

Опыт использования титана в качестве конструкционного материала для литиевого детектора солнечных нейтрино

© А.В. Копылов, И.В. Орехов, В.В. Петухов

Институт ядерных исследований РАН,
117312 Москва, Россия
e-mail: beril@inr.ru

(Поступило в Редакцию 29 июля 2011 г.)

Результаты, полученные методом радиоактивных трассеров на специально изготовленной стендовой установке из титана, показали, что окисная пленка лития является ловушкой для извлекаемого из лития бериллия. Не обнаружено какой-либо заметной хемосорбции берилла на поверхности титана. Полученные результаты использованы для разработки и создания литиевого детектора солнечных нейтрино, а также найдут применение при создании ядерно-энергетических установок с жидкометаллическими теплоносителями.

Введение

Вопросы, связанные с созданием радиохимического литиевого детектора солнечных нейтрино, а также его перспективностью для исследования генерации солнечной энергии в CNO-цикле на Солнце, нами подробно рассмотрены в работах [1–3]. Основным моментом здесь является то, что литиевой детектор имеет высокую чувствительность к нейтрино от CNO-цикла на Солнце. Ныне действующие (СуперКамиоканде, Борексино) и планируемые в будущем (LENA, SNO+) электронные детекторы солнечных нейтрино, имея несомненные достоинства в части регистрации борных, бериллиевых, рер- и даже рр-нейтрино, обладают ограниченными возможностями для регистрации нейтрино, генерируемых в CNO-цикле. В то же время, неопределенности, связанные с CNO-циклом, не позволяют в настоящее время завершить построение детальной картины генерации солнечной энергии. Прецизионность в этом вопросе не является излишней, поскольку новая физика часто содержится в поправках, требующих высокой точности измерений. Этот пробел и должен восполнить литиевый детектор. Специфика радиохимического эксперимента имеет много общего вне зависимости от типа мишени, будь то хлорный, галлиевый или литиевый детекторы [4–6]. Ключевым здесь является извлечение нескольких атомов, генерированных солнечными нейтрино в многотонной мишени. В работе [2] авторами было показано, что бериллий эффективно извлекается из расплавленного лития, концентрируясь на его окисных пленках, при этом в качестве конструкционного материала емкостей и трубопроводов, находящихся в контакте с литием, использовалась нержавеющая сталь марки 12X18N10T. Была реализована схема, при которой процедура извлечения бериллия заключалась в очистке лития от бериллия на окисных пленках лития, играющих роль ловушки для атомов бериллия. Затем окисные пленки лития вместе с бериллием смывались смесью воды и этилового спирта с поверхности бака, в котором находился литий до извлечения. Концентрированная щелочь, образовавшаяся в результате смыва, вызывала коррозию стенок литиевых емкостей, при этом вымывалось

также некоторое количество железа и прочих металлов, входящих в состав нержавеющей стали. В щелочной среде эти металлы образуют достаточно сложные интерметаллические соединения, некоторые из которых трудно растворимы. Далее бериллий экстрагировался из водного раствора и концентрировался по методике, изложенной в [7]. В принципе эта методика может быть использована для создания пилотной установки литиевого детектора солнечных нейтрино, однако у нее есть один недостаток. При смыве окисных пленок с поверхности нержавеющей стали определенный процент бериллия оказывается захваченным в осадке, трудно растворимом в большинстве растворителей. Дальнейшая работа по концентрированию бериллия, содержащегося в таком осадке, представляет определенные трудности. Для решения этой проблемы представляется перспективным использование титана в качестве конструкционного материала, поскольку при его взаимодействии со щелочью LiOH не образуются трудно растворимых соединений. Однако в данном случае необходимо убедиться, что бериллий также эффективно будет извлекаться посредством захвата атомов бериллия окисными пленками лития в отсутствие примесей из нержавеющей стали, которые могли бы активировать ловушки атомов бериллия. С этой целью была изготовлена специальная стендовая установка, выполненная целиком из титана.

1. Использование радиоактивных маркеров ^{22}Na и ^7Be

Для контроля извлечения бериллия из лития использовались изотопы ^{22}Na и ^7Be в качестве радиоактивных маркеров, как это описано в работе [1]. Эти изотопы генерировались протонами с энергией примерно 100 MeV на пучке высокоэнергетического протонного ускорителя Института ядерных исследований РАН, в качестве мишени использовался алюминий высокой чистоты. Поскольку пробег протонов с энергией 100 MeV в алюминии составляет примерно 3.6 см, что существенно

больше толщины используемого алюминиевого образца (0.5 cm), атомы ^7Be и ^{22}Na будут распределены по всей его толщине, а не только в поверхностном слое. Это гарантирует однородное распределение атомов бериллия в объеме лития после растворения образца. Данная пара изотопов удобна тем, что натрий, как и алюминий, имеет высокую растворимость в литии, а бериллий трудно растворим. По концентрации ^7Be в отдельных элементах установки можно наблюдать за извлечением бериллия, в то время как однородное распределение ^{22}Na по объему лития указывает на равномерное распределение алюминия по объему и, следовательно, на первоначально равномерное по объему распределение вносимого в литий бериллия. Извлечение бериллия должно проявляться в уменьшении концентрации ^7Be в литии после процедуры извлечения, в то время как концентрация ^{22}Na должна оставаться в нем практически неизменной.

Следует отметить, что при облучении алюминия протонами активность ^{22}Na получается намного выше активности ^7Be . Это создает определенные трудности для измерений, так как спектр импульсов от γ -излучения ^{22}Na маскирует спектр импульсов от ^7Be . Чтобы понизить активность изотопа ^{22}Na проводилась отгонка натрия посредством нагрева облученного алюминия в вакууме в графитовом тигле при температуре выше температуры плавления алюминия, после чего окисная пленка на алюминии стравливалась кислотой. Измерения активности ^7Be до и после травления показали, что этот изотоп не концентрируется в окисной пленке, а распределяется по всему объему алюминиевого образца. После отгонки натрия активности изотопов ^7Be и ^{22}Na становились сравнимыми, что более удобно для дальнейших измерений. Естественно, при отработке методики представляется более привлекательным работать с низкими активностями, но для этого нужен детектор γ -излучения с достаточно высокой эффективностью. Идеальным решением является детектор $\text{NaI}(\text{Tl})$ ввиду его доступности и дешевизны. Конечно, этот детектор, обладая большей эффективностью, значительно уступает по энергетическому разрешению полупроводниковым детекторам, например, германиевому HPGe объемом порядка 100 cm^3 . Для измерений это весьма существенно, так как γ -линия от распада ^7Be на возбужденный уровень ^7Li имеет энергию 478 eV, близкую к наиболее интенсивной линии (аннигиляционный пик 511 keV) от распада ^{22}Na и разрешение детектора $\text{NaI}(\text{Tl})$ недостаточно, чтобы разделить эти пики. В настоящей работе эта проблема решалась путем разложения измеренного спектра на его составляющие по известным калибровочным спектрам от распадов ^{22}Na , ^7Be и фоновый спектр.

2. Методика измерений

Работа проводилась с использованием специально разработанной стендовой установки, изображенной на рис. 1 и 2.

Основная идея, заложенная в конструкцию этой установки — использовать такую геометрию, которая позволила бы многократно повторять процедуру извлечения атомов бериллия из лития с одним и тем же объемом лития простым переворачиванием цилиндра. По сути, установка состояла из двух объемов: исходный 1, где находился литий, содержащий изотопы ^{22}Na и ^7Be до его плавления, и конечный 2, куда поступал литий после плавления. Между ними во фланцевом соединении

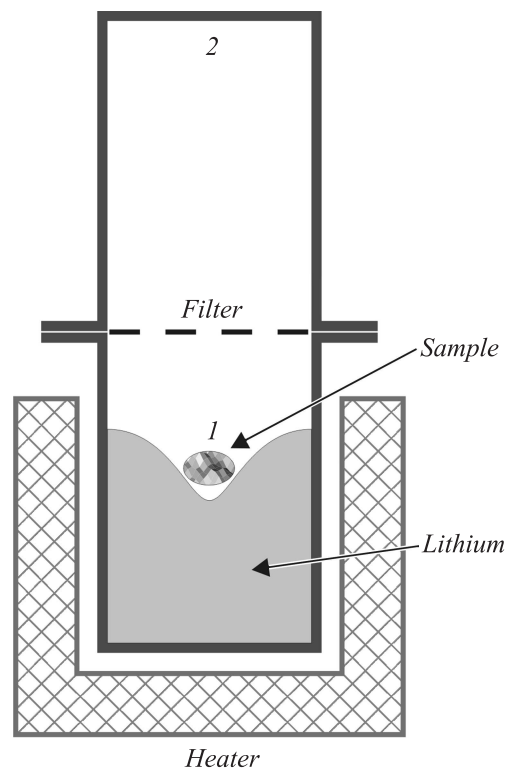


Рис. 1. Растворение алюминиевого образца, содержащего изотопы ^{22}Na и ^7Be . 1 и 2 — титановые цилиндры. Вакуумная арматура не показана.

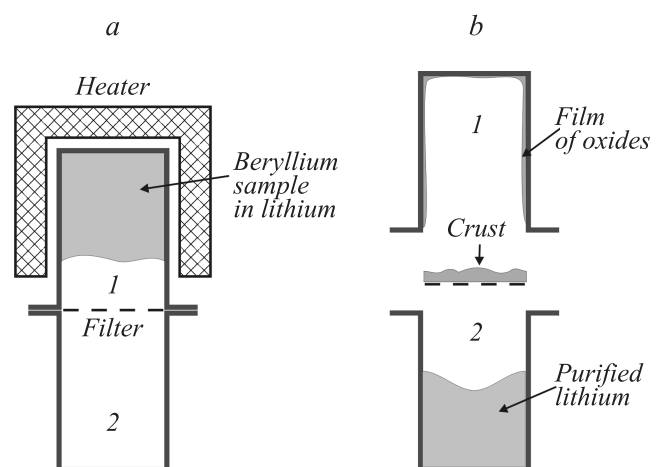


Рис. 2. a — начальный этап: литий сверху, b — конечный этап. 1 и 2 — титановые цилиндры.

Результаты измерений образцов

№	Образец	Активность ${}^7\text{Be}$, % к суммарной	Удельная активность ${}^7\text{Be}$, (Bq/g)/k
1	2	4	5
Извлечение 1. Фильтр — титановый диск с отверстиями диаметром 6 mm			
1	Цилиндр из титана, содержащий приблизительно 980 g лития	53	998 ± 70
2	Смыв с фильтра	3	
3	Смыв корки	0	
4	Смыв со стенок титанового цилиндра	22	
5	Осадок в смыве со стенок титанового цилиндра	18	
6	Корка, снятая с сетки (110 g)	4	
7	Фильтр	0	
Извлечение 2. Фильтр — титановый диск с отверстиями диаметром 6 mm, наложенный на диск со щелью 3 mm			
1	Цилиндр из титана, содержащий приблизительно 850 g лития	40	318 ± 22
2	Фильтр	0	
4	Корка, снятая с фильтра (124 g)	57	
5	Смыв со стенок титанового цилиндра, включая осадок	3	

располагался фильтрующий элемент для удерживания окисных пленок в качестве ловушки для атомов бериллия. Все элементы установки, включая детали фильтрующего элемента, были изготовлены из титана. До начала работы в массу лития загружали порцию облученного на пучке протонов алюминия $5 \times 10 \times 10 \text{ mm}^3$, содержащего изотопы ${}^{22}\text{Na}$ и ${}^7\text{Be}$. После того как расплавленный литий перемещался в нижний объем (рис. 2, *b*), проходя через фильтрующий элемент, установка разбиралась, и затем измерялась активность в отдельных частях установки: нижний объем, верхний объем, фильтрующий элемент, смыв со стенки и т. д.

Затем после замены фильтрующих элементов и просто переворачивания сборки цилиндров можно было приступить к следующему измерению.

3. Измерение содержания ${}^7\text{Be}$ в литии

Содержание ${}^7\text{Be}$ в литии находилось по интенсивности γ -линии 478 keV от распада ${}^7\text{Be}$ на возбужденный уровень ${}^7\text{Li}$. На рис. 3 показаны γ -спектры, полученные с помощью детектора NaI(Tl), в измерении для образцов после извлечения 1 (см. таблицу) за вычитанием фона.

После вычитания подложки методом „сглаживания“, описанным в [8], получаем суперпозицию спектров изотопов ${}^7\text{Be}$ и ${}^{22}\text{Na}$, причем активность последнего можно определить по величине пика 1275 keV. Затем из спектра образца вычитался спектр образцового источника ${}^{22}\text{Na}$, снятого в тех же условиях и приведенного к той же активности, что в результате дает разделение пиков

изотопов ${}^7\text{Be}$ (478 keV) и ${}^{22}\text{Na}$ (511 keV) (рис. 4, образец из извлечения 1).

Чтобы учесть неточечную геометрию образцов, а также разницу в эффективности регистрации γ -квантов различных энергий, измерялась скорость счета от образцового источника ${}^{22}\text{Na}$, располагаемого на различных расстояниях от детектора. Далее для каждого образца разыгрывалось по методу Монте-Карло равномерное по объему распределение точечных источников с энергиями 511 и 1275 keV и определялась расчетная (относительная) средняя эффективность регистрации активности образца.

Это позволило вычислить удельное содержание бериллия в образцах в единицах (Bq/g)/k (k — коэффици-

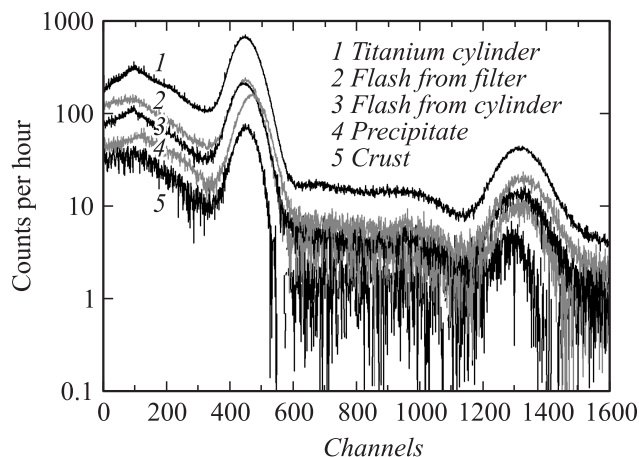


Рис. 3. Спектры образцов из извлечения 1.

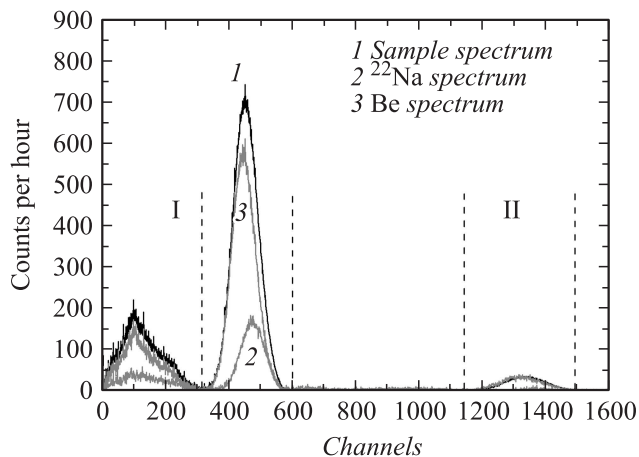


Рис. 4. Разделение пиков. I — область пиков 478 и 511 keV, II — область пика 1275 keV.

ент, связывающий абсолютную и относительную эффективности, который можно определить экспериментально с использованием источника с известной активностью).

Третья колонка таблицы показывает, как распределился бериллий между образцами в конкретном извлечении, а в последней приведена удельная активность ${}^7\text{Be}$ в литии. Перед началом измерений, т. е. после растворения алюминиевого образца, удельная активность ${}^7\text{Be}$ в литии равнялась (1562 ± 109) (Bq/g)/k.

Заключение

Таким образом, нами было показано (сравним последний столбец таблицы и начальную удельную активность ${}^7\text{Be}$ в литии), что в титане, так же как и в нержавеющей стали, окисная пленка на поверхности лития является ловушкой для атомов бериллия, растворенного в литии. Какой-либо заметной хемосорбции ${}^7\text{Be}$ на поверхности титана при этих температурах нами не наблюдалось. Сравнение результатов извлечений 1 и 2 показывает, что при увеличении времени контакта лития с окисной пленкой увеличивается количество атомов бериллия, захваченных этой пленкой, что, в свою очередь, ведет к снижению содержания бериллия в литии в процессе извлечения. Примеси, вымываемые расплавленным литием с поверхности нержавеющей стали при температурах не выше 250°C , не являются решающим фактором, влияющим на эффективность извлечения. Для эффективного извлечения бериллия из лития необходимо обеспечить достаточную большую поверхность контакта струи лития с окисной пленкой на поверхности фильтрующего элемента, при этом заметный вклад в удержание бериллия дает окисная пленка на поверхности цилиндра, которая, хотя и не является частью фильтрующего элемента, но также является ловушкой для извлекаемого бериллия. Это делает практически невозможным реализацию системы извлечения путем сбора извлекаемого бериллия исключительно с

фильтрующего элемента, поскольку в этой схеме будут неизбежны потери бериллия на ловушках вне фильтрующего элемента. Чтобы это стало возможным, нужно создать такие условия, чтобы окисная пленка либо не высаживалась на поверхность цилиндра, либо вообще не образовывалась на поверхности лития. Последнее возможно только при постоянном поддержании высокого вакуума в объеме и потому трудно реализуемо, учитывая масштаб литиевого детектора (20 модулей по 500 kg лития в каждом модуле). Более реалистичной представляется схема, при которой геометрия установки позволяет эффективно извлекать бериллий на пленке, расположенной на поверхности самого цилиндра, а фильтрующий элемент является всего лишь препятствием для смыва потоком лития части окисной пленки с извлеченным бериллием в объем, смежный с цилиндром, в котором происходит извлечение. Такая схема позволяет также после каждого извлечения приводить литиевую установку в исходное состояние (до извлечения), что гарантирует воспроизводимость получаемых результатов. При конструировании пилотной установки литиевого детектора солнечных нейтрино перечисленные выше соображения должны быть приняты во внимание.

При растворении окисной пленки с удержанным бериллием часть активности бериллия находится в растворе, часть оказывается захваченным в осадке. При использовании титана в качестве конструкционного материала осадок легко растворим в азотной кислоте и не создает какой-либо проблемы для дальнейшего извлечения бериллия и его концентрирования по методике, описанной в [7]. Ключевым здесь является опыт использования этилендиаминтетрауксусной кислоты (EDTA) для разделения бериллия и прочих металлов. Использование EDTA предотвращает экстракцию многих металлов (Fe, Cu, Ni, Mg, Zn, ... [9]) в органическую фазу (CCl_4), в то время как Be надежно экстрагируется в виде ацетилацетоната бериллия. Пары ацетилацетоната бериллия могут быть использованы как счетный газ для пропорционального счетчика или газового электронного умножителя [3]. Другой вариант — использование сборки из полупроводниковых германиевых детекторов для регистрации ${}^7\text{Be}$ по γ -линии 478 keV от распада на возбужденный уровень ${}^7\text{Li}$ [3]. В этом случае атомы ${}^7\text{Be}$, извлеченные из литиевой мишени, необходимо будет сконцентрировать в твердом образце с достаточной низкой концентрацией посторонних примесей. Технология изготовления такого образца описана в работе [10]. В настоящее время нами разрабатываются оба подхода в качестве перспективных для реализации полномасштабного литиевого эксперимента.

В заключение авторы выражают благодарность Б.Л. Жуйкову и В.М. Коханюку за помощь при облучении алюминиевой мишени на пучке протонов Московского сильноточного ускорителя в г. Троицк.

Работа была выполнена при поддержке гранта НШ 3517.2010.2 „Ведущие научные школы“.

Список литературы

- [1] Копылов А.В., Орехов И.В., Петухов В.В., Соломатин А.Е. // ЖТФ. 2009. Т. 79. Вып. 7. С. 133.
- [2] Korylov A., Petukhov V. // Progress in Particle and Nuclear Physics. 2010. Vol. 64. P. 423–425.
- [3] Петухов В.В. Автореф. канд. дис. М., 2010.
- [4] Davis R.Jr., Harmer D.S., Hoffman K.C. // Phys. Rev. Lett. 1968. Vol. 20. P. 1205.
- [5] SAGE Collaboration, Abazov A.I. et al. // Phys. Rev. Lett. 1991. Vol. 67. P. 3332.
- [6] GALLEX Collaboration, Anselmann P. et al. // Phys. Lett. B. 1992. Vol. 285. P. 376.
- [7] Новикова Г.Я. // Автореф. канд. дис. М., 2001.
- [8] Волков Н.Г., Христофоров В.А., Ушакова Н.П. Методы ядерной спектроскопии. М.: Энергоатомиздат, 1990.
- [9] Алимарин И.П., Гибало И.М. // Журн. аналит. химии. 1956. Т. 11. P. 389.
- [10] Filippone B.W., Wahlgren M. // NIMA. 1986. Vol. 243. P. 41.