

带附加供料的准理想级联模型及其在回收铀浓缩中的应用

谢全新 丛艺坤 吴建军
(核工业理化工程研究院 天津 300180)

摘要 建立带附加供料的准理想级联的数学模型, 提供求解该类级联方程的数值方法, 并得到方程的解析解。推导带附加供料的准理想级联中相对产品流、相对贫料流、级联中总物质流量及产品流和贫料流中组分丰度的解析表达式。用带附加流的准理想级联模型对回收铀浓缩进行级联计算, 其中天然铀作主供料, 回收铀作附加供料。

关键词 多组分同位素, 分离, 准理想级联, 附加流, 回收铀
中图分类号 TL92

同位素分离级联的理论研究和设计通常以某种模型级联为基础。二元分离情况下的模型级联叫理想级联^[1], 即在级汇合点无丰度混合损耗的级联。在多组分同位素分离理论中, 模型级联称准理想级联^[2-7], 实际上不能实现, 但其中的一些基本物理规律可为实际级联的改善和优化提供重要参考。另外, 与实际级联计算相比, 模型级联计算有解析求解、算法简单的特点。

某些特殊的分离任务需借助附加供料级联, 如核燃料循环中回收铀的再浓缩^[8]及某些分离过程对轻杂质的净化^[9]。本文建立带附加供料的准理想级联的数学模型, 并分析研究回收铀再浓缩级联的有关特性。

1 多组分级联基本参量和准理想级联

级联是由多个分离级按一定方式联接而成, 每个分离级由一定数量分离器并联。流量为 L 的供料流入分离级, 其同位素组分丰度为 $C_i (i=1, \dots, m, m$ 为同位素混合物的组分数)。从分离级流出流量 L' 的浓缩流(或轻馏分)和流量 L'' 的贫化流(或重馏分), 相应的组分丰度为 C_i' 和 C_i'' 。

定义 $\theta=L'/L$ 为级分流比, 这样 L' 、 L'' 通过供料流 L 表达:

$$L'=\theta L, L''=(1-\theta)L \quad (1)$$

定义 $\varphi_i=L_i'/L_i$ 为级的组分分流比:

$$\varphi_i=L_i'/L_i, 1-\varphi_i=L_i''/L_i \quad (2)$$

其中, $L_i=L C_i, L_i'=L' C_i', L_i''=L'' C_i''$ 。

若分离过程中并无物质损耗, 则分离级三股流及相应的组分流满足如下物质守恒方程:

$$L=L'+L'', L_i=L_i'+L_i'', \quad (3)$$

且

$$L=\sum_{i=1}^m L_i, L'=\sum_{i=1}^m L_i', L''=\sum_{i=1}^m L_i'' \quad (4)$$

如把第 k 组分作“关键”组分, 则 i, k 两组分在供料流、浓缩流和贫化流中的相对丰度 R_{ik} 、 R_{ik}' 和 R_{ik}'' , 以及全分离系数 q_{ik} 、浓化分离系数 α_{ik} 和贫化分离系数 β_{ik} , 可表示为:

$$R_{ik}=C_i/C_k, R_{ik}'=C_i'/C_k', R_{ik}''=C_i''/C_k'', q_{ik}=R_{ik}'/R_{ik}'', \quad (5)$$
$$\alpha_{ik}=R_{ik}'/R_{ik}, \beta_{ik}=R_{ik}/R_{ik}''$$

通常相对全分离系数随级的供料丰度 C_i 和分流比 θ 变化而变化, 但对大部分基于分子动力学的分离方法, 相对全分离系数基本不随上述参量改变, 表示为:

$$q_{ik}=q_0^{M_k-M_i} \quad (6)$$

其中, q_0 为基本全分离系数, M_k 、 M_i 表示第 k 、 i 两组分的摩尔质量。

为理论描述方便, 引入参量

$$g_i = \frac{\varphi_i}{1 - \varphi_i} = \frac{L'_i}{L''_i}, \quad i \neq k$$

$$g_k = \frac{\varphi_k}{1 - \varphi_k} = \frac{L'_k}{L''_k}, \quad i = k \quad (7)$$

由式(1-2)、(5)及(7), 可有:

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

$$g_k = \frac{\beta_{ik} - 1}{\beta_{ik}(\alpha_{ik} - 1)}, \quad i = 1, \dots, m \quad (8)$$

多组分同位素分离级联中, 如果组分分流比 φ_i 在级联各级中保持不变, 则为准理想级联。组分分流比各级恒等的条件是各级的 q_{ik} 、 α_{ik} 和 β_{ik} 保持不变。

用式(2-7)得到级联第 s 级的 $L(s)$ 、 $C_i(s)$ 及 $\theta(s)$:

$$L(s) = \sum_{i=1}^m L_i(s) = \sum_{i=1}^m \frac{g_i + 1}{g_i} L'_i(s),$$

$$C_i(s) = \frac{g_i + 1}{g_i} \frac{L'_i(s)}{L(s)},$$

$$\theta(s) = \frac{L'(s)}{L(s)} = \frac{\sum_{i=1}^m L'_i(s)}{\sum_{i=1}^m L_i(s)} \quad (9)$$

另一重要概念是丰度比匹配级联(Matched abundance ratio cascade, 简称 M 级联), 是准理想级联的一种特殊情形, 满足在级联汇合点处选定的两组分(如第 n 、 k 组分)的相对丰度相等, 即:

$$R_{nk}'(s-1) = R_{nk}(s) = R_{nk}''(s+1) \quad (10)$$

这种情况下, g_i 可用 q_0 及组分质量数表达:

$$g_i = q_0^{M^* - M_i} \quad (11)$$

其中

$$M^* = (M_n + M_k)/2 \quad (12)$$

2 带附加供料的准理想级联的数学模型

带附加供料的准理想级联的外参量有主供料流 F 、贫料流 W 、精料流 P 及附加供料流 E , 各股流中相应组分丰度分别为 C_{iF} 、 C_{iW} 、 C_{iP} 和 C_{iE} 。级联总级数 N , 精料和贫料分别从第 N 级和第 1 级取料。此外, 主供料流从第 f 级供入, 附加供料流从第 l 级供入。

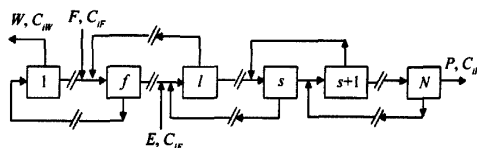


图 1 带附加供料的准理想级联示意图
Fig.1 Scheme of a quasi-ideal cascade with an additional feed flow.

假设级联稳态运行, 且无腐蚀损耗, 对任意 s 级($s \neq f, s \neq l$), 如下组分质量守恒方程成立:

$$L'_i(s-1) + \frac{1}{g_i(s+1)} L'_i(s+1) - \frac{g_i(s)+1}{g_i(s)} L'_i(s) = 0 \quad (13)$$

准理想级联中, 分离系数 α_{ik} 、 β_{ik} 、 q_{ik} 、 φ_i 及 g_i 各级相等。这种情况下, 方程(13)属于二阶线性差分方程, 其解可表示为:

$$L'_i(s) = A_i g_i^s + B_i \quad (14)$$

其中, A_i 、 B_i 为常数, 值由具体边界条件确定。在级联精料端、贫料端、主供料级和附加供料级的边界条件为:

$$\begin{cases} L'_i(0) = L'_i(N+1) = 0 \\ L'_i(f-1) + \frac{1}{g_i} L'_i(f+1) + FC_{iF} - \frac{g_i+1}{g_i} L'_i(f) = 0 \\ L'_i(l-1) + \frac{1}{g_i} L'_i(l+1) + EC_{iE} - \frac{g_i+1}{g_i} L'_i(l) = 0 \end{cases} \quad (15)$$

级联组分守恒方程为:

$$FC_{iF} + EC_{iE} - PC_{iP} - WC_{iW} = 0 \quad (16)$$

用式(15、16)求得级联方程(13)在级联各段的解:

$$L'_i(s) = WC_{iW} \frac{g_i}{g_i - 1} (g_i^s - 1), \quad 1 \leq s \leq f-1$$

$$L'_i(s) = A_i g_i^s + B_i, \quad f \leq s \leq l-1$$

$$L'_i(s) = PC_{iP} \frac{g_i}{g_i - 1} (1 - g_i^{s-N-1}), \quad l \leq s \leq N$$

(17)

其中

$$A_i = \frac{g_i^2}{g_i - 1} \frac{1}{g_i^l - g_i^f} [PC_{iP}(1 - g_i^{l-N-2}) - WC_{iW}(g_i^{f-1} - 1)] - \frac{g_i}{g_i^l - g_i^f} (FC_{iF} + EC_{iE})$$

$$B_i = \frac{g_i}{g_i - 1} \frac{g_i^l}{g_i^l - g_i^f} (g_i^{f-1} - 1) WC_{iW} + \frac{g_i}{g_i - 1} \frac{g_i^f}{g_i^l - g_i^f} (g_i^{l-N-2} - 1) PC_{iP} + \frac{g_i^l FC_{iF} + g_i^f EC_{iE}}{g_i^l - g_i^f}$$

(18)

把式(17)代入第 $f-1$ 级组分守恒方程:

$$L'_i(f) = (g_i + 1)L'_i(f-1) - g_i L'_i(f-2) \quad (19)$$

并考虑到式(16), 可得到:

$$EC_{iE} - WC_{iW} g_i^l + FC_{iF} g_i^{l-f} - PC_{iP} g_i^{l-N-1} = 0 \quad (20)$$

用组分丰度归一化条件 $\sum_{i=1}^m C_i = 1$, 由式(16、20)求得级联供料流量与精、贫取料流量之比 F/P 、 F/W 及 C_{iP} 和 C_{iW} :

$$\frac{F}{P} = \left[\sum_{i=1}^m \frac{C_{iF}(1 - g_i^{-f}) + \frac{E}{F} C_{iE}(1 - g_i^{-l})}{1 - g_i^{-(N+1)}} \right]^{-1}$$

$$\frac{F}{W} = \left[\sum_{i=1}^m \frac{C_{iF}(g_i^{N+1-f} - 1) + \frac{E}{F} C_{iE}(g_i^{N+1-l} - 1)}{g_i^{N+1} - 1} \right]^{-1}$$

$$C_{iP} = \frac{C_{iF}(1 - g_i^{-f}) + \frac{E}{F} C_{iE}(1 - g_i^{-l})}{1 - g_i^{-(N+1)}} \cdot \frac{F}{P}$$

$$C_{iW} = \frac{C_{iF}(g_i^{N+1-f} - 1) + \frac{E}{F} C_{iE}(g_i^{N+1-l} - 1)}{g_i^{N+1} - 1} \cdot \frac{F}{W} \quad (21)$$

二元分离中, 一般以级联分离功作标准评判优劣。在多组分级联理论体系中, 目前还没有公认且准确的分离功表达式, 一般以级联中总的物质流量来评判。总的物质流量决定级联中分离器的数目、

级联的建设和运行成本等。用 $\sum_{i=1}^m \frac{g_i + 1}{g_i} L'_i(s)$ 对整个

级联求和, 得到级联中总的物质流量 L_T :

$$L_T = \sum_{i=1}^m \left\{ \frac{g_i + 1}{g_i - 1} \left[PC_{iP}(N+1-l) + WC_{iW}(-l) \right] + FC_{iF}(l-f) \right\} \quad (22)$$

如给定参量 C_{iF} 、 C_{iE} 、 g_i 、 N 、 f 、 l 和 E/F , 由式(17、18)确定级联各级轻馏分中第 i 组分的 $L'_i(s)$, 由式(21)求解级联的 C_{iP} 和 C_{iW} , 由(22)求出级联中总的物质流量, 根据式(9)求级联的 $L(s)$ 、 $C_i(s)$ 及 $\alpha(s)$ 。

3 带附加供料流的准理想级联在回收铀浓缩中的应用

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铀, 提高铀资源的利用率。反应堆使用浓缩铀(^{235}U 丰度 3%~5%), 从乏燃料中回收铀必须送到浓缩工厂, 浓缩到所需丰度才能再利用。相对分离天然铀, 回收铀的分离较复杂, 因为^[8]:

(1) 铀核燃料在燃烧过程中, 部分 ^{235}U 经 $(n, 2n)$ 反应生成 ^{234}U , 进一步经 $(n, 3n)$ 反应生成 ^{232}U , 而 ^{232}U 及其衰变产物有 γ 辐射^[10-12]。回收铀前须除去 ^{232}U 或将其稀释到允许丰度值。浓缩后回收铀的 ^{232}U 与 ^{235}U 丰度比一般须满足^[13]:

$$C_{232}/C_{235} < 1.1 \times 10^{-7} \quad (23)$$

(2) 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, 当 ^{235}U 在级联精料端

浓缩时， ^{232}U 也浓缩且浓缩程度高于 ^{235}U 。若用普通级联浓缩回收铀，级联精料端的 C_{232}/C_{235} 将变大，不能实现 ^{232}U 稀释。同时， ^{236}U 与 ^{235}U 摩尔质量很接近，与 ^{238}U 相对分离系数相差无几，所以 ^{236}U 也将在精料端浓缩，不利于回收铀的再利用。

用带附加供料的准理想级联能解决上述问题。天然铀作主供料，回收铀作附加供料。选择 UF_6 作分离工质。含天然铀和回收铀的 UF_6 化合物中各组分的摩尔质量及丰度列于表 1。

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

组分 Components	M_i	C_{iF}	C_{iE}
$^{232}\text{UF}_6$	346	0	1.0000×10^{-9}
$^{234}\text{UF}_6$	348	0	2.0000×10^{-4}
$^{235}\text{UF}_6$	349	7.1100×10^{-3}	8.3000×10^{-3}
$^{236}\text{UF}_6$	350	0	4.1000×10^{-3}
$^{238}\text{UF}_6$	352	9.9289×10^{-1}	9.8770×10^{-1}

数值计算中，假定 ^{235}U 在级联精料和贫料中丰度分别为 $C_{3P}=3.5\%$ 和 $C_{3N}=0.2\%$ 。 ^{232}U 和 ^{235}U 两组分在精料中丰度满足约束条件(23)。把 ^{235}U 和 ^{238}U 作为关键组分，即式(12)中 $n=3$ ， $k=5$ 。

计算表明，附加供料流量与主供料流量与之比 E/F 如图 2(a) 时能满足丰度约束条件(23)。由图 2(a)，当 ^{235}U 浓缩到 3.5%，贫料丰度为 0.2% 时，随 E/F 增加 ^{232}U 和 ^{235}U 丰度之比 C_{1P}/C_{3P} 逐渐升高。当 $E/F=2.37$ 时， $C_{1P}/C_{3P}=1.1\times 10^{-7}$ ，已达约束条件(23)上限。所以 E/F 不能高于 2.37。 E/F 值上限与回收铀组成尤其是 ^{232}U 和 ^{235}U 两组分的含量密切相关。

多组分同位素分离级联中，级联总的物质流量是重要参量，它的大小对应完成一定分离任务的级联规模，即分离器数目。满足约束条件(23)情况下，级联总的相对物质流量 $SL_0=L/P$ 随 E/F 变化趋势如图 2(b)。 SL_0 随 E/F 增加而下降，因为回收铀中 ^{235}U 丰度高于天然铀中 ^{235}U 丰度， E/F 越大，整个级联的供料丰度增加，由于精料丰度和贫料丰度不变(分别 3.5% 和 0.2%)，这样完成分离任务所需分离功就越小，因而 SL_0 降低。

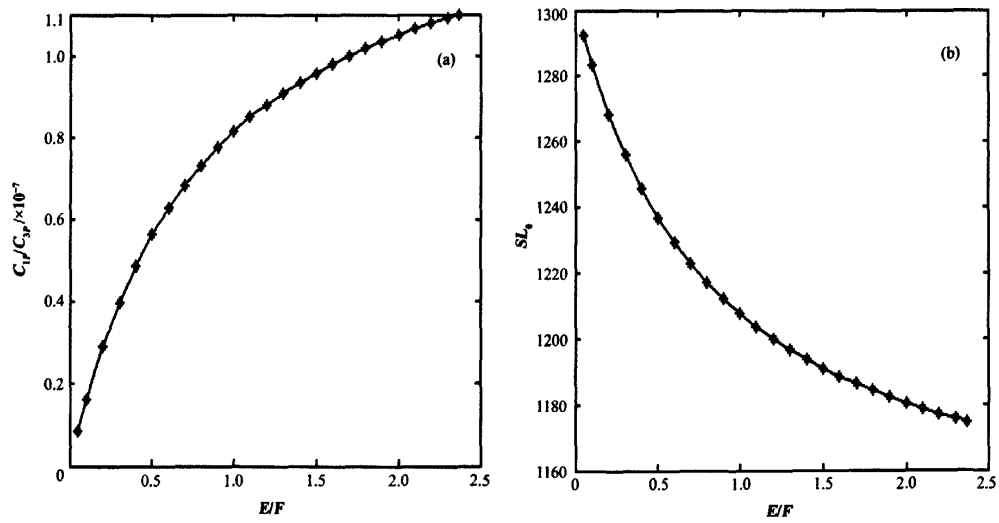


图 2 C_{1P}/C_{3P} (a) 和 SL_0 (b) 与 E/F 的关系
Fig.2 C_{1P}/C_{3P} (a) and SL_0 (b) as a function of E/F .

4 结论

建立带附加供料流的准理想级联的数学模型，得到求解带附加供料的准理想级联中的精料组分丰度、贫料组分丰度及级联中总的物质流量的解析表达式。用带附加流的准理想级联模型对回收铀分离进行级联计算。天然铀作主供料，回收铀作附加供

料。把 ^{235}U 浓缩到所需丰度、并满足 ^{232}U 丰度约束条件时，回收铀与天然铀的供料量之比存在一个极限值。

参考文献

1 Cohen K. The theory of isotope separation as applied to the large scale production of ^{235}U . New York: Mc,

- Graw-hill Book Co Ink, 1951
- 2 Sulaberidze G A, Xie Q X, Borisevich V D. *Ars Separatoria Acta*, 2006, 4: 67–77
 - 3 Sulaberidze G A, Borisevich V D, Xie Q X. *Theor Foun Chem Eng*, 2006, 40(1): 7–16
 - 4 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, Szklarska Poreba, June 20–23, 2005. 205–207
 - 5 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
 - 6 谢全新, 李大勇, 李文泊, 等. *核科学与工程*, 2008, 28(1): 86–91
XIE Quanxin, LI Dayong, LI Wenbo, *et al.* *Nucl Sci Eng*, 2008, 28(1): 86–91
 - 7 谢全新, Sulaberidze G A, 吴建军, 等. *原子能科学技术*, 2009, 43(8): 750–755
XIE Quanxin, Sulaberidze G A, WU Jianjun, *et al.* *At Energy Sci Technol*, 2009, 43(8): 750–755
 - 8 谢全新, 李大勇, 吴建军. *核技术*, 2009, 32(1): 61–65
XIE Quanxin, LI Dayong, WU Jianjun. *Nucl Tech*, 2009, 32(1): 61–65
 - 9 贾兴国, 应纯同, 曾 实. *清华大学学报(自然科学版)*, 2006, 46(3): 371–373
JIA Xingguo, YING Chuntong, ZENG Shi. *J Tsinghua Univ (Sci & Tech)*, 2006, 46(3): 371–373
 - 10 Sinev N M. *Economics of nuclear power engineering. Moscow: Energoatomizdat*, 1987
 - 11 Zaritskaya T S, Zaritskii S M, Kruglov A K, *et al.* *At Energy*, 1980, 48(2): 67–70
 - 12 Buttler G G, Wilcox P. *Nucl Eng*, 1986, 28(6): 186–190
 - 13 Matveev L V, Tsentner E M. *At Energy*, 1980, 48(4): 10–17

Model of quasi-ideal cascade with an additional feed flow and its applications to the enrichment of recycled uranium

XIE Quanxin CONG Yikun WU Jianjun

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

Abstract A mathematical model is established for the quasi-ideal cascade with an additional feed flow. A numerical calculation method to solve the cascade equation was presented and analytical solution of the cascade equation was obtained. Analytical expressions are given for calculating the relative product and waste flows, the total substance flow, and the component concentrations in the product and waste flows. Calculations for the enrichment of recycled uranium are carried out by using the model of quasi-ideal cascade, in which the natural uranium is supplied as a base feed flow while the recycled is supplied as an additional one.

Key words Multicomponent isotope, Separation, Quasi-ideal cascade, Additional flow, Recycled uranium

CLC TL92