

#### Библиографический список

1. Инженерный справочник по космической технике /Под ред. А.В.Солодкова.– М.: Воениздат, 1977.
2. Лашко С.В., Лашко Н.Ф. Пайка металлов.– М.: Машиностроение, 1988.
3. Понимаш И.Д., Орлов А.В., Рыбин В.Б. Вакуумная пайка реакторных материалов. –М.: Энергоатомиздат, 1995.

#### HIGH-VACUUM CHAMBER-TYPE ELECTRIC RESISTIVE FURNACE OF PERIODIC ACTION CHB-10. 12.7/14 FOR REACTOR MATERIALS BRAZING

V.M.Shulayev, S.A.Kruglov, F.M.Polyakov,  
V.Y.Savchenko\*, V.S.Baranenko\*, G.D.Smelyanskiy\*  
NSC «Kharkov Institute of Physics and Technoogy»  
\*UkrNIIElectrotherm, Ukraine

The structure of programmed electric resistive furnace for reactor materials brazing in vacuum at the temperatures up to 1400°C is described. The furnace productivity is increased due to usage of cartridge high-rate cooling system within the inert gas flow. The temperature non-uniformity is  $\pm 5^\circ\text{C}$  due to usage of large-scale molybdenum heaters.

УДК 538.97; 539.12.04

#### ПРИМЕНЕНИЕ ЯДЕРНО-ФИЗИЧЕСКИХ МЕТОДОВ К ИССЛЕДОВАНИЮ МАТЕРИАЛОВ

*В.Н. Бондаренко, А.В. Гончаров, А.В. Зац, В.Я. Колот, В.М. Пистряк, В.И. Сухоставец*  
г. Харьков, Институт физики твердого тела, материаловедения и технологий ННЦ ХФТИ

В ННЦ ХФТИ исследования материалов с помощью ядерно-физических методов анализа (ЯФМА) проводятся более 30 лет. В настоящей работе рассмотрены некоторые примеры таких исследований, проведенных в последние годы. В этих исследованиях был использован ряд методик, которые, на наш взгляд, являются перспективными.

Для измерения концентрационных распределений (профилей) на глубины свыше 20 мкм предпочтительнее использовать ядерный микрозонд (ЯМЗ). При этом микропучок ускоренных протонов сканируется по поперечному срезу или излому исследуемого образца с некоторым шагом. В каждой точке измеряется спектр вторичного излучения, возникающего в веществе образца под действием протонного пучка. Как правило, регистрируются следующие типы излучения: характеристическое рентгеновское излучение (ХРИ), возбужденное протонами (метод PIXE); гамма-кванты из ядерных реакций на протонах (метод PIGE); быстрые заряженные частицы (упруго рассеянные протоны и продукты ядерных реакций).

Так, для исследования профилей распределения Cr и других элементов в покры-

тиях и переходных слоях хром-графит использовался ЯМЗ и метод PIXE [1]. Применялся пучок протонов размером  $3 \times 5 \text{ мкм}^2$  и энергией 1 МэВ. Покрытие наносилось методом вакуумного диффузионного насыщения в присутствии активатора NaCl. На рис.1 приведено распределение ряда элементов по глубине образца. Видно, что распределение Cr имеет длинный (около 200 мкм) "хвост", который, по-видимому, связан с проникновением хлоридов хрома в открытые поры графита и образованием в них слоя карбида хрома, а также возможна диффузия хрома по порам графита. Измеренное содержание Cr в покрытии соответствует составу Cr<sub>2</sub>C<sub>3</sub>. Концентрационный профиль Fe в основном повторяет профиль Cr. Fe является примесью, попадающей в покрытие вместе с хромом. Содержание такой примеси, как Cl, в покрытии несколько выше, чем в графитовой подложке.

Для исследования профилей распределения F и Ta в газофазных покрытиях из фторидного вольфрама на W ЯМЗ использовался при энергии протонов 2,4 МэВ [2]. Концентрация фтора определялась ядерной реакцией  $^{19}\text{F}(p,p'\gamma)$  с регистрацией гамма-квантов энергией 197 кэВ, а концентрация

тантала –реакцией  $^{181}\text{Ta}(p,p'\gamma)$  с регистрацией гамма-квантов энергией 136 кэВ. Как видно из рис.2, концентрация  $F$  в покрытии изменяется в пределах 0,001-0,003 %, мас. На границе раздела покрытие-подложка

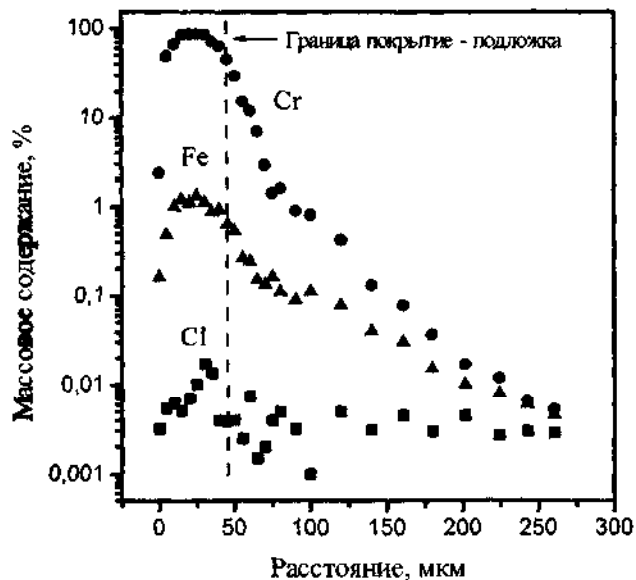


Рис.1. Профили распределения  $Cl$ ,  $Fe$ ,  $Cr$  по глубине  $Cr$  покрытия и в графите. Нулевой точкой на оси абсцисс обозначена внешняя поверхность образца (поверхность роста покрытия).

концентрация  $F$  повышается на порядок. Соответственно, содержание  $Ta$  в покрытии составляет около 0,2 %, мас., а на границе раздела повышается вдвое.

ЯМЗ и методика PIXE были использованы для исследования распределений элементов в толстых диффузионных покрытиях  $MoSi_2(Cr)$ , нанесенных на цилиндрические подложки из  $Mo$  [3]. Пучок протонов с размером 5 мкм и энергией 1 МэВ сканировался по полированному срезу покрытия в радиальном направлении. Измерения показали, что  $Mo$  и  $Si$  распределены в покрытии равномерно. Хром по покрытию был распределен неравномерно. Его средняя концентрация в покрытии составила 1-2%,мас, а вблизи внешней поверхности и на границе раздела с подложкой содержание  $Cr$  повышалось в 2-3 раза. Наблюдались примеси  $Fe$  и  $Co$ , концентрация которых на границе раздела также повышалась.

В работе [4] ЯМЗ использовался для исследования распределения легирующих примесей ( $Mn$ ,  $Fe$ ,  $Ni$ ) на октаэдрических и кубических гранях синтетических алмазов.

Диапазон измеряемых концентраций для различных образцов и граней составил 0,001-0,2%,мас.

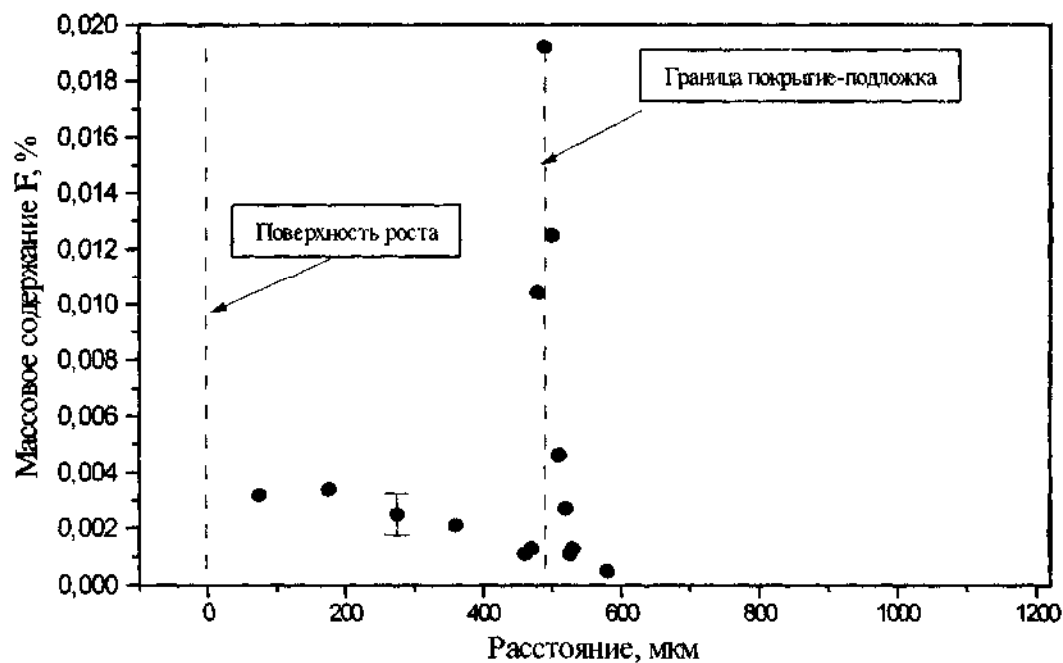


Рис.2. Профиль распределения  $F$  по толщине в покрытии  $W-Ta$ .

Наряду с применением ЯМЗ нами использовались и обычные пучки ускоренных ионов диаметром 1-3 мм. Так, в работе [5] измерялись диффузионные профили изотопа  $^{18}\text{O}$  в слое оксида  $\text{Zr}$  на цирконии. Эта задача возникает при исследовании коррозии  $\text{Zr}$  и сплавов на основе  $\text{Zr}$ , применяемых для изготовления оболочек твэлов ядерных реакторов. В условиях реактора диффузия стимулируется не только высокой температурой, при которой находится материал оболочки, но и мощным воздействием радиационных полей. При измерениях использовался пучок протонов с энергией 0,77 МэВ. Распределение  $^{18}\text{O}$  по толщине оксида контролировалось с помощью реакции  $^{18}\text{O}(p,\alpha)^{15}\text{N}$ . На рис.3,4 представлены диффузионные профили  $^{18}\text{O}$  в оксиде при различных режимах отжига. Исходные об-

разцы готовились следующим образом: образец окислялся в парах воды естественного изотопного состава при температуре 620 К тянутся на глубины более 1 мкм. Возможно, до образования пленки оксида толщиной 4 мкм; после этого на образец напылялся слой  $\text{Zr}$  толщиной 50 нм, который затем окислялся в парах воды с 80% обогащением изотопом  $^{18}\text{O}$ . Затем проводились диффузионные отжиги образцов. Видно, что диффузионные профили существенно шире профиля от исходного образца. Диффузионный профиль, полученный при температуре 653 К, менее размыт по сравнению с профилем от образца, который экспонировался при этой же температуре и дополнительно облучался протонами. При более высокой температуре (773 К) различие в профилях не наблюдается. При обеих температурах в профилях

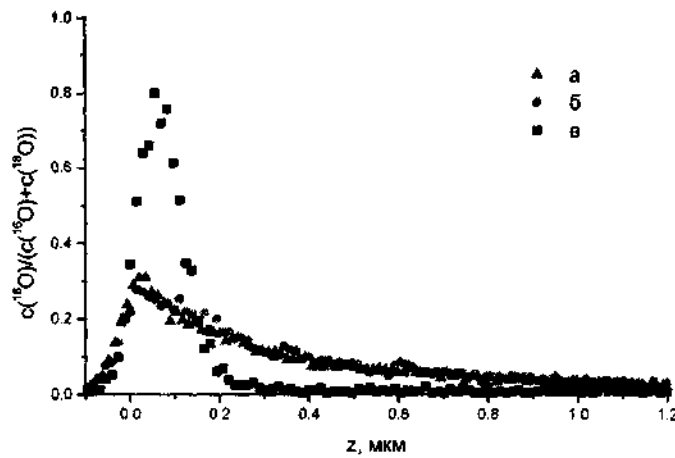


Рис.3. Профили распределения  $^{18}\text{O}$  в оксиде  $\text{Zr}$ : а – исходный образец; б – образец отжигался при  $T=653$  К в течение 6 часов; в – образец отжигался в том же режиме и одновременно облучался протонами с энергией 2 МэВ при плотности тока 4 мкА/см<sup>2</sup>.

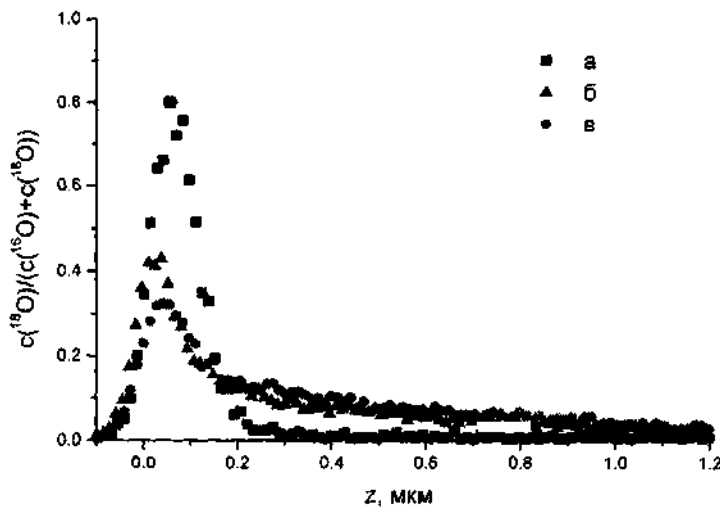


Рис.4. Профили распределения  $^{18}\text{O}$  в оксиде  $\text{Zr}$ : а – исходный образец; б – образец отжигался при  $T=773$  К в течение 50 минут; в – образец отжигался в том же режиме и одновременно облучался протонами с энергией 2 МэВ при плотности тока 4 мкА/см<sup>2</sup>.

наблюдаются длинные “хвосты”, которые они связаны с диффузией  $^{18}\text{O}$  по границам зерен.

Для измерения доз имплантации ионов инертных газов (ИГ) в материалы нами использовался метод PIXE [6]. Известно, что обработка материалов ионами ИГ приводит к повышению коррозионной стойкости материалов и заметно улучшает качество формируемых на них затем ионно-плазменных покрытий. При ионном облучении из-за рассеяния первичных ионов, миграции внедренных атомов на поверхность и распыления приповерхностного слоя число внедренных атомов оказывается меньше числа ионов, упавших на поверхность во время облучения. Естественно, что свойства облученного слоя в большей степени определяются дозой внедренных атомов, а не дозой облучения. Поэтому измерение доз внедрения является важным методом контроля при ионно-лучевой обработке материалов. Как было показано [6], при измерении доз внедрения ИГ метод PIXE имеет преимущество перед другими методами, поскольку является достаточно чувствительным и не требует использования образцов-стандартов ИГ. Измерение доз с помощью метода PIXE возможно при соблюдении двух условий: а) толщина слоя, облученного ионами ИГ, должна быть таковой, чтобы можно было пренебречь поглощением ХРИ по линии данного ИГ; б) на толщине данного слоя потеря энергии протонами не должна приводить к заметному изменению сечения ионизации, соответствующей К- или L-оболочки имплантированных атомов ИГ. Как правило, эти условия нетрудно выполнить при энергиях имплантации ионов  $\text{Ar}$ ,  $\text{Kr}$  и  $\text{Xe}$  в несколько десятков кэВ и меньше. В конкретных исследованиях измерялась доза внедрения ионов  $\text{Ar}$  с энергией 20 кэВ в образцы сплава  $\text{Zr}+1\%\text{Nb}$ . Измеренная доза внедрения оказалась более, чем на порядок меньше дозы облучения. Было показано, что основной причиной такого расхождения является миграция атомов  $\text{Ar}$  во время облучения в сторону поверхности с последующей десорбцией.

ЯФМА были использованы также в такой специфической задаче, как исследование сорбирующих полимерных пленок «Аларадекон», снятых со стен и металлических поверхностей в помещениях объекта «Укрытие» Чернобыльской АЭС. Анализ пленок выполнялся на протонном пучке ускорителя «Сокол» при энергии протонов 1,4 МэВ. На рис.5 представлен спектр PIXE от одной из таких пленок. Железо входит в состав материала пленки. Такие элементы, как  $\text{U}$ ,  $\text{Pb}$  и  $\text{Zr}$ , попали на диагностируемые поверхности в момент аварии и в последующие дни. На рис.6 представлен спектр обратно рассеянных протонов от этой же пленки. Наряду с углеродом, кислородом,  $\text{Al}$  и  $\text{Fe}$ , входящих в состав материала пленки, в спектре наблюдаются тяжелые элементы  $\text{U}+\text{Pb}$ . Поскольку эти элементы проявляются в спектре в виде «ступеньки», то можно сделать вывод, что средний размер микрочастиц, сорбированных пленкой и содержащих  $\text{U}$  и  $\text{Pb}$ , превышает 0,5 мкм.

Данные ядерного микроанализа позволяют оценить и сплошность покрытия пленки микровключениями  $\text{Zr}$ ,  $\text{Pb}$  и  $\text{U}$ . Сплошность или, другими словами, относительную площадь, занимаемую этими микровключениями, можно оценить исходя из следующей простой модели на примере включений урана. Предположим, что они состоят из диоксида урана. Тогда отношение выходов в спектрах PIXE, измеренных на исследуемой пленке и на образце-стандарте диоксида урана, прямо должно дать величину сплошности. Аналогичные измерения с помощью RBS не могут здесь помочь ввиду интерференции  $\text{Pb}$  и  $\text{U}$ . Из такой же модели можно исходить при оценке сплошности покрытия цирконием и свинцом. Естественно, во всех случаях предполагается, что размер микровключений превосходит глубину анализа методом PIXE (так, в условиях данного эксперимента глубина анализа для диоксида урана составляет около 4-х мкм).

Таким образом, использованный набор методик позволяет исследовать самые разнообразные материалы, применяемые в различных областях науки и технологий.

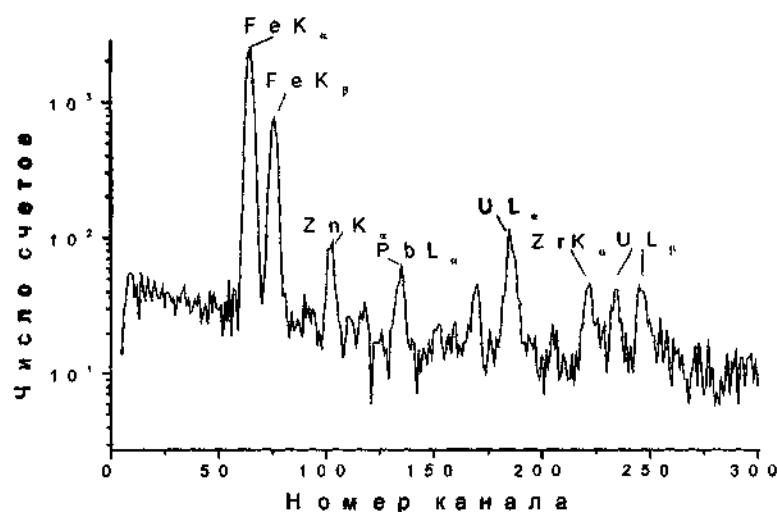


Рис. 5. Спектр PIXE от пленки «Аларадекон».

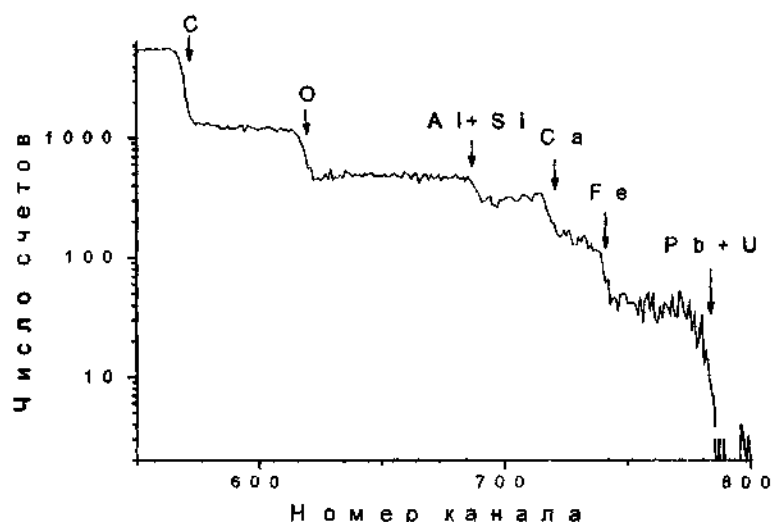


Рис. 6. Спектр обратного рассеяния протонов от пленки «Аларадекон».

#### Библиографический список

1. Бондаренко В.Н., Гончаров А.В., Змий В.И., Колот В.Я., Руденький С.Г., Сухоставец В.И. Исследование переходного слоя хром-графит с помощью ядерного микрозонда // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования.-2000.-№5.-С.38-40.
2. Бондаренко В.Н., Гончаров А.В., Колот В.Я., Сухоставец В.И., Широков Б.М. Исследование профилей распределения фтора и тантала в покрытиях W-Ta при помощи ядерного микрозонда // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования.-1999.-№5,6.-С.28-31.
3. Бондаренко В.Н., Гончаров А.В., Змий В.И., Колот В.Я., Пистряк В.М., Руденький С.Г. Ядерный микроанализ профилей в жаростойких покрытиях // Тр. XIV Международной конференции по физике радиационных явлений и радиационному материаловедению. - Харьков, 2000. -С.362-365.
4. Бондаренко В.Н., Гончаров А.В., Колот В.Я., Сухоставец В.И. и др. Определение содержания Mn,

Fe, Ni в синтетических алмазах с помощью протонного микропучка // Тезисы докладов XXVII международного совещания по физике взаимодействия заряженных частиц с кристаллами. -М: Изд-во Московского университета, 1997.-С.102.

5. Бондаренко В.Н., Гончаров А.В., Звягинцева Л.Н., Колот В.Я., Сухоставец В.И. Применение реакции  $^{18}\text{O}(\text{p},\alpha)^{15}\text{N}$  в нерезонансной области энергий для исследования распределения кислорода по глубине//Вопросы атомной науки и техники. Серия: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение.- Харьков: ННЦ ХФТИ,1996.- Вып.1(64).-С.93-98.

6. Бондаренко В.Н., Гончаров А.В., Грибанов Ю.А., Звягинцева Л.Н., Колот В.Я., Рекова Л.П. Применение рентгено-спектрального анализа с протонным возбуждением для определения дозы внедрения аргона в цирконий//Вопросы атомной науки и техники. Серия: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение.- Харьков: ННЦ ХФТИ,1998.-Вып.6(72).-С.96-99.