым преимуществом данной схемы, в отличие от ранее рассмотренных двухкаскадных схем, является отсутствие на каких-либо ступенях каскада концентрации ²³⁵U, превышающей уровень низкообогащенного урана. Тем не менее, по своей сути схема является, во многом, «разбавляющей», поскольку основной эффект очистки связан с наличием в первом каскаде дополнительного питания, в котором туда поступает природный уран, выступающий в качестве разбавителя. Как показал анализ результатов вычислительных экспериментов, проведенных для данной схемы в рамках настоящей работы (Приложение 1), данная каскадная

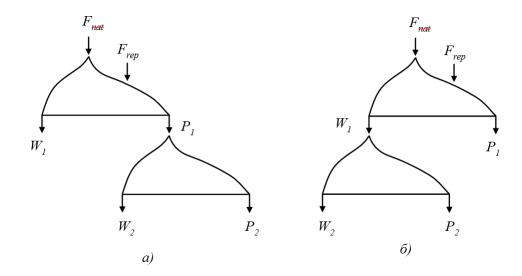


Рисунок 1.11 — Варианты соединения двухкаскадной схемы, состоящей из каскада с двумя потоками питания и ординарного каскада: а) случай подачи отбора первого каскада на питание второго; б) случай подачи отвала второго каскада на питание второго каскада. Обозначения: F_{nat} — поток природного урана; F_{rep} — поток регенерата, направленного на обогащение; P_1 — поток «легкой» фракции каскада 1; W_1 — поток «тяжелой» фракции каскада 1; P_2 — поток «легкой» фракции каскада 2; W_2 — поток «тяжелой» фракции каскада 2

схема позволяет решить задачу обогащения регенерата в сформулированной выше общей постановке только для случая обогащения состава регенерата с относительно невысоким исходным содержанием чётных изотопов. Это означает, что данную каскадную схему затруднительно использовать для обогащения регенерата в условиях его многократного рецикла.

Ещё одним вариантом гибридной схемы обогащения регенерированного урана можно считать каскадную схемы, основанную на очистке регенерата от четных изотопов в одиночном каскаде, имеющем так называемое «расширение» потока [68]. В этом подходе использован принцип выделения изотопов промежуточных массовых чисел из многокомпонентных смесей стабильных изотопов в каскадах с дополнительными потоками отбора [69—71]. Основная идея работы подобной схемы состоит в том, что, подобрав соответствующим образом вид функции распределения потока питания по ступеням каскада, возможно добиться концентрирования целевого промежуточного компонента на внутренних ступенях. Организовав на ступени в области максимума концентрации целевого промежуточного компонента внутри каскада поток дополнительного отбора,

возможно получить фракцию с максимальным содержанием этого изотопа при более низких по отношению к нему концентрациях легких изотопов, чем в отборе на конце каскада. Описываемый эффект продемонстрирован как на примере модельного Q-каскада, так и на примере каскада постоянной ширины [72]. Каскады, имеющие подобную особенность в распределении потока питания по ступеням были названы каскадами с «расширением» потока [70].

Учитывая, что изотоп ²³⁵U является промежуточным по массовому числу в смеси регенерированного урана этот способ можно применить и для концентрирования данного изотопа при обогащении регенерата урана. После чего, перемешав, полученный в промежуточном отборе такого каскада обогащенный регенерат, например, с обедненным ураном можно получить НОУ товарного качества.

Подобная каскадная схема схематично изображена на рисунке 1.12. Принцип работы данной схемы можно описать следующим образом. На вход каскада подают поток регенерированного урана E_1 . Каскад имеет три выходящих потока: поток отвала W_1 , поток дополнительного отбора G и поток основного отбора P_1 . В потоке дополнительного отбора (G) достигается максимальное обогащение по 235 U, которое составляет величину около 90% или выше [68]. В потоке отбора P_1 каскада нарабатывают смесь, высокообогащенную по 234 U (до уровня 80% и выше) и изотопу 232 U (до уровня 3-10%). Концентрация 235 U в потоке P_1 лежит в диапазоне 10-20%. Материал, полученный в потоке G, далее необходимо перемешать с составом, имеющим низкое содержание $^{235}{
m U}$, для получения товарного продукта с одновременным снижением концентраций четных изотопов. В качестве разбавителя удобно использовать обедненный уран (поток DepU). После смешивания потоков E_1 и DepU получают состав урана, обладающий необходимой для товарного продукта концентрацией $^{235}{\rm U}$ и удовлетворяющий ограничениям на концентрации четных изотопов. Процесс очистки в данной схеме состоит в отделении легкой группы изотопов ($^{232}{
m U}$ и $^{234}{
m U}$) от целевого $^{235}{
m U}$ при одновременном снижении относительной концентрации $^{235}{
m U}$ и ²³⁶U. Фактически данная схема очищает регенерат в процессе его обогащения одновременно от всех четных изотопов. После чего происходит разбавление обедненным ураном фракции с высоким содержанием изотопа $^{235}\mathrm{U}$, получаемой в потоке дополнительного отбора. В процессе такого разбавления происходит также и окончательная коррекция содержания чётных изотопов в получаемой смеси. Как показали представленные в Приложении 1 расчёты, проведенные

для подобной каскадной схемы, её эффективность и возможность решения поставленной задачи обогащения регенерированного урана существенно зависят от состава исходной разделяемой смеси. Данный фактор затрудняет её использование в условиях многократного рецикла урана.

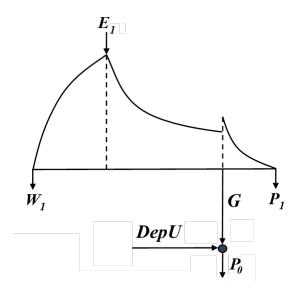


Рисунок 1.12 — Схема каскада концентрирования 235 U в дополнительном отборе и последующим разбавлением обедненного урана для получения товарного НОУ. Обозначения: E_1 — поток регенерата, направленного на обогащение; P_1 — поток «легкой» фракции; W_1 — поток отвала; G — поток дополнительного отбора; DepU — поток обедненного урана; P_0 — поток товарного НОУ.

К достоинствам схемы можно отнести следующее:

- 1. полное отсутствие природного урана в схеме;
- 2. эффект коррекции изотопного состава достигается не только за счет разбавления, но и за счет снижения относительных концентрации четных изотопов к 235 U (в первую очередь, 236 U) в самом каскаде.

К недостаткам схемы можно отнести следующее:

1. высокие уровни активности на разделительном производстве ввиду наличия потоков с концентрациями четных изотопов на порядки, превышающими допустимые пределы для низкообогащенного урана и уранового сырья. Возможность работы разделительного производства при уровне концентрации ²³²U свыше 10–3% и с фракцией, содержащей практически «чистый» ²³⁴U требует отдельной проработки с точки зрения вопросов радиационной безопасности и проблемы радиолиза рабочего вещества [73];

2. данная схема в общем случае не позволяет обеспечить условие «полного использования регенерата».

1.5 Выводы из анализа предложенных способов обогащения регенерированного урана

Подводя итог раздела, известные на сегодняшний день технические решения задачи обогащения регенерированного урана с одновременной коррекцией его изотопного состава основаны на:

- 1. разбавлении регенерированного урана материалами, не содержащими четных изотопов (например, природным ураном, обедненным ураном и т.д.), на входе в разделительный каскад, на выходе из разделительного каскада или внутри каскада при подаче разбавителей в качестве дополнительных внешних питаний каскада;
- 2. использовании каскадных схем, позволяющих понижать относительные концентрации чётных изотопов по отношению к ²³⁵U (преимущественно двойные каскады и их модификации);
- 3. комбинировании процессов разбавления регенерата материалами, не содержащими чётных изотопов, и его очистки за счёт выведения нежелательных фракций с относительно высоким содержанием ²³²U и ²³⁴U в виде отдельных потоков.

Проведенный теоретический анализ наиболее характерных каскадных схем каждого из типов позволяет сделать следующие выводы:

- 1. наиболее перспективные варианты решения задачи обогащения регенерата в условиях многократного рецикла могут быть основаны на использовании модификаций «гибридных» каскадных схем, поскольку они одновременно позволяют корректировать как изотопный состав регенерата за счёт его частичной очистки от чётных изотопов, так и массовые расходы за счёт варьрования величин потоков разбавителей;
- 2. проведенная серия вычислительных экспериментов с целью оценки возможности обогащения регенерированного урана, прошедшего несколько рециклов, показала, что ни одна из описанных выше схем

- не может быть применена для решения задача обогащения регенерата в условиях многократного рецикла в наиболее общей постановке;
- 3. актуальным становится поиск каскадной схемы, позволяющей решить в общем случае задачу обогащения регенерата при различном исходном содержании регенерата в нём.

Глава 2. Основные понятия и определения теории каскадов

Наряду с развитием технологий разделения изотопов развивается также и теория каскадов для разделения изотопных смесей. За последние десятилетия в ней достигнуты значительные успехи в части описания процессов молекулярно-селективного массопереноса при разделения многокомпонентных смесей. Основной вклад в развитие теории внесли научные группы НИЯУ МИФИ (Сулаберидзе Г.А., Борман В.Д., Борисевич В.Д.), УрФУ (под руководством проф. Палкина В.А.), а также коллектив технологов АО «СХК». Предложенные модели могут быть использованы, в том числе, для изучения физических закономерностей процесса обогащения регенерированного урана, который, в отличие от природного урана, нельзя упрощенно рассматривать в качестве бинарной смеси. Ниже, кратко приведены основные понятия из теории каскадов для разделения многокомпонентных смесей.

2.1 Основы теории разделения в каскадах

2.1.1 Понятие разделительной ступени

Рассмотрим общие характеристики разделительных ступеней, предназначенных для разделения многокомпонентных изотопных смесей в газовой фазе. В качестве разделяемой изотопной смеси рассмотрена смесь, содержащая m химически не реагирующих между собой компонентов, содержание можно определять либо мольно-долевыми концентрациями, либо массовыми C_i (i=1,2,...,m) [61]. Компоненты пронумерованы в порядке возрастания массовых чисел изотопов урана в смеси. В рамках настоящего исследования будут использованы массовые концентрации. С учетом этого, в случае разделения смесей изотопов тяжелых химических элементов, включая уран, численные значения массовых и мольных долей приблизительно совпадают [61]. Для концентраций компонентов разделяемой смеси справедливо очевидное тождество:

$$\sum_{j=1}^{m} C_j = 1 \tag{2.1}$$

Наряду с абсолютными концентрациями C_i часто используют относительные концентрации, определяемые по отношению к концентрации так называемого «опорного» компонента с фиксированным номером, например, k, то есть

$$R_{ik} = \frac{C_i}{C_k}, i = 1, 2, ..., m. (2.2)$$

В качестве «опорного» может быть выбран любой из компонентов смеси. Простая трехпоточная разделительная ступень имеет один входной поток и два выходных (рис. 2.1). На вход ступени поступает поток питания (производительность ступени) L (в системе СИ в кг/с) с концентрациями C_i (i=1,2,...,m). Из ступени выходят два потока: легкая фракция (поток, обогащенный легкими компонентами) или отбор ступени L' и тяжелая фракция (поток, обедненный легкими компонентами) или отвал ступени L''. Концентрации компонентов в этих потоках C_i' и C_i'' , соответственно.



Рисунок 2.1 — Схема трехпоточной разделительной ступени

Коэффициент деления потоков смеси (срез) θ , парциальные потоки компонентов G_i, G_i', G_i'' и срезы парциальных потоков ϕ_i можно определить поформулам:

$$\theta = \frac{L'}{L}, G_i = LC_i, G'_i = L'C'_i, G''_i = L''C''_i, \tag{2.3}$$

$$\varphi_i = \frac{G_i'}{G_i}, 1 - \varphi_i = \frac{G_i''}{G_i}, i = 1, 2, ..., m.$$
(2.4)

В стационарном режиме работы и в отсутствие потерь рабочего вещества потоки ступени связаны уравнениями баланса:

$$L = L' + L'', \tag{2.5}$$

$$G_i = G'_i + G''_i, i = 1, 2, ..., m.$$
 (2.6)

Введенное в 2.3 определение среза потоков ступени дает возможность представить уравнения 2.6 в следующем виде:

$$C_i = \theta C_i' + (1 - \theta) C_i''.$$
 (2.7)

Для каждого компонента i с относительной концентрацией вводят относительные коэффициенты разделения: полный q_{ik} , в отборе (потоке лёгкой фракции) α_{ik} и в отвале (потоке тяжёлой фракции) β_{ik} и соответствующие коэффициенты обогащения $\epsilon_{ik}, \epsilon'_{ik}, \ \epsilon''_{ik}$

$$q_{ik} = \frac{R'_{ik}}{R''_{ik}}, \quad \alpha_{ik} = \frac{R'_{ik}}{R_{ik}}, \quad \beta_{ik} = \frac{R_{ik}}{R''_{ik}},$$

$$q_{ik} = \frac{R'_{ik}}{R''_{ik}}, \quad \alpha_{ik} = \frac{R'_{ik}}{R_{ik}}, \quad \beta_{ik} = \frac{R_{ik}}{R''_{ik}}$$

$$\varepsilon_{ik} = q_{ik} - 1, \quad \varepsilon'_{ik} = \alpha_{ik} - 1, \quad \varepsilon''_{ik} = 1 - \frac{1}{\beta_{ik}}$$
(2.8)

При разделении изотопов молекулярно-кинетическими методами, включая метод газовой центрифуги, величины относительных коэффициентов разделения можно аппроксимировать соотношениями $q_{ij} = q_0^{M_j - M_i}$, где q_0 – коэффициент разделения, приходящийся на единицу разности массовых чисел; M_i , M_j – массовые числа i-го и j-го компонентов, соответственно [61].

Если $k \neq m$, то при всех i < k значения всех коэффициентов разделения $q_{ik}, \, \pmb{\alpha}_{ik}, \, \pmb{\beta}_{ik}, \,$ будут больше единицы, а при всех i > k – меньше единицы.

Полные коэффициенты разделения q_{ik} , как правило, не зависят от состава смеси. В некоторых случаях, что характерно для газовой центрифуги, коэффициенты q_{ik} могут зависеть от коэффициента деления потоков смеси (срез) θ и от потока питания L (2.9) единичного разделительного элемента (ступени) [74]:

$$q_{ij} = f(\mathbf{\theta}, L) \tag{2.9}$$

В практических расчетах при определении оптимальных параметров разделительного каскада необходимо учитывать конкретный вид зависимости (2.9), которой может быть получен теоретически путем решения задачи конвективной диффузии для одиночного разделительного аппарата. После чего зависимость может быть уточнена на основе экспериментальных данных. Анализ зависимостей вида (2.9) для различных газовых центрифуг показывает, что часть данной функции, определяемая величиной θ представляет собой гладкую функцию с одним экстремумом (максимумом). В теоретических исследованиях часто используют упрощенные подходы, в которых либо пренебрегают зависимостью коэффициентов разделения от какого-либо из указанных выше параметров, либо от всех, считая коэффициенты разделения одинаковыми на всех ступенях. Например, можно пренебречь зависимостью величины коэффициента разделения от θ , осуществив предварительное усреднение функции (2.9) по этому параметру и выбрав оптимальную с точки зрения разделительной способности элемента величину потока питания L. Такой подход как в случае разделения бинарных, так и многокомпонентных смесей приводит к теории так называемых «модельных каскадов» (каскадов с одинаковыми по ступеням коэффициентами разделения [75].

Данный подход использован и в настоящем исследовании (каскады, состоящие из разделительных элементов, имеющих одинаковые коэффициенты разделения и работающих в идентичных режимах). Учет зависимости от θ $(g(\theta))$ может быть использован в «уточняющих» расчетах.

В дополнение к введенным выше параметрам также используют величины g_i , которые можно рассматривать как отношение парциальных потоков компонентов в лёгкой и тяжёлой фракциях, покидающих ступень:

$$g_i = \frac{\varphi_i}{1 - \varphi_i} = \frac{G_i'}{G_i''}, i \neq k,$$
 (2.10)

$$g_k = \frac{\varphi_k}{1 - \varphi_k} = \frac{G_k'}{G_k''}. (2.11)$$

Нетрудно показать, используя 2.8-2.11, что величины g_i и g_k связаны с величинами относительных коэффициентов разделения следующими соотношениями:

$$g_i = \frac{\alpha_{ik}(\beta_{ik} - 1)}{\alpha_{ik} - 1}, \quad i \neq k, \tag{2.12}$$

$$g_k = \frac{\beta_{ik} - 1}{(\alpha_{ik} - 1)\beta_{ik}} = \frac{\varepsilon_{ik}''}{\varepsilon_{ik}'}.$$
 (2.13)

При этом

$$\frac{g_i}{g_k} = q_{ik}. (2.14)$$

С использованием выражений 2.1–2.14 получим следующие соотношения, связывающие параметры отдельной ступени каскада:

$$L = \sum_{j=1}^{m} L_i = \sum_{j=1}^{m} \frac{g_i + 1}{g_i} L'_i, \tag{2.15}$$

$$C_i = \frac{g_i + 1}{g_i} \frac{L_i'}{L},\tag{2.16}$$

2.1.2 Симметричный противоточный каскад и система уравнений, описывающих для него массоперенос в общем виде

Как известно, при практической реализации многих методов разделения используют многоступенчатые разделительные установки, называемые каскадами [61]. Подобные установки представляют собой последовательно соединенные ступени, состоящие из параллельно соединенных разделительных элементов, в частности газовых центрифуг.

Существуют различные способы коммутации ступеней в разделительных каскадах. Наиболее известен так называемый способ симметричного соединения ступеней в противоточной схеме (рис. 2.2). Рассмотрим схему такого каскада, имеющего один входящий поток питания F и два выходящих: отбор P, обогащенный самым легким компонентом и отвал W, обогащенный самым тяжелым компонентом. Потоки F, P, W и концентрации компонентов в них $C_{i,F}$, $C_{i,P}$, $C_{i,W}$ (i=1,2,...,m) являются внешними параметрами каскада. Следует заметить, что в случае разделения многокомпонентных смесей понятия «отбор» и «отвал» условны, поскольку ценный компонент может обогащаться как вместе с самым легким компонентом смеси, так и вместе с самым тяжелым.

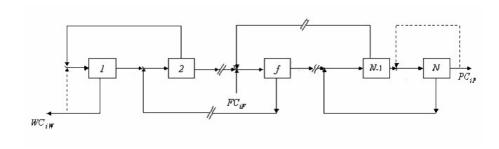


Рисунок 2.2 — Схема соединения ступеней в симметрично-противоточном каскаде

В стационарном режиме работы и в отсутствии потерь рабочего вещества на ступенях каскада, внешние параметры каскада должны удовлетворять уравнениям материального баланса

$$F = P + W,$$

$$FC_{i,F} = PC_{i,P} + WC_{i,W}, i = 1,2,...,m.$$
(2.17)

Ступени каскада пронумерованы последовательно от s=1 на отвальной ступени каскада до s=N на отборной ступени. Считаем, что внешнее питание каскада (F) подают на вход ступени с номером f. Внутренние параметры произвольной ступени с номером s (L_s , L_s' , L_s'' , $G_{i,s}$, $G_{i,s}'$, $G_{i,s}''$), где L – потоки вещества, а G – парциальные потоки (изотопов с индексами i) в стационарном режиме работы каскада, в отсутствие потерь рабочего вещества на ступенях каскада связаны уравнениями 2.5, 2.6.

Уравнения баланса в «узлах» (точках соединения межступенных потоков) при симметричном соединении ступеней имеют вид:

$$L_s = \theta_{s-1}L_{s-1} + (1 - \theta_{s+1})L_{s+1}, \quad s = 1, 2, ..., f - 1, f + 1, ..., N,$$
 (2.18)

$$L_{s}C_{i,s} = \theta_{s-1}L_{s-1}C'_{i,s-1} + (1 - \theta_{s+1})L_{s+1}C''_{i,s+1}, \quad s = 1, 2, ..., f - 1, f + 1, ..., N,$$

$$i = 1, 2, ..., f - 1, f + 1, ..., N,$$

$$(2.19)$$

Для ступени подачи питания f аналогичные уравнения выглядят так:

$$L_f = \theta_{f-1}L_{f-1} + (1 - \theta_{f+1})L_{f+1} + F, \tag{2.20}$$

$$L_f C_{i,f} = \theta_{f-1} L_{f-1} C'_{i,f-1} + (1 - \theta_{f+1}) L_{f+1} C''_{i,f+1} + F C_{i,F}, \quad i = \overline{1,m}.$$
 (2.21)

Внешние и внутренние параметры каскада связаны граничными условиями

$$L_0 = L_0' = L_0'' = L_{N+1} = L_{N+1}' = L_{N+1}'' = 0, (2.22)$$

$$L_N' = \theta_N L_N = P, \tag{2.23}$$

$$L_1'' = (1 - \theta_1)L_1 = W, \tag{2.24}$$

$$C_N' = C_{i,P}, i = 1, 2,...,m,$$
 (2.25)

$$C_1'' = C_{i,W}, i = 1, 2,...,m,$$
 (2.26)

$$G'_{i,N} = PC_{i,P}, i = 1, 2,...,m,$$
 (2.27)

$$G_{i,1}'' = WC_{i,W}, i = 1, 2,...,m.$$
 (2.28)

Соотношения (2.17)–(2.28) описывают простейшую физико-математическую модель противоточного симметричного каскада, предназначенного для разделения многокомпонентной смеси. Анализ данной системы показывает, что она представляют собой системы нелинейных разностных уравнений относительно функций $C_{i,s}$. Существенной проблемой при решении подобных систем является то, что в эти уравнения (либо в их граничные условия) входят значения концентраций, которые неизвестны заранее и должны быть определены из решения этих же уравнений. В общем случае, система (2.18)–(2.28) для своего решения требует использования численных методов.

Трудности решения (2.18)–(2.28) в общем случае, стимулировали развитие упрощенных подходов, которые позволяют получить её аналитическое решение при введении определенных предположений. Полученные в результате таких упрощений физико-математические модели симметрично-противоточного каскада сохраняют закономерности молекулярно-селективного массопереноса, но позволяют заметно упростить соответствующие расчетные процедуры для определения оптимальных параметров каскада. Такие каскады получили название модельных [33; 76—87].

Как показали результаты теоретического анализа модельные каскады фактически представляют собой частный случай рассмотренного выше симметрично-противоточного каскада, отвечающий условию постоянства по его длине относительных коэффициентов разделения [75]. Ниже кратко рассмотрены предложенные на текущий момент модельные каскады.

2.1.3 «Квазиидеальный» каскад

Рассмотрим случай симметричного противоточного каскада с постоянными по его длине относительными коэффициентами разделения q_{ik} , α_{ik} , β_{ik} ($i=1,\ 2,...,m;\ k$ -номер «опорного» компонента). Это условие обеспечивает постоянство величин g_i и φ_i . Следовательно, соотношения (2.18)–(2.21) приводятся к виду [61]:

$$G_i'(s-1) + \frac{1}{g_i}G_i'(s+1) - \frac{g_i+1}{g_i}G_i'(s) + \delta_{sf}Fc_{iF} = 0, \ i \neq k,$$
 (2.29)

$$G'_k(s-1) + \frac{1}{g_k}G'_k(s+1) - \frac{g_k+1}{g_k}G'_k(s) + \delta_{sf}Fc_{kF} = 0,$$
 (2.30)

где s – текущий номер ступени, отсчитываемый от «тяжелого» конца каскада к его «легкому» концу $\delta_{sf}=\left\{egin{array}{ll} 0,\ s
eq f \\ 1,\ s=f \end{array}\right.$

Уравнения (2.29)–(2.30) представляют собой линейные разностные уравнения второго порядка относительно неизвестных функций $G'_i(s)$. Граничные условия для них имеют вид:

$$\begin{cases}
G'_{i}(0) = G'_{i}(N+1) = 0, & i = 1, 2, ..., m \\
G'_{i}(N) = PC_{i,P}, & i = 1, 2, ..., m \\
G'_{i}(1) = g_{i}WC_{i,W}, & i \neq k \\
G''_{k}(1) = g_{k}WC_{i,W}.
\end{cases} (2.31)$$

Решение системы уравнений (2.29)–(2.30), с использованием уравнений баланса (2.17) и граничных условий (2.31), легко преобразуется в уравнения связи внешних параметров такого каскада с длинами его секций и параметрами ступени:

$$\frac{P}{F} = \sum_{j=1}^{m} C_{j,F} \frac{1 - g_j^{-f}}{1 - g_j^{-N-1}}, \quad s = f, ..., N,$$
(2.32)

$$\frac{W}{F} = \sum_{j=1}^{m} C_{j,F} \frac{g_j^{N+1-f} - 1}{g_j^{N+1} - 1}, \quad s = 1,...,f-1,$$
(2.33)

$$C_{i,P} = C_{i,F} \frac{1 - g_i^{-f}}{1 - g_i^{-N-1}} / \sum_{j=1}^{m} C_{j,F} \frac{1 - g_j^{-f}}{1 - g_j^{-N-1}}, i = 1, 2, \dots, m$$
 (2.34)

$$C_{i,W} = C_{i,F} \frac{g_i^{N+1-f} - 1}{g_i^{N+1} - 1} / \sum_{j=1}^m C_{j,F} \frac{g_j^{N+1-f} - 1}{g_j^{N+1} - 1}, i = 1, 2, \dots, m$$
(2.35)

Далее, распределение потока L(s), концентраций компонентов и коэффициента деления потоков по ступеням каскада можно определить по формулам [61]:

$$L(s) = \sum_{j=1}^{m} G'_{j}(s) \frac{1+g_{j}}{g_{j}} = \begin{cases} P \sum_{j=1}^{m} \frac{g_{j}+1}{g_{j}-1} C_{j,P} \left(1-g_{j}^{s-N-1}\right), s = f, \dots, N \\ W \sum_{j=1}^{m} \frac{g_{j}+1}{g_{j}-1} C_{j,P} \left(g_{j}^{s}-1\right), s = 1, \dots, f-1 \end{cases}$$

$$(2.36)$$

Формулу для расчета относительного суммарного потока в каскаде легко получить из (2.36), суммированием по всем ступеням каскада

$$\sum_{s=1}^{N} \frac{L(s)}{P} = \sum_{i=1}^{m} \left\{ \frac{g_i + 1}{g_i - 1} \left[\frac{W}{P} C_{i,W}(f) + C_{i,P} \left(N + 1 - f \right) \right] \right\}. \tag{2.37}$$

Рассмотренный выше каскад отличается тем, что относительные коэффициенты разделения q_{ik} , α_{ik} , β_{ik} (и, соответственно, срезы парциальных компонентов ϕ_i , ϕ_k и параметры g_i , g_k) остаются постоянными по длине каскада. Для таких каскадов в работе [86] был введен термин «квазиидеальный» каскад.

2.1.4 Каскад с несмешиванием относительных концентраций двух заданных компонентов смеси (*R*-каскад)

Рассмотрим каскад, в котором выполняется несмешивание относительных концентраций n-го и k-го компонентов смеси. Данная каскадная модель является аналогом используемого в теории разделения бинарных смесей «идеального» каскада, в «узлы» которого входят потоки с одинаковой концентрацией компонентов. Условие несмешения по относительным концентрациям n-го и k-го компонентов можно записать в виде:

$$R'_{nk}(s-1) = R_{nk}(s) = R''_{nk}(s+1). (2.38)$$

Подобная модель получила название R-каскад [61]. Отметим, что R-каскады могут быть построены как в случае «слабого обогащения», так и для немалых обогащений на ступени. Рассмотрим второй из указанных случаев, как соответствующий разделению изотопов в газовых центрифугах.

При выполнении условия несмешивания по относительным концентрациям выбранных компонент (2.38), полные коэффициенты разделения α_{nk} и β_{nk}

совпадают для двух соседних ступеней. Таким образом, при постоянных полных коэффициентах разделения, имея

$$\alpha_{nk} = \beta_{nk} = \sqrt{q_{nk}} \tag{2.39}$$

из уравнений (2.32)–(2.35) выводятся уравнения каскада со ступенями симметричными относительно пары компонентов с номерами n и k:

$$\frac{P}{F} = \sum_{j=1}^{m} C_{j,F} \frac{(R_{nk,W})^{-d_j} - (R_{nk,F})^{-d_j}}{(R_{nk,W})^{-d_j} - (R_{nk,P})^{-d_j}},$$
(2.40)

$$\frac{W}{F} = \sum_{j=1}^{m} C_{j,F} \frac{(R_{nk,F})^{-d_j} - (R_{nk,P})^{-d_j}}{(R_{nk,W})^{-d_j} - (R_{nk,P})^{-d_j}},$$
(2.41)

При этом на всех ступенях каскада $\alpha_{ik} \neq \beta_{ik} \ (i \neq n)$.

$$C_{i,P} = C_{i,F} \frac{(R_{nk,W})^{-d_i} - (R_{nk,F})^{-d_i}}{(R_{nk,W})^{-d_i} - (R_{nk,P})^{-d_i}} / \sum_{j=1}^{m} C_{j,F} \frac{(R_{nk,W})^{-d_j} - (R_{nk,F})^{-d_j}}{(R_{nk,W})^{-d_j} - (R_{nk,P})^{-d_j}}$$
(2.42)

$$C_{i,W} = C_{i,F} \frac{(R_{nk,F})^{-d_i} - (R_{nk,P})^{-d_i}}{(R_{nk,W})^{-d_i} - (R_{nk,P})^{-d_i}} / \sum_{j=1}^{m} C_{j,F} \frac{(R_{nk,F})^{-d_j} - (R_{nk,P})^{-d_j}}{(R_{nk,W})^{-d_j} - (R_{nk,P})^{-d_j}}$$
(2.43)

$$d_i = \frac{\ln q_{ik}}{\ln q_n} - 1, \tag{2.44}$$

, где $R_{nk,F}$, $R_{nk,W}$ и $R_{nk,P}$ – относительные концентрации целевого компонента в потоках $F,\ W,\$ и $P,\$ соответственно.

Для молекулярно-кинетических методов разделения, соотношения (2.12)–(2.13) можно записать в следующем виде:

$$g_k = q_0^{-\frac{M_k - M_n}{2}}, (2.45)$$

$$g_i = q_0^{M^* - M_i}, (2.46)$$

, где $M^* = \frac{M_n + M_k}{2}$.

Из (2.45)–(2.46) непосредственно следует, что для всех компонентов с $M_i < M^*$ величины $g_i > 1$, если же $M_i > M^*$, то $g_i < 1$. Из соотношений (2.42) и (2.43) при выполнении условий N-f+1 >> 1, f-1 >> 1 («длинный каскад») следует, что в таком R-каскаде компоненты с $g_i > 1$ ($M_i < M^*$ обогащаются к «легкому» выходящему потоку каскада, а компоненты с $g_i < 1$ ($M_i > M^*$ обогащаются

к «тяжелому» выходящему потоку каскада. Следовательно, величина параметра M^* полностью определяет направление обогащения компонентов смеси в R-каскаде.

Суммарный поток R-каскада равен [61]:

$$\sum_{s=1}^{N} L(s) = \sum_{j=1}^{m} \frac{PC_{j,P} \ln R_{nk,P} + WC_{j,W} \ln R_{nk,W} - FC_{j,F} \ln R_{nk,F}}{\frac{g_{j}-1}{g_{j}+1} \ln g_{n}}$$
(2.47)

Отметим, что как следует из приведенных выше соотношений, выбор опорного компонента определяет величину M^* . При этом, строго говоря, величина M^* для любой m-компонентной смеси является дискретной функцией номера опорного компонента и, соответственно, имеет ограниченный набор допустимых значений, определяемых возможным количеством «опорных» компонентов смеси. В [87] предложено формально ввести в рассмотрение «виртуальные» компоненты с исчезающее малой концентрацией (на несколько порядков меньше наименьшей концентрации «реальных» компонентов смеси) и с массовыми числами, лежащими в пределах от M_1 до M_m . В этом случае значение M^* может принимать любые значения в интервале от M_1 до M_m . Это позволяет построить кривую зависимости суммарного потока в каскаде от величины M^* и найти ее минимум.

Тем самым, данный подход позволяет из бесконечного множества набора параметров R-каскадов, обеспечивающих получение заданных концентраций целевого компонента в выходящих потоках, выбрать параметры такого R-каскада, который отвечает минимуму величины суммарного потока [87]. При этом полученные параметры такого R-каскада будет незначительно (менее, чем на 1%) отличаться от параметров оптимального по величине суммарного потока каскада (при заданных концентрациях целевого компонента в потоках отбора и отвала) [88]. Такой R-каскад можно рассматривать как наилучший или «эталонный». С физической точки зрения варьирование величины M^* означает «перебор» различных вариантов функций распределения потока питания ступеней каскада, которые, в свою очередь, определяют закономерности массопереноса компонентов по длине каскада.

Приведенные выше свойства R-каскада делают его удобным инструментом для численного моделирования процессов молекулярно-селективного

массопереноса в каскаде казовых центрифуг для разделения многокомпонентных смесей, таких как регенерированный уран.

2.1.5 Анализ типичных постановок задач расчёта параметров ординарного каскада на примере модельных каскадов

Как уже было отмечено в предыдущих разделах система уравнений (2.18)–(2.28) является системой нелинейных разностных уравнений относительно функций $C_{i,s}$. Существенной проблемой при решении подобных систем является то, что в эти уравнения (либо в их граничные условия) входят значения концентраций, которые неизвестны заранее и должны быть определены из решения этих же уравнений. Аналитическое решение подобных систем удается найти лишь для некоторых частных случаев, таких как квазиидеальный каскад и его частные случаи. В общем случае, система (2.18)–(2.28) требует использования численных методов для своего решения. При этом, как правило, выделяют 2 типа задач расчета параметров каскада: поверочный расчет и проектировочный расчет.

Под поверочным расчетом каскада подразумевают следующую задачу: Задано: состав исходной разделяемой смеси, число ступеней в каскаде и величины питающих их потоков, величины внешнего потока питания и одного из выходящих потоков каскада (отбора или отвала), параметры ступени (например, относительные коэффициенты разделения ступеней и др.). Подлежат определению: концентрации всех компонентов в потоках отбора и отвала и распределение концентраций компонентов по ступеням каскада. Поверочный расчет каскада необходим при исследовании оптимального управления процессом разделения, при изменении режимов работы и отдельных параметров разделительного каскада [61]. Основные трудности поверочного расчета связаны с тем, что неизвестные концентрации компонентов в потоках отбора и отвала сами явно входят в основные уравнения переноса (или их граничные условия). Невозможность аналитического решения этих уравнений вызывает необходимость разработки численных методов, малочувствительных к заданию начальных приближений для концентраций компонентов в выходящих потоках. На сегодняшний день предложены различные методы поверочного расчета, которые позволяют численно решить данную задачу [61; 89—93]. Однако в случае квазиидеального каскада и его частных случаев поверочный расчёт возможно выполнить аналитически, не прибегая к использованию численных методов. Такой расчёт можно осуществить, подставив в формулы (2.32)–(2.37) заданные при поверочном расчёте параметры и последовательно рассчитав остальные параметры каскада по этим же соотношениям. В случае с квазиидеальным каскадом, помимо состава исходной смеси и величины коэффициента разделения на единичную разность массовых чисел, следует задать величины N, f и определить способ расчёта параметра g_i для всех компонентов смеси. Например, величины g_i для R-каскада могут быть определены заданием массового числа опорного компонента.

Под проектировочным расчетом каскада обычно подразумевают следующую задачу [61]. Задано: состав исходной разделяемой смеси, один из выходящих потоков каскада (отбор или отвал), концентрации одного из компонентов (целевого или ключевого) в потоках отбора и отвала. Подлежат определению: все внутренние параметры каскада (распределение потока и концентраций компонентов по ступеням каскада и др.), концентрации остальных компонентов (всех кроме ключевого) в потоках отбора и отвала. При этом, очевидно, что найденные параметры каскада должны соответствовать оптимальным условиям разделения в каскаде. Решение такой задачи требует использования численных методов как в общем случае, так и в случае модельных каскадов.

Рассмотрим алгоритм проектировочного расчёта параметров R-каскада.

В качестве заданных величин в этом случае выступают следующие:

- 1. концентрации целевого компонента в потоках отбора и отвала каскада;
- 2. концентрации компонентов в исходной разделяемой смеси;
- 3. величина коэффициента разделения, приходящаяся на единичную разность массовых чисел;
- 4. величина одного из внешних потоков каскада (чаще всего потока отбора);
- 5. номер опорного компонента.
- В процессе расчёта необходимо определить:
- 1. полное число ступеней в каскаде и номер ступени подачи внешнего питания;

- 2. концентрации всех компонентов (кроме целевого) в потоках отбора и отвала каскада;
- 3. величины неизвестных внешних потоков;
- 4. распределения концентраций всех компонентов, потоков питания ступеней и коэффициентов деления потоков по длине каскада;
- 5. величину суммарного потока каскада.

Описанная постановка задачи проектировочного расчёта параметров R-каскада требует численного решения системы нелинейных уравнений, возникающих для невязок концентраций $^{235}{
m U}$ в выходящих потоках. Указанная система может быть записана в следующем виде:

$$\Delta_P = (C_{235,P})_{calc} - (C_{235,P})_{qiven} \tag{2.48}$$

$$\Delta_W = (C_{235,W})_{calc} - (C_{235,W})_{qiven} \tag{2.49}$$

где $(C_{235,P})_{calc}$, $(C_{235,W})_{calc}$ - рассчитанные концентрации 235 U в потоках отбора и отвала каскада, соответственно; $(C_{235,P})_{given}$, $(C_{235,W})_{given}$ - заданные концентрации 235 U в потоках отбора и отвала каскада, соответственно; Δ_P , Δ_W – невязки по концентрациям 235 U в потоках отбора и отвала каскада, соответственно.

Для получения уравнений на невязки использованы соотношения (2.42), (2.43). Из решения подобной системы можно определить величины $R_{nk,W}$ и $R_{nk,P}$, после чего аналитически рассчитать остальные внешние параметры R-каскада по соотношениям (2.40)-(2.47), как и в случае с квазиидеальным каскадом. При этом в простейшем случае перебирая все возможные варианты опорных компонентов для заданного целевого компонента возможно найти решение, отвечающее наилучшему значению заданного критерия эффективности, в частности суммарного потока каскада.

Глава 3. Анализ физических ограничений для решения задачи в ординарных и двойных каскадах

Как уже было отмечено в главе 1, лишь некоторые из предложенных к настоящему моменту способов обогащения регенерированного урана потенциально способны решить задачу обогащения регенерата произвольного исходного состава в условиях одновременного выполнения ограничений на концентрации сразу нескольких изотопов и при заданном отношении между массой получаемого НОУ и исходной смеси регенерированного урана, поступающего для обогащения. В первую очередь, это касается разбавляющих схем на основе ординарного каскада. Однако, проведенный в главе 1 теоретический анализ не позволяет априори определить при каких условиях может быть применена та или иная схема. В рамках настоящей главы кратко представлены результаты вычислительных экспериментов и сопутствующего им теоретического анализа, направленных на оценку возможности применения одиночных каскадных схем с разбавлением и двойных каскадов для получения обогащенного регенерированного урана в условиях многократного рецикла.

3.1 Модификации каскадных схем на основе ординарного каскада: методическая часть

Вернемся к рассмотренным в Главе 1 модификациям каскадных схем, основанных на ординарном каскаде (рисунок 3.1), для обогащения регенерированного урана с одновременным разбавлением четных изотопов. Каждая из схем, представленных на рисунке 3.1 реализует один из возможных способов разбавления регенерированного урана. Отличия в способах состоят в том, в каком именно узле осуществляют разбавление регенерата, либо в используемой в качестве разбавителя смеси. Например, в качестве разбавителя может выступать природный уран, НОУ из природного сырья.

Достоинства и недостатки подобных схем на теоретическом уровне подробно проанализированы в Главе 1. Однако, как следует из литературного обзора, для данных схем возможность их применения продемонстрирована, в



Рисунок 3.1 — Схемы на основе ординарного каскада. Обозначения: E — поток питающего схему регенерата, F_n — поток разбавителя (природного урана или низкообогащенного урана); W — поток отвального ОГФУ тяжелого конца каскада; P — товарный низкообогащенный уран

первую очередь, на примере составов, характеризующихся относительно низким содержанием четных изотопов. Например, концентрация изотопа 232 U в поступающем в обогащение регенерате составляет величину $1,5\cdot 10^{-7}\%$, что в разы ниже значений, которые могут достигаться в условиях многократного рецикла (вплоть до $1\cdot 10^{-6}\%$) [94]. Кроме того, при рассмотрении подобных каскадных схем, как правило, исходят из того, что уровень обогащения 235 U регенерата или разбавителя в них, не превышает 10%. В связи с этим представляется целесообразным проведение дополнительного исследования, которое бы позволило изучить взаимосвязи параметров модификаций каскадных схем обогащения регенерата на основе ординарного каскада при различных условиях. В свою очередь, это позволит оценить потенциал таких каскадных схем для обогащения регенерированного урана при различных внешних условиях.

Таким образом, основная цель описанных ниже вычислительных экспериментов – оценить возможности рассматриваемых модификаций ординарного каскада для обогащения регенерированного урана в условиях заметных (до одного порядка) колебаний концентраций четных изотопов, что характерно для его многократного рецикла. Рассмотрены случаи обогащения регенерированного урана двух составов с различным исходным содержанием чётных изотопов (см. таблицу 2). Выбранные составы отвечают регенерированному урану, выделенному из ОЯТ реакторов ВВЭР-1000 и -1200 при различных внешних условиях и заимствованы из работ, посвященных анализу закономерностей изменения изотопного состава регенерата при его многократном рецикле [94; 95]. Оба состава характеризуются содержанием ²³²U, которое превышает предельно допустимый уровень концентарции ²³²U в конечном НОУ-продукте (5 · 10⁻⁷%).

Выбор подобных загрязненных четными изотопами составов регенерата имитирует сложности, которые могут возникать при обогащении регенерированного урана в условиях его многократного рецикла.

Coctab №	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, %	$1,03 \cdot 10^{-6}$	$1{,}3\cdot10^{-6}$	$3,91 \cdot 10^{-2}$	1,07	1,45

Таблица 2 — Изотопные составы регенерата различных циклов.

При реализации вычислительных экспериментов общая постановка задачи соответствовала формулировке, приведенной в Главе 1. С учётом конкретных выбранных ограничений ее можно представить в следующем виде.

Из заданной массы исходного регенерированного урана необходимо получить заданную массу товарного НОУ, отвечающего следующим требованиям:

- 1. Концентрация ²³⁵U в конечном продукте составляет 4,95%, значение характерно для современных легководных реакторов [96];
- 2. Расход регенерированного урана на единицу конечного продукта в виде низкообогащенного урана: 0,93 кг на 1 кг НОУ [43];
- 3. Концентрация 235 U в потоке отвала задана равной 0.1% [23];
- 4. Соотношение $^{234}{
 m U}$ к $^{235}{
 m U}$ не должно превышать значения 0,02;
- 5. Влияние изотопа 236 U на нейтронно-физические характеристики топлива должно быть скомпенсировано дополнительным обогащением по 235 U, для расчёта которого использована линейная функция $\Delta C_{235,P} = K_c \times C_{236,P}$, где K_c коэффициент компенсации реактивности, принятый равным 0,29 [43];
- 6. Концентрация 232 U ограничена величиной $5 \cdot 10^{-7}\%$ [43].

Решение подобной задачи означает поиск такого набора параметров каждой из представленных на рисунке 3.1 схем, который обеспечит одновременное удовлетворение перечисленных выше условий.

Как следует из анализа рисунка, каждая из схем подразумевает использование ординарного каскада, который обогащает либо регенерированный уран, либо природный в зависимости от выбранного способа. Для моделирования процесса обогащения урана в каскаде в рамках работы была выбрана модель R-каскада [61]. При этом для всех рассматриваемых схем при расчёте параметров каскада задавали концентрации 235 U в его внешних выходящих потоках.

Таким образом, расчёт параметров такого каскада был сведен к одной из возможных постановок задач при моделировании процессов разделения в каскадах – задаче проектировочного расчета (см. Главу 2) и подразумевал следующую математическую постановку задачи.

Задано:

- 1. концентрации компонентов исходной смеси регенерированного урана $C_{i,E}$;
- 2. коэффициент разделения для единочной разности массовых чисел одиночного разделительного элемента q_0 ;
- 3. величина одного из внешних потоков каскада, например, P, E или F_n (см. рис. 3.1);
- 4. концентрации 235 U в потоках отбора и отвала каскада $C_{235,P}$, $C_{235,W}$;
- 5. номера компонентов, для которых выполнено условие несмешивания по относительным концентрациям n и k.
- В процессе расчёта необходимо определить следующие параметры:
- 1. величины N и f;
- 2. концентрации $C_{i,P}$ и $C_{i,W}$ $(i \neq n, где индекс n соответствует <math>^{235}$ U) в потоках P и W;
- 3. отношения внешних потоков каскада P/F, W/F;
- 4. распределения потока и концентраций компонентов по ступеням каскада – L_s , $C_{i,s}$ (i = 1,...,m);
- 5. значения срезов потоков на ступенях θ_s ;
- 6. остальные внутренние параметры каскада.

Описанная постановка задачи расчета параметров ординарного R-каскада требует численного решения системы нелинейных уравнений, из которых возможно определить величины N и f, отвечающие заданным значениям концентраций целевого компонента во внешних потоках (см. раздел 2.1.4). Указанная система может быть записана в следующем виде:

$$\begin{cases} \Delta_P = (C_{235,P})_{calc} - (C_{235,P})_{given} \\ \Delta_W = (C_{235,W})_{calc} - (C_{235,W})_{given} \end{cases}$$
(3.1)

, где $(C_{235,P})_{calc}$, $(C_{235,W})_{calc}$ – рассчитанные концентрации 235 U в потоках отбора и отвала каскада, соответственно; $(C_{235,P})_{given}$, $(C_{235,W})_{given}$ – заданные концентрации 235 U в потоках отбора и отвала каскада, соответственно; а Δ_P , Δ_W – невязки по $C_{235,P}$ и $C_{235,W}$, соответственно.

Представленная система (3.1) в случае R-каскада формируется на основе соотношений для расчета концентраций компонентов в потоках отбора и отвала каскада и представляет собой систему нелинейных алгебраических уравнений. В этом случае суть процедуры расчета параметров каскада состоит сначала в итерационном поиске величин N и f, после чего возможно аналитически рассчитать остальные параметры каскада. Итерирование величин N и f осуществляют на основе одного из известных методов решения систем нелинейных уравнений, например, метода Ньютона, применяя их к системе (3.1).

При использовании модели R-каскада в указанных выше уравнениях удобно использовать соотношения (2.42), (2.43). В этом случае из решения системы определяют величины R_{nk}^W и R_{nk}^P , после чего аналитически рассчитать остальные внешние параметры R-каскада по соотношениям (2.40)-(2.47), а также рассчитать значений для N и f. Окончив расчет параметров каскада можно легко аналитически рассчитать состав получаемого конечного продукта после смешивания отбора каскада с разбавителем.

В последующих разделах настоящей главы представлены результаты моделирования обогащения регенерата в каждой из трёх схем, представленных на рисунке 3.1. Основная цель проведенного моделирования — оценить возможность использования схем на основе ординарного каскада для обогащения регенерированного урана с повышенным содержанием чётных изотопов и, в первую очередь, ²³²U. Во всех случаях первоначально в качестве обогащаемого состава был рассмотрен состав №1 (табл. 2), имеющий более низкое содержание чётных изотопов, по отношению к составу 2. Учитывая то, что основная цель вычислительных экспериментов состояла в оценке применимости рассматриваемых схем для решения поставленной задачи, рассмотрение сначала менее загрязненного состава, в случае невозможности получить решение, позволит сделать вывод о невозможности использования той или иной схемы и для более загрязненных четными изотопами составов.

Для моделирования представленных на рисунке 3.1 схем в рамках работы разработан оригинальный программный код на языке Julia, реализующий процедуры численного расчета параметров ординарных каскадов для различных постановок задач.

3.1.1 Схема с разбавлением природным ураном предварительно обогащенного регенерата

Рассмотрим каскадную схему, в которой регенерат сначала обогащают до уровня, превышающего необходимую для товарного НОУ концентрацию 235 U, а затем разбавляют, например, природным ураном (рис. 3.2). Необходимо проверить существование такого набора параметров данной схемы, который одновременно обеспечит получение заданной массы товарного НОУ заданного обогащения по 235 U, соблюдение ограничений на концентрации четных изотопов в НОУ, а также условие полного использования регенерата. Заметим, что данная схема допускает возможность использования в качестве разбавителя любой другой урановой смеси, не содержащей изотопов 232 U и 236 U. В качестве одного из вариантов разбавителей может быть использован и низкообогащенный уран, полученный обогащением природного урана.



Рисунок 3.2 — Схема разбавления предварительно обогащенного регенерата природным ураном или низкообогащенным ураном. Обозначения: E — поток питающего схему регенерата; P_0 — поток отбора легкой фракции каскада; F_n — поток разбавителя (природного урана или низкообогащенного урана); W — поток отвального ОГФУ тяжелого конца каскада; P — поток товарного низкообогащенного урана

Для получения обогащенного урана, удовлетворяющего всем требованиям, необходимо определить величину C_{235,P_0} и отношение потоков P_0 и разбавителя. Указанные параметры определяли итерационно по следующей схеме. Сначала задавали начальное приближение для C_{235,P_0} , после чего рассчитывали параметры каскада по описанной в предыдущем разделе процедуре. Далее, зная состав смеси урана в потоке P_0 , определяли соотношение между потоками природного урана или обогащенного регенерата для получения финального продукта. При этом полученный в результате смешивания поток товарного НОУ должен отвечать ограничениям по концентрациям чётных изотопов, а отношение массы полученного НОУ к массе исходного регенерата должно соответствовать заданной величине. Это означает, что для успешного решения задачи одновременно должны быть выполнены условия на концентрации изотопов 232,234,235,236 U и обеспечено заданное отношение между расходом регенерата и конечным продуктом.

Однако при известной и заданной концентрации 235 U в потоке разбавителя управляющих параметров в такой схеме только два: C_{235,P_0} и отношение P_0/F_n . При этом существует четыре условия, которые должны быть выполнены одновременно: ограничение на концентрации изотопов 232,234 U, достижение заданной концентрации 235 U с учетом компенсации 236 U и заданное соотношение между потоками E и P. Очевидно, что в этом случае не для любых исходных данных возможно подобрать требуемые параметры каскадной схемы.

Для иллюстрации сложности решения подобной задачи рассмотрим некоторые вспомогательные функции χ_1 и χ_2 (3.2).

$$\begin{cases} \chi_1 = [C_{235,P_{9\kappa6.}} - (C_{235,PNU} + K_c \times C_{236,P})] \\ \chi_2 = [(C_{232,P})_{lim} - C_{232,P}] \end{cases}$$
(3.2)

, где K_c – коэффициент компенсации реактивности, $(C_{232,P})_{lim}$ – величина предельно допустимой концентрации $^{232}{\rm U}$ в товарном НОУ (в рассматриваемом примере $5\cdot 10^{-7}\%$).

По своему физическому смыслу величина χ_1 представляет собой отклонение $C_{235,P}$ – концентрации изотопа $^{235}{\rm U}$ (выраженное в долях) в конечном продукте (после смешивания) – от заданной величины, с учетом компенсации $^{236}{\rm U}$. Величина χ_2 представляет собой разность фактической концентрации $^{232}{\rm U}$ в окончательном продукте и требуемой величины в соответствии с принятым

ограничением. Из таких определений очевидно, что в случае получения продукта, отвечающего необходимым условиям величина χ_1 должна быть равна 0 в пределах заданной точности решения задачи, а величина χ_2 должна быть ≤ 0 при одних и тех же параметрах схемы.

Оговоримся, что, строго говоря, к этой условиям (3.2) следует добавить аналогичное условие $\chi_3 = [C_{234,P}/C_{235,P} - D]$ (D – заданное предельное значение относительной концентрации 234 U к 235 U в конечном НОУ-продукте P). Это означает, что ещё одним условием успешного решения задачи обогащения регенерата будет являться условие $\chi_3 = \leq 0$]. Как показали серии расчетов, в большинстве ситуаций это условие оказывается выполненным. Далее, будет показано что основную роль для успешного решения задачи играют условия, накладываемые на величины χ_1 и χ_2 .

В работе проведены вычислительные эксперименты, в которых варьировали концентрацию C_{235,P_0} и отношение потока P_0 к разбавителю из природного урана. Диапазон варьирования величины C_{235,P_0} выбран исходя из соображений достижения величины 90%, а диапазон варьирования отношения потоков P_0 к разбавителю выбрали равным 1–30, исходя из предварительных расчетов. Для каждого случая пытались решить задачу обогащения регенерированного урана при описанных в разделе 3.1 внешних условиях. Концентрацию 235 U в потоке W задавали равной 0,1%. При расчёте параметров ординарного каскада во всех случаях предполагали, что в каскаде было реализовано условие несмешивания по относительной концентрации компонентов $^{235}UF_6$ и $^{238}UF_6$, так как эти два компонента имеются во всех используемых исходных смесях. Величину коэффициента разделения для компонентов $^{235}UF_6$ к $^{238}UF_6$ приняли равной 1,2 [23]. Расчёты выполнены на примере регенерированного урана состава 1 (табл. 2).

На рис. 3.3–3.6 представлены зависимости величин χ_1 и χ_2 от соотношения смешиваемых потоков (в диапазоне от 1 до 20, в который попадают все значимые для иллюстрации значения величин χ_1 и χ_2), взятых для различных значений C_{235,P_0} (рис. 3.3–3.6). Значения C_{235,P_0} на рис. 3.3–3.6 представлены в диапазоне от 7 до 50% в иллюстративных целях, также как и соотношения смешиваемых потоков, так как эти диапазоны достаточны, чтобы продемонстрировать невозможность одновременного удовлетворения условия компенсации 236 U и выполнения заданного ограничения по 232 U в получаемом товарном НОУ. Чтобы сопоставить указанные величины на одном рисунке, величина χ_2 была умножена на специально подобранный числовой коэффициент, равный 10^6 .



Рисунок 3.3 — Концентрация ²³⁵U в предварительно обогащенном регенерата равна 7%



Рисунок 3.5 — Концентрация ²³⁵U в предварительно обогащенном регенерата равна 30%



Рисунок 3.4 — Концентрация ²³⁵U в предварительно обогащенном регенерата равна 15%



Рисунок 3.6 — Концентрация ²³⁵U в предварительно обогащенном регенерата равна 50%

Как видно из рисунков 3.3-3.6 функции χ_1 во всех случаях оказывается равной 0 в случаях, когда χ_2 оказывается отрицательной, что означает превышение предельно допустимого значения концентрации ²³²U в продукте. Таким образом, полученные результаты показывают невозможность одновременного удовлетворения условия компенсации ²³⁶U и выполнения заданного ограничения по ²³²U в получаемом товарном НОУ. Очевидно, что в случае обогащения регенерата состава №2 ситуация окажется ещё более худшей, ввиду более высокого исходного содержания четных изотопов.

Полученные результаты свидетельствуют о том, что данную схему нельзя рассматривать в качестве способа обогащения регенерированного урана в условиях его многократного рецикла, по крайней мере для выбранных в данном примере или более строгих ограничениях на концентрацию ²³²U. Основная причина таких результатов состоит в том, что рассматриваемая схема имеет ко-

личество свободных параметров, меньшее, чем количество условий требующих одновременного выполнения. Поэтому только в частных случаях возможно решить задачу, например, когда в обогащение поступает регенерированный уран с относительно низким исходным содержанием четных изотопов, что может соответствовать, например, обогащению регенерата первого рецикла.

3.1.2 Схема с разбавлением предварительно обогащенного регенерата низкообогащенным ураном

Если в схеме, рассмотренной выше (рис. 3.2), заменить разбавитель (F_n) с природного урана на низкообогащенный уран, не содержащий четных изотопов (например, изготовленный из природного урана), то у подобной схемы, тем самым, появится дополнительный управляющий параметр – концентрация 235 U в потоке F_n , которую можно также варьировать. Несмотря на это, в подобном варианте каскадной схемы все еще может быть не выполнено условие максимального использования регенерированного урана, состоящее в равенстве отношения потоков E и P заданной величине, так как количество свободных параметров все равно будет меньшим, чем количество условий. В качестве еще одного параметра схемы можно рассматривать концентрацию 235 U в потоке отвала каскада – $C_{235,W}$. Необходимо учесть, что данную величину возможно варьировать только в относительно узком диапазоне от 0.1% до 0.6% или ниже.

Для оценки возможности решения задачи с использованием каскадной схемы рисунка 3.2 проведены вычислительные эксперименты, в рамках которых варьировались следующие параметры схемы:

- 1. концентрация 235 U в потоке P_0 (C_{235,P_0});
- 2. концентрация ²³⁵U в потоке $F_n(C_{235,F_n})$;
- 3. концентрация 235 U в потоке W ($C_{235,W}$).

Варьирование этих параметров позволяет регулировать относительные концентрации компонентов в смеси, в частности, пары изотопов 232 U и 235 U. Это позволяет обеспечивать получение различных вариантов изотопного состава конечного продукта, возможно один из которых сможет удовлетворить все заданные ограничения одновременно.

В части основных параметров каскада расчеты проводили при тех же значениях, что и в примерах, описанных в разделе 3.1.2. Как показали результаты расчетов, рассматриваемая модификация каскадной схемы обогащения регенерата позволяет одновременно удовлетворить все ограничения на концентрации четных изотопов в продукте. Однако ни в одном из рассчитанных вариантов не удалось добиться получения заданного отношения между исходным регенератом и продуктом. Данное утверждение иллюстрирует рисунок 3.7. Анализ кривых на указанном рисунке показывает невозможность выполнить условия возврата заданной доли регенерата на единицу продукта в такой каскадной схеме в доступном диапазоне варьирования её свободных параметров. Причем отношение используемого регенерата к НОУ-продукту меняется лишь незначительно с изменением $C_{235,W}$, и остается постоянным при разных концентрациях C_{235,P_0} . Последнее означает, что изменение данного параметра может оказывать влияние на величину затрат работы разделения или расхода природного урана, но не на долю возвращаемого в воспроизводство топлива регенерата.

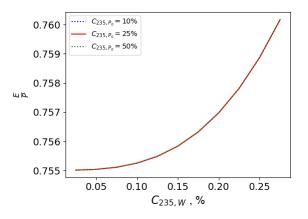


Рисунок 3.7 — Расход регенерата на единицу конечного НОУ-продукта для различных $C_{235,P}$ и $C_{235,W}$ каскада, обогащающего регенерат (кривые совпадают)

Рисунок 3.8 иллюстрирует изменение концентрации 235 U в разбавителе (F_n) для различных концентраций этого же изотопа в потоках P_0 и W. Для каждой из точки на графиков удалось выполнить все ограничения на концентрации четных изотопов в товарном НОУ. Как видно, несмотря на возможность варьирования концентрации 235 U в разбавителе, допустимый диапазон оказывается фактически узким (от 4,1 до 4,6%). Данное обстоятельство можно объяснить тем, что фактически при смешивании разбавителя и обогащенного регенерата основная доля по массе приходится на разбавитель. Это означает, что концен-

трация в нем не может заметно отличаться от требуемой концентрации $^{235}{
m U}$ в конечном продукте.

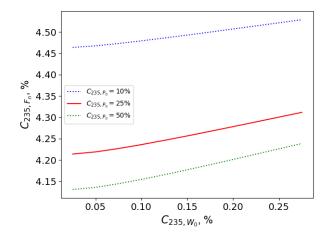


Рисунок 3.8 — Концентрация 235 U в НОУ-разбавителе F_n для различных $C_{235,P}$ и $C_{235,W}$ каскада, обогащающего регенерат

Подытоживая анализ результатов вычислительных экспериментов для данной модификации ординарного каскада для обогащения регенерированного урана, можно заключить, что она непригодна для решения задачи обогащения в условиях многократного рецикла, так как с помощью нее нет возможности использовать весь регенерированный уран на производство НОУ-продукта, как показано на рис. 3.7. Тем не менее, рассмотренная каскадная схема может быть использована для решения задачи повторного использования урана для возврата (дообогащения) регенерата с относительно низким исходным содержанием чётных изотопов, что соответствует первому рециклу или низкой глубине выгорания топлива.

3.1.3 Анализ схемы с разбавлением предварительно обогащенного природного урана регенератом

Проанализируем возможность решения задачи обогащения регенерированного урана со всеми ограничениями в каскадной схеме с разбавлением предварительно обогащенного природного урана регенератом (рис. 3.9). Принцип работы такой схемы состоит в том, что предварительно обогащенный

природный уран смешивается с возвращаемым в топливный цикл регенерированным ураном. Уровень предварительного обогащения (перед смешением) природного урана и отношение потоков обогащенного природного урана к регенерату определяются исходя из условий задачи. Таким образом, данная схема в принципе аналогична схеме рисунка 3.2. Это означает, что ей присущ тот же принципиальный недостаток, что и упомянутой схеме, а именно: число ее управляющих параметров меньше, чем число условий, требующих одновременного выполнения.

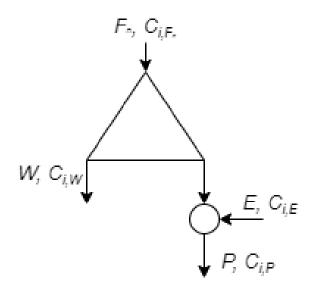


Рисунок 3.9 — Схема каскада с разбавлением предварительно обогащенного природного урана регенератом. Обозначения: E — регенерат, F_n — природный уран; W — поток отвального ОГФУ тяжелого конца каскада; P — поток товарного низкообогащенного урана

Для ответа на вопрос о возможности использования данной схемы для обогащения регенерата в условиях многократного рецикла были проведены вычислительные эксперименты, в рамках которых варьировали величину концентрации 235 U в обогащенном природном уране и отношение, в котором смешиваются разбавитель с регенератом с целью найти такой набор параметров схемы, при которых сформулированная в разделе 3.1 задача будет решена. Как и в рассмотренных выше примерах моделирование процесса обогащения урана в каскаде осуществляли с использованием R-каскада. Концентрацию 235 U в отвале каскада задавали равной 0.1%.

Из результатов вычислительных экспериментов следует, что для рассматриваемой схемы возможно получение решения, удовлетворяющего заданным

ограничениям на концентрации изотопов ^{232,234,236}U. Однако, как и в случае применения схемы рис. 3.2, одновременно с этими условиями не удаётся удовлетворить условие возврата заданной массы регенерата. В результате вместо заданной величины отношения массы исходного регенерата к продукту – 0,93, фактические значения не превысили величины 0,755. Данные результаты свидетельствуют о том, что такая схема обогащения регенерата не решает поставленную задачу для произвольного изотопного состава регенерата и, следовательно, не может быть применена в условиях многократного рецикла урана в топливе легководных реакторов.

3.1.4 Анализ схемы с разбавлением регенерата природным ураном перед подачей в ординарный трехпоточный каскад

Еще одним вариантом каскадной схемы для обогащения регенерированного урана, основанной на использовании ординарного каскада является схема, в которой смешивание и разбавление регенерата происходит непосредственно перед подачей в каскад для последующего обогащения (рис. 3.10). В качестве разбавителя здесь, как правило, рассматривают природный уран. Соотношение, в котором следует смешать природный и регенерированный уран определяют, исходя из ограничений на концентрации четных изотопов в конечном НОУ-продукте.

В случае, если разбавитель известен, то для такой схемы существует единственный управляющий параметр — это отношение, в котором смешиваются потоки регенерата и природного урана. Очевидно, что с ростом доли регенерата в совокупном питании каскада (смесь потоков E и F_n) будут возрастать концентрации чётных изотопов в потоке отбора каскада. Это обуславливает тот факт, что существует некоторое критическое значение этого отношения, начиная с которого уже невозможно будет соблюсти, как минимум, ограничение на концентрацию изотопа 232 U. Для рассматриваемой схемы проведены вычислительные эксперименты, в которых варьировали отношение разбавления между регенератом и разбавителем, в качестве которого рассматривали уран природного состава. Кроме того, в диапазоне 0,05–0,3% варьировали концентрацию изотопа 235 U в потоке отвала каскада — $C_{235,W}$. Как и во всех рассмотренных

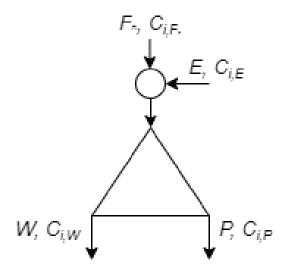


Рисунок 3.10 — Схема каскада со смешением регенерата и природного урана перед подачей на питание ординарного каскада. Обозначения: E — поток питающего схему регенерата, F_n — поток разбавителя; W — поток отвального ОГФУ тяжелого конца каскада; P — поток товарного низкообогащенного урана

в рамках данной главы примерах исходные условия соответствовали задаче, описанной в разделе 3.1, а в качестве расчётной модели использован R-каскад. Расчёты проведены на примере состава 1 таблицы 2.

На рис. 3.11 отражена взаимозависимость отношения потоков E/P и концентрации 232 U в конечном продукте. Кривые построены при различных $C_{235,W}$. Как следует из анализа представленных зависимостей, во всех случаях величина концентрации 232 U достигает предельного значения $(5 \cdot 10^{-7}\%)$ ранее, чем отношение между исходным регенератом и продуктом достигнет требуемого значения -0.93. Это означает, что и эта схема также не позволяет решить полностью задачу обогащения регенерата с относительно высоким содержанием чётных изотопов, не позволяя расходовать заданное количество регенерата на единицу конечного НОУ-продукта. Иными словами схема также оказывается непригодной к обогащению регенерированного урана в условиях многократного рецикла в допустимом диапазоне изменения ее параметров.

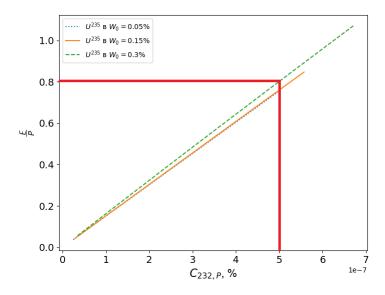


Рисунок 3.11 — Расход регенерированного урана на единицу НОУ-продукта при различной концентрации 232 U в питающем потоке каскада для различных концентраций 232 U в потоке НОУ-продукта

3.1.5 Аналитический подход к оценке возможности использования модификаций ординарного каскада для обогащения регенерированного урана в условиях многократного рецикла

Описанные выше результаты вычислительных экспериментов, проведенных для оценки применимости схем на основе ординарного каскада для решения задачи обогащения регенерированного урана, показали что такие схемы не могут решить подобную задачу в условиях многократного рецикла. Это обусловлено ухудшением изотопного состава урана по мере прохождения им серии топливных циклов, что выражается в накоплении ²³²U и других чётных изотопов. При этом исходная концентрация ²³²U питающей смеси, начиная со второго рецикла, превышает уровень допустимый в конечном продукте, поэтому схемы, основанные на ординарном каскаде, которые только разбавляют этот изотоп, не эффективны для решения поставленной задачи. Тем не менее, если рассматривать подобные схемы для обогащения регенерированного урана, прошедшего только однократное облучение или допустить «послабление» ограничений на концентрации чётных изотопов, то подобные схемы, безусловно, могут быть применены для решения задачи обогащения регенерированного урана.

При этом закономерно возникает следующий вопрос: возможно ли априорно оценить возможность решить поставленную в (3.1) задачу в таких модификациях ординарного каскада?

На этот вопрос можно ответить, обратившись к уравнениям баланса компонентов в каскаде (2.17) по крайней мере в случае вариантов каскадных схем, где регенерированный уран поступает в каскад для обогащения. Запишем уравнение (2.17) для изотопа ²³²U и, учитывая, его малую концентрации в исходной смеси, сделаем предположение о том, что его концентрация в отвале каскада будет стремиться к нулю. Данное предположение может быть вполне оправдано, если отвальная часть каскада имеет достаточное число ступеней. В этом случае ²³²U, являясь самым лёгким в смеси регенерированного урана, будет активнее остальных компонентов концентрироваться в отборе каскада. Это означает, что для изотопа ²³²U уравнение (2.17) можно переписать в следующем виде, пренебрегая слагаемым с потоком отвала каскада:

$$E + F = P + W,$$

$$FC_{i,F} + EC_{i,E} = PC_{i,P} + WC_{i,W}, i = 1,2,...,m.$$
(3.3)

$$C_{232,P} \approx \frac{E}{P} C_{232,E}$$
 (3.4)

Величина $\frac{E}{P}$ в приведенном выше уравнении и является отношением (исходный регенерат)/продукт. Если учесть, что типичные значения этого отношения составляют величину \approx 0,9-0,95, то станет очевидно, что это условие будет выполнено только, если концентрация 232 U в исходном регенерате ниже, чем ограничение на 232 U в конечном продукте. С помощью уравнения (3.4) можно вычислить максимально возможную долю питающего потока, содержащего 232 U, как неизвестную переменную уравнения (3.4). Например, для состава 1 таблицы 2, который был использован в рассмотренных выше примерах получаем:

$$\frac{E}{P} \leqslant 0.755 \tag{3.5}$$

Снова анализируя представленные в предыдущих разделах данные, легко увидеть, что полученные в результате прямого численного расчёта предельные величины отношений (исходный регенерат)/продукт приблизительно и составляют такую величину.

Интересно, что используя уравнение (3.4), легко оценить максимальное содержание 232 U в исходном регенерате, при котором еще будет возможно решить

задачу обогащения регенерата. Это можно сделать, подставив в (3.4) величины $C_{232,P}$ и $\frac{E}{P}$ и вычислив $C_{232,E}$. Например, для $\frac{E}{P}=0.93$ и $C_{232,P}=5\cdot 10^{-7}\%$ получаем величину $\approx 5.37\cdot 10^{-7}\%$, что оказывается меньше, чем в составах №1 и №2 таблицы 2.

Описанный выше подход позволяет аналитически оценить возможность применения схем на основе простейших модификаций ординарного каскада, исходя из изотопного состава регенерата. Следует отметить, что подобные оценки можно также применять и для каскадных схем, в которых регенерат разбавляют уже внутри каскада, путём его подачи в качестве дополнительного питания, поскольку такие схемы по сути являются также только разбавляющими, а балансные соотношения для них будут выглядеть аналогично (3.3).

3.1.6 Общий вывод для схем возврата регенерата в ЯТЦ на основе ординарного каскада

Обобщая описанные выше результаты вычислительных экспериментов, проведенных для различных модификаций ординарного каскада для обогащения и разбавления регенерированного урана, можно сделать следующие основные выводы:

- 1. Представленные на рисунке 3.1 варианты каскадных схем 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 высоким содержанием четных изотопов. Например, для концентраций ²³²U, исходно превышающих предельные значения для товарного НОУ.
- 2. 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 некоторых частных случаях, например, когда в обогащение поступает регенерированный уран с относительно низкими

- исходными концентрациями четных изотопов, что может соответствовать обогащению регенерата первого рецикла.
- 3. Продемонстрирован аналитический подход к оценке возможности применения схем на основе ординарного каскада для решения задачи, основанный на анализе исходного изотопного состава поступающего в обогащение регенерированного урана.
- 4. Полученные результаты однозначно свидетельствует о том, что для обогащения регенерированного урана в условиях многократного рецикла необходимо использование более сложных вариантов каскадных схем, которые смогут позволить полностью решить поставленную задачу обогащения регенерата безотносительно к его исходному составу и другим внешним условиям.

3.2 Обоснование необходимости составных схем

Как следует из описанных выше результатов, на текущий момент в принципе имеются способы, позволяющие обеспечить выполнение требований по четным изотопам урана при обогащении регенерата. Однако основной проблемой, решаемой в рамках настоящей диссертационной работы, является поиск варианта каскадной схемы, позволяющей одновременно выполнить ограничения по концентрациям четных изотопов и задействовать в обогащении весь имеющийся регенерат в условиях неопределенности его изотопного состава при многократном рецикле.

Если анализировать причины невозможности возврата массы регенерата в производство топлива в различных модификациях ординарного каскада для обогащения регенерата в условиях многократного рецикла, то становится очевидным, что это, во многом, связано с нарастанием относительных концентраций «легких» изотопов (в первую очередь ²³²U) и ²³⁵U. Поскольку данные изотопы концентрируются вместе на легком «конце» каскада, то единственным способом понизить отношение их концентраций – это разбавить материалом, не содержащим ²³²U, ²³⁶U. Как показали результаты, описанных в этой главе вычислительных экспериментов, для составов с относительно высоким исходным содержанием ²³²U невозможно подобрать такой разбавитель, чтобы удовлетво-

рить одновременно и условие полного возврата массы регенерата в цикл и ограничения на содержание четных изотопов.

Из приведенного выше анализа следует, что эффективная каскадная схема для обогащения регенерата урана при многократном рецикле должна обеспечивать не только разбавление регенерата, но и хотя бы частичную его очистку от чётных изотопов. Поэтому возможные варианты решения задачи, по-видимому, должны быть основаны на использовании схем двойных каскадов, в том числе, описанных в Главе 1. В связи с этим представляет интерес оценка возможности прямого обогащения регенерата с повышенным содержанием чётных изотопов в двойном каскаде с целью решения задачи обогащения регенерата в наиболее общей постановке. Этот вопрос и рассмотрен в следующих разделах настоящей главы.

3.3 Двойной каскад

Возможностью осуществить решение является двойной каскад, представленный в обзоре Гл. 1.4.2, представляющий собой последовательное соединение двух каскадов (рис. 3.12).

Анализируя уравнения, описывающие систему из двух «квазиидеальных» каскадов, а также учитывая сформулированную выше постановку задачи, получаем 3 неизвестных переменные: 1) C_{235,P_1} ; 2) C_{235,P_2} ; 3) $C_{235,P}$; и два независимых уравнения, характеризующих целевую систему:

- 1. $\delta_1 = C_{235,P}$ $_{\mathscr{H}6.} (C_{235,P}$ $_{NU} + \Delta C_{235})$ невязка по концентрации 235 U в конечном НОУ-продукте, с учетом поправки на присутствие изотопа 236 U. Величина δ_1 фактически определяет точность достижения условия компенсации 236 U;
- 2. $\delta_2 = C_{232,P}$ $_{pacu.} C_{232,P}$ $_{mpeb.}$ разница между рассчитанным значением концентрации 232 U в конечном НОУ-продукте и заданным ограничением для концентрации этого изотопа.

Таким образом, для нахождения 3-х переменных, имея 2 уравнения, получаем 1 свободную переменную, которую следует рассматривать в в качестве оптимизационной. В качестве такой переменной была выбрана C_{235,P_2} , которая затем была подобрана в ходе оптимизационной процедуры на критерий затрат



Рисунок 3.12 — Двойной каскад. Обозначения: E — поток питающего схему регенерата, W_1 — поток отвального ОГФУ тяжелого конца каскада; P — конечный НОУ продукт на основе регенерата; P_2 — отход двойного каскада в виде высокообогащенного урана; F_0 — природный уран; P_0 — дополнительно производимый НОУ продукт для возможности загрузить активную зону реактора

работы разделения. Отметим также, что дополнительно для нахождения оптимального распределения потока по ступеням (для подбора формы каскада, соответствующей наименьшему суммарному потоку) было осуществлено варьирование величин g_i , которое было организовано перебором возможных опорных компонент M_{k1} и M_{k2} для ординарных каскадов 1 и 2, входящих в схему.

В качестве ключевых оцениваемых характеристик будем опираться на те же интегральные характеристики, отражающие экономику разделительного процесса, что использовались для анализа схем на основе ординарного каскада:

- 1. $\delta(\frac{\Delta A}{P}) = 1 \frac{\Delta A}{P}/\frac{\Delta A}{P_{(ord.)}}$ экономия работы разделения относительно референтной схемы трехпоточного каскада для обогащения природного урана (см. Приложение). Наибольшая экономия соответствует минимуму суммарного потока схемы 2.43. Если величина отрицательная, абсолютное значение соответствует потерям работы разделения, по сравнению с референтной схемы трехпоточного каскада для обогащения природного урана;
- 2. $\delta(\frac{F_{NU}}{P}) = 1 \frac{F_{NU}}{P}/\frac{F_{NU}}{P}_{(ord.)}$ экономия природного урана относительно референтной схемы трехпоточного каскада для обогащения природного урана (см. Приложение). Наибольшая экономия соответствует минимуму удельного расхода природного урана схемы. Если величина отрицательна, абсолютное значение соответствует перерасходу природного урана, по сравнению с референтной схемы трехпоточного каскада для обогащения природного урана.

, а также на такой показатель как максимум степени извлечения из регенерата (4.11):

$$Y_E = \frac{P \cdot C_{235,P}}{E \cdot C_{235,E}} \tag{3.6}$$

Ниже приведены результаты анализа применимости схемы двойного каскада для возврата регенерата в ЯТЦ (табл. 3).

Исходя из анализа результатов, приведенных в табл. 3, схема двойного каскада позволяет возможность решить поставленную выше (3.1) задачу, однако чтобы достичь возврата регенерата в требуемом отношении, требуется производить дополнительное количество НОУ-продукта из отдельных сырьевых материалов – природного урана или его производных. Иными словами, схема двойного каскада позволяет израсходовать весь регенерированный уран на производство конечного НОУ-продукта, однако изотопа ²³⁵U недостаточно для воспроизводства топлива для повторной загрузки активной зоны реактора (АЗ), поэтому для того чтобы произвести необходимое количество топлива для загрузки АЗ, необходимо дополнять НОУ, произведенный на основе регенерата,

Состав р-та № Параметр	1	2
$\delta(rac{\Delta A}{P}),\%$	4.19	-8.35
$\delta(rac{F_{NU}}{P}),\%$	19.76	0.083
$Y_E,\%$	89.19	90.84
$\frac{E}{P}$	4.71	11.2
EPP	9.315	23.71
$C_{232,P} \cdot 10^7, \%$	5.0	5.0
$C_{234,P},\%$	0.117	0.190
$C_{235, P}, \%$	5.996	7.715
$C_{236,P},\%$	3.609	9.541
$C_{235,P_1,\%}$	6.32	10.18
$C_{235,P_2,\%}$	77.92	43.12

Таблица 3 — Параметры схемы двойного каскада для возврата регенерата в рецикл.

низкообогащенным ураном, произведенным из дополнительных источников. А так как на 1 кг конечного НОУ-продукта требуется расходовать 4,71 кг и 11,2 кг регенерата для составов 1 и 2, соответственно, получаемый продукт необходимо дополнять 4.71/0.93-1=4.06кг и 11.2/0.93-1=11.04кг НОУ-продукта, произведенными из прочих источников. Таким образом, для схемы двойного каскада, приведенные в табл. 3 интегральные показатели экономии природного урана и работы разделения расчитываются для всей массы производимого НОУ-продукта, производимого для загрузки в активную зону реактора.

Несмотря на формальное удовлетворение заданных условий задачи возврата регенерата (постановки, приведенной в 3.1), такая схема производит НОУ с высоким содержанием 236 U, превышающим 3.5% для состава 1, и с превышающей концентрацию 235 U для состава 2. Такое обстоятельство негативно характеризует эффективность схемы двойного каскада по двум причинам:

- во-первых, более высокое содержание ²³⁶U в НОУ-продукте обуславливает необходимость обеспечивать более существенную добавку ²³⁵U для компенсации вносимого 236-м в ядерный реактор паразитного нейтронного поглощения;
- во-вторых, присутствие в материале $^{236}{
 m U}$ ускоряет накопление изотопа $^{232}{
 m U}$, так как $^{236}{
 m U}$ являясь предшественником $^{232}{
 m U}$ в цепочке ядер-

ных превращений [23]). А так как ограничение на содержание ²³²U в свежем ядерном топливе — является основным препятствием для использовании регенерата в производстве низкообогащенного урана, такое обстоятельство негативно сказывается на пригодности такого матерала для многократного рецикла.

Отсюда вытекает необходимость модификации двойного каскада, которая позволит нивелировать недостаток схемы, состоящий в высокой концентрации $^{236}\mathrm{U}$ в конечном НОУ-продукте, развивая принципиальную возможность получить с помощью такой схемы решение поставленной (в 3.1) задачи.

Заметим также, что с использованием схемы двойного каскада для обоих составов получение продукта заданных качеств сопряжено с превышением допустимого ограничения на производство ВОУ (20% содержания 235 U в потоке P_2).

Глава 4. Модификация двойного каскада для обогащения регенерированного урана в условиях многократного рецикла

Некоторые из рассмотренных в предыдущих главах каскадных схем, частично или полностью позволяют решить проблемы, связанные с присутствием в урановой смеси изотопов ^{232,233,234}U только для составов регенерированного урана с относительно низким содержанием четных изотопов и исходным содержанием ²³²U ниже, чем предельные значения для товарного НОУ. Однако при использовании таких схем для возврата состава загрязненного регенерированного урана, прошедшего несколько циклов использования в качестве топлива легководных реакторов, как правило, уже не удается полностью решить задачу его обогащения, выполнив одновременно весь набор ограничений.

Отсюда и возникает потребность в разработке каскадных схем, которые в состоянии полностью решить задачу обогащения регенерата, не только обеспечив выполнение требований по содержанию четных изотопов в продукте, но и выполнив поставленные требования по расходованию 100%-ов имеющегося в распоряжении регенерированного урана. Второе условие позволяет вернуть в топливный цикл весь выделенный из ОЯТ регенерат вне зависимости от его изотопного состава, что гарантирует возможность использования подобной схемы для обогащения регенерата урана при его многократном рецикле.

4.1 Разработка каскадной схемы для обогащения регенерированного урана с одновременным выполнением условия на отношение используемого регенерата по отношению к производимому продукту, а также ограничений на концентрации четных изотопов

4.1.1 Описание предлагаемой схемы

Основной проблемой, подлежащей решению в настоящей работе, является поиск варианта каскадной схемы, позволяющей одновременно выполнить

условия по четным изотопам и задействовать в обогащении весь поступивший регенерат при различных внешних условиях и различных исходных составах регенерата.

Невозможность возврата регенерата в производство топлива с использованием многочисленных модификаций каскада для обогащения многократно облученного регенерата, во многом, связана с ростом величин относительных концентраций «легких» изотопов (в первую очередь ²³²U) по отношению к ²³⁵U в поступающем в обогащении регенерате. Далее, в процессе обогащения относительные концентрации легких изотопов по отношению к ²³⁵U также возрастают. Это связано с тем, что при обогащении $^{235}{
m U}$ более легкие изотопы концентрируются вместе с ним. При использовании схем на основе одиночного ординарного каскада единственным способом понизить относительную концентрацию изотопов ²³²U и ²³⁵U является разбавление смеси обогащаемого регенерата материалом, не содержащим $^{232}\mathrm{U}$, например на входе в каскад [36]. Однако, результаты вычислительных экспериментов, проведенных для различных разбавителей показывают, что для составов с высоким исходным содержанием ²³²U (выше предельных значений для товарного НОУ) невозможно подобрать разбавитель такой, чтобы удовлетворить одновременно условия полного возврата регенерата в цикл и заданные ограничения на концентрации четных изотопов в товарном продукте (см. Γ лаву 3).

Решение данной проблемы может быть основано на использовании двойных каскадов, позволяющих частично отделить друг от друга изотопы 232 U и 235 U, что позволяет выполнить ограничения на концентрации четных изотопов в товарном НОУ без разбавления регенерата сырьем, не содержащим 232 U и 236 U. Однако, как показано в Главе 3 простой вариант двойного каскада также не позволяет решить задачу.

Предлагаемый вариант каскадной схемы состот из двух подсистем (рис. 4.1): первая представляет собой двойной каскад (каскады I и II на рис. 4.1), вторая представляет собой ординарный каскад для обогащения природного урана (каскад III на рис. 4.1). В первом каскаде подсистемы I обогащают исходный регенерат изотопами 232,233,234,235,236 U. В каскаде II смесь делится на две фракции, так, чтобы в потоке тяжелой фракции (W_2) было понижено содержание 232,233,234 U по отношению к питающей второй каскад смеси – потоку P_1 .

является развитием идеи, впервые предложенной в работе [97].

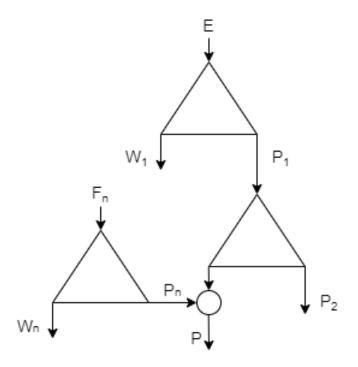


Рисунок 4.1 — Схема модифицированного двойного каскада для обогащения регенерированного урана. Обозначения: E — поток регенерированного урана; P_1 — поток отбора первого каскада, выступающий питанием второго каскада; P_2 — поток отбора второго каскада; W_1 — поток отвала первого каскада; W_2 — поток тяжелой фракции (условный «отвал») второго каскада; P_n — поток НОУ-разбавителя; P — финальный продукт (товарный низкообогащенный уран (НОУ))

Концентрация 235 U в потоке P_1 должна быть больше концентрации 235 U в конечном продукте, ввиду того, что во втором каскаде получаемый продукт будет обедняться по 235 U. Что касается верхней границы концентрации C_{235,P_1} , то она с физической точки зрения может быть ограничена только предельно достижимой концентрацией 235 U в этом потоке, определяемой по известным соотношениям [85], [80]. С другой стороны при задании параметров каскадов подсистемы I необходимо согласовывать значения концентраций C_{235,P_2} и C_{235,P_2} , поскольку должно выполняться очевидное соотношение $C_{235,P_2} > C_{235,P_1}$. Выбор C_{235,P_2} может определяться не только физическими соображениями, но и формальными. Учитывая, что поток P_2 является одним из внешних, выходящих из схемы рис. 4.1 потоков, то на него могут распространяться, например, требования о непревышение порога обогащения в 20%. Такое ограничение обусловлено тем, что уран, обогащенный до 20% и выше, по критериям МАГАТЭ считают материалом прямого использования, т.е. пригодным для создания

ядерно-взрывных устройств [98], [99]. Превышение данного порога может оказаться критичным с формальной с точки зрения нормативных документов, однако данное ограничение не является физическим, что позволяет потенциально рассматривать и значения концентраций C_{235,P_2} выше этой величины.

Финальным шагом к получению конечного НОУ-продукта является разбавление потока W_2 второго каскада сырьем, не содержащим искусственных изотопов урана для выполнения ограничений по 232 U и 236 U. Для этого используют вторую подсистему (каскад III), предназначенную для наработки разбавителя заданной массы и заданного обогащения по 235 U. Необходимо учесть то, что при заданных концентрациях 235 U в потоках P_1, W_1, P_2, W_2 и отношении потоков E/P, отношение потоков W_2/P также будет заданным, что подтверждает приведенное ниже выражение:

$$\frac{W_2}{P} = \frac{P_1}{E} \cdot \frac{W_2}{P_1} \cdot \frac{E}{P} \tag{4.1}$$

, где E — поток исходного регенерата, а P — поток конечного продукта НОУ-продукта.

В дополнение к 4.1 запишем очевидное равенство:

$$\frac{P_0}{P} = 1 - \frac{W_2}{P} \tag{4.2}$$

Из 4.1 и 4.2 следует, что отношение потоков W_2/P_0 также будет заданным. Иными словами, соотношение между потоками W_2 и P_0 при их смешивании зависит от выбора параметров каскадов подсистемы І. В этом случае единственным параметром, влияющим на концентрацию 235 U в товарном НОУ является концентрация данного изотопа в разбавителе (поток P_0 на схеме рис. 4.1), которая связана с остальными параметрами соотношением, выражающим закон сохранения вещества для узла смешивания потоков W_2 и P_0 :

$$C_{235,P_0} = C_{235,P} \left(1 + \frac{W_2}{P_0}\right) - \frac{W_2}{P_0} \cdot C_{235,W_2} \tag{4.3}$$

Фактически подмешивание НОУ-разбавителя призвано добиться выполнения требуемых условий на концентрации четных изотопов, а также достижения заданного отношения E/P.

Принимая во внимание очевидные неравенства для потоков в каскадах I и II каскадной схемы:

$$W_2 < P_1 < E \tag{4.4}$$

а также характерный диапазон изменения величины потока E в сравнении с потоком P:

$$E = (0.90 - 0.97)P \tag{4.5}$$

можно легко увидеть, что величина потока W_2 будет в несколько раз меньше, чем величина потока E, и, соответственно, конечного продукта в виде потока P. Следовательно, поток разбавителя P_0 должен в несколько раз превосходить по величине поток W_2 .

Таким образом, при заданных концентрациях 235 U в выходящих потоках каскадов I и II, для рассматриваемой схемы единственным параметром, позволяющим корректировать концентрацию в 235 U в потоке P является концентрация данного изотопа в P_0 . Однако, если в качестве разбавителя использовать, например, природный уран, может оказаться невозможным достижение требуемой концентрации 235 U в потоке P. Причиной этому является фиксированность концентрации 235 U таком разбавителе. В этой связи целесообразно, в качестве разбавителя использовать низкообогащенный уран, величина конкретного обогащения которого должна быть определена на основе расчета для каждого входящего состава регенерата и для каждого набора параметров каскадов I и II. В качестве сырья F_0 для наработки такого разбавителя, наряду с природным ураном, может быть использован и складской обедненный уран, нарабатывавшийся в ходе производства обогащенного урана из природного урана. При этом такой разбавитель получают обогащением выбранного сырья в отдельном каскаде (каскад III).

Подытоживая выше сказанное, отметим, что каскады I и II в данной схеме работают только с регенерированным ураном, позволяя частично отделить 235 U от более легких 232 U и 234 U. Роль каскада III состоит в наработке разбавителя P_0 , необходимого для формирования требуемой массы конечного продукта с одновременным выполнением условий по четным изотопам в этом продукте. Заметим также, что каскад, нарабатывающий НОУ-разбавитель P_0 , вообще говоря, не является неотъемлемой частью каскадной схемы. При практической реализации подобного подхода каскад для наработки разбавителя может быть обособленным и физически не связанным с каскадами, обогащающими регенерированный уран. Это означает, что разделительные мощности, связанные

с обогащением регенерата в такой схеме полностью отделены от разделительных мощностей, работающих с природным ураном. В этом случае исключено загрязнение чётными изотопами разделительного оборудования, работающего с природным ураном. Кроме того, с технической точки зрения обособленность каскадов для обогащения регенерата позволяет при необходимости реализовать на таком производстве дополнительные меры радиационной и физической защиты, учитывая необходимость получать относительно высокие концентрации изотопа ²³⁵U и чётных изотопов, не затрагивая штатное производство по обогащению природного урана.

4.1.2 Анализ постановок задач и методика расчета каскадной схемы

В настоящем подразделе описана предложенная в работе методика расчёта предлагаемой схемы обогащения регененированного урана в условиях его многократного рецикла. В качестве модели для описания массопереноса в каскаде для разделения многокомпонентных смесей использован «квазиидеальный» каскад [86].

Задача моделирования обогащения регенерированного урана в каскадной схеме рис. 4.1 может быть сформулирована следующим образом. Задано:

- концентрации компонентов в обогащаемом регенерированном уране $C_{i,E};$
- отношение потоков E/P (исходный регенерат)/(финальный продукт);
- величина концентрации 235 U в потоке W_1 C_{i,W_1} ;
- параметры одиночного разделительного элемента (центрифуги) величины потока питания центрифуги (l) и коэффициента разделения, приходящегося на единичную разность массовых чисел (q_0) ;
- в случае использование моделей квазиидеального каскада или R-каскада необходимо либо непосредственное задание величины параметра g_i (см. формулу 2.10, либо выбор пары компонентов, по которым должно быть выполнено условие несмешивания их относительных концентраций (подробнее см. Главу 2).

Параметры каскадной схемы должны соответствовать требованиям, предъявляемым к получаемому товарному НОУ:

- величина концентрации 235 U в продукте (товарном НОУ, поток P на схеме рис. 4.1) $C_{235,P}$;
- величины предельных концентраций изотопов 232 U и 234 U в конечном продукте $P-(C_{232,P})_{lim}$;
- величины предельно допустимого отношения концентраций изотопа $^{234}{
 m U}$ и $^{235}{
 m U}$ в конечном продукте $P-C_{234,P}/C_{235,P};$
- величина концентрации $^{235}{
 m U}$ в отвальных потоках каскадной схемы $C_{235,W_1},\,C_{235,W_0};$
- вид функции $f(C_{236,P})$, в соответствии с которой рассчитывают конечную (эквивалентную) величину обогащения по 235 U в продукте, с учётом компенсации присутствия 236 U: $(C_{235,P})_{\mathfrak{H}6.} = (C_{235,P})_{npup.} + f(C_{236,P})$.

Очевидно, что для определения интегральных характеристик всей каскадной схемы необходим последовательный расчёт каждого из каскадов схемы. При рассмотрении каждого из каскадов решали задачу проектировочного расчёта его параметров (см. Главу 2), т.е. расчёта на заданные концентрации. Это означало, что задаваемыми параметрами для каждого из каскадов в схеме были концентрации одного из изотопов в выходящих потоках этого каскада. Целесообразнее всего для всех каскадов выбирать в качестве такого компонента ²³⁵U.

Анализируя приведенную выше постановку задачи, набор заданных величин и учитывая использование модели «квазиидеального» каскада для расчёта параметров каждого из каскадов, отметим следующее. Для каждого из каскадов при заданных концентрациях в потоках питания, величине одного из внешних потоков (F, P) или W), параметрах одиночного разделительного элемента, для расчёта их параметров необходимо задать ещё 2 величины. Это могут быть полное число ступеней N и номер ступени подачи внешнего питания -f. Другим вариантов такой пары параметров могут выступать концентрации целевого компонента в потоках отбора и отвала каскада. Задание этих величин позволяет далее по соотношениям (2.32)-(2.37) для квазиидеального каскада и (2.40)-(2.47) для R-каскада рассчитать все их внешние и внутренние параметры. Тем самым имеем ситуацию, при которой для последовательного расчёта параметров каждого из каскадов схемы необходимо задать в совокупности 6 величин, например: 1) N_1 , f_1 , N_2 , f_2 , N_3 , f_3 (индексы соответствуют номеру каскада на рис. 4.1) или 2) C_{235,W_1} , C_{235,W_2} , C_{235,P_2} , C_{235,P_0} , C_{235,P_0} . Перекаскада на рис. 4.1) или 2) C_{235,W_1} , C_{235,P_2} , C_{235,P_2} , C_{235,P_0} , C_{235,P_0} . Пере

численные переменные однозначно связаны друг с другом через соотношения (2.34)-(2.35), поэтому могут заменять друг друга.

Как следует из постановки задачи, по условию заданы только 2 из перечисленных выше величин: C_{235,W_1} , C_{235,W_0} . Оставшиеся 4 переменные подлежат определению в процессе расчёта, например: концентрации C_{235,P_1} , C_{235,P_2} , C_{235,W_2} , C_{235,P_0} . Однако для их нахождения можно записать только 2 независимых уравнения:

$$\Delta_{236} = C_{235,P_{9\kappa6}} - (C_{235,P_{NU}} + \Delta C_{235}) \tag{4.6}$$

, где Δ_{236} — невязка по концентрации 235 U в конечном НОУ-продукте, с учетом поправки на присутствие изотопа 236 U. $C_{235,P_{^{236}8}}$ — эквивалентная концентрация 235 U в потоке товарного НОУ, $C_{235,P_{NU}}$ — требуемая концентрация 235 U в товарном НОУ без учёта компенсации влияния 236 U, ΔC_{235} — величина добавочного обогащения изотопа 235 U для компенсации влияния 236 U.

$$\Delta_{232} = |C_{232,Pcalc} - C_{232,Pgiven}| \tag{4.7}$$

где Δ_{232} — разница (по абсолютной величине) между рассчитанным значением концентрации $^{232}\mathrm{U}$ в конечном НОУ-продукте ($C_{232,Pcalc}$) и заданной предельной величиной для концентрации этого изотопа ($C_{232,Pgiven}$).

Величины Δ_{232} и Δ_{236} определяют выполнение условия компенсации 236 U и требований к максимально допустимой концентрации изотопа 232 U в продукте. Важно отметить, что уравнения системы (4.6)-(4.7) отражают неявные зависимости величин концентраций изотопов 232 U и 235 U в потоке P от искомых концентраций C_{235,W_2} , C_{235,P_0} . Это означает, что для расчёта величин Δ_{232} и Δ_{236} необходимо предварительно рассчитывать параметры каскадов II и III на основе некоторых начальных приближений для искомых концентраций C_{235,W_2} , C_{235,P_0} . Поэтому возможно только численное решение системы уравнений (4.6)-(4.7) с расчётом параметров каскадов II и III на каждой итерации процедуры решения. Причём для расчета параметров каскадов I-III для каждой итерации решения системы (4.6)-(4.7) необходимо отдельно численно решать системы уравнений вида (2.48)-(2.49) для каждого из каскадов схемы. Решение систем уравнений обоих видов возможно осуществить одним из известных численных методов решения систем нелинейных уравнений.

В рамках работы для решения возникающих в процессе расчёта параметров каскада систем нелинейных алгебраических уравнений (СНАУ) использован метод Trust-region (TRM) — численный алгоритм для решения систем нелинейных уравнений, который базируется на определении области вокруг лучшего решения, в котором квадратичная модель аппроксимирует целевую функцию [100]. Реализация этого численного метода для решения целевой системы уравнений заимствована из открытой программной библиотеки семейства решателей JuliaNLSolvers [101]. Выбранный алгоритм позволяет с помощью втоматического дифференцирования вычислять матрицы Якоби и Гессе, не требуя их передачи в функцию (подпрограмму) решателя в явном виде, что является преимуществом этого алгоритма.

Таким образом, для нахождения 4-х неизвестных концентраций 235 U в потоках W_2 и P_0 имеем 2 уравнения. Это означает, что 2 переменные задачи можно рассматривать в качестве варьируемых параметров, которые должны быть заданы из каких-либо соображений, о чём ещё будет дано пояснение ниже. Задание величин концентраций C_{235,P_1} , C_{235,P_2} замыкает систему уравнений (4.6)-(4.7) и позволяет провести расчёт всех параметров каскадной схемы. Для проведения такого расчёта разработана оригинальная методика, состоящая из следующих шагов в случае использования модели R-каскада:

- 1. задание исходных параметров задачи: $C_{i,E}$, E/P, q_0 , C_{235,W_0} , C_{235,W_1} , и требований к товарному НОУ;
- 2. задание концентраций 235 U в потоках P_1 и P_2 ;
- 3. выбор пары компонентов, для относительных концентраций которых выполнено условие несмешивание (2.38) и расчёт величины M^* (см. формулу (2.46));
- 4. решение системы уравнений (2.48)-(2.49) для каскада I и последующий расчёт внешних и внутренних параметров каскада I, включая набор концентраций C_{i,P_1} , которые выступают в качестве концентраций в потоке питания каскада II;
- 5. расчёт отношения P_0/P на основе данных п. 2 и 3 с использованием соотношений (4.1)-(4.2);
- 6. решение системы уравнений (4.6)-(4.7) для нахождения концентраций C_{235,W_2}, C_{235,P_0} с одновременным численным расчётом параметров каскадов II и III. В случае невозможности найти решение, задание новых значений для концентраций 235 U в потоках P_1 и P_2 и повтор п. 3-5.

- 7. расчёт концентраций всех компонентов в потоке $P-C_{i,P}$ и проверка выполнения требуемого ограничения на концентрацию 234 U в товарном HOУ;
- 8. завершение процедуры расчёта в случае выполнения всех требования, предъявляемых к конечному продукту. В противном случае повтор п. 3-7 для других значений концентраций 235 U в потоках P_1 и P_2

Как следует из привиденного выше алгоритма и сопутствующих рассуждений, достижение требуемых внешних условий возможно при формально бесконечном множестве комбинаций концентраций C_{235,P_1} , C_{235,P_2} . Для того, чтобы выбрать из этого набора определенный вариант, необходимо проведение оптимизационного расчёта с использованием некоторого критерия эффективности.

Цель решения оптимизационной задачи: при заданных внешних условиях и выполнении заданных ограничений на концентрации чётных изотопов в потоке продукта, а также выполнении условия полного использования регенерата состоит в поиске набора параметров каскадной схемы, обеспечивающего достижение минимального (максимального) значения критерия эффективности (целевой функции) в зависимости, например, от концентраций C_{235,P_1} , C_{235,P_2} .

С математической точки зрения подобная оптимизационная задача является задачей оптимизации с ограничениями для целевой функции, определенной на многомерном пространстве переменных, что требует использования соответствующих численных методов оптимизации. Решение оптимизационной задачи дополнит приведенный выше алгоритм расчёта параметров каскадной схемы рис. 4.1 ещё одним шагом, а именно:

9. Расчёт величины выбранного критерия эффективности и проверка условий выхода из оптимизационной процедуры (определяется выбором метода оптимизации и заданной точностью решения задачи). В случае выполнения условия выхода завершение процедура расчёта, в противном случае выбор новых значений для концентраций C_{235,P_1} , C_{235,P_2} и повтор п. 3-9 алгоритма расчёта и оптимизации каскадной схемы.

В работе предложена оригинальная методика оптимизации, основанная на использовании метода последовательного квадратичного программирования (Sequential quadratic programming (SQP)) и реализованная в виде программного кода на основе алгоритма SLSQP, представленном в библиотеке нелинейной оптимизации NLopt (с помощью интерфейса для языка программирования Julia

NLopt.jl) [102]. Выбор алгоритма оптимизации сделан в пользу SQP, предназначенного для оптимизации на основе градиента с нелинейными ограничениями (поддерживающий как ограничения неравенства, так и ограничения равенства), ввиду двух причин: 1) возможности задать как интервалы, в которых будет осуществляться поиск переменных, так и ограничения на диапазоны изменения переменных; 2) использование градиента позволяет увеличить скорость сходимости метода [100]. Что касается первого пункта, возможность введения ограничений представляется актуальной для рассматриваемой расчетной оптимизационной задачи, так как для оптимизационных переменных должно быть выполнено условие: $C_{235,P_2} > C_{235,P_1}$.

Говоря о надежности полученных результатов, следует отметить, что, в пределах относительной погрешности используемого алгоритма, найденные решения совпали с результатами оптимизаций, полученных с помощью иных алгоритмов, а частности алгоритмов глобальной оптимизации, позволяющих вводить ограничения на области значений переменных. Среди таких алгоритмов использовались следующие: simplicial homology global optimization (shgo из пакета алгоритмов SciPy для научных вычислений на языке программирования Python), а также алгоритмы simulated annealing (имитация отжига) and particle swarm (рой частиц), представленные в пакете Optim.jl для языка программирования Julia [103; 104].

Оптимизационная процедура каскадной схемы проводилась для различных критериев эффективности. В рамках работы рассматривали возможность оптимизации предложенной каскадной схемы по таким критериям эффективности как: минимум затрат работы разделения схемы $\frac{\Delta A}{P}$ (2.43, 4.8), минимум величины удельного расхода природного урана (4.9), максимум суммарной степени извлечения 235 U для всей схемы (4.10) и максимум степени 235 U извлечения только из потока поступающего в обогащение регенерата (4.11):

$$\delta(\frac{\Delta A}{P}) = 1 - \frac{\Delta A}{P} / \frac{\Delta A}{P}_{(ord.)} \tag{4.8}$$

$$\delta(\frac{F_{NU}}{P}) = 1 - \frac{F_{NU}}{P} / \frac{F_{NU}}{P}_{(ord.)} \tag{4.9}$$

$$Y_f = \frac{P \cdot C_{235,P}}{F_0 \cdot C_{235,NU} + E \cdot C_{235,E}},\tag{4.10}$$

$$Y_E = \frac{W_2 \cdot C_{235,W_2}}{E \cdot C_{235,E}} \tag{4.11}$$

Величины Y_f и Y_E в качестве критериев эффективности по следующим соображениям. Фактически они характеризуют эффективность использования с точки зрения извлечения 235 U как из всех сырьевых материалов каскадной схемы (потоки E и F_0), так и отдельно из обогащаемого регенерированного урана.

Необходимо отметить, что к указанным выше переменным оптимизации C_{235,P_1} и C_{235,P_2} можно добавить также и величины параметров g_i 2.10 для каждого из каскадов в схеме. Если использовать R-каскад (см. Главу 2), то варьирование величин q_i можно организовать перебором возможных опорных компонент M_{k1} и M_{k2} для каскадов I и II, входящих в схему. Фактически это будет означать перебор величин M^* для каждого из каскадов. Подобный подход используют при оптимизации параметров R-каскадов с заданными концентрациями целевого компонента в выходящих потоках [87; 88]. Это позволяет найти наилучший набор параметров каскада с точки зрения выбранного критерия эффективности. В самом простейшем варианте речь идёт о переборе массовых чисел «реальных» компонентов разделяемой смеси, поэтому возможный набор таких комбинаций, при которых в принципе будет возможно найти решение будет ограничен относительно небольшой величиной, не более 3-5 вариантов для каждого каскада. В этом случае включение M_{k1} и M_{k2} в общую оптимизационную процедуру нецелесообразно, поскольку задачу поиска оптимальных значений массовых чисел опорных компонентов можно легко решить методом полного перебора. Тоже самое справедливо и для третьего каскада. Однако в его случае (использование в качестве сырья природного урана) вариант должен соответствовать выбору в качестве опорного компонента ²³⁸U. Отметим, что для каждого набора значений опорных компонентов в каждом из каскадов схемы необходимо осуществить оптимизацию по свободным переменным (C_{235,P_0} и C_{235,W_2} в случае выбора в качестве оптимизационных переменных концентраций $^{235}{
m U}$ в потоках P_1 и $P_2)$ в соответствии с описанным выше алгоритмом. Предложенная методика оптимизации была опробована на примере обогащения изотопных составов регенерированного урана, представленных в таблице 2.

4.1.3 Пример использования схемы для обогащения регенерированного урана с повышенным содержанием четных изотопов

Рассмотрим пример, иллюстрирующий решение задачи регенерированного урана на основе описанной в разделе 4.1.1 каскадной схемы. В качестве разделяемой смеси выбран регенерированный уран, испытавший несколько циклов облучения, а именно состав 2 таблицы 2 [38]. Расчётное исследование проведено для следующих внешних условий:

- концентрация $C_{235,P} = 4.95\%$;
- функция для расчёта компенсирующего 236 U добавочного обогащения изотопа 235 U приняли линейной $f(C_{236,P}) = K_{236} \cdot C_{236,P}$, где K_{236} коэффициент компенсации реактивности,принятый равный 0,29 [23];
- концентрации $C_{235,W_1} = 0.1\%$ и $C_{235,W_0} = 0.1\%$;
- коэффицент разделения на единичную разность массовых чисел $q_0 = \sqrt[3]{1,2}$ [23];
- предельно допустимое значение концентрации $C_{232,P}$ задано равным $5 \cdot 10^{-7}\%$:
- отношение потоков E/P = 0.93 [38];
- предельно допустимое отношение $\frac{C_{234,P}}{C_{235,P}}=0.02$ [38].

В процессе оптимизации критерием эффективности выбран минимум работы разделения каскадной схемы. Параметры оптимизации: концентрации C_{235,P_1} и C_{235,P_2} , а также величины массовых чисел опорных компонентов для каскадов I и II – M_{k1} и M_{k2} .

В таблицах 4-6 представлены результаты расчета изотопных составов и интегральных параметров моделируемой каскадной схемы. Анализ данных таблиц 4-5 показывает, что предложенный вариант двойного каскада позволяет получить товарный НОУ требуемого качества с одновременным удовлетворением всех ограничений на концентрации чётных изотопов в нём, а также обеспечение заданной величины E/P. При этом из решения системы (4.6)-(4.7) получено, что требуемая концентрация ²³⁵U в разбавителе для оптимального варианта схемы составила 5,18%. Это означает, что для оптимальной каскадной схемы может потребоваться обогащение разбавителя выше уровня НОУ, что может вызвать сложности с формальным соблюдением нормативных документов, регламенти-

рующих допустимый уровень обогащения на разделительных производствах по обогащения урана для использования в реакторах на тепловых нейтронах. Однако отметим, что решения задачи удалось найти и для концентраций C_{235,P_0} , меньших 5%.

Массовое число	$C_i^{P_1}, \%$	$C_i^{W_1}, \%$	$C_i^E,\%$
232	$6,42 \cdot 10^{-6}$	$9,4 \cdot 10^{-10}$	$1,0258 \cdot 10^{-6}$
233	$8,12 \cdot 10^{-6}$	$5.8 \cdot 10^{-9}$	$1,3017 \cdot 10^{-6}$
234	$2.4 \cdot 10^{-2}$	$8,3 \cdot 10^{-4}$	$3.9 \cdot 10^{-3}$
235	6,16	$1.0 \cdot 10^{-1}$	1,0675
236	6,56	$4.74 \cdot 10^{-1}$	1,4458
238	Остальное	Остальное	Остальное

Таблица 4 — Концентрации изотопов в потоках первого каскада в схеме

Массовое число	$C_i^{P_2},\%$	$C_i^{W_2},\%$	$C_i^{P_0}, \%$	$C_i^P,\%$
232	$4.9 \cdot 10^{-5}$	$3,59 \cdot 10^{-6}$	_	$5.0\cdot10^{-7}$
233	$4.9 \cdot 10^{-5}$	$5,38 \cdot 10^{-6}$	_	$7,49 \cdot 10^{-7}$
234	1,1	$1,83 \cdot 10^{-1}$	$4,33 \cdot 10^{-2}$	$6.2 \cdot 10^{-2}$
235	19,76	5,26	5,18	5,19
236	13,75	6,08	_	$8,47 \cdot 10^{-1}$
238	Остальное	Остальное	Остальное	Остальное

Таблица 5 — Концентрации изотопов в потоках второго каскада, НОУ-разбавителе и продукте в схеме

В таблице 6 приведены интегральные параметры рассматриваемой схемы: величины удельных затрат работы разделения $\frac{\Delta A}{P}$ и расхода природного урана $\frac{F_{NU}}{P}$, а также их относительное изменение по сравнению с аналогичными характеристиками ординарного каскада для обогащения природного урана в открытом топливном цикле с теми же внешними условиями. Относительные изменения величин $\frac{F_{NU}}{P}$ и $\frac{\Delta A}{P}$ рассчитаны с использованием соотношений (4.8) и (4.9).

$\frac{F_{NU}}{P}$	$\delta(\frac{F_{NU}}{P}),\%$	$\frac{\Delta A}{P}$	$\delta(\frac{\Delta A}{P}), \%$	M_{k1}	M_{k2}
7,157	9,76	12,47	-5,48	238	234

Таблица 6 — Параметры схемы двойного каскада

Как видно, из данных таблиц 4 и 6 предложенный подход к обогащению регенерата позволяет полностью решить такую задачу. При этом расход

природного урана примерно на 10% ниже, чем для штатного каскада для обогащения урана до концентрации 4,95% с отвалом 0,1% при затратах работы разделения, превышающих затраты для штатного каскада на природном уране на 5,5%. Учитывая исходное высокое содержание четных изотопов в регенерате можно констатировать, что данная схема иллюстрирует возможности обогащения регенерата практически любого исходного состава в такой схеме с полным возвратом всего материала в цикл. ПРи этом полученные величины экономии природного урана и затрат работы разделения можно считать, соответственно, оценками «снизу» и «сверху» для соответствующих характеристик.

В последующих разделах настоящей главы приведены результаты серии вычислительных экспериментов, направленных на выявление ключевых закономерностей массопереноса компонентов в предложенном варианте каскадной схемы, изменения её интегральных характеристик, а также оценку эффективности применения схемы в условиях меняющихся внешних условий. Кроме того, проанализированы возможные пути утилизации возникающей фракции отхода (поток P_2 на схеме рис. 4.1).

4.2 Оценка эффективности модифицированного двойного каскада по различным критериям

В данном разделе приведены параметры предложенной каскадной схемы при их оптимизации по различным критериям эффективности (4.8)-(4.11). Рассмотренные примеры отвечают приведенной в разделе 4.1.2 постановке задачи. Расчёты проведены на примере двух изотопных составов регенерата (табл. 2), характеризующихся различным исходным содержанием четных изотопов и 235 U. Внешние условия приняты теми же, что и в рассмотренном выше примере.

Основные параметры каскадной схемы, оптимизированной по одному из критериев эффективности представлены в таблице 7. Набор оптимальных параметров каскадной схемы для каждого из критериев соответствует отдельной колонке в указанных таблицах.

В табл. 7–8, представлены результаты для случаев, когда ограничение на максимально возможную концентрацию 235 U в выходящих потоках составляло 20% и 90%. Результаты рассмотрены на примере состава 1 (табл. 2).

КП	$C_{235,P_{2}lim},\%$	$(Y_f)_{\max}$	$(Y_E)_{\max}$	$(\delta(\frac{\Delta A}{P}))_{\min}$	$(\delta(rac{F_{NU}}{P}))_{ m min}$
$Y_f,\%$	20	87.6	87.6	87.59	87.17
	90	89.33	89.33	88.48	89.33
$Y_E,\%$	20	87.57	87.59	87.56	84.71
	90	92.87	92.87	90.43	92.87
$\delta(\frac{\Delta A}{P}), \%$	20	1.504	4.773	4.773	-0.683
	90	-6.042	-6.042	5.645	-6.042
$\delta(\frac{F_{NU}}{P}), \%$	20	19.67	19.25	19.25	19.8
	90	23.84	23.84	20.44	23.84

Таблица 7 — Интегральные параметры схемы двойного каскада с HOУ-разбавителем при различных критериях оптимизации для обогащения регенерата состава 1. Сокращения: П – параметр; К – критерий.

Из анализа данных таблиц 7–8 видно, что для случая с ограничением в 90%, возможно найти решения с лучшим значением любого из представленных критериев эффективности, по сравнению с решениями, для которых введено ограничение 90% на обогащение 235 U. Например, для степеней извлечения 235 U в схеме и из регенерата удается улучшить показатель на \approx 2-5%. Также достигается эффект экономии расхода природного урана (\approx 2-4%), однако это требует повышения затрат работы разделения.

Анализируя результаты, приведенные в таблицах 7–8, можно заметить, что концентрации 235 U в потоке W_2 отличаются от соответствующих концентраций 235 U в P_1 не более чем на 1%, что позволяет сохранять 235 U, отправляя меньшее его количество в P_2 .

Для полученного набора результирующих параметров (табл. 7–8), наибольший интерес представляет решение для максимума экономии природного урана $(\delta(\frac{F_{NU}}{P}))_{\min}$, так как, несмотря на то, что, в отличие от остальных решений, оно не экономит работу разделения, а, напротив, требует перерасхода работы разделения (\approx 6%), оно позволяет получить НОУ-продукт, содержащий на \approx треть меньше 236 U для случая ограничения в 20% и с более чем двукратно меньшим содержанием 236 U для случая ограничения в 90%. В последнем случае, это достигается за счет обогащения 235 U в первом каскаде до значений, характерных для ВОУ.

КП	$C_{235,P_2lim},\%$	$(Y_f)_{\max}$	$(Y_E)_{\max}$	$(\delta(\frac{\Delta A}{P}))_{\min}$	$(\delta(rac{F_{NU}}{P}))_{ ext{min}}$
$C_{232,P},\%$	20	$4,939 \cdot 10^{-7}$	$4,938 \cdot 10^{-7}$	$4,938 \cdot 10^{-7}$	$4,992 \cdot 10^{-7}$
	90	$1,882 \cdot 10^{-10}$	$1,882 \cdot 10^{-10}$	$4,979 \cdot 10^{-7}$	$1,882 \cdot 10^{-10}$
04	20	5,134	5,155	5,154	5,102
$C_{235,P}, \%$	90	5,025	5,025	5,147	5,025
C - 07	20	0,6351	0,7056	0,7049	0,5257
$C_{236,P},\%$	90	0.26	0.26	0.68	0.26
M_{k1}, M_{k1}	20	6 6	8 6	8 6	6 4
$ ^{IVI}k1, IVIk1 $	90	6 2	6 2	8 6	6 2
C - 07	20	$2,444 \cdot 10^{-6}$	$2,443 \cdot 10^{-6}$	$2,459 \cdot 10^{-6}$	$4,813 \cdot 10^{-6}$
$C_{232,P_1},\%$	90	$3,51 \cdot 10^{-5}$	$3,51 \cdot 10^{-5}$	$4,938 \cdot 10^{-6}$	$3,51 \cdot 10^{-5}$
C 07	20	$2,478 \cdot 10^{-5}$	$2,483 \cdot 10^{-5}$	$2,477 \cdot 10^{-5}$	$1,88 \cdot 10^{-5}$
$C_{232,P_2},\%$	90	0,008287	0,008287	$2,15 \cdot 10^{-4}$	0,008287
$C_{235,P_1},\%$	20	5,0	5,0	5,032	9,75
	90	70,49	70,49	10,04	70,49
$C_{235,W_2},\%$	20	4,706	4,707	4,737	9,24
	90	70,59	70,59	9,673	70,59
$C_{235,P_2},\%$	20	19,76	19,76	19,76	19,76
	90	45,7	45,7	84,76	45,7
C = 07	20	5,275	5,302	5,29	4,529
$C_{235,P_n}, \%$	90	3,859	3,859	4,506	3,859
P. 115	20	7,278	7,259	7,278	9,192
P_2 , K Γ	90	0,11	0,11	0,811	0,11

Таблица 8 — Параметры схемы двойного каскада с НОУ-разбавителем при различных критериях оптимизации для обогащения регенерата состава №1. Сокращения: П — параметр; К — критерий.

Таким образом, при отсутствии ограничения на обогащение ²³⁵U, оптимальные результаты достигаются, когда отборная часть первого каскада удлиняется – в нашем случае в отборном потоке концентрации ²³⁵U превышают 70%. Поэтому это преимущества будет достигнуто при дополнительных затратах работы разделения.

Также как и в расчете, в котором имело место ограничение на $^{235}\mathrm{U}$ 20% (таблица 7), в таблице 8 можно проследить следующую закономерность.

Меньшая концентрация 235 U в потоке P_1 приводит к тому, что поток W_2 будет необходимо разбавлять НОУ-разбавителем с более высокой концентрацией изотопа 235 U, что неизбежно приведет к более высоким затратам сырьевого материала — природного урана, из которого нарабатывается НОУ разбавитель.

Заметим также, что для решения для критерия $(\delta(\frac{\Delta A}{P}))_{\min}$ (случая ограничения в 90%), несмотря на большую массу «отхода» P_2 (в \approx 7 раз), содержание 232 U в в нем в \approx 40 раз раз ниже (234 U в \approx 12 раз ниже, в табл. не приведены), чем для альтернативных решений, а значит и ниже удельная активность, которую также необходимо учитывать при оценке издержек при обращении с образовавшимся нештатным отходом, хотя этот вопрос выходит за рамки данной диссертации.

Важно также заметить, что выход за границу 20% позволяет на 1 или 2 порядка сократить массу производимого нештатного отхода в потоке P_2 : на одну тонну товарного металлического НОУ образуется менее 1 кг радиоактивного отхода (кроме решения для $(\delta(\frac{\Delta A}{P}))_{\min}$) тогда как при ограничении в 20%, в более чем в 10 раз больше, \approx 7 или 9 кг. Таким образом, вопрос необходимости дальнейшего решения проблемы накопления отхода путем его дальнейшего задействования в топливном цикле, образующегося в P_2 актуален только при наличии ограничения на получение высокообогащенного урана, ввиду незначимого количества такого отхода в случае отсутствия ограничения в 20% 235 U, а также ввиду высокого содержания в нем четных изотопов, по сравнению со случаем, имеющим ограничение. Для такого ограничения в дальнейших разделах будут рассмотрены способы решения проблемы утилизации нештатного отхода P_2 различными путями.

В приложении представлены результаты аналогичного исследования для состава 2, соответствующего пятому рециклу, приведенному в табл. 2) и, соответственно, имеющем более высокие концентрации чётных изотопов урана.

Из результатов приведенных в 4.2 расчетов, следует, что:

- 1. решения для наилучших значений степени извлечения в схеме $((Y_f)_{\max})$ и из регенерата $(Y_E)_{\max}$, а также для $(\delta(\frac{\Delta A}{P}))_{\min}$, совпадают;
- 2. решение, соответствующее оптимальному расходу природного урана $((\delta(\frac{F_{NU}}{P}))_{\min})$, позволяет на производство 1 т НОУ-продукта сэкономить более ≈ 200 кг природного урана, что близко по сравнению с решениями с оптимальным расходом работы разделения и степенями извлечения. При этом решения для оптимальных $((Y_f)_{\max})$, $(Y_E)_{\max}$ и $(\delta(\frac{\Delta A}{P}))_{\min}$

- позволяют сэкономить \approx 5% работы разделения, тогда как решения с оптимальным расходом природного урана менее 1% 8;
- 3. При минимальных затратах работы разделения, по сравнению с другими решениями, в конечном НОУ-продукте будет на $\approx 16\%$ меньше 236 U, что является существенным преимуществом в условиях многократного рецикла, где важно избегать накопления четных изотопов 232,236 U (присутствие 236 U ускоряет накопление изотопа 232 U, являясь его предшественником в цепочке ядерных превращений [23]);
- 4. преимуществом решения с наибольшей экономией природного урана является то, что этот случай позволяет задействовать в качестве НОУ-разбавителя изотопный состав с наименьшим содержанием ²³⁵U, что в принципе позволяет отказаться от использования отдельного каскада для наработки НОУ-разбавителя, и использовать независимо нарабатываемый товарный НОУ;
- 5. для решения с минимизацией использования природного урана, более высокий расход работы разделения происходит из-за возрастания удельного расхода работы разделения в первом каскаде за счет выбора более легкого опорного компонента при расчете *R*-каскада (²³⁶U, вместо ²³⁸U как в остальных случаях). В результате это позволяет получить меньшую концентрацию нежелательного ²³⁶U в отборном потоке *P*₁, одновременно с этим добиваясь более высокого значения концентрации ²³⁵U. В конечном счете, если в качестве опорного компонента первого каскада выбирается более легкий изотоп, в конечном НОУ-продукте оказывается меньше ²³⁶U, что позволяет затрачивать меньше сырьяразбавителя на разбавление ²³⁶U дополнительным количеством ²³⁵U;

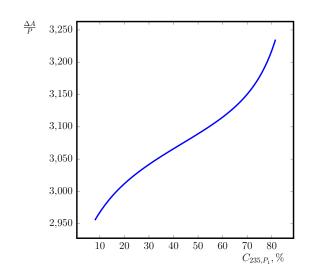
4.2.1 Анализ закономерностей массопереноса изотопов урана в двойном модифицированном каскаде

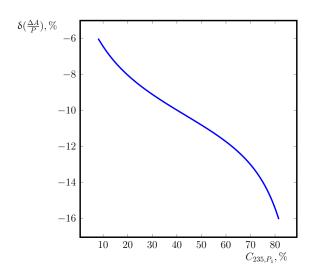
Из анализа данных таблиц A1-A1 видно, что концентрация 235 U в отборе каскада II (C_{235,W_2}) стремится приблизиться к концентрации этого же изотопа в потоке P_1 . Для объяснения подобных закономерностей с позиций селективного массопереноса компонентов в модифицированном двойном каскаде (рис.

4.1) проведено следующее расчетное исследование. В вычислительном эксперименте варьировали обогащение ²³⁵U в первом каскаде в диапазоне от 7 до 85%. При этом концентрация C_{235,W_2} во втором каскаде в отвале всегда была на 1%ниже, чем C_{235,P_1} . Концентрация C_{235,P_2} была задана и соответствовала 90%. Остальные условия соответствовали описанным в предыдущих разделах. Задание величин C_{235,P_1} , C_{235,W_2} и C_{235,P_2} уменьшило число неизвестных параметров схемы. В результате вместо системы (4.6)-(4.7) при расчёте для каскадной схемы в целом, решали только одно уравнение (4.6). Это означало, что величину концентрации изотопа ²³²U в товарном НОУ рассчитывали, а не задавали.

РИСУНКИ (ПЕРЕЧЕНЬ):

4.2 - 4.16

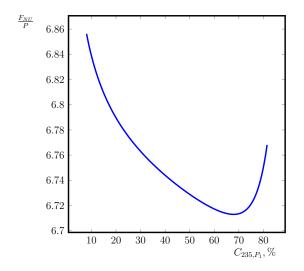




затрат работы разделения от концентрации ²³⁵U в потоке легкой фракции первого каскада (P_1)

Рисунок 4.2 — Зависимость удельных Рисунок 4.3 — Зависимость экономим работы разделения от концентрации $^{235}{
m U}$ в потоке легкой фракции первого каскада (P_1)

На рис. 4.2,4.3, 4.4, 4.5 представлены зависимости удельных затрат работы разделения и расхода природного урана, а также величин экономии (перерасхода) для каждой из характеристик по отношению к случаю открытого топливного цикла при тех же внешних условиях. Из анализа представленных кривых видно, что величины расхода природного урана и затрат работы разделения имеют минимум в зависимости от концентрации C_{235,P_1} . Причём положения этих минимумов различны. Для ответа на вопрос об их появлении рассмотрим рисунки 4.6,4.7,4.8,4.9, на которых представлены зависимости концентраций изотопа 235 U в потоках W_2 и P_0 , а также концентраций изотопа 236 U



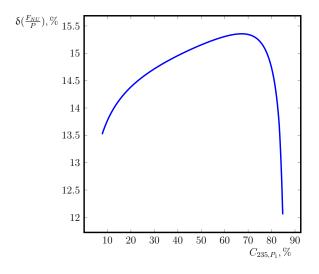
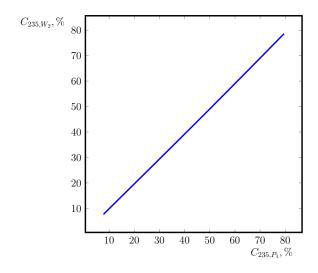


Рисунок 4.4 — Зависимость удельного расхода природного урана от концентрации 235 U в потоке легкой фракции первого каскада (P_1)

Рисунок 4.5 — Зависимость экономим природного урана от концентрации 235 U в потоке легкой фракции первого каскада (P_1)



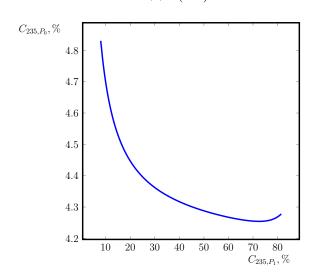
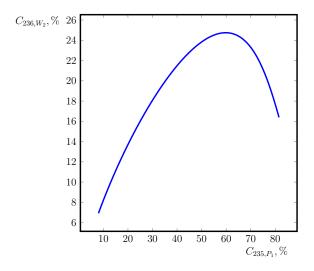


Рисунок 4.6 — Зависимость концентрации 235 U в потоке W_2 от концентрации 235 U в потоке легкой фракции первого каскада (P_1)

Рисунок 4.7 — Зависимость концентрации 235 U в НОУ-разбавителе от концентрации 235 U в потоке легкой фракции первого каскада (P_1)

в потоках W_2 и P_1 от величины концентрации 235 U в потоке P_1 . Анализ представленных зависимостей показывает, что с ростом концентрации 235 U в отборе первого каскада концентрация 236 U ведёт себя немонотонно, достигая максимума при значении концентрации C_{235,P_1} приблизительно 60%. Это обусловлено тем, что с ростом концентрации 235 U в потоке P_1 происходит снижение интенсивности обогащения 236 U за счет более интенсивного обогащения более лёгких изотопов 232 U, 234 U. С другой стороны происходит и постепенное уменьшение



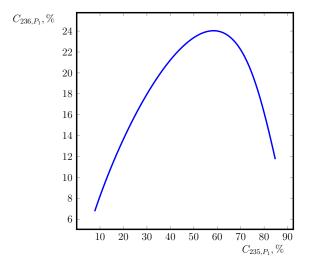


Рисунок 4.8 — Зависимость C_{236,W_2} от концентрации $^{235}\mathrm{U}$ в потоке легкой фракции первого каскада (P_1)

Рисунок 4.9 — Зависимость C_{236,P_1} от концентрации 235 U в потоке легкой фракции первого каскада (P_1)

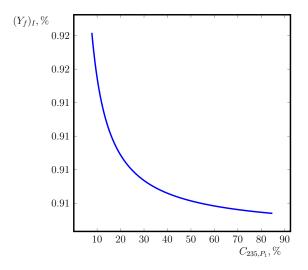
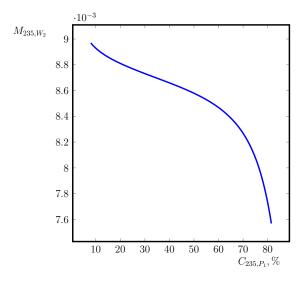


Рисунок 4.10 — Зависимость степени извлечения $^{235}{\rm U}$ в первом каскаде от концентрации $^{235}{\rm U}$ в потоке легкой фракции первого каскада (P_1)

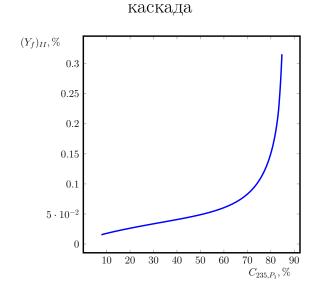
извлечения 235 U в этот поток. Последний факт подтверждает рис. 4.10, на котором представлена зависимость степени извлечения 235 U в поток P_1 . При этом извлечённая в потоке P_1 масса 235 U по-разному распределяется между выходящими потоками каскада II (см. рисунки 4.11-4.12). С ростом концентрации C_{235,P_1} происходит сокращение обогатительной части каскада II, что неминуемо приводит к росту величины самого потока P_2 по отношению к P_1 и W_2 . В результате в зависимостях массы 235 U в каждом из потоков есть максимум и минимум, совпадающие по положению (см. рис. 4.6,4.7).



 M_{235,P_2} 1.4 1.2 0.8 0.6 0.4 0.2 30 50 $C_{235,P_1}, \%$

Рисунок 4.11 — Зависимость массы ²³⁵U в потоке тяжелой фракции второго каскада W_2 от концентрации $^{235}{
m U}$ в потоке легкой фракции первого

Рисунок 4.12 — Зависимость массы ²³⁵U в потоке легкой фракции второго каскада P_2 от концентрации $^{235}{\rm U}$ в потоке легкой фракции первого



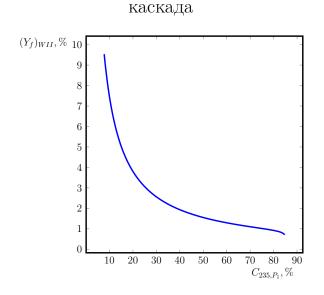
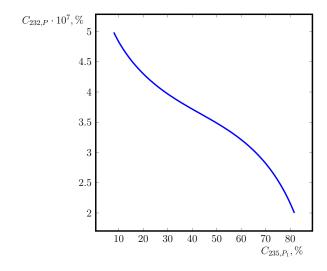


Рисунок 4.13 — Зависимость степени извлечения $^{235}{
m U}$ в потоке P_2 второго легкой фракции первого каскада (P_1)

Рисунок 4.14 — Зависимость степени извлечения $^{235}{
m U}$ в потоке W_2 второго каскаде от концентрации $^{235}{
m U}$ в потоке каскаде от концентрации $^{235}{
m U}$ в потоке легкой фракции первого каскада (P_1)

При этом максимальной массе $^{235}\mathrm{U}$ в потоке W_2 , который участвует в формировании конечного продукта, соответствует минимум величины затрат работы разделения (см. рис. 4.2). не выходит :(

Анализ кривой расхода природного урана в зависимости от концентрации изотопа $^{235}{
m U}$ в отборе первого каскада показывает, что данная величина также имеет минимум, но достигаемый при другом значении концентрации в отборе



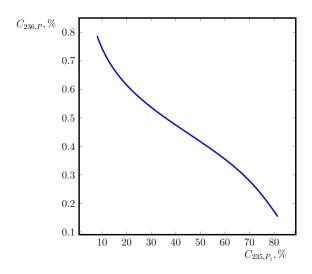


Рисунок 4.15 — Зависимость концентрации ²³²U в потоке

Рисунок 4.16 — Зависимость концентрации ²³⁶U в потоке У-продукта от концентрации ²³⁵U

НОУ-продукта от концентрации 235 U в НОУ-продукта от концентрации 235 U в потоке легкой фракции первого потоке легкой фракции первого каскада (P_1)

первого каскада (рис. ...). Возможное объяснение состоит в том, что расход природного урана в схеме полностью определяется каскадом, нарабатывающим НОУ-разбавитель, а также неопределенностью в его параметрах, которые, в свою очередь, зависят от величины добавочного обогащения для компенсации влияния 236 U. Это утверждение иллюстрируют кривые концентрации 236 U в потоке W_2 и концентрации 236 U в разбавителе в зависимости от C_{235,P_1} . Как видно из рис. $^{4.8}$ концентрация 236 U в потоке W_2 имеет максимум в зависимости от концентрации C_{235,P_1} . При этом максимальное значение концентрации 236 U в потоке W_2 приблизительно соответствует точке минимуму концентрации C_{235,P_0} .

Таким образом, с ростом концентрации изотопа 235 U в отборе первого каскада наблюдается рост концентрации этого же изотопа в потоке W_2 , что делает возможным понижение концентрации в разбавителе, по-видимому, до того момента, пока масса 235 U в потоке отвала второго каскада не становится настолько малой, что несмотря на рост концентрации данного изотопа, его не хватает по массе и, следовательно, необходимо поднимать его концентрацию в P_0 .

4.2.2 Выводы по результатам исследования эффективности схемы модифицированного двойного каскада

По результатам анализа представленных решений (табл. 8–A1) можно сделать следующие выводы:

- при отсутствии ограничения на обогащение урановой смеси по ²³⁵U до уровня ВОУ, можно получить финальный продукт со значительно более низкой концентрацией изотопа ²³⁶U, при этом используя НОУ-разбавитель с меньшей концентрацией ²³⁵U, которая не будет выше 5%;
- меньшая концентрация 235 U в легкой фракции первого каскада приводит к необходимости использовать НОУ-разбавитель с более высоким содержанием 235 U, для того чтобы добиться требуемой концентрации 235 U в конечном продукте, что приводит к большему расходу незагрязненного четными изотопами сырьевого материала. При этом, при ограничении на обогащение 235 U в 20% оптимальные по извлечению 235 U из регенерата решения соответствуют минимально заданной (5%) концентрации в P_1 ;
- для загрязненного четными изотопами состава регенерата (в рассматриваем случае состава №2) в процессе оптимизации работы разделения могут быть найдены в качестве оптимальных такие решения, при которых оптимум работы разделения будет достигнут за счет наработки НОУ-продукта по большей части за счет сырья, не содержащего четные изотопы. Поэтому особенно важно контролировать показатель извлечения ценного изотопа ²³⁵U из возвращаемого в цикл регенерата;
- отсутствие ограничения в 20% на обогащение 235 U в каскадной схемы, позволяет улучшить все целевые критерии за счет эффективного концентрирования изотопов 236 U в потоке P_2 , выводимом из системы. Для этих случаев, по сравнению со случаем, который отличается необходимостью выдерживать ограничение в 20%, в P_2 оказывается меньшее количество изотопа 235 U за счет уменьшения массы потока P_2 на 2 порядка.

4.3 Анализ «устойчивости» предложенного подхода обогащения регенерата к изменению внешних условий

4.3.1 Анализ влияния ограничений предельно допустимой концентрации $^{232}{ m U}$ в товарном НОУ

В рассмотренных в предыдущих разделах примерах обогащения регенерированного урана использованы ограничения на концентрации чётных изотопов в товарном НОУ и соотношение между потоками исходного регенерата и конечного продукта, соответствующие требованиям действующих нормативных документов или приведенным в литературе по теме работы [23],[36]. Очевидно, что выбранные величины могут оказаться другими в будущем. То же касается и величин обогащения ²³⁵U в продукте и отношения масс возвращаемого регенерата к производимому на его основе товарному НОУ (отношение Е/Р). Как показывают результаты анализа каскадных схем обогащения регенерированного урана (Главы 1,3), некоторые из них чувствительны к выбору как исходного состава регенерата, так и внешних условий. В связи с этим целесообразно проанализировать возможность применения рассматриваемой каскадной схемы в широком диапазоне внешних условий.

Для представленной на рис. 4.1 каскадной схемы проведены расчёты ее параметров при различных концентрациях $^{235}{\rm U}$ в продукте, ограничениях на концентрацию изотопа $^{232}{\rm U}$ в продукте, а также различных значений отношения потоков E/P.

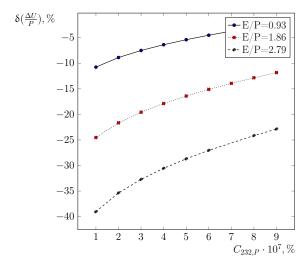
Для вычислительных экспериментов были заданы следующие условия:

- 1. в обогащение поступает загрязненный состав регенерата (табл. $\frac{2}{2}$);
- 2. требуемое обогащение по изотопу 235 U ($C_{235,P}$) составляло: 4,4%, 4,7%, 4,95%, 5,2%, 5,5%;
- 3. величина предельно допустимой концентрации изотопа 232 U в НОУ-продукте варьируется в интервале от $1 \cdot 10^{-7}\%$ до $1 \cdot 10^{-6}\%$;
- 4. концентрация C_{235,P_2} не превышает 20%, что соответствует порогу, принятому МАГАТЭ для материала прямого использования [105];
- 5. расход регенерированного урана на единицу продукта (E/P) принят равным:

- Случай 1: 0,93 кг на 1 кг НОУ-продукта;
- Случай 2: 1,86 кг на 1 кг НОУ-продукта;
- Случай 3: 2,79 кг на 1 кг НОУ-продукта; Такой выбор величины E/P моделирует ситуации использования ОЯТ из 1-3 реакторов для производства свежего топлива только для одного реактора.

В целом проведенные вычислительные эксперименты показали, что для всех возможных комбинаций внешних условий, описанных выше, удалось найти решение задачи. Иными словами предложенная схема может быть использована для обогащения регенерата урана в широком диапазоне внешних условий. Однако эффективность схемы в существенной мере зависит от выбора этих условий. Для примера на рис. 4.17-4.20 приведены зависимости экономии затрат работы разделения в топливном цикле по сравнению с открытым циклом, величины удельного расхода природного урана, степени извлечения 235 U в схеме Y_f и из регенерата Y_E от величины предельно допустимой концентрации изотопа $^{232}{
m U}$ в товарном НОУ при различных значениях параметра E/P для схемы. Представленные кривые построены для обогащения по изотопу ²³⁵U – 4,95%. Отметим, что решения задачи были найдены во всех случаях, кроме нескольких точек на кривой для случая E/P = 0.93, где не удалось найти решений при увеличении допустимой концентрации ^{232}U в товарном НОУ. Такой результат связан с тем, что в этом случае входящая в каскадную схема масса $^{232}{
m U}$ является наименьшей и даже, несмотря на относительную загрязнённость регенерата данным изотопом, его исходной массы недостаточно, чтобы получить концентрацию этого изотопа на уровне допустимого предела в товарном НОУ. Проще говоря, при E/P = 0.93 невозможно найти решения, при которых концентрация $^{232}\mathrm{U}$ в товарном НОУ будет строго равна заданной предельной величине, а возможно только найти решения, для которых эта концентрация будет ниже. Естественно, получение концентрации ²³²U в продукте ниже допустимых пределов также можно рассматривать в качестве успешного решения поставленной задачи.

Анализ представленных зависимостей рис. A10-4.20 позволяет сделать вывод о том, что эффективность предложенной каскадной схемы с точки зрения её основных интегральных характеристик в существенной мере зависит внешних условий. Например, экономия природного урана в цикле возрастает при увеличении отношения E/P. С другой стороны, в этом же случае растёт перерасход работы разделения в цикле и падают степени извлечения ^{235}U как из



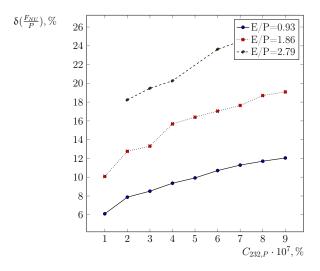
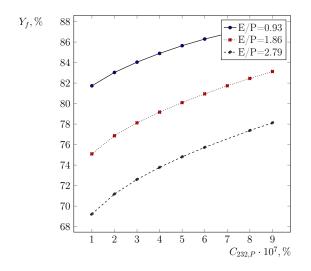


Рисунок 4.17 — Зависимость экономии работы разделения от ПДК 232 U в НОУ-продукте с обогащением до уровня 4.95% для различных $\frac{E}{R}$.

Рисунок 4.18 — Зависимость расхода природного урана от ПДК 232 U в НОУ-продукте с обогащением до уровня 4.95% для различных $\frac{E}{R}$.



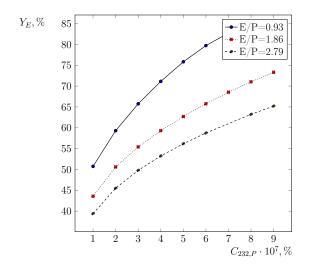


Рисунок 4.19 — Зависимость степени извлечения 235 U от ПДК 232 U в НОУ-продукте с обогащением до уровня 4.95% для различных $\frac{E}{P}$.

Рисунок 4.20-3ависимость степени извлечения 235 U из регенерата от ПДК 232 U в НОУ-продукте с обогащением до уровня 4.95% для различных $\frac{E}{D}$.

самого регенерата, так и в целом в схеме. Это означает, что выбор величины E/P, которая фактически определяет расход регенерированного урана в топливном цикле может стать предметом решения отдельной оптимизационной задачи, направленной на минимизацию издержек и экономию сырьевых материалов в цикле. Отметим, что из характера представленных кривых следует, что уменьшение допустимого предела по концентрации изотопа 232 U в продукте также значительно влияет на интегральные характеристики каскадной схемы. В част-

ности, для всех рассмотренных значений E/P величина перерасхода работы разделения уменьшалась примерно вдвое в диапазоне изменения предельной концентрации ^{232}U в товарном НОУ от $1\cdot 10^{-7}\%$ до $1\cdot 10^{-6}\%$. Также с ростом предельной концентрации ^{232}U в товарном НОУ на десятки процентов возрастали величины Y_f и Y_E . Это означает, что уменьшение допустимой концентрации ^{232}U в продукте при фиксированном отношении E/P обусловливает ухудшение всех рассмотренных интегральных характеристик каскадной схемы.

Для других величин обогащения ²³⁵U получены результаты, показавшие качественно аналогичные закономерности изменения интегральных характеристик каскадной схемы при различных условиях.

Таким образом, полученные результаты позволяют сделать вывод о принципиальной применимости схемы двойного каскада с НОУ-разбавителем для решения задачи обогащения регенерированного урана в условиях многократного рецикла и в широком диапазоне изменения внешних условий задачи.

4.4 Общие выводы по результатам анализа схемы двойного каскада с НОУ-разбавителем

- 1. Предложена модификация двойного каскада с использованием дополнительного каскада для наработки НОУ-разбавителя для обогащения регенерированного урана различного состава в условиях многократного рецикла.
- 2. Разработана оригинальная методика расчёта и оптимизации параметров предложенной каскадной схемы по различными критериям эффективности. На основе разработанной методики реализован компьютерный код, с использованием которого проведена серия вычислительных экспериментов, позволивших оценить эффективность каскадной схемы при её оптимизации по различным критериям, в частности показано, что:
 - схема применима для обогащения регенерированного урана в условиях многократного рецикла урана в топливе легководных реакторов, поскольку позволяет получать продукт, отвечающий всем требованиям на концентрации четных изотопов для

- регенерата различного исходного состава, включая случаи, когда исходное содержание $^{232}{
 m U}$ в регенерата в несколько раз превышает допустимые значения для товарного НОУ;
- показано, что с использованием предложенной схемы даже для составов с относительно высоким содержанием чётных изотопов возможно добиться экономии природного урана на уровне 15% и выше при практически нулевом перерасходе или даже экономии затрат работы разделения;
- схема показывает свою устойчивость в условиях изменения внешних ограничений и требований к получаемому продукту
 товарному НОУ.
- 3. схема позволяет отделить участки обогащения регенерированного урана (где разделительное оборудование будет подвержено загрязнению минорными изотопами) от каскадов, обогащающих не содержащий ^{232,236}U природный уран или ОГФУ.
- 4. среди недостатков схемы можно отметить накопление побочно производимого отхода в виде отбора второго каскада (поток P_2). Стратегии дальнейшего обращения с данным отходом требуют отдельного анализа.
- 5. работа схемы связана с потерями работы разделения при двух этапах производственного процесса:
 - а) обеднение отбора первого каскада P_1 во втором каскаде;
 - б) смешивание потоков W_2 с НОУ-разбавителем P_0 , в которых различается содержание изотопа 235 U;

4.5 Рассмотрение различных возможностей утилизации легкой фракции второго каскада в схеме

4.5.1 Анализ возможности утилизации легкой фракции путем ее перемешивания с регенератом, поступающим на обогащение

Описание схемы двойного каскада с НОУ-разбавителем с возвратом потока P_2 в цикл

В качестве модификации схемы двойного каскада с НОУ-разбавителем (рис. 4.21), рассмотренной в предыдущем разделе, предложен способ, позволяющий вернуть поток P_2 в топливный цикл для производства НОУ-продукта (рис. 4.1) [95; 106]. Принцип ее работы состоит в следующем.

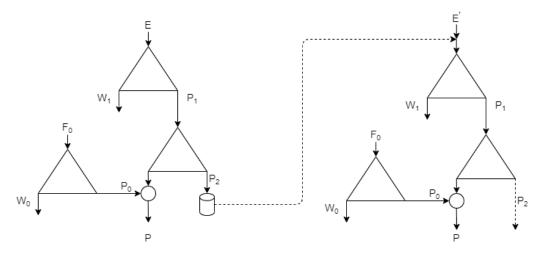


Рисунок 4.21 — Схема передачи загрязненной изотопом 232 U фракции гексафторида урана в двойном каскаде от первой партии дообогащенного регенерированного урана к последующей. Обозначения: E — поток регенерированного урана; P_1 — поток отбора первого каскада, выступающий питанием второго каскада; W_1 — поток отвала первого каскада; W_2 — поток тяжелой фракции (условный «отвал») второго каскада; P_0 — 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 регенератом очередного рецикла

Учитывая, что каскадная схема двойного каскада с НОУ-разбавителем (рис. 4.1) предназначена для обогащения регенерата с высоким накопившимся в ходе серии пройденных рециклов содержанием изотопа 232 U, можно использовать такую каскадную схему для вовлечения ранее полученного в потоке отбора второго каскада фракции P_2 загрязненной изотопом 232 U. Выведенный ранее из системы гексафторида урана может быть перемешан с регенератом, полученным из следующей партии отработавшего топлива, то есть с составом более загрязненным изотопами 232,233,234,236 U, чем исходно использовавшийся состав, побочным продуктом которого оказался этот P_2 . Полученная таким образом в результате смешения P_2 предыдущего рецикла и регенерата очередного рецикла смесь будет отправлена на последующее обогащение (рис. 4.21).

Исходя из идеи такой схемы, при ее использовании удастся полностью замкнуть топливный цикл по урану, а единственным отходом производства останется ОГФУ, образующийся в отвале первого каскада, который можно считать штатным отходом обогатительного производства с отработанными технологиями хранения и переработки. При этом после завершения производственного цикла останется невостребованным только та масса обогащенного по изотопу ²³²U гексафторида урана (загрязненной фракции легкого конца второго каскада (рис. 4.21)), которая будет образована после обогащения последней партии регенерата. Таким образом, предложенный подход к дообогащению регенерата урана позволяет организовать полный возврат массы регенерированного урана в топливный цикл в течение всего жизненного цикла задействованного урана.

При этом, такая схема, при схожем наборе достоинств и недостатков схемы двойного каскада с НОУ-разбавителем с возвратом потока P_2 в цикл (рис. 4.21), в качестве достоинства схемы с возвратом P_2 предполагается более глубокая выработка потенциала делящегося 235 U, накапливаемого совместно с изотопами 232,233,234 U в загрязненной фракции второго каскада. Это должно позволить добиться меньших потерь 235 U на всем жизненном цикле используемого урана.

Ранее, в работе [95], было показано, что предложенная схема рециклирования действительно позволяет полностью израсходовать и исходный регенерированный уран и образующийся в результате использования двойного каскада высокообогащенный отход, реализовав вышеупомянутые достоинства схемы. Следующим шагом должна стать оценка интегральных показателей для рассматриваемой схемы в условиях ее использования для обогащения

регенерированного урана и наработки НОУ для обеспечения поставок для формирования топлива нескольких последовательных загрузок реактора.

Для этого рассмотрим постановку задачи возврата регенерированного урана с последующим замыканием P_2 , на основе описанной в разделе 4.1.1 каскадной схемы. В качестве разделяемой смеси выбран регенерированный уран, испытавший несколько циклов облучения, а именно состав 2 в таблица 2 [38]. Требуемая концентрация 235 U в конечном продукте задана равной 4,95%, коэффициент компенсации реактивности 0,29. Величину коэффициента разделения на единичную разность массовых чисел выбрали равной 1,2. Концентрации 235 U в потоках отвала каскада 1 и каскада для наработки разбавителя задали равной 0,1%. Ограничение по концентрации 232 U соответствовало $5 \cdot 10^{-7}$ %, а отношение масс «исходный регенерат/товарный НОУ» выбрано равным 0,93 [38]. При решении задачи оптимизации с переменными значениями концентраций 235 U в потоках отборов P_1 и P_2 , описанном выше, значения величин массовых чисел опорных компонент (M_{k1} и M_{k2}) был выбран исходя из найденных ранее оптимальных решений. Алгоритм для расчета каскадной схемы описан в 4.1.2

Последовательность перегрузок можно описать следующим образом. Из рассматриваемого исходного состава регенерата изготавливают сначала топливо для первой перегрузки. Далее, загрязненную фракцию от обогащения регенерата для первой перегрузки перемешивают с регенератом исходного состава для второго рецикла и направляют на последующее обогащение для получения топлива следующей перегрузки. В итоге рассматривается 7 перегрузок. При расчете состава низкообогащенного урана после каскада при получении топлива для каждой из перегрузок решается оптимизационную задачу, алгоритм которой описан в 4.1.2.

Заметим, что процесс возврата данного материала в воспроизводство низкообогащенного урана может быть начат также и после дообогащения регенерата уже для одной ТВС и даже для ее части (непрерывный возврат). В этом случае также удастся полностью замкнуть топливный цикл по урану, а единственным отходом производства станет обедненный гексафторид, образующийся в отвале первого каскада, который можно считать штатным отходом обогатительного производства, для которого на сегодняшний день отработаны технологии хранения и переработки.

При этом после вывода завода из эксплуатации (или остановки на планово-предупредительный ремонт) останется невостребованным только та масса

обогащенного по изотопу ²³²U гексафторида урана, которая будет образована после обогащения последней партии регенерата на этом заводе. Таким образом, рассматриваемый подход к дообогащению регенерата урана позволяет организовать полный возврат регенерированного урана в топливный цикл в течение практически всего жизненного цикла топлива легководных реакторов, работающих в замкнутом топливном цикле. Однако, несмотря на очевидные достоинства рассматриваемого способа, возникает вопрос о его эффективности с точки зрения интегральных характеристик разделительного каскада, важных для экономики топливного цикла в целом. Речь идет об экономии природного урана в цикле и затратах работы разделения на единицу массы готового НОУ.

Ввиду сложности многокритериального анализа для каждой из перегрузок был рассмотрен случай с параллельными «ветками», на каждой из которых проводили последовательный расчет изотопных составов и параметров разделительного каскада для семи перегрузок, при условии оптимизации на каждом из шагов по одному и тому же критерию эффективности. В качестве критериев эффективности выступали величины: (1) минимум расхода природного урана на единицу продукта, (2) минимум затрат работы разделения на единицу продукта, (3) минимум массы отхода двойного каскада, (4) минимум концентрации изотопа $^{232}\mathrm{U}$ (в диапазоне $2\text{-}5\cdot10^{-7}\%$), (5) минимум концентрации изотопа $^{236}\mathrm{U}$, (6) максимум степени извлечения ²³⁵U из поступающего в обогащение регенерата (4.11). Смысл критериев (1), (2) и (6) описан в 5. Представленные номера критериев соответствуют обозначениям кривых для рис. 4.26—??. Под степенью извлечения $^{235}{
m U}$ из исходного регенерированного урана понимали отношение массы 235 U в отвале второго каскада к массе 235 U в исходной смеси регенерата, поступившего для обогащения. В числе прочих обозначений, используются потоки: E – поток питающего каскадную схему регенерата, P – товарный HOУ.

Далее представлены результаты проведенных вычислительных экспериментов и проведен их анализ.

На рисунке 4.22 представлено изменение удельного расхода природного урана при получении товарного НОУ при шести различных критериях эффективности, по которым осуществляли оптимизацию для каждой перегрузки. Как следует из анализа зависимостей (рис. 4.22-4.25)), показанных на указанном рисунке при оптимизации по четырем, а именно: минимуму удельного расхода природного урана, минимуму удельных затрат работы разделения, минимуму массы отхода двойного каскада, максимуму степени извлечения ²³⁵U из посту-

пающего в обогащение регенерата, зависимости практически совпадают. Это можно объяснить тем, что данные критерии близки по своей сути. Например, максимум степени извлечения ²³⁵U из поступающего в обогащение регенерата должен приводить к необходимости использования минимальной массы $^{235}\mathrm{U}$ из природного сырья, что и выражается в уменьшении расхода природного сырья. В целом все кривые представляют собой уменьшающиеся функции, что логично, учитывая, что с каждой перегрузкой масса исходного регенерата возрастает одновременно с повышением концентрации ²³⁵U в нем.

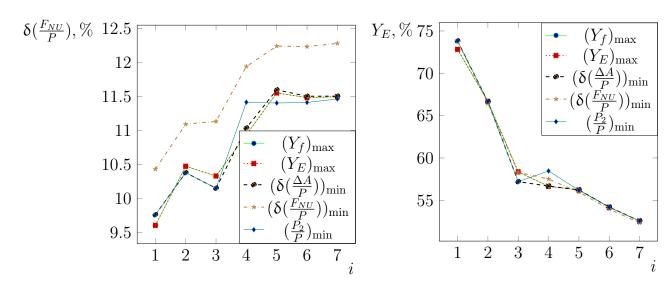


Рисунок 4.22 — Зависимость удельного расхода природного урана в двойном каскаде с замыканием в зависимости 4,95% для различных критериев эффективности.

Рисунок 4.23 — Степень извлечения ²³⁵U из исходного регенерата в двойном каскаде с замыканием в от номера перегрузки для обогащения зависимости от номера перегрузки для обогащения 4,95% для различных критериев эффективности.

В результате описанных выше процессов увеличивается и достигает значений, близких к 2, величина отношения (исходный регенерат)/продукт (рис. 4.26). Анализ зависимостей концентраций 235 U и четных изотопов в регенерате, поступающем на обогащение после смешивания с высокообогащенной фракцией показывает, что все они повышается с каждой перегрузкой (рисунки 4.27–4.30). Однако при использовании в качестве критериев эффективности минимумов концентраций $^{232}{\rm U}$ и $^{236}{\rm U}$ в товарном НОУ концентрации всех указанных выше изотопов в исходном регенерате возрастают заметно интенсивнее. Важно при этом отметить, что на последних перегрузках концентрация $^{235}{
m U}$ в исходном

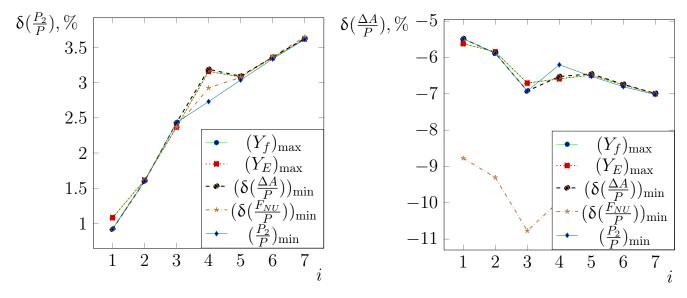


Рисунок 4.24 — Зависимость величины Рисунок 4.25 — Зависимость экономии удельного отхода (на единицу работы разделения в зависимости от продукта) в зависимости от номера перегрузки для обогащения 4,95% для различных критериев эффективности.

регенерате превышает величину, требуемую для финального продукта (рисунок 4.30). Это означает, что схема начинает обеднять смесь и «чистить» ее от четных, а не обогащать. Особенно сильно это проявляется при минимизации концентраций четных изотопов в продукте, поскольку в этих случаях концентрация 235 U в исходном регенерате могут приближаться к 5% (рисунок 4.29). Подобные результаты говорят, в первую очередь, о нецелесообразности использования схемы в таком варианте для последовательного обогащения регенерата нескольких перегрузок с использованием в качестве критериев эффективности на каждом шаге требования минимальности концентраций $^{232}{\rm U}$ и $^{236}{\rm U}$ в товарном НОУ. Однако требуют дополнительных исследований возможности дальнейшей модификации предложенной схемы, в том числе, для более эффективного использования исходного регенерата с повышенным содержанием ²³⁵U. Одним из таких вариантов может стать расширение диапазона увеличения концентрации $^{235}\mathrm{U}$ в схеме, например, до 90%. Другие варианты могут быть основаны на введении дополнительных потоков для разбавления четных изотопов и снижения концентрации ²³⁵U до нужных значений.

Как следует из результатов, представленных на рис. 4.26–4.30, рассматриваемая каскадная схема может работать в широком диапазоне изменения концентраций компонентов, в первую очередь, четных изотопов и ²³⁵U в исход-

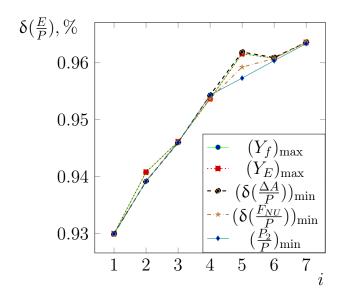
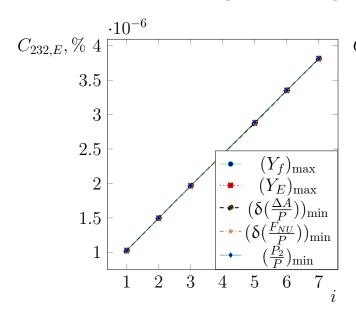


Рисунок 4.26 — Зависимость отношения потоков исходного регенерата и финального продукта (товарного НОУ) от номера перегрузки для обогащения 4,95% для различных критериев эффективности.



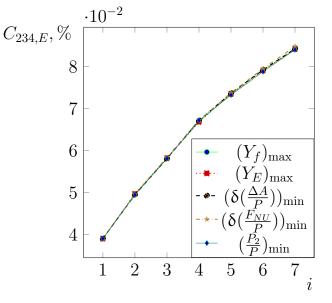
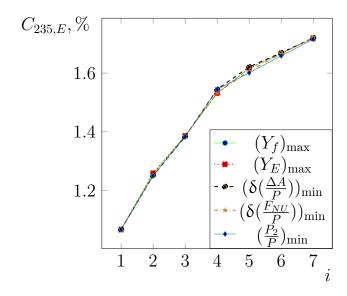


Рисунок 4.27 — Зависимость концентрации ²³²U в исходном регенерате от номера перегрузки для обогащения 4,95% для различных критериев эффективности.

Рисунок 4.28 — Зависимость концентрации ²³⁴U в исходном регенерате от номера перегрузки для обогащения 4,95% для различных критериев эффективности.

ном регенерате. Данный факт открывает возможности для применения схемы в условиях топливных циклов с увеличенной длительностью топливного цикла, а также в условиях многократного рецикла урана.

В зависимости от выбранного критерия эффективности для оптимизации схемы при расчете изотопного состава НОУ для каждой новой перегрузки,



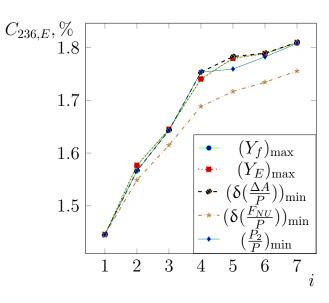


Рисунок 4.29 — Зависимость концентрации ²³⁵U в исходном регенерате от номера перегрузки для обогащения 4,95% для различных критериев эффективности.

Рисунок 4.30 — Зависимость концентрации ²³⁶U в исходном регенерате от номера перегрузки для обогащения 4,95% для различных критериев эффективности.

возможно обеспечить широкую вариативность параметров рассматриваемой каскадной схемы. При этом в случае выбора в качестве критериев эффективности величин удельного расхода природного урана, удельных затрат работы разделения, массы получаемого отхода или величины степени извлечения ²³⁵U из исходного регенерата оптимальные параметры схемы меняются незначительно. В то время, как при использовании в качестве критериев эффективности условий минимума концентраций ²³²U и ²³⁶U в товарном НОУ ключевые характеристики каскадов значительно отличаются от других критериев.

С ростом номера перегрузки происходит последовательно уменьшение расхода природного урана и затрат работы разделения. При этом на последних перегрузках экономия природного урана достигает величины 20% и более. Это означает, что экономия природного урана в цикле в среднем будет примерно на треть выше типичного значения в 15%. Причиной этому более эффективное использование ²³⁵U из регенерата.

Итак, опираясь на результаты расчетов, можно сделать общие выводы касаемо двойного каскада с НОУ-разбавителем с возвратом потока P_2 в цикл (рис. 4.1):

1. схема с возвратом P_2 как и предшествующая схема без возврата P_2 , применима для обогащения регенерированного урана в условиях мно-

- гократного рецикла урана в топливе легководных реакторов, поскольку позволяет получать продукт, отвечающий всем требованиям на концентрации четных изотопов на основе состава регенерата с повышенным исходным содержанием изотопов ^{232,234}U, который не позволяет решить проблему с помощью ординарного каскада;
- 2. схема позволяет использовать поток «легкой» фракции второго каскада (P_2) , поскольку указанный поток возвращается в топливный цикл, что снимает проблемы долговременного хранения этого нештатного отхода и связанные с этим затраты. При этом использование всего P_2 означает отсутствие потерь в нем 235 U в процессе рециклирования, что также является достоинством схемы;
- 3. при использовании схемы с перегрузкой P_2 , когда оставшаяся послефинальной перегрузки фракция P_2 смешивается с регенератам последующего рецикла, полного отсутствия нештатного отхода в виде потока P_2 удается добиться вплоть до последней перегрузки последнего рецикла;
- 4. ввиду искусственного повышения содержания четных изотопов 232,234 U в получаемом продукте с каждой последующей перегрузкой возрастает масса отхода P_2 и, соответственно, масса концентрирующегося в нем целевого изотопа 235 U, что уменьшает эффект от возврата изотопа 235 U в цикл из-за его потерь вследствие увеличения потока загрязненной фракции, которое происходит вследствие роста концентраций четных изотопов в исходной смеси;
- 5. возврат фракции отхода (потока P_2) в схему является причиной монотонного роста концентраций четных изотопов, что приводит к необходимости увеличения уровня обогащения получаемого НОУ и, тем самым, к росту затрат работы разделения, а также повышению концентрации изотопа 235 U в НОУ-разбавителе ввиду необходимости компенсации влияния 236 U;
- 6. в схеме с с перегрузкой P_2 , помимо стадий:
 - а) обеднения отбора первого каскада P_1 во втором каскаде
 - б) смешивания потоков W_2 с НОУ-разбавителем P_0 , в которых различается содержание изотопа $^{235}{
 m U}$

, потеря работы разделения происходит из-за необходимости обеднять отбор второго ординарного каскада P_2 в каскадной схеме, в которую P_2 поступает после смешения с E.

4.5.2 Анализ возможности независимой утилизации побочного продукта легкой фракции второго каскада схемы двойного каскада с НОУ-разбавителем

В диссертационной работе также предложен способ обращения с P_2 с содержанием 235 U равным 20%, который позволяет вовлечь выведенный из системы схемой двойного каскада с НОУ-разбавителем изотоп (рис. 4.1) 235 U. Предлагаемая схема направлена на решение следующих задач.

- 1. Сокращение доли потребляемого обедненного урана при сохранении возможности использования высокообогащенного побочного продукта;
- 2. Обеспечение полного возврата массы регенерированного урана в топливный цикл;
- 3. Повышение эффективности использования делящегося изотопа $^{235}{
 m U}$ из регенерата;
- 4. Увеличение экономии природного урана на производство единицы свежего топлива для загрузки легководного реактора.

Принцип схемы, изображенной на рис. 4.31, представляющей из себя модификацию схемы двойного каскада с НОУ-разбавителей (рис. 4.1) состоит в следующем.

Образовавшаяся на легком конце второго каскада изотопная легкая фракция P_2 разбавляется потоком складского ОГФУ (F_{du}) до такого уровня 235 U в их смеси, который соответствует концентрации 235 U в потоке дополнительного разбавителя в виде низкообогащенного урана (F_{leu}), изготавливаемого из из природного урана. необходимого в продукте, с добавкой, которая учитывает компенсацию 236 U. Относительную долю этого НОУ-разбавителя подбирают таким образом, чтобы при обогащении полученной из этих трех компонентов смеси в ординарном каскаде, при достижении обогащаемой смесью на легком конце каскада (в P_{add}) концентрации 235 U требуемой в конечном НОУ-продук-

те, рассчитываемой с поправкой на компенсацию $^{236}\mathrm{U}$, достигалось соответствие содержания $^{232}\mathrm{U}$ заданному предельному значению.

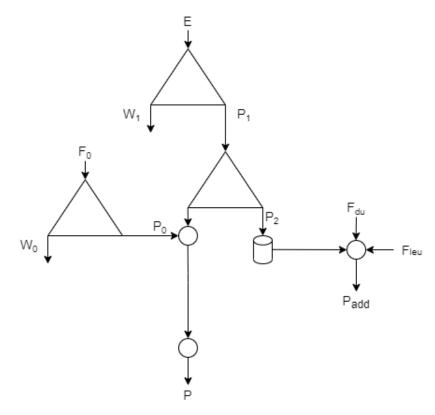


Рисунок 4.31 — Схема независимого вовлечения загрязненной изотопом $^{232}{
m U}$ фракции с разбавлением обедненным и природным ураном

Расчет целевых показателей схемы производился на основе данных составов №1 и №2 (см.постановку задачи), а также предположения двукратного увеличения предела содержания 232 U в продукте, дополнительно производимом из P_2 (1 · 10^{-6} % вместо $5 \cdot 10^{-7}$ %). Результаты вычислений представлены в таблице 9.

Значения масс P_2 в таблице 9 соответствуют образовавшемуся побочному продукту в процессе производства 1 тонны топлива из регенерата (примерно двух ТВС по ≈ 500 кг кажется, можем так округлить http://www.gidropress.podolsk.ru/files/proceedings/mntk2011/documents/mntk2011-18 Этот материал, перемешанный с ОГФУ и НОУ-разбавителем в расчитываемом соотношении, в рассмотренной схеме служит поставщиком дополнительного количества 235 U, позволяющего сэкономить сырьевой материал – природный уран.

Величина P_+ , приведенная в табл. 9 соответствует доле замещаемого природного урана, используемого для получения свежего НОУ требуемого качества. Иными словами, величина P_+ соответствует доле смеси P_2 с ОГФУ в результирующем дополнительно произведенном НОУ-продукте. На

эту величину можно заместить эквивалентный по нейтронно-физическим характеристикам НОУ, произведенный на основе природного урана, поэтому эта величина является важнейшим показателем целесообразности применения рассматриваемой схемы утилизации нештатного «отхода», образовавшегося в легком конце второго каскада двухкаскадной схемы.

Эта величина по смыслу тождественна величинам экономии природного урана $\delta(\frac{F_{NU}}{P})$, а также экономии работы разделения $\delta(\frac{\Delta A}{P})$, взятым относительно референтной схемы трехпоточного каскада для обогащения природного урана.

$(C_{232,P})_{lim}, \%$	Цикл №	P_2 , кг	$P_{+}, \%$
$1 \cdot 10^{-6}$	2	2,32	14,6
	5	1,96	6,3
$5 \cdot 10^{-7}$	2	2,84	7,3
	5	1,96	3,15

Таблица 9 — Результаты вовлечения P_2 в производство дополнительного НОУ-продукта. Обозначения: $(C_{232,P})_{lim}$ — предельно допустимая концентрация 232 U в дополнительно производимом на основе P_2 продукте.

Как видно из результатов табл. 9, наиболее целесообразно использовать этот способ утилизации нештатного «отхода», образующегося в схеме на начальных рециклах, то есть при меньшей концентрации 232 U, накопившейся в разделяемой смеси. Также такая схема показывает пропорционально более высокую результативность (двукратно), при более высоких значениях предельно допустимой концентрации результирующего продукта – $(C_{232,P})_{lim}$.

Как можно заключить из результатов, представленных в таблице 9, предлагаемый способ использования P_2 через модификацию схемы двойного каскада с НОУ-разбавителем позволяет экономить дополнительное количество природного урана относительно двойного модифицированного каскада, в котором не предполагается задействование потока легкой фракции второго каскада. А эффект более значителен для случаев, когда задействуется побочный продукт P_2 двойного каскада, образующийся на начальных стадиях рециклирования уранового топлива. В рассматриваемом случае — это второй рецикл (табл. 9). Схема рис. 4.31 также показывает себя как более предпочтительная в экономии природного урана (вдвое выигрышнее, согласно табл. 9), когда предельно допустимая концентрация 232 U в получаемом из P_2 конечном продукте допускается

в два раза выше $(1 \cdot 10^{-6}\%)$ вместо $5 \cdot 10^{-7}\%$). Значение экономии природного урана соответствует доле P_2 , смешанной с обедненным ураном F_{du} , до того, как он будет смешан с НОУ-разбавителем F_{leu} , полученным из природного урана. Важно заметить, что значение этой доли соответствует экономии работы разделения, которая, в случае отказа от использования P_2 , была бы затрачена на прямое обогащение природного урана в ординарном каскада для производства аналогичного замещающего количества свежего НОУ-продукта.

Говоря в терминах реакторного топлива, при помощи представленной схемы утилизации, накопленный в ходе производства одной ТВС из регенерата состава №1 побочный продукт P_2 можно использовать для производства дополнительных $\approx 7\% - \approx 14\%$ (в зависимости от ограничения на 232 U) свежего НОУ-продукта от дополнительной топливной сборки. Это соответствует возможности произвести дополнительную 15-ю или 8-ю тепловыделяющую сборку (в зависимости от ограничения на 232 U) из накопленного P_2 , образовавшегося при производстве предыдущих четырнадцати (или семи) ТВС. Таким образом, для современного легководного реактора, такого как, например, российский ВВЭР-1200 или европейский РWR, где активная зона состоит из более чем 150 тепловыделяющих сборок, взяв за основу предложенную схему, можно изготовить дополнительно более 10 ТВС.

4.5.3 Анализ возможности утилизации легкой фракции путем ее перемешивания с обедненным ураном и последующим обогащением

Схема составного каскада с НОУ-разбавителем и дополнительным разбавителем потока P_2 , возвращаемого в цикл

Другим способом утилизации загрязненной фракции стала многокаскадная схема, представляющая собой модификацию двойного каскада с НОУ-разбавителем, названная «тройным» каскадом (рис. 4.32) [43]. Принцип ее работы состоит в следующем.

В реализации такой схемы поток легкой фракции второго каскада P_2 с концентрацией изотопа $^{235}{
m U}$ равной 20% перемешивается со складским ${
m O}\Gamma\Phi{
m V}$

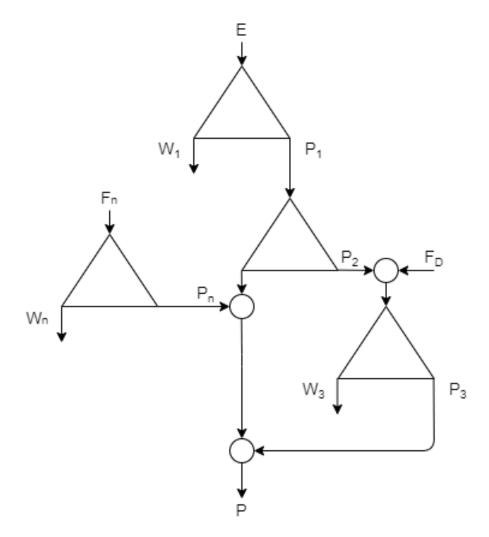


Рисунок 4.32 — Тройной каскад для обогащения регенерированного урана. Обозначения: E — поток регенерированного урана; P_1 — поток отбора первого каскада, выступающий питанием второго каскада; P_2 — поток отбора второго каскада; F_D — поток ОГФУ-разбавителя, смешиваемого с P_2 перед подачей на вход третьего каскада; W_1 — поток отвала первого каскада; W_2 — поток тяжелой фракции (условный «отвал») второго каскада; P_n — поток НОУ-разбавителя; P — финальный продукт (товарный низкообогащенный уран (НОУ)), полученный смешиванием потоков W_2 , P_n и P_3 , где P_3 — отбор третьего каскада; W_3 — отвал третьего каскада.

и направляется на последующее обогащение в третий каскад (рис. 4.32). Отношение, в котором осуществляется смешивание P_2 с ОГФУ, определяют исходя из возможности получить НОУ надлежащего качества при обогащении их смеси (оставаясь в рамках ограничений по четным изотопам). Остальные параметры схемы тройного каскада следует подбирать исходя из того, что финальный продукт будет получен смешиванием трех потоков: низкообогащенного «чистого» разбавителя P_0 , тяжелой «очищенной» фракции W_2 второго каскада и, полу-

ченного при обогащении потока P_2 и обедненного урана, изотопного состава P_3 . Управляющими параметрами являются: концентрации на выходах P_1 первого и P_2 второго каскадов, а также в потоке HOV-разбавителя P_0 . При детерминированной их комбинации обеспечивается соответствие предзаданному отношению масс конечного продукта и исходного регенерата, за счет чего выполняется условие полного возврата. При этом проблема высокоактивного отхода решается без выхода за пределы концентрации допустимой для обогащения регенерата (20%). Также устраняется необходимость обращения с P_2 , которое в схеме двойного каскада с HOV-разбавителем с возвратом потока P_2 в цикл (рис. 4.21) связано с его отложенным вовлечением из-за зависимости от последующих поступлений на обогащение новых партий (последующих рециклов) регенерата.

Таким образом, решение проблемы накопления нештатного отхода, характерной для двойного каскада с НОУ-разбавителем, состоит в том, что поток легкой фракции второго каскада (P_2) перемешивают с обедненным ураном и направляют на последующее обогащение в еще один каскад (крайний правый каскад на рисунке 4.32).

Для этого рассмотрим постановку задачи возврата регенерированного урана с последующим замыканием P_2 , на основе описанной в разделе 4.1.1 каскадной схемы. В качестве разделяемой смеси выбран регенерированный уран, испытавший несколько циклов облучения, а именно состав 2 в таблица 2 [38]. Требуемая концентрация 235 U в конечном продукте задана равной 4,95%, коэффициент компенсации реактивности 0,29. Величину коэффициента разделения на единичную разность массовых чисел выбрали равной 1,2. Концентрации 235 U в потоках отвала каскада 1 и каскада для наработки разбавителя задали равной 0,1%. Ограничение по концентрации 232 U соответствовало $5\cdot 10^{-7}$ %, а отношение масс «исходный регенерат/товарный НОУ» выбрано равным 0,93 [38].

Анализируя уравнения, описывающие модель «квазиидеального» каскада, а также учитывая сформулированную выше постановку задачи, можно прийти к следующим заключениям. При заданных внешних условиях и требованиях к составу товарного НОУ, такая каскадная схема имеет 6 неизвестных переменные: 1) концентрация 235 U в потоке P_1 ; 2) концентрация 235 U в потоке P_2 ; 3) концентрация 235 U в потоке P_3 ; 4) концентрация 235 U в потоке НОУ-разбавителя P_0 ; 5) 235 U в потоке P_3 ; 6) Доля P_3 в питании третьего каскада. При этом эти параметры явно и неявно связаны двумя уравнениями, получаемыми для невязок по заданным концентрациям изотопов 232 U и 235 U:

- 1. $\delta_1 = C_{235,P}$ _{экв.} $-(C_{235,P}$ _{NU} + $\Delta C_{235})$ невязка по концентрации ²³⁵U в конечном НОУ-продукте, с учетом поправки на присутствие изотопа ²³⁶U. Величина δ_1 фактически определяет точность достижения условия компенсации ²³⁶U;
- 2. $\delta_2 = C_{232,P}$ $_{pacu.} C_{232,P}$ $_{mpeb.}$ разница между рассчитанным значением концентрации 232 U в конечном НОУ-продукте и заданным ограничением для концентрации этого изотопа.

Таким образом, для нахождения 6 переменных имеем 2 уравнения. Это означает, что 4 переменные задачи можно рассматривать в качестве варьируемых параметров. В качестве них будем рассматривать концентрации 235 U в потоках P_1 , P_2 и W_3 , а также долю P_2 в питании третьего каскада. Из приведенных рассуждений следует, что достижение требуемых внешних условий возможно при формально бесконечном множестве наборов концентраций в отборе первого и второго каскадов. Для того, чтобы выбрать из этого набора какой-то из вариантов необходимо проведение оптимизационного расчёта с использованием некоторого критерия эффективности.

Таким образом, цель решения оптимизационной задачи: при заданных внешних условиях и выполнении заданных ограничений на концентрации чётных изотопов в потоке продукта, а также выполнении условия полного использования регенерата, определить наилучшее значение критерия эффективности, в зависимости от следующих управляющих оптимизационных переменных: концентрации 235 U в потоках P_1 , P_2 и W_3 и отношение потоков F_{du}/P_2 .

Также, помимо минимума расхода работы разделения 4.12, оптимизационным критерием может выступать минимизация расхода природного урана 4.13, а также максимум суммарной степени извлечения 235 U в схеме 4.14 и из регенерата 4.15 для тройного каскада, где E – это поток регенерата, а F_D – поток разбавляющего P_2 ОГФУ.

$$\delta(\frac{\Delta A}{P}) = 1 - \frac{\Delta A}{P} / \frac{\Delta A}{P} (ord) \tag{4.12}$$

$$\delta(\frac{F_{NU}}{P}) = 1 - \frac{F_{NU}}{P} / \frac{F_{NU}}{P}$$
(4.13)

$$Y_f = \frac{P \cdot C_{235,P}}{F_0 \cdot C_{235,NU} + E \cdot C_{235,E} + F_D \cdot C_{235,E_D}},$$
(4.14)

$$Y_E = \frac{W_2 \cdot C_{235,W_2} + P_3 \cdot C_{235,P_3} \cdot \frac{P_2 \cdot C_{235,P_2}}{P_2 \cdot C_{235,P_2} + F_D \cdot C_{235,F_D}}}{E \cdot C_E^{235}}$$
(4.15)

Такой тип оптимизационной задачи также как и для предыдущих составных схем представляет собой задачу условной оптимизации функции многих переменных. В диссертационной работе предложена оригинальная методика, основанная на использовании современных методов условной оптимизации и реализованная в виде разработанного программного кода. Следует отметить, что в литературе по данной тематике отсутствуют методики оптимизации трехи четырехкаскадных схем в случае разделения многокомпонентных смесей. Фактически подобные задачи решены впервые.

Рассмотрим предложенный в данной работе алгоритм подбора параметров каскадной схемы, который позволяет осуществить расчет двойного каскада с HOУ-разбавителем.

- 1. задание начальных условий и требований к конечному продукту товарному НОУ;
- 2. задание диапазона варьирования переменных оптимизации;
- 3. задание начальных приближений для оптимизационных переменных концентраций 235 U в потоках P_1 и P_2 ;
- 4. для заданных значений концентраций 235 U в потоках P_1 и P_2 осуществляют решение системы нелинейных алгебраических уравнений для невязок по заданным концентрациям изотопов 232 U и 235 U в товарном НОУ, а искомыми из решения системы переменными выступают концентрации 235 U в потоке отвала второго каскада и в потоке отбора каскада, нарабатывающего НОУ-разбавитель. В рамках работы для решения СНАУ использовали вычислительный пакет МІNРАСК [107], использующий квазиньютоновский численный алгоритм «trust-region», для которого якобиан матрицы системы вычисляют методом автодифференциации.
 - для каждой итерации решателя СНАУ, выполняется оптимизационный алгоритм поиска глобального оптимума для заданного критерия эффективности, с помощью которого подбираются такие параметры схемы как: доля потока P_2 в питании третьего каскада; концентрации 235 U в потоке отвала третьего каскада в интервалах [0.00001, 0.5] и [0.08%, 0.13%] соответственно. Для этого используется алгоритм оптимизации SHGO

- (simplicial homology global optimization) вычислительного пакета SciPy для Python [103].
- Внутри итерационной процедуры решения системы уравнений для текущий значений искомых переменных проводят расчёт основных параметров входящих в схему одиночных ординарных каскадов. Для этого также используют методы численного решения систем нелинейных алгебраических уравнений, возникающих для невязок по заданным концентрациям $^{235}{
 m U}$ в выходящих потоках каскадов. Из решения таких СНАУ определяют длины секций каждого из каскадов, что далее позволяет рассчитать их остальные параметры и определить доли потоков W_2 , P_3 и P_0 в конечном продукте, для того чтобы рассчитать текущие концентрации всех компонентов в товарном НОУ. Для этого, на основе вычисленных отношений потоков $\frac{P_1}{E}, \frac{W_2}{P_1}$ и $\frac{P_3}{F_3}$ для первого, второго и третьего каскадов, а также заданного условиями задачи отношения $\frac{E}{P}$, где E – это поток регенерата, а P – поток финального НОУ-продукта, вычисляют значение $\frac{W_2}{P}$ как произведение $\frac{P_1}{E},\,\frac{W_2}{P_1}$ и $\frac{E}{P}.$ Затем, вычитанием из единицы отношения $\frac{W_2}{P}$, получают $\frac{P_0}{P}$.
- поочередно складывая покомпонентно умноженные доли $\frac{W_2}{P}$, $\frac{P_3}{P}$ и $\frac{P_0}{P}$ на соответствующие изотопные концентрации потоков W_2 , P_3 и P_0 , получается массив изотопных концентраций конечного НОУ-продукта

После выполнения всех этих процедур рассчитывают текущие величины расхождения по заданным концентрациям изотопов 232 U и 235 U в товарном НОУ. В рамках выполненных расчётов для каждой из невязок относительная ошибка (отклонение от единицы отношений левой и правой частей равенства) не должна была превысить величину 10^{-8} ;

- 5. соответствие выполненных условий для невязок означает сходимость численного метода завершение итерационной процедуры решения СНАУ и сохранение полученной величины критерия эффективности при заданных значениях концентраций 235 U в потоках P_1 и P_2 ;
- 6. повтор п. 3-5 до тех пор пока не будут выполнены условия выхода из оптимизационной процедуры, в данном случае допустимая относительная ошибка (relevant tolerance) не будет превышать значения 10^{-8} ;

7. выбор наилучшей величины критерия эффективности и расчёт параметров оптимального варианта каскадной схемы.

Для анализа возможностей схемы тройного каскада с НОУ-разбавителем, представим расчет, оценивающий издержки ее применения для возврата регенерата состава №2. В качестве ключевых оцениваемых характеристик будем опираться на интегральные характеристики:

- 1. $\delta(\frac{\Delta A}{P})$ экономия работы разделения относительно референтной схемы трехпоточного каскада для обогащения природного урана (см. Приложение). Наибольшая экономия соответствует минимуму суммарного потока схемы 2.43. Если величина отрицательная, абсолютное значение соответствует потерям работы разделения, по сравнению с референтной схемы трехпоточного каскада для обогащения природного урана;
- 2. $\delta(\frac{F_{NU}}{P})$ экономия природного урана относительно референтной схемы трехпоточного каскада для обогащения природного урана. Наибольшая экономия соответствует минимуму удельного расхода природного урана схемы. Если величина отрицательна, абсолютное значение соответствует перерасходу природного урана, по сравнению с референтной схемы трехпоточного каскада для обогащения природного урана.

Проведем сравнение со схемой с разбавлением регенерата природным ураном перед подачей в ординарный трехпоточный каскад 3.10 [108]. Результаты расчетов представлены в таблицах 10 и 12, где показаны изотопный состав НОУ коммерческого уровня и массовые потоки, отнесенные к 1 тонне продукта, полученного в предлагаемом тройном каскаде, соответственно.

Параметр Каскад	$\delta(\frac{F_{NU}}{P}), \%$	$\delta(\frac{\Delta A}{P}), \%$	$\frac{E}{P}$
Тройной каскад	38,3	-97,3	0,93

Таблица 10 — Оцениваемые параметры рассматриваемых схем

Обе сравниваемые схемы должны обеспечить производство НОУ коммерческого качества, однако только тройной каскад позволяет расходовать требуемое отношение регенерата к единице продукта.

Массовое число	232	233	234	235	236
C, %	$5 \cdot 10^{-7}$	$6,88 \cdot 10^{-7}$	$5,31 \cdot 10^{-2}$	5,11	$5,72 \cdot 10^{-1}$

Таблица 11 — Изотопный состав НОУ-продукта схемы тройного каскада.

	р-д	E	W_1	P_1	W_2	P_2	F_{du}	W_3	P_0	P_3	F_0	W_0
]	т, кг	930	833	96,6	80,9	15,8	$1,571 \cdot 10^5$	$1,568 \cdot 10^5$	628,5	290,5	$4.9 \cdot 10^3$	$4.3 \cdot 10^3$

Таблица 12 — Массовые потоки в схеме тройного каскада.

Эти результаты показывают, что предложенная схема решает поставленную задачу. Даже при выбранном «грязном» составе регенерированного урана – составе №2 – можно сэкономить более трети природного урана по сравнению с референтной схемой ординарного каскада. Однако, такие преимущества влекут за собой увеличение затрат разделительной работы, а следовательно, и количества центрифуг по сравнению с ординарным трехпоточным каскадом, который обогащает природный уран (\approx 97%). Схема также позволяет производить НОУ товарного качества, расходуя заранее определенное количество переработанного урана без нежелательных нештатных побочных продуктов, за исключением т.н. хвостов разделительного производства (потоков отходов) разделительных каскадов в виде обедненного урана в потоках W_0 , W_1 W_3 .

В результате своей работы схема производит \approx 162 тонны обедненного урана. При этом схема потребляет \approx 157 тонн складских запасов обедненного урана. Следовательно, фактический выход обедненного урана составляет \approx 4,76 тонн, при том что ординарный каскад для обогащения природного урана при про-изводстве такого же количества продукта (1 тонна) производит \approx 7 тонн, то есть схема тройного каскада с НОУ-разбавителем и дополнительным разбавителем потока P_2 , возвращаемого в цикл позволяет в полтора раза уменьшить накопление ОГФУ.

Как было показано в работе [109], для схемы тройного каскада возможно регулировать расход природного урана и работы разделения. Например, ценой расхода дополнительных $\approx 25\%$ работы разделения, удается вернуть заданное количество переработанного урана, прошедшего пятикратное (5 топливных кампаний) облучение, сэкономив $\approx 15\%$ природного урана, при этом вовлекая в производство единицы конечного продукта ≈ 31 единицы смеси обедненного урана. Для экономии же природного урана достигающей $\approx 23\%$, необходимо, использовав $\approx 74,5$ единиц ОГФУ на единицу продукта, допустив перерасход работы разделения на уровне $\approx 50\%$. Показатели приведены в соотношении с аналогичными для схемы ординарного каскада для обогащения природного урана, получающего на выходах в продукте и отвале такие же концентрации 235 U (соответствующую ($C_{235,P}$)_{ж6}, в продукте).

Как результат, схема тройного каскада с НОУ-разбавителем и дополнительным разбавителем потока P_2 , возвращаемого в цикл, позволяя в полноте решить поставленную задачу, не оставляет никакого нештатного отхода, требующего особых мер обращения. В конечном итоге образуется только штатный отход в виде отвалов W_1 и W_3 , процедуры обращения с которыми на разделительном производстве технологически отработаны. Если получить их смешением (W_1 и W_3) обедненный уран, он будет содержать изотопы 232,234 U в количествах в десятки/сотни раз сниженных, относительно исходного регенерата. Следовательно, полученный в такой схеме обедненный уран может быть переведен в двуокись урана, например, при помощи установки «W-ЭХЗ». Отсутствие нештатных отходов, загрязненных четными изотопами и является отличительным достоинством рассмотренной схемы, тогда как недостатком выступают дополнительные потери работы разделения, возникающие при перемешивании потока P_2 и подмешиваемого к нему в качестве разбавителя ОГФУ.

В качестве итогового списка характеристических особенностей схемы тройного каскада следует обозначить следующие:

- 1. применима для обогащения регенерированного урана в условиях многократного рецикла и позволяет получать продукт, отвечающий всем требованиям по концентрациям четных изотопов для регенерата различного исходного состава как показано на рассматриваемых входных изотопных составах;
- 2. достоинством схемы является полное отсутствие нештатных отходов, требующих специального обращения, поскольку на выходе из схемы, помимо основного продукта, возникают только потоки обедненного урана в виде отвалов каскадов схемы. Причем, в отличие от схемы двойного каскада с НОУ-разбавителем, отход отсутствует при любом варианте использования: как для однократного обогащения регенерированного урана, так и в условиях постоянных поступлений партий регенерированного урана последовательных перегрузок реактора;
- 3. как и предшествующие схемы, схема позволяет задействовать для воспроизводства ядерного топлива накопленный в значительных количествах обедненный уран;
- 4. в схеме отделены участки обогащения регенерированного урана и участок обогащения обедненного или природного урана (каскад, расположенный на схеме слева (рис. 4.32)), не загрязненного четными

изотопами. В дальнейшем это позволит использовать оборудование этого каскада для обогащения природного урана или другого сырьевого материала, не загрязненного четными изотопами;

- 5. недостатком схемы являются потери работы разделения из-за необходимости:
 - а) обеднять отбор первого каскада в последующем втором каскаде;
 - б) смешивание потоков W_2 с НОУ-разбавителем P_0 , а затем и с P_3 в которых различается содержание изотопа 235 U;
 - в) смешивания потоков P_2 и F_{du} на входе в третий каскад.

Слабое изменение параметров каскадной схемы в условиях многократного рецикла позволяет говорить о возможности «настройки» данной каскадной схемы на возможность работы с регенератом различных рециклов при минимальных изменениях параметров. В частности, для данной схемы возможно подобрать «унифицированный» разбавитель с фиксированным содержанием 235U, что могло бы позволить не привязывать напрямую мощности по получению разбавителя из обедненного урана (каскад 3) к каскадам, работающим с регенератом. Иными словами, в этом случае разбавитель мог бы нарабатываться независимо от поступлений конкретных партий регенерата.

В качестве выводов, относящихся ко всем рассмотренным 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 НОУ) 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 НОУ-разбавителем (рис. 4.31), может стать его перемешивание с от-

- валом 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. 4.21) является возврат значительной части четных изотопов на вход каскадной схемы;
- 4. характерным недостатком схемы тройного каскада (рис. 4.32) 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.

Анализ эффективности предложенных каскадных схем с точки зрения потерь 235 U показал, что перспективными вариантами для дальнейшей технико-экономической проработки являются каскадные схемы двойного каскада с НОУ-разбавителем (рис. 4.1) и тройного каскада (рис. 4.32). Схема двойного каскада с НОУ-разбавителем на каждом из рассмотренных рециклах позволяет извлечь более 80% от массы 235 U из исходного регенерированного урана, поступившего на обогащение.

Для выбора конкретного варианта каскадной схемы для организации производственного процесса, необходим детальный технико-экономический анализ каждой из схем на основе их интегральных показателей, таких как расход сырьевых материалов и работы разделения, 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}U.

Глава 5. Новые результаты

- 1. ординарный каскад с прямым обогащением регенерата (не выполняется огр-е на $C_{\rm p}^{232}$ и отсутствует компенсация $^{236}{
 m U})$
- 2. каскад с разбавлением регенерата на входе
- 3. каскад с разбавлением регенератом предварительно обогащенного природного урана;
- 4. каскад с двумя потоками питания (R-каскад) без компенсации $^{236}{
 m U}$
- 5. двойной каскад с компенсацией $^{236}{
 m U}$
- 6. Двойной модифицированный аскад

...состав 1:

П-р Схема	1	2	3	4	5	6
$\overline{Y_f}$	0.95	5.5e - 6	0.87	1.0	0.89	0.87
Y_E	0.95	2.1	1.0	5.1	0.89	0.84
$\delta(\frac{\Delta A}{P}),\%$	5.9	4.1	12.0	11.0	9.1	11.0
$\delta(rac{F_{NU}}{P}),\%$	100.0	99.81	0.21	21.0	100.0	19.0
$\frac{P_2}{P}$	0	0	0	0	0	0.011
$C_{232,P}, \%$	2.4e - 6	5.0e - 7	6.6e - 9	5.0e - 7	5.0e - 7	4.9e - 7
$C_{235,P}, \%$	4.95	5.0	4.95	4.95	6.0	5.1
$C_{236,P}, \%$	2.9	0.19	0.0099	0.61	3.6	0.68

Таблица 13 — Сравнение интегральных показателей схем.

...состав 2:

П-р Схема	1	2	3	4	5	6
Y_f	0.93	5.1e - 6	0.87	0.94	0.65	0.76
Y_E	0.93	3.4	1.0	10.0	0.65	0.085
$\delta(\frac{\Delta A}{P}),\%$	8.1	4.3	12.0	11.0	23.0	12.0
$\delta(rac{F_{NU}}{P}),\%$	100.0	99.82	0.11	9.7	100.0	1.2
$\frac{P_2}{P}$	0	0	0	0	0	0.0001
$C_{232,P}, \%$	5.1e - 6	5.0e - 7	1.0e - 8	5.0e - 7	5.0e - 7	1.5e - 7
$C_{235,P},\%$	4.95	5.0	4.95	4.95	7.72	5.0
$C_{236,P},\%$	5.4	0.18	0.014	0.53	9.5	0.086

Таблица 14 — Сравнение интегральных показателей схем.

Заключение

Основные результаты работы заключаются в следующем. 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 НОУ-разбавителем 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 ²³²U 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.

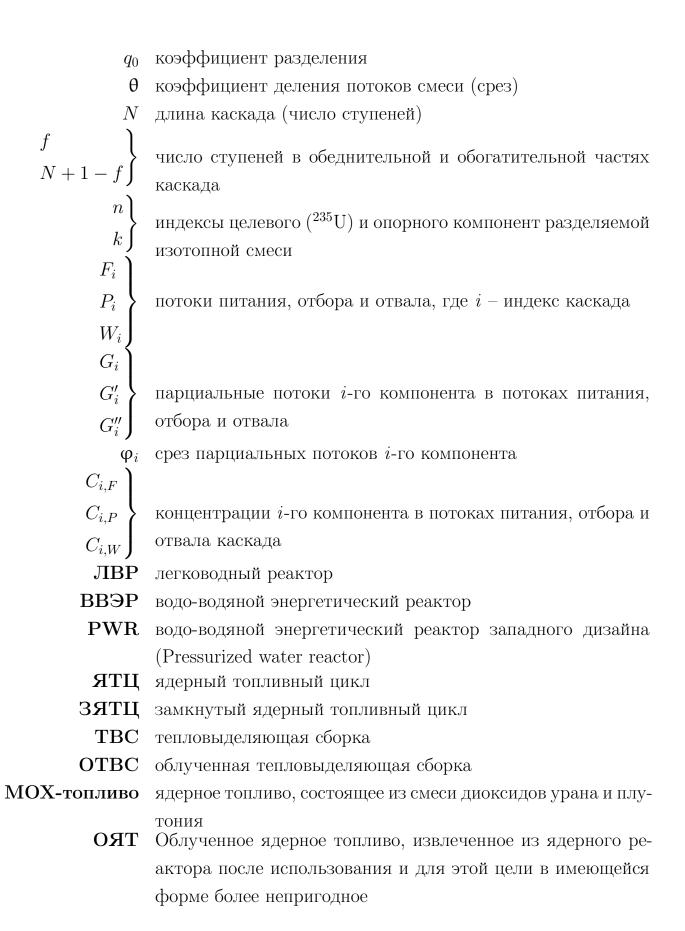
Анализ эффективности предложенной каскадной схемы с точки зрения потерь 235 U показал, что схема позволяет извлечь более 85% от массы 235 U из исходного регенерированного урана, поступившего на обогащение. Это обеспечивает экономию природного урана по сравнению с открытым топливным циклом на уровне 15-20% 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 ²³²U 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 ²³⁵U 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 техникоэкономического 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 сокращений и условных обозначений



РАО Радиоактивные отходы. Существуют подклассы радиоактивных отходов: высокоактивные (ВАО), среднеактивные (САО), низкоактивные (НАО)

НОУ низкообогащенный уран

ВОУ высокообогащенный уран

 $\mathbf{O}\Gamma\Phi\mathbf{Y}$ обедненный гексафторид урана

RepU регенерированный уран

Е регенерированный уран

NU природный уран

РР работа разделения

EPP 1 кг работы разделения, единица работы по разделению изотопов. Мера усилий, затрачиваемых на разделение материала определённого изотопного состава на две фракции с отличными изотопными составами; не зависит от применяемого процесса разделения.

 UF_6 гексафторид урана

 $C_8H_3F_{13}$ фреон-346

ASTM международное общество по испытаниям и материалам

СНАУ система нелинейных алгебраических уравнений

СМ. смесь изотопных составов

Критерии эффективности каскадной схемы:

- $-(Y_f)_{\rm max}$ максимум суммарной степени извлечения схемы (4.10) , соответствующий минимуму потерь $^{235}{
 m U}$ в схеме;
- $-(Y_E)_{\rm max}$ максимум степени извлечения из регенерата (4.11), соответствующий минимуму потерь ²³⁵U регенерата;
- $-(\delta(\frac{\Delta A}{P}))_{\min}$ максимум экономии работы разделения, относительно референтной схемы трехпоточного каскада для обогащения природного урана, соответствующая минимуму удельного расхода работы разделения:
- $-(\delta(\frac{F_{NU}}{P}))_{\min}$ максимальная экономия природного урана относительно референтной схемы трехпоточного каскада для обогащения природного урана, соответствующая минимуму удельного расхода природного урана.

Обозначения параметров каскадных схем:

- $-Y_f$ суммарная степень извлечения $^{235}{
 m U}$ в схеме $^{4.10}{
 m ;}$
- $-Y_E$ степень извлечения 235 U схемой из регенерированного урана 4.11;
- $-\delta(\frac{\Delta A}{P})$ экономия работы разделения относительно референтной схемы трехпоточного каскада для обогащения природного урана. Наибольшая экономия соответствует минимуму суммарного потока схемы 2.43. Если величина отрицательная, абсолютное значение соответствует потерям работы разделения, по сравнению с референтной схемы трехпоточного каскада для обогащения природного урана.
- $-\frac{F_{NU}}{P}$ удельный расход природного урана на единицу производимого товарного НОУ;
- $-\delta(\frac{F_{NU}}{P})$ экономия природного урана относительно референтной схемы трехпоточного каскада для обогащения природного урана. Наибольшая экономия соответствует минимуму удельного расхода природного урана схемы. Если величина отрицательная, абсолютное значение соответствует перерасходу природного урана, по сравнению с референтной схемы трехпоточного каскада для обогащения природного урана;
- $-M_{k1}$ масса изотопа, выбранного в качестве опорного компонента при расчете R-каскада (2.45)—(2.46), для первого каскада в схеме, в который поступает регенерат;
- $-M_{k2}$ масса изотопа, выбранного в качестве опорного компонента при расчете R-каскада (2.45)—(2.46), для второго каскада в схеме, на питание которого поступает поток легкой фракции первого каскада;
- $C_{232,\mathrm{P}}, C_{234,\mathrm{P}}, C_{235,\mathrm{P}}, C_{236,\mathrm{P}}$ концентрации изотопов урана в конечном НОУ-продукте P;
- $C_{232,x}, C_{234,x}, C_{235,x}, C_{236,x}$ концентрации изотопов урана в потоках x;
- $-F_x$ выходные потоки, выраженные в килограммах гексафторида урана (UF_6) , получаемые в схеме при производстве 1 тонны металического урана НОУ-продукта.

Список литературы

- 1. Андрианова, E. A. 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/publications/
- 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 Госкор-порации «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.]. —.
- 14. Kazuki Hida. Simultaneous Evaluation of the Effects of 232 U and 236 U on Uranium Recycling in Boiling Water Reactors / Kazuki Hida, S. Kusuno, S. Takeshi // Nuclear Technology. 1986. т. 75, № 2. с. 148—159.
- 15. Исследование Каскадных Схем Для Разделения Многокомпонентной Смеси Изотопов Урана-232, -234, -235, -236, -238 При Регенерации Отработавшего Топлива АЭС / Р. Сиденко [и др.] // МИФИ, гос. рег. № ИК М31782. 1985. с. 30.
- 16. de la Garza, A. Uranium-236 in Light Water Reactor Spent Fuel Recycled to an Enrichment Plant / A. de la Garza // Nuclear Technology. 1977. —
 T. 32. c. 176—185.
- 17. Исследование Проблемы Вовлечения Отработанного Продукта в Топливный Цикл. Анализ Оптимального Использования Топлива в Реакторах ВВЭР и Возврата Отработавшего Горючего в Топливный Цикл. / Б. Ксенофонтов [и др.] // МИФИ. 1988.
- 18. Исследование Проблемы Вовлечения Отработанного Продукта в Топливный Цикл. Обогащение Регенерированного Урана в Топливном Цикле ЯЭУ / А. Бородыня [и др.] // МИФИ. 1989.
- 19. Pa"uc, T. Изготовление Оксидного Топлива Из Регенерированного Урана На Действующих Заводах / Т. Райс // Атомная техника за рубежом. 1994. N 12. с. 19—22.
- 20. *Жиро*, *Ж*. Экономические Преимущества Переработки Ядерного Топлива / <math>*Ж*. Жиро, *Ж*. Девезо де Лаверне // Атомная техника за рубежом. 1997. № 9. с. 17—21.
- 21. Лебедев, В. Замкнутый Топливный Цикл АЭС России. Проблемы и Перспективы / В. Лебедев, В. Д. Давиденко, А. Архангельская // Извествия ВУЗов. Ядерная энергетика. 1999. № 2. с. 96—102.
- 22. Заключительный Отчет о НИР «Технико-экономический Анализ Возможных Вариантов Вовлечения Регенерируемых При Переработке ОЯТ Материалов в Топливные Циклы ВВЭР Большой Мощности» / В. Пшенин [и др.] // Институт промышленных ядерных технологий НИЯУ МИФИ, № ГР 01201278149. Инв. № 700/О-39. 2012. с. 206.

- 23. Evolution of Isotopic Composition of Reprocessed Uranium during the Multiple Recycling in Light Water Reactors with Natural Uranium Feed / A. Y. Smirnov [et al.] // Physics of Atomic Nuclei. 2012. Dec. 1. Vol. 75, no. 13. P. 1616—1625.
- 24. Согласованный Подход к Моделированию Выгорания При Облучении и Молекулярно-Селективных Процессов в Разделительном Каскаде Для Оценки Перспектив Раздельного Рецикла Регенерированного Урана Топлива в Легководном Реакторе / В. Ю. Бландинский [и др.]. 2018.
- 25. Coleman, J. R. Evaluation of Multiple, Self-Recycling of Reprocessed Uranium in LWR / J. R. Coleman, T. W. Knight // Nuclear Engineering and Design. 2010. May 1. Vol. 240, no. 5. P. 1028—1032.
- 26. *Проселков*, *B.* Анализ Возможности Использования Топлива На Основе Регенерата Урана в ВВЭР 1000 / В. Проселков, С. Алешин, С. Попов. 2003.
- 27. Influence of 236U on the Efficacy of Recycling Regenerated Uranium in VVER Fuel / A. A. Dudnikov [et al.] // Atomic Energy. 2016. Feb. 1. Vol. 119, no. 4. P. 291—296.
- 28. *Матвеев*, Л. Уран-232 и Его Влияние На Радиационную Обстановку а Ядерном Топливном Цикле / Л. Матвеев, Э. Центер. 1985.
- 29. Proliferation Resistance Features of Reprocessed Uranium in Light Water Reactor Fresh Fuel / K. Abbas [и др.] // ESARDA Bulletin. 2013. июль.
- 30. Gresley, J. Enriching Recycling Uranium / J. Gresley // Uranium Institute Symposium in London. 1988.
- 31. Обогащенный Уран с Добавлением Изотопа 232U: Защищенность От Неконтролируемого Распространения / Э. Крючков [и др.]. 2007.
- 32. Исследование Проблемы Вовлечения Отработанного Продукта в Топливный Цикл. Анализ Оптимального Использования Топлива в Реакторах ВВЭР и Возврата Отработавшего Горючего в Топливный Цикл. / Б. Ксенофонтов [и др.] // МИФИ. 1988.
- 33. De la Garza, A. Multicomponent Isotope Separation in Cascades / A. de la Garza, G. A. Garrett, J. E. Murphy // Chemical Engineering Science. 1961. Sept. 1. Vol. 15, no. 3. P. 188—209.

- 34. Analysis of the Reuse of Uranium Recovered from the Reprocessing of Commercial LWR Spent Fuel: Report / G. D. DelCul [et al.]. -01/02/2009.
- 35. Дьяченко, А. И. Использование Регенерированного Урана Из Топлива с Глубоким Выгоранием | Известия Вузов. Ядерная Энергетика / А. И. Дьяченко, Н. Балагуров, В. Артисюк. 2012.
- 36. *Смирнов*, *А. Ю.* Каскадные Схемы в Задачах Исследования Закономерностей Изменения Изотопного Состава Многократно Регенерированного Урана / А. Ю. Смирнов, Г. А. Сулаберидзе, В. А. Невиница. 2012.
- 37. Сулаберидзе, Г. А. О Некоторых Разделительных Проблемах При Вовлечении Регенерированного Урана в Топливный Цикл / Г. А. Сулаберидзе, В. Д. Борисевич, С. Цюаньсинь // (Сб. Докладов IX Всероссийской (Международной) Научной Конференции «Физико-Химические Процессы При Селекции Атомов и Молекул»). Россия, Звенигород, 2004. с. 78—85.
- 38. Обогащение Регенерированного Урана в Двойном Каскаде Газовых Центрифуг с Его Максимальным Возвратом в Воспроизводство Топлива / А. Ю. Смирнов [и др.]. 2018.
- 39. *Прусаков*, *В.* Коррекция Изотопного Состава Регенерированного Урана По 232U Центробежным Методом с Введением Газа-Носителя / В. Прусаков, А. Сазыкин, Л. Соснин. 2008.
- 40. 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.
- 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".
- 42. Игнатьев, В. Н. Влияние Вида Топлива на Характеристики Воспроизводства В Реакторах Различного Типа / В. Н. Игнатьев, Г. С. Филиппов, В. А. Чирков // Научно-Технический Вестник Поволжья. 2020. \mathbb{N} 6.
- 43. 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.

- 44. Андрианова, E. A. Повышение выгорания топлива в ВВЭР / Е. А. Андрианова, В. Ф. Цибульский // Атомная энергия. 2008. т. 104, № 3. с. 137—141.
- 45. Tendall, D. M. Nuclear Energy in Europe: Uranium Flow Modeling and Fuel Cycle Scenario Trade-Offs from a Sustainability Perspective / D. M. Tendall,
 C. R. Binder // Environ Sci Technol. 2011. Mar. Vol. 45, no. 6. P. 2442—2449.
- 46. Selvaduray, G. Survey of Nuclear Fuel Reprocessing Technologies / G. Selvaduray, M. K. Goldstein, R. N. Anderson // Conservation & Recycling. 1979. Jan. Vol. 3, no. 2. P. 93—134.
- 47. *Балихин*, *А. В.* О Состоянии И Перспективах Развития Методов Переработки Отработавшего Ядерного Топлива. Обзор / А. В. Балихин // Комплексное Использование Минерального Сырья. 2018. 1 (304). с. 71—87.
- 48. Ефименко, Н. А. Проблемы И Перспективы Развития Бизнеса Госкорпорации "Росатом"В Сфере Back-End / Н. А. Ефименко, И. А. Ухалина, С. П. Агапова // Успехи Современной Науки И Образования. 2017. т. 2, № 1. с. 144—147.
- 49. Проверка новых технологий переработки ОЯТ АЭС для завода РТ-2 // Технология Неорганических Веществ И Материалов. 2005. N 5.
- 50. Пятый Национальный Доклад Российской Федерации о Выполнении Обязательств, Вытекающих Из Объединенной Конвенции о Безопасности Обращения с Отработавшим Топливом и о Безопасности Обращения с Радиоактивными Отходами.
- 51. BBЭР-1000/1200 За Предел 5%. http://atominfo.ru/newsp/w0849.htm.
- 52. Bолк, B. Возврат Урана Из Отработавшего Топлива РБМК в Ядерный Топливный Цикл / В. Волк, А. Хаперская. 2010.
- 53. *Кислов*, *А. и др.* Радиационные Аспекты Использования Регенерированного Урана На ОАО «МСЗ» При Производстве Ядерного Топлива / А. и др. Кислов. —.
- 54. Status and Advances in MOX Fuel Technology. Vienna: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, 2003. (Technical Reports Series; 415).

- 55. Росатом Госкорпорация «Росатом» Ядерные Технологии Атомная Энергетика АЭС Ядерная Медицина. https://www.rosatom.ru/journalist/news/nach
- 57. *Борман*, *В. Д.* Технико-Экономический Анализ Возможных Вариантов Вовлечения Регенерируемых При Переработке ОЯТ Материалов в Топливные Циклы ВВЭР Большой Мощности / В. Д. Борман, Г. А. Сулаберидзе, А. Ю. Смирнов ; Институт промышленных ядерных технологий НИЯУ МИФИ. 2012. с. 206. ГР 01201278149.
- 58. Sulaberidze, G. A. Quasi-Ideal Cascades with an Additional Flow for Separation of Multicomponent Isotope Mixtures / G. A. Sulaberidze, V. D. Borisevich, Q. Xie // Theoretical Foundations of Chemical Engineering. 2006. Jan. 1. Vol. 40, no. 1. P. 5—13.
- 59. *Смирнов*, *А. Ю.* Обогащение регенерированного урана с одновременным разбавлением 232-236U природным сырьем и отвальным ураном / А. Ю. Смирнов, Г. А. Сулаберидзе. 2014.
- 60. Обогащение регенерированного урана в каскаде газовых центрифуг с одновременным разбавлением 232—236U отвальным и низкообогащенным ураном / А. Ю. Смирнов [и др.]. 2017.
- 61. Сулаберидзе, Γ . А. Теория каскадов для разделения бинарных и много-компонентных изотопных смесей; под ред. В. Д. Бормана / Γ . А. Сулаберидзе, В. А. Палкин, В. Д. Борисевич. 2011.
- 62. Palkin, V. A. Separation of Uranium Isotopes in a Cascade with Intermediate Product / V. A. Palkin // Perspekt. Mater. 2010. № 8. c. 11—14.
- 63. Management of High Enriched Uranium for Peaceful Purposes: Status and Trends. Vienna: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, 2005. (TECDOC Series; 1452).
- 64. Orlov, A. A. Way to Obtain Uranium Hexafluoride / A. A. Orlov, R. V. Malyugin // Advanced Materials Research. 2015. т. 1084. с. 338—341.
- 65. Orlov, A. Desublimation for Purification and Transporting UF6: Process Description and Modeling / A. Orlov, A. Tsimbalyuk, R. Malyugin. 2017.

- 66. Способ Изотопного Восстановления Регенерированного Урана Патент РФ 2497210 Мазин Владимир Ильич ,Водолазских Виктор Васильевич ,Журин Владимир Анатольевич ,Крутых Виктор Николаевич ,Мазур Роман Леонидович ,Фомин Артем Владимирович. URL: http://www.freepatent.ru/patents/2497210 (дата обр. 21.02.2020).
- 67. Палкин, В. А. Очистка Регенерированного Гексафторида Урана в Двух-каскадной Схеме При Обогащении 235U Менее 5% / В. А. Палкин // At. Energy. 2013. т. 115, № 1. с. 28—33.
- 68. *Palkin*, *V.* Restoration of the Isotopic Composition of Reprocessed Uranium Hexafluoride Using Cascade with Additional Product / V. Palkin, E. Maslyukov // Nuclear Engineering and Technology. 2020. May 26.
- 69. Смирнов, А. Ю. Q-КАСКАДЫ ДЛЯ ПОЛУЧЕНИЯ ВЫСОКИХ КОН-ЦЕНТРАЦИЙ ПРОМЕЖУТОЧНЫХ КОМПОНЕНТОВ РАЗДЕЛЯЕ-МЫХ СМЕСЕЙ / А. Ю. Смирнов, Г. А. Сулаберидзе // Теоретические Основы Химической Технологии. 2013. т. 47, № 4.
- 70. Смирнов, А. Ю. Влияние профиля потока питания ступеней каскада на массоперенос промежуточных компонентов / А. Ю. Смирнов, Г. А. Сулаберидзе, В. Д. Борисевич // Теоретические Основы Химической Технологии. 2010. т. $44, \, \mathbb{N} _{2}$ 6.
- 71. Палкин, В. А. Многопоточные каскады для разделения многокомпонентных изотопных смесей / В. А. Палкин // Атомная энергия. 2015. т. 119, № 6. с. 101—105.
- 72. Design of Cascade with Locally Enlarged Flow for Enrichment of Intermediate Components of Multi-Isotope Mixtures / A. Y. Smirnov [et al.] // Chemical Engineering Research and Design. 2015. Mar. Vol. 95. P. 47—54.
- 73. Радиолиз обогащенного 232,234 и гексафторида регенерированного урана на этапе временного хранения на разделительном производстве / И. А. Белов [и др.] // Атомная энергия. 2019. нояб. т. 126, № 5. с. 268—272.
- 74. Objective Function at Optimization of Separation Cascades / A. Mustafin [и др.] // AIP Conference Proceedings. 2019. апр. т. 2101, № 1. с. 020008.

- 75. Classification of Model Cascades for Separation of Multicomponent Isotope Mixtures / G. A. Sulaberidze [и др.] // Separation Science and Technology. 2020.-21 апр. т. 0, № 0. с. 1—11.
- 76. *Миненко*, *B*. К Теории Каскадов Для Разделения Многокомпонентных Изотопных Смесей / В. Миненко, Р. Кучеров // Атомная энергия. 1965. т. $19, \, \mathbb{N}^{\,}_{2} \, 4.$ с. 360-367.
- 77. *Жигаловский*, Б. Лекционные Материалы По Многокомпонентным Смесям. Новоуральск, УЭХК / Б. Жигаловский. 1999.
- 78. Design of Cascades for Separating Isotope Mixtures / N. A. Kolokol'tsov [et al.] // Soviet Atomic Energy. 1970. Dec. 1. Vol. 29, no. 6. P. 1193—1198.
- 79. К вопросу о построении каскадов для разделения многокомпонентных изотопных смесей / Н. А. Колокольцов [и др.]. 1970.
- 80. $\mathit{Миненко}$, B . $\mathit{\Pi}$. Предельное обогащение промежуточных изотопов в отборе с концов каскада / В. $\mathit{\Pi}$. Миненко. 1972.
- 81. YAMAMOTO, I. Multicomponent Isotope Separating Cascade Composed of Elements with Large Separation Factors / I. YAMAMOTO, A. KANAGAWA // Journal of Nuclear Science and Technology. 1978. 1 авг. т. 15, № 8. с. 580—584.
- 82. Wu, J. The Study of Multicomponent Isotope Separation of Uranium in Cascades by Centrifugal Method / J. Wu, Z. Fu // Proc. of 6th Workshop on Separation Phenomena in Liquids and Gases 1998. Nagoya, Japan. October. —. c. 18—21.
- 83. Борисевич, В. Д. О Расчете Каскадов с Дополнительным Отбором Для Разделения Многокомпонентных Изотопных Смесей / В. Д. Борисевич, Д. Потапов, Г. А. Сулаберидзе. 1993.
- 84. Wood, H. G. On a Criterion Efficacy for Multi-Isotope Mixtures Separation /
 H. G. Wood, V. D. Borisevich, G. A. Sulaberidze // Sep. Sci. and Technol. —
 1999. т. 34, № 3. с. 343—357.
- 85. Особенности обогащения компонентов с промежуточной массой в квази-идеальном каскаде / Г. А. Сулаберидзе [и др.] // Атомная энергия. 2006. т. $100, \, \mathbb{N} \, 1.$ с. 51-56.

- 86. Cазыкин, A. Квазиидеальные Каскады Для Разделения Многокомпонентных Смесей Изотопов / A. Сазыкин. 2000.
- 87. *Сулаберидзе*, Г. А. О Сравнение Оптимальных и Модельных Каскадов Для Разделения Многокомпонентных Смесей При Произвольном Обогащении На Ступени / Г. А. Сулаберидзе, В. Д. Борисевич, Ц. Се // Теорет. основы хим. технологии. 2008. т. 42, № 4. с. 1—7.
- 88. Comparative Study of the Model and Optimum Cascades for Multicomponent Isotope Separation / T. Song [и др.] // Separation Science and Technology. 2010. сент. т. 45, № 14. с. 2113—2118.
- 89. Сазыкин, А. Усовершенствованный Метод Расчета Разделения Многокомпонентных Смесей На Центробежных Каскадах / А. Сазыкин, А. Руднев // Сб. Докладов 2-Ой Всерос. Научн. Конф. «Физ.-Хим. Процессы При Селекции Атомов и Молекул». ЦНИИАтоминформ, 1997. с. 159—161.
- 90. Wu, H. Calculation Methods for Determining the Distribution of Components in a Separation Cascade for Multicomponent Mixture / H. Wu, C. Ying, G. Liu // Sep. Sci. and Techn. 33(6). 1988. c. 887—898.
- 91. Эффективный Метод Расчета Каскадов Для Разделения Многокомпонентных Изотопных Смесей / Л. Холпанов [и др.] // Хим. Пром. 1998. N = 3. с. 44—50.
- 92. On Calculation of Squared-off Cascades for Multicomponent Isotope Separation / D. Potapov [и др.] // Proc. 5th. Workshop of Separation Phenomena in Liquids and Gases. Iguaçu Falls, Brazil. 1996. с. 13—23.
- 93. Zeng, S. A Robust and Efficient Calculation Procedure for Determining Concentration Distribution of Multicomponent Mixture / S. Zeng, C. Ying // Sep. Sci. and Techn. 2000. т. 35, № 4. с. 613—622.
- 94. Palkin, V. A. Design-Analytical Research of a Refinement of the Recycled Uranium from 236U Isotope by Use of the Q-Cascade / V. A. Palkin, A. Y. Smirnov, G. A. Sulaberidze // (In: Proc. of SPLG-2010. Saint-Petersburg, Russia, 13—18 June). 2010. c. 142—149.

- 95. 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.
- 96. О ценности ОЯТ как сырья для топлива реакторов на тепловых нейтронах / А. П. Соловьева [и др.] // Известия Высших Учебных Заведений. Ядерная Энергетика. 2019. № 2. с. 140—152.
- 97. 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.
- 98. Brown, A. On the Origins and Significance of the Limit Demarcating Low-Enriched Uranium from Highly Enriched Uranium / A. Brown, A. Glaser // Science & Global Security. 2016. May. Vol. 24, no. 2. P. 131—137.
- 99. Π шакин, Γ . Ядерное Нераспространение. 2006 Электронная Библиотека «История Росатома» / Γ . Пшакин.
- 100. Numerical Optimization. Springer New York, 2006. (Springer Series in Operations Research and Financial Engineering).
- 101. Julia
NLSolvers/NLsolve. Jl: V4.5.1 / P. K. Mogensen [и др.] // Zenodo. — 2020.
- 102. Johnson, S. G. The NLopt nonlinear-optimization package / S. G. Johnson. —.
- 103. SciPy 1.0: Fundamental Algorithms for Scientific Computing in Python / P. Virtanen [et al.] // Nature Methods. 2020. Feb. 3. P. 1—12.
- Mogensen, P. K. Optim: A Mathematical Optimization Package for Julia / P. K. Mogensen, A. N. Riseth // Journal of Open Source Software. 2018. T. 3, № 24. c. 615.
- 105. The Concept of the Use of Recycled Uranium for Increasing the Degree of Security of Export Deliveries of Fuel for Light-Water Reactors / P. N. Alekseev [et al.] // Physics of Atomic Nuclei. 2010. Dec. 1. Vol. 73, no. 14. P. 2264—2270.

- 106. Способ Изотопного Восстановления Регенерированного Урана : 2702620 / В. А. Невиница, А. Ю. Смирнов, Г. А. Сулаберидзе. заявл. 2019.
- 107. More, J. MINPACK / J. More, K. Hillstrom // Argonne National Laboratory. —.
- 108. 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.
- 109. 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.

Приложение

Референтный ординарный трехпоточный каскад.

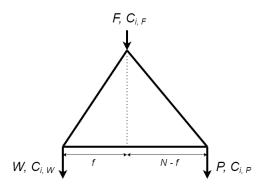


Рисунок А1 — Схема ординарного каскада для обогащения природного урана

Параметры ординарного каскада для обогащения природного урана (рис. A1) до 4.95% с 0.1% в отвале.

$\frac{P}{F}$	$\frac{W}{F}$	f	N	Работа разделения, отн. ед.
0,13	0,87	15,64	30,41	11,81

Таблица А1 — Параметры схемы ординарного каскада

Оценка эффективности модифицированного двойного каскада по различным критериям. Дополнительные результаты: состав 2.

Результаты расчёта оптимальных параметров каскадной схемы для случая с ограничением на концентрацию $^{235}{
m U}$ в 20% представлены в таблицах A1-A1.

Критерий Параметр	$(Y_f)_{\max}$	$(Y_E)_{\max}$	$(\delta(rac{\Delta A}{P}))_{ m min}$	$(\delta(rac{F_{NU}}{P}))_{ ext{min}}$
$Y_f,\%$	85.2	85.2	85.2	85.18
$Y_E,\%$	73.32	73.32	73.32	73.25
$\delta(\frac{\Delta A}{P}), \%$	-5.863	-5.863	-5.863	-9.206
$rac{F_{NU}}{P},$ K Γ	7.137	7.137	7.137	7.083
$\delta(\frac{F_{NU}}{P}),\%$	10.02	10.02	10.02	10.69

Таблица A1 — Интегральные параметры схемы двойного каскада с НОУ-разбавителем при различных критериях оптимизации для обогащения регенерата состава №2 с обогащением до 20%.

Критерий	$(Y_f)_{\max}$	(V_{Γ})	$(\delta(\underline{\Delta A}))$.	$(\delta(rac{F_{NU}}{P}))_{ m min}$
Параметр	$\int f \int \max$	(IE)max	$(O(\overline{P}))_{\min}$	$(O(\frac{P}{P}))_{\min}$
$C_{232,P} \cdot 10^7, \%$	5.0	5.0	5.0	5.0
$C_{234,P,\%}$	0.06331	0.06331	0.06331	0.0633
$C_{235,P,\%}$	5.206	5.206	5.206	5.172
$C_{236,P,\%}$	0.8832	0.8832	0.8832	0.767
$C_{235,P_1,\%}$	5.915	5.915	5.915	5.87
$C_{235,W_2,\%}$	5.011	5.011	5.011	4.966
$C_{235,P_0,\%}$	5.241	5.241	5.241	5.209
$C_{235,P_2,\%}$	19.76	19.76	19.76	19.76
$C_{232,P_1,\%}$	6.161e - 6	6.161e - 6	6.161e - 6	6.117e - 6
$C_{232,W_2,\%}$	3.31e - 6	3.31e - 6	3.31e - 6	3.284e - 6
$C_{232,P_2,\%}$	4.985e - 5	4.985e - 5	4.985e - 5	4.969e - 5
$C_{234,P_1,\%}$	0.2306	0.2306	0.2306	0.2315
$C_{234,W_2,\%}$	0.1733	0.1733	0.1733	0.1737
$C_{234,P_2,\%}$	1.11	1.11	1.11	1.12
$C_{236,P_1,\%}$	6.326	6.326	6.326	5.456
$C_{236,W_2,\%}$	5.847	5.847	5.847	5.037
$C_{236,P_2,\%}$	13.66	13.66	13.66	11.9
M_{k1}	238	238	238	236
M_{k2}	234	234	234	234
F_{P_1} , кг	238.0	238.0	238.0	239.8
$F_{W_2},$ кг	223.4	223.4	223.4	225.2
F_{P_0} , кг	1256.0	1256.0	1256.0	1254.0
F_{P_2} , кг	14.58	14.58	14.58	14.64

Таблица A1 — Параметры схемы двойного каскада с HOУ-разбавителем при различных критериях оптимизации для обогащения регенерата состава №2 с обогащением до 20%.

Как следует из анализа представленных в них результатов, при загрязненном составе регенерата (состав №2), при тех же ограничениях в 20% на 235 U, на >10% падает степень извлечения 235 U из регенерированного урана. Общее извлечение 235 U из схемы (Y_f) также уменьшается, однако не так существенно (на $\approx 1-3\%$). Экономия природного урана для загрязненного состава, также падает на $\approx 10\%$), по сравнению со случаем более «чистого» регенерата состава 1.

Экономия работы разделения по сравнению с ординарным каскадом для обогащения природного урана, для всех случаев принимает отрицательные значения, то есть необходим перерасход работы разделения.

Решения для критериев $(Y_f)_{\text{max}}$, $(Y_E)_{\text{max}}$, $(\delta(\frac{\Delta A}{P}))_{\text{min}}$ тождественны. Решение для критерия $(\delta(\frac{F_{NU}}{P}))_{\text{min}}$, показывает пренебрежимо различные Y_E и Y_E , но требующее больших, чем остальные, затрат работы разделения, представляется наиболее привлекательным в условиях многократно рецикла, ввиду того, что в конечном продукте оказывается на $\approx 15\%$ меньше 236 U. При этом дополнительных затрат работы разделения требуется лишь $\approx 5\%$. Массовые потоки при этом будет близки.

Существенным недостатком для всей серии результатов, представленных в таблицах A1–A1, является то, что все оптимальные решения потребуют использования HOУ-разбавителя с содержанием 235 U >5%. Этот недостаток можно преодолеть либо используя предварительно подготовленный состав HOУ-разбавителя, либо решая задачу подбора параметров оптимальной схемы в отсутствии ограничения на предельно допустимую концентрацию 235 U на каких-либо участках каскада.

Рассмотрим случай результаты оптимизации схемы при обогащении состава 2 (соответствующего пятому рециклу) и отсутствии ограничения на получение высокообогащенного урана (когда концентрация ²³⁵U может превышать 20%). Полученные для этого случая данные представлены в таблицах A1–A1.

Критерий Параметр	$(Y_f)_{\max}$	$(Y_E)_{\max}$	$(\delta(rac{\Delta A}{P}))_{ m min}$	$(\delta(rac{F_{NU}}{P}))_{ ext{min}}$
$Y_f,\%$	88.22	88.22	88.2	87.38
$Y_E,\%$	90.84	90.84	90.25	84.35
$\delta(\frac{\Delta A}{P}), \%$	-2.58	-2.58	-2.46	-14.27
$rac{F_{NU}}{P},$ K Γ	6.903	6.903	6.885	6.6
$\delta(rac{F_{NU}}{P}),\%$	12.96	12.96	13.19	16.78

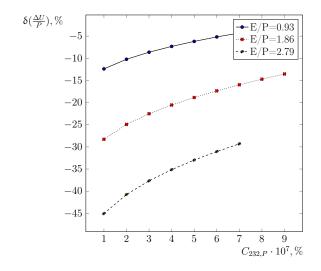
Таблица A1 — Интегральные параметры схемы двойного каскада с НОУ-разбавителем при различных критериях оптимизации для обогащения регенерата состава №2 с обогащением до 90%.

Из анализа результатов, представленных в таблицах A1-A1 видно, что, как и для случая обогащения регенерата состава 1 (??-??), при отсутствии ограни-

Критерий	$(Y_f)_{\max}$	$(V_E)_{\cdots}$	$(\delta(\frac{\Delta A}{P}))_{\min}$	$(\delta(\frac{F_{NU}}{}))_{\cdots}$
Параметр	(1) max	(1E)max	(O(P))min	(O(P))min
$C_{232,P} \cdot 10^7, \%$	5.0	5.0	5.0	5.0
$C_{234,P},\%$	0.07002	0.07002	0.0698	0.06577
$C_{235, P}, \%$	5.244	5.244	5.231	5.056
$C_{236,P},\%$	1.012	1.012	0.9703	0.1925
$C_{235,P_1,\%}$	6.091	6.091	8.796	79.35
$C_{235,W_2,\%}$	6.012	6.012	8.675	78.93
$C_{235,P_0,\%}$	5.101	5.102	4.817	4.181
$C_{235,P_2,\%}$	72.52	72.52	73.14	85.38
$C_{232,P_1,\%}$	6.348e - 6	6.347e - 6	9.212e - 6	8.402e - 5
$C_{232,W_2,\%}$	3.205e - 6	3.205e - 6	4.655e - 6	4.532e - 5
$C_{232,P_2,\%}$	0.002646	0.002646	0.00245	0.0006359
$C_{234,P_1,\%}$	0.2376	0.2376	0.3447	3.196
$C_{234,W_2,\%}$	0.2186	0.2186	0.3163	2.847
$C_{234,P_2,\%}$	16.19	16.19	15.57	8.178
$C_{236,P_1,\%}$	6.494	6.494	9.036	16.73
$C_{236,W_2,\%}$	6.49	6.49	9.034	17.45
$C_{236,P_2,\%}$	9.813	9.813	10.12	6.411
M_{k1}	238	238	238	236
M_{k2}	232	232	232	232
F_{P_1} , кг	231.0	231.0	159.1	17.46
$F_{W_2},$ кг	230.7	230.7	158.8	16.32
F_{P_0} , кг	1248.0	1248.0	1320.0	1463.0
F_{P_2} , кг	0.2746	0.2746	0.2966	1.144

Таблица A1 — Параметры схемы двойного каскада с НОУ-разбавителем при различных критериях оптимизации для обогащения регенерата состава №2 с обогащением до 90%.

чения на обогащение до уровня ВОУ, можно получить финальный продукт со значительно более низкой концентрацией изотопа 236 U. Для полученного набора результирующих параметров (??-??), наибольший интерес представляет решение для максимума экономии природного урана $(\delta(\frac{F_{NU}}{P}))_{\min}$, так как, несмотря на то, что, в отличие от остальных решений, оно не экономит работу разделения, а, напротив, требует перерасхода работы разделения (\approx 12%), оно позволяет по-



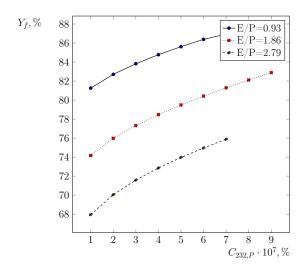


Рисунок A2 — Зависимость экономии работы разделения от ПДК 232 U в НОУ-продукте с обогащением до уровня 4,4% для различных $\frac{E}{P}$.

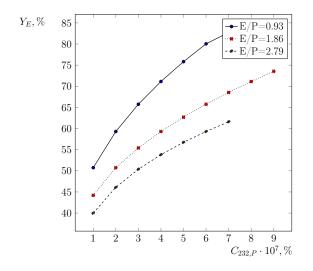
Рисунок А3 — Зависимость степени извлечения 235 U из регенерата от ПДК 232 U в НОУ-продукте с обогащением до уровня 4,4% для различных $\frac{E}{P}$.

лучить НОУ-продукт с пятикратно меньшим содержанием 236 U, по сравнению с альтернативными решениями для остальных критериев. Однако в этом варианте получается в \approx 4 раза большая масса образующегося побочного потока легкой фракции второго каскада, который требует особых условия хранения. При этом содержание 232 U в этом «отходе» в \approx 4 раза ниже, а 234 U в в \approx 2 раза ниже, чем для альтернативных решений, а значит и ниже удельная активность.

Этот результат достигается за счет обогащения 235 U в первом каскаде до значений, характерных для ВОУ. Таким образом, при отсутствии ограничения на обогащение 235 U, оптимальные результаты достигаются, когда отборная часть первого каскада удлиняется — в нашем случае в отборном потоке концентрации 235 U превышают 70%, что, по-видимому, и обуславливает дополнительные затраты работы разделения в этом случае.

Так же, как и в расчете, в котором имело место ограничение на 235 U 20% (таблица A1), в таблице A1 можно проследить следующую закономерность. Меньшая концентрация 235 U в потоке P_1 приводит к тому, что поток W_2 будет необходимо разбавлять НОУ-разбавителем с более высокой концентрацией изотопа 235 U, что неизбежно приведет к более высоким затратам сырьевого материала — природного урана, из которого нарабатывается этот разбавитель.

Анализ «устойчивости» схемы двойного каскада с НОУ-разбавителем к изменению внешних условий. Дополнительные результаты.



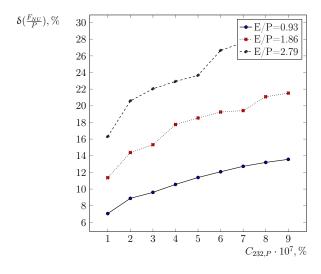


Рисунок A4 — Зависимость степени извлечения 235 U из регенерата от ПДК 232 U в НОУ-продукте с обогащением до уровня 4,4% для различных $\frac{E}{P}$.

Рисунок А5 — Зависимость расхода природного урана от ПДК 232 U в НОУ-продукте с обогащением до уровня 4,4% для различных $\frac{E}{P}$.

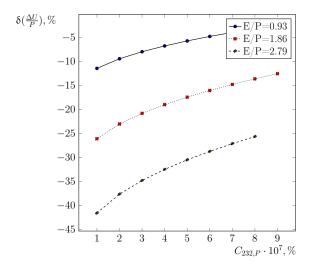


Рисунок А6 — Зависимость экономии работы разделения от ПДК 232 U в НОУ-продукте с обогащением до уровня 4.7% для различных $\frac{E}{P}$.

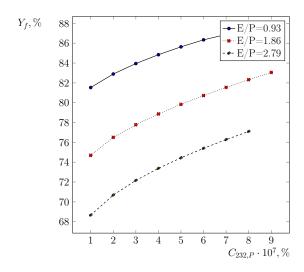
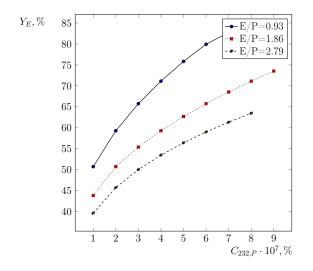


Рисунок A7 — Зависимость степени извлечения 235 U от ПДК 232 U в НОУ-продукте с обогащением до уровня 4.7% для различных $\frac{E}{P}$.



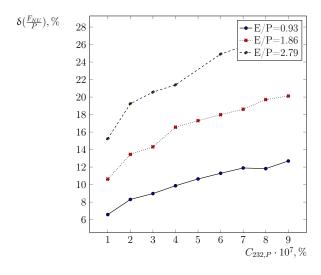
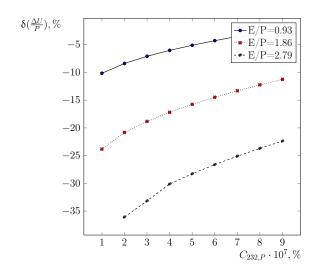


Рисунок А8 — Зависимость степени извлечения 235 U из регенерата от ПДК 232 U в НОУ-продукте с обогащением до уровня 4.7% для различных $\frac{E}{P}$.

Рисунок А9 — Зависимость расхода природного урана от ПДК 232 U в НОУ-продукте с обогащением до уровня 4.7% для различных $\frac{E}{P}$.



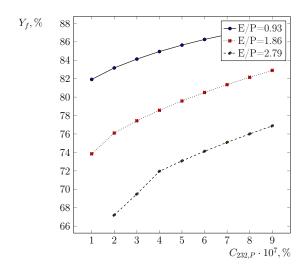
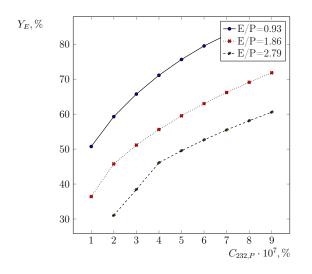


Рисунок А10 — Зависимость экономии работы разделения от ПДК 232 U в НОУ-продукте с обогащением до уровня 5.2% для различных $\frac{E}{P}$.

Рисунок A11 — Зависимость степени извлечения 235 U из регенерата от ПДК 232 U в НОУ-продукте с обогащением до уровня 5.2% для различных $\frac{E}{P}$.



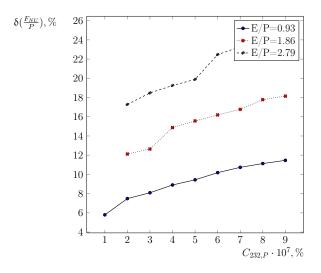
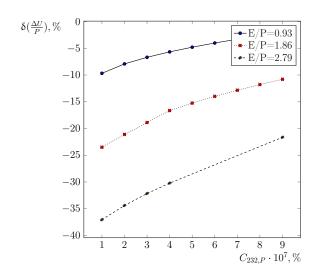


Рисунок A12 — Зависимость степени извлечения 235 U из регенерата от ПДК 232 U в НОУ-продукте с обогащением до уровня 5.2% для различных $\frac{E}{P}$.

Рисунок А13 — Зависимость расхода природного урана от ПДК 232 U в НОУ-продукте с обогащением до уровня 5.2% для различных $\frac{E}{P}$.



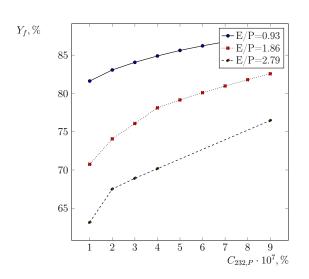
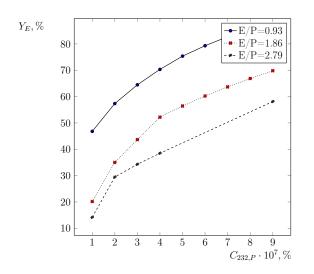


Рисунок А14 — Зависимость экономии работы разделения от ПДК 232 U в НОУ-продукте с обогащением до уровня 5.5% для различных $\frac{E}{P}$.

Рисунок А15 — Зависимость степени извлечения 235 U от ПДК 232 U в НОУ-продукте с обогащением до уровня 5,5% для различных $\frac{E}{P}$.



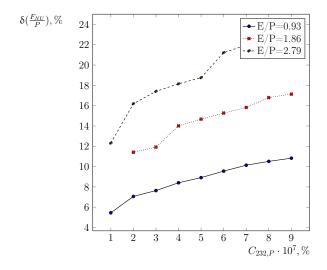


Рисунок A16 — Зависимость степени извлечения 235 U из регенерата от ПДК 232 U в НОУ-продукте с обогащением до уровня 5,5% для различных $\frac{E}{P}$.

Рисунок А17 — Зависимость расхода природного урана от ПДК 232 U в НОУ-продукте с обогащением до уровня 5.5% для различных $\frac{E}{P}$.