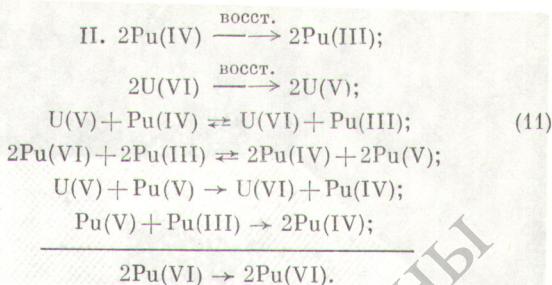
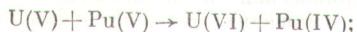
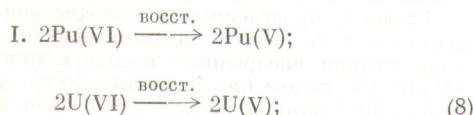


доз приводит к снижению радиационно-химических выходов восстановления. При расчете кривых по линейным участкам, имеющим максимальный наклон, для $[Pu] = 10^{-2}$ моль/л и $I = 7 \cdot 10^{16}; 7 \cdot 10^{17}; 7 \cdot 10^{18}$ эВ/(мл·мин) получены следующие значения выходов: 0,013; 0,002 и 0,0004 ион/100 эВ. Из рис. 2 видно, что расчет проведен не для полного восстановления плутония. Это объясняется тем, что при такой концентрации Pu в конце процесса начинает играть роль обратное окисление Pu(IV), что не учитывается выражением (7).

Восстановление Pu(VI) при γ -радиолизе в присутствии урана исследовано ранее [6]. Показано, что в 4,0 моль/л HNO_3 при концентрации плутония и U(VI), равных 0,01 и 0,75 моль/л и $I = 10^{19}$ эВ/(мл·мин), уран не ускоряет восстановление Pu(VI), что можно объяснить с учетом наших расчетов влиянием большой мощности дозы. В связи с этим проведены эксперименты по восстановлению Pu(VI) в присутствии U(VI) в 3,0 моль/л HNO_3 при мощности дозы $\leqslant 10^{18}$ эВ/(мл·мин). Из рис. 3 и 4 видно, что при используемых значениях мощности дозы U(VI) ускоряет процесс восстановления. Схема восстановления Pu(VI) в присутствии U(VI) может быть представлена в вариантах I и II, роль каждого зависит от соотношения концентрации Pu(VI) и Pu(IV):



Для упрощения схем не включена реакция диспропорционирования U(V). Восстановление U(VI) до U(V) происходит радикальными продуктами радиолиза e_{aq} и H-атомами. В настоящее время нет данных, поясняющих, какая из реакций (3 или 10) является скоростью определяющей при восстановлении Pu(VI) в присутствии U(VI). Ясно, что в присутствии последнего за счет реакций (9) и (11) повышаются стационарные концентрации Pu(V) и Pu(III). Эксперименты показали, что в 3,0 моль/л HNO_3 и при $I = 10^{18}$ эВ/(мл·мин) 100%-ное восстановление Pu(VI) при его концентрации 0,1 моль/л происходит практически в течение 300 ч, а при $[Pu] = 0,01$ моль/л в присутствии U(VI) с концентрацией 1,26 моль/л — в течение 100 ч.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Владимирова М. В., Куликов И. А., Рябова А. А. — Радиохимия, 1975, т. 17, № 2, с. 327.
2. Владимирова М. В. и др. — Там же, 1976, т. 18, № 1, с. 172.
3. Владимирова М. В., Рябова А. А., Сосновский О. А. — Там же, 1980, т. 22, № 5, с. 679.
4. Владимирова М. В., Куликов И. А., Савельев Ю. И. — Химия высоких энергий, 1969, т. 3, № 6, с. 526.
5. Колтунов В. С., Михайлова Н. А. — Радиохимия, 1977, т. 19, № 3, с. 342.
6. Тхоржиницкий Г. П. и др. — Там же, 1975, т. 17, № 5, с. 724.

Поступило в Редакцию 29.10.80

УДК 532.6.696

Внедрение водорода в палладий и титан при воздействии низковольтной плазмы тлеющего разряда

РАДЖАБОВ Т. Д., АЛИМОВА Л. Я., ДЫСКИН В. Г., МЕЛКУМЯН Ф. Ш., СКОРОДУМОВ Б. Г., РАДЮК Т. А., КАДУШКИН В. Н., ТРИНКИН И. И.

Известно, что первая стенка термоядерных реакторов будет разрушаться при облучении ее частицами с широким энергетическим спектром. Основные закономерности взаимодействия частиц высокой энергии с первой стенкой известны [1]. Область низкой энергии изучена недостаточно, поэтому исследование взаимодействия ионов низкой энергии с поверхностью металла представляет большой научный и практический интерес.

В настоящей работе измерено содержание и распределение по глубине водорода в поликристаллических образцах титана и палладия при воздействии низкоэнергетических ионов водорода (плазма тлеющего разряда). Образцы облучали дозой 10^{20} см^{-2} при разности потенциалов на электродах 500 В, плотности разрядного тока $10-100 \text{ mA/cm}^2$, давлении водорода в рабочей камере $1,3 \cdot 10^2-3,3 \cdot 10^3$ Па. Профиль распределения водорода в титане и палладии измеряли на выведенном пучке протонов энергией 20 МэВ 1,5-метрового циклотрона методом совпадения: определяли энергию протона, рассеянного водородом, находящимся в образце, и соответствующего протона

отдачи [2, 3]. Поликристаллические холоднокатанные фольги титана и палладия квадратной формы (со стороной 20 мм) толщиной 120 и 60 мкм после облучения в водородной плазме укрепляли на мишленном диске внутри камеры рассеяния. Их можно было дистанционно устанавливать на пути протонного пучка диаметром 1,5 мм.

Условие разлета частиц на 90° в лабораторной системе координат выполняется только для рассеяния на водороде. Поэтому при регистрации совпадений двумя полупроводниковыми детекторами (использовали кремний-литиевые дрейфовые детекторы с диаметром рабочей поверхности 12 мм и глубиной чувствительной области 2 мм, расположенным под углом 45° по обе стороны от первичного пучка, можно определять наличие водорода в исследуемом образце. Все остальные компоненты присутствуют только в виде фона случайных совпадений. Импульсы от детекторов с помощью быстродействующего электронного тракта регистрировались на двумерном поле многоканального амплитудного анализатора АИ-4096-ЗМ. Полученная информация обрабатывалась по специальной программе на ЭВМ

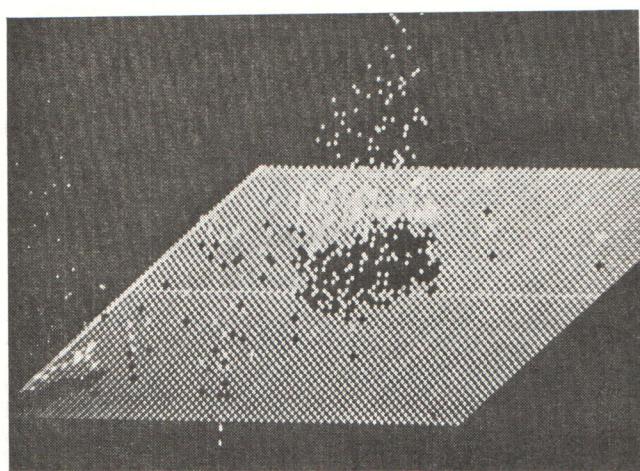


Рис. 1. Двумерный энергетический спектр, полученный для титана

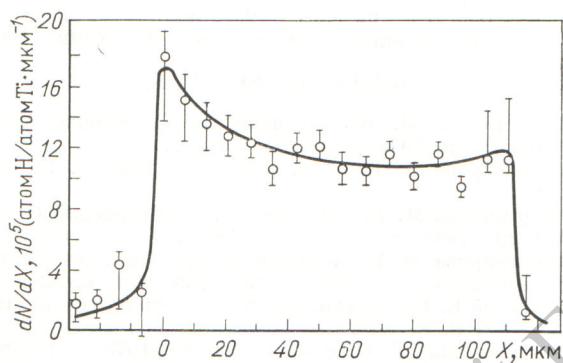


Рис. 2. Распределение водорода в титане: — результат усреднения экспериментальных точек

и выдавалась в виде энергетического спектра суммарной энергии рассеянных протонов, а также в виде распределения по толщине числа атомов водорода на один атом мишени. Этalonирование и учет потерь на многократное рассеяние проводили с помощью сложной мишени из фольги титана (соответственно палладия), проложенных пленками полистирола с известным содержанием водорода.

На рис. 1 изображено двумерное поле, сфотографированное с экрана анализатора, которое получено в опытах с использованием фольги титана. Расстояния вдоль границ поля соответствуют энергии рассеянных протонов, в направлении диагонали — толщине образца. Область в центре — события, соответствующие наличию водорода в образце; область в левом углу и отдельные события по всему полю — случайные совпадения. В титане (см. рис. 1) наблюдается

приблизительно равномерное распределение водорода по всей толщине. В палладии водород обнаруживается лишь в поверхностных слоях, что соответствует предположению о формировании области повышенной концентрации водорода разрядом [4]. Распределение водорода в титане при интегральном содержании $0,02 \text{ атомН/атомTi}$ приведено на рис. 2, из которого следует, что водород в титане распределен приблизительно равномерно по всей толщине $1,2 \cdot 10^{-4} \text{ атомН/атомTi} \cdot \text{мкм}$ с небольшим преобладанием в приповерхностном слое. Общее содержание водорода в палладии не превышает $4 \cdot 10^{-4} \text{ атомН/атомPd}$. Вследствие ограниченного разрешения методики ($\sim 5 \text{ мкм}$) размеры области повышенной концентрации, формируемой разрядом, в интервале исследованной энергии были определены лишь качественно.

Общепринятая характеристика содержания водорода в металле — атомная концентрация C , равная числу атомов водорода, приходящихся на один атом металла. При воздействии тлеющего разряда на металл C является функцией параметров разряда и зависит от вида газа, свойств мишени, а не определяется равновесной растворимостью, как в случае обычной термической сорбции [4, 5]. При малой скорости диффузии в металле и большой скорости поступления ионов из плазмы в приповерхностной области формируется участок, концентрация водорода в котором больше или равна концентрации при термической сорбции.

Расчеты, проведенные в соответствии с работой [4], дают следующие оценки для размеров области повышенной концентрации внедренного водорода при энергии ионов 300 эВ: для титана она не превышает средний нормальный пробег (10^{-2} мкм), для палладия больше на 1—2 порядка ($0,1$ — 1 мкм). Таким образом, область повышенной концентрации формируется при ионном внедрении в материалах с малой термической сорбционной емкостью (палладий) и не образуется в мишениях с большой сорбционной емкостью (титан). При этом упругие напряжения, вызываемые внедренными ионами водорода, приводят к изменению физических и химических свойств приповерхностного слоя, в частности к блистерингу и эрозии поверхности [1, 6].

Полученные результаты, по-видимому, объясняются тем, что водород, внедренный при ионной бомбардировке в титан, связывается в виде гидридов и может десорбировать только при высокой температуре ($T > 500^\circ \text{C}$), в то время как с палладием он не образует химических соединений и его десорбция возможна и при низкой температуре.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Гусев В. М. и др. Препринт ИАЭ-2529, М., 1975.
- Артемов К. П. и др.— Атомная энергия, 1973, т. 34, вып. 4, с. 265.
- Cohen B., Fink C., Degnan J.— J. Appl. Phys., 1972, v. 43, N 1, p. 19.
- Алимова Л. Я. и др.— Изв. АН УзССР, сер. физ.-мат., 1979, № 4, с. 75.
- Галактионова К. А. Водород в металлах. М., Металлургия, 1967.
- Раджабов Т. Д. и др.— Изв. АН СССР, 1979, т. 43, № 9, с. 1901.

Поступило в Редакцию 31.07.80