УДК 553.679, 614.876

ПРИМЕНЕНИЕ БЕРИЛЛИЯ В ТЕРМОЯДЕРНЫХ РЕАКТОРАХ: РЕСУРСЫ, ПРИМЕСИ, ДЕТРИТИЗАЦИЯ ПОСЛЕ ОБЛУЧЕНИЯ

Б.Н. Колбасов, В.И. Хрипунов, А.Ю. Бирюков

НИЦ «Курчатовский институт», Москва, Россия

Бериллий является дефицитным металлом. По современным оценкам, его мировые природные запасы несколько больше 80 000 т. В 2012 г. во всех странах мира было добыто около 230 т бериллия. В то же время в концептуальных проектах некоторых энергетических термоядерных реакторов предусматривается применение сотен тонн бериллия. Поэтому возврат в производственный цикл (рециклинг) этого металла будет необходим. В России проведены предварительные проработки радиохимической технологии рециклинга облучённого бериллия. Они остановлены из-за прекращения финансирования. Бериллиевая руда из некоторых основных месторождений бериллия имеет чрезмерно большую для термоядерного реактора концентрацию урана, что ставит вопрос о необходимости разработки и применения экономически приемлемой технологии очистки бериллия от этой примеси. Практически любые технологические операции с бериллием требуют его детритизации. В НИЦ «Курчатовский институт» проведено исследование выхода трития и гелия из облучённого бериллия при разных температурах и скоростях повышения температуры.

Ключевые слова: бериллий, ресурсы бериллия, примеси в бериллии, обращение с бериллием, детритизация бериллия.

SOME THOUGHTS ABOUT BERYLLIUM RESOURCES, IMPURITIES IN IT AND NECESSITY OF ITS DETRITIATION AFTER IRRADIATION

B.N. Kolbasov, V.I. Khripunov, A.Yu. Biryukov

NRC «Kurchatov Institute», Moscow, Russia

Beryllium is a scarce metal. According to present-day estimations, its world natural resources somewhat exceed 80 000 t. Beryllium production in all the world countries in 2012 was about 230 t. At the same time, some conceptual designs of fusion power reactors envisage application of several hundred tons of this metal. Therefore return of beryllium into production cycle (recycling) will be necessary. Some preliminary developments of radiochemical technology for beryllium recycling were carried out in Russia. They were stopped due to suspension of financing. Beryllium ore from some main deposits has uranium content exaggerated for a fusion reactor. This fact puts a question on the necessity to develop and apply an economically acceptable technology for beryllium purification from uranium. Practically any technological procedure with beryllium requires its detritiation. A study of tritium and helium release from irradiated beryllium at different temperatures and temperature increase rates was performed in Kurchatov Institute.

Key words: beryllium, beryllium resources, impurities in beryllium, beryllium management, beryllium detritiation.

введение

Ресурсы бериллия. Бериллий (Ве) рассматривается как перспективный материал для применения в термоядерной энергетике, но на этом пути существует несколько проблем. Основная проблема в том, что его мало. В обзоре Геологической службы (ГС) США, опубликованном в 2013 г. [1], говорится, что мировые природные ресурсы Ве несколько превышают 80 тыс. т. Около 65% бериллиевых ресурсов мира сосредоточено в США.

В то же время, по данным Всероссийского НИИ минерального сырья им. Н.М. Федоровского, общие запасы бериллиевых руд в Российской Федерации составляют 49,8% мировых запасов. Запасы бериллия, которые целесообразно разрабатывать при современном уровне технологии и экономики (балансовые), имеются в 27 месторождениях, находящихся в четырёх федеральных округах: Сибирском (46,5%), Уральском (22,4%), Дальневосточном (17,1%) и Северо-Западном (13,9%) [2].

В 2012 г. во всех странах мира было добыто около 230 т этого металла. Основными добывающими Ве странами в 2012 г. были США (88%), Китай (9%) и Мозамбик (1%) [1]. В настоящее время только три страны — США, Казахстан и Китай перерабатывают бериллиевую руду и концентраты в металл и производят изделия из него в промышленном масштабе [3].

Приведённую величину годовой добычи Ве в мире (230 т) интересно сравнить с количеством этого металла (560 т), которое предполагается использовать в энергетическом реакторе PPCS-В с термоядерной мощностью 3,6 ГВт [4]. При этом опыт применения Ве в исследовательских ядерных реакторах показывает, что из-за газового распухания (свеллинга) его приходится заменять приблизительно после 810 лет эксплуатации [5]. В энергетических термоядерных реакторах (ТЯР) Ве придётся заменять приблизительно через каждые 5 лет работы на номинальной мощности [6]. Поэтому возврат Ве в производственный цикл ТЯР представляется необходимым.

Бериллий для ИТЭР. В проекте реактора ИТЭР, разработанном в 2001 г., для защиты первой стенки вакуумной камеры токамака от эрозии предусмотрена облицовка из Ве марки S-65 VHP, производимого корпорацией «Браш-Веллман» в США, или из российского Ве марки ДШГ-200 (дистиллированный штампованный из горячепрессованных заготовок) [7]. Оба эти вида Ве изготовляются методом горячего прессования в вакууме. Они были выбраны благодаря их хорошим эксплуатационным качествам, в первую очередь, по отношению к тепловой усталости и ударным нагрузкам. Позже Китай предложил добавить в перечень материалов, одобренных для изготовления защитной облицовки первой стенки, китайский Ве марки CN-G01, а Россия предложила заменить Ве ДШГ-200 другим сортом российского же Ве ТГП-56ПС (технический горячепрессованный для облицовки первой стенки). Преимуществом Ве марки ТГП-56ПС по сравнению с ДШГ-200 являются более высокие пределы прочности и пластичности и постоянство физико-технических свойств в поперечном и продольном направлениях относительно осей прессования Ве. Международная проверка свойств этих материалов показала, что они соответствуют требованиям, предъявляемым к Ве для ИТЭР [8, 9].

ПЕРСПЕКТИВЫ ДОБЫЧИ БЕРИЛЛИЯ В РОССИИ

В 1964 г. группой геологов во главе с Г.А. Ермаковым в Бурятии было открыто одно из лучших месторождений бериллиевых руд в мире. Содержание Ве в его руде составляет около 0,7%. Месторождение содержит ~5700 т Ве [10] и получило название по фамилии своего первооткрывателя [11]. В 1979— 1989 гг. оно разрабатывалось открытым способом. Высококачественные концентраты поставлялись на Ульбинский металлургический завод (УМЗ), находящийся в г. Усть-Каменогорске Восточно-Казахстанской области Казахстана. УМЗ — единственное на Евразийском континенте предприятие, выпускающее широкий спектр продукции из бериллия от черновых слитков до разнообразных готовых изделий.

В 1989 г. добыча бериллиевых руд во всех российских месторождениях, кроме Завитинского (Читинская область) и Пограничного (Приморский край) [12], была прекращена и производство рудных концентратов законсервировано [2, 13]. По опубликованным в ГС США оценкам [14], к этому времени запасы концентрата бериллия в России и Казахстане были достаточными для удовлетворения потребностей этих стран в течение 30 лет. УМЗ продолжает перерабатывать эти концентраты и поставляет продукцию из бериллия на мировой рынок, в том числе в США, Россию и Китай [13]. В течение 2008—2011 гг. США импортировали 457 т Ве (44% импорта Ве было из России (201 т) + 26% (122 т) из Казахстана, остальное из Японии, Кении и других стран). В 2012 г. импорт Ве, в том числе в составе сплавов и изделий, в США составил 106 т. Средняя цена Ве в 2012 г. была \$468 за кг [1].

В 2005 г. корпорация «Металлы Восточной Сибири», входящая в группу компаний (ГК) «Метрополь», приобрела лицензию на возобновление разработки Ермаковского месторождения до 2025 г. Совместно с УМЗ она разработала технический проект горно-металлургического комбината (ГМК) для производства в течение 50 лет до 400 т гидроксида бериллия (84 т Ве) в год. Предполагается, что этот гидроксид частично будет экспортироваться в Казахстан, Китай и Японию для переработки в металлический Ве и его сплавы, а частично из него будут изготавливаться наноматериалы из бериллия и сплавы в Бурятии. Стоимость реализации проекта оценивается в 7 млрд рублей (около \$200 млн). Финансирование проекта будет осуществляться ГК «Метрополь» и государственной корпорацией «Роснано». Строительство ГМК должно начаться в 2013 г. Комбинат должен выйти на проектную производительность в 2016 г. [15].

СОДЕРЖАНИЕ УРАНА В БЕРИЛЛИИ

Основным отличием американского, китайского и российско-казахстанского бериллия является относительное содержание в нём урана (U) в виде примеси.

Уран в американском бериллии. В сертификате, сопровождавшем присланную из корпорации «Браш-Веллман» в Национальную лабораторию в Айдахо (INL) в 2002 г. партию Ве для эксперимен-

тального ядерного реактора ATP, было указано, что концентрация U в Be находится в диапазоне от 23 до 105 мкг/г, а среднее значение концентрации 71 — мкг/г [16].

В 2005 г. Э. Алвеш (Португалия) сообщил, что в присланном ему из JAERI (Япония) сплаве Ве с 5% ат. Ті концентрация U достигала 200 ± 12 мкг/г [17].

Согласно спецификации корпорации «Браш-Веллман», минимальное содержание U в Be S-65C VHP, который должен поставляться для ИТЭР, <30 мкг/г, максимальное — 85 мкг/г, среднее — 32 мкг/г [18].

Организация ИТЭР потребовала, чтобы содержание урана в Ве S-65C VHP и таблетках Ве, которые будут поставляться для ИТЭР, было не более 30 мкг/г [18].

Корпорация «Браш-Веллман» заявила, что она может поставлять Ве с концентрацией U около 1 млн⁻¹ (ат.) (что эквивалентно 26,4 мкг/г), но за это, конечно, придётся дополнительно платить [16].

Уран в китайском бериллии. Конструкторы китайского испытательного модуля бланкета (ИМБ), устанавливаемого в ИТЭР, сообщили, что концентрация U в Be, который они собираются использовать в модуле в качестве размножителя нейтронов, составляет 100 мкг/г [19].

Уран в российско-казахстанском берил-Измерения загрязнённости российсколии. казахстанского Ве ураном были проведены на 20 образцах технического Ве, полученного литьём в вакууме, и на 15 образцах, прошедших вакуумную перегонку. Образцы были изготовлены из порошков различного размера с применением разных методов уплотнения: горячего прессования в вакууме, горячего изостатического формования, горячего прессования выдавливанием, осаживания. Измерения показали, что в техническом российско-казахстанском Ве концентрация U составляет от 0,16 до 18 мкг/г при среднем значении 5,2 мкг/г, а в образцах, прошедших вакуумную перегонку, — от 50 до 900 нг/г при средней величине 240 нг/г (рис. 1) [20, 21].





ПОСЛЕДСТВИЯ ЗАГРЯЗНЕНИЯ БЕРИЛЛИЯ УРАНОМ

Чем чревата загрязнённость бериллия ураном?

Наличие U в Ве не вызывает беспокойства там, где нет нейтронов (в ракетной и авиационной технике и в электротехнических изделиях).

Совершенно другая ситуация в термоядерных реакторах. Из-за наличия природного U в бериллиевой облицовке первой стенки и бериллиевом размножителе нейтронов в четырёх из шести ИМБ реактора ИТЭР эти компоненты бериллия могут рассматриваться как комбинация сырьевых (238 U) и делящихся (235 U) изотопов U с прекрасным бериллиевым размножителем и замедлителем нейтронов, что характерно для бланкетов гибридных систем синтеза-деления. При взаимодействии нейтронов с U в такой облицовке будут происходить процессы выгорания этих изотопов (обогащение) (рис. 2), а также образование нейтронов деления.

При выполнении требования, что начальная концентрация природного U в Ве реактора ИТЭР



Рис. 2. Активационные процессы в примеси ²³⁸U в бериллии [16]

не должна превышать 30 мкг/г, в 12,3 т Ве первой стенки ИТЭР будет находиться до $U_{cym} = 370$ г природного U, в том числе около 2,7 г ²³⁵U. К концу двадцатилетней работы реактора ИТЭР (до флюенса термоядерных нейтронов на первой стенке 0,3 МВт·год/м²) в бериллиевом покрытии первой стенки выгорит ~2% ²³⁸U и ~10% ²³⁵U, накопится ~8 г ²³⁹Pu и других делящихся изотопов трансурановых элементов, а также образуется около 180 мг продуктов деления. Обогащение делящегося топлива, равное ²³⁵U + ²³⁹Pu + ²⁴¹Pu/ U_{сум}, составит 2,5% [22].

Кроме этого, около 1 т Ве будет находиться в четырёх ИМБ реактора ИТЭР [23]. Китайские конструкторы собираются применить в своём ИМБ Ве, содержащий 100 мг U в 1 кг Ве [19].

В мае 2012 г. Программный комитет по ИМБ при Совете ИТЭР одобрил предложение Кореи о применении в корейском ИМБ графитового отражателя нейтронов, уменьшающего количество Ве в модуле. Комментируя это решение, руководитель программы по ИМБ Л. Джианкарли написал: «Эта инновационная концепция охлаждаемого гелием модуля с графитовым отражателем нейтронов открывает возможность вообще обойтись без бериллиевого размножителя нейтронов» [24].

Более впечатляющих значений можно ожидать при аналогичных оценках для демонстрационных и промышленных термоядерных реакторов. В проекте российского демонстрационного реактора ДЕМО-С термоядерной мощностью 2,4 ГВт [25, 26] предусматривается применение 215 т Ве в качестве размножителя нейтронов и защитного покрытия первой стенки вакуумной камеры. В европейском проекте бланкета энергетического реактора MINERVA-H (Safety and Environmental Assessment of Fusion Power Plant, Model 3) количество Ве — 865 т [6].

В бланкете европейского энергетического реактора PPCS-В количество Ве — около 560 т [4]. При концентрации U в Ве, равной 30 мкг/г, количество природного U в этом реакторе составит 17 кг, количество 235 U — 123 г. Через сутки после остановки реактора для смены бланкета, после 5 лет работы реактора на полной мощности по достижении величины нейтронного флюенса на первой стенке ~10 МВт·год/м², в Ве будет находиться около 4,4 кг плутония (Pu) и других делящихся изотопов, а удельная активность всех α -излучателей в Ве составит 525 МБк/кг Ве [6].

Таким образом, граница между «чистыми» термоядерными реакторами и гибридными реакторами синтеза-деления представляется несколько условной. В так называемом «чистом» термоядерном реакторе при наличии U в Ве образуется букет из различных трансурановых элементов (актинидов) — от Pu до америция (Am) и кюрия (Cm) весом в несколько кг.

Между прочим, проектная группа Висконсинского университета (США), ратующая за «чистые» термоядерные реакторы, отказалась от применения Ве в серии концептуальных проектов ARIES (Advanced Research Innovation and Evaluation Study).

Удельная активность, классификация облучённого бериллия. Удельная активность облучённого в ИТЭР Ве при начальной концентрации U в нём 30 мкг/г и флюенсе термоядерных нейтронов на первую стенку 0,3 MBT/M^2 сразу после остановки реактора будет ~20 ГБк/г, в основном за счёт ⁶He [22]. Через 1 сут удельная активность Ве снизится до ~533 МБк/г (97% за счёт ³H и ~3% за счёт трансурановых изотопов), а через 100 лет после остановки ИТЭР она составит около 10 МБк/г, из них 82% — за счёт трансурановых изотопов [6, 22]. Для российского реактора ДЕМО-С при флюенсе термоядерных нейтронов на первую стенку 10 МВт/м² и тех же прочих условиях она составит около 180 кБк/г [26].

Согласно российским Основным санитарным правилам обеспечения радиационной безопасности [27] такой Ве в обоих случаях является среднеактивным материалом, так как по российским нормам материал, содержащий трансурановые радиоизотопы, является низкоактивным, если его удельная активность не превышает 10 Бк/г.

По американским нормам, если суммарная удельная активность излучающих α-частицы радиоактивных изотопов с атомными номерами больше 92 и периодами полураспада больше 20 лет превышает 100 нКи/г (3,7 кБк/г), то соответствующий материал является трансурановым (TRU) [16]. Удельная активность Ве, облучённого в ИТЭР, при начальной концентрации U 30 мкг/г ниже этого порогового значения, а удельная активность Ве, отработавшего свой срок службы в демонстрационных и энергетических термоядерных реакторах, значительно превышает этот порог. **Последствия возможной аварии реактора ИТЭР** в конце срока его службы с выбросом бериллиевой пыли в окружающую среду при начальной концентрации природного U в Be 85 мкг/г были рассмотрены в работе [22]. В этом случае удельная активность пыли будет 20 ГБк/г за счёт ⁶Не. Доля удельной активности Be за счёт Np, Pu и Am — 3,8% (44 МБк/г).

Мощность контактной дозы от бериллиевой пыли 3,4 мЗв/(ч·г), около 54% — за счёт трансурановых элементов и продуктов деления.

Долгосрочные дозы облучения при вдыхании бериллиевой пыли и при её попадании в пищеварительный тракт рассчитывались на основе Европейской активационной вычислительной системы [28]. Доза при вдыхании пыли оказалась равной ~1 Зв/г, при попадании пыли с пищей — 94 мЗв/г (за счёт актинидов 66,3 и 39% соответственно). При этом предполагалось, что концентрация трансурановых изотопов, ³Н и ⁶⁰Со в бериллиевой пыли и аэрозолях сохраняется такой же, какой она была в металлическом Ве.

По российским Нормам радиационной безопасности [29], если в течение первых 10 сут после радиационной аварии доза облучения может достичь 50 мЗв, то требуется принятие решения об эвакуации соответствующей группы населения. Это значит, что вопрос об эвакуации населения требуется ставить там, где можно ожидать (при сделанном предположении), что за 10 первых дней после аварии во вдыхаемом воздухе может находиться 50 мг бериллиевых аэрозолей или в принимаемой пище и воде может находиться 530 мг бериллиевой пыли.

Захоронение. По-видимому, наибольшие сложности загрязнённость Ве ураном будет вызывать при захоронении облучённого Ве. Удельная активность Ве к концу срока службы ИТЭР за счёт ³H, актинидов, ⁹⁴Nb и ¹⁴C существенно превысит предельные величины, установленные европейскими и американскими нормами для захоронения радиоактивных отходов в приповерхностных могильниках.

По классификации радиоактивных отходов во Франции бериллий, содержащий трансурановые α-излучатели, относится к среднеактивным отходам, содержащим долгоживущие изотопы (с периодом полураспада более 31 года). Для захоронения таких отходов пока критерии не выработаны, за исключением того, что энерговыделение в контейнере с отходами этой категории не должно превышать 13 Вт. Исследуется возможность захоронения таких отходов в геологических формациях [6, 30].

Нам хочется процитировать Г. Лонгхёрста и Р. Роэ, которые написали: «Ни один существующий могильник не примет отработавший в реакторе ATP Ве. Даже Пилотная установка для изоляции отходов в Нью-Мексико, принимающая для захоронения трансурановые отходы оборонных программ, не может принять Ве из ATP частично из-за большого содержания в нём ³Н» [5].

Невозможность вывода загрязнённого ураном бериллия из-под контроля надзорных органов (клиренса). Для вывода облучённого Ве, содержащего трансурановые радиоактивные изотопы, из-под контроля надзорных органов и для его дальнейшего неограниченного использования, согласно рекомендациям МАГАТЭ [31], требуется, как минимум, чтобы суммарная удельная активность содержащихся в нём ²³⁸Pu, ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu, ²⁴¹Am, ^{242m}Am и ²⁴³Am была меньше 0,1 Бк/г. Эти рекомендации, уже в виде требований, вошли в российские Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности [27]. Таким образом, для вывода работавшего в ИТЭР бериллия из-под контроля надзорных органов исходное содержание урана в нём должно быть меньше 1 нг/г. Для реактора PPCS-В соответствующая концентрация урана должна быть меньше 0,03 нг/г.

В российских Нормах радиационной безопасности [29] и европейском документе [32] предусматривается возможность использовать в хозяйственной деятельности материалы с удельной активностью трансурановых α-излучателей от 0,1 до 1 Бк/г, если при этом ожидаемая индивидуальная годовая эффективная доза облучения не будет превышать 10 мкЗв. Однако по российским нормам при этом используемые материалы подлежат обязательному радиационному контролю. Для выполнения этих требований начальная концентрация урана в Ве не должна превышать 10 и 0,3 нг/г для ИТЭР и РРСS-В соответственно. Напомним, что в российском Ве после вакуумной перегонки минимальная концентрация U в Ве составила 50 нг/г.

Мощность контактной дозы. Конструкторы китайского ИМБ, предназначенного для установки в ИТЭР, рассчитали мощность контактной дозы от ИМБ в целом и от бериллиевого размножителя нейтронов, в частности. Концентрация U в китайском Ве — 100 мкг/г. В течение времени выдержки ИМБ приблизительно до 10^5 лет основной вклад в мощность контактной дозы от модуля даёт малоактивируемая сталь еврофер-97.

Мощность контактной дозы от Ве, позволяющая работать с металлом без каких-либо защитных устройств (10 мкЗв/ч), достигается через 100 лет выдержки. В это время она определяется ²³⁹Pu [19, 21], оставаясь меньше мощности контактной дозы от стали [19].

Ручное обращение с применением простых защитных устройств (например, перчаточных камер) возможно по отношению к материалу, мощность контактной дозы от которого не превышает 2 мЗв/ч [30]. Такая мощность дозы от Ве в китайском ИМБ достигается через 30 лет выдержки [19].

возможные комбинации

На 6-м семинаре МЭА по бериллиевой технологии [33] был представлен совместный доклад представителей корпорации «Браш-Веллман» и УМЗ, в котором авторы доклада, рассмотрев сильные и слабые стороны своих предприятий, предложили такую схему изготовления бериллиевых изделий для реактора ИТЭР:

— УМЗ изготавливает высококачественные отлитые в вакууме слитки Ве с малым содержанием U и отсылает их в корпорацию «Браш-Веллман»;

— корпорация «Браш-Веллман» изготавливает из этих слитков пластины защитной облицовки первой стенки требуемых размеров и отсылает их на УМЗ;

— УМЗ проводит окончательную машинную обработку пластин и, возможно, припаивает их к подложке, а затем отсылает пластины в США;

— корпорация «Браш-Веллман» проводит технический контроль изделий и отсылает их на ИТЭР.

НЕОБХОДИМОСТЬ РЕЦИКЛИНГА

Учитывая ограниченность мировых запасов Ве (несколько более 80 000 т) [1], масштабы добычи Ве в мире (230 т в 2012 г.), потребности в Ве только для термоядерной энергетики (560 т для реактора PPCS-B, 865 т для реактора MINERVA-H [6]), следует рассматривать Ве как весьма дефицитный металл. Поэтому нам представляется неизбежной необходимость возвращения Ве в производственный цикл с очисткой его от U, трансурановых α-излучателей, продуктов деления и активации.

В России, в Радиевом институте им. В.Г. Хлопина, разработана лабораторная технология радиохимической переработки и очистки от продуктов активации и возвращения в производственный цикл дефицитных и дорогих компонентов радиоактивного ванадий-хром-титанового сплава. Эта технология аналогична процессу ПЬЮРЕКС (Plutonium-URanium EXtraction — PUREX), который является единственным промышленным способом переработки отработанного ядерного топлива, применяемым на всех радиохимических предприятиях мира. Он надёжно служит для разделения U и Pu и их очистки от продуктов деления. При этом концентрация продуктов деления в очищаемых элементах может быть снижена в 10^7 — 10^8 раз [34].

Единственным ограничением для применения этой технологии является требование, чтобы удельная активность раствора топлива не превышала 4 ТБк/л, так как уже при удельной активности 6 ТБк/л радиолиз органических реагентов сильно увеличивается, снижая эксплуатационные характеристики экстрактора [35].

Разработанная для возвращения компонентов ванадиевых сплавов в производственный цикл технология (рециклинг) испытана в лабораторных условиях с активированными образцами. Содержание Со и Nb в ванадии снижено на три порядка величины. Расчёты показали, что очистка компонентов сплава V5Cr5Ti на 50-ступенчатом экстракционном каскаде обеспечивает ручную рефабрикацию (при мощности контактной дозы <10 мк3в/ч) до 95% сплава [34].

Основываясь на полученном при этом опыте, были проведены предварительные проработки аналогичной технологии для очистки и возвращения в производственный цикл бериллия [36]. В настоящее время эти работы остановлены из-за прекращения финансирования.

ДРУГИЕ ПРИМЕСИ

Кроме U и ³H, не следует недооценивать также такие изотопы, как ¹⁴C, образующийся в Ве главным образом из азота, ⁹⁴Nb, ⁶⁰Co и в меньшей степени ^{108m}Ag. При отсутствии U и эффективной детритизации

Ве эти изотопы становятся главным препятствием на пути вывода облучённого Ве из-под контроля надзорных органов.

Кобальт-60 в течение десятилетий выдержки определяет мощность дозы от Ве. Его вклад в мощность дозы через месяц после остановки российского демонстрационного реактора — 86,5%, через 10 лет — 9,98% [26].

При отсутствии U в Ве вклад ⁹⁴Nb в формирование мощности дозы от Ве становится доминирующим через 100 лет после остановки реактора. Так, в бериллиевом размножителе нейтронов во внешнем бланкете реактора ДЕМО-С он к этому времени составляет около 86% [26].

Повышенное содержание Nb в Be (а оно имело место при поставках [16]) создаёт дополнительные нормативные трудности при получении разрешения на обращение с Be.

ОПЫТЫ ПО ТЕРМИЧЕСКОЙ ДЕСОРБЦИИ ТРИТИЯ И ГЕЛИЯ

Тритий, образовавшийся в бериллии за счёт реакции ${}^{9}\text{Be}(n, \alpha){}^{6}\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$, сильно затрудняет возможности захоронения облучённого Ве. Удельная активность облучённого Ве в течение десятков лет выдержки определяется накопленным в нём ${}^{3}\text{H}$. Так, вклад ${}^{3}\text{H}$ в формирование удельной активности Ве во внешнем бланкете российского демонстрационного реактора ДЕМО-С через 1 месяц после остановки реактора составляет 99,63%, через 10 лет — 99,90% и через 100 лет — 99,75% [26].

Вклад наработанного ³Н в энерговыделение в ближайших к плазме слоях бериллиевого размножителя нейтронов во внешнем бланкете реактора ДЕМО-С после 10 лет выдержки составляет 81%, а через 100 лет — 98% [26].

Практически все технологические операции с облучённым Ве требуют его детритизации. Повидимому, основным способом удаления трития из бериллия будет термическая десорбция (возможно, с вытеснением ³Н протием). В НИЦ «Курчатовский институт» А.Ю. Бирюковым были проведены исследования выхода ³Н и Не из Ве марки ТШГ-200, облучённого в материаловедческом ядерном реакторе МР мощностью 40 МВт до значений флюенса быстрых нейтронов (с энергией >500 кэВ) ~3·10²¹ и ~1·10²² н/см².

Наибольшее содержание ³Н и Не в образцах было ~785 и 4400 млн⁻¹ (ат.) соответственно. Предварительные результаты этих опытов были доложены на 4-м международном симпозиуме по ядерным аспектам термоядерной технологии [37].

Опыты показали, что выход трития и гелия из образцов имеет недиффузионный (взрывной) характер. При малых скоростях повышения температуры (около 10 °С/мин) и флюенсе быстрых нейтронов ~ $3 \cdot 10^{21}$ н/см² тритий выходит из образцов при температуре около 810 °С. Температура выхода гелия была около 1200 °С (рис. 3). При увеличении флюенса нейтронов до $1 \cdot 10^{22}$ н/см² температура пиков взрывного выхода трития и гелия уменьшилась до 740 и 1050 °С соответственно (рис. 4).



Рис. 3. Термодесорбционные спектры бериллия, облучённого до флюенса быстрых нейтронов 3·10²¹ н/см², скорость линейного повышения температуры — 10 °С/мин: ••• — Т; — — Не

Рис. 4. Термодесорбционные спектры бериллия, облучённого до флюенса быстрых нейтронов 1·10²² н/см², скорость линейного нагрева — 10 °С/мин: ••• — Т; — Не





Температура выхода трития и гелия и ширина спектральных пиков уменьшаются также с увеличением скорости повышения температуры (рис. 5—7).

Рис. 5. Температура взрывного выхода трития в зависимости от скорости повышения температуры образца для двух значений флюенса быстрых нейтронов: 3·10²¹ н/см⁻² (✗); 1·10²² н/см⁻² (□)

Рис. 6. Температура взрывного выхода гелия из облучённого нейтронами бериллия в зависимости от скорости повышения температуры образца для флюенсов быстрых нейтронов: 3·10²⁵ н/м² (●); 1·10²⁶ (■)

Здесь уместно заметить, что ³H, соосаждённый с Ве, при взаимодействии плазмы с поверхностью вакуумной камеры удаляется при существенно более низкой температуре (около 350 °C) [38, 39].

Причиной того, что тритий и гелий, образовавшиеся за счёт реакции ${}^{9}\text{Be}(n, \alpha){}^{6}\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$, выходят при разных температурах, по-видимому, является то, что тритий, как более мобильный изотоп, мигрирует на границы зёрен, в то время как гелий в основном остаётся внутри зёрен, там, где он образовался. При росте температуры из-за газового распухания (свеллинга) начинается разрушение образца по границам зёрен, что и обусловливает взрывной выход накопившегося там трития. Разрушение самих зёрен бериллия, приводящее к выходу гелия, имеет место при более высокой температуре и большем газовом распухании (рис. 8).





Рис. 7. Эволюция термодесорбционных спектров выхода трития из облучённого нейтронами бериллия (флюенс быстрых нейтронов — 1·10²² н/см²) при разных скоростях повышения температуры

Рис. 8. Зависимость газового распухания бериллия от температуры после реакторных отжигов (линейный — О, Δ; ступенчатый — ●, ▲) в сравнении с термодесорбционными спектрами трития и гелия для образца, облучённого флюенсом быстрых нейтронов: 1·10²² н/м² — О, ●; 3·10²¹ н/м² — Δ, ▲

выводы

Потенциальные потребности в бериллии превысят его ресурсы, если не будет освоен рециклинг (возврат в производственный цикл) облучённого бериллия.

Необходимо разработать и освоить:

— экономически приемлемую технологию очистки бериллия, предназначенного для термоядерных реакторов, от примеси урана;

оптимальную технологию детритизации облучённого бериллия.

REFERENCES

- 1. Minerals Information: Beryllium Statistics and Information: Mineral Commodity Summaries. United States Geological Survey. Retrieved 11 March 2013; http://minerals/usgs/gov/minerals/pubs/commodity/beryllium/mcs-2013-beryl.pdf.
- 2. Federal state unitary enterprise «N.M. Fedorovsky All-Russian research Institute of mineral raw materials». Overview of the beryllium mineral raw material base. 2013; http://www.vimsgeo.ru/elements/beryllium.aspx (in Russian).
- 3. Materion Brush Inc. Sources of Beryllium. 2013; http://www.beryllium.com/sources-beryllium.
- Maisonnier D., Cook I., Sardain P., Andreani R., Di Pace L., Forrest R., Giancarli L., Hermsmeyer S., Norajitra P., Taylor N., Ward D. A Conceptual Study of Commercial Fusion Power Plants. — Final Report of the European Fusion Power Plant Conceptual Study, EFDA (European Fusion Development Agreement) (05)-27/4/10, revision 1 (revision 0: STAC 10/4.1), April 13th, 2005, EFDA-RP-RE-5.0.
- Sebo D.E., Mullen C.K., Longhurst G.R., Carboneau M.L., Sterbentz J.W. Beryllium Waste Transuranic Inventory in the Subsurface Disposal Area, Operable Unit No. 7-13/14. — INEEL/EXT-01-01678. Revision 3. August 2005.
- 6. Cambi G., Cepraga D.G., Di Pace L., Druyts E., Massaut V. The potential presence and minimization of plutonium within the irradiated beryllium in fusion power reactors. Fusion Eng. Des., 2010, vol. 85, pp. 1139—1142.
- 7. ITER Technical Basis ITER EDA Documentation Series № 24. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2002.
- Barabash V., Eaton R., Hirai T., Kupriyanov I., Nikolaev G., Zhanhong Wang, Xiang Liu, Roedig M., Linke J. Beryllium qualification activity for ITER first wall applications. — In: 13th Intern. Workshop on Plasma-Facing Materials and Components for Fusion Applications / 1st Intern. Conference on Fusion Energy Material Science. Rosenheim, Germany, 09—13 May, 2011; https://www.ipp.mpg.de/ippcms/eng/for/veranstaltungen/konferenzen/archiv/2011/03pfmc-13/internal/presentations/I-18_Barabash.pdf.
- Barabash V., Eaton R., Hirai T., Kupriyanov I., Nikolaev G., Zhanhong Wang, Xiang Liu, Roedig M., Linke J. Summary of beryllium qualification activity for ITER first-wall applications. — Physica Scripta, 2011, vol. 2011, T145, 014007; http://iopscience.iop.org/1402-4896/2011/T145/014007.
- Vostok TeleInform. GC «Metropol» will build a factory on Buryatia Ermakovskiy field. 12 June 2013; http://vtinform.ru/vti/142/53950.php (in Russian).
- 11. Novokizhinginskaya Seconary School. Ermakov Gennadiy Alekseevich laureate of the state prize. 2012; http://selorodnoe.ru/vid/show/id3632943/11 (in Russian).
- 12. Encyclopedia Krugosvet. http://www.krugosvet.ru/enc/nauka_i_tehnika/himiya/BERILLI.html?page=0,1 (in Russian).
- 13. Corparation «Metals of East Siberia». Ermakov mining and metallurgical plant. 2013:
- http://mbc-corp.ru/activity /gorsector/ermak/index.wbp (in Russian).
- 14. **Minerals Information: Beryllium Statistics and Information: 2011 Minerals Yearbook: Beryllium (Advance Release).** United States Geological Survey. February 2013; http://minerals.usgs.gov/minerals/pubs/commodity/beryllium/myb1-2011-beryl.pdf.
- 15. Beryllium: creation of high-tech production of beryllium products complex for telecommunications, nanoelectronic devices and other applications in nanotechnology. Project of GC «Metropol», corporation «Metals of East Siberia», RUSNANO and MPhTI, 2011; http://drec.mipt.ru/faculty/report2011/Beryllium-arpgyh9lgzh (in Russian).
- 16. Longhurst G.R., Rohe R.D. Beryllium use in the Advanced Test Reactor. In: 8th IEA Intern. Workshop on Beryllium Technology. Lisbon, Portugal, 5—7.12.2007.
- Alves E., Alves L.C., Franco N., Da Silva M.R., Paúl A. Structural and oxidation studies of titanium beryllides. In: Proc. of the 7th IEA Intern. Workshop on Beryllium Technology. Santa Barbara, California, USA, 29 November — 2 December 2005, INL/EXT-06-01222, February 2006, Editor Glen R. Longhurst, pp. 43—46.
- 18. **Barabash V.** Chemical composition and some properties of materials for the ITER in-vessel components for type B radioactive waste assessment. Internal ITER Document, ITER Document Management (IDM) № ITER_D_2DKPK7 v1. 3, 24.05.2010 (unpublished).
- Han J.R., Chen Y.X., Han R., Feng K.M., Forrest R.A. Activation analysis and waste management of China ITER helium cooled solid breeder test blanket module. — Fusion Eng. Des., 2010, vol. 85, pp. 761—765.
- Kupriyanov I.B., Khomutov A.M., Nikolaev G.N., Gorlevsky V.V., Markushkin Yu.E., Chakin V.P., Gervash A.A., Kalashnikov A.N., Kolbasov B.N. Status of beryllium R&D activities in Russian Federation. — In: Proc. 7th IEA Intern. Workshop on Beryllium Technology. Santa Barbara, California, USA, 29 November — 2 December 2005, INL/EXT-06-01222, February 2006, Editor Glen R. Longhurst, pp. 8—16.
- Kupriyanov I.B., Borisov A.A., Gorlevskaja N.G. Investigation of uranium content in Russian Federation beryllium. Fusion Science and Technology, 2012, vol. 62, pp. 180—184.
- 22. Khripunov V.I. 3-D study of PFC and dust activation in ITER. In: 22th IAEA Fusion Energy Conf. Geneva, Switzerland, October 13—18, 2008.
- Boccaccini L.V., Ciattaglia S., Meyder R., Jin X. Review of accidental safety studies for the European HCPB test blanket system. — Nucl. Fusion, 2007, vol. 47, S436—S441.
- 24. Giancarli L. Major step forward for the Test Blanket Modules Program. ITER Newsline, № 223, 18 May 2012.
- Kolbasov B.N., Belyakov V.A., Bondarchuk E.N., Borisov A.A., Kirillov I.R., Leonov V.M., Shatalov G.E., Sokolov Yu.A., Strebkov Yu.S., Vasiliev N.N. Russian concept for a DEMO-S demonstration fusion power reactor. — In: Proc. of the Eighth Intern. Symp. on Fusion Nuclear Technology. Heidelberg, Germany, 30 September — 5 October, 2007, Part A; Fusion Eng. Des., vol. 83, December 2008, pp. 870—876.

- 26. Foundations of concept for a DEMO-S demonstration fusion power reactor. Part V. The reactor site. The external systems. Cost estimation of plant construction with the reactor DEMO-S. The station operating safety and the environmental effects. RF Project DEMO. RRC «Kurchatov insitute», NFI, Moscow, 2001 (in Russian).
- 27. Basic sanitary rules for radiation safety support (BSRRSS-99/2010). Sanitary rules and normals (SR 2.6.1.2612-10). M.: The Federal service on supervision in sphere of protection of consumers and human welfare in Russian Federation, 2010; http://nucloweb.jinr.ru/nucloserv /inform/instructions/osprb-99-2010.pdf (in Russian).
- 28. Forrest R.A. The European Activation System: EASY-2003, Overview, EASY Documentation Series, UKAEA Fus484, EURATOM/UKAEA Fusion Association, 2002.
- 29. Standards for radiation safety (SRS-99/2009). Sanitary rules and normals (SanR&N 2.6.1.2523-09/2009). M.: Russia Health Ministry, 2009; http://www.complexdoc.ru/ntd/534510 (in Russian).
- Zucchetti M., Di Pace L., El-Guebali L., Kolbasov B.N., Massaut V., Pampin R., Wilson P. The back end of the fusion materials cycle. — Fusion Sci. Technol., 2009, vol. 55, pp. 109—139.
- 31. IAEA. Application of the Concepts of Exclusion, Exemption and Clearance. Safety Standards Series, № RS-G-1.7. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2004; http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/Pub1202_web.pdf.
- 32. EC-RP. Radiation Protection 122 Practical Use of the Concepts of Clearance and Exemption, Guidance on General Clearance Levels for Practices. European Commission, Directorate General for the Environment. 2000. Available at:http://ec.europa.eu/energy/nuclear/radioprotection/publication/doc/122_part1_en.pdf.
- 33. Kaszynski D., Sato K., Savchuk V.V., Shestakov V.P. Reducing the cost of S-65C grade beryllium for ITER first wall applications. In: Proc. of the 6th IEA Intern. Workshop on Beryllium Technology for Fusion. Miyazaki City, Japan, December 2—5, 2003, pp. 90—94.
- Kolbasov B.N., Bartenev S.A., Gotovchikov V.T., Masso V., Tsukketti M., Di Pache L., El-Guebali L., Robinson A. Some technological problems of spent fusion materials management. — VANT. Ser. Termoyadernyi sintez (Problems of Atomic Science and Technology. Ser. Thermonuclear Fusion), 2011, issue 3, pp. 38—53. Electronic version: http://vant.iterru.ru/vant_2011_3/3.pdf and http://elibrary.ru/download/53815896.pdf (in Russian).
- 35. Zemlyanukhin V.I., Il'enko E.I., Kondrat'ev A.N. Radiochemical reprocessing of nuclear fuel. M.: Energoatomizdat, 1989 (in Russian).
- Bartenev S.A., Ciampichetti A., Firsin N.G., Forrest R., Kolbasov B.N., Romanov P.V., Romanovskij V.N., Zucchetti M. Activation and clearance of vanadium alloys and beryllium multipliers in fusion reactors. — In: Proc. of the 24th Symposium on Fusion Technology (SOFT-24). Warsaw, Poland, 11—15 September 2006, Part B; Fusion Eng. Des., 2007, vol. 82, pp. 2885— 2890.
- Andreev D.V., Biryukov A.Yu., Danelyan L.S., Elistratov N.G., Gureev V.M., Guseva M.I., Kolbasov B.N., Kurochkin Yu.Ya., Nevzorov V.N., Stativkina O.V., Zimin A.M. Studies of tritium desorption from beryllium and characterization of erosion products under plasma—beryllium interaction. — Fusion Eng. Des., 1998, vol. 39—40, pp. 465—475.
- Pitts R.A., Corpentier S., Escourbiac F., Hirai T., Komarov V., Kukushkin A.S. et al. Physics basis and design of the ITER plasma-facing components. — J. Nucl. Mater., 2011, vol. 415, S957—S964.
- 39. Doerner R.P. et al. Nucl. Fusion, 2009, vol. 49, p. 035002.

AUTHORS

Kolbasov B.N. NRC "Kurchatov Institute", pl. Kurchatova 1, 123182 Moscow, Russia; Kolbasov_BN@nrcki.ru

Khripunov V.I. NRC "Kurchatov Institute", pl. Kurchatova 1, 123182 Moscow, Russia; khripuv@nfi.kiae.ru

Biryukov A.Yu. NRC "Kurchatov Institute", pl. Kurchatova 1, 123182 Moscow, Russia

Received 29 July 2013 Problems of Atomic Science and Technology Ser. Termoyadernyi sintez, 2013, vol. 36, issue 4, pp.3—12