

יישום שיטות תעתיק לפרקטוגרפיה של חפיסות דלק גרעיני מוקרנות

א' מוביץ צ' לבנה, ק' קוטלר, א' דגן

שבט תשמ"ה - ינואר 1985

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 מוצג לאור על-ידי הקריה למחקר גרעיני—נבג, הוועדה לאנרגיה אטומית של ישראל.

הקריה למחקר גרעיני — נבג והמפעלים מטעמה או בשמה, או מטעם הוועדה לאנרגיה אטומית של ישראל או בשמה

אינם אחראים או ערבים, אחריות או ערבות כלשהי, במפורש או שלא במפורש, לדיוק, לשלמות ולשימוש מושיות של המידע הכלול בפרסום זה או לכך שהשימוש בכל מידע, מכשיר, שיטה או תהליך הנוון בפרסום זה לא ייגע בזכויות פרטיות של אחרים,

ואינם מקבלים על עצמם כל התחייבות בנין הד- שימוש או נקי השימוש בכל מידע, מכשיר, שיטה או תהליך הנוון בפרסום זה.

הציון של מוצרים מסחריים, של יצרניהם או של ספקיהם בפרסום זה אין משמעו אישור המתירים על-ידי הקריה למחקר גרעיני — נבג או על-ידי הוועדה 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 מניח לכתובת:

יחידת המידע
הקריה למחקר גרעיני — נבג (קפ"ט)
תי"ד 9007
באר שבע 84 190

יישום שיטות תעתיק לפרקטוגרפיה של חפיסות דלק גרעיני מוקרנות

א' מוניץ, צ' לבנה, ק' קוטלר, א' דגן

שבט תשמ"ה - ינואר 1985

תקציר

נחקרה השפעת ההקרנה על התכונות המכניות של דלק גרעיני באמצעות פרקטוגרפיה. מוטות דלק גרעיני ניסויים הוקרנו בכור IRR-2 למנות הקרנה שונות. מוטות מוקרנים ומוטות לא מוקרנים כופפו במכש כפיפה עד לשבר. פני השבר נחקרו באמצעות שיטות תעתיק רגילות. בפני השבר שנוצרו בכפיפה החגלו אותן חופעות מורפולוגיות כמו בשבר מתיחה רגיל. מקור השבר (fibrous zone) נמצא ליד שורש שן התבריג בחפיסת הדלק. איזור הפסים הרדיאליים מתחיל ליד מקור השבר והופס כ-2/3 משטח החתך. באיזור השלישי (shear rupture zone) יש, בהרבה מיקרים, בליטה כצורת גל בגובה של כ-1 cm. איזור מקור השבר הוא ברובו פריך. עם התקדמות הסדק בתוך איזור הפסים הרדיאליים הופך הנהפך למשיך יותר. בסוף איזור הפסים השבר נהפך למשיך ברובו, אולם לקראת האיזור השלישי, השבר נהפך לפריך מחדש.

APPLICATION OF REPLICATION TECHNIQUES TO FRACTOGRAPHY
OF IRRADIATED URANIUM FUEL ELEMENTS

Abraham MUNITZ, Zvi LIVNE, Carlos COTLER, and Uri DAGAN

January 1985

ABSTRACT

Radiation effects in nuclear fuel elements were studied by fractography. Fuel elements were experimentally irradiated at various doses at the IRR-2. Irradiated, as well as unirradiated fuel elements, were bent till fracture, with a bending press. The fractured surfaces were examined by standard replication techniques. The structures reveal the same morphological zones as in standard tensile fractures.

The crack origin zone (fibrous zone) appears near the fuel indent. The radial marks zone starts near the origin and covers about 2/3 of the cross-sectional area. The third zone (shear rupture zone) has a bump, sometimes 1 cm high. The crack origin zone is mainly brittle. As the crack propagates in the radial marks zone it becomes more ductile. It turns entirely ductile at the bump top. Beyond the bump it turns brittle again.

עמודתוכן העניינים

1	מבוא	1
2	סקר ספרות על תעתיק של חומרים מוקרנים	2
2	תעתיק סיליקון דו-שלבי	2.1
3	תעתיק תלת-שלבי	2.2
3	תעתיק דו-שלבי	2.3
3	ניסוי	3
4	תיאור השיטה	3.1
6	הכנת התעתיקים ל-SEM	3.2
7	הכנת התעתיקים ל-TEM	3.3
7	שיטת העבודה	3.4
10	תוצאות	4
10	חפיסות דלק לא מוקרנות	4.1
10	השוואת המבנה של פני שבר מתכתי עם מבנה תעתיק	4.1.1
10	מבנה פני השבר באורניום לא מוקרן	4.1.2
12	מבנה פני השבר כחפיסת דלק מוקרנת	4.2
12	מאקרו-מבנה של 'שבר כפיפה' ו'שבר הקרנה'	4.3
17	דיון	5
20	סיכום	6
20	הבעת תודה	
21	סימוכין*	

הקרנת חפיסות דלק ככור גרעיני גורמת לדגררציה בתכונות המכניות של החפיסה, כגון, ירידה במשיכות ועלייה בפריכות. השינוי בתכונות המכניות הלוי בגורמים כמו, סוג הרלק ומנת ההקרנה שהדלק ספג. ככל שמנת ההקרנה גדלה, כן ההשפעה על התכונות המכניות רבה יותר. כדי לחקור את התכונות המכניות של הדלק, פותח במעבדה המטלורגית בקמ"ג מכבש כפיפה, אשר באמצעותו ניתן לכופף חפיסת דלק שלמה עד לשבריתה ('שבר כפיפה')⁽¹⁾. התבוננות בפני השברים בהגדלות נמוכות (5x) באמצעות פריסקופ, נתנה אינדיקציה כי קיימת תופעה של עלייה בפריכות הדלק עם עליית מנת ההקרנה⁽²⁾.

בבדיקות אולטרא-סוניות שנערכו בחפיסות דלק מוקרנות, בגמר הקרנתן, נמצא כי בחלק מהן נוצרה סדיקה רוחנית מלאה (בניצב לציר האורך של החפיסה). חפיסות דלק שהתגלו בהם סדיקים רוחניים הובאו לתאים ה'חמיסי' (תאים בהם נערכות הבדיקות של גופים רדיואקטיביים). פני הסדק נחשפו באמצעים מכניים (כפיפה במכבש) או באמצעים כימיים (איכול מעטפת האלומיניום). גם שברים אלו (אשר ייקראו בהמשך 'שברי הקרנה') נחקרו באמצעות הפריסקופ בהגדלות נמוכות. עקב מגבלות של עומק שדה (הפרש הגבהים בדגם, בין החלק הגבוה לנמוך, בו עריין ניתן להבחין בפרטים) וכושר הפרדה נמוך, מוגבלת ההסתכלות בפריסקופ על-פני השבר להגדלות נמוכות, ומכאן שאינה מאפשרת בחינת המיקרו-מבנה של השבר.

פיתוח המיקרוסקופים האלקטרוניים המסחריים, בעלי עומק שדה וכושר הפרדה הגבוהים בכשני סדרי גודל ויותר מאלו של המיקרוסקופים האופטיים, הכיאה לפריצת דרך בנושא חקר הכשלונות (failure analysis). בחומרים לא מוקרנים מבוצעת פרטוגרפיה (חקירת פני שבר), בריב המיקרים, באמצעות מיקרוסקופ אלקטרוני סורק (SEM), כאשר חלק מהשבר או כולו (תלוי בממדי הדגם), מוכנס ל-SEM להסתכלות. על סמך תורת השבר אפשר לייחס לחומר תכונות מכניות, כגון: משיכות (פני השבר ייראו בצורת גומות), או פריכות (פני שבר המכילים מישורי ביקוע - cleavage planes). קיימים כיום אטלסים המציגים צורות שבר שאופייניות לחומרים שונים כפונקציה של החומר ותנאי השבירה.

כאשר מדובר בביצוע פרקטוגרפיה של חומר מוקרן בכלל, ודלק בפרט, יש להחגבר על בעיות הקרנה ופיזור מזהמים ומוצרי ביקוע. העבודה חייבת להתבצע תחת מיגון כבד ובאמצעות מניפולטורים בהפעלה מרחוק, ואין אפשרות לברוק את השברים באופן ישיר. ישנה אפשרות לעקוף בעייה זו על ידי בליצוע תעתיק (replication) של פני השבר ובדיקתו באמצעות מיקרוסקופ אלקטרוני סורק (SEM) ומיקרוסקופ אלקטרוני חודר (TEM). ואכן, בעבר יושמה שיטה זו עבור חומרים לא מוקרנים⁽³⁾. בליצוע התעתיק הוא עבודה ערינה ביותר. היות והעבודה בחומרים מוקרנים מתבצעת בתוך התאים החמים, באמצעות מניפולטורים בהפעלה מרחוק, לכן תהליך בליצוע התעתיק הוא קשה ביותר. לשם יישום שיטת התעתיק עבור חומרים מוקרנים, יש לפתח שיטות מיוחדות ומיומנות גבוהה ביותר.

מטרות העבודה היו:

- (א) יישום שיטות תעתיק רגילות עבור שבדים של חפיסות דלק מוקרנות ובדיקתם באמצעות SEM (הגדלות של 20-5000) ובאמצעות TEM (הגדלות של 2000-20000).
- (ב) חקירת ההשפעות של מנת ההקרנה על התכונות המכניות של הדלק באמצעות חקירת שברים.
- (ג) חקירת מנגנון ההיווצרות של סדקי הקרנה והדרך למנוע אותם.

2 סקר ספרות על תעתיק של חומרים מוקרנים

בספרות יש דיווחים על מספר עבודות תעתיק שנעשו על חומרים מוקרנים.

2.1 תעתיק סיליקון דו-שלבי

בשיטה זו⁽⁴⁾ יוצקים דבק סיליקון על-פני השטח הנחקר. לאחר הייבוש הסיליקון מופרד מהדגם, ולאחר ניקוי מתאים. התעתיק מוצא מחוץ התא (מתקבל תעתיק נגיטיבי). באמצעות יצירת אפוקסי על הסיליקון, מתקבל תעתיק פוזיטיבי של הדגם. תעתיק האפוקסי עובר נידוף של אלומיניום או זהב ומסתכלים עליו במיקרוסקופ אלקטרוני סורק. שיטה זו מתאימה עבור עבודות הכרוכות בהגדלות קטנות (מאקרו).

2.2 תעתיק תלת-שלבי

תחילה יוצרים תעתיק של cellulose acetate מפני הדגם, על-ידי המסתו באצטון והידוקו לפני הדגם⁽⁵⁾. לאחר ייבוש מתאים וניקוי מוציאים את התעתיק מהתא המוקרן. יוצרים תעתיק של התעתיק באמצעות תמיסת קולודיום (קולודיום מומס באתיל אצטט). את התעתיק השני מסירים בגמר הייבוש באמצעות סרט דביק. תעתיק הקולודיום עובר הצללה (shadowing) באמצעות זהב, ולאחריה מנודפת שכבת פחמן. בגמר הנידוף, חותכים אזורימ נבחרים לבדיקה. את שכבת הקולודיום ממיסים באתיל אצטט, וכתוצאה מכך נפרדת שכבת הפחמן משכבת הקולודיום. שכבה זו מועלית על רשת (grid) ונבדקת ב-TEM.

2.3 תעתיק דו-שלבי

בשיטה זו מטפטים תמיסת קולודיום על הדגם⁽⁵⁾. לאחר הייבוש מסירים את השכבה באמצעות סרט דביק. המשך תהליך התעתיק הוא כמו בשיטה הקודמת. מתקבל תעתיק עם הפרדה של 10 nm.

השיטה המתוארת בסעיף זה, וכן זו שלעיל (2.2), מתאימות רק עבור דגמים מלוטשים. שברים, ובעיקר שברים מחוספסים, כפי שמתקבל בחפיסות דלק מוקרנות, אינם מתאימים לכיצוע התעתיק בשיטות אלו.

3 ניסוי

שיטות התעתיק המבוססות על שפיכת תמיסה נוזלית, של סיליקון או קולודיום, על הדגם, אינן מתאימות לעבודה כתאים החמים, עקב הקושי בקילוף התעתיק הנגיטיבי מהדגם והוצאתו נקי מהתא, תוך שימוש במניפולטורים.

בהכנת התעתיק מפני שבר של חפיסת דלק מוקרנת, יש להתחשב באופי המיחור של עבודה עם חומרים מוקרנים. יש לשאוף להוצאת התעתיקים ברמת זיהום נמוכה ככל האפשר, שתאפשר הכנת דגמים להסתכלות ב-SEM וב-TEM, תוך כדי חשיפה מזערית לקרינה. לאחר דיון עם אנשי ב"ק, הוחלט כי תעתיקים המקרינים מעל 500 mR/h לא יוצאו מהחמים החמים'.

אחת הבעיות שעמדה לפנינו בהכנת תעתיק מרלק מוקרן היא חימצון האורניום. היווצרות תחמוצת על-פני השבר משנה את פני השטח החיצוניים, ובעיקר חל בהם שינוי כאשר מנסים להסיר את התחמוצות באמצעים כימיים. במיקרים קיצוניים, לאחר הסרת תחמוצת עבה, הובחנו גומות המצביעות, כביכול, על משכיכות החומר, בעוד שבשבר טרי של אותה חפיסת הדלק הובחן במבנה של מישורי ביקוע (שבר פריך), ההפוך במהותו מקורמו. כמו-כן, חלק מתחמוצת האורניום מתקלף עם הסרת התעתיק ומהווה מקור לזיהום לקרינה כרמה גבוהה. נמצא, כי בביצוע מידי של תעתיקים, לאחר יצירת פני השבר במכשש הכפיפה, ניתן להתגבר על בעייה ההתחמצנות.

לשם ביצוע התעתיק בתאים ה'חמים' היה צורך לפתח שיטות עבודה ומכשירים מיוחדים. פותח מכשיר להידוק התעתיקים לפני השבר בצורה אחידה (ובמינימום כוועת אוויר), על-פני רוב שטחו של השבר. בציור 1 ניתן לראות את מכשיר ההידוק. הבוכנה (A) מופעלת באמצעות לחץ אוויר, על-ידי הפעלה מרחוק באמצעות ברז (B). גובה הבוכנה ניתן לכיוון על-ידי העלאת הבוכנה לאורך ציר מוביל (C). הדבר ניתן לביצוע על-ידי הוצאת הבורג הנועל והכנסתו בחור המתאים בציר המוביל. חפיסת הרלק השבורה, עם פני השבר למעלה, מוכנסת לתוך מחזיק (D). ברגי הידוק מחזיקים את חפיסת הדלק בצורה מאונכת ויציבה. בקצה הבוכנה יש פרק גמיש שבקצו מודבק גומי רך, היכול להתאים את עצמו לפני השטח של השבר.

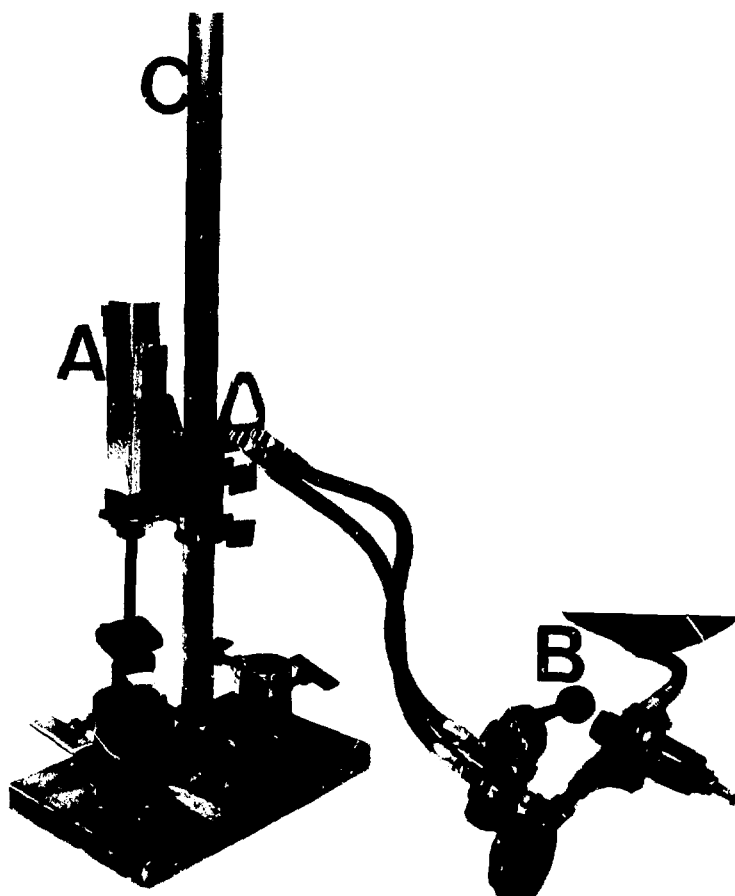
לאחר סידרת ניסויים נבחר צלולויד מתאים. נמצא, כי צלולויד דק (עובי 0.1 mm) נותן אפשרות העתקה טובה, בגלל גמישותו הרבה, אולם קשה לתפסו במניפולטורים. צלולויד עבה (עובי 1 mm) קל יותר לאחוז במניפולטורים, אולם הוא אינו גמיש ואינו מאפשר מעקב של התעתיק על פני השבר המחוספסים. הבעייה נפתרה על-ידי ליפוף סרט דביק בקצה התעתיק (ראה ציור 1) לעיבוי הצלולויד הדק, אשר מאפשר חפיסה נוחה של התעתיק ומאפשר להסירו מהשבר בקלות, באמצעות המניפולטורים.

3.1 תיאור השיטה

להלן מפורטים השלבים של השיטה:

(א) יצירת פני שבר באמצעות מכשש כפיפה;

(ב) טבילת סרט הצלולויד באצטון למשך 15-20 שניות והנחתו על השבר באמצעות מניפולטור;



ציור 1 מכשיר להידוק התעתיק לפני השבר.
 A - בוכנת הידוק; B - ברז להכנסת אוויר והוצאתו;
 C - ציר מוביל; D - מחזיק השבר עם רבע חפיסת דלק.

- (ג) הנחת סרט שני על הסרט הראשון ללא טכילה באצטון והידוק שני הסרטים אל פני השבר באמצעות המכשיר שפותח לשם כך;
- (ד) ייבוש במשך כשעה עד שעה וחצי;
- (ה) תלישת התעתיק באמצעות המניפולטור והכנסתו למיכל פלסטי נקי;
- (ו) הכנת תעתיק נוסף [חזרה על פעולות (ב) עד (ה)];
- (ז) הוצאת התעתיק השני מהתא ה'חם', תוך מעקב אחר רמת הקרינה. תעתיק שמקריין במגע יותר מ-500 mR/h, נפסל;
- (ח) חיתוך הקצוות המזוהמים (בדרך כלל המקום בו נגע המניפולטור בתעתיק);
- (ט) ניקוי אולטרא-סוני במשך כ-20 דקות;
- (י) חיתוך ברדני של אזורים שונים לבדיקה. נמצא, כי בחיתוך התעתיק ניתן להקטין את רמת הזיהום של הדגם בצורה משמעותית, שכן זיהום התעתיק הוא במקומות מוגדרים. הסרת מקומות אלו תורמת להקטנה ניכרת ברמת הזיהום. בסוף התהליך התקבלו תעתיקים בעלי רמת זיהום הקטנה מ-30 mR/h.
- המשך תהליך הכנת התעתיקים מתפצל בהתאם לסוג המיקרוסקופ האלקטרוני שבו ייחקר התעתיק (SEM או TEM).

3.2 הכנת התעתיקים ל-SEM

חתיכות תעתיק, בגודל של 1×1 cm, הודבקו על מחזיקי דגמים כאמצעות סרט דו-צדדי דביק, כשפני התעתיק למעלה. במספר נקודות התבצעה הארקה למחזיק הדגם כאמצעות תמיסת גרפיט. מחזיקי הדגם שעליהם התעתיקים הוכנסו למאייד (evaporator) ונודפה עליהם שכבת זהב, או זהב/פלדיום, בעובי של 50 nm. תפקיד השכבה הוא לשפר את המוליכות החשמלית, כדי למנוע היווצרות שדה חשמלי עקב טעינה מהאלקטרונים הפוגעים (השדה החשמלי מטה את קרן האלקטרונים ולא מאפשר המשך הבדיקות). שכבת הנידוף משפרת גם את הולכת החום ומונעת את התחממות התעתיק ושינויי מבנה הנובעים מהתחממות זו.

מטרה נוספת לשכבת הנידוף היא שיפור הניגוד (contrast) בין הפרטים השונים. עדיף לנדף שכבת זהב (או זהב/פלדיום), בעלת משקל אטומי גבוה, שתגביר את הניגוד ולא שכבת אלומיניום. שכבת הנידוף משמשת גם כהגנה מפני פיזור הזיהום. מחזיקי הדגמים נלקחו ישירות לבדיקה ב-SEM.

יש לציין, כי נמצא ששכבת נידוף בעובי של כ-50 mm מאפשרת הסתכלות ישירה על התעתיק מבלי לגרום לנזקים עקב אינטראקציה של קרן האלקטרונים עם התעתיק, ואינה מורידה את כושר ההפרדה במידה רבה. להערכתנו, כושר ההפרדה יהיה כ-15 במקום mm 5, שהוא כושר ההפרדה האופטימלי של המכשיר. כושר הפרדה זה הוא מספיק עבור חקירת השברים.

3.3 הכנת התעתיקים ל-TEM

התעתיקים הודבקו על זכוכית (microscopic slide glass), כשפני השטח הנבדקים כלפי מעלה. התעתיקים עם הזכוכית הוכנסו למאייר. תחילה נעשתה הצללה עם זהב/פלדיום בזווית של כ- 20° . לאחר מכן, נודפה שכבת פחמן בדיוק מעל התעתיקים (בזווית של 90° עם הציר האופקי). שכבת הפחמן היא בעובי של 50-70 nm. לאחר הנידוף התעתיקים נחתכו לחתיכות מרוכעות בגורל של כ-3x3 mm. הצלולויד הומס במשך ¼ שעה באצטון ואז נפרדה שכבת הפחמן המוצלת. שכבה זו הועברה לשהיה של כיומיים באצטון נקי, לשם המסת שיידי הצלולויד. בגמר שלב הניקוי הועברה שכבת הפחמן למים מזוקקים. בגלל מתח הפנים של המים התעתיק התיישר, דבר שיאפשר להעלותו על הרשת (grid) ללא קיפולים. במידה שהעברת שכבת הפחמן למים גרמה לקריעתה, אפשר להכניס את שכבת הפחמן לתמיסה של מים מזוקקים עם אלכוהול, המוריד את מתח הפנים של המים. חתיכות הפחמן המוצלל, בגודל של כ-3x3 mm, המכילות את פרטי הדגם, הושמו על רשתות של 200 mesh ונלקחו לבדיקה ב-TEM.

3.4 שיטת העבודה

לצורת ההעמסה של הדגם עד לשכירה יש השפעה ניכרת על מכנה השבר האופייני. במכשיר הכפיפה פילוג המאמצים אינו אחיד. כתחילת הכפיפה הצד הרחוק מהרוחפן הוא עם מאמץ המתיחה המרכזי והצד הקרוב לרוחפן הוא עם מאמץ הלחיצה המזיבי. עם היווצרות הסרק והתקדמותו, האיזור עם מאמץ הלחיצה קטן והאיזור שקיבל מאמץ מתיחה גדל. בגמר התהליך כל חתך הרוחב של הדגם "ראה" מאמץ מתיחה. בגלל פילוג המאמצים בשכירה על-ידי כפיפה צפוי מכנה שבר שאופיו שונה משבר מתיחה רגיל (כפי שעור

נדון בהמשך). לכן, חשוב היה לכדוק את מכנה פני השכר של חפיסות דלק לא מוקרנות, כדי לאפיין אזורי בריקה שונים, וכדי שיהיו דוגמת ייחוס ל'שברי כפיפה' של חפיסות דלק מוקרנות.

חפיסות דלק לא מוקרנות נשברו באותו מכשיר ובאותם תנאים בו אמורות היו להישבר חפיסות הדלק המוקרנות בתוך התאים ה'חמים'. מאקרו-מכנה של 'שכר כפיפה' אופייני נתון בציור 2. מבחינים בו במספר אזורים שונים:

(א) מקור השכר (מסומן בחץ), תמיד בצד המנוגד לרוחפן המפעיל את הכוח;

(ב) איזור התקדמות הסדק, הנקרא כספרות *radial marks*;

(ג) איזור השכר הסופי, הנקרא בספרות *shear zone*. באיזור זה ניתן לראות צורה של גל [ראה ציור 2(ג)], המזכיר צורה של S שוככת. להלן נקרא לו ה-"S".

מהסתכלות ראשונית ב-SEM נמצא כי קיימים הבדלים במיקרו-המכנה והוחלט לכדוק את השברים ב-4 אזורי בריקה הממוספרים I עד IV (ראה ציור 2(א)). איזור I - מקור השבר; איזור II - התקדמות הסדק; איזור III - בשיא ה-"S"; איזור IV - לקראת סוף השבר, תחתית ה-"S".

כספרות מוזכר כי דלק נהפך לפריך בעת התקרנה, והיות וגם לבו יש אינדיקציה מהסתכלות בפריסקופ שהדלק נהפך לפריך, הוחלט לכדוק את הדלק ה'קר' בשני מצבים: בטמפרטורת החדר, בה הדלק הלא מוקרן נחשב למשיך, ובטמפרטורת חנקן נוזל, בה הדלק הלא מוקרן אמור להיות פריך. ואכן, התגלו הבדלים במכנה השכר (על רובם נעמוד בפרק הבא). בציור 2(ב) ו-2(ג) ניתן לראות פני שבר של חפיסת דלק לא מוקרנת בטמפרטורה של חנקן נוזל, ובציור 2(א) פני שבר של 'שכר כפיפה' בטמפרטורת החדר. גובה ה-"S" כשבר משיך גדול, בעוד שגובה ה-"S" כשבר פריך קטן כהרבה. לאחר החקירה של שברים כחפיסות לא מוקרנות הוצאו מהתאים תעתיקים של חפיסות דלק מוקרנות.

יש לציין, כי נמצא ששכבת נידוף בעובי של כ-50 mm מאפשרת הסתכלות ישירה על התעתיק מבלי לגרום לזנקים עקב אינטראקציה של קרן האלקטרונים עם התעתיק, ואינה מורידה את כושר ההפררה במירה רבה. להערכתנו, כושר ההפררה יהיה כ-15 mm במקום 5 mm, שהוא כושר ההפרדה האופטימלי של המכשיר. כושר הפררה זה הוא מספיק עבור חקירת השברים.

3.3 הכנת התעתיקים ל-TEM

התעתיקים הודבקו על זכוכית (microscopic slide glass), כשפני השטח הנבדקים כלפי מעלה. התעתיקים עם הזכוכית הוכנסו למאייר. תחילה נעשתה הצללה עם זזה/פלדיום בזווית של כ-20°. לאחר מכן, נודפה שכבת פחמן בדיוק מעל התעתיקים (בזווית של 90° עם הציר האופקי). שכבת הפחמן היא בעובי של 70-50 nm. לאחר הנידוף התעתיקים נחטכו לחתיכות מרוכעות בגודל של כ-3x3 mm. הצלולויר הומס במשך ¼ שעה באצטון, ואז נפרדה שכבת הפחמן המוצללת. שכבה זו הועברה לשהייה של כיומיים באצטון נקי, לשם המסת שיירי הצלולויד. בגמר שלב הניקוי הועברה שכבת הפחמן למים מזוקקים. בגלל מתח הפנים של המים התעתיק הוויישר, דבר שיאפשר להעלותו על הרשת (grid) ללא קיפולים. כמידה שהעברת שכבת הפחמן למים גרמה לקריעתה, אפשר להכניס את שכבת הפחמן לתמיסה של מים מזוקקים עם אלכוהול, המוריד את מתח הפנים של המים. חתיכות הפחמן המוצלל, בגודל של כ-3x3 mm, המכילות את פרטי הדגם, הושמו על רשתות של 200 mesh ונלקחו לכדיקה ב-TEM.

3.4 שיטת העבודה

לצורך ההעמסה של הדגם עד לשכירה יש השפעה ניכרת על מכנה השבר האופייני. במכשיר הכפיפה פילוג המאמצים אינו אחיד. כתחילת הכפיפה הצד הרחוק מהרוחפן הוא עם מאמץ המתיחה המרבי והצד הקרוב לרוחפן הוא עם מאמץ הלחיצה המובי. עם היווצרות הסדק והתקדמותו, האיזור עם מאמץ הלחיצה קטן והאיזור שקיבל מאמץ מתיחה גדל. בגמר התהליך כל חתך הרוחב של הדגם "ראה" מאמץ מתיחה. בגלל פילוג המאמצים שבכירה על-ידי כפיפה צפוי מבנה שבר שאופיו שונה משבר מתיחה רגיל (כפי שערך

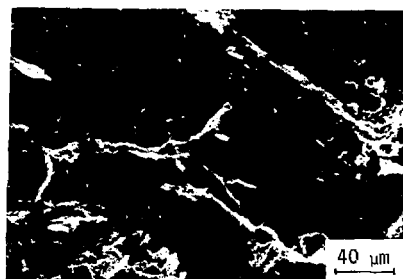
4 תוצאות4.1 חפיסות דלק לא מוקרנות

4.1.1 השוואת המבנה של פני שבר מתכתי עם מבנה תעתיק

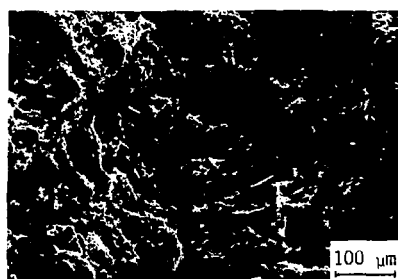
אחת השאלות החשובות שהתעוררה במהלך פיתוח תהליכי העבודה היתה, כאיזו מידה מייצגת התמונה המחסימת מהתעתיק את פני השבר האמיתיים. על שאלה זו ניתן לענות על-ידי השוואת המיזוח המתקבלות ב-SEM מחומר מתכתי לתעתיק שבוצע ממנו. היות ולא ניתן כמובן להוציא דגם מתכתי של אורניום מוקרן ולהסתכל עליו ב-SEM, נעשתה ההשוואה על אורניום לא מוקרן. צד אחד של דגם שנשבר בכפיפה הוכנס להסתכלות ישירה ב-SEM על פני השבר המתכתי, ואילו מהצד השני הוכן תעתיק שהוכנס לכדיקה ב-SEM. ההשוואה בין פני שבר מתכתי לבין פני אותו שבר מתעתיק נתונה בציור 3. היות ואנו שוכרים חפיסה שלמה, אין באפשרותנו להכניס ל-SEM דגם של פני השבר מבלי לחתכו. החיתוך גרם להתחמצנות חמורה של פני השבר [ראה ציור 3, (א) ער (ג)]. שכבת התחמצנות מאפילה על המבנה האמיתי. מצד שני, הסתכלות על שברים באמצעות תעתיקים נותנת תמונות שאופייניות לסוג מעורב של שבר, פריך בשילוב עם משיך. כתוצאה מכך הגענו למסקנה כי שיטת התעתיק שפותחה אכן עונה על הציפיות.

4.1.2 מבנה פני השבר באורניום לא מוקרן

מחפיסות דלק לא מוקרנות שנשברו בטמפרטורת החדר ובטמפרטורת חנקן נוזלי נלקחו תעתיקים מכל ארבעת אזורי הבדיקה. באופן כללי ניתן לומר כי השברים הם שילוב של שני סוגי שבר: אזורים מקומיים בעלי אופי משיך - גומות, ואזורים מקומיים בעלי אופי פריך - מישורי ביקוע. הכמות היחסית של האזורים שנראו כמשיכים ושל האזורים שנראו כפריכים משתנה לפי אזורי הבדיקה. בציור 2 איזור I פריך ברובו; עם התקדמות הסדק (איזור II), כמות האזורים המשיכים הולכת וגדלה (וכמות האזורים הנראים כפריכים יורדת); בשיא ה-"S" (איזור III) השבר ברובו משיך; בתחתית ה-"S" (איזור IV) השבר שוב פריך ברובו.



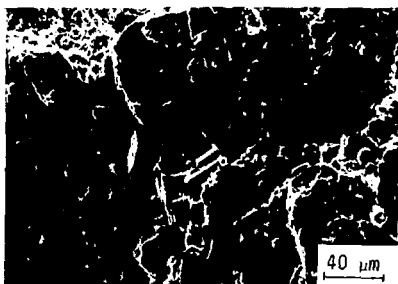
(ד)



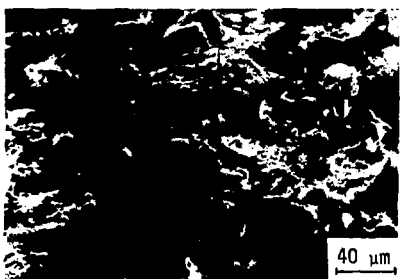
(א)



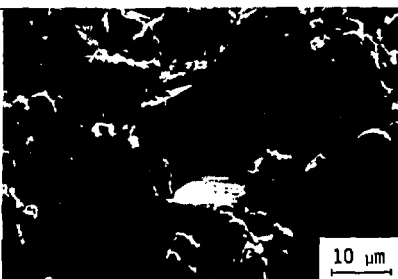
(ה)



(ב)



(ו)



(ג)

צילור 3 השוואת המיקרו-מבנה של פני שבר מחתכי (א)-(ג) למיקרו מבנה של פני שבר מתחתיק (ד)-(ו).

בציורים 4 ו-5 נראה המיקרו-מבנה של פני שברים באזורים השונים, עבור חפיסת דלק שנשברה בטמפרטורת החדר ועבור חפיסת דלק שנשברה בטמפרטורת חנקן נוזלי, בהתאמה. כמות האזורים הפריכים של חפיסת דלק שנשברה בחנקן נוזלי גדולה בהרבה מכמות האזורים הפריכים בחפיסת דלק שנשברה בטמפרטורת החדר (השווה ציור 4 (א) עם 5 (א)). גם האופי של השבר הפריך הוא שונה במקצת. בעוד מישורי הביקוע בשבר הפריך שנוצר בטמפרטורת החדר הם חלקים ובאותו מישור, הרי מישורי הביקוע בשבר הפריך, שנוצר בטמפרטורה של חנקן נוזלי, אינם באותו מישור (השווה ציורים 4 (ד) עם 5 (ד)). בשני המיקרים ניתן לראות (במיוחד עבור טמפרטורת חנקן נוזלי), שאכן אופי השבר הולך ונהיה משיך יותר עם התקדמות הסדק, עד שהוא הופך ברובו למשיך כשיא ה-S", וכאשר מתקרבים ממש לחלק האחרון שנשבר (הקצה התחתון של ה-S"), השבר נהפך מחדש לפריך.

4.2 מבנה פני השבר בחפיסת דלק מוקרנת

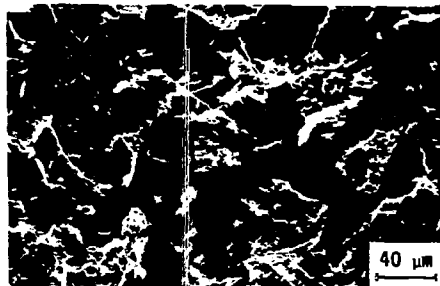
לאחר הבדיקה של פני 'שברי כפיפה' עבור חפיסות דלק לא מוקדנות, הוצאו מהתאים ה'חמים' העתיקים של פני 'שברי כפיפה' של חפיסות מוקרנות. דוגמה אופיינית של מיקרו-מבנה של פני שבר כזה בתונה בציור 6. ב-(א), ניתן להבחין במקור השבר (איזור I) והתחלת האיזור של הפסים הרדיאליים (איזור II). הגדלות של האזורים I עד IV נתונות בציורים (ב) עד (ה). אופי פני השבר של חפיסת דלק מוקרנת שונה במהותו מאופי פני השבר של חפיסת דלק לא מוקרנת (השווה ציור 5 עם ציורים 4 ו-5). יתכן מאוד כי ההבדל באופי השבר נובע מכך שבעת ההקרנה נוצרו תאומים רבים (אשר לא היו קיימים בחפיסת דלק לא מוקרנת). בעת ההתקדמות, הסדק משנה כיוונו לפי התאומים, ומתקבל מבנה שבר כבציור 6.

4.3 מאקרו-מבנה של 'שבר כפיפה' ו'שבר הקרנה'

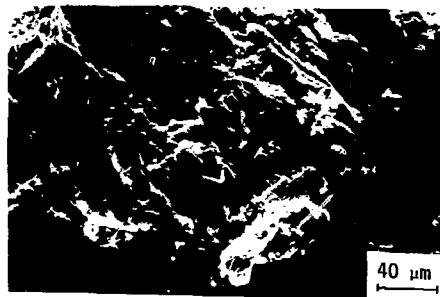
בציור 7 ניתנה השוואה בין מבנה 'שבר הקרנה' (א) לבין 'שבר כפיפה' (ב) עבור אותה חפיסת דלק מוקרנת. מתוך הצילום ניחן לראות כי קיימים הבדלים במאקרו-מבנה בין שני סוגי השברים, וצפוי, לכן, שיהיה הבדל גם במיקרו-מבנה. בירור המיקרו-מבנה של השברים יעזור לנו רבות בהכנת המנגנון של היווצרות השברים, ויתכן ונוכל אף לדעת איך למנוע היווצרות של 'שברי הקרנה'. למעשה פותח תהליך הכנת התעתיקים למטרה זו.



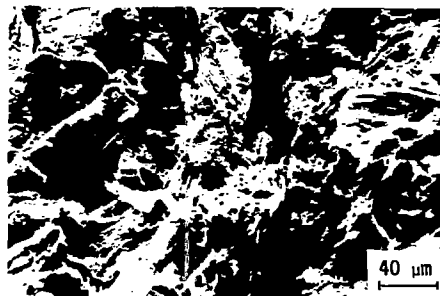
(ב)



(א)



(ד)



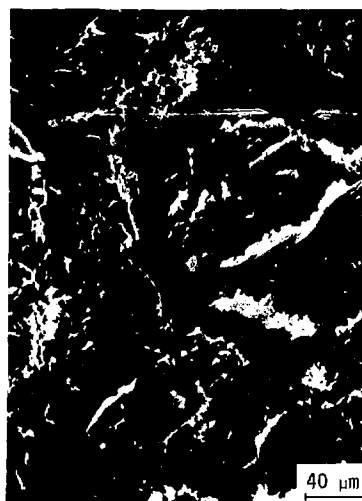
(ג)

(א) מקור השבר; (ב) איזור II קרוב ל-(C);

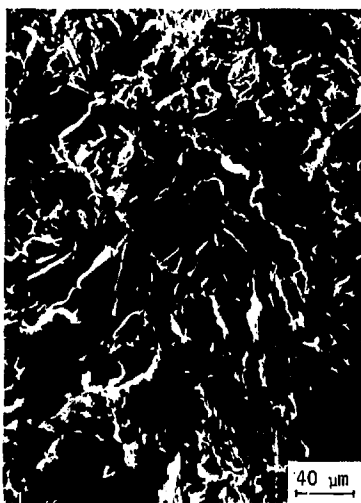
מיקרו-מבנה של חפיסת דלק לא מוקרנת שנשברה בטמפרטורת החדר.
(ג) החלק העליון של ה-"S"; (ד) החלק התחתון של ה-"S".



(ב)



(א)

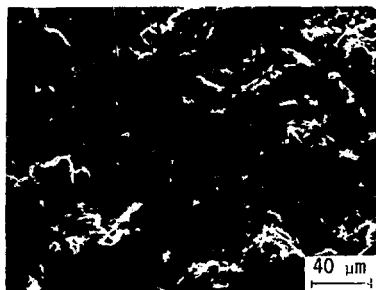


(ד)

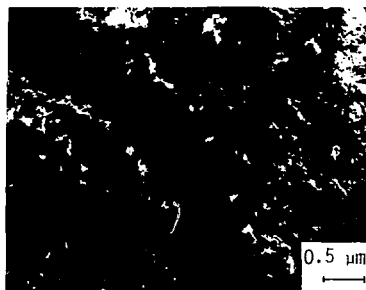


(ג)

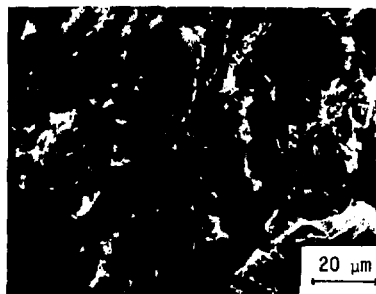
ציור 5 המיקרו-מבנה של הפיסח דלק לא מוקרנת שנשברה בטמפרטורת חנקן נוזלי.
 (א) מקור השבר; (ב) איזור II קרוב למקור השבר; (ג) איזור II קרוב יותר ל-"S"; (ד) החלק התחתון של ה-"S".



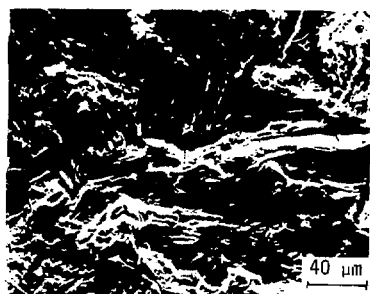
(ג)



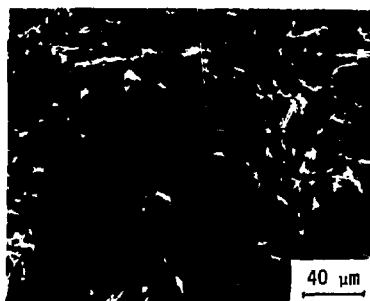
(א)



(ד)



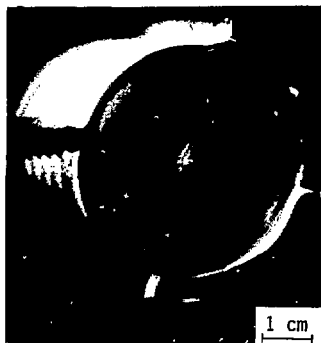
(ב)



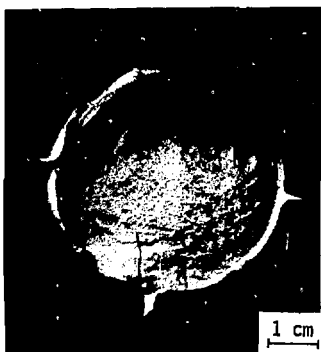
(ה)

צילור 6

מיקרו-מבנה של חפיסת דלק
 מוקרנת שנשברה בתאים
 ה"חמים" בטמפרטורת החדר.
 (א) הגדלה נמוכה של מקור
 השבר ואיזור II;
 (ב) מקור השבר;
 (ג) איזור II;
 (ד) הקצה העליון של ה"ס";
 (ה) הקצה התחתון של ה"ס".



(א)



(ב)

צילור 7 מאקרו-מבנה של פני שבר בחפיסות
 דלק מוקרנות.
 (א) 'שבר הקרנה';
 (ב) 'שבר כפיפה'.

5 דיון

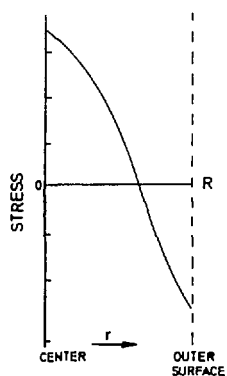
הקרנת חפיסות דלק ככור גורמת להיווצרות מפלי טמפרטורה בתוך חפיסת הרלק. ליבת חפיסת הדלק נמצאת בטמפרטורה גבוהה, בעוד שבהיקף (ליד מעטפת האלומיניום) טמפרטורת הדלק מגיעה לטביכות 150°C . כתוצאה ממפלי טמפרטורה אלו, מתפתחים בחפיסת הרלק בעת ההקרנה שדות מאמצים^(2,6).

ציור 8(א) מתאר את שדות המאמצים בכיוון Z (במקביל לציור האורך) כפונקציה של המרחק ההדאיאלי ממרכז חפיסת הדלק (שדות מאמצים רדיאל-סימטריים). באיזור המרכז של חפיסת הדלק ישנם מאמצי לחיצה, בעוד שבהיקף החפיסה יש מאמצי מתיחה. במידה שמניחים הרפיית מאמצים מלאה לאחר שהייה ארוכה בטמפרטורה גבוהה, הרי בעת הוררת הספק מהירה פילוג המאמצים מתהפך - במרכז מאמצי מתיחה ובהיקף מאמצי לחיצה [ציור 8(ב)].

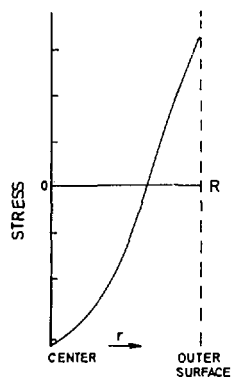
להערכתנו, במציאות אין החלמה (recovery) מלאה. במרכז חפיסת הרלק ההחלמה היא כמעט מושלמת בעוד שבהיקף ההחלמה חלקית ביותר, ולכן שרות המאמצים לאחר זמן הקרנה מסויים ייראו כמו בציור 8(ג). בעת הוררת הספק מהירה ייווצרו במרכז חפיסת הדלק מאמצי מתיחה, בעוד שבהיקף יהוו מאמצי לחיצה קטנים [ציור 8(ד)].

למרות שעדיין לא פוענח במלואו המנגנון של היווצרות סדקי הקרנה בחפיסות דלק מוקרנות, סביר להניח כי מאמצי המתיחה במרכז החפיסה מהווים את הכוח המניע להיווצרות הסדקים אשר התחילו להיווצר, ברוב המיקרים, במרכז חפיסת הרלק. יתכן כי שילוב מאמצים אלו עם פגמי הייצור כדלק, המהווים מקור לריכוז מאמצים, גורמים לתופעת הסדיקה בעת ההקרנה. הסדק כמובן, ייווצר רק באיזור בו נמצאים מאמצי מתיחה. עדיף היה ליצור שבר בדלק מוקרן באמצעות דגם מתיחה, בו נמצאים מאמצי מתיחה טהורים, אולם הדבר לא ניתן לביצוע מבחינה טכנית. הפתרון אליו הלכנו, של שבירת חפיסה שלמה בכפיפה, נוח לכיצוע מבחינה טכנית, אולם נכנס כאן פרמטר נוסף של שדות מאמצים מורכבים, הדורש עבודת פיענוח מסובכת יותר. ואכן האינטראקציה של שדות המאמצים עם הדלק מתבטאת בארבעת אזודי הבדיקה.

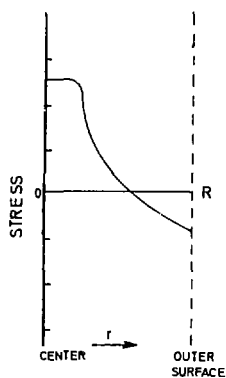
סיכוך בוסף קיים בגלל אי אחידות במיקרו-מבנה, שמשחקף בחתך רוחב בחפיסת דלק. ציור 9 נותן חיבור סכימתי של חתך רוחב בחפיסת דלק מוקרנת. ניתן להבחין בשלושה אזורים:



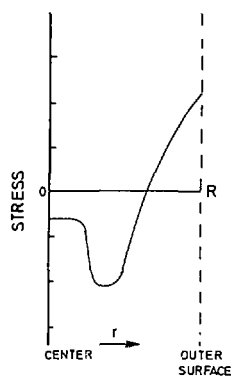
(ב)



(א)



(ד)



(ג)

ציור 8 פילוג מאמצים תרמיים אורכי בכיוון ציר z בחפיסת דלק.

(א) בעת תחילת ההקרנה;

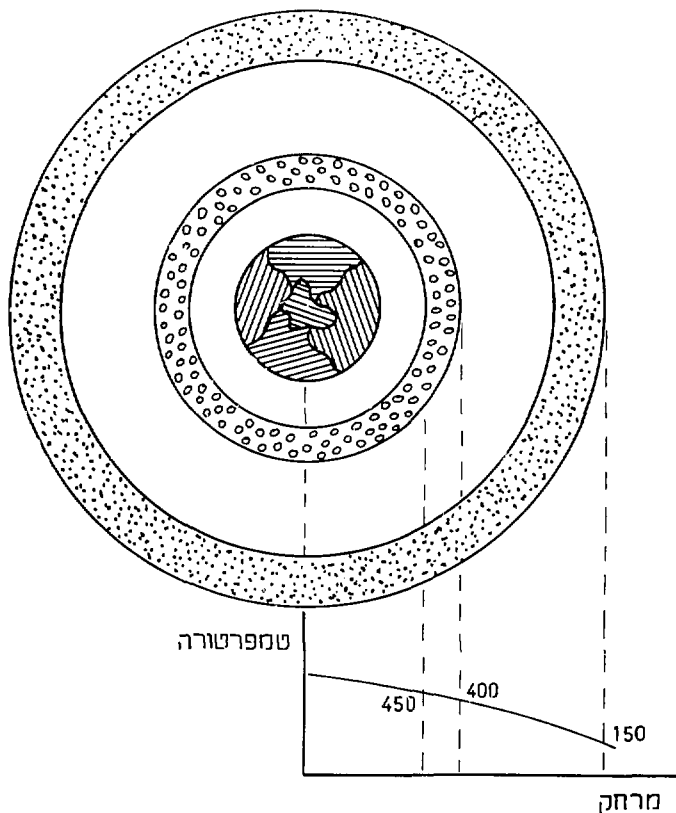
(ב) בעת הורדת הספק מהירה לאחר שיחרור מאמצים מושלם




בעת ההקרנה;

(ג) בעת ההקרנה לאחר שיחרור מאמצים חלקי;

(ד) בעת הורדת הספק מהירה לאחר שיחרור מאמצים חלקי

בעת ההקרנה.



- 
 מבנה עם גרעינים הרוסים;
- 
 איזור נקבוכי כחוצאה מ-enhanced swelling;
- 
 מבנה שעבר הרפייה ואולי אף גידול גרעינים.

- (א) איזור בעל מכנה גרעיני הרוס (אי אפשר להכחין במיקרוסקופ אופטי במכנה של גרעינים). גודלו של איזור זה תלוי בהרכב הדלק - ובמנת ההקרנה.
- (ב) איזור נקבוכי המזוהה כאיזור של enhanced swelling, הנמצא בדרך כלל באזורים ב-8 הטמפרטורה היא $420-450^{\circ}\text{C}$. ברור לכן, כי איזור זה תלוי בפילוג הטמפרטורה בחפיסה, הנקבע על פי מיקום החפיסה בכור. ישנה תזוזה של האיזור הזה יחסית לליבת החפיסה, בהתאם לפילוג הטמפרטורות בחפיסה.
- (ג) איזור שעבר הרפייה ואולי אף גיבוש מחדש. זהו איזור ליבת החפיסה, וגודלו תלוי ישירות במיקום החפיסה בכור.
- שילוב של מכנה שונה לחלוטין בחתך הרוחבי של הדגם, מצד אחד, ופילוג מאמצי כפיפה שונים בכל נקודה ונקודה מצד שני, מסכך ביותר את ניתוח התוצאות. נקודות אלו יובאו בחשבוני כניתוח התוצאות בהמשך העבודה.

6. סיכום

שיטת התעתיק הרו-שלבית הרגילה יושמה לעבודה עם חפיסות דלק מוקרנות בתוך התאים ה'חמים'. תחילה נברקה השיטה על חפיסות דלק קרות, ונמצא כי התעתיק מדויק ומאפיין נאמנה את פני השברים, וניתן להכחין בסוגי השברים השונים.

הוצאו תעתיקים של שברים בחפיסות דלק מוקרנות מהתאים ה'חמים'. נמצא כי קיימים הבדלים במבנה המשיך של החומר ובמכנה הפריך בין חומר מוקרן לחומר לא מוקרן.

הכעת תודה

אנו מודים לאנשי המעבדה החמה, ח' אמיתי, ג' בן-אבו, ד' מידאני, על עזרתם ותרומתם למחקר. כמו-כן, ברצוננו להודות לאנשי המעבדה למיקרוסקופיה אלקטרונית, ז' בריקאי ו-ב' יהסוב.

Referencesסימוכין

1. Z. Livne, A. Munitz, P. Regev, U. Dagan, and C. Cotler, "Examination system of irradiated metallic fuel elements", in *Applications of Advanced Technologies in Israel* 9, 6.6÷6.11, February 16, 1982.
2. A. Munitz and Z. Livne, "Transverse cracks in irradiated metal fuel elements", in *Applications of Advanced Technologies in Israel* 9, 6.12÷6.17, February 16, 1982.
3. *Metals Handbook*, Vol. 9: *Fractography and Atlas of Fractographs*, J. A. Follows, ed., 8th edition, American Society for Metals, Metals Park, Ohio, 1974.
4. R. S. Crouse, "Replication of microstructures using silica rubber and epoxy resin", Technical Papers of the 17th Metallographic Group Meeting, R. M. Roth (comp.), Nuclear Metals, West Concord, Mass., April 1, 1965, pp. 60-68.
5. F. E. McGroth, "One step replication in the hot cell", Technical Papers of the 17th Metallographic Group Meeting, R. M. Roth (comp.), Nuclear Metals, West Concord, Mass., April 1, 1965.

המבנה המורפולוגי מטלורגי של פני הרגם בלכר. זאת אפשר לראות בציורים 3.2 ו-3.3. הרגם בציור 3.3 חומס עד ל- 350°C ואף על פי כן היתה צפיפות הגרעינים המרבית על פניו רק מחצית מזו שבציור 3.2 בו חומס הרגם רק עד ל- 160°C . הרגמה נוספת ניתנת בציור 3.4. בציור 3.4 ו-3.4 ג נראים שני רגמים שונים אשר חוממו ל- 150°C ואתר כך נחשפו למימן. צפיפות הגרעינים שנמדדה עליהם היא 800 ו- 13000 mm^{-2} בהתאמה. כלומר, הבדל של למעלה מסדר גורל. ציורים 3.4 ו-3.4 ג מתייחסים לאותו הרגם. תחילה בוצעה עליו הידרידיזציה בטמפרטורה התחלתית של 170°C , והתוצאה מתוארת בציור 3.4 ב. לאחר גמר הנוקליאציה על פני השטח, ובטרם נמשכה התגובה, הוצא הרגם ולוּטש עד להסרת כל השכבה המותקפת. אז הוא הוחזר לתא והוגב עם מימן בטמפרטורה של 150°C . התוצאה מתוארת בציור 3.4 ג. צפיפות הגרעינים בשני המיקרים היתה 10,000 ו- $13,000\text{ mm}^{-2}$ בהתאמה. כלומר מספר הגרעינים היה קבוע כמעט בנחום השגיהה הניסויית. נוקליאציה ההירירי על פני המתכת מתרחשת לפיכך באתרי נוקליאציה פוטנציאליים שצפיפותם, N_0 , על פני הדגם היא קבועה ותלויה רק במבנה הדגם. ההכרל הניכר בצפיפות הגרעינים ברגמים השונים קשור כנראה במיקום הופעתם. זוהי נוקליאציה הטרוגנית המתרחשת באיזורים מועדפים מסויימים: גבולות גרעינים, ופסי החלקה. הרגמים בהם בוצעו הניסויים לא היו מאוכלים וגבולות הגרעינים בהם לא היו מוגדרים היטב. אך כמה עוכרות תומכות בקביעת מיקומם של גבולות הגרעינים כאתרי הנוקליאציה הפוטנציאליים:

- (א) כחלק מן הרגמים אשר חוממו בנוכחות מימן, נמצאה תופעה של *thermal etching*, כלומר חשיפה חלקית של גבולות הגרעינים עקב החימום. במיקרים אלו נראו גרעיני הידירי רכים כגבולות הגרעינים שנחשפו. נקודות הידירי מופיעות גם באיזורים שאינם מוגדרים היטב, אולם לא כל גבולות הגרעינים נחשפו במהלך התגובה;
- (ב) מחקריהם המטלורגיים של Robillard⁽⁶⁷⁾ ושל Mogard and Cabane⁽⁶⁸⁾ הראו שכאשר מחממים אורניום בנוכחות מימן בטמפרטורות מספיק גבוהות למניעת היווצרות ההידירי, כך שמתרחשת המסת מימן בלבד, ולאחר מכן מקררים אותו במהירות, שוקע ההידירי בצורת גרעיני הידירי עגולים בגבולות גרעינים, כלומר אתרים אלו מועדפים ליצירת גרעיני ההידירי. נוקליאציה מועדפת בגבולות גרעינים נמצאה גם על ידי Gardner and Riches⁽⁶⁹⁾;