

малый вклад фотонов (особенно при  $\theta_0 = 0^\circ$ ), что можно объяснить процессами поглощения квантов в рассеивателе. Для больших толщин (например,  $x = 2$ ) характерна симметричная форма кривой распределения малых  $\theta_0$ . С увеличением  $\theta_0$  происходит деформация распределения в сторону больших  $\theta$ . При небольших  $\theta_0$  и больших  $x$  кривую распределения можно удовлетворительно описать функцией  $\sin \theta \cos \theta$  (пример приведен для  $\theta_0 = 30^\circ$ ,  $E_0 = 1$  Мэв, причем кривая  $\sin \theta \cos \theta$  нормирована в точке  $\theta = 45^\circ$ ), что согласуется с данными работы [3]. Следует отметить также изменение характера распределения для данных  $E_0$  и  $\theta_0$  с ростом  $x$ : при малых толщинах барьера максимум распределения (слабо выраженный при малых  $\theta_0$  и более ярко при больших  $\theta_0$ ) приходится на большие  $\theta$ , в то время как для больших толщин  $x$  он смещается в сторону меньших  $\theta$ .

Указанную разницу, по-видимому, можно объяснить ростом вклада многократно рассеянных фотонов с ростом  $x$ .  
Поступила в Редакцию 1/VI 1966 г.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. О. И. Лейпунский, Б. В. Новожилов, В. Н. Сахаров. Распространение гамма-квантов в веществе. М., Физматгиз, 1960.
2. M. Berger. J. Res. Nat. Bur. Stand., **55**, 343 (1955).
3. M. Berger, D. Raso. Radiation Research, **12**, 20 (1960).
4. E. Hayward, J. Hubbell. Phys. Rev., **93**, 955 (1954).
5. J. Perkins. J. Appl. Phys., **26**, 655 (1955).
6. D. Raso. Nucl. Sci. and Engng., **17**, 411 (1963).
7. M. Leimdörfer. Nucl. Sci. and Engng, **17**, 345 (1963).
8. Д. Б. Позднеев. «Атомная энергия», **20**, 317 (1966).
9. Б. П. Булатов. «Атомная энергия», **7**, 369 (1959).

## Взаимная диффузия в системе цирконий — 15 ат. % урана

Л. В. ПАВЛИНОВ

УДК 669.2.01.621.039.544.34

Исследовалась взаимная диффузия в системе цирконий — 15 ат. % урана. Коэффициенты диффузии в высокотемпературной объемноцентрированной фазе определялись при 950—1450°С с использованием  $\alpha$ -излучения урана. Показано, что легирование циркония ураном ведет к снижению диффузионной подвижности во всем исследованном интервале температур и повышение энергии активации. Температурная зависимость коэффициента диффузии урана в цирконии, полученная экстраполяцией параметров диффузии к нулевой концентрации урана, представлена уравнением

$$D = 1,40 \cdot 10^{-4} \exp(-27700/RT) \text{ см}^2/\text{сек.}$$

Характерная особенность диффузии в объемноцентрированных металлах с полиморфными превращениями (Zr, Ti, U) состоит в аномально низких значениях энергии активации и предэкспоненциального множителя в некотором температурном интервале выше температуры превращения [1—9]. Полагают, что аномалии диффузионного процесса обусловлены возникновением дефектов кристаллической решетки, например вакансий.

Исследование диффузии в сплавах на основе циркония может представлять интерес как для выяснения особенностей диффузии в металлах с объемноцентрированной решеткой, так и для изыскания сплавов, обладающих лучшим по сравнению с чистым цирконием комплексом физико-механических свойств.

Взаимная диффузия в системе цирконий — уран исследовалась при концентрациях урана

5—95 ат. % [10]. Следует указать, что результаты этой работы не согласуются с данными по самодиффузии в цирконии. Так, значение энергии активации 52000 кал/г·атом, полученное экстраполяцией к нулевой концентрации урана, существенно отличается от энергии активации самодиффузии в цирконии для температур 900—1200°С [1, 3, 4] (26000—30000 кал/г·атом). Возможно, что это расхождение связано с особенностями диффузии в чистом цирконии и малолегированных сплавах на его основе.

В настоящей работе, являющейся продолжением ранее начатых исследований процесса диффузии в металлах с объемноцентрированной кубической решеткой [2, 11—13], изучалась взаимная диффузия в сравнительно небольшом интервале концентраций урана (до 15 ат. %).

Для определения концентрационной зависимости коэффициента диффузии был использован расчетный метод Матано [14] и соответствующая экспериментальная методика.

Расчетное уравнение для вычисления коэффициента диффузии имеет вид

$$D = -\frac{1}{2t} \cdot \frac{dx}{dc} \int_0^c x dc, \quad (1)$$

где  $t$  — продолжительность диффузионного отжига;  $x$  — направление диффузии;  $c$  — концентрация.

Уравнение (1) справедливо, если

$$\int_0^1 x dx = 0. \quad (2)$$

Из иодидного циркония (99,6%) и сплава циркония с 15 ат. % урана, полученного из урана чистой 99,7% в дуговой печи в атмосфере очищенного аргона, готовили образцы  $8 \times 10 \times 16$  мм. После тщательной подготовки поверхностей приведенные в контакт образцы спекали в вакууме при  $600^\circ\text{C}$  и постоянной нагрузке  $400 \text{ кг/см}^2$  в течение 1 ч. Расчеты показывают, что взаимной диффузией во время спекания можно пренебречь. Спеченные образцы подвергали диффузионным отжигам при  $95\text{--}1450^\circ\text{C}$  в течение 1—100 ч. Отжиг при  $950$  и  $1050^\circ\text{C}$  проводился в трубчатой печи в герметичных кварцевых ампулах, отпаянных при остаточном давлении  $10^{-4}$  мм рт. ст., а при  $1200\text{--}1450^\circ\text{C}$  образцы отжигали в высокотемпературной вакуумной печи при остаточном давлении  $10^{-4}$  —  $10^{-5}$  мм рт. ст. Температура контролировалась платино-платинородовой термопарой с точностью  $\pm 5^\circ\text{C}$ . После диффузионного отжига со стороны циркониевого образца снимались параллельные слои и измерялась активность остатка образца. Толщина снятого слоя измерялась с точностью 2—3 мк. Альфа-излучение образца после снятия слоя измерялось на радиометре Б-2 со сцинтилляционной приставкой. Интегральная  $\alpha$ -активность образца пропорциональна средней концентрации урана в поверхностном слое толщиной 5 мк, поскольку  $\alpha$ -частицы сильно поглощаются материалом образца и измерительная аппаратура, как показали эксперименты, фиксирует только излучение из поверхностного слоя толщиной порядка 5 мк. При выбранной продолжительности отжига ширина диффузионной зоны составляла  $\sim 600$  мк, и поэтому неравномерностью

концентрации в поверхностном слое указанной толщины можно пренебречь. При таких условиях интегральную  $\alpha$ -активность образца можно отождествить с удельной активностью на поверхности.

В таблице приведены измеренные коэффициенты диффузии для различных значений температуры и концентрации урана, а также параметры температурной зависимости коэффициента диффузии — энергия активации ( $\Delta H$ ) и предэкспоненциальный множитель ( $D_0$ ). Из таблицы и графиков зависимости коэффициента диффузии от обратной величины абсолютной температуры (см. рисунок) видно, что  $D$  существенно зависит от концентрации, снижаясь с ее повышением, причем наиболее заметное снижение наблюдается при концентрации до 7—9 ат. % урана. Значение  $\Delta H$  с повышением концентрации урана возрастает, достигает максимального значения при 9 ат. % и при более высоких концентрациях практически остается постоянным.

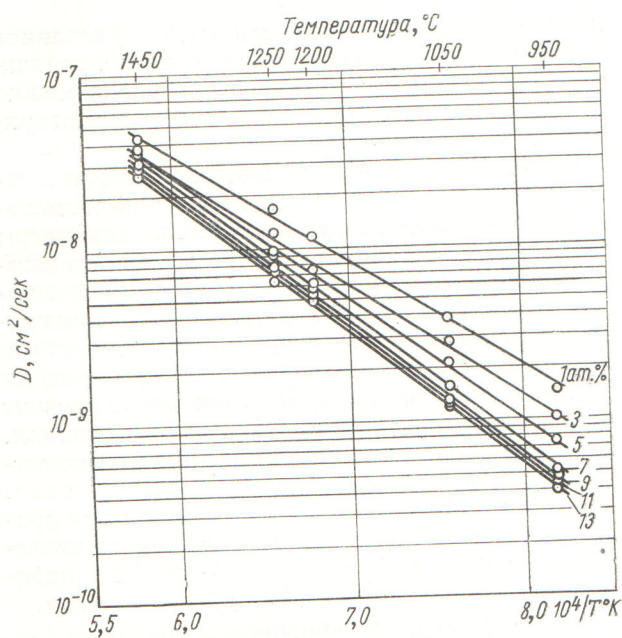
Из известного уравнения

$$D = N_A D_B + N_B D_A, \quad (3)$$

где  $N_A$  и  $N_B$  — относительные концентрации;  $D_A$  и  $D_B$  — парциальные коэффициенты диффузии компонентов  $A$  и  $B$ , следует, что в общем случае коэффициент взаимной диффузии, определяемый по методу Матано, должен сложным образом зависеть от температуры. Тот факт, что экспериментальные значения  $D$  удовлетворяют обычной экспоненциальной температурной зависимости для парциальных коэффициентов диффузии (см. рисунок), указывает на близость значений энергии активации диффузии циркония и урана при любой заданной концентрации в исследованном интервале до 15 ат.%. Близость значений энергии активации диффузии циркония ( $26000\text{--}30000 \text{ кал/г}\cdot\text{атом}$ ) [1, 3, 4, 15] и урана ( $25800 \text{ кал/г}\cdot\text{атом}$ ) [16] в чистом цирконии подтверждена экспериментально.

Коэффициент взаимной диффузии ( $\text{см}^2/\text{сек}$ ), энергия активации и предэкспоненциальный множитель в системе цирконий — 15 ат. % урана

Концентрация урана, ат. %	$D$ при различных температурах, $^\circ\text{C}$					$D_0$ , $\text{см}^2/\text{сек}$	$\Delta H$ , $\text{кал/моль}$
	950	1050	1200	1250	1450		
1	$1,49 \cdot 10^{-9}$	$3,80 \cdot 10^{-9}$	$1,15 \cdot 10^{-8}$	$1,64 \cdot 10^{-8}$	$4,21 \cdot 10^{-8}$	$1,82 \cdot 10^{-4}$	28 400
3	$1,00 \cdot 10^{-9}$	$2,68 \cdot 10^{-9}$	$7,42 \cdot 10^{-9}$	$1,19 \cdot 10^{-8}$	$3,60 \cdot 10^{-8}$	$1,78 \cdot 10^{-4}$	29 300
5	$7,40 \cdot 10^{-10}$	$2,10 \cdot 10^{-9}$	$6,05 \cdot 10^{-9}$	$9,56 \cdot 10^{-9}$	$3,77 \cdot 10^{-8}$	$2,95 \cdot 10^{-4}$	31 200
7	$5,00 \cdot 10^{-10}$	$1,50 \cdot 10^{-9}$	$5,83 \cdot 10^{-9}$	$8,86 \cdot 10^{-9}$	$3,02 \cdot 10^{-8}$	$8,72 \cdot 10^{-4}$	34 800
9	$4,62 \cdot 10^{-10}$	$1,28 \cdot 10^{-9}$	$5,75 \cdot 10^{-9}$	$7,69 \cdot 10^{-9}$	$3,03 \cdot 10^{-8}$	$1,07 \cdot 10^{-3}$	35 700
11	$4,17 \cdot 10^{-10}$	$1,22 \cdot 10^{-9}$	$5,45 \cdot 10^{-9}$	$7,16 \cdot 10^{-9}$	$2,80 \cdot 10^{-8}$	$1,00 \cdot 10^{-3}$	35 700
13	$4,08 \cdot 10^{-10}$	$1,18 \cdot 10^{-9}$	$4,97 \cdot 10^{-9}$	$6,60 \cdot 10^{-9}$	$2,63 \cdot 10^{-8}$	$9,35 \cdot 10^{-4}$	35 600



Температурная зависимость коэффициента диффузии при различных концентрациях урана.

Из соотношения (3) следует, что если концентрация одного компонента, например  $B$ , стремится к нулю, то измеренное значение  $D$  соответствует коэффициенту диффузии компонента  $B$  в  $A$ . Тогда графическая экстраполяция полученных зависимостей  $D$ ,  $\Delta H$  и  $D_0$  от концентрации к нулевой концентрации урана позволит вычислить параметры диффузии урана в цирконии. Таким образом, было получено следующее уравнение температурной зависимости коэффициента диффузии урана в цирконии:

$$D = 1,40 \cdot 10^{-4} \exp(-27700/RT) \text{ см}^2/\text{сек}. \quad (4)$$

Найденные параметры диффузии ( $\Delta H = 27700 \text{ кал/г} \cdot \text{атом}$  и  $D_0 = 1,40 \cdot 10^{-4} \text{ см}^2/\text{сек}$ ) близки соответствующим величинам для самодиффузии в  $\beta$ -цирконии при температурах  $900-1250^\circ\text{C}$ , что указывает на одинаковый механизм диффузии в чистом цирконии и сплавах с низкой концентрацией урана. Вместе с тем было показано [2], что на процесс диффузии в чистом цирконии существенное влияние оказывают дефекты кристаллической решетки (поверхности раздела, дислокации, вакансии и т. д.), возникающие при полиморфном превращении. Очевидно, такие дефекты должны также влиять и на диффузию в сплавах циркония с ураном. Однако в чистом цирконии влия-

ние избыточных дефектов уменьшается с повышением температуры, о чем свидетельствует повышение средних значений энергии активации от  $26000-28000 \text{ кал/г} \cdot \text{атом}$  при  $900-1200^\circ\text{C}$  до  $38000 \text{ кал/г} \cdot \text{атом}$  при  $1100-1500^\circ\text{C}$  [2, 15]. Подобное повышение энергии активации наблюдается при легировании циркония ураном до 7—9 ат. % и, очевидно, также вызвано устранением указанных выше дефектов. При увеличении концентрации урана до 13 ат. % энергия активации и коэффициент диффузии не изменяются в пределах ошибки эксперимента. Поэтому для исследованного интервала концентраций содержание урана 7—9 ат. % оказывается оптимальным для упрочнения циркония с объемноцентрированной кубической решеткой.

Поступила в Редакцию 13/VI 1966 г.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Е. В. Борисов и др. *Металлургия и металловедение*. М., Изд-во АН СССР, 1958, стр. 258.
2. В. С. Ляшенко, В. Н. Быков, Л. В. Павлинов. *«Физика металлов и металловедение»*, 8, 362 (1959).
3. Г. Б. Федоров, В. Д. Гулякин. *Металлургия и металловедение чистых металлов*. Сб. трудов МИФИ. Вып. 1., М., Атомиздат, 1959, стр. 170.
4. D. Volokoff, S. May, Y. Adda. *C. r. Acad. Sci.*, 251, 2341 (1960).
5. J. Federer, T. Lundy. *Trans. AIME*, 227, 592 (1963).
6. A. Mortlock, D. Tomlin. *Phil. Mag.*, 4, 628 (1959).
7. J. Murdock, T. Lundy, E. Stansbury. *Acta Metallurgica*, 12, 1033 (1964).
8. А. А. Бочвар, В. С. Кузнецова, В. С. Сергеев. В кн. *«Труды Второй международной конференции по мирному использованию атомной энергии. Женева, 1958»*. Докл. советских ученых. Т. 3. М., Атомиздат, 1959, стр. 370.
9. Y. Adda, A. Kirianenko. *J. Nucl. Materials*, 1, 120 (1959).
10. Y. Adda, J. Philibert. *Metallurgy and Fuels*. Vol. 2, Ser V, 137 (1959).
11. В. С. Ляшенко, В. Н. Быков, Л. В. Павлинов. *«Физика металлов и металловедение»*, 10, 756 (1960).
12. В. С. Ляшенко, В. Н. Быков, Л. В. Павлинов. Там же, стр. 727.
13. Л. В. Павлинов, В. Н. Быков. Там же, 19, 3 (1964).
14. С. Матао. *Japan J. Physics*, 8, 109 (1933).
15. Л. В. Павлинов. *Кандидатская диссертация*. Физико-энергетический институт, 1966.
16. Л. В. Павлинов, А. И. Наконечников, В. Н. Быков. *«Атомная энергия»*, 19, 521 (1965).