

УДК 543.062

Определение плотности водорода в веществе и изучение процессов взаимодействия водорода с металлами по пропусканию нейтронов

ГУСАРОВ М. С., ЗЕМЛЯНОВ М. Г., РЕШЕТНИКОВ Ф. Г., МИРОНОВ С. П., АФОНИН Г. В.

При определении плотности водорода в веществе и параметров химических реакций с участием водорода значительное распространение получили физико-химические методы, основанные на измерении количества прореагировавшего газа, изменении веса и т. п. [1]. Однако эти методы (весовые и объемные) очень трудоемки и практически не позволяют без прекращения реакции и вывода исследуемого образца из зоны реакции следить за ходом процесса.

Для определения плотности водорода в веществе и изучения процесса взаимодействия водорода с металлом был использован ядерно-физический метод, основанный на измерении потока медленных нейтронов, пропускаемых через объем, в котором проходила реакция водорода с металлом.

Метод пропускания ядерного излучения широко применяется для научных исследований [2] и при решении ряда прикладных задач [3].

Измерения, результаты и обсуждение. Экспериментальные исследования с использованием пучка нейтронов были выполнены на реакторе ИРТ-М в ИАЭ им. И. В. Курчатова. Установка (рис. 1) смонтирована на одном из горизонтальных каналов реактора. Монохроматизация падающих нейтронов обеспечивается с помощью монокристалла из кремнистого железа, который отклоняет дифрагированный пучок нейтронов в вертикальной плоскости под углом 90° к оси падающего. Необходимая угловая расходимость пучка обеспечивается коллиматорами, установленными в канал биологической защиты реактора и в защиту монохроматора на пути отраженных нейтронов. Нейтроны регистрируются торцевым пропорциональным счетчиком, наполненным трифторидом бора. Поток нейтронов реактора контролируется монитором, в качестве которого используется счетчик с трифторидом бора. Образец исследуемого вещества в специальной герметичной камере располагался внутри нагревательной печи. В экспериментах использовался газообразный водород, получаемый в результате термического разложения гидрида урана, помещаемого в специальной камере внутри нагревательной печи. Температура исследуемого образца и гидрида урана контролировалась термопа-

рами, а давление поступающего газообразного водорода — с помощью манометра.

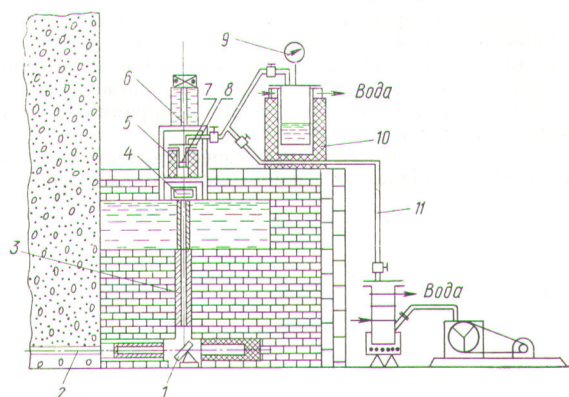
Перед гидрированием весь внутренний объем системы откачивался до остаточного давления $\sim 10^{-3}$ мм рт. ст. Энергия падающих монохроматических нейтронов определялась с помощью пропускания нейтронов через золотую фольгу известной толщины ($E_0 = 0,067 \pm \pm 0,002$ эВ).

Для проверки возможностей метода пропускания нейтронов при определении плотности ядер водорода были проведены измерения на гидриде циркония различного, но заранее известного состава (см. таблицу).

В пределах погрешности измерений наблюдается согласие данных по составу гидридов циркония, полученных независимо методом химического анализа и методом пропускания медленных нейтронов.

Более подробно возможности метода пропускания нейтронов и его сравнение с другими методами были изучены при исследованиях взаимодействия водорода с ураном. В этих экспериментах измерялась временная зависимость интенсивности нейтронов, прошедших через образец из металлического урана при различных температурах (150; 200; 225; 250; 275 и 300°C), но при одинаковом избыточном давлении газообразного водорода (0,1–0,2 ат). Измерения выполнены на образцах из технического урана, которые перед загрузкой в аппарат гидрирования подвергались электротравлению.

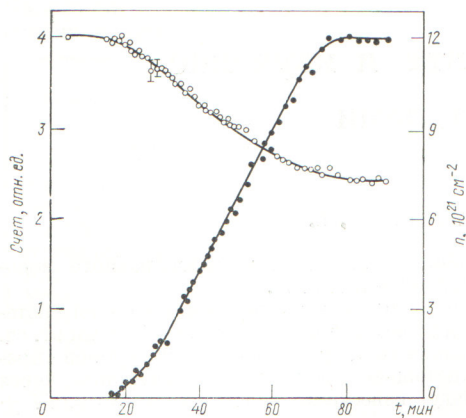
На рис. 2 показана временная зависимость интенсивности прошедших нейтронов и плотности ядер водорода, поглощенных ураном, при температуре 225°C .



Р и с. 1. Схема экспериментальной установки на реакторе ИРТ-М: 1 — кристалл-монокристалл; 2, 3 — коллиматоры; 4 — монитор; 5 — нагревательная печь; 6 — детектор эффекта; 7 — образец вещества; 8 — камера образца; 9 — манометр; 10 — печь генератора водорода; 11 — вакуумная система

Результаты химического анализа и экспериментальных измерений методом пропускания нейтронов

Отношение числа атомов водорода к числу атомов циркония	
по данным химического анализа	по данным метода пропускания нейтронов
$1,2 \pm 0,012$	$1,19 \pm 0,039$
$1,4 \pm 0,014$	$1,39 \pm 0,046$
$1,6 \pm 0,016$	$1,61 \pm 0,053$



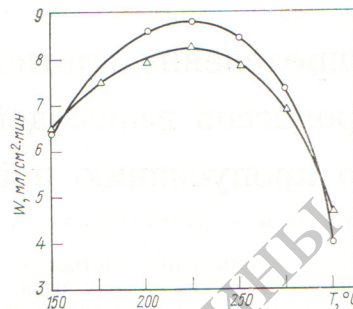
Р и с. 2. Зависимость изменения потока нейтронов ($\circ$) и плотности ядер водорода n ($\bullet$) от времени гидрирования при температуре 225°

Аналогичные кривые были получены для всех исследованных температур. Скорость гидрирования определялась по тангенсу угла наклона кривой на участке после окончания индукционного периода и до замедления процесса к концу гидрирования.

На рис. 3 представлена температурная зависимость скорости гидрирования металлического урана. Для сравнения приведены также данные о температурной зависимости скорости гидрирования урана, полученные обычными физико-химическими методами [4]. Наблюдается качественное согласие в характере температурной зависимости скорости гидрирования. Максимальная скорость гидрирования наблюдается при 225°C , ниже и выше этой температуры скорость падает. Некоторое количественное расхождение, вероятно, может быть объяснено различием в давлении водорода, в чистоте и фазовом составе исходного металла и в состоянии поверхности (в работе [4] нет никаких указаний по этим вопросам).

Таким образом, ядерно-физический метод, основанный на пропускании нейтронов, с успехом может быть использован для определения плотности водорода в веществе и скорости гидрирования металлов. Чувствительность метода пропускания составляет 10 см^3 газообразного водорода на 1 см^3 металлического урана. Погрешность определения ($\sim 3\%$) в основном определяется статистической ошибкой измерений и может быть уменьшена до $\sim 1\%$.

Ядерно-физический метод менее трудоемок и более прост по сравнению с физико-химическими методами,



Р и с. 3. Зависимость скорости гидрирования урана от температуры по пропусканию нейтронов ($\circ$) и физико-химическому методу (Δ)

что облегчает введение полной автоматизации измерений при его использовании. Кроме того, он позволяет определять содержание водорода без разрушения целостности контролируемых изделий, а также контролировать процесс получения или разложения гидрида непрерывно по ходу самого технологического процесса. Метод применим для контроля водородсодержащих веществ в различном их фазовом состоянии. Целесообразно отметить, что, вероятно, метод пропускания медленных нейтронов может быть использован также при изучении кинетики более сложных реакций, в которых процесс гидрирования является одним из промежуточных этапов.

В заключение выражаем благодарность Н. А. Черношникову, В. А. Соменкову, С. Ш. Шильштейну за участие в обсуждении; В. Г. Федорову за помощь в проведении измерений на реакторе ИРТ-М; К. Г. Ткачуку и В. Г. Федорову за приготовление образцов гидридов циркония заданного химического состава.

Поступило в Редакцию 10/III 1975 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Блантер М. Е. Методика исследования металлов и обработки опытных данных. М., Металлургиздат, 1952.
2. Мурадян Г. В., Щепкин Ю. Г., Адамчук Ю. В. In.: Proc. IAEA Symp. «Nuclear Data for Reactors — 1970». Helsinki, 15—19 June 1970, v. 1, p. 603.
3. Бергер. В сб.: Методы неразрушающих испытаний (физические основы, практическое применение, перспективы развития). М., «Мир», 1972, с. 288.
4. Кан Дж., Рабинович Е. Химия урана. Т. 1. М., Изд-во иностр. лит., 1954.