

УДК 544.64:544.032.4

РАДИАЦИОННЫЕ ДЕФЕКТЫ В КЕРАМИКЕ НА ОСНОВЕ НИТРИДА АЛЮМИНИЯ

© 2019 г. А. Л. Козловский^{a, b, *}, К. Дукенбаев^c, М. В. Здоровец^{a, b, d}

^aИнститут ядерной физики Республики Казахстан, Алматы, Казахстан

^bЕвразийский национальный университет им. Л.Н. Гумилева, Астана, Казахстан

^cШкола инженерии, Назарбаев Университет, Астана, Казахстан

^dУральский федеральный университет им. первого Президента Б.Н. Ельцина, Екатеринбург, Россия

*E-mail: artem88sddi@mail.ru

Поступила в редакцию 28.05.2018 г.

После доработки 24.08.2018 г.

Принята к публикации 30.08.2018 г.

В работе представлены результаты исследования процессов дефектообразования в керамике AlN под действием облучения ионами Fe⁺⁷ с флюенсом от 1×10^{11} до 1×10^{14} ион/см². Изменение основных кристаллографических характеристик, а также снижение величины критерия Гриффитса и увеличение величины среднего напряжения в результате облучения обусловлено появлением в структуре дополнительных дефектов и их дальнейшей эволюции приводящей к изменению степени кристалличности. Для образцов облученных ионами Fe⁺⁷ с дозой 1×10^{11} ион/см² на поверхности наблюдается образование пирамидообразных холмиков – хиллоков, средняя высота которых составляет 17–20 нм.

Ключевые слова: керамики, хиллоки, ионизирующее излучение, структурные свойства

DOI: 10.1134/S0023119319010078

ВВЕДЕНИЕ

Одной из задач современного материаловедения является изучение процессов взаимодействия ионизирующего излучения с конструкционными материалами, обладающими перспективным применением в реакторостроении [1–5]. При этом создание новых радиационно-стойких материалов должно учитывать влияние ионизирующего излучения на устойчивость к образованию дефектов в структуре и их последующую эволюцию, которая может привести к ухудшению эксплуатационных свойств материалов [6–10]. В свою очередь энергетические потери налетающих ионов в материале напрямую влияют на формирование дефектов в керамических материалах [11]. Ионизирующее излучение способно инициировать динамические процессы, связанные с нарушением атомной структуры керамик, а также формирование метастабильных фаз, способных привести к частичной аморфизации и разрушению структуры. Появление новых метастабильных фаз и последующая аморфизация структуры являются наиболее распространенными эффектами при облучении керамических материалов: AlN, TiO₂, Si₃N₄, SrO₂ [12–15]. В свою очередь изучение влияния дозы облучения на материалы дает возможность оценить природу процессов взаимодействия на-

летающих ионов с веществом и механизмы дефектообразования.

Нитрид алюминия (AlN) является керамическим материалом, который обладает чрезвычайно интересным сочетанием высокой теплопроводности и отличных изоляционных свойств, благодаря которым обусловлено широкое применение AlN в энергетике, ядерной промышленности, конструкционных материалах и микроэлектронике [15–18]. При этом одним из важных условий применимости керамических материалов в области разработки микроэлектронных устройств является изучение материалов к различным видам излучений. Изучение изменения свойств керамических материалов в результате взаимодействия с тяжелыми ионами, образование неравновесных концентраций дефектов при упругих и неупругих столкновениях налетающих ионов с атомами мишени может дать представление о процессах дефектообразования в керамических материалах и их устойчивости к радиационному облучению.

В связи с чем, в работе представлены результаты изучения влияния облучения ионами Fe⁺⁷ с энергией 1.5 МэВ/нукл на структурные свойства керамик AlN.

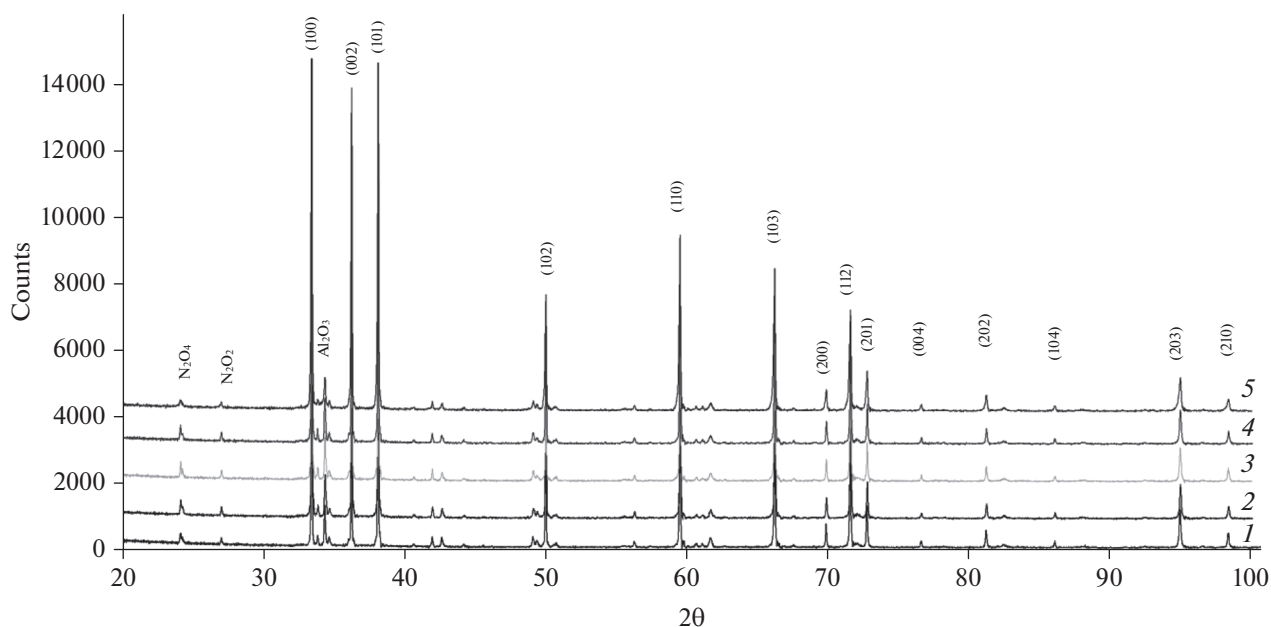


Рис. 1. Рентгеновская дифрактограмма образцов AlN до и после облучения: (1) исходный; (2) 1×10^{11} ион/см²; (3) 1×10^{12} ; (4) 1×10^{13} ; (5) 1×10^{14} ион/см².

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Образцы керамик AlN были приобретены у CRYSTAL GmbH (Germany), плотность материала составляла 3.226 г/см³. Твердость — 1100 кг/мм², Удельное сопротивление $>10^{14}$ Ом · см. Облучение образцов проводилось на ускорителе тяжелых ионов “ДЦ-60” Астанинского филиала Института Ядерной Физики ионами Fe⁺⁷ с энергий 1.75 МэВ/нукл, с флюенсом от 1×10^{11} до 1×10^{14} ион/см².

Для оценки влияния ионизирующего излучения на изменение структурных свойств и процессов дефектообразования в керамических материалах был применен метод рентгеноструктурного анализа. Рентгеноструктурный анализ (XRD) проводился на дифрактометре D8 ADVANCE ECO (Bruker, Германия) при использовании излучения CuK α . Для идентификации фаз и исследования кристаллической структуры использовалось программное обеспечение Bruker AXSDIFFRAC.EVA v.4.2 и международная база данных ICDD PDF-2.

Изучение изменения морфологии поверхности образцов до и после облучения было проведено с помощью метода атомно-силовой микроскопии на AIST-NT SPM microscope.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

При облучении в кристаллической структуре материала мишени могут образоваться неравновесные дефекты и аморфные включения, кото-

рые могут оказать существенное влияние на свойства материала. На рис. 1 представлены рентгеновские дифрактограммы образцов облученных ионами Fe⁺⁷ с энергией 1.5 МэВ/нукл при температуре 300 К.

Установлено, что исследуемые образцы представляют собой поликристаллические структуры с гексагонального типа решеткой пространственной сингонии *P63mc* (186). При этом в исходной структуре наблюдается наличие примесных фаз Al₂O₃, N₂O₄ и N₂O₂ в процентном содержании не более 3–5%. Значения параметров кристаллической решетки составили $a = 3.09569$ Å, $c = 4.95570$ Å, отклонение значений параметров элементарной ячейки от эталонного образца, обусловлено наличием в структуре примесных фаз и микродеформаций возникших при синтезе структур. Для образцов подверженных облучению тяжелыми ионами Fe⁺⁷ не наблюдается появление новых пиков на дифрактограммах, что свидетельствует о том, что в результате облучения не наблюдается имплантации ионов железа в кристаллическую структуру AlN. При этом видно, что интенсивность пиков характерных для примесных фаз снижается.

При аппроксимации линий на дифрактограмме необходимым числом симметричных функций псевдо-Фойгта была измерена ширина зарегистрированных линий на половине их высоты (FWHM), которая позволила охарактеризовать совершенство кристаллической структуры и оценить степень кристалличности. Для исходного образца степень кристалличности составила $90.1 \pm 1.1\%$. На рис. 2 представлен график зависимости измене-

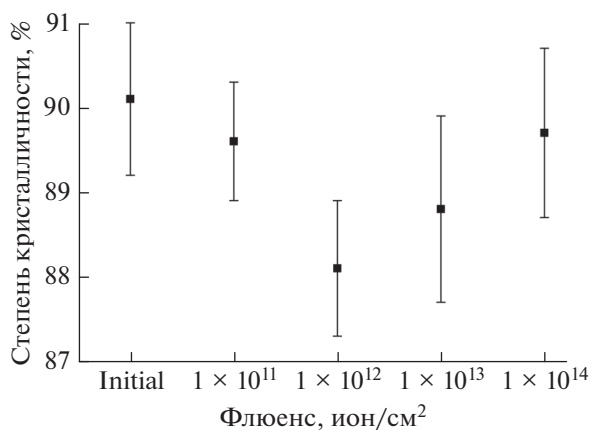


Рис. 2. График зависимости изменения степени кристалличности от дозы облучения.

ния степени кристалличности в результате облучения.

Как видно из представленных данных, наибольшее изменение степени кристалличности наблюдается для образцов облученных дозой 1×10^{12} ион/см². Снижение степени кристалличности образцов в результате облучения может быть обусловлено увеличением концентрации дефектов в структуре и последующему образованию каскадов дефектов, способных привести к формированию областей разупорядоченности в кристаллической структуре. При взаимодействии тяжелых ионов с веществом происходит колоссальное выделение энергии в электронную подсистему мишени, в результате чего в структуре возникают дополнительные электронные возбуждения, которые способны инициировать такие процессы как локальное плавление, аморфизация, образование новых фаз в структуре. Основные потери энергии быстрых тяжелых ионов происходят за счет электронного торможения, при этом выбитые электроны генерируют каскад вторичных, третичных электронов в результате упругих и неупругих столкновений. Так как первоначальное выделение энергии происходит через электронные возбуждения, то выделенная энергия заполняет малую локальную область $\sim 1-5$ нм – так называемые термические всплески, которые инициируют образование областей разупорядоченности в структуре [19, 20]. При достаточно большой энергии, первично выбитый атом способен создать каскад атомных столкновений, приводящий к формированию локальных областей с высокой концентрацией дефектов. Выбитые электроны, в свою очередь, способны разрывать ковалентные и ионные связи в структуре, а также образовывать области локальных электронных возбуждений. При этом наличие двух и более типов подрешеток в структуре приводит к образованию большого ко-

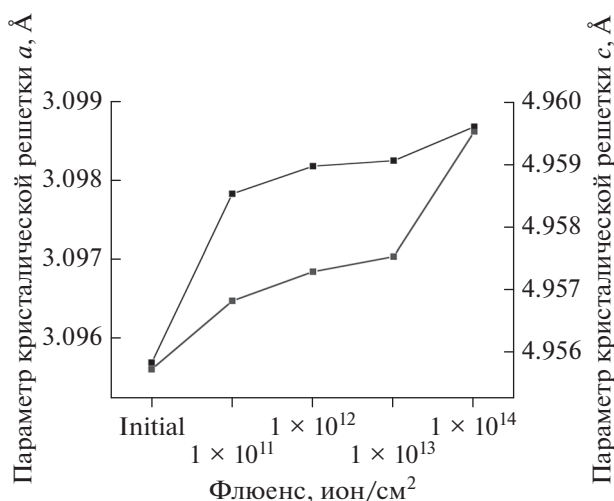


Рис. 3. Графики динамики изменения параметров кристаллической решетки a и c в зависимости от дозы облучения.

личества дефектов, вакансий и междоузлий, при этом аморфные включения, находящиеся в кристаллической структуре являются метастабильными и начинают мигрировать по структуре.

В свою очередь увеличение параметров кристаллической решетки, представленное на рис. 3 может быть обусловлено формированием термических всплесков, возникающих в структуре при взаимодействии налетающих ионов с атомами решетки, что приводит к увеличению колебаний решетки. В результате внешнего воздействия атомы в кристаллической решетке подвергаются тепловой вибрации относительно своего местоположения, при этом увеличение температуры приводит к увеличению амплитуды колебаний, и наблюдаются эффекты набухания решетки [21].

Одним из важных свойств изменения материалов в процессе облучения является изменение поверхности материала под действием тяжелых ионов и формирование хиллоков на поверхности керамик. На рис. 4 представлены 3D-изображения морфологии поверхности образцов до и после облучения, выполненные при помощи атомно-силовой микроскопии.

Согласно представленным данным, поверхность исходного необлученного образца характеризуется относительно гладкой морфологией. Для образцов облученных ионами Fe^{+7} с дозой 1×10^{11} ион/см² на поверхности наблюдается образование пирамидообразных холмиков – хиллоков, средняя высота которых составляет 17–20 нм. Увеличение дозы облучения приводит к увеличению размеров хиллоков и их плотности. При этом при больших дозах облучения наблюдается образование конгломератов хиллоков и углублений на поверхности образцов. Образование углублений мо-

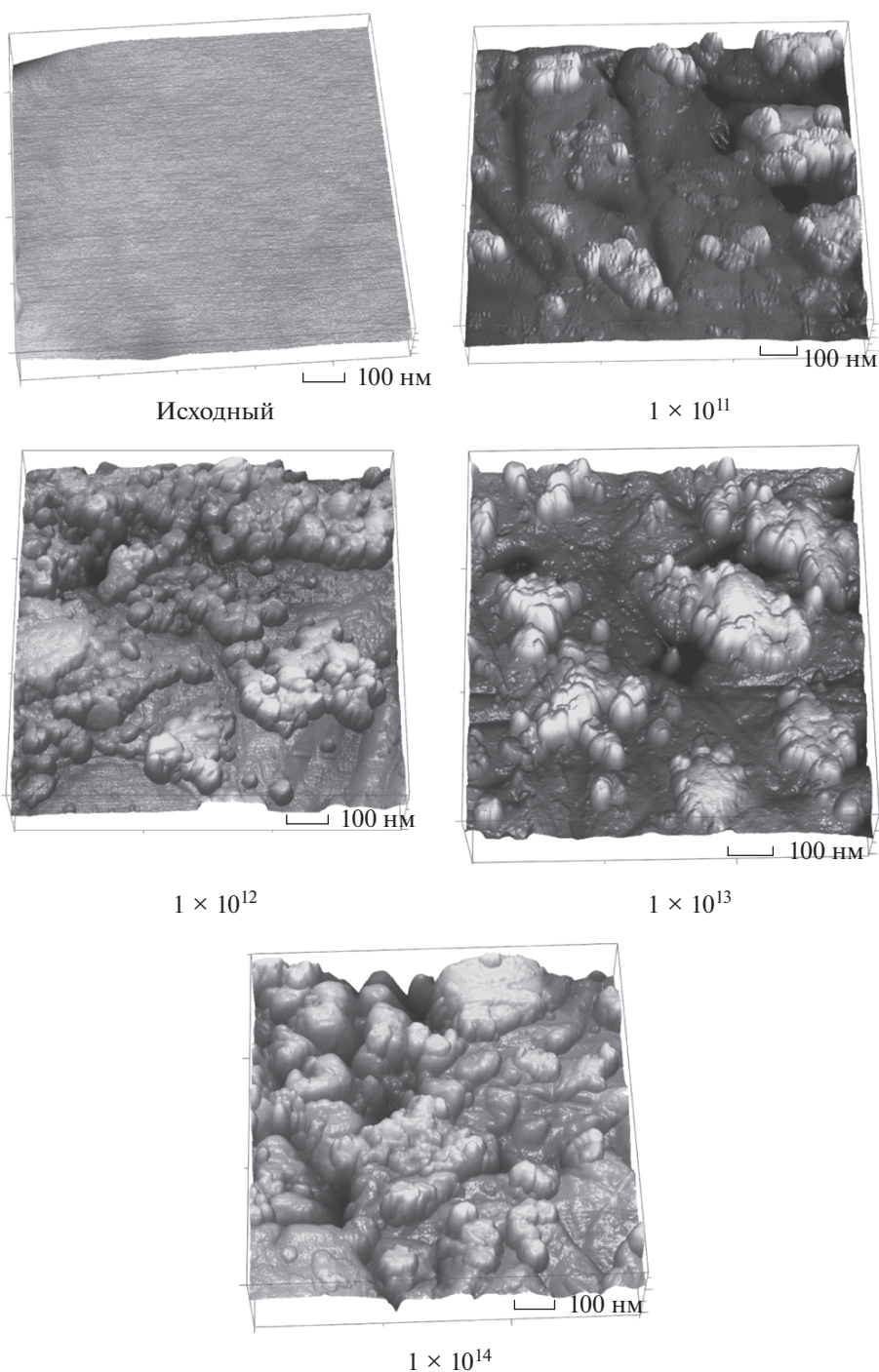


Рис. 4. 3D-изображения морфологии поверхности образцов до и после облучения.

жет быть вызвано вытеснением примесных включений из структуры образцов, что подтверждают данные рентгеноструктурного анализа (снижение интенсивностей характерных для примесных включений при больших дозах облучения). Изменение морфологии поверхности, образование хиллоков на поверхности керамики и зависимости изменения кристаллографических характеристик в процессе облучения позволяют однозначно свя-

зать образование радиационных дефектов в структуре керамики с потерями энергии в процессе упругих и неупругих взаимодействий ионов железа с атомами решетки.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе представлены результаты исследования процессов дефектообразования в керамике

AlN под действием облучения ионами Fe⁺⁷ с флюенсом от 1×10^{11} до 1×10^{14} ион/см². Для оценки влияния облучения на структурные характеристики исследуемых материалов применялись методы рентгеноструктурного анализа и атомно-силовой микроскопии. Изменение основных кристаллографических характеристик в результате облучения обусловлено появлением в структуре дополнительных дефектов и их дальнейшей эволюции. Для образцов облученных ионами Fe⁺⁷ с дозой 1×10^{11} ион/см² на поверхности наблюдается образование пирамидообразных холмиков — хиллоков. Увеличение дозы облучения приводит к изменению геометрии хиллоков и образованию конгломератов и углублений на поверхности образцов, формирование которых приводит к снижению прочностных свойств и снижению кристалличности.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Liu Y. et al.* // *Ceramics International*. 2017. V. 43(16). P. 13618.
2. *Jin K. et al.* // *Journal of Applied Physics*. 2014. V. 115(4). P. 044903.
3. *Zhang Y. et al.* // *Journal of applied physics*. 2004. V. 95(5). P. 2866.
4. *Zhang Y. et al.* // *Physical Chemistry Chemical Physics*. 2014. V. 16(17). P. 8051.
5. *Aidhy D.S., Zhang Y. Weber W.J.* // *Scripta Materialia*. 2014. V. 83. P. 9.
6. *Sina Y. et al.* // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. 2014. V. 321. P. 8.
7. *Dey S., et al.* // *Scientific reports*. 2015. V. 5. P. 7746.
8. *Ferré F.G. et al.* // *Corrosion Science*. 2017. V. 124. P. 80.
9. *Edmondson P.D. et al.* // *Acta Materialia*. 2012. V. 60(15) P. 5408.
10. *Beck L. et al.* // *Journal of Materials Research*. 2015. V. 30(9) P. 1183.
11. *Ferré F.G. et al.* // *Corrosion Science*. 2013. V. 77. P. 375.
12. *Cao C. et al.* // *Ceramics International*. 2017. V. 43.12. P. 9334.
13. *Zhang Y. et al.* // *Physical Chemistry Chemical Physics*. 2012. V. 14(38). P. 13429.
14. *Jamison L. et al.* // *Journal of Nuclear Materials*. 2–14. V. 445(1–3) P. 181.
15. *Trinkler L., et al.* // *Radiation measurements*. 2001. V. 33(5) P. 731.
16. *Trinkler L., et al.* // *Radiation protection dosimetry*. 2000. V. 92.4. P. 299.
17. *Saboori A. et al.* // *Materials*. 2017. V. 10.12. P. 1380.
18. *Wang D. et al.* // *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*. 2017. V. 28.9. P. 6731.
19. *Dasgupta P.* // *Fisika A (Croatia)*. 2000. V. 9(2). P. 61.
20. *Puerta J.* // *Appl. Opt.* 1981. V. 20(22). P. 3923.
21. *Costantini J.-M. et al.* // *Journal of Applied Physics*. 2018. V. 123(2). P. 025901.