

ИЗУЧЕНИЕ ПРОЦЕССОВ РАДИАЦИОННОГО ОХРУПЧИВАНИЯ И ПРОЦЕССОВ ПОЛИМОРФНЫХ ПРЕВРАЩЕНИЙ В ZrO_2 КЕРАМИКАХ

А.Л. Козловский^{1), 2)}

¹⁾Институт ядерной физики МЭ РК, ул. Ибрагимова 1, Алматы 050032, Казахстан

²⁾НАО Евразийский национальный университет им. Л.Н. Гумилева, Астана, Казахстан,
artem88sddt@mail.ru

Целью данного исследования является изучение механизмов полиморфных превращений в ZrO_2 керамиках при облучении тяжелыми ионами, а также определению характера структурных искажений в случае трансформаций типа $t\text{-ZrO}_2 \rightarrow c\text{-ZrO}_2$ и связанных с ними анизотропных деформаций. Облучение образцов ZrO_2 керамик было осуществлено тяжелыми ионами Kr^{15+} с энергией 150 МэВ и флюенсами $10^{11} - 10^{16}$ ион/см². В ходе оценки структурных изменений в зависимости от флюенса облучения было установлено, что при малых флюенсах облучения ($10^{11} - 10^{12}$ ион/см²) основную роль играют деформационные искажения кристаллической решетки, имеющие выраженный анизотропный характер, в то время как при флюенсах выше 10^{13} ион/см² основную роль играют полиморфные трансформации типа $t\text{-ZrO}_2 \rightarrow c\text{-ZrO}_2$ с последующей аморфизацией поврежденного слоя при флюенсах выше 10^{15} ион/см². Установлено, что анизотропное искажение кристаллической решетки более выражено вдоль кристаллографической оси a , а также ориентации текстуры (011), характерной для $t\text{-ZrO}_2$.

Ключевые слова: полиморфные превращения; радиационные повреждения; диоксид циркония; конструкционные материалы; охрупчивание.

STUDY OF RADIATION EMBRITTLEMENT AND POLYMORPHIC TRANSFORMATIONS IN ZrO_2 CERAMICS

A.L. Kozlovskiy^{1), 2)}

¹⁾Institute of Nuclear Physics, 1 Ibragimov Str., 050032 Almaty, Kazakhstan

²⁾L.N. Gumilyov Eurasian National University, 2 Satpayev Str., 010008 Astana, Kazakhstan

The purpose of this study is to study the mechanisms of polymorphic transformations in ZrO_2 ceramics under irradiation with heavy ions, as well as to determine the nature of structural distortions in the case of transformations of the $t\text{-ZrO}_2 \rightarrow c\text{-ZrO}_2$ type and associated anisotropic deformations. The samples of ZrO_2 ceramics were irradiated with Kr^{15+} heavy ions with an energy of 150 MeV and fluences of $10^{11} - 10^{16}$ ion/cm². In the course of evaluating structural changes depending on the irradiation fluence, it was found that at low irradiation fluences ($10^{11} - 10^{12}$ ion/cm²), the main role is played by deformation distortions of the crystal lattice, which have a pronounced anisotropic character, while at fluences above 10^{13} ion/cm², the main role is played by polymorphic transformations of the $t\text{-ZrO}_2 \rightarrow c\text{-ZrO}_2$ type, followed by amorphization of the damaged layer at fluences above 10^{15} ion/cm². It has been established that the anisotropic distortion of the crystal lattice is more pronounced along the crystallographic a axis, as well as the (011) texture orientation, which is characteristic of $t\text{-ZrO}_2$. The processes of polymorphic transformations $t\text{-ZrO}_2 \rightarrow c\text{-ZrO}_2$ occur at irradiation fluences of $10^{13} - 10^{14}$ ion/cm², which are characterized by the formation of an overlap of local areas of defects that appear along the trajectory of ions in the material. Dependences of changes in the strength and thermophysical properties of ZrO_2 ceramics on the irradiation fluence are obtained, and the mechanisms of the influence of structural disorder and polymorphic transformations on the decrease in strength and resistance to cracking are established.

Keywords: polymorphic transformations; radiation damage; zirconia; construction materials; embrittlement.

Введение

Проблема полиморфных превращений или фазовых трансформаций в диоксиде циркония (ZrO_2) известна достаточно давно и при этом является одним из сдерживающих факторов использования данного

типа керамик в условиях эксплуатации способных инициировать данные процессы [1]. Как правило, механизмы полиморфных превращений в диоксиде циркония происходят в результате механических воздействий большой нагрузки, тер-

мического нагрева или радиационных повреждений, вызванных облучением или процессами ядерных или трансмутационных реакций [2]. При этом данный эффект в большинстве случаев имеет необратимый характер, что следует учитывать при проектировании энергетических установок с использованием данного типа керамик в качестве конструкционных материалов. Сами процессы полиморфных превращений представляют собой изменения, связанные с перестройкой кристаллической решетки, а также фазовыми трансформациями, которые в свою очередь могут оказать влияние как на прочностные, так и теплофизические параметры керамик [3].

Также немаловажным вопросом в процессах полиморфных трансформаций в ZrO_2 керамиках при длительном радиационном воздействии является понимание природы механизмов, вызывающих данные изменения, а также дозовых зависимостей [4]. Причем, если в случае полиморфных трансформаций, вызванных механическим воздействием или термическим нагревом, сами процессы достаточно хорошо объяснены и подтверждены, то в случае подобных трансформаций, вызванных облучением, точная природа до конца не объяснена. Отсутствие единого понимания и объяснения данных трансформаций при радиационном воздействии обусловлено сложностями при интерпретации данных изменений, а также совокупностью эффектов и термического нагрева локальных областей, и деформационных искажений, возникающих при взаимодействии налетающих ионов с веществом. Двойственная природа взаимодействия налетающих ионов со структурой керамики, также в силу диэлектрических свойств керамик, может сопровождаться формированием областей с сильно деформированной кристаллической структурой, а также образованием анизотропии распределения электронной плотности [5].

Методика эксперимента

Исследование механизмов радиационных повреждений, вызванных облучением тяжелыми ионами и последующую эволюцию структурных изменений и полиморфных превращений при облучении, было проведено путем облучения исследуемых образцов тяжелыми ионами Kr^{15+} с энергией 150 МэВ.

Установление полиморфных превращений, а также дозовой динамики изменения структурных параметров было проведено с применением метода рентгеновской дифракции путем съемки рентгеновских дифрактограмм в геометрии Брегг-Брентано в угловом диапазоне $2\theta=20-90^\circ$.

Результаты и их обсуждение

Согласно данным, изменения соотношения кристаллической и аморфной фазы в составе керамик при увеличении флюенса, основные изменения происходят при флюенсах выше 10^{14} ион/см², для которых характерно формирование большого количества структурных дефектов в результате перекрытия дефектных областей. При этом стоит отметить, что при флюенсах облучения $10^{11} - 5 \times 10^{12}$ ион/см² изменение степени кристалличности не наблюдалось, что свидетельствует о том, что в случае формирования локально изолированных дефектных областей основные изменения интенсивностей дифракционных рефлексов связаны с деформационными процессами, а не с аморфизацией структуры. В случае флюенсов облучения $10^{13} - 10^{14}$ ион/см², характерных для полиморфных трансформаций $t-ZrO_2 \rightarrow c-ZrO_2$, наблюдается незначительное увеличение содержания аморфной фазы, что свидетельствует о том, что процессы полиморфных трансформаций сопровождаются образованием аморфноподобных включений или структурно разупорядоченных областей, формирование которых связано с процессами рекристаллизации и перестройки кристаллической решетки при деформации.

Характер деформации кристаллической структуры в керамиках играет весьма важную роль при оценке устойчивости материалов к внешним воздействиям, а также механизмов деструкции, вызванных облучением. В ходе проведенных экспериментов были получены результаты изменения объема кристаллической решетки для тетрагональной и кубической фаз ZrO_2 в зависимости от флюенса облучения тяжелыми ионами. Данные изменения характеризуют деформацию объема кристаллической решетки при накоплении радиационных повреждений.

Общий вид представленных данных изменения объема кристаллической решетки свидетельствует о процессах распухания, которые наиболее выражены при флюенсах выше 10^{13} ион/см². Причем, характер распухания тетрагональной и кубической решеток различен. При малых флюенсах облучения ($10^{11} - 10^{12}$ ион/см²) наблюдается распухание только тетрагональной решетки, в то время как объем кубической решетки остается неизменным, что свидетельствует о том, что основные деформационные и искажающие процессы происходят в тетрагональной решетке. Для флюенсов облучения $5 \times 10^{13} - 10^{14}$ ион/см², характерных для стадии полиморфных трансформаций, наблюдается резкое увеличение объема тетрагональной решетки, свидетельствующее о ее деформации, сопровождающееся трансформацией в кубическую фазу. При этом изменение объема кубической решетки для данных флюенсов составляет менее 1 %, что свидетельствует о высокой устойчивости кубической фазы к деформационным искажениям и деструкции при

накоплении радиационных повреждений. Дальнейшее увеличение флюенса облучения выше 10^{14} ион/см², которое приводит к образованию локально разупорядоченных или аморфных областей в структуре поврежденного слоя приводит к распуханию объема кристаллической решетки для кубической фазы, которое свидетельствует о снижении устойчивости керамики к радиационным повреждениям при их накоплении.

Данное исследование выполнено при финансовой поддержке Комитета науки Министерства науки и высшего образования Республики Казахстан (№ AP14871119).

Библиографические ссылки

1. Lu Fengyuan. Phase transformation of nanosized ZrO_2 upon thermal annealing and intense radiation. *The Journal of Physical Chemistry C* 2011; 115(15): 7193-7201.
2. Alin M. Study of the mechanisms of the $t-ZrO_2 \rightarrow c-ZrO_2$ type polymorphic transformations in ceramics as a result of irradiation with heavy Xe^{22+} ions." *Solid State Sciences* 2022; 123: 106791.
3. Ghyngazov S.A. Swift heavy ion induced phase transformations in partially stabilized ZrO_2 . *Radiation Physics and Chemistry* 2022; 192: 109917.
4. Kozlovskiy A.L., Alin M., Borgekov D.B. Study of Polymorphic Transformation Processes and Their Influence in Polycrystalline ZrO_2 Ceramics upon Irradiation with Heavy Ions. *Ceramics* 2023; 6(1): 686-706.
5. Kurakhmedov A.E. Study of the Effect of Doping ZrO_2 Ceramics with MgO to Increase the Resistance to Polymorphic Transformations under the Action of Irradiation. *Nanomaterials* 2021; 11(12): 3172.