



Ордена Ленина и ордена Октябрьской Революции

Институт атомной энергии

им. И. В. Курчатова

В.Г. Гордеев, В.А. Николаенко

ИАЭ-4363/11

**РАСПИРЕНИЕ АЛМАЗА
В ЗАВИСИМОСТИ ОТ ВРЕМЕНИ ОБЛУЧЕНИЯ**

Москва — ЦНИИАтоминформ — 1986

**Редактор Л.И. Кирилова
Технический редактор Н.А. Малькова
Корректор В.П. Горюева**

**Подписано в печать 22.10.86. Т-22712. Формат 60х90/16
Печать офсетная. Усл. печ. л. 0,7. Уч.-изд. л. 1,0
Тираж 200. Цена 15 коп. Заказ 331. Индекс 3624**

**Подготовлено к изданию и ответственно
в Институте атомной энергии им. И.В. Курчатова
123182, Москва, ул. Академика Курчатова**

**Ордена Ленина и ордена Октябрьской Революции
Институт атомной энергии им. И.В. Курчатова**

В.Г. Гордеев, В.А. Николаенко

**РАСШИРЕНИЕ АЛМАЗА
В ЗАВИСИМОСТИ ОТ ВРЕМЕНИ ОБЛУЧЕНИЯ**

**Москва
1986**

Ключевые слова: облучение алмаза нейтронами, расширение алмаза, аморфизация алмаза, флюенс нейтронов, температура облучения, плотность потока нейтронов, гамма-облучение, длительность облучения.

В работе приведены экспериментальные данные по расширению алмаза при нейтронном облучении. Для температуры облучения 70 – 100°С исследованы две стадии расширения – в кристаллическом состоянии и при аморфизации. Проанализировано влияние плотности потока нейтронов на характер расширения алмаза в зависимости от флюенса нейтронов. Исследовано взаимное влияние скорости производства нарушений и их отжига, в том числе из-за гамма-облучения. Приведена зависимость расширения алмаза от времени облучения при разных плотностях потока нейтронов.

Последствия воздействия нейтронного облучения на свойства материала, как правило, объясняются на основе данных о флюенсе нейтронов и температуре облучения. Эти условия облучения в большинстве случаев являются определяющими, хотя из них флюенс нейтронов наиболее существен, поскольку в его отсутствии исчезает сама проблема. Однако влияние температуры облучения также весьма существенно, а в ряде случаев она определяет основные свойства и их изменение при облучении.

Обычно при проведении экспериментов в области реакторного материаловедения флюенс нейтронов измеряется пороговыми детекторами [1], а температура — термометрами, плавкими вставками, алмазными датчиками [2] и т.п. Однако информация об этих двух основных факторах оказывается недостаточной. В частности, в настоящей работе исследовано влияние скорости создания дефектов, т.е. плотности потока нейтронов, на алмаз, облучаемый в реакторе.

Известно, что один и тот же флюенс нейтронов может быть получен облучением в реакторе при разных плотностях потока нейтронов в течение разного времени. И наоборот, при облучении за одно и то же время при разных плотностях потока набираются разные флюенсы нейтронов. Например, в вертикальных каналах реактора МР Института атомной энергии им. И.В. Курчатова поток быстрых нейтронов по высоте активной зоны меняется приблизительно по косинусу и на краю зоны составляет ~20% от максимального. Поэтому, располагая образцы по всей высоте активной зоны, после однократного облучения можно получить зависимость изменения свойств от флюенса нейтронов. Большие флюенсы набираются в центре активной зоны, а малые — на периферии. Однако в получаемых таким способом зависимостях свойство — доза часто пренебрегается влиянием плотности потока нейтронов, которая, естественно, меняется по высоте активной зоны [3].

Считается, что при данном флюенсе нейтронов сравнительно более высокие потоки приводят к большему изменению свойств. Это объясняется характером процесса отжига дефектов, для которого всегда требуется некоторое время. Поэтому при быстром введении дефектов, т.е. при высоких плотностях потоков нейтронов, отжиг еще не успевает завершиться, а в микрообъемах уже возникают новые дефекты. В этих условиях изменение свойств материала от флюенса оказывается более значительным.

В то же время увеличение плотности потока нейтронов сопровождается ростом мощности γ -облучения, которое практически, не внося вклада в дефектообразование, существенно активирует уже дефектные атомы. Это приводит к их дополнительному отжигу. Явление такого дополнительного отжига из-за γ -облучения по характеру воздействия объединяют с влиянием температуры, вводя некоторое ΔT радиационное.

Таким образом, два фактора — плотность потока нейтронов и мощность γ -излучения, увеличиваясь и уменьшаясь одновременно при изменении мощности реактора, действуют по-разному и частично компенсируют друг друга. Это маскирует их влияние на свойства материала при облучении. Однако воздействие этих факторов может быть различным для дефектов определенного типа, и тогда их раздельное влияние на свойства может быть выявлено экспериментально.

В связи с этим были проанализированы результаты по расширению алмаза, полученные при облучении его в рабочих и холостых каналах реактора МР. При этом особое внимание было обращено на величину плотности потока нейтронов, при которой облучались образцы.

Следует напомнить, что при облучении по мере увеличения флюенса нейтронов расширение кристаллической решетки алмаза на первой стадии следует экспоненциальному закону. Далее, при увеличении флюенса нейтронов (несколько единиц на 10^{23} $1/\text{см}^2$, здесь и далее нейтроны с энергией более 0,5 МэВ) начинается вторая стадия расширения (распухание) алмаза, которое при завершении этой стадии достигает 40 — 50%. Следует также отметить, что алмаз, расширенный при облучении на 14 и более процентов, при последующем отжиге уже не восстанавливает свою решетку, а продолжает расширяться, переходя в аморфное состояние. Таким образом, нагревание в печи оказывает действие, аналогичное облучению. При расширениях более 10% возможно лишь измерение макроскопической плотности алмаза, так как рентгеновские рефлексы, даже самые интенсивные, исчезают.

На рис. 1 приведены данные по расширению алмаза в зависимости от флюенса нейтронов для постоянной температуры облучения. Все эти экспериментальные результаты получены на монокристаллах и порошке алмаза. Погрешность измерения расширения не превышала 0,5% при расширении алмаза до 10% (рентгеновские методы) и 1–3% при больших расширениях (измерение плотности в термоградиентной трубке). Погрешности в определении флюенса нейтронов, плотности потока и длительности облучения составляли 10–15%.

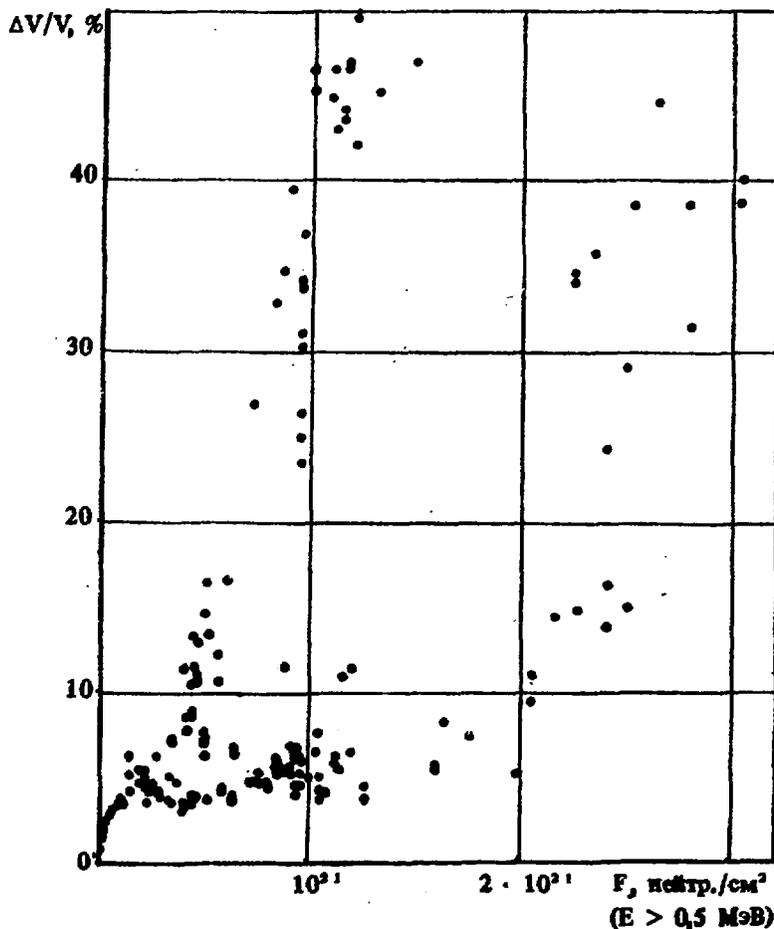


Рис. 1. Зависимость расширения кристаллической решетки алмаза от потока нейтронов. Температура облучения 70 – 100° С.

Из рис. 1 видно, что на результаты оказали влияние и другие факторы. Как всегда в таких случаях, значение может иметь предыстория образца: его исходное состояние, тип и размер кристаллов, примеси и т.п. Однако все эти причины оказываются несущественными, так как привязка к плотности потока немедленно устанавливает порядок в результатах, и разбросанные точки (см. рис. 1) ложатся на отдельные кривые.

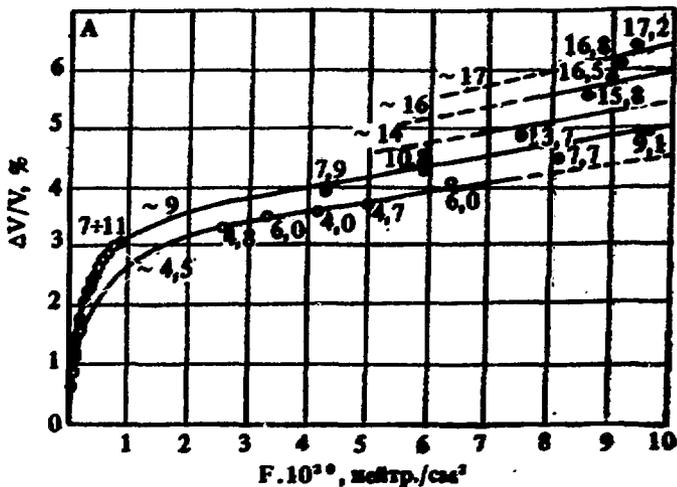
Эксперименты, на основе которых были получены данные, использованные в настоящей работе, не предназначались для исследования влияния интенсивности облучения. Поэтому повторные облучения образцов проводились зачастую при иных плотностях потока, что могло вуалировать вли-

яние этого фактора. Однако из большого числа данных удалось отобрать результаты, для которых и повторные облучения проведены при близких значениях плотности потока нейтронов. Такие данные приведены на рис. 2.

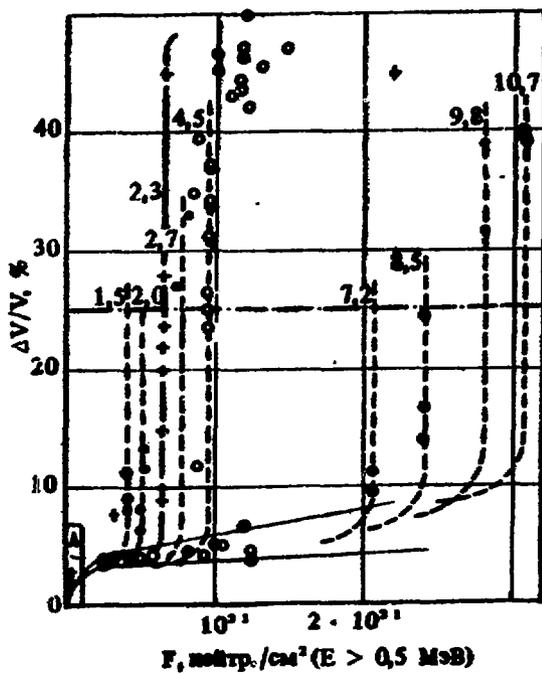
Видно, что зависимость изменения расширения алмаза от флюенса нейтронов определяется плотностью потока. При этом можно выделить две характерные стадии расширения. Первая описывается экспоненциальными зависимостями, причем кривые идут тем выше, чем больше плотность потока (см. рис. 2, а). Переход ко второй стадии — стадии распухания — и ее завершение осуществляются ранее для малых потоков нейтронов. Поэтому кривые расширения в зависимости от флюенса для разных потоков пересекаются (см. рис. 2, б). Например, при флюенсе нейтронов $8 \cdot 10^{20}$ $1/\text{см}^2$ расширение алмаза составляет 4,3 и 6,0% для потоков 4,5 и 17 на 10^{13} нейтр./ $\text{см}^2 \cdot \text{с}$. На второй стадии распухания уменьшение плотности (расширение) алмаза достигает 25% при флюенсах $9 \cdot 10^{20}$ и $2,8 \cdot 10^{21}$ нейтр./ см^2 при плотностях потока нейтронов 4,5 и 9,8 на 10^{13} $1/(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ соответственно.

По мере облучения все большая часть материала проходит через состояние возбуждения — через зоны смещения. Под зоной смещения понимается область повышенной концентрации дефектов, создающаяся в конце пути первичновыбитого атома (в алмазе диаметр зоны составляет около 45 Å). При облучении некоторые объемы материала проходят через состояние возбуждения один и большее число раз и таким образом зоны смещения перекрываются. Области кристалла, неоднократно прошедшие через состояние зоны (возбуждения), имеют примерно ту же концентрацию дефектов, что и в случае однократного прохождения через возмущение. Ниже, при выводе зависимостей расширения кристаллической решетки алмаза от флюенса нейтронов и плотности потока, предполагается, что концентрация дефектов в любом возбужденном объеме в первый момент его образования одинакова и не зависит от числа возбуждений.

Концентрация дефектов зависит также от "возраста" возмущенного объема — времени жизни зоны. По мере увеличения возраста, т.е. времени, прошедшего после образования зоны, концентрация дефектов в зоне уменьшается. Это связано с тепловым отжигом дефектов, а также с отжигом из-за γ -облучения. Если провести мгновенное фотографирование структуры вещества в некоторый момент облучения, то на снимке будут запечатлены участки (объемы), не прошедшие состояния возмущения, и объемы, прошедшие через такие состояния один и большее число раз. Эти объемы будут иметь разный возраст и концентрация дефектов в них будет различна.



а



б

Рис. 2. Зависимость расширения алмаза от флюенса нейтронов: а — начальная стадия; б — стадия распухания. Цифрами обозначены плотности потока нейтронов ($\times 10^{13}$)

Рассмотрим зависимость концентрации дефектов и расширения решетки алмаза от факторов, действующих при облучении. Скорость приращения насыщенного дефектами объема $V_{обл}$ пропорциональна оставшемуся, еще не прошедшему состоянию возбуждения объему $V - V_{обл}$, т.е.

$$\frac{dV_{обл}}{dt} = \alpha\varphi\bar{\Sigma}(V - V_{обл}), \quad (1)$$

где V — объем образца; α — объем дефектной области (зоны), образующейся при торможении первичновыбитого атома; φ — плотность потока нейтронов; $\bar{\Sigma}$ — среднее макроскопическое сечение рассеяния нейтронов.

Из выражения (1) следует, что

$$V_{обл} = V(1 - e^{-at}), \quad (2)$$

где a — дефектный объем, возникающий в единице объема вещества в единицу времени, равный

$$a = \alpha\varphi\bar{\Sigma}. \quad (3)$$

Объем, еще не прошедший через состояние возбуждения V_0 , равен

$$V_0 = (V - V_{обл}) = Ve^{-at}. \quad (4)$$

За время dt в образце создается насыщенная дефектами область объемом

$$dV = Vadt. \quad (5)$$

Доля этого дефектного объема (возникшего в момент времени t) η , не проходящая более через состояние возбуждения до конца облучения T , описывается уравнением типа (1) с решением (4), т.е.

$$\eta = e^{-a(T-t)}. \quad (6)$$

Следовательно, выражение для элементарного объема, сохраняющегося до конца облучения без повторных возмущений, будет иметь вид

$$dV = \eta Vadt = Va e^{-a(T-t)} dt. \quad (7)$$

Этот объем в процессе дальнейшего облучения (в течение времени $T - t$) будет подвергаться только изотермическому отжигу. Если при отжиге количество дефектов в такой области будет уменьшаться по закону

$$C(t)dV = C_0 e^{-b(T-t)} dV, \quad (8)$$

где C_0 — концентрация дефектов в объеме в момент его образования t ;
 b — параметр, определяющий влияние температуры и интенсивности γ -облучения, то для средней концентрации дефектов в объеме всего образца V к моменту окончания облучения T будем иметь

$$C(t) = \frac{1}{V} \int_0^V \eta C_0 e^{-b(T-t)} dV \quad (9)$$

или, переходя к интегрированию по t ,

$$C(T) = \frac{1}{V} \int_0^T \eta C_0 e^{-b(T-t)} dt. \quad (10)$$

Подставляя в последнее уравнение значение η из (6) окончательно получаем

$$C(t) = a C_0 \int_0^T e^{-b(T-t)} e^{-a(T-t)} dt. \quad (11)$$

Интегрирование дает

$$C(T) = \frac{C_0}{1 + b/a} [1 - e^{-(b+a)T}]. \quad (12)$$

В уравнении (12), как уже отмечалось, a характеризует плотность потока нейтронов, а b учитывает интенсивность отжига дефектов, в том числе из-за воздействия γ -излучения.

При $a \gg b$ имеем

$$C(T) \cong C_0 (1 - e^{-aT}), \quad (13)$$

$$C'(T) = C_0 a e^{-aT}, \quad (14)$$

$$C'(0) = C_0 a = f(a). \quad (15)$$

При $a \ll b$ имеем

$$C(T) \cong C_0 \frac{a}{b} (1 - e^{-bT}), \quad (16)$$

$$C'(T) = C_0 a e^{-bT}, \quad (17)$$

$$C'(0) = C_0 a \neq f(b), \quad (18)$$

хотя C_0 зависит от температуры облучения, т.е. от b .

Следует отметить, что экспериментальные зависимости расширения решетки алмаза от флюенса нейтронов не имеют явно выраженного насыщения в соответствии с экспоненциальными выражениями типа (2). Сначала они следуют этому выражению, а затем происходит линейное возрастание объема (см. рис. 2, а). Это может быть вызвано, например, увеличением концентрации дефектов в микрообъемах при их повторном прохождении через состоящие возбуждения.

Изложенные соображения касаются первой стадии расширения алмаза при облучении. Рассмотрим теперь стадию, связанную с аморфизацией, наступающей при более высоких дозах облучения. На рис. 3 приведена зависи-

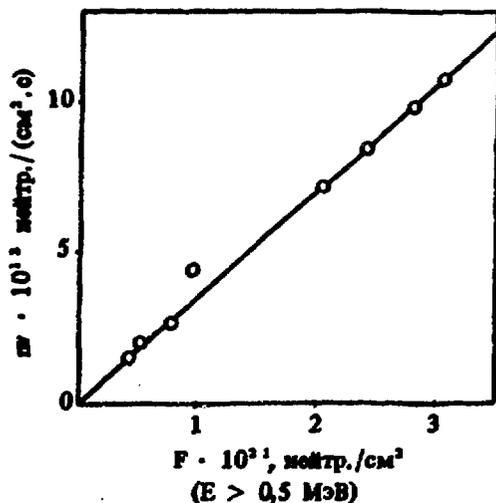


Рис. 3. Плотности потока и флюенсы нейтронов, необходимые для аморфизации алмаза при облучении

мость плотности потока от флюенса нейтронов, когда величина распухания алмаза достигает 25% (см. рис. 2, б). Оказывается, что отношение флюенса нейтронов к потоку есть величина постоянная (по крайней мере в диапазоне плотности потока нейтронов $1,5 \div 10,7$ на 10^{13} $1/(\text{см}^2 \cdot \text{с})$). Поэтому при данной температуре длительность облучения, необходимая для аморфизации алмаза, не зависит от плотности потока нейтронов и флюенса нейтронов, всегда одинакова и равна $2,8 \cdot 10^7$ с. При этом, по-видимому, энергия и спектр нарушающих нейтронов значения не имеют.

Это неожиданное явление иллюстрируется рис. 4, где расширение алмаза построено в зависимости от времени облучения. Видно, что вне зависимости от плотности потока и флюенса нейтронов аморфизация наступает через $2,8 \cdot 10^7$ с облучения. Таким образом, и последовательные об-

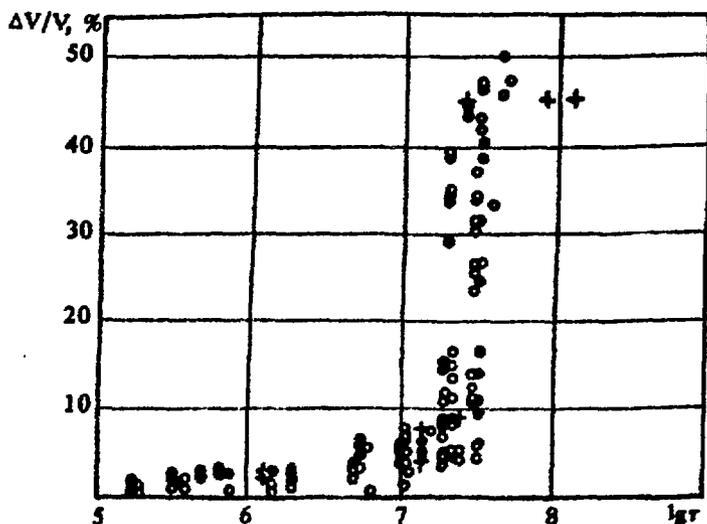


Рис. 4. Зависимость расширения алмаза от времени облучения: + — данные из работы [4]; \circ — плотность потока нейтронов $(0,75 \div 6,0) \cdot 10^{13} / (\text{см}^2 \cdot \text{с})$; \bullet — плотность потока нейтронов $(8 \div 12) \cdot 10^{13} / (\text{см}^2 \cdot \text{с})$.

лучения алмаза при разных плотностях потока приводят к одинаковой степени аморфизации, лишь бы сумма времен облучения составила указанное время $2,8 \cdot 10^7 \text{ с}$.

В работе [4] приведены данные по расширению алмаза в зависимости от флюенса нейтронов при облучении в реакторе ВССР Брукхэйвенской национальной лаборатории, при этом не были указаны время облучения и плотность потока нейтронов. Эти данные приведены в таблице. В [4] флюенсы нейтронов приведены для энергий свыше 1 МэВ, и они были пересчитаны с учетом спектра рабочего канала реактора МР на энергию 0,5 МэВ.

Как видно из таблицы, для некоторой дозы $4,8 \cdot 10^{20}$ нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ ($6,5 \cdot 10^{20}$) оказалось, что расширение кристаллов колебалось от 9 до 45%. Ясно, что время облучения этой партии алмазов составляло $2,8 \cdot 10^7 \text{ с}$. Поэтому удалось оценить и плотность потока нейтронов, и длительность облучения остальных образцов. На рис. 2, 3 и 4 все экспериментальные точки работы [4] обозначены крестиками, видно, что они подтверждают результаты настоящей работы.

На рис. 4 результаты экспериментов по плотности потока нейтронов разбиты на две группы: светлые кружки — плотность потока была в пределах $0,75 \div 6$ на 10^{13} нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$, черные — $8 \div 12$ на 10^{13} нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$.

Расширение алмаза в зависимости от флюенса нейтронов [4]

Флюенс нейтронов $\times 10^{20}$		Расширение алмаза, $\Delta V/V, \%$	Время облучения, с	Плотность потока, нейтрон через $\text{см}^2/\text{с}$	Время облучения, с
$E > 1 \text{ МэВ}$	$E > 0,5 \text{ МэВ}$				
0,24	0,32	2,4–2,7			$1,4 \cdot 10^6$
2,5	3,4	4,2–7,8			$1,5 \cdot 10^7$
4,8	6,5	9,0–45,0	$2,8 \cdot 10^7$	$2,3 \cdot 10^{13}$	$2,8 \cdot 10^7$
16,3	22,0	45			$9,6 \cdot 10^7$
23,0	34,0	43			$1,5 \cdot 10^8$

В классическом варианте полученные результаты можно объяснить следующим образом. При облучении алмаза потоком нейтронов любой интенсивности параллельно с отжигом точечных дефектов путем аннигиляции идет образование комплексов, в частности комплексов, являющихся зародышами аморфной фазы. Дальнейшая судьба этих комплексов, по мере увеличения флюенса, определяется воздействием γ -излучения, а также повторными возбуждениями дефектных зон из-за нейтронного облучения. Поэтому при более высоких плотностях потока образование аморфной фазы тормозится γ -отжигом и повторными возбуждениями. В результате концентрация комплексов может достигать необходимого для лавинообразного фазового перехода уровня за одно и то же время, независимо от плотности потока, а следовательно, и флюенса нейтронов.

Однако строгая пропорциональность между плотностью потока нейтронов и уровнем γ -излучения для разных условий облучения не соблюдается. Поэтому одновременно с проведением повторных экспериментов по уточнению и получению новых данных следует искать иные причины наличия у алмаза столь удивительной временной константы, характеризующей его аморфизацию под облучением.

Уже давно было замечено, что кристаллы алмаза, облучаемые, казалось бы в одинаковых условиях, расширяются по-разному. Разброс в расширении увеличивается по мере роста флюенса нейтронов, а максимальное расхождение наблюдается при времени облучения $2,8 \cdot 10^7$ с. Можно думать,

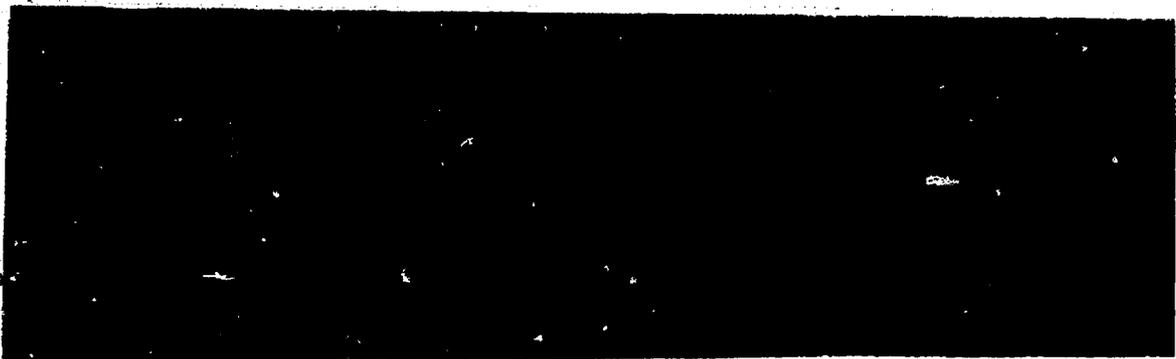
что в этих случаях разброс вызывается малейшими колебаниями уровня γ -излучения. Если в реакторе, в кассете, где ведется облучение кристаллов, в зависимости от окружения складывается некоторая микроструктура γ -поля, то она может оказать влияние на степень расширения.

В заключение следует заметить, что приведенный выше пример оценки длительности облучения и плотности потока нейтронов по данным о флюенсе нейтронов [4] свидетельствует о возможности практического использования результатов настоящей работы. Практическую значимость проведенного исследования имеет также вывод о том, что, поскольку на аморфизацию под действием облучения плотность потока влияния не оказывает, то всегда следует стремиться к ее увеличению. Это относится к быстропоточным реакторам, проблеме первой стенки термоядерного реактора и т.п. Во всех случаях стойкость материала, по крайней мере в отношении его аморфизации, будет определяться временем облучения $2,8 \cdot 10^7$ с.

Авторы пользуются случаем выразить признательность Карпухину В.И. за полезное обсуждение результатов работы, которая еще раз подтвердила его мысль о том, что "облученный алмаз все помнит".

Список литературы

1. Ломакин С.С. и др. Радиометрия нейтронов активационным методом. — М.: Энергоатомиздат, 1983. — 142 с.
2. Карпухин В.И., Николаенко В.А. Измерение температуры с помощью алмаза. — М.: Атомиздат, 1971. — 71 с.
3. Николаенко В.А., Карпухин В.И., Алексеев С.И. Использование алмаза в качестве эталонного свидетеля условий облучения: Препринт ИАЭ-1650. — М., 1968.
4. Vance E.R. X-ray study of neutron irradiated diamonds. — J.Phys. C: Solid St. Phys., 1971, vol. 4, p. 257–262.



Преспринт ИАЭ-4363/11. М., 1985

