

Рис. 2. Энергетические спектры нейтронного излучения отработавшего ($UO_2 - ThO_2$)-топлива при выгорании 0,50 (1); 1,0 (2), 1,0 fisa (3) и $\bar{E}_n = 2,35; 2,17$ и $2,21$ МэВ соответственно. Для кривой 3 $t_{\text{выд}} = 10$ лет

ченной для уранового топлива [4]. Для выдержанного топлива степенной показатель несколько меньше и меняется в пределах 3,3—3,0 для выдержки 0—10 лет.

При выгорании до 0,6 fisa определяющим является вклад ^{238}Pu , при большом выгорании постепенно начинает преобладать нейтронное излучение ^{244}Cm . Парциальные выходы отдельных нуклидов для уран-ториевого и уранового топлива при близких значениях выгорания различаются очень сильно. Примерно на два порядка отличается и суммарный выход нейтронов Y_n . Очевидно, это объясняется различным исходным составом топлива, прежде всего неодинаковым процентным содержанием в нем ^{235}U и ^{238}U . В топливе ВВЭР на долю ^{238}U приходится ~97%, для топлива AVR это значение примерно на два порядка меньше. Соответственно в топливе AVR значительно больше вклад реакций на ^{235}U , ведущих к образованию ^{238}Pu , и только при большом выгорании начинает доминировать нейтронное излучение ^{244}Cm и относительный вклад нейтронов ^{238}Pu уменьшается. Сам торий и нуклиды, образующиеся при его облучении в реакторе, не дают значительного нейтронного излучения. Парциальные нейтронные выходы ^{232}U и ^{233}U при выгорании 0,8—1,0 fisa не превышают 1,0% общего выхода Y_n . Накопление нуклидов цепочки распада ^{232}U увеличивает при таком выгорании Y_n незначительно — на 3—5%.

Исходное содержание ^{235}U и ^{238}U будет определять интенсивность нейтронного излучения отработавшего уран-

ториевого топлива и в случае замкнутого ториевого цикла. Так, для равновесного цикла реактора HTGR, в котором используется регенерированный уран и подпитка ^{235}U , можно ожидать по нашим оценкам, что для топлива с первоначальным соотношением $^{232}Th : ^{233}U : ^{235}U : ^{238}U = 92,4 : 2,4 : 4,7 : 0,5$ [6] и выгоранием ~1,0 fisa выход нейтронов при $t_{\text{вых}} = 0$ составит $\sim 9,4 \cdot 10^3$ нейтр./с·кг U — Th. Наличие в топливе ^{233}U и накопление ^{232}U при повторном использовании в реакторе уранового регенератора практически не влияют на интенсивность нейтронного излучения (отработавшего) топлива.

Расчеты показали, что при увеличении выгорания существенно изменяются и энергетические спектры нейтронов (рис. 2). Заметно меняется энергетический спектр нейтронного излучения $UO_2 - ThO_2$ -топлива и после его выгрузки из реактора. С течением времени возрастает относительный вклад нейтронов (αn)-реакций и жесткость спектра увеличивается. Напомним, что спектр нейтронов уранового топлива энергетических реакторов, наоборот, по мере выдержки смягчается [5].

Применение в ториевом цикле вместо окисных соединений урана и тория их карбидов не должно повлечь за собой заметного изменения уровня нейтронного излучения топлива, так как выход (αn)-реакций на толстых мишенях из UC и UO_2 различается не более чем на 30—50% при $E_\alpha = 5,0 \div 6,5$ МэВ [7, 8].

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Проценко А. Н. — Атомная техника за рубежом, 1978, № 1, с. 3.
2. Юрова Л. Н. и др. — Атомная энергия, 1978, т. 45, вып. 1, с. 21.
3. Wenzel U., Monteiro dos Santos A. In: Proc. 4 Intern. Transplutonium Elements Symp. N.-H. Publ. Comp. Amsterdam — N.Y., 1976, p. 413.
4. Шиманская Н. С. — Атомная энергия, 1980, т. 49, вып. 5, с. 316.
5. Шиманская Н. С. — Там же, с. 315.
6. Hebel L. e.a. — Rev. Mod. Phys., 1978, v. 50, N 1, Part II, p. 1.
7. Liskien H., Paulsen A. — Atomkernenergie, 1977, Bd 30, S. 59.
8. West D., Sherwood A. Neutron Yields from (αn)-reactions in the Light Elements. Rep. AERE-R 9195, 1978.

Поступило в Редакцию 23.06.80

УДК 539.17.6:546.27:546.34

Применение метода ядер отдачи для изучения распределения водорода в титане и сплаве

ГУСЕВА М. И., СУЛЕМА В. Н., ЧЕРНОВ И. П., ЧЕЛНОКОВ О. И., ЧЕРДАНЦЕВ Ю. П., ШАДРИН В. Н.

В последние годы все шире используются ядерно-физические методы для изучения поведения водорода в материалах первой стенки термоядерного реактора. Эти методы [1—6], основанные на особенностях взаимодействия заряженных частиц с ядрами водорода, позволяют определять интегральное содержание и дифференциальное распределение водорода в тонких приповерхностных слоях материалов, а в кристаллических структурах с учетом эффекта каналирования и местоположение атомов в решетке.

Исследованиями приповерхностных радиационных эффектов при взаимодействии горячей плазмы с поверхностью первой стенки термоядерного реактора установлено, что основным процессом, ответственным за разрушение поверхности, является распыление материала стен-

ки ионами нуклидов водорода и гелия. В энергетическом диапазоне 0,1—1 кэВ, представляющем наибольший интерес, среди материалов с относительно низким атомным номером наименьшую скорость распыления имеет титан [7].

В настоящей работе приводятся результаты исследования поведения водорода в приповерхностных слоях титана и сплава Ti — Al — V в зависимости от температуры внедрений этой примеси, а также обсуждаются аналитические характеристики метода ядер отдачи [3—5], применяемого для исследования образцов.

Физические основы и аналитические характеристики метода. Метод ядер отдачи основан на регистрации ядер примеси, вылетающих из анализируемого слоя образца

в результате упругих соударений с ускоренными ионами [3]. Из кинематики упругого рассеяния следует, что ядра отдачи вылетают в диапазон углов $0-90^\circ$, поэтому для анализа образцов, толщина которых t превышает пробег ионов R , необходимо использовать геометрию «на отражение» (рис. 1, а). Если же $t < R$, то можно использовать геометрию как «на пролет» (рис. 1, б), так и на отражение. Энергия ядер отдачи, вылетающих из тонкого поверхностного слоя образца под углом θ по отношению к направлению падающего пучка, определяется выражением

$$E = kE_0; \quad k = 4m_1m_2 \cos^2 \theta / (m_1 + m_2)^2, \quad (1)$$

где m_1 — масса бомбардирующего иона; m_2 — масса ядра отдачи; k — кинематический фактор; E_0 — энергия иона. Из выражения (1) следует, что при фиксированных E_0 и θ значение E максимально, если $m_1 = m_2$. С этой точки зрения для определения содержания водорода наиболее выгодно использовать ускоренные протоны. Однако в этом случае трудно отделить полезную информацию от фона, что вынуждает применять для анализа ионы, масса которых больше массы ядер водорода. Аналитические характеристики метода (чувствительность, разрешение по глубине, толщина анализируемого слоя и др.) зависят от типа и энергии бомбардирующих ионов. Рассмотрим влияние этих факторов на некоторые характеристики метода.

Массовое разрешение метода определяется энергетическим разрешением спектрометра δE и ΔE — разностью между энергиями вылетающих из бесконечно тонкого поверхностного слоя образца под углом θ ядер отдачи с массами, отличающимися на единицу а. е. м.:

$$\Delta E = 4m_1E_0 \cos^2 \theta \left[\frac{m_2}{(m_1 + m_2)^2} - \frac{m_2 + 1}{(m_1 + m_2 + 1)^2} \right]. \quad (2)$$

Ясно, что надежное разделение изотопов будет только тогда, когда $\Delta E > \delta E$. В случае $\delta E = \text{const}$, массовое разрешение растет с ростом E_0 и уменьшением угла регистрации. Разрешения зависят от массы бомбардирующего иона (рис. 2). Наиболее выгодные условия изотопного анализа водорода реализуются, если в качестве бомбардирующих ионов использовать ионы массой 4–7 а. е. м.

Разрешение по глубине dt зависит от ионизационных потерь бомбардирующих ионов и ядер отдачи в образце, энергетического разрешения спектрометра и геометрии эксперимента. В геометрии на отражение разность между энергиями ядер отдачи dE , вылетающих из слоя dt , расположенного на глубине t , определяется выражением

$$dE = dt \left[\frac{k}{\cos \theta_1} \bar{S}_1 + \frac{1}{\cos \theta_2} \bar{S}_2 \right], \quad (3)$$

аналогично в геометрии на пролет

$$dE = dt \left[\frac{k}{\cos \theta_1} \bar{S}_1 - \frac{1}{\cos \theta_2} \bar{S}_2 \right]. \quad (4)$$

Здесь \bar{S} — тормозные способности, усредненные по интервалу dt . Из этих соотношений следует, что разрешение по глубине увеличивается с увеличением тормозной способности среды и углов θ_1 и θ_2 . Кроме того, при прочих равных условиях разрешение лучше в геометрии на отражение, нежели в геометрии на пролет. Ясно поэтому, что для измерения профилей концентрации примеси выгодно

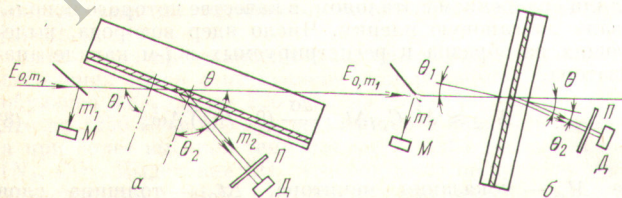


Рис. 1. Геометрия эксперимента на отражение (а) и на пролет (б): М — монитор; П — поглотитель; Д — детектор

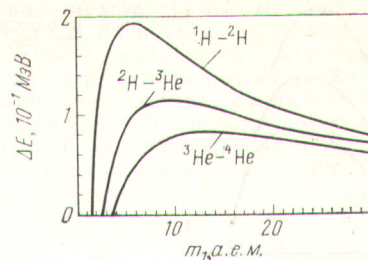


Рис. 2. Зависимость массового разрешения метода от массы бомбардирующего иона при $\theta = 30^\circ$, $E_0 = 1$ МэВ

использовать геометрию на отражение с возможно большими углами θ_1 и θ_2 и бомбардировать тяжелыми ионами, поскольку S пропорциональна квадрату заряда иона. В таблице приведены значения dt , вычисленные при $\theta_1 = \theta_2 = 70^\circ$, $dE = 40$ кэВ и $E_0 = 15$ МэВ. В геометрии же на пролет существует такой угол регистрации θ , при котором значение dE становится минимальным. При определении содержания водорода в тонких образцах ($t < R$) это обстоятельство можно использовать для увеличения чувствительности метода, поскольку вся полезная информация концентрируется в минимальном числе каналов анализатора, а отношение сигнал/фон увеличивается.

Толщина анализируемого слоя $t_{\text{макс}}$ зависит в общем случае от энергии и заряда бомбардирующих ионов, атомного номера матрицы и геометрии эксперимента. Для заданного типа ионов и их энергии максимальная толщина достигается при углах θ_1 и θ_2 , удовлетворяющих соотношению

$$\cos(\theta_1 + \theta_2) \sin \theta_2 \left(1 - \frac{E_{\text{п}}}{kE_1} \right) = 2n \sin(\theta_1 + \theta_2) \cos \theta_2, \quad (5)$$

где n — показатель степени в аппроксимации $R = AE_{\text{п}}$; $E_{\text{п}}$ — порог регистрации ядер отдачи; kE_1 — энергия ядра отдачи после соударения с ионом. Например, при энергии ионов азота 16 МэВ, $\theta_1 = 60^\circ$ и $\theta_2 = 78^\circ$ толщина анализируемого слоя в алюминии составляет 3 мкм.

Предел обнаружения метода представляет собой то минимальное число примесных атомов, которое может быть достоверно установлено в результате анализа. Очевидно, что этот предел с точностью до константы совпадает с выходом реакции, используемой для анализа. Выражение для выхода имеет вид

$$Y(\theta) \approx \int_0^t n(x) \frac{d\sigma}{d\omega}(x, \theta) dx = \int_{E_1}^{E_0} n(E) \frac{d\sigma}{d\omega}(E, \theta) \frac{dE}{|S|}. \quad (6)$$

Здесь $d\sigma/d\omega$ — сечение упругого рассеяния ядер примеси; t — толщина анализируемого слоя; $n(x)$ — распределение примеси по глубине слоя. Для выбора оптимального угла регистрации ядер примеси необходимо в совокупности с другими данными знать зависимость выхода от θ . На

Разрешение метода по глубине в образцах, Å *

| Ион | Al | Ni | Ta |
|-----------------|------|------|------|
| Альфа-частица | 3160 | 1190 | 1040 |
| ¹² C | 640 | 270 | 250 |
| ¹⁴ N | 550 | 250 | 230 |
| ¹⁶ O | 490 | 210 | 200 |

* 1 Å = 10⁻¹⁰ м.

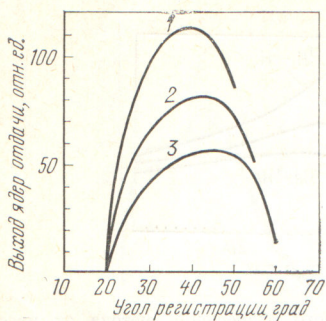


Рис. 3. Зависимость выхода от угла регистрации ядер водорода для ^{16}O (1); ^{14}N (2); ^{12}C (3)

рис. 3 представлены результаты расчета этой зависимости для ионов ^{16}O , ^{14}N и ^{12}C энергией 15 МэВ, сделанного при следующих допущениях: образец — Al; порог регистрации — 1 МэВ (задание порога регистрации связано с необходимостью применять в процессе анализа поглотитель для дискриминации фона); $n(x) = \text{const}$; $(d\sigma/d\omega)(E, \theta)$ — резерфордское сечение рассеяния; $S = aE + b$. С учетом этих приближений выражение (6) преобразуется таким образом:

$$Y = nC(\theta) \frac{1}{b} \left[\frac{a}{b} \ln \frac{S(E_0)E_1}{S(E_1)E_0} + \frac{1}{E_1} - \frac{1}{E_0} \right], \quad (7)$$

где $C(\theta) = 20,738 \left(\frac{zZ}{2}\right)^2 \left(1 + \frac{m_1}{m_2}\right)^2 / \cos^3 \theta$, мб/ср ($1 \text{ б} = 10^{-28} \text{ м}^2$). При использовании для анализа ионов азота энергией 15 МэВ предел обнаружения равен 10^{14} ядер/см².

Методика эксперимента и результаты анализа. Экспериментальную часть работы проводили на 120-см циклотроне НИИ ядерной физики при Томском политехническом институте. В качестве анализируемых частиц были использованы ионы азота энергией 16 МэВ. Энергетический разброс пучка составлял 0,7%, ток пучка перед входными

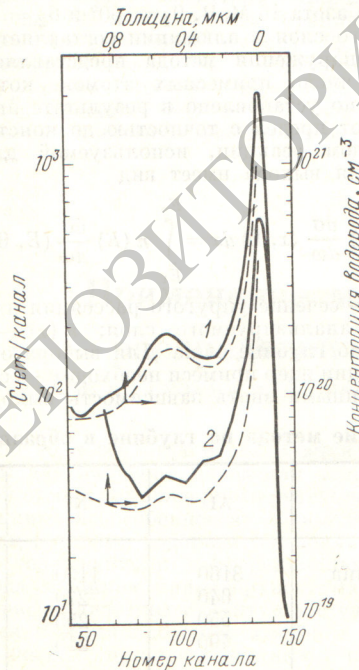


Рис. 4. Энергетические спектры (—) и распределение водорода (---), имплантированного в титан энергией 30 кэВ и дозой 10^{16} ион/см² при температуре 25 (1) и 200 °С (2)

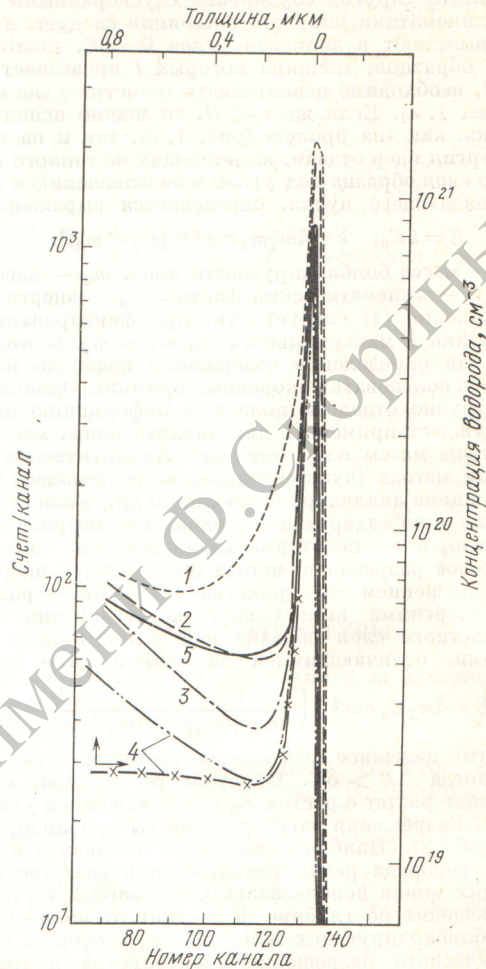


Рис. 5. Энергетические спектры и распределение водорода, имплантированного в образцах Ti — Al — V энергией 30 кэВ и дозой 10^{16} ион/см² при температуре 25 (2), 200 (3), 400 (4) и 600 °С (5); 1 — спектр от исходного образца. Распределение водорода показано для спектра 4 (---)

коллиматорами — 1 мкА. Сфокусированный пучок ионов попадал на исследуемый образец, расположенный в центре камеры рассеяния. Ядра водорода регистрировались кремниевым поверхностно-барьерным детектором с энергетическим разрешением 30 кэВ. Фон от упругорассеянных на ядрах матрицы ионов азота дискриминировался лавсановой пленкой толщиной 12 мкм. Сигналы с детектора подавались на многоканальный анализатор типа LP-4840. Пучок мониторировался путем регистрации упругорассеянных ионов на вращающейся мишени (тонкий слой золота на кремниевой подложке).

Количественное содержание водорода в образцах определяли сравнением с эталоном, в качестве которого использовали лавсановую пленку. Число ядер водорода, вылетающих из образца и регистрируемых в i -м канале анализатора,

$$N_{oi} \approx M_0 C_{oi} \Delta t_{oi} \frac{d\sigma}{d\omega}(\theta, E_{oi}) \Delta \omega, \quad (8)$$

где M_0 — показания монитора; Δt_{oi} — толщина слоя в образце, ядра водорода из которого регистрируются в i -м канале анализатора; C_{oi} — концентрация водорода в этом слое образца; $d\sigma/d\omega$ — сечение вылета ядер водо-

рода. Аналогичное выражение можно записать для эталона:

$$N_{\partial i} \sim M_{\partial} C_{\partial} \Delta t_{\partial i} \frac{d\sigma}{d\omega}(\theta, E_{\partial i}) \Delta \omega. \quad (9)$$

Используя выражения (8) и (9), получаем

$$C_{oi} = C_{\partial} \frac{M_{\partial}}{M_o} \frac{\Delta t_{\partial i}}{\Delta t_{oi}} \frac{N_{oi}}{N_{\partial i}}. \quad (10)$$

Отношение $\Delta t_{\partial i}/\Delta t_{oi} \neq 1$, поскольку образец и эталон изготовлены из разных материалов. Используя соотношение (3), получаем

$$C_{oi} = C_{\partial} \frac{M_{\partial}}{M_o} \frac{kS_N(E_{oi}) + S_H(kE_{oi})}{kS_N(E_{\partial i}) + S_H(kE_{\partial i})} \frac{N_{oi}}{N_{\partial i}}, \quad (11)$$

где $S_N(E_{oi})$ и $S_N(E_{\partial i})$ — тормозные способности образца и эталона для ионов азота; $S_H(kE_{oi})$ и $S_H(kE_{\partial i})$ — то же для ядер водорода.

На разрешение метода по глубине в условиях конкретного эксперимента влияют энергетическое разрешение спектрометра, энергетический разброс пучка ионов, флуктуации потерь энергии ионов и ядер отдачи в образце и поглотителе и др. Совокупное влияние этих факторов можно оценить по полуширине пика в энергетическом спектре, который соответствует водороду, локализованному на поверхности образца. Этот пик, как правило, имеет форму, типичную для спектров продуктов ядерных реакций, вылетающих из мишени, потери в которой меньше, чем собственное разрешение спектрометра, т. е. водород на поверхности локализуется в слое, толщина которого меньше, чем разрешение метода по глубине. В спектрах водорода от образцов титана и сплава полуширина пиков составляет 85—100 кэВ, что соответствует разрешению по глубине 1050—1200 Å близ поверхности. При увеличении глубины анализируемого слоя разрешение ухудшается.

Были проанализированы образцы титана и сплава с внедренным в них водородом. Имплантацию ионов H^+ в образцы проводили в ионном ускорителе ИЛУ-1 (рис. 4). Только для случая имплантации при комнатной температуре наблюдается повышенное содержание водорода в титане на глубине, соответствующей пробегу ионов водорода в титане энергией 30 кэВ. В остальных случаях (рис. 5) водород по глубине анализируемого слоя распределен равномерно, а его содержание составляет $(1 \div 2) \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$. Содержание водорода, локализованного на поверхности образцов, уменьшается с увеличением температуры имплантации, а с 400 °С оно практически остается неизменным. Интересно, что содержание поверхностного водорода в исходных образцах выше, чем в образцах, в которые был внедрен водород.

В заключение авторы приносят благодарность сотрудникам службы циклотрона НИИ ядерной физики при Томском политехническом институте за бесперебойную работу ускорителя.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Leich D., Tombrello T. — Nucl. Instr. Meth., 1973, v. 108, p. 67.
2. Ligeon E., Guivarch A. — Rad. Eff., 1974, v. 22, p. 101.
3. Чернов И. П. и др. Авт. св. № 533 156. Бюл. изобрет., 1979, № 2, с. 253.
4. L'Ecuyer J. e.a. — J. Appl. Phys., 1976, v. 47, N 4, p. 381.
5. Чернов И. П., Козырь В. В., Матусевич В. А. — Атомная энергия, 1976, т. 41, вып. 1, с. 51.
6. Ziegler J. e.a. — Nucl. Instr. Meth., 1978, v. 149, p. 19.
7. Guseva M. I., Martinenko Yu. V. — J. Nucl. Mater., 1976, v. 63, p. 24.

Поступило в Редакцию 30.06.80

УДК 621.039.542:541.123.56

Выделение газов из UO_2 при нагреве в вакууме

АНДРИЕВСКИЙ Р. А., ГАЛКИН Е. А., МАКЕЕВ А. В., ХРОМОНОЖКИН В. В.

Наличие газообразующих примесей (N_2 , H_2 , O_2 , C) в делящихся материалах, используемых в качестве ядерного топлива, усложняет изготовление и эксплуатацию твэлов [1]. В связи с этим изучали влияние температуры, содержания азота и углерода, а также длительности пребывания обезгаженной UO_2 на воздухе на выделение газов из UO_2 при нагреве в вакууме 10^{-4} — 10^{-6} Па.

Исследованные образцы представляли собой цилиндрические таблетки $UO_{2,005}$ плотностью 97—98% теоретической, полученные обычными способами порошковой металлургии. Содержание азота и углерода в различных партиях образцов изменялось в интервале $4,0 \cdot 10^{-3}$ — $1,2 \cdot 10^{-1}$ и $5,0 \cdot 10^{-5}$ — $3,0 \cdot 10^{-3}$ мас. % соответственно. Выделение газов из UO_2 изучали на высоковакуумной высокотемпературной установке с масс-спектрометрическим контролем состава газа по методикам, подробно описанным ранее [2, 3].

На рис. 1 представлена зависимость удельной скорости выделения газов q от времени при равномерном нагреве образцов $UO_{2,005}$ до 2200 К. Из этого рисунка следует, что до 1250 К из $UO_{2,005}$ выделяется в основном водород, а при более высокой температуре — газ с массой $m = 28$ (N_2 , CO). Выделение CO_2 и паров воды полностью заканчивается при 1200 К; оно значительно меньше выделения водорода и газа с массой $m = 28$ (N_2 , CO). Попытка расшифровать спектр газа с массой $m = 28$ (N_2 , CO) и разделить вклад азота и CO_2 в общее газовыделение оказалась

безуспешной из-за больших погрешностей измерения амплитуды соответствующих пиков. Скорость газовыделения водорода, CO_2 и паров воды максимальна в интервале температуры 670—800 К. Скорость выделения газа с массой $m = 28$ (N_2 , CO) носит немонотонный характер и имеет несколько максимумов. Немонотонный характер скорости газовыделения отражает сложность процесса дегазации и может быть связан с различным расположе-

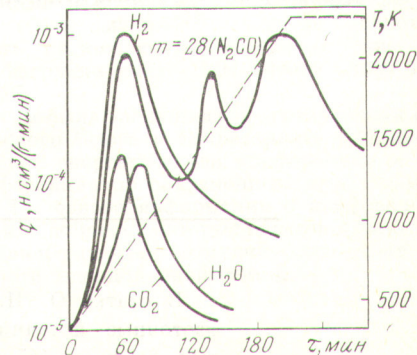


Рис. 1. Состав выделяющихся из UO_2 газов: - - - - изменение температуры образца в процессе нагрева; — — — удельная скорость газовыделения