

Очистка регенерированного урана в каскадах с обогащением ^{235}U до 5 %

Палкин В.А. (Уральский федеральный университет, г. Екатеринбург)

Для сведения к минимуму радиационной опасности и улучшения качества топлива, изготовленного из регенерированного урана, необходимо снижать концентрацию $^{232, 234, 236}\text{U}$ [1, 2]. С этой целью можно применять центрифужную технологию разделения изотопов и операции разбавления.

Для обогащения регенерированного урана до концентрации 10 – 90 % ^{235}U и последующего его разбавления до 2 – 7 % предложено использовать ординарный (трехпоточный) каскад [3]. Этот способ заметно снижает концентрацию $^{232, 234, 236}\text{U}$, но содержание ^{232}U в получаемом продукте остается высоким $(3 - 8) \cdot 10^{-7}$ %. Существенное его уменьшение достигается в двойных каскадах [4, 5] – в первом ординарном каскаде ^{235}U обогащается до высокой концентрации, во втором с отборным потоком первого каскада на питании – очищается от ^{232}U . Очищенный отвалный уран разбавляется до требуемой концентрации. Концентрация ^{232}U в разных вариантах двойного каскада составляет $2 \cdot 10^{-8}$ и 10^{-7} %. В способе, когда на питании второго ординарного каскада используется дополнительный газ-носитель [6] содержание ^{232}U снижается до $3 \cdot 10^{-8} - 4 \cdot 10^{-9}$ % без применения специального разбавителя.

Недостатком двойного каскада [4–6] является получение высокообогащенного урана с содержанием ^{235}U больше 20 % на отдельных стадиях разделения. Альтернативой является двойной каскад с ограничением концентрации ^{235}U и измененной схемой, когда очистка от ^{232}U и одновременно от ^{234}U проводится в первом ординарном каскаде. Его очищенный отвалный поток подается на питание второго ординарного каскада, в отборе которого нарабатывается требуемый товарный продукт [7]. Исследования показали, что снижение концентрации ^{232}U до $3 \cdot 10^{-7}$ % в конечном продукте возможно при оптимизации обогащения ^{235}U первого каскада до 5 – 20 % [8].

В настоящей работе рассмотрена аналогичная схема очистки и наработки низкообогащенного урана. На основе вычислительного эксперимента исследована возможность более глубокой очистки регенерированного урана от $^{232, 234}\text{U}$. Проанализированы особенности

улучшения качества продуктов по ^{236}U с включением дополнительных этапов разбавления и обогащения регенерированного урана. Основное внимание уделено схеме, когда обогащение ^{235}U в каскадах не выходит за рамки производства низкообогащенного урана, т.е. менее 5 %. Для сравнения рассмотрены варианты прямого обогащения регенерированного урана и очистки способом [3] с получением среднеобогащенного урана 20 % ^{235}U на промежуточном этапе. Вычислительный эксперимент выполняли путем оптимизации каскадов модельных центрифуг на обогащение ^{232}U и ^{235}U . Оптимизацию производили на основе алгоритмов [9,10] по критерию минимума суммарного числа центрифуг при заданных внешних потоках и концентрации целевого изотопа в каскаде.

Очистка регенерированного урана путем обогащения до 20 % ^{235}U и разбавления.

Расчеты проводили в характерном диапазоне изменения концентрации изотопов. В табл. 1 приведен исходный состав и количество изотопной смеси регенерированного урана. Там же представлены параметры каскада базового варианта с обогащением регенерированного урана до 4,4 % ^{235}U , выбранного для сравнения. В отборе низкообогащенного урана, если не проводить очистку, концентрация ^{232}U высокая – $1,1 \cdot 10^{-6}$ %. Содержание ^{234}U и ^{236}U характеризуется также повышенным уровнем – 0,099 и 1,28 % соответственно.

В табл. 2 приведены данные для обогащения регенерированного урана до 20 % ^{235}U и его разбавления до 4,4 %. Разбавитель концентрацией 1,5 % наработан из обедненного урана с содержанием ^{235}U 0,3 %, ^{234}U 0,0014 % в каскаде с концентрацией отвала 0,1 % ^{235}U . В результате в конечном продукте низкообогащенного урана концентрация $^{232}, ^{234}, ^{236}\text{U}$ получается ниже, чем в базовом варианте. Тем не менее содержание ^{232}U остается высоким – $8,1 \cdot 10^{-7}$ %.

Концентрацию ^{232}U в низкообогащенном уране можно снизить путем использования разбавителя более высокого обогащения. Так, если использовать разбавитель концентрацией 2,7 %, приготовленный из природного урана, то содержание ^{232}U в низкообогащенном уране снизится до $5 \cdot 10^{-7}$ %. При этом количество получаемого продукта увеличится до 142 т, что в 2,1 раза больше, чем в базовом варианте. Фактически это означает, что произойдет загрязнение 75 т низкообогащенного урана, которые могли быть получены прямым обогащением природного урана. Такая особенность использования урана характерна для всех процессов разбавления.

Наработка среднеобогащенного урана 20 % ^{235}U и производство разбавителя связаны с увеличением затрат работы разделения. Их оценка затруднена, так как общепринятый потенциал разделения [11] не применим для регенерированного урана. Поэтому затраты работы разделения определяли в настоящей работе условно – по суммарному числу центрифуг в оптимизированном каскаде. Для корректного сравнения различных вариантов считали, что все каскады имеют одинаковый период работы. Для удобства суммарное число центрифуг каскадов делили на аналогичное число базового варианта. Эта величина приведена в таблицах как работа разделения. В рассмотренном примере на этапе производства среднеобогащенного урана требуется газовых центрифуг в 1,4 раза больше, чем в базовом варианте. С учетом наработки разбавителя общие потребности разделительных мощностей возрастают в 2,5 раза по отношению к базовому варианту.

Очистка регенерированного урана от ^{232}U при обогащении ^{235}U в каскаде менее 5 %. Смещение точки подачи питания оптимального каскада относительно оптимума, соответствующего минимально возможному суммарному числу центрифуг, существенно изменяет концентрацию изотопов в отборе и отвале. Если оптимизация проводится по ^{235}U с заданным числом ступеней, смещение в сторону отбора увеличивает в потоке отбора концентрацию изотопов с меньшей атомной массой – ^{232}U и ^{234}U [9]. В то время как концентрация ^{236}U с большей массой в отборе снижается, в отвале увеличивается. Аналогичный эффект проявляется при оптимизации каскада на заданную внешнюю концентрацию ^{232}U . В этом случае при смещении точки питания в сторону отбора в отвале возрастает концентрация $^{234}, ^{235}, ^{236}\text{U}$.

Данный факт позволяет при заданной концентрации ^{232}U увеличивать содержание ^{235}U в отвальном потоке очистительного каскада, параметры которого оптимизируются по числу центрифуг. В результате, задав низкую концентрацию ^{232}U в отвале и повысив содержание ^{235}U , можно получить значительный эффект очистки регенерированного урана. Увеличение концентрации ^{235}U в отвале сопровождается одновременным уменьшением концентрации на отборе. Поэтому таким способом можно уменьшить обогащение ^{235}U в каскаде до 20 % и, что особенно важно, до менее 5 %.

В табл. 3 представлены расчеты очистительного каскада, оптимизированного на концентрацию ^{232}U в отвале $3,9 \cdot 10^{-10} \%$ и отборе $1,5 \cdot 10^{-4} \%$, при разных положениях точки подачи питания, одинаковых заданных коэффициентах разделения ступеней, исключаящих работу центрифуг с низкими потоками питания. Выбранная концентрация ^{232}U позволяет почти полностью извлекать регенерированный уран в отвал каскада. Это, как и число ступеней, определено предварительными расчетами R -каскадов [12] с ключевыми компонентами ^{232}U и ^{235}U . Из этих данных следует, что при большом смещении точки подачи питания в сторону отбора можно повысить концентрацию ^{235}U в отвале до очень близкой к концентрации питания. Максимальная концентрация ^{235}U в отвале рассмотренного каскада (при отношении числа ступеней в обеднительной и обогатительной частях каскада 50:1) составляет 0,846 %, обогащение в отборе и отдельных ступенях каскада не превышает 4,7 %.

В табл. 4 показаны расчеты обогащения очищенной смеси изотопов с содержанием ^{235}U 0,846 % и ^{232}U $3,9 \cdot 10^{-10} \%$. Работа разделения находится на уровне базового варианта, общие затраты с учетом очистительного каскада в 5,6 раза больше. Низкообогащенный уран, получаемый в отборе каскада, характеризуется малой концентрацией ^{232}U – $2,8 \cdot 10^{-9} \%$, что существенно ниже требований ASTM, установленных для коммерческого низкообогащенного урана природного происхождения ($10^{-8} \%$). Таким образом, при оптимизации каскада на заданную концентрацию ^{232}U со смещением точки подачи питания можно выбрать режим, позволяющий полностью очистить регенерированный уран от этого изотопа.

Качество низкообогащенного урана по ^{234}U и ^{236}U в рассмотренном варианте очистки остается невысоким. Для его улучшения необходимо применять дополнительную очистку. Кроме того, необходимо снизить ядерную активность продукта, полученного в отборе очистительного каскада. Для этого его можно разбавить обедненным отвалом разделительного производства. Эффективным разбавителем является отвальный уран с концентрацией ^{235}U 0,1 %. При разбавлении в 100 раз отбора очистительного каскада образуется ядерно-безопасная смесь с содержанием ^{235}U 0,15 %, пригодная для длительного хранения.

Очистка регенерированного урана от ^{232}U и ^{234}U при обогащении ^{235}U в каскаде менее 5 %. При оптимизации каскада на заданную концентрацию ^{232}U можно уменьшить извлечение

регенерированного урана в отвал. При сохранении требуемого содержания ^{232}U в отвале это достигается снижением его концентрации в отборе. В этом случае при смещении точки подачи питания каскада к отбору содержание ^{234}U в отвале увеличивается в меньшей степени. Также меньше возрастает концентрация ^{235}U , но относительная концентрация ^{234}U (по отношению к ^{235}U) уменьшается. В табл. 5 приведены расчеты очистительного каскада, оптимизированного на концентрацию ^{232}U в отвале $4,4 \cdot 10^{-10} \%$ и отборе $7,4 \cdot 10^{-6} \%$ при разных положениях точки подачи питания. Наибольшая концентрация ^{235}U в отвале составляет 0,78 %. При этом обогащение в отборе и отдельных ступенях каскада не превышает 4,3 %. Концентрация ^{234}U в отвале составляет 0,01 %.

Обогащение такого отвала до 4,4 % ^{235}U приводит к низкой концентрации ^{232}U и ^{234}U – $3,6 \cdot 10^{-9}$ и 0,069 % (табл. 6). Однако содержание ^{236}U соизмерно с базовым вариантом – 1,33 %. Суммарные затраты работы разделения на очистку регенерированного урана и его обогащение до 4,4 % ^{235}U в 4,3 раза превышают базовый вариант. Это меньше, чем при наработке низкообогащенного урана из очищенного отвала с концентрацией ^{235}U 0,846 %. Вместе с тем количество производимого низкообогащенного урана НОУ в связи с пониженным извлечением регенерированного урана в очистительном каскаде уменьшается на 14 %.

Следует отметить, что регенерированный уран от ^{234}U можно очищать в каскаде, оптимизированном на заданную концентрацию этого изотопа. Однако в данном случае при смещении точки питания к отбору не происходит существенного увеличения концентрации ^{235}U в отвале каскада. Кроме того, ухудшается очистка отвала от ^{232}U и концентрация ^{235}U в отборе каскада выходит за 5 %.

Улучшение качества низкообогащенного урана по ^{236}U путем разбавления и повторного обогащения. Повышенное содержание ^{236}U в низкообогащенном уране может быть компенсировано его обогащением до более высокой концентрации ^{235}U . В качестве повышающего коэффициента принимается 0,2 – 0,6 к содержанию ^{236}U . Это означает, что концентрацию ^{235}U в низкообогащенном уране необходимо увеличить на 0,3 – 0,6 %. Такое увеличение незначительно повышает работу разделения, однако концентрация $^{232}, ^{234}, ^{236}\text{U}$ возрастает.

Данный подход затрудняет рециклирование регенерированного урана, так как концентрация ^{236}U будет существенно увеличиваться. Поэтому наиболее подходящим способом ее снижения является разбавление низкообогащенного урана, полученного после очистки регенерированного урана от ^{232}U и ^{234}U , и повторное обогащение до требуемой концентрации ^{235}U .

В табл. 4, 6 приведены расчеты разбавления и наработки низкообогащенного урана для рассмотренных примеров очистки регенерированного урана. В качестве разбавителя взят обедненный уран с концентрацией ^{235}U 0,3 %, ^{234}U 0,0014 %. Разбавление рассчитано из условия получения концентрации ^{235}U 0,85 %. После обогащения этого продукта до 4,4 % в дополнительном каскаде концентрация ^{236}U снижается в 2 раза, до значений 0,64 – 0,66 %. Содержание ^{232}U , ^{234}U также уменьшается. В варианте с высокой концентрацией ^{232}U в отборе очистительного каскада (очистка от ^{232}U) оно составляет $2,7 \cdot 10^{-9}$ и 0,087 % соответственно, для пониженной концентрации ^{232}U в отборе (очистка от ^{232}U , ^{234}U) – $3,4 \cdot 10^{-9}$ и 0,065 %. Дополнительное обогащение по затратам работы разделения соизмеримо с базовым вариантом.

Заключение. Для эффективной очистки регенерированного урана от ^{232}U нет необходимости в использовании каскадов, производящих средне- или высокообогащенный уран. При концентрации ^{235}U менее 5 % в отборе очистительного каскада, оптимизируемого на заданную концентрацию ^{232}U , в его отвале достигается почти полная очистка от этого изотопа. Это достигается путем смещения точки подачи питания каскада в сторону отбора. В случае, когда заданная концентрация ^{232}U в отборе очистительного каскада невелика, одновременно с очисткой от ^{232}U можно добиться заметного снижения концентрации ^{234}U . Для улучшения качества низкообогащенного урана, нарабатываемого из очищенного регенерированного урана, можно также применять операции разбавления и обогащения, существенно уменьшающие содержание ^{236}U .

Следует отметить, что очистку регенерированного урана при обогащении менее 5 % ^{235}U проводят в каскаде с двумя питаниями [7, 13]. Однако снижение концентрации $^{232}, ^{234}, ^{236}\text{U}$ в нем достигается использованием на одном из питаний природного сырья в качестве очистителя. В отличие от этого эффекты очистки в описанном методе являются следствием оптимизации

каскадов на требуемую концентрацию ^{232}U , ^{235}U и применения разбавителей из обедненного урана.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Никипелов Б.В., Никипелов В.Б.** Судьбы уранового регенерата. – Бюлл. по атомной энергии, 2002, № 9, с. 34–43.
2. **Матвеев Л.В., Центер Э.М.** Уран-232 и его влияние на радиационную обстановку в ядерном топливном цикле. М.: Энергоатомиздат, 1985.
3. **Власов А.А., Водолазских В.В., Мазин В.И. и др.** Способ изотопного восстановления регенерированного урана. Пат. РФ № 2236053 от 10.09.2004 – Бюл. «Изобретения. Полезные модели», 2004, № 25, с. 562.
4. **Власов А.А., Водолазских В.В., Гриднев В.Г. и др.** Способ изотопного восстановления регенерированного урана. Пат. РФ № 2242812 от 20.07.2004 – Бюл. «Изобретения. Полезные модели», 2004, № 35, с. 804–805.
5. **Водолазских В.В., Козлов В.А., Мазин В.И. и др.** Способ изотопного восстановления регенерированного урана Пат. РФ № 2282904 от 27.08.2006 – Бюл. «Изобретения. Полезные модели», 2006, № 24, с. 549–550.
6. **Прусаков В.Н., Сазыкин А.А., Соснин Л.Ю. и др.** Коррекция изотопного состава регенерированного урана по ^{232}U центробежным методом с введением газа-носителя. – Атомная энергия, 2008, т. 105, вып. 3, с. 150–156.
7. **Сулаберидзе Г.А., Борисевич В.А., Цюаньсинь Се.** О некоторых разделительных проблемах при вовлечении регенерированного урана в топливный цикл. – В сб.: IX Всерос. науч. конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул». Звенигород, 2004, с. 78–85.
8. **Водолазских В.В., Глухов Н.П., Палкин В.А. и др.** Способ изотопного восстановления регенерированного урана. Пат. РФ № 2399971 от 20.09.2010 – Бюл. «Изобретения. Полезные модели», 2010, № 26, с. 659.

9. **Палкин В.А., Комаров Р.С.** Оптимизация параметров каскада центрифуг при разделении регенерированного урана. – В сб.: X Всерос. науч. конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул». Звенигород, 2005, с. 50–55.
10. **Палкин В.А., Сбитнев Н.А., Фролов Е.С.** Расчет оптимальных параметров каскада для разделения многокомпонентных изотопных смесей. – Атомная энергия, 2002, т. 92, вып. 2, с. 130–133.
11. **Cohen K.** The theory of isotope separation as applied to the large scale production of ^{235}U . NY: McGraw-Hill, 1951, 165 p.
12. **Сазыкин А.А.** Термодинамический подход к разделению изотопов. – В кн.: Изотопы: свойства, получение, применение. Под ред. В.Ю. Баранова. М.: ИздАТ, 2000, с. 72–108.
13. **Палкин В.А.** Разделение изотопов урана в каскаде с промежуточным отбором. – Перспективные материалы, 2010, спец. вып. 8, с. 11–14.

Т а б л и ц а 1. Получение низкообогащенного урана путем обогащения регенерированного урана в каскаде

Параметр	Питание	Отбор	Отвал
Количество UF ₆ , т	500	67,1	432,9
Концентрация, %:			
²³⁵ U	0,85	4,4	0,3
²³⁴ U	0,016	0,099	0,003
²³² U	$1,5 \cdot 10^{-7}$	$1,1 \cdot 10^{-6}$	$7,7 \cdot 10^{-9}$
²³⁶ U	0,35	1,29	0,2

Т а б л и ц а 2. Получение низкообогащенного урана путем обогащения и разбавления регенерированного урана

Параметр	Обогащение в каскаде			Разбавитель	Низко-обогащенный уран
	Питание	Отбор	Отвал		
Количество UF ₆ , т	500	14	486	75,1	89,1
Концентрация, %:					
²³⁵ U	0,85	20	0,3	1,5	4,4
²³⁴ U	0,016	0,47	0,003	0,009	0,082
²³² U	1,5·10 ⁻⁷	5,1·10 ⁻⁶	6,9·10 ⁻⁹		8,1·10 ⁻⁷
²³⁶ U	0,35	4,8	0,22		0,75
Работа разделения, усл. ед.		1,4		1,1	

Т а б л и ц а 3. Параметры очистительного каскада при высокой концентрации ^{232}U в отборе

Отношение числа ступеней обеднительной и обогатительной частей каскада	Отбор каскада, ^{232}U $1,5 \cdot 10^{-4}$ %, 0,5 т			Отвал каскада, ^{232}U $3,9 \cdot 10^{-10}$ %, 499,5 т			Работа разделения, усл. ед.
	^{235}U , %	^{234}U , %	^{236}U , %	^{235}U , %	^{234}U , %	^{236}U , %	
2:1	58,58	6,06	4,02	0,793	0,010	0,346	2,9
3:1	47,6	5,01	3,74	0,804	0,011	0,347	3,1
5:1	34,08	3,9	2,98	0,817	0,012	0,347	3,3
7:1	18,54	2,39	2,11	0,833	0,014	0,348	3,5
16:1	11,56	1,92	1,41	0,84	0,014	0,349	4
50:1	4,74	0,79	0,8	0,846	0,015	0,35	4,6

Т а б л и ц а 4. Получение низкообогащенного урана из регенерированного урана, очищенного от ^{232}U

Параметр	Обогащение в каскаде после очистки от ^{232}U			Обогащение в каскаде после разбавления 0,3 % ^{235}U		
	Питание	Отбор	Отвал	Питание	Отбор	Отвал
Количество UF_6 , т	499,5	66,5	433	496	66,5	429,5
Концентрация, %:						
^{235}U	0,846	4,4	0,3	0,85	4,4	0,3
^{234}U	0,015	0,095	0,003	0,014	0,087	0,003
^{232}U	$3,9 \cdot 10^{-10}$	$2,8 \cdot 10^{-9}$	$2 \cdot 10^{-11}$	$3,7 \cdot 10^{-10}$	$2,7 \cdot 10^{-9}$	$1,9 \cdot 10^{-11}$
^{236}U	0,35	1,29	0,21	0,17	0,64	0,1
Работа разделения, усл. ед.		1,0			1,0	

Т а б л и ц а 5. Параметры очистительного каскада при небольшой концентрации ^{232}U в отборе

Отношение числа ступеней обеднительной и обогатительной частей каскада	Отбор каскада, ^{232}U $7,4 \cdot 10^{-6}$ %, 10,1 т			Отвал каскада, ^{232}U $4,4 \cdot 10^{-10}$ %, 489,9 т			Работа разделения, усл. ед.
	^{235}U , %	^{234}U , %	^{236}U , %	^{235}U , %	^{234}U , %	^{236}U , %	
5:1	11,61	0,49	1,94	0,629	0,006	0,317	2,6
6:1	10,44	0,46	1,76	0,653	0,007	0,321	2,7
12:1	8,25	0,46	1,31	0,698	0,007	0,33	2,9
19:1	7,32	0,44	1,16	0,717	0,007	0,333	3
40:1	4,28	0,31	0,79	0,78	0,01	0,341	3,4

Т а б л и ц а 6. Получение низкообогащенного урана из регенерированного урана, очищенного от ^{232}U и ^{235}U

Параметр	Обогащение в каскаде после очистки от ^{232}U			Обогащение в каскаде после разбавления 0,3 % ^{235}U		
	Питание	Отбор	Отвал	Питание	Отбор	Отвал
Количество UF_6 , т	489,9	57,3	432,6	427,2	57,3	369,9
Концентрация, %:						
^{235}U	0,78	4,4	0,3	0,85	4,4	0,3
^{234}U	0,01	0,069	0,002	0,01	0,065	0,002
^{232}U	$4,4 \cdot 10^{-10}$	$3,6 \cdot 10^{-9}$	$2,6 \cdot 10^{-11}$	$4,8 \cdot 10^{-10}$	$3,4 \cdot 10^{-9}$	$2,4 \cdot 10^{-11}$
^{236}U	0,34	1,33	0,21	0,18	0,66	0,1
Работа разделения, усл. ед.		0,9			0,8	