

איכול של 0.1 w/o Cr - ט יצוק בלתי מוקרן

באמצעות הפצצה בירובי ארגון

ק' קוסלר

תמוז תשי"ם - יולי 1980

1811

English title and abstract included



LEGAL NOTICE

This publication is issued by the Nuclear Research Centre - Negev, Israel Atomic Energy Commission. Neither the Nuclear Research Centre - Negev, nor its contractors, nor any person acting on their behalf or on behalf of the Israel Atomic Energy Commission

make any warranty or representation, express or implied, with respect to the accuracy, completeness, or usefulness of the information contained in this publication, or that the use of any information, apparatus, method or process disclosed in this publication will not infringe upon privately owned rights, or

assume any liability with respect to the use of, or for damages resulting from the use of any information, apparatus, method or process disclosed in this publication.

Mention of commercial products, their manufacturers, or their suppliers in this publication does not imply or connote approval or disapproval of the products by the Nuclear Research Centre - Negev or by the Israel Atomic Energy Commission.

הודעה משפטית

פרסום זה מתא לאור על-ידי הקריה למחקר גרעיני—נגב, התועדה לאנרגיה אטומית של ישראל.

הקריה למחקר גרעיני — נגב והמועלים מטעמה או בשמה, או מטעם התועדה לאנרגיה אטומית של ישראל או בשמה

אינם אחראים או ערבים, אחריות או ערבות כלשהי, בפורש או שלא בפורש, לדיוק, לשלמות ולשר משותף של המידע הכלול בפרסום זה או לכך שהשימוש בכל מידע, מכשיר, שיטה או תהליך תדון בפרסום זה לא יפגע בזכויות פרטיות של אחרים,

אינם מקבלים על עצמם כל תחייבות בגין ה' שימוש או טקו השימוש בכל מידע, מכשיר, שיטה או תהליך תדון בפרסום זה.

הזיון של מוצרים מסחריים, של יצרניהם או של ספקיהם בפרסום זה אין משמע אישור המוצרים על-ידי הקריה למחקר גרעיני — נגב או על-ידי התועדה לאנרגיה אטומית של ישראל.

This publication and more information about its subject matter may be obtained at the following address:

Scientific and Technical Information Department
Nuclear Research Centre - Negev
P. O. Box 9007
84 190 Beer-Sheva, ISRAEL

ניתן להשיג את הפרסום הזה וכן מידע נוסף בנושא הפרסום על-ידי מניית לכתובת:

יחידת המידע
הקריה למחקר גרעיני — נגב (ת"י)
ת"י 9007

בארשבע 84 190

איכול של $U - 0.1 \text{ w/o Cr}$ יצוק בלתי מוקרן באמצעות הפצה כיוני ארגון

ק' קוטלר

תמוז תשי"ם - יולי 1980

תקציר

כדי להביא את העבודה המטלוגרפית של המעבדות המטלורגיות החמות בקמ"ג לרמה במרכזי מחקר מתקדמים כעולם, הוצע לערוך ניסויים של איכול דגמים מטלוגרפיים של $U - 0.1 \text{ w/o Cr}$ יצוק באמצעות הפצה כיוני ארגון. בשלב הראשון בוצעו הניסויים במיכשור הקיים על דגמים מפלדת פחמן 0.2 w/o ומפלכ"ם 304. נקבעו הפרמטרים השונים בניסויים והשפעתם על טיב תמונת המיקרוגרף המתקבלת. נמצאו הפרמטרים האופטימליים לאיכול של אורניום.

עמודתוכן העניינים

1	מבוא	1
1	מטרת העבודה	1.1
2	סקר ספרות	1.2
3	תיאור מהלך הניסויים ותוצאות	2
3	תיאור הניסויים	2.1
3	הכנת דגמים	2.1.1
4	תיאור המיכשור	2.1.2
4	מהלך הניסויים	2.1.3
7	תוצאות	2.2
13	ניתוח התוצאות ומסקנות	3
13	הבעת תודה	
14	סימוכין	

1 מכרא1.1 מטרת העבודה

על-מנת לפתור בעיות מספר בשיטת האיכול האלקטרוליטי של אורניום ונתכיו, הקיימות כיום במעבדות המטלורגיות החמות בקמ"ג, הוחלט לנסות ולהפעיל את מכשיר ה-Cathodic Vacuum Etcher (CVE) מתוצרת NUMEC.

השיטה המקובלת כיום לאיכול רגמים מטלורגיים של אורניום ונתכיו שמשמשים כדלק גרעיני, מבוססת על:

(א) השחתת הדגם (לאחר דפינה בבית דגם בעזרת woods metal) על גבי ניירות SiC כתחום 180÷600 mesh.

(ב) ליטוש ואיכול אלקטרוליטי של הדגם במכשיר Lectropol של חברת Struers.

(ג) חימצון הדגם באווירת התא החם במשך 48 עד 72 שעות.

לשיטה זו מספר חסרונות, עליהם מקווים להתגבר בעזרת ה-CVE.

מגבלות שיטת האיכול האלקטרוליטי הן:

(א) ליטוש אלקטרוליטי מרחיב סדקים.

(ב) קשה לאכל דגם לכל אורכו בצורה הומוגנית.

(ג) קצב ההתחמצנות של הדגם הוא גבוה.

(ד) קשיים בחשיפת מבנה האורניום בחפיסת דלק ליד מעטפת האלומיניום, בעיקר ליד קצות החפיסה, עקב נזקי קרינה.

(ה) בדגמים הכוללים סדקים או פגמים אחרים, כגון פורוזיביות, פני הדגם מתכסים בכימיקלים המשתחררים בתום האיכול מפגמי השטח.

(ו) האיכול הוא סלקטיבי כהתאם למצב האנרגטי של החומר (גבולות גרעין, תאומים, וכו').

(ז) קשיים בפירוני התמיסות המזוהמות לאחר השימוש.

מטרת העבודה הנוכחית היא לבדוק אם ניתן להתגבר על חטרונות אלה בעזרת ה-CVE. כמו כן נראה כי שיטת ה-CVE היא אוניברסלית יותר גם בשל העובדה שניתן להשתמש בה למתכות ולחומרים קרמיים (דלק מתכתי או דלק קרמי לכורי כוח) ללא צורך בתמיטה המיוחדת לכל חומר.

1.2 סקר ספרות

ההפצה ביונים היא שיטה מקובלת לאיכול מתכות. פני השטח הנוצרים מתאימים להסתכלות מטלוגרפית הן במיקרוסקופ אופטי והן במיקרוסקופ אלקטרוני.

בשיטת ה-CVE, אלקטרונים המואצים מהקתודה לכיוון האנודה תולשים אלקטרוני ערכיות של הגז הנושא ביוצרים על-ידי כך יונים. הדגם מופצץ באמצעות יונים אלה המואצים באנרגיה גבוהה לכיוון הקתודה. בפוגעם בקתודה מותזים אטומים מפני-השטח של הדגם (הקתודה) באופן סלקטיבי (sputtering)⁽¹⁾. האטומים המותזים נישאים על-ידי הגז המוחדר ושוקעים על-פני האלקטרודות או על דפנות הכלי⁽²⁾. השיטה המיוחדת של איכול חומרים על-ידי sputtering נקראת (CVE) cathodic vacuum etching. בדרך כלל התזה או האיכול הוא תהליך איטי, אך ניתן לזרז את הפעולה על-ידי שימוש בצפיפות זרם יונים גבוהה, באמצעות הגדלת המתח בין האלקטרודות, הגדלת לחץ הגז הנושא, או הקטנת שטח הדגם הקתודי תוך כדי שימוש כמגינים מבודדים⁽³⁾.

שיטת הכנת הדגם לפני האיכול הקתודי חייבת להיות מספקת, כך שהשריטות הנשארות מההשחזה המיכנית תיעלמנה בליטוש ההכנה⁽⁴⁾.

שיטת האיכול באמצעות הפצה ביונים נחקרה על-ידי מספר רב של חוקרים. Padden and Cain⁽²⁾ מצאו שהשיטה טובה הן למיקרוגרפיה והן למיקרוגרפיה של פלדות, ולחשיפת מכנה בצמדים של מתכות שונות, כגון, בחיבור אורניום-צירקוניום. המטלוגרפיה של אורניום נחקרה על-ידי Bierlein⁽⁵⁾ אשר השווה תוצאות שהתקבלו באיכולים כימיים שונים לאלו המתקבלים בהפצה ביונים, והגיע למסקנה חד-משמעית ששיטת ה-CVE מתאימה יותר מאשר כל השיטות האחרות שנחקרו על-ידי. הוא גם מצא ששיטת ה-CVE טובה להכנת פני-שטח של אורניום וחומרים אחרים להסתכלות ישירה במיקרוסקופ אלקטרוני או לשיטה עקיפה באמצעות רפליקות⁽⁵⁾.

2 תיאור מהלך הניסויים ותוצאות2.1 תיאור הניסויים

העבודה העיקרית נעשתה על דגמי U - 0.1 w/o Cr אך נלקחו גם מספר דגמים של פלדה פחמן 0.2 w/o ופלדה 304.

2.1.1 הכנת דגמים

דגמי האורניום נחתכו בדיסקה אברסיבית ממוט יצוק לאחר טיפול תרמי באמבטיות מלח לפי השלבים הבאים:

(א) חימום ב-740°C במשך 40 דקות (לקבלת פזה β).

(ב) חימום ב-515°C במשך 25 דקות (למעבר איזותרמי לפזה α).

(ג) צינון במים.

בטיפול תרמי זה מקבלים גרעינים בעלי קוטר קטן מ-0.2 מ"מ ומבנה איזותרמי באופן מקרוסקופי.

הדגמים החתוכים נוקו במכשיר אולטרסוני ולוטשו על גבי ניירות עד דרגת עדינות של 600 מש.

אחת מקבוצות הדגמים לוטשה אלקטרוליטית בתמיסה כרומית בעלת ההרכב:

H_2O - 60 cc

CH_3COOH - 600 cc

CrO_3 - 50 gr

דגמי הקבוצה השנייה עברו ליטוש מיכני על גבי בד מרוח במשחת יהלום עד דרגת עדינות של 1 μm.

הדגמים מחומרים אחדים (פלדה פחמן, פלבי"ם 304) לוטשו באופן דומה לקבוצה השנייה של דגמי אורניום.

פירוט אופן ליטוש הדגמים מובא בטבלה 1.

טבלה 1 אופן ליטוש הדגמים.

כינוי הדגם	חומר הדגם	אופן הליטוש
1	פלדת פחמן 0.2 w/o	במשחת יהלום $1 \mu\text{m}$
2:3	פלבי"ם 304	במשחת יהלום $1 \mu\text{m}$
4:7	U - 0.1 w/o Cr	אלקטרווליטי
8	U - 0.1 w/o Cr	במשחת יהלום $1 \mu\text{m}$

2.1.2 מיאור המיכשור

המיכשור בנוי בעיקרו ממערכת הספקת מתח גבוה ומערכת שאיבה ליצירת וואקום רינמי. מערכת השאיבה מורכבת ממשאבה רוטורית ומשאבת דיפוזיה.

תהליך ה-sputtering מתבצע בחלליו של "פעמון" זכוכית כאשר הדגם הוא הקתודה ודיסקת אלומיניום A5 מהווה את האנודה. לאחר קבלת וואקום של כ-5:90 mtorr מוחדר ארגון יבש לחלל ה"פעמון" ללא הפסקת פעולת המשאבות. בצורה זו מתקבלת אווירה אינרטית (יחסית) ודינמית ב"פעמון".

לאחר ייצור האווירה מופעל ספק המתח המחמם את הקתודה ויוצר שדה חשמלי הדרוש להאצת האלקטרונים. תושבת הקתודה מקוררת על-ידי מים למניעת חימום יתר שלה ושל הדגם.

תיאור סכימטי של המיכשור מובא בצירור 1.

2.1.3 מהלך הניסויים

הפרמטרים שהשפעותיהם על טיב האיכול הקתודי נבדקו במהלך הניסויים היו:

(א) אופן הכנת הדגם.

(ב) השטף והשטף האינטגרלי של היונים הפוגעים בפני המתכת המאוכלת.

(ג) גודל השטח הנחשף של הדגם.

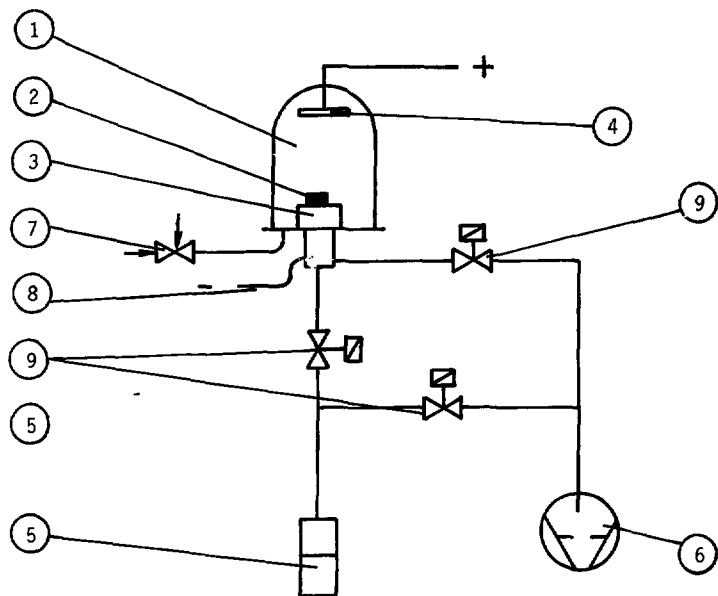
היות שעבודה זו נעשתה במטרה לכדוק את האפשרות של הכנסת מכשיר CVE לתוך התאים

החמים של המעבדות המטלורגיות החמות בקמ"ג, היה דרוש לכדוק את אפשרות העבודה

במיכשור מהסוג הזה ללא משאבת דיפוזיה.

אופן שינוי הפרמטרים בניסויים השונים והשפעת שינויים אלה על טיב האיכול של הדגמים

מובאים בטבלה 2.



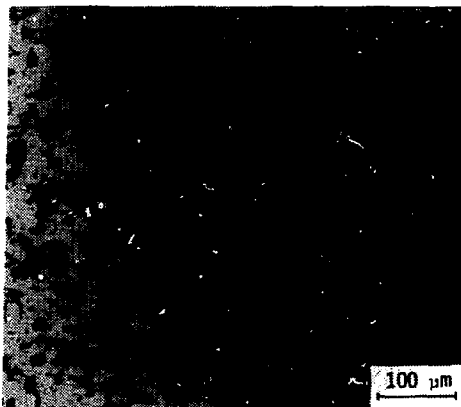
ציור 1 תיאור סכימטי של המיכשור.

1. "פעמון" זכוכית.
2. דגם.
3. קתודה מקודדת במים.
4. אבורה.
5. משאבת דיפוזיה.
6. משאבה רוטורית.
7. ברז מחט.
8. כניסת ארגון.
9. ברזים חשמליים.

דגם מספר	לחץ הארגון (mtorr)		זרם הקתודה (mA)	המתח בין האלקטרודות (kV)	המרחק בין האלקטרודות (cm)	קוטר החשיפה של הדגם (cm)	זמן האיכול (min)	הערות
	התחלתי	בעבודה						
1	100	110	15	3	~4	3	3	
2	110	120	40	3	~6.5	1	3	איכול במרכז הדגם, בעיקר. הדגם במקור היה "1".
3	120	120	30±33	2.0±2.4	~9.5	1.4	4	איכול על כל פני הדגם - ניגודיות נמוכה בין הגרעינים.
4	100	120	28	3	~4	3	5½	גבולות גרעינים חדים.
5	30	80	דיפוזיה	3.5	~4	3	7	בהגדלות גבוהות המכנה לא ברור (מחוספס) - הדגם קצת מחומצן ונחשפו כמיות גדולות של תאומים וקווי החלקה.
	20	70	דיפוזיה	3.5±4.0	~4	3	6½	הדגם לא מחומצן - בדרך כלל האיכול בוצע בלחץ ארגון נמוך מ-30±50 torr.
6	90	100	רוטורית	29	~6	3	8½	החל מהדקה החמישית המתח בין האלקטרודות ירד ל-3 kV וזרם הקתודה עלה ל-0.42 mA. הדגם התחמצן חזק.
7	50	60	רוטורית	16±20	4	~6	11½	הדגם לא אוכל.
8	100	125	רוטורית	27	3.2	~4	6	מכנה חד וברור.

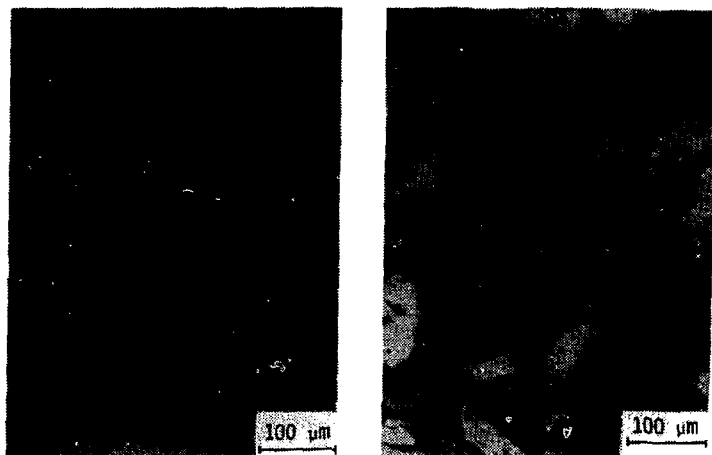
2.2 תוצאות

מטבע הדברים התוצאות היחידות של ניסויים מסוג זה הן מיקרוגרפים, כפי שמתקבלים לאחר האיכול הקתודי. הניסויים ההתחלתיים בוצעו על פלדת פחמן 0.2 w/o ופלב"ם 304. בפלדת פחמן 0.2 w/o ניתן לגלות את המבנה הפריטי-פוליטי. פני השטח הם פורוזיביים (צוור 2).



צוור 2 מיקרוגרף של פלדת פחמן 0.2 w/o (דגם 1) לאחר CVE.

בפלב"ם 304 התקבל המבנה הרגיל בדומה לאיכול כימי (צוור 3).

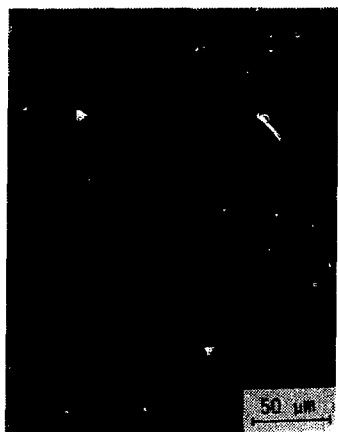


(ב)

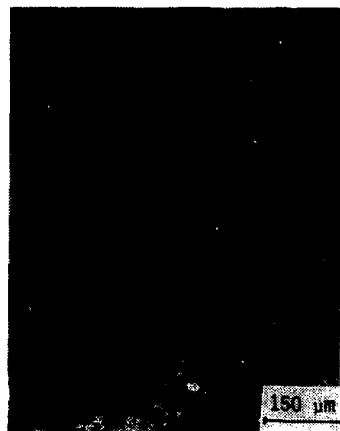
(א)

ציור 3 מיקרוגרפים של פלבי"ם 304 (דגם 3).
 (א) לאחר איכול כימי; (ב) לאחר איכול קתודי.

כדגמי האודניום בוצע האיכול הקתודי על-פני שטחים בקטרים גדולים יותר, עד 30 מ"מ.
 כלחץ ארגון נמוך וזמני איכול קצרים המבנה המתקבל בהגדלות נמוכות מטושטש (ציור 4)
 והרזולוציה בהגדלות גבוהות נמוכה (ציור 5).



צילור 5 מיקרוגרף של אורניום
(דגם 5) המאוכל בלחץ
ארגון נמוך.
(הגדלה של צילור 4).

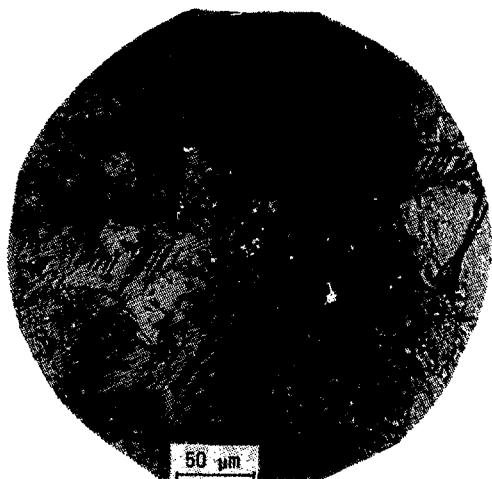


צילור 4 מיקרוגרף של אורניום
(דגם 5) המאוכל בלחץ
ארגון נמוך.

ניתן לקבל מבנה ברור גם בלחץ ארגון נמוך אך זאת בזמני חשיפה ארוכים יותר
(צילור 6). התמונה המתקבלת נשארת חדה וברורה גם בהגדלות גבוהות (צילור 7).

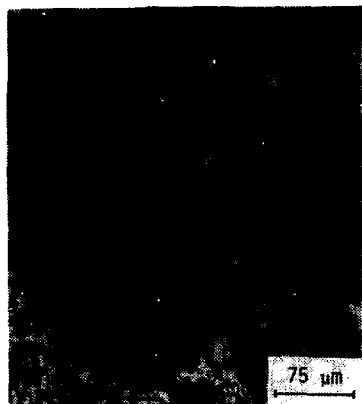


צילור 6 מיקרוגרף של אורניום (דגם 5) בתום תהליך CVE.



ציור 7 מיקרוגרף של אורניום (דגם 5) בתום תהליך CVE (הגדלה של ציור 6).

איכות התמונה בהגדלות נמוכות לא נפגמת גם במקרה של חימצון ממושך (ציור 8) וקיימת רזולוציה טובה בהגדלות גבוהות יחסית (ציור 9).

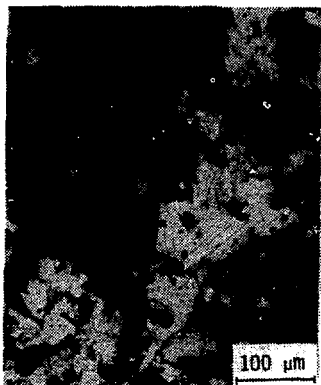


ציור 9 מיקרוגרף של אורניום (דגם 5) לאחר חימצון במשך 72 שעות (הגדלה של ציור 8).



ציור 8 מיקרוגרף של אורניום (דגם 5) לאחר חימצון במשך 72 שעות.

עם עליית לחץ הארגון ניתן לקצר את זמן האיכול. זמן האיכול בדגם 4 של אורניום היה קצר יחסית. התקבל מבנה ברור מיד לאחר האיכול [ציור 10(א)]. מבנה זה נשמר גם כעבור 100 שעות חימצון (ציור 11), וגם בהגדלות נמוכות [ציור 10(ב)].

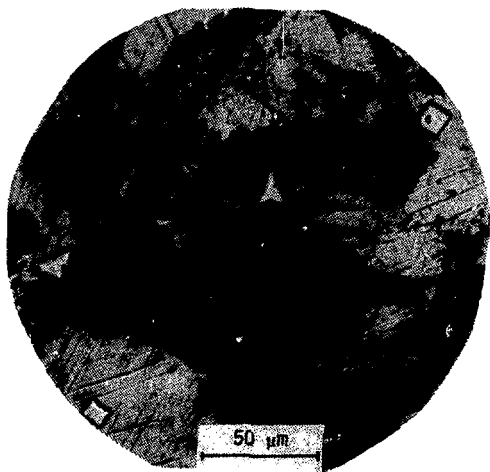


(ב)



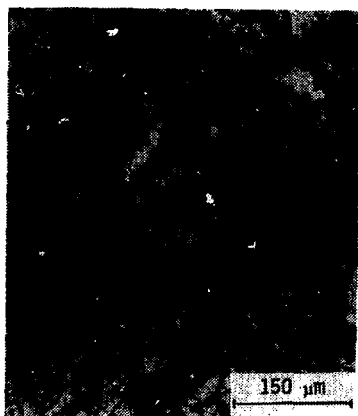
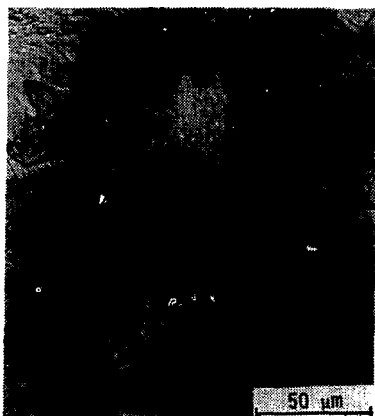
(א)

ציור 10 מיקרוגרף של אורניום (דגם 4) בתום תהליך CVE. (א) מיד לאחר האיכול; (ב) בתום 100 שעות חימצון.

ציור 11

מיקרוגרף של אורניום (דגם 4) בתום תהליך CVE ולאחר 100 שעות חימצון.

כדי לפשט את תהליך ה-CVE הוחלט לבצע ניסויים ללא שאיבת דיפוזיה, כלומר עם מערכת המחוברת למשאבה רוטורית בלבד. הוברר כי במקרה זה דרוש לחץ ארגון גבוה יותר ושטיפה (flush) של ה"פעמון" בארגון לפני איכול הדגם. איכות התמונות אינה נופלת מאיכות התמונות שהתקבלו לאחר תהליך שלם, הכולל שאיבת דיפוזיה (ציור 12), בתחום ההגדלות הנרונות.



ציור 12 מיקרוגרפים של אורניום (דגם 8) לאחר איכול וללא שאיבת דיפוזיה (שתי הגדלות שונות).

שיטת ה-CVE היא יעילה כאשר האיכול מתבצע על דגמים פורוזיביים (ציור 2) או על צירופים שונים של מתכות עם תכונות כימיות חורגות.

קצב חימצון דגמי האודניום הוא איטי יותר מאשר לאחר ליטוש אלקטרוליטי, כנראה עקב פני שטח מלוטשים יותר. גם לאחר כ-100 שעות חימצון איכות המיקרוגרף אינה נפגעת (צירורים 9 עד 11).

3 ניתוח התוצאות ומסקנות

לאור תוצאות הניסויים שבוצעו בעבודה הנוכחית, ניתן להגיע למסקנה שאיכות המטלוגרפיה לא תלויה באופן הכנת פני שטח הדגם (מיכנית או כימית), אך תלויה בפרמטרים השונים של CVE.

הוכח, כפי הנראה, כי לקבלת איכול חייבים להגיע למטען יונים קריטי על-פני הדגם, כלומר, בזרם יונים נמוך (לחץ ארגון נמוך), הזמן הנדרש לקבלת מטען קריטי (זמן איכול) הוא ארוך, ואילו בזרם יונים גבוה (לחץ ארגון גבוה) הזמן הוא קצר (ציורים 4 עד 9, ציור 12).

שלושת הפרמטרים החשובים השולטים על תהליך האיכול הם:

(א) מתח השפופרת;

(ב) לחץ הארגון;

(ג) זמן האיכול.

בדגמי U - 0.1 w/o Cr נמצא כי התנאים לחשגת תוצאות טובות בתהליך CVE ללא שאיבה

דיפוזיה הם כדלקמן:

לחץ הארגון: 100±120 mtorr;

המתח בין האלקטרודות: 3 kV;

זרם הקתודה: 28 mA;

זמן האיכול: 6 min.

הבעת תודה

הודתי נתונה לאנשי המעבדה המטלורגית על עזרתם בעבודה ובמיוחד:

לד"ר צבי לבנת על הדרכתו;

למר פסד רמון על הנחיותיו;

למר ראובן ווישניוצקי על עזרתו הטכנית.

Referencesסימוכין

1. P. Lacombe, "Polishing and etching methods and their applications to optical metallography", in *Metallography 1963, Proc. of the Sorby Centenary Conf. (Sheffield, 9 May 1963)*, Special Report 80, The Iron and Steel Institute, The Thanet Press, Margate, England, 1964, pp 100-102.
2. T. R. Padden and F. M. Cain, "Cathode vacuum etching", *Metal Progress* 66, 108-112 (1954).
3. T. K. Bierlein and B. Mastel, "Improved method of etching by ion bombardment", *Rev. Sci. Instrum.* 30, 832-833 (1959).
4. D. Armstrong, P. E. Madsen, and E. C. Sykes, "Cathodic bombardment etching of nuclear materials", *J. Nucl. Mat.* 2, 127-135 (1959).
5. T. K. Bierlein, *Investigations on the Microstructure of Uranium-Replication, Cathodic Vacuum Etching, and Optical and Electron Microscopy*, HW-34390, Hanford Laboratories, USAEC, 18 January 1955.

בהוצאת מח"ל - פרסומים