

УДК 620.179

РАДИОИЗОТОПНЫЙ МЕТОД ТОЛЩИНОМЕТРИИ КАРБИДОКРЕМНИЕВОГО ПОКРЫТИЯ

Д.С. Белкин, Б.И. Капранов, Х.-М.В.А. Крёнинг,
В.М. Блинов*, В.Ю. Чунаев*, Е.Г.Чечулин*

Томский политехнический университет

* Уральский научно-исследовательский институт

композиционных материалов, г. Пермь

E-mail: introbob@mail.ru

Белкин Денис Сергеевич, директор Центра технического диагностирования Института неразрушающего контроля ТПУ.

E-mail: belkin@tpu.ru

Область научных интересов: радиационный контроль.

Капранов Борис Иванович, д-р техн. наук, профессор кафедры физических методов и приборов контроля качества Института неразрушающего контроля ТПУ.

E-mail: introbob@mail.ru

Область научных интересов: акустический, ультразвуковой, радиационный контроль.

Крёнинг Ханс-Михаэль Вильгельм Адольф, профессор Международной научно-образовательной лаборатории неразрушающего контроля Института неразрушающего контроля ТПУ.

E-mail: introbob@mail.ru

Область научных интересов: ядерная физика.

Блинов Владимир Михайлович, начальник отдела испытаний и исследований Уральского научно-исследовательского института композиционных материалов.

E-mail: introbob@mail.ru

Область научных интересов: разработка технологии композиционных материалов.

Чунаев Владимир Юрьевич, генеральный директор Уральского научно-исследовательского института композиционных материалов.

E-mail: introbob@mail.ru

Область научных интересов: разработка технологии композиционных материалов.

Чечулин Евгений Георгиевич, начальник отдела измерений Уральского научно-исследовательского института композиционных материалов.

E-mail: introbob@mail.ru

Область научных интересов: разработка технологии композиционных материалов.

Приведены результаты исследования по альbedo-контролю толщины защитных покрытий (применяемых в авиационной, космической, атомной и других отраслях промышленности). Авторами разработана геометрия контроля и конструкция измерительного преобразователя на основе радиоизотопа Am-241 и сцинтилляционного детектора для контроля толщины карбидокремниевого покрытия.

Ключевые слова:

Защитное покрытие, рентген, углерод, спектр, интенсивность, контроль, энергия, эффективность, геометрия, сечение, комптоновское рассеяние.

В настоящее время разработаны технологии изготовления защитных покрытий и плёнок с высокими техническими параметрами, позволяющие получать покрытия различной толщины на изделиях сложных геометрических форм: цилиндр, многогранник, пластина, стержень и др. [1].

Одна из главных характеристик, обеспечивающих защитные свойства наносимого покрытия, является его толщина. При использовании в качестве подложки углеродных композиционных материалов наиболее объективным физическим параметром, отличающим покрытие от подложки в углеродном композиционном материале, является плотность [2].

Радиационный метод контроля при одностороннем доступе к контролируемому изделию основан на регистрации квантов, комптоновски рассеянных в заднее полупространство. При этом вероятность рассеяния определяется произведением сечения комптоновского рассеяния σ_p (см^{-1}) на плотность материала ρ ($\text{г}/\text{см}^3$), т. е. линейным коэффициентом рассеяния σ (см^{-1}) [3, 4].

Анализ результатов расчетов сечений взаимодействия для углеродных композиционных материалов показывает, что при энергии 60 кэВ для плотности основы $\rho_{осн} = 1,45 \text{ г}/\text{см}^3$ и плотности защитного покрытия $\rho_{покp} = 3,2 \text{ г}/\text{см}^3$ соответствующие сечения рассеяния равны $\sigma_0 = 0,236$ и $\sigma_{п} = 0,525 \text{ см}^{-1}$. Следовательно, при увеличении толщины покрытия, нанесённого на насыщенный слой

материала основы, интенсивность потока рассеянных квантов будет увеличиваться. Эта зависимость имеет экспоненциальный характер. При малых толщинах покрытия зависимость практически линейна, при больших толщинах наступает насыщение. Однако минимальное измеряемое значение определяется статистическим разбросом отсчетов для интенсивности потока рассеянных квантов от подложки. При минимальном измеряемом значении толщины покрытия $d_{min} = 10$ мкм статистическая погрешность определяется временем измерения, что зависит от эффективности использования изотопа коллимационной системой и эффективности регистрации рассеянного излучения детектором.

По отношению к покрытиям различают четыре вида толщины: локальная, средняя, минимальная, максимальная [5, 6]. Степень локальности определяется геометрией покрытия и разрешающей по площади способностью измерительного средства. Для изучения геометрии покрытия на трансмиссионном томографе «Орёл» были получены томограммы экспериментальных технологических образцов углеродного композиционного материала с защитным покрытием, представляющие собой поперечные сечения круглого образца диаметром 30 мм и толщиной 4 мм с шагом сечений 0,3 мм и толщиной одного слоя (сечения) 0,1 мм.

На рис. 1 приведен пример геометрических характеристик покрытия. По томограммам восстанавливался профиль нижней и верхней границ покрытия, и определялись: минимальное и максимальное значения толщины на всём образце; минимальное и максимальное значения толщины на участке 5 мм; поперечные размеры впадин и выступов покрытия; средние значения толщины на всём образце; средние значения толщины на участке 5 мм (табл. 1).

Таблица 1. Значения толщины защитного покрытия на одном образце

Зона измерения	min значение	max значение	Среднее значение	min период колебаний
	мкм			
Образец	200	1800	320	600
Зона 5 мм	200	800	288	1330

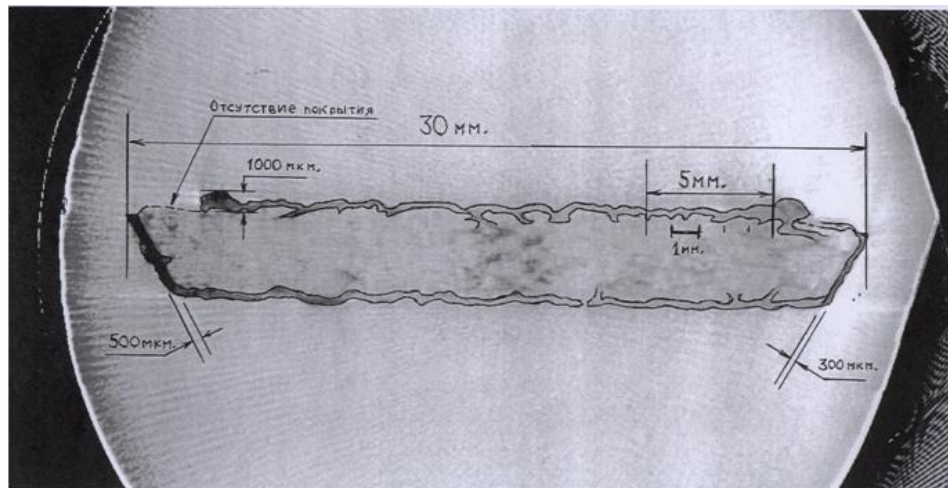


Рис. 1. Контур сечения покрытия

Анализ геометрической формы покрытия позволяет сделать следующие выводы:

1. Профиль покрытия имеет произвольную геометрическую форму.
2. На образце имеются участки, где покрытие отсутствует.
3. Нижняя граница покрытия не определена в плоскости поверхности однозначно. Имеются проникновения в основу.
4. Минимальные горизонтальные размеры впадин и выступов в целом на образце составляют 600 мкм.
5. Объективную информацию о качестве покрытия может дать только среднее значение толщины покрытия в зоне контроля.
6. Размер зоны контроля определяется формой изделия, и для усреднения неровности поверхности площадь зоны измерения должна составлять не менее 5...10 мм².

Численное значение толщины насыщения при альbedo-контроле определяется двумя факторами: энергией первичного потока квантов и геометрией контроля, то есть формой рассеивающего объема в контролируемом изделии. При использовании в качестве источника излучения изотопа Америций-241 с энергией квантов 60 кэВ, при нормальном падении первичного пучка и при регистрации всего рассеянного излучения неколлимированным детектором толщина насыщения по углероду составляет 50...60 мм. Такая геометрия обеспечивает максимальную эффективность использования источника излучения, но она не позволяет проводить измерения на подложках малой толщины (порядка 3...5 мм). В таком случае необходимо проводить поэтапное измерение – в каждой контролируемой точке сначала измеряется интенсивность потока рассеянного излучения от основы n_0 , а затем, после нанесения покрытия n_1 , от основы + покрытие. Разность $\Delta = n_1 - n_0$ будет нести информацию о толщине покрытия. Однако значение Δ для минимальной толщины покрытия 10 мкм должно как минимум в три раза превосходить дисперсию регистрируемых потоков $\sigma_0 = \sqrt{n_0}$. При отмеченных выше значениях сечений рассеяния основы σ_0 и покрытия $\sigma_{\text{п}}$ при площади контроля S и толщине насыщения по основе H_0 величина рассеивающего объема в изделии составит $V_0 = S \times H_0$ (мм³), что даст суммарное поверхностное сечение рассеяния $\sigma_{\text{пов}}$ в пределах зоны контроля:

$$\sigma_{\text{пов.осн}} = \sigma_0 \times V_0$$

Покрытие с сечением рассеяния $\sigma_{\text{п}}$ и толщиной $d_{\text{мин}}$ изменит величину суммарного поверхностного сечения до значения:

$$\sigma_{\text{пов(осн+покр)}} = \sigma_{\text{п}} \times (d_{\text{мин}} \times S) + \sigma_0 \times (V_0 - d_{\text{мин}} \times S)$$

При приведенных выше значениях S , H_0 , σ_0 , $\sigma_{\text{п}}$ и $d_{\text{мин}} = 10$ мкм, $\sigma_{\text{пов.осн}} = 118$ мм², а $\sigma_{\text{пов(осн+покр)}} = 118,003$ мм². Следовательно, изменение суммарного поверхностного сечения при наличии покрытия толщиной $d_{\text{мин}} = 10$ мкм составит $\Delta_{\text{пов}} = 0,03$ мм², что составляет 0,025 %.

Для обеспечения возможности измерения такой величины статистическая погрешность потока регистрируемых квантов должна быть не более 0,008 % (для отношения сигнал/шум равного 3). Это требует суммарного количества регистрируемых квантов на детекторе за время измерения T не менее 10^8 . При времени измерения $T = 100$ секунд средняя интенсивность потока регистрируемых квантов должна составлять порядка 10^6 квантов/сек. При использовании выпускаемых изотопных источников излучения на основе Америций-241 это невозможно. Единственный способ повышения вклада рассеяния от покрытия в общий сигнал детектора состоит в уменьшении толщины насыщения H_0 . Для этого необходимо коллимировать потоки первичного и рассеянного излучений.

Для решения этой задачи разработана конструкция измерительного преобразователя, представленная на рис. 2.

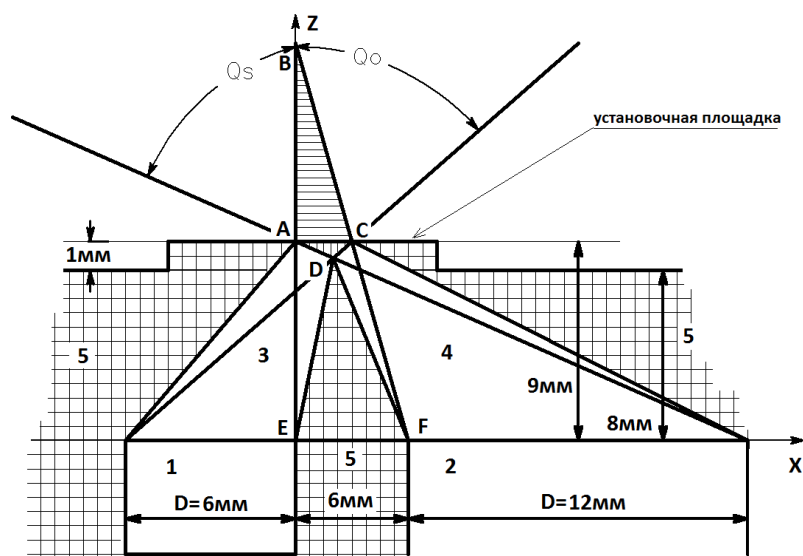


Рис. 2. Конструкция измерительного преобразователя: 5 – измерительный преобразователь

Основой измерительного преобразователя является радиоизотоп Америций-241 – 1 с энергией квантов 60 кэВ и сцинтилляционный детектор для регистрации квантов рассеянного излучения – 2.

Поток квантов с энергией 60 кэВ, выходящий из активной поверхности источника – 1, формируется первичным коллиматором – 3. На рис. 2 первичный поток квантов распределен в пределах телесного угла Q_0 . В каждой точке объекта контроля кванты либо поглощаются (фотопоглощение) либо рассеиваются в разных направлениях (комптоновское рассеяние). В данной конструкции измерительного преобразователя средний угол рассеяния Q_s составляет 135° . Для ограничения размеров рассеивающего объема (РО) из всего рассеянного излучения с помощью коллиматора – 4 выбираются только кванты, прошедшие в направлении на детектор. Зона чувствительности детектора определяется углом Q_s .

Для описания формы РО используют понятия:

- Пространственная точечная функция эффективности (ПТФЭ) источника излучения $\Phi_{ист}(x, y, z)$.
- Пространственная точечная функция эффективности приемника $\Phi_{пр}(x, y, z)$.
- Пространственная точечная функция эффективности системы (измерительного преобразователя) $\Phi(x, y, z) = \Phi_{ист}(x, y, z) \times \Phi_{пр}(x, y, z)$.

ПТФЭ источника излучения $\Phi_{ист}(x, y, z)$ определяется диаметром активной поверхности источника и первичным коллиматором – 3. Параметры первичного коллиматора выбраны таким образом, чтобы пучок первичного излучения на поверхности объекта контроля имел размер 2×5 мм.

Пространственная точечная функция эффективности приёмника $\Phi_{пр}(x, y, z)$ определяется формой вторичного коллиматора. В сцинтиллятор – 2 могут попасть только кванты, рассеянные в объеме изделия, расположенного между точками А и С. ПТФЭ системы $\Phi(x, y, z)$ представляет собой фигуру ABCD длиной 5 мм. Область ABC несет информацию о покрытии, а область ACD расположена внутри преобразователя и не несет полезной информации. Часть коллимационной системы DEF позволяет уменьшить вклад рассеяния от стенок коллиматоров. $\Phi(x, y, z)$ имеет максимальную ширину 2 мм непосредственно на поверхности изделия. По мере удаления от поверхности площадь рассеяния уменьшается, что позволяет увеличить вклад в общий сигнал верхних слоёв изделия, т. е. вклад от покрытия.

В результате пространственного ограничения первичного и рассеянного излучений толщина насыщения по основе уменьшена до 3 мм.

Сигнал с детектора представляет собой экспоненциальный импульс длительностью 1 мкс.

Сформированные предусилителем импульсы поступают в спектрометрический тракт, где осуществляются операции ограничения снизу для отсеки тепловых шумов фотоэлектронного умножителя (ФЭУ) и отбор импульсов в заданном энергетическом диапазоне.

Ширина спектральной линии определяется энергетическим разрешением сцинтилляционного детектора. Для используемого в приборе сцинтиллятора NaJ(Tl) энергетическая разрешающая способность по америцию (60 кэВ) составляет 15 %. Форма аппаратурной линии описывается нормальным распределением. Спектр рассеянного от объекта контроля излучения является непрерывным. Энергии рассеянных квантов лежат в пределах от 0 до 52 кэВ. В области энергий <20 кэВ сосредоточен шум ФЭУ.

Непосредственную информацию о зарегистрированных детектором квантах несет область энергий под основным пиком 52 кэВ. Однако, как показали исследования, пик вылета также несет полезную информацию, так как он образован квантами непосредственно не поглощенными в кристалле, но оставившими в нем часть своей энергии. Для определения диапазона контролируемых толщин покрытия и погрешности измерения исследованы градуировочные зависимости числа зарегистрированных квантов в детекторе $n_{осн+покр}$ от толщины покрытия $d_{покр}$. При проведении таких метрологических исследований возникают технологические трудности, связанные с невозможностью изготовить стандартные образцы предприятия (СОП) с покрытием заданной толщины. В настоящее время толщина наносимого на изделие покрытия определяется ориентировочно по времени осаждения, то есть такие образцы не могут быть паспортизованы.

Для решения этой задачи исследована возможность калибровки по покрытию из известного материала с коррекцией зависимостей на плотность карбида кремния $3,2 \text{ г/см}^3$. Из имею-

щихся материалов близких к технологической реализации данной возможности лучше использовать фольги из алюминия, выпускаемые в широком диапазоне толщин. При плотности алюминия $2,7 \text{ г/см}^3$ и при линейной зависимости количества регистрируемых квантов от толщины покрытия (крутизна градуировочной кривой $K = tg\alpha$) поправочный коэффициент γ может быть определен как:

$$\gamma = \rho_{\text{покр}} / \rho_{\text{Al}}$$

Для исключения влияния шероховатости поверхности в качестве основы предложено использовать оргстекло, плотность которого близка к плотности углерода. Поэтому для проведения метрологических исследований использовалась подложка из оргстекла толщиной 6 мм и алюминиевых фольг толщиной 50, 100, 200, 300 мкм. Для отработки геометрии контроля и конструкции измерительного преобразователя исследовалось отношение сигнал/шум, определяемое как отношение разности числа зарегистрированных квантов при наличии покрытия ($n_{\text{подл+покр}}$) и без покрытия ($n_{\text{подл}}$) к дисперсии измеряемого потока $\sigma_0 = \sqrt{n_{\text{подл}}}$:

$$\Delta = (n_{\text{подл+покр}} - n_{\text{подл}}) / \sigma_0.$$

Исследования показали:

1. При раскрытии геометрии увеличивается интенсивность потока регистрируемых квантов, то есть уменьшается время контроля, и уменьшается статистическая погрешность измерения $\sigma = 1/\sqrt{n}$, но при этом уменьшается вклад от покрытия.
2. При уменьшении сечений первичного и вторичного коллиматоров увеличивается вклад квантов, рассеянных от покрытия, но при этом уменьшается интенсивность регистрируемого потока квантов, что приводит к увеличению статистической погрешности, и, соответственно, к увеличению времени измерения.
3. Уменьшение толщины защиты между источником и сцинтилляционным кристаллом уменьшает все расстояния, что увеличивает интенсивность потока регистрируемых квантов, то есть уменьшает статистическую погрешность. Однако при этом увеличивается вклад прямого излучения от изотопа, что уменьшает относительный вклад от покрытия.
4. При раскрытии геометрии увеличивается вклад квантов, рассеянных в стенках коллиматоров, что также уменьшает относительный вклад от покрытия.

На основе анализа всех перечисленных зависимостей в качестве оптимума выбрана геометрия контроля, представленная на рис. 2.

В качестве примера в табл. 2 приведены результаты измерений, дисперсия и отношение сигнал/шум для четырех эталонных образцов покрытия при времени измерения 60 сек.

Таблица 2. Значения погрешностей на эталонных образцах

№ образца	Толщина покрытия, мкм	$n_{\text{осн+покр}}$, ед.	Δn , ед.	σ , ед.	Сигнал/шум = $\Delta n/\sigma$, отн. ед.	Систематич. составл. погр., мкм	Случайная составл. погр., мкм
0	0	141092	0	376	0		
1	40	146109	5017	382	13,1	-0,40	$\pm 9,6$
2	98	153186	12094	391	30,9	+5,3	$\pm 7,7$
3	202	162711	12619	403	53,6	+2,8	$\pm 6,0$
4	323...360*	171617	30525	414	73,7	от +8,6 до -31,4	$\pm 5,9$

*толщина не определена однозначно.

Результаты измерений показывают, что для $d_{\text{min}} = 10$ мкм разработанная геометрия обеспечивает отношение сигнал/шум = 3,3, то есть обеспечивается диапазон контролируемых толщин от 10 до 300 мкм. Градуировочная зависимость, построенная по этим данным, приведена на рис 3. На начальном участке до 100 мкм зависимость можно считать линейной, при больших толщинах крутизна уменьшается.

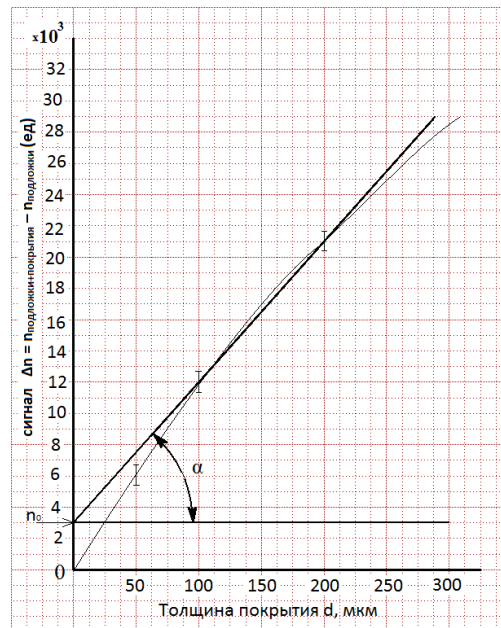


Рис. 3. Экспериментальная градуировочная зависимость

На рис. 3. отмечены также доверительные интервалы, определяемые статистической погрешностью $\pm 2\sigma$.

Для учета уменьшения крутизны градуировочной кривой с увеличением d весь диапазон толщин разбивается на 4 участка: $0 \dots 50$, $50 \dots 100$, $100 \dots 200$, $200 \dots 300$ мкм.

В каждом участке зависимость линеаризуется, и вычисляется значение n_0 (ед) и $\gamma = \operatorname{tg} \alpha$ (ед/мкм).

Толщина покрытия вычисляется как

$$d_{\text{покр}} = (\Delta n(d) - n_0) / \gamma, \text{ мкм.}$$

Систематическая составляющая основной погрешности вычислялась по формуле:

$$\Delta c = \left| \frac{\sum_{i=1}^n d_i}{n} - d_0 \right| = \left| \bar{d} - d_0 \right|,$$

где d_i – показания измерителя в каждом измерении; d – среднее показание измерителя; d_0 – значение толщины покрытия по свидетельству на образец; n – число проведённых измерений.

Среднее квадратичное отклонение случайной составляющей основной погрешности определялось по формуле: формулы разного размера, должны быть 11

$$\sigma = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (\bar{d} - d_i)^2}{n - 1}},$$

а пределы основной погрешности измерения толщины покрытия – по формуле:

где $K_p = 2,26$ – коэффициент Стьюдента при доверительной вероятности 0,95.

Результаты подтверждают возможность измерения толщины карбидокремниевого покрытия на углерод-углеродной подложке в диапазоне толщин до 300 мкм с погрешностью ± 10 мкм.

Заключение

Исследованы основные закономерности пространственного формирования потоков первичного и рассеянного излучений, обеспечивающие максимальную эффективность обнаружения изменения плотности в тонком поверхностном слое объекта контроля. Разработаны геометрия контроля и конструкция измерительного преобразователя. Метод обеспечивает контроль толщины карбидокремниевого покрытия в диапазоне толщин до 300 мкм с погрешностью ± 10 мкм при доверительной вероятности 0,95.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Гнесик Г.Г. Карбидокремниевые материалы. – М.: Металлургия, 1977. – 216 с.
2. Симоненко Е.П., Севастьянов В.Г., Мешалкин В.П., Кузнецов Н.Г. Карбидокремниевое покрытие на поверхности углеродных нанотрубок // Композиты и наноструктуры. – 2009. – № 4. – С. 28–34.
3. Королёва М.Ю., Юртов Е.В. Наноматериалы из карбида кремния // Химическая технология. – 2005. – № 6 – С. 33–39.
4. Высокотемпературное покрытие: пат. Рос. Федерация № 2253638,СО4В41/87, С 04В35/00; опубл. 10.06.05
5. Потапов А.И., Сясько В.А. Неразрушающие методы и средства контроля толщины покрытий и изделий. – СПб.: Научное издательство биографической международной энциклопедии «Гуманистика», 2009. – 903 с.
6. Щурин А.Г. Искусственные углеродные материалы. – Пермь: Типография Пермского государственного университета, 2009. – 340 с.

Поступила 28.01.2013 г.