



(12)

BREVET DE INVENȚIE

- (21) Nr. cerere: **a 2015 00886**
- (22) Data de depozit: **25/11/2015**
- (45) Data publicării mențiunii acordării brevetului: **30/06/2021** BOPI nr. **6/2021**

(41) Data publicării cererii:
28/07/2017 BOPI nr. **7/2017**

(73) Titular:
• **INSTITUTUL NAȚIONAL DE CERCETARE
ȘI DEZVOLTARE PENTRU FIZICĂ ȘI
INGINERIE NUCLEARĂ "HORIA
HULUBEI", STR.REACTORULUI NR.30,
C.P. MG-6, MĂGURELE, IF, RO**

(72) Inventatori:
• **PANTELICĂ DAN EMANOIL,
ALEEA TIMIȘUL DE JOS, NR.1, BL.A23,
SC.4, ET.4, AP.60, SECTOR 6,
BUCUREȘTI, B, RO;**
• **DUMITRU GABRIEL, STR. VETERANILOR
NR.11, BL.M16, SC.4, ET.2, AP.56,
SECTOR 6, BUCUREȘTI, B, RO;**

• **PETRAȘCU HORIA, STR.ELENA FARAGO
NR.8, SECTOR 6, BUCUREȘTI, B, RO;**
• **IONESCU PAUL ALEXANDRU,
STR.TRIBUNEI NR.8, SIBIU, SB, RO;**
• **DRĂCEA MARIA DIANA,
STR.MARIN SORESCU NR.8, BL.A38/I,
SC.C, ET.4, AP.19, CARTIER OSTROVENI,
RÂMNICU VÂLCEA, VL, RO**

(56) Documente din stadiul tehnicii:
**J. F. ZIEGLER & CO, "PROFILING
HYDROGEN IN MATERIALS USING ION
BEAMS", NUCLEAR INSTRUMENTS AND
METHODS, 1978; I. T. BUSHKEVICH & CO,
"HYDROGEN PROFILING IN RAPIDLY
SOLIDIFIED Al-Fe ALLOY FOILS"
PREZEGLAD ELEKTROTECHNICZNY,
2013**

(54) **INSTALAȚIE PENTRU PROFILAREA HIDROGENULUI**



RO 132064 B1

1 Invenția se referă la o instalație cu cameră de reacție nucleară modulară, sistem
micrometric de schimbare a probelor și răcire cu azot lichid a suportului pentru probe,
3 destinată detecției și profilării hidrogenului prin metode de tip IBA (Analiză cu Fascicule de
Ioni - Ion Beam Analysis) [1, 2, 3] în diverse materiale utilizate în domeniile ale fizicii nucleare
5 și materialelor.

7 Instalația se folosește la profilarea hidrogenului în diferite materiale. Hidrogenul se
găsește practic oriunde, dar, cel mai important, se regăsește în aproape toate materialele,
având efecte dramatice asupra proprietăților electrice [4], chimice și mecanice ale acestora.
9 De exemplu, prezența hidrogenului în oțel crește friabilitatea acestuia; friabilitatea datorată
hidrogenului se produce prin pătrunderea și fixarea acestuia în rețeaua metalică, fapt ce
11 conduce la modificarea și apariția unor imperfecțiuni ale rețelei ce provoacă fisurarea sau
amplifică defectele deja existente în structură.

13 Un domeniu important de aplicare a invenției este fuziunea nucleară, importanța
domeniului fiind exprimată în obiectivele programului european de fuziune. Un aspect extrem
15 de important în proiectarea reactoarelor de fuziune este selecția și studiul
materialelor convenabile pentru dezvoltarea unor astfel de facilități. Metoda NRA (Analiza
17 prin Reacții Nucleare - Nuclear Reactions Analysis) [5, 6] este o metodă nucleară ce permite
obținerea concentrației versus distribuția în adâncime a elementelor chimice din filme subțiri
19 solide.

21 Două exemple de reacții nucleare de rezonanță tipice pentru profilarea hidrogenului
sunt următoarele [7, 8, 9]:

23 $^1\text{H}(^{15}\text{N}, \alpha\gamma)^{12}\text{C}$, pentru rezonanța la 6.385 MeV

$^1\text{H}(^{19}\text{F}, \alpha\gamma)^{16}\text{O}$, pentru rezonanța la 6.44 MeV

25 Filmele subțiri preparate prezintă o distribuție non-uniformă a hidrogenului în
adâncime, în sensul că aceasta descrește cu adâncimea. O pierdere de hidrogen, cu toate
că este în proporție mult mai mică, este de asemenea indusă de bombardamentul probei cu
27 ioni. Filmele mai prezintă și o ușoară pierdere de carbon, după cum arată spectrometria cu
protoni retroîmprăștiați, datorată "călirii" probelor în vid înalt. Profilarea în adâncime a
29 hidrogenului în probele "călite" reprezintă un indiciu al cantității carbonului la interfața
film-substrat.

31 În scopul profilării hidrogenului se folosesc pe scară largă camere de reacție de uz
general, fără posibilități de răcire a probelor analizate. Aceste camere asigură o precizie
33 medie a rezultatelor obținute, comparativ cu cele ce se obțin utilizând instalația prezentată.
De asemenea, majoritatea camerelor de reacție de uz general nu au suport multiplu pentru
35 probe, necesitând deschiderea acestora după fiecare probă analizată, pentru înlocuirea
probei. Mai mult, suportul pentru probe în aceste camere este de cele mai multe ori fix,
37 nepermițând ajustarea fină a poziției probei în raport cu fascicolul incident de ioni.

39 În momentul de față autorii nu au cunoștință de existența unor camere de reacție
dedicate pentru detecția și profilarea hidrogenului, cu suport multi-probă mobil și răcit la
temperaturi apropiate de cea a azotului lichid.

41 Analiza hidrogenului este dificilă, sau chiar imposibilă, pentru majoritatea tehnicilor
de caracterizare uzuale. Analiza prin raze X sau microscopie electronică funcționează pentru
43 majoritatea elementelor din tabelul lui Mendeleev, dar hidrogenul rămâne în afara domeniului
acestor două tehnici. În principiu SIMS (Spectrometrie de Masă cu Ioni Secundari-Secondary
45 Ion Mass Spectrometry) poate analiza elemente din întreg Tabelul Periodic, dar analiza
cantitativă a hidrogenului rămâne adesea foarte dificilă. Din această cauză, tehnicile IBA sunt
47 deosebit de importante, întrucât cuantificarea hidrogenului utilizând aceste tehnici se
caracterizează printr-o mare sensibilitate.

RO 132064 B1

Problema tehnică pe care o rezolvă invenția este răcirea probelor la o temperatură apropiată de cea a azotului lichid cu posibilitatea măsurării mai multor probe într-un ciclu complet de măsurare. 1
3

Așadar, obiectivul invenției este de a crește acuratețea măsurătorilor de profilare a hidrogenului, prin metode IBA, răcind proba în timpul analizei. În sprijinul acestei metode de măsurare a fost utilă construirea unei camere de reacție cu suport multi-probă răcit cu azot lichid. Difuzia hidrogenului este limitată dacă probele conținând hidrogen sunt menținute la temperaturi joase în timpul măsurătorilor. Astfel, chiar dacă inițial fasciculul de ioni incident pe probă provoacă difuzia locală a hidrogenului sau a altor elemente ușoare, atomii difuzați sunt rapid înghețați. 5
7
9

Instalația pentru profilarea hidrogenului, conform invenției, este alcătuită dintr-o cameră de reacție modulară, vidată, în care sunt aduse niște probe pentru analiza cantitativă a hidrogenului și supuse unui fascicul de ioni, un mecanism de reglaj al poziției probelor ce înglobează un burduf ultraflexibil, un sistem de răcire a probelor ce cuprinde un rezervor cu azot lichid și un cap rece aflat în interiorul rezervorului care se prelungește în exterior cu o tijă din cupru electrolitic ce se află în contact termic, prin presare, cu probele din camera de reacție. Camera de reacție modulară este de formă cubică, prevăzută cu două intrări diametral opuse, două intrări perpendiculare pe celelalte intrări și o intrare excentrică perpendiculară pe planul format de cele patru intrări, iar mecanismul de reglaj al poziției probelor este prevăzut cu un șurub micrometric pentru aducerea probelor, pe rând, în fața fasciculului de ioni, cu o precizie de 5 microni, centrarea probelor împreună cu tija de răcire făcându-se cu ajutorul unei piese de teflon. 11
13
15
17
19
21

Invenția prezintă următoarele avantaje: 23

- prin răcire, se asigură stabilitatea parametrilor țintelor analizate prin atenuarea migrării hidrogenului și a altor elemente ușoare din țintă din cauza supraîncălzirii locale datorate fascicolului incident pe suprafața acesteia, mai ales atunci când se utilizează fascicule de ioni grei la energii mari; 25
27

- prin mecanismul de reglaj, se poate opera măsurătoarea a maxim cinci probe consecutiv. În cazul în care s-ar lucra cu o singură probă, după măsurătoare (circa 1 oră), pentru a fi înlocuită, ar trebui ca proba să fie lăsată să se încălzească (câteva ore). În acest scop, ar trebui evacuat azotul lichid din rezervor și lăsat tot ansamblul să atingă temperatura camerei. După încălzire trebuie introdus gaz (azot sau argon pur) în cameră după care se procedează la schimbarea probei. Dacă proba, tija, capul rece și întreg interiorul rezervorului de azot lichid nu s-ar încălzi la temperatura camerei, pe aceste componente s-ar condensa vaporii și impuritățile (hidrocarburi, etc.) din atmosferă, ceea ce ar îngreuna procesul de vidare și ar duce la contaminarea probelor. Prin posibilitatea schimbării probelor în vid acest dezavantaj major este înlăturat și productivitatea crește, fiind necesar un singur ciclu de răcire-încălzire la 5 probe, cu îmbunătățirea corespunzătoare a randamentului. În general, într-o zi de lucru obișnuită nu se analizează mai mult de 5 probe, de aceea s-a optat pentru un suport care să acomodeze 5 probe la un ciclu de măsurare. 29
31
33
35
37
39

Se dă în continuare un exemplu de realizare a invenției în legătură cu figurile 1-3, care reprezintă: 41

- fig. 1, secțiune prin instalația pentru profilarea hidrogenului conform invenției; 43
- fig. 2, vedere isometrică a instalației;
- fig. 3, secțiune prin camera de reacție modulară. 45

Instalația pentru profilarea hidrogenului, conform invenției, este alcătuită dintr-o cameră **1** de reacție modulară, vidată, în care sunt aduse niște probe **9** pentru analiza cantitativă a hidrogenului și supuse unui fascicul **10** de ioni, un mecanism **3** de reglaj al poziției 47

RO 132064 B1

1 probelor **9** ce înglobează un burduf **4** ultraflexibil, un sistem de răcire a probelor **9** ce
cuprinde un rezervor **5** cu azot **6** lichid și un cap **7** rece aflat în interiorul rezervorului **5** care
3 se prelungeste în exterior cu o tijă **8** din cupru electrolitic ce se află în contact termic, prin
presare, cu probele **9** din camera **1** de reacție.

5 Camera de reacție propriu zisă, a cărei secțiune este prezentată în fig. 1, este o
construcție cubică din duraluminu **1**. Forma cubică a fost aleasă pentru modularitate, pentru
7 ca elementele ce se atașează sau se vor putea atașa în viitor, în funcție de necesități, să fie
practic nelimitate (flanșe oarbe, reducții, tronsoane, etc.). Datorită formei, modernizarea sau
9 modificările se vor putea face mult mai ușor. Camera este prevăzută cu două flanșe de
intrare DN 63 ISO opuse. Prin cea din partea dreaptă camera este conectată la extensia
11 experimentală prin intermediul unui tronson DN 63 ISO izolat din punct de vedere electric și
o reducție excentrică DN 160 ISO - DN 63 ISO. În partea stângă este montat un detector.

13 Vidarea se face printr-o flanșă de intrare DN 100 ISO aflată în partea din spate **2**. În
partea din față este prevăzută o flanșă de intrare DN 100 ISO, prin care se pot alinia sau
15 schimba probele. Valoarea vidului este 10^{-7} mbar. Vidarea preliminară se face cu ajutorul
unei pompe uscate, fără ulei, iar vidul înalt se obține cu o pompă turbomoleculară cu viteza
17 de aspirație de aproximativ 450 l/s pentru N_2 .

În partea superioară este montat un mecanism de reglare cu șurub a poziției probelor
19 **3**, mecanism ce înglobează un burduf (silfon) ultraflexibil din oțel inoxidabil **4**. Deasupra
mecanismului de reglaj este montată un rezervor cu azot lichid **5** (vas Dewar) din oțel
21 inoxidabil cu capacitatea de aproximativ 5 litri. În interiorul rezervorului cu azot se află capul
rece **7** (din cupru electrolitic), în contact permanent cu azotul lichid **6**. În prelungirea capului
23 rece (în contact permanent cu acesta) este montată o tijă din cupru electrolitic **8**, pe care
sunt fixate cinci probe **9**. Dimensiunile maxime ale unei probe sunt de $10 \times 10 \times 1 \text{ mm}^3$. Pentru
25 un bun contact termic cu tija de răcire, fixarea acestora se face prin presare. Probele sunt
răcite la temperatura azotului lichid datorită contactului direct cu tija, respectiv capul de răcire
27 și azotul lichid. Cu ajutorul mecanismului de reglaj cele cinci probe sunt aduse, pe rând, în
fața fasciculului **10** cu o precizie de 5 microni.

29 Centrarea tije de răcire, respectiv a probelor, se face cu ajutorul unor piese din teflon
care susține tija de răcire, fără a avea contact termic cu elementele de susținere/centrare din
31 camera de reacție **11**.

33 Bibliografie

1. J. F. Ziegler, C. P. Wu, P. Williams, C. W. White, B. Terreault, B. M. U. Scherzer,
35 R. L. Schulte, E. J. Schneid, C. W. Magee, E. Ligeon, J. L.'Ecuyer, W. A. Lanford, F. J.
Kuehne, E. A. Kamykowski, W.O. Hofer, A. Guivarc'h, Profiling hydrogen in materials using
37 ion beams Nuci. Inst. and Meth., 149, 1978, 19.

2. J. F. Ziegler, M. D. Ziegler, J. P. Biersack, The Stopping and Range of Ions in
39 Matter, SRIM - Version 2008.04, www.SRIM.org

3. F. Rauch, D. Kuhn, W. Wagner, Hydrogen profiling using MEV ion beams,
41 International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part D. Nuclear Tracks
and Radiation Measurements, 19, 1-4, 1991, 939.

4. D. C. Ingram, A. W. McCormick, The effect of Mev ion irradiation on the hydrogen
43 content and resistivity of direct ion beam deposited diamondlike carbon Nuci. Inst. and Meth.
in Phys. Res., B 34, 1988, 68.

5. D. A. Liech, T. A. Tombrello, A technique for measuring hydrogen concentration
47 versus depth in solid samples Nuci. Inst. and Meth., 108, 1973, 67.

RO 132064 B1

6. W. A. Lanford, H. P. Trautvetter, J. F. Ziegler and J. Keller, New precision technique for measuring the concentration versus depth of hydrogen in solids, *J. Appl. Phys. Lett.*, 28, 9, 1976, 566. 1
3
7. J. P. Thomas, M. Fallavier, J. Tousset, Hydrogen mobility under beam impact when using the $^1\text{H}(^{15}\text{N}, \alpha)^{12}\text{C}$ nuclear reaction for material analysis *Nuci. Inst. and Meth.*, 187, 1981, 573. 5
8. L. Westerberg, L. E. Svensson, E. Karlsson, M. W. Richardson, K. Lundstrom, Stable absolute calibration standards for hydrogen profile analysis using nuclear resonance techniques *Nuci. Inst. and Meth. in Phys. Res.*, B 9, 1985, 49. 7
9
9. M. Wilde, K. Fukutani, Hydrogen detection near surfaces and shallow interfaces with resonant nuclear reaction analysis, *Surface Science Reports*, 69, 4, 2014, 196. 11

RO 132064 B1

Revendicări

1

3

1. Instalație pentru profilarea hidrogenului **caracterizată prin aceea că** este alcătuită dintr-o cameră (1) de reacție modulară, vidată, în care sunt aduse niște probe (9) pentru analiza cantitativă a hidrogenului și supuse unui fascicul (10) de ioni, un mecanism (3) de reglaj al poziției probelor (9) ce înglobează un burduf (4) ultraflexibil, un sistem de răcire a probelor (9) ce cuprinde un rezervor (5) cu azot lichid (6) și un cap (7) rece aflat în interiorul rezervorului (5) care se prelungește în exterior cu o tijă (8) din cupru electrolitic ce se află în contact termic, prin presare, cu probele (9) din camera (1) de reacție.

9

11

2. Instalație conform revendicării 1, **caracterizată prin aceea că** menționată cameră (1) de reacție modulară este de formă cubică, prevăzută cu două intrări (3') diametral opuse, două intrări (1') perpendiculare pe celelalte intrări (3') și o intrare (2') excentrică perpendiculară pe planul format de cele patru intrări.

13

15

3. Instalație conform revendicării 1, **caracterizată prin aceea că** mecanismul (3) de reglaj al poziției probelor (9) este prevăzut cu un șurub micrometric pentru aducerea probelor, pe rând, în fața fasciculului (10) de ioni, cu o precizie de 5 microni, centrarea probelor (9) împreună cu tija (8) de răcire făcându-se cu ajutorul unei piese (11) de teflon.

17

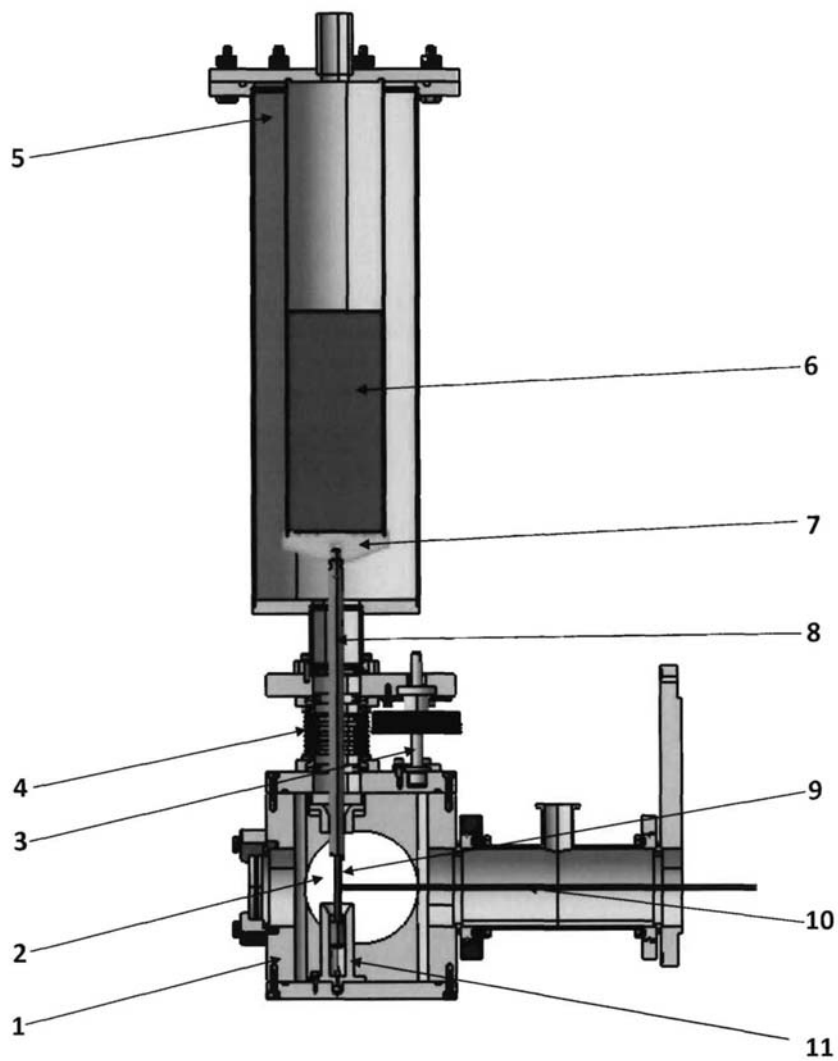


Fig. 1

(51) Int.Cl.

H01J 37/16 (2006.01);

G01N 23/225 (2006.01)

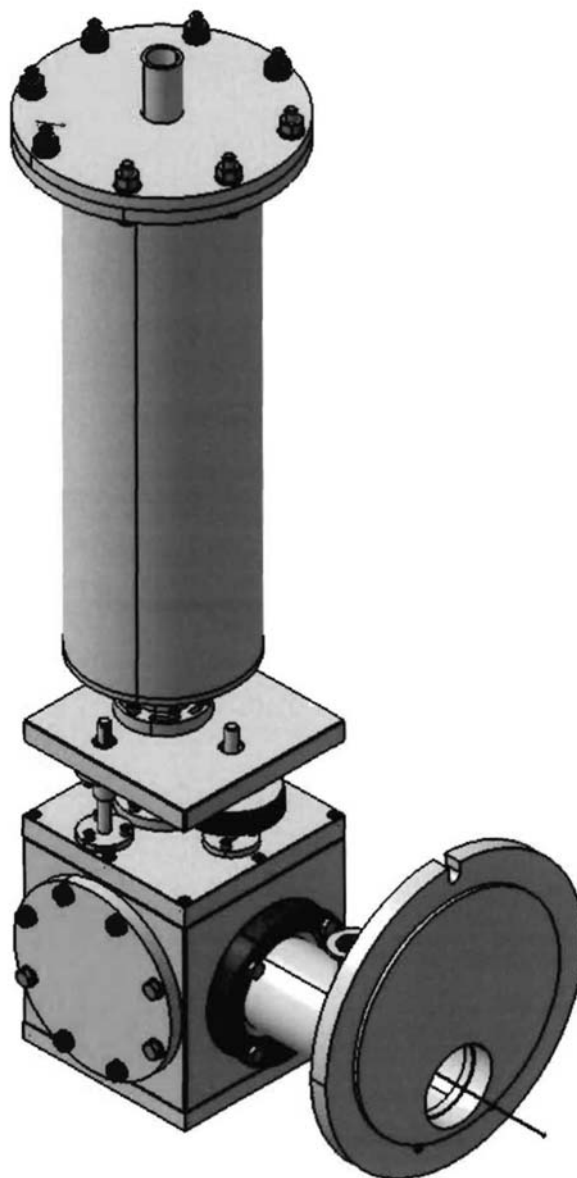


Fig. 2

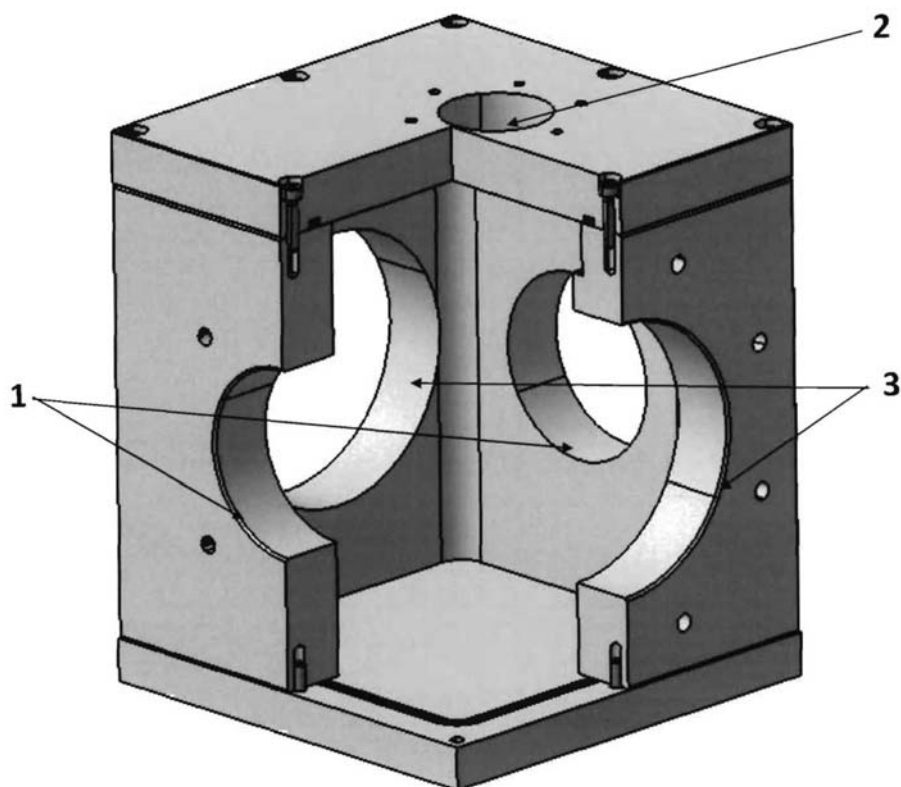


Fig. 3