

Исследование диффузии продуктов ядерных реакций в различных материалах

Н. И. ТАРАНТИН, В. В. ГОРДЕЕВ, А. В. ДЕМЬЯНОВ

УДК 539.107

Приведены результаты опытов по изучению времени эмиссии продуктов ядерных реакций, вбитых в нагретые пластинки. Было найдено, что ~50% вбитых в танталовую пластинку атомов диспрозия при температуре 1750° С эмитируют за время ~0,1 сек. Опыты проводились с целью использования этого метода для введения изучаемых продуктов реакций в ионный источник электромагнитного сепаратора, предназначенного для быстрой идентификации короткоживущих продуктов ядерных реакций.

■
Применение электромагнитных сепараторов изотопов для исследования продуктов ядерных реакций существенно облегчает идентификацию анализируемых ядер и 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. Особенно это относится к анализируемым продуктам в твердой фазе, так как в отличие от газообразных их нельзя вводить в ионный источник непосредственно через капилляр. В связи с этим на некоторых электромагнитных сепараторах были проведены меры по сокращению времени сепарации. В частности, некоторые сепараторы изотопов были оборудованы специальными устройствами, предназначенными 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 легко летучих элементов (ртуть, висмут, полоний, астатин, радон) до нескольких минут, что позволило наблюдать образование короткоживущих изотопов этих элементов в различных ядерных реакциях [4, 5].

Известны 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 быстро передаются в ионный источник электромагнитного сепаратора. Первые опыты по быстрому масс-спектрометрическому исследованию таким способом короткоживущих

ядер были проведены в 1951 г. В этих опытах исследовались короткоживущие изотопы криптона с периодом полураспада 10 сек и более, образующиеся при делении урана нейтронами [6].

В настоящее время над идеями и проектами подобных быстрых сепараторов работают во многих ядерно-физических лабораториях. Основные результаты работ в этом направлении обсуждались на конференции «Электромагнитные сепараторы изотопов и их применение», проходившей в Дании в 1965 г. [7—12].

Схема одного из возможных вариантов быстроедействующего электромагнитного сепаратора, создаваемого в лаборатории ядерных реакций (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, попадая в газовый разряд, тут же ионизируются. Образующиеся ионы извлекаются из ионного источника, ускоряются и разделяются по массам электромагнитным анализатором. Для обеспечения быстрой регистрации распада короткоживущих ядер разделенные продукты собираются непосредственно на счетчиках (например, на полупроводниковых детекторах заряженных частиц).

Основной вопрос, определяющий возможности использования описанного метода для быстрой идентификации короткоживущих ядер, — это вопрос о времени, необходимом для того, чтобы вбитые в стенки разрядной камеры атомы продиффундировали 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. В настоящей работе проведены эксперименты в этом направлении. Исследовалась обратная эмиссия продуктов ядерных реакций, внедренных в пластинки из различных материалов, нагретые до высокой температуры. Изучалось поведение атомов диспрозия и гаф-

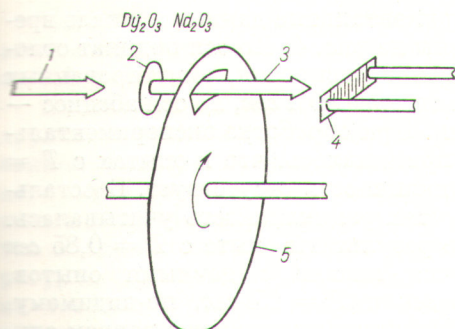


Рис. 1. Схема опытов:

1 — пучок ионов C^{12} ; 2 — мишень (Dy_2O_3 или Nd_2O_3); 3 — продукты реакции; 4 — нагреваемая током пластинка; 5 — вращающийся диск.

ния, образующихся в реакциях под действием ускоренных ионов углерода. Выбор именно этих элементов определялся тем, что диспрозий является одним из элементов серии лантанидов, поэтому данные, полученные по скорости диффузии этого элемента, по-видимому, можно распространить на все элементы этой серии, а также и на их аналоги — трансураниевые элементы серии актинидов. Гафний представлял интерес как один из трудно летучих элементов IV группы Периодической системы Менделеева.

Методика исследований заключалась в следующем. Мишень, состоящая из тонкой подложки (алюминиевая фольга толщиной 15 мк) с нанесенным на нее слоем ($\sim 1 \text{ мг/см}^2$) окиси неодима или окиси диспрозия, облучалась со стороны подложки пучком ионов C^{12} , ускоренных на 150-сантиметровом циклотроне ЛЯР (рис. 1). Продукты ядерных реакций (ядра диспрозия или гафния) 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 пластинку 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 находилось время обратной эмиссии вбитых в нагретую пластинку продуктов ядерных реакций. Температура пластинки во время эксперимента контролировалась по мощности, затрачиваемой на нагрев пластинок. Градуировочная кривая зависимости температуры пластинки от мощности нагрее-

ва была получена в предварительных опытах при помощи оптического пирометра. Во время эксперимента в установке поддерживался вакуум $5 \cdot 10^{-5} - 10^{-4} \text{ мм рт. ст.}$

В опытах с диспрозием использовался его семиминутный изотоп Dy^{150} , который при распаде в 18 случаях из 100 испускает α -частицы [14]. Этот изотоп получался путем облучения естественной смеси изотопов неодима ионами углерода с энергией 76 Мэв. Наиболее вероятная реакция его образования $Nd^{142}(C^{12}, 4n)Dy^{150}$.

Некоторые результаты опытов с диспрозием представлены на рис. 2—4. На рис. 2 показано изменение эмиссии атомов диспрозия, вбитых в нагретую пластинку из тантала с небольшой примесью ниобия ($\leq 1\%$), в зависимости от температуры. Под эмиссией здесь понимается отношение числа атомов диспрозия, оставшихся на нагретую пластинку к концу облучения, к числу атомов диспрозия, вбитых в пластинку во время облучения. Эта величина определялась по скорости счета α -частиц Dy^{150} , внедренного в диск со стороны мишени, и Dy^{150} , оставшегося в пластинке. Скорость счета 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 $1500 - 1700^\circ \text{C}$, достигая 90% при температуре $\sim 1900^\circ \text{C}$.

На рис. 3 приведены результаты измерения распределения эмиттированных из пластинки и осевших на диске атомов диспрозия. В этих

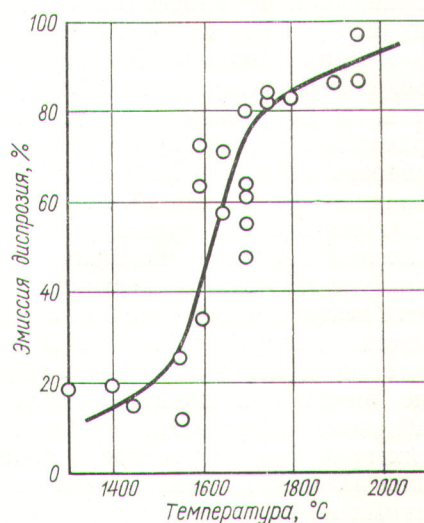
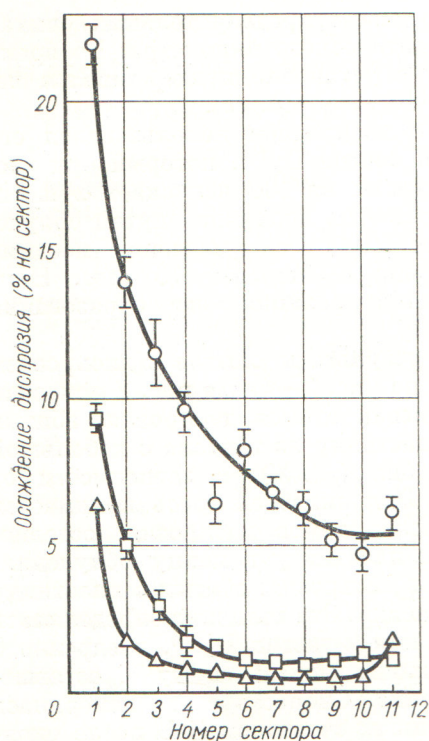


Рис. 2. Эмиссия атомов диспрозия в зависимости от температуры.



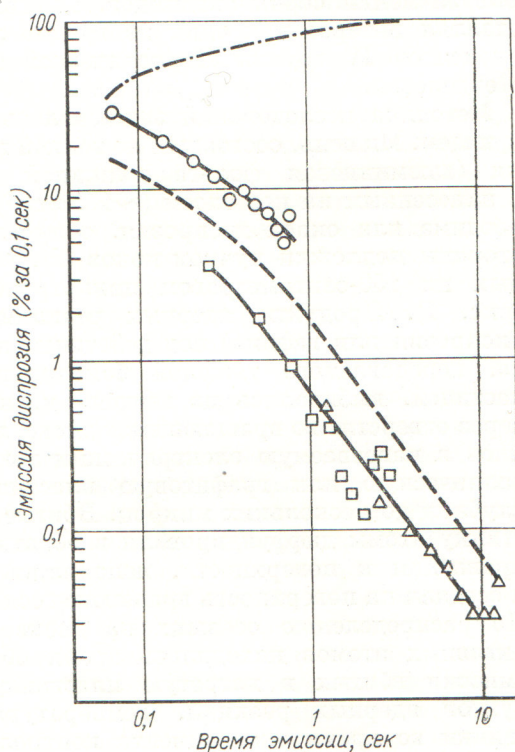
Р и с. 3. Распределение осевших на диске атомов диспрозия.

Период обращения диска T : $\circ$ — 0,85 сек;
 $\square$ — 3 сек, $\triangle$ — 15 сек.

измерениях круглый диск после окончания облучения разрезался на 12 равных секторов, α -активность каждого сектора со стороны, обращенной к пластинке, 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 Dy^{150} , эмиттированного из пластинки. На рисунке представлены результаты опытов для трех различных значений периодов обращения диска при температуре танталовой пластинки $\sim 1750^\circ \text{C}$. Указаны статистические ошибки счета. Видно, что эмиссия диспрозия заметно меняется на протяжении периода обращения диска. Возрастающие эмиссии в конце периода (сектор 11), наблюдаемое систематически при малых скоростях вращения, обусловлено попаданием в начальный момент атомов диспрозия, эмиттированных из пластинки с широким угловым распределением (по нашим данным, приблизительно изотропным).

Эти экспериментальные данные в шкале времени приведены на рис. 4. По оси ординат отложена доля атомов диспрозия, эмиттированных 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 не сопрягаются плавно с данными опытов, когда $T = 3$ 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 флуктуации также связаны с неконтролируемым взаимодействием нагретой танталовой пластинки с атомами остаточного газа (вероятно, с кислородом) в объеме установки. Пунктиром на рисунке показана усредненная кривая, штрихпунктиром представлена интегральная кривая, построенная по усредненной. Эта кривая показывает, какая доля атомов диспрозия эмиттирует из пластинки к данному моменту времени.



Р и с. 4. Эмиссия атомов Dy^{150} во времени ($\circ$, $\square$ и $\triangle$ — данные опытов с периодом обращения диска соответственно 0,85; 3 и 15 сек).

Как видно из рисунка, 50% внедренных атомов эмиттирует из нагретой пластинки 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 пластинки при тех же температурах (1700—1900°С) аналогична эмиссии из тантала. Графит, как промышленный, так и полученный при прокаливании без доступа воздуха фильтровальной бумагой, обладал значительно более низкими эмиссионными свойствами. Это, по-видимому, связано с взаимодействием внедренных атомов с графитом и образованием трудно летучих 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 даже выше. Это, по-видимому, связано с тем, что в нашем случае более быстрой эмиссии способствовали малая глубина вбивания ($\sim 10^{-4}$ см, в отличие от активации на всю толщину пластинки [11]) и отсутствие разрыва во времени между внедрением и нагревом пластинки.

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

Для регистрации изотопов гафния, распа-дающихся с испусканием β -частиц и γ -лучей, использовался торцовый счетчик Гейгера. Так как под действием пучка ионов углерода непосредственно в пластинке и диске образовывались β -активные продукты реакций, то количественные измерения эмиссии гафния не могли быть проведены. Мы ограничились только относительными измерениями распределения осаж-денных на диск атомов гафния, эмиттированных из пластинки. В этих опытах использовались три сложенных вместе медных диска с общим окном, в первом из которых (толщина 2 мм) тормозились ионы углерода, второй (толщина 20 мк) использовался для определения уровня наведенной нейтронами β - и γ -активности, третий (толщина также 20 мк) — для осаднения эмиттированных из пластинки атомов. Изотопы Hf^{170} и Hf^{171} идентифицирова-

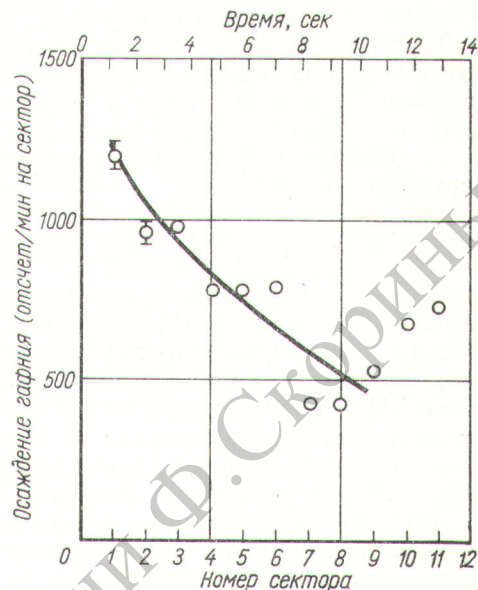


Рис. 5. Распределение осевших на диск атомов гафния ($T = 15$ сек).

лись 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 использовалась пластинка из тантала с примесью ниобия, нагретые до температуры 1750°С. Как видно из рисунка, период полураспада интенсивности эмиссии составляет ~ 6 сек, однако об истинной скорости эмиссии судить трудно, так как в этом опыте данные об абсолютном выходе отсутствуют.

Полученные экспериментальные результаты дают непосредственный ответ на поставленный выше вопрос о времени эмиссии некоторых продуктов ядерных реакций, вбитых в нагретую пластинку. Эти результаты позволяют заключить, что можно сконструировать ионный источник для быстродействующего электромагнитного сепаратора изотопов с описанным выше методом быстрой доставки продуктов ядерных реакций непосредственно в разрядную камеру источника. При этом опасность запыления мишени, по-видимому, невелика, так как эксперименты в условиях наших опытов не приводили к какому-либо заметному снижению выхода продуктов ядерных реакций, обусловленному запылением мишени. Вместе с тем эти результаты дают дополнительные сведения о диффузии атомов в твердых телах в условиях сильных радиационных повреждений, в частно-

сти позволяют оценить коэффициент диффузии.

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 76 Мэв, энергия отдачи продуктов ядерных реакций была равна 5,8 и 5,1 Мэв для ядер диспрозия и гафния соответственно. 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 оценки могут быть получены из аналогичных экспериментальных данных. Систематика пробегов атомов при таких начальных скоростях приведена в работе [15], из которой следует, что глубина внедрения атомов диспрозия и гафния с энергией 5–6 Мэв должна составлять приблизительно $R = 10^{-4}$ см. Интерпретация полученных результатов в рамках теории диффузии сводится к определению потока диффундируемых атомов через границы пластинки:

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

где D — коэффициент диффузии; C — концентрация диффундируемых атомов в пластинке, определяемая уравнением накопления диффундируемого вещества, которое в общем случае сводится к выражению

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

Здесь λ — константа радиоактивного распада; v — плотность источников образования радиоактивных атомов.

В нашем случае время диффузии за границу пластинки существенно меньше времени жизни исследуемых ядер, поэтому вторым членом в правой части уравнения (3) можно прене-

бречь. При решении уравнения (3) необходимо учитывать период накопления радиоактивных атомов в поверхностном слое пластинки ($v \neq 0$), когда окно в диске располагается напротив пластинки, и период эмиссии внедренных радиоактивных атомов ($v = 0$), когда нагретая пластинка располагается напротив сплошной части диска. Полученные в наших опытах распределения эмиттированных атомов во времени отражают второй период. В этом случае начальные условия решения уравнения (3): постоянная начальная концентрация продуктов ядерных реакций при $t = 0$ $C(x, 0) = C_0$ в области $0 < x < R$ и $C(x, 0) = 0$ в области $R < x < L$ (L — толщина танталовой пластинки); краевые условия: $C(0, t) = C(L, t) = 0$. Постоянство начальной концентрации в области $0 < x < R$ является достаточно хорошим приближением, поскольку в опытах использовались многоизотопные мишени, обусловившие в результате суперпозиции двух-трех функций возбуждения приблизительно равновероятное распределение заторможенных в танталовой пластинке продуктов реакции в пределах до максимального пробега R .

Не останавливаясь на точном и довольно трудоемком решении уравнения (3) с приведенными начальными и краевыми условиями, ограничимся лишь качественными выводами, вытекающими из этого решения: 1) отношение потоков диффундирующего вещества из слоя внедрения в вакуум и в глубину пластинки приблизительно равно $\left(\frac{L}{R}\right)^2$, т. е. в нашем случае практически все продукты реакции диффундируют в вакуум $\left|\left(\frac{L}{R}\right)^2 \approx 10^4\right|$; 2) скорость эмиссии в вакуум изменяется по закону

$$J \sim \frac{1}{R} e^{-\frac{n^2}{R^2} Dt}. \quad (4)$$

При аппроксимации экспериментальных данных (рис. 4) экспоненциальным законом (4) было получено $D = 10^{-9} \div 10^{-10}$ см²/сек. Эта величина несущественно отличается от обычных значений коэффициентов диффузии для различных веществ в металлах при $t \approx 1500^\circ \text{C}$, хотя в условиях наших опытов имели место радиационные повреждения в пластинке, обусловленные тяжелыми бомбардирующими частицами и продуктами ядерных реакций, которые могли способствовать ускорению диффузии.

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

Поступила в Редакцию 14/VII 1966 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. J. Uhler, T. Alvager. Arkiv fys., 14, 473 (1958).
2. J. Sarrouy, R. Klapisch. Electromagnetic Separation of Radioactive Isotopes. Proceedings of the International Symposium Held in Vienna, May 23—25, 1960. Edited by Hgatsberger and Vieböck, Wien, Springer Verlag, 1961.
3. J. Sarrouy et al. Nucl. Instr. Meth., 38, 29 (1965).
4. N. Poffè et al. J. Phys. Rad., 21, 343 (1960).
5. J. Uhler et al. Arkiv fys., 24, 421 (1963).
6. O. Kofoed-Hansen, K. Nielsen. Dan. Mat. Fys. Medd., 26, No. 7 (1951).
7. G. Rudstam. Nucl. Instr. Meth., 38, 282 (1965).
8. R. Klapisch, R. Bernas. Nucl. Instr. Meth., 38, 291 (1965).
9. S. Borg et al. Nucl. Instr. Meth., 38, 296 (1965).
10. G. Sidenius et al. Nucl. Instr. Meth., 38, 299 (1965).
11. M. Anderson et al. Nucl. Instr. Meth., 38, 303 (1965).
12. N. Talbert, D. Thomas. Nucl. Instr. Meth., 38, 306 (1965).
13. N. I. Tarantin et al. Nucl. Instr. Meth., 38, 103 (1965); Н. И. Тарантин, А. В. Демьянов. «Приборы и техника эксперимента», № 1, 41 (1966); А. В. Демьянов и др. Там же, № 2, 28 (1966).
14. R. Macfarlane, D. Seegmiller. Nucl. Phys., 53, 449 (1964).
15. J. Lindhard et al. Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk., 33, No. 14 (1963).

Обратное рассеяние γ -излучения от алюминиевых барьеров конечной толщины

Д. Б. ПОЗДНЕЕВ, С. А. ЧУРИН, Л. Е. ГОХШТЕЙН

УДК 539.122:539.121.72

Методом Монте-Карло рассчитаны величины числового и энергетического альbedo для барьеров из алюминия при толщинах последних до двух длин пробега первичных фотонов. Исследовались энергии 0,3; 0,5; 1,0 Мэв и углы падения мононаправленного источника γ -квантов (относительно нормали к барьеру), равные 0, 30, 45, 60, 75, 85. На основании анализа полученных данных предлагается эмпирическая формула для нахождения альbedo от барьера конечной толщины $A_x = A_\infty (1 - e^{-\alpha x})$. Приводятся данные о зависимости A_∞ (альbedo полубесконечной среды) и α (эмпирическая величина) от энергии первичных фотонов E_0 и угла падения θ_0 . Результаты расчета хорошо согласуются с данными, полученными методом статистических испытаний и эксперимента.

характеристики γ -квантов мононаправленного источника в случае барьеров из алюминия толщиной до двух длин свободного пробега (по нормали) при различных углах падения θ_0 в интервале энергий первичного γ -излучения до 1 Мэв. Методика расчета и основные результаты приведены ниже.

Методика расчета

За исходные начальные данные было принято число историй γ -квантов N_0 , которое менялось в пределах 3—10 тыс. и зависело от толщины рассеивающего барьера d , угла падения θ_0 и начальной энергии γ -излучения E_0 . Были проведены расчеты при значениях E_0 , равных 0,3; 0,5; 1,0 Мэв, и θ_0 , равных 0, 30, 45, 60, 75 и 85° (θ_0 отсчитывается от нормали к барьеру). Значения d варьировались от 0,1 до 2,0 длин свободного пробега γ -квантов начальной энергии в веществе защиты. Начальная пространственная координата γ -кванта $z_0 = 0$. Линейные коэффициенты ослабления и рассеяния γ -квантов (μ и μ_s соответственно) получены путем пересчета данных для массовых коэффициентов [1] (плотность алюминия 2,7 г/см³), промежуточные значения μ и μ_s находились линейной интерполяцией на ЭВМ. Время расчета составляло 3—15 мин в зависимости от исходных данных.

В результате расчета получены спектры отраженного и прошедшего γ -излучения (шаг энергетического спектра равен 120 кэв в интервале

В последние годы значительное внимание уделяется изучению обратного рассеяния γ -квантов от защитных сред в различных геометриях. В качестве защитных материалов широко используется бетон. В связи с этим представляет интерес получение данных об альbedo γ -квантов от этого материала (или ему эквивалентных) в большом интервале энергий для различных геометрий. Известно много работ, посвященных исследованию обратного рассеяния γ -квантов от бетона и алюминия (материала, близкого по атомному номеру Z к $Z_{эфф}$ бетона).

Сведения о зависимости альbedo γ -излучения от толщины барьера необходимы при расчете защитных экранов, решении задач по оптимизации защиты и пр. В настоящей работе методом Монте-Карло рассчитаны количественные