

На правах рукописи



Гусев Владислав Евгеньевич

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

Специальность 01.04.14 —
«Теплофизика и теоретическая теплотехника»

Автореферат
диссертации на соискание учёной степени
кандидата физико-математических наук

Москва — 2023

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

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

Консультанты: кандидат физико-математических наук
Смирнов Андрей Юрьевич

кандидат технических наук
Невиница Владимир Анатольевич

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

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

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

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

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке НИЯУ МИФИ.

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

Автореферат разослан DD mmmmmmmmm YYYU года.

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

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

Фамилия Имя Отчество

Общая характеристика работы

Актуальность темы.

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 на тепловых нейтронах [2], работающие на ядерном топливе из низкообогащенного урана (НОУ). Работа каждого из энергоблоков создает необходимость в обеспечении его топливными ресурсами и выборе способа обращения с выгруженным из него облученным ядерным топливом (ОЯТ).

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

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

точек зрения решения, это затруднит развитие ядерной энергетики в будущем. Следует отметить, что основным материалом облученного ядерного топлива является уран, составляющий $\approx 90-95\%$ его массы, за вычетом конструкционных материалов. Оставшаяся часть делится между плутонием и продуктами (осколками) деления. В большинстве случаев регенерированный уран содержит изотоп ^{235}U 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}U и ^{236}U . Кроме того, как правило, возрастает и концентрация природного изотопа ^{234}U . Изотоп ^{232}U опасен тем, что является родоначальником цепочки распадов, среди дочерних продуктов которых есть, в частности, ^{208}Tl , представляющий собой источник жесткого гамма-излучения, обуславливающего высокий уровень радиоактивного фона. Поэтому при производстве уранового топлива существуют нормативные ограничения на допустимое содержание ^{232}U в низкообогащенном уране. На текущий момент в РФ допустимые концентрации (в мас. долях) ^{232}U в НОУ не должны превышать предельно допустимых значений, в качестве которых в Российских нормативных документах приняты следующие величины: $2 \cdot 10^{-7}\%$ и $5 \cdot 10^{-7}\%$. Проблема, связанная с изотопом ^{236}U состоит в том, что он является паразитным поглотителем нейтронов в ядерном топливе и, следовательно, отрицательно воздействует на реактивность реактора и глубину выгорания топлива. При наличии в загружаемом в реактор топливе

^{236}U для компенсации его отрицательного влияния и получения заданных ядерно-физических характеристик реактора нужно повышать среднее начальное обогащение топлива по ^{235}U . 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, предвещающей стадию обогащения восстановленного посредством нее регенерата, то в данной работе не будут затронуты теоретические и практические вопросы переработки ОЯТ. При этом отметим, что на текущий момент в РФ и некоторых странах существуют отработанные технологии переработки ОЯТ, что дает основания рассматривать и анализировать вопросы эффективного обогащения регенерированного урана, считая, что проблема его выделения из ОЯТ решена [10–13].

Перейдем к анализу проблем, возникающих для технологий разделения изотопов в контексте обогащения регенерированного урана. На сегодняшний день предложен ряд технических решений, позволяющих решить задачу обогащения регенерированного урана до концентраций ^{235}U , требуемых в современных топливных циклах энергетических реакторов на тепловых нейтронах (в частности отечественных ВВЭР), при одновременном выполнении принятых ограничений на содержание ^{232}U в ядерном топливе и реализации необходимого дообогащения регенерата по ^{235}U для компенсации негативного влияния ^{236}U . Тем не менее далеко не все из них способны решить задачу обогащения регенерата с одновременной коррекцией его изотопного состава в условиях, когда исходное содержание четных изотопов может существенно меняться, например, в сторону увеличения. Последнее обстоятельство особо важно в контексте рассмотрения перспективных реакторов, имеющих относительно высокую глубину выгорания топлива и, как следствие, состав ОЯТ которых может характеризоваться 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 ^{232}U , ^{234}U и ^{236}U в получаемом продукте – низкообогащенном уране, и расходовании заданной массы регенерата на единицу получаемого продукта;
3. Физически обоснованы принципы построения двойных каскадов, позволяющих корректировать изотопный состав регенерата по концентрациям изотопов ^{232}U , ^{234}U и ^{236}U с одновременным расходом максимального количества подлежащего обогащению

- регенерата при различных исходных концентрациях четных изотопов в нем. Разработаны и апробированы оригинальные методики расчета и оптимизации предложенной модификации двойного каскада. Показана возможность использования предложенной схемы при различных внешних условиях, а также различных концентрациях четных изотопов в исходном регенерированном уране;
4. Обоснован способ эффективной «утилизации» загрязненной четными изотопами фракции, возникающей в двойных каскадах при очистке от ^{232}U , с учетом полной или частичной подачи данной фракции: а) в третий каскад с предварительным перемешиванием ее с природным, обедненным и/или низкообогащенным ураном; б) в отдельный двойной каскад, осуществляющий наработку низкообогащенного урана для последующей топливной кампании реактора;
 5. Изучены физические закономерности изменения изотопного состава регенерата урана в зависимости от выбора параметров модифицированного двойного каскада при обогащении регенерированного урана с различным исходным содержанием четных изотопов в питающей смеси.

Научная новизна:

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

Практическая значимость

1. Разработаны модификации двойных и тройных каскадов, позволяющие обогащать регенерированный уран с одновременным выполнением ограничений на концентрации четных изотопов и вовлечением требуемой массы регенерата;
2. Предложенные методики оптимизации параметров каскадных схем двойного и тройного каскадов позволяют находить наиболее эффективные с точки зрения таких критериев, как расход работы разделения, расход природного урана, степень извлечения ^{235}U , наборы их параметров, позволяющие осуществлять возврат всей массы регенерированного урана в цикл и одновременно удовлетворять ограничения по концентрациям четных изотопов. Предложенные методики оптимизации систем каскадов могут быть адаптированы к расчету и оптимизации параметров различных вариантов каскадных схем для многокомпонентных смесей неурановых элементов;
3. Полученные результаты могут быть использованы в расчетных группах на предприятиях и организациях, связанных как с проектированием и построением разделительных каскадов, так и непосредственным производством изотопной продукции (АО «Уральский электрохимический комбинат», АО «Сибирский химический комбинат», АО «ТВЭЛ», АО «Восточно-Европейский головной научно-исследовательский и проектный институт энергетических технологий», АО «ПО «ЭХЗ» и др.);
4. Предложенные методики расчета могут лечь в основу имитационных моделей топливного цикла реакторов на тепловых нейтронах, использующих регенерированное урановое топливо.

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

Основные положения, выносимые на защиту:

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

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

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

- XVII International conference and School for young scholars “Physical chemical processes in atomic systems”, г. Москва, Россия. Доклад: Enrichment schemes for reprocessed uranium recycling, Авторы: V.E. Gusev;
- 16th International Workshop on Separation Phenomena in Liquids and Gases (SPLG-2021), On the problems of reusing reprocessed uranium by enrichment in schemes based on ordinary cascades, Авторы: V.E. Gusev;
- 15th International Workshop on Separation Phenomena in Liquids and Gases (SPLG-2019), г. Уси, Китай. Доклад: Method of Reprocessed Uranium Enrichment for NPP Fuel Supply, Авторы: A. Yu. Smirnov, V.E. Gusev, G.A.Sulaberidze;
- XVII International conference and School for young scholars “Physical chemical processes in atomic systems”, г. Москва, Россия. Доклад: Physical regularities of recycling of recovered nuclear materials (uranium and plutonium) in thermal reactor fuel, Авторы: A. Yu. Smirnov, G.A.Sulaberidze, V.E. Gusev, V.A. Nevinitsa.

По теме диссертации опубликовано 11 печатных работ, в том числе 7 в изданиях, индексируемых в международной системе цитирования Scopus. Автор принимал участие в проектах 77777777777777777777 в 2018–2022 гг.

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

Содержание работы

Во **введении** обоснована актуальность разработки схем для обогащения регенерированного урана, вытекающая из задач долгосрочного развития ядерной энергетики, а также из существующих на сегодня ограничений ранее предложенных схем. Сформулирована цель исследования, состоящая в теоретическом обосновании эффективных способов обогащения регенерированного урана в каскадах центрифуг при его многократном использовании в регенерированном ядерном топливе для реакторов на тепловых нейтронах.

Первая глава посвящена теоретическому введению в проблему поиска схем каскадов для обогащения восстановленного урана. Проанализирована проблема четных изотопов $^{232,234,236}\text{U}$ в задаче обогащения регенерированного урана с точки зрения разделительных технологий. $^{232,234}\text{U}$ ухудшают радиационные характеристики ЯТ, содержание ^{232}U в НОУ-продукте ограничено мерами радиационной безопасности персонала на разделительном и фабрикационном производстве значениями 2·10⁻⁷% или 5·10⁻⁷%, предельно допустимое отношение $\frac{C_{234,P}}{C_{235,P}} = 0,02$. ^{236}U захватывает тепловые нейтроны, приводя к необходимости повышения обогащения по ^{235}U . Описывается процесс многократного использования в качестве ядерного топлива урановой смеси (рис. 1), и приводится схема (рис. 2), соответствующая принципу получения НОУ из регенерированного урана, используя при его производстве весь выделенный из ОЯТ этого же реактора регенерат. Этот принцип отвечает (1) минимизации потерь ^{235}U в топливном цикле (2) максимально эффективному использованию потенциала ОЯТ для воспроизводства топлива (3) отсутствию нежелательного накопления регенерата.

Приводится формулировка задачи обогащения регенерата, которой посвящена диссертационная работа: получение заданной массы товарного НОУ требуемого обогащения по ^{235}U 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.

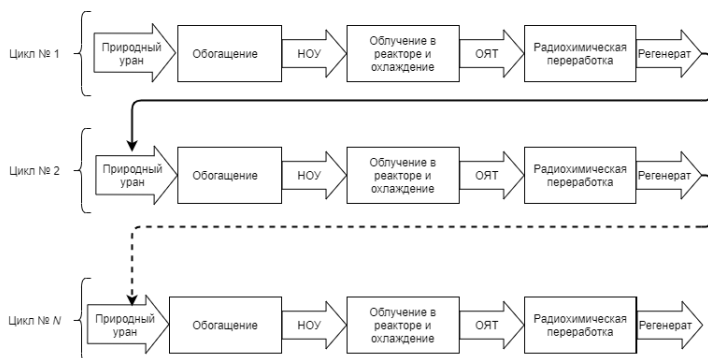


Рис. 1 — Схема многократного рециклирования урана

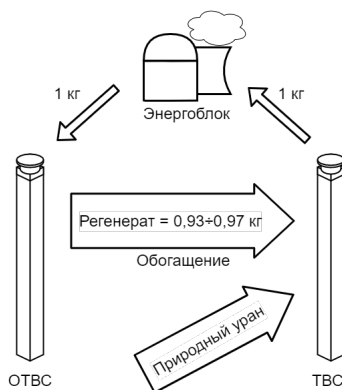


Рис. 2 — Схема замыкания урановой топливной составляющей

Рассматривается промышленный опыт возврата урана в ядерный топливный цикл легководных реакторов. Кратко обозреваются три ключевые технологии, необходимые для повторного использования регенерированного урана: (1) Радиохимическую переработку ОЯТ; (2) Изотопное обогащение регенерированного урана; (3) Изготовление топлива на основе восстановленного отработавшего топлива.

Ввиду того, что ординарный трехпоточный каскад **3** позволяет обогащать только относительно «чистые» составы регенерата, то есть такие, в которых исходные содержания четных изотопов меньше (на порядок или более), чем их допустимые пределы в товарном НОУ, такой каскад неприменим при многократном рецикле урана.

Представлен обзор каскадных схем, посвященных возврату регенерированного урана в ядерный топливный цикл, известных к началу написания диссертационной работы. Проведен анализ применимости существующих схем для решения задачи в условиях многократного рецикла

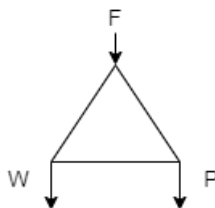


Рис. 3 — Схема ординарного трехпоточного каскада. F – поток питания;
 P – поток отбора; W – поток отвала.

урановой составляющей, на основе которого сделан вывод о необходимости дальнейшего поиска каскадных схем. Проведенный сравнительный анализ предложенных способов обогащения регенерата позволяет условно разделить их на 3 типа: схемы с разбавлением четных изотопов, схемы с отделением четных изотопов и «гибридные» схемы.

По результатам анализа известных схем на основе ординарного каскада сделаны выводы об ограничении их применимости из чего вытекает необходимость дальнейшего поиска каскадных схем для обогащения регенерата с целью его возврата в топливный цикл.

Во второй главе приведены основы теории разделения изотопов в каскадах. Вводятся ключевые понятия теории каскадов, такие как понятия разделительного элемента, разделительной ступени, а также раскрываются основные принципы коммутации разделительных элементов в каскаде. Смесь изотопов регенерированного урана, в отличие от природного урана является многокомпонентной (>2 изотопов) смесью, поэтому для нее теория разделения бинарной смеси не является удовлетворительной для моделирования процессов массопереноса. Исходя из этого, в главе изложены основные теоретические сведения, необходимые для моделирования разделения многокомпонентных изотопных смесей в каскадах, в частности симметричный противоточный каскад и описывающая для него массоперенос в общем виде система уравнений. Приводится понятие модельного каскада, позволяющего упростить вычислительную процедуру расчета параметров каскада, при этом сохранив адекватность процессу разделения для рассматриваемого типа изотопной смеси, соответствующего смеси регенерированного урана. В качестве такого модельного каскада приводится «Квазиидеальный» каскад как частный случай симметричного противоточного каскада. Для поставленных в диссертации задач обосновывается выбор модели R -каскада с несмешиванием относительных концентраций двух заданных компонентов смеси (n -го и k -го, для которых условие несмешивания записывается как 1) как частного случая квазиидеального каскада.

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

В завершении, в главе осуществляется анализ типичных постановок задач расчёта параметров ординарного каскада на примере модельных

каскадов. В качестве таких задач рассматриваются поверочный и проектировочный типы расчетов, и для проектировочного расчёта, подразумевающего определение параметров R -каскада при заданных концентрациях целевого компонента в выходящих потоках каскада, описывается алгоритм решения.

На основе обзора, приведенного в первой главе, в третьей главе выявляются ограничения известных схем. В главе:

1. формулируется постановка задачи, отвечающая условиям возврата регенерированного урана в ядерный топливный цикл в режиме многократного рециклирования;
2. описывается расчетная методика и ее основные предположения для используемых математических моделей;
3. выявляются физические причины затруднений при решении задачи обогащения регенерата произвольного изотопного состава в одиночном каскаде при одновременном выполнении условий на концентрации нецелевых изотопов;
4. рассматриваются ограничения двухкаскадной схемы и устанавливается необходимость ее модификации.

Исследование, проводимое в этой главе показывает: (1) нецелесообразность использования схем на основе ординарных каскадов; (2) границы применимости двойного немодифицированного каскада, для решения поставленной задачи.

В качестве схем на основе ординарного каскада рассмотрены:

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

Выявлены физические принципы, на основании которых можно априорно судить о неприменимости некоторых каскадных схем для задачи возврата восстановленного регенерата в топливный цикл легководных реакторов в режиме многократного рециклирования. Описывается подход позволяющий аналитически оценить возможность применения схем на основе простейших модификаций ординарного каскада, исходя из изотопного состава регенерата.

Так как полученные для схем на основе ординарных каскадов результаты показали невозможность применением «разбавляющих» схем удовлетворить одновременно и условие полного возврата массы регенерата в цикл и ограничения на содержание четных изотопов, для составов с относительно высоким исходным содержанием ^{232}U , что связано с нарастанием

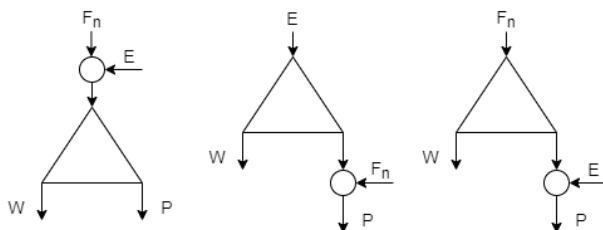


Рис. 4 — Схемы на основе ординарного каскада. Обозначения: E — поток питающего схему регенерата, F_n — поток разбавителя (природного урана или низкообогащенного урана); W — поток отвалного ОГФУ тяжелого конца каскада; P — товарный низкообогащенный уран

в потоке, формирующем НОУ-продукт, «легких» изотопов (в первую очередь ^{232}U). Отсюда, в данной главе предлагается оценить применимость двойных каскадов, которые смогут обеспечить частичную очистку обогащаемого регенерата от четных изотопов $^{232,234}\text{U}$.

Приводится постановка задачи численного эксперимента для двойного каскада и описывается его методика (алгоритм расчета и оптимизации). Полученные результаты свидетельствуют о принципиальной применимости двойного каскада для решения поставленной задачи, однако возникает ряд проблем, связанных с (1) необходимостью последующего привлечения дополнительных источников ^{235}U для формирования требуемой для загрузки реактора массы НОУ; (2) высоким содержанием ^{236}U в НОУ-продукте, приводящим к необходимости повышения обогащения по ^{235}U вплоть до 6-7%. В данной главе исследуются как возможности решения задачи полного возврата массы регенерированного урана, так и варианты замыкания ядерного топливного цикла по урановой компоненте вне рамок этого условия. Тогда как первый вариант нацелен на рециклирование топлива для отдельно взятого энергоблока, второй предлагает рассмотрение воспроизводимого топливообеспечения для парка реакторов.

В главе 3 формулируется рекомендация перехода к составным схемам на основе двойного каскада, обеспечивающим «пространственное» разделение для отделения изотопов легкой фракции (в первую очередь ^{232}U) в получаемом продукте — низкообогащенном уране.

Четвертая глава вытекает из анализа ограничений известных схем, проведенного во второй главе и из намеченного в ней пути решения задачи возврата в ЯТЦ регенерата в условиях многократного рецикла. Глава посвящена анализу предложенных в диссертации каскадных схем для решения задачи замыкания ядерного топливного цикла легководных реакторов по урану.

В начале главы 4 демонстрируется способ решения поставленной во введении задачи с помощью двойного модифицированного каскада 5, который испытывается для различных исходных смесей питающего регенерата, характерных для легководного реактора.

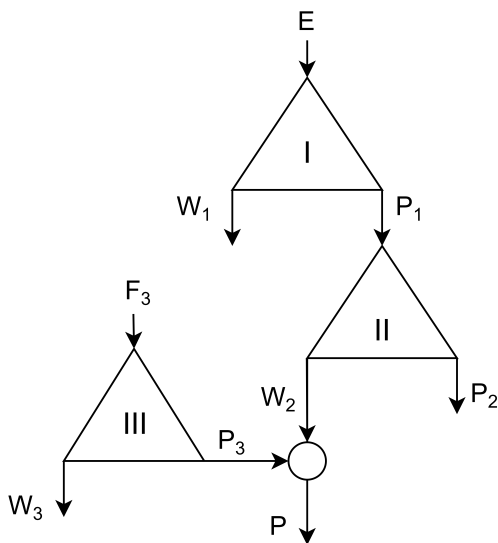


Рис. 5 — Схема модифицированного двойного каскада для обогащения регенерированного урана. Обозначения: E – поток регенерированного урана; P_1 – поток отбора первого каскада, выступающий питанием второго каскада; P_2 – поток отбора второго каскада; W_1 – поток отвала первого каскада; W_2 – поток тяжелой фракции (условный «отвал») второго каскада; P_3 – поток НОУ-разбавителя; P – финальный продукт (товарный низкообогащенный уран (НОУ))

Для этой схемы приводится постановка задача и методики расчета каскадной схемы, с помощью которых исследуются закономерности массопереноса изотопов урана при разных условиях и разрабатываются подходы к ее оптимизации на различные критерии эффективности. С помощью разработанных методик, оценивается эффективность модифицированного двойного каскада при различных расчетных оптимизационных критериях:

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

Показано, что с использованием предложенной схемы даже для составов с относительно высоким содержанием четных изотопов (выше

предельных значений для товарного НОУ) возможно добиться экономии природного урана на уровне 15% и выше при практически нулевом перерасходе или даже экономии затрат работы разделения, а также предпочтительность затрат работы разделения в качестве критерия эффективности в рассмотренных случаях.

Имея общую постановку задачи, соответствующую условиям, необходимым для возврата регенерата в топливный цикл в условиях многократного рецикла, проводится сравнение интегральных параметров модифицированного двойного каскада с аналогичными параметрами для других ранее рассмотренных в работе способов обогащения регенерата урана.

Для двойного модифицированного каскада 5 исследуются закономерности массопереноса, из которых делаются выводы о возможности выбора наиболее выгодных параметров с точки зрения критериев эффективности, в частности $C_{235,P_2} > 20\%$. Для данной схемы также проводится анализ «устойчивости» предложенного подхода обогащения регенерата к изменению внешних условий, результаты которого показывают возможность применения рассматриваемой каскадной схемы при изменении таких внешних условий, как:

- требуемое обогащение по изотопу ^{235}U ($C_{235,P}$);
- величина предельно допустимой концентрации изотопа ^{232}U в НОУ-продукте;
- расход регенерированного урана на единицу продукта (E/P).

Для двойного модифицированного каскада 5 также отмечается значимая возможность изолировать разделительные мощности для обогащения регенерированного урана (где разделительное оборудование будет подвержено загрязнению минорными изотопами – в рассматриваемом случае каскады I и II) от разделительных мощностей, обогащающих не содержащий $^{232,236}\text{U}$ природный уран или ОГФУ.

Далее в главе 4 прорабатываются способы устранения основной проблемы рассмотренной схемы двойного модифицированного каскада – загрязненной легкими изотопами $^{232,234}\text{U}$ побочно производимой фракции P_2 .

Рассматриваются следующие способы утилизации P_2 , исходя из присутствия в нем существенного количества ^{235}U :

- путем перемешивания P_2 с регенератом, поступающим на обогащение;
- путем получения дополнительной массы товарного НОУ;
- путем перемешивания P_2 с обедненным ураном и последующим обогащением.

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

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

Для способа утилизации легкой фракции путем ее перемешивания с обедненным ураном и последующим обогащением, представленного на рис. 6, приводится расчетный алгоритм, с помощью которого осуществляется оценка эффективности тройного каскада по различным критериям.

Выводы, относящихся ко всем рассмотренным в главе 4 схемам:

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. ??), может стать его перемешивание с отвалом первого каскада при обогащении регенерата. Оценки показали, что в этом случае возможно получить обедненный уран с приемлемым содержанием ^{232}U (не выше $5 \cdot 10^{-7}\%$);
3. характерными недостатком схемы двойного каскада с НОУ-разбавителем с возвратом потока P_2 в цикл (рис. ??) является возврат значительной части четных изотопов на вход каскадной схемы;
4. характерным недостатком схемы тройного каскада (рис. 6) 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.

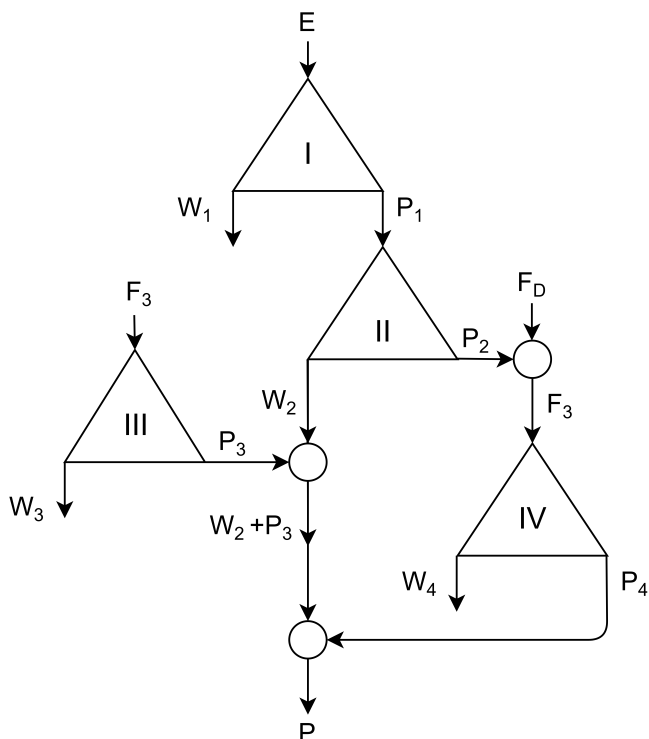


Рис. 6 — Тройной каскад для обогащения регенерированного урана. Обозначения: E — поток регенерированного урана; P_1 — поток отбора первого каскада, выступающий питанием второго каскада; P_2 — поток отбора второго каскада; F_D — поток ОГФУ-разбавителя, смешиваемого с P_2 перед подачей на вход третьего каскада; W_1 — поток отвала первого каскада; W_2 — поток тяжелой фракции (условный «отвал») второго каскада; P_3 — поток НОУ-разбавителя; P — финальный продукт (товарный низкообогащенный уран (НОУ)), полученный смешиванием потоков W_2 , P_3 и P_4 , где P_4 — отбор третьего каскада; W_4 — отвал третьего каскада.

Ключевая из предложенных схем — 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.

В **заключении** приведены основные выводы, сделанные в ходе диссертационного исследования и перечислены полученные результаты.

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

Перспективы дальнейшей разработки темы состоят в проведении технико-экономического анализа для оценки эффективности представленных схем в контексте всей цепочки ядерного топливного цикла, а также с учетом возникающих в этой цепочке изменений при использовании регенерата урана по отношению к открытому топливному циклу. Помимо этого, необходима проработка технологических проблем каждой из схем, в частности, с точки зрения возможности эксплуатации и обслуживания оборудования в условиях работы с материалами, имеющими более высокую, чем природный уран удельную активность. Например, подобные условия возникают в каскадах, концентрирующих в легкой фракции α -активные изотопы ^{232}U , ^{234}U .

I. Результаты вычислительных экспериментов, проведенных для различных модификаций ординарного каскада для обогащения и разбавления регенерированного урана, показали:

- а) Основанные на ординарном каскаде схемы принципиально не решают задачу обогащения регенерированного урана при одновременном выполнении условий на концентрации четных изотопов в товарном НОУ и обеспечения расходования заданной массы регенерата на получение этого НОУ для составов регенерата с исходным содержанием чётных изотопов, превышающим предельные значения для товарного НОУ.
- б) 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, то есть выделенный из однократно облученного уранового топлива – так называемый регенерат первого рецикла.

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

схемы, а также позволяет избежать загрязнения значительной части разделительного оборудования изотопами $^{232,234}\text{U}$.

Процесс обогащения регенерата урана различного исходного состава в предложенной схеме смоделирован с использованием теории квазиидеального каскада. Разработаны методики расчета и оптимизации предложенной каскадной схемы по различным критериям эффективности (затраты работы разделения, расход природного урана, степень извлечения ^{235}U из регенерата, степень извлечения ^{235}U из всех питающих потоков схемы). Показано, что схема позволяет полностью решить задачу обогащения регенерата в широком диапазоне внешних условий, что создает базис для практической её реализации и поиска наиболее эффективных режимов ее работы.

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.

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

- а) Предложенная модификация тройного каскада позволяет утилизировать фракцию отхода каскада II – поток P_2 , обеспечивая при этом отсутствии нештатных отходов, кроме потоков обедненного урана с невысоким содержанием чётных изотопов (в несколько раз ниже допустимых в НОУ-продукте значений). Для такой каскадной схемы разработана методика расчёта

и оптимизации её параметров по различным критериям эффективности, что позволило показать, что схема может одновременно обеспечить экономию как природного урана, так и затрат работы разделения по отношению к открытому ЯТЦ даже в случае обогащения регенерата с высоким содержанием чётных изотопов, свойственному изотопным составам при многократном рециклировании.

- б) Характерными недостатками схемы двойного каскада с НОУ-разбавителем с возвратом потока загрязненной ^{232}U фракции в цикл является возврат значительной части четных изотопов на вход каскадной схемы. Это приводит к тому, что при повторении такого процесса концентрации четных изотопов в исходном регенерате могут существенно возрасти (до нескольких раз), тем самым снижая эффективность обогащения регенерата в целом. Следовательно, такой подход применим для 1-3 таких возвратов.
- в) Схема утилизации загрязненной ^{232}U фракции через ее разбавление обедненным ураном и НОУ из природного урана обеспечивает возможность наработки дополнительной массы отвечающего всем требованиям товарного продукта. При этом в схеме отсутствуют дополнительные каскады, что исключает дополнительные затраты работы разделения. Данный способ утилизации пригоден при обогащении различных вариантов составов исходного регенерата, что делает его перспективным в условиях многократного рецикла.

IV. Результаты работы дают основу для проведения дальнейшего технико-экономического анализа каждой из схем на основе их интегральных показателей, таких как расход природного урана, затраты работы разделения, потери ^{235}U в цикле в контексте всей цепочки ядерного топливного цикла, а также с учетом возникающих в этой цепочке изменений при использовании регенерата урана по отношению к открытому топливному циклу. Помимо этого, необходима проработка технологических проблем каждой из схем, в частности, с точки зрения возможности эксплуатации и обслуживания оборудования в условиях работы с материалами, имеющими более высокую, чем природный уран удельную активность.

Список литературы

1. Андрианова, Е. А. Перспективные топливные загрузки реакторов для замкнутого топливного цикла ядерной энергетики / Е. А. Андрианова, В. Д. Давиденко, В. Ф. Цибульский // Атомная энергия. — 2015. — июнь. — т. 118, № 5. — с. 243—247.
2. PRIS - Home. — <https://pris.iaea.org/pris/home.aspx>.
3. Agency, I. A. E. Uranium 2020 / I. A. E. Agency. — 2021. — с. 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 Госкорпорации «Росатом», Утвержденная Приказом Госкорпорации «Росатом» От 29.12.2008 № 721, с Изменениями От 15.09.2014 №1/871-П.
11. Economic Potential of Fuel Recycling Options: A Lifecycle Cost Analysis of Future Nuclear System Transition in China / R. Gao [et al.] // Energy Policy. — 2017. — Feb. — Vol. 101. — P. 526—536.
12. Recycling versus Long-Term Storage of Nuclear Fuel: Economic Factors / B. Y. Moratilla Soria [et al.] // Science and Technology of Nuclear Installations. — 2013. — July. — Vol. 2013. — e417048.
13. ECONOMICS OF NUCLEAR ENERGY PRODUCTION SYSTEMS : REACTORS AND FUEL CYCLE / J. Bouchard [et al.]. —

Список публикаций автора

[1—11]

Список литературы

1. Топливный Цикл Легководного Реактора С Полным Использованием Регенерированного Урана / В. А. Невиница [и др.] // Вестник Национального Исследовательского Ядерного Университета Мифи. — 2019. — т. 8, № 6. — с. 498—506.
2. Обогащение Регенерированного Урана в Двойном Каскаде Газовых Центрифуг с Его Максимальным Возвратом в Производство Топлива / А. Ю. Смирнов [и др.]. — 2018.
3. Applying Enrichment Capacities for Multiple Recycling of LWR Uranium / A. Y. Smirnov [и др.] // Journal of Physics: Conference Series. — 2018. — сент. — т. 1099. — с. 012001.
4. Анализ технико-экономических характеристик двойной каскадной схемы для обогащения многократно рециклированного регенерированного урана / Е. В. Родионова [и др.] // Вопросы Атомной Науки И Техники. Серия: Физика Ядерных Реакторов. — 2019. — № 5. — с. 62—71.
5. A Method to Enrich Reprocessed Uranium with Various Initial Contents of Even-Numbered Isotopes / A. Smirnov [и др.] // AIP Conference Proceedings. — 2019. — 18 апр. — т. 2101, № 1. — с. 020006.
6. Физико-технические проблемы обогащения регенерированного урана при многократном рецикле в легководных реакторах и пути их решения / А. Ю. Смирнов [и др.] // Атомная Энергия. — 2020. — т. 128, № 4. — Publisher: Редакция журнала "Атомная энергия".
7. Gusev, V. E. Multy-cascade enrichment schemes for reprocessed uranium recycling / V. E. Gusev // Journal of Physics: Conference Series. — 2020. — Dec. — Vol. 1696, no. 1. — P. 012009. — Publisher: IOP Publishing.
8. Proliferation Resistance Analysis of LWR Fuel in Terms of IAEA Safeguards Implementation / V. Gusev [и др.] // AIP Conference Proceedings. — 2019. — апр. — т. 2101, № 1. — с. 020007.
9. Influence of Uncertainties of Isotopic Composition of the Reprocessed Uranium on Effectiveness of Its Enrichment in Gas Centrifuge Cascades / A. Y. Smirnov [et al.] // J. Phys.: Conf. Ser. — 2017. — Jan. — Vol. 781. — P. 012018.
10. Features of Light-Water Reactor Fuel Made of Reprocessed Uranium in Terms of IAEA Safeguards Implementation / V. E. Gusev [et al.] // J. Phys.: Conf. Ser. — 2018. — Nov. — Vol. 1133. — P. 012041.
11. Gusev, V. E. On the Problems of Reusing Reprocessed Uranium by Enrichment in Schemes Based on Ordinary Cascades / V. E. Gusev // J. Phys.: Conf. Ser. — 2022. — Vol. 2147, no. 1. — P. 012004.

Гусев Владислав Евгеньевич

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

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

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

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

Типография _____