

С 344.10

T-19

Ат. энергия, 1967, т. 22,

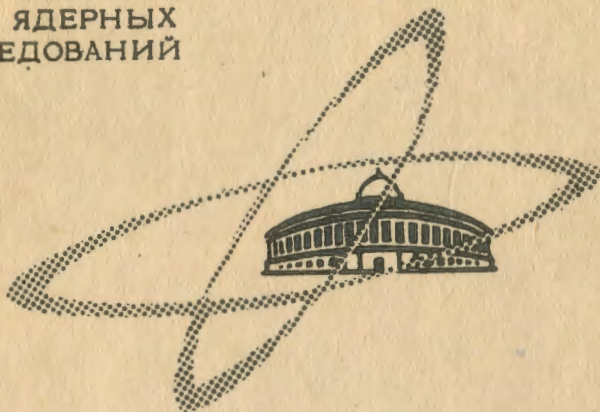
в. 4, с. 280-285

30/111

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

P - 2804



Н.И. Тарантин, В.В. Гордеев, А.В. Демьянов

ИССЛЕДОВАНИЕ ДИФФУЗИИ
ПРОДУКТОВ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ
В РАЗЛИЧНЫХ МАТЕРИАЛАХ

АБСОЛЮТНО ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

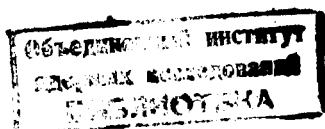
1966

P - 2804

Н.И. Тарантя, В.В. Гордеев, А.В. Демьянов

ИССЛЕДОВАНИЕ ДИФФУЗИИ
ПРОДУКТОВ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ
В РАЗЛИЧНЫХ МАТЕРИАЛАХ

Направлено в "Атомную энергию"



УЗ 92/1 пр.

1. Применение электромагнитных сепараторов изотопов для исследования продуктов ядерных реакций в значительной мере облегчает идентификацию анализируемых ядер и существенно расширяет возможности измерения характеристик их излучений. Однако использование сепараторов изотопов для изучения короткоживущих ядер пока что ограничено из-за сравнительно большого времени, необходимого для проведения всех этапов электромагнитного разделения. Это особенно относится к анализируемым продуктам в твердой фазе, которые нельзя вводить непосредственно в ионный источник через капилляр, в отличие от газообразных. В связи с этим на некоторых электромагнитных сепараторах были приняты меры по сокращению времени сепарации. В частности, некоторые сепараторы изотопов были оборудованы специальными устройствами для быстрого введения анализируемого вещества в ионный источник через шлюз без нарушения вакуума в объеме сепаратора ^{/1-3/}. В результате этого полное время электромагнитного разделения было сокращено для некоторых легколетучих элементов (ртуть, висмут, полоний, астатин, радон) до нескольких минут, и это позволило наблюдать образование короткоживущих изотопов этих элементов в различных ядерных реакциях ^{/4,5/}.

Существуют и другие, более радикальные, методы сокращения времени сепарации. Сущность этих методов состоит в том, что продукты ядерных реакций, образующиеся в мишени в результате облучения заряженными частицами или нейтронами, тут же выделяются из вещества мишени и по коротким коммуникациям или непосредственно передаются в ионный источник электромагнитного сепаратора.

Первые опыты по быстрому масс-спектрометрическому исследованию короткоживущих ядер таким способом были предприняты в 1951 году ^{/8/}.

В этих опытах исследовались короткоживущие изотопы криптона с периодом полураспада 10 секунд и более, образующиеся при делении урана нейтронами.

В настоящее время над идеями и проектами подобных сепараторов, получивших название сепараторов "на линии" ("on line"), работают во многих ядерно-физических лабораториях. Основные результаты работ в этом направлении обсуждались на конференции по электромагнитным сепараторам изотопов и их применению, проходившей в Дании в 1965 г. ^{/7-12/}

Схема одного из возможных вариантов быстродействующего электромагнитного сепаратора, создаваемого в ЛЯР ОИЯИ^{13/} для идентификации и исследования короткоживущих продуктов ядерных реакций, сводится к следующему.

Продукты ядерных реакций под действием импульса, сообщенного бомбардирующей частицей, выбиваются из тонкой мишени и внедряются в нагретые стенки газоразрядной камеры ионного источника. "Вбитые" атомы диффундируют к поверхности, испаряются и, падая в газовый разряд, ионизируются. Образующиеся ионы извлекаются из ионного источника, ускоряются и разделяются по массам в электромагнитном сепараторе изотопов, причем для обеспечения быстрой регистрации распада короткоживущих ядер сбор разделенных продуктов осуществляется непосредственно на счетчики, например, на полупроводниковые детекторы заряженных частиц.

Основной вопрос, определяющий возможности использования этого метода для быстрой идентификации короткоживущих ядер, — это вопрос о времени, которое необходимо, чтобы вбитые в стенки разрядной камеры атомы диффундировали на поверхность и испарились. Конкретных данных по скорости диффузии атомов в условиях, которые будут иметь место при работе электромагнитного сепаратора на выведенном пучке тяжелых ионов, в литературе нет. Поэтому нами были предприняты некоторые эксперименты в этом направлении.

2. В работе исследовалась обратная эмиссия продуктов ядерных реакций, внедренных в пластинки из различных материалов, нагретых до высокой температуры. Изучалось поведение атомов диспрозия и гафния, образующихся в реакциях под действием ускоренных ионов углерода. Выбор именно этих элементов определялся тем, что диспрозий является одним из элементов серии лантанидов и данные, полученные по скорости диффузии этого элемента, по-видимому, с достаточным основанием можно распространить на все элементы этой серии, а также и на их аналоги — трансурановые элементы серии актинидов, исследование свойств которых является одной из задач ЛЯР ОИЯИ. Гафний был интересен как один из труднолетучих элементов IV-ой группы периодической системы Менделеева, аналогом которого должен быть 104-ый элемент.

Методика исследований заключалась в следующем. Мишень, состоящая из тонкой подложки (15-микронная алюминиевая фольга) с нанесенным на нее слоем ($\approx 1 \text{ мкг/см}^2$) окиси неодима или окиси диспрозия, облучалась со стороны подложки пучком ионов C^{12} , ускоренных на 150-сантиметровом циклотроне ЛЯР ОИЯИ (см. рис. 1). Продукты ядерных реакций (ядра Dy или Hf) под действием импульса, передаваемого тяжелой бомбардирующей частицей, выбивались из мишени и, проходя через отверстие во вращающемся диске, внедрялись в нагреваемую электрическим током металлическую или графитовую пластину на глубину до нескольких микрон. Вбитые в пластинку атомы диффундировали в обратном направлении к поверхности, испарялись с нее и оседали на поверхность

вращающегося диска. По распределению осевших на диске радиоактивных атомов определялось время обратной эмиссии вбитых в нагретую пластинку продуктов ядерных реакций. Температура пластины во время эксперимента контролировалась по мощности нагрева пластины. Градуировочная кривая зависимости температуры пластины от мощности нагрева была получена в предварительных опытах с помощью оптического пирометра. В течение эксперимента в установке поддерживался вакуум $5 \cdot 10^{-5} - 10^{-4}$ мм Hg.

3. В опытах с диспрозием использовался его радиоактивный изотоп Dy^{150} ($T_{1/2} = 7$ мин), который в 18% случаев распадается с испусканием α -частицы^{14/}. Этот изотоп получался путем облучения естественной смеси изотопов неодима ионами углерода с энергией ≈ 78 Мэв. Наиболее вероятная реакция его образования — $\text{Nd}^{142}(\text{C}^{12}, \alpha)$.

Некоторые результаты опытов с диспрозием представлены на рисунках. На рис. 2 показано, как в зависимости от температуры меняется эмиссия атомов диспрозия, вбитых в нагретую пластину из тантала с незначительной примесью ниобия ($< 1\%$). Под эмиссией здесь понимается отношение числа атомов диспрозия, оставивших нагретую пластину к концу облучения, обычно продолжавшегося ≈ 15 мин, к числу атомов диспрозия, вбитых в пластину во время облучения. Эта величина определялась по интенсивности счета α -частиц диспрозия-150, внедренного в диск со стороны мишени, и диспрозия-150, оставшегося в пластине. Интенсивность измерялась сцинтилляционным счетчиком (ZnS) после окончания облучения и приводилась к одному моменту времени.

Из рис. 2 видно, что эмиссия атомов диспрозия сильно возрастает в интервале температур $1500-1700^\circ\text{C}$, достигая 80% при температуре $\approx 1800^\circ\text{C}$. На рис. 3 даются результаты измерения распределения эмитированных из пластинки и осевших на диске атомов диспрозия по времени. В этих измерениях круглый диск после окончания облучения разрезался на 12 равных секторов, и α -активность каждого сектора со стороны, обращенной к пластине, измерялась счетчиком.

На рис. 3 по оси абсцисс отложен порядковый номер сектора (отсчет ведется, начиная от окна в направлении, противоположном направлению вращения), по оси ординат — α -активность осевшего на секторе диспрозия-150, эмитированного из пластинки. На рисунке представлены результаты опытов для трех различных значений периодов обращения диска ($T = 0,85$ сек; 3 сек и 15 сек) при температуре танталовой пластины 1750°C . Указанные ошибки — статистические ошибки счета.

Из рисунка видно, что эмиссия диспрозия заметно меняется на протяжении периода обращения диска. Возрастание эмиссии в конце периода (сектор 11), наблюдаемое систематически при малых скоростях вращения, обусловлено забросом эмитированных из пластины в начальный момент атомов диспрозия, связанным с широким угловым распределением (по нашим данным приблизительно изотропным).

Эти экспериментальные данные во временной шкале приведены на рис. 4. По оси

ординат отложена доля атомов диспрозия, эмитированных за временной интервал 0,1 сек, по оси абсцисс - время эмиссии. При обработке экспериментальных данных принималось, что в опытах с $T = 15$ сек рецикличность отсутствует. В остальных двух случаях рецикличность учитывалась. Тот факт, что результаты опыта с $T = 0,85$ сек плавно не сопрягаются с данными опытов с $T = 3$ сек и $T = 15$ сек, по-видимому, обусловлен тем, что температура в первом случае была несколько выше (в пределах погрешности измерений $\Delta t = \pm 50^\circ\text{C}$), чем в двух последних. Возможно, что эти флюктуации связаны с неконтролируемым взаимодействием нагретой танталовой пластины с атомами остаточного газа (вероятно, с кислородом) в объеме установки. Пунктиром на рисунке дается усредненная кривая, штрих-пунктиром представлена интегральная кривая, построенная по усредненной. Последняя кривая показывает, какая доля атомов диспрозия эмитирует из пластины к данному моменту времени. Как видно из рисунка, 50% внедренных атомов эмитируют из нагретой пластины за 0,1 сек.

Исследовалась эмиссия вбитых атомов и из других материалов: молибдена, графитизированной фильтровальной бумаги и промышленного чистого графита. Было найдено, что эмиссия продуктов ядерных реакций из нагретой молибденовой пластины при тех же температурах ($1700-1900^\circ\text{C}$) аналогична эмиссии из тантала. Графит, как промышленный, так и полученный при прокаливании без доступа воздуха фильтровальной бумаги, обладал значительно более низкими эмиссионными свойствами. Это по-видимому, связано с взаимодействием внедренных атомов с графитом в нагретой пластине и образованием труднолетучих карбидов редких земель.

Следует отметить, что когда работа готовилась к печати, нам стали известны результаты опытов по эмиссии редких земель, образуемых в танталовой пластинке толщиной 0,2 мм под действием протонов с энергией 600 Мэв^{11/}. В этих опытах наблюдалась более медленная эмиссия при температурах, сравнимых с нашими и выше. В нашем случае, по-видимому, более быстрой эмиссии способствовали: малая глубина вбивания ($\approx 10^{-4}$ см, в отличие от активации на всю толщину пластинки в случае^{11/}) и отсутствие разрыва во времени между моментом внедрения и началом нагрева вбитых атомов.

4. В опытах с гафнием измерения проводились на его изотопах Hf^{170} и Hf^{171} , получаемых при облучении естественной смеси изотопов диспрозия ионами углерода по реакции ($\text{C}^{12}, 4\text{в}$).

Для регистрации изотопов гафния, распадающихся с испусканием β -частиц и γ -лучей, использовался торцовый счетчик Гейгера. Так как под действием пучка ионов углерода непосредственно в пластине и диске образовывались β -активные продукты реакций, то количественные измерения эмиссии гафния не могли быть проведены.

Мы ограничились только относительными измерениями распределения осажденных на диск атомов гафния, эмитированных из пластины. В этих опытах использовались три сложенных вместе медных диска с общим окном, в первом из которых (толщиной 2 мм) тормозились ионы углерода, второй (толщиной 20 микрон) использовался для определения уровня наведенной нейтронами β - и γ -активности, третий (толщиной также 20 микрон) - для осаждения эмитированных из пластины атомов. Идентификация Hf^{170} и Hf^{171} производилась по их периодам полураспада, известным из таблиц.

На рис. 5 приведено распределение активности одного из изотопов гафния, осевшего на вращающийся диск. Это данные одного из опытов, в котором использовались пластины из тантала с примесью ниобия, нагретые до температуры 1780°C . Как видно из рисунка, период полураспада интенсивности эмиссии составляет ≈ 8 сек, однако об истинной скорости эмиссии судить трудно, т.к. в этом опыте отсутствуют данные об абсолютном выходе.

5. Полученные экспериментальные результаты дают непосредственный ответ на поставленный выше вопрос о времени эмиссии некоторых продуктов ядерных реакций, вбитых в нагретую пластину, и позволяют заключить, что можно рассчитывать на конструирование ионного источника для электромагнитного сепаратора изотопов типа "on line" с таким методом быстрой доставки продуктов ядерных реакций непосредственно в разрядную камеру источника. Опасность запыления мишени в таком варианте, по-видимому, не велика, т.к. эксперименты в условиях наших опытов не приводили за несколько часов работы к какому-либо заметному снижению выхода продуктов ядерных реакций, обусловленному запылением мишени. Вместе с тем эти результаты являются дополнительной информацией о диффузии атомов в твердых телах в условиях сильных радиационных повреждений. Обсуждение полученных результатов в этом направлении дается ниже.

Энергия, которую получает ядро-конечный продукт реакции - в результате слияния бомбардирующей частицы с ядром мишени, в предположении угловой изотропии испускаемых из составного ядра нейтронов определяется формулой:

$$E_2 = E_1 \frac{A_1 A_2}{(A_1 + A_3)^2} \quad (1)$$

где E - энергия, A - массовое число, индекс 1 относится к бомбардирующей частице, индекс 2 - к конечному продукту ядерной реакции, индекс 3 - к ядру мишени. Энергия ионов C^{12} в наших опытах после прохождения подложки мишени составляла 78 Мэв, и энергия отдачи продуктов ядерных реакций равнялась 5,8 и 5,1 Мэв соответственно для ядер диспрозия и гафния.

Пробег тяжелых атомов с такими начальными энергиями определяется двумя факторами: торможением в результате потерь энергии на возбуждение и ионизацию атомов

среды и торможением в результате упругих столкновений двух взаимодействующих атомов. Парциальный вклад каждого из этих двух замедляющих движение частицы факторов хотя и поддается расчету, однако более надежные данные в этом отношении могут быть найдены из аналогичных экспериментальных данных. Систематика пробегов атомов при таких начальных скоростях ($v = 10^8$ см/сек) дается в работе /15/, из которой следует, что глубина внедрения атомов диспрозия и гафния с энергией 5-6 Мэв должна составлять приблизительно 10^{-4} см. Интерпретации полученных результатов в рамках теории диффузии сводится к определению потока диффундируемых атомов через границы пластины:

$$J = -D \frac{\partial c}{\partial x}, \quad (2)$$

где D - коэффициент диффузии, а $c = c(x, t)$ - концентрация диффундируемых атомов в пластине, определяемая уравнением накопления диффундируемого вещества, которое в самом общем случае сводится к

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} - \lambda c + \nu. \quad (3)$$

Здесь λ - константа радиоактивного распада, а ν - плотность источников образования радиоактивных атомов.

В нашем случае время диффузии за границу пластины существенно меньше времени жизни исследуемых ядер ($\tau_{\text{диф}} = \frac{R^2}{D} \ll \frac{1}{\lambda}$, где $R = 10^{-4}$ см - глубина внедрения продуктов реакции), поэтому вторым членом в уравнении (3) можно пренебречь. При решении уравнения (3) необходимо учитывать два периода: период накопления радиоактивных атомов в поверхностном слое пластины ($\nu \neq 0$), когда окно в диске располагается напротив пластины, и период эмиссии внедренных радиоактивных атомов ($\nu = 0$), когда нагретая пластинка располагается напротив сплошной части диска. Полученные в наших опытах распределения эмитированных атомов во времени отражают второй период. Начальные условия решения уравнения (3):

$$\begin{aligned} c(x, 0) &= c_0 & \text{в области} & \quad 0 < x < R, \\ c(x, 0) &= 0 & \text{---} & \quad R < x < L, \end{aligned}$$

где L - толщина танталовой пластины. Краевые условия:

$$c(0, t) = c(L, t) = 0.$$

Постоянство начальной концентрации в области $0 < x < R$ является достаточно хорошим приближением, поскольку в опытах использовалась естественная смесь многих изотопов неодима, что обусловило приблизительно равную вероятность образования исследуемых продуктов по всей (~ 1 мгр/см²) толщине мишени (результат суперпозиции 2-3-функций воз-

буждения), а следовательно, равномерное распределение в пределах до максимального пробега продуктов реакции в танталовой пластине.

Краевые условия, $c(0, t) = c(L, t) = 0$, аналогичные случаю диффузии в среде с связывающими границами, обусловлены тем, что вакуум - пространство бесконечно большой емкости.

Не останавливаясь на точном и довольно трудоемком решении уравнения (3) с приведенными начальными и краевыми условиями, ограничиваемся лишь качественными выводами, вытекающими из этого решения, а именно: а) отношение потоков диффундируемого вещества из слоя внедрения в вакуум и в глубину пластины приблизительно равно $(\frac{L}{R})^2$, т.е. в нашем случае практически все продукты реакции диффундируют в вакуум $(\frac{L}{R})^2 = 10^4$; б) скорость эмиссии в вакуум изменяется по закону:

$$J = \frac{1}{R} e^{-\frac{\pi^2}{R^2} D t} \quad (4)$$

Аппроксимация экспериментальных данных экспоненциальным законом дает

$$D = 10^{-9} - 10^{-10} \text{ см}^2/\text{сек для диспрозия в тантале при } t = 1750^\circ\text{C. Эта величина}$$

существенно не отличается от значений коэффициентов диффузии для различных веществ в металлах при $t \sim 1700^\circ\text{C}$, хотя в условиях наших опытов имели место радиационные повреждения в пластинке, обусловленные тяжелыми бомбардирующими частицами и продуктами ядерных реакций, разрушающими кристаллическую структуру решетки тантала и способствующими тем самым ускорению диффузии.

В заключение выражаем благодарность профессору Г.Н. Флерову за постановку задачи и поддержку.

Л и т е р а т у р а

1. J.Uhler, T.Alvager, Arkiv Fysik, 14, 473 (1958).
2. J.L.Sarrouy, R.Klapisch, Electromagnetic Separation of Radioactive Isotopes. Proceedings of the International Symposium Held in Vienna, May 23-25, 1960. Edited by Higsberger and Vieböck, Wien, Springer Verlag, 1961.
3. J.L.Sarrouy, J.Camplan, J.S.Dionisio, J.Fournet-Fayas, G.Levy and J.Obert. Nucl.Instr.Meth., 38, 29 (1965).
4. N.Poffe, G.Albouy, R.Bernas, M.Gusakov, H.Riou, J.Teillac, Journ. Phys.Rad., 21 343 (1960).
5. J.Uhler, W.Forsling, B.Astrom, Arkiv Fysik, 24, 421 (1963).
6. O.Kofoed-Hansen and K.O.Nielsen, Mat.Fys.Medd.Dan., Vid.Selsk, 26, 7 (1951).
7. G.Rudstam, Nucl.Instr.Meth., 38, 282 (1965).
8. R.Klapisch and R.Bernas, Nucl.Instr.Meth., 38, 291 (1965).
9. S.Borg, U.Fagerquist, G.Holmahl, F.Kropf, Nucl.Instr.Meth., 38, 296 (1965).

10. G.Sidenius, R.M.Gammon, R.A.Naumann, T.D.Thomas. Nucl.Instr.Meth., 38, 299 (1965).
11. M.L.Anderson, O.B.Nielsen and B.Scharff. Nucl. Instr.Meth., 38, 303 (1965).
12. M.L.Talbert, Jr., D.Thomas. Nucl.Instr.Meth., 38, 300 (1965).
13. N.I.Tarantin, A.V.Demyanov, Yu.A.Dyachikhin, A.P.Kabachenko. Nucl.Instr. Meth., 38, 103 (1965);
Н.И. Тарантин, А.В. Демьянов. ПТЭ, № 1, 41 (1966);
А.В. Демьянов, Н.И. Тарантин, Ю.А. Дьячихин, А.П. Кабаченко. ПТЭ, № 2, 28 (1966).
14. R.D.Macfarlane, D.W.Seegmiller. Nucl.Phys., 53, 449 (1964).
15. J.Lindhard, M.Scharff and H.E.Schiff. Mat.Fys.Medd., Dan.Vid.Selsk., 33, 14 (1963).

Рукопись поступила в издательский отдел
24 июня 1966 г.

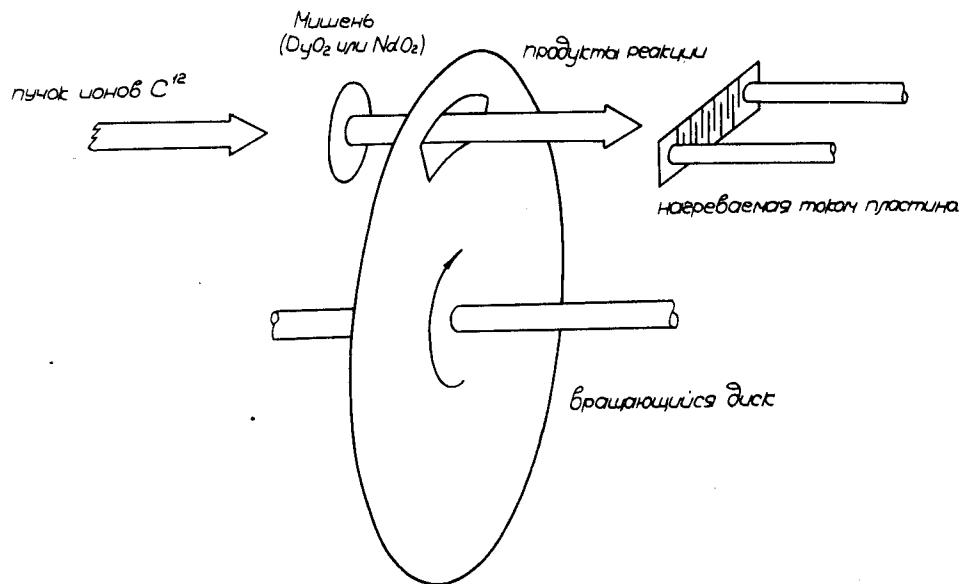


Рис. 1. Схема опытов.

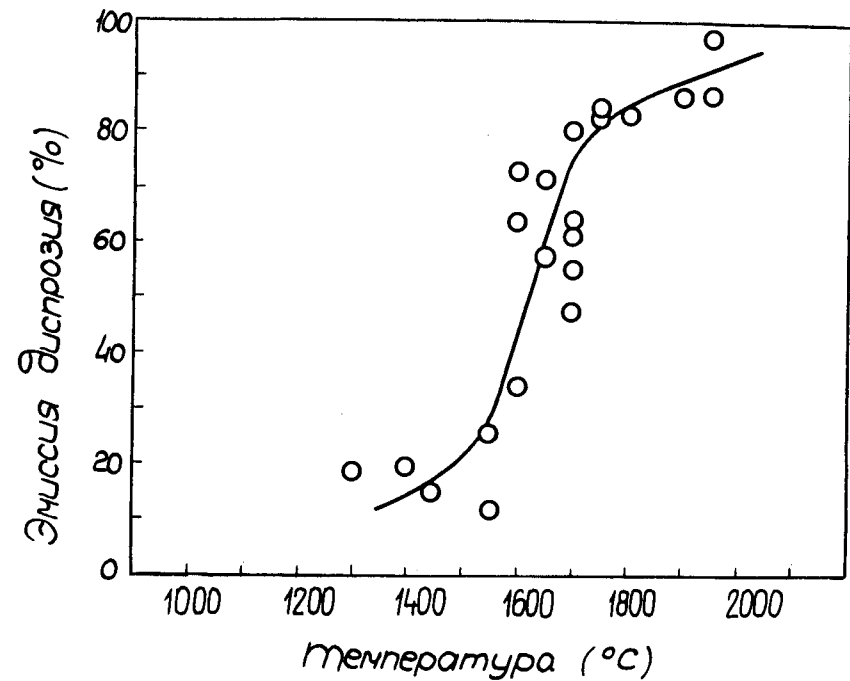


Рис. 2. Эмиссия атомов диспрозия в зависимости от температуры.

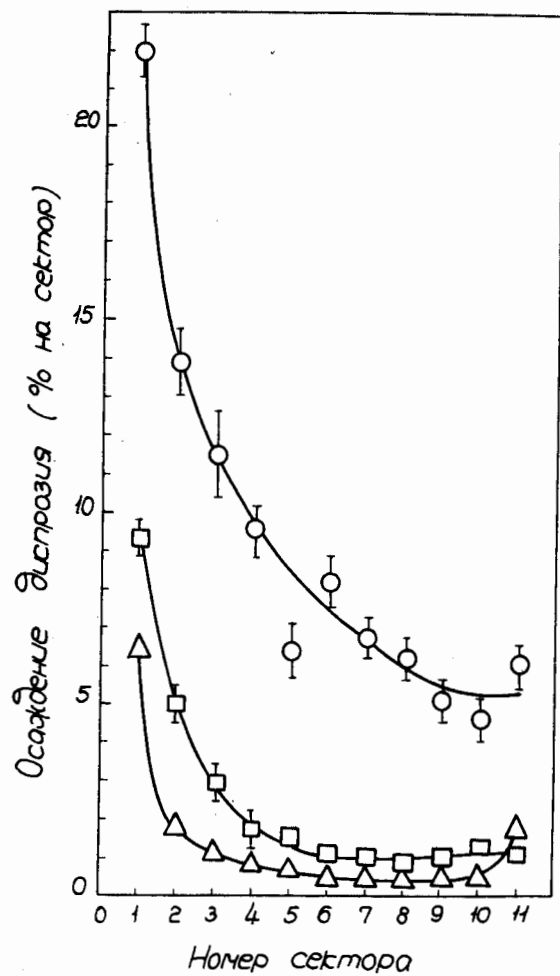


Рис. 3. Распределение осевших на диске атомов диспрозия (0 - период обращения диска, $T = 0,85$ сек, \square - $T = 3$ сек, Δ - $T = 15$ сек).

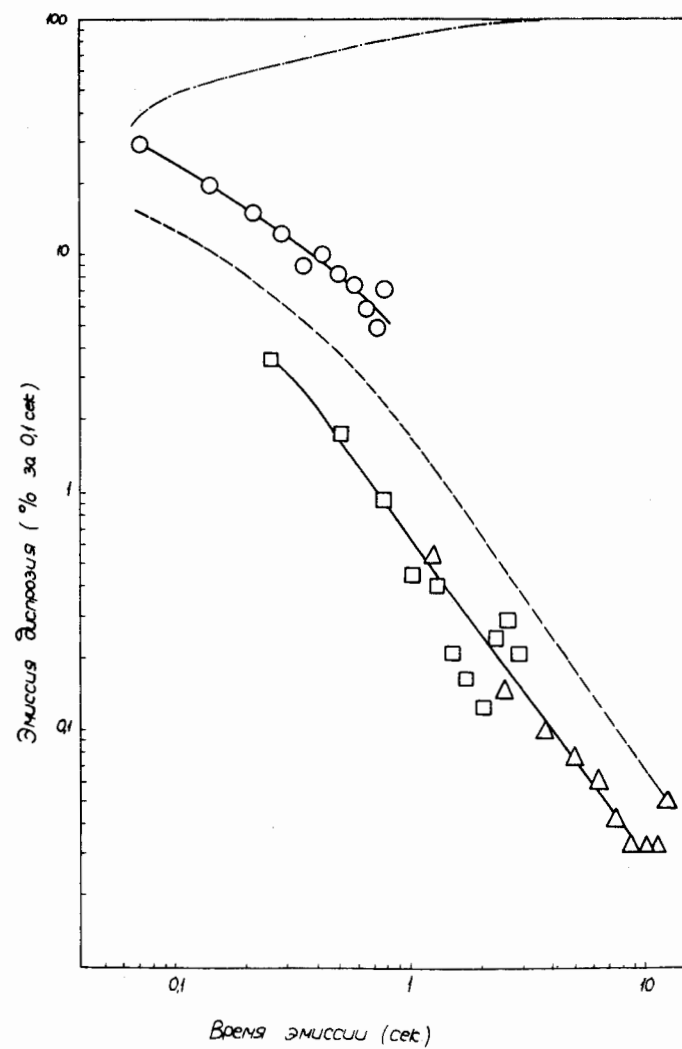


Рис. 4. Эмиссия атомов во времени.

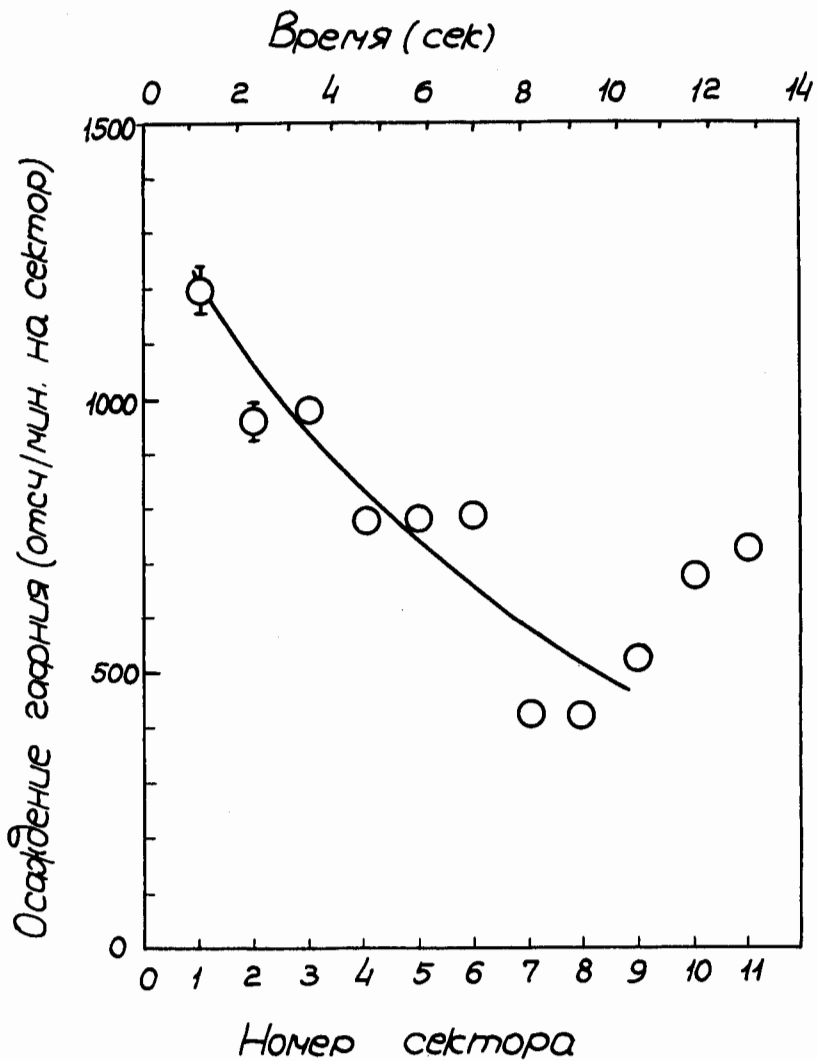


Рис. 5. Распределение осевших на диске атомов гафния ($T = 15$ сек.).