

А. Л. КОЗЛОВСКИЙ

МКЯФНМиТ Евразийского национального университета им. Л.Н. Гумилева

ОПТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА КЕРАМИК AlN , ОБЛУЧЁННЫХ ТЯЖЁЛЫМИ ИОНАМИ

В работе представлены результаты изучения влияния облучения ионами Fe^{7+} с энергией 85 МэВ/нукл на оптические и структурные свойства нитридных керамик при температуре облучения 300–1000 К. Установлено, что снижение интенсивности оптических спектров обусловлено возникновением дефектов, а также увеличением примесных атомов, которые приводят к замещению атомов Al и N в структуре. Изменение величины среднего оптического поглощения отражает баланс между аннигиляцией дефектов в результате отжига при высоких температурах и процессами дефектообразования, возникающими в результате облучения. Увеличение величины поглощения при больших флюенсах свидетельствует о преобладании процессов дефектообразования в результате перекрытия ионов и образующимися каскадными дефектами над отжигом дефектов. При этом при температурах облучения 700 и 1000 К наблюдается снижение плотности дислокаций и микроискажений за счёт термической аннигиляции дефектов.

Ключевые слова: керамические материалы, ядерная энергетика, конструкционные материалы, облучение тяжёлыми ионами.

Жұмыста 85 МэВ/нуклон энергиялы Fe^{7+} ионымен нитридтік керамиканың сәулелендірудің оптикалық және құрылымдық қасиеттеріне 300–1000 К температурада сәулелендіру әсерін зерттеу нәтижелері келтірілген. Ақаулардың пайда болуына байланысты оптикалық спектрдің қарқындылығының төмендеуі, сонымен қатар қоспалардың атомдарының ұлғаюы, бұл құрылыста Al және N атомдарының алмастырылуына әкеледі.

Орташа оптикалық абсорбцияның өзгеруі жоғары температура кезінде жанудан және сәулелену нәтижесінде пайда болған ақаулардың пайда болуының нәтижесінде ақауларды жою арасындағы тепе-теңдікті көрсетеді. Жоғарғы шұңқырлардағы сіңіру шамасының жоғарылауы иондардың бір-бірімен үйлесуі нәтижесінде ақаулардың пайда болу процесстерінің басым болуын және ақаулардың пайда болуынан пайда болатын каскадтық ақаулардың басым екенін көрсетеді. Сонымен қатар, сәулелену температурасы 700 К және 1000 К кезінде ақаулардың термикалық аннигиляциясымен дислокацияның тығыздығының азаюы байқалады.

Түйінді сөздер: керамикалық материалдар, ядролық энергетика, құрылымдық материалдар, ауыр иондармен сәулелену.

The paper presents the results of studying the effect of irradiation with 85 MeV/nucleon by Fe^{7+} ions on optical and structural properties of nitride ceramics at an irradiation temperature of 300-1000 K. It has been established that a decrease in the intensity of the optical spectra is due to the appearance of defects, as well as an increase in impurity atoms, which lead to the substitution of Al and N atoms in the structure. The change in the average optical absorption reflects the balance between the annihilation of defects as a result of annealing at high temperatures and the processes of defect formation resulting from irradiation. An increase in the magnitude of absorption at high fluences indicates the predominance of the processes of defect formation as a result of the overlapping of ions and the resulting cascade defects over the annealing of defects. At the same time, at irradiation temperatures of 700 and 1000 K, a decrease in the density of dislocations and microdistortions due to thermal annihilation of defects is observed.

Keywords: ceramic materials, nuclear energy, structural materials, irradiation by heavy ions.

Благодаря широкой запрещённой зоне в 6 эВ среди всех соединений групп III–V и высокой стабильности при высоких температурах нитрид алюминия является одним

из перспективных материалов для ультрафиолетовых оптических устройств [1–3]. При этом AlN обладает высоким удельным сопротивлением, что позволяет применять его в качестве подложек для микроволновых и оптических устройств. Одной из важных характеристик материала является его устойчивость к воздействию внешних факторов, таких как температурный нагрев, агрессивные среды, ионизирующее излучение [4–6]. В случае применения нитридных материалов в ядерной энергетике и реакторов IV поколения необходимы точные знания влияния различных видов излучения (нейтронов, осколков деления, тяжёлых ионов) на изменения структурных и оптических свойства материалов. При облучении нитридных керамик ионизирующим излучением, в частности, тяжёлыми ионами, в их структуре возникает колоссальное количество дефектов, большая часть которых аннигилирует в результате радиационного отжига дефектов за очень короткое время ($10^{-14} - 10^{-12}$ с) [7, 8]. При этом все изменения, вызванные ионизирующим излучением, происходят в приповерхностном слое толщиной 10–20 мкм, в котором происходит торможение налетающих частиц, в результате ионизационных потерь [9,10]. Поэтому при различных условиях ионизирующее излучение может привести к существенному увеличению или снижению радиационной стойкости нитридных керамик, что напрямую влияет на оптические и структурные свойства материала.

В связи с этим представляет интерес исследование влияния различных условий облучения на изменение оптических свойств керамик AlN, обладающих потенциальным применением в ядерной энергетике и оптических устройствах.

Экспериментальная часть. В качестве объектов исследования были выбраны поликристаллические керамики AlN с решёткой гексагонального типа, являющейся аналогом вюрцита. Наличие малой концентрации примесных включений Al_2O_3 (не более 4%) в структуре керамик обусловлено технологическими процессами получения.

Облучение образцов проводилось на ускорителе тяжёлых ионов «ДЦ-60» Астанинского филиала Института ядерной физики ионами Fe^{7+} с энергией 1.5 МэВ/нукл с флюенсом от 1×10^{11} до 1×10^{13} ион/см². Температурные режимы облучения составили 300, 500, 700 и 1000 К. Расчёты энергетических потерь налетающих ионов в керамике были выполнены с помощью программного кода SRIM Pro 2013. Максимальная длина пробега ионов Fe^{7+} с энергией 1.5 МэВ/нукл составляет 11.7 ± 0.5 мкм, радиальное отклонение – 0.35 ± 0.02 мкм.

Спектры оптического поглощения снимали при комнатной температуре с использованием UV спектрофотометра Specord-250 (Jena Analytic, Germany) в диапазоне длин волн 250–800 нм со скоростью сканирования 600 нм*мин⁻¹.

TSL измерения проводились при возбуждении образцов при комнатной температуре в течение десяти минут ультрафиолетовой лампой дейтерия (50 Вт). После возбуждения снятие TSL спектров проводилось при линейном нагреве образцов в диапазоне 300–673 К с помощью оптического многоканального анализатора в диапазоне 300–800 нм.

Результаты и обсуждение. Для оценки влияния температуры и флюенса облучения на оптические свойства керамик были применены методы термически индуцированной люминесценции (TSL) и оптической абсорбции. На рис. 1 представлена динамика эволюции спектров излучения TSL основного пика при 400 К в зависимости

от условий облучения. Положение спектральных линий определялось при помощи гауссовского разложения.

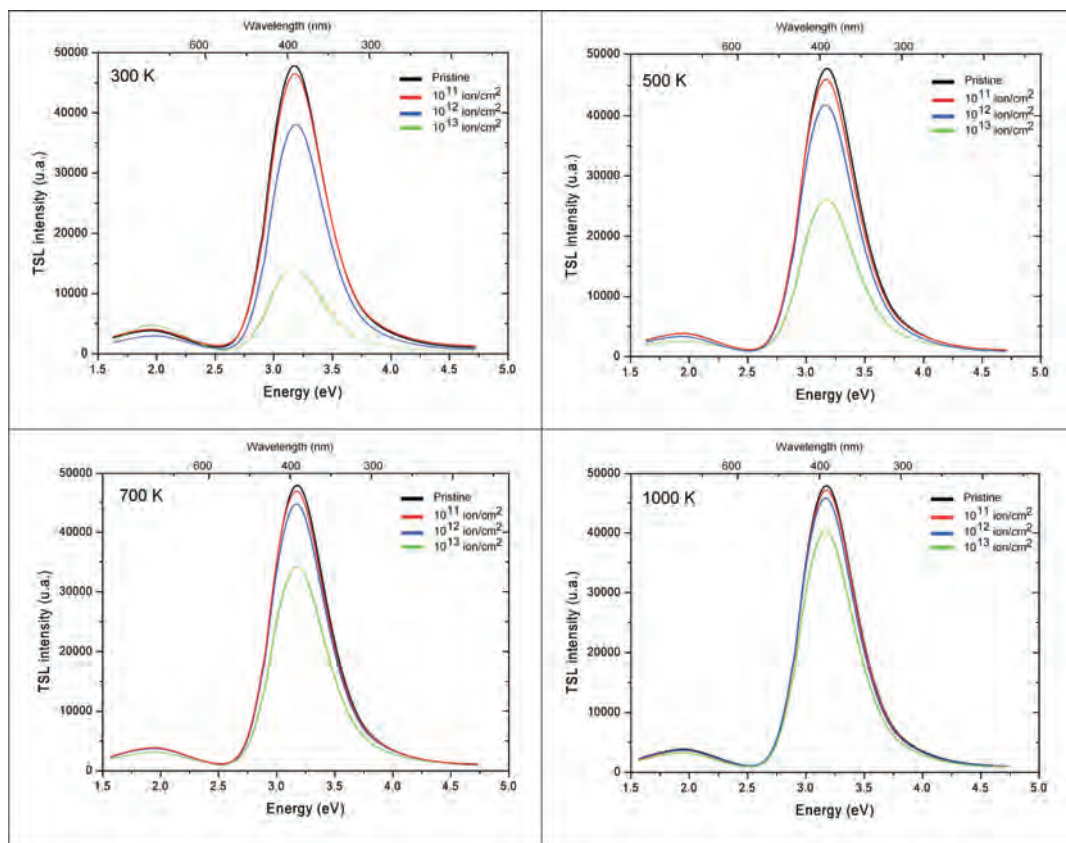


Рисунок 1 – Спектральное распределение основного пика TSL (400 К) в зависимости от флюенса облучения

Спектральная линия при 3.2 эВ, наблюдаемая на спектре, относится к основным центрам рекомбинации в AlN. Наличие малых максимумов при 1.8 – 2.0 эВ может быть обусловлено наличием примесей в структуре. Снижение интенсивности для облучённых образцов обусловлено возникновением дефектов, а также увеличением примесных атомов, которые приводят к замещению атомов Al и N в структуре. Возникновение дополнительных дефектов в структуре приводит к поглощению TSL центров и снижению интенсивности спектров. При этом увеличение температуры облучения приводит к меньшему снижению интенсивностей, что свидетельствует об аннигиляции дефектов и снижению примесных включений в структуре при высоких температурах.

На рис. 2 представлен график динамики изменения величины среднего оптического поглощения в зависимости от условий облучения, определённые на основе данных спектров поглощения в диапазоне длин волн 250–800 нм.

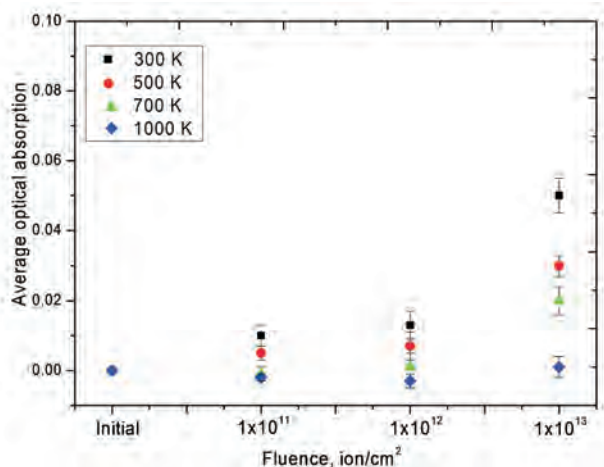


Рисунок 2 – Динамика изменения величины среднего оптического поглощения в результате облучения в диапазоне длин волн 250–800 нм

Как видно из данных, представленных на графике (рис. 2), при малых дозах облучения, характерных для формирования одиночных дефектов, величина среднего поглощения практически неизменна. Увеличение флюенса облучения приводит к увеличению величины поглощения, что обусловлено увеличением концентрации дефектов и плотности дислокаций в структуре. При облучении при высоких температурах изменение величины среднего оптического поглощения практически неизменно, что обусловлено частичной аннигиляцией дефектов в результате облучения и термического отжига. Изменение величины среднего оптического поглощения отражает баланс между аннигиляцией дефектов в результате отжига при высоких температурах и процессами дефектообразования, возникающими в результате облучения. Увеличение величины поглощения при больших флюенсах свидетельствует о преобладании процессов дефектообразования в результате перекрытия ионов и образующимися каскадными дефектами над отжигом дефектов.

На рис. 3 представлены зависимости изменения поляризованного спектра поглощения от условий облучения. Съёмка спектра проводилась в области 6–8 эВ.

Как видно из рисунка, на представленных спектрах поглощения для исследуемых образцов в области 7–8 эВ наблюдается дихроизм, что свидетельствует о наличии анизотропных полос поглощения в структуре керамик. Для облученных образцов наблюдается снижение оптической плотности поглощения и увеличение дихроизма, что может быть вызвано увеличением концентрации дефектов и дислокаций в структуре, а также формированием областей разупорядоченности в результате облучения. При этом увеличение температуры облучения до 700 и 1000 К приводит к незначительному снижению оптической плотности, что обусловлено частичным отжигом дефектов при высоких температурах.

Таким образом, полученные результаты в ходе исследования хорошо согласуются с ранее проделанными исследованиями в этой области [11–16], а также могут внести

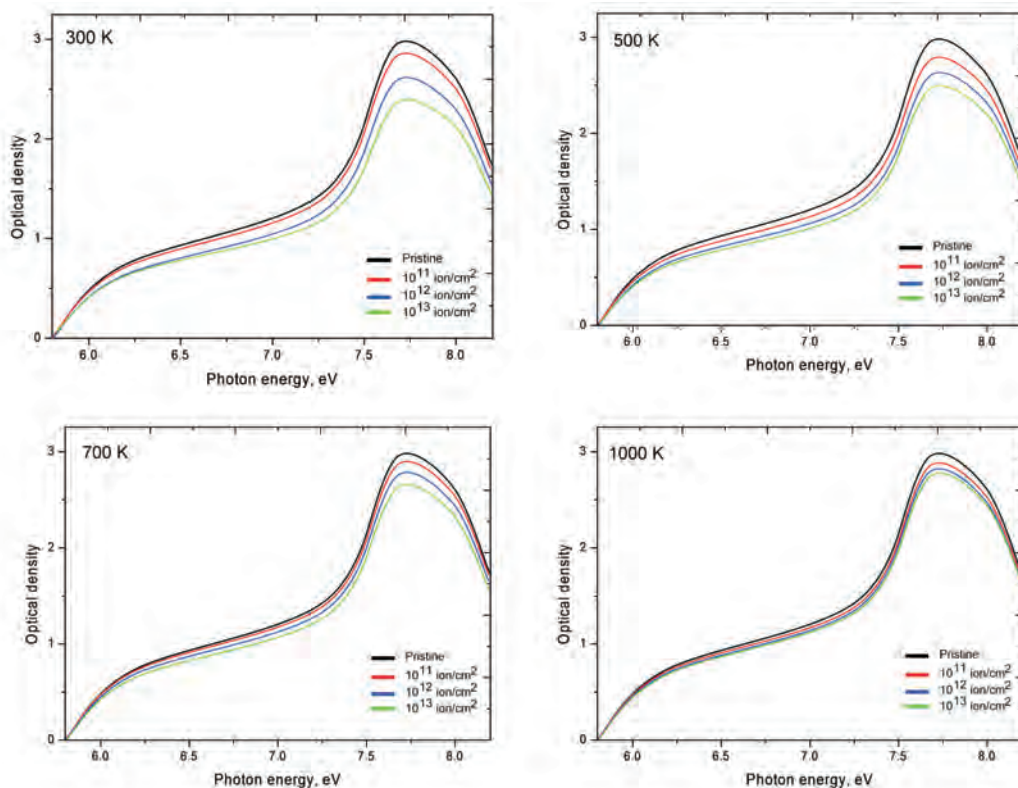


Рисунок 3 – Поляризованные спектры поглощения керамики AlN в зависимости от условий облучения

существенный вклад в изучение изменения оптических и структурных свойств нитридных керамик, обладающих большим потенциалом применения в современном материаловедении.

Заключение. В работе представлены результаты влияния условий облучения (флюенс и температура облучения) на изменения оптических и структурных характеристик нитридных керамик. Установлено, что снижение интенсивности оптических спектров обусловлено возникновением дефектов, а также увеличением примесных атомов, которые приводят к замещению атомов Al и N в структуре. Возникновение дополнительных дефектов в структуре приводит к поглощению TSL центров и снижению интенсивности спектров. При этом увеличение флюенса облучения приводит к увеличению величины поглощения, что обусловлено увеличением концентрации дефектов и плотности дислокаций в структуре. Однако при облучении при высоких температурах изменение величины среднего оптического поглощения практически неизменно, что обусловлено частичной аннигиляцией дефектов в результате облучения и термического отжига.

ЛИТЕРАТУРА

- 1 Yanagida T. et al // Journal of the Ceramic Society of Japan. – 2013. – Vol. 121. – № 1420. – P. 988-991.
- 2 Trinkler L. et al // Radiation measurements. – 1998. – Vol. 29. – № 3-4. – P. 341-348.
- 3 Shi S. C. et al // Applied physics letters. – 2006. – Vol. 89. – № 16. – P. 163127.
- 4 Zinkle S.J., Skuratov V.A., Hoelzer D.T. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. – 2002. – Vol. 191. – № 1-4. – P. 758-766.
- 5 Matzke H., Lucuta P.G. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. – 2000. – Vol. 166. – P. 920-926.
- 6 Benyagoub A. et al // Applied physics letters. – 2006. – Vol. 89. – № 24. – P. 241914.
- 7 Zinkle S.J. // Journal of nuclear materials. – 1995. – Vol. 219. – P. 113-127.
- 8 Zinkle S.J. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. – 1994. – Vol. 91. – № 1-4. – P. 234-246.
- 9 Zinkle S.J., Snead L.L. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. – 1996. – Vol. 116. – № 1-4. – P. 92-101.
- 10 Shikama T. et al. // Journal of nuclear materials. – 1999. – Vol. 271. – P. 560-568.
- 11 Zinkle S.J., Kinoshita C. // Journal of Nuclear Materials. – 1997. – Vol. 251. – P. 200-217.
- 12 Hobbs L.W. et al // Journal of Nuclear Materials. – 1994. – Vol. 216. – P. 291-321.
- 13 Zinkle S.J., Jones J.W., Skuratov V. // MRS Online Proceedings Library Archive. – 2000. – T. 650. – P. 1-10.
- 14 Nappé J.C. et al. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. – 2011. – Vol. 269. – № 2. – P. 100-104.
- 15 Szenes G. // Journal of nuclear materials. – 2005. – Vol. 336. – № 1. – P. 81-89.
- 16 Milosavljević M. et al. // Materials Chemistry and Physics. – 2012. – Vol. 133. – № 2-3. – P. 884-892.