

Радиационная устойчивость двуокисей Sm^{244} и Pu^{238} под действием самооблучения

И. И. КАПШУКОВ, Г. Н. ЯКОВЛЕВ, О. В. СКИБА,
Г. А. ТИМОФЕЕВ, Л. В. СУДАКОВ

УДК 621.039.542.342:546.799

Рентгенографическое изучение воздействия самооблучения на двуокиси Pu^{239} , Pu^{240} и Am^{241} показало [1–3], что изменение параметра кристаллической решетки (ПКР) следует экспоненциальному закону:

$$\frac{\Delta a}{a} = A [1 - \exp(-B\lambda t)],$$

где A и B — константы; λ — постоянная распада; t — время.

При нейтронном облучении двуокиси урана по мере увеличения дозы ПКР проходит через максимум и после некоторого уменьшения становится постоянной величиной [4]. Увеличение ПКР связывается авторами работы [4] с появлением в облученной двуокиси урана точечных дефектов, а уменьшение — с их объединением в скопления (комплекс). На основании этого высказывается мнение [2], что при экспоненциальном изменении ПКР не происходит образования скоплений точечных дефектов.

В настоящей работе методом рентгеноструктурного анализа изучено влияние самооблучения при комнатной температуре на ПКР окислов высокоактивных изотопов Sm^{244} и Pu^{238} .

Основные характеристики образцов приведены в таблице. Спектральный анализ образцов 1 и 3 показал присутствие примесей в суммарном количестве менее 1 вес.%. Основные примеси: алюминий 0,1–0,3%, магний 0,1–0,3%, кальций ~0,1%. В образце 2, кроме того, обнаружено железо в количестве до 5 вес.%. Достоверных данных о вхождении примесных атомов в решетку двуокиси или, наоборот, о присутствии их в образцах в виде отдельных фаз не имеется.

Характеристики образцов

Параметры	Образцы		
	1	2	3
Химический состав	PuO_2	PuO_2^*	SmO_2^*
Начальный ПКР, Å	5,3961	5,409	5,372
Погрешность в определении ПКР, Å	0,0005	0,001	0,001
$\lambda_{\text{эфф}}$, сутки ⁻¹ . . .	$0,18 \cdot 10^{-4}$	$0,18 \cdot 10^{-4}$	$1,05 \cdot 10^{-4}$

* Возможно субстехиометрические. Значение кислородного коэффициента экспериментально не определялось.

На рис. 1 видны основные закономерности изменения ПКР под действием самооблучения:

1) кривые имеют отличающийся от экспоненциального немонокотный характер с максимумом и минимумом в промежуточной области и с последующим насыщением;

2) четко проявляется влияние степени совершенства структуры образца; для более совершенного образца 1 минимум выражен менее резко (см. таблицу), начальный участок идет более круто, а кривая в целом проходит выше, чем для менее совершенного образца 2;

3) различие в удельной активности Sm^{244} и Pu^{238} на кривых существенно не проявляется.

Длительное самооблучение образца 1 ($\lambda t = 1,5 \times 10^{-2}$) показало, что после выхода на насыщение ПКР в дальнейшем не изменяется.

Кривые на рис. 1 представляют собой сочетание экспоненты со случаем, описанным в работе [4]; существенное отклонение кривых ПКР от экспоненциальной зависимости для самооблучения отмечается впервые.

Для качественного объяснения результатов можно рассмотреть влияние на ПКР вакансий и межузельных ионов без подразделения их на катионные и анионные.

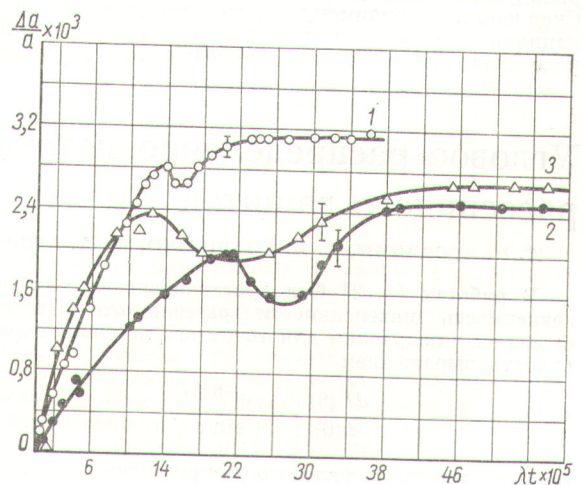


Рис. 1. Относительное изменение ПКР образцов 1, 2 и 3 (см. таблицу) в зависимости от дозы самооблучения.

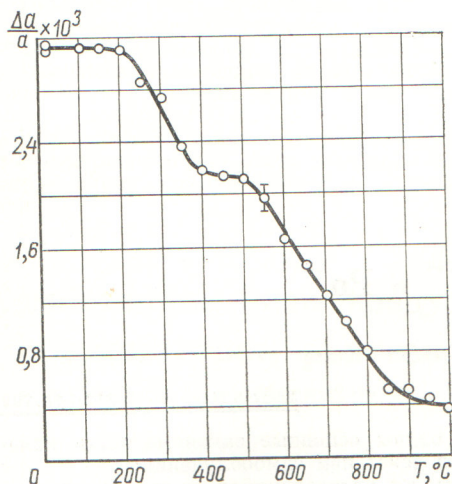


Рис. 2. Относительное изменение ПКР образца 1 (см. таблицу) при изохрональном ступенчатом отжиге (время выдержки при каждой температуре 11 ч).

Будем считать, согласно данным работы [5], что в исследованных соединениях (ионного типа) как межузельные ионы, так и вакансии увеличивают ПКР. Для кислородных вакансий в двуокиси плутония это показано экспериментально [6].

Вакансии и межузельные ионы при облучении образуются в равных количествах, однако концентрация вакансий в решетке растет быстрее, поскольку более подвижные межузельные ионы кроме рекомбинации со «своими» вакансиями частично уходят в стоки (к границам, дислокациям и т. д.). При высоких скоростях образования точечных дефектов и малом числе стоков происходит «пересыщение» решетки межузельными ионами. Это пересыщение снимается путем образования скоплений, которые в дальнейшем играют роль новых стоков для одиночных межузельных ионов. Скопления, по-видимому, представляют собой дислокационные петли межузельных ионов, по своей природе аналогичные петлям, наблюдаемым в облученной

двуокиси урана [7]. Уход межузельных ионов в петли проявляется в уменьшении ПКР, поскольку влияние дислокационных петель на ПКР незначительно. При дальнейшем облучении равновесная концентрация межузельных ионов сохраняется, а вновь образующиеся межузельные ионы частично рекомбинируют с вакансиями, а частично уходят в дислокационные петли. Поскольку концентрация вакансий растет, доля межузельных ионов, уходящих в стоки, падает. При некоторой концентрации вакансий скорость рекомбинации станет равной скорости образования точечных дефектов, т. е. система придет в равновесие, а ПКР достигнет стационарного значения.

На рис. 2 показано изменение ПКР при изохрональном ступенчатом отжиге образца 1 (см. таблицу), выдержанного до насыщения. Верхняя ступенька (200—400° С) соответствует отжигу межузельных ионов, которые аннигилируют с вакансиями и уходят в стоки, вызывая рост дислокационных петель. При температурах выше 500° С становятся подвижными вакансии. Поэтому нижняя ступенька (500—1000° С) характеризует отжиг оставшихся вакансий, стекающих к дислокационным петлям.

Поступило в Редакцию 24/X 1968 г.
В окончательной редакции 6/IV 1969 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. M. Rand, A. Fox, R. Street. *Nature*, **195**, 567 (1962).
2. C. Griffin et al. *Proc. 3 Internat. Conf. on Plut.* (London, 1965).
3. T. Chikalla, L. Eyring. *J. Inorgan. Nucl. Chem.*, **30**, 133 (1968).
4. L. Roberts et al. *Proc. 3 Internat. Conf. on Peaceful Uses of Atomic Energy* (Geneva, 1964), **11**, 464 (1965).
5. Дж. Динс, Дж. Виньярд. Радиационные эффекты в твердых телах. Перев. с англ. М., Изд-во иностр. лит., 1960.
6. E. Gardner, T. Markin, R. Street. *J. Inorgan. Nucl. Chem.*, **27**, 541 (1965).
7. A. Manlay. *J. Nucl. Mater.*, **27**, 216 (1968).

Угловое распределение потока и интенсивности рассеянного защитой γ -излучения

А. П. ВЕСЕЛКИН, А. И. ГЛУЩЕНКО, Ю. А. ЕГОРОВ, Ю. В. ОРЛОВ

УДК 539.171.015

В работах [1, 2] было установлено, что угловую зависимость интенсивности рассеянного защитным барьером γ -излучения для точечного источника можно описать выражением

$$\frac{dI(\theta)}{d(\theta)} = C \frac{e^{-\theta/\theta_0}}{\sin \theta},$$

где θ_0 — константа углового распределения, зависящая от энергии γ -излучения E_γ , материала защиты $Z_{эфф}$ и слабо зависящая от толщины $\mu_0 r$.

Значения θ_0 получены для ограниченного числа материалов биологической защиты и до недавнего

времени [3] были известны экспериментальные данные только для $E_\gamma \approx 1,25$ Мэв.

С целью расширения сведений о константах θ_0 и изучения зависимости θ_0 от энергии излучения и атомного номера материала защиты исследовались спектрально-угловые распределения γ -излучения Co^{60} ($E_\gamma = 1,25$ Мэв) и Na^{24} ($E_\gamma = 2,76$ Мэв), прошедшего через слой защиты из гидрида лития, полиэтилена, графита, титана, молибдена и вольфрама. Измерения проводились с точечными изотропными источниками γ -излучения. В качестве детектора применялся однокристалльный сцинтилляционный спектрометр с кристаллом NaI(Tl) диаметром и высотой 100 мм.