

Рис. 5. Модель эжекции атомов вдоль плотноупакованных направлений атомов в кубической решетке вследствие передачи энергии и импульса по этим рядам фокусонами.

лений и энергетических спектров вылетающих частиц в зависимости от дозы нейтронного облучения при дозах $10^{15} - 10^{16}$ нейтр.см⁻² настолько искажают кристаллическую решетку исследуемых мишеней, что рассеяние и блокирование фокусонов, кроудионов и каналирующихся частиц дефектами решетки в монокристаллах

становятся такими же, как и в поликристаллических мишенях.

Поскольку величины $E_{\text{макс}}$ частиц, вылетающих из монокристаллов, велики ($6,5 \cdot 10^2$ эв), можно предположить, что кроме процесса фокусировки столкновений в монокристаллах при нейтронной бомбардировке происходит и процесс каналирования быстрых смещенных атомов в решетке.

Поступила в Редакцию 17/III 1969 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. Р. И. Гарбер, А. И. Федоренко, В. сб. «Радиационная физика неметаллических кристаллов». Киев, «Наукова думка», 1967, стр. 34.
2. Р. И. Гарбер, А. И. Федоренко. «Успехи физ. наук», 83, 385 (1964).
3. G. Callendini et al. Phys. Rev., 86, 648 (1953).
4. В. К. Завойский, Б. В. Эршлер. «Сессия АН СССР по мирному использованию атомной энергии. Засед. отд. физ.-матем. наук». М., Изд-во АН СССР, 1955.
5. Р. И. Гарбер и др. «Письма ЖЭТФ», 7, 375 (1968).
6. М. Каминский. Атомные и ионные столкновения на поверхности металлов. М., «Мир», 1967; Н. В. Плешивцев. Катодное распыление. М., Атомиздат, 1968.

Радиационное распыление и повреждение некоторых металлов в поле излучения ядерного реактора

Часть 2. РАСПЫЛЕНИЕ ОСКОЛКАМИ ДЕЛЕНИЯ U^{235} И НЕЙТРОНАМИ РЕАКТОРА

Р. И. ГАРБЕР, В. С. КАРАСЕВ, В. М. КОЛЯДА,
А. И. ФЕДОРЕНКО

УДК 669.017:539.16.04

В последние годы большое внимание уделяется вопросу о поверхностном испарении делящихся материалов под действием осколков деления, приводящем к переносу массы облучаемого вещества с одной поверхности на другую. В частности, обнаружено [1, 2], что осколки деления, образовавшиеся в кристаллическом уране при облучении его в реакторе, приводят к распылению в среднем 10^3 атомов на один осколок деления. Осколок деления, проходящий вдоль поверхности мишени, распыляет $5 \cdot 10^7$ атомов, а осколок, который проходит под некоторым углом к поверхности, — около 10^3 атомов. Число вылетевших атомов, приходящихся на один осколок, определяется рельефом поверхности мишени, искажение которого приводит к резкому уменьшению числа вылетевших атомов [3]. Это указывает на существенную роль кристаллической решетки и ее ориентировки

по отношению к направлению трека осколка деления.

Поэтому представлялось интересным изучить распыление кристаллических материалов осколками деления в зависимости от ориентации кристаллической решетки. Такие опыты с делящимися материалами затруднены тем, что осколки деления образуются внутри кристалла на различных расстояниях по поверхности. В случае использования неделящихся материалов ориентационная зависимость взаимодействия осколков деления с веществом мишени может быть установлена более однозначно.

В настоящей работе изучалось распыление атомов с поверхности моно- и поликристаллических мишеней некоторых чистых неделящихся металлов при бомбардировке их с обратной стороны осколками деления U^{235} (находящегося

в контакте с мишенью) и потоком нейтронов в ядерном реакторе.

Методика эксперимента. Для изучения распада металлов под действием осколков деления и нейтронов в реакторе изготовили 52 мишени площадью 1 см^2 из 13 металлов (чистотой 99,9—99,99%): Cr, Fe, Ni, Cu, Zn, Zr, Nb, Mo, Ag, Sb, W, Au, Bi (выбор определялся удобным для дальнейших исследований периодом полураспада изотопов, получаемых при облучении мишеней тепловыми нейтронами в реакторе). Были приготовлены по четыре мишени из каждого металла: две моно- и две поликристаллические.

Монокристаллические мишени изготовили таким образом, чтобы плоскость мишени совпала с наиболее плотноупакованной гранью кристалла и чтобы толщина мишени превышала длину пробега осколков деления. Для приготовления мишеней были использованы методы эпитаксиального выращивания и электрохимического утоньшения. Отжиг в вакууме в течение 1 ч при температуре, близкой к температуре рекристаллизации, полностью снимал все напряжения, возникающие в мишенях в процессе обработки. Структуру и состояние материала мишеней контролировали электронографически.

Для получения потока осколков деления на одну поверхность моно- и поликристалли-

ческих мишеней каждого элемента наносили слой U^{235} (90%-ного обогащения) толщиной 50 мк. Всю последующую обработку мишеней с нанесенным слоем урана проводили таким образом, чтобы избежать диффузионного проникновения урана внутрь мишени. Две мишени того же элемента (моно- и поликристаллическая) оставались без покрытия слоем урана.

Разрез ампулы, в которой осуществлялось распыление материалов осколками деления и нейтронами в реакторе, схематически изображен на рис. 1. Мишень, представляющую собой диск диаметром 12 мм и толщиной 10^{-4} мм, укладывали на дно углубления держателя мишени и прижимали заворачиваемым кольцом. Держатель мишени и прижимное кольцо изготовляли из алюминия (чистотой 99,999%). Коллекторами для осаждения распыленных атомов служили диски диаметром 14 мм и толщиной 1 мм из химически чистой Al_2O_3 . Для скрепления держателей мишеней друг с другом через предусмотренные четыре отверстия пропускали двухканальные фарфоровые трубочки диаметром 2,5 мм с хромель-алюмелевыми термопарами, измерявшими температуру держателей по обоим концам и в середине сборки. Всю сборку опускали в ампулу из нержавеющей стали длиной 550 мм, диаметром 37 мм и толщиной стенок 1 мм.

В верхней части ампулы была укреплена таблетка из прессованной смеси U^{235} с порошкообразным титаном, играющая роль геттера в процессе облучения ампулы в реакторе. Крышку ампулы с герметизированными выводами термопар через патрубок из нержавеющей стали подсоединяли к вакуумной системе. После откачки прогретой до 400°C ампулы до давления 10^{-6} торр в течение 6 ч патрубок пережимался с одновременной заваркой с помощью электрических клещей.

Ампулу помещали в заполненный водой вертикальный канал реактора ВВР-М Института физики АН УССР. Поскольку температура воды в течение всего опыта составляла $60 \pm 5^\circ \text{C}$ и обеспечивался хороший тепловой контакт блоков со стенками ампулы, температура мишеней не превышала 70°C .

Мишени облучали потоком быстрых нейтронов $\sim 2 \cdot 10^{12}$ нейтр.см $^{-2}$.сек $^{-1}$ при соотношении между быстрыми и тепловыми нейтронами 1 : 10. Интегральная доза облучения быстрыми нейтронами составляла 10^{19} нейтр.см $^{-2}$. После облучения и демонтажа ампул в «горячей» камере с помощью радиометра ПП-8 со сцинтилляционным счетчиком регистрировали актив-

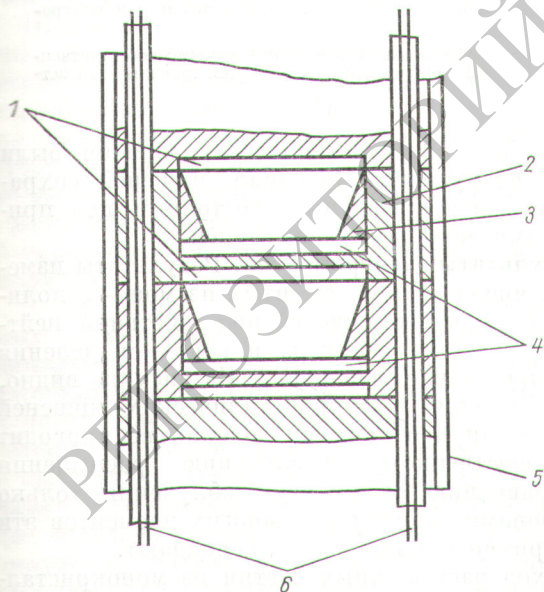


Рис. 1. Схематический разрез ампулы:

1 — коллекторы; 2 — прижимное кольцо; 3 — держатель мишени; 4 — мишень; 5 — корпус ампулы; 6 — термопары в фарфоровых трубках.

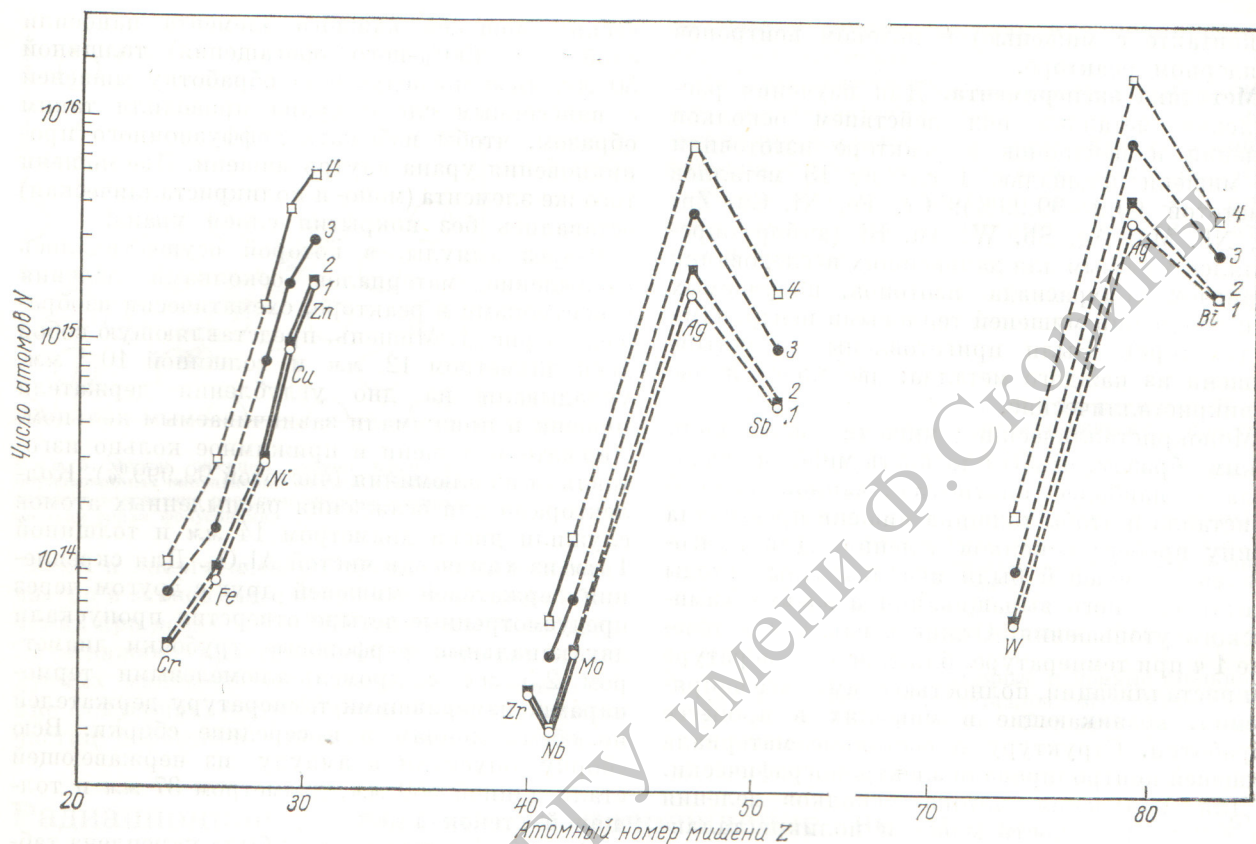


Рис. 2. Измеренные количества распыленных атомов из различных мишеней после облучения осколками деления и нейтронами реактора в зависимости от порядкового номера элемента мишени:

1, 2 — результаты, полученные при облучении поликристаллических мишеней нейтронами и осколками деления соответственно; 3, 4 — результаты, полученные при облучении монокристаллических мишеней нейтронами и осколками деления соответственно.

ность осадков распыленных атомов на коллекторах. Фон установки равен 0,2 *имп/мин.* Эффективность счета составляла 20%.

Из известных величин нейтронного сечения захвата, потока тепловых нейтронов (активировавших осадки распыленных атомов), времени экспозиции в реакторе, периода полураспада изотопа и измеренного количества распадов активных атомов на коллекторах в единицу времени были вычислены количества распыленных атомов на коллекторах.

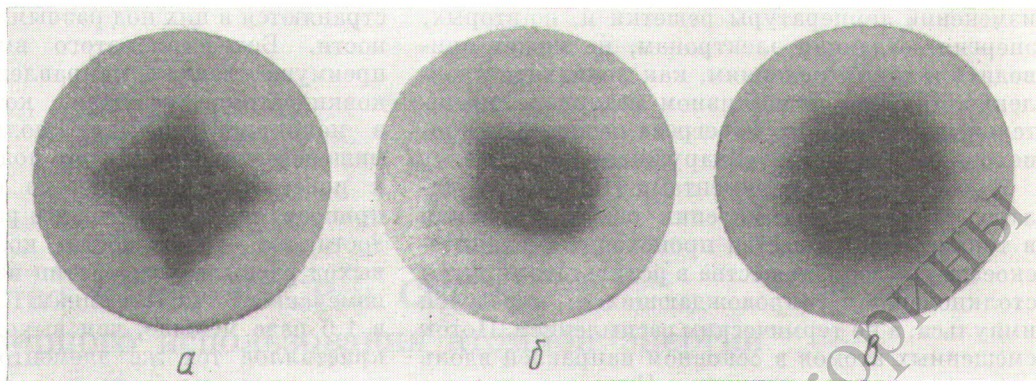
Для изучения распределения распыленных атомов по поверхности коллектора с активного осадка снимали автордиограммы на рентгеновской пленке, которые фотометрировали на микрофотометре МФ-2.

Визуальное обследование поверхностей облученных мишеней при увеличении в 200 раз позволило обнаружить небольших размеров бугорки и впадины на распылявшихся участках

мишеней. В отдельных местах мишени были почти разрушены. Материал мишеней сохранился в неповрежденном состоянии под прижимными кольцами держателей.

Результаты экспериментов. Результаты измерений числа атомов, выбитых из моно- и поликристаллических мишеней под действием нейтронного потока реактора и осколков деления U^{235} , представлены на рис. 2. Из рисунка видно, что облучение поликристаллических мишеней нейтронами и осколками деления не приводит к существенному увеличению распыления по сравнению со случаем облучения только нейтронами, причем для многих элементов эти экспериментальные точки совпадают.

Выход распыленных частиц из монокристаллических мишеней выше, чем из поликристаллических: для Cr в 1,75, Ni — в 2,6, Cu — в 1,3, Nb — в 2,0, Ag — 2,0, W — в 1,8, Au — в 2,5 раза.



Р и с. 3. Авторадиограммы осадка на коллекторе, полученного при бомбардировке осколками деления монокристаллической мишени:

a — меди [грань (100)]; *b* — молибдена [грань (110)]; *c* — висмута [грань (0001)].

Облучение монокристаллических мишеней нейтронами и осколками деления U^{235} приводит к увеличению выхода распыления с 1,4 раза (для труднораспыляемых материалов — хрома, молибдена, вольфрама) до 2 раз (для меди, цинка, серебра, золота). Кроме того, как и в случае распыления материалов при ионной [4] и нейтронной [5] бомбардировках в реакторе, наблюдается периодичность в изменении выхода распыленных частиц для различных элементов, обусловленная неодинаковой степенью заполнения внешних электронных оболочек атомов в мишенях.

На рис. 3 (*a*, *b*, *c*) приведены авторадиограммы, полученные с коллекторов, на которые осели атомы, распыленные из моно- и поликристаллических мишеней: меди — г. ц. к. решетка, симметрия четвертого порядка для грани (100) монокристалла, молибдена — о. ц. к. решетка, симметрия четвертого порядка для грани монокристалла (110) и висмута — ромбоэдрическая решетка, симметрия шестого порядка.

Картины осадков атомов, распыленных из монокристаллических мишеней, имеют симметрию пятен, соответствующую симметрии решетки мишени. Обусловлено это преимущественным вылетом распыленных частиц в направлениях наиболее плотной упаковки атомов в кристаллах. Вдоль таких рядов атомов в каскадах атом-атомных столкновений [6] происходит передача энергии и импульса от бомбардирующих частиц в результате фокусировки столкновений решеткой монокристаллов. Осадки на коллекторах, полученные при распылении поликристаллических мишеней, не имеют дискретных пятен и распределение плотности

частиц по диаметру коллектора имеют косинусоидальный вид.

Обсуждение результатов. Осколки деления ядер урана имеют большое сечение взаимодействия с атомами вещества, благодаря чему создаваемые ими смещения атомов в веществе локализованы в сравнительно малом объеме. Проходя через вещество, осколки деления образуют практически непрерывный след нарушений — трек, протяженность которого может достигать нескольких десятков микрон [7]. Треки в виде светлых полосок на фоне материала мишени на микрофотографиях являются, по-видимому, открытой канавкой на поверхности мишени — результат смещения вещества вокруг траектории летящей частицы — либо цилиндрическим каналом с отсутствующим или разреженным веществом (в случае, если трек проходит в объеме мишени). Наблюдаемые при электронномикроскопическом исследовании [8] рельефа темные выступы по краям трека, очевидно, представляют собой вещество, внедренное в окружающую среду при движении осколка деления.

Долгое время считали, что создание трека в веществе обусловлено разогревом вещества до температуры плавления, вызванным передачей энергии осколка деления электронам, которые частично обмениваются ею с решеткой [9], поэтому темные участки по краям трека могли быть выплавленными и испаренными участками материала. Однако исследования [10] показали, что в слоях вещества толщиной более 200 Å следы треков отсутствуют. Объяснение этому может быть найдено в работе [11], авторы которой считают, что, во-первых, изменение температуры электронов значительно больше

изменений температуры решетки и, во-вторых, энергия, отданная электронам, не может приводить к таким явлениям, как локальное плавление. Поэтому в массивном материале значительного локального перегрева решетки не происходит и треки не обнаруживаются.

Кроме того, экспериментами [12] было показано, что при прохождении осколка деления в тонком слое вещества происходит «механическое» распыление вещества в результате упругих столкновений, сопровождающихся передачей импульса, а не термическим распылением. Поток смещенных атомов в основном направлен вдоль движения осколка деления. Число смещенных атомов, образующихся в уране под влиянием легкого и тяжелого осколков, согласно оценке в работе [7], равно $2,2 \cdot 10^5$ и $3,7 \cdot 10^5$ соответственно. Если энергия и импульс, донесенные смещенными атомами до поверхности облучаемого материала, достаточны для разрыва связей поверхностных атомов, то происходит вылет атомов вещества из поверхностного слоя твердого тела, которая может достигать значений, указанных в вводной части настоящей статьи.

В процессе выполнения описанных выше опытов изучалось распыление атомов с поверхности неделяющихся кристаллических материалов, обусловленное прохождением в них осколков деления. Так как длина пробега осколков была значительно меньше толщины мишеней, можно считать доказанным, что вынос материала из мишеней под действием осколков деления обусловлен «механическим», а не термическим процессом, что подтверждается также наличием анизотропии в распределении распыленных частиц из монокристаллов в осадках на коллекторах. Этот процесс обусловлен фокусировкой столкновений атомов в кристаллической решетке облучаемого материала [13]. Кроме того, возможен вылет атомов с поверхности облучаемого материала в результате каналирования высокоэнергетичных смещенных атомов по осевым и межплоскостным каналам решетки кристаллов [6].

В поликристаллических мишенях происходит рассеяние и блокирование фокусонов, кроудонов и каналирующихся смещенных атомов межкристаллитными границами и искажениями решетки в кристаллитах. Так как кристаллиты имеют различную ориентировку, фокусоны и каналирующиеся смещенные атомы распро-

страняются в них под разными углами к поверхности. Вследствие этого вместо распыления преимущественно в направлениях плотной упаковки атомов мишени, которое происходит в монокристаллах, из поликристаллических мишеней атомы вылетают под разными углами к поверхности (вплоть до скользящих). Это приводит к тому, что не все распыленные атомы достигают поверхности коллектора. Общий выход распыленных частиц из поликристаллов, измеренный по осадкам на коллекторах, в 1,6 раза меньше, чем выход частиц из монокристаллов тех же элементов. Распределение же этих частиц в осадке на коллекторе в отличие от распределения распыленных частиц из монокристаллов изотропно.

В заключение выражаем благодарность В. И. Воробьеву и В. Ф. Кобцу за помощь при подготовке эксперимента.

Поступила в Редакцию 17/III 1969 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. Ф. С. Лаптева, В. В. Эршлер. «Атомная энергия», 4, 63 (1956).
2. M. Rogers, J. Adam. J. Nucl. Mater., 6, 182 (1962).
3. В. К. Горшков и др. «Атомная энергия», 20, 327 (1966); 22, 24 (1967).
4. М. Каминский. Атомные и ионные столкновения на поверхности металлов. М., «Мир», 1967; Н. В. Плешивцев. Катодное распыление. М., Атомиздат, 1968.
5. Р. И. Гарбер и др. «Атомная энергия», 28, 400 (1970).
6. Р. И. Гарбер, А. И. Федоренко. В сб. «Радиационная физика неметаллических кристаллов». Киев, «Наукова думка», 1967, стр. 34.
7. J. Brinkman. Radiation Damage in Solids. Intern. Summer School Lekt. at Ispra. 1960, s. 830.
8. Н. Ф. Правдюк, В. М. Голянов. Propert. of Reactor Mater. and the Effects of Radiation Damage, Butter Worths. 1961, s. 160.
9. J. Noggle, J. Stiegler. J. Appl. Phys., 31, 2199 (1960).
10. J. Noggle, J. Stiegler. J. Appl. Phys., 33, 1726, 1894 (1962).
11. И. М. Лифшиц и др. «Атомная энергия», 6, 391 (1959).
12. Н. Ф. Правдюк, В. М. Голянов. Radiation Damage in Solids. Vol. 1, Vienna, JAEA, 1962, s. 333.
13. Р. И. Гарбер, А. И. Федоренко. «Успехи физ. наук», 83, 385 (1964).