

ЛИТИЙ В ПРОБЛЕМЕ СОЛНЕЧНЫХ НЕЙТРИНО

М.Н.Арнольдov*, А.В.Копылов, И.В.Орехов**, В.В.Петухов**,
Е.А.Янович****

** ГИЦ РФ-Физико-энергетический институт им. А.И.Лейпунского, г.Обнинск*

*** Институт ядерных исследований РАН, г.Троицк*



Обсуждаются вопросы детектирования солнечных нейтрино промежуточных энергий с помощью металлического литиевого детектора. Рассматриваются возможности выделения на фильтрах бериллия-7, образующегося при взаимодействии нейтрино с литием, приводится схема прототипа литиевого детектора, перечисляются задачи, которые должны быть решены на прототипе детектора.

Исследование солнечных нейтрино является актуальной задачей современной физики. Основной целью этих исследований является получение экспериментального доказательства, что нейтрино имеет массу и лептонное число не сохраняется. В этом случае должны наблюдаться осцилляции нейтрино, т.е. переход нейтрино из одного типа (электронные нейтрино) в другой тип (мюонное или тау-нейтрино). Получение этого доказательства имело бы фундаментальное значение, т.к. означало бы выход за пределы так называемой "стандартной модели", т.е. открытие новой физики. Интерес к этой проблеме значительно возрос в настоящее время, т.к. недавно в эксперименте Суперкамиоканде в Японии были получены свидетельства возможных осцилляций мюонных нейтрино, рождающихся при распаде пи-мезонов, генерированных в атмосфере Земли космическими лучами. Дефицит мюонных нейтрино, наблюдаемый в этом эксперименте, объясняется их переходом в тау-нейтрино на пути от места их рождения до детектора. Эксперименты с солнечными нейтрино позволяют исследовать осцилляции нейтрино электронных. Привлекательность этих экспериментов объясняется тем, что вследствие большого расстояния между Землей и Солнцем, а также сравнительно низкой энергии нейтрино здесь обеспечивается необычайно высокая чувствительность: такие эксперименты способны почувствовать массу нейтрино в диапазоне от 10^{-11} до 10^{-3} эВ.

В настоящее время в мире работают четыре детектора солнечных нейтрино, планируется ввести в строй еще два. Существующие детекторы имеют огромную массу рабочего вещества мишени. Так, черенковский детектор Суперкамиоканде в Японии имеет массу 50 тыс. м³ воды, детектор Садбери в Канаде использует в качестве мишени 1000 м³ тяжелой воды, окруженной многометровой защитой из обычной воды. В ближайшие несколько лет результаты, полученные на этих установках, существенно продвинут исследования в этом направлении. Однако ввиду необычайной сложности экспериментов по регистрации солнечных нейтрино погрешности измерений все еще настолько велики, что не позволяют с достаточной надежностью получить однозначную интерпретацию полученных данных. Для дальнейшего существенного продвижения в этом направлении необходимо сделать следующий шаг, имеющий принципиальное зна-

чение, а именно: измерить эффект от рер-нейтрино. Этот источник дает монохроматическую линию в спектре солнечных нейтрино и поток рер-нейтрино практически не зависит от модели Солнца. В светимости Солнца эта линия является своего рода “стандартной свечой” и поэтому измерение ее интенсивности станет прорывом в этом направлении исследований. Литиевый детектор является единственным на настоящий момент (и на ближайшие пять - десять лет), который способен решить эту задачу. В этом - важность программы постановки этого эксперимента.

Захват нейтрино в литиевом детекторе идет на изотопе ${}^7\text{Li}$, в результате образуется ${}^7\text{Be}$, имеющий период полураспада 53.3 сут. Вследствие высокого сечения реакции захвата нейтрино а также высокого (92 %) содержания изотопа ${}^7\text{Li}$ в естественном литии, этот детектор имеет уникально малую массу: 10 т (~20 м³). Оцениваемая точность измерений при этом составляет 10% за один год наблюдений. Для сравнения можно указать, что такая точность получена на хлорном детекторе массой 600 т за 25 лет измерений.

В качестве мишени будет использован металлический литий. Какие-либо другие соединения лития практически исключаются по соображениям фона. Так, например, наличие водорода приводит к большому фону по каналу (α p, pn), здесь альфа-частицы образуются при распаде ${}^{238}\text{U}$, ${}^{226}\text{Ra}$, ${}^{232}\text{Th}$, которые всегда присутствуют в виде примеси. Наличие вещества с большим атомным весом, чем у лития, приводит к высокому фону по каналу фрагментации ядер мюонами космических лучей. Чтобы решить эти проблемы нужно использовать сверхчистые материалы с концентрацией примесей U, Th на уровне 10^{-11} г/г и размещать установку под землей на слишком большую глубину - около 5000 м водного эквивалента. Все это трудно реализуемо.

Следует отметить, что в настоящее время имеется значительный опыт работы с расплавленным металлическим литием*, в том числе по его глубокой очистке и контролю чистоты, вместе с тем, извлечение ${}^7\text{Be}$ из металлического лития представляет собой сложную технологическую задачу. Это объясняется крайне малым количеством образующегося за время экспозиции ${}^7\text{Be}$: несколько десятков (до сотни) атомов на 10 тыс. кг лития. Однако здесь следует иметь в виду, что перед экспозицией в мишень вводится в виде носителя примерно 1 мкг бериллия. Одним из удобных способов внесения носителя представляется использование бериллиевой бронзы, которая легко растворяется в расплавленном литии. В процессе извлечения литий перемешивается, чем обеспечивается необходимая однородность. Коэффициент извлечения измеряется путем сравнения количества извлеченного бериллия с количеством, внесенным в качестве носителя. Измерения проводятся с помощью химических анализов концентрированных растворов.

Предполагаемый в настоящее время технологический процесс наработки ${}^7\text{Be}$ и его выделения из металлического лития состоит из следующих этапов.

1. Внесение носителя в расплавленный литий, перемешивание расплава.
2. Экспозиция детектора в течение трех месяцев до получения близкого к равновесному количества ${}^7\text{Be}$. В течение этого этапа литий может находиться в детекторе в твердом состоянии при температуре окружающей среды.
3. Выделение бериллия из лития на фильтре. На этом этапе литий в детекторе расплавляется и прогревается до температуры около 300 °C, затем прокачивается через холодильник и через фильтр, на котором бериллий (его соединения) задерживается вследствие уменьшения растворимости соединения бериллия при уменьшении температуры.

4. Осадок на фильтре, содержащий бериллий, подвергается химической обработке, конечной целью которой является концентрирование фильтрата и получение субстан-

* Эти работы велись по инициативе и под руководством академика РАН В.И. Субботина

ции, наиболее пригодной для изготовления абсорбера криогенного детектора с внедренными атомами извлеченного ^7Be . О работах, проведенных в ИЯИ РАН по этому этапу, см. статью Г.Я.Новиковой и В.В.Петухова в этом же номере журнала.

5. Измерение количества атомов ^7Be с помощью криогенного детектора.

Как видно, предлагаемая технология основывается на отфильтровывании осадка, содержащего бериллий, на специальном фильтре. Рассмотрим возможности и особенности этой технологии.

Растворимость бериллия в литии мало исследована. Имеется сообщение [1] о том, что при 1273 К она составляет 0,22 % масс. (0,17 % ат.), кроме того, только в статье [2] приводится зависимость для растворимости бериллия в литии от температуры:

$$\log N_{\text{Be}} = -1,0 - 1190/T,$$

где N - в мольных долях. Эта зависимость была построена всего лишь по трем снятым температурным точкам: 773, 973 и 1073 К. Наименьшую растворимость в литии, согласно данным [3], имеют некоторые металлы, приведенные в табл.1. В ней же для сравнения приведены данные для бериллия по работам [1] и [2].

Таблица 1
Растворимость некоторых металлов в литии (атом. доли)

Металлы	Температура, К	
	$T_{\text{пл лития}} (459 \text{ К})$	1273
Молибден	$2 \cdot 10^{-26}$	$4 \cdot 10^{-8}$
Ниобий	$2 \cdot 10^{-25}$	$6 \cdot 10^{-8}$
Вольфрам	$5 \cdot 10^{-29}$	$3 \cdot 10^{-9}$
Тантал	$2 \cdot 10^{-26}$	$2 \cdot 10^{-8}$
Железо	$2 \cdot 10^{-20}$	$1 \cdot 10^{-5}$
Ванадий	$4 \cdot 10^{-19}$	$9 \cdot 10^{-6}$
Титан	$9 \cdot 10^{-16}$	$6 \cdot 10^{-5}$
Кобальт	$2 \cdot 10^{-10}$	$1 \cdot 10^{-3}$
Бериллий [1]		$1,7 \cdot 10^{-3}$
Бериллий [2]	$2,5 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-2}$
Be_3N_2	$1 \cdot 10^{-50}$	$2 \cdot 10^{-22}$

Из данных, приведенных в таблице, видно, что растворимость бериллия в литии относительно высока даже при температуре вблизи точки плавления лития. Поэтому нарабатываемый за счет солнечных нейтрино за время экспозиции в детекторе бериллий скорее всего будет находиться в растворенном состоянии как в жидком, так и в твердом литии. По этой причине представляется маловероятным, что его удастся высадить на фильтре при охлаждении лития. Однако бериллий является химически активным металлом, бинарные соединения которого термодинамически значительно прочнее соответствующих бинарных соединений лития. Поэтому бериллий в том малом количестве, которое находится в литии, будет находиться в связанной форме, в виде бинарных соединений типа оксида, нитрида, карбида. Рассмотрим эти формы.

Одними из основных примесей в литии являются неметаллические, или, так называемые, газовые примеси - кислород, азот, углерод и водород. Их количество зависит от скорости поступления, скорости очистки и некоторых других факторов. В литии, очищенном с помощью холодных ловушек, это количество приблизительно соответствует концентрации насыщения при температуре выхода лития из холодной ловушки, которая немного превышает температуру замерзания лития; в табл.2 приведены эти концентрации [4].

Таблица 2

Концентрации примесей на выходе из холодной ловушки, 10^{-3} % масс

Примесь	Кислород	Азот	Углерод	Водород
Концентрация	1-2	1-5	0,5	2-4

Эти примеси находятся в литии в форме оксида Li_2O , нитрида Li_3N , карбида Li_2C_2 и гидрида LiH . По-видимому, возможно также существование и сложных оксидных форм. Присутствующий в литии бериллий взаимодействует с этими соединениями, образуя, соответственно, оксид BeO , нитрид Be_3N_2 , карбид BeC . Гидрид бериллия в литии не образуется из-за более высокой термодинамической прочности гидрида лития [4].

В работе [2] анализируются формы, в которых может пребывать бериллий в избытке лития в присутствии примесей кислорода, углерода, азота. На основании анализа термодинамических данных в ней делается вывод о том, что из соединений BeO , Be_2C , Be_3N_2 , BeCO_3 , $\text{Be}(\text{NO}_3)_2$ и $2\text{BeO} \cdot \text{Li}_2\text{O}$ в интервале температур 500-1000 К стабильным в литии является только нитрид лития Be_3N_2 . Его растворимость в литии по тем же данным может быть подсчитана по формуле

$$\log N_N^2 \cdot N_{\text{Be}}^3 = -5.7 - 20300/T,$$

где N - мольные доли. Результаты расчета также приведены в табл.1. Видно, что с большой вероятностью бериллий в форме Be_3N_2 в количествах порядка нескольких десятков мкг будет находиться в нерастворенной форме. При этом можно ожидать, что нитрид бериллия также в нерастворенной форме будет находиться и при температуре 573 К ($N = 7 \cdot 10^{-42}$ мольн. доли). Это значит, что практически во всем интервале температур в детекторе, нитрид бериллия будет пребывать в избыточной фазе. В свою очередь, это приводит к определенным трудностям выделения нарабатываемого ^7Be , т.к. у него имеется возможность выпасть в осадок в любой точке детектора и не обязательно на фильтре. В принципе, при достаточно продолжительном времени непрерывной фильтрации лития осадок нитрида бериллия переместится в самое холодное место литиевого тракта. Однако, т.к. растворимость Be_3N_2 в литии очень мала, поток нитрида бериллия, определяемый разностью концентраций насыщения при температурах фильтра и основной массы лития, будет также очень мал.

Приведенные выше рассуждения, безусловно, требуют экспериментальной проверки, т.к., во-первых, данные по растворимости нитрида бериллия в литии основаны на явно недостаточном материале, и, во-вторых, при столь низких концентрациях примеси механизм ее поведения в растворе может существенно отличаться от механизма для больших концентраций.

В исследовательских работах [5], [6], проведенных в Институте ядерных исследований (ИЯИ РАН), было показано, что бериллий извлекается из металлического лития. Таким образом, принципиально этот метод работает, однако необходимо выполнить большой комплекс работ, чтобы продемонстрировать надежную извлекаемость бериллия в геометрии, близкой к геометрии реальной установки, и отработать всю технологическую цепочку от момента внесения носителя в металлический литий до изготовления абсорбера криогенного детектора с внедренными атомами извлеченного ^7Be . С этой целью в ИЯИ РАН разработан и изготовлен прототип литиевого детектора (ПЛД) [7]. Установка состоит из шести одинаковых секций (см. рис.1), соединенных друг с другом по литию и газу. Пять из них заполнены литием, шестая пустая. Для наработки ^7Be предусмотрен центральный канал, куда помещается Pu-Be источник быстрых нейтронов. Планируется также работа с ^7Be , нарабатанном протонами от космических лучей. На начальном этапе предполагаются исследования с мерными образцами бериллия, коэффициент извлечения будет измеряться только по результатам химических анализов.

После экспозиции литий расплавляется и перекачивается из заполненной секции в пустую через охлаждаемый фильтр. В освободившуюся секцию перекачивается также через фильтр литий из соседней заполненной секции и т.д. по очереди. Фильтрат каждой из секций растворяется в водно-спиртовой смеси, бериллий экстрагируется в органическую фазу, концентрируется и передается для определения количества бериллия. Общая масса лития в ПЛД - 300 кг. Принципиальным моментом является то, что данная конструкция установки позволяет циклически и многократно пропускать литий через фильтры, при этом не происходит перемешивания лития до фильтрации с литием после фильтрации, что значительно ускоряет процедуру извлечения бериллия (в идеале, если бериллий не высаживается на стенках, вместо экспоненциальной кривой извлечения получается линейная зависимость).

Поскольку необходима загрузка в ПЛД чистого лития, предполагается подключение его к литиевому циркуляционному контуру в ГНЦ РФ-Физико-энергетического института. Контур имеет в своем составе холодную ловушку для очистки лития и средства контроля чистоты лития (устройство для отбора проб лития и пробоотборник-дистиллятор). С помощью этих средств литий может быть очищен от неметаллических и основных металлических примесей, а также аттестован на их содержание. Очистку предполагается производить при организации циркуляции одновременно через контур и подключенный к нему ПЛД. Это позволит, в частности, очистить поверхности ПЛД, контактирующие с литием, от адсорбированных примесей.

Основные задачи литиевой технологии, которые должны быть решены с помощью циркуляционного стенда и ПЛД, следующие:

- сформулировать требования к исходной чистоте лития, загружаемого в ПЛД, а также обеспечить выполнение этих требований путем разработки технологии подготовки и очистки лития и аттестации его качества;
- выбрать наиболее оптимальный метод извлечения ^7Be из лития; пока апробировано фильтрование; однако могут оказаться перспективными и альтернативные методы, к которым могут быть отнесены, например, сорбционные методы; они пока еще совершенно не развиты применительно к литию, но для других металлических расплавов демонстрируют хорошие результаты;
- обосновать выбор фазового состояния лития в детекторе во время экспозиции: твердое или расплав;

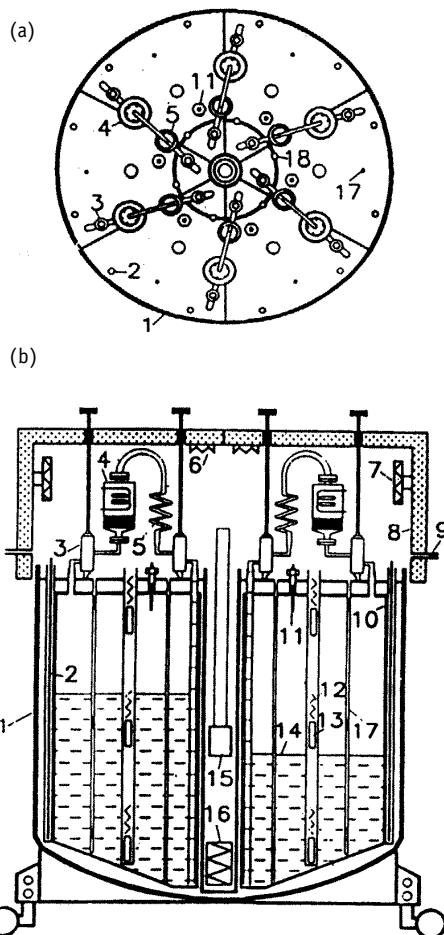


Рис.1. Схема литиевого детектора: 1 - внешняя оболочка; 2 - нагреватель; 3 - клапаны для жидкого лития; 4 - ловушки; 5 - теплообменники; 6 - термодатчики; 7 - нагреватели; 8 - термоизоляция; 9 - входные и выходные воздушные трубки; 10 - секции с литием; 11 - индикатор уровня; 12 - термодатчики; 13 - нагреватели; 14 - расплавленный литий; 15 - нейтронный источник; 16 - нагреватель; 17 - каналы для термодатчиков

- отработать режимы извлечения бериллия из лития (температура и скорость фильтрации), обеспечивающие максимальный коэффициент извлечения, а также выбрать наиболее оптимальную температуру основного объема лития;

- выбрать конструктивные параметры штатного детектора, в том числе, материал и соотношение объема и поверхности детектора, имея в виду, что достаточно развитая поверхность, с которой контактирует литий, может оказаться эффективным адсорбентом для бериллия.

Завершение этой работы позволит приступить к созданию полномасштабного детектора солнечных нейтрино на 10 т лития.

Академик В.И. Субботин является инициатором и вдохновителем работ по технологии литиевого теплоносителя в СССР. Авторы искренно благодарят его за научное руководство этими работами.

Список литературы

1. *Borgsted H.U., Mathews C.K.* Applied Chemistry of the Alkali Metals. New York and London: Pentium Press, 1987. 282 p.
2. *Migge H.* Thermodynamic Stability of Ceramic Materials in Liquid Metals illustrated by Beryllium Compounds in Liquid Lithium. // Jour. Nucl. Materials. – 1981. - № 103&104. - P. 687-692.
3. *Грязнов Г.М., Евтихин В.А., Завяльский Л.П. и др.* Материаловедение жидкометаллических систем термоядерных реакторов. - М.: Энергоатомиздат, 1989. - 240 с.
4. *Субботин В.И., Ивановский М.Н., Арнольдов М.Н.* Физико-химические основы применения жидкометаллических теплоносителей. - М.: Атомиздат, 1970.
5. *Веретенкин Е.П., Гаврин В.Н., Янович Е.А.* // Атомная энергия. – 1985. - Т.58. - С.65-66.
6. *Гаврин В.Н. и Янович Е.А.* // Известия АН СССР (физическая секция). – 1987. - №6. - С.51-52.
7. *Даньшин С.Н., Зацепин Г.Т., Копылов А.В. и др.* Проблема солнечных нейтрино и радиохимический литиевый детектор // Физика элементарных частиц и атомного ядра. – 1997. - Т.28. - Вып.1. - С.5-12.

Поступила в редакцию 25.05.99.

(Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) - Obninsk, 1999. - 9 pages, 1 illustration. - References, 14 titles.

Results of development of the method of processing radioactive wastes of alkali metals used as the coolant in NPP are given. The method includes processing and conditioning of the products of processing for the ecologically safe long-time burial. Dispersion of an alkali metal on the solid inert carrier, dissolution and low baking into geocement stone are described. The features of the technological procedure and properties of a final product are shown.

УДК 621.039.53

The Basic Stages of Examinations of Corrosion in Liquid Metals \V.A. Ivanov, V.A. Solovjev; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) - Obninsk, 1999. - 4 pages, 1 illustration. - References, 7 titles.

The development stages of the corrosion of structural materials in liquid metals is classified and the prediction of essential works necessary for the development of an expert system and for the formulation of theoretical principles of the liquid metal corrosion is made.

УДК 621.039.553

On Physicochemical Similarity of Liquid Metal Loops \A.L. Shimkevich, B.A. Shmatko; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) - Obninsk, 1999. - 9 pages, 1 table, 4 illustrations. - References, 13 titles.

Derivation of the criterion of physicochemical similarity of circulating systems based on the solution of a nonuniform transport equation for technological impurities in the liquid metal coolants is shortly considered. The behaviour of a thermodynamic activity of oxygen in nonisothermal loops with the lead-bismuth coolant investigated by monitoring method is discussed. The accent is made on Permissible Activity Domain (PAD) related to normal operation of loops with lead-bismuth coolant.

УДК 681.128:538.4

Electromagnetic Flowmeters for Lead-Bismuth Eutectic Alloy \N.I. Loginov; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) - Obninsk, 1999. - 9 pages, 4 illustrations. - References, 7 titles.

Some methods of elimination of influence of contact electric resistance between a liquid lead-bismuth alloy and a stainless steel pipe on accuracy of measurement by the electromagnetic flowmeters are considered.

The constructions of the flowmeter permitting to realize these methods and providing the accuracy of flow measurement with an error 2,5...5% are offered. The method of measurement of the contact resistance is proposed, and experimental data on the contact resistance as a function of temperature and concentration of oxygen in alloy are published for the first time.

УДК 530.1:536.4

Oxygen Inhibition of Structural Materials in Melts of Lead-Bismuth Eutectic and Lead \B.F. Gromov, G.S. Yachmenev, A.Eu. Rusanov; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) - Obninsk, 1999. - 8 pages, 3 tables. - References, 4 titles.

Experimental data related with influence of the concentration of dissolved oxygen on corrosion resistance of steels in a lead-bismuth alloy of an eutectic composition and in the lead melt are represented. It is shown, that at fixed concentration of oxygen dissolved in coolant steel is passivated: the protective oxide film Me_3O_4 , Me_2O_3 (where Me - Fe, Cr, Si etc. - the steel components with high affinity to oxygen) forms on its surface. The oxide film essentially hampers the action of aggressive liquid-metal medium on a material. The most effective influence on protective properties of an oxide film renders a steel doping of steel with silicon ($\sim 1\div 3\%$ by mass).

УДК 669.884:539.12

Lithium in the Problem of Solar Neutrino \M.N. Arnoldov, A.V. Kopylov, I.V. Orekhov, V.V. Petuhov, Eu.A. Janovich; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) - Obninsk, 1999. - 6 pages, 2 tables, 1 illustration. - References, 7 titles.

The problems of detection of the solar neutrino of intermediate energies by means of the metallic lithium detector is discussed in the paper. The possibility of extraction the product of neutrino-lithium interaction, i.e. beryllium-7 from lithium, by filtering of lithium at temperature close to its melting temperature are described.

УДК 621.039.534

Extraction of Microquantities of Beryllium from Aqueous Solutions of Lithium \G.Ja. Novikova, V.V. Petuhov; Editorial