

8335

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

ДУБНА



8335

Экз. чит. зала

P12 - 8335

Т.Реетц, Б.Айхлер

ДИФФУЗИЯ ПРОДУКТОВ
ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ В α -ТОРИИ

1974

ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

P12 - 8335

Т.Реетц, Б.Айхлер

ДИФФУЗИЯ ПРОДУКТОВ
ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ В α -ТОРИИ

Направлено в "Kernenergie"

Научно-техническая
библиотека
ОИЯИ

Reetz T., Айхлер Б.

P12 - 8335

Диффузия продуктов ядерных реакций в α -тории

Исследовался процесс улетучивания продуктов ядерных реакций Ac, Ag, Bi, Ce, Cs, J, Pb, Po, Ra, Rb, Ru, Sb, Sr и Y из металлического α -тория в интервале температур 960 . . . 1330°C. Эмпирически были найдены корреляции между атомными объемами диффундирующих атомов главных групп и коэффициентами диффузии, а также между предэкспоненциальным множителем D_0 и энергией активации Q . Значения $d \log D_0 / dQ$ для кубических гранецентрированных металлов зависят от атомного объема, энтальпии плавления и температуры плавления этих металлов.

Препринт Объединенного института ядерных исследований.
Дубна, 1974

Reetz T., Eichler B.

P12 - 8335

Diffusion of the Nuclear Reaction Products
in α -Thorium

The release of the nuclear reaction products Ac, Ag, Bi, Ce, Cs, J, Pb, Po, Ra, Rb, Ru, Sb, Sr, and Y from metallic α -thorium was investigated in a temperature region of 960°C to 1330°C. Diffusion coefficients were found to vary with atomic volumes of the diffusing atoms. The value $d \log D_0 / dQ$ (D_0 preexponential factor, Q activation energy) for f.c.c. metals appears to depend on the atomic volume of the host metal, its heat of fusion and on its melting temperature.

Preprint. Joint Institute for Nuclear Research.
Dubna, 1974

Исследование поведения продуктов ядерных реакций, образующихся при облучении в массе мишени, имеет большое значение для решения многих практических задач ядерной физики и химии. Целью данной работы является изучение диффузии в α -тории продуктов ядерных реакций.

Изучению этого вопроса посвящено несколько работ. Так, например, Meechan^{/1/}, исследуя процесс спекания, определил коэффициент самодиффузии, по изменениям α -спектров в процессе диффузии Schmitz и др.^{/2/} определили коэффициенты диффузии Th, Pa и U в металлическом тории; используя метод последовательного снятия слоев, Fox и др.^{/3/} измерили коэффициенты диффузии продуктов деления - Te, J, Mo, Ce и ¹⁴⁰Ba - ¹⁴⁰La.

Если процесс испарения с поверхности тория является достаточно быстрым по сравнению с процессом переноса исследуемых элементов из массы металла к поверхности, то концентрация этих элементов на поверхности практически равна нулю. Приняв, что это условие выполняется и что начальное распределение инородных атомов в тории является гомогенным, можно представить выражение второго закона Фика для пластины в следующем виде^{/4/}:

$$F = 100 - \frac{800}{\pi^2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{(2n+1)^2} \exp\left(-\frac{(2n+1)^2 \pi^2 \cdot D \cdot t}{d^2}\right) \cdot /1/$$

где F - процент улетучивания; D - коэффициент диффузии, t - время; d - толщина шайбы. При $F < 65\%$ получается приближение

$$F = 400 \sqrt{D \cdot t} / \pi d^2 . \quad /2/$$

МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Фольги из тория толщиной $d = 37 \mu$ облучались на пучке протонов дубненского синхроциклотрона с энергией 660 МэВ. После облучения они выдерживались в течение 10-150 дней. Благодаря малой энергии отдачи продукты ядерных реакций практически были равномерно распределены по всему объему тория.

Образцы в течение определенного времени нагревались в кварцевой трубке при температурах 900-1330 °С. Измерение температуры производилось Pt/Pt-Rh - термомпарой. Через трубку продувался чистый гелий /танталовый геттер, 1000 °С/.

Для того чтобы исключить контакт тория с кварцевой трубкой, образцы завертывались в танталовую фольгу или подвешивались на вольфрамовой проволоке /диаметром 50 μ /. Легколетучие продукты адсорбировались активированным углем непосредственно за зоной нагрева.

Содержание различных изотопов в образцах до и после нагревания и в возгонах определялось γ -спектрометрическим методом с использованием $Ge(Li)$ -детектора /разрешение 2 кэВ/.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЯ

Было замечено, что при температуре опыта свыше 960 °С процент инородных атомов, удаляемых из α -тория в процессе эксперимента, не зависит от того, был ли образец завернут в танталовую фольгу или же подвешивался на вольфрамовой проволоке. При температурах

ниже 960 °С количества Se и Y , удаленные из образца, больше у образцов, имеющих контакт с танталовой фольгой. По-видимому, это можно объяснить тем, что Se и Y не испаряются при низких температурах с поверхности образцов, а удаляются за счет диффузии в танталовой фольге.

На *рис. 1* представлены результаты опытов по определению скорости улетучивания Se и Cs . Экспериментальные точки хорошо совпадают с кривыми, вычисленными по уравнению /1/ /коэффициенты диффузии из таблицы/. Из этого следует, что скорость улетучивания определяется диффузией в массе α -тория.

Выход продуктов ядерных реакций из образца увеличивается с повышением температуры. В качестве примера на *рис. 2* приведена зависимость выхода J и Bi от температуры.

Из уравнения /1/ определялись коэффициенты диффузии. Обычное выражение температурной зависимости коэффициента диффузии имеет вид

$$D = D_0 \exp \left(- \frac{Q}{RT} \right) , \quad /3/$$

где D_0 - предэкспоненциальный множитель, Q - энергия активации.

В таблице представлены полученные коэффициенты диффузии в α -тории. Там же приведены литературные данные. Несмотря на различные методы измерения видно, что коэффициент диффузии Se , определенный в данной работе, находится в достаточно хорошем соответствии с данными Fox и др. /3/.

Изменение коэффициента диффузии иода в α -тории с температурой не отвечает уравнению /3/, что противоречит данным Fox и др.

Особый интерес представляет высокая скорость транспортировки из массы образца к поверхности элементов группы ШВ Y, La / $^{140}Ba - ^{140}La$ / и Ac , а также редкоземельных элементов Se, Pm . На *рис. 3* показана часть γ -спектра образца тория до нагревания и та же часть спектра возгонов; видно, что безносительный Pm довольно легко улетучивается.

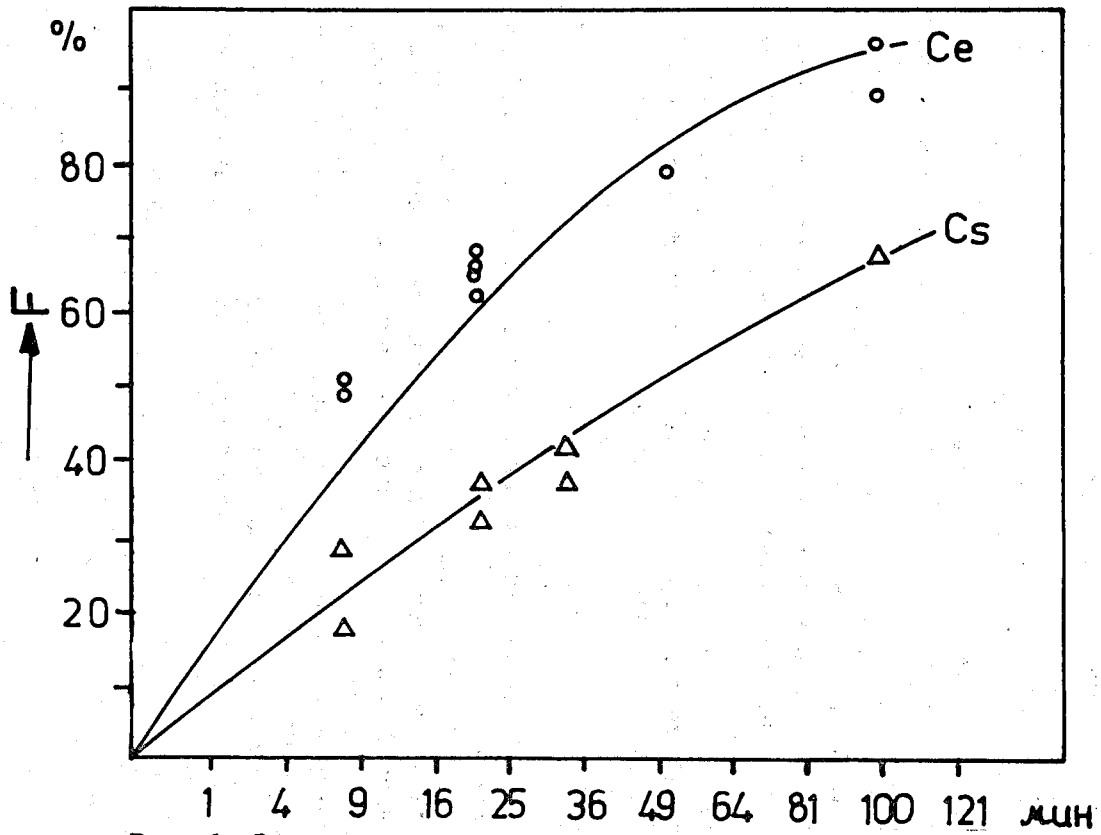


Рис. 1. Зависимость улучшения элементов Ce и Cs от времени отжига /1260°C/.

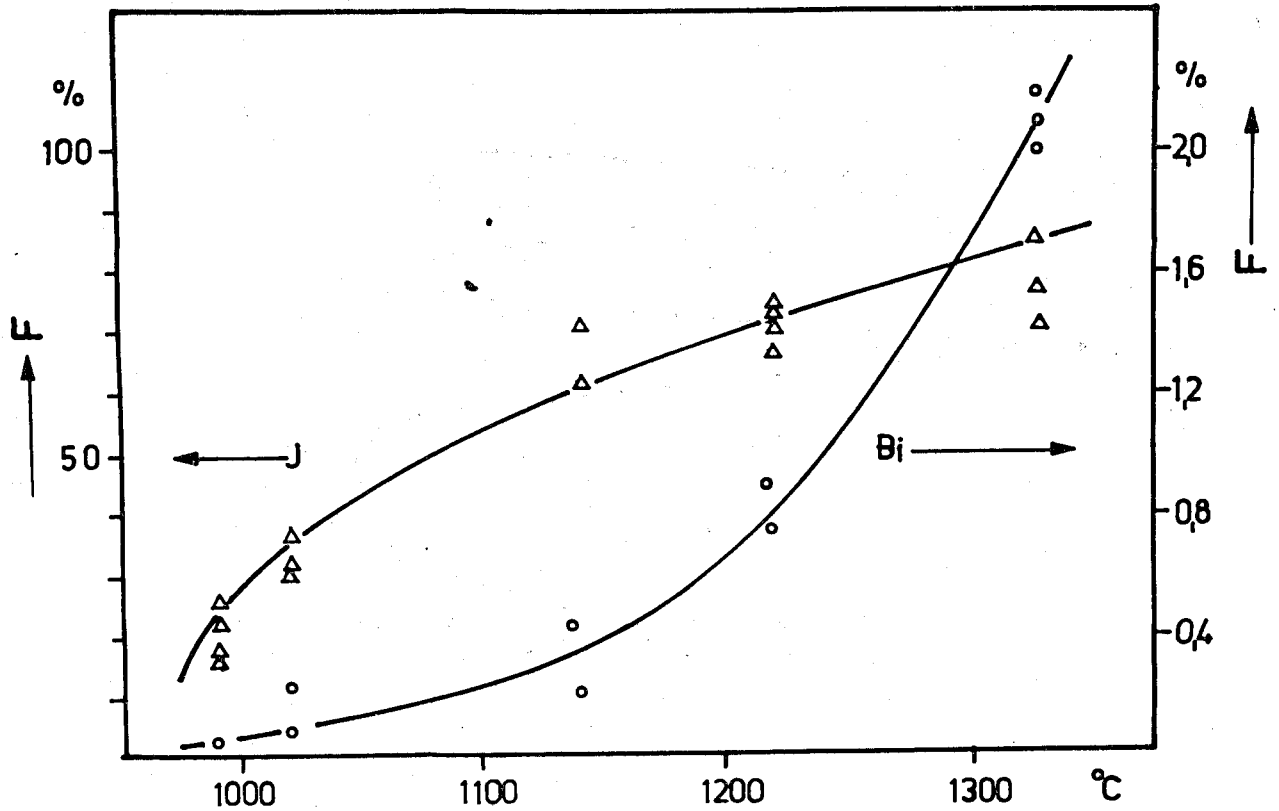


Рис. 2. Температурная зависимость улучшения элементов J и Bi /время отжига 30 мин./.

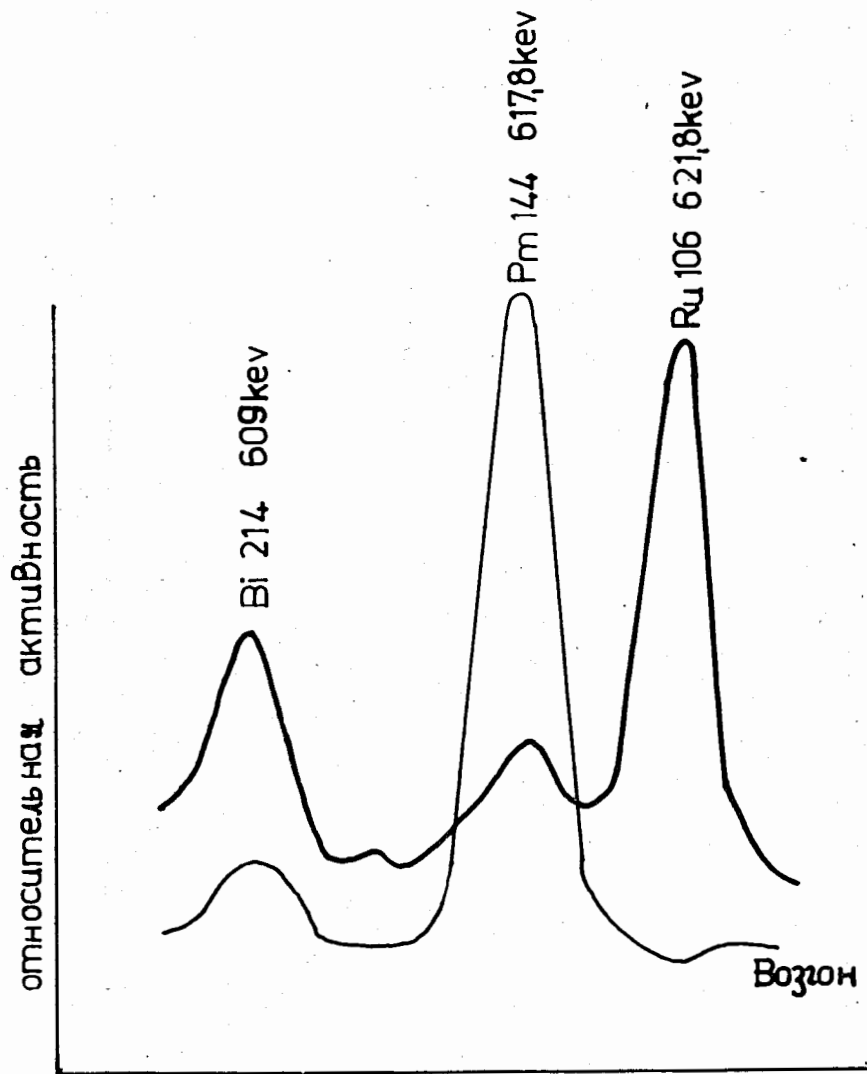


Рис. 3. Часть γ -спектра образца тория и возгонов.

С помощью теории Neumann-Hirschwald^{/6/} нами была вычислена энергия активации для диффузии по ваканционному механизму в кубических гранцентрированных металлах, однако вычисленные данные сильно отличаются от экспериментальных. Точно так же не получили экспериментального подтверждения вычисленные Fox и др. методом Лазаруз-Ле Клер энергии активации Ce и Ba. Авторы объясняют эти отклонения наличием двух механизмов диффузии - ваканционного и междуузельного.

Как показано в работе Мур^{/6/}, существует связь между энергией активации и атомным объемом примесей V_2 , диффундирующих в матрице металлов к.г.ц.-типа. Энергия активации определяется эмпирическим выражением

$$\log Q = a \log V_2 + b.$$

Константы a и b зависят от материала матрицы и от электронной структуры продуктов, диффундирующих в матрице. Вообще непереходные элементы имеют иные константы, чем переходные 3-d и 4-d-элементы. На рис. 4 показаны данные по диффузии элементов главных групп в α -тории, откуда методом наименьших квадратов получается

$$\log Q = (-1,0 \pm 0,3) \log V_2 + 6,2 \pm 0,4 \quad /4/$$

$/Q$ в кал; V_2 в см^3 , коэффициент корреляции - 0,79/. Между энергией активации и значением $\log D_0$ также существует корреляция^{/7/}. Методом наименьших квадратов из данных таблицы получается отношение

$$\log D_0 = (13,9 \pm 1,4) \cdot 10^{-5} Q - (9,6 \pm 0,9) \quad /5/$$

$/Q$ в кал; D_0 в см.сек^{-1} , коэффициент корреляции 0,91/. Мы нашли, что значения $d \log D_0 / d Q$ отдельных металлов к.г.ц.-типа зависят от величин $V_1 N_{\text{пл}} / T_{\text{пл}}^2$, где V_1 - атомный объем металла, $N_{\text{пл}}$ - энтальпия плавления и $T_{\text{пл}}$ - его абсолютная температура плавления.

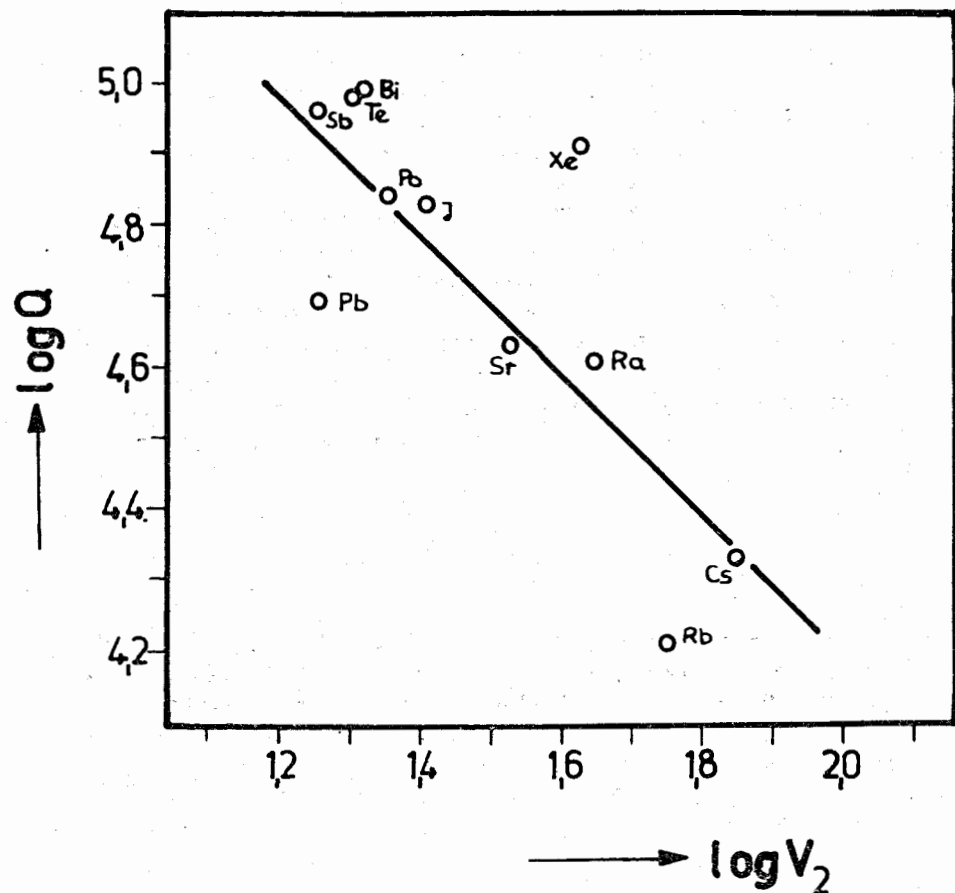


Рис. 4. Зависимость энергии активации от атомного объема диффундирующих атомов / Q в кал, V_2 в см^3 /.

На рис. 5 представлена эта зависимость. Величины $d \log D_0 / dQ$ для диффузии в к.г.ц. - металлах Al ($26,7 \cdot 10^{-5}$),

Ag ($11,8 \cdot 10^{-5}$), Cu ($6,6 \cdot 10^{-5}$) и Ni ($5,7 \cdot 10^{-5}$) были определены Козака и др. /7/ из литературных данных. Величина $d \log D_0 / dQ$ для Au ($8,6 \pm 1,1 \cdot 10^{-5}$) была вычислена из /5/.

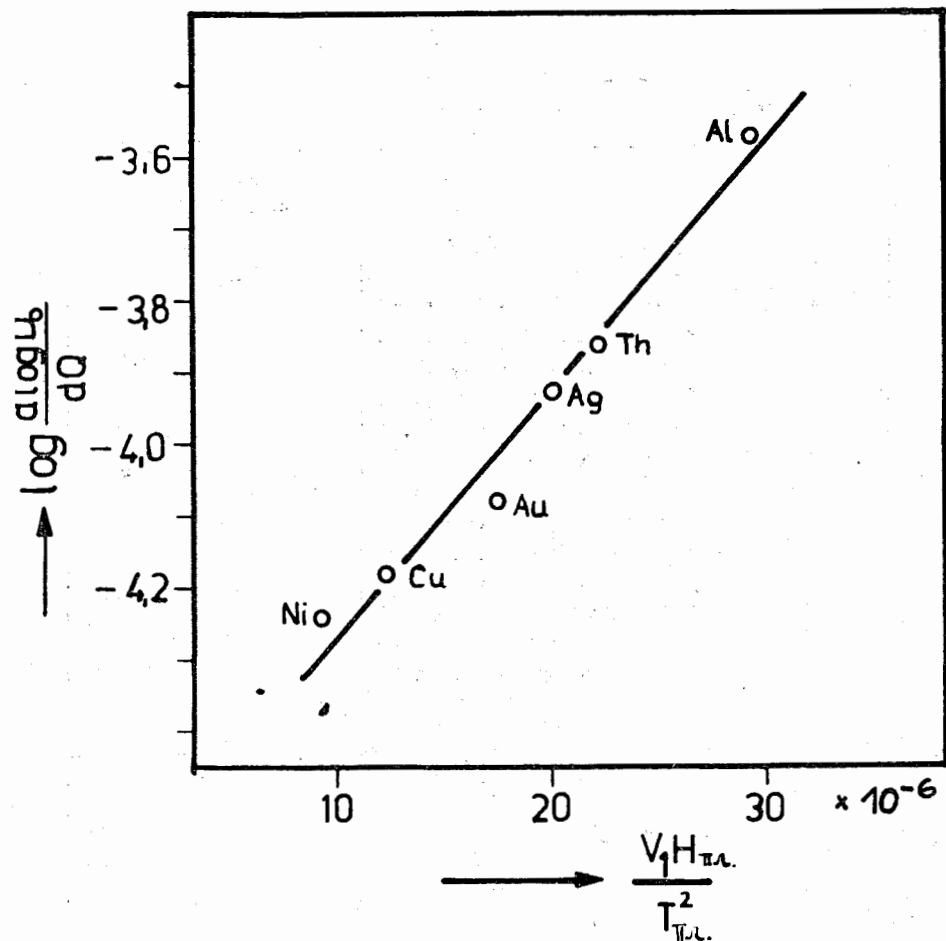


Рис. 5. Зависимость значения $\log \frac{d \log D_0}{dQ}$ от $\frac{V_1 \cdot H_{\text{пл}}}{T_{\text{пл}}^2}$ / D_0 в $\text{см}^2/\text{сек}$, Q в кал, V_1 в см^3 , $H_{\text{пл}}$ в ккал/г-атом, $T_{\text{пл}}$ в $^{\circ}\text{K}$ /.

ТАБЛИЦА

Коэффициенты диффузии в α -тории

	$-\log D, D$ в $\text{см}^2\text{с}^{-1}$	Интервал температур Т в К	
Ac	$(7900 \pm 5000)/T + (4,3 \pm 3,5)$	1230... 1600	Настоящая работа
Ag	$(13200 \pm 2000)/T + (1,4 \pm 1,4)$		
Bi	$(21600 \pm 1300)/T - (1,2 \pm 0,9)$		
Ce	$(11400 \pm 1400)/T + (1,9 \pm 1,0)$		
Er	$(4630 \pm 870)/T + (7,0 \pm 0,6)$		
Pb	$(10700 \pm 1200)/T + (4,4 \pm 0,8)$		
Po	$(15200 \pm 1800)/T + (0,5 \pm 1,3)$		
Ra	$(8800 \pm 2700)/T + (4,6 \pm 2,0)$		
Rb	$(3560 \pm 630)/T + (7,7 \pm 0,4)$		
Ru	$(15500 \pm 900)/T + (2,2 \pm 0,6)$		
Sb	$(20100 \pm 4100)/T - (0,9 \pm 2,3)$		
Sr	$(9400 \pm 1400)/T + (4,1 \pm 1,0)$		
Y	$(9000 \pm 2600)/T + (3,6 \pm 1,7)$		
Th	$18100/T - 2,5$		/1/
Pa	$15300/T - 2,10$	960... 1180	/2/
Th	$15600/T - 2,59$		
U	$17200/T - 4,34$		
Ba/ La	$13000/T + 1,44$	1150... 1470	/3/
Ce	$13020/T + 1,75$		
J	$14800/T + 0,58$		
Mo	$8150/T + 3,13$		
Te	$20800/T - 6,1$		
Xe	$17800/T - 1,55$		

Из соотношений /3/, /4/ и /5/ получается корреляция между коэффициентом диффузии и атомным объемом диффундирующего в α -тории металла. Для температуры 1200 С отношение принимает вид

$$\log D = -(60 \pm 16) V_2^{-1,0} - (9,1 \pm 0,6)$$

/D в $\text{см}^2\text{сек}^{-1}$, V_2 в см^3 , коэффициент корреляции - 0,80/. На основании этой корреляции можно оценить коэффициенты диффузии элементов главных групп в α -тории, в том числе тоже сверхтяжелых элементов.

Авторы считают своим долгом выразить благодарность академику Г.Н.Флерову и члену-корреспонденту АН ЧССР И.Зваре за постоянное внимание к работе.

Литература

1. C.J.Meehan. US-Report NAA-SR-1714 (1956).
2. F.Schmitz, M.Fock. J.Nucl.Mater., 21, 317 (1967).
3. C.H.Fox Jr., C.M.Graft, L.R.Zumwalt. Trans.Amer.Nucl.Soc., 17, 578 (1973).
4. Hj.Matzke. Atomkernenergie, 9, 26 (1964).
5. G.Neumann, W.Hirschwald. phys.stat.sol. (b), 55, 99 (1973).
6. Р.Х.Мур. Диффузия в металлах с объемноцентрированной решеткой. Изд. "Металлургия", М /1969/ 93-110.
7. M.Kosaka, K.Yesue. Reports of the Government Industrial Research Institute, Nagoya, Japan, 21, 329 (1972).

Рукопись поступила в издательский отдел
22 октября 1974 года.