

铀的阴极真空蚀刻

孙吉昌 刘嘉乐

本文介绍了阴极真空蚀刻法显示铀晶粒组织的技术,并将其蚀刻结果与偏振光和电解浸蚀等方法得到的组织进行了比较。结果表明,在显示铀的晶粒边界和孪晶线,以及显示铀在 α 相温度范围形变后的组织细节等方面,阴极真空蚀刻法比偏振光和电解浸蚀等方法效果好。

一、引言

一般的化学浸蚀和电解浸蚀是很难将铀的晶粒边界蚀刻出来的,所以在研究铀的晶粒组织时,一般都利用 α 铀晶体的光学各向异性的特点,在偏振光下进行显微组织的观察和研究^[1,2]。然而,在偏振光下观察和测量 α 铀的晶粒大小以及研究晶粒内部的组织细节时,都存在一定困难。虽然许多金相工作者对铀晶粒组织化学浸蚀^[3]和电解浸蚀^[4-6]进行了不少的研究,但结果都不十分令人满意。

随着工业的发展,新的金属材料 and 合金材料不断出现,研究这些新材料的金相方法和技术也逐步发展和完善起来,阴极真空蚀刻(又称离子轰击蚀刻)技术就是其中之一。与一般的化学浸蚀和电解浸蚀方法相比,阴极真空蚀刻具有许多优点^[7],所以金相工作者对它很感兴趣。现在,阴极真空蚀刻技术不仅可以蚀刻一般的金属和合金组织^[8-10],而且可以蚀刻一些特殊材料的组织^[11-13],是研究材料金相组织的最有效的方法之一^[14]。许多人^[15-17]认为,在显示核反应堆材料的金相组织方面,阴极真空蚀刻亦是最好的方法。金属铀的样品经阴极真空蚀刻以后,既可以直接在明视场下进行微观组织的观察,也可以进行宏观组织的观察,更适合于制备复型供电子显微镜进行研究。阴极真空蚀刻技术特别适于显示辐照过的铀等核燃料的金相组织。

我们用阴极真空蚀刻法研究了未经辐照的 α 铀的金相组织,并将它与偏振光和电解浸蚀等方法得到的组织进行了比较。

二、阴极真空蚀刻装置

实验用的阴极真空蚀刻装置系统图和蚀刻室结构图均如文献[9]所述。整个装置是由蚀刻室、氩气输送系统、真空系统和高压直流电源等组成。归纳起来,该装置具有以下几个特点:

1. 在放电蚀刻样品的时候,辉光全部集中在阳极与样品(阴极)之间,辉光、电流以及电压都很稳定。
2. 用乌氏合金将样品焊在阴极样品台上,使它与阴极接触良好。用流动水冷却阴极,保证在蚀刻过程中样品的温度不超过 70°C 。
3. 样品的装卸和溅射出来的金属粒子沉积物的清洗都很方便。
4. 用氩气作为蚀刻气体,氩气从贮存室经过针形阀连续地通入蚀刻室中。
5. 使用的高压电源是全波整流,阴极接地;在输出的外线路上串联一个 63 千欧姆、 310 瓦特的电阻器以减小工作回路中的电流。

三、操作过程

将抛光(用磷酸-甘油-酒精溶液电解抛光)好的金相样品借低熔点的乌氏合金(熔点约

70℃) 焊在具有凹槽的阴极样品台上,使其要蚀刻的表面向上,与阳极平面相对。阴极样品台靠螺纹固定在具有流动水冷却的阴极底座上。样品蚀刻室接上真空系统抽气,当室内气压小于1微米汞柱时打开针形阀通入氩气;再抽空、通氩气,如此反复两三次,然后依靠针形阀控制氩气流率,使之与真空系统抽气速率间达到动态平衡,维持蚀刻室内的气压在20微米汞柱左右。在用氩气清洗蚀刻室时,切勿使氩气流过油扩散泵,以避免扩散泵油吸收气体而降低抽气效果。

接通高压电源,开始时加到两极上的电压为1500—1700伏,相应的电流强度为20—25毫安。两极间产生辉光放电,放电后大约3—5分钟就看到电流大幅度下降,电压略有上升,这段时间称为诱导期^[8,11,15]。诱导期过后,在蚀刻室的内玻璃管上,有明显的金属粒子沉积物,这表征样品的蚀刻过程已经开始。过了诱导期后电压维持在4000伏左右,电流约为5—10毫安,一般蚀刻4—6分钟就可以得到满意的结果。

样品蚀刻完毕后,切断高压电源,关闭针形阀门,停止加热扩散泵,样品冷至室温后关闭机械泵,通入大气,取出样品进行显微镜观察。

四、结果与讨论

我们对各种热处理状态的未经辐照的金属轴进行了实验研究。结果表明,在电压为4000伏,电流为5—10毫安(电流密度约为0.6毫安/厘米²),蚀刻室气压为20—30微米汞柱时,经过3—5分钟的诱导期后蚀刻4—6分钟,就可以很好地显示出晶粒组织(图1b, 2b, 3b, 4b,

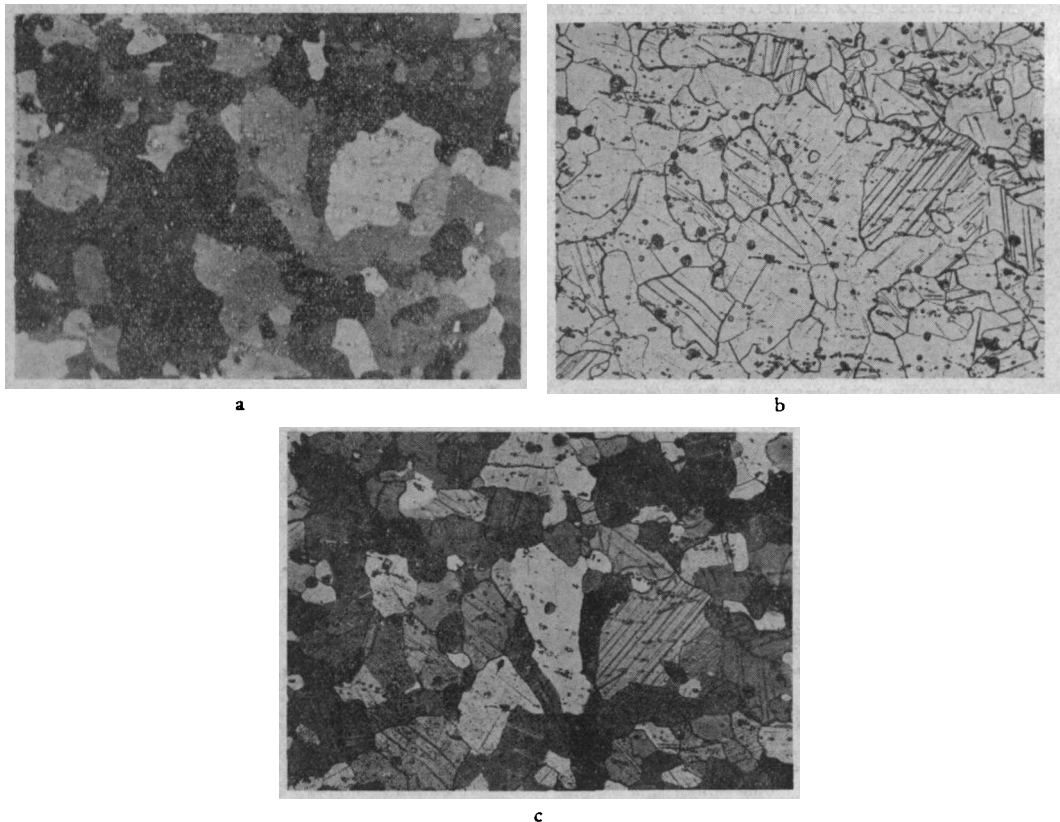


图1 用不同方法对真空中650℃退火12小时的样品显露的晶粒组织(×90)
a——偏振光; b——阴极真空蚀刻; c——阴极真空蚀刻后在空气中加热着色。

5b)。样品在产生溅射之前表面上有一层很薄的黄色薄膜,溅射一开始这层薄膜很快就被气体离子轰击掉,对样品蚀刻的结果无任何影响。

因某种原因而使蚀刻室内残留有较多的湿气时,诱导期就大大延长,此时样品表面上形成一层较厚的棕黄色的氧化膜。由肉眼看来,这层氧化膜在溅射后已被轰击掉,但在显微镜下观察时,仍能看到晶面上有氧化造成的斑点。诱导期为 10 分钟时,蚀刻后的晶面上有些许的氧化斑点存在(图 6)。当诱导期更长时,蚀刻出的晶粒组织不好,严重妨碍了组织的观察。



图 2 用不同方法在 α 相轧制 (630°C 开轧, 220°C 终轧, 淬水) 样品的同一位置上显露出的组织 ($\times 90$)
a——偏振光; b——阴极真空蚀刻。

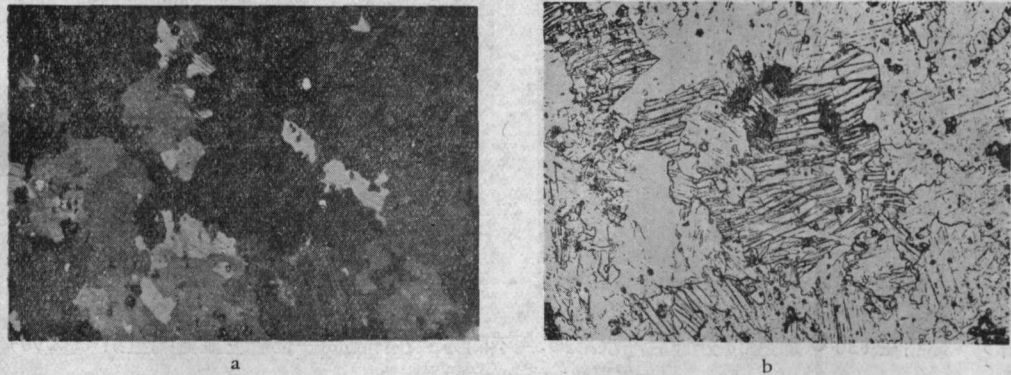


图 3 用不同方法在 α 相挤压 (630°C , 断面收缩率 $\psi = 71.3\%$) 样品的同一位置上显露出的组织 ($\times 90$)
a——偏振光; b——阴极真空蚀刻。

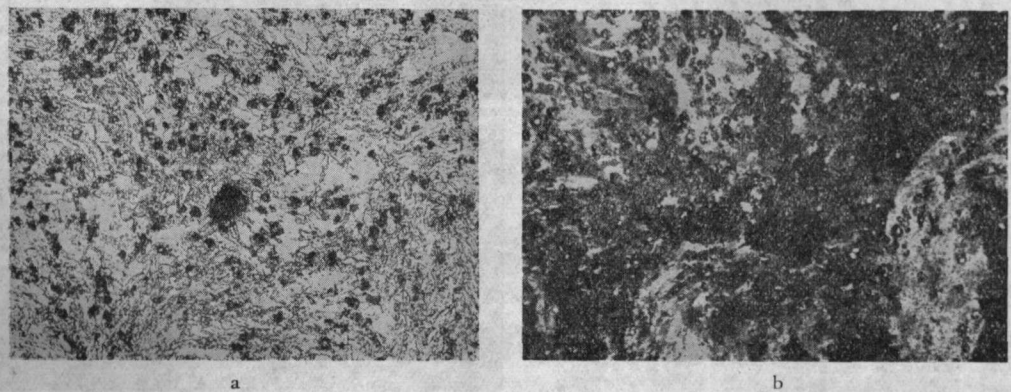


图 4 样品在 720°C 加热 30 分钟后淬水冷却, 用不同方法在样品的同一位置上显露出的组织 ($\times 90$)
a——偏振光; b——阴极真空蚀刻。

我们实验的蚀刻时间较比尔林 (Bierlein) 等人^[16]和纽基克 (Newkirk) 等人^[13]报导的都短很多,其结果与阿姆斯特朗 (Armstrong) 等人^[15]在有磁场加速的情况下得到的结果很相近。因此在我们的这个装置中既省掉了附加磁场的装置,又保证了在短的蚀刻时间内得到良好的结果。

阴极真空蚀刻后的样品在明视场下可以看到清晰的晶粒边界,克服了在偏振光下观察晶粒时许多邻近小晶粒由于取向相近而分辨不清的缺点(比较图 1a 和 b)。如果阴极真空蚀刻后再在空气中加热氧化着色,则可以增加组织的衬度(图 1c)。

阴极真空蚀刻不仅可以显示出晶粒边界和孪晶线,而且可以显露出形变铀内部组织细节的变化。对于在 α 相温度范围轧制或挤压的样品,偏振光下观察时只能看到晶粒外形的变化情况,而阴极真空蚀刻则可以显示出晶粒内部组织因轧制或挤压所产生的变化细节(图 2, 3)。

进行阴极真空蚀刻时,样品表面被轰击掉的金属数量与晶体的取向有很大关系。由于溅射表现出强的各向异性的特征^[16],故有的晶粒边界很清楚,而有的地方几乎没有显示出来,这种现象对于淬火状态的铀表现得更为明显(图 4, 5)。

实验结果表明,阴极真空蚀刻的样品不仅可以进行微观组织的观察,而且可以进行宏观组织的观察,其宏观组织很清晰(图 7, 8)。对于观察宏观组织的样品,蚀刻时间比进行微观组

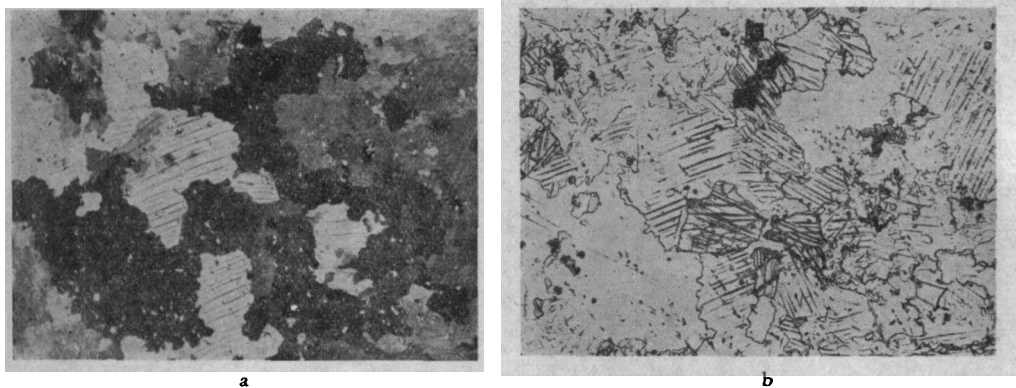


图 5 样品在 830°C 加热 30 分钟后淬水冷却,用不同方法在样品同一位置上显露的组织 ($\times 90$)
a——偏振光; b——阴极真空蚀刻。

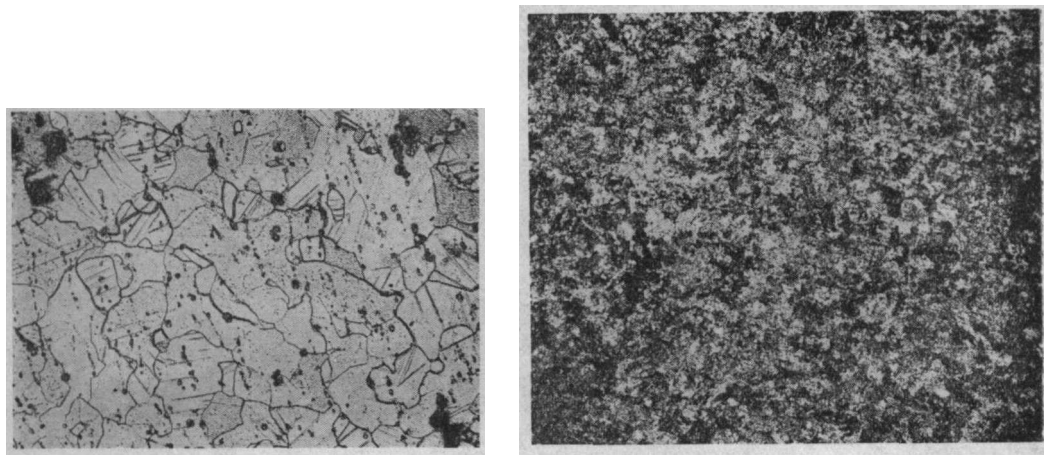


图 6 用阴极真空蚀刻法对 650°C 真空中退火 12 小时的样品显露的组织 ($\times 90$)

图 7 用阴极真空蚀刻法对 830°C 加热 30 分钟后淬水冷却的样品显露的组织 ($\times 10$)

织检查的要长一些,一般为 10—15 分钟。阴极真空蚀刻后的样品表面仍然比较光亮,对光线的漫反射很小,所以在进行宏观组织照相时,得到的组织的清晰程度与照明方式有很大关系。样品在蚀刻过程中夹杂物不受任何影响,样品也不因轰击而产生孔洞或其它的缺陷。

我们将阴极真空蚀刻的结果与常用的 1:4 过氧酸-冰醋酸溶液电解浸蚀^[6]显示的组织进行了比较。结果表明,阴极真空蚀刻显示的晶粒边界比较完整(比较图 1b 与图 10a, 11)。对于显示在 α 相温度范围形变的组织,阴极真空蚀刻有明显的优点(比较图 9 与图 2b)。样品在



图 8 阴极真空蚀刻铸铈显露出的组织 ($\times 10$)

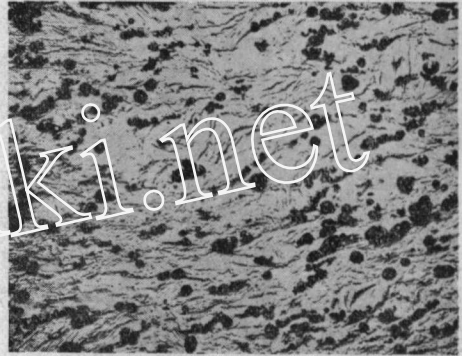
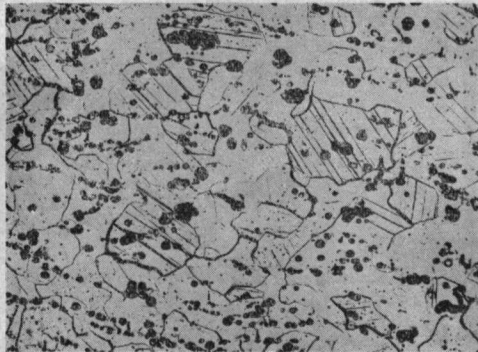
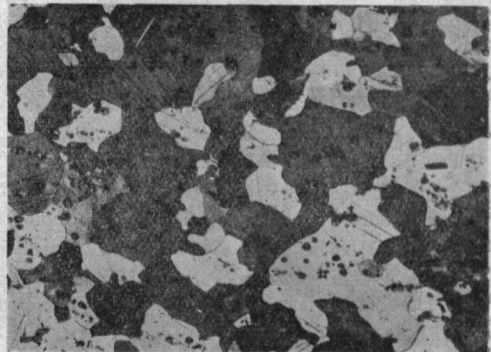


图 9 过氧酸-冰醋酸溶液电解浸蚀 α 相轧制(630 $^{\circ}\text{C}$ 开轧, 220 $^{\circ}\text{C}$ 终轧, 淬水) 样品显露出的组织 ($\times 96$)



a



b

图 10 用不同方法在 650 $^{\circ}\text{C}$ 真空中退火 12 小时的样品的同一位置上显露出的组织 ($\times 90$)
a——过氧酸-冰醋酸溶液电解浸蚀; b——过氧酸-冰醋酸溶液电解浸蚀后在空气中加热氧化着色。

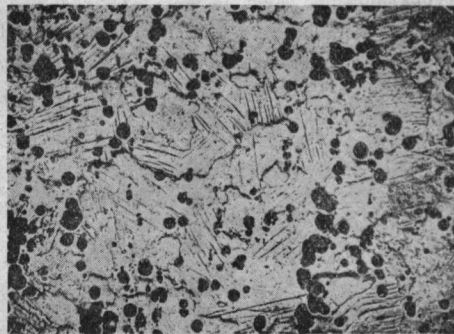


图 11 用过氧酸-冰醋酸溶液电解浸蚀于 720 $^{\circ}\text{C}$ 加热 30 分钟后淬水冷却的样品显露出的组织 ($\times 96$)

电解浸蚀后表面凹凸不平,在高倍下观察有很大困难,同时夹杂物全部被浸蚀成黑的孔洞。由此看来,对于有很多夹杂物的金属铀,阴极真空蚀刻比这种溶液电解浸蚀好。应该指出,经过这种溶液电解浸蚀以后,再加上适当的氧化着色处理可以得到完整的晶粒组织,对于退火状态的样品,电解浸蚀是比较有效的(图10)。

与一般的化学浸蚀法和电解浸蚀法等比较,阴极真空蚀刻也有一些缺点,如设备复杂;操作技术繁杂;蚀刻的辅助时间比较长等等。尽管如此,阴极真空蚀刻技术还是值得推广和发展的。

五、小 结

1. 对于各种热处理状态的未经辐照的 α 铀,在电压为4000伏,电流为5—10毫安,气压为20—30微米汞柱的条件下,蚀刻4—6分钟即可得到满意的晶粒组织。

2. 当蚀刻室内残留有湿气时,晶粒表面产生氧化斑点,对样品的蚀刻效果有很大影响。

3. 阴极真空蚀刻法显示的晶粒组织,比偏振光和电解浸蚀的要好。对于显示退火状态的晶粒边界、孪晶线以及在 α 相温度范围变形后的组织细节,阴极真空蚀刻更为有效。

4. 阴极真空蚀刻的样品既可以进行微观组织检查,也可以进行宏观组织检查,在空气中加热氧化着色可以增加组织衬度。

* * *

参加本实验工作的还有王知临同志,特此致谢。

参 考 文 献

- [1] B. W. Mott, H. R. Haines, *J. Inst. Metals*, **80**, 612 (1952).
- [2] R. F. Dickerson, *Trans. Amer. Soc. Metals*, **52**, 748 (1960).
- [3] M. N. Posey, *Metals Progr.*, **76**, 101 (1959).
- [4] B. W. Mott, H. R. Haines, *Metallurgia*, **43**, 255 (1951).
- [5] J. E. Baumrucker, ANL-4398; 1950.
- [6] 周邦新、孔令枢, 原子能科学技术, 第3期, 249(1965).
- [7] Г. В. Сливак и др., *Изв. АН СССР, Сер. Физ.*, **20**, 1184(1956).
- [8] D. M. McCutcheon, W. Pahl, *Metals Progr.*, **56**, 674 (1949).
- [9] 刘嘉乐、孙吉昌, 金相样品的阴极真空蚀刻方法, 全国金属学热处理学术讨论会报告, 1964.
- [10] И. Н. Прилежаева и др., *Техн. физ.*, **24**, Вып. 11, 2090(1954).
- [11] T. R. Padden, F. M. Cain, *Metals Progr.*, **66**, 108 (1954).
- [12] А. И. Крохляна и др., *Изв. АН СССР, Сер. физ.*, **27**, 1222(1963).
- [13] J. B. Newkirk, W. G. Martin, *Trans. Amer. Soc. Metals*, **50**, 572 (1958).
- [14] T. K. Bierlein et al., *J. Amer. Ceram. Soc.*, **41**, 196 (1958).
- [15] D. Armstrong et al., *J. Nucl. Mat.*, **1**, 127 (1959).
- [16] T. K. Bierlein, HW-32676 (1954).
- [17] K. Imlah, Extractive and Physical Metallurgy of Plutonium and Its Alloys, A Symposium Held in San Francisco, Ed. by W. D. Wilkinson, Interscience Publishers, New York, London, 1960, p. 189.
- [18] Yu. N. Sokurski et al., *J. Nucl. Mat.*, **9**, 59 (1963).

(编辑部收稿日期1965年3月17日)