

回收铀分离级联计算

谢全新 李大勇 吴建军
(核工业理化工程研究院 天津 300180)

摘要 乏燃料中回收铀的再利用能节省天然铀资源。轻水堆回收铀的分离必须综合考虑铀 235 的浓缩、铀 232 的稀释及因铀 236 引起的燃耗深度损耗的补偿。基于多组分同位素分离级联理论,提出了分离回收铀的几种不同的级联方案。对各种级联方案进行了理论计算。计算结果表明,利用运载气体的双级联方案为最佳的级联方案。

关键词 乏燃料, 回收铀, 多组分级联, 同位素, 分离
中图分类号 TL92

不断增长的能源需求及化石燃料对环境的污染,使核能在各国的能源战略中占据越来越重要的地位。乏燃料后处理是实现核燃料循环、保证核电持续健康发展的重要环节。后处理可从乏燃料中回收有用的铀,大大提高铀资源的利用率。如反应堆使用丰度为 3%~5% 的浓缩铀,从乏燃料中回收的铀须浓缩到所需丰度才能再利用。但回收铀的组分和丰度不同于天然铀,浓缩回收中会出现一些浓缩天然铀时不可能遇到的问题。本文从同位素分离级联设计的角度探讨回收铀的浓缩问题。

1 回收铀分离的特殊性

相对于分离天然铀,回收铀的分离要复杂得多,这主要有如下原因:

第一,铀核燃料在燃烧的过程中会产生 ^{232}U , ^{232}U 及其衰变产物有 γ 辐射^[1-3],回收铀利用前必须除去 ^{232}U ,将其稀释到允许的丰度值,处理后的回收铀的 ^{232}U 与 ^{235}U 丰度比一般须满足^[4]

$$C_{232}/C_{235} < 1.1 \times 10^{-7} \quad (1)$$

第二,铀核燃料的燃烧过程中, ^{235}U 可能捕获中子成为 ^{236}U , ^{236}U 吸收中子,进一步转变为 ^{237}Np 或 ^{238}Pu 。因此,回收铀中的 ^{236}U 会降低核燃料元件的燃耗深度。为补偿这种负面影响,须把回收铀中 ^{235}U 浓缩到更高的丰度。如从天然铀中把 ^{235}U 浓缩到 3.5% (用 $C_{235,na}$ 表示) 作为反应堆的初始填料,那么浓缩回收铀时,必须把 ^{235}U 浓缩到高于 3.5% 的某一丰度 ($C_{235,re}$),以补偿 ^{236}U 对中子的吸收。研究表明^[5],

$$C_{235,re} = C_{235,na} + K C_{236,re} \quad (2)$$

其中, $C_{236,re}$ 为浓缩后的回收铀中 ^{236}U 丰度; $K=0.2\sim0.6$,是与反应堆堆型有关的补偿因子。

第三,回收铀中,丰度占 98.7% 以上的铀核是 ^{238}U ,其余为 ^{232}U 、 ^{235}U 、 ^{236}U 和少量的 ^{234}U 。可见,回收铀的浓缩问题,属于多组分同位素分离问题。根据级联分离理论,较轻的组分在级联的精料端得到浓缩, ^{232}U 属于边缘组分,即最轻的组分,当 ^{235}U 在级联精料端得到浓缩时, ^{232}U 也得到浓缩,且其浓缩程度高于 ^{235}U 。若用一个普通级联浓缩回收铀,则级联精料端的 C_{232}/C_{235} 将变大,不可能实现 ^{232}U 的稀释。同时, ^{236}U 与 ^{235}U 的摩尔质量接近,它们与 ^{238}U 的相对分离系数相差无几,所以 ^{236}U 也将在精料端得到浓缩,不利于回收铀的再利用。

针对上述问题,须对分离级联进行特殊设计。本文从单级联和双级联两种级联设计方案来分析研究回收铀的浓缩问题。

2 单级联方案

此单级联方案,是将回收铀浓缩过程在一个级联中一次完成。回收铀属多组分同位素混合物,须用多组分同位素分离的级联理论来计算和分析。

文献[6-8]用多组分同位素分离的准理想级联理论,探讨了俄罗斯轻水堆 VVER-440 乏燃料后处理后的回收铀浓缩问题,认为带附加供料流的准理想级联方案为最佳,即天然铀作基本供料,回收铀作附加供料的方案。用准理想级联模型^[9-12]来研究多组分同位素级联特性,有一个非常便利的条件,

第一作者: 谢全新,男,1974 年生,2007 年于莫斯科工程物理学院获博士学位,现从事同位素分离理论与实验研究

收稿日期: 2008-08-12, 修回日期: 2008-09-16

就是用解析方法研究级联特性。像双组分同位素分离情况下理想级联一样，准理想级联是不可能实现的级联，只能用阶梯形级联去无限逼近，以提高级联的效率。但准理想级联模型进行理论分析所得到的规律和结论，可指导实际级联设计。因此，在各种单级联方案中，带附加供料流的级联方案最佳，也适合于其它级联形式。

实际上，多组分同位素的分离，通常在各级流量相等的矩形级联中完成。用带附加供料流的矩形级联浓缩回收铀更有实际意义。然而，带附加供料流的矩形级联的计算较准理想级联复杂得多。首先，描述多组分矩形级联的方程组是复杂的非线性方程组，只能由数值方法求解。即使是最简单矩形级联，即只有一股供料流、一股精料流和一股贫料流的矩形级联，其级联方程数值求解也很复杂。文献[13-15]中提供了该类矩形级联的计算方法。对于带附加供料流的复杂的矩形级联，其数值计算比简单矩形级联更为复杂，须利用有效的数值计算方法。其次，

回收铀中 ^{232}U 属于微量组分，其同位素混合物中的质量丰度在 10^{-9} 左右，这对计算方法的精度提出很高要求，计算精度最低也得 10^{-11} ，一般的计算方法很难满足这个条件。

为用数值计算有效求解带附加供料流的多组分矩形级联方程，以研究此类级联浓缩回收铀的特性，本文采用非定常态方法^[16]。非定常态法模拟从启动到平衡时段内级联内部同位素组分丰度变化的全过程，当时间步长足够小，可得到稳定的定常态解。用该程序计算轻水堆 VVER-440 乏燃料后处理后的回收铀浓缩的计算精度可取 10^{-14} 。选 UF_6 为分离工质。天然铀作为基本供料，其供料流量为 F ，组分丰度为 C_{IF_0} 回收铀作为附加供料，其供料流量为 E ，组分丰度为 C_{IE} ^[8]。含天然铀和回收铀的 UF_6 化合物各组分的摩尔质量及其丰度列于表 1，其中含回收铀的 UF_6 的组分丰度为轻水反应堆 VVER-440 的堆后料经 10 年储存期后的典型丰度。表 1 及下文所涉组分丰度都为质量丰度。

表 1 天然铀和回收铀中各组分的摩尔质量及其丰度
Table 1 Component molar masses and abundances in native and recycled uranium

组分 Components	$^{232}\text{UF}_6$	$^{234}\text{UF}_6$	$^{235}\text{UF}_6$	$^{236}\text{UF}_6$	$^{238}\text{UF}_6$
M_i	346	348	349	350	352
C_{IF} (Native)	0	0	7.1400×10^{-3}	0	9.9286×10^{-1}
C_{IE} (Recycled)	1.0000×10^{-9}	2.0000×10^{-4}	8.3000×10^{-3}	4.1000×10^{-3}	9.8740×10^{-1}

级联总长度 $N=40$ 级，天然铀从第 $N_f=10$ 级供料，回收铀从第 $N_e=34$ 级供料(图 1)。 N_e 一般由如下原则确定，就是使回收铀中 ^{235}U 与 ^{238}U 的相对丰度近似等于级联内部附加供料点处这两种组分的相对丰度，这样可适当减小目标同位素 ^{235}U 的丰度混合损耗，从而节省分离功。

折合供料流量 $F/(\varepsilon_0 L)=1$ ，其中 F 为基本供料流量， L 为级间流量， ε_0 为单级浓缩系数。折合精料流量 $P/(\varepsilon_0 L)=0.2$ ， P 为精料流量。设补偿因子 $K=0.2$ ， $K_{235, \text{na}}=3.5\%$ 。为使产品满足式(1)-(2)的丰度约束条件，须调节附加供料流量 E 。当 $E/(\varepsilon_0 L) = 7.1\times10^{-2}$ 时，各组分的精料丰度 C_{IP} 和贫料丰度 C_{IW} 如表 2 所示。

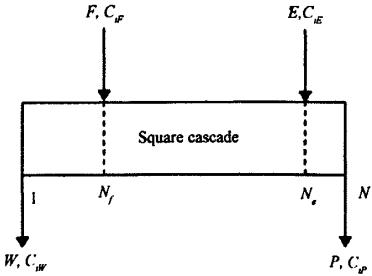


图 1 分离回收铀的单级联方案
Fig.1 Single cascade scheme for separation of the recycled uranium.

表 2 单级联方案中精贫料流中的组分丰度
Table 2 Component abundances in enriched and depleted flows of the single cascade scheme

组分 Components	$^{232}\text{UF}_6$	$^{234}\text{UF}_6$	$^{235}\text{UF}_6$	$^{236}\text{UF}_6$	$^{238}\text{UF}_6$
C_{IP} (Enriched)	3.5500×10^{-10}	7.1000×10^{-5}	3.5292×10^{-2}	1.4519×10^{-3}	9.6318×10^{-1}
C_{IW} (Depleted)	2.9269×10^{-19}	5.2743×10^{-11}	7.3575×10^{-4}	8.2444×10^{-7}	9.9926×10^{-1}

在级联精料流中， ^{235}U 被浓缩到 3.5292%，同时 ^{232}U 的丰度被稀释到 $3.5500\times 10^{-8}\%$ ，这两种组分的丰度比 $C_{232}/C_{235}=1.0059\times 10^{-8}$ ，满足丰度约束条件(1)。根据(2)， $C_{235,\text{re}}=3.5290\%$ ，约等于级联精料中 ^{235}U 的丰度 3.5292%。因此得到的产品同时满足丰度约束条件(2)。

由此可见，带附加供料流的矩形级联能满足回收铀浓缩的丰度约束条件，且建立这种矩形级联从工艺上来讲也是完全可能的。但是，这种级联方式对回收铀的利用率很低，如果从附加供料流中供入 7.1 kg 回收铀，那么必须从基本供料流中供入 100 kg 的天然铀。

3 双级联方案

用带附加供料流的单个矩形级联浓缩回收铀，必须同时利用天然铀，且天然铀的需求量很大。双级联方案能对回收铀直接进行浓缩，不需要利用天然铀，且能使浓缩产品满足丰度约束条件(1)和(2)。所谓双级联方案，就是先用第一个级联对回收铀进行浓缩，使 ^{235}U 的丰度满足丰度约束条件(2)。然后把第一个级联的精料作为第二个级联的供料再浓缩。第二个级联的作用是对 ^{232}U 的丰度稀释，使产品中 ^{232}U 与 ^{235}U 的丰度满足条件(1)。在这种方案中，第二个级联在贫料端取料，即 W_2 为产品流(见图 2)。

仍以 VVER-440 后处理后的回收铀为例来进行计算。第一个级联长度为 $N=40$ 级，从第 $N_1=10$ 级

供料， $F/(\varepsilon_0 L_1)=1$ ， $P_1/(\varepsilon_0 L_1)=0.15$ ，其中 L_1 为第一个级联的级间流量。第二个级联也是 40 级，但是供料级为第 $N_2=30$ 级， $P_1/(\varepsilon_0 L_2)=1$ ， $P_2/(\varepsilon_0 L_2)=0.015$ 。 L_2 为第二个级联的级间流量。

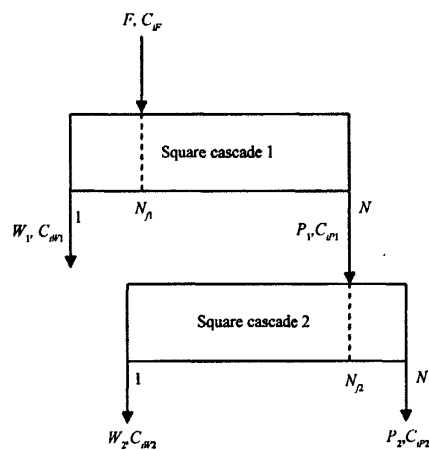


图 2 分离回收铀的双级联方案
Fig.2 Double cascade scheme for separation of the recycled uranium.

计算结果列于表 3，从表 3 的第二个级联的贫料端组分丰度 C_{iW2} 可看出， ^{235}U 被浓缩到 3.9269%，而 ^{232}U 被稀释到 $8.7439\times 10^{-11}\%$ ，且 $C_{232}/C_{235}=2.2267\times 10^{-11}$ ，满足式(1)丰度约束条件，同时不难验证，式(2)也满足。

表 3 双级联方案(图 2)中精、贫料流中的组分丰度
Table 3 Component abundances in enriched and depleted flows of the double cascade scheme in Fig.2.

组分 Components	$^{232}\text{UF}_6$	$^{234}\text{UF}_6$	$^{235}\text{UF}_6$	$^{236}\text{UF}_6$	$^{238}\text{UF}_6$
C_{iP1}	6.6382×10^{-9}	1.2912×10^{-3}	5.0723×10^{-2}	2.1648×10^{-2}	9.2634×10^{-1}
C_{iW1}	5.0218×10^{-12}	7.4318×10^{-6}	8.1354×10^{-4}	1.0033×10^{-3}	9.9818×10^{-1}
C_{iP2}	4.4249×10^{-7}	7.5404×10^{-2}	8.0284×10^{-1}	4.0916×10^{-2}	8.0855×10^{-2}
C_{iW2}	8.7439×10^{-13}	1.6257×10^{-4}	3.9269×10^{-2}	2.1355×10^{-2}	9.3922×10^{-1}

通常在同位素分离工艺中，必须要考虑目标组分(或目标同位素)的提取率的大小，目标组分的提取率定义为：

$$Rec = PC_{kP}/FC_{kF}, \tag{3}$$

其中， C_{kP} 、 C_{kF} 分别表示目标组分在产品流和供料流中的丰度。对于回收铀的浓缩，目标组分为 $^{235}\text{UF}_6$ 。在本方案中，由公式(3)可求得第一个级联 $^{235}\text{UF}_6$ 的提取率为 $Rec1=0.917$ ，第二个级联的提取

率为 $Rec2=0.763$ ，两个级联总的提取率为 $Rec=Rec1\times Rec2=0.699$ 。

在双级联方案中，第一个级联的提取率较高，达 90% 以上，第二个级联的提取率较低，不到 80%，这样导致 $^{235}\text{UF}_6$ 在双级联方案中总的提取率只有近 70%。如何提高第二个级联的提取率，从而提高整个双级联系统对目标组分的提取率，引起不少级联设计者的兴趣和关注^[17]。为此，在第一个级联的产品流中按一定比例加入一种摩尔质量等于 $^{232}\text{UF}_6$ 摩

尔质量的运载气体，从而改变产品流的组分丰度，再将其作为第二个级联的供料。由于运载气体的摩尔质量与 $^{232}\text{UF}_6$ 摩尔质量相等，就分离效应而言，这两种气体组分相当于一种组分。所以运载气体的加入使混合物中最轻组分的丰度增加，其它组分的丰度相应下降。这样，经过第二个级联浓缩之后，各组分在级联中的丰度分布将与没有运载气体情况下不同。运载气体的选择，必须考虑其对分离器及级联管道的腐蚀问题，尽量选择与分离器及级联管道材料不发生化学反应的气体。符合上述条件的最理想的运载气体是分子式为 $^{12}\text{C}_8\text{H}_3\text{F}_{13}$ 的氟里昂，如果不考虑氢的同位素效应，那么其摩尔质量刚好等于 $^{232}\text{UF}_6$ 的摩尔质量。

下文以 $^{12}\text{C}_8\text{H}_3\text{F}_{13}$ 为运载气体对双级联方案重新计算，第一个级联总长度为 $N=40$ 级，从第 $N_1=40$ 级供料， $F_1/(\epsilon_0 L_1)=1$ ， $P_1/(\epsilon_0 L_1)=0.2$ ，第二个级联总长度也是 40 级，供料级为第 $N_2=15$ 级， $F_2/(\epsilon_0 L_2)=1$ ， $P_2/(\epsilon_0 L_2)=0.02$ ，运载气体流量与第二个级联的供料流之比 $F_{\text{freon}}/F_2=0.02$ (图 3)。

计算结果列于表 4。为说明级联对 $^{232}\text{UF}_6$ 的稀释作用，在表 4 中 $^{232}\text{UF}_6$ 和 $^{12}\text{C}_8\text{H}_3\text{F}_{13}$ 在级联各股流中的丰度被分开列出。第二个级联的贫料流 W_2 作为最终的产品取料流。不难验证，产品流中目标组分 $^{235}\text{UF}_6$ 的丰度满足丰度约束条件(1)和(2)。在本方

案中，目标组分 $^{235}\text{UF}_6$ 在第一个级联的提取率 $\text{Rec}1=0.9268$ ，在第二个级联的提取率 $\text{Rec}2=0.9971$ ，两个级联总的提取率为 $\text{Rec}=0.9241$ 。运载气体的加入使目标组分 $^{235}\text{UF}_6$ 在双级联方案中总的提取率提高了 20% 多。可见，这种方案要明显优于没有运载气体的双级联方案。

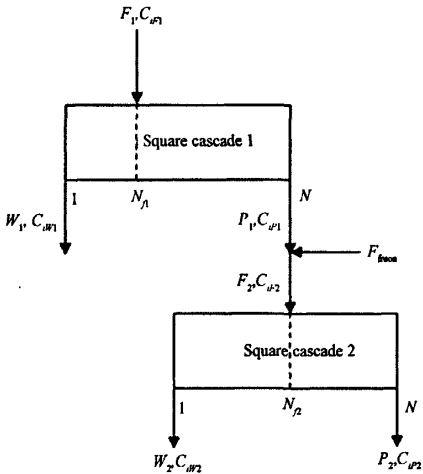


图 3 使用运载气体的分离回收铀的双级联方案
Fig.3 Double cascade scheme with a carrier gas for separation of the recycled uranium

表 4 有运载气体的双级联方案(图 3)中供、精、贫料流中的组分丰度
Table 4 Component abundances in feed, enriched and depleted flows of the double cascade scheme with a carrier gas in Fig.3.

组分 Components	$^{12}\text{C}_8\text{H}_3\text{F}_{13}$	$^{232}\text{UF}_6$	$^{234}\text{UF}_6$	$^{235}\text{UF}_6$	$^{236}\text{UF}_6$	$^{238}\text{UF}_6$
C_{1F1}	0	1.0000×10^{-9}	2.0000×10^{-4}	8.3000×10^{-3}	4.1000×10^{-3}	9.8740×10^{-1}
C_{1P1}	0	4.9816×10^{-9}	9.7253×10^{-4}	3.8462×10^{-2}	1.6700×10^{-2}	9.4386×10^{-1}
C_{1W1}	0	4.5969×10^{-12}	6.8683×10^{-6}	7.5942×10^{-4}	9.4990×10^{-4}	9.9828×10^{-1}
C_{1F2}	2.0000×10^{-2}	4.8820×10^{-9}	9.5308×10^{-4}	3.7693×10^{-2}	1.6366×10^{-2}	9.2498×10^{-1}
C_{1P2}	9.9021×10^{-1}	2.4171×10^{-7}	4.1447×10^{-3}	5.5302×10^{-3}	8.9370×10^{-5}	1.3013×10^{-5}
C_{1W2}	1.9970×10^{-4}	4.8747×10^{-11}	8.8794×10^{-4}	3.8349×10^{-2}	1.6698×10^{-2}	9.4386×10^{-1}

4 结论

基于多组分同位素分离级联理论，对回收铀的分离提出了单级联方案与双级联方案。用非定常态方法编写了适合于带附加供料流的矩形级联的计算程序，借助该程序，对分离回收铀的级联方案进行了计算。计算表明，在利用天然铀的单级联方案中回收铀的利用率很低。对于不利用天然铀而直接浓缩回收铀的双级联方案，在第一个级联的产品流中加入适量的运载气体，再作为第二个级联的供料，

可使目标组分 $^{235}\text{UF}_6$ 在双级联方案中总的提取率明显提高。因此，在所有分离回收铀的级联方案中，利用运载气体的双级联方案为最佳的级联方案。

参考文献

- 1 Sinev N M. Economics of Nuclear Power Engineering. Moscow: Energoatomizdat, 1987 (in Russian)
- 2 Zaritskaya T S, Zaritskii S M, Kruglov A K, et al. At Energy, 1980, 48(2): 67-70
- 3 Buttler G G, Wilcox P. Nucl Eng, 1986, 28(6): 186-190

- 4 Matveev L V, Tsentner E M. *At Energy*, 1980, 48(4): 10-17
- 5 Matveev L V, Rogozhin V Yu. *At Energy*, 1989, 66(5): 345-349
- 6 Sulaberidze G A, Borisevich V D, Xie Q X. *Proceedings of IX All-Russia (International) Scientific Conference, Physical and Chemical Processes on Selection of Atoms and Molecules, Russia, October 4-8, 2004*. 70-77
- 7 Sulaberidze G A, Borisevich V D, Xie Q X. *Theor Found Chem Eng*, 2006, 40(1): 7-16
- 8 Sulaberidze G A, Borisevich V D, Xie Q X. *Eng Phys*, 2005, 3: 15-19
- 9 Sulaberidze G A, Xie Q X, Borisevich V D. *Ars Separatoria Acta*, 2006, 4: 67-77
- 10 Xie Q X, Sulaberidze G A, Borisevich V D. *Proceedings of XI All-Russia (International) Scientific Conference, Physical and Chemical Processes on Selection of Atoms and Molecules, Russia, December 11-15, 2006*. 15-20
- 11 Xie Q X, Sulaberidze G A, Borisevich V D. *Proceedings of the XX International Symposium on Physico-Chemical Methods of the Mixtures Separation, Ars Separatoria 2005, Poland, June 20-23, 2005*. 205-207
- 12 谢全新, 李大勇, 李文泊, 等. *核科学与工程*, 2008, 1: 86-91
XIE Quanxin, LI Dayong, LI Wenbo, *et al.* *Nucl Sci Eng*, 2008, 1: 86-91
- 13 Xie Q X, Borisevich V D, Potapov D V. *Eng Phys*, 2006, 2: 30-34
- 14 Zeng S, Ying C T. *Sep Sci Technol*, 2000, 35(4): 613-622
- 15 Zeng S, Ying C T. *Sep Sci Technol*, 2000, 35(5): 729-741
- 16 Wu H J, Ying C T, Liu G J. *Sep Sci Technol*, 1998, 33(6): 887-898
- 17 Sosnin L Yu, Cheltsov A N, Prusakov, *et al.* *Proceedings of IX All-Russia (International) Scientific Conference, Physical and Chemical Processes on Selection of Atoms and Molecules, Russia, October 4-8, 2004*. 78-83

Cascade calculations for separation of recycled uranium

XIE Quanxin LI Dayong WU Jianjun

(Institute of Physical and Chemical Engineering of Nuclear Industry, Tianjin 300180, China)

Abstract The reuse of recycled uranium from the spent fuel can save the resource of natural uranium. The enrichment of ^{235}U , dilution of ^{232}U and compensation of burning-up depth caused by ^{236}U must be synthetically considered in the separation of recycled uranium from LWR. Based on the cascade theory of multi-component isotope separation, several different cascade schemes for the separation of recycled uranium were presented. Theoretic calculations were conducted for different cascade schemes. The result of calculation shows that the double cascade scheme with a carrier gas is optimum one.

Key words Spent fuel, Recycled uranium, Multi-component cascade, Isotope, Separation

CLC TL92