

התמצקות אוסקטית של נתכי Al-U בקיצבי קירור איטיים (10°C/Sec)

אברהם מוניץ, ויקטור (יהודה) זנו, קלוס קוטלר, אלי נתמה

ניסן תשנ"ב - מאי 1992

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 מטא לאור על-ידי הקריה למחקר גרעיני — נגב, הועדה לאנרגיה אטומית של ישראל.

הקריה למחקר גרעיני — נגב והפעלים מטעמה או מטעם הועדה לאנרגיה אטומית של ישראל או בשמה

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

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

צינון של מוצרים מסחריים, של יצרניהם או של ספקיהם בפרסום זה אין משמעו אישור המוצרים על-ידי הקריה למחקר גרעיני — נגב או על-ידי הועדה 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 המרסום על-ידי מנייה לכתובת:

יחידת המידע
הקריה למחקר גרעיני — נגב (קמ"ג)
ת"ד 9007

באר-שבע 84 190

התמצקות אוטקטית של נחכי Al-U בקיצבי קירור איטיים ($10^{\circ}\text{C}/\text{Sec}$)

אברהם מוניץ, ויקטור (יהודה) זנו, קרלוס קוטלר, אלי נחמה

ניסן תשנ"ב - מאי 1992

תקציר

נחקרה השפעת ניקיון האלומיניום על אופי ההתמצקות של נחכי Al-U בריכוזים של עד 25 wt/o U בקיצבי קירור איטיים ($10^{\circ}\text{C}/\text{Sec}$). האלומיניום נלקח בשתי דרגות ניקיון: אלומיניום מסוג A5 (אלומיניום מסחרי בדרגת ניקיון גבוהה של 99.5%) ואלומיניום נקי (99.99%). הנחכים השונים הוכנו בתנור התנגרות בוואקום, ונבדקו באמצעות מיקרוסקופ אופטי ומיקרוסקופ אלקטרוני סורק (SEM). נתגלה שבנחכים שריכוז האורניום בהם נמוך מהריכוז האוטקטי גדלים תחילה דנדריטים של $\alpha\text{-Al}$ ובין זרועותיהם מתבדל מיבנה אוטקטי. מתברר כי ההרכב האוטקטי עבור מערכת זו אינו תואם את המדווח בספרות: נמצא כי ההרכב האוטקטי הוא $19 \pm 1 \text{ wt/o U}$ עבור נחכים שהוכנו מאלומיניום טהור, ו- $17 \pm 1 \text{ wt/o U}$ עבור נחכים שהוכנו מ-A5-Al, בעוד שלפי הספרות ההרכב האוטקטי הוא ריכוז של 13 wt/o U . קיים הבדל באופי ההתבדלות האוטקטית בין שני סוגי הנחכים: בנחכים שהוכנו מ-Al נקי התגלה מיבנה אוטקטי למלדי אחר המפולג הומוגנית בנתך מלבד מושבות אוטקטיות שקוטרם המירבי הגיע ל- 0.2 mm וחשיפת המיבנה היתה קשה. בנחכים שהוכנו מ-A5-Al פילוג התרכובת האוטקטית היה בלתי אחיד. אפשר היה להבחין באיזורים אוטקטיים גדולים עד קוטר של $2 \pm 3 \text{ mm}$ (ללא דנדריטים של אלומיניום) המפוזרים באיזורים שונים ברגם. הובחנו לפחות 4 מיבנים אוטקטיים טרנריים הנובעים מאי-ניקיונות שמקורם ב-A5-Al. בהתמצקות נחכי Al-U היפראוטקטיים התגלו תופעות התמצקות מעניינות. התוצאות יידונו על-סמך תיאוריות התמצקות קיימות.

Eutectic solidification of Al-U alloys at slowly cooling rates (10°C/sec)

Abraham Munitz, Victor (Yehuda) Zenou, Carlos cotler, Eli Nehama

May 1992

Abstract

The solidification of Al-U alloys at slow cooling rates was investigated using optical and scanning microscopy. High purity uranium (99.9%) and high purity aluminum (99.99%) or 'commercially pure' Al-A5 (Al-1050) alloy containing a maximum of 0.5 wt/o of other alloying elements were used to prepare Al-U alloys in a resistance furnace under controlled atmosphere.

The observed eutectic composition for U-(Al-A5) was 17 ± 1 wt/o U, while that for U and pure Al was 19 ± 1 wt/o U. These values are significantly different than the value of 13 wt/o U, reported in the literature.

The eutectic morphology and its distribution depends on the type of the aluminum used in preparing the alloy. In both cases eutectic colonies were observed. In alloys prepared with pure Al, the eutectic colonies have a diameter of less than 0.2 mm, display a lamellar morphology, and are homogeneously distributed. In alloys prepared with Al-A5, at list 4 different type of eutectic morphologies were observed. Some of the eutectic colonies have diameters as large as 2-3 mm.

Some interesting nonequilibrium morphological features were observed in specimens containing hypereutectic compositions. The above results are discussed on the basis of current solidification theories.

<u>עמוד</u>	<u>תוכן עניינים</u>
1	1 מבוא
2	2 רקע תיאורטי
2	2.1 התמצקות אוטקטית
2	2.1.1 מבוא
2	2.1.2 גדילה אוטקטית קואופרטיבית
4	2.1.3 סוגי יציבות מימשק אוטקטי
5	2.1.4 מסלולי ההתמצקות בדיאגרמה אוטקטית
6	2.1.5 איזווי גדילה אוטקטי קואופרטיבי בריכוזים הסוטים מההרכב האוטקטי
8	2.2 מערכת הפאזות של Al-U
8	2.2.1 דיאגרמת הפאזות של Al-U
11	2.2.2 תרכובות בינמתכתיות במערכת U-Al
19	2.2.3 מסלולי התמצקות במערכת הפאזות U-Al בצד העשיר ב-Al
22	3 מהלך הניסוי
24	4 תוצאות ודיון
24	4.1 הרכב הנקודה האוטקטית
27	4.2 מיבנים אוטקטיים
28	4.3 מיבנים היפראוטקטיים
33	4.4 השפעת קיצבי הקירור על המיקרומיבנה
34	4.5 אי-יציבות מורפולוגית
35	5 סיכום ומסקנות
36	הבעת תודה
37	סימוכין

1 מבוא

יציקות של נתכים בעלי נקודה אוטקטית מהווים נתח נכבד מסך היציקות בעולם. השימוש הרב בנתכים אלה, ביחוד בהרכב האוטקטי, נובע ממיספר סיבות:

(א) נקורת היתוך נמוכה בהשוואה לרכיבים הטהורים, (סימוך 1).

(ב) זרימה טובה של ההיתך, (סימוך 1 ו-2).

(ג) קבלת נתך בעל מיקרומיבנה עדין המורכב משתי פאזות בעלות תכונות שונות.

(ד) במיספר מערכות ניתן ליצור חומר רמוי חומר מרוכב, (סימוך 2) בתהליך יציקה חר-כיוונית. תהליך זה זול יותר מתהליך ייצור חומר מרוכב.

נתכי אלומיניום מהווים מרכיב משמעותי מכין כל הנתכים האוטקטיים הנפוצים, כמו אלומיניום סיליקון.

לאחרונה, (ראה סימוך 2 ו-3), פותחו מורלי התמצקות של גידול דנדריטי וגידול אוטקטי בקיצבי קירור שונים, במיוחד בתחום הרכבים בו ניתן לקבל גידול אוטקטי קואופרטיבי של שתי פאזות בהרכבים הסוטים מהרכבים האוטקטיים. גידול אוטקטי קואופרטיבי שבו פאזה אחת היא מסוג *faceted* והפאזה השנייה *nonfaceted* מעניין ראור מאחר קיצבי הנוקלאציה והגידול של פאזה ה-*faceted* שונים מאוד מזו של פאזה ה-*nonfaceted*. ולכן דרושים תנאים מיוחדים לגידול אוטקטי קואופרטיבי. אחת ממערכות הגידול האוטקטי קואופרטיבי המכילות פאזות אלו הינה מערכת Al-U בה המיבנה האוטקטי מורכב מלמלת Al ולמלת UAl_4 לסירוגין. האלומיניום גודל כפאזה *nonfaceted* ו- UAl_4 גודלת כפאזה *faceted*. המערכת U-Al נחקרה על-ידי מיספר חוקרים. לפי המרווח בספרות, (סימוך 4+6) הנקודה האוטקטית נמצאת בריכוז U 13 wt/o, אולם בעבודות שונות הקשורות להתמצקות נתכי אורניום מרווח, (סימוך 7 ו-8), כי בהתמצקות נתכי U-Al עד ריכוזים של U 13 w/o ניתן למצוא דנדריטים ראשוניים של אלומיניום בלמעלה מ-50% של שטח החתך. עובדה זו מצביעה כי מתקבל מיבנה אופייני לנתכים היפואוטקטיים ולכן הנקודה האוטקטית נמצאת בריכוזים גבוהים יותר של אורניום.

לעבודה זו יש שתי מטרות:

1. חקירת התמצקות אוטקטית קואופרטיבית במערכת Al-U.
2. מציאת הרכב הנקודה האוטקטית.

2 רקע תיאורטי2.1 התמצקות אוטקטית2.1.1 מבוא

בהתמצקות ישנן שתי מורפולוגיות גרילה בסיסיות, (סימוכין 1 ו-2):

1. גידול הנדריטי.

2. גידול אוטקטי.

סגסוגות פריטקטיות גדלות באופן הנדריטי ולכן אינן בקבוצת סיווג נפרדת. מורפולוגיות ההתמצקות תלויות בתנאי הקירור ובהרכב הנתך.

בהתמצקות אוטקטיות, (סימוך 9), גדלות שתי פאזות (או יותר) מוצקות ישירות מנוזל באמצעות הריאקציה: $\alpha + \beta \Rightarrow \gamma$, נ, כאשר 'נ' מציינ נוזל ו-' β ', ' α ' תמיסות מוצקות. הנקודה שבה המעבר מנוזל לשני מוצקים נעשה בטמפרטורה קבועה ולא בתחום טמפרטורות נקראת הנקודה האוטקטית. נקודה זו קיימת בריכוז וטמפרטורה קבועים.

תחת אותם תנאי גידול, המרוקים הבין-למלריים של המיבנה האוטקטי קטנים בסדר גודל לעומת המרחקים בין הזרועות המישניות של הנדריטים, (סימוך 1), ולכן המיבנים האוטקטיים עדינים יותר ממיבנים הנדריטיים ובעלי תכונות מיכניות משופרות.

מיקרומיבנה של נתיים אוטקטיים, (סימוכין 2 ו-10), יכול להיות למלרי (lamellar)

או סיבי (fibrous). בשברים ניפחיים גבוהים של שתי הפאזות (0.25±0.5) ייווצרו מיבנים למלריים (לרוגמה Pb-Sn). לעומת זאת אם אחת הפאזות בעלת שבר ניפחי קטן (0:0.25) ייוצר מיבנה אוטקטי סיבי. במיבנה זה הסיבים יהיו של הפאזה בעלת השבר הניפחי הקטן, והמטריצה של הפאזה השניה.

2.1.2 גרילה אוטקטית קואופרטיבית

לתופעת גידול של שתי פאזות מוצקות ישירות מנוזל קוראים גידול אוטקטי קואופרטיבי.

בגידול זה ההרכב הממוצע של המוצק האוטקטי שווה להרכב נוזל האם. מאכן גידול אוטקטי קואופרטיבי הוא תופעה של הסעת מסה באמצעות דיפוזיה. על השאלה מדוע יש עדיפות לגדילה אוטקטית ניתן לענות בצורה הבאה (סימוך 2): נניח שכל אחת משתי הפאזות האוטקטיות

גדלה בנפרד מתוך הנוזל, ורחוק אחת מהשניה. במשך הגדילה רוחות הפאזות המוצקות מומס

אל הנוזל: פאזה α דוחה אטומי B ופאזה β דוחה אטומי A. תנועת המומס הנדחה מתרחשת

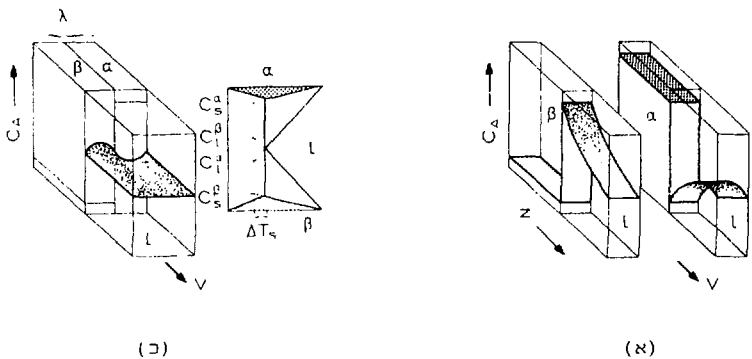
בכיוון הגדילה בתהליך דיפוזיוני אשר מאופיו הוא ארוך טווח. כתוצאה מתהליך זה ניבנת

(build-up) שיכבה עשירת מומס כמוראה בציר 1(A). לפני פאזה α יהיה חוסר באטומי A

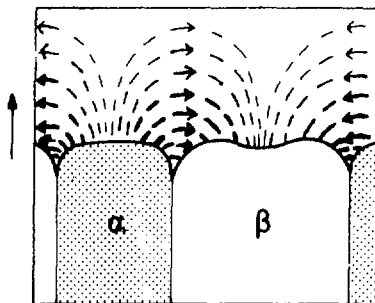
ואילו לפני פאזה β יהיה עודף של אטומי A. כעת נניח ששתי הפאזות גדלות יחד מתוך

הנוזל. גידול של שתי הפאזות בצמוד משמעותו קירוב שני פרופילי הריכוז.

מדרך הטבע האטומים הנדחים מחזית ההתמצקות של פאזה β יהיו דרושים לפאזה α , ולהיפך (ציורים 1 ו- 2) וכך הגדילה של שתי הפאזות המוצקות היא קואופרטיבית. הריפוזיה במיקרה זה תהיה קצרת טווח ורוחבית, זאת אומרת לאורך מימשק נוזל/ מוצק, במאונך כלמלה. דבר זה יקטין build up של מומס. שווה הריפוזיה הנ"ל (דיפוזיה רוחבית במקום ריפוזיה אורכית) גורם למרחק בין הלמלות להיות קטן וזה מוביל לגדילה יותר מהירה.

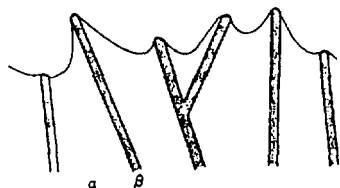


ציור 1 שדה ריפוזיה אוטקטי (סימוך 2):
 (א) שתי פאזות 'אוטקטיות' הגדלות בנפרד, ורחוק אחת מהשניה, מתוך נוזל;
 (ב) שתי פאזות 'אוטקטיות' הגדלות יחד מתוך הניזול.

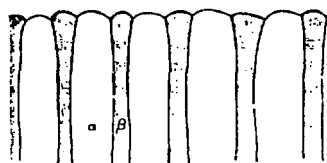


ציור 2 גדילה אוטקטית קואופרטיבית (סימוך 2). החץ מעמאל לתמונה מציין את כיוון גדילת חזית ההתמצקות. מסלולי דיפוזיית אטומי B מוראים כציור.

ישנם שני סוגי מורפולוגיות של מיבנה אוטקטי (סימוך 1):
מיבנה אוטקטי רגולרי ומיבנה אוטקטי אי-רגולרי. במיבנה אוטקטי רגולרי הממשק
נוזל/מוצק כמעט מישורי כך ששתי הפאזות הן בעלות קירור יתר ממוצע זהה. במיבנה
אוטקטי אי-רגולרי שתי הפאזות בעלות קירורי יתר שונים האחת מהשניה ואחת הפאזות גודלת
לפני השניה וכך 'שולטת' על הגידול האוטקטי. בצירור 3 מובאים שני סוגי המיבנה
האוטקטי.



(ב)



(א)

צירור 3 סוגי מורפולוגיות אוטקטיות (סימוך 10):

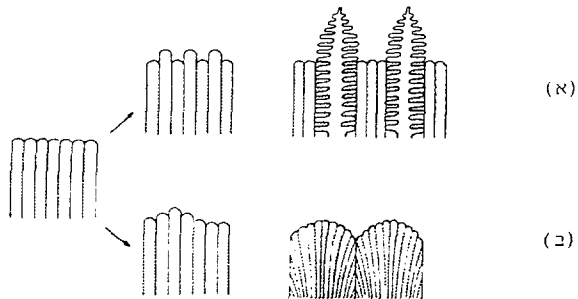
(א) מיבנה אוטקטי רגולרי;

(ב) מיבנה אוטקטי אי-רגולרי.

בצירור 3 (א) רואים שבמיבנה אוטקטי רגולרי הממשק כמעט מישורי, ובצירור 3 (ב) רואים
שבמיבנה אוטקטי אי-רגולרי פאזה אחת (β , בדוגמה זו) מתקדמת לפני הפאזה השניה ולמעשה
מובילה את הגידול. כמו כן רואים שבמיבנה אוטקטי אי-רגולרי המרוק הממוצע בין הלמלות
אינו קבוע. המרחק הבינלמלרי נע בין מינימום למקסימום. הקטנת המרחק הבינלמלרי
נעשית על-ידי הסתעפות והגדלת המרחק הבינלמלרי על-ידי היעלמות של זרועות.

2.1.3 סוגי יציבות ממשק אוטקטי

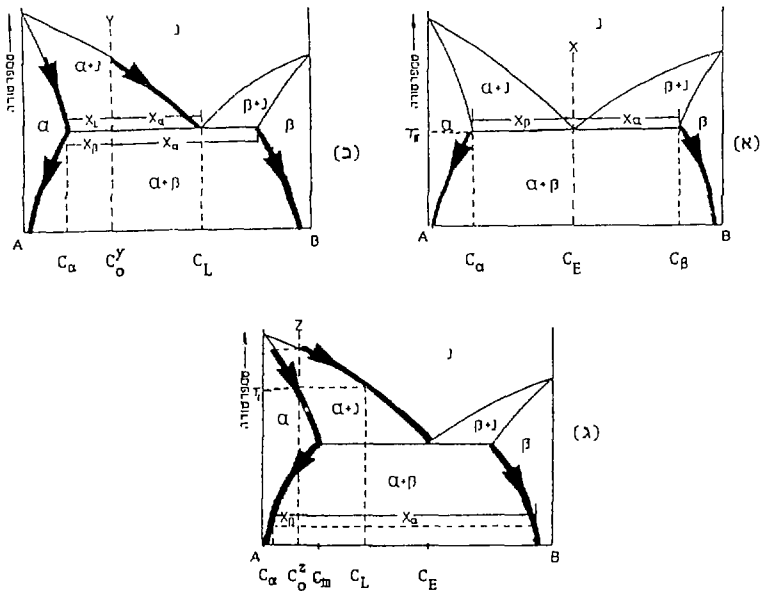
מימשק אוטקטי שטוח יכול להפוך לבלתי יציב (ראה סימוך 2). בצירור 4 מתוארות שתי
הדרכים בהן אי-היציבות הזו יכולה להתפתח.
אי-היציבות (הראשונה) המתוארת בצירור 4 (א) מובילה להופעת דנדריטים של פאזה אחת כאשר
מיבנה אוטקטי של שתי הפאזות מתפתח בין זרועות הנדריטי. תהליך זה מתרחש בעיקר
במערכות בינאריות בנתכים off-eutectic (אלו נתכים בעלי הרכב לא אוטקטי אך יש בהם
גידול אוטקטי). גידול דנדריטי (אי-היציבות הראשונה) מתאפשר גם כאשר הנוזל בהרכב
אוטקטי בתנאי עפאזה אחת נהיית מקוררת-יתר יחסית לפאזה השניה.
אי-היציבות (השניה) המתוארת בצירור 4 (ב) גורמת להטיית הגידול הלמלרי לצורת מניפה.
אי-יציבות זו נגרמת עקב נוכחות אלמנט שלישי (אי-ניקיון).



ציור 4 סוגי אי-יציבות אוטקטית (מסימוך 2):
 (א) אי-יציבות של פאזה אחת;
 (ב) אי-יציבות של שתי הפאזות.

2.1.4 מסלולי ההתמצקות בדיאגרמה אוטקטית (סימוך 9)

בציור 5 מתוארים מסלולי ההתמצקות של מערכת בינארית לפי דיאגרמה אוטקטית. ההסבר מתבסס על ההנחה שדיפוזיה במצב מוצק זניחה והדיפוזיה במצב נוזלי מלאה.



ציור 5 מהלך התמצקות בדיאגרמה אוטקטית מ-3 הרכבים שונים (על-פי סימוך 9).

הקירור מנקודה X כמתואר בצירור 5 (א) של תמיסה נוזלית בעלת ריכוז אוטקטי (C_E) יביא בנקודה האוטקטית להתברלות בו זמנית של שתי הפאזות ($\alpha + \beta$) זו ליד זו בטמפרטורה קבועה. ריכוז α יהיה C_α וכמותו היחסית X_α , ריכוז β יהיה C_β וכמותו היחסית X_β . במהלך הקירור אמור ריכוז β להשתנות בהתאם לקו סולבוס ימני וריכוז α בהתאם לקו סולבוס שמאלי (ראה חיצים). הכמויות היחסיות ישתנו בהתאמה עם חוק המנוף בטמפרטורות השונות בתחום שבין שני קווי הסולבוס.

שינוי הריכוזים בפאזות המוצקות כמוראה על-ידי החיצים בצירור 5 (א) מתבצע על-ידי דחית המומס מתוך הפאזה בחליבי דיפוזיה במצב מוצק ובטמפרטורות נמוכות. לכן הדיפוזיה, במירה וקיימת, היא קצרת טווח. סביר שיתקבל מיבנה מטסטבילי בו המסיסות תהיה גבוהה יותר ממצב שיווי-מישקל ו/או התברלות עדינה כ-*spinodal decomposition* כנתכי Al-Cu.

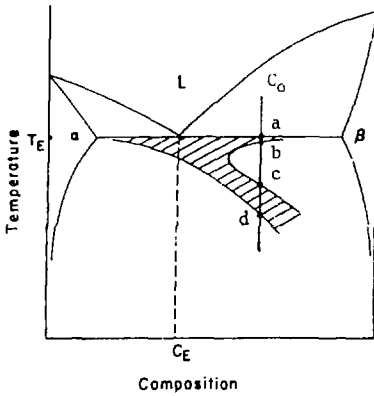
קירור מנקודה Y כמתואר בצירור 5 (ב) של תמיסה נוזלית בעלת הרכב התחלתי ממוצע C_0^Y יביא בקו הליקורוס להתברלות גרעינים מוצקים ראשונים של α בעלי הרכב הנמוך מהריכוז הממוצע. במהלך הקירור ישנה ריכוז התמיסה המוצקה α עד C_α וכמותו היחסית תגדל מאפס ועד $X_\alpha / (X_\alpha + X_L)$. ריכוז הנוזל ישנה עד לריכוז אוטקטי C_L וכמותו היחסית תקטן עד $X_L / (X_\alpha + X_L)$ בהתאם לחוק המנוף. המתברל המוצק α נקרא מתברל α רישוני. קירור מחת לטמפרטורה האוטקטית יגרום להפיכת הנוזל הנשאר למעורבת אוטקטית $\alpha + \beta$ בריאקציה האוטקטית: $\alpha + \beta \rightleftharpoons \gamma$. את הכמויות היחסיות של α ו- β אפשר לקבל לפי חוק המנוף. החיצים מצביעים על מסלול והתמצקות.

בקירור מנקודה Z כמתואר בצירור 5 (ג) של תמיסה נוזלית בעלת הרכב התחלתי ממוצע C_0^Z יתברל תחילה מוצק ראשוני (α) בריכוז C_α . בהמשך תהליך ההתמצקות ריכוז הפאזה המיוצקת והפאזה הנוזלית יעלו ל- C_m ו- C_E בהתאמה. קירור מחת לטמפרטורה האוטקטית יגרום להפיכת הנוזל הנותר למעורבת אוטקטית $\alpha + \beta$ בריאקציה האוטקטית: $\alpha + \beta \rightleftharpoons \gamma$. את הכמויות היחסיות של α ו- β אפשר לקבל לפי חוק המנוף. החיצים מצביעים על מסלול ההתמצקות.

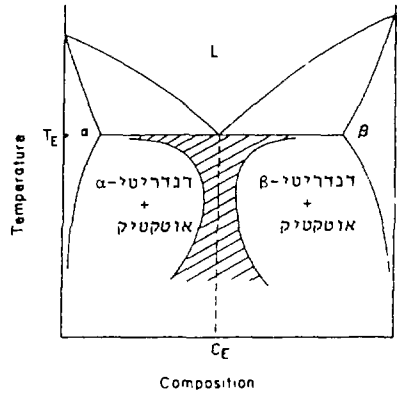
המסקנה: בגלל הדיפוזיה המוגבלת במצב מוצק, בחליך ההתמצקות, תמיד ישאר נוזל בטמפרטורה האיזותרמית אשר יתמצק בריאקציה אוטקטית בקירור מחת לטמפרטורה האוטקטית.

2.1.5 איזור גדילה אוטקטי קואופרטיבי בריכוזים הסוטים מההרכב האוטקטי

עקב אופי גירול הנדרטים (סימוך 2) ומיבנים אוטקטיים, המיבנים האוטקטיים בתנאי התמצקות מסוימים יכולים לגדול מהר יותר מדנדרטים, ויכול להתקבל גידול אוטקטי קואופרטיבי בריכוזים הסוטים מההרכב האוטקטי. האיזור המקווקו בצירור 6 נקרא איזור גדילה אוטקטי קואופרטיבי (Coupled eutectic zone), ומייצג איזור טמפרטורה/הרכב שבו קצו הגירול של שתי הפאזות α ו- β משותף וגידול אוטקטי קואופרטיבי מתאפשר במירה ומקררים את הנוזל לפני התחלת הנוקלאציה לאיזור זה.



(ב)



(א)

צורה 6 דיאגרמות פאזה סכימטיות. האיזור המקוקו מצוין איזור גדולה אוטקטי קואופרטיבי (על-פי סימון 1), כאשר T_E מצוין טמפרטורה אוטקטית ו- C_E מצוין ריכוז אוטקטי. (א) Coupled zone סימטרי; (ב) Coupled zone מוטה.

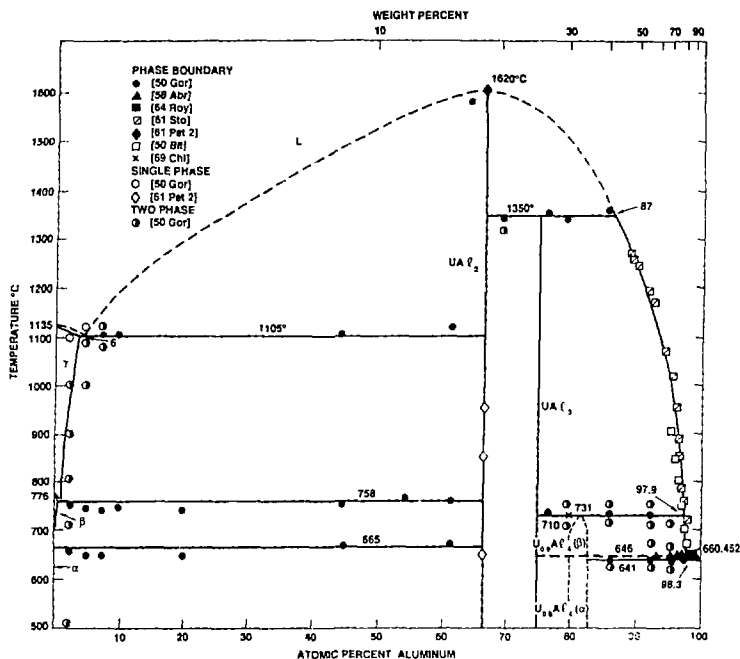
בצורה 6(א) רואים Coupled zone סימטרי. קירור יתר של נוזל לאיזור נאימין לאיזור המקוקו יגרום לגדילת דנדריטי β ראשוניים, ובין זרועות הדנדריטים יתפתח מיבנה אוטקטי, בעוד שקירור יתר של נוזל לאיזור שממאל לאיזור המקוקו יביא לגדילת דנדריטי α ראשוניים ובין זרועות הדנדריטים יתפתח מיבנה אוטקטי. כאשר לפאזה אחת יש בעיות גידול, כגון פאזה faceted, איזור הגדילה האוטקטי הקואופרטיבי מוטה כלפי פאזה זו כמחיר בצורה 6(ב). הדבר החשוב ביותר הנובע מתופעה זו הוא האפשרות לקבלת מיקרומיבנה לא אוטקטי מלא כאשר נוזל בעל הרכב אוטקטי עובר תהליך התמצקות מהירה. זכו האנזי (abcd) המוראה בצורה 6(ב) נועד להסברת מהלך התמצקות של נוזל בעל ריכוז התחלתי (C_0) בדיגרמת פאזות בעלת Coupled zone מוטה. קירור הנוזל לאיזורים שונים מתחת לטמפרטורה האוטקטית ללא נוקלאציה (זאת אומרת שהנוזל יהיה בקירור יתר) יכול להביא לגדילת מיבנים שונים: קירור לתחום הטמפרטורות שבין a ל-b יביא ליצירת מיבנה אוטקטי. קירור לתחום הטמפרטורות שבין b ל-c יביא ליצירת דנדריטים ראשוניים של פאזה β ובין הזרועות הדנדריטיות תהיה התברלות אוטקטית. קירור לתחום הטמפרטורות שבין c ל-d יביא ליצירת מיבנה אוטקטי ראשוני, יצירת דנדריטי β ולבסוף התברלות אוטקטית מישנית בין זרועות הדנדריטים. קירור לטמפרטורות מתחת לנקודה d יביא ליצירת דנדריטים ראשוניים על α , בין הזרועות הדנדריטיות תהיה התברלות אוטקטית, ובעקבותיה יוצרו דנדריטים של פאזה β שבין זרועותיהם תהיה התברלות אוטקטית נוספת.

המסקנה: היות והאיזור המוטה מכוון לפאזה בעלת גודילה, צריך להתחיל עם הרכב אשר עשיר מההרכב האוטקטי C_E (ער גבול מסויים) של האלמנט ה faceted על-מנת קבלת מיקרומיבנה אוטקטי ללא דנדריטים.

2.2 מערכת הפאזות של Al-U

2.2.1 דיאגרמת הפאזות של Al-U

דיאגרמת הפאזות של Al-U נתונה בצירור 7.



צירור 7 דיאגרמת פאזות שיווי-מישקלית של המערכת Al-U (סימוך 11) כאשר:

- [50 Gor] P. Gordon and A.R. Kaufmann. Trans. AIME (1950) 182.
 [50 Bil] G. Bitsianes and E. Hayes. Massachusetts Institute of Technology. unpublished communication.
 [61 Pet 2] V.G. Petzow and I. Kvernes. Z. Metallk. 52 (1961) 693.
 [58 Abr] R. Abramson, R. Boucher, R. Fabre and H. Monti. in: Proc. 2nd UN Int. Conf. on Peaceful Uses of Atomic Energy, Vol. 6 (United Nations, Geneva, 1958) pp. 173.
 [61 Sto] V.W. Storchok, A.A. Bauer and R.F. Dickerson, Trans. ASM 53 (1961) 837.
 [64 Roy] P.R. Roy, J. Nucl. Mater. 11 (1964) 59.
 [69 Chl] P. Chiotti and J.A. Kateley, J. Nucl. Mater. 32 (1969) 135.

טמפרטורת ההתכה של אלומיניום היא 660°C , בעור שטמפרטורת ההתכה של אורניום היא 1135°C . במערכת הפאזות Al-U קיימות שלוש תרכובות בינמתכיות: UAl_2 , UAl_3 , ו- UAl_4 . לפי ריאגרת הפאזות אין לפאזות UAl_2 ו- UAl_3 תחום הומוגניות, אולם Castleman (סימוך 12) טוען שלפאזה UAl_3 תחום הומוגניות שרוחבו גדול מ- 2.7 wt/o . לפאזה UAl_4 (סימוך 6) תחום הומוגניות שנע בין 64.2 wt/o ל- 66.3 wt/o .

האלומיניום והאורניום מתמצקים ישירות מתוך הנוזל. לאלומיניום תמיסה מוצקה אחת בעוד שלאורניום ישנן שלוש תמיסות מוצקות כפונקציה של הטמפרטורה, ראה טבלה 1.

טבלה 1 נקודות חשובות במערכת הפאזות Al-U.

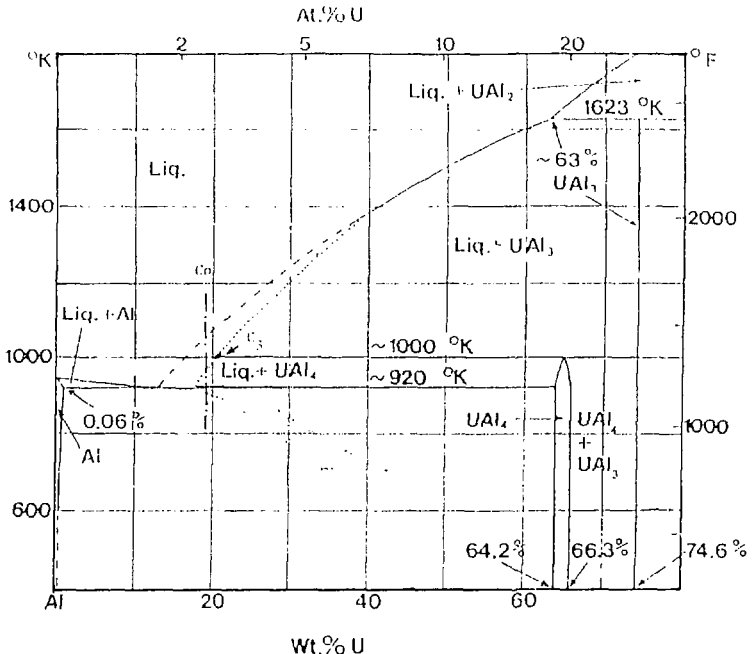
סימוכי	סוג הריאקציה	ריכוז מיסקלי של U	טמפרטורה של U ($^{\circ}\text{C}$)	הריאקציה
11	התמצקות	100	1135	L --> U(α)
11	אלוטרופי	100	776	U(α) --> U(β)
11	אלוטרופי	100	668	U(β) --> U(α)
13	התמצקות	81.52	1590	L --> UAl_2
4	פריטקטית	60	1350	$\text{UAl}_2 + \text{L} \rightarrow \text{UAl}_3$
4	פריטקטית	18	730	$\text{UAl}_3 + \text{L} \rightarrow \text{UAl}_4$
11	התמצקות	0	660.5	L --> Al
4	אוטקטית	13	640	L --> $\text{Al}(\alpha) + \text{UAl}_4$
11	אוטקטית	99.28	1105	L --> $\text{U}(\alpha) + \text{UAl}_2$
11	אוטקטואיד	99.84	758	$\text{U}(\alpha) \rightarrow \text{U}(\beta) + \text{UAl}_2$
11	אוטקטואיד	99.98	665	$\text{U}(\beta) \rightarrow \text{U}(\alpha) + \text{UAl}_2$

אורניום נוזלי מתמצק בטמפרטורה 1135°C ויוצר תמיסה מוצקה U(α). הפאזה U(α) יציבה עד לטמפרטורה 776°C ועוברת בטנספורמציה אלוטרופית לפאזה U(β). הפאזה U(β) יציבה עד לטמפרטורה 668°C ועוברת בטנספורמציה אלוטרופית לפאזה U(α).

למרות שמסיסות Al ב-U(α), U(β), ו-U(α) לא ידועה, ישנן בספרות הערכות לגבי המסיסות כדלקמן: המסיסות המירבית (סימוך 11) של Al ב-U(α) נעה בין 3 ל-6 at/o Al, מסיסות מירבית של Al ב-U(β) היא בערך 0.2 at/o Al. בקשר למסיסות מירבית של Al ב-U(α) דעו החוקרים חלוקות. בסקר ספרות שערך Kasner (סימוך 11) דווח כי Neuman ו-Straatman טוענים שהמסיסות קטנה מ-0.07 at/o Al, Russel טוען שהמסיסות 0.03±0.04 at/o Al בטווח טמפרטורות $550\text{--}665^{\circ}\text{C}$ ו-Jepson טוען שהמסיסות קטנה מ-0.08 at/o Al.

לפי הספרות (סימוכין 6, 14 ו-15) המסיסות במצב מוצק של U ב-Al נמוכה והיא בקירוב 0.06 wt/o U בטמפרטורה 647°C (920K) ו-0.04 wt/o U בטמפרטורה 347°C. לפי המדוח בספרות (סימוכין 4, 6 ו-11) הנקודה האוטקטית בין אלומיניום לבין UAl_4 מצויה ב-U 13 w/o. הטמפרטורה האוטקטית היא 640°C לפי Rene (סימוך 5), 641°C לפי Kassner (סימוך 11), 646°C לפי Roy (סימוך 14) ו-647°C לפי Mondolfo (סימוך 6).

בציור 8 מוצגת דיאגרמת פאזות שיווי-משקלית של מערכת Al-U בצד העשיר באלומיניום. הנקודה האוטקטית שנמצאה נבחרה זה נמצאת בין 17 ל-19 wt/o U, תלוי בדרגת טוהר ה-Al. מכאן נובע שקו הליקידוס המופיע בספרות (הקו המקוקר) אינו מדויק (לפחות בחלקו) ולכן הוצע קו ליקידוס חדש שמחיל בקו הליקידוס המקורי ומסתיים בנקודה האוטקטית שנמצאה (הקו המנוקד). קו זה שרירותי ויש לבצע עבודה מדויקת יותר על-מנת לאמת או להפריך את ההצעה. כמו כן משולבת בציור 8 הערכתנו את האיזור המשוער של גידול אוטקטי קואופרטיבי (coupled eutectic zone).



ציור 8 דיאגרמת פאזות שיווי-משקלית של מערכת Al-U בקצה העשיר באלומיניום (סימוך 6). הקו המנוקד הוא קו הליקידוס המוצע, בהתאם לתוצאות המחקר הנוכחי. האיזור המנוקד הוא איזור גדילה אוטקטי קואופרטיבי מוצע.

2.2.2 תרכובות בינמתכיות במערכת U-Al

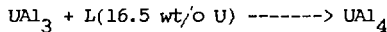
(א) קבלת תרכובות בינמתכיות במערכת U-Al

הפאזה UAl_2 (סימוך 13) מתקבלת ישירות בהתמצקות מנוזל בטמפרטורה $1590^{\circ}C$:
 $U(81.52 \text{ wt/o U}) \rightarrow UAl_2$

הפאזה UAl_3 (סימוך 6) מתקבלת בריאקציה פריטקטית בטמפרטורה $1350^{\circ}C$:
 $UAl_2 + L(63 \text{ wt/o U}) \rightarrow UAl_3$

הערה: Saller (סימוך 4), Rene (סימוך 5) ו-Lee (סימוך 16) טוענים שהרכב הנוזל בנקודה הפריטקטית הנ"ל הוא 60 wt/o U , בעוד ש-Mondolfo (סימוך 6) טוען שהוא 63 wt/o U .

עקב טמפרטורה פריטקטית גבוהה ($1350^{\circ}C$) בה נוצרת הפאזה UAl_3 ניתן לקבל פאזה זו (סימוך 17) ככמעט פאזה יחידה בטכניקות התכה קונבנציונליות. דרך נוספת (סימוך 18) לקבל את הפאזות UAl_2 ו- UAl_3 היא באמצעות ריאקציות במצב מוצק. הפאזה UAl_4 (סימוך 6) מתקבלת אף היא בריאקציה פריטקטית בטמפרטורה $730^{\circ}C$:



הערה: Saller (סימוך 4), Rene (סימוך 5) ו-Lee (סימוך 16) טוענים שהרכב הנוזל בנקודה הפריטקטית הנ"ל הוא 18 wt/o U , בעוד ש-Mondolfo (סימוך 6) טוען שהוא 16.5 wt/o U .

פאזה UAl_4 (סימוך 17) קשה להכנה כתרכובת פאזה יחידה עקב טמפרטורה פריטקטית נמוכה ($730^{\circ}C$) בה היא נוצרת, ועל-מנת לקבלה כתרכובת פאזה יחידה (סימוך 19) ככל האפשר יש צורך בזמן רישוי ארוך.

(ב) הגיאומטריה של התרכובות הבינמתכיות במערכת U-Al

הפאזה UAl_3 כעלת גיאומטריה דמויית מעויין (סימוך 8). פאזה UAl_4 כעלת גיאומטריה דמויית מחט (סימוכין 8 ו-20) ונקראת בספרות "זנב דג" (fishtail) לפאזה זו שטח חתך מעויין שיכול להיות מלא או מחורר במרכז, תלוי באיזור החיתוך לאורך המחט.

(ג) עיבוד פלסטי של התרכובות הבינמתכיות במערכת U-Al

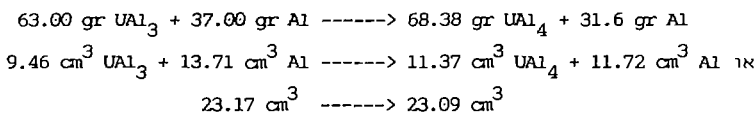
התרכובות הבינמתכיות במערכת U-Al (UAl_2 , UAl_3 ו- UAl_4) פריכות (סימוך 21) ולא ניתנות לעיבוד. אולם על-ידי יציקה לתבנית מקוררת ניתן ליצור נחכים, בתכולת אורניום של עד 30 wt/o U , הניתנים לעיבוד. בעזרת תהליך זה יוצרים מתבדלים ערינים (דיספרציה) של הפאזה הפריכה במטריצת ה-Al הפלסטית.

(ד) יציבות תרמודינמית של התרכובות הבינמתכיות במערכת U-Al

הפאזה UAl_4 יציבה תרמודינמית, אפילו בחימום בטמפרטורה של $400^{\circ}C$ למשך תקופות ארוכות מעל ל-500 שעות לא מראה שינוי במיבנה. פאזה UAl_4 (סימוך 19) מגלה עמידות טובה בפני קרינה.

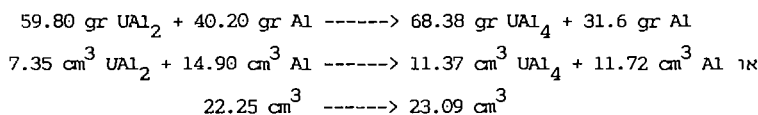
UAl_2 ו- UAl_3 (סימוך 17) הן פאזות לא יציבות תרמודינמית. שתיהן עוברות שינוי פאזה ל- UAl_4 בהימים בנוכחות Al. במעבר מפאזה UAl_2 ל- UAl_4 נוצרת פאזת ביניים UAl_3 לפרקי זמן קצרים.

על-סמך מחקר שנערך על-ידי Martin (סימוך 22) בהנחה שצפיפויות UAl_3 , UAl_4 ו-Al הן 6.662 gr/cm^3 , 6.011 , 2.698 בהתאמה, ניתן לחשב את שינוי הנפח שיתרחש במעבר פאזה מ- UAl_3 ל- UAl_4 כדלהלן:



כלומר גם אם כל UAl_3 יבצע ריאקציה כימית ליצירת UAl_4 תתקבל הקטנת נפח של 0.3%.

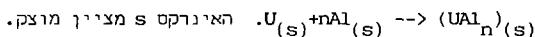
על-סמך אותו חישוב ניתן לבצע חישוב רומה עבור המעבר מ- UAl_2 ל- UAl_4 בהנחה שצפיפות UAl_2 היא 8.14 gr/cm^3 :



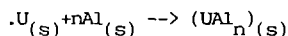
כלומר אם כל UAl_2 יבצע ריאקציה כימית ליצירת UAl_4 תתקבל הקטנת נפח של 3.7%.

(ה) נתונים תרמודינמיים של התרכובות הבינמתכיות במערכת U-Al

בטבלה 2 מובאים נתונים תרמודינמיים עבור תרכובות בינמתכיות שונות לפי הריאקציה:



טבלה 2 נתונים תרמודינמיים (מסימוך 23) לפי הריאקציה:



UAl2	UAl3	UAl4	נתונים תרמודינמיים
$-20700 + 0.212 T$ (442÷840°C)	$-25190 + 0.487 T$ (399÷706°C)	$-26040 + 1.121 T$ (401÷639°C)	ΔG^0 (*) (cal/mole)
-22100 ± 2000	-25900 ± 2000	-29800 ± 2000	ΔH_{298}^0 (**) (cal/mole)

כאשר: ΔG^0 - מציין אנרגיה חופשית של היווצרות ביחידות cal/mole;

ΔH_{298}^0 - מציין אנטלפיית היווצרות בטמפרטורה 298K, ביחידות cal/mole;

T - מציין טמפרטורה במעלות קלווין;

(*) - מתוך מדידות Bmf;

(**) - מתוך מדידות בקלורימטר אריאבטי בטמפרטורה 298K.

בעזרת חישובים תרמודינמיים, מתוך מדידות E_{mf} , ומתוך מדידות בקלורימטר אריאבטי נקבלו המישרואות הבאות:

האנרגיה החופשית של היווצרות, ΔG^{\ominus} (יחידות cal/mole):

$$\Delta G^{\ominus}(UA1_2) = -22790 - 2.326 T \ln T + 18.37 T$$

$$\Delta G^{\ominus}(UA1_3) = -26290 - 1.305 T \ln T + 10.60 T$$

$$\Delta G^{\ominus}(UA1_4) = -32040 - 7.52 T \ln T + 56.07 T$$

אנטלפיית היווצרות, ΔH^{\ominus} (יחידות cal/mole):

$$\Delta H^{\ominus}(UA1_2) = -22790 + 2.33T$$

$$\Delta H^{\ominus}(UA1_3) = -26290 + 1.30T$$

$$\Delta H^{\ominus}(UA1_4) = -32040 + 7.52T$$

אנטרופיית היווצרות, ΔS^{\ominus} (ביחידות cal/mole \times K):

$$\Delta S^{\ominus}(UA1_2) = -16.0 + 2.33 \ln T$$

$$\Delta S^{\ominus}(UA1_3) = -9.30 + 1.30 \ln T$$

$$\Delta S^{\ominus}(UA1_4) = -51.5 + 7.52 \ln T$$

(1) תכונות פיסיקליות של תרכובות בינמחכתיות במערכת Al-U
בטבלה 3 מובאות תכונות פיסיקליות של תרכובות בינמחכתיות במערכת Al-U.

טבלה 3 תכונות פיסיקליות של תרכובות בינמחכתיות במערכת Al-U.

סימוכין	UAl ₂	סימוכין	UAl ₃	סימוכין	UAl ₄	תכונות פיסיקליות
(16, 11)	קובי	(16, 6)	קובי	(16, 6)	אורתורומבי מרוכז גוף	מיבנה קריסטלוגרפי
(24)	Fd3m	(24, 6)	Pm3m	(24, 6)	Imma	חבורה מרחבית
		(6)	4	(6)	20	מיספר אטומים בתא יחידה
(18)	a = 7.744	(24, 6)	a = 4.287	(6)	a = 4.397	פרמטר סריג (ב-Å)
				(6)	b = 6.251	
				(6)	c = 13.714	
(17)	81.52	(17)	74.63	(17)	68.8	אחוז מישקלי של U
				(6)	64.2±66.3	(ראה סעיף ז)
(17)	8.14	(24, 17)	6.8	(17, 6)	6.06	צפיפות ב-g/cm ³
				(6)	5.7	(ראה סעיף ז)
(18, 11)	1620	(18, 11)	1350	(11)	731	טמפרטורת התכה (ב-°C)
				(6)	727	
(18)	0.498	(18)	0.632	(19)	0.72	מוליכות תרמית (אקסטרפולציה) ב-Watt/(°C×cm) בטמפרטורה 200°C
(11)	14.7×10 ⁻⁶	(11)	16.8×10 ⁻⁶			מקדם התפשטות תרמית ליניארי (ב-K ⁻¹) בתחום: 0:300°C
(11)	15.0×10 ⁻⁶	(11)	15.8×10 ⁻⁶			0:400°C
(11)	15.1×10 ⁻⁶	(11)	15.2×10 ⁻⁶			0:500°C
(11)	15.2×10 ⁻⁶	(11)	14.9×10 ⁻⁶			0:600°C

(ז) הצפיפות והריכוז המישקלי של U בתרכובות הבינמתכיות במערכת U-Al

נתוני הצפיפות והריכוז המישקלי של U בתרכובות הבינמתכיות במערכת U-Al רוכזו כבר בטבלה 3. בטבלה 4 מרוכזים נתוני צפיפות וריכוז מישקלי של U בפאזה UAl_4 לפי מקורות שונים.

טבלה 4 צפיפות וריכוז מישקלי של U בפאזה UAl_4 לפי המדונה בספרות.

סימון	הערות	ריכוז מישקלי של U	השיטה בה נמצאה הצפיפות	צפיפות (g/cm^3)
(6)	יש העדרויות רבות של U, ולכן מוצע הורכב: $U_{0.9}Al_4$	64.2:66.3	מחושב	6.060
(17)	יש העדרויות של U	68.8	ניסויי	5.700
(15)			מוערך בעזרת קרני x	6.10
			צפיפות מדודה	5.7±0.3
			צפיפות שחושבה בעזרת מציאת פרמטרי הסריג לפי דיפרקצית קרני x בשיטת גביש יחיד. הניסוי נערך על-ידי Borie	6.06
(25)		64.2:66.3	$a = 4.41 \pm 0.02 \text{ \AA}$ $b = 6.27 \pm 0.02 \text{ \AA}$ $c = 13.71 \pm 0.03 \text{ \AA}$	
			צפיפות מדודה בגבישים שהופרדו מסגסוגות עשירות אלומיניום	5.6±0.1
			צפיפות שחושבה בעזרת מציאת פרמטרי הסריג לפי דיפרקציית קרני x:	6.10
			$a = 4.397 \pm 0.001 \text{ \AA}$ $b = 6.251 \pm 0.001 \text{ \AA}$ $c = 13.714 \pm 0.002 \text{ \AA}$	
(20)		68	מחושב; סימון 25	6.10
			ניסויי; סימון 25	5.6±0.1

מטבלה 4 רואים שחחום הצפיפות של פאזה UAl_4 לפי הספרות: $5.6:6.10 \text{ g/cm}^3$ ושחחום האחוז המישקלי של U בפאזה UAl_4 : $64.2:68.8$.

הצפיפות והאחוז המיסקלי של U בתרכובות הבינמכתיות במערכת U-Al מחושבות להלן:
(א) הצפיפות המחושבת של פאזה UAl_4 :

לפי Borie (סימוך 25) ו-Mandolfo (סימוך 6) תא היחידה של הפאזה UAl_4 בנוי מ-16 אטומי Al ו-4 אטומי U. המיסקל האטומי של Al הוא 27, ושל U הוא 238 בקירוב. זאת אומרת מול אטומי Al שוקל 27 gr, ומול אטומי U שוקל 238 gr. היות ומול מכיל מיספר אבוגדרו (6.025×10^{23}) של אטומים אזי אטום Al שוקל $27 / (6.025 \times 10^{23})$ gr ואטום U שוקל $238 / (6.025 \times 10^{23})$ gr, מכאן מיסקל תא יחידה של UAl_4 הוא:

$$[1] \quad \text{מיסקל תא יחידה} = \frac{16 \times 27 + 4 \times 238}{6.025 \times 10^{23}} \text{ gr}$$

ידוע כי המיבנה הקריסטלוגרפי של UAl_4 הוא אורתורומבי מרוכז גוף. פרמטרי הכריג לפי Mandolfo (סימוך 6) הם:

$$\begin{aligned} a &= 4.397 \text{ \AA} \\ b &= 6.51 \text{ \AA} \\ c &= 13.714 \text{ \AA} \end{aligned}$$

ומכאן:

$$[2] \quad \text{נפח תא יחידה} = 4.397 \times 6.251 \times 13.714 \times (10^{-8})^3 \text{ cm}^3$$

לכן:

$$\begin{aligned} [3] \quad \text{צפיפות} &= \frac{\text{מיסקל תא יחידה}}{\text{נפח תא יחידה}} = \\ &= \frac{16 \times 27 + 4 \times 238}{6.025 \times 10^{23} \times (4.397 \times 6.251 \times 13.714 \times (10^{-8})^3)} \\ &= 6.094 \text{ g/cm}^3 \end{aligned}$$

(ב) האחוז המיסקלי המחושב של U בפאזה UAl_4 :

על כל אטום U יש 4 אטומי Al ולכן האחוז המיסקלי המחושב של U בפאזה UAl_4 :

$$[4] \quad \frac{238/A_N}{238/A_N + (27 \times 4)/A_N} = 68.786 \text{ wt/o}$$

כאשר A_N הוא מספר אבוגדרו.

(ג) הצפיפות המחושבת של פאזה $U_{0.9}Al_4$:

כאמור, מיספר חוקרים (סימוכין 6, 11 ו-19) טוענים שיש העדרויות רבות של U, ולכן מוצע ההרכב: $U_{0.9}Al_4$. על-סמך החישובים לעיל חושבה הצפיפות והשבר המיסקלי התיאורטי של U בפאזה $U_{0.9}Al_4$.

הצפיפות המחושבת של $U_{0.9}Al_4$ היא:

$$\begin{aligned} \text{צפיפות} &= \frac{16 \times 27 + 4 \times 0.9 \times 238}{6.025 \times 10^{23} \times (4.397 \times 6.251 \times 13.714 \times (10^{-8})^3)} \quad [5] \\ &= 5.675 \text{ g/cm}^3 \end{aligned}$$

(ד) האחוז המישקלי המחושב של U בפאזה $U_{0.9}Al_4$:

$$\frac{238 \times 0.9 / A_N}{238 \times 0.9 / A_N + (27 \times 4) / A_N} = 66.480 \text{ wt/o} \quad [6]$$

(ה) הצפיפות המחושבת של פאזה UAl_3 :

לפי *Mondolfo* (סימון 6) תא היחידה של הפאזה UAl_3 בנוי מ-3 אטומי Al ואטום אחד של U. על-סמך אותם חישובים שנערכו לעיל מישקל תא יחידה של UAl_3 הוא:

$$\text{מישקל תא יחידה} = \frac{3 \times 27 + 238}{6.025 \times 10^{23}} \text{ gr} \quad [7]$$

ירוע (ראה סימוכין סימון 6 ו-16) כי המיבנה הקריסטלוגרפי של UAl_3 הוא קובי.

פרמטר הסריג לפי *Mondolfo* (סימון 6) הוא: $a = 4.2878 \text{ \AA}$
ומכאן:

$$\text{נפח תא יחידה} = (4.287 \times 10^{-8})^3 \text{ cm}^3 \quad [8]$$

לכן:

$$\begin{aligned} \text{צפיפות} &= \frac{\text{מישקל תא יחידה}}{\text{נפח תא יחידה}} \quad [9] \\ &= \frac{3 \times 27 + 238}{6.025 \times 10^{23} \times (4.287 \times 10^{-8})^3} \\ &= 6.720 \text{ g/cm}^3 \end{aligned}$$

(ו) האחוז המישקלי המחושב של U בפאזה UAl_3 :

$$\frac{238 / A_N}{238 / A_N + (27 \times 3) / A_N} = 74.608 \text{ wt/o} \quad [10]$$

(ז) הצפיפות המחושבת של פאזה UAl_2 :

לפי Pearson (סימון 26) תא היחידה של הפאזה UAl_2 בנוי מ-16 אטומי Al ו-8 אטומי U. על-סמך אורחם חישובים שנערכו לעיל מישקל תא יחידה של UAl_2 הוא:

$$\text{מישקל תא יחידה} = \frac{16 \times 27 + 8 \times 238}{6 \times 25 \times 10^{23}} \text{ gr} \quad [11]$$

ירוע (ראה סימוכין 11 ו-16) כי המיבנה הקריסטלוגרפי של UAl_2 הוא קובי.

פרמטר הסריג לפי Thumler (סימון 18) הוא: $a = 7.744 \text{ \AA}$

ומכאן:

$$\text{נפח תא יחידה} = (7.744 \times 10^{-8})^3 \text{ cm}^3 \quad [12]$$

לכן:

$$\text{צפיפות} = \frac{\text{מישקל תא יחידה}}{\text{נפח תא יחידה}} \quad [13]$$

$$= \frac{16 \times 27 + 8 \times 238}{6.025 \times 10^{23} \times (7.744 \times 10^{-8})^3}$$

$$= 8.349 \text{ g/cm}^3$$

(ח) האחוז המישקלי המחושב של U בפאזה UAl_2 :

$$\frac{238/A_N}{238/A_N + (27 \times 2)/A_N} = 81.507 \text{ wt/o} \quad [14]$$

לסיכום: בטבלה 5 מרוכזים הצפיפות והריכוזים המישקליים המחושבים תיאורטית עבור התרכובות הבינמתכיות השונות.

טבלה 5 הצפיפות והריכוזים המישקליים המחושבים תיאורטית עבור התרכובות הבינמתכיות השונות במערכת U-Al.

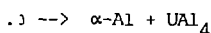
UAl_2	UAl_3	UAl_4	תכונות פיסיקליות
81.507	74.608	68.786	אחוז מישקלי של U
8.349	6.720	6.094	צפיפות ב- g/cm^3

ככל שריכוז האורניום (סימון 6) בדגם גדול יותר הצפיפות גדולה יותר, מקדם התפשטות תרמית קטן יותר, המוליכות התרמית קטנה יותר, והחוזק והקושי גדולים יותר. כמו כן תוספת U ל-Al טהור גורמת לשיפור תכונות בטמפרטורות גבוהות.

2.2.3 מסלולי התמצקות במערכת הפאזות U-Al בצד העשיר ב-Al

במצעות ריאגרת הפאזות ניתן לנבא את המיקרומבנה של נחכי Al-U לאחר ההתמצקות. לשם כך יובאו 4 מסלולי התמצקות. במונח מסלול התמצקות וכוונה למיבנה שיתקבל לאחר ההתמצקות בתנאים מסויימים.

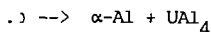
קירור מנקודה a של נוזל בעל אחוז מישקלי התחלתי של U, C_0^a , (ציור 9(a)) מתחת לקו הליקוידוס יגרום להתבדלות תמיסה מוצקה ראשונית של α -Al בצורת דנדריטים. במהלך הקירור עד לטמפרטורה האוטקטית (920K) ישתנה האחוז המישקלי של ה-U בתמיסה המוצקה α -Al מ- C_0^a ועד ל-0.06% ואחוז המישקלי של ה-U בנוזל ישתנה מ- C_0^a עד לריכוז האוטקטי (13 wt/o U). קירור מתחת לטמפרטורה האוטקטית יגרום לריאקציה אוטקטית בה:



את הכמויות היחסיות של פאזות α -Al ו- UAl_4 אפשר לקבל לפי חוק המנוף.

קירור מנקודה b (ציור 9(b)) של תמיסה נוזלית בעלת ריכוז אוטקטי יביא בנקודה האוטקטית (920K) להתבדלות למלרית של שתי הפאזות α -Al ו- UAl_4 בו זמנית זו ליד זו. האחוז המישקלי של ה-U בפאזה α -Al יהיה 0.06% וכמותו היחסית, לפי חוק המנוף, תהיה $(X_{Al}^b / (X_{Al}^b + X_{UAl_4}^b))$ (ציור 9(b)). כמו כן האחוז המישקלי של ה-U בפאזה UAl_4 יהיה 64.2% וכמותו היחסית תהיה $(X_{UAl_4}^b / (X_{Al}^b + X_{UAl_4}^b))$. במהלך הקירור מתחת לטמפרטורה האוטקטית האחוז המישקלי של ה-U בפאזה UAl_4 נשאר קבוע (64.2%) והאחוז המישקלי של ה-U בפאזה α -Al מישתנה בהתאם לקו סולבוס השמאלי. הכמויות היחסיות ישתנו בהתאם לחוק המנוף בטמפרטורות השונות בתחום שבין קו הסולבוס לקו התרום את פאזת UAl_4 . מכחינה מעשית הכמות תשאר קבועה.

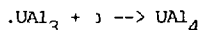
קירור מנקודה c יביא בקו הליקוידוס להתבדלות פאזה ראשונית של UAl_4 . המשך הקירור יגרום לכך שאחוז המישקלי של ה-U בנוזל ישתנה מ- C_0^c עד ל-13%, בעוד שאחוז המישקלי של ה-U בפאזה UAl_4 ישתנה מ- $C_{UAl_4}^c$ ל-64.2%. כמות הנוזל וכמות הפאזה UAl_4 ישתנו בהתאם לחוק המנוף. קירור מתחת לטמפרטורה האוטקטית (920K) יגרום להפיכת הנוזל הנותר לתערובת אוטקטית לפי הריאקציה האוטקטית:



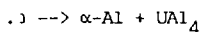
את הכמויות היחסיות של α -Al ו- UAl_4 אפשר לקבל לפי חוק המנוף.

קירור מנקודה d (ראה ציור 9 (ג)) יביא בקו הליקוידוס להתבדלות ראשונית של פאזה UAl_3 . האחוז המישקלי של ה-U בפאזה זו יהיה 74.6 wt/o U וכמותה היחסית תגדל בהתאם לחוק המנוף. האחוז המישקלי של ה-U בנוזל ישתנה מ- C_0^d עד ל-16.5% (Lee), סימוך 16, טוען עד ל-18%).

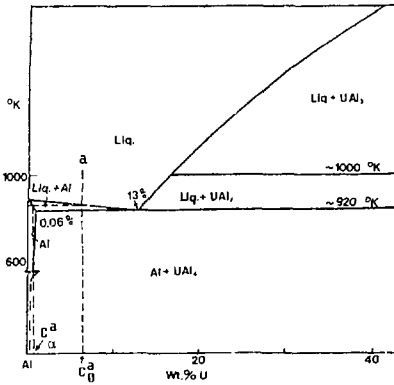
קירור מתחת לטמפרטורה הפריטקטית (1000K) יוביל להתחלת היווצרות פאזה UAl_4 לפי הריאקציה הפריטקטית:



האחוז המישקלי של ה-U בפאזה UAl_4 ילך ויגדל מ-65.2% (שזה בערך ריכוז הפאזה בטמפרטורה הפריטקטית 1000K) ל-66.3% בעוד שבמקביל ישתנה האחוז המישקלי של ה-U מ-16.5% עד ל-13% (נקודה אוטקטית) בטמפרטורה של 920K. קירור מתחת לטמפרטורה 920K יגרום להפיכת הנוזל הנוחר לתערובת אוטקטית לפי הריאקציה האוטקטית:



בגלל השהייה בטמפרטורה גבוהה יחסית ואנרגיית ריאקציה לתהליך נמוכה יחסית ייתכן וחלק מ- UAl_3 יעבור ריאקציה עם שארית ה-Al (במיוחד עם ה-Al הנוזלי) לקבלת UAl_4 כך שיתכן שבתנאי התמצקות מסויימים פאזה UAl_3 לא תתגלה במיבנה לאחר ההתמצקות.



(א)

צור 9

מסלולי התמצקות במערכת

הפאזות U-Al:

(על-פי סימור 6)

(א) התמצקות נתכי U-Al,

היפראוטקטיים.

(ב) התמצקות נתכי U-Al,

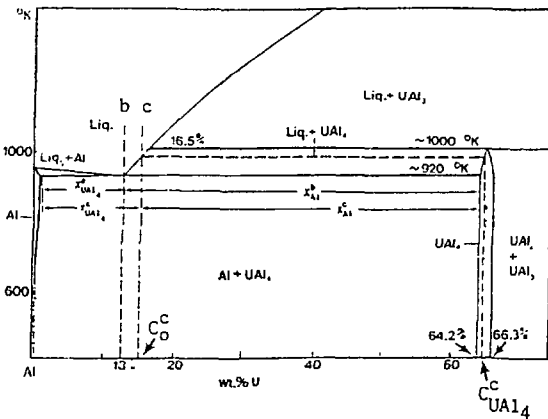
אוטקטיים

והיפראוטקטיים.

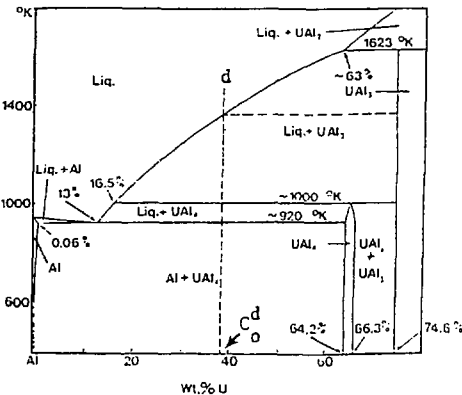
(ג) התמצקות נתכי U-Al,

היפראוטקטיים.

(ב)



(ג)



3 מהלך הניסוי

אלומיניום מסחרי מסוג A5 (נתך A1-1050 שמכיל 0.5 אחוזים מישקליים של אי-ניקוונות, שרובם Fe ו-Si), אלומיניום טהור (99.99), ואורניום טהור (99.9) נלקחו ליציקות של נתכי A1-U בעלי הרכבים הנעים מ-3.3 ל-25 wt/o U. הורכבים הנומינליים של הרגמים השונים מופיעים בטבלה 6.

היציקות נעשו בתנור התנגדות מתוצרת 'Edwards' הכולל: משאבה רוטורית, משאבת ריפוזיה, ומיכל וואקום. בתוך המיכל נמצאת מערכת החימום והיציקה הכוללת כורית העשויה מאלומינה ומוקפת גוף חימום מטונגסטן. מיכלול זה מקובע לציר המאפשר הזייה של הכורית לשפיקת ההיתך לתבנית. החומרים בריכוז הרצוי הוכנסו לתוך הכורית. האוויר שבמיכל נשאב בשלב ראשון על-ידי המשאבה הרוטורית ולאחר מכן על-ידי משאבת הריפוזיה עד לוואקום של 3×10^{-5} torr. לאחר מכן מולא המיכל בגז ארגון לשם מתן אווירה אינרטי על-מנת להגן על הרגמים בפני התחמצנות ומניעת התאיידות מוגברת של ה-A1. במצב זה חוממה הכורית בהדרגה עד לטמפרטורה של 850°C . שהייה בטמפרטורה זו כ-20 min תוך כדי בחישה, איפשרה לנוול להיות הומוגני. את ההיתך יצקו לתוך תבנית העשויה מנחושת אלקטרוליטית בקוטר 12.5 mm. תבנית זו ניתנת לפירוק לשני חלקים ועל-ידי כך מתאפשרת הוצאת הנתך. בכל שלבי התהליך נמדרה טמפרטורת הכורית בעזרת צמד תרמי המחובר לרשם רצוף. הוואקום נמדד בעזרת שני מדי-וואקום המכסים את כל תחום העבודה.

הרגמים היצוקים נחתכו והוכנו לבריכות מטלורגיות בשיטות הסטנדרטיות: תחילה לוטשו הרגמים על ניירות ליטוש של SiC עד לדרגה של 1000 mash ולאחר מכן לוטשו אלקטרוכימית.

תנאי הליטוש האלקטרוכימי:

תמיסה: $60\text{ cc H}_2\text{O}$; $350\text{ cc C}_2\text{H}_5\text{OH}$; 40 cc HClO_4 ; 50 cc בוטיל סלוסולב.

טמפרטורה: 15°C .

זמן: 80 sec.

מכל יציקה נשלחו שבבים לאנליזה כימית, תוצאות האנליזה מסוכמות בטבלה 6.

טבלה 6 תוצאות אנליזה ספקטרוכימית

אלומיניום A5		אלומיניום טהור	
ריכוז מישקלי של U לפי אנליזה כימית	ריכוז מישקלי נומינלי של U	ריכוז מישקלי של U לפי אנליזה כימית	ריכוז מישקלי נומינלי של U
3.5	3.3		3.3
12.7	13	13.6	13
17.7	18	17.4	18
19.8	20	19.7	20
21.0	22		22
25.1	25	-	-

המיקרומיבנה ופרופילי ההרכב נחקרו בעזרת משלוגרפיה אופטית במיקרוסקופ Mef-3 תוצרת 'Reichert', ובעזרת מיקרוסקופ אלקטרוני סורק דגם SEM-505 מתוצרת חברת 'Philips' עם אפשרות לאנליזה הרכבית בעזרת קרני X, בעזרת אנלייזר של חברת 'TRACOR NORTHERN', בשיטת EDS (Energy Dispersive Spectroscopy). לאנליזת EDS, הדגמים אוכלו כימית מעט מאוד, וזאת על-מנת לחשוף את המיקרומיבנה תוך כדי שמירת חיספוס פני השטח מינימלי ככל האפשר. הנתונים הלא מעובדים תוקנו בעזרת תוכנית מחשב ZAF (סימוך 27).

4 תוצאות ודין4.1 הרכב הנקודה האוטקטית

בציורים 10 ו-11 נתונה סידרת תמונות של אלקטרונים מישניים וסידרת תמונות של מיקרוסקופ אופטי המדגימות את המיקרומיבנה של נחכי Al-U כפונקציה של הרכב הנתך וסוג האלומיניום ממנו הוכן הנתך.

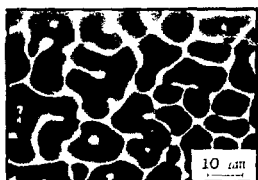
בציורים 10(א+ד) מובא המיקרומיבנה של נחכי Al-U שהוכנו מ-Al-A5 בעוד שבציורים 10(ה+ח) מובא המיקרומיבנה של נחכי Al-U שהוכנו מ-Al טהור. בציור 10(א) מודגם מיקרומיבנה של נתך U 3.3 wt/o Al. ממיקרו-אנליזה הרכבית שנערכה באמצעות קרני x (שיטת EDS), התברר שהפאזות הכהות (בהירות ציור 11) הם ונדריטים ראשוניים של α -Al שהתחילו להתבדל עקב ההתמצקות, בהתאם למסלול התמצקות נחכים היפואוטקטיים. הפאזות הבהירות בין זרועות הוונדריטים הן מיבנה אוטקטי המתמצק אחרונה. מיבנה זה, כפי שנראה בהמשך, מורכב מלמלה של Al ולמלה של UAl_4 . ככל שכמות האורניום גדלה כמות הפאזות האוטקטיות גדלה וכמות הוונדריטים של α -Al קטנה בהתאם לחוק המנוף.

בציור 10(ב) מובא המיקרומיבנה של U 13 w/o Al. בהתאם לנאמר בספרות, במהלך התמצקות בריכוז U 13 w/o אמור להיות מיבנה אוטקטי מלא אולם במיקרה שלנו רואים מיבנה היפואוטקטי אשר מכיל ונדריטים של α -Al. עובדה זו מצביעה כי דיאגרמת הפאזות המפורסמת בספרות אינה מדויקת וכי ההרכב האוטקטי הוא בריכוזים גבוהים יותר.

בציור 10(ג) מודגם המיקרומיבנה של U 18 w/o Al. רוב שטח הנתך של הנתך היה בעל מיבנה אוטקטי, אולם במספר מקומות בודדים זוהו מתבדלי UAl_4 . עובדה זו מצביעה כי ההרכב האוטקטי הוא בסביבות U 17 ± 1 wt/o.

בציור 10(ד) מובא מיקרומיבנה של נתך U 20 wt/o Al. במרכז התמונה רואים 4 זרועות בהירות בצורת דלתון היוצאות ממרכז משותף. בהתאם למיקרו-אנליזה שנעשתה לפאזה זו מתברר כי הרכבה מתאים להרכב פאזה UAl_4 . מסביב ובצמוד לפאזה זו מצויים ונדריטים כהים שזוהו באמצעות מיקרו-אנליזה הרכבית כ- α -Al ומסביבם יש מיבנה אוטקטי.

אותה תופעה מתרחשת גם ברגמי U-Al שהוכנו מ-Al טהור. בציורים 10(ה+ח) מובא המיקרומיבנה של נחכי Al-U, אשר הוכנו מ-Al טהור ובעלי ריכוזים מישקליים של אורניום של 3.3, 13, 18, ו-20 בהתאמה. מתוך ציורים אלה נראה כי כמות ונדריטי α -Al קטנה עם עליית הריכוז כמו במיקרה הקודם. העובדה שבנתך U 18 wt/o Al עדיין יש מיבנה היפואוטקטי מצביעה על כך שההרכב האוטקטי נמצא בריכוזים יותר גבוהים. רק בנתך שהכיל U 20 wt/o (ציור 10(ה)) התקבל מיבנה אוטקטי מלא (דמוי מניפה) ברוב שטח הנתך, כאשר במספר מקומות מצומצם אפשר היה להבחין במתבדלי UAl_4 . ומכאן המסקנה שהרכב האוטקטי בנתך שבו האלומיניום מגיע מ-Al טהור הוא U 19 ± 1 wt/o.



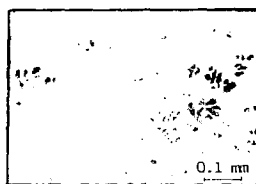
(ה)



(א)



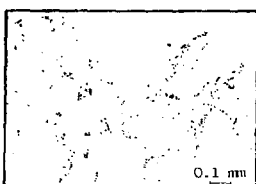
(ו)



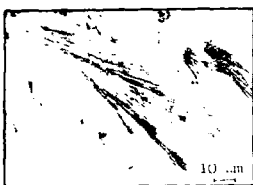
(ב)



(ז)



(ג)



(ח)

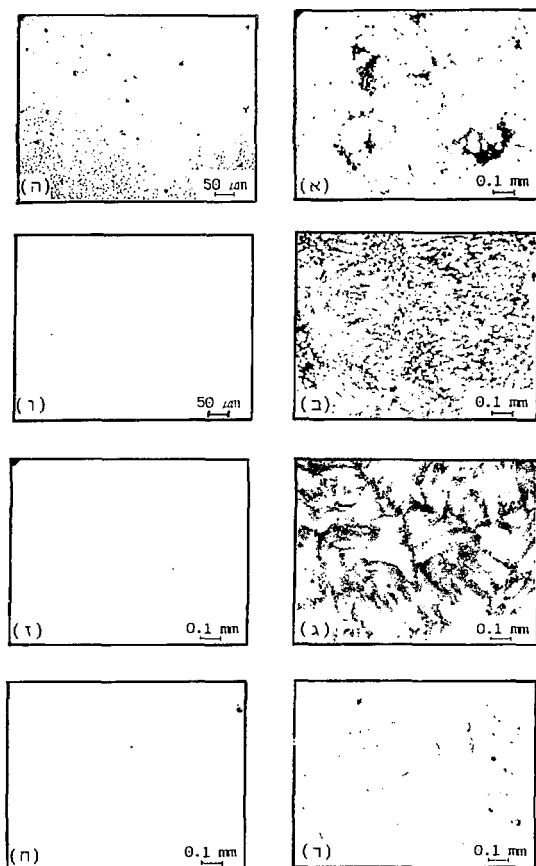


(ד)

ציור 10 סידרת תמונות אלקטרוניים מישניים המציגה מיקרומיבנה כפונקציה של הרכב עבור A1-A5 (א-ד) ועבור A1 טהור (ה:ח).
 האחוז המישקלי של ה-U בנתך:
 - (א) 3.3%; (ב) 13%; (ג) 18%; (ד) 20%.
 - (ה) 3.3%; (ו) 13%; (ז) 18%; (ח) 20%.

אוהת תופעה בדיוק מודגמת גם בציור 11, ההבדל הוא שהתמונות נלקחו באמצעות מיקרוסקופ אופטי לעומת אלו שבציור 10 שהן תמונות אלקטרוניים מישניים שנלקחו בעזרת מיקרוסקופ אלקטרוני סורק (SEM).

קיים הבדל באופי ההתברלות האוטקטית בין שני סוגי הנחכים: בנחכים שהוכנו מ-A1 טהור התגלה מיבנה אוטקטי למלרי אחיד המפולג הומוגנית בנחך מלבד מושבות אוטקטיות שקוטרם המירבי הגיע ל-0.2 mm. חשיפת המיבנה היתה קשה. בנחכים שהוכנו מ-A1-A5 פילוג התרכובת האוטקטית היה בלתי אחיד. אפשר היה להבחין באיזורים אוטקטיים גדולים עד קוטר של 2÷3 mm (ללא דנדריטים של אלומיניום) המפוזרים באיזורים שונים בדרגם.



ציור 11 סידרת תמונות מיקרוסקופ אופטי המציגה מיקרומיבנה כפונקציה של הרב

עבור Al-A5 (א+ד) ועבור Al טהור (ה+ח).
 האחוז המישקלי של ה-U בנחך עבור Al-A5 (א+ד):
 - (א) 3.3%; (ב) 13%; (ג) 18%; (ד) 20%.
 - (ה) 3.3%; (ו) 13%; (ז) 18%; (ח) 20%.

4.2 מיבנים אוטקטיים

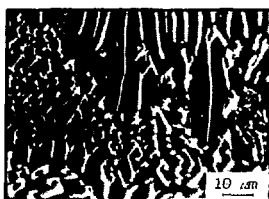
בציור 12 מודגמים מיבנים אוטקטיים אופייניים לנחכי Al-U. ציורים 12(א+ג) מוגימים מיקרומיבנה של נחך U Al-13 wt/o שהוכן מ-Al-5. בעוד שציורים 12(ד+ו) מדיגמים את המיקרומיבנה של נחך U Al-22 wt/o שהוכן מ-Al טהור. ציורים 12(ב) ו-12(ג) הם הגדלות של האיזור המוראה בציור 12(א). המיבנים האוטקטיים הקיימים בדגם הם מיבנים למלריים ומיבנים סיביים. ציורים 12(ה) ו-12(ו) הם הגדלות של האיזור המוראה בציור 12(ד). המיבנה האוטקטי הקיים בדגם זה הוא מיבנה לא יציב דמוי מניפה.



(א)



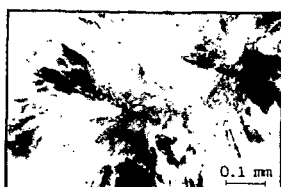
(ב)



(ג)



(ד)



(ה)



(ו)

ציור 12 תמונות אלקטרוניים מישניים המדגימות את המיבנה האוטקטי עבור:

(א+ג) נחך U Al-13 wt/o (הוכן מ-Al-5).

(ד+ו) נחך U Al-22 wt/o (הוכן מ-Al טהור).

ברגם U 13 wt/o Al-13 שהוכן מ-A5-Al ניתן להבחין לפחות ב-3 עד 4 מיבנים אוטקטיים כמראה בצירור 12(ב): האיזור התחחון בעל מיבנה אוטקטי לוחיתי. האיזור האמצעי (על האלכסון) בעל מיבנה לוחיתי עדין יותר. בעוד שהאיזור הימני מלמעלה מורכב מנקודות בהירות במטריצה כהה, כנראה מיבנה אוטקטי סיבי בו ציר האורך של סיבים מצוי במאונך למישור הציור והנקודות הבהירות הן זנבות הסיבים. בין שני המיבנים האוטקטיים האחרונים מצויים מעין ריבועים קטנים שבעזרת מיקרו-אנליזה הרכבית התברר שהם מכילים Fe. מיבנים אלה ראויים להבדק בצורה מעמיקה יותר. לעומת זאת רק סוג אחר של מורפולוגיה למלרית נמצאה בנתך U 22 wt/o Al-22 שהוכן מ-A5-Al שימשו ליצירת תרכובת ניתן, אם כן, להסיק שהאי-ניקיונות בנתך שמקורם מ-A5-Al שימשו ליצירת תרכובת טרנריות ותרכובת ממעלה גבוהה בעלי מורפולוגיות השונות.

4.3 מיבנים היפראוטקטיים

סדרה של תמונות SEM המדגימות מיקרומיבנה היפראוטקטי של נתך U 22 w/o Al-22 שהוכן מ-A1 טהור מוצגת בצירור 13. תמונה 13(א) מראה איזור אופייני של מרכז הנתך בעוד שתמונה 13(ב) מראה איזור אופייני קרוב לקצה הדרגם. המיקרומיבנה מכיל איזורים כדוריים. ברוב המיקרים יש במרכז הכדור פאזה בהירה אשר, לפי מיקרו-אנליזה, היא ברוב המיקרים UAl_4 , ובחלק מהמיקרים היא UAl_3 . (בתמונות 13(ג) ו-13(ו) לא רואים פאזה UAl_4 וזאת עקב תנאי חיתוך שונים). כל פאזה כזו מוקפת בדנדריטים שחורים אשר זוהו באמצעות מיקרו-אנליזה הרכבית כאלומיניום כמעט טהור לחלוטין (α -Al). הדנדריטים של האלומיניום מוקפים במיבנה אוטקטי לוחיתי. ובנוסף כל כדור מוקף במיקרומיבנה אוטקטי.

כמות הכדורים תלויה בעיקר בשני גורמים:

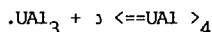
1. כמות U בדרגם.
 2. דרגת קירור היתר הראשונית בדרגם.
- כמות גדולה של U גורמת ליצירת מספר גדול של כדורים: כדור נוצר מאירוע נוקלאציה אחר. באופן טבעי ככל שכמות U תהיה גדולה יותר כך יהיו יותר אירועי נוקלאציה וכתוצאה מכך יהיו יותר כדורים.

בצירורים 13(א) ו-13(ב) רואים שכמות הכדורים (נוקלאנטים) שונה זו מזו למרות שההרכב הממוצע זהה בכל הדרגם. הסיבה להבדל זה היא דרגת קירור היתר. קירור היתר בקצה הדרגם גדול מאשר קירור היתר במרכז הדרגם. היות וקצב הנוקלאציה והגידול הם פונקציות עולות עם דרגת קירור היתר ברור שכלל שקירור היתר גדול יותר כך צפוי שכמות הכדורים תהיה גדולה יותר.

בצירור 13(ה) רואים שבמרכז הכדור יש פאזה מאורכת שלפי מיקרו-אנליזה הרכבית (EDS) היא UAl_4 , מסביב פאזה זו יש דנדריטי α -Al המוקפים בפאזה אוטקטית. נוכחות דנדריטי Al בנוסף למיבנה ההיפראוטקטי מעניין מאוד.

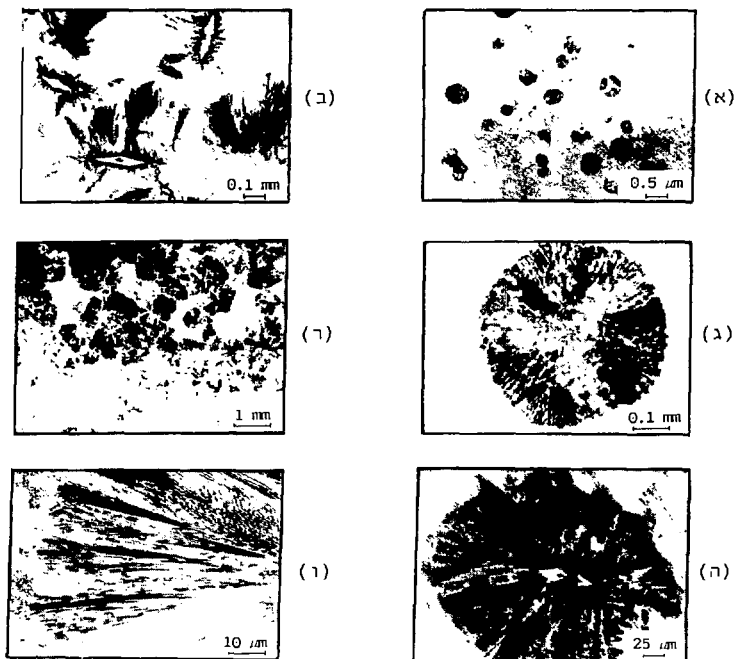
ישנם שני הסברים אפשריים לתופעה זו:

(א) האיזור המנוקד בציור 8 הוא ה-Coupled eutectic zone המוצע. נניח את ההנחה הבאה (באחת העבודות שיבוצעו בעתיד תחקר הנחה זו): ה-Coupled eutectic zone מוטה לכיוון UAl_4 ורדוד. הנחה זו הגיונית עקב העובדה שה- Al גודל כפאזת nonfaceted בעוד ש- UAl_4 גודל כפאזת faceted, וה-Coupled eutectic zone מוטה בדרך כלל לכיוון הפאזה ה-faceted (סימוך 2). קירור נוזל בעל הרכב C_0 יביא כקו הליקוידוס להתברכות פאזה ראשונית של UAl_4 . המשך הקירור יגרור שינוי ריכוז הנוזל עד לריכוז האוטקטי (U 17÷19 wt/o), כעוד שריכוז פאזה UAl_4 ישנה עד ל-64.2 wt/o. כמות הנוזל וכמות הפאזה UAl_4 ישתנו בהתאם לחוק המנוף. פאזה UAl_4 שהיא פאזה faceted גדלה באיטיות ולכן קצב וכמות פליטת החום הכמוס יהיו קטנים. כמו כן קצב ספיגת החום של תכנית הנחושת ומוליכות החום בנתך עצמו הן גדולות יחסית. ממאון שטף החום, לפי האמור לעיל, יתכן והנוזל הגיע למצב של קירור יתר לפני הנוקלאציה האוטקטית. לפי הנאמר בסעיף 2.1.5, מחוץ ל-Coupled eutectic zone, יכולים לגדול דנדריטי $\alpha-Al$, בסמוך לפאזה UAl_4 . מטבע הרברים האלומיניים גדל מדר מאור (nonfaceted-נשלט על-ידי דיפוזיה). החום הכמוס הנפלט עם גרילת הרנדריטים מעלה את טמפרטורת הנוזל ומכניס את המערכת לאיזור ה-Coupled eutectic zone ואז נוצר גירול מיבנה אוטקטי מסביב לדנדריטי ה- $\alpha-Al$. כל האמור לעיל נוגע לנתכים שהרכבם ההתחלתי (C_0) נע בין הרכב האוטקטי להרכב C_3 (ציור 8). בנתכים שהרכבם ההתחלתי (C_0) נע בין $U-C_3$ 63 wt/o לפי Mandolfo (סימוך 6) או ל-60 wt/o U לפי Rene (סימוך 5), Saller (סימוך 4) ו-Lee (סימוך 16) תחילה מתמצקת הפאזה UAl_3 . פאזה זו עוברת טרנספורמציה פריטקטית, בהמשך הקירור, לפאזה UAl_4 לפי הריאקציה:



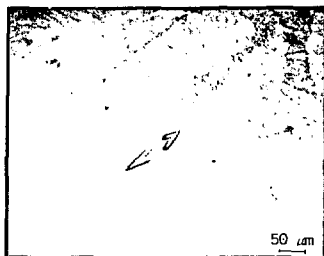
ההמשך כמו במיקרה הקודם.

(ב) תחילה גדלה פאזה UAl_4 . בהמשך תהליך ההתמצקות בעת הקירור מתחת לנקודה האוטקטית נוצר גירול של פאזה ראשונית של Al במקום פאזות אוטקטיות במנגנון של גירול divorced eutectic: אוטקטיק לא תמיר מתמצק כמעורבות של שתי פאזות (סימוך 28). כאשר השבר הניפחי של אחת הפאזות קטן מאוד יכול להיווצר מיבנה הנקרא divorced eutectic בו הפאזה בעלת הכמות הקטנה מופיעה כאיים מבודדים, בעוד הפאזה השניה מופיעה כדנדריטים עבים.

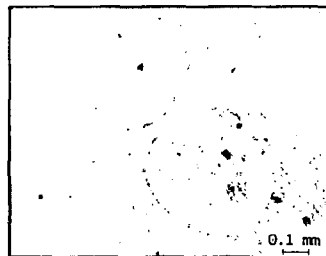


ציור 13 סידרת תמונות אלקטרוניים מישניים המדגימה את המיקרומיבנה של נתך 22-U A1 w/o שהוכן מ-A1 טהור.

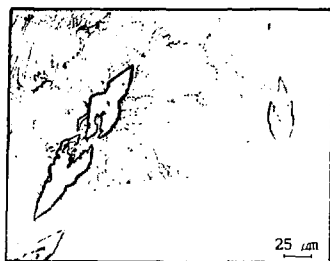
בציור 14 מובאת סדרת תמונות מיקרוסקופ אופטי המצויה מיקרומיבנה של נתכי 22 wt/o U A1. תמונות 14(א) ו-14(ב) מראות מיבנים היפראטקטיים בנתכים שהוכנו מ-A1 טהור, בעוד שתמונות 14(ג) ו-14(ד) מראות מיבנים היפראטקטיים בנתכים שהוכנו מ-A1-A5. באופן בסיסי 2 סוגי הנתכים בעלי מיקרומיבנה דומה, אולם בנתכים שהוכנו מ-A1-A5 לא ניתן להבחין בקיומה של חזית התמצקות כדורית סביב הפאזה המרכזית, עממיקרו-אנליזה הרכבית (EDS) היא UAl_4 או UAl_3 . לעומת זאת בנתכים שהוכנו מ-A1 טהור מבחינים בכירור בקיומה של חזית התמצקות כדורית. ההסבר לכך, כנראה, נעוץ בעובדה שבמתמצקות נתך שהוכן מ-A1 טהור יש קושי בנוקלאציה ורק נוקלאציה מועטת מתרחשת. עם התקדמות ההתמצקות יש גידול של אחרי הנוקלאציה וכתוצאה מכך מתקבלת מורפולוגיה כדורית. בנתכים שהוכנו מ-A1-A5 יש אי-ניקיונות רבים. אי-ניקיונות אלו מעשמים כאחרי נוקלאציה. הנוקלאציה קלה יותר ומתרחשת בכל הנפח והכדורים גדלים עד אשר הם נוגעים זה בזה ולא ניתן להבחין, כמעט, בכדורים האלו.



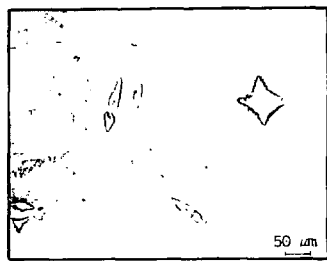
(ב)



(א)



(ד)



(ג)

ציור 14 סירת תמונות מיקרוסקופ אופטי המציגה מיקרומיבנים היפראוסקטיים של דגמי U 22 wt/o Al-22 שהוכנו מ-Al-5 טהור ומ-Al-5. (א) ו-(ב) דגם U-Al שהוכן מ-Al טהור; (ג) ו-(ד) דגם U-Al שהוכן מ-Al-5.

בציור 15 יש סידרה של תמונות SEM המציגות מיבנים היפראוסקטיים של נחכי Al-U שהוכנו מ-Al טהור (א) ו-(ב) בהשוואה לנחכי Al-U שהוכנו מ-Al-5 (ג) ו-15 (ד). הרימיון בין המיבנים מרמז שבאופן בסיסי לשני הסוגים יש אותם אופייני התמצקות. בפניה העליונה מעמאל של תמונות 15 (א) ו-15 (ג) מוצגות ספקטרומי קרני x של הפאות הבהירות שבמרכז התמונות הנ"ל. מיקרו-אנליזה הרכבית שנערכה לרגמים בעזרת קרני x מתברר שהפאה הבהירה המצוייה במרכז הכרוך בציורים 15 (א) ו-15 (ב) היא UAl_3 , בעוד שפאה הבהירה ב-15 (ג) היא UAl_4 (השווה יחסי השיאים של Al ביחס ל-U בשני המיקרים), ונראה שבאילו פאה זו התפתחה מפאה UAl_3 . מסביב ובצמוד לפאות הבהירות הנ"ל יש ננדרים כהים. מיקרו-אנליזה הרכבית (EDS) התברר שאלו ננדרים של Al- α .

הנדריטים אלו מוקפים בפאזה אוטקטית. הדימיון המורפולוגי בין 2 המיקרים מצביע על כך שיתכן שהפאזה המתמצקת ראשונה היא UAl_3 . כאשר הטמפרטורה יורדת מתרחשת ריאקציה פריטקטית בה הפאזה UAl_3 ו- Al מגיבים ויוצרים פאזה UAl_4 . פאזה UAl_4 אופיינית מוצגת במרכז מתמונה d (הפאזה הבהירה). יש אינדיקציה כספרות (סימוך 5) שתוספות קטנות של יסודות כגון טיליקון בכמות קטנה יחסית מייצבות את UAl_3 (במקום UAl_4) בטמפרטורת החדר ואפילו עד $600^{\circ}C$. אולם בציור 15 (ג) רואים כי רווקא בנתכים שהוכנו מ- $Al-A5$ המכילים אי-ניקיונות כמו ברזל וסיליקון, אין ייצוב פאזה UAl_3 אלא UAl_4 ואילו בנתכים שהוכנו מ- Al טהור ציור 15 (א) יש נוכחות של פאזה UAl_3 . בעיית ייצוב הפאזה UAl_3 בהתמצקות נחכי U-Al ראויה להחקר.



(ב)



(א)



(ד)



(ג)

ציור 15 תמונות אלקטרוניים מישניים המראות מיבנים היראופוטקטיים של דגמים שהוכנו

מ- Al טהור וכאלה שהוכנו מ- $Al-A5$.

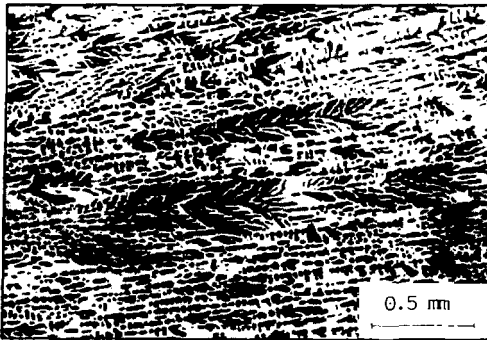
(א) ו-(ב) דגם U-Al שהוכן מ- Al טהור;

(ג) ו-(ד) דגם U-Al שהוכן מ- $Al-A5$.

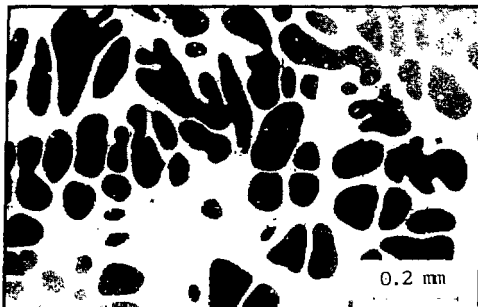
4.4 השפעת קיצבי הקירור על המיקרומיבנה

בציור 16 מורגמת השפעת מיקום האיזור הנבדק על המיקרומיבנה. בציור 16(א) מובאת תמונת אלקטרונים מישניים של מיקרומיבנה אופייני של רגם AI-13 w/o U (מ-AI-A5) באיזור קצה הרגם, בעוד שבציור 16(ב) מובאת תמונת אלקטרונים מישניים של מיקרומיבנה אופייני של הרגם במרכזו.

למיקום האיזור הנבדק בחתך הרגם יש השפעה ניכרת על המיקרומיבנה משני אספקטים: האחד מבחינה מורפולוגית, והשני מבחינת גודל. המיקרומיבנה של הרגם בקצהו 16(א) מאופיין בנוכחות דנדריטים קטנים מאורכים וכהים, שלפי ציבעם הם עשירים ב-AI (ל-AI בליעה גדולה של אלקטרונים מישניים, זאת אומרת פחות אלקטרונים מישניים מוחזרים מפני שטח המכילים AI). הדנדריטים בעלי כיווניות מועדפת. המיקרומיבנה של הרגם במרכזו 16(ב) מאופיין בנוכחות דנדריטים גדולים שווי ציורים וכהים, שלפי צבעם אף הם עשירים ב-AI. הדנדריטים בעלי כיווניות אקראית.



(א)



(ב)

ציור 16 תמונות אלקטרונים מישניים המציגים מיקרומיבנים אופייניים של רגם AI-13 w/o U (מקור אלומיניום מ-AI-A5) באיזור: (א) קצה הרגם; (ב) מרכז הרגם.

כיווניות המיקרומיבנה נוצרת בגלל שגידול הדנדריטים מתרחש במקביל והפוך לכיוון זרימת החום. קצב יציאת החום בקצה הרגם גדול מאוד ומכוון לדופן התכנית, בעוד שקצב יציאת החום במרכז הרגם קטן ומכוון החוצה לכל הכיוונים. המיבנה עדין יותר בקצה הרגם מאשר במרכז הרגם מפני שקיצבי הקירור של פני השטח גדולים משל מרכז הרגם וידוע שככל שקיצבי הקירור גדלים המיקרומיבנה מעורן יותר, קצב קירור גדול גורר קצב התמצקות גדול, זאת אומרת לינדריטים יש פחות זמן לגדול ולכן המיבנה מעורן.

4.5 אי-יציבות מורפולוגית

בציור 17 מובאת תמונה שנלקחה מאחת המושבות האוטקטיות שנמצאו בנתך שהרכבו $Al-13 \text{ wt/o}$ U, שהוכן מ-A1-A5. המיבנה האוטקטי, הנראה בצורת מניפה, בעל אי-יציבות מורפולוגית של 2 הפאזות, (השווה לציור 4(ב)) היכולה להגרם עקב נוכחות אי-הניקיונות גאלומיניום.

אותה תופעה, אך באופן פחות מודגש, נצפתה בנתכים שהוכנו מאלומיניום טהור.



ציור 17 אי-יציבות מורפולוגית של 2 פאזות בנתך $Al-13 \text{ wt/o}$ U שהוכן מ-A1-A5. (הגדלה $\times 100$).

5 סיכום ומסקנות

במחקר זה נעשה שימוש ב-A1-A5 או A1 טהור (99.99%) ו-U טהור (99.9%) ליציקות של נתכי A1-U בעלי הרכבים הנעים מ-3.3 ל-U 25 wt/o, החומרים בריכוז הרצוי הוכנסו לתוך הכורית, המיכל נשאב על-ידי משאבה רוטורית ולאחר מכן על-ידי משאבת דיפוזיה עד לזואקום של 3×10^{-5} torr. אחר כך המיכל מולא בגז ארגון. הנתכים חוממו בהדרגה עד לטמפרטורה של 850°C , ושהו בטמפרטורה זו כ-20 min תוך כרי בחישה. ההיתך נשפך לתוך תבנית העשויה מנחושת אלקטרוליטית בקוטר "0.5. המיקרומיבנה ופרופילי ההרכב נחקרו בעזרת מטלוגרפיה אופטית, מיקרוסקופיה אלקטרונית (SEM), ואנליזה הרכבית (בשיטת EDS). לאנליזת EDS, הרגמים אוכלו כימית מעט מאוד, וזאת על-מנת לחשוף את המיקרומיבנה תוך כרי שמירת חיספוס פני השטח מינימלי ככל האפשר.

נתגלה שבנתכי A1-U בריכוזים נמוכים מהנקודה האוטקטית גדלים תחילה דנדריטים של A1- α ובין זרועות הדנדריטים מתבדלת תרכובת אוטקטית. המיבנה האוטקטי מורכב מלמלת A1 ולמלת UAl_4 לסירוגין. נמצא כי ההרכב האוטקטי, עבור המערכת A1-U, אינו תואם את המרווח בספרות: ההרכב האוטקטי היה U w/o 19 ± 1 עבור נתכי A1-U שנוצרו מאלומיניום טהור, ו-U w/o 17 ± 1 עבור נתכי A1-U שנוצרו מ-A1-A5, בניגוד לספרות בה רווח כי ההרכב האוטקטי הוא U w/o 13. נוסף על כך, נמצא כי קיים הבדל באופי ההתבדלות האוטקטית בין שני סוגי הנתכים: בנתכים שהוכנו מ-A1 טהור התגלה מיבנה אוטקטי למלרי אחיד המפולג המוגנית בנתך, מכבד מושבות אוטקטיות שקוטרם המירבי הגיע ל-0.2 mm. חשיפת המיבנה היתה קשה. בנתכים שהוכנו מ-A1-A5 פלוג התרכובת האוטקטית היה בלתי אחיד. אפשר היה להבחין באיזורים אוטקטיים גדולים עד קוטר של 2-3 mm (ללא דנדריטים של אלומיניום) המפוזרים באיזורים שונים ברגם. כמו כן התברר כי אי-הניקיונות שהגיעו מ-A1-A5 שימשו ליצירת תרכובות טרנריות ותרכובות ממעלה גבוהה בעלי מורפולוגיות שונות. נוכחות אי-הניקיונות הנ"ל גם גרמה לאי-יציבות מורפולוגית של המיבנה האוטקטי (צורת מניפה) בנתך שהרכבו היה U 13 wt/o A1.

בנוסף, נחקרה השפעת מיקום האיזור הנבדק על המיקרומיבנה ב-2 איזורים שונים: (א) קצה הרגם; (ב) מרכז הרגם. לשם כך נבדק נתך U 13 wt/o A1-A5 שהוכן מ-A1-A5. ב-2 האיזורים הופיעו דנדריטי A1- α , אולם נתגלה שלמיקום האיזור הנבדק בחתך הרגם יש השפעה ניכרת על המיקרומיבנה משני אספקטים:

1. מבחינה מורפולוגית: הדנדריטים בקצה הרגם בעלי כיווניות, בעוד שהדנדריטים במרכז הרגם אינם בעלי כיווניות, אלא שנוי צירים;
2. מבחינת גודל: הדנדריטים בקצה הרגם עדינים יותר מהדנדריטים אשר במרכז הרגם הנבדק. המיבנה עדין יותר בקצה הרגם מאשר במרכז הרגם מפני שקיצבי הקירור של פני השטח גדולים משל מרכז הרגם וידוע שכלל שקיצבי הקירור גדולים המיקרומיבנה מעורן יותר.

כיוונית המיקרומיבנה נוצרת בגלל שהגידול נעשה במקביל והפוך לכיוון זרימת החום. קצב זרימת החום בקצה הרגם גדול מאוד ומכוון החוצה, בעוד שקצב זרימת החום במרכז הרגם קטן והחום מכוון החוצה לכל הכיוונים.

בהתמצקות נחכי Al-U היפראוטקטיים התגלו תופעות התמצקות מעניינות: בנוסף להופעת התרכובות הבינמתכיות UAl_3 , ו- UAl_4 , האופייניות למיבנים היפראוטקטיים, הופיעו סביב התרכובות הנ"ל דנדריטי $\alpha-Al$, האופייניים למיבנים היפראוטקטיים. מסביב, המיבנה היה אוטקטי, נתנו 2 הסברים לביאור התופעה:

1. הוצע $coupled\ zone$ שרירותי (ראה ציור 8) שמוקם לפי ההנחה שה- $coupled\ zone$ מוטה לכיוון UAl_4 וררוד. קירור נוזל בעל הרב C_0 יביא בקו הליני ירוס להתברלות פאזה ראשונית של UAl_4 . המשך הקירור יגרור שינוי ריכוז הנוזל עד לריכוז האוטקטי ($17-19\ w/o\ U$), בעוד שריכוז פאזה UAl_4 ישתנה עד ל- $64.2\ w/o\ U$. הנוזל הנותר יכול להיות בקירור יתר מפני שפאזה UAl_4 היא $faceted$ הגדלה באיטיות ולכן קצב וכמות פליטת החום הכמוס קטנים. בנוסף קצב ספיגת החום של תכנית הנחשת ומוליבות החום בנתך עצמו הן גדולות יחסית, ולכן יכולים לגדול דנדריטי $\alpha-Al$, בסמוך לפאזה UAl_4 . מטבע הרברים דנדריטי האלומיניום גדלים מהר מאוד, פולטים חום כמוס ועל-ידי כך מעלים את טמפרטורת הנוזל ומכניסים את המערכת לאיזור ה- $coupled\ zone$ ואז יכול להיווצר מיבנה אוטקטי מסביב לדנדריטי ה- $\alpha-Al$.
2. תחילה גדלה פאזה UAl_4 . בהמשך תהליך ההתמצקות בעת הקירור מתחת לנקודה האוטקטית נוצר גידול של פאזה ראשונית של Al במקום פאזות אוטקטיות במנגנון של גידול $divorced\ eutectic$.

להלן הצעות להמשך מחקר:

1. התמצקות מהירה של נחכי U-Al.
2. מציאת ההרכב האוטקטי במדויק (התמצקות איטית מאוד).
3. איפיון מדויק של הפאזות שישנן במערכת U-Al באמצעות מיקרוסקופ אלקטרוני חודר (TEM).
4. השפעת קיצבי הקירור על המיקרומיבנה ועל המרחקים הכינדרנריטיים (DAS).
5. התמצקות חד-כיוונית של נחכי U-Al.
6. חקירת $Coupled\ eutectic\ zone$ במערכת U-Al.
7. צפיפות נחכים שונים במערכת U-Al.
8. הרחבת תחום הריכוזים הנחקר מעבר ל- $22\ wt/o\ U$.

הבעת תודה

תורתנו נתונה לאנשי שטח חומרים ותהליכים על עזרתם בביצוע היציקות והמיקרוסקופיה האלקטרונית. תודה מיוחדת לגדעון אנגל ולזוהר ברקאי על תרומתם לביצוע המחקר.

Referenceסימוכין

1. R. Trivedi and W. Kurz, "Microstructure selection in eutectic alloy systems", Solidification Processing of Eutectic Alloys, The Metall. Society, pp. 3-34, (1988).
2. W. Kurz and D.J. Fisher, **Fundamentals of Solidification**, Trans' Tec' Publication, Lausanne, 1986, p. 12 and pp. 97-117.
3. R. Trivedi, P. Magnin and W. Kurz, "Theory of eutectic growth under rapid solidification conditions", Acta Metall 35 no. 4, 971-980 (1987).
4. H.A. Saller, "Preparation, properties, and cladding of Aluminium-uranium alloys", Proc. of 1st International Conference on Peaceful Uses of Atomic Energy 1, pp. 214-220. Geneva, 1956.
5. Rene Boucher, "Etude des alliages Aluminium-Uranium application a la transformation a l'etat solide $UAl_3 \rightarrow UAl_4$ ", J. of Nuc. Mater 1, 13-27 (1959).
6. L.F. Mondolfo, **Aluminium alloys: structure and properties**, Whitefriars press, London, 1976, pp. 389-391.
7. T.I. Jones, I.J. McGee and L. R. Norlock, Some properties of Aluminium-Uranium alloys in the cast, rolled, and annealed conditions, Chalk river, Ontario (USA) March 1961, AECL-1215.
8. F.A. Filho, "Microestruturas de solidificacao de ligas Aluminio-Uranio", Master Thesis, Dept. of Mater. Eng., University of Sao Paulo, 1973.
9. אלון, ברנדון, רוזן, נדיב, מבוא להנדסת חומרים, הוצאת מכיל, חיפה, 1974
עמ' 126-139
10. W. Kurz and R. Trivedi, "Solidification microstructure: recent developments and future directions", Acta Metall. Mater. 38, no. 1, 1-17 (1990).
11. M.E. Kassner, P.H. Adler, M.G. Adamson and D.E. Peterson, "Evaluation and thermodynamic analysis of phase equilibria in the U-Al system", J. of Nuc. Mater. 167, 160-168 (1989).

12. L.S. Castleman, "Layer growth during interdiffusion in the Aluminum-Uranium alloy system", J. of Nuc. Mater. 3, No. 1, 1-15 (1961).
13. M. Hansen and K. Anderko, **Constitution of Binary Alloys**, McGraw-Hill Book Company, 2nd ed', 1958, pp. 143-144.
14. P.R. Roy, "Determination of α -Aluminium solid solubility limits in the Aluminium-Uranium and Aluminium-Plutonium systems", J. of Nuc. Mater. 11, no. 1, 55-56 (1964).
15. T.I. Jones, K.N. Street, J.A. Scorberg and J. Baird, "Relation between microstructure and thermal conductivity in Aluminium-uranium alloys", Canadian Metall. Quarterly 2, no. 1, 53-72 (1963).
16. L.P. Lee and H.P. Leighly, jr, "Mechanism of UAl_3 to UAl_4 transformations", Metall. Trans. A 6A, 135-139 (1975).
17. S. Nazare, G. Ondracek and F. Thummler, "Investigations on UAl_x -Al dispersion fuels for high-flux reactors", J. of Nuc. Mater. 56, 251-259 (1975).
18. F. Thummler, H.E. Lilienthal and S. Nazare, " UAl_2 -Al instead of UAl_3 -Al in fuel-element plates for advanced test-reactors", Powder Metallurgy 12, no. 23, 1-22 (1969).
19. A. Jesse, "Einige ergebnisse uber strukturelle und physikalische eigenschaften von UAl_4 ", Letters to the editors J. of Nuc. Mater. 37, 340-342 (1970).
20. B.L. Bramfitt and H.P. Leighly, jr, "A metallographic study of solidification and segregation in cast Aluminium-Uranium alloys", Metallography 1, 165-193 (1968).
21. W.D. Willkinson, W.F. Murphy and W.J. McGonnale, **Nuclear Reactor Metallurgy**, D. Van Nostrand Company, New York, 1958, p. 74.
22. M.M. Martin, A.E. Richt, W.R. Martin, Irradiation behavior of Aluminum-base fuel dispersions, Oak Ridge National Laboratory report, Tennessee (USA) 1973, ORNL-4856.
23. P. Chiotti and J.A. Kateley, "Thermodynamic properties of Uranium-Aluminium alloys", J. of Nuc. Mater. 32, 135-145 (1969).

24. W.B. Pearson, **A Handbook of Lattice Spacing and Structure of Metals and Alloys**, vol' 2, Pergamon Press, Oxford, 1967, p. 133.
25. O.J.C. Runnalls and R.R. Boucher, "Transformations in UAl_4 and $PuAl_4$ ", Trans. of the Metall. Society of AIME 233, 1726-1732 (1965).
26. P. Villars and L.D. Calvert, **Pearson's Handbook of Crystallographic Data for Intermetallic Phases**, vol. 2, American Society for Metals, 1989, p. 1077
27. S.J.B Reed, **Electron Microprobe Analysis**, Cambridge University Press, Cambridge, 1977, pp. 175-197.
28. D.A. Porter and K.E. Easterling, **Phase Transformations in Metals**, Van Nostrand Reinhold, Berkshire, 1984, p. 230.

