

Распределение пор по размерам в этом случае будет иметь вид кривой с двумя максимумами (рис. 3, четвертая пленка). Подобный же вид распределения наблюдался ранее при облучении «массивных» фольг никеля ионами Xe^+ [6].

Таким образом, облучение пакетов тонких пленок позволяет определять характеристики пористости вдоль траектории бомбардирующих ионов, изучать влияние концентрации внедряемого элемента и скорости создания повреждений.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Зеленский В. Ф. и др. В кн.: Реакторное материаловедение. Труды конф. по реакторному материаловедению. Т. 2. М., изд. ЦНИИатоминформ, 1978, с. 20.

2. Зеленский В. Ф. и др. Там же, с. 3.
 3. Ганн В. В., Юдин О. В. В кн.: Вопросы атомной науки и техники. Вып. 1(9). Харьков, изд. ХФТИ АН УССР. 1979, с. 37.
 4. Nelson E., Hudson J. «J. Nucl. Mater.», 1975, v. 58, p. 11.
 5. Wiedersich H., Burton J., Katz J. Ibid., 1977, v. 51, p. 287.
 6. Зеленский В. Ф. и др. «Атомная энергия», 1978, т. 45, вып. 1, с. 61.

Поступило в Редакцию 30.01.79

УДК 548.526

Диффузия актиноидов и некоторых продуктов их деления в тугоплавких о.ц.к.-металлах

ЗАГРЯЗКИН В. И.

Интерес к диффузии в тугоплавких металлах с о. ц. к.-структурой (W, Ta, Mo и Nb) продиктован возможностью использования этих металлов и сплавов на их основе в качестве оболочек твэлов, работающих при температуре выше 1000 °С. Опубликованные данные о диффузии урана в тугоплавких металлах противоречивы [1—7], причем различие в коэффициентах диффузии достигает 10^4 раз. Систематические исследования диффузии тория и плутония в тугоплавких металлах, насколько известно, отсутствуют, а сведения о диффузии продуктов деления ограничены.

Представляется целесообразным для уточнения известных данных и оценки отсутствующих сведений о диффузии в тугоплавких о.ц.к.-металлах использовать обобщенное корреляционное соотношение [8], связывающее параметры диффузии с процессом испарения и имеющее следующий вид:

$$D = 0,545a^2\nu \exp[-0,35(\Delta H_{\text{исп}} - T\Delta S_{\text{исп}})/RT] \times \exp[-0,25(\Delta H_{\text{исп}}^* - B(1-x)^2)/RT], \text{ см}^2/\text{с}. \quad (1)$$

Здесь a — период решетки; $\Delta H_{\text{исп}}$ и $\Delta S_{\text{исп}}$ — теплота и энтропия испарения металла-основы; B — энергия взаимодействия в твердом растворе; $\Delta H_{\text{исп}}^*$ — теплота испарения примесного атома при диффузии примеси, или теплота испарения металла-основы при самодиффузии; x — доля атомов примеси. Частота колебаний ν оценивается по формуле [8, 9]

$$\nu = 0,445 \left[\frac{\Delta H_{\text{исп}}^* - B(1-x)^2}{a^2m} \right]^{1/2}, \text{ с}^{-1}, \quad (2)$$

где m — масса диффундирующего атома.

При выводе соотношения (1) предполагается, что диффузия осуществляется по моновакансиям, а энтропия миграции при самодиффузии и диффузии примесных атомов замещения много меньше энтропии образования вакансии [8]. Сравнение с известными экспериментальными данными показало, что корреляционные соотношения (1), (2) приводят к удовлетворительным результатам как при самодиффузии, так и диффузии примесей в тугоплавких о. ц. к.-металлах [8].

В табл. 1 приведены параметры D_0 и ΔH , рассчитанные в работе [7], для диффузии урана в тугоплавких металлах с учетом определенных по известным фазовым диаграммам [10] значений энергии взаимодействия. Сравнение

результатов расчета с экспериментами [1—6] показывает, что в большинстве случаев рассчитанные коэффициенты диффузии превышают экспериментальные. Специальное исследование причин этих расхождений на примере диффузии урана в вольфраме, тантале и молибдене из контактируемой урановой фольги или из слоя нитрата уранила [7] позволило установить, что здесь проявляется влияние переменного состава источника, тогда как результаты послынного радиометрического анализа обрабатывались по методу постоянного источника [1, 2] диффузии.

По соотношениям (1) и (2) были рассчитаны параметры диффузии тория, плутония и некоторых продуктов деления в тугоплавких о. ц. к.-металлах. В табл. 2 одновременно приведены значения энергии взаимодействия B , опубликованные [11] и оцененные по фазовым диаграммам или по известной методике [11]. Видно, что рассчитанные и экспериментально определенные коэффициенты объемной диффузии при $T = 0,6 T_{\text{пл}}$ (где $T_{\text{пл}}$ — температура плавления металла-основы) отличаются не более чем в 6 раз.

Сравнение рассчитанных коэффициентов диффузии показывает, что подвижность плутония в тугоплавких металлах намного выше подвижности урана и тория. Среди продуктов деления большей диффузионной подвижностью обладают иттрий и лантан, а меньшей — ниобий, молибден, рутений и родий.

Рассчитанные температурные зависимости объемных коэффициентов диффузии, разумеется, носят ориентировочный характер и применимы преимущественно в области $(0,5-0,8) T_{\text{пл}}$, где диффузия осуществляется по моновакансиям.

Таблица 1

Параметры диффузии урана D_0 ($\text{см}^2/\text{с}$) и ΔH (кДж/г·атом) в тугоплавких металлах по данным расчета и эксперимента

Металл	B , кДж/г·атом	Расчет		Эксперимент [7]	
		D_0	ΔH	D_0	ΔH
W	79	0,45	399,2	0,30	399,2
Ta	60,6	0,34	379,5	0,19	366,6
Mo	48,9	0,32	341,1	0,075	341,1
Nb	1,3	0,49	372,8	—	—

Параметры диффузии D_0 (см²/с) и ΔH (кДж/г·атом) актиноидов и некоторых продуктов их деления в тугоплавких металлах

Основа	Примесь	B , кДж/г·атом	D_0 , расчет	ΔH , расчет	D_0 , эксперимент	ΔH , эксперимент	Литература	$D_{\text{эксп}}/D_{\text{расч}}$ при 0,6Т _{пл}
W	W	—	0,70	508,7	0,54	503,7	[6]	1,02
	Th	92,0	0,47	417,6				
	Pu	108,8	0,32	355,7	6,7·10 ⁻³	284,7	[15]	1,6
	Y	108,8	0,63	377,4				
	Zr	60,2*	0,82	430,9				
	Nb	12,1*	0,93	473,6	0,3	422,2	[12]	2,70
	Mo	5,4	0,87	459,8				
	Ru	-22,6*	0,87	464,4				
	Rh	-17,2*	0,80	440,6				
	Pd	18,8*	0,62	387,5				
	La	330,5	0,18	306,4				
Ta	Ta	—	0,50	467,3	2,0	459,8	[6]	6,30
	Th	75,3	0,39	397,9				
	Pu	71,7	0,37	340,7	0,12	301,8	[15]	1,56
	Y	200,8	0,43	330,2				
	Zr	37,2*	0,66	412,6	0,36	419,7	[13]	3,80
	Nb	15,9*	0,74	447,7				
	Mo	4,0*	0,64	436,4				
	Ru	-175,7*	0,76	478,6	0,0018	338,6	[12]	1,10
	Rh	-157,3*	0,71	451,0				
	Pd	-159,8*	0,61	407,5				
	La	243,5	0,26	303,9				
Mo	Mo	—	0,60	395,8	0,13	400,4	[6]	0,16
	Th	75,3	0,34	356,1				
	Pu	62,8	0,24	301,0	1,8·10 ⁻⁴	214,4	[15]	0,33
	Y	63,2	0,48	322,7				
	Zr	27,2*	0,58	373,2	1,9·10 ⁻³	365,7	[6]	0,006
	Nb	3,9*	0,65	408,8				
	Mo	-23,8*	0,60	398,8				
	Ru	-26,4*	0,56	376,2	14	451,4	[13]	1,1
	Rh	-26,4*	0,56	376,2				
	Pd	-7,1*	0,45	327,7				
	La	228,4	0,24	265,6				
Nb	Nb	—	1,00	428,9	0,91	421,8	[6]	1,53
	Th	87,9	0,50	372,0				
	Pu	62,8	0,38	320,6	1,5·10 ⁻³	232,4	[15]	5,51
	Y	65,7	0,71	339,8				
	Zr	28,9*	0,89	395,0	0,10	376,2	[14]	0,44
	Mo	3,7*	0,92	413,4				
	Ru	-174,9*	1,01	456,9				
	Rh	-167,4*	0,93	431,0	1,3·10 ⁻²	349,9	[6]	1,43
	Pd	-149,8*	0,79	382,9				
	La	229,3	0,35	285,1				

* Данные работы [11].

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Федоров Г. Б. и др. «Атомная энергия», 1971, т. 31, вып. 5, с. 516.
2. Павлинов Л. В., Наконечников А. И., Быков В. Н. «Атомная энергия», 1965, т. 19, вып. 6, с. 521.
3. Taylor G. «Thesis. Nucl. Sci. Abstrs.», 1967, v. 21, N 23, p. 4528.
4. Schwegler E., White F. «J. Mass-Spectrom. Ion Physics», 1968, v. 1, p. 191.
5. Юргенс А. В., Абдуллин А. Г., Цветаев А. А. Физико-химические проблемы кристаллизации. Алма-Ата изд. Казах. гос. ун-та, 1969, с. 185.
6. Федоров Г. Б., Смирнов Е. А. Диффузия в реакторных материалах. М., Атомиздат, 1978.

7. Загрязкин В. Н. и др. In: Proc. Conf. «Thermodynamics of Nuclear Materials 1974». V. 2. Vienna, IAEA, 1975, p. 193.
8. Загрязкин В. Н., Ушаков Б. В., Мещеряков Г. Я. «Изв. АН СССР. Сер. металлы», 1975, вып. 2, с. 156.
9. Wert C., Zener C. «Phys. Rev.», 1949, v. 76, p. 1169.
10. Хансен М., Андерко К. Структуры двойных сплавов. Т. 1, 2. М., Metallurgizdat, 1962.
11. Кауфман Л., Бернштейн Х. Расчет диаграмм состояния с помощью ЭВМ. М., «Мир», 1972.
12. Борисов Е. В., Грузин П. Л., Земский С. В. В кн.: Защитные покрытия на металлах. Вып. 2. Киев, «Научная мысль», 1968, с. 104.
13. Аскиль Дж. В кн.: Диффузия в металлах с объемно-центрированной решеткой. М., «Металлургия», 1969, с. 254.
14. Рябова Г. Г., Грузин П. Л. В кн.: Металлургия и металловедение чистых металлов. Вып. 3. М., Атомиздат, 1961, с. 120.
15. Альтовский Р. М. и др. Коррозионные свойства иттрия. М., Атомиздат, 1969.

Поступило в Редакцию 30.01.79

УДК 539.166.3.17

Определение азота в смешанном уран-плутониевом топливе по реакции $^{14}\text{N}(\alpha, p\gamma)$

МЕЛЕНТЬЕВ В. И., ОВЕЧКИН В. В.

При разработке быстрых реакторов как перспективные рассматриваются твэлы на основе нитридного и смешанного уран-плутониевого топлива. В связи с этим возникает необходимость в надежном контроле содержания азота, от которого зависят физико-механические свойства таких твэлов. Известные методы химического и спектрального определения азота в смешанном уран-плутониевом топливе основаны на разрушении образцов, что не всегда приемлемо из-за проблем регенерации высокоактивных отходов и возможного загрязнения ими аппаратуры и производственных помещений.

В работе [1] показана возможность определения примесей легких элементов от лития до кальция в смесях с α -активным ^{238}Pu , основанного на регистрации с помощью сцинтилляционного детектора γ -излучения, которое возникает при взаимодействии α -частиц с ядрами легких элементов. В работе [2] сообщались характеристики аналитического метода при использовании Ge(Li)-детектора для определения примесей азота, фтора и натрия в ^{239}Pu .

Цель настоящей работы — распространение этого метода анализа на смешанное ядерное топливо, состоящее из плутония и урана. Как и в работе [2], для регистрации γ -излучения, испускаемого в реакции $(\alpha, p\gamma)$ на азоте ($E = 871$ кэВ), применен Ge(Li)-детектор.

Образцы смешанного топлива на основе U (80%) и Pu (20%) массой от 0,5 до 3,8 г находились в тонкостенных контейнерах из нержавеющей стали внутри стеклянных герметичных боксов, заполненных сухим аргоном. При измерениях бокс помещали на Ge(Li)-детектор, закрытый свинцовым фильтром толщиной 1,5 мм, для устранения перегрузок аппаратуры от интенсивного низкоэнергетического γ -излучения плутония.

Определение концентрации азота C проводили по отношению площади азотного пика (871 кэВ) к площади двух пиков (756 + 771 кэВ) собственного γ -излучения ^{239}Pu — q , используя градуировочную зависимость $q = f(C)$, полученную путем измерения контрольных образцов U + Pu-топлива массой 0,25 г. Содержание азота в контрольных образцах после измерений определяли по методу Кьельдаля (погрешность анализа примерно $\pm 1\%$). Результаты измерений в диапазоне 0,5—7,7 мас.% показаны на рисунке.

Во время измерения анализируемых образцов вводили поправки на вклад других α -активных излучателей: ^{241}Am и ^{240}Pu , которые определяли по площадям γ -пиков с энергией соответственно 722 и 687 кэВ. Для образцов с высокообогащенным ураном (по ^{235}U) учитывали малый вклад α -активных продуктов распада ^{232}U по γ -пику с энер-

гией 860 кэВ от ^{208}Tl . Энергетическое разрешение гамма-спектрометра (~ 5 кэВ в области энергии 870 кэВ) и достаточно большая скорость счета позволяли проводить надежный учет таких поправок.

Заметим, что для тонкоизмельченной смеси α -излучателя и других элементов с известной концентрацией можно использовать при необходимости аналитическое выражение зависимости $q = f(C)$, приведенное в работе [2]. При помощи этого метода были выполнены анализы сплавов (20% ^{239}Pu и 80% U с 90%-ным обогащением по ^{235}U); результаты определений представлены в таблице вместе с результатами анализа по методу Кьельдаля.

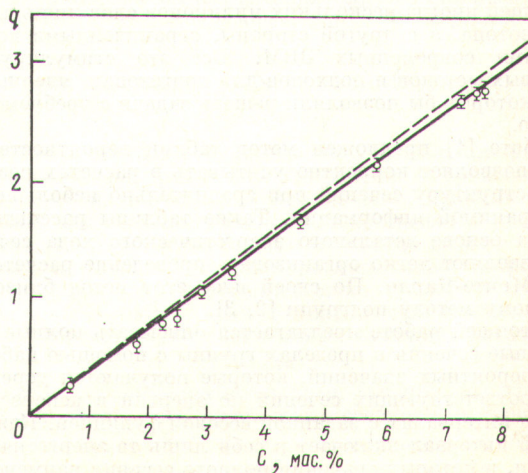
Погрешность анализа вычисляли согласно [3] по формуле

$$\varepsilon = \pm t_{\alpha, N} v_N \bar{C}^{-1} 10^{-2} n^{-1/2}, \quad (1)$$

где $t_{\alpha, N}$ — коэффициент Стьюдента при доверительной вероятности $\alpha = 95\%$ и числе определений N , выполненных при нахождении v_N . Средняя квадратическая погрешность v_N , определенная при $N \geq 20$, составляла от 10 до 7 отн.% для концентраций азота от 3,5 до 7,5 мас.%. Предел обнаружения азота оценивали по формуле

$$\eta = 165 (Q_{\phi} + q_0 P)^{1/2} (q' P)^{-1}, \quad (2)$$

где Q_{ϕ} — фоновое число импульсов детектора в области фотопика с энергией 871 кэВ; q' и q_0 — число импульсов,



Зависимость q от содержания азота в образце: \circ — эксперимент; — — — — — линейный ход зависимости $q = f(C)$