

И.Н.Бекман, Ю.Р.Дзелме

СПОСОБ ДИАГНОСТИКИ ДЕФЕКТОВ В ПЛЕНОЧНЫХ МАТЕРИАЛАХ

Изобретение относится к радиационным методам контроля материалов, конкретнее к диффузионной дефектоскопии тонких пленок.

Известны газсорбционные способы обнаружения дефектов в поверхностных слоях материалов, основанные на автордиографировании поверхности исследуемого образца после сорбции радиоактивного газа. Эти способы не позволяют исследовать кинетику массопереноса между различными дефектами и определить зависимости опасности потери герметичности или возникновения электрического пробоя в материале от взаимодействий системы дефектов в материале.

Наиболее близким по технической сущности и к предлагаемому способу является метод определения структуры дефектов, основанный на измерении спектра энергий альфа-частиц излучаемых сорбированным в твердом теле радиоактивным газом, и кинетики изменения интенсивности излучения альфа-частиц. Способ имеет низкую разрешающую способность из-за воздействия на регистрирующий прибор всей сорбированной активности.

Целью изобретения является увеличение разрешающей способности при исследовании структуры дефектов.

Поставленная цель достигается тем, что, согласно известному способу, включающему измерение кинетики сорбции радиоактивного газа, меченного излучающим альфа-частицы радионуклидом и регистрацию спектра энергий альфа-частиц сорбцию радиоактивного газа проводят со стороны пленки, противоположной стороне, на которой происходит измерение, и регистрируют кинетику изменения спектра энергий α -частиц для разных частей поверхности пленки в течение времени $t \leq l^2/D_2$ и, сравнивая с расчетными кинетиками диффузии радиоактивного газа, определяют наличие и топологию связей дефектов, находящихся в разных частях пленки, причем сорбцию проводят при температуре, удовлетворяющей условию:

$$T \leq \frac{1}{R} \frac{(\Delta H + E_2 - E_1)}{\ln\left(\frac{q_0 D_{20}}{D_{10} C_{00} S l A}\right)}, \quad (1)$$

где R - газовая постоянная, кал/мольК, T - температура К, q_0 - чувствительность регистрирующего прибора, распад/с, A - удельная активность радиоактивного, Бк/см³, S - площадь части поверхности пленки, активность которой измеряется, см; l - толщина пленки, см; D_{20} , D_{10} , C_{00} и E_2 , E_1 , ΔH - коэффициенты в зависимостях от температуры коэффициентов диффузии в материале пленки, D_1 в системе дефектов пленки и растворимости C_0 в пленке радона, соответственно.

$$D_2 = D_{20} \exp\left(-\frac{E_2}{RT}\right), D_1 = D_{10} \exp\left(-\frac{E_1}{RT}\right),$$
$$C_0 = C_{00} \exp\left(\frac{\Delta H}{RT}\right)$$

Определение структуры дефектов в пленке согласно предлагаемому способу достигается благодаря измерению кинетики сорбции радиоактивного газа для разных частей пленки с последующим сопоставлением этих кинетик и нахождению связи дефектов в разных частях пленки с использованием эффекта превышения скорости диффузии газа по системе дефектов над скоростью диффузии в материале пленки. Большая скорость диффузии радиоактивного газа по

системе дефектов позволяет при измерении активности со стороны пленки, противоположной стороне сорбции, в течение времени $t \leq l^2/D_2$, измерять в основном только активность, прошедшую через систему дефектов, так как диффузия через материал пленки в начальный период времени незначительна по сравнению с диффузией по системе дефектов.

Энергия активации диффузии газа по системе дефектов практически всегда меньше энергии активации диффузии в материале, поэтому понижая температуру можно добиться необходимого превышения скорости диффузии по системе дефектов над мешающей измерению диффузией в материале исследуемой пленки. С другой стороны, малая скорость диффузии увеличивает время эксперимента, так как измерять активности можно только при превышении уровня активности над определяемой чувствительностью прибора пороговой величиной q_0 .

Квазистационарное приближение для оценки времени, через которое активность превышает пороговую величину, дает значение:

$$t \geq q_0 \frac{\ell}{D_1 C_0 S A} = \frac{q_0 \ell}{D_{10} C_{00} S A} \exp\left(\frac{E_1}{RT} - \frac{\Delta H}{RT}\right). \quad (2)$$

Диффузия через материал пленки мало влияет на результаты измерения активности, если

$$t < \frac{\ell^2}{D_2} = \left(\frac{\ell^2}{D_{20}}\right) \exp\left(-\frac{E_2}{RT}\right) \quad (3)$$

Приравнивая значения времен в формулах (2) и (3) получаем верхнюю границу величины температуры, приведенную в (1). Установленное нами условие (1) позволяет проводить измерение кинетики диффузии радиоактивного газа по системе дефектов при малом влиянии "фоновой" диффузии через материал пленки. Это дает возможность в свою очередь выбирать относительно небольшие части поверхности пленки и измерять с достаточной точностью кинетику диффузии для каждой части.

Если кинетика сорбции описывается уравнением:

$$a_i(t) = a_{i0} \left(1 - e^{-\frac{t}{\tau_i}}\right) \quad (4)$$

где a_i - изменение активности для части поверхности с началом i , распад/с; a_{i0} - максимальная активность сорбированного газа для дефекта в части поверхности с началом i , расп/сек, τ_i - характерное время сорбции, сек, то дефект в части поверхности с началом i одиночный и не связан с другими дефектами.

Если дефекты в двух частях поверхности, например, с номерами 1 и 2, связаны между собой, то, принимая, что дефект 2 связан с поверхностью, а дефект 1 только с дефектом 2, кинетика сорбции описывается уравнениями:

$$a_1 = V_1 C_0 A \left[1 - \frac{S_1 e^{S_2 t} - S_2 e^{S_1 t}}{S_1 - S_2}\right], \quad (5)$$

$$a_2 = V_2 C_0 A \left[1 - \frac{\left(S_1 + \frac{1}{\tau_2}\right) e^{S_2 t} - \left(S_2 + \frac{1}{\tau_2}\right) e^{S_1 t}}{S_1 - S_2}\right], \quad (6)$$

где $S_{1,2} = -\frac{1}{\tau_1} + \frac{1}{2\tau_2} \pm \sqrt{\frac{1}{\tau_1^2} + \frac{1}{4\tau_2^2}}$; V_i - объем дефекта, см³.

Сравнивая кинетики диффузии с уравнениями (5) и (6), например, с помощью метода наименьших квадратов, определяют соответствие математической модели эксперименту. Если

уравнения (4), (5), (6) не описывают экспериментальные данные, то надо рассматривать более сложные варианты. В общем случае необходимо решить систему уравнений:

$$\frac{da_i}{dt} = \sum_{j=1}^N \frac{1}{\tau_{ij}} \left(\frac{a_j}{V_j} - \frac{a_i}{V_i} \right) + \sum_{k=1}^M \frac{1}{\tau'_{ik}} \left(\frac{a_i}{V_i} - AC_k \right), \quad (7)$$

$i=1, 2, \dots, N$, где τ_{ij} , τ'_{ik} - параметры, характеризующие массо-перенос между дефектами i и j и между дефектом i и источником (стоком) k , соответственно, с^{-1} ; N - количество дефектов, C_k - концентрация газа для источника (стока) с номером k , см^{-3} ; M - количество источников (стоков), и полученные кинетики $a_i(t)$ сопоставляют с экспериментом, определяя константы τ_{ij} , τ'_{ik} , V_i , C_k , характеризующие систему дефектов.

Пример

Образец полиэтилена низкой плотности (ПЭНП) в виде пленки толщиной $l=200$ мкм зажимают в ячейке для измерения газопроницаемости. На входную сторону пленки подают радон ^{222}Rn с удельной активностью $A=105$ Бк/ см^3 и проводят диффузию при температуре $T=293$ К, меньшей рассчитанной из соотношения,

$$T \leq \frac{1}{R} \frac{(\Delta H + E_2 - E_1)}{\ln\left(\frac{q_0 D_{20}}{D_{10} C_{00} S l A}\right)} = \frac{1}{2} \frac{4 + 12,5 - 10}{\ln\left(\frac{100 * 58,8}{7,73 * 8,9 * 10^{-4} * 0,01 * 0,02 * 10^5}\right)} = 305[\text{K}]$$

Регистрируют спектр энергий альфа-частиц для разных частей пленки с помощью спектрометра альфа-частиц (например, РИА-018) с коллиматором. Измерения изменения спектра энергий во времени проводят для всех выбранных областей вплоть до достижения времени

$$t = \frac{l^2}{D_2} = \frac{0,02^2}{3,2 * 10^{-8}} [\text{с}] = 1,25 * 10^4 [\text{с}] \approx 3 \text{ часа}$$

когда становится заметна активность радона, продиффундировавшего через пленку полиэтилена. Выделяют пики в спектре энергий альфа-частиц, описываемые уравнением

$$N(E, t) = \frac{Q(t)}{\left(R - \frac{E}{a}\right)^2},$$

где $Q(t) = \frac{C(t)VAh}{2a}$, и строят зависимость от времени интенсивности в максимуме каждого энергетического пика. Полученные кинетики изменения активности сравнивают с расчетными для разных моделей диффузии. Если кинетика сорбции радона для выделенного участка совпадает с кинетикой диффузионного заполнения радоном одного дефекта типа полости т.е. по описывается формулой:

$$a_i(t) = a_{i0} \left(1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right) \right) \quad (4)$$

то определяют параметры a_i и τ_i .

Если кинетика отличается от (4), но подчиняется кинетике характерной для пары диффузионно связанных дефектов (5), (6), то определяют параметры V_i , V_j , τ_i , τ_j при которых уравнения (5), (6) совпадают с экспериментом в пределах ошибок. Если кинетику не удастся описать уравнениями (4) или (5), (6), то следует искать соответствие кинетики более сложной топологии связи (7). Все же большинство дефектов описывается моделями (4) и (5), (6), поэтому для характеристики основной части дефектов достаточно рассмотреть модели (4) и (5), (6).

Предлагаемый способ позволяет в радиохимической лаборатории определить структуру дефектов. Для проведения измерений необходим спектрометр альфа-частиц, например, на основе полупроводникового детектора (в частности, кремний легированный литием) с коллиматором.

Способ по сравнению с прототипом позволяет существенно увеличить разрешающую способность и исследовать гораздо более широкий класс различных систем дефектов в пленках из полимеров типа полиэтилена толщиной до 1 мм при комнатной температуре. Для более толстых пленок из полимерных материалов предлагаемый метод можно использовать, если материал допускает нагрев до температур несколько сот градусов Цельсия в течение нескольких десятков часов оцениваемым по формулам (1-3). Использование ЭВМ для обработки результатов измерений согласно модели (7) позволяет провести диагностику сложных систем в различных композитных материалах и определить эксплуатационные характеристики без разрушения материала для различных герметизирующих и изолирующих пленок.

Формула изобретения.

Способ диагностики дефекта в пленочных материалах, основанный на измерении кинетики сорбции радиоактивного газа, меченного излучающим альфа-частицы радионуклидом и одновременной регистрацией спектра энергий альфа-частиц, отличающийся тем, что, с целью увеличения разрешающей способности, сорбцию радиоактивного газа проводят со стороны пленки, противоположной стороне измерения, регистрирует кинетику изменения спектра

энергий альфа-частиц для разных частей поверхности пленки в течение времени $t \leq \frac{l^2}{D_2}$ и, сравнивая с расчетными кинетиками диффузии радиоактивного газа, определяют наличие и топологию связей дефектов, причем сорбцию проводят при температуре, удовлетворяющей условию:

$$T \leq \frac{1}{R} \frac{(\Delta H + E_2 - E_1)}{\ln\left(\frac{q_0 D_{20}}{D_{10} C_{00} S l A}\right)}, \quad (1)$$

где R - газовая постоянная, кал/мольК, T - температура К, q_0 - чувствительность регистрирующего прибора, распад/с, A - удельная активность радиоактивного, Бк/см³, S - площадь части поверхности пленки, активностью которой измеряется, см; l - толщина пленки, см; D_{20} , D_{10} , C_{00} и E_2 , E_1 , ΔH - коэффициенты в зависимостях от температуры коэффициентов D_2 в материале пленки, D_1 в системе дефектов пленки и растворимости C_0 в пленке радона соответственно.

$$D_2 = D_{20} \exp\left(-\frac{E_2}{RT}\right); D_1 = D_{10} \exp\left(-\frac{E_1}{RT}\right),$$

$$C_0 = C_{00} \exp\left(\frac{\Delta H}{RT}\right)$$

Румянцев С.В., Фурман К.С. Газосорбционная радиоизотопная дефектоскопия. М.: Атомиздат, 1979, с.19-21.