

УДК 539.171.112

## ИССЛЕДОВАНИЕ ВОЗМОЖНОСТЕЙ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ НЕЙТРОНОВ С ЭНЕРГИЕЙ 2.5 – 3.3 МэВ ДЛЯ ИЗУЧЕНИЯ ГЛУБИННОГО РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ИЗОТОПОВ ВОДОРОДА В МАТЕРИАЛАХ

Б. Г. Скородумов, А. В. Андреев, Ю. М. Бурмистров, С. В. Зуев,  
С. А. Макаров, В. А. Симонов

*Описан метод определения концентрации изотопов водорода и их распределения по глубине в приповерхностных слоях материалов, основанный на облучении исследуемых образцов потоком монохроматических быстрых нейтронов из dd-реакции и регистрации изотопов водорода, как ядер отдачи. Глубина анализируемого слоя и чувствительность метода для образцов графита составили 75, 35, 12 мкм и  $5 \cdot 10^{19}$ ,  $5 \cdot 10^{19}$ ,  $5 \cdot 10^{20}$  атм/см<sup>3</sup> соответственно для H, D и T. Определены профили концентрации изотопов водорода в образцах графита, используемого в термоядерном реакторе JET (Англия).*

Исследование систем материал-водород является одной из актуальных задач при разработке теории поведения изотопов водорода в таких системах. Эти задачи необходимо решать в различных областях науки и техники – в космонавтике, энергетике, электронной, химической промышленности, металлургии, в физике твердого тела, при разработке технологий получения новых материалов и проведении различных научных исследований.

Для изучения механизмов поведения изотопов водорода в материалах особенно важно применение неразрушающих методов их определения. Такими методами, в первую очередь, являются ядерно-физические методы определения водорода [1, 2]. Наиболее универсальным методом, позволяющим определять как общее содержание, так и профили

концентрации изотопов водорода по глубине анализируемого слоя, является метод, основанный на регистрации ядер отдачи при облучении исследуемых объектов потоком быстрых нейтронов – NERD (Neutron-induced Elastic Recoil Detection) [2 – 6]. Анализируемый материал облучают быстрыми нейтронами с энергией  $E_n \sim 14 \text{ МэВ}$  и регистрируют телескопом кремниевых детекторов ядра отдачи от упругого рассеяния нейтронов на изотопах водорода. Разработанный метод использовался для исследования диффузионных процессов в различных системах [3, 6 – 8], распределения изотопов водорода в материалах первой стенки токамаков [5, 9] и в других важных задачах, связанный с изучением материал-водородных систем [4, 10]. Однако данный метод имеет ряд недостатков, которые ограничивают области его применения. Главным образом это относится к разрешению метода по глубине, которая составляет  $\sim 40 \text{ мкм}$  при определении водорода.

Настоящая работа посвящена исследованию возможностей метода NERD для определения изотопов водорода путем использования монохроматических нейтронов из реакции  $D(d, n)^3\text{He}$  с  $E_n \sim 3 \text{ МэВ}$  ( $dd$ -нейтронов). Использование  $dd$ -нейтронов позволяет значительно улучшить разрешение, уменьшая, правда, при этом полную глубину анализируемого слоя (для водорода  $\sim 1000$  и  $70 \text{ мкм}$  соответственно с  $E_n \sim 14$  и  $3 \text{ МэВ}$ ).

Метод анализа, основанный на регистрации ядер отдачи, достаточно подробно описан в монографиях [1, 2, 11, 12]. В основе метода лежит взаимодействие пучка ускоренных ионов или нейтронов с образцом, содержащим атомы определяемого элемента (изотопа). В нашем случае с образцом взаимодействуют монохроматичные быстрые нейтроны, которые в процессе упругого рассеяния выбивают ядра изотопов водорода из образца. Энергия ядер отдачи  $E$ , вылетающих под углом  $\theta$ , определяется соотношением

$$E = E_n \frac{4m_n m_r}{(m_n + m_r)^2} \cos^2 \theta, \quad (1)$$

где  $E_n$  – энергия налетающих нейтронов,  $m_n$  и  $m_r$  – массы нейтрона и ядра отдачи, соответственно. После рассеяния ядра отдачи теряют часть своей энергии в материале образца и попадают в детектирующую систему, которая регистрирует их энергетический спектр, описываемый (без учета аппаратной функции) выражением

$$Y(E) = N_0 \Delta\Omega \sigma(E_n, \theta) C(x) / S(E), \quad (2)$$

где  $N_0$  – число падающих на образец нейтронов,  $\Delta\Omega$  – телесный угол телескопа детекторов,  $\sigma(E_n, \theta)$  – сечение взаимодействия нейтронов с изотопами водорода,  $C(x)$  –

распределение изотопов водорода по глубине исследуемого слоя образца,  $S(E)$  – тормозная способность ядер отдачи в материале образца.

Расчет профилей концентрации проводится путем извлечения функции  $C(x)$  из выражения (2), где  $Y(E)$  – экспериментальный спектр ядер отдачи, полученный при облучении анализируемого образца.

Для реализации метода и оценки его метрологических характеристик была создана экспериментальная установка "NERD", состоящая из нейтронного генератора (НГ), блока облучения образцов и регистрации ядер отдачи, комплекса спектрометрической аппаратуры в стандартах NIM и CAMAC и системы сбора и обработки спектрометрической информации на базе персонального компьютера.

Модернизированный нейтронный генератор Т-400 "SAMES" [13] имеет следующие параметры: ускоряющее напряжение  $U_a = 320 - 380$  кВ, ток ускоренных дейтронов на мишени  $i_t = 1.0 - 1.6$  мА. Для получения нейтронов с  $E_n = 2.5 - 3.3$  МэВ ( $dd$ -нейтроны) использовались стационарные титан-дейтериевые мишени диаметром 28.5 мм. Максимальный поток нейтронов составлял  $7 \cdot 10^9$  с<sup>-1</sup>. НГ оснащен откалиброванным монитором нейтронного потока для измерения флюенса нейтронов при облучении исследуемых образцов.

Блок облучения образцов и регистрации ядер представляет собой откачиваемую камеру, в которой установлен телескоп из кремниевых детекторов (ТКД) и размещаются исследуемые образцы. ТКД предназначен для проведения  $\Delta E$ - $E$  спектрометрии заряженных продуктов ядерных реакций, протекающих под действием нейтронов на ядрах материала образцов: первый детектор толщиной  $\sim 15-20$  мкм поглощает часть энергии  $\Delta E$  вылетевших из образца частиц, второй детектор толщиной более 100 мкм является детектором полного поглощения. Предусилители обоих детекторов размещены на внешней части камеры. Блок облучения может располагаться под разными углами вылета нейтронов и на различных расстояниях от мишени НГ.

Комплекс спектрометрической аппаратуры включает в себя дискриминаторы, схемы совпадений, линейные ворота и амплитудно-цифровые преобразователи. Спектрометрическая информация накапливается в компьютере, затем полученные экспериментальные спектры  $Y(E)$  ядер отдачи обрабатывают по оригинальной программе и рассчитывают общее содержание изотопов водорода и профили их распределения по глубине.

Для оценки основных метрологических характеристик метода было проведено облучение  $dd$ -нейтронами модельных образцов из полиэтилена, майлара, графита и титан-дейтериевых и титан-третиевых мишеней различной толщины.

Максимальная глубина анализируемого слоя  $x_{max}$  определяется энергией нейтронов, энергетическим порогом спектрометра и составом матрицы анализируемого образца

$$x_{max} = R(E_{max}) - R(E_{min}), \quad (3)$$

где  $R(E)$  – пробег ядер отдачи в матрице исследуемого объекта, а  $E_{max}$  и  $E_{min}$  – максимальная и минимальная энергии ядер отдачи, регистрируемые ТКД. Для образца графита, при различных углах размещения блока облучения относительно пучка дейтронов нейтронного генератора, величины  $x_{max}$  составляют для углов  $90^\circ$  и  $0^\circ$ : 40 и 75, 20 и 35, 7 и 12 мкм соответственно при определении водорода, дейтерия, трития. Для матриц с  $Z$ , большим, чем у графита, глубина анализируемого слоя будет меньше.

Одной из основных характеристик метода является его чувствительность. Проведенные оценки нижней границы определяемых содержаний изотопов водорода дали следующие результаты (для графитового образца):  $5 \cdot 10^{19}$  ( $\sim 5 \cdot 10^{-4}$  ат.Н/ат.С),  $5 \cdot 10^{19}$  ( $\sim 5 \cdot 10^{-4}$  ат.Д/ат.С) и  $5 \cdot 10^{20}$  ( $\sim 5 \cdot 10^{-3}$  ат.Т/ат.С) соответственно для водорода, дейтерия и трития.

При получении глубинных профилей распределения изотопов водорода в образце основным параметром является разрешение метода по глубине  $\delta_x$ . Величина  $\delta_x$  – это минимальная толщина слоя, из которого ядра отдачи будут зарегистрированы ТКД в диапазоне энергий, равном энергетическому разрешению метода  $\delta_E$  (определяемому как полная ширина на полувысоте). Исходя из известного соотношения глубина-энергия

$$dx = dE/S(E) \text{ или } \Delta x = \Delta E/S(E), \quad (4)$$

где  $S(E)$  – тормозная способность ядер отдачи в материале образца,  $E$  – энергия зарегистрированных ТКД ядер отдачи, можно считать, что

$$\delta_x = \delta_E/S(E). \quad (5)$$

Энергетическое разрешение зависит от многих факторов, в том числе от моноэнергетичности налетающих нейтронов, эффекта многократного рассеяния нейтронов, собственного разрешения спектрометра, геометрии детектирующей системы, энергетического страгглига в образце и др.

Энергетическое разрешение ТКД определялось с помощью калибровочного  $\alpha$ -источника  $^{226}\text{Ra}$  в диапазоне энергий от 4.8 до 7.7 МэВ и составило  $\delta_{E,det} = 86$  кэВ. Для протонов и дейтронов с энергией 1.5–3.3 МэВ собственное энергетическое разрешение спектрометра составляет  $\delta_{E,det} \sim 90$  кэВ. Однако в реальных условиях проведения

анализа энергетическое разрешение метода определяется главным образом немонотонностью падающих на образец  $dd$ -нейтронов ( $\delta_{E,n}$ ) и страгглингом ядер отдачи в матрице образца ( $\delta_{E,s}$ ). Энергетический разброс нейтронов зависит главным образом от массового состава дейтронного пучка, бомбардирующего мишень нейтронного генератора, угла вылета нейтронов и разброса энергии пучка за счет потерь в дейтериевой мишени. Влияние таких эффектов, как неточность нейтронного источника и изменение спектра нейтронов за счет их рассеяния на элементах конструкций, незначительно.

Исходя из угловой зависимости в кинематике реакции  $D(d,n)^3He$  при генерации быстрых нейтронов, размещение блока облучения с образцом и ТКД под углом  $\theta = 90^\circ$  относительно пучка дейтронов нейтронного генератора позволяет улучшить энергетическое разрешение метода по сравнению с облучением под углом  $\theta = 0^\circ$ . Энергетическое разрешение, обусловленное разбросом энергий генерируемых нейтронов за счет потерь энергии дейтронов в мишени под углом  $\theta = 90^\circ$ , составляет  $\delta_{E,n} \sim 40 \text{ кэВ}$  ( $E_n = 2.46 - 2.54 \text{ МэВ}$ ), а при  $\theta = 0^\circ - \delta_{E,n} \sim 250 \text{ кэВ}$  ( $E_n = 2.83 - 3.32 \text{ МэВ}$ ). На рис. 1 приведены спектры дейтронов отдачи из тонкой ( $1.5 \text{ мкм}$ ) титан-дейтериевой мишени, зарегистрированные под углами  $\theta = 0^\circ$  и  $90^\circ$ . Энергетическое разрешение метода  $\delta_{E,tot}$ , полученное из приведенных на рис. 1 спектров, составляет  $400$  и  $250 \text{ кэВ}$  соответственно для  $0^\circ$  и  $90^\circ$ . Как видно из рис. 1, энергетическое разрешение метода при  $\theta = 90^\circ$  значительно лучше, чем при  $\theta = 0^\circ$ . Однако в этом случае глубина анализируемого слоя (водород в графите) меньше ( $x_{max}(\theta = 0^\circ) \sim 75 \text{ мкм}$ ,  $x_{max}(\theta = 90^\circ) \sim 40 \text{ мкм}$ ) и выход нейтронов при  $\theta = 90^\circ$  в три раза меньше, чем при  $\theta = 0^\circ$ . Поэтому, в зависимости от поставленных задач, используется соответствующая геометрия облучения.

Была проведена оценка разрешающей способности метода по глубине при регистрации протонов, дейтронов и тритонов отдачи. Разрешение по глубине в образце графита составило для углов  $90^\circ$  и  $0^\circ$ :  $8$  и  $12$ ;  $5$  и  $8$ ;  $3$  и  $5 \text{ мкм}$  соответственно при определении водорода, дейтерия и трития.

С помощью разработанной методики был проведен также анализ графитовых образцов, вырезанных из материала первой стенки термоядерного реактора типа токамак JET (Англия). Облучение образцов проводили под углом  $\theta = 0^\circ$  на расстоянии  $50 \text{ мм}$  от источника нейтронов. Время набора экспериментальных спектров составило  $\sim 4 \text{ часа}$ , спектры протонов и дейтронов отдачи получали одновременно в процессе облучения. Данные образцы были ранее проанализированы с использованием метода ядерных реакций и метода NERD на нейтронах с энергией  $E_n \sim 14 \text{ МэВ}$  [5].

На рис. 2 приведены спектры протонов и дейтронов отдачи, полученные при облу-

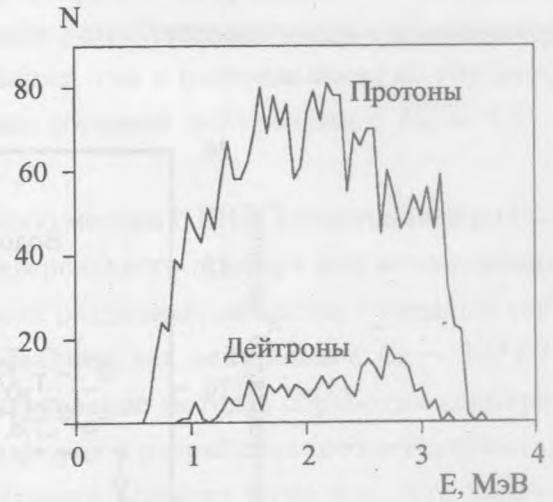
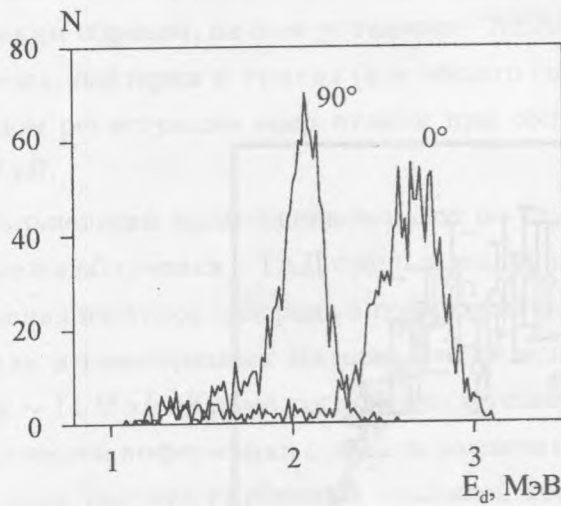


Рис. 1. Спектры дейтронов отдачи из тонкой (1.5 мкм) титан-дейтериевой мишени для углов рассеяния  $0^\circ$  и  $90^\circ$ .

Рис. 2. Спектры протонов и дейтронов отдачи из графитового образца N 4 JET.

чении графитового образца N 4 реактора JET нейтронами с энергией  $E_n \sim 3 \text{ МэВ}$ . Метод определения концентрации изотопов водорода относительный. Содержание  $H$  и  $D$  рассчитывалось путем сравнения с образцами с известным содержанием изотопов водорода. В качестве образцов сравнения использовали толстые образцы обычного и дейтерированного полиэтилена. Расчет профилей концентрации проводили согласно формуле

$$C(x) = C_{rs}(x_{rs}) \frac{Y(E)}{Y_{rs}(E)} \frac{S_{rs}(E)}{S(E)} \frac{M_{rs}}{M}, \quad (6)$$

где  $C(x)$  – определяемое содержание изотопа водорода в анализируемом образце на глубине  $x$ ;  $C_{rs}(x_{rs})$  – содержание изотопа водорода в образце сравнения на глубине  $x_{rs}$ ;  $Y(E)$  и  $Y_{rs}(E)$  – количество ядер отдачи образовавшихся на глубинах  $x, x_{rs}$  и зарегистрированных ТКД в анализируемом образце и образце сравнения, соответственно;  $S(E)$  и  $S_{rs}(E)$  – тормозные способности ядер отдачи в материалах анализируемого образца и образца сравнения;  $M$  и  $M_{rs}$  – коэффициенты, пропорциональные флюенсу нейтронов, падающих на облучаемые образцы. Расчет профиля концентрации проводился поканально, с переводом энергетической шкалы в шкалу глубин образца. На рис. 3 приве-

дены профили концентрации водорода и дейтерия в образце JET N 4, рассчитанные по приведенному выше способу.

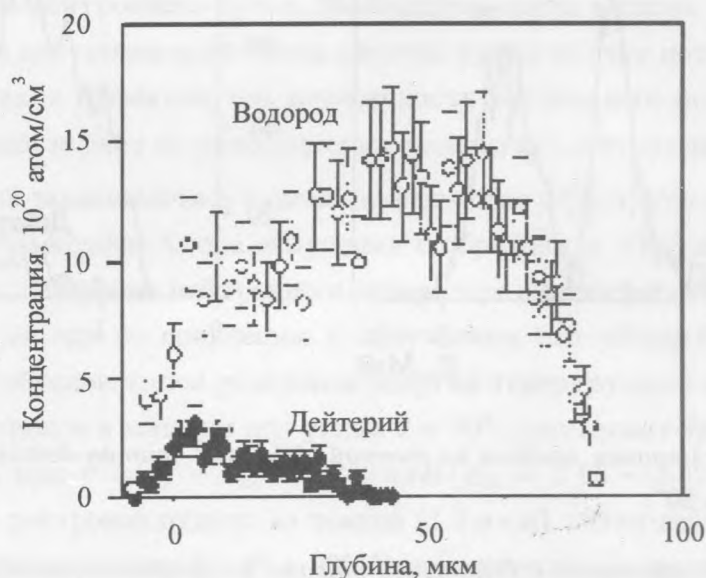


Рис. 3. Профили концентраций водорода и дейтерия в графитовом образце N 4 JET.

Сравнение глубинных профилей распределения изотопов водорода в анализируемом образце N 4 (рис. 3), полученных методом NERD с использованием нейтронов с  $E_n \sim 14 \text{ МэВ}$  [5] и разработанным нами методом с использованием нейтронов с  $E_n \sim 3 \text{ МэВ}$ , показывает удовлетворительное совпадение. Разработанный метод анализа по сравнению с  $14 \text{ МэВ-NERD}$  методом обладает лучшим разрешением по глубине, но максимальная величина анализируемого слоя меньше. С другой стороны, при облучении в потоке нейтронов с энергией  $E_n \sim 14 \text{ МэВ}$  одним из основных мешающих факторов является протекание ядерных реакций типа  $(n, p)$  и  $(n, d)$  (в частности,  $^{28}\text{Si}(n, p)^{28}\text{Al}$ ), что может вносить дополнительный вклад в спектр ядер отдачи. Кроме того, серьезной проблемой является радиационная стойкость ТКД и активация, как образца, так и элементов конструкции ТКД, что приводит к дополнительным ограничениям использования  $14 \text{ МэВ-NERD}$  метода.

Очевидно, что совместное применение обоих методов анализа позволит получать более полную информацию о распространении изотопов водорода в различных материалах. Такой комплексный подход дает возможность также проводить независимую

проверку правильности полученных результатов.

Таким образом, на базе установки "NERD" была разработана методика определения водорода, дейтерия и трития (как общего содержания, так и распределения по глубине) методом регистрации ядер отдачи при облучении образцов нейтронами с  $E_n = 2.5 - 3.3 \text{ МэВ}$ .

Дальнейшим продолжением работ по улучшению метода NERD является модернизация блока облучения с ТКД с целью создания универсального прибора для исследования поведения изотопов водорода в поверхностных слоях различных объектов – твердых тел, жидких и газообразных материалов – с использованием как нейтронов с  $E_n \sim 3 \text{ МэВ}$ , так и  $\sim 14 \text{ МэВ}$ . Кроме того, ведется усовершенствование методов обработки спектральной информации с учетом различных факторов и разработка соответствующих программ расчета глубинных профилей концентрации. Следует отметить, что данная установка "NERD" в перспективе позволит разработать методики определения других элементов и их изотопов, в частности гелия, бериллия, лития, бора и др. методом ядер отдачи.

Настоящая работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант N 98-03-32845а).

#### ЛИТЕРАТУРА

- [1] Хабибулаев П. К., Скородумов Б. Г. Ядерно-физические методы определения водорода в материалах. Ташкент: Фан, 1985.
- [2] Khabibulaev P. K. and Skorodumov B. G. Determination of hydrogen in materials. Nuclear Physics Methods. Springer-Verlag, **117**, 1989.
- [3] Skorodumov B. G. and Yatsевич I. O. Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res., **B64**, 388 (1992).
- [4] Skorodumov B. G., Yatsевич I. O., Ulanov V. G., et al., Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res., **B85**, 803 (1994).
- [5] Coad P., Skorodumov B. G., Серебряков V. N. et al., Vacuum, **47**, 985 (1996).
- [6] Скородумов Б. Г., Уланов В. Г., Жуковская Е. В., Жуковский О. Г. Физика металлов и металловедение, **83**, N 1, 94 (1997).
- [7] Кетко А. Я., Серебряков В. Н., Скородумов Б. Г., Яцевич И. О. Атомная энергия, **71**, вып. 2, 138 (1991).



- [8] Skorodumov B. G., Yatsevich I. O., and Zhukovsky O. G. Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res., **B85**, 301 (1994).
- [9] Skorodumov B. G., Buzhinskij I. O., West W. P., Ulanov V. G. J. Nucl. Matter., **233 – 237**, 1107 (1996).
- [10] Skorodumov B. G., Serebryakov V. N., Ulanov V. G. et al., Int. J. Hydrogen Energy, 1996, **21**, No. 11/12, 961 (1996).
- [11] Ключников А. А., Пучеров Н. Н., Чеснокова Т. Д., Щербин В. Н. Методы анализа на пучках заряженных частиц. Киев, Наукова думка, 1987.
- [12] Чернов И. П., Шадрин В. Н. Анализ содержания водорода и гелия методом ядер отдачи. М., Энергоатомиздат, 1988.
- [13] Андреев А. В., Барит И. Я., Варич О. М. и др. Атомная энергия, **66**, 134 (1989).

Поступила в редакцию 22 декабря 1998 г.