

УДК 539.249.3

ТЕХНИЧЕСКАЯ ФИЗИКА

Е. С. БЕКМУХАМБЕТОВ, Д. К. ДАУКЕЕВ, Ж. Р. ЖОТАБАЕВ,
академик АН КазССР Ш. Ш. ИБРАГИМОВ, Н. А. РЕУТОВА

**ЭФФЕКТ ТОРМОЖЕНИЯ ДИФФУЗИИ ОСКОЛОЧНОГО КСЕНОНА
В МОЛИБДЕНЕ ПРИ БОЛЬШИХ ДОЗАХ ОБЛУЧЕНИЯ
ОСКОЛКАМИ ДЕЛЕНИЯ**

Изучение диффузии различных элементов в твердых телах в условиях образования дефектов под действием облучения и выяснение закономерностей взаимодействия диффундирующих атомов с созданными дефектами представляет значительный интерес для решения задач радиационной физики и радиационного материаловедения. Из большого круга задач такого характера слабо изучен вопрос о диффузии элементов, образующихся при делении тяжелых ядер, в условиях интенсивного образования дефектов нейтронами и самими осколками деления. В связи с разработкой высокотемпературных тепловыделяющих элементов с большим ресурсом работы особый интерес представляет изучение диффузии газовых осколков деления в тугоплавких металлах. Такими тепловыделяющими элементами, в частности, являются термоэмиссионные преобразователи (т.э.п.), в которых топливная композиция находится в непосредственном контакте с материалом эмиттера (W, Re, Mo), вследствие чего осколки деления в процессе работы т.э.п. внедряются в материал эмиттера.

Целью настоящей работы явилось изучение особенности миграции осколочного ксенона в типичном эмиттерном материале — молибдене в широком интервале температур и доз облучения осколками деления и определение параметров диффузии.

В работе использовались образцы фольги толщиной 100 мкм из поликристаллического молибдена чистотой 99,95%. Осколки деления урана внедрялись в образцы путем облучения их в контакте со слоем делящегося материала в канале реактора ВВР-К при температуре не выше 100°С.

Для выяснения влияния радиационных дефектов на диффузионную подвижность внедренных атомов ксенона изучение параметров диффузии проводилось при различных дозах облучения осколками деления, что достигалось изменением длительности облучения сборок в реакторе при одинаковой толщине делящегося слоя. При этом за величину дозы осколков деления принималась их осредненная по глубине внедрения концентрация \bar{N}_\ominus (количество осколков в 1 см³). Заметим, что влияние дефектов, созданных нейтронами в процессе облучения, в работе не учитывалось, так как при наших условиях их количество в тонком слое образца, насы-

Таблица 1

Параметры диффузии ксенона в Мо при различных дозах облучения осколками деления урана

\bar{N}_\ominus , см ⁻³	$D_0 \cdot 10^8$, см ² /сек	Q, ккал/моль	\bar{N}_\oplus , см ⁻³	$D_0 \cdot 10^8$, см ² /сек	Q, ккал/моль
3.10 ¹⁵	3,1 ^{+2,0} _{-2,4}	39,7 ^{+1,6} _{-2,2}	3.10 ¹⁷	0,08 ^{+0,04} _{-0,03}	30,3 ^{+2,0} _{-0,4}
1.10 ¹⁷	0,8 ^{+0,2} _{-0,5}	36,8 ^{+3,7} _{-5,4}	3.10 ¹⁸	0,03 ^{+0,01} _{-0,01}	29,4 ^{+1,4} _{-0,8}

щенного атомами ксенона, на несколько порядков меньше числа дефектов, созданных осколками деления.

Перед облучением образцы молибдена подвергались рекристаллизационному отжигу в вакууме $\sim 1 \cdot 10^{-6}$ мм рт. ст. при температуре 1600° в течение 3 час. После отжига образцы имели равноосную структуру с размером зерна около 20 мкм. Часть облученных образцов, насыщенных осколками деления, подвергалась диффузионному отжигу в течение 50—70 час. в вакууме при температуре 1100 — 1700° . Температура образцов измерялась оптическим пирометром ЭОП-66.

Распределение внедренных радиоактивных атомов ^{133}Xe по глубине в образцах определялось γ -спектроскопическим методом. Коэффициент диффузии D ксенона определялся, как и в работе (1), сравнением экспериментально найденного распределения атомов Xe по глубине после диффузионного отжига с расчетным распределением, полученным в результате решения одномерного уравнения диффузии с начальными и граничными условиями, соответствующими условиям эксперимента.

На рис. 1 приведены зависимости коэффициента диффузии D от температуры при различных дозах облучения осколками деления. Видно, что для всех \bar{N}_0 эти данные удовлетворительно описываются формулой Аррениуса

$$D = D_0 \cdot \exp(-Q/kT)$$

(сплошные прямые на рис. 1).

В табл. 1 указаны полученные при этом методом наименьших квадратов значения предэкспоненциального множителя D_0 , энергии активации Q и точности их определения.

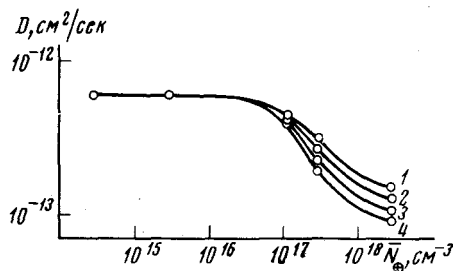


Рис. 2. Нормированная зависимость коэффициента диффузии ксенона в Мо от дозы облучения осколками при различных температурах отжига ($^\circ\text{C}$): 1 — 1280 , 2 — 1380 , 3 — 1480 , 4 — 1580

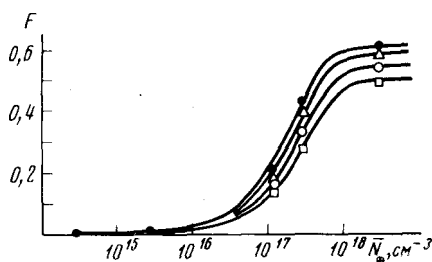


Рис. 3. Зависимость степени захвата k атомов ксенона от дозы облучения осколками деления при различных температурах отжига (сверху вниз): 1280° , 1380° , 1480° , 1580°C

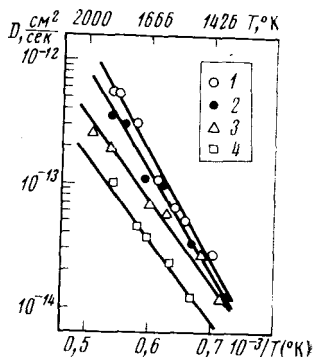


Рис. 1. Температурная зависимость коэффициента диффузии ксенона в Мо при различных дозах облучения осколками деления (см^{-3}): 1 — $3 \cdot 10^{15}$, 2 — $1 \cdot 10^{17}$, 3 — $3 \cdot 10^{17}$, 4 — $3 \cdot 10^{18}$

На рис. 2 приведены зависимости D от дозы осколков деления при различных температурах, нормированные при малых дозах к значению D при $T=1580^\circ$. Из этих зависимостей видно, что с увеличением дозы \bar{N}_0 , начиная примерно с 10^{16} см^{-3} , коэффициент диффузии уменьшается, причем это уменьшение тем сильнее, чем больше температура диффузионного отжига. Следует отметить, что полученные нами значения энергии активации заметно меньше известных значений Q для объемной диффузии инертных газов в твердых телах (2). Причиной этого могут быть как эф-

фект Оверхаузера (³), так и преимущественная диффузия атомов Хе по межзеренным границам.

Обнаруженный нами эффект уменьшения D с увеличением дозы облучения осколками деления, по-видимому, связан с захватом атомов ксенона ловушками. Этими ловушками могут быть, например, вакансионные поры, образовавшиеся в материале в процессе диффузионного отжига в результате слияния вакансий, созданных при облучении осколками деления.

Оставляя пока открытым вопрос о природе улавливающих центров, опишем феноменологически явление уменьшения D с увеличением \bar{N}_\oplus . Согласно (⁴), коэффициент диффузии непосредственно связан со среднеквадратичным перемещением атома $\langle X^2 \rangle$ за время t соотношением

$$D = \langle X^2 \rangle / t.$$

Захват атомов ксенона ловушками приведет к уменьшению перемещения X в K раз, а значит, и к уменьшению D в K^2 раз.

Очевидно, при малых дозах облучения осколками количество радиационных дефектов, а следовательно, число улавливающих центров и атомов ксенона, незначительно и поэтому стекание газовых атомов в вакансионные поры и образование газовых пузырей маловероятно. В этом случае эффект торможения диффузии пока еще отсутствует и измеренный D равен практически истинному коэффициенту диффузии ксенона в молибдене ($D_{\text{ист}}$ без ловушек). Начиная с некоторых доз облучения, в нашем случае с $\sim 10^{16}$ см⁻³, становится вероятным процесс попадания атомов ксенона в поры (K увеличивается) и кажущийся коэффициент диффузии $D = D_{\text{ист}} / K^2$ уменьшается.

Процесс захвата атомов ксенона можно рассматривать и как уменьшение числа атомов, принимающих участие в диффузии. Тогда целесообразно ввести параметр F , характеризующий степень захвата, меняющийся от 0, когда нет захвата, до 1, когда все атомы ксенона захватываются ловушками. Легко показать, что $K = 1 / (1 - F)$. Тогда для зависимости D от дозы можно получить другое выражение:

$$D = D_{\text{ист}} (1 - F)^2.$$

На рис. 3 приведены вычисленные из полученных нами соотношений Аррениуса значения F в зависимости от дозы облучения для различных температур отжига.

Оказалось, что полученные зависимости хорошо описываются формулой (см. сплошные кривые на рис. 3)

$$F = F_0 (1 - e^{-\alpha \bar{N}_\oplus}),$$

где α можно из соображения размерности интерпретировать как эффективный объем ловушек, созданных в среднем одним осколком деления.

Сравнение значений α , полученных из зависимостей $F(\bar{N}_\oplus)$ при различных T , показало, что α растет линейно с температурой. Такая зависимость позволяет считать, что эффективный объем ловушек, которыми, по нашему предположению, являются вакансионные поры, должен расти с температурой. Этот результат находится в согласии с известными представлениями о поведении микропор с температурой.

Институт ядерной физики
Академии наук КазССР
Алма-Ата

Поступило
25 VII 1974

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

¹ R. Nagasaki, S. Kawasaki, J. Nuclear Materials, v. 19, 90 (1966). ² P. C. Бернс, А. Т. Керрис и др., Распухание облученного урана и диффузия инертного газа в нем, Тр. II Международн. конфер. по мирному использованию атомной энергии, т. 6, 1959, стр. 325. ³ П. Шьюмон, Диффузия в твердых телах, 1966. ⁴ Дж. Маннинг, Кинетика диффузии атомов в кристаллах, М., 1971.