

СООБЩЕНИЯ  
ОБЪЕДИНЕННОГО  
ИНСТИТУТА  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ  
ДУБНА



С 45  
Б-182

15/XI-76

P6 - 9916

4605/2-76

Г.Ю.Байер, А.Ф.Новгородов

ДИФФУЗИЯ МИКРОКОЛИЧЕСТВ  
НЕКОТОРЫХ РЕДКОЗЕМЕЛЬНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ,  
Ba, Sr, Cs И Rb В ГАФНИИ

**1976**

P6 - 9916

Г.-Ю.Байер, А.Ф.Новгородов

ДИФФУЗИЯ МИКРОКОЛИЧЕСТВ  
НЕКОТОРЫХ РЕДКОЗЕМЕЛЬНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ,  
Ba, Sr, Cs и Rb В ГАФНИИ

Объединенный институт  
ядерных исследований  
БИБЛИОТЕКА

Байер Г.-Ю., Новгородов А.Ф.

P6 - 9916

Диффузия микроколичеств некоторых редкоземельных элементов, Ba, Sr, Cs и Rb в гафнии

В интервале 1700 – 2300 К исследована диффузия некоторых гомогенно распределенных спалогенных продуктов в гафнии, облученном протонами с энергией 860 МэВ. Значения эффективных коэффициентов диффузии уменьшаются в следующей последовательности: Sr > Ba > р.з.э. > Rb > Cs.

Показано, что фазовый переход в гафнии при 2033 К значительно ускоряет диффузию щелочноземельных и редкоземельных элементов и не влияет на диффузию щелочных элементов.

Предлагается использовать нагретый металлический гафний в качестве on-line – мишени при получении короткоживущих радионуклидов на установках, работающих в линию с масс-сепаратором.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований  
Дубна 1976

Beyer G.J., Novgorodov A.F.

P6 - 9916

Trace-Diffusion of Some Lanthanides, Ba, Sr, Cs, and Rb in Hafnium

The diffusion of some spallation products in Hf-metal has been investigated at temperatures ranging from 1700 to 2300 K. The values of effective diffusion coefficients decrease in the following order:

Sr > Ba > Lanthanides > Rb > Cs.

While the diffusion of lanthanides and alkaline earth elements increases at the temperature of Hf- $\alpha$ ,  $\beta$ -phase transition (2033 K), the diffusion of alkaline elements is not influenced by this phase transition.

Hot solid Hf-metal is proposed to be a suitable target material for on-line production of short-lived radionuclides in ISOL-facilities.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research

Dubna 1976

## 1. Введение

Уже много лет с большой интенсивностью проводятся ядерноспектроскопические исследования короткоживущих изотопов, удаленных от полосы  $\beta$ -стабильности /1/. Одна из возможностей получения этих изотопов - реакции глубокого расщепления при облучении мишеней высокоэнергетическими протонами с дальнейшим выделением радиоактивных продуктов из материала мишени, химическим разделением их по Z и окончательным разделением химических элементов по A на масс-сепараторе /2,3/. Выделение определенного моноизотопа проводится либо периодически ("off-line"), либо непрерывно ("on-line"). Естественно, более перспективны on-line -установки, так как они позволяют получать более короткоживущие изотопы с периодом полураспада до нескольких сотен миллисекунд.

Количество получаемых атомов одного изотопа в таких ISOL\* -установках определяется не только интенсивностью протонного пучка, но и скоростью переноса продуктов в системе мишень - ионный источник. Транспортировка продуктов ядерных реакций может быть разбита на следующие стадии:

- а/ перенос продуктов из глубины к поверхности мишени;
- б/ испарение с поверхности;
- в/ транспортировка продуктов к ионному источнику;
- г/ ионизация в ионном источнике;
- д/ трансмиссия ионов через сепаратор к коллектору.

\*ISOL - Isotope Separator on-line.

Выход продуктов на коллекторе в первую очередь определяется эффективностью ионизации /4/. Однако для короткоживущих изотопов большое значение имеет время транспортировки продуктов и ионизации /стадии а - г/. Стадия а/ определяется скоростью диффузии, стадии б/, в/ и г/ - скоростью десорбции продуктов с поверхности мишени, транспортной трубки и ионного источника. Значительная адсорбция продуктов может приводить к полной потере эффективности ISOL -установки /5/. Поэтому для дальнейшего развития on-line -систем прежде всего необходимо тщательное изучение двух процессов: диффузии продуктов ядерных реакций в материале мишени и адсорбции их на различных поверхностях.

В настоящей работе мы рассматривали общий процесс улетучивания /диффузию + испарение/ некоторых гомогенно распределенных продуктов реакций глубокого расщепления и деления /лантаниды, Ba, Sr, Cs и Rb/ из фольг металлического гафния.

Для улетучивания этих элементов из гафния в области изученных температур стадией, определяющей скорость, является диффузия продуктов на поверхности мишени. Травление поверхности после нагревания Hf-фольг не обнаружило никакого ее обогащения каким-либо изучаемым элементом. Поэтому решение уравнения диффузии /второй закон Фика/

$$\frac{dc}{dt} = D \cdot \frac{d^2 c}{dx^2} \quad /1/$$

с учетом того, что концентрация диффундирующего элемента на поверхности близка к нулю, дает связь между долей улетучивания (F), коэффициентом диффузии (D), толщиной фольг (d) и временем (t) согласно /6/ :

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

Уравнение /2/ действительно только для фольг /или пластинок/, если их толщина d намного меньше, чем два

других размера параллелепипеда ( $d \ll a \approx b$ ). Эффективные коэффициенты диффузии определялись из значений долей улетучивания (F) по таблицам Цимена /7/. Из температурной зависимости эффективных коэффициентов диффузии согласно уравнению Аррениуса

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

определялись  $D_0$  и энергии активации общего процесса диффузии.

## 2. Экспериментальная часть

Фольги металлического гафния / $d = 0,090$  мм/ с 1%-ным содержанием циркония активировались на внутреннем пучке синхроциклотрона ОИЯИ протонами с энергией 660 МэВ и током около 2 мкА. При этом достигалось гомогенное распределение продуктов ядерных реакций в материале мишени. После соответствующего "охлаждения" /выдержки/ /табл. 1/ образцы площадью около 8 мм<sup>2</sup> быстро нагревались в танталовом тигле электронной бомбардировкой и выдерживались от 2 до 30 мин при определенной температуре. Печь являлась копией ионного источника поверхностно-ионизационного типа /4/. Вакуум не хуже  $10^{-6}$  Торр создавался масляным диффузионным насосом.

Танталовый тигель с образцами вводился снизу через вакуумный шлюз, его можно было наблюдать сверху через окно из оптического кварца. Два экрана из молибдена и стали служили термоизоляторами. Измерение температуры производилось с помощью вольфрам-рениевой термопары /BP5-BP20/, помещенной в "черной дырке" танталового тигля. Калибровка термопары проверялась с помощью прецизионного накаливого ручного микропирометра "PYRO-WERK GmbH HANNOVER". Прямое пирометрическое измерение температуры во время опытов было невозможно из-за необходимости термоизоляции образцов двумя-тремя экранными фольгами из тантала непосредственно в тигле.

Доли улетучивания (F) различных элементов определялись  $\gamma$ -спектрометрически. Образцы до и после нагревания измерялись на Ge(Li)-детекторах. Измере-

продолжение табл. I

Таблица I  
Радиоактивные изотопы и гамма-лучи, возникающие при их распаде, которые использовались для определения улетучивания микроколичеств продуктов ядерных реакций из металлического гафния

Изотоп	$T_{1/2}$	$E_{\gamma}$ (кэВ)	$I_{\gamma}$ (% на распад)	Время "охлаждения"
175 HF	70 дн	344	85	$\geq 10$ дн
172 HF	5 лет	82 126	10 21	$\geq 30$ дн
173 LU	1,4 год	272	26	$\geq 15$ дн
172 LU	6,7 дн	182 203 810 901 912 1094	22 5 17 32 16 70	$\geq 10$ дн
171 LU	8,3 дн	668	15	10-30 дн
169 YB	31,8 дн	110 131 177 308	18 11 22 10	$\geq 10$ дн
166 YB	58 ч	184	24	4-5 дн
166 TM	7,7 ч	216 692 706 780 787	8 10 16 26 15	равновесие
168 TM	85 дн	184 448 816 821	17 23 48 12	$\geq 20$ дн
167 TM	9,25 дн	208	42	10 - 40 дн
165 TM	30 ч	243	36	2 - 4 дн
155 TB	5,3 дн	87 105 180	22 20 11	10 - 20 дн
153 TB	56,2 ч	212	35	4 - 15 дн
153 GD	242 дн	98 103	30 23	$\geq 20$ дн

Изотоп	$T_{1/2}$	$E_{\gamma}$ (кэВ)	$I_{\gamma}$ (% на распад)	Время "охлаждения"
149 GD	9,5 дн	149 299 346	55 26 20	10- 40 дн
146 GD	50 дн	114,8 115,6 155	90 38	$> 15$ дн
149 EU	93,1 дн	277 327	3 4	
147 EU	22 дн	121 677 799 956	23 12 7 4	$\geq 10$ дн
146 EU	4,6 дн	633+634 747	82 99	$\geq 15$ дн образование из 146 GD
145 EU	5,9 дн	894	67	10 - 20 дн
143 PM	265 дн	742	38,5	$> 80$ дн
139 CE	140 дн	166	81	$> 20$ дн
131 BA	11,5 дн	124 216 373 496	32 21 13 41	3 - 4 дн
128 BA	2,4 дн	273	15	3 - 5 дн
129 CS	32 ч	372 411	32 22	2 - 4 дн
88 Y	107 дн	1836	99	$> 20$ дн
85 SR	64,5 дн	514	99	$> 30$ дн
83 SR	33 ч	282 763	20 33	2 - 5 дн
84 RB	33 дн	882	75	$> 30$ дн
83 RB	83 дн	520 530 553	47 30 17	$> 30$ дн

ния проводились в фиксированных геометрических условиях, поправка на "мертвое время" осуществлялась по интенсивности генераторного пика. Определение F для лантанидов проводилось без разрушения образцов. Сечения

образования изотопов Ba, Cs, Sr и Rb настолько малы, что неструктивное определение F для этих элементов возможно лишь при больших временах измерения и с большими ошибками. Поэтому образцы после нагревания растворялись в смеси HF-HNO<sub>3</sub>. Фтор-ионы связывались в комплекс [BF<sub>4</sub>]<sup>-</sup>. Гафний и лантаниды осаждались в виде гидроокисей с 20 мг лантана /200 мг Ba и 10 мг Cs были добавлены как удерживающие носители/. Осаждением из фильтрата сульфата Ba получались препараты Ba и Sr для их дальнейшего измерения. Во втором фильтрате, который содержал прежде всего Tc, можно было хорошо измерять <sup>129</sup>Cs, <sup>83</sup>Rb и <sup>84</sup>Rb. Нормализация на исходную радиоактивность щелочных и щелочноземельных элементов осуществлялась аналогичной обработкой 3-4 ненагретых стандартных образцов.

В табл. 1 указаны радиоактивные изотопы, их периоды полураспада и  $\gamma$ -линии, интенсивности которых использовались при определении F<sup>8/</sup>, а также времена "охлаждения" облученных образцов, то есть выдержки от конца облучения до термической обработки, которые необходимо было соблюдать для определения F с хорошей точностью. Для  $\gamma$ -спектрометрического анализа применялись:

1 см<sup>3</sup> Ge(Li)-детектор с разрешением 0,7 - 1,0 кэВ и 41 см<sup>3</sup> Ge(Li)-детектор с разрешением 1,8 - 2,2 кэВ. Полученные  $\gamma$ -спектры обрабатывались на ЭВМ HP 2116C с помощью автоматических программ экспресс-обработки  $\gamma$ -спектров "ЭПОС-1" /9/ и "SUCHE" /10/. Точная обработка сложных спектров осуществлялась на ЭВМ CDC-6200 по программе "GAMMA" /11/. Простые спектры /Ba - и Cs - фракции/ обрабатывались на ЭВМ "Минск-2" с использованием светового карандаша /12/. Рис. 1 показывает  $\gamma$ -спектр Hf-образца, измеренный через 10 дней после облучения на Ge(Li)-детекторе объемом 1 см<sup>3</sup>.

Табл. 1 и рис. 1 показывают, что для большей части лантанидов выдержка 10-30 дней после облучения дает возможность определять F без разрушения образцов. Определение F для <sup>83</sup>Sr и <sup>129</sup>Cs требовало времени выдержки облученных образцов не более 2-4 дней. У остальных лантанидов, которые не

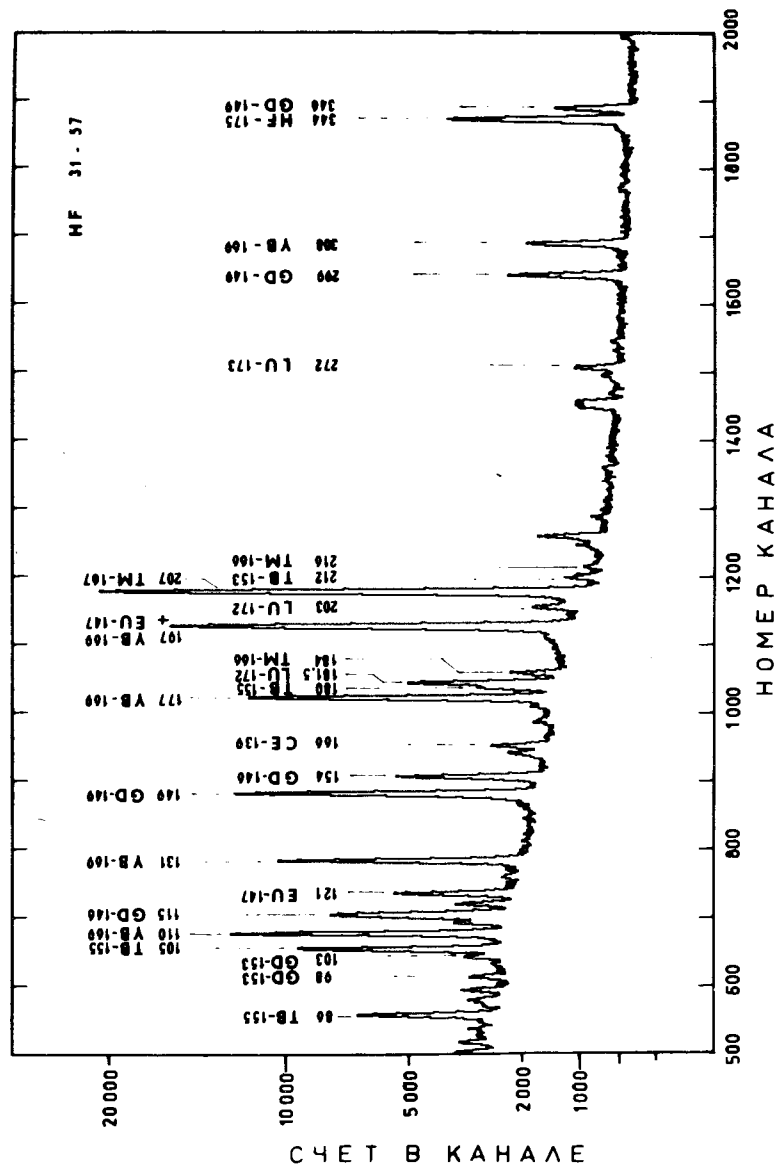


Рис. 1. Гамма-спектр гафния, облученного протонами с энергией 660 МэВ. Пояснение в тексте.

включены в табл. 1, имеются лишь относительно короткоживущие изотопы, так что достаточно точное определение  $F$  было затруднительным.

### 3. Результаты и обсуждение

Табл. 2 и рис. 2 показывают зависимость доли улетучивания  $F$  различных элементов от температуры. Рассчитанные из  $F$  эффективные коэффициенты диффузии

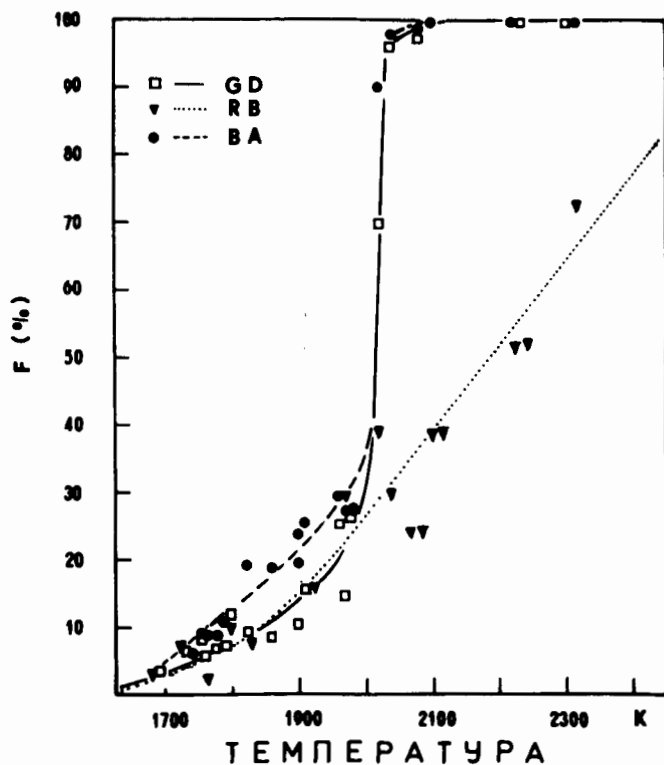


Рис. 2. Доли улетучивания Gd, Ba и Rb из облученной гафниевой фольги толщиной 0,090 мм в зависимости от температуры; время нагрева - 5 мин.

Таблица 2  
Доли улетучивания различных продуктов ядерных реакций из гафниевой фольги толщиной 0,09 мм

T (K)	t (сек)	Доли улетучивания F (%)				
		LU	YB	TM	TB	GD
1690	600	2,0±1,0	4,6±1,5	1,7±1,0	4,8±1,5	4,7±1,5
1725	300	-	-	-	-	-
1735	1800	13,4±2,6	11,7±2,0	10,7±2,0	13,0±1,0	15,6±1,8
1755	1000	9,9±3,6	8,3±2,3	12,1±2,3	10,3±3,5	15,3±2,5
1765	600	6,9±2,0	4,8±2,1	7,5±2,2	10,3±3,5	8,1±1,9
1780	1800	9,3±1,2	13,4±2,1	13,6±2,1	15,7±3,0	17,5±1,9
1790	1200	12,8±3,4	9,2±2,6	11,4±2,0	11,0±6,2	13,2±1,5
1790	600	16,4±4,0	14,2±2,6	10,2±2,8	20,1±6,5	18,2±4,5
1825	600	8,7±2,1	10,4±2,3	15,1±3,9	13,2±2,0	13,3±2,1
1830	300	-	-	-	-	-
1860	600	9,8±2,4	9,1±1,1	8,2±2,1	7,6±3,7	12,2±2,4
1900	300	9,6±2,4	8,7±1,8	10,5±2,0	9,5±3,4	10,3±1,4
1900	600	-	-	-	-	-
1910	600	18,2±2,0	20,2±2,1	22,0±1,9	25,4±2,3	22,3±2,1
1960	300	16,2±4,0	20,6±1,0	20,9±1,6	20,7±2,7	25,1±1,9
1965	300	-	-	-	-	-
1970	300	9,9±3,6	12,0±1,0	13,1±1,5	13,5±2,9	14,6±1,1
1980	120	12,4±3,4	13,3±1,4	14,1±1,4	15,8±2,5	17,1±2,4
2020	600	64,1±2,1	83,3±1,7	82,9±1,7	85,9±1,9	87,0±1,9
2040	300	76,4±2,2	97,4±0,7	97,4±0,7	97,2±0,7	96,2±0,7
2070	300	-	-	-	-	-
2080	120	55,3±5,1	87,7±1,2	86,7±1,5	87,8±0,3	87,3±0,9
2100	300	90,4±1,0	98,8±0,5	98,7±0,5	99,2±0,5	98,7±0,5
2115	300	-	-	-	-	-
2225	300	-	-	-	-	-
2235	300	99,0±0,5	100±0,3	99,6±0,3	100±0,3	99,0±0,3
2315	300	100±0,3	100±0,3	100±0,3	100±0,3	100±0,3

продолжение таблицы 2

T (K)	t (сек)	Доли улетучивания F (%)				
		EU	BA	SR	CS	RB
I690	600	-	-	-	-	5,0±3,0
I725	300	-	-	-	5,5±3,5	7,6±5,0
I735	1800	18,1±3,1	15,5±4,5	23,7±4,5	-	-
I755	1000	14,1±3,6	16,1±5,0	23,8±4,5	-	-
I765	600	-	-	-	-	2,9±2,5
I780	1800	17,3±2,9	22,5±5,0	22,0±4,5	-	-
I790	1200	16,0±4,1	22,1±5,0	19,5±5,0	-	-
I790	600	17,4±4,4	-	-	-	-
I825	600	-	27,4±5,0	-	-	14,3±4,5
I830	300	-	-	-	1,7±3,0	7,4±4,3
I860	600	11,6±4,9	26,6±4,5	28,2±4,5	-	-
I900	300	-	24,2±5,0	19,3±5,0	-	-
I900	600	-	27,8±3,5	33,8±3,5	-	-
I910	600	-	36,1±9,0	-	-	22,9±5,0
I960	300	29,0±6,0	29,7±5,0	46,8±5,5	-	-
I965	300	-	-	-	20,9±5,2	29,6±5,2
I970	300	13,9±5,2	27,4±5,0	32,2±5,0	-	-
I980	120	18,3±4,3	17,0±5,0	17,2±4,5	-	-
2020	600	-	92,5±3,1	-	-	55,5±5,0
2040	300	-	98,5±1,0	-	-	28,9±5,0
2070	300	-	-	-	14,0±4,2	23,6±6,1
2080	120	-	94,0±2,1	96,7±2,1	-	14,3±4,5
2100	300	98,7±0,5	100±0,5	100±0,5	-	39,2±4,5
2115	300	-	-	-	37,0±4,6	39,1±5,0
2225	300	-	-	-	53,2±5,0	51,7±5,0
2235	300	-	100±0,5	-	-	52,1±5,0
2315	300	-	100±0,5	-	-	72,9±4,5

D представлены в табл. 3 и на рис. 3 А-В как функции обратной абсолютной температуры. Табл. 4 содержит энергии активации диффузии и величины D<sub>0</sub> для различных элементов, вычисленные по уравнению /3/.

Таблица 3

Эффективные коэффициенты диффузии различных продуктов ядерных реакций в металлическом гафнии

$\frac{I}{T} \times 10^4$ (K <sup>-1</sup> )	Коэффициенты диффузии D x 10 <sup>10</sup> (см <sup>2</sup> .сек <sup>-1</sup> )				
	LU	YB	TM	TB	GD
5,92	0,11 <sup>+0,13</sup> <sub>-0,09</sub>	0,57 <sup>+0,41</sup> <sub>-0,32</sub>	0,10±0,09	0,62 <sup>+0,44</sup> <sub>-0,34</sub>	0,62 <sup>+0,44</sup> <sub>-0,34</sub>
5,80	-	-	-	-	-
5,76	1,6 <sup>+0,6</sup> <sub>-0,6</sub>	1,2 <sup>+0,5</sup> <sub>-0,4</sub>	1,1 ±0,2	1,5 ±0,2	2,1±0,3
5,70	1,6 <sup>+1,3</sup> <sub>-1,0</sub>	1,1 <sup>+0,7</sup> <sub>-0,5</sub>	2,3 <sup>+1,0</sup> <sub>-0,8</sub>	1,7 <sup>+1,3</sup> <sub>-1,0</sub>	3,7 <sup>+1,4</sup> <sub>-1,1</sub>
5,67	1,3 <sup>+0,8</sup> <sub>-0,7</sub>	0,62 <sup>+0,70</sup> <sub>-0,42</sub>	1,5 <sup>+1,0</sup> <sub>-0,8</sub>	2,8 <sup>+2,2</sup> <sub>-1,6</sub>	1,7 <sup>+1,0</sup> <sub>-0,8</sub>
5,62	0,76 <sup>+0,16</sup> <sub>-0,16</sub>	1,6 <sup>+0,5</sup> <sub>-0,4</sub>	1,6 <sup>+0,5</sup> <sub>-0,4</sub>	2,2 <sup>+1,3</sup> <sub>-1,0</sub>	2,7 <sup>+0,7</sup> <sub>-0,6</sub>
5,59	2,2 <sup>+1,3</sup> <sub>-1,1</sub>	1,1 <sup>+0,8</sup> <sub>-0,6</sub>	1,7 <sup>+0,7</sup> <sub>-0,5</sub>	1,6 <sup>+1,8</sup> <sub>-1,4</sub>	2,3 <sup>+0,6</sup> <sub>-0,5</sub>
5,59	7,1 <sup>+4,0</sup> <sub>-3,0</sub>	5,4 <sup>+2,1</sup> <sub>-1,8</sub>	2,7 <sup>+1,8</sup> <sub>-1,5</sub>	11 <sup>+5</sup> <sub>-5</sub>	8,7 <sup>+4,8</sup> <sub>-3,7</sub>
5,49	2,0 <sup>+1,1</sup> <sub>-0,8</sub>	2,9 <sup>+1,4</sup> <sub>-1,1</sub>	6,1 <sup>+3,4</sup> <sub>-2,7</sub>	4,6 <sup>+1,6</sup> <sub>-1,2</sub>	4,7 <sup>+1,7</sup> <sub>-1,3</sub>
5,46	-	-	-	-	-
5,38	2,6 <sup>+1,4</sup> <sub>-1,1</sub>	2,2 <sup>+0,5</sup> <sub>-0,4</sub>	1,8 <sup>+1,0</sup> <sub>-0,7</sub>	1,5 <sup>+1,9</sup> <sub>-1,1</sub>	3,9 <sup>+1,7</sup> <sub>-1,3</sub>
5,26	4,9 <sup>+3,0</sup> <sub>-2,1</sub>	4,0 <sup>+1,8</sup> <sub>-1,5</sub>	5,8 <sup>+2,5</sup> <sub>-1,8</sub>	4,8 <sup>+4,0</sup> <sub>-2,8</sub>	5,6 <sup>+1,7</sup> <sub>-1,3</sub>
5,26	-	-	-	-	-
5,24	8,8 <sup>+2,0</sup> <sub>-1,8</sub>	11 <sup>+3</sup> <sub>-2</sub>	13 <sup>+2</sup> <sub>-2</sub>	17 <sup>+3</sup> <sub>-2</sub>	13 <sup>+2</sup> <sub>-2</sub>
5,10	14 <sup>+8</sup> <sub>-6</sub>	23 <sup>+2</sup> <sub>-2</sub>	23 <sup>+4</sup> <sub>-4</sub>	23 <sup>+5</sup> <sub>-5</sub>	33 <sup>+5</sup> <sub>-5</sub>
5,09	-	-	-	-	-
5,08	5,4 <sup>+4,3</sup> <sub>-3,1</sub>	7,6 <sup>+1,3</sup> <sub>-1,0</sub>	9,1 <sup>+2,1</sup> <sub>-1,7</sub>	9,7 <sup>+4,5</sup> <sub>-3,7</sub>	11 <sup>+2</sup> <sub>-2</sub>
5,05	20 <sup>+13</sup> <sub>-9</sub>	23 <sup>+6</sup> <sub>-4</sub>	27 <sup>+6</sup> <sub>-4</sub>	33 <sup>+11</sup> <sub>-8</sub>	39 <sup>+11</sup> <sub>-8</sub>
4,95	110 <sup>+7</sup> <sub>-7</sub>	214 <sup>+14</sup> <sub>-14</sub>	211 <sup>+14</sup> <sub>-14</sub>	237 <sup>+20</sup> <sub>-20</sub>	247 <sup>+20</sup> <sub>-20</sub>
4,90	330 <sup>+30</sup> <sub>-30</sub>	930 <sup>+90</sup> <sub>-60</sub>	930 <sup>+90</sup> <sub>-60</sub>	915 <sup>+90</sup> <sub>-60</sub>	832 <sup>+60</sup> <sub>-50</sub>
4,85	-	-	-	-	-
4,81	400 <sup>+80</sup> <sub>-80</sub>	1280 <sup>+70</sup> <sub>-70</sub>	1230 <sup>+80</sup> <sub>-80</sub>	1280 <sup>+200</sup> <sub>-150</sub>	1250 <sup>+60</sup> <sub>-60</sub>
4,76	580 <sup>+30</sup> <sub>-30</sub>	1150 <sup>+200</sup> <sub>-100</sub>	1130 <sup>+200</sup> <sub>-100</sub>	1210 <sup>+200</sup> <sub>-100</sub>	1130 <sup>+200</sup> <sub>-100</sub>
4,73	-	-	-	-	-
4,49	-	-	-	-	-
4,47	>1200	>2000	>2000	>2000	>000
4,32	>2000	>2000	>2000	>2000	>2000

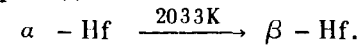


продолжение таблицы 3

$\frac{1}{T} \times 10^4$ (K <sup>-1</sup> )	Коэффициент диффузии				
	EU	BA	SR	CS	RB
5,92	-	-	-	-	0,65 <sup>+1,05</sup> <sub>-0,55</sub>
5,80	-	-	-	1,6 <sup>+2,5</sup> <sub>-1,6</sub>	2,9 <sup>+3,3</sup> <sub>-2,1</sub>
5,76	2,9 <sup>+1,0</sup>	-	-	-	-
5,70	2,9 <sup>+2,0</sup> <sub>-1,6</sub>	4,1 <sup>+3,0</sup> <sub>-2,1</sub>	8,8 <sup>+3,6</sup> <sub>-2,9</sub>	-	-
5,67	-	-	-	-	0,22 <sup>+0,60</sup> <sub>-0,21</sub>
5,62	2,6 <sup>+1,0</sup> <sub>-0,8</sub>	4,5 <sup>+2,0</sup> <sub>-1,6</sub>	4,3 <sup>+1,8</sup> <sub>-1,5</sub>	-	-
5,59	3,4 <sup>+1,8</sup> <sub>-1,5</sub>	6,5 <sup>+3,0</sup> <sub>-2,6</sub>	4,8 <sup>+2,9</sup> <sub>-2,5</sub>	-	-
5,59	8,0 <sup>+4,0</sup> <sub>-2,8</sub>	-	-	-	-
5,49	-	19 <sup>+8</sup> <sub>-6</sub>	-	-	5,4 <sup>+4,0</sup> <sub>-3,0</sub>
5,46	-	-	-	0,16 <sup>+1,0</sup> <sub>-0,16</sub>	2,9 <sup>+4,4</sup> <sub>-2,4</sub>
5,38	3,6 <sup>+4,6</sup> <sub>-2,4</sub>	18 <sup>+7</sup> <sub>-5</sub>	20 <sup>+8</sup> <sub>-6</sub>	-	-
5,26	-	30 <sup>+14</sup> <sub>-10</sub>	20 <sup>+11</sup> <sub>-9</sub>	-	-
5,26	-	20 <sup>+8</sup> <sub>-5</sub>	43 <sup>+7</sup> <sub>-6</sub>	-	-
5,24	-	34 <sup>+10</sup> <sub>-7</sub>	-	-	14 <sup>+6</sup> <sub>-5</sub>
5,10	43 <sup>+17</sup> <sub>-16</sub>	45 <sup>+17</sup> <sub>-14</sub>	110 <sup>+33</sup> <sub>-22</sub>	-	-
5,09	-	-	-	23 <sup>+8</sup> <sub>-7</sub>	45 <sup>+21</sup> <sub>-19</sub>
5,08	10 <sup>+9</sup> <sub>-6</sub>	39 <sup>+15</sup> <sub>-13</sub>	54 <sup>+18</sup> <sub>-16</sub>	-	-
5,05	44 <sup>+24</sup> <sub>-18</sub>	38 <sup>+30</sup> <sub>-19</sub>	40 <sup>+22</sup> <sub>-20</sub>	-	-
4,95	-	320 <sup>+230</sup> <sub>-44</sub>	-	-	84 <sup>+13</sup> <sub>-18</sub>
4,90	-	1090 <sup>+250</sup> <sub>-150</sub>	-	-	43 <sup>+18</sup> <sub>-16</sub>
4,83	-	-	10 <sup>+8</sup> <sub>-5</sub>	-	29 <sup>+17</sup> <sub>-13</sub>
4,81	1250 <sup>+60</sup> <sub>-60</sub>	1800 <sup>+300</sup> <sub>-240</sub>	2170 <sup>+700</sup> <sub>-340</sub>	-	28 <sup>+21</sup> <sub>-17</sub>
4,76	-	≥ 2000	≥ 2000	-	79 <sup>+21</sup> <sub>-19</sub>
4,73	-	-	-	72 <sup>+17</sup> <sub>-17</sub>	79 <sup>+21</sup> <sub>-19</sub>
4,49	-	-	-	145 <sup>+30</sup> <sub>-30</sub>	140 <sup>+30</sup> <sub>-20</sub>
4,47	-	> 2000	> 2000	-	140 <sup>+30</sup> <sub>-30</sub>
4,32	-	> 2000	> 2000	-	300 <sup>+50</sup> <sub>-60</sub>

3.1. В общем можно видеть, что  $F$  уменьшается в ряду: Sr > Ba > лантаниды > Rb > Cs. Обработка на ЭВМ найденных значений энергии активации  $E_A$  и постоянных  $\lg D_0$  показала, что для всех исследуемых элементов в пределах ошибок они колеблются около средних значений  $E_A = 78$  ккал/моль и  $\lg D_0 = +0,1$  / табл. 4/.

3.2. Рис. 2 и 3 А-В показывают, что для лантинидов и щелочноземельных элементов наблюдается немонотонный ход температурной зависимости эффективных коэффициентов диффузии с разрывом в области фазового перехода



Фазовый переход не влияет на ход функции  $\lg D = f\left(\frac{1}{T}\right)$  для Cs и Rb. Это явление позволяет сделать вывод, что до  $\alpha \rightarrow \beta$  перехода для всех изучаемых элементов скоростью определяющей является диффузия в объеме кристаллов. Причем соотношение размеров тетра- и октаэдрических пустот в  $\alpha$ - и  $\beta$ -фазах Hf и размеров диффундирующих атомов позволяет исключить междоузельный механизм диффузии и констатировать лишь один - вакансионный механизм /13/. Диффузия по дислокациям, концентрация которых резко увеличивается в результате полиморфного превращения, происходит, вероятно, для редкоземельных и щелочноземельных элементов много быстрее, чем для щелочных металлов, причем данный процесс благоприятнее для Sr и Ba по сравнению с лантанидами. Диффузия по дислокациям для Cs и Rb происходит, вероятно, медленнее из-за их очень больших атомных радиусов, чем диффузия по вакансиям.

Незначительное различие в этом случае между Rb и Cs также может быть качественно объяснено различием размеров и масс их атомов.

3.3. Величины  $F$  для всех лантанидов практически одинаковы. Только Lu заметно позже улетучивается. По нашему мнению, при рабочих температурах Lu сильнее, нежели другие редкоземельные элементы, адсорбируется на поверхности Hf и Ta-экранов /5/, что несколько тормозит его улетучивание из зоны нагрева. Этот вывод подтверждается тем, что Lu имеет намного большее

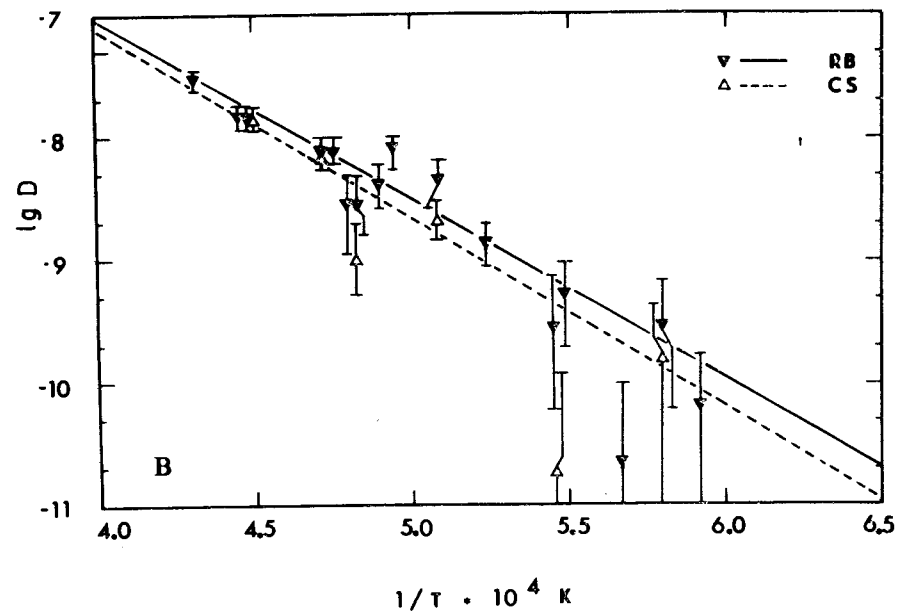
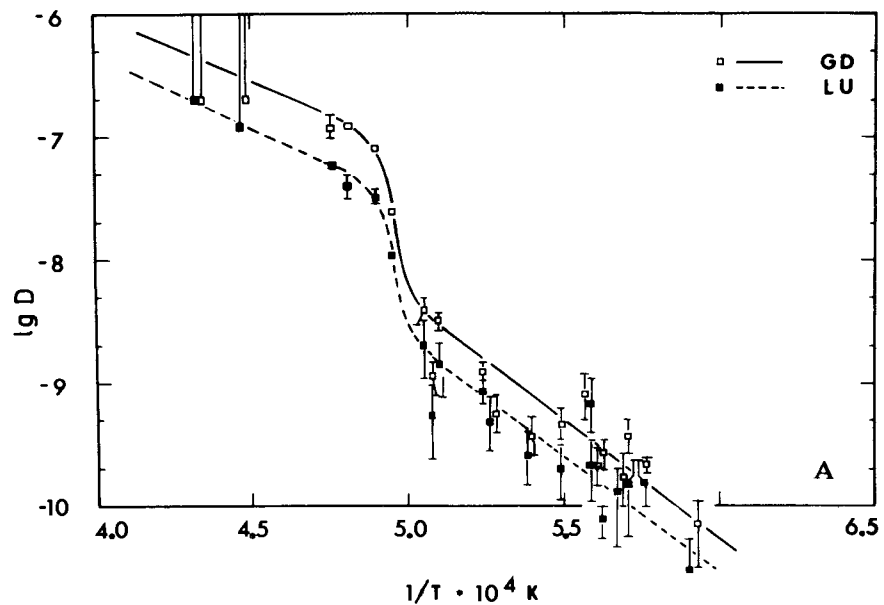


Рис. 3. Зависимости логарифма эффективных коэффициентов диффузии микроколичества некоторых элементов в металлическом гафнии от обратной температуры: А - Gd и Lu, Б - Sr и Ba; В - Rb и Cs.

среднее время жизни на поверхности Ta, чем все другие лантаниды.

3.4. Из-за непостоянства механизма диффузии, вызванного фазовым переходом, коэффициенты уравнения  $\lg D = \lg D_0 - E_A/RT$  для щелочноземельных и редкоземельных элементов в области фазового перехода можно определить лишь с относительно большой ошибкой [табл. 4]. Не представляется возможным также точное определение эффективных коэффициентов диффузии этих элементов отдельно как в  $\alpha$ -, так и в  $\beta$ -гафнии, а вместе с тем и роли фазового перехода в ускорении диффузии.

3.5. Как показывают результаты этой работы, металлический гафний представляет собой материал мишени, удовлетворяющий требованиям первой стадии получения

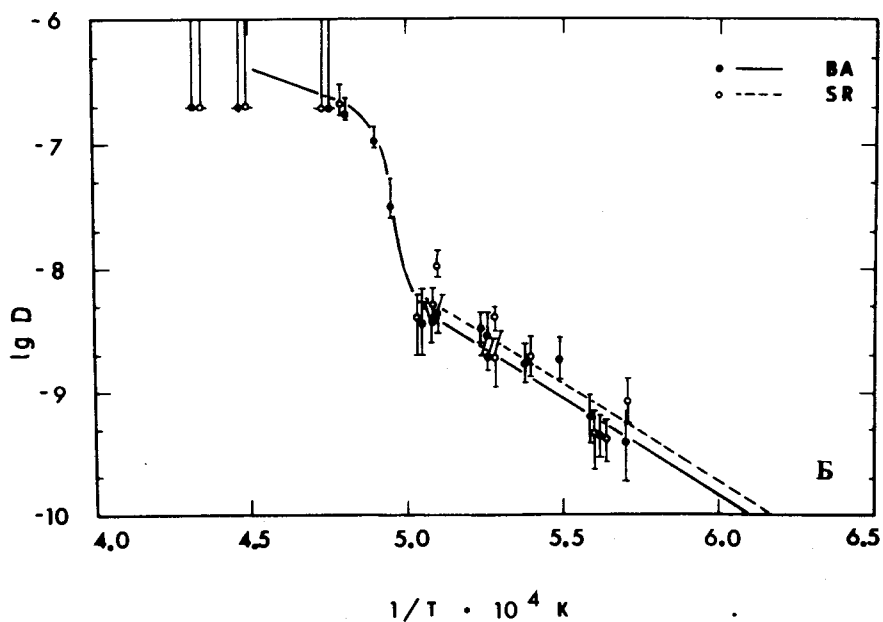


Таблица 4  
Коэффициенты уравнения Аррениуса /3/  $E_A$  и  $\log D_0$  для диффузии различных элементов в металлическом гафнии

Элемент	$E_A \pm \Delta E_A$ ккал/моль	$\log D_0 \pm \Delta \log D_0$	Область температур
LU	78,2±15,4	+0,2±1,8	1700 - 2020 К
YB	81,4±9,7	+0,2±1,2	
TM	93,6±13,0	+1,7±1,6	
TB	71,9±13,8	-0,3±1,7	
GD	73,1±10,7	-0,6±1,3	
EU	67,4±15,7	-1,2±1,9	
BA	70,9±8,3	-0,3±1,0	1700 - 2300 К
SR	84,2±13,4	+1,1±1,6	
CS	85,7±28,6	+0,5±3,2	
RB	77,1±8,3	+0,2±0,9	

короткоживущих изотопов лантанидов /раздел 1/. В режиме "off-line" можно использовать фазовый переход для очень быстрого улетучивания изотопов редкоземельных элементов - продуктов ядерных реакций. Высокая скорость улетучивания позволяет и в режиме "on-line" выделять за короткое время большую часть продуктов ядерных реакций. В области температур 2200 - 2300 К, исходя из значений  $\lg D$  для щелочноземельных и редкоземельных элементов, представленных на рис. 3А и 3Б, времена полувыделения определяют как 1-10 с/табл. 5/. Большая скорость улетучивания позволяет также использовать в качестве мишени более толстые Hf-образцы /0,5 - 1,0 мм/. Сравнимые времена полувыделения лантанидов из более тонких Ta-фольг /0,05 мм/ достигаются лишь в области 3000 К/14/.

Металлический гафний вероятно лучше как материал "on-line" - мишени, чем металлический титал, так как: - продукты ядерных реакций /лантаниды/ выделяются быстрее и при значительно более низких температурах;

Таблица 5  
Время 50%-ного улетучивания лантанидов из облученной фольги гафния толщиной 0,1 мм для различных температур

T (К)	Время полуулетучивания /сек/
2000	$10^3$
2100	$10^2$
2200	10
2300	1

- можно использовать более толстые мишени, не опасаясь того, что при длительной эксплуатации "on-line"-установок происходит постепенное увеличение размера зерен в твердых нагретых мишенях.

Авторы благодарят профессора, доктора хим. наук В.А.Халкина за постоянный интерес к работе, В.А.Быстрова и О.Кнотека за помощь при постановке и проведении опытов, а также Ц.Вылова, Г.-Ж.Ортлеппа и В.-Д.Фромма за представление измерительной техники и участие в обработке данных.

#### Литература

1. Proc. of Intern. Symp. "Why and How Should We Investigate Nuclides Far Off the Stability Line". Lysekil, Schweden, 1966, publ. in Ark. Fys., 36, 1-686 (1967).
2. К.Я.Громов, Б.С.Джелепов. АЭ, 26, 362 /1969/.
3. W.L.Talbert. Proc. of the Intern. Conf. on the Properties of Nuclei Far From the Region of Beta-Stability. Leysin, Switzerland, 1970. CERN, 70-30, vol. 1, p. 109.

4. G.J.Beyer, E.Herrmann, A.Piotrowski, V.I.Raiko, H.Tyroff. Nucl. Instr. and Meth., 96, 437 (1971).
5. Г.-Ю.Байер, А.Ф.Новгородов, В.А.Халкин. ОИЯИ, Р6-9917, Дубна, 1976.
6. R.M.Barrer. Diffusion in and through Solids. Cambridge, 1941.
7. К.Е.Зимен. Tabellen zur Auswertung von Messungen der Diffusion Radioaktiver Edelgase. HMI-B, 1962, S.16.
8. G.Erdtmann, W.Soyka. Die  $\gamma$ -Linien der Radionuklide. Jul-1003-AC, April, 1974.
9. В.Хабенихт и др. ОИЯИ, 10-7614, Дубна, 1973.
10. В.-Д.Фромм. ОИЯИ, 10-9094, Дубна, 1975.
11. С.Р.Аврамов и др. ОИЯИ, 10-9095, Дубна, 1975.
12. Ф.Дуда и др. ОИЯИ, 10-4977, Дубна, 1970.
13. А.Я.Шиняев. Диффузионные процессы в сплавах. М., Наука, 1975, стр. 69.
14. A.Latuszynski. Nucl. Instr. and Meth., 123, 489 (1975).

*Рукопись поступила в издательский отдел  
30 июня 1976 года.*