

На правах рукописи

ЧЕРДАНЦЕВ Юрий Петрович

**ПОВЕДЕНИЕ СИСТЕМ МЕТАЛЛ - ВОДОРОД
ПРИ РАДИАЦИОННОМ ВОЗДЕЙСТВИИ**

Специальность 01.04.07 - Физика конденсированного состояния

Автореферат

диссертации на соискание ученой степени
доктора физико-математических наук

Томск - 2005

Работа выполнена на кафедре общей физики Томского политехнического университета.

Научный консультант: доктор физико-математических наук, профессор Чернов Иван Петрович.

Официальные оппоненты:

доктор физико-математических наук, профессор Калинин Борис Александрович,
доктор физико-математических наук, профессор Колобов Юрий Романович,
доктор физико-математических наук, профессор Кривобоков Валерий Павлович.

Ведущая организация: Российский научный центр Курчатовский Институт (Институт ядерного синтеза), г. Москва.

Защита состоится 2 ноября 2005 г. в 15⁰⁰ часов на заседании диссертационного

Совета Д 212.269.02 при Томском политехническом университете по адресу:
634050, г. Томск, пр. Ленина 30.

С диссертацией можно ознакомиться в научно-технической библиотеке ТПУ.

Автореферат разослан ____ сентября 2005 г.

Ученый секретарь
диссертационного Совета

д.ф.-м.н.

М.В. Коровкин

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы

Водородная тематика вызывает в настоящее время большой практический интерес, поскольку имеется много технических задач, для решения которых необходимо всестороннее изучение свойств систем металл-водород. К наиболее важным из них относятся задачи, связанные с проблемой водородной коррозии металлических конструкций оборудования газо - нефтяного комплекса. Не менее важной задачей является защита от водородного охрупчивания охлаждающих элементов и тепловыделяющих сборок ядерных реакторов, а также емкостей для хранения ядерного топлива. Хорошо известны проблемы вредного воздействия дейтерий - тритиевой плазмы на первую стенку термоядерного реактора. Данные о свойствах систем металл-водород и способы неразрушающего контроля позволят оценить время безопасной эксплуатации и провести раннюю диагностику опасной стадии разрушения металлических конструкций. Сложность проблемы осложняется тем, что в конструкционных материалах реакторов происходят два конкурирующих процесса: с одной стороны - накопление радиационных дефектов, с другой - аннигиляция дефектов, упорядочение структуры кристаллов. Эти два встречных процесса зависят от многих факторов: свойств самого материала, наличия примесей, наведенной активности, температуры облучения, а также скорости накопления и выхода водорода и дефектов. Количество водорода и скорость его миграции могут оказаться определяющими факторами в изменении физико-механических свойств металлических конструкций.

Только на основе хороших знаний о природе и механизмах взаимодействия излучения с веществом можно делать научно-обоснованные рекомендации по прогнозированию поведения конструкционных материалов в условиях облучения. Источниками таких знаний традиционно является развитие теории процессов взаимодействия излучения с веществом, компьютерное моделирование процессов дефектообразования, результаты реакторных исследований и результаты имитационных исследований.

Значительный интерес представляет исследование неравновесного выхода водорода из металлов и сплавов для управления прочностными, упругими, усталостными и другими характеристиками материалов. В связи с этим, принципиальным становится вопрос о процессах радиационно-стимулированной миграции водорода. В металлах практически исключена возможность сохранения энергии как в электронной подсистеме, в силу очень малых времен релаксации ($10^{-13} \div 10^{-14}$ с), так и на колебательных степенях свободы кристаллической решетки. В силу этого возникают трудности при теоретическом объяснении экспериментальных результатов, в которых наблюдается изменение содержания H при облучении металлов рентгеновскими квантами. Накопленные к настоящему моменту экспериментальные факты еще не получили всестороннего теоретического рассмотрения с использованием новых подходов, включая квантовомеханические расчеты. В част-

ности остается неясным механизм неравновесного выхода атомарного водорода из металлов при облучении. Сравнительно слабо изучены вопросы влияния дефектов на миграцию и выход водорода из металлов. Практически не исследовано влияние облучения металлов пучками рентгеновских и гамма-квантов на миграцию и выход водорода. Для строгого описания поведения водорода в металлах необходимо знать закономерности взаимодействия атомов водорода друг с другом и с металлической матрицей. Хотя атомарный водород представляет простейшее растворимое в металле вещество, реализация методов расчета на основе электронной теории «из первых принципов» все еще представляет определенные трудности. Предложенные ранее модели описывают только предельные случаи рассматриваемой проблемы. В целом же вопрос о состоянии водорода в металлах во многом остается пока открытым.

Для объяснения природы радиационно - стимулированной десорбции газов представляется целесообразным исследовать её при различном (в отношении образования дефектов) облучении: пучками тяжелых ионов, существенно превышающих энергетический порог смещения атомов решетки, и пучком электронов и рентгеновских квантов с энергией ниже пороговой. В первом случае накопление значительного числа радиационных дефектов сопровождается, как правило, повышением механической прочности, снижением пластичности. Во втором случае значительную роль играют процессы аннигиляции дефектов, имеющих в металле. Особую актуальность этот процесс приобретает при наличии в металле водорода. При этом водород не только стимулирует прохождение этого процесса, но и является чувствительным индикатором перестройки структуры металла.

Нерешенные до настоящего времени проблемы ухудшения свойств металлов, содержащих водород, повышение роли использования водорода для решения технических задач и получения материалов с заданными свойствами с помощью водородной обработки, вызывают необходимость разработки новых и усовершенствования известных методов анализа водорода и дефектов. Для получения информации о содержании и миграции водорода и дефектов используют ядерно-физические и атомные методы анализа. Эффективность использования ядерно-физических методов анализа напрямую связана с развитием фундаментальных исследований в области ядерной физики и физики конденсированного состояния. Необходимо иметь надежные данные о константах ядерного взаимодействия (сечениях рассеяния и функциях возбуждения) и параметрах, характеризующих потери энергии заряженных частиц в веществе (сечениях торможения). Кроме того, необходима информация о скорости образования дефектов, параметрах радиационно - стимулированной диффузии легких примесных атомов, в первую очередь, водорода. Эти и некоторые другие данные были получены в ходе выполнения настоящей диссертационной работы.

Сложность применения ядерно-физических методов при анализе металл-водородных систем связана с погрешностями измерений, вызванными миграцией водорода в металлах под действием анализирующего пучка. Отрицательное влия-

ние пучка при аналитических исследованиях компенсируется теми уникальными возможностями, которые дают ядерно-физические методы для исследования динамики неравновесных процессов миграции водорода при облучении. С практической точки зрения наиболее важными являются исследования динамики водорода и дефектов в образцах, находящихся в напряженном состоянии, поскольку вероятность их разрушения при эксплуатации максимальна.

Указанные выше проблемы определяют актуальность темы диссертации, связанной с исследованием закономерностей поведения систем металл-водород при воздействии пучков ионизирующего излучения.

Цель работы: изучение физических процессов в системах металл-водород при радиационном воздействии.

Для достижения этой цели необходимо решить перечисленные ниже *задачи*.

1. Разработать высокочувствительные неразрушающие методы миграции водорода в металлах.
2. Провести исследование миграции и выхода водорода из металлов под действием ионов, электронов и рентгеновских квантов.
3. Изучить влияние дефектов структуры металла на динамику миграции водорода при радиационном воздействии.
4. Изучить влияние водорода на динамику накопления и аннигиляции дефектов в металле при облучении.
5. На основе электронной теории “из первых принципов” провести расчеты состояния водорода в металлах и разработать феноменологическую модель, на микроскопическом уровне объясняющую поведение водорода при радиационном воздействии.

Для этого ***потребовалось:***

- разработать методики ядерного и атомного анализа миграции и выхода водорода из металлов под действием пучков ионизирующего излучения;
- разработать пакет программ для извлечения информации о концентрации исследуемых примесей из энергетических спектров;
- провести комплексное исследование систем металл-водород при термическом, радиационном и механическом воздействии;
- провести исследование миграции и выхода водорода из металлов под действием пучков ионизирующего излучения (ионов, электронов, рентгеновских квантов) и провести анализ полученной информации;
- изучить влияние дефектов, внесенных путем пластической деформации или радиационном воздействии на миграцию изотопов водорода в металлах и сплавах;
- провести расчеты электронной структуры систем Ti-H.

Положения, выносимые на защиту

1. Новый неразрушающий метод одновременного анализа водорода и гелия в сочетании с методикой исследования миграции Н позволяет получать принципиально новую информацию о поведении Н в системах металл-водород: миграции водорода в металлах непосредственно в процессе радиационного воздействия и взаимном влиянии имплантированного водорода и гелия в конструкционных материалах ядерных и термоядерных реакторов.
2. Облучение металлов и сплавов ионизирующим излучением (ионными пучками, электронами и рентгеновскими квантами) вызывает интенсивную миграцию водорода, обусловленную возбуждением электронных состояний со связями металл-водород, время жизни которых достаточно для выхода водорода из своих регулярных положений и неравновесной миграции.
3. Миграция и выход водорода из металлов и сплавов под действием электронов и рентгеновских квантов с энергией ниже порога образования дефектов сопровождается перестройкой дефектной структуры материала: отжигом дефектов водородного происхождения, вызванного процессами аннигиляции дефектов - междоузельных атомов и освобожденных от водорода вакансий.
4. Облучение электронами и рентгеновскими квантами титана, содержащего дефекты, образованные в процессе пластической деформации (при растяжении, не превышающем 2%) предварительно насыщенного водородом металла, приводит к снижению дефектности, что вызвано разрывом связей водорода с дефектами, ранее блокированными водородом, их миграцией и последующей аннигиляцией. В случае, если деформации предшествовала наводороживание (или уровень деформации превышал 2%), дефектность титана возрастает.
5. Растворенный в металлах и сплавах водород снижает коэффициент захвата имплантированного гелия, что обусловлено образованием мелких комплексов NV и NV₂ и, как следствие, уменьшением вероятности образования крупных вакансионных комплексов, являющихся эффективными ловушками для гелия. Сглаживание потенциального рельефа способствует перераспределению имплантированного гелия по объему материала или его выходу из образца в составе подвижного комплекса HeV₂.

Научная новизна

1. На базе метода ядер отдачи был разработан метод одновременного анализа водорода и гелия, позволяющий в одном измерении определять абсолютное содержание и распределение по глубине примеси водорода и гелия в поверхностных слоях материалов.
2. Разработаны методы анализа изотопов водорода, использующие резонансы в упругом взаимодействии между изотопами водорода и легкими атомами с сечениями от 1 до 4 МэВ. Оценки аналитических характеристик показали, что за счет высоких сечений рассеяния в резонансе (от 1 до 4 Барн) предел обнаружения водорода при этом достигает 10^{12} ат/см², или (0,01 ат.%). Приоритет разработанных методов подтвержден авторскими свидетельствами на изобретения.
3. Разработана новая методика измерения радиационно-стимулированной миграции водорода при ионном облучении и способ снижения погрешностей результатов измерений при анализе изотопов водорода ядерно-физическими методами.
4. Впервые установлено, что наличие в металле растворенного водорода снижает захват имплантированного гелия в металлах.
5. Впервые получены данные о:
 - влиянии дефектов, созданных имплантацией He на изменение концентрации водорода в приповерхностном слое металлов при облучении ионами азота;
 - миграции водорода в нержавеющей стали, Ti, Be, Nb, Zr и V, сплавах Ti, Zr и V при облучении ионами азота;
 - миграции H в Ti под действием пучка ионов He;
 - влиянии режимов облучения ионами H и He и электрополировки на накопление He в ванадии.
6. Получены новые данные о характеристиках сигналов акустической эмиссии и скорости распространения звуковых волн в нержавеющей стали и титане при насыщении водородом, деформации и радиационном воздействии.
7. Получены новые данные о влиянии водорода и дефектов на время жизни позитронов в металлах. Показано, что время жизни позитронов при облучении системы титан-водород рентгеновскими лучами или электронным пучком с энергией ниже порогового уровня образования дефектов зависит от уровня дефектности металла и последовательности операций наводороживание – деформация.

Практическая ценность работы

1. На базе метода ядер отдачи и метода ядерных реакций разработаны новые неразрушающие методы анализа изотопов водорода и гелия, позволяющие получать количественную информацию о распределении примеси H и He по глубине материала.

2. Разработана методика изучения миграции легких примесей неразрушающими ядерно-физическими методами. Новая методика позволяет снизить погрешности измерений, проведенных ядерно-физическими методами анализа, связанные с высокой диффузионной подвижностью водорода в металлах.

3. Полученные данные о миграции водорода под действием ионных пучков, накоплении и взаимном влиянии примесей Н и Не в конструкционных материалах ТЯР необходимы для разработки новых перспективных материалов. Способ оценки дефектности материалов по уровню концентрации водорода (“декорирование” дефектов водородом) позволяет получать информацию о глубине разрушения материала под действием гелиевого блистеринга, определять критическую дозу образования блистеров, что способствует составлению обоснованных прогнозов работоспособности конструкционных материалов при контакте с термоядерной плазмой.

4. Полученная информация о миграции и выходе водорода из металла при радиационном воздействии позволяет разработать методы и методики низкотемпературного радиационного удаления водорода из металлических конструкций, улучшения механических характеристик деталей и узлов оборудования, подверженного водородному охрупчиванию.

5. На базе данных о влиянии насыщения металлов водородом, деформации и облучении на скорость звука и характеристики сигналов акустической эмиссии разрабатываются методы неразрушающего контроля раннего распознавания возможной деградации конструкционных материалов, вызванной водородно-гелиевым охрупчиванием.

Практическая значимость подтверждается выполнением следующих научно-исследовательских работ.

В период с 1981 г. по 1991 г. совместно с ИАЭ им. Курчатова работы велись по теме: “Применение ядерно-физических методов для исследования проникновения Н и Не в конструкционные материалы реактора”. Заказчик – ГК по использованию АЭ СССР.

В 1991 – 1993 г.г. выполнены исследования по ГНТП “Управляемый термоядерный синтез и плазменные процессы”, тема № 8453 “Получение новых данных о комплексном воздействии на конструкционные материалы ионов Н, Не, продуктов ядерных реакций, имитирующих действие ТЯР”. Заказчик – МИН науки России.

С 1997 по 1998 г.г. - по гранту №95-0-6.0.65 РФФИ “Исследование механизма обратного рассеяния ионов водорода и гелия на лёгких ядрах”.

С 1997 по 2004 г.г. выполнены исследования по контракту с Фраунгоферовским институтом неразрушающих методов контроля (г. Саарбрюкен, Германия) по теме “Процессы в металлах и сплавах, инициируемые мигрирующим водородом”.

С 1999 г. ведутся госбюджетные работы по ЕЗН (Минобразования России) “Исследование воздействия излучения на металлы и сплавы”.

В 2004 году начата работа по международному гранту МНТЦ “Разработка неразрушающих методов контроля водородного и гелиевого охрупчивания материалов - компонентов ядерной энергетики и контейнеров для хранения и транспортировки радиоактивных веществ” (совместно с РНЦ “Курчатовский институт” г. Москва и Сибирским Химическим Комбинатом г. Северск) и гранту “Университеты России”.

Достоверность полученных результатов обеспечивалась проведением измерений и испытанием на аттестованном оборудовании по требованиям ГОСТов, а также применением стандартных методов статистической обработки. Подтверждением достоверности проведенных экспериментальных исследований является использование комплекса атомных и неразрушающих ядерно-физических методов анализа вещества.

Личный вклад автора заключается в постановке задачи диссертационной работы и её реализации, проведении большинства экспериментальных и теоретических исследований, обработке результатов измерений, их анализе на основе существующих представлений физики конденсированного состояния, ядерной и атомной физики. Результаты, составляющие научную новизну диссертации и выносимые на защиту, получены автором лично. Подавляющее большинство публикаций по теме диссертации написаны лично автором после обсуждения результатов с соавторами. Даже в статьях с большим числом соавторов, вклад диссертанта в работу по получению теоретических и экспериментальных результатов составляет не менее 50%. Соавторство связано с необходимостью проведения большого объема сложных экспериментальных работ, с привлечением значительного числа атомных и ядерно-физических методов анализа вещества.

Апробация работы и публикации: материалы диссертации были представлены на X-XIII (1980-1988 г.г.), XXIV- XXVI (1994-1997 г.г.), XXX-XXXV (2000-2005 г.г. г.г.) Международных совещаниях по физике взаимодействия заряженных частиц с кристаллами; 8-ой (1987 г.) и 9-ой (1989 г.) Всесоюзных конференциях по взаимодействию атомных частиц с твердым телом; 29-ом (1979г.), 30 (1989г.), 32 (1982 г.), 35 (1984 г.), 36-ом (1985 г.), 39-ом (1989 г.) Совещаниях по ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра; 3 -ей Всесоюзной конференции по разработке конструкционных материалов ТЯР (Ленинград, 1984 г.); Всесоюзной конференции “Радиационное воздействие на материалы ТЯР” (Ленинград, 1990 г.); Всесоюзном совещании по физике плазмы и ее приложениям (Звенигород, 1986 г.); Международной сессии “Управление примесями в ИТЭРе” (г. Гартунг, Германия, 1989 г.); 10-ом Всесоюзном совещании по ускорителям заряженных частиц (Дубна, 1987 г.); 5-ой Всесоюзной конференции “Методы определения газов в металлах” (Москва, 1988 г.); Международной конференции по системам металл-водород (Токио, Япония, 1994 г.); Международной конференции "Диагностика поверхности ионными пучками" (Запорожье, 1983 г., Ужгород, 1985 г.); 10-ом Всесоюзном совещании по ускорителям заряженных частиц (Томск, 1987 г.); в 1-ом и 7-ом Русско-корейском симпозиуме по науке и технологии (1997 г., 2001 г.); 2-ой и 3-ей

Международной конференции “Водородная обработка материалов” (Донецк, 1998 г., 2001 г., 2004 г.); 15-ой Международной конференции «Взаимодействие ионов с поверхностью» (2001 г., 2005 г.); 7-ой (1989 г.) и 8-ой (1993 г.) Всесоюзной конференции по радиационной физике и химии неорганических материалов; 7-ой Международной конференции по материалам ТЯР (ICFRM- 7, Обнинск, 1995 г.); Международной конференции по изучению гидридов металлов (ICHMS-97, Ялта, 1997 г.); Международном совещании “Мезомеханика. Основы и применение” (Томск, 2001 г.).

По материалам диссертации опубликовано 50 печатных работ в научных журналах, сборниках и трудах конференций (в том числе 23 статьи в реферируемых журналах). В 2002 г. в соавторстве с российскими (Чернов И.П., Тюрин Ю.И.) и немецкими учеными (Баумбах Х., Кренинг М.) опубликована монография “Неравновесные системы металл-водород. Титан, нержавеющая сталь”, а в 2004 г. монография “Методы исследования систем металл-водород”, занявшая первое место в конкурсе научных работ Томского политехнического университета. По материалам диссертации в 2003 г. опубликовано и представлено на сайте Томского политехнического университета в электронном варианте учебное пособие на русском и английском языках “Приборы и аппаратура для анализа твердого тела”. По разработке методов анализа систем металл-водород получено 5 авторских свидетельств на изобретения.

Объем и структура работы: диссертационная работа состоит из введения, шести глав и приложения. Общий объем диссертации 283 страниц, включая рисунки, таблицы и наименования библиографических ссылок.

Основное содержание диссертации

Введение

Во введении дана общая характеристика работы, обоснована актуальность проблемы, сформулированы задачи и цель исследования, кратко изложено содержание работы и полученные результаты.

1. Водород в металлах и радиационное воздействие

В главе приведен краткий обзор общих вопросов взаимодействия водорода с кристаллической решеткой металлов. Основу обзора составляют данные для титана и нержавеющей стали. Рассмотрены вопросы проникновения водорода в металлы путем насыщения из газовой фазы, электролиза и имплантации. Отмечено, что деформация решетки металла, развитие сети дислокаций, появление точечных дефектов и их комплексов оказывают большое влияние на процесс наводороживания металлов. Это влияние может быть различным в зависимости от характера деформации и способно привести к увеличению или уменьшению объема коллекторов,

следовательно, к изменению способности металлов поглощать водород. При этом наибольшее влияние на захват водорода имеют микрополости и блистеры. Для реакторостроения наибольший интерес вызывает изучение поведения водорода в металлах, находящихся в радиационных полях, облучаемых потоками нейтронов и имплантированных ионами гелия. Накопление гелия приводит к образованию гелиевых микропузырьков, активно захватывающих атомы примесного водорода.

Описаны процессы радиационно-стимулированной диффузии H в металлах и сплавах, особенности проникновения H через мембраны в условиях ионной бомбардировки. Изменение скорости диффузионных процессов может проходить за счет дефектообразования, возбуждения электронной подсистемы металла, а в присутствии водорода, за счет возбуждения водородной подсистемы. Последний фактор наиболее интересен, поскольку в ряде случаев может служить эффективным способом снижения уровня дефектности металлов. Для неравновесной системы, к которой относится металл - водород, переход в равновесное состояние облегчен и требует незначительного количества переданной энергии. Интенсивность этих процессов обусловлена возникновением радиационно-стимулированной диффузии водорода и дефектов в процессе облучения. При этом меняются акустические (скорость звука), электрические и магнитные характеристики металлов (электросопротивление, коэрцитивная сила), а также параметры, характеризующие взаимодействие позитронов с веществом.

На основе всестороннего анализа состояния проблемы формулируются цели и задачи настоящей диссертационной работы, приведённые выше. К началу настоящей работы для теоретического описания процесса неравновесной миграции водорода было недостаточно экспериментальных данных, особенно это касалось исследования неравновесной миграции водорода под действием ионизирующего излучения ниже порога образования радиационных дефектов.

Согласно основным положениям разработанной ранее феноменологической модели, предложенной Тюриным-Черновым¹, водород, занимая эквивалентные позиции внутри металла, формирует собственную подсистему в кристаллической решетке, обладающую частотами колебаний, лежащих вне фононного спектра кристалла. При подводе энергии излучением происходит возбуждение колебательных степеней свободы водородной подсистемы. В модели постулируется, что неравновесные колебания водородной подсистемы являются долгоживущими в масштабе времен электронной релаксации в металлах. Поэтому, в отличие от электронной, водородная подсистема металлов способна сохранять подведенную энергию на время, достаточное для реализации процессов ускоренной диффузии. При этом миграция и выход атомов водорода из металла стимулируется не энергией тепловых колебаний, равной kT , а энергией неравновесных колебаний водородной подсистемы, заметно превышающей kT .

Что касается вопросов строго теоретического описания поведения водорода в металлах, то, несмотря на то, что атомарный водород представляет простейшее растворимое в металле вещество, реализация методов расчета на основе электрон-

ной теории «из первых принципов» представляет определенные трудности. Предложенные ранее анионная (H^-) и протонная (H^+) модели описывают только предельные случаи рассматриваемой проблемы. В целом же вопрос о РС диффузии, состоянии водорода в металлах, механизмах передачи энергии излучения атомам водорода во многом остается пока открытым.

Анализ рассмотренных в главе материалов позволил сделать вывод о необходимости дальнейшего изучения процессов радиационно-стимулированной миграции водорода в металлах, разработки чувствительных методов исследования радиационно-стимулированной миграции водорода в металлах и построения теорий на микроскопическом уровне объясняющих поведение водорода при радиационном воздействии.

2. Разработка неразрушающих методов анализа систем металл-водород

Глава содержит краткий обзор ядерно-физических и атомных методов анализа водорода и дефектов, использованных для экспериментальных исследований. Отмечены особенности этих методов при исследовании физических процессов в системах металл-водород при радиационном воздействии. Показано, что применение неразрушающих ядерно-физических методов анализа более эффективно, поскольку они позволяют проводить многократные (или круговые) измерения одних и тех же образцов непосредственно в процессе воздействия температуры, деформации или облучения. Кроме того, эти методы позволяют *in situ* исследовать динамические характеристики систем металл-водород.

Базовым методом исследования металл - водородных систем выбран **метод ядер отдачи (ЯО)**. Метод ядер отдачи позволяет получать количественную информацию о распределении и интегральном содержании изотопов водорода без разрушения поверхности материала. На основе этого метода разработаны новые неразрушающие способы анализа водорода, разработан способ исследования миграции водорода в металлах, отработана методика и измерены сечения упругого рассеяния водорода на легких ядрах. Исследования проводили с использованием ускоренных ионов 4He , ^{12}C , ^{14}N , ^{16}O с энергией ~ 1 МэВ нуклон (на циклотроне НИИ ядерной физики при ТПУ, г. Томск). При анализе водорода в *Al* (в оптимальной геометрии эксперимента) разрешение по глубине находится на уровне $0,04 \div 0,1$ мкм, глубина анализа - $1 \div 2$ мкм. Предел обнаружения достигает $3 \times 10^{12} \div 10^{14}$ Н/см².

Метод резерфордовского обратного рассеяния (РОР) традиционно используется для анализа тяжелых примесей. Однако, как показали наши эксперименты и результаты машинного моделирования, анализируя «провалы» в энергетическом спектре (ЭС) РОР, вызванные уменьшением плотности ядер матрицы на глубине, соответствующей залеганию легких атомов, метод может быть использован для легких примесей (включая изотопы водорода). Получены аналитические

выражения, позволяющие извлекать информацию о распределении примеси водорода методом РОР. Предел обнаружения метода для налетающих ионов гелия в обычной для метода РОР геометрии не выше 10^{17} Н/см² (на уровне 5 ат.%). Глубина анализируемого слоя в “касательной” геометрии около 2 мкм ($E_{\alpha} = 1,7$ МэВ).

Метод вторичной ионной масс-спектропии (ВИМС) реализован на установке МС-7201М. В качестве зондирующего использовался пучок ионов Ag^{+} с энергией 5 кэВ, плотностью тока 0,1 мА/см², площадью сечения с поверхностью 2,5 мм². Анализ образцов осуществлялся при непрерывной записи сигналов токов вторичных ионов с послынным разрешением около 5 нм и с чувствительностью не ниже 5×10^{-2} ат. %. Относительная погрешность измерений не превышала 5 %. Скорость распыления $\sim 0,03$ нм/с (~ 80 нм/ч).

Накопление водорода в объеме металла изучалось **методом вакуумной термодесорбции**. Используемая установка позволяла вести линейный нагрев образцов от 20 до 1300 К со скоростью от 0,1 до 5 К/с с одновременным масс-спектрометрическим определением интенсивности плотности потока выделяющегося водорода и его изотопов из металлов. Для стимуляции выхода дейтерия применялся электронный пучок с энергией $10 \div 100$ кэВ, формируемый фокусирующим магнитом.

Для подготовки образцов с известным содержанием водорода была использована **оригинальная методика измерения содержания водорода** непосредственно в процессе электрохимического насыщения. Относительная погрешность методики при плотностях тока до 1 А/см² составляет около 0,5%.

Для изучения дефектности насыщенных водородом материалов использованы **методы позитронной аннигиляции**: метод измерения времени жизни позитронов (ПА) и метод измерения доплеровского уширения аннигиляционной линии (ДУАЛ). Методы позволяют обнаруживать и идентифицировать дефекты на глубине до 150 мкм. Временное разрешение использованной измерительной системы около 240 пс.

Для изучения движения дефектов разработана **методика измерения сигналов акустической эмиссии (АЭ)** водородосодержащих структур при статической нагрузке, электролитическом насыщении металлов водородом и при рентгеновском облучении. Для диагностики акустических сигналов применяли широкополосную измерительную систему, разработанную во Фраунгоферовском институте неразрушающих методов контроля (Германия). Система позволяла измерять и заносить в память компьютера данные о количестве, амплитуде, энергии и длительности звуковых сигналов в диапазоне частот от 20 кГц до 2 МГц. Использовано оригинальное малогабаритное механическое устройство, позволяющее проводить измерение сигналов АЭ в процессе электролитического насыщения металлических образцов водородом, не прерывая режима измерения, облучать образцы рентгеновскими лучами при контролируемой статической нагрузке (растяжение с предельной нагрузкой до 10000 Н). Используемый спектрометр сигналов АЭ позво-

лил измерить затухание акустических сигналов в исследуемых образцах и установить корреляции между потерями энергии и изменением скорости ультразвуковых волн в процессе насыщения металлов водородом и при радиационном воздействии.

Для исследования механических характеристик в металлах и сплавах использовали методику **измерения скорости звука**. Используемый прибор предназначен для измерения частоты автоциркуляции ультразвуковых колебаний в материалах, скорость распространения ультразвуковых рэлеевских волн в которых находится в диапазоне от 2000 до 3000 м/с. Измерение скорости звука можно проводить в процессе радиационного воздействия в режиме *in situ*.

В качестве вспомогательных методов при анализе систем металл-водород использовались *магнитные и вихрековые методы*, а также *метод измерения электросопротивления*.

В главе представлены разработанные нами методы и методики исследования содержания и миграции водорода в металлах, а также способ снижения погрешностей измерений содержания водорода, вызванных воздействием анализирующего пучка. На базе метода ядер отдачи был разработан метод одновременного анализа изотопов водорода и гелия, позволяющий в одном измерении определять абсолютное содержание и распределение по глубине примеси водорода и гелия в поверхностных слоях материалов.

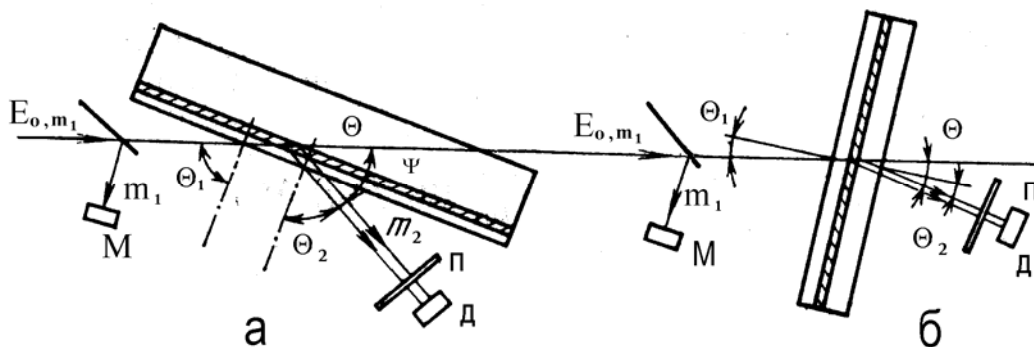


Рис. 1. Геометрия эксперимента на отражение (а) и на пролет (б): $М$ – монитор; $П$ – поглотитель; $Д$ – детектор

Геометрия эксперимента и энергетический спектр ядер отдачи водорода, дейтерия и гелия представлены на рис. 1 - 4. Метод разрабатывался специально для изучения воздействия высокотемпературной плазмы и потоков легких ионов на конструкционные материалы. Для достижения хороших аналитических характеристик, для анализа были использованы пучки тяжелых ионов с энергией около 1 МэВ/нуклон.

Исследование сечений упругого рассеяния измеренных методом ядер отдачи по разработанной нами методике в диапазоне энергий взаимодействующих ядер, близких к кулоновскому барьеру, показало, что в них присутствуют узкие резо-

нансы, по ширине сравнимые с энергетическим разрешением метода. Сечение в резонансах на один – два порядка превышает резерфордское сечение рассеяния.

В работе показано, что ряд изолированных резонансов в упругом рассеянии можно использовать для анализа изотопов водорода. Резонанс 1,735 МэВ в упругом рассеянии ${}^1\text{H}({}^{12}\text{C}, p){}^{12}\text{C}$ (рис. 3) можно использовать для анализа водорода, а резонанс 2,1 МэВ в упругом ${}^2\text{H}(\alpha, d){}^4\text{He}$ рассеянии - для анализа дейтерия. Особенностью этих резонансов является то, что наиболее высокое сечение (до 4 барн) достигается на углах регистрации ядер отдачи близких к нулю. На углах регистрации ядер отдачи более 35 градусов эти резонансы уже не наблюдаются. Применение резонансов позволяет добиться увеличения чувствительности анализа прибли-

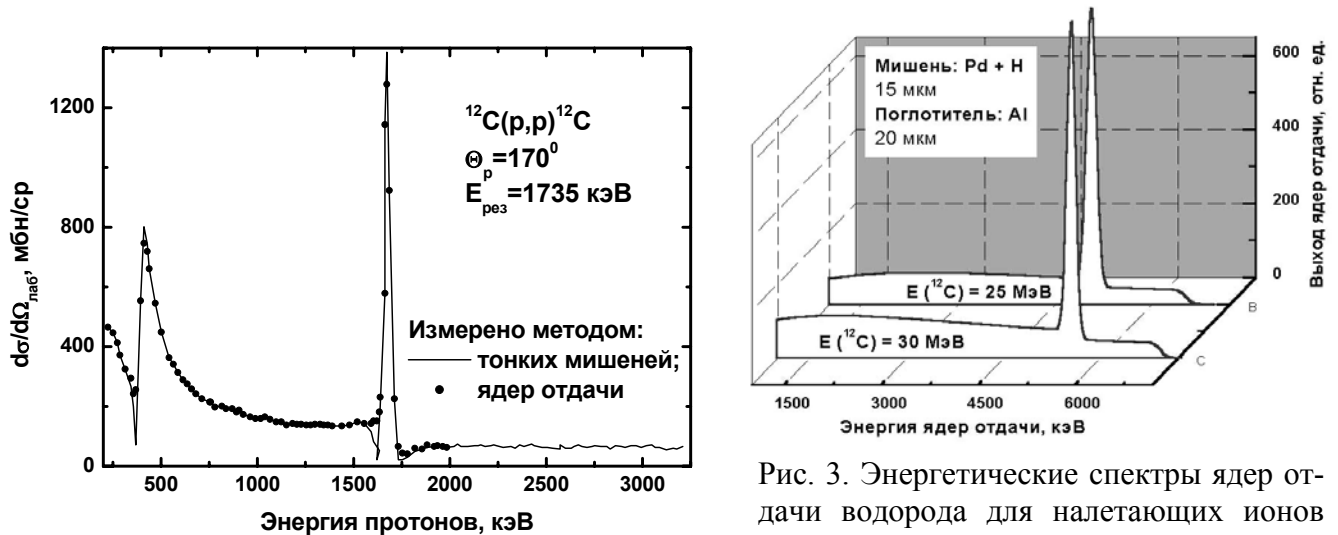


Рис. 3. Энергетические спектры ядер отдачи водорода для налетающих ионов углерода с энергией 30 и 25 МэВ

Рис. 2. Резонанс 1,735 МэВ в сечении упругого p - ${}^{12}\text{C}$ рассеяния. Сплошная кривая - данные работы². Точками показаны данные, измеренные методом ядер отдачи для угла регистрации 5°

зительно на порядок. Послойный анализ проводится аналогично известному методу анализа Н, основанному на использовании резонансной ядерной реакции ${}^1\text{H}({}^{15}\text{N}, \alpha\gamma){}^{12}\text{C}$, только вместо регистрации гамма-квантов измеряют энергетические спектры ядер отдачи водорода или дейтерия. Энергию налетающих частиц увеличивают с некоторым шагом, начиная от резонансной до максимально возможной. При этом положение резонанса меняется от поверхности до глубины, определяемой энергией налетающих частиц (рис. 2).

Анализ дейтерия можно проводить, используя излучение радиоактивных источников альфа-излучения - изотопов плутония или полония, у которых одна из энергетических линий превышает 70% полной интенсивности распада. Проведены пробные измерения энергетических спектров для источника ${}^{238}\text{Pu}$ ($E_\alpha = 5,4989 \text{ МэВ}$).

Предложена методика изучения динамики миграции примеси и дефектов при радиационном воздействии. Для её реализации используются неразрушающие ядерно-физические методы контроля. Методика рассматривается на примере изучения миграции водорода под действием ионного пучка с помощью метода одновременного анализа изотопов H и He. Важность приложения именно к этому методу объясняется тем, что, как показывает мировой опыт, развитие метода ЯО идет в направлении использования микро - пучков и тяжелых ионов аргона, брома, йода, золота. Интенсивность воздействия повышается, и, соответственно, возрастает вероятность миграции легких примесей. Методика исследования миграции примесей заключается в следующем (рис. 4): энергетический спектр разбивается на ряд интервалов; для каждого интервала в процессе измерения ЭС строится зависимость выхода ядер отдачи от дозы падающих частиц, которая затем может быть преобразована в функциональную зависимость содержания или концентрации примеси от дозы или времени облучения. Используемая методика дает возможность получать информацию о характеристиках взаимодействия излучения с

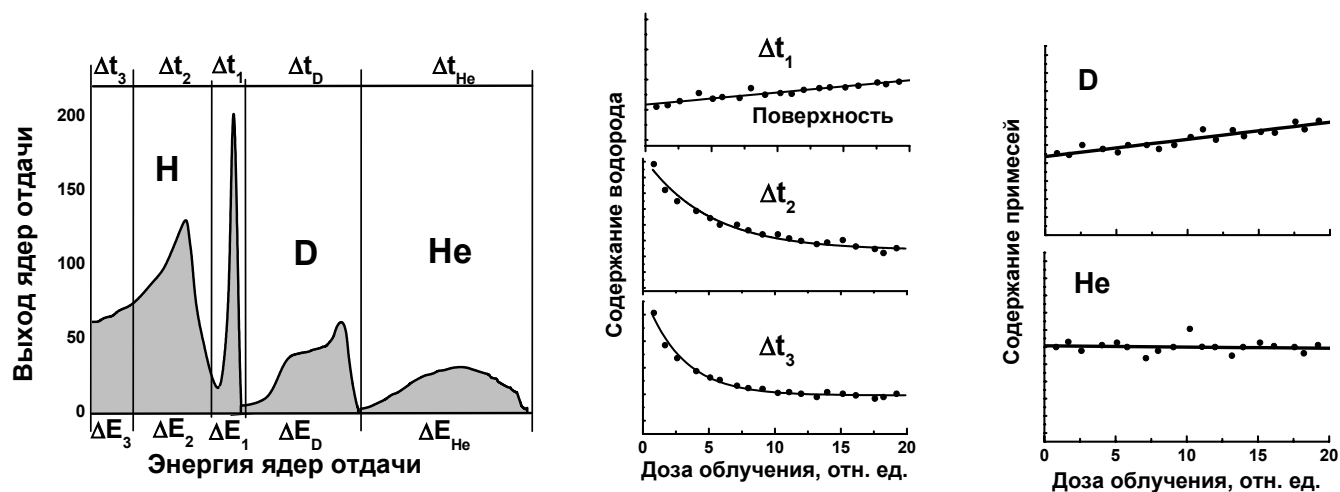


Рис. 4. Зависимость содержания примеси водорода на заданных глубинах (Δt_1 , Δt_2 , Δt_3), дейтерия и гелия от дозы анализирующего пучка ионов

легкими примесями (сечение выхода водорода из металла) и перераспределении примесей внутри анализируемого слоя при облучении.

В первом приближении, считая, что выход водорода можно описать некоторым суммарным сечением σ_H , изменение его содержания на некоторой глубине можно представить в виде:
$$\frac{dC_H}{dn} = -\sigma_H C_0 \exp(-\sigma_H n).$$

Здесь C_0 - начальное содержание водорода. Тогда содержание примеси в момент времени t будет равно: $C_H = C_0 \exp(-\sigma_H J_0 t)$.

Где n и J_0 - число частиц и плотность тока ионного пучка.

В случае двух типов воздействий (например, при термическом и ионизационном) зависимость содержания примеси от потока ионов пучка можно представить в виде суммы двух экспонент:

$$C_H = C_1 \exp(-\sigma_1 J_0 t) + C_2 \exp(-\sigma_2 J_0 t).$$

$$C_0 = C_1 + C_2; \sigma_H = \sigma_1 + \sigma_2.$$

где σ_1 и σ_2 - сечения выхода Н в результате термического и ионизационного воздействия, соответственно. C_1 и C_2 – постоянные коэффициенты, дающие в сумме начальную концентрацию водорода. Этот же формализм можно использовать в случае радиационного воздействия на примесь Н, находящуюся в ловушках с различными энергиями связи и имеющую, соответственно, разные сечения выхода водорода.

Восстановление профилей распределения и энергетических спектров, которые были до начала облучения, проводили путем экстраполяции зависимостей концентрации примесей (или выхода рассеянных частиц) от дозы облучения в начало координат. В главе приведены примеры восстановления энергетических спектров ядер отдачи. Для повышения точности определения начального содержания водорода внедрили достаточно простую расчетную методику, которая позволила снизить влияние изменения плотности тока ионного пучка на концентрацию анализируемой примеси: величину выхода ядер отдачи ΔN для каждого энергетического интервала умножали на коэффициент $k_i = \frac{\Delta t_{cp}}{\Delta t_i}$, где Δt_i и Δt_{cp} – время измерения i – го парциального энергетического спектра и среднее время измерения парциальных ЭС.

Разработана методика измерения объема и мест выхода выделяющегося из металла водорода при облучении рентгеновскими квантами. Количество газа определяют с помощью оптического микроскопа по площади газовых пузырей, образующихся в глицерине между поверхностью исследуемого металла и тонким предметным стеклом.

Разработана методика определения дефектности систем металл-водород путем измерения профилей распределения водорода (декорирование дефектов атомами водорода). Исследование корреляций между содержанием водорода и уровнем дефектов в металлах убедительно показали, что существует связь между содержанием дефектов и концентрацией водорода в металлах. Водород служит своеобразным индикатором концентрации и распределения дефектов в металлах и сплавах. Благодаря своей подвижности он способен мигрировать из мест, обедненных дефектами, в наиболее дефектные области металла. Для стимулирования этих процессов можно использовать термический нагрев или радиационное воздействие. Разработка методики определения дефектности включала анализ данных о характеристиках дефектов, являющихся ловушками для атомов водорода в металлах и сплавах, расчет и экспериментальное изучение оптимальных параметров анализа водорода и дефектов, а также исследование влияния дефектов на динамику миграции водорода в процессе измерения.

Предложен способ определения глубины разрушения поверхностных слоев конструкционных материалов под действием гелиевого блистеринга (при облуче-

ния поверхности металла большими дозами гелия). Исследовался приповерхностный слой материала, содержащий поры, микропузыри или макродефекты, имеющие размеры 10 и более ангстрем. Ранее для подобных исследований авторы использовали оптическую или электронную микроскопию. Очевидным недостатком этих методов является невозможность определения глубины залегания дефектов без полного разрушения поверхности материала. Для таких исследований делают косые срезы, обнажающие внутренние (подповерхностные) области материала, что приводит к значительным трудностям и, как следствие, снижению достоверности полученных результатов. Методы каналирования и позитронной аннигиляции также непригодны, поскольку речь идет об анализе образцов, имеющих высокий уровень дефектов (разрушение приповерхностного слоя металла).

В главе также представлены способы извлечения информации из энергетических спектров ЯО и РОР, приведены основные соотношения для расчета ЭС.

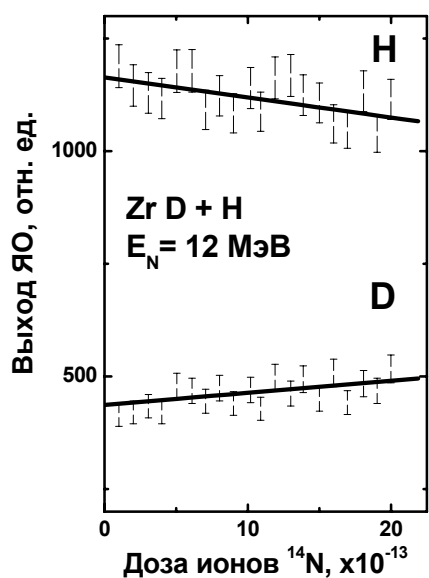


Рис. 5. Изменение содержания водорода и дейтерия в приповерхностной области ($0 \div 0,2$ мкм) дейтерида циркония при облучении 12 МэВ ионами ^{14}N

Проведено моделирование профилей распределения имплантированных ионов H и He и сравнение с экспериментальными результатами. Для расчета профилей распределения имплантированных ионов H и He использованы табличные данные работы³, в которой параметры пространственного распределения имплантированной примеси получены методом прямого численного решения интегральных уравнений для моментов. Сравнение расчетных и экспериментальных распределений для металлических образцов, содержащих имплантированные примеси H и He показало, что максимум распределения имплантированного водорода в экспериментальном распределении H сдвинут в сторону больших глубин, где содержится наибольшее количество гелиевых дефектов. Распределение имплантированного He также существенно отличается от расчетного: профиль существенно размывается, и гелий проникает на глубину, значительно превышающую средний проективный пробег.

3. Исследование миграции водорода в металлах и сплавах под действием пучков ускоренных ионов

В главе приведены результаты исследования миграции водорода в металлах и сплавах под действием ионных пучков методом ЯО и РОР. Экспериментальные исследования миграции водорода и дейтерия выполнены для ионов азота с энергией 12-16 МэВ на циклотроне НИИ ЯФ при ТПУ и гелия с энергиями от 1,7 до 3,5 МэВ на электростатическом генераторе НИИ ЯФ и институте ОИЯИ (г.

Дубна). Изучались гидриды и дейтериды ванадия, циркония, титана и сплавов этих металлов, бериллий, кроме того, исследовали миграцию Н в нескольких типах нержавеющей сталей. Исследовано влияние плотности тока ионного пучка на миграцию Н и дефектов, созданных пластической деформацией. В реакторных материалах проводили изучение влияния имплантированного гелия на миграцию водорода.

Получены три основных вида зависимостей концентрации водорода от дозы ионного облучения: линейная, экспоненциальная и сложная функциональная зависимость. Линейная зависимость (рис. 5) характерна для описания миграции изотопов водорода в дейтериде циркония. Чаще всего линейная зависимость наблюдалась для водорода, адсорбированного на поверхности металла. В этом случае накопление Н на поверхности объясняется его поступлением из газовой фазы, включающей пары масла (при вакууме ниже 10^{-5}). Концентрацию водорода можно представить в виде: $C = C_0(1 + \sigma jt)$, где C_0 – начальная концентрация примеси водорода, σ – сечение взаимодействия налетающих ионов с атомами водорода, j – плотность тока ионного пучка, t – время облучения.

Экспоненциальный спад концентрации показан на рис. 6 для образца ниобия, насыщенного электролитически водородом. Кроме того, экспоненциальный спад содержания Н наблюдали для всех исследованных нержавеющей сталей.

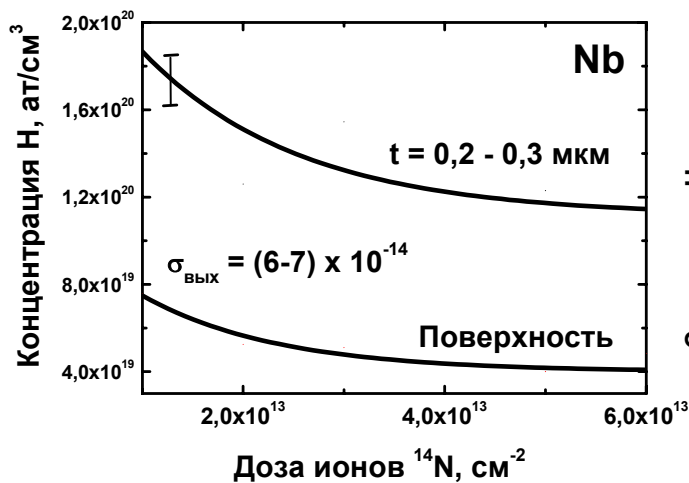


Рис. 6. Зависимость концентрации водорода на поверхности и в приповерхностном слое Nb от дозы облучения ионами ^{14}N . Плотность тока $j \approx 1,17 \times 10^{10}$ ион/см 2 /с

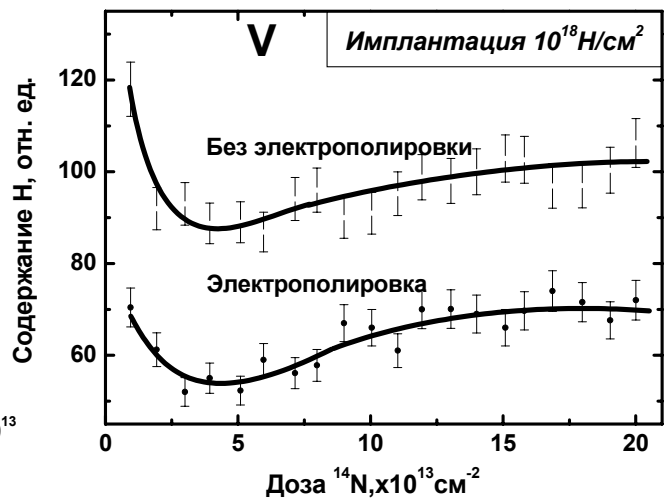


Рис. 7. Дозовые зависимости Н в ванадии при облучении ионами ^{14}N с энергией 12 МэВ. Перед облучением азотом в образцы имплантировали ионы водорода дозой 10^{18} Н/см 2

Сложную функциональную зависимость можно представить как сумму двух экспонент: $C = C_1 \exp(n_1 - \sigma_1 jt) + C_2(1 - \exp(n_2 - \sigma_2 jt))$, где σ_1 и σ_2 – сечения, определяющие скорость изменения концентрации водорода, n_1 и n_2 – константы взаимодействия.

На рис. 7 такая зависимость показана для имплантированного водородом ванадия (с разной обработкой поверхности), однако она наблюдается нередко и для других материалов (например, титана). Концентрация водорода в анализируемой области металла зависит от соотношения скоростей поступления водорода из глубины материала и радиационно-стимулированного выхода водорода из этой области. В начальный момент облучения водород выходит из объема металла, ограниченного площадью ионного пучка ($\sim 10 \times 4 \text{ мм}^2$) и глубиной, не превышающей пробега анализирующих частиц ($\sim 1,5\text{-}2 \text{ мкм}$), попадающих в область так называемого термического пика. Коэффициент радиационно-ускоренной диффузии из

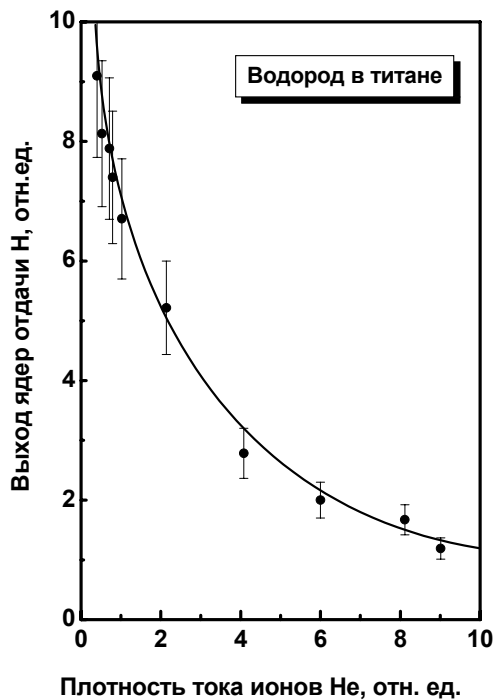


Рис. 8. Зависимость выхода ЯО Н в зависимости от плотности тока ионного пучка

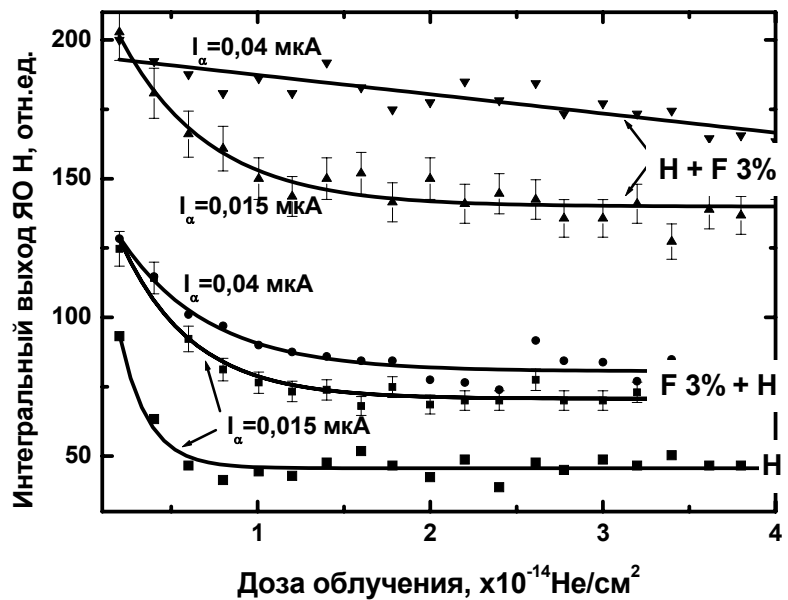


Рис. 9. Динамика выхода ядер отдачи водорода из титановых образцов, измеренных при различной плотности тока ионов ^4He

этой области превышает обычную диффузию Н при комнатной температуре. Поэтому в начальный момент облучения наблюдается резкое снижение содержания водорода в приповерхностном слое. Через некоторое время водород из глубинных областей материала начинает поступать в анализируемую область, и содержание водорода возрастает. Накопление водорода в этой области связано с ростом числа радиационных дефектов, образующихся в процессе облучения. Поступление водорода из глубины материала стимулировано возбуждением водородной подсистемы металла и незначительным термическим нагревом образца при облучении. Измеренные дозовые зависимости позволили определить сечения взаимодействия пучка с примесными атомами. Сечение находится на уровне $\sim 10^{-15} \text{ см}^2$, что существенно выше сечения ядерного взаимодействия.

При измерении ЭС ЯО водорода оказалось, что выход ЯО существенным образом зависит от плотности тока ионного пучка. Для титановых образцов, имеющих приблизительно равную начальную концентрацию Н, выход ЯО водорода в зависимости от плотности тока показан на рис. 8. Изменение плотности тока в 2 – 3 раза приводит к росту содержания Н вблизи поверхности приблизительно в 1,5 раза. Облучение проводили при токе пучка от 0,01 до 0,05 мкА при комнатной температуре (водяное охлаждение подложки). Однако, по литературным данным, миграция Н под действием ионных пучков наблюдается и для значительно более низких температур (вплоть до температуры жидкого азота).

Установлено, что при деформации образца после электролитического насыщения Н концентрация водорода в приповерхностной области существенно возрастает. Этот эффект связан с миграцией водорода к поверхности материала в процессе деформации. При дальнейшем облучении гелием происходит интенсивная миграция и выход водорода из приповерхностной области титана. Установившийся в конце облучения равновесный уровень выхода ЯО (и концентрации Н) определяется уровнем дефектов в металле и плотностью тока ионного пучка. При одинаковой плотности тока концентрация водорода пропорционально количеству дефектов, созданных при деформации (рис. 9).

Таким образом, при анализе Н результат измерения концентрации в значительной мере зависит от параметров ионного пучка. Для определения исходного содержания водорода с наименьшими искажениями следует до минимума снизить

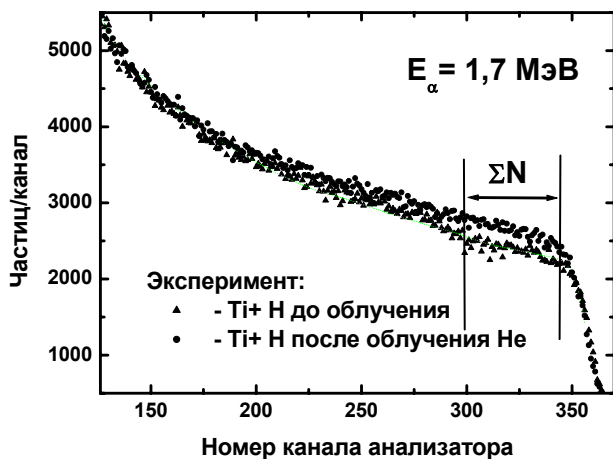


Рис. 10. Энергетические спектры POF электролитически насыщенного водородом титана до и после облучения гелием

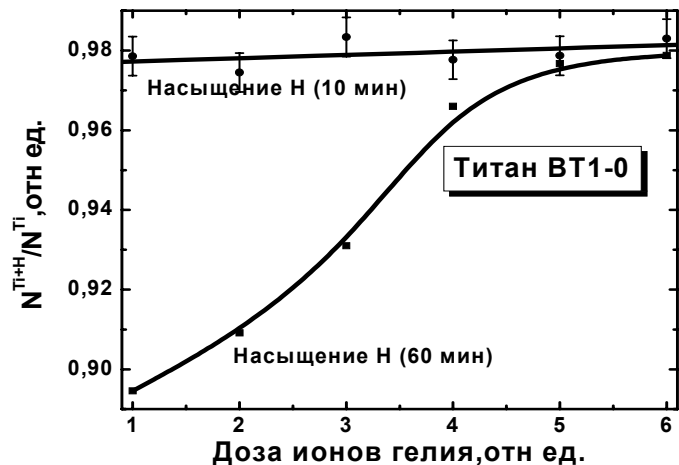


Рис. 11. Зависимость выхода рассеянных ионов гелия от дозы облучения

плотность тока и использовать методику измерения дозовых зависимостей. После чего необходимо провести интерполяцию этих зависимостей в начало координат ($t = 0$) и ввести поправки, связанные с искажением энергетического спектра или его отдельных участков. К сожалению, возникающая при этом ошибка остается значительной, поскольку наибольшее искажение профиля (изменение выхода ЯО)

проходит именно в первом измерении, поэтому рекомендуется наиболее полно использовать память компьютера, по возможности уменьшая время измерения “парциальных” спектров.

Применение методики измерения дозовой зависимости в сочетании с методом резерфордского обратного рассеяния для изучения миграции водорода в титане при облучении пучком гелия иллюстрируют рис. 10 и 11. Интенсивный выход водорода приводит к росту числа рассеянных частиц в интегрируемой области энергетического спектра. В результате ЭС от насыщенного водородом образца по форме постепенно приближается к энергетическому спектру от отожженного титана.

На примере исследования нержавеющей стали и сплавов V и Ti установлено-

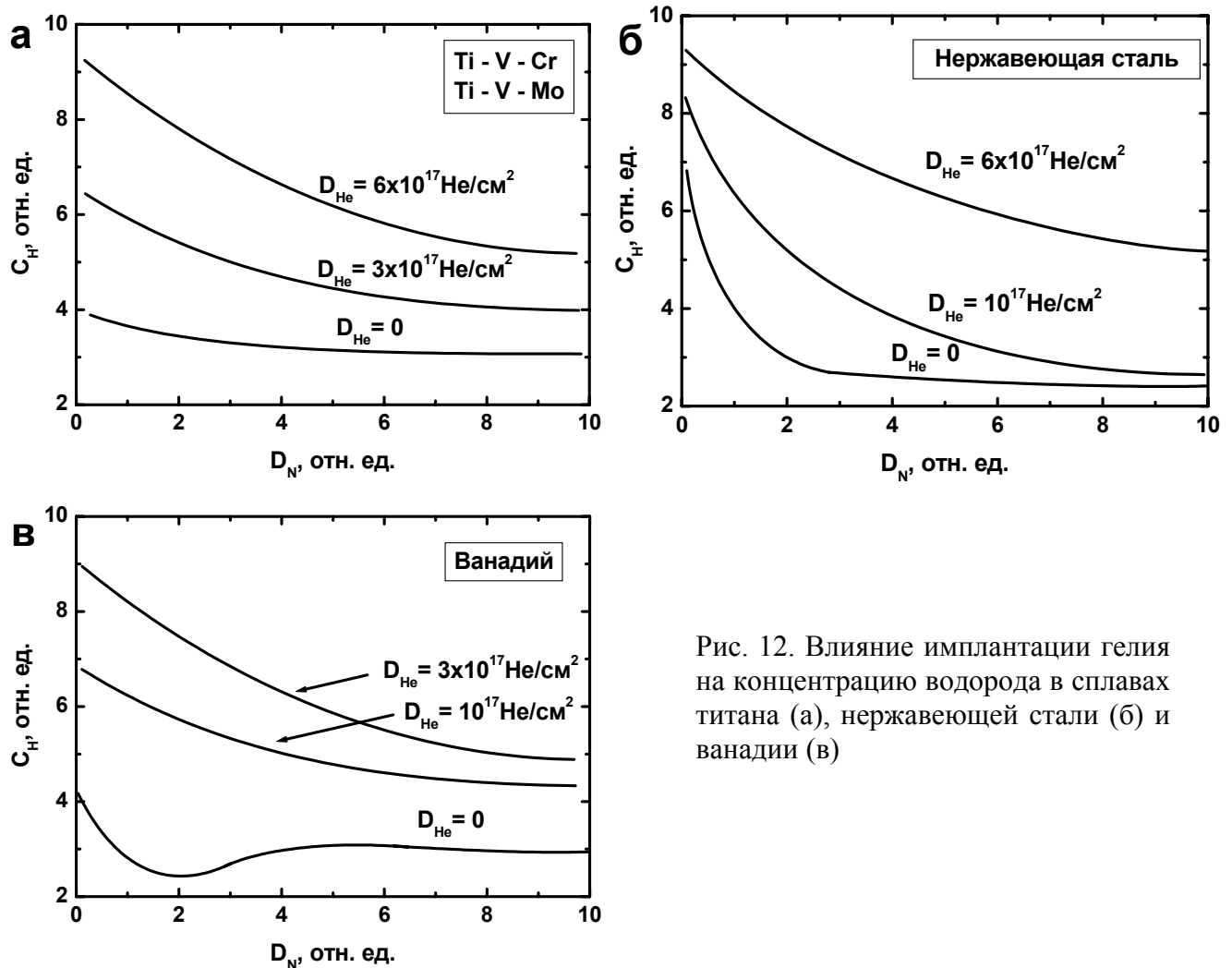


Рис. 12. Влияние имплантации гелия на концентрацию водорода в сплавах титана (а), нержавеющей стали (б) и ванадии (в)

но, что внедрение гелия меняет характер зависимости $C_H = f(D_{He})$. Анализ результатов влияния имплантации гелия на дозовые зависимости водорода для нержавеющей стали, сплавов титана и ванадия представлен на рис. 12. Для сплавов V и Ti общей тенденцией с ростом дозы внедрения гелия является переход от незначительного накопления водорода в приповерхностной области к постепенному спаду

и далее, к резкому снижению концентрации Н (при дозе 6×10^{17} He/cm², рис. 12 а). Для сталей, наоборот, наиболее сильное снижение концентрации в начальный момент облучения наблюдается для низких доз облучения гелием (и для исходного материала, рис. 12 б). Результат, по-видимому, вызван тем, что с ростом дозы гелия накопление Н идет в полостях гелиевых микропузырей, где он находится в адсорбированном виде или в виде молекул. В сплавах большое количество Н может присутствовать в растворенном виде и в виде гидридов, имеющих более слабые связи с атомами металлов.

После выхода дозовых кривых Н на насыщение, содержание водорода пропорционально дозам внедрения гелия. Это позволяет по уровню концентрации Н оценивать концентрацию дефектов, внесенных при имплантации. Установлено, что последовательное (с водородом) внедрение гелия в нержавеющую сталь не меняет характера миграции водорода при облучении ионами азота. Содержание

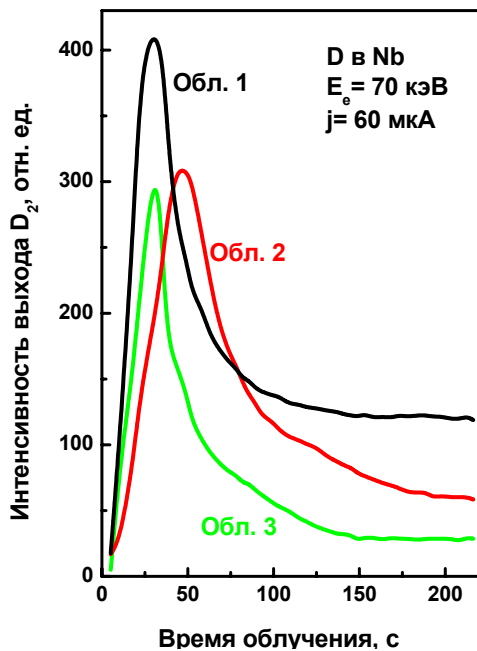


Рис. 13. Кинетические кривые радиационно-стимулированного выхода дейтерия из ниобия при облучении электронным пучком. $E_e = 70$ кэВ, $j = 60$ мкА: 1 - выход дейтерия из ниобия после электролитического насыщения дейтерием; 2 - повторное облучение Nb через 24 ч; 3 - облучение через 72 ч после первого опыта

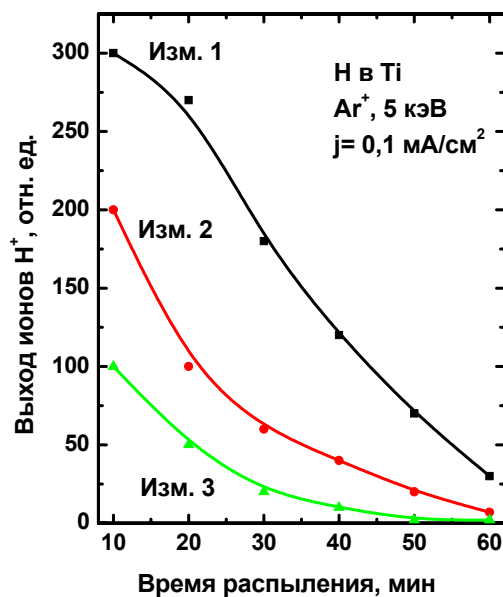


Рис. 14. Выход ионов водорода H^+ в зависимости от времени воздействия зондирующего пучка Ar^+ для трех последовательных измерений. После каждого измерения образец выдерживался в вакууме в течении 12 часов

водорода, адсорбированного на поверхности стальных образцов имплантированных He, возрастает с ростом дозы облучения ионами азота.

Влияние миграции водорода на результаты исследований является общей проблемой как для ядерно-физических, так и для атомных методов, использующих для анализа пучки ионизирующего излучения. При исследовании систем металл-

водород методом ВИМС и методом электронно-стимулированной десорбции также было отмечено влияние перераспределения примеси водорода в процессе облучения. На рис. 13 показаны кривые десорбции дейтерия из образца ниобия, облученного электронами через различные промежутки времени. Видно, что по прошествии 24 и 72 часов концентрация дейтерия вблизи поверхности частично восстанавливается и количество десорбированного водорода возрастает. Такой же результат был получен при анализе водорода методом ВИМС при облучении титанового образца, насыщенного водородом (рис. 14) и измеренного в той же последовательности: электролитическое насыщение, затем чередование операций измерение-выдержка в вакууме.

4. Исследование поведения водорода и дефектов при облучении металлов рентгеновскими квантами и электронами

В главе представлены результаты исследования влияния облучения рентгеновскими квантами и электронами на миграцию и выход водорода из нержавеющей стали и титана. Особое внимание направлено на анализ условий, обеспечивающих выход водорода из металлов и изменение дефектности металлов при электролитическом насыщении водородом, термическом отжиге и воздействии потоков ионизирующего излучения. Особенностью проведенных исследований было то, что энергия используемых для облучения рентгеновских квантов и электронов выбрана ниже порога образования дефектов.

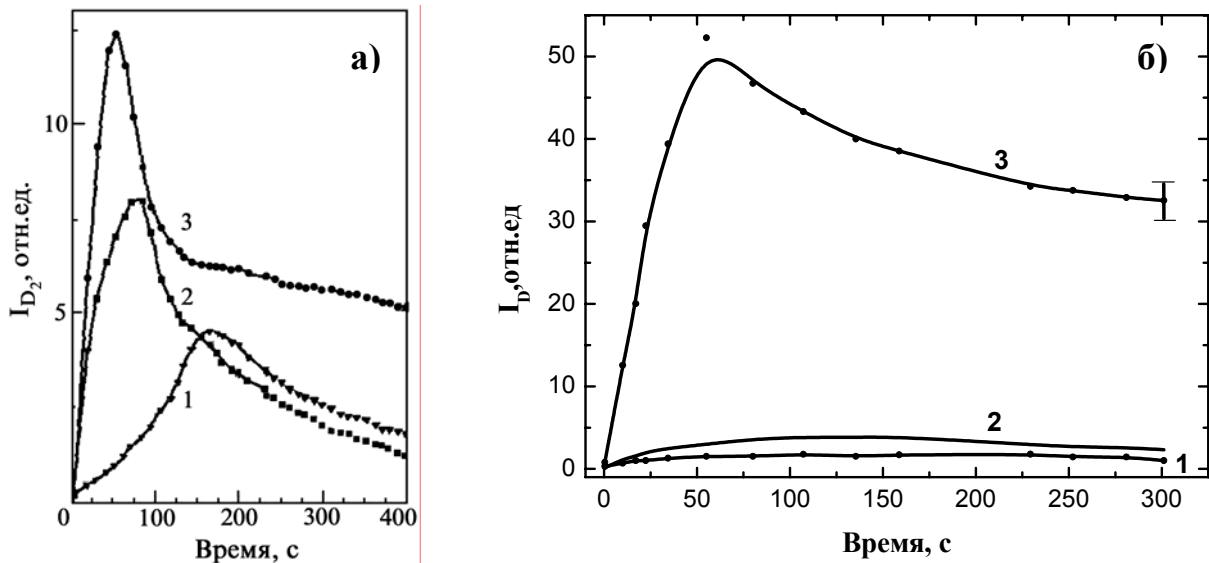


Рис. 15. Интенсивность выхода дейтерия из нержавеющей стали (а) и титана (б) под действием электронного пучка ($E = 20$ кэВ): 1 – 50 мкА; 2 – 100 мкА; 3 – 150 мкА

Изучена зависимость десорбции дейтерия от плотности тока стимулирующего электронного пучка. На рис. 15 показаны кинетические кривые газовыделения из нержавеющей стали и титана под действием электронного пучка. В этих измерениях температура внешней стороны образца нержавеющей стали в области действия электронного пучка не поднималась выше 60 °С, а с тыльной стороны – 40 °С. Заметное газовыделение из титана начиналось только при температуре образца выше 200 °С, что связано с высокой энергией активации выхода дейтерия. В отсутствие электронного пучка при температуре образцов ниже 200 °С для стали (и 600 °С для титана) выделения дейтерия не наблюдается.

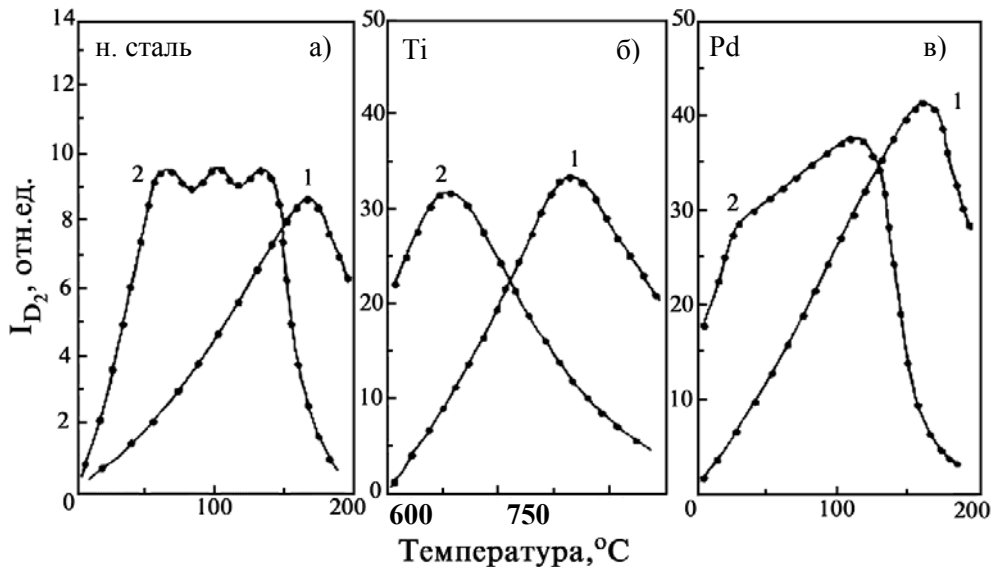


Рис. 16. Термовыделение дейтерия из нержавеющей стали (а), Ti (б) и Pd (в) в режиме линейного нагрева со скоростью 0,4 К/с: 1 - без электронного пучка; 2 - с электронным пучком, $E = 20$ кэВ, $I = 100$ (а), 50 (б) и 20 мкА (в)

Проведены масс-спектрометрические измерения скорости выхода дейтерия металлов при одновременном воздействии электронного пучка и линейном нагреве. Воздействие электронного пучка (рис. 16) существенно снижает энергию активации диффузии примеси дейтерия: у нержавеющей стали максимум газовыделения при линейном нагреве без пучка приходится на 180 °С, с пучком - на 80 °С; у титана - 650 и 875 °С, соответственно; у палладия - 170 и 85 °С.

Для образцов нержавеющей стали 12Х18Н10Т и титана проведены измерения количества водорода, выделяющегося при облучении рентгеновскими квантами, по площади газовых пузырей, образующихся в глицерине между поверхностью исследуемого металла и тонким предметным стеклом. Интенсивный выход водорода наблюдается только после механической очистки поверхности от окисной пленки, образованной после электролитического насыщения. Процесс выхода H из металла после облучения продолжается длительное время (не менее 10 часов).

Методом позитронной аннигиляции изучено влияние термического отжига и облучения электронным пучком на дефектную структуру титана ВТ1-0 с различной концентрацией внедренного Н. Проведен анализ возможных механизмов воздействия водорода, мигрирующего под действием ионизирующего излучения, на дефектность титана. Наиболее чувствительным к изменению энергетического спектра аннигиляционных квантов оказался F - параметр, определяемый отношением: $F = \frac{S}{W}$. Здесь, S и W параметры гауссианы, которые представляют собой отношение центрального пика и крыльев распределения к площади всего ЭС.

Сравнение накопления водорода и среднего времени жизни позитронов в титане показало, что содержание водорода возрастает, практически, по линейному закону (рис. 17 а), в то время как τ_{cp} резко увеличивается в течение первого часа насыщения образцов водородом, а затем кривая выходит на насыщение (рис. 17 в). Анализ разложения интенсивностей компонент времени жизни позитронов показывает значительное преобладание мелких дефектов над крупными в начальный момент насыщения. С увеличением времени насыщения образцов водородом происходит рост относительной интенсивности крупных дефектов (наиболее вероятно, микропор). Вакуумный отжиг, как и облучение электронами приводят к значительному уменьшению среднего времени жизни позитронов, что указывает на снижение уровня дефектности металла.

На примере титана и нержавеющей стали изучена корреляция между дан-

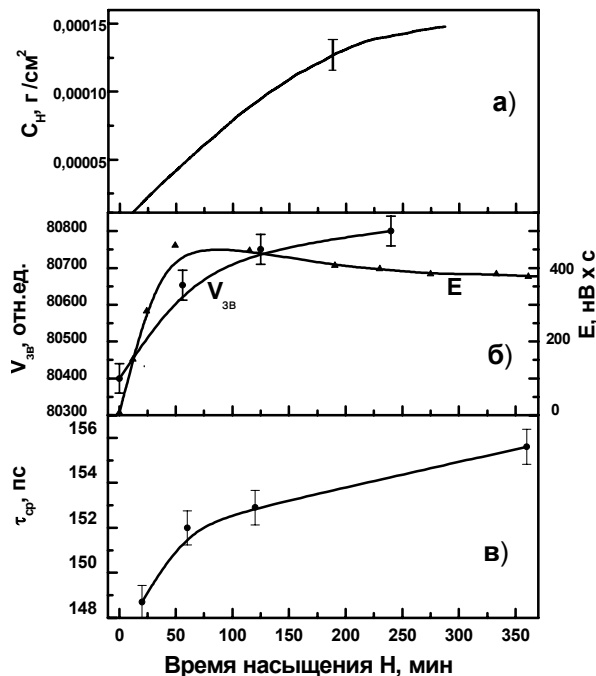


Рис. 17. Остаточное содержание водорода (а), скорость звука (б) и среднее время жизни позитронов (в) в зависимости от времени электролитического насыщения титана ВТ1-0

ными, полученными методом электрон-позитронной аннигиляции и скорости звука. Сравнение на качественном уровне результатов, полученных методом ПА, и данных акустических исследований, проведенных с помощью измерения скорости звука, показывают, что методика измерения скорости звука в ряде случаев пригодна для неразрушающего контроля накопления водорода в металле. При пластической деформации (растяжении) скорость звука снижается, а время жизни позитронов возрастает, что не противоречит существующим теоретическим представлениям и литературным данным. При электролитическом насыщении титана и нержавеющей стали водородом среднее время жизни позитронов и скорость звука возрастают приблизительно на 0,05%. (рис. 17). Рост времени жизни указывает на повышение числа крупных дефектов, а увеличение скорости

звука вызвано снижением пластичности металла при наводороживании. Внесение значительного числа дислокаций, согласно “струнной” теории, должно вызвать уменьшение скорости звука, а присутствие водорода (или иных точечных дефектов), наоборот, приводит к росту $v_{зв}$. Поэтому скорость звука в насыщенном H металле зависит от соотношения между количеством атомов водорода и числом дислокаций в единице объема. Наблюдаемый в эксперименте рост скорости звуковых волн сопровождается увеличением энергии акустических импульсов прошедших через образец (рис. 17, кривая E), что подтверждает достоверность полученного результата.

Изучено влияние облучения рентгеновскими квантами и электронами на скорость звука и параметры позитронной аннигиляции в металлах, насыщенных водородом и содержащих дефекты, полученные путем пластической деформации. При пластической деформации в металле появляется большое количество дислокаций и дефектов вакансионного типа. Установлено, что независимо от последовательности операций деформация - наводороживание скорость звука (рис. 17 а) снижается с ростом степени деформации титана. Деформация оказывает значительно более сильное влияние на скорость звука, чем насыщение водородом. Удлинение образца на 1% приводит приблизительно к такому же изменению скорости звука (на 0,5 %), как насыщение водородом в течение 4-х часов при плотности тока 0,5 А/см².

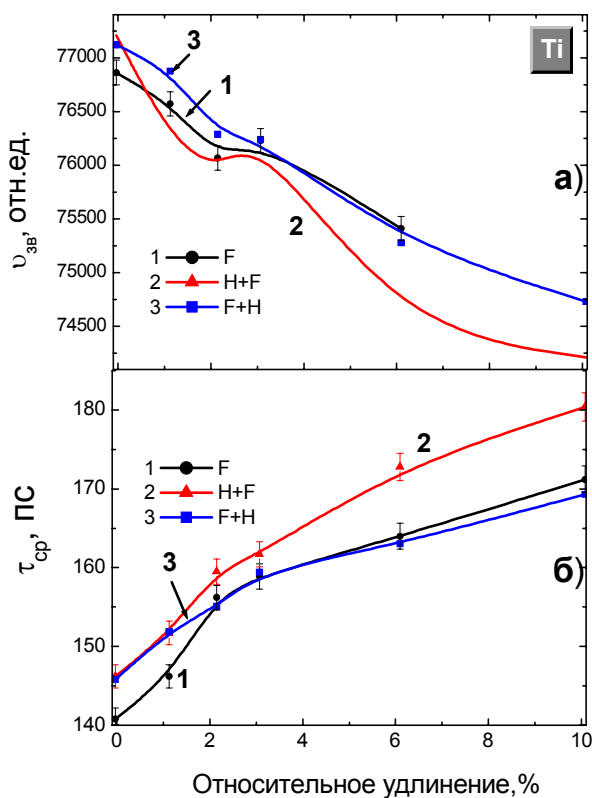


Рис. 18. Скорость звука (а) и среднее время жизни позитронов (б) в Ti в зависимости от величины относительного удлинения титановых образцов без насыщения H (кривая F); насыщенных водородом, затем растянутых (кривая H+F); растянутых и насыщенных водородом (F+H)

Как и следовало ожидать, механическое растяжение приводит к увеличению среднего времени жизни позитронов (рис. 18 б). Наиболее сильный рост $\tau_{ср}$ происходит на начальном этапе растяжения (от 1 до 2 %). Линейный рост среднего времени жизни наблюдается на участке от 2 до 10%. Таким образом, несмотря на разницу в физической природе результатов, полученных разными методами, отмечаются корреляции в изменении $v_{зв}$ и $\tau_{ср}$ от уровня накопления дефектов.

Наблюдается принципиальная разница в изменении дефектности титановых образцов в зависимости от последовательности операций: растяжение – наводороживание – облучение. Установлено, что время жизни позитронов после облуче-

наблюдается принципиальная разница в изменении дефектности титановых образцов в зависимости от последовательности операций: растяжение – наводороживание – облучение. Установлено, что время жизни позитронов после облуче-

ния электронами и рентгеновскими лучами титановых образцов, в которые вначале были внесены дефекты, а затем водород, увеличивается. При внесении дефектов после насыщения образцов водородом при небольшом уровне дефектности (в области относительного удлинения 1 – 2 %) дефектность титана после облучения снижается, время жизни уменьшается (для электронов) либо не меняется (при рентгеновском облучении). При увеличении степени растяжения дефектность облученных образцов по сравнению с необлученными возрастает. Проведенные исследования показали, что в металлах при облучении происходят два конкурирующих (встречных) процесса: с одной стороны, накопление радиационных дефектов – разупорядочение структуры кристаллов; с другой – аннигиляция дефектов, стимулированная мигрирующим водородом, упорядочение структуры кристаллов. Эти процессы зависят от многих факторов: свойств самого материала, наличия примесей, скорости накопления водорода, дефектов и наведенной активности, температуры облучения. Движение водорода стимулирует диффузию атомов и ведет к перестройке дефектной структуры металла.

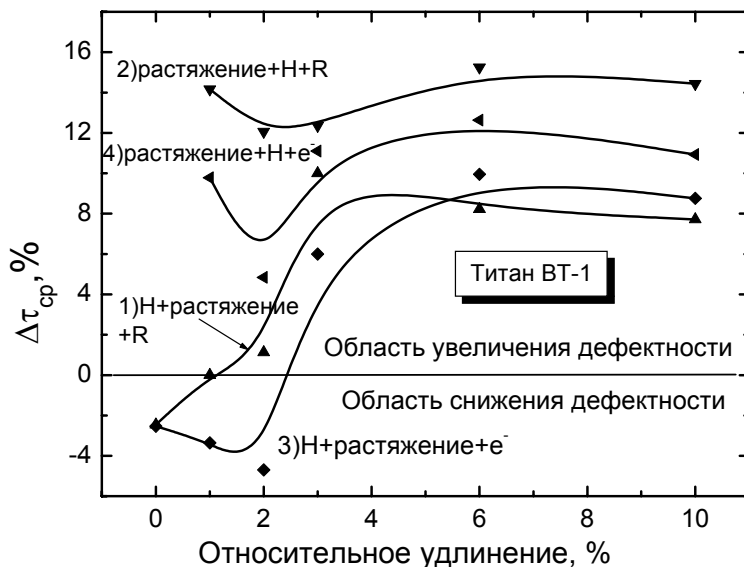


Рис. 19. Относительное изменение времени жизни позитронов в титане после облучения электронами (кривые 3, 4) и рентгеновскими квантами (кривые 1, 2) в зависимости от величины относительного удлинения образцов

В наших исследованиях облучение электронами и рентгеновским излучением проводили с энергиями ниже порога дефектообразования, поэтому новые дефекты в титане не возникали. Между тем результаты исследований большинства образцов показали рост времени жизни позитронов после облучения, указывающий на увеличение дефектности материала. Такой результат может быть связан с интенсивной перестройкой дефектной структуры, направленной на укрупнение имеющихся дефектов, или с движением дефектов после облучения из объема образца к поверхности (толщина образца 3000 мкм, а глубина анализа методом ЭПА 150 – 200 мкм). Не исключено, что в центре этих образцов образуются области, дефектность которых будет, наоборот, снижаться.

При высоком уровне деформации (при $\varepsilon > 2 \%$) процесс накопления дефектов при облучении преобладает, поскольку в образце присутствует большое число крупных стабильных дефектов, созданных растяжением и не исчезающих при аннигиляции. Наоборот, при малых деформациях создается структура, содер-

При высоком уровне деформации (при $\varepsilon > 2 \%$) процесс накопления дефектов при облучении преобладает, поскольку в образце присутствует большое число крупных стабильных дефектов, созданных растяжением и не исчезающих при аннигиляции. Наоборот, при малых деформациях создается структура, содер-

жащая соизмеримое количество дефектов, созданных растяжением и внедрением водорода. Анализ полученных результатов проведен с использованием зависимостей приращения времени жизни позитронов $\Delta\tau_{cp}$ от величины относительного удлинения образцов ε (рис. 19) для облученных образцов, по сравнению с исходными (без облучения). На этом рисунке область положительных значений δ соответствует росту крупных дефектов, отрицательная – снижению дефектности титана. Видно, что начальные участки кривых 1 и 2 (последовательность внесения дефектов Н + растяжение) расположены в области, соответствующей снижению дефектности после облучения. Особый интерес вызывает снижение дефектности для всех четырех кривых при величине $\varepsilon = 2\%$.

Использование акустических методов оказалось весьма эффективным при исследовании и контроле конструкционных материалов, работающих в условиях воздействия радиационного облучения. Нами рассмотрена роль водорода в стимулировании движения дефектов в релаксационных процессах при статическом нагружении и одновременном облучении нержавеющей стали 12Х18Н10Т и титана малыми дозами рентгеновского излучения (до 10^4 Р). Для этого использован метод

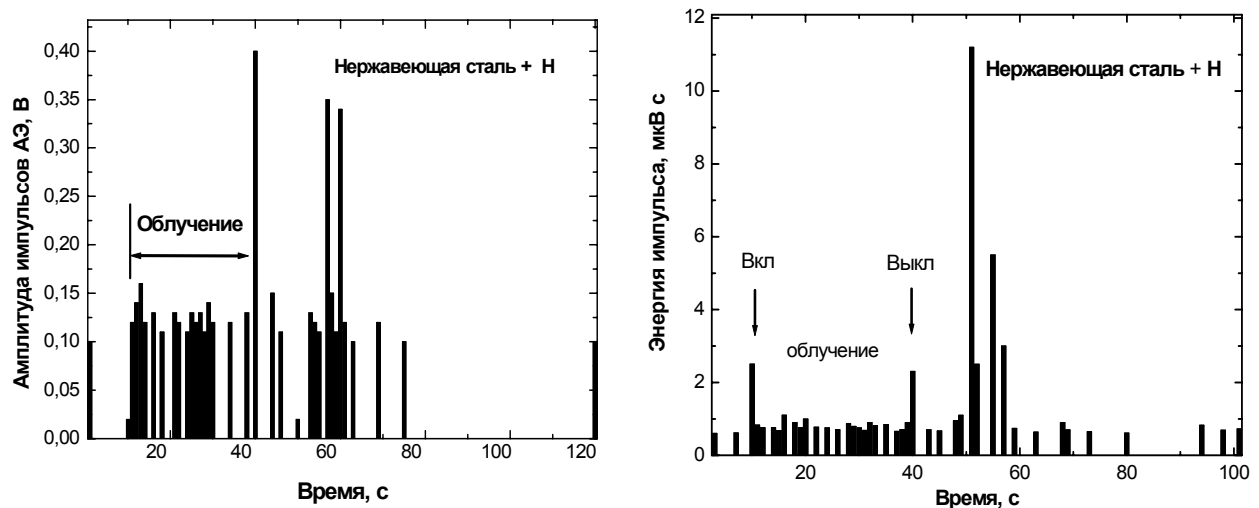


Рис. 20. Амплитуда и энергия сигналов АЭ при облучении рентгеновскими квантами нержавеющей стали 12Х18Н10Т, насыщенной водородом. Стрелками показано время включения и выключения рентгеновского аппарата

акустической эмиссии. Наибольшее внимание при исследовании уделяли исследованию релаксационных процессов, проходящих после выключения источника излучения. Установлено, что вскоре после прекращения облучения, обычно через 10-20 секунд, наблюдаются сигналы АЭ высокой амплитуды и значительной энергии (рис. 20). Предполагается, что появление таких сигналов АЭ связано с начавшейся интенсивной перестройкой дефектной структуры металла, стимулированного облучением в присутствии движущегося водорода. Для развития данного процесса был необходим некоторый инкубационный период, в течение которого некоторая часть водорода освобождается из ловушек. Основной причиной появ-

ления акустических импульсов, является отрыв водородных атмосфер от дислокаций, что является причиной их движения и инициирует появление акустических импульсов. На это указывают и наши данные по измерению скорости звуковых волн. Другим источником сигналов АЭ, предположительно, является аннигиляция пары вакансия - СМА.

5. Влияние водорода на захват имплантированного гелия в конструкционных материалы реакторов

Важнейшую часть диссертационной работы составляют рассмотренные в пятой главе результаты исследования взаимодействия Н с гелиевыми дефектами в конструкционных материалах термоядерного реактора, которые наглядно демонстрируют связь водорода с дефектами, внесенными путем ионной имплантации.

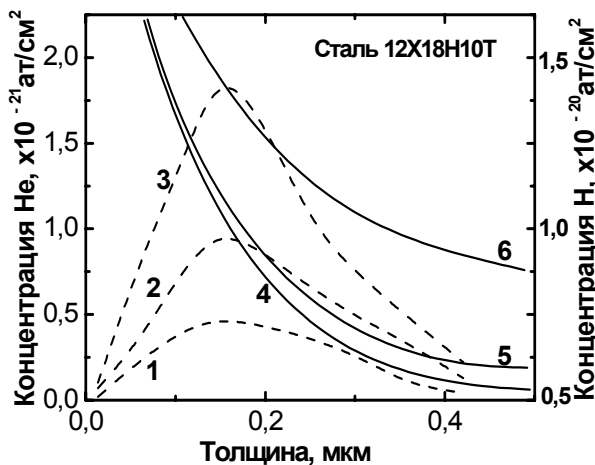


Рис. 21. Распределение примесей Н (—) и He (---) в приповерхностном слое образцов стали 12Х18Н10Т, имплантированных He с энергией 30 кэВ дозой $5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$ при температуре: 1, 6 — 293; 2, 5 — 673; 3, 4 — 723 К

ного водорода и гелия в нержавеющей стали при разных температурах имплантации гелия. Высокому содержанию водорода соответствует самая низкая концентрация He (при комнатной температуре внедрения). В работе предложена феноменологическая модель, объясняющая ускоренную миграцию гелия в присутствии примеси водорода.

Известно, что водород хорошо захватывается дефектами, и профиль концентрации водорода в металле совпадает с распределением дефектов. Мы использовали это свойство водорода для определения глубины разрушения материала под действием гелиевого блистеринга. Фазы разрушения поверхности металла при увеличении дозы внедренного гелия (рис. 22 слева) соответствуют вполне опреде-

Метод ядер отдачи наиболее подходит для этих исследований, поскольку позволяет одновременно получать данные о распределении водорода и гелия. Для изучения дефектов, образованных при имплантации использован метод растровой микроскопии, а также способ определения глубины разрушения материала путем декорирования водородом гелиевых дефектов.

Наиболее интересным из полученных результатов является снижение коэффициента захвата имплантированного гелия в металле в присутствии растворенного водорода. Показано, что операции, приводящие к очистке образца от водорода, (отжиг, электрополировка, очистка поверхности пучком ионов аргона) приводят к увеличению захвата гелия. На рис. 21 показаны профили распределения растворенного

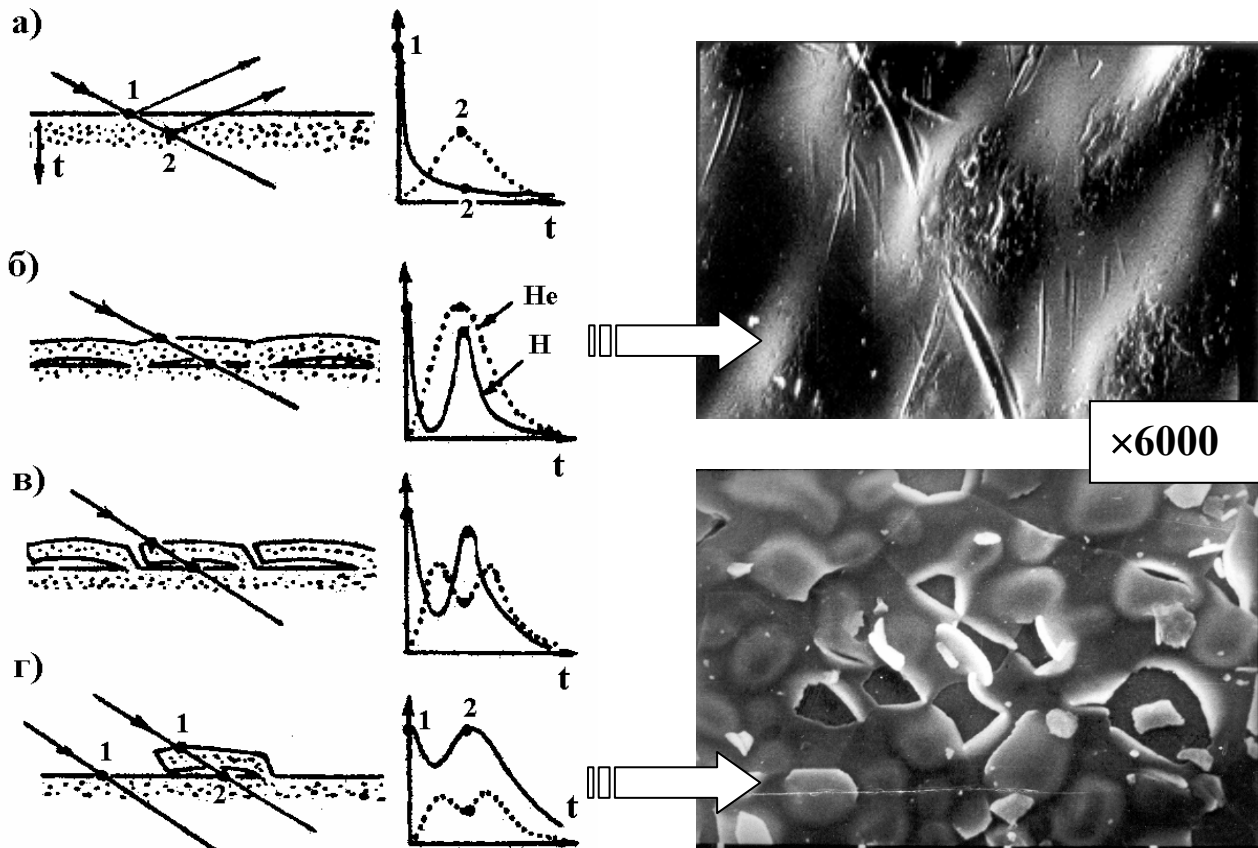


Рис. 22. Этапы разрушения поверхности металла под действием гелиевого блистеринга (слева), профили распределения водорода (сплошная линия) и гелия (пунктир) и микрофотографии поверхности стали 0X16H15M3B, облученной гелием дозой 10^{18} He/cm² при температурах 300 (б) и 600 К (г)

ленным профилям распределения водорода и гелия, измеренного методом ядер отдачи.

Положение максимума концентрации водорода определяет глубину разрушения (толщину крышек блистеров). Интегральная концентрация H дает представление о степени повреждения поверхности. Уширение поверхностного пика водорода обычно показывает степень шероховатости поверхности.

6. Роль электронной структуры в процессах неравновесной миграции водорода

Экспериментальные исследования показали, что при воздействии ионизирующего облучения ионным или электронным пучком, а также рентгеновскими квантами (в том числе и с энергией ниже энергии дефектообразования) наблюдается неравновесный выход водорода из металла. В диссертационной работе представлена феноменологическая модель, согласно которой предполагается, что, перейдя в возбужденное состояние, атомы водорода успеют уйти из своих регулярных положений и неравновесным образом продиффундировать в объеме образца,

прежде чем электронная подсистема релаксирует к равновесию. Это оказывается возможным в силу исключительно малой энергии активации диффузии водорода и её квантового характера (туннельный эффект), проявляющегося в широком диапазоне температур вплоть до комнатной. Одним из каналов снятия возбуждения будет передача импульса электрона атому водорода. Далее, полученная энергия путем колебательного обмена может эффективно перераспределяться между примесными атомами водорода. Таким образом, энергия излучения, в отличие от термического нагрева, может быть передана водородной подсистеме практически без передачи энергии матрице металла. Это приведет к ослаблению связи металл-водород и выходу водорода из металла.

Характеристика совокупности примесных атомов водорода как отдельной подсистемы металла объясняется её особыми коллективными свойствами. Например, возможность изменения фазового состава этой подсистемы (от газа до твердого раствора внедрения) путем изменения температуры или количества примесного водорода. Формирование структуры собственно водородной подсистемы в металле, т.е. возможность занимать определенные энергетически устойчивые положения, осуществляется путем упругого или деформационного (дальнодействующего) взаимодействия между атомами металла и водородом и короткодействующего электрохимического взаимодействия. Кроме того, следует учитывать взаимные связи между атомами водорода, растворенного в металле.

Предположение о возможности передачи энергии от электронной к водородной подсистеме основывается на результатах расчетов (из первых принципов) электронной структуры систем палладий-водород и титан-водород. Для расчета был выбран метод линейаризованных присоединённых плоских волн в скалярно-релятивистской версии. К достоинствам метода относятся: точность расчета, хорошая сходимость, способность рассматривать потенциалы общего вида без введения приближений для их формы, лёгкость, с которой могут быть учтены релятивистские эффекты.

Установлено, что наличие водорода приводит к существенной перестройке электронного спектра. На рис. 23 показаны спектральные распределения плотности электронных уровней титане для γ -фазы системы Ti-H со стабильной (тетраэдрической) и не стабильной (октаэдрической) координацией атомов водорода, а так же для чистого титана в структуре ГЦК. Как видно из рис. 23, связь между атомами водорода и титана осуществляют появляющиеся при растворении водорода гибридные $sH-sTi$, $sH-pTi$ и $sH-dTi$ металл-водородные состояния. Тот факт, что состояния, локализованные на водороде (связывающие и антисвязывающие), разделены запрещенной щелью, говорит о ковалентном характере связи металл-водород. Особенно хорошо это просматривается для случая октаэдрической координации атомов водорода. Ниже уровня Ферми и в области 10 эВ (выше уровня Ферми) в электронном спектре систем металл-водород образуются области повышенной плотности электронных состояний. Это приводит к появлению пика поглощения энергии излучения на уровне 13 эВ. Предполагается, что поглощен-

ная энергия с электронных связей металл-водород передается атомам водорода. При этом происходит интенсивная диффузия и выход водорода из металла.

Из расчета мнимой части диэлектрической проницаемости $\varepsilon_2(\omega)$, характеризующей поглощение излучения зонными электронами кристалла видно, что наличие водорода в решетке металла способствует повышению степени поглощения энергии излучения кристаллом. Известно, что коэффициент поглощения электро-

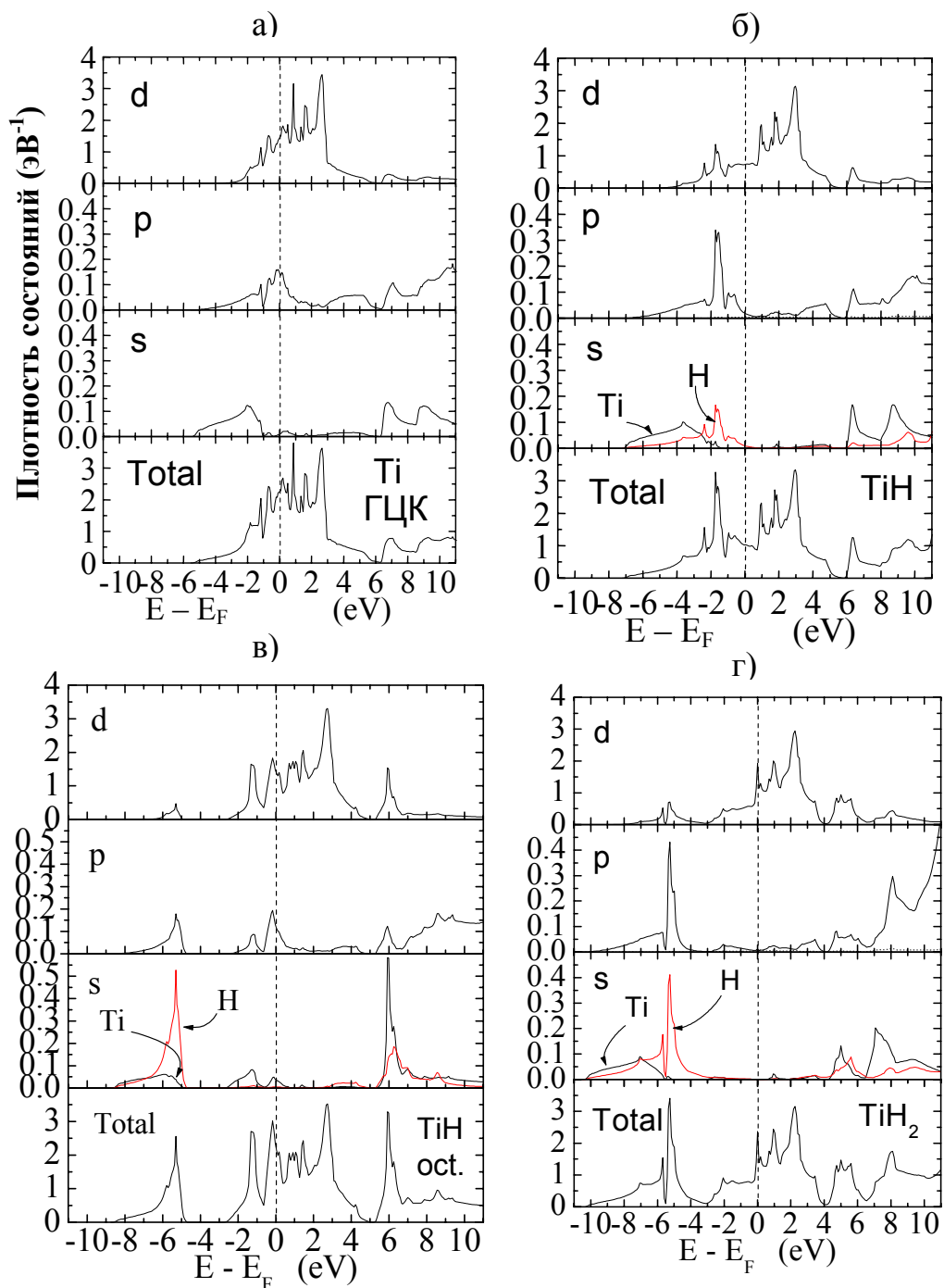


Рис. 23. Рассчитанные полные, локальные и парциальные плотности электронных состояний: *a* – чистый титан в ГЦК структуре; *б* – γ -TiH_x с $x=1,0$; *в* – γ -TiH_x с $x = 1,0$ (октаэдрическая координация); *з* – γ -TiH₂

магнитного излучения α однозначно связан с мнимой частью диэлектрической проницаемости среды ε_2

$$\alpha = \omega\varepsilon_2 / nc.$$

Таким образом, при растворении водорода повышается способность металла поглощать энергию облучения, обнаружены гибридные металл-водородные состояния, способные на некоторое время аккумулировать эту энергию.

Приложение. Изучение эрозии поверхности при наводороживании нержавеющей стали и титана

В приложении приведены данные по исследованию эрозии поверхности титана и нержавеющей стали при электролитическом насыщении водородом. Показано, что изменения поверхности титана, вызванные внедрением атомов водорода, отмечаются уже на первых минутах. Для нержавеющей стали, в отличие от титана, при времени насыщения водородом менее 1 часа заметной эрозии поверхности не наблюдается. При времени насыщения три часа и более обнаружено проявление границ зерен металла, вспучивание отдельных участков поверхности, а также отслоение пластин металла неправильной формы. Распухание и флекинг поверхности нержавеющей стали подобны эрозии, происходящей при облучении поверхности полиэнергетическими пучками водорода. По-видимому, дефекты в объеме материала сосредоточены по границам зерен, в результате чего происходит проявление их границ. Термоволновая микроскопия показала, что изменение плотности материала на границах зерен наблюдается и в глубине образца, в областях, где металл не контактирует с электролитом. Показано, что использование интерференционной микроскопии имеет хорошие перспективы для проведения количественного анализа изменений рельефа поверхности, вызванного внедрением водорода. Установлено, что насыщение металла водородом перед деформацией приводит к увеличению степени деформации поверхности.

Основные результаты

1. Разработана оригинальная методика измерений сечений упругого рассеяния и получены данные о резонансах в функциях возбуждения упругого рассеяния ионов ^{12}C , ^{14}N , ^{16}O с энергией $0,5 \div 1$ МэВ/нуклон на ядрах водорода. Сравнение с расчетными данными показало, что измеренные сечения упругого рассеяния имеют существенные отличия от резерфордских. Этот факт указывает на то, что взаимодействие ускоренных ионов с ядрами водорода в рассмотренном диапазоне энергий носит сложный характер и для его описания необходимо учитывать как кулоновские, так и ядерные силы. Полученные результаты использованы в диссертационной работе для извлечения количественной информации о распределении и интегральной концентрации водорода и получения данных о природе взаимодействия примесных атомов водорода с атомами матрицы.

2. Написаны программы, позволяющие извлекать информацию о распределении концентрации и сечениях рассеяния из энергетических спектров ядер отдачи.
3. Разработаны новые неразрушающие методы анализа изотопов водорода, обладающие высокой чувствительностью и позволяющие получать количественную информацию о распределении примеси водорода по глубине материала. Методы основаны на использовании резонанса 1,735 МэВ в упругом $p - {}^{12}\text{C}$ рассеянии и резонанса 2,1 МэВ в $\alpha - d$ рассеянии. Теоретически изучены аналитические характеристики предложенных методов. Физической основой методов служат экспериментальные и теоретические данные о взаимодействии легких ядер с энергиями ниже кулоновского барьера с твердым телом.
4. Разработана новая методика изучения миграции изотопов водорода под действием ионных пучков. Установлено, что при облучении систем металл-водород ускоренными ионами азота с энергий $12 \div 16$ МэВ и плотностью тока $0,01 \div 0,001$ мкА/см² наблюдается три основных вида зависимостей изменения содержания водорода в приповерхностной области материала от дозы облучения: линейная зависимость, экспоненциальное снижение содержания Н и зависимость, представляющая собой сумму двух экспонент. Дано физическое обоснование природы полученных зависимостей.
5. На примере экспериментального исследования нержавеющей сталей и сплавов Ti и V установлено, что имплантация гелия меняет характер зависимости концентрации водорода от дозы облучения ионным пучком. Для сплавов Ti и V общей тенденцией с ростом дозы внедрения гелия является переход от незначительного накопления водорода в приповерхностной области к постепенному спаду, а далее к резкому снижению концентрации Н (при дозе 6×10^{17} He/см²). Для сталей, наоборот, наиболее сильное снижение концентрации в начальный момент облучения наблюдается для низких доз облучения гелием (и для исходного материала). Результат объясняется различием в природе связей водорода с дефектами. В стали с ростом дозы гелия накопление Н идет в полостях гелиевых микропузырей, где водород находится в адсорбированном виде или в виде молекул. В то время как в сплавах большое количество Н может присутствовать в растворенном виде и виде гидридов, имеющих более слабые связи с атомами металлов.
6. Установлено, что наличие в металле растворенного водорода снижает захват имплантированного гелия. Удаление водорода из металла путем вакуумного отжига, длительного распыления поверхности ионами аргона или электрополировки приводит к увеличению пиковой концентрации гелия в приповерхностной области и ускоренному разрушению материала под действием гелиевого блистеринга. Показано, что перераспределение гелия связано с изменением профиля распределения дефектов в области внедрения. Предложена феноменологическая модель, объясняющая закономерности динамики накопления имплантированного гелия при наличии в металле примесного водорода.

7. Разработан способ устранения погрешностей измерений, вызванных миграцией водорода при облучении анализирующим пучком ионов, при анализе систем металл-водород ядерно-физическими методами.
8. Экспериментально установлено, что под действием ионизирующего излучения происходит радиационно - стимулированный выход водорода из металла. Разработаны методики изучения неравновесного выхода из металла. Физическая природа этого явления связана с неравновесным состоянием внутренней водородной атмосферы в металлах.
9. Установлено, что присутствие водорода в металле существенно увеличивает интенсивность выхода сигналов акустической эмиссии при пластической деформации и радиационном воздействии. Полученные данные свидетельствуют об интенсивной перестройке дефектной структуры металлов, стимулированной движущимся водородом. Эти процессы не останавливаются после прекращения облучения, но их интенсивность значительно ослабевает со временем.
10. Ядерно-физическими и атомными методами проведен комплексный анализ систем металл-водород. Изучены корреляции между параметрами, характеризующими накопление водорода и дефектов в металлах. Установлено, что особенности методов атомного и ядерного анализа систем металл-водород в первую очередь связаны с высокой подвижностью водорода в металлах. Исследования показали, что данные о распределении водорода можно использовать для определения уровня дефектности материала. В тоже время данные, полученные методом позитронной аннигиляции и акустическими методами, содержат информацию о количестве внесенного в металл водорода. Разработана методика определения глубины залегания и уровня дефектности в металлах при высокодозовой ионной имплантации.
11. С целью детального изучения механизмов воздействия ионизирующего излучения на системы металл-водород выполнен расчет электронной структуры *Ti-H*. На основе анализа полученных результатов выявлены факторы, способные значительно повлиять на процесс поглощения излучения веществом. Предложена гипотеза, согласно которой возбуждение водородной подсистемы металла связано с возникновением под воздействием облучения неравновесного пространственного и энергетического распределения валентной электронной плотности в кристалле.

ЛИТЕРАТУРА

1. Баумбах Х, Кренинг М, Тюрин Ю.И., Чернов И.П., Черданцев Ю.П. Неравновесные системы металл-водород. Титан, нержавеющая сталь. Томск: Изд-во Том. Ун-та, 2002. 350 с.
2. Чернов И.П., Черданцев Ю.П., Тюрин Ю.И. Методы исследования систем металл-водород. М.: Энергоатомиздат. 2004. 270 с.
3. Черданцев Ю.П., Чернов И.П. Миграция водорода в металлах под действием легких ионов// Физика и химия обработки материалов. 2005. №1. С. 22-26.

4. Чернов И.П., Черданцев Ю.П., Сохорева В.В., Кобзев А.П. Изучение миграции водорода в титане под действием ускоренных ионов гелия// Поверхность. 2005. №4. С. 17-21.
5. Чернов И.П., Черданцев Ю.П., Гаранин Г.В., Лидер А.М., Сурков А.С. Альтернативная энергетика и экология// 2005. №5. С. 45-49.
6. Чернов И.П., Черданцев Ю.П., Лидер А.М., Тюрин Ю.И., Кренинг М., Баумбах Х. Накопление и удаление водородных дефектов при радиационной и термической обработке титана// Физика и химия обработки материалов. 2002. №3. С. 55-59.
7. Чернов И.П., Лидер А.М., Черданцев Ю.П., Гаранин Г.В., Никитенков Н.Н., Кренинг М., Сурков А.С. Дефекты в титане, инициированные водородом// Физическая мезомеханика. 2001. Т. 3. №6. С. 97-103.
8. Чернов И.П., Черданцев Ю.П., Лидер А.М., Гаранин Г.В., Никитенков Н.Н., Кренинг М., Баумбах Х. Исследование динамики образования трещин в нержавеющей стали и титане при насыщении водородом// Физика и химия обработки материалов. 2001. №2. С. 18-25.
9. Chernov I.P., Tjurin J.I., Cherdantzev J.P., Kroning M., Baumbach H. Hydrogen migration and release in metals and alloys at heating and radiation effects// Intern. J. Hydrogen Energy. 1999. V. 24. P. 359-362.
10. Чернов И.П., Мельникова Т.Н., Черданцев Ю.П., Кренинг М., Баумбах Х. Выход продуктов ядерных реакций при насыщении дейтерием композиционных материалов и слоистых структур// Известия Вузов. Физика. 1998. №7. С. 36-41.
11. Чернов И.П., Тюрин Ю.И., Черданцев Ю.П., Кренинг М., Баумбах Х. Радиационно-стимулированный выход водорода из металлов и сплавов// Физика и химия обработки материалов. 1998. №2. С. 9-13.
12. Чернов И.П., Черданцев Ю.П., Абдрашитов В.Г., Мирончик В.Г. Поведение имплантированного водорода в бериллии// Поверхность. 1996. №1. С. 24-28.
13. Chernov I.P., Cherdantzev J.P., Abdrashitov V.G., Mironchik V.G. The Dynamics of accumulation of implanted hydrogen in Be// J. of Nucl. Mat. 1996. V. 233-237. P. 857-859.
14. Chernov I.P., Mamontov A.P., Tjyrin J.I., Cherdantzev J.P. Hydrogen migration in stainless steel and titanium alloys, stimulation by ionizing radiation// J. of Nucl. Mat. 1996. V. 233-237. P.1118-1122.
15. Рыжков В. А., Черданцев Ю.П., Рагулин А. Ю. Использование пучков ионов $^{12}\text{C}^{3+}$ и $^{14}\text{N}^{3+}$ с энергией около 1 МэВ/нуклон для прямого определения изотопных отношений $^2\text{H}/^1\text{H}$ в органических и неорганических пробах// ЖАХ. 1995. Т.50. №11. С. 1214-1216.
16. Чернов И.П., Мамонтов А.П., Тюрин Ю.И., Черданцев Ю.П. Миграция водорода в стали и сплавах, стимулированная ионизирующим излучением// Изв. ВУЗов. Физика. 1994. №11. С. 72-79.
17. Белянин О.П., Гусева М.И., Сулема В.Н., Столярова В.Г., Тюрин Ю.И., Чернов И. П., Черданцев Ю.П., Шадрин В.Н. Миграция водорода в нержавеющей стали

- при облучении гамма-квантами// Атомная энергия. 1989. Т. 67. Вып. 5. С. 331-335.
18. Гусева М.И., Столярова В.Г., Горбатов Е.А., Белянин О.П., Сулема В.Н., Чернов И.П., Черданцев Ю.П., Шадрин В.Н. Влияние бомбардировки ионов гелия на поведение водорода в нержавеющей стали// Атомная энергия. 1987. Т. 63. Вып.1. С. 17-20.
19. Белянин О.П., Сулема В. Н., Чернов И.П., Черданцев Ю.П., Шадрин В.Н. Исследование захвата гелия в сплаве титана// Атомная энергия. 1987. Т. 62. Вып. 1. С. 49-50.
20. Белянин О.П., Сулема В.Н., Чернов И.П., Черданцев Ю.П., Шадрин В.Н. Поведение водорода и гелия в нержавеющей стали при одновременной имплантации// Поверхность. 1984. №6. С. 136-140.
21. Гусева М.И., Сулема В.Н., Чернов И.П., Черданцев Ю.П., Челноков О.И., Шадрин В.Н. Применение метода ядер отдачи для изучения распределения водорода в титане и сплаве// Атомная Энергия. 1984. Т. 51. Вып. 2. С.126-129.
22. Чернов И.П., Черданцев Ю.П., Шадрин В.Н., Сулема В.Н. Ядерно-физический метод определения гелия в поверхностных слоях материалов// ЖАХ. 1984. Т. 34. Вып. 3. С.442-447.
23. Cernov I.P., Shadrin V.N., Cherdantzev J.P. Hydrogen determination in silicon nitride films by the nuclear method// Thin Solid Films. 1982. V.88. P. 49-54.
24. Гусева М.И., Мартыненко Ю.В., Челноков О.И., Чернов И.П., Черданцев Ю.П., Шадрин В.Н., Сулема В.Н. Влияние температуры на поведение имплантируемого гелия в сплаве Ti - Al - V// Атомная Энергия. 1982. Т. 52. Вып. 3. С. 195-197.
25. Чернов И.П., Шадрин В.Н. Черданцев Ю.П. Ядерно - физический метод анализа водорода в приповерхностных слоях материалов// ЖФХ. 1980. Т. 54. №11. С. 2831-2835.
26. Чернов И.П., Черданцев Ю.П., Шадрин В.Н., Сулема В.Н. Ядерно-физический метод определения водорода в поверхностных слоях материалов// ЖАХ. 1980. Т. 35. Вып. 11. С. 2089-2094.
27. Шадрин В.Н., Черданцев Ю.П., Белянин О.П., Сулема В.Н. Ядерно-физический способ определения гелия. АС №1160823. 1985.
28. Сулема В.Н., Полонский В.В., Шадрин В.Н., Черданцев Ю.П. Ядерно-физический способ определения водорода. АС №1295899. 1986.
29. Белянин О.П., Сулема В.Н., Шадрин В.Н., Черданцев Ю.П. Способ диагностики высокотемпературной плазмы. АС №1373294. 1987.
30. Шадрин В.Н., Черданцев Ю.П., Сулема В.Н., Белянин О.П. Способ изготовления эталонных образцов для контроля за содержанием гелия в конструкционных материалах термоядерного реактора. АС №1370489. 1987.
31. Белянин О.П., Шадрин В.Н., Черданцев Ю.П. Способ идентификации заряженных частиц. АС №1447102. 1988.

ЦИТИРУЕМАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Тюрин Ю.И., Чернов И.П. Аккумулирующие свойства водорода в твердом теле. – Энергоатомиздат. М. 2000 г. 285 с.
2. Gurbich A.E. Evaluation of non-Rutherford proton elastic scattering cross section for carbon// Nucl. Instr. and Meth. 1998. B136-138. P. 60-65.
3. Буренков А.Ф., Комаров Ф.Ф., Кумахов М.А., Темкин М.М. Таблица параметров пространственного распределения ионно-имплантированных примесей. Минск. Изд-во БГУ. 1980. 352 с.