

Автоионная микроскопия урана. Предварительные результаты

СУВОРОВ А. Л., КУКАВАДЗЕ Г. М., РАЗИНКОВА Т. Л., ШАРОВ Б. В., ФЕДОРЧЕНКО В. А.,
БОБКОВ А. Ф., КУЗНЕЦОВ Б. Я.

УДК 535.82:546.791

Уникальные возможности автоионно-микроскопической методики (в первую очередь — атомарное разрешение поверхностей анализируемых образцов) используются в настоящее время далеко не полностью. Это связано главным образом со сложностью получения автоионных изображений нестандартных для автоионной микроскопии (но представляющих наибольший практический интерес) материалов, а также с трудностью их интерпретации, идентификации на них атомов того или иного сорта, молекулярных комплексов, различного рода дефектов и т. д.

Основным тормозом распространения автоионно-микроскопического анализа на новые (в частности, делящиеся) материалы следует, по-видимому, считать отсутствие окончательной теории формирования изображения в автоионном микроскопе, а также полного понимания физических принципов, лежащих в основе явления испарения полем. Обсуждение современного состояния теории, а также рассмотрение наиболее существенных работ, обуславливающих успехи в этой области, содержатся в обзоре [1].

Цель первого этапа работы — выяснение возможностей автоионно-микроскопического исследования урановых образцов, поиски наиболее эффективных режимов их анализа и разработка связанных с этим некоторых методических вопросов. Представляется, что изучение кристал-

лической структуры, дефектного строения и динамики ряда процессов на поверхности и в объеме урана (и других делящихся материалов) с помощью автоионного микроскопа сможет дать принципиально новую информацию.

Публикации по автоионно- или автоэлектронно-микроскопическому изучению делящихся материалов и, в частности, урана практически отсутствуют, за исключением работы по автоионной микроскопии двуокиси урана [2]. Однако в большей степени она должна быть отнесена к области автоионно-микроскопического исследования сплавов, где ее результаты наиболее полезны.

1. Образцы. Исходным материалом для изготовления образцов — острый в настоящей работе служила проволока из технического природного урана диаметром 0,3 мм. За основу был принят известный метод автоматического электрохимического травления [3]. Электролит состоял из 12 вес.% хромового ангидрида, 8 вес.% ортофосфорной кислоты и небольшого количества воды. Травление проводилось постоянным напряжением в две стадии. На первой стадии диаметр проволочки уменьшался до 0,1—0,05 мм ($U = 12$ в, $I_{\text{травл}} \approx 100$ ма), на второй — напряжение снижалось до 4 в и уменьшалось по мере уменьшения тока ($I \approx 30 \div 5$ мка). При этом формировалось острие с типичным радиусом кривизны кончика не более 1000 Å (рис. 1). При травлении переменным напряжением поверхности получаемых острий имели заметно шероховатую, «изъеденную», форму. Готовые острия после травления промывались в спирте.

2. Экспериментальная установка. Все эксперименты проводились в полуметаллическом разборном автоионном микроскопе [4] при температуре образцов 78° К. Вакуумная система установки была модернизирована и позволяла работать со спектрально чистыми H_2 , He, Ar и Ne и их смесями в качестве изображающих газов. Парциальные давления газов контролировались с помощью омегатрона [5]. Откачку проводили сначала



Рис. 1. Оптическое изображение профиля типичного уранового острия симметричной формы ($\times 600$).

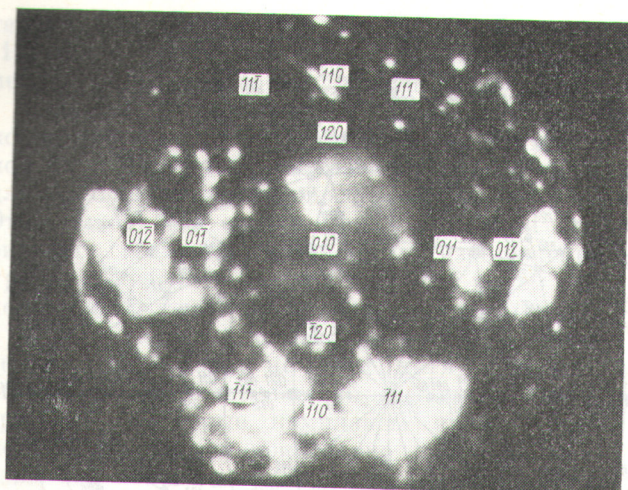


Рис. 2. Автоионное изображение поверхности образца α -урана, полученное в газовой смеси $\text{He} + 0,5\% \text{H}_2$ при $T = 78^\circ \text{K}$. В центр изображения выходит полость (010).

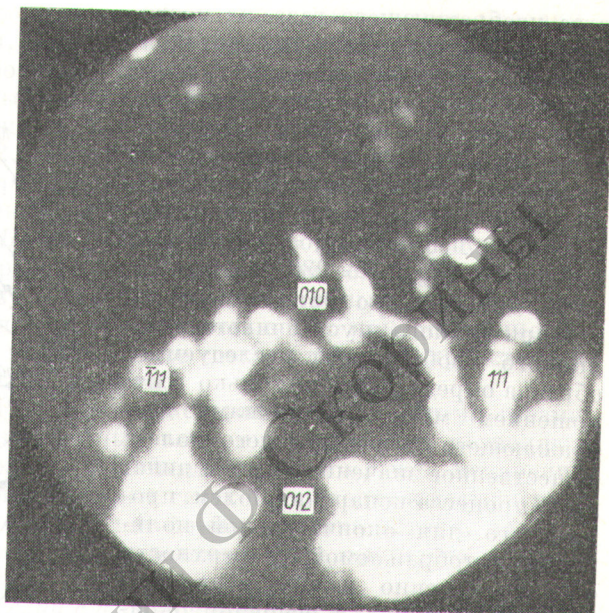


Рис. 3. Автоэлектронное изображение образца α -урана, полученное после предварительного прогрева и очистки испарением в вакууме.

масляным диффузионным, а затем электроразрядным сорбционным насосами. Вся система прогревалась. Предельное предварительное разряжение составляло $\sim 5 \cdot 10^{-8}$ мм рт. ст.

Для усиления яркости автоионных изображений использовался трехкамерный электронно-оптический преобразователь типа УМ-92 с магнитной фокусировкой [6]. Изображение снимали фотоаппаратом «Зенит-В» с объективом «Гелиос-40» на флюорографическую пленку РФ-3. Длительность экспозиции зависела от вида используемого газа и составляла 1–30 сек.

Автоэлектронные изображения урановых образцов пытались получить в стеклянном автоэлектронном микроскопе отпаянного типа. Предельный вакуум составлял $\sim 1 \cdot 10^{-10}$ мм рт. ст.

3. Экспериментальные результаты и их обсуждение. Теоретические оценки испаряющего поля для урана в вакууме при $T = 0^\circ \text{K}$, приведенные в работе [7], дают значение $F_{\text{исп}} = 424 \text{ Me/cm}$. Это означает, что использование чистого гелия в каче-

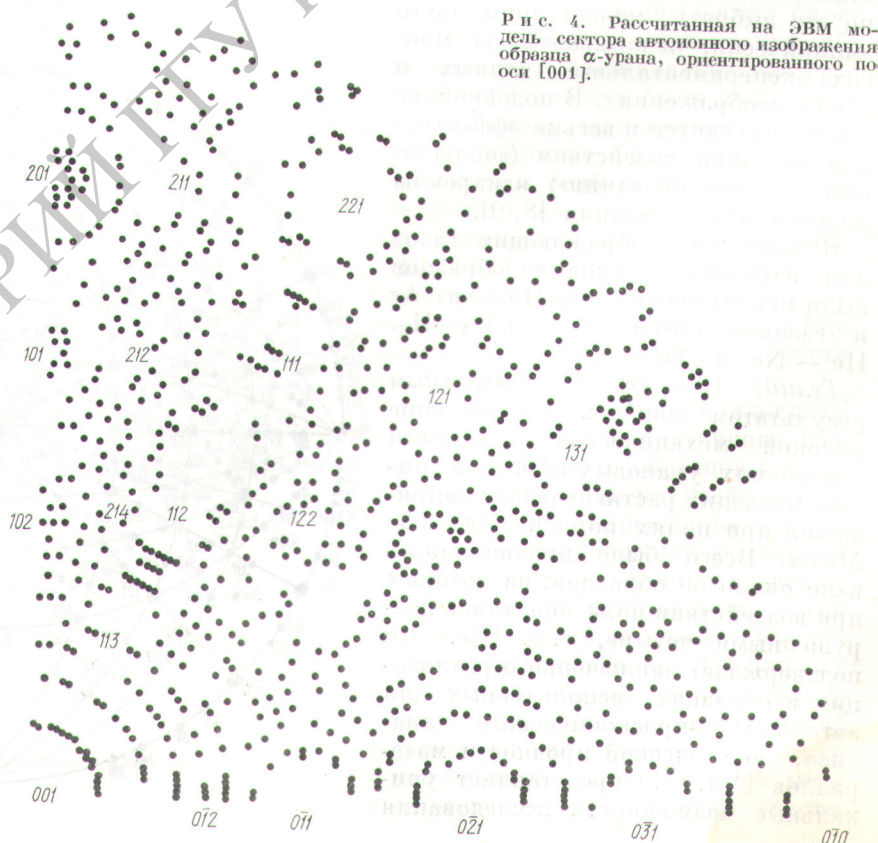
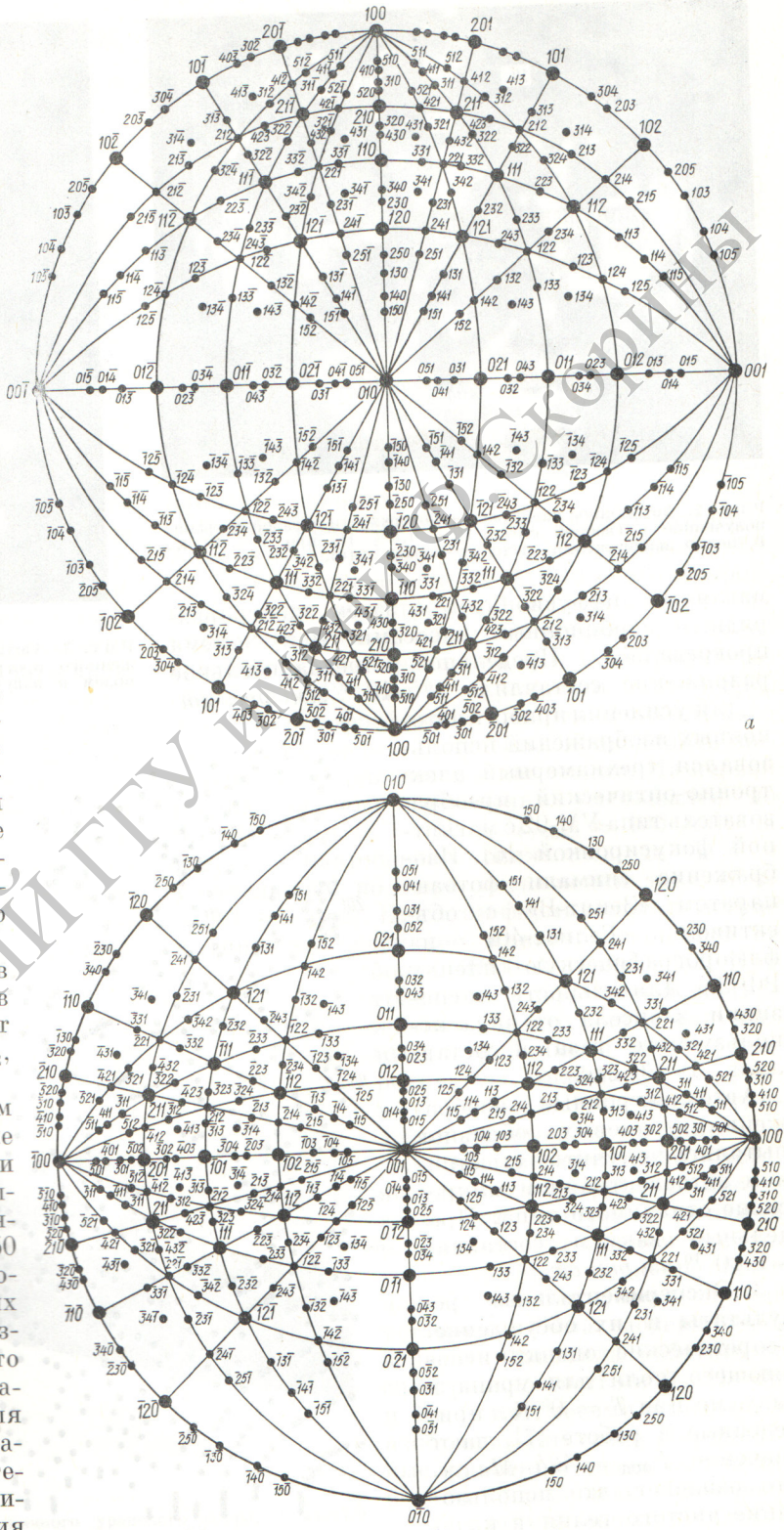


Рис. 4. Расчитанная на ЭВМ модель сектора автоионного изображения образца α -урана, ориентированного по оси [001].

стве изображающего газа не позволяет получить устойчивое автоионное изображение, поскольку поле, необходимое для автоионизации гелия, равно 450 Мв/см , т. е. урановый образец будет испаряться во время его отображения. Теоретически более подходящими должны бы оказаться неон ($F_{\text{изобр}} = 370 \text{ Мв/см}$) или аргон ($F_{\text{изобр}} = 230 \text{ Мв/см}$). Однако, как известно, получение удовлетворительного и устойчивого автоионного изображения исследуемого образца определяется не только соотношением между величинами изображающего и испаряющего полей; существенное значение имеет и динамика процесса испарения полем, проводимого для окончательной полировки отображаемой поверхности образца. Именно режим испарения полем определяет в основном окончательную форму поверхности образца. Ввиду того что в настоящее время нет законченной теории, управлять этим режимом, а главное — правильно его выбрать, можно лишь чисто эмпирически, основываясь на многих экспериментальных данных и общих соображениях. В подобной же стадии находится и весьма эффективная методика содействия («облегчения», «промотирования») испарению полем и автоионизации [8, 9].

В качестве изображающих газов для изучения урановых образцов были использованы H_2 , He , Ne , Ar и газовые смеси $\text{He} + 0,5\% \text{ H}_2$, $\text{He} - \text{Ne}$ и $\text{Ne} - \text{Ar}$.

Гелий. Первым положительным результатом явилось установление высокой механической прочности игольчатых урановых образцов, выдерживающих растягивающие напряжения при полях порядка $500-550 \text{ Мв/см}$. Всего было проанализировано около 50 образцов, из которых при воздействии поля оказались разрушенными четыре, т. е. 8%. Это подтверждает заключение о реализации в образцах, используемых для автоионно-микроскопического анализа, теоретической прочности материалов [10], что представляет уникальные возможности исследования



теории. Разрушение образцов можно объяснить [11] их несимметричностью, приводящей к появлению сдвиговой составляющей напряжения.

Полученные результаты, кроме того, дают повод для сомнения в достоверности приведенной выше оценки значения испаряющего поля; для реальных образцов оно, по-видимому, выше. Этот вывод был сделан при наблюдении стабильных гелиевых автоионных изображений урана, полученных после испарения полем при повышенной температуре. Однако информации о кристаллической структуре образцов полученные изображения не несут, хотя на некоторых из них и проступает определенная симметрия, а некоторые комплексы ярких точек могут быть предположительно идентифицированы как кольца плоских сеток (края кристаллографических плоскостей).

Аргон в качестве изображающего газа оказался более эффективным. Полученные с его помощью изображения в большей степени проявляют «склонность к кольцеобразному строению». Однако здесь следует отметить, что аргонные автоионные изображения во всех случаях были нестабильны. Это можно объяснить

недостаточно хорошими вакуумными условиями, которые в случае аргонной автоионной микроскопии становятся определяющими. (В этом смысле показательны примеры получения автоионных изображений алюминиевых образцов [12, 13]; изменение вакуумных условий привело к радикальному улучшению качества и разрешения аргонных автоионных изображений.)

Неон. Автоионные изображения урановых образцов, полученные в чистом неоне, по качеству были близки к аргонным, но обладали большей стабильностью. Их яркость примерно на порядок ниже соответствующей яркости для аргона и гелия.

Результаты экспериментов с чистыми газами в конкретных вакуумных условиях позволяют сделать общий вывод о том, что испарение полем в данных газах не приводит к достижению окончательной формы кончика острия, необходимой для детального отражения его поверхности.

Гелий с добавкой водорода в качестве рабочего газа дал наилучшие результаты. В этой газовой смеси проводили и предварительное испарение образцов полем, и получали их автоионные изображения. Типичное автоионное изображение показано на рис. 2. Оно позволило определить кристаллографическую ориентацию образца и проиндцировать проявляющиеся грани. Полученные изображения были достаточно стабильны. По-видимому, дальнейшее улучшение

их качества будет зависеть от тщательного подбора количества добавляемого водорода и, без сомнения, улучшения вакуумных условий.

Попытки получить автоионные изображения в чистом водороде и газовых смесях He — Ne и Ne — Ar (половиной концентрации) к успеху не привели.

В результате возможной пластической деформации и частичного разрушения урановых образцов в автоионном микроскопе на изображении проявляются неразрешенные в атомных деталях искаженные кольца краев кристаллографических плоскостей. Кроме того, на всех этих изображениях видны типичные, неоднократно обсуждавшиеся [14] полосы контраста. Заметим, что поскольку асимметрия может стать причиной деформации и разрушения острия в автоионном микроскопе, вызывая появление того или иного контраста,

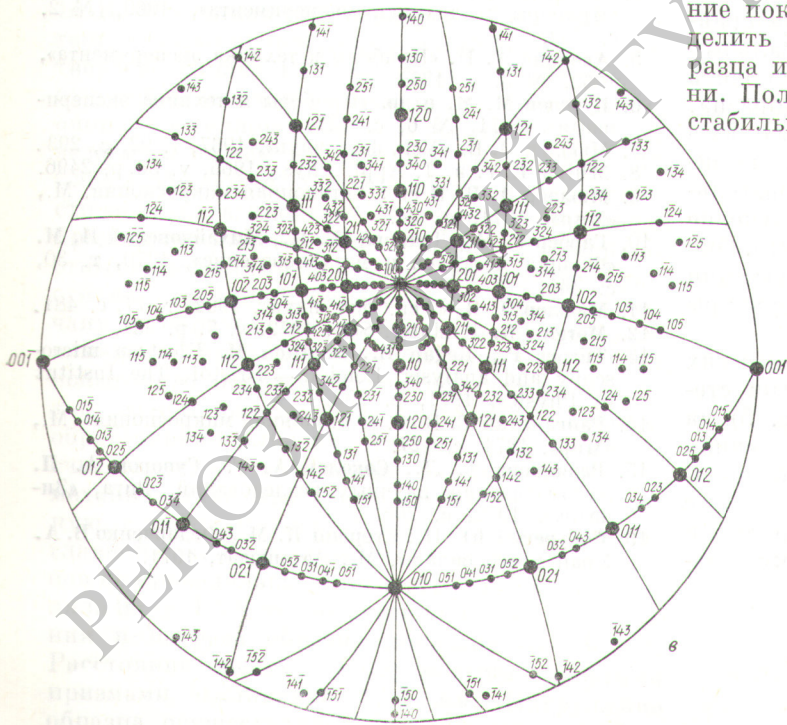
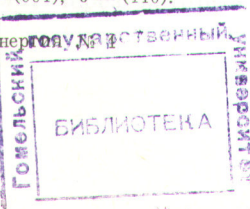


Рис. 5. Стандартные стереографические проекции α -урана на плоскости:

а — (010); б — (001); в — (110).

2 Атомная энергетика



то контроль образцов (предварительный в оптическом микроскопе и следующий за автоионно-микроскопическим анализом — в электронном микроскопе) представляется не только желательным, но и необходимым для правильной интерпретации автоионных изображений.

На рис. 3 приведено автоэлектронное изображение уранового острия, сглаженного прогревом и дополнительно очищенного испарением полем в вакууме. Хотя такое изображение и нельзя признать удовлетворительным, оно несет уже некоторую информацию; даже на данном этапе, используя комплекс методов автоэлектронной микроскопии, можно получить некоторые данные относительно эмиссионных характеристик урана.

4. Расшифровка изображений, в частности установление кристаллической ориентации образцов и индексация граней, проводились по двум направлениям: моделировались автоионные изображения и рассчитывались стандартные проекции.

Расчитанная на ЭВМ модель автоионного изображения образца α -урана, ориентированного по оси [001], приведена на рис. 4. Описание использованной для расчета программы содержится в работе [15]. Качественное сравнение вида расчетных моделей и реальных автоионных изображений позволяет установить кристаллографическую ориентацию образца. Кроме того, моделирование автоионных изображений урановых образцов должно, по-видимому, помочь разобраться в последовательности процесса испарения полем (получение необходимой окончательной формы острия). Оно также будет незаменимым при интерпретации автоионных изображений дефектной структуры урана.

Для индексации граней на изображениях урановых образцов были рассчитаны три стереографические проекции α -урана (рис. 5) на плоскости (001), (010) и (110). Проведенная расшифровка автоионных изображений показала, что в центр изображения выходит полюс (010). Это связано с технологией подготовки образцов для исследований. Проволоку диа-

метром 0,3 мм обычно [16] получают волочением при низких температурах (150—200° С), что приводит к формированию текстуры типа {010}.

Расчет проводился для граней с низкими индексами (как известно, морфологическая важность кристаллической грани обратно пропорциональна величине $S = \sqrt{h^2 + k^2 + l^2}$, где h, k, l — индексы Миллера) и был ограничен гранями {521}. Рассчитанные стереографические проекции позволили установить кристаллографическую ориентацию исследованных урановых образцов и проиндексировать основные грани (см. рис. 2).

Авторы благодарны Ю. Г. Абову за интерес к работе.

Поступила в Редакцию 6/III 1973 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Суворов А. Л., Требуховский В. В. «Усп. физ. наук», 1972, т. 107, с. 657.
2. Morgan R. J. Mater. Sci., 1970, v. 5, p. 445.
3. Елисон М. И., Горьков В. А., Васильев Г. Ф. «Радиотехника и электроника», 1957, т. 11, с. 204.
4. Кузнецов В. А., Кукавадзе Г. М., Суворов А. Л. «Приборы и техника эксперимента», 1969, № 2, с. 152.
5. Аверина А. П. «Приборы и техника эксперимента», 1962, № 3, с. 123.
6. Бутслов М. М. и др. «Приборы и техника эксперимента», 1971, № 6, с. 137.
7. Мюллер Э. В. «Усп. физ. наук», 1967, т. 92, с. 293.
8. Müller E. e. a. J. Appl. Phys., 1965, v. 36, p. 2496.
9. Мюллер Э. В. В сб.: Автоионная микроскопия. М., «Мир», 1971, с. 94.
10. Гарбер Р. И., Дранова Ж. П., Михайловский И. М. «Физика металлов и металловедение», 1970, т. 30, с. 445.
11. Мюллер Э. В. «Усп. физ. наук», 1962, т. 77, с. 481.
12. Morgan R. J. Mater. Sci., 1972, v. 7, p. 361.
13. Turner P., Regan B., Southon M. Electron microscopy and analysis. London — Bristol, The Institut of Physics, 1971, p. 252.
14. Ранганатан С. В сб. «Автоионная микроскопия». М., «Мир», 1971, с. 127.
15. Разинкова Т. Л., Соколов А. Г., Суворов А. Л. Автоматизация научных исследований. Рига, «Зинатне», 1972, с. 208.
16. Сокурский Ю. Н., Стерлин Я. М., Федорченко В. А. Уран и его сплавы. М., Атомиздат, 1971.