

## Математическое моделирование процессов экстракционной переработки ядерного горючего

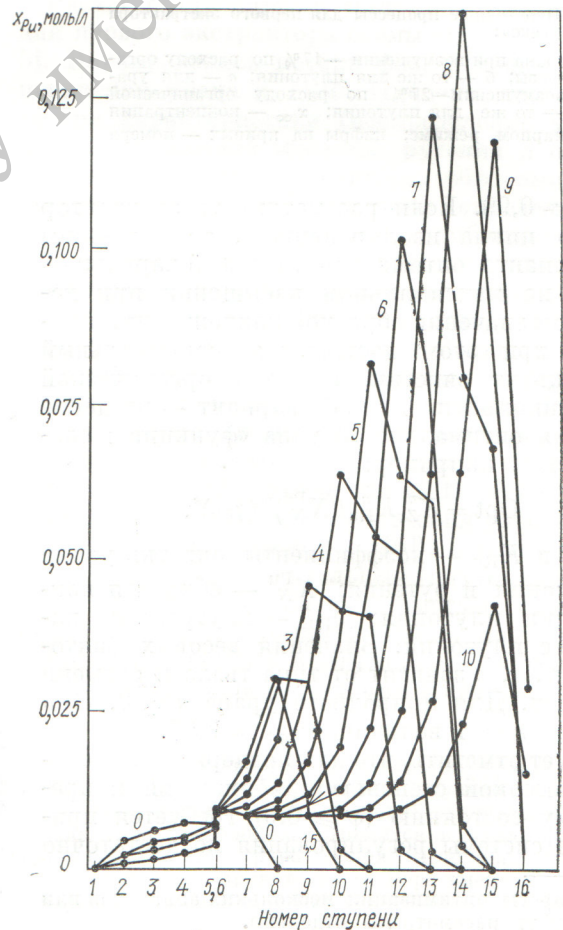
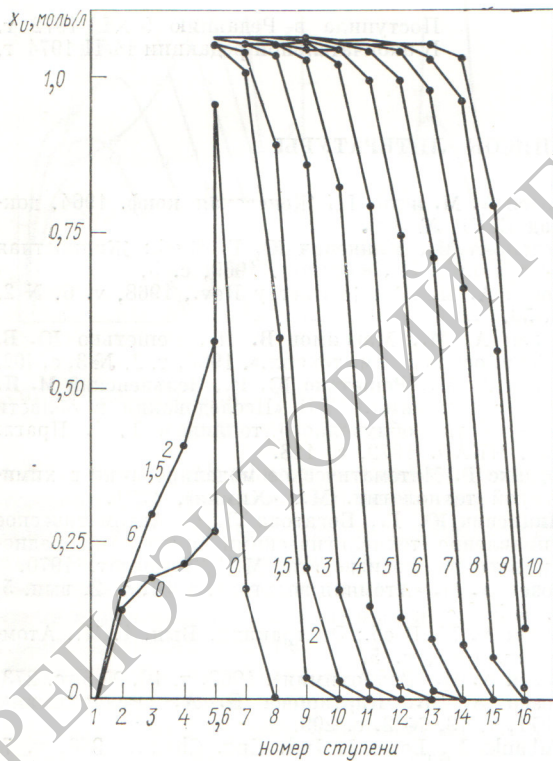
2. ИССЛЕДОВАНИЕ ВОЗМОЖНОСТИ НАКОПЛЕНИЯ ПЛУТОНИЯ ПРИ АВАРИЙНЫХ РЕЖИМАХ РАБОТЫ ЭКСТРАКТОРА ДЛЯ ПЕРЕРАБОТКИ ТВЭЛОВ ВВЭР

РОЗЕН А. М., РЕШЕТЬКО Ю. В., ЗЕЛЬВЕНСКИЙ М. Я.

УДК 621.039.59.001.57

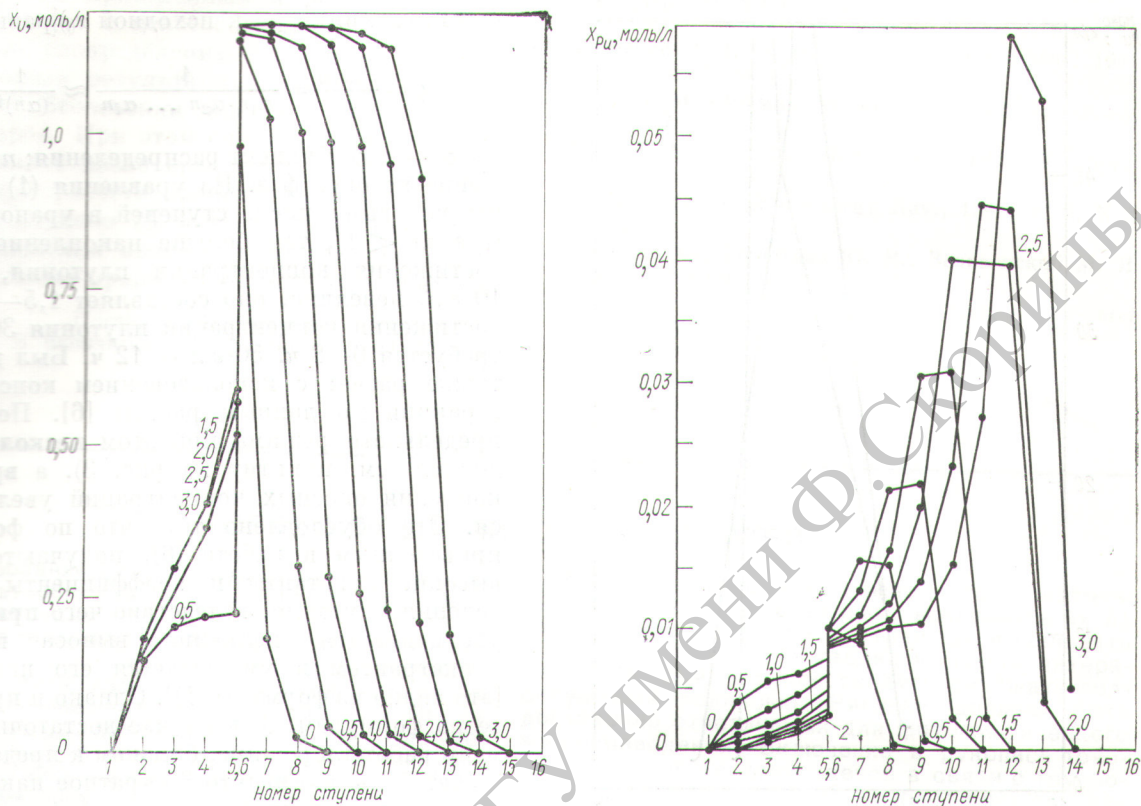
В настоящее время для регенерации урана и плутония из облученных энергетических твэлов (например, ВВЭР) применяется экстракция трибутилфосфатом (ТБФ) [1]. Особенностью этого процесса является конкуренция извлекаемых веществ за «свободный» трибутилфосфат, приводящая к внутренней циркуляции соединений плутония, рутения, циркония, азотной кислоты и др.: в безурановой зоне на выходных ступенях экстрактора они извлекаются, а на входных ступенях вытесняются ураном из органической фазы. В результате эти соединения могут накапливаться на средних ступенях экстрактора

до концентраций, существенно превышающих исходные [2]. Так, анализ схемы «Пурекс» показал, что при наличии четырех экстракционных ступеней в режимах, близких к предельным, возможно 10-кратное накопление плутония; при увеличении числа ступеней эта цифра может стать значительно больше [3, 4]. В номинальном режиме экстракционной переработки твэлов ВВЭР [1] внутреннее накопление плутония отсутствует. Однако не исключены неточности при поддержании расходов контактирующих фаз, что может привести к накоплению плутония в аппарате. При переработке растворов



Р и с. 1. Переходный процесс по концентрациям урана и плутония при  $n_{\text{э}} = 2,21$  (здесь и далее цифры у кривых — время, выраженное в часах).





Р и с. 2. Переходный процесс по концентрации урана и плутония при  $n_0 = 2,1$ .

твзлов, содержащих большое количество плутония, концентрация последнего в точке максимума может превысить величину, допустимую по условиям ядерной безопасности.

Для исследования аварийных ситуаций, по-видимому, единственно возможным методом является математическое моделирование, с помощью которого можно оценить, при каких нарушениях режима, насколько быстро и до какой величины произойдет накопление плутония в экстракторах. Такие исследования и проведены в настоящей работе.

Использовалась математическая модель, приведенная в сообщении 1 [5]. Рассматривался процесс в экстракторе, имеющем десять экстракционных и пять промывных ступеней. Исходный водный раствор (поток  $L^0$ ) содержал 300 г/л урана, 2,5 г/л плутония и 3 моль/л азотной кислоты. В качестве промывного раствора (поток  $L'$ ) использовали 3 М азотную кислоту, в качестве экстрагента (поток  $V$ ) — 25%-ный раствор ТБФ в синтине. Номинальное соотношение потоков  $V : L^0 : L' = 3,75 : 1 : 0,4$ .

Было принято, что время пребывания водной и органической фаз в смесительной камере одной

ступени экстрактора одинаковое (режим равномерного эмульгирования), оно составляло 1,5 мин. Для отстойной камеры допускалось, что граница раздела фаз сохранялась постоянной и делила отстойную камеру пополам, причем время пребывания водной фазы в отстойнике составляло 3,5 мин. Для изучения возможных аварийных режимов рассчитывались переходные процессы по концентрациям урана, плутония и азотной кислоты для возмущений, приводящих к уменьшению отношения потоков  $n_0$  в экстракционной части аппарата:

$$n_0 = V / (L' + L^0).$$

Расчеты проводились на ЭЦВМ «Минск-32» по программе, составленной на языке АЛГАСМ. Начальные условия соответствовали номинальному режиму.

На рис. 2 показаны переходные процессы по концентрациям урана и плутония в водной фазе на экстракционных (№ 7—16) и промывных (№ 2—5) ступенях при отношении потоков в экстракционной части 2,21 и 2,1 соответственно.



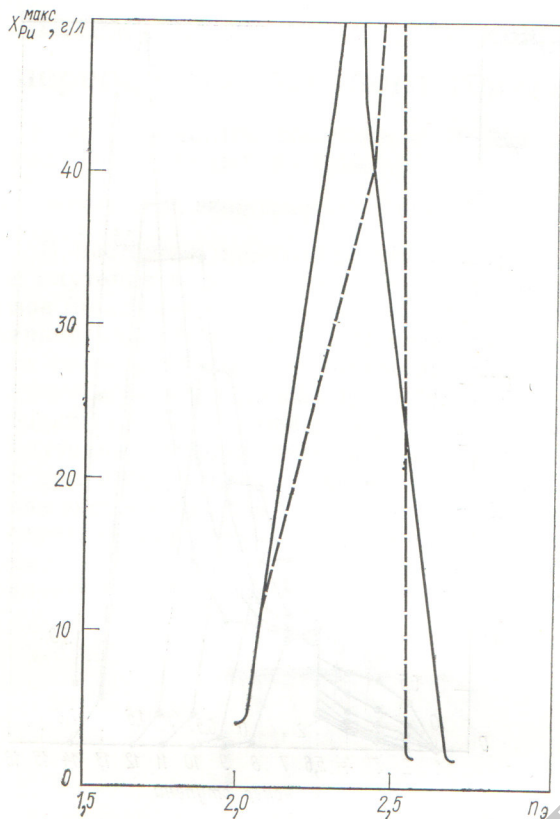


Рис. 3. Зависимость максимальной концентрации плутония в экстракторе от величины  $n_0$ :  
 — расчет с описанием констант экстракции по формулам работы [5]; — — — — то же с использованием формул работы [6].

На рис. 3 приведена зависимость максимальной концентрации плутония в аппарате от величины  $n_0$ .

Расчеты показали, что при уменьшении отношения потоков в экстракторе возможно накопление плутония до концентраций, превышающих ядерно-безопасные. Максимальная концентрация плутония в аппарате возрастает по мере приближения к предельному режиму ( $n_0 \approx 2,3$ ), при этом в водной фазе возможно 30-кратное накопление (рис. 4). Более высокое накопление, чем возможное в пятиступенчатом аппарате в схеме «Пурекс», связано с увеличением числа экстракционных ступеней  $N$  до 10 и соответственно максимально возможного числа ступеней урановой зоны  $i$  вблизи предельного режима ( $i \approx N - 2$ ). Напомним, что накопление (отношение максимальной концентра-

ции плутония  $x_{\text{макс}}$  к исходной  $x_0$ ) равно [2—4]:

$$q = \frac{x_{\text{макс}}}{x_0} = \frac{1}{\alpha_1 n \cdot \alpha_2 n \dots \alpha_i n} \approx \frac{1}{(\alpha n)^i}, \quad (1)$$

где  $\alpha$  — коэффициент распределения;  $n$  — отношение потоков фаз. Из уравнения (1) следует, что чем выше число ступеней в урановой зоне (где  $\alpha n < 1$ ), тем больше накопление. Время достижения концентрации плутония, равной 10 г/л, невелико, оно составляет 1,5—2 ч; для достижения концентрации плутония 30 г/л потребуется 6—8 ч, 50 г/л — 12 ч. Был проведен также расчет с использованием констант экстракции по данным работы [6]. Положение предельного режима при этом несколько смещается (см. пунктир на рис. 3), а время накопления опасных концентраций увеличивается. Это обусловлено тем, что по формулам, приведенным в работе [6], получают более высокие константы и коэффициенты распределения плутония, вследствие чего при расчете увеличивается величина выноса плутония с экстрактом и уменьшается его накопление [это видно из формулы (1)]. Однако и при расчете по формулам [6] в случае достаточного времени работы в режиме, близком к предельному, может быть достигнуто 30-кратное накопление, но для этого потребуется ~40 ч (для 30 г/л — 27 ч; для 10 г/л — 15 ч). Расхождение расчетов

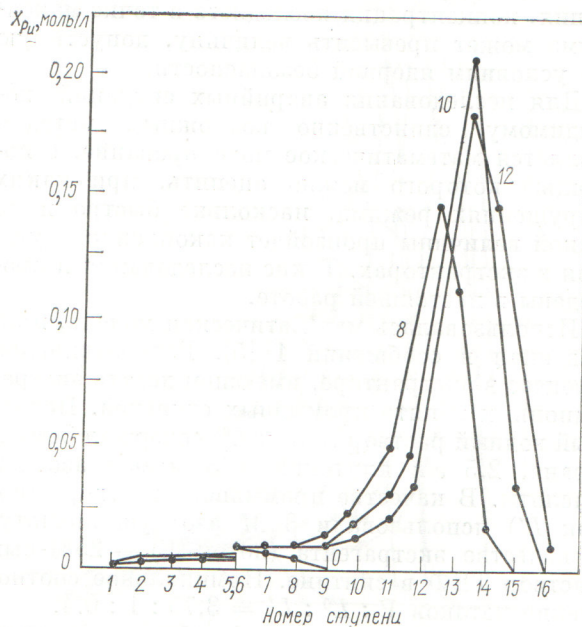


Рис. 4. Накопление плутония в экстракторе при  $n_0 = 2,3$ .



по формулам, приведенным в работах [5, 6], свидетельствует о целесообразности уточнения данных по распределению плутония.

Полученные результаты необходимо учитывать при обеспечении ядерной безопасности экстракторов. При этом следует иметь в виду, что указанное выше время соответствует принятому при расчете времени пребывания фаз на одной ступени (5 мин) и числу ступеней. При уменьшении времени контакта время накопления будет пропорционально уменьшаться.

Поступила в Редакцию 9/XI 1972 г.  
В окончательной редакции 14/II 1974 г.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Шевченко В. Б. и др. IV Женевская конф., 1971, докл. СССР № 435.
2. Розен А. М. «Атомная энергия», 1959, т. 7, вып. 3, стр. 277.
3. Розен А. М. и др. III Женевская конф., 1969, докл. СССР № 346.
4. Розен А. М. Atomic Energy Rev., 1968, v. 6, N 2, p. 59.
5. Розен А. М., Решетько Ю. В., Зельвенский М. Я. См. настоящий выпуск, с. 187.
6. Ochsenfeld W. In: Solvent Extraction Research N.Y., 1969, p. 373.

#### ПОРЯДОК ДЕПОНИРОВАНИЯ СТАТЕЙ

Депонирование статей осуществляется или по просьбе авторов, или по решению редакционной коллегии журнала.

В журнале печатаются подробные аннотации статей, а полные тексты хранятся в редакции в течение пяти лет и высылаются читателям по их требованию наложенным платежом. Объем аннотации не должен превышать 2 стр. машинописного текста, а объем депонируемого текста — 12 стр. В отдельных случаях в аннотацию можно включить рисунок, таблицу, основные формулы и т. п. (уменьшив соответственно объем текстового материала аннотации).

Депонированные статьи являются научными публикациями и учитываются при защите диссертаций.

Статьи, представленные для депонирования, должны быть окончательно отработаны авторами и пригодны для фотографического воспроизведения (первый экземпляр), в связи с чем необходимо соблюдать следующие правила их подготовки:

**1.** Текст следует печатать на машинке с жирной черной лентой через два интервала на одной стороне белой односортовой бумаги форматом 21×30 см с полями сверху, слева и снизу не менее 3 см и справа 1 см. При перепечатке текста на первой странице оригинала необходимо отступить на 10 см сверху (место для клише «Атомная энергия»). Никакие поправки чернилами или карандашом над словами не допускаются. Исправления выполняются путем вклеивания.

**2.** Необходимо вписывать формулы тушью или черными чернилами; разметку формул в тексте (подчеркивание красным или синим карандашом и т. д.) делать не следует.

**3.** Рисунки необходимо выполнять на ватманской бумаге или на кальке, наклеивать их на стандартные форматные страницы и помещать в конце статьи, после таблиц и списка литературы. Каждый рисунок следует снабжать подрисуночной подписью. Рисунки должны быть достаточно отчетливыми для фотографического воспроизведения. Включение в рукопись тоновых рисунков не допускается в связи с трудностью их копирования. В необходимых случаях тоновый рисунок выполняется штриховым методом.

**4.** Допускается в виде исключения печатать отдельные (большие) таблицы на неформатных листах (вклейках).

**5.** Все страницы рукописи (включая приложения) должны быть пронумерованы (первой страницей считается титульный лист, на нем цифра «1» не ставится, на следующей странице представляется цифра «2» и т. д.). Порядковый номер печатается в середине верхнего поля страницы.

**6.** Первый экземпляр рукописи должен быть подписан автором в конце статьи.

В случае несоблюдения указанных правил оформления статей рукописи возвращаются авторам.

Копии текстов депонированных статей рассылаются читателям по их запросам без ограничений. При оформлении заказа на тексты необходимо указывать регистрационный номер статьи, который помещен в конце аннотации. Советским читателям копии высылаются наложенным платежом; цена одной копии 40 коп.

**Заказы направлять в редакцию журнала по адресу: 101876, Москва, Центр, ул. Кирова, 18. Телефон для справок 223-51-89.**