

О. О. Грицай^{1,*}, Р. А. Друцький², О. І. Кальченко¹, О. І. Олійник³

¹ Інститут ядерних досліджень НАН України, Київ, Україна

² Київський національний університет імені Тараса Шевченка, Київ, Україна

³ Національний медичний університет імені О. О. Богомольця, Київ, Україна

*Відповідальний автор: ogritzay@kinr.kiev.ua; ogritzay@ukr.net

ВИЗНАЧЕННЯ ВМІСТУ ВОДНЮ У ГІДРИДАХ ТИТАНУ НА ФІЛЬТРОВАНИХ НЕЙТРОННИХ ПУЧКАХ

Представлено методику неруйнівного аналізу стехіометричного складу гідридів титану за допомогою фільтрованих нейтронних пучків на київському дослідницькому реакторі ІЯД НАН України. Методика основана на аналізі спостережуваних в експерименті повних нейтронних перерізів $\sigma_i^{(спост)}$ зразків гідридів титану, вимірюваних за методом пропускання. Проведено розрахунки для пошуку оптимальних енергій та ширин фільтрованих нейтронних пучків для цієї методики. Експериментально показано, що вимірювання та аналіз спостережуваних повних нейтронних перерізів $\sigma_i^{(спост)}$ зразків гідриду титану дозволяють отримати величину співвідношення «метал - водень» у гідриді з точністю $\sim 1,0\%$ при використанні фільтрованих нейтронів із середньою енергією 2 кеВ. Представлена методика може бути застосована для дослідження гідридів будь-яких інших металів.

Ключові слова: реакторні нейтрони, водень, гідрид титану, фільтровані нейтронні пучки, повні нейтронні перерізи.

1. Вступ

Потреби практики в останні десятиріччя стимулюють дослідження та розробку нових методів синтезу гідридів металів у промислових масштабах. У зв'язку з цим важливим є розробка методів аналізу (особливо неруйнівних) вмісту атомів водню у складі гідриду металу, що необхідно для супроводжуючого контролю при розробці та виборі найбільш ефективних технологій синтезу гідридів. Серед неруйнівних методів аналізу значне місце посідають ядерно-фізичні методи [1]. Ці методи основані на реєстрації продуктів взаємодії γ -квантів, нейтронів та прискорених іонів із розчиненим у матеріалі воднем. У роботі [2] на прикладі гідриду титану продемонстровано можливість використання повільних нейтронів для визначення вмісту атомів водню у складі гідриду металу, аналізуючи експериментальні величини пропускання пучка нейтронів досліджуваними зразками з використанням спектрометра за часом прольоту на дослідницькому реакторі ВВР-М ІЯД НАН України. У матеріалах даної статті запропоновано методичний підхід до визначення стехіометричного складу гідридів металів, в основу якого покладено використання квазімоноенергетичних нейтронних пучків, отриманих за допомогою композиційних фільтрів [3].

2. Основи методу

Запропонований метод, як і в роботі [2], базується на тому, що при деяких енергіях водень та

титан мають суттєво відмінні значення повного нейтронного перерізу. На рис. 1 представлено залежність нейтронних перерізів водню та титану від енергії нейтронів.

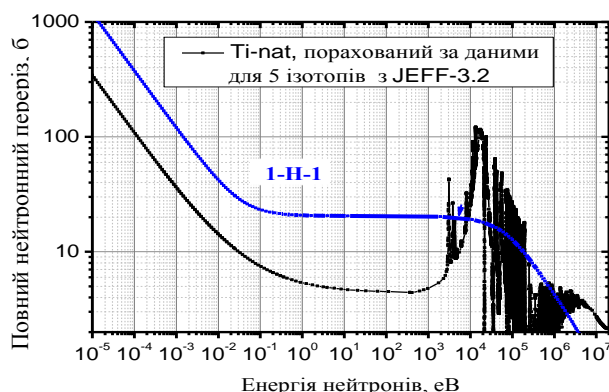


Рис. 1. Повний нейтронний переріз водню та титану.

Вимірюючи в експерименті пропускання нейтронів зразками гідриду титану $T_{гидр}$, повний нейтронний переріз гідриду титану $\sigma_{гидр}$ ми можемо визначити за допомогою загальновідомої формули

$$\sigma_{гидр} = -\ln T_{гидр} / n_{гидр} \quad (1)$$

Для пропускання $T_{гидр}$ можна записати:

$$T_{гидр} = \exp[-(n_{гидр} \cdot \sigma_{гидр})] \equiv \exp[-(n_H \cdot \sigma_H + n_{Ti} \cdot \sigma_{Ti})], \quad (2)$$

де σ_H , σ_{Ti} – повний нейтронний переріз водню та титану відповідно; n_H та n_{Ti} – кількість ядер водню та титану в досліджуваному зразку гідриду на одиницю площі.

Склавши пропорцію

$$n_{гiдр} = (A_H \cdot n + A_{Ti}),$$

$$n_{Ti} = A_{Ti} \cdot n,$$

де n – відношення кількості ядер водню до кількості ядер титану у гідриді; A_H та A_{Ti} – атомні маси водню та титану, визначимо

$$n_{гiдр} = n_{Ti} \cdot \frac{(A_H \cdot n + A_{Ti})}{A_{Ti}}.$$

Підставивши $n_{гiдр}$ у вираз (2) та виконавши ряд нескладних перетворень, отримаємо

$$\sigma_{гiдр} = \frac{n \cdot \sigma_H + \sigma_{Ti}}{n \cdot A_H / A_{Ti} + 1}, \quad (3)$$

або

$$n = A_{Ti} \cdot \frac{\sigma_{Ti} - \sigma_{гiдр}}{\sigma_{гiдр} \cdot A_H - \sigma_H \cdot A_{Ti}}. \quad (4)$$

Визначивши з експерименту $\sigma_{гiдр}$ та взявши з БОЯД значення нейтронних перерізів σ_H та σ_{Ti} для заданої енергетичної точки, дійсно можна отримати n , що й було продемонстровано в роботі [2]. Однак при використанні фільтрованих нейтронних пучків картина дещо ускладнюється, бо реально з експерименту ми можемо визначити лише нейтронний переріз $\langle \sigma_{гiдр} \rangle$, усереднений по спектру нейтронів після фільтра $\Phi(E)$

$$\langle \sigma_{гiдр} \rangle = \frac{\int_{E_{min}}^{E_{max}} \sigma_{гiдр}(E) \Phi(E) dE}{\int_{E_{min}}^{E_{max}} \Phi(E) dE}, \quad (5)$$

де E_{min} та E_{max} – нижня та верхня межі енергетичної ширини нейтронної лінії після фільтра. Для визначення відношення кількості ядер водню до кількості ядер титану n у гідриді за формулою (4) повні нейтронні перерізи водню та титану σ_H та σ_{Ti} також повинні бути усереднені по спектру нейтронів після фільтра $\Phi(E)$. Оскільки усереднені перерізи можуть дуже суттєво відрізнитися залежно від форми та ширини спектра зважування, потрібно проаналізувати, при яких умовах можливо визначити n на фільтрованих пучках нейтронів із задовільною точністю.

3. Алгоритм пошуку оптимальних енергій та ширини нейтронної лінії

Метод фільтрованих нейтронних пучків, реалізований на київському дослідницькому реакторі, дозволяє сформувати пучки з енергіями 2, 7,5, 13, 54, 59, 133, 149 кеВ із шириною спектра приблизно від 1 до 10 %, тому було проаналізовано, який із цих пучків дозволить вирішити задачу визначення n найкращим чином. Для проведення первісного аналізу було створено програму на мові Фортран, за допомогою якої було розраховано усереднені нейтронні перерізи водню, титану та гідриду титану для теоретично можливих стехіометричних співвідношень 1, 1,5, 2, 2,5, 3 для семи енергетичних ліній (2, 7,5, 13, 54, 59, 133, 149 кеВ) та з напівшириною цих ліній від 1 до 10 %. Для спрощення припускалося, що нейтрони розподілені рівномірно в деякому енергетичному діапазоні $[E_{min}; E_{max}]$, тобто спектр нейтронів після фільтра задавався функцією

$$\Phi(E) = \begin{cases} 1, & E_{min} < E < E_{max} \\ 0, & E < E_{min} \text{ або } E > E_{max} \end{cases}$$

У такому випадку нейтронний переріз, усереднений по спектру зважування, стає перерізом, усередненим по енергетичному діапазону

$$\langle \sigma \rangle = \frac{\int_{E_{min}}^{E_{max}} \sigma(E) \Phi(E) dE}{\int_{E_{min}}^{E_{max}} \Phi(E) dE}. \quad (6)$$

Енергетично залежні нейтронні перерізи $\sigma_H(E)$ та $\sigma_{Ti}(E)$ розраховувались за допомогою комплексу програм PREPRO-2015 [4] за даними БОЯД JEFF-3.2.

Результати розрахунків показали, що залежності стехіометричного співвідношення n від нейтронного перерізу гідриду титану $\langle \sigma_{гiдр} \rangle$ добре описуються лінійними функціями. На рис. 2 представлено результати розрахунків для семи нейтронних ліній з напівширинами 10 %, для інших напівширин картина аналогічна.

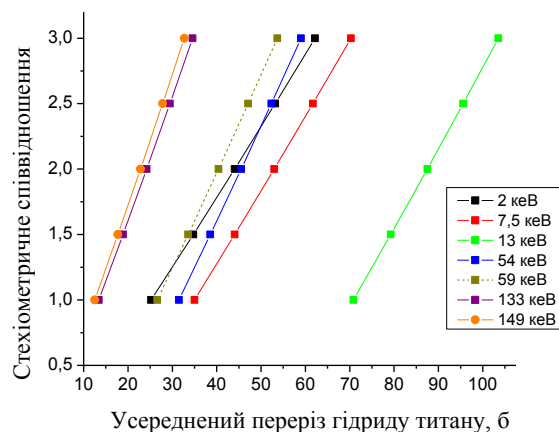


Рис. 2. Залежність n від нейтронного перерізу гідриду титану $\langle \sigma_{гiдр} \rangle$ для напівширини 10 %. (Див. кольоровий рисунок на сайті журналу.)

Скористаємося цим для вибору найбільш оптимальної енергії з точки зору досягнення найкращої точності у визначенні n .

Для лінійної залежності

$$y(x) = a + b \cdot x, \quad (7)$$

де x є вимірюваною величиною $\langle \sigma_{\text{гдр}} \rangle$, похибка Δy може бути обчислена як

$$\Delta y = b \cdot \Delta x. \quad (8)$$

Отже, найбільш прийнятною є така залежність, для якої b є мінімальним.

Також можемо розраховувати залежність відносної похибки $\frac{\Delta y}{y}$ від $\frac{\Delta x}{x}$:

$$\frac{\Delta y}{y} = \frac{b \cdot x}{a + b \cdot x} \cdot \frac{\Delta x}{x}. \quad (9)$$

Застосувавши метод найменших квадратів, було розраховано коефіцієнти a та b , які як відомо, для лінійної залежності визначаються як

$$b = \frac{\text{cov}(x, y)}{\text{var}(x)}, \quad a = \bar{y} - b \cdot \bar{x} \quad (10)$$

(\bar{x} та \bar{y} – середні арифметичні значення x та y), їх упорядковано за зростанням b , тобто від найбільш до найменш прийнятного варіанта, для залежності n від $\langle \sigma_{\text{гдр}} \rangle$ для семи енергетичних ліній та 10 значень напівширини цих ліній (у табл. 1 вибірково представлено визначені a та b).

Таблиця 1. Параметри лінійної апроксимації залежності n від $\langle \sigma_{\text{гдр}} \rangle$

Енергія, кеВ	E_{min} , еВ	E_{max} , еВ	Напівширина, %	a	b
2	1900	2100	10	-0,375207	$0,541262 \cdot 10^{-1}$
2	1990	2010	1	-0,375213	$0,541273 \cdot 10^{-1}$
2	1980	2020	2	-0,375213	$0,541273 \cdot 10^{-1}$
2	1960	2040	4	-0,375213	$0,541273 \cdot 10^{-1}$
7,5	7462,5	7537,5	1	-0,899111	$0,565888 \cdot 10^{-1}$
7,5	7125	7875	10	-0,993711	$0,566909 \cdot 10^{-1}$
13	12610	13390	6	-3,31902	$0,611748 \cdot 10^{-1}$
13	12870	13130	2	-3,34839	$0,612106 \cdot 10^{-1}$
54	51300	56700	10	-1,29701	$0,726415 \cdot 10^{-1}$
54	52650	55350	5	-1,78861	$0,733182 \cdot 10^{-1}$
59	58705	59295	1	-0,806652	$0,736920 \cdot 10^{-1}$
59	56050	61950	10	-0,974353	$0,738524 \cdot 10^{-1}$
133	129675	136325	5	-0,253695	$0,943572 \cdot 10^{-1}$
133	132335	133665	1	-0,336729	$0,945086 \cdot 10^{-1}$
149	141550	156450	10	-0,249940	$0,990492 \cdot 10^{-1}$
149	146765	151235	3	-0,220318	$0,992392 \cdot 10^{-1}$

Як бачимо, найбільш прийнятною за критеріями нахилу є використання фільтра з енергією 2 кеВ, оскільки параметр b є найменшим серед усіх і приблизно однаковим для різних напівширин ліній.

Використавши вираз (9), було проаналізовано, з якою відносною похибкою треба вимірювати пе-

рерізи гідриду титану, щоб отримати задану точність визначення стехіометричного співвідношення. Для прикладу для різних енергій та напівширини 10 % у табл. 2 наведено відносну похибку, з якою необхідно визначити переріз гідриду титану, для того щоб відносна похибка визначення вмісту водню була 1 %.

Таблиця 2. Необхідна точність визначення $\langle \sigma_{\text{гдр}} \rangle$ для визначення n (%) з відносною точністю 1 %

n	2 кеВ	7,5 кеВ	13 кеВ	54 кеВ	59 кеВ	133 кеВ	149 кеВ
1,0	0,73	0,50	0,23	0,43	0,50	0,78	0,80
1,5	0,80	0,60	0,31	0,54	0,61	0,85	0,86
2,0	0,84	0,67	0,38	0,61	0,67	0,88	0,89
2,5	0,87	0,72	0,43	0,66	0,72	0,90	0,91
3,0	0,89	0,75	0,47	0,70	0,75	0,92	0,92

За цим критерієм найбільш прийнятними є енергії 2, 133 та 149 кеВ. Точності, яких треба досягти

при визначенні нейтронного перерізу, у найбільш складних випадках (коли $n = 1$) мають становити

0,73, 0,78 та 0,80 % відповідно. Це є цілком досяжний результат з експериментальної точки зору.

При виборі «робочого» енергетичного діапазону слід також аналізувати структуру енергетичної залежності нейтронного перерізу досліджуваного ядра титану, щоб уникнути, якщо це можливо, області, де в нейтронному перерізі спостерігаються сильні резонанси. У протилежному випадку буде необхідно проводити вимірювання з набором досліджуваних зразків із різними товщинами та вводити поправку на резонансне самоекранування, що, звичайно, може негативно вплинути на точність визначення кількості водню у досліджуваному зразку гідриду. Розглянувши структуру нейтронних перерізів титану в області цих енергій – 2, 133 та 149 кеВ (див. рис. 1), можна бачити, що в районі 133 та 149 кеВ у нейтронному перерізі титану присутня велика кількість резонансів. Для енергії 2 кеВ навіть при напівширині 10 % резонанси відсутні, а отже, і явище резонансного самоекранування можна не враховувати. Так, використання фільтра із середньою енергією 2 кеВ є більш прийнятним також із точки зору відсутності резонансів у нейтронному перерізі досліджуваного зразка.

При вимірюваннях на фільтрованих пучках з енергією 2 кеВ для реєстрації нейтронів застосовуються детектори нейтронів на основі ^3He . Ці лічильники працюють завдяки ядерній реакції $^3\text{He}(n, p)^3\text{H} + 765 \text{ кеВ}$, тому апаратурний спектр такого лічильника не дозволяє відновити спектр нейтронів після фільтра і спектр отримується розрахунково. Розрахунки спектра проводяться за допомогою програми FILTER-8 [5] із використанням повних нейтронних перерізів, розрахованих за даними сучасних БОЯД.

Надалі, використовуючи цей розрахунковий спектр, можна обчислити усереднені нейтронні перерізи для водню та титану і використати їх для остаточних розрахунків залежності n від $\langle \sigma_{\text{гдр}} \rangle$. Визначення кількості водню в гідриді з цієї зале-

жності буде вірним лише в тому випадку, коли розраховані й реальні спектри нейтронів після використаного фільтра є близькими. Чому ж розраховані спектри можуть відрізнятися від реальних? По-перше, повні нейтронні перерізи для компонентів вибраного фільтра в БОЯД можуть мати відмінності від істинних перерізів, по-друге, спрощення, які використовуються в програмі FILTER-8, також можуть привести до деяких відмінностей розрахованого спектра від реального.

Щоб проаналізувати, як сильно може вплинути відмінність розрахункового спектра від реального, треба проаналізувати, як вплине на результат відмінність у розрахункових спектрах при використанні різних БОЯД, в яких для деяких компонентів перерізи мають суттєві відмінності. Для дослідження цієї проблеми було розраховано спектри після фільтра, склад якого наведено нижче (такий склад фільтра широко застосовується в лабораторії нейтронної фізики ІЯД НАН України для отримання квазімоноенергетичних нейтронів з енергією 2 кеВ) із використанням даних із п'яти найсучасніших БОЯД: ENDF/BVII.1, JEFF-3.2, JENDL-4.0, CENDL-3.1 та ROSFOND-2010.

Склад фільтра із середньою енергією 2 кеВ

Елемент	Товщина, г/см ²
Sc (JEFF-3.2)	104,6
⁶⁰ Ni (JEFF-3.2)	80,2
⁵⁴ Fe (JEFF-3.2)	39,35
S (JEFF-3.2)	56,0
Co (JEFF-3.2)	26,7
Al (JEFF-3.2)	0,54
¹⁰ B (JEFF-3.2)	0,17
¹¹ B (JEFF-3.2)	0,03

Параметри фільтрів, розрахованих програмою FILTER-8 із використанням повних нейтронних перерізів із цих п'яти БОЯД, представлено в табл. 3. Як видно з цієї таблиці, найбільша відмінність спостерігається для спектрів, розрахованих за даними бібліотек ENDF/BVII.1 та JEFF-3.2.

Таблиця 3. Відносна інтенсивність ліній, %

Енергія, кеВ	ENDF/BVII.1	CENDL-3.1	JEFF-3.2	JENDL-4.0	ROSFOND-2010
1,9	97,291	98,995	99,608	99,527	99,559
26,7	0,273	0,102	0,013	0,019	0,034
27,6	0,043	—	—	—	—
39,6	0,011	0,002	—	—	—
42,8	0,41	0,233	0,130	0,134	0,105
47,0	0,001	—	—	—	—
49,0	0,014	0,003	0,016	0,015	0,012
50,4	0,03	—	—	—	—
56,2	—	0,003	—	—	—
61,1	—	0,002	—	—	—
64,6	1,319	0,328	0,129	0,129	0,037
76,189	—	0,011	—	—	—

Лінійні залежності між значенням нейтронного перерізу гідриду та стехіометричним співвідношенням (знайдені, використовуючи нейтронні перерізи водню та титану), усереднені по спектрах нейтронів, розрахованих за цими двома бібліотеками, мали такий вигляд:

$$\text{для ENDF/B VII.1 } n = -0,3825 + 0,05462 \langle \sigma_{\text{гдр}} \rangle,$$

$$\text{для JEFF-3.2 } n = -0,3697 + 0,05413 \langle \sigma_{\text{гдр}} \rangle.$$

Для наочності ці залежності зображено на рис. 3. Як бачимо, прямі майже збігаються, отже, можемо стверджувати, що такі відмінності у спектрах зважування слабо впливають на хід залежності n від $\langle \sigma_{\text{гдр}} \rangle$, що дає підстави сподіватися, що визначення кількості водню в гідриді титану виконано вірно (навіть, якщо розраховані й реальні спектри нейтронів не були ідентичними).

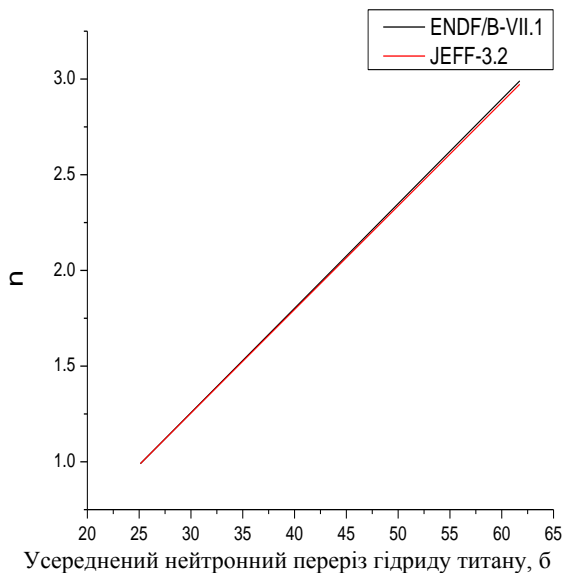


Рис. 3. Залежність стехіометричного відношення від нейтронного перерізу гідриду титану.

4. Експериментальні результати

Вимірювання повного нейтронного перерізу гідриду титану проводились на 9-му горизонтальному експериментальному каналі (ГЕК-9) київського дослідницького реактора ВВР-М. Експериментальна установка для вимірювань повних нейтронних перерізів ядер на ГЕК-9 складається із системи формування пучка квазімоноенергетичних нейтронів, системи детектування та реєстрації нейтронів, системи управління дослідними зразками та системи радіаційного захисту (рис. 4).

Система радіаційного захисту складається з двох боксів, розділених захисною стінкою товщиною 70 см, в якій розміщено свинцевий коліматор

діаметром 2 см. Зовнішній коліматор 3 з додатковими елементами для колімації та фільтрації нейтронів і пристрій для переміщення зразків 4 знаходяться в першому боксі, детектор 5 та електроніка знаходяться у другому боксі. Стінки та стелю боксів виготовлено з металевих контейнерів, заповнених металевим скрапом, водою та борною кислотою 5 - 7 %. Система формування пучка включає елементи колімації та фільтрації нейтронів на шляху від активної зони реактора до детектора. Попереднє формування пучка реалізується двома коліматорами 10 із заліза та карбиду бору, установленими за шиберам на відстані близько 1,5 м від виходу каналу із реактора, загальна довжина 600 мм (390 мм заліза, 210 мм карбиду бору). Подальше формування пучка відбувається в перших трьох дисках шибера 13 (починаючи з виходу каналу) та у виносному коліматорі 12. По черзі свинець, текстоліт та суміш парафіну з карбідом бору використовуються як матеріали для цих коліматорів. Колімаційна система забезпечує сходження пучка 12 мм/м, що відповідає діаметру пучка на зразку близько 10 мм. Елементи системи фільтрації нейтронів розміщуються в цих же дисках шибера та у виносному коліматорі. Компоненти фільтра, що встановлюються в диски шибера комплектуються в сталевих гільзах, зовнішній діаметр яких відповідає діаметру каналу. Для виділення з реакторного спектра нейтронів із середньою енергією 2 кеВ використовувався композиційний фільтр, склад якого наведено вище (див. на с. 4). Система управління дослідними зразками складається із двох циліндричних пристроїв, у кожен з яких може бути встановлено 4 зразки. Ці пристрої обертаються незалежно, тому одночасно 2 зразки може бути встановлено на пучку. До складу системи детектування та реєстрації нейтронів входять: лічильник нейтронів, електронні блоки, персональний комп'ютер та лінії зв'язку між спектрометричною установкою та вимірювальним центром довжиною близько 50 м. Для реєстрації нейтронів було використано ^3He -лічильник СНМ-17 та електронні блоки: попередній зарядовочутливий підсилювач, спектрометричний підсилювач БУИ-3К, багатоканальний спектрометр у системі КАМАК на основі АЦП 712, персональний комп'ютер. Комп'ютер за допомогою спеціальної програми ZERKIN-3 забезпечує вимірювання попередньо заданої кількості нейтронних спектрів, послідовність їхніх вимірювань та накопичення.

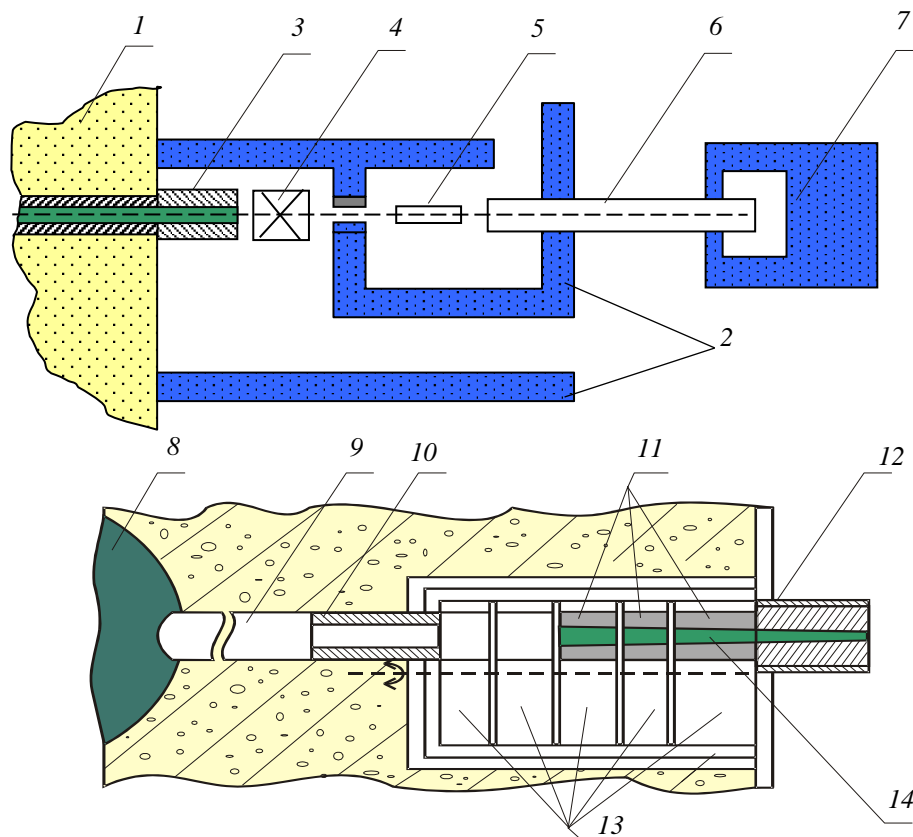


Рис. 4. Схема експериментальної установки на ГЕК-9:

1 – біологічний захист реактора; 2 – радіаційний захист установки; 3 – виносний коліматор; 4 – пристрій для переміщення зразків; 5 – нейтронний детектор; 6 – труба для проведення пучка до його уловлювача; 7 – уловлювач пучка; 8 – активна зона реактора; 9 – горизонтальний канал реактора; 10 – коліматори попереднього формування пучка; 11 – елементи системи колімації та фільтрації пучка; 12 – виносний коліматор; 13 – диски шибера; 14 – компоненти фільтра. (Див. кольоровий рисунок на сайті журналу.)

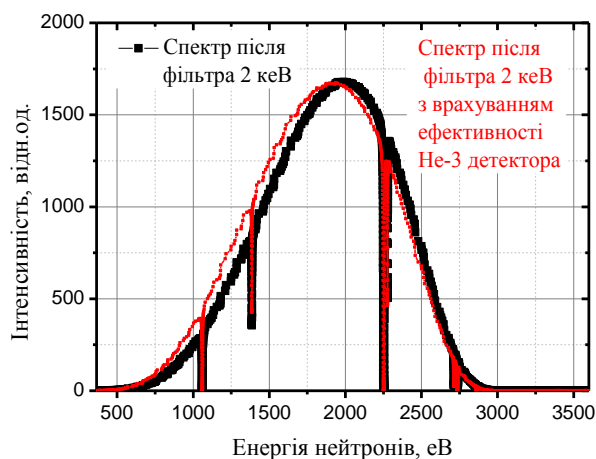


Рис. 5. Розрахункові спектри із середньою енергією нейтронів 2 кеВ. (Див. кольоровий рисунок на сайті журналу.)

Розрахункові спектри після фільтра, отримані за допомогою програми Filter-8, із використанням перерізів з JEFF-3.2 представлено на рис. 5. Розрахункові середня енергія та ширина основної нейтронної лінії (на рівні 95 % відгуку) $1,910 \pm_{0,894}^{0,694}$ кеВ.

Розрахункова чистота фільтра 99,61 %. Внесок кожної з домішкових ліній незначний: для лінії 26,7 кеВ він становить 0,01 %, для ліній 42,8, 49,0 та 64,6 кеВ – 0,13, 0,02 та 0,13 % відповідно. Урахування ефективності ^3He детектора трохи змінює параметри нейтронної лінії – розрахункові середня енергія та ширина основної нейтронної лінії (на рівні 95 % відгуку) стають рівними $1,848 \pm_{0,890}^{0,735}$ кеВ.

Розрахункова чистота фільтра покращується до 99,96 %. Внески домішкових ліній стають ще нижчими: для ліній 26,7, 42,8 та 64,6 кеВ – 0,001, 0,020 та 0,015 % відповідно.

Розрахункові значення повних нейтронних перерізів природного титану та водню, усереднені по спектру нейтронів такого 2 кеВ фільтра (діапазон усереднення $(365,241 \div 3000,96)$ eV), дорівнюють 5,5206 та 20,1873 б відповідно.

В експерименті було виміряно пропускання 9 наборів зразків гідриду титану у вигляді пластин із площею від 89,44 до 101,00 см², які за твердженням замовників досліджень (Інституту проблем матеріалознавства ім. І. М. Францевича НАН

України) мають однаковий вміст водню. Маркування зразків, вага, поверхнева щільність ядер та площа зразків наведені в табл. 4. Маркування $P_2 + P_5 + P_4 + P_1 + P_6$ означає зразок, складений із п'яти пластин. Експериментальні значення про-

пускань, визначені з них нейтронні перерізи гідриду титану та обчислене значення відношення кількості атомів водню до кількості атомів титану n представлено у трьох останніх колонках.

Таблиця 4. Характеристики зразків та результати вимірювань

Маркування зразка гідриду	Вага, г	n_{Ti} , ядер/б	$S_{зр.}$, см ²	$T \pm \Delta T$	$\sigma_{эф} \pm \Delta\sigma_{эф}$, б $\Delta\sigma_{эф}/\sigma_{эф}$, %	$n \pm \Delta n$ $\Delta n/n$, %
P ₁	188,85	0,02352	101,00	0,3651 ± 0,0005	42,83 ± 0,06 0,14 %	1,934 ± 0,003 0,16 %
P ₂	188,72	0,02350	101,00	0,3692 ± 0,0004	42,40 ± 0,05 0,11 %	1,911 ± 0,002 0,10%
P ₄	187,64	0,02337	101,00	0,3738 ± 0,0003	42,11 ± 0,03 0,08 %	1,895 ± 0,002 0,11 %
P ₅	188,61	0,02349	101,00	0,3719 ± 0,0009	42,11 ± 0,10 0,24 %	1,895 ± 0,005 0,26 %
P ₆	166,74	0,02345	89,44	0,3708 ± 0,0008	42,31 ± 0,09 0,22 %	1,906 ± 0,005 0,26 %
P ₂ + P ₅		0,04699		0,1351 ± 0,0001	42,59 ± 0,02 0,04 %	1,921 ± 0,001 0,05 %
P ₂ + P ₅ + P ₄		0,07036		0,05059 ± 0,00010	42,41 ± 0,03 0,11 %	1,911 ± 0,002 0,10 %
P ₃ + P ₅ + P ₄ + P ₁		0,09286		0,01822 ± 0,00008	42,66 ± 0,05 0,11 %	1,925 ± 0,002 0,10 %
P ₂ + P ₅ + P ₄ + P ₁ + P ₆		0,11623		0,00694 ± 0,00010	42,36 ± 0,12 0,29 %	1,908 ± 0,007 0,37 %

Пучок нейтронів у місці розташування досліджуваних зразків мав діаметр 20 мм, тому результат є усередненим по цій площі. Щоб проаналізувати неоднорідність розподілу водню у зразку гідриду титану по всій площі зразка, було проведено додаткові вимірювання одного із зразків у трьох різних положеннях зразка на пучку. Було знайдено, що за рахунок неоднорідності зразка відмінності при визначенні величини n можуть сягати 3 %.

Середнє значення відношення кількості атомів водню до кількості атомів титану n отримане за результатами вимірювань 9 зразків гідриду титану $1,916 \pm 0,004$ (0,2 %) при можливій систематичній похибці до 3 % (за рахунок неоднорідності зразка).

Додатково було проведено також вимірювання пропускання поліетилену, як стандарту, для двох зразків діаметром 28,8 мм та концентрацією груп CH_2 в поліетилені – 0,00379 та 0,03173 молекул/б. Повні нейтронні перерізи поліетилену, отримані з цих вимірювань, $45,26 \pm 0,15$ та $45,19 \pm 0,14$ б відповідно, тоді як оцінене значення (за даними з JEFF 3.2) дорівнює 45,11 б. Непогане узгодження експериментальних та розрахункових нейтронних перерізів для поліетилену свідчить про високу достовірність отриманих результатів із визначення стехіометричного складу у зразках гідриду титану.

Відзначимо, що запропонована методика може бути застосована для дослідження стехіометричного складу у зразках гідридів інших металів, можливо, із використанням фільтрованих пучків з іншими енергіями.

5. Висновки

1. Показано, що фільтровані пучки нейтронів можуть бути використані для визначення кількості водню у гідридах металів.
2. Визначено критерії, за якими доцільно вибирати найбільш прийнятну енергію фільтрованого пучка нейтронів.
3. Оцінено точність методу.
4. Розроблено програмне забезпечення, що дозволяє розрахувати відповідні критерії оцінки як для рівномірного розподілу енергії нейтронів, так і для будь-якого спектра нейтронів.
5. На прикладі гідриду титану показано, як можна визначити найбільш прийнятну енергію фільтрованого пучка нейтронів. У даному випадку ця енергія становить 2 кеВ.
6. Показано, що для визначення кількості водню у гідриді титану з точністю 1 % достатньо визначити повний нейтронний переріз гідриду з точністю 0,73 %.
7. Відсутність резонансів у повному нейтронному перерізі титану в області 2 кеВ дозволяє не враховувати явище резонансного самоекрану-

вання при експериментальному визначенні перерізу гідриду.

8. Для нейтронного фільтра 2 кеВ показано, що відмінність у формі спектра, розрахованого за даними різних БОЯД, не впливає на хід залежності кількості водню в гідриді титану від усередненого перерізу.

9. Експериментально визначено відношення

кількості атомів водню до кількості атомів титану з точністю краще 0,2 % при можливій систематичній похибці до 3 % за рахунок неоднорідності зразка.

10. Достовірність отриманих результатів із визначення стехіометричного складу у зразках гідриду титану підтверджено вимірюваннями з поліетиленовими зразками.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. П.К. Хабибуллаев, Б.Г. Скородумов. *Ядерно-физические методы определения водорода в материалах* (Ташкент: ФАН, 1985) 96 с.
2. П.М. Ворона, О.І. Кальченко, В.Г. Кривенко. Метод визначення стехіометричного складу гідридів металів за допомогою повільних нейтронів. *Ядерна фізика та енергетика* 15(2) (2014) 189.
3. О.О. Gritzay, V.V. Koloty, O.I. Kaltchenko. Neutron filters at the Kyiv research reactor. Preprint KINR-01-6 (Kyiv, 2001).
4. PREPRO 2015. ENDF/B Pre-processing codes (ENDF/B-VII Tested). Nuclear Data Section IAEA, Vienna, Austria.
5. O.O. Gritzay, M.M. Vakulenko. Development of the code for filter calculation. *Proc. of the 4-th Intern. Conf. "Current Problems in Nuclear Physics and Atomic Energy"*, Kyiv, 3 - 7 Sept., 2012) (Kyiv, 2013) p. 426.

О. А. Грицай^{1,*}, Р. А. Друцкий², А. И. Кальченко¹, О. И. Олейник³

¹ *Институт ядерных исследований НАН Украины, Киев, Украина*

² *Киевский национальный университет имени Тараса Шевченко, Киев, Украина*

³ *Национальный медицинский университет имени А. А. Богомольца, Киев, Украина*

*Ответственный автор: ogritzay@kinr.kiev.ua; ogritzay@ukr.net

ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОДЕРЖАНИЯ ВОДОРОДА В ГИДРИДАХ ТИТАНА НА ФИЛЬТРОВАННЫХ НЕЙТРОННЫХ ПУЧКАХ

Представлена методика неразрушающего анализа стехиометрического состава гидридов титана с помощью фильтрованных нейтронных пучков на киевском исследовательском реакторе. Методика основана на анализе наблюдаемых в эксперименте полных нейтронных сечений $\sigma_t^{(набл)}$ образцов гидридов титана, измеренных по методу пропускания. Проведены расчеты для поиска оптимальных энергий и ширин фильтрованных нейтронных пучков для этой методики. Экспериментально показано, что измерения и анализ наблюдаемых полных нейтронных сечений $\sigma_t^{(набл)}$ образцов гидрида титана позволяют получить величину соотношения «металл - водород» в гидриде с точностью $\sim 1,0$ % при использовании фильтрованных нейтронов со средней энергией 2 кеВ. Представленная методика может быть использована для исследования гидридов каких-либо других металлов.

Ключевые слова: реакторные нейтроны, водород, гидрид титана, фильтрованные нейтронные пучки, полные нейтронные сечения.

О. О. Gritzay^{1,*}, Р. А. Drutskyy², О. І. Kalchenko¹, О. І. Oliynyk³

¹ *Institute for Nuclear Research, National Academy of Sciences of Ukraine, Kyiv, Ukraine*

² *Taras Shevchenko National University, Kyiv, Ukraine*

³ *O. O. Bohomolets National Medical University, Kyiv, Ukraine*

*Corresponding author: ogritzay@kinr.kiev.ua; ogritzay@ukr.net

DETERMINATION OF HYDROGEN CONTENT IN TITANIUM HYDRIDES USING NEUTRON FILTERED BEAMS

Method for nondestructive analysis of stoichiometric content in titanium hydrides using neutron filtered beams at the Kyiv research reactor is presented. Method is based on analysis of total neutron cross sections $\sigma_t^{(obs)}$ of titanium hydride samples observed in experiment using transmission technique. Computer calculations for finding optimal energies and widths of neutron beams for this method were carried out. It was shown that the measurements and further analysis of the observed total neutron cross sections $\sigma_t^{(obs)}$ for the titanium hydride samples may allow to receive the relation value metal/hydrogen in hydride with accuracy ~ 1.0 % using neutron filtered beam with average energy 2 keV. Presented method can be applied for the investigation of hydrides of any other metals.

Keywords: reactor neutrons, hydrogen, titanium hydride, neutron filtered beams, total neutron cross sections.

REFERENCES

1. P.K. Khabibullaev, B.G. Skorodumov. *Nuclear-Physical Methods for Determining Hydrogen in Materials* (Tashkent: FAN, 1985) 96 p. (Rus)
2. P. M. Vorona, O. I. Kalchenko, V. G. Krivenko. Neutron spectrometry method for determination of hydrogen content in metal hydrides. *Yaderna Fizyka ta Energetyka (Nucl. Phys. At. Energy)* 15(2) (2014) 189. (Ukr)
3. O.O. Gritzay, V.V. Koloty, O.I. Kaltchenko. Neutron filters at the Kyiv research reactor. Preprint KINR-01-6 (Kyiv, 2001).
4. PREPRO 2015. ENDF/B Pre-processing codes (ENDF/B-VII Tested). Nuclear Data Section IAEA, Vienna, Austria.
5. O.O. Gritzay, M.M. Vakulenko. Development of the code for filter calculation. *Proc. of the 4-th Intern. Conf. "Current Problems in Nuclear Physics and Atomic Energy"*, Kyiv, 3 - 7 Sept., 2012 (Kyiv, 2013) p. 426.

Надійшла 12.02.2018
Received 12.02.2018