第38卷第1期 原 子 能 科 学 技 术 Vol. 38 ,No. 1
2004年1月 Atomic Energy Science and Technology Jan. 2004

中子辐照后^{6}Li-Al 合金靶片中氚的测量方法研究

程贵钧,曹小华,杨本福,龙兴贵,张祖华,颜登云,王维笃
(中国工程物理研究院 核物理与化学研究所,四川 绵阳 621900)

摘要:建立了流气式系统捕集和化学转移法测量^{6}Li-Al 合金靶片在中子辐照过程中的渗漏氚和辐照后靶片中总氚量的方法。渗漏氚的捕集方法是:在流气式系统中,用含少量氢的惰性载气将渗漏氚载带出来,经高温催化氧化后被乙二醇鼓泡器捕集;靶片中的氚转移法是用 NaOH 溶液将合金靶片溶解,气相中的氚采用渗漏氚的捕集方法捕集,液相中的氚则蒸馏到馏分中。最后用液体闪烁计数器分别测量乙二醇鼓泡器和馏分中的氚量。测量结果与理论氚产量基本相符。

关键词:中子辐照;产氚靶件;^{6}Li-Al 合金;氚测量
中图分类号:TQ122.1 **文献标识码**:A **文章编号**:1000-6931(2004)01-0025-04

Study on Tritium Measurement Method for Irradiated ^{6}Li-Al Alloy Target by Neutron

CHENG Gui-jun, CAO Xiao-hua, YANG Ben-fu, LONG Xing-gui,
ZHANG Zu-hua, YAN Deng-yun, WANG Wei-du
(China Academy of Engineering Physics, P. O. Box 919-220, Mianyang 621900, China)

Abstract: The method of tritium measurement for irradiated ^{6}Li-Al alloy target by neutron is studied. The measurement is concerned in both the leakage tritium during neutron irradiation and the produced total tritium in the target. The procedure of the leakage tritium measurement is that tritium in the tritium target sample is carried by a mixture of inert gas and hydrogen, then tritium is captured by ethanediol in two catchpots, and the tritium activity in the ethanediol is measured by scintillation counter. The measurement procedure of total tritium in the target is that the alloy target is dissolved in NaOH solution, the tritium in gaseous phase is measured by the means of the measurement of the leakage tritium simultaneously, and then the tritium in liquid phase is distilled triply and measured by the scintillation counter. The measured tritium activities is close to the theoretical value.

Key words: neutron irradiation; tritium target; ^{6}Li-Al alloy; tritium measurement

收稿日期:2002-10-21;**修回日期**:2003-01-08
作者简介:程贵钧(1975—),男,四川泸州人,实习研究员,应用化学专业

© 1994-2006 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

在反应堆产氚靶件预先研究中,需测量中子辐照后^{6}Li-Al 合金靶片的氚产量。目前,固体氚制剂中氚的测量方法主要有开窗式计数管、放射性自显影和利用韧致辐射的 X 射线测量法[1]等。^{6}Li-Al 合金靶片被铝包壳密封,氚的弱 β射线难以穿透铝包壳,利用射线直接测量难度较大。因此,在测量之前需将被测氚制剂转化为可测形态。参照固体增殖剂产氚研究中采用的载气中氚的测量方法[2],将靶片化学溶解,氚被载气载带出来,用乙二醇鼓泡器捕集,最后用液体闪烁计数器测量,建立一种合金靶片氚产量的测量方法,以分别测量^{6}Li-Al 合金靶片在中子辐照过程中的渗漏氚和辐照后靶片中的总氚量,为^{6}Li-Al 合金靶件产氚条件的预先研究提供必要的检测手段。

1 实验

1.1 实验装置

捕集渗漏氚的流气式系统示于图 1。系统各单元的特性参数列于表 1。

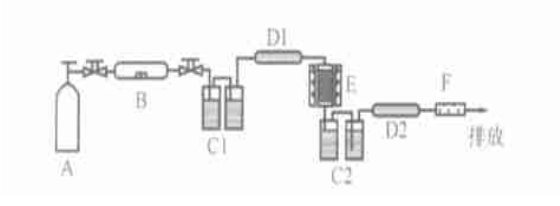

图 1 流气式系统示意图

Fig. 1 Capture system of seeping tritium

A ——载气源;B ——样品室;

C1、C2 ——乙二醇鼓泡器;D1、D2 ——分子筛床;

E ——氧化床;F ——监测电离室

表 1 流气式系统各单元的参数

Table 1 Parameter of units in gas flow system

单元	工作条件和参数
氧化床	Hopcalite, 70 g, 773 K
分子筛床	5A 分子筛
鼓泡器(两级)	乙二醇, 20 mL ×2
监测电离室	体积 0.1 L, 本底电流 2×10^{-14} A

实验样品置于图 1 的样品室 B 中,B 中的黑点即为铝包壳及其密封的^{6}Li-Al 合金芯体(合称靶片),其外层为石英玻璃,靶片被石英玻璃真空密封。

1.2 实验方法

1) 辐照过程中^{6}Li-Al 合金靶片渗漏氚的捕集及测量

在样品室 B 中将石英安瓿敲破,用含 1% H_2 的干燥载气 Ar 将渗漏到石英瓶中的氚载带出来。其中,HTO 被乙二醇鼓泡器 C1 捕集,氚气则经氧化床 E 高温催化氧化后被乙二醇鼓泡器 C2 捕集,最后用液体闪烁计数器测量乙二醇中的氚活度。C1 和 C2 两个鼓泡器中的氚量即为中子辐照过程中靶片渗漏到石英瓶中的氚量。系统中的监测电离室 F 主要对系统尾气中的氚进行监测。

2) ^{6}Li-Al 合金靶片中氚的转移及测量

将^{6}Li-Al 合金靶片从样品室 B 中取出,置于 NaOH 溶液 G 中,迅速以 G 代替 B 接入流气式系统。靶片溶解过程中产生的含氚气体经氧化床 E 高温催化氧化后,被乙二醇鼓泡器捕集。溶解后如有浑浊,则经离心分离,上清液经 3 次蒸馏,用液体闪烁计数器测量馏分的氚活度;残渣则经蒸馏水浸泡,用液体闪烁计数器测定水中的氚活度。气体、馏分和残渣中的氚活度之和即为^{6}Li-Al 合金靶片中的总氚量。

气相中的氚采用在线捕集的方法,即在反应过程中,在载气 Ar 的流动下将氚载带出来,经氧化后被乙二醇鼓泡器捕集。监测电离室 F 主要对系统尾气中的氚进行监测。

2 结果与讨论

本测量方法改变了样品的物理化学形态,将固体合金靶片中的氚转移到气相和液相中,最终配制成液体样品。推荐分析流程示于图 2。

在氚转移过程中,影响氚测量的主要因素有气相中的氚损失和液相氚转移过程中的氚损失。

2.1 气相中的氚损失

对气相氚而言,氚量的损失主要源于系统材料的氚吸附、乙二醇捕集效率和氧化床的氧化效率及其氚滞留等。

1) 系统材料的氚吸附

本系统的材料包括玻璃、乳胶管、聚四氟乙烯、氧化床材料 Hopcalite 和分子筛等。氚在材料中有一定的吸附,但在含有 H_2 的载气中,氢同位素交换作用大大减少了氚在运动过程中的损失。

© 1994-2006 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

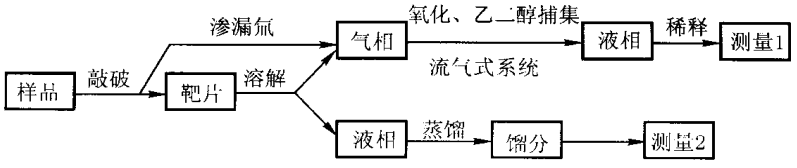

图2　推荐分析流程示意图

Fig. 2　Recommend analysis flow chart

表2列出了本测量系统中5 mCi HTO在载气Ar(加1 %H_2)以40 mL/min流速载带下经4 h后各材料的吸附情况。

表2　HTO在几种材料中的吸附

Table 2　Tritium water adsorption in some materials

材料	吸附量/(Bq·cm^{-2})
乳胶管	6.8×10^4
玻璃	1.7×10^2
聚四氟乙烯	本底

从表2可知:HTO在聚四氟乙烯中的吸附比在其它材料中的吸附小得多。因此,系统中HTO流经之处(尤其在气体经氧化后,元素氚转化为氧化态氚)均采用聚四氟乙烯材料,如图1中的B～C1、E～C2段管道,采用聚四氟乙烯可有效减小氚的吸附。

另外,分子筛主要吸附HTO,本系统(图1)中,分子筛床位于鼓泡器之后,当气体流经分子筛床时,HTO已被乙二醇鼓泡器捕集。因此,本系统有效避免了分子筛对氚的吸附损失。

2) 乙二醇捕集效率

假设活度为A的氚经过乙二醇鼓泡器,单级捕集效率为η,测得第1级鼓泡器氚活度为A_1,第2级鼓泡器氚活度为A_2,则有:

$$A_1 = A\eta \quad (1)$$

$$A_2 = A(1-\eta)\eta \quad (2)$$

由式(1)、(2),得:

$$\eta = 1 - A_2/A_1 \quad (3)$$

经测定,在本实验条件下,乙二醇鼓泡器捕集HTO的单级效率大于99.5 %,则每组两级鼓泡器可以完全定量收集HTO。

3) 氧化床的氧化效率及其氚滞留量

气流经过氧化床,元素氚(HT)成分被氧化成氧化态氚(HTO),反应式为:

$$CuO + HT(气) = Cu + HTO(汽) \quad (4)$$

在本实验条件下,氧化床的氧化效率大于99.95 %,同时,流气式电离室测量气态氚的最大探测效率近乎100 %[1]。测量尾气时的示值始终保持在本底水平,说明元素态氚已被完全氧化。

氧化床材料Hopcalite对氚有一定的滞留作用。经测量,在本实验系统条件下,毫居级的氚通过系统时的损失率$S_1 = 2.5$ %。

2.2　液相氚转移过程中的损失

将^{6}Li-Al合金靶片溶解在NaOH溶液中,靶片中的氚即被转移成两部分,大部分分布在反应产生的气体(H_2)中,此部分氚的捕集与渗漏氚的捕集方法相同;另一部分分布在反应后的溶液中。

溶液可能浑浊,且含有$NaAlO_2$和NaOH等成分,其中的氚不能直接用于液体闪烁计数器测量,需对浑浊液进行离心分离,并将溶液中的氚蒸馏出后再行测量。

1) 离心分离时的氚损失

浑浊液离心分离得到残渣和溶液。将残渣浸泡4周后,取上清液进行氚测量,并对氚的离心分离效率进行评估。测量结果列于表3。

表3　氚的离心分离效率

Table 3　Efficiency of tritium's centrifugal separation

靶号	残渣中氚量/Bq	溶液中氚量/Bq	分离效率(溶液/残渣)/ %	平均效率/ %
B_4	2.32×10^5	1.69×10^7	98.64	
B_{11}	1.06×10^5	9.33×10^6	98.87	98.85
B_{14}	1.32×10^5	1.38×10^7	99.05	

从表3可看出,经离心分离后,残渣中的氚量仅为上清液中氚量的1.15 %,而靶片溶解液中的氚量约为总氚量的5 %。因此,残渣中的氚量为:

$$S_2 = 5\% \times 1.15\% \approx 0.06\%$$

2) 蒸馏时的氚损失

© 1994-2006 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net

由于离心分离后的溶液中仍含有大量的NaOH等杂质,为此,将溶液进行3次重复蒸馏,分离出NaOH等杂质,最后用液体闪烁计数器测量馏分中的氚活度。

表4列出馏分中氚量随蒸馏次数的变化。

从表4可看出,重复蒸馏3次以上,溶液中的氚已被全部蒸出。经测量,冷凝管中氚量为本底水平。因此,氚在蒸馏时基本上无损失。

表4 蒸出氚量随蒸馏次数的变化

Table 4 Variation of tritium with distillation time

蒸馏次数	馏分中氚量/Bq	氚转移效率/%	冷凝管中氚量/Bq
第1次	1.6×10^{7}	94.67	本底
第2次	9.0×10^{5}	5.32	本底
第3次	本底	0	本底

2.3 靶片测量结果分析

由以上分析可知,推荐分析流程中的氚量损失主要归因于氧化床材料Hopcalite对氚的滞留和靶片溶解后进行离心分离时在残渣中的滞留。由于无法采用标样进行标定,因此,只能粗略估计流程中氚的损失量 $S = 2.50\% + 0.06\% = 2.56\%$。

因此,应将以上损失计入测量结果中。

按建立的分析流程实测了一批在反应堆中相同中子辐照条件下的^{6}Li-Al合金靶片中的渗漏氚量和靶片的总氚量。测量结果列于表5。

按照中子辐照条件,靶片的理论氚产量为9.76×10^{8} Bq,从氚产生到测量期间氚衰变了约2%,测量时靶片中存在的理论氚量为9.56×10^{8} Bq。测量结果与理论氚量处于同一数量级,可认为测量结果与理论氚产量基本相符。

表5 ^{6}Li-Al合金靶片中氚的测量结果

Table 5 Tritium in ^{6}Li-Al alloys

靶号	渗漏氚量/Bq	靶片中氚量			总氚量(实测)/Bq	总氚量(计入损失)/Bq
		气相中氚量/Bq	溶液中氚量/Bq	HT所占份额/%		
B_4	3.88×10^{4}	3.17×10^{8}	1.69×10^{7}	94.9	3.34×10^{8}	3.35×10^{8}
B_{11}	2.28×10^{4}	3.42×10^{8}	9.33×10^{6}	97.4	3.51×10^{8}	3.52×10^{8}
B_{14}	5.07×10^{4}	3.00×10^{8}	1.38×10^{7}	95.5	3.14×10^{8}	3.15×10^{8}

3 结论

试验表明,采用化学转移和流气式系统捕集氚的方法可测量经中子辐照后被铝包壳密封的^{6}Li-Al合金靶片的渗漏氚量和靶片中的总氚量,测量结果与理论计算值基本相符。研究结果初步为^{6}Li-Al合金靶件产氚条件研究提供必要的检测手段,也可供其它含氚靶件的氚测量提供参考。

参考文献:

[1] [苏]列·阿·连斯基.氚的物理和化学[M].毛世奇,江祖荫译.北京:原子能出版社,1991.56～67.

[2] Cao Xiaohua, Shen Wende, Wan Jingping, et al. In-situ Tritium Release Experiment From Solid Breeder γ-$LiAlO_2$ in SWINPC [J]. Fusion Technol, 1995,28(3):550～555.

© 1994-2006 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net