

ЛИТИЙСОДЕРЖАЩИЕ РАДИАТОРНЫЕ МАТЕРИАЛЫ ДЛЯ НЕЙТРОННЫХ ИОНИЗАЦИОННЫХ КАМЕР

Басков П.Б., Саламаха Б.С., Глазюк Я.В., Намакшина А.А., Бондаренко С.А., Мушин И.М., Худин А.С.

АО «НИКИЭТ»,
107140, г. Москва, пл. Академика Доллежала, д. 1, к. 3



Представлены результаты материаловедческих исследований, направленных на создание композитных радиаторных покрытий ионизационных камер (ИК), содержащих изотоп ${}^6\text{Li}$, преобразующих нейтронное излучение в поток высокоэнергетических заряженных частиц посредством ядерной реакции ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$. Предложенный способ формирования литийсодержащих радиаторных покрытий позволяет обеспечить высокую термостойкость до 600°C и механическую прочность за счет адгезии к материалу электродов ИК (сталь марки 12Х18Н10Т). Преимущества литийсодержащего радиатора по сравнению с борным обусловлено меньшим сечением взаимодействия ${}^6\text{Li}$ с нейтроном; снижение эффективности преобразования «нейтрон \rightarrow заряженная частица» компенсируется большим энерговыделением и пробегом продуктов реакции в материале радиатора, что позволяет повысить поверхностную плотность атомов ${}^6\text{Li}$, при этом понизить степень «выгорания» в нейтронных полях. Радиатор электрода ИК состоит из двухслойного композитного покрытия, состоящего из адгезионного силикатного слоя и функционального нейтрон-чувствительного слоя фторида лития. Измерения на α -спектрометрической установке показали, что покрытие имеет высокий энерговыход ($\sim 2,8 \cdot 10^{-3}$ МэВ/нейтрон), который остается стабильным после четырехкратных термоциклов до 600°C . Покрытие обладает вибрационной устойчивостью при воздействии частот 35–200 Гц. Представлены результаты испытаний макета ИК с литийсодержащим радиаторным покрытием. При облучении нейтронным потоком $6 \cdot 10^3 \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ значение чувствительности макета ИК составило порядка $10^{-15} \text{ А} \cdot \text{с} \cdot \text{см}^2/\text{нейтрон}$, что согласуется с расчетным значением.

Ключевые слова: детекторы нейтронов, ионизационная камера, композитное радиаторное покрытие, литийсодержащий функциональный слой.

Для цитирования: Басков П.Б., Саламаха Б.С., Глазюк Я.В., Намакшина А.А., Бондаренко С.А., Мушин И.М., Худин А.С. Литийсодержащие радиаторные материалы для нейтронных ионизационных камер. // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2024. – № 4. – С. 56–68. DOI: <https://doi.org/10.26583/ire.2024.4.05>

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время в ядерных энергетических установках для нейтронной диагностики используются ионизационные камеры деления с радиаторными покрытиями на основе изотопов ^{235}U , ^{238}U , ^{232}Th и борные ионизационные камеры (радиатор – изотоп ^{10}B), технология которых была разработана в прошлом столетии.

Необходимость создания новых нейтронных детекторов связана с изменением условий эксплуатации радиационных устройств. В активной зоне современных реакторов достигаются температуры до 600°C , потоки нейтронов до $1 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$, вибрационные нагрузки до 200 Гц [1]. В работах [2–6] для обеспечения нейтронной диагностики современных ядерных установок предлагается расширение температурного диапазона ионизационных камер деления, основанных на электрическом принципе работы, за счет организации на нано- микроуровне гетероструктурных ураноксидных радиаторных покрытий с поверхностной плотностью $1,2 \text{ мг/см}^2$.

В открытых источниках отсутствует информация о материалах на основе изотопа ^6Li , применяемых в качестве радиаторных покрытий ИК. Основные типы нейтрон-детектирующих литийсодержащих материалов – это литий-силикатные стекла [7–9] и кристаллические сцинтилляторы состава $\text{ZnS(Ag)/}^6\text{LiF}$ [10, 11]. Ограничением применения изотопа ^6Li и его соединений в качестве радиаторных материалов ИК является высокая реакционная способность и их летучесть [12, 13].

Применение изотопа ^6Li перспективно для формирования радиаторных покрытий, которые будут характеризоваться меньшим «выгоранием» по сравнению с существующими борными (изотоп ^{10}B) радиаторными покрытиями. Баланс количества активных ядер радиатора определяется по уравнению [14]

$$\frac{dN}{dt} = -\Phi \cdot \sigma \cdot N, \quad (1)$$

где Φ – нейтронный поток; σ – сечение взаимодействия с нейтроном; N – количество активных ядер радиатора; t – время.

Из уравнения (1) следует, что чем больше сечение, тем больше «выгорание» материала радиатора. Сечение ядерной реакции $^6\text{Li}(n, \alpha)^3\text{H}$ (940 барн) в четыре раза меньше, чем у реакции $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ (3840 барн). При этом энерговыделение реакции $^6\text{Li}(n, \alpha)^3\text{H}$ (4,80 МэВ) выше в 1,7 раза, чем у реакции $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ (2,79 МэВ), а пробег продуктов реакции $^6\text{Li}(n, \alpha)^3\text{H}$ больше, чем у $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$. Это позволяет снизить «выгорание» литийсодержащего слоя и повысить его эффективность. Более высокий энерговыход обуславливает использование ИК на основе изотопа ^6Li как в токовом, так и в импульсном режиме регистрации нейтронов. Развитие электронно-компонентной базы и средств вычислительной техники позволяет сегодня регистрировать отдельные акты деления, что может заменить классические камеры деления на основе актиноидов.

ФОРМИРОВАНИЕ ЛИТИЙСОДЕРЖАЩИХ РАДИАТОРНЫХ ПОКРЫТИЙ ЭЛЕКТРОДОВ ИК

Предлагаемый способ получения литийсодержащего радиаторного покрытия ИК – формирование композитного двухслойного покрытия. Адгезия функционального нейтрон-чувствительного литийсодержащего слоя к поверхности нержавеющей стали марки 12Х18Н10Т (материал электродов ИК) будет достигаться при помощи «склеивающего» промежуточного силикатного слоя.

В качестве функциональной основы литийсодержащего радиаторного покрытия выбран фторид лития – наиболее химически и термически стойкое соединение (температура плавления – 848°С).

Фторид-ион как лиганд относительно мал по атомной массе (19 г/моль), что позволит скомпоновать на поверхности как можно больше целевых атомов изотопа ${}^6\text{Li}$. Необходимо учитывать, что толщина формируемого функционального литийсодержащего слоя композитного покрытия должна быть соразмерной с длинами пробега α -частицы и трития в среде фторида лития, которая определяется по уравнению Брэгга-Вульфа [15]

$$\frac{R_1}{R_0} = \frac{\rho_0 \sqrt{A_1}}{\rho_1 \sqrt{A_0}}, \quad (2)$$

где R_0 – пробег α -частицы (трития) в воздухе; R_1 – пробег α -частицы (трития) в среде; ρ_0 – плотность воздуха; ρ_1 – плотность среды; A_0 – молярная масса воздуха; A_1 – молярная масса среды.

Пробеги α -частицы ($R_0=4,5$ мкм) и трития ($R_0=26,1$ мкм) определяли по номограммам соотношения пробега и энергии [16].

Материал промежуточного силикатного слоя в пластичном состоянии механически наносится на поверхность электрода, параметры шероховатости поверхности которого составляют $Ra=5,3$ мкм, $Rz=29,2$ мкм. Материал промежуточного силикатного слоя проникает в микроуглубления поверхности электрода и удерживается в них механически. Тиксотропно затвердевающая силикатная основа также обладает развитой поверхностью с параметрами $Ra=12,3$ мкм, $Rz=23,9$ мкм. Это способствует адгезии осаждаемого тонкодисперсного порошка фторида лития к поверхности промежуточного силикатного слоя, пока последний находится в пластичном состоянии. В процессе сушки окончательно формируется композитное двухслойное покрытие с поверхностной плотностью слоя фторида лития $2,5$ мг/см 2 .

Микроструктура образца композитного радиаторного покрытия приведена на рис. 1. На поверхность промежуточного силикатного слоя толщиной порядка 150–170 мкм нанесен слой фторида лития толщиной в диапазоне 10–20 мкм.

Методом рентгенофазового анализа (РФА) [17] установлено, что силикатная основа промежуточного слоя покрытия, в основном, состоит из альфа-кварца. Дополнительные исследования методом инфракрасной спектроскопии (рис. 2) показывают наличие в составе силикатной основы глинистого минерала (каолинита). Широкая полоса при 1098 см $^{-1}$ обусловлена валентными колебаниями тетраэдров кремний-кислородного каркаса, узкие полосы поглощения при 798, 779 и 695 см $^{-1}$ принадлежат альфа-кварцу. Полосы в области при 515 и 463 см $^{-1}$ принадлежат деформационным колебаниям кремний-кислородных групп альфа-кварца [18]. Узкие линии поглощения с максимумами при 3704 и 3620 см $^{-1}$ совпадают с аналитическими линиями поглощения валентных колебаний гидроксильных

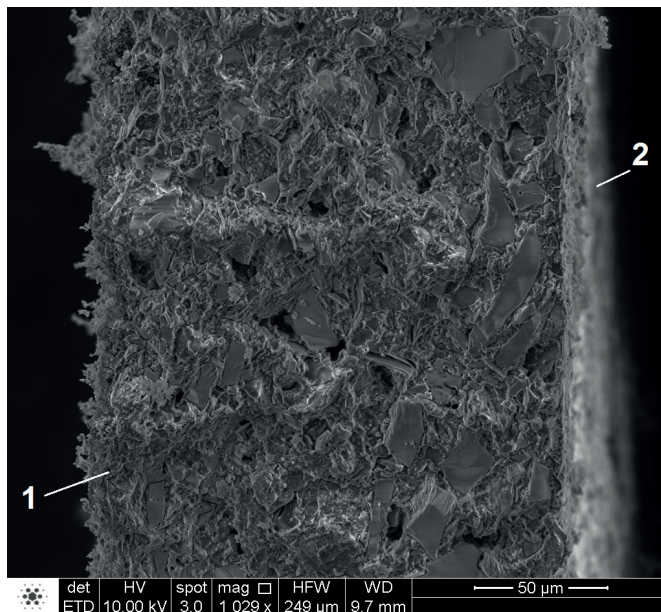


Рис. 1. Микроструктура (поперечный вид) композитного двухслойного покрытия: 1 – промежуточный силикатный слой; 2 – функциональный слой фторида лития

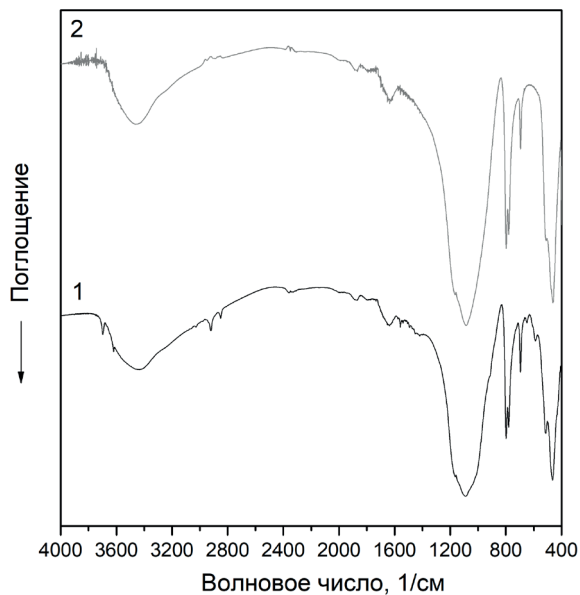


Рис. 2. Инфракрасные спектры поглощения силикатной основы промежуточного слоя композитного покрытия: 1 – до термообработки; 2 – после термообработки при 600°C

групп каолинита [19]. В инфракрасном спектре пробы после термообработки при 600°C наблюдается исчезновение этих полос поглощения, что связано с дегидратацией каолинита. Текстура промежуточного слоя радиаторного покрытия (см. рис. 1) состоит из зерен альфа-кварца (до 30 мкм), которые связаны прожилками каолинита.

Исследование влияния термического воздействия на структуру материалов радиаторного покрытия при помощи метода РФА показало, что после термообработки при 600°C материалы промежуточного силикатного (альфа-кварц, каолинит) и функционального (фторид лития) слоев радиаторного покрытия химически не взаимодействуют друг с другом, поскольку дифрактограмма смеси этих веществ является суперпозицией дифрактограмм альфа-кварца и фторида лития (рис. 3).

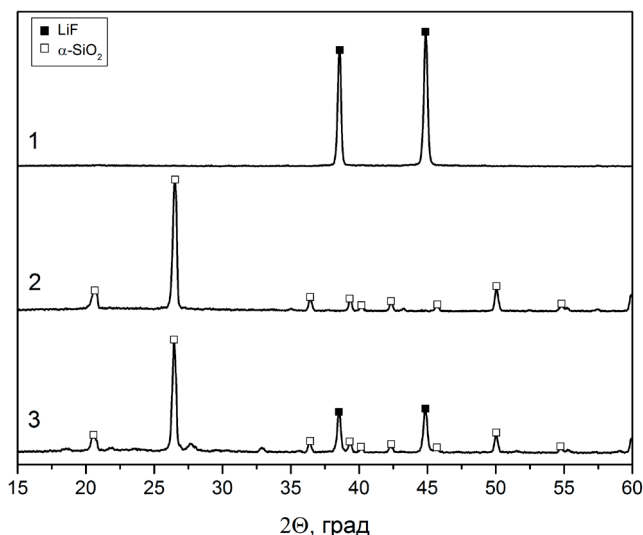


Рис. 3. Дифрактограммы компонентов радиаторного покрытия:
1 – фторид лития после термообработки при 600°C; 2 – силикатная основа после термообработки при 600°C; 3 – смесь фторида лития и силикатной основы (соотношение 1:2) после термообработки при 600°C

ИСПЫТАНИЯ ЛИТИЙСОДЕРЖАЩИХ РАДИАТОРНЫХ ПОКРЫТИЙ НА ВИБРАЦИОННУЮ УСТОЙЧИВОСТЬ

Испытания по устойчивости литийсодержащих радиаторных покрытий к механическим перегрузкам проводились в горизонтальной и вертикальной плоскостях при воздействии вибраций на виброиспытательном стенде ВЭДС-1500. Образцы последовательно подвергались воздействию высокочастотных (200 Гц) вибраций с различной амплитудой ускорения (от 1 до 8g), время выдержки при каждом из режимов составило 30 мин. Установлено, что поверхностная плотность функционального слоя композитного радиаторного покрытия 2,5 мг/см² остается неизменной, следовательно, покрытие сохраняет целостность. Также были проведены испытания композитных покрытий при воздействии низкочастотных резонансных вибраций согласно ГОСТ 29075-91 [20]. Условия испытаний: диапазоны частот 6–8, 8–10, 10–13, 13–16, 16–20, 20–26, 26–35 Гц, амплитуда ускорения 1,5g, время вибрационного воздействия при каждом частотном диапазоне – 15 мин. Изменение вибрации производилось от нижней частоты к верхней с выдержкой на крайней верхней частоте каждого диапазона. Значение поверхностной плотности функционального слоя до и после испытаний осталось неизменным и составило 2,5 мг/см². Результаты испытаний на вибрационную устойчивость свидетельствуют о высоких адгезионных свойствах литийсодержащего радиаторного покрытия.

РАДИОМЕТРИЧЕСКИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ЛИТИЙСОДЕРЖАЩИХ РАДИАТОРНЫХ ПОКРЫТИЙ ЭЛЕКТРОДОВ ИК

Радиометрические испытания образцов электродов с литийсодержащим радиаторным покрытием проводились на экспериментальном стенде при воздействии нейтронного потока $10^4 \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ от Pu-Be-источника. По полученному в результате измерений спектру определяется энерговыход с поверхности радиаторного покрытия, который пересчитывается на удельную чувствительность покрытия по формуле

$$\eta = \frac{\Sigma E}{\Phi_0 \cdot S \cdot \tau} \cdot \frac{e}{\varepsilon} = K \cdot \frac{e}{\varepsilon}, \quad (3)$$

ΣE – суммарный энерговыход радиаторного покрытия, эВ; K – удельный энерговыход радиаторного покрытия, МэВ/нейтрон; ε – энергия ионизации рабочего газа в ИК (аргон), 30 эВ; e – заряд электрона, Кл; Φ_0 – поток нейтронов, $\text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$; S – площадь электрода, см^2 ; τ – время регистрации спектра, с; η – удельная чувствительность радиаторного покрытия, Кл/нейтрон.

На рисунке 4 приведены спектры выходных импульсов для литийсодержащего функционального слоя композитного радиаторного покрытия и промышленного борного радиаторного покрытия камеры КНК-53. На спектре 1 (см. рис. 4) отчетливо виден пик в области 2,75 МэВ, соответствующий тритию, и широкий пик с энергией ниже 2,05 МэВ, относящийся к α -частице. Пики имеют широкую форму из-за частичных потерь энергии в материале радиатора. Энерговыход покрытия при облучении тепловыми нейтронами составил $3,7 \cdot 10^{-3}$ МэВ/нейтрон. Значение удельной нейтронной чувствительности литийсодержащего композитного радиаторного покрытия составило $\eta = 2,0 \cdot 10^{-17}$ Кл/нейтрон.

На спектре 2 (см. рис. 4) видны широкие полосы с энергиями меньше 0,83 МэВ (обусловлены ^7Li), а также 1,47 и 1,7 МэВ (обусловлены α -частицей). Энерговыход покрытия при облучении тепловыми нейтронами составил $0,9 \cdot 10^{-3}$ МэВ/нейтрон. Значение удельной нейтронной чувствительности борного покрытия составило $\eta = 5,0 \cdot 10^{-18}$ Кл/нейтрон.

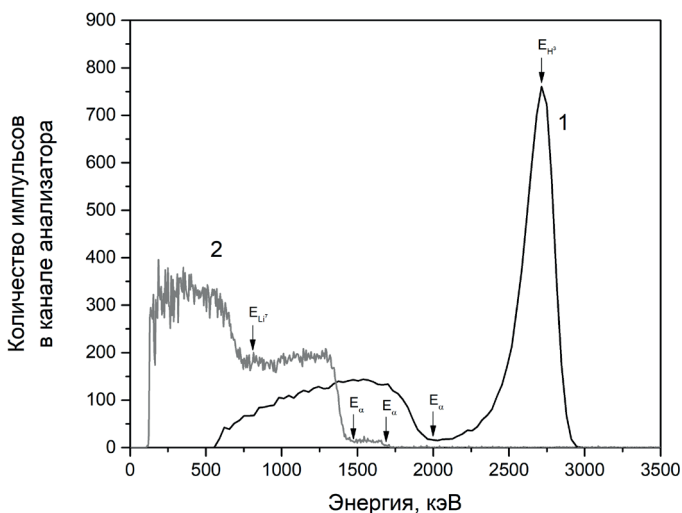


Рис. 4. Спектр выходных импульсов заряженных частиц для образцов электродов: 1 – с литийсодержащим радиаторным покрытием; 2 – с борным радиаторным покрытием камеры КНК-53

Чувствительность литийсодержащего радиаторного покрытия выше в 4,0 раза, а энерговыход в 4,1 раза. Значения соотношений в целом сопоставимы, а небольшое отличие обусловлено различными геометрическими характеристиками электродов.

Образец литийсодержащего радиаторного покрытия был подвергнут термоциклическим испытаниям. Условия отжига при единичном цикле: инертная среда – аргон (абсолютное давление 10^5 Па); температура отжига – 600°C ; время выдержки – 4 часа; скорость нагрева – $5^\circ/\text{мин}$; инерционное остывание. Результаты определения удельной нейтронной чувствительности покрытия в ходе термоциклических испытаний приведены в табл. 1.

Таблица 1

Динамика изменения характеристик функционального слоя литийсодержащего покрытия в ходе термоциклических испытаний

Термоциклические нагрузки	Удельная нейтронная чувствительность η , Кл/нейтрон	Удельный энерговыход К, МэВ/нейтрон	Поверхностная плотность функционального слоя, мг/см ²
До отжига	$2,0 \cdot 10^{-17}$	$3,7 \cdot 10^{-3}$	2,5
1-ый отжиг	$1,5 \cdot 10^{-17}$	$2,8 \cdot 10^{-3}$	1,8
2-ой отжиг	$1,5 \cdot 10^{-17}$	$2,8 \cdot 10^{-3}$	1,8
3-ий отжиг	$1,5 \cdot 10^{-17}$	$2,8 \cdot 10^{-3}$	1,8
4-ый отжиг	$1,5 \cdot 10^{-17}$	$2,8 \cdot 10^{-3}$	1,8

Из приведенных данных следует, что после первого отжига происходит снижение чувствительности, обусловленное термической эмиссией части фторид-литиевого покрытия. При дальнейших термических испытаниях значения удельной нейтронной чувствительности, энерговыхода и поверхностной плотности радиаторного покрытия постоянны с доверительной вероятностью $p = 0,95$. После снижения значения при термоциклических нагрузках удельная нейтронная чувствительность функционального слоя составляет в среднем $1,5 \cdot 10^{-17}$ Кл/нейтрон. Значение удельной нейтронной чувствительности борного радиаторного покрытия камеры КНК-53 при аналогичных термоциклических испытаниях снижается с $5,0 \cdot 10^{-18}$ до $1,0 \cdot 10^{-18}$ Кл/нейтрон, что ниже характеристик литийсодержащего покрытия.

ИК С ЛИТИЙСОДЕРЖАЩИМ РАДИАТОРНЫМ ПОКРЫТИЕМ

На основании полученных данных разработан и изготовлен макет ИК (рис. 5). Камера состоит из двух параллельных пластин (электродных профилей), на каждой из которых закреплены по четыре ранее исследованных образца электродов с литийсодержащим композитным радиаторным покрытием. Электродные профили размещены в цилиндрическом корпусе диаметром 50 мм, межэлектродный зазор 3 мм. Поскольку материал радиатора (фторид лития) является диэлектриком, то для токосъема на поверхности электродных пластин закреплена металлическая сетка из проволоки диаметром порядка 180 мкм (рис. 6). Камера заполнена рабочим газом – аргонем (абсолютное давление $1,2 \cdot 10^5$ Па).

Испытания макета ИК проводились на специальном стенде при облучении потоком нейтронов $6 \cdot 10^3 \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ от Pu-Be-источника. Измерения проведены с помощью контроллера КВВС из комплекса АПК Автотест в токовом режиме. Измеренное значение тока составляет около $5 \cdot 10^{-12}$ А.

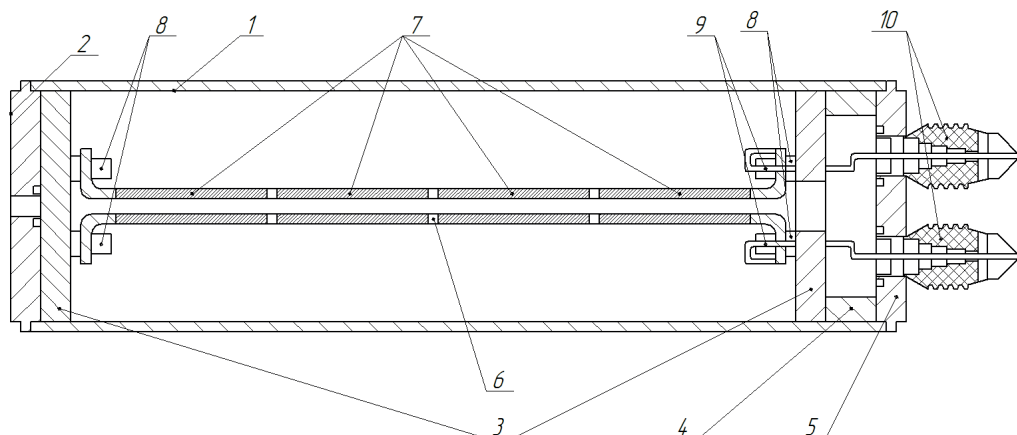


Рис. 5. Макет ИК: 1 – корпус; 2 – фланец; 3 – направляющий диск; 4 – кольцо уплотнительное; 5 – фланец с выводами электродов; 6 – электродный профиль с сеткой; 7 – электроды с литийсодержащим радиаторным покрытием; 8 – опорные изоляторы; 9 – контактные выводы электродов; 10 – электрические изоляторы

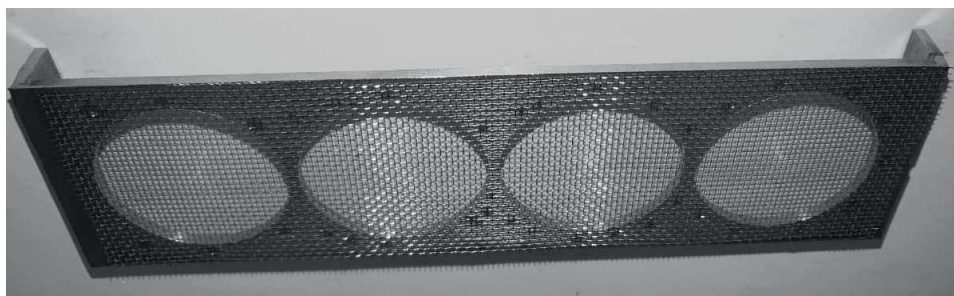


Рис. 6. Электродный профиль с сеткой

Вольтамперная характеристика (ВАХ) макета приведена на рис. 7. Наклон ВАХ при напряжении $U \geq 300$ В составляет $s = 0,02$ %/В, что соответствует нелинейности нагрузочной характеристики θ не более 3,8%. Отклонение от линейности нагрузочной характеристики θ определяется по уравнению [14]

$$\theta = \frac{U \cdot s}{2 + 10^{-2} \cdot U \cdot s}. \quad (4)$$

При суммарной площади радиаторного покрытия $56,5$ см² измеренная чувствительность макета ИК составила $0,8 \cdot 10^{-15}$ А·с·см²/нейтрон, что согласуется с расчетным значением $1,0 \cdot 10^{-15}$ А·с·см²/нейтрон.

Композитное литийсодержащее покрытие показало свою работоспособность в конструкции макета ИК, что говорит о высоком потенциале использования предлагаемого радиаторного материала в устройствах для детектирования нейтронных потоков.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Представлены результаты исследований радиаторного литийсодержащего покрытия с двухслойной композитной организацией структуры на микроуровне, состоящей из промежуточного силикатного слоя и фторид-литиевого функционального нейтрон-чувстви-

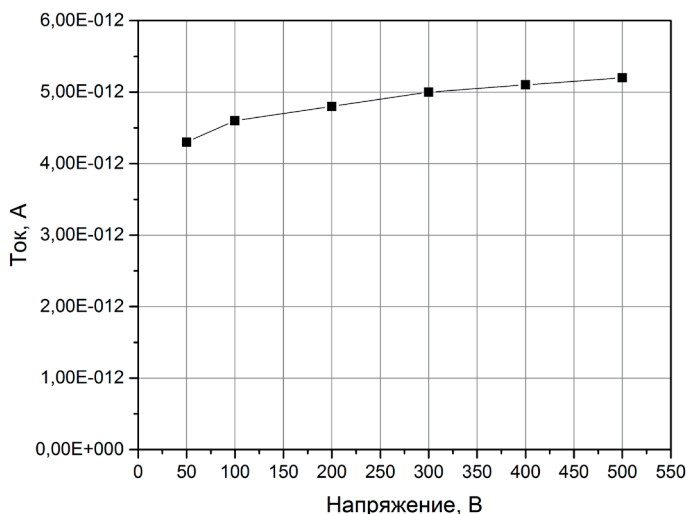


Рис. 7. Вольтамперная характеристика макета ИК с литийсодержащим радиаторным покрытием

тельного слоя заданной толщины (10–20 мкм). Исследование микроструктуры и фазового состава компонентов покрытия показало, что основу промежуточного адгезионного слоя составляют альфа-кварц и глинистый минерал (каолинит). Адгезия функционального слоя фторида лития осуществляется за счет сил, обусловленных развитой поверхностью промежуточного силикатного слоя. Установлено, что покрытие сохраняет целостность после вибрационных испытаний при низкочастотном резонансом до 35 Гц и высокочастотном воздействии 200 Гц.

Проведены исследования радиометрических характеристик литийсодержащего радиаторного покрытия. Значение удельной нейтронной чувствительности составило $\eta = 2,0 \cdot 10^{-17}$ Кл/нейтрон. Данное значение в четыре раза выше, чем у борного радиаторного покрытия промышленной ИК КНК-53. Установлено, что при термоциклических испытаниях при 600°C после первого отжига происходит снижение удельной чувствительности примерно в 1,5 раза, что обусловлено частичной термической эмиссией литийсодержащего слоя. При последующих термоциклах значение удельной нейтронной чувствительности стабилизируется и остается постоянным (порядка $1,5 \cdot 10^{-17}$ Кл/нейтрон).

Впервые продемонстрированы возможности использования изотопа ${}^6\text{Li}$ в качестве компонента радиаторного покрытия ИК датчика регистрации потока нейтронов. Представлены результаты ядерно-физических исследований литийсодержащего радиаторного покрытия в составе разработанного макета ИК. Измеренное значение тока макета ИК составило $5 \cdot 10^{-12}$ А при потоке нейтронов $\Phi = 6 \cdot 10^3 \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ от Pu-Be-источника. Чувствительность макета камеры составила порядка 10^{-15} А·см²/нейтрон. Наклон вольтамперной характеристики макета камеры с литийсодержащим радиаторным покрытием составил 0,02 %/В при напряжении выше 300 В.

Дальнейшие работы будут направлены на совершенствование конструктивных особенностей макета ИК и определение его импульсных характеристик, проведение ресурсных испытаний по повышению чувствительности и стабильности характеристик литийсодержащего радиаторного покрытия при термоциклических испытаниях.

Литература

1. Басков П.Б., Маричев Г.В., Сахаров В.В., Степанов В.А. Ядерно-оптические преобразователи для детектирования сильных нейтронных полей. // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2021. – № 4. – С. 122–132. DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2021.4.11>
2. Сахаров В.В., Басков П.Б., Берикашвили В.Ш., Ивкина О.В., Косов Д.Е., Мосягина И.В., Фролов Н.Н., Шарипова М.А. Оксидная наноразмерная модификация поверхности неорганических материалов. // Российский химический журнал. – 2012. – № 1-2. – С. 36–43. Электронный ресурс: https://elibrary.ru/download/elibrary_18013627_10974709.pdf (дата доступа 01.11.2023).
3. Егоров А.В., Басков П.Б., Сахаров В.В., Мосягина И.В. Ураноксидный радиатор ионизационной камеры деления. – Патент РФ, № 152036. – 2015. Электронный ресурс: https://elibrary.ru/download/elibrary_38370451_98101785.pdf (дата доступа 01.11.2023).
4. Сахаров В.В., Басков П.Б., Мосягина И.В. и др. Химический синтез нейтрон-детектирующих ультратонких оптических материалов. // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2012. – № 4. – С. 130–142. DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2012.4.15>
5. Басков П.Б., Мосягина И.В., Сахаров В.В., Ивкина О.В., Худин А.С., Кириченко Г.П. Малогабаритные ториевые камеры деления для регистрации быстрых нейтронов в реакторных установках. // Атомная энергия. – 2018. – № 1. – С. 34–38. Электронный ресурс: https://elib.biblioatom.ru/text/atomnaya-energiya_t125-1_2018/p34/ (дата доступа 01.11.2023).
6. Глазюк Я.В., Дмитриев А.Б., Федосеев В.А. Высокотемпературная ионизационная камера деления для систем управления и защиты ядерных реакторов. Патент РФ, № 2630260. – 2017. Электронный ресурс: https://elibrary.ru/download/elibrary_38286699_38973367.pdf (дата доступа 01.11.2023).
7. Войтовецкий В.К., Толмачева Н.С. Литий-силикатные сцинтилляционные стекла для детектирования медленных нейтронов. // Атомная энергия. – 1959. – № 4. – С. 472–475. Электронный ресурс: https://elib.biblioatom.ru/text/atomnaya-energiya_t6-4_1959/p472/ (дата доступа 05.11.2023).
8. Войтовецкий В.К., Толмачева Н.С. Сцинтилляционные стекла с повышенным световыходом для детектирования нейтронов. // Атомная энергия. – 1961. – № 5. – С. 504. Электронный ресурс: https://elib.biblioatom.ru/text/atomnaya-energiya_t10-5_1961/p504/ (дата доступа 05.11.2023).
9. Шульгин Б.В., Петров В.Л., Пустоваров В.А. и др. Сцинтилляционные детекторы нейтронов на базе ${}^6\text{Li}$ -силикатного стекла, активированного церием. // Физика твердого тела. – 2005. – № 8. – С. 1364–1367. Электронный ресурс: <https://journals.ioffe.ru/articles/viewPDF/3910> (дата доступа 05.11.2023).
10. Osovitzky A., Pritchard K., Ziegler J., Binkley E., Yehuda-Zada Y., Tsai P., Thompson A., Cooksey C., Siebein K., Hadad N., Jackson M., Hurlbut C., Ibberson R., Baltic G. M., Majkrzak C.F., Maliszewskij N.C. ${}^6\text{LiF}:\text{ZnS}(\text{Ag})$ Mixture Optimization for a Highly Efficient Ultrathin Cold Neutron Detector. // IEEE Transactions on Nuclear Science. – 2018. – Vol. 65. – Iss. 4. – PP. 1025–1032. DOI: <https://doi.org/10.1109/TNS.2018.2809567>
11. Mosset J. B., Stoykov A., Greuter U., Hildebrandt M., Schlumpf N., Van Swygenhoven H. Evaluation of two thermal neutron detection units consisting of $\text{ZnS}/{}^6\text{LiF}$ scintillating layers with embedded WLS fibers read out with a SiPM. // Nuclear Instruments and Methods. – 2014. – Vol. 764. – PP. 299–304. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nima.2014.07.060>
12. Аллен В.Д. Регистрация нейтронов. – М.: Госатомиздат, 1962. – 196 с.
13. Субботин В.И., Арнольдov М.Н., Ивановский М.Н., Мосин А.А., Тарбов А.А. Литий. – М.: ИздАТ, 1999. – 263 с. ISBN 5-86656-088-7.
14. Дмитриев А.Б., Мальшев Е.К. Нейтронные ионизационные камеры для реакторной техники. – М.: Атомиздат, 1975. – 96 с.
15. Болоздыня А.И. Экспериментальная ядерная физика. Лекция № 2. Взаимодействие заряженных частиц с веществом. / Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ». Пре-

зентация 2017. Электронный ресурс: https://enpl.mephi.ru/download/lectures/lect_5.pdf (дата доступа 29.11.2023).

16. Экспериментальная ядерная физика. Том 1. (Под ред. Э. Сегре). – М.: Издательство иностранной литературы, 1955. – 1840 с.

17. Папко Л.Ф., Кравчук А.П. Физико-химические методы исследования неорганических веществ и материалов. – Минск: БГТУ, 2013. – 100 с. ISBN 978-983-530-273-6.

18. Плюснина И.И. Инфракрасные спектры минералов. – М.: МГУ, 1977. – 174 с.

19. Накамото К. Инфракрасные спектры неорганических и координационных соединений. – М.: Мир, 1966. – 411 с.

20. ГОСТ 29075-91. Системы ядерного приборостроения для атомных станций. – М.: ИПК Издательство стандартов, 2004. – 22 с. Электронный ресурс: <https://ohranatruda.ru/upload/iblock/6dd/4294825607.pdf> (дата доступа 29.11.2023).

Поступила в редакцию 10.09.2024

Авторы

Басков Петр Борисович, начальник лаборатории, к.т.н.,

E-mail: baskov_pb@nikiet.ru

Саламаха Борис Семенович, ведущий научный сотрудник,

E-mail: baskov_pb@nikiet.ru

Глазюк Яков Вадимович, заместитель генерального директора, главный конструктор аппаратуры контроля нейтронно-физических параметров,

E-mail: jackov@nikiet.ru

Намакшинас Артур Азарович, ведущий инженер,

E-mail: namakshinas_aa@nikiet.ru

Бондаренко Сергей Алексеевич, главный специалист,

E-mail: bondarenko_sa@nikiet.ru

Мушин Илья Михайлович, ведущий инженер,

E-mail: mushin_im@nikiet.ru

Худин Александр Сергеевич, ведущий инженер,

E-mail: khudin_as@nikiet.ru

UDC 53.083.94/.087; 621.039.531

Lithium-Containing Radiator Materials for Neutron Ionization Chambers

Baskov P.B., Salamakha B.S., Glazyuk Ya.V., Namakshinas A.A., Bondarenko S.A., Mushin I.M., Khudin A.S.

NIKIET JSC,

1 bldg. 3 Acad. Dollezhal Sq., 107140 Moscow, Russia

Abstract

The paper presents the results of material testing for the purpose of obtaining radiator material – composite coating with neutron conversion material – for ionization chambers (IC) which contain the ${}^6\text{Li}$ isotope and convert neutron radiation to a flux of high-energy charged particles through the ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$ nuclear reaction.

The proposed method for forming lithium-containing radiator material allows ensuring a high temperature resistance of up to 600°C and a mechanical strength at the expense of adhesion to the IC electrode material (grade 321 steel). The advantages of a lithium-containing radiator,

compared to a boron radiator, are explained by the smaller cross-section of the ${}^6\text{Li}$ -neutron interaction: the smaller efficiency of the «neutron \rightarrow charged particle» conversion is made up for by a high power density and a prolonged free path of reaction products in the radiator material, which makes it possible to increase the surface density of ${}^6\text{Li}$ atoms, while reducing the extent of «burnup» in neutron fields. The IC electrode radiator material consists of a two-layer composite coating comprising an adhesive silicate layer and a functional neutron-sensitive lithium fluoride layer. Measurements at an alpha spectrometric facility have shown that the coating has a high energy output ($\sim 2.8 \cdot 10^{-3}$ MeV/neutron), which remains stable after four thermal cycles of up to 600°C . The coating is resistant to vibration when exposed to frequencies of 35 to 200 Hz. The paper presents the results of testing the IC mockup with a lithium-containing radiator material. When irradiated with a neutron flux of $6 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, the IC mockup sensitivity value was about $10^{-15} \text{ A} \cdot \text{s} \cdot \text{cm}^2/\text{neutron}$, which agrees with the calculated value.

Keywords: neutron detectors, ionization chamber, radiator material, functional neutron-sensitive lithium fluoride layer.

For citation: Baskov P.B., Salamakha B.S., Glazyuk Ya.V., Namakshinas A.A., Bondarenko S.A., Mushin I.M., Khudin A.S. Lithium-Containing Radiator Materials for Neutron Ionization Chambers. *Izvestiya vuzov. Yadernaya Energetika*. 2024, no. 4, pp. 56–68. DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2024.4.05> (in Russian).

References

1. Baskov P.B., Marichev G.V., Sakharov V.V., Stepanov V.A. Nuclear optical converters for detecting strong neutron fields. *Izvestiya vuzov. Yadernaya Energetika*. 2021, no. 4, pp. 122–132. DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2021.4.11> (in Russian).
2. Sakharov V.V., Baskov P.B., Berikashvili V.Sh., Ivkina O.V., Kosov D.E., Mosyagina I.V., Frolov N.N., Sharipova M.A. Oxide nanolevel modification of the surface of inorganic materials. *Rossiiskij himicheskij zhurnal*. 2012, no. 1-2, pp. 36–43. Available at: https://elibrary.ru/download/elibrary_18013627_10974709.pdf (accessed Nov. 1, 2023) (in Russian).
3. Egorov A.V., Baskov P.B., Sakharov V.V., Mosyagina I.V. *Uranium oxide radiator of the fission ionization chamber*. Patent RF, No. 152036, 2015. Available at: https://elibrary.ru/download/elibrary_38370451_98101785.pdf (accessed Nov. 1, 2023) (in Russian).
4. Sakharov V.V., Baskov P.B., Mosyagina I.V., Frolov N.N., Kurbatkin I.I., Muravyeva T.I., Torskaya E.V., Ivkina O.V., Sharipova M.A. Chemical synthesis of neutron-detecting ultrathin optical materials. *Izvestiya vuzov. Yadernaya Energetika*. 2012, no. 4, pp. 130–142. DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2012.4.15> (in Russian).
5. Baskov P.B., Mosyagina I.V., Sakharov V.V., Ivkina O.V., Khudin A.S., Kirichenko G.P. Small thorium fission chambers for recording fast neutrons in reactor installations. *Atomic Energy*. 2018, vol. 125, no. 1, pp. 33–38. DOI: <https://doi.org/10.1007/s10512-018-0438-x>
6. Glazyuk Ya.V., Dmitriev A.B., Fedoseev V.A. *High-temperature ionization fission chamber for control and protection systems of nuclear installations*. Patent RF, No. 2630260, 2017. Available at: https://elibrary.ru/download/elibrary_38286699_38973367.pdf (accessed Nov. 1, 2023) (in Russian).
7. Voytovetsky V.K., Tolmacheva N.S. Lithium-silicate scintillation glasses for detecting slow neutrons. *Atomnaya energiya*. 1959, no. 4, pp. 472–475. Available at: https://elib.biblioatom.ru/text/atomnaya-energiya_t6-4_1959/p472/ (accessed Nov. 5, 2023) (in Russian).
8. Voytovetsky V.K., Tolmacheva N.S. Scintillation glasses with increased light output for neutron detection. *Atomnaya energiya*. 1961, no. 5, p. 504. Available at: https://elib.biblioatom.ru/text/atomnaya-energiya_t10-5_1961/p504/ (accessed Nov. 5, 2023) (in Russian).
9. Shulgin B.V., Petrov V.L., Pustovarov V.A., Arbuzov V.I., Raikov D.V., Ivanovskikh K.V., Ishchenko A.V. Scintillation neutron detectors based on ${}^6\text{Li}$ -silicate glass activated by cerium. *Fizika tverdogo tela*. 2005,

no. 8, pp. 1364–1367. Available at: <https://journals.ioffe.ru/articles/viewPDF/3910> (accessed Nov. 5, 2023) (in Russian).

10. Osovitzky A., Pritchard K., Ziegler J., Binkley E., Yehuda-Zada Y., Tsai P., Thompson A., Cooksey C., Siebein K., Hadad N., Jackson M., Hurlbut C., Ibberson R., Baltic G.M., Majkrzak C.F., Maliszewskij N.C. ⁶LiF:ZnS(Ag) Mixture Optimization for a Highly Efficient Ultrathin Cold Neutron Detector. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 2018, v. 65, iss. 4, pp. 1025–1032. p. 9. DOI: <https://doi.org/10.1109/TNS.2018.2809567>

11. Mosset J. B., Stoykov A., Greuter U., Hildebrandt M., Schlumpf N., Van Swygenhoven H. Evaluation of two thermal neutron detection units consisting of ZnS/⁶LiF scintillating layers with embedded WLS fibers read out with a SiPM. *Nuclear Instruments and Methods*. 2014, v. 764, pp. 299-304. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nima.2014.07.060>

12. Allen V.D. *Neutron registration*. Moscow. Gosatomizdat Publ., 1962, 196 p. (in Russian).

13. Subbotin V.I., Arnoldov M.N., Ivanovsky M.N., Mosin A.A., Tarbov A.A. *Lithium*. Moscow. Izdat Publ., 1999, 263 p. ISBN 5-86656-088-7 (in Russian).

14. Dmitriev A.B., Malyshev E.K. *Neutron ionization chambers for reactor equipment*. Moscow. Atomizdat Publ., 1975, 96 p. (in Russian).

15. Bolozdynya A.I. Experimental nuclear physics. Lecture № 2. Interaction of charged particles with matter. Available at: https://enpl.mephi.ru/download/lectures/lect_5.pdf (accessed Nov. 29, 2023) (in Russian).

16. *Experimental nuclear physics. Volume 1. (Edit. E. Segre)*. Moscow. Foreign Literature Publ., 1955, 1840 p. (in Russian).

17. Papko L.F., Kravchuk A.P. *Physico-chemical methods of research of inorganic substances and materials*. Minsk: BSTU Publ., 2013, 100 p. ISBN 978-983-530-273-6 (in Russian).

18. Plyusnina I.I. *Infrared spectra of minerals*. Moscow. Moscow State University Publ., 1977, 174 p. (in Russian).

19. Nakamoto K. *Infrared spectra of inorganic and coordination compounds*. Moscow. Mir Publ., 1966, 411 p. (in Russian).

20. GOST 29075-91. *Nuclear instrumentation systems for nuclear power plants*. Moscow. IPK House of Standards Publ., 2004, 22 p. Available at: <https://ohranatruda.ru/upload/iblock/6dd/4294825607.pdf> (accessed Nov. 29, 2023) (in Russian).

Authors

Petr B. Baskov, Head of the laboratory, Cand. Sci. (Engineering),

E-mail: baskov_pb@nikiet.ru

Boris S. Salamakha, Leading researcher,

E-mail: baskov_pb@nikiet.ru

Yakov V. Glazyuk, Deputy general director, Chief designer of neutron physics parameter monitoring equipment,

E-mail: jackov@nikiet.ru

Artur A. Namakshinas, Leading engineer,

E-mail: namakshinas_aa@nikiet.ru

Sergey A. Bondarenko, Main Expert,

E-mail: bondarenko_sa@nikiet.ru

Ilya M. Mushin, Leading engineer,

E-mail: mushin_im@nikiet.ru

Alexander S. Khudin, Leading engineer,

E-mail: khudin_as@nikiet.ru