



ӘӨЖ 29.01.29.

DOI: <https://doi.org/10.32523/2616-6836-2024-148-3-72-85>

Ғылыми мақала

Изучение кинетики структурной деградации приповерхностного слоя ZrO_2 керамик, подверженных низкоэнергетическому облучению ионами He^{2+}

Козловский А.Л. 

Институт ядерной физики МЭ РК, Алматы, Казахстан

(E-mail: kozlovskiy.a@inp.kz)

Аннотация. В работе рассмотрены эффекты накопления радиационных повреждений в приповерхностном слое ZrO_2 керамик, возникающих при высокодозном облучении низкоэнергетическими ионами He_2^+ , а также определение влияния температуры облучения на толщину поврежденного слоя в керамиках, изменение которой обусловлено эффектами диффузии ионов вглубь материала. Для определения эффектов радиационных повреждений, а также определения кинетики изменений в зависимости от вариации внешних факторов был использован метод рамановской пьезоспектроскопии боковых сколов керамик, что позволило получить данные изменений величин остаточных напряжений и FWHM вдоль траектории движения ионов в материале, а также на глубине, превышающей глубину проникновения ионов в материал. Согласно проведенным исследованиям, было установлено, что основной тип деформационных искажений, возникающих в результате облучения и, как следствие, накопления структурных изменений, вызванных облучением, связан с формированием в структуре остаточных механических напряжений растягивающего типа. При этом изменение условий облучения, в частности, увеличения температуры облучения приводит к возрастанию величин остаточных механических напряжений в структуре поврежденного слоя, а также наблюдается увеличение толщины поврежденного слоя, изменение которой обусловлено эффектами диффузии ионов вглубь материала мишени. Анализ изменений величины FWHM свидетельствует о том, что при малых флюенсах облучения (ниже 10^{17} ион/см²), основные изменения структурных особенностей поврежденного слоя обусловлены эффектами накопления структурных искажений в результате деформационных напряжений, в то время как при высокодозном облучении вклад в деструктивное разупорядочение поврежденного слоя оказывает формирование аморфноподобных включений, наличие которых связано с агломерацией гелия, а также формирования газонаполненных включений в поврежденном слое.

Ключевые слова: радиационно-стойкие керамики, структурные искажения, остаточные напряжения, деформация, разупорядочение, газонаполненные пузырьки, свеллинг.

Введение

Проблема свеллинга или образования газонаполненных включений в поврежденном слое при высокодозном облучении или в течение длительного времени эксплуатации керамик или конструкционных материалов в условиях повышенного радиационного фона или при их постоянном контактировании с теплоносителем является одной из наиболее важных проблем в определении потенциала и сроков эксплуатации материалов [1-3]. При этом в случае газового распухания, в особенности, связанного с накоплением гелия или водорода в структуре поврежденного слоя, следует учитывать природу данных газов, в частности, их высокую подвижность и возможность к образованию комплексных дефектов, представляющих собой $He+VO$, наличие которых может привести к их агломерации в пустотах, а в случае большой концентрации и увеличению объема данных заполненных пустот, что приводит к возникновению дополнительных структурных напряжений за счет изменений объемов газонаполненных полостей ввиду увеличения внутреннего давления в них [4, 5]. Также при высоких концентрациях гелия или водорода в приповерхностных слоях может произойти эффект детонационного вскрытия данных газонаполненных полостей, что, в свою очередь, приведет к частичному охрупчиванию и деструкции приповерхностного слоя, что весьма нежелательно и недопустимо при эксплуатации данных материалов в качестве конструкционных материалов в ядерной энергетике [6, 7]. В металлах данные эффекты достаточно хорошо изучены, а также определены основные факторы, оказывающие влияние на деградацию поврежденного слоя за счет агломерации и детонационного вскрытия данных полостей, приводящих к частичному отслаиванию поврежденного слоя и снижению прочностных параметров. В керамиках в силу определенных характеристик, отличающихся от металлов и сплавов, процессы газового распухания представляют достаточно большой интерес к изучению ввиду возможностей получения не только новых фундаментальных знаний о процессах накопления радиационных повреждений в высокопрочных материалах, но и определению потенциала использования данных материалов в качестве конструкционных материалов, способных эксплуатироваться в условиях повышенных радиационных фонов, а также высоких температур, без использования которых невозможно увеличение КПД выгорания ядерного топлива в реакторах нового поколения. Также следует отметить, что для керамических материалов, в особенности, диэлектрических керамик, возникающие эффекты ионизации при взаимодействии налетающих заряженных частиц с кристаллической структурой поврежденного слоя и приводящие в результате данных взаимодействий к изменению в распределении электронной плотности, в силу диэлектрической природы, имеют необратимый характер, что приводит к возникновению областей с измененной электронной плотностью [8-10]. Наличие подобных областей в структуре керамик может привести к инициализации процессов полиморфных трансформаций, которые достаточно хорошо изучены для ZrO_2 керамик при облучении их тяжелыми ионами, а также известны случаи взаимосвязи между изменением фазового состава керамик и процессами трекобразования в диэлектрических керамиках [11-15]. При этом для низкоэнергетического облучения

процессы ионизации равновероятны по вкладу с процессами атомных смещений, возникающих в результате соударений налетающих частиц с ядрами, что при больших дозах облучения может привести к формированию как структурных искажений, так и областей разупорядочения (аморфных включений), наличие которых в структуре приводит к ускоренной деградации приповерхностного слоя.

На основании вышесказанного, ключевой целью данной работы является изучение эффектов радиационно-индуцированного охрупчивания приповерхностного слоя ZrO_2 керамик, обусловленного совокупностью эффектов, связанных с диффузией имплантированных ионов, а также температурным расширением, обусловленным влиянием температуры нагрева образцов при облучении. В качестве основного метода оценки использовался метод измерения величины остаточных механических напряжений в приповерхностном слое керамик с применением рамановской пьезоспектроскопии, выполненной путем съемки спектров с бокового скола образцов вдоль траектории движения ионов в материале. Актуальность данного исследования заключается в расширении общих представлений механизмов накопления радиационных повреждений в тугоплавких керамиках, а также диффузионного расширения поврежденного слоя, изменение которого необходимо учитывать при определении потенциала использования данного типа керамик в качестве конструкционных материалов для ядерной энергетики.

Материалы и методы

В качестве объектов для проведения исследований были выбраны поликристаллические керамики на основе ZrO_2 с моноклинным типом кристаллической структуры, обладающие высокой степенью структурного упорядочения (более 95 %), а также хорошими показателями прочностных и теплофизических параметров. Выбор данного типа керамик в качестве объекта для исследований обусловлен совокупностью их физико-химических, прочностных и теплофизических параметров, а также хорошей совместимостью с другими типами материалов и химической инертностью, что делает возможным использование данного типа керамик в качестве основы для создания конструкционных материалов, используемых в экстремальных условиях, в том числе при повышенном радиационном фоне и высоких температурах. При этом следует отметить, что ZrO_2 керамики, в отличие от других типов керамик, обладают низким показателем коэффициента объемного термического расширения, что делает их кандидатными материалами при использовании в режимах постоянного воздействия высоких температур.

В качестве ионов для облучения были выбраны ионы He^{2+} с энергией 40 кэВ, выбор которых основан на возможности моделирования процессов деградации приповерхностного слоя, связанных с эффектом газового распухания, а также накопления продуктов ядерных реакций, характерных для режимов эксплуатации высокотемпературных реакторов. При этом в силу слабой растворимости и достаточно хорошей подвижности ионы гелия могут имплантироваться в структуру приповерхностного слоя, приводя к их агломерации в пустотах и полостях, а также

создавая дополнительные деформационные искажения кристаллической структуры за счет накопительного эффекта и объемного распухания поврежденного слоя. В свою очередь, облучение при высоких температурах, как правило, сопровождается объемным термическим расширением кристаллической структуры, способной также оказать негативное влияние на изменение свойств поврежденного слоя. При этом высокая подвижность ионов при высоких температурах может способствовать их диффузии вглубь образца, что приводит к увеличению толщины поврежденного слоя. Облучение образцов проводилось на ускорителе тяжелых ионов ДЦ-60, расположенного на базе Института ядерной физики МЭ РК (Астанинский филиал, Астана, Казахстан). Образцы были облучены флюенсами в диапазоне от 10^{15} до 5×10^{17} ион/см² при различных температурах, диапазон которых варьировался от 300 К до 1000 К. Температура облучения контролировалась путем размещения образцов на специальном керамическом нагревателе, использование которого позволяет достигнуть заданной температуры и поддерживать ее в течение всего облучения. Контроль за температурой облучения проводился с использованием термопар, размещенных на нагревателе и образце. Выбор флюенсов облучения обусловлен возможностями моделирования процессов глубокого перекрытия структурах дефектов в поврежденном слое, а также возникновению эффекта агломерации, что позволяет оценить кинетику деградации приповерхностного слоя [16, 17]. Выбор режимов температур облучения был основан на возможностях моделирования процессов деструкции приповерхностного слоя в условиях, максимально приближенных к реальным.

Определение остаточных механических напряжений в структуре поврежденного слоя проводилось путем съемки рамановских спектров вдоль траектории движения ионов керамики на глубине порядка 1 мкм, что позволило оценить структурные изменения как в поврежденном слое, так и на глубине, превышающей глубину пробега ионов He^{2+} в керамиках, величина которой составляет порядка 400-450 нм. Измерения проводились с шагом 100 нм от начала поверхности, что позволило установить толщину поврежденного слоя, а также определить ее увеличение в зависимости от совокупности различных факторов, в том числе изменений флюенса облучения и температуры облучения. Для вычисления величины остаточных механических напряжений использовалась формула (1) [14]:

$$\Delta\omega = P_u \times \overline{\sigma}_u, \quad (1)$$

где $\Delta\omega = \omega_{irr} - \omega_0$ – смещение моды рамановского спектра облученных образцов относительно исходного (необлученного); P_u – пьезоспектроскопический коэффициент, значение которого было рассчитано на основе зависимостей $\Delta\omega/dpa$, $\overline{\sigma}_u$ – величина остаточных напряжений. Определение величины остаточных механических напряжений проводилось для моды при 259 см^{-1} , характеризующей изменение химических связей Zr – OII в структуре керамик и имеющей наибольшую интенсивность линии (см. данные, представленные на рисунке 1).

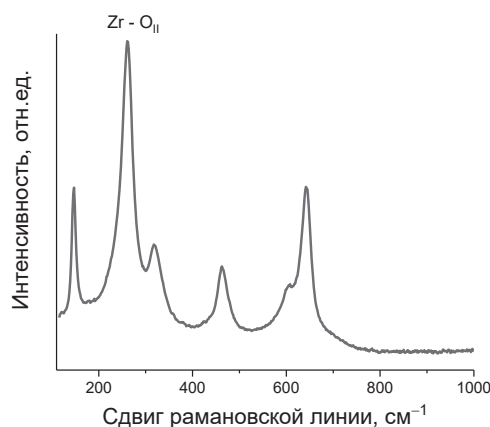


Рисунок 1. Рамановский спектр ZrO_2 керамик с моноклинным типом кристаллической решетки в исходном (необлученном) состоянии

Оценка наличия аморфных включений в поврежденном слое, а также изменений глубины аморфизации, обусловленной структурным разупорядочением, была проведена путем сравнительного анализа изменений величины FWHM спектральной линии при 259 см^{-1} . Гипотеза, лежащая в основе определения аморфных включений в поврежденном слое, заключается в том, что изменение величины FWHM, свидетельствующая об изменении формы спектральной линии, в случае ее увеличения характеризует потерю структурного порядка, связанного как с разупорядочением, так и разрывом химических и кристаллических связей. Следует также отметить, в случае изменений формы спектральных линий без изменений величины FWHM обусловлены накоплением структурных деформаций без инициализации формирования аморфных включений в поврежденном слое. В данном случае сравнительный анализ изменения формы, интенсивности, а также смещения спектральных линий рамановских спектров позволяет с высокой точностью определить вклад различных типов структурных изменений в деградацию поврежденного слоя керамик.

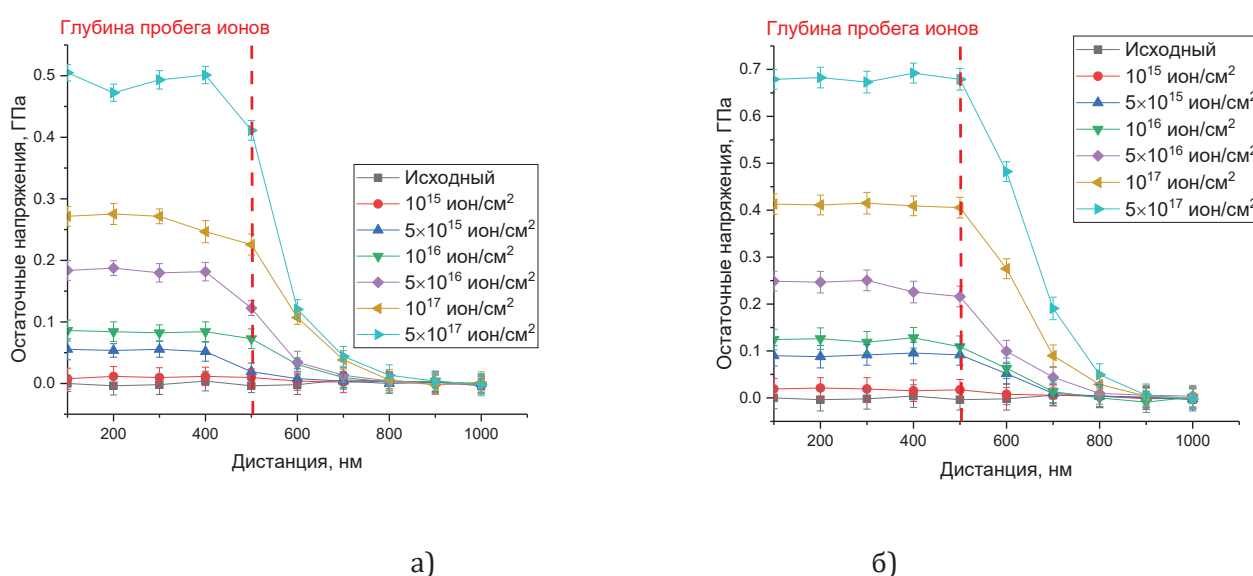
Результаты и обсуждение

Изучение кинетики радиационных повреждений, в особенности, в малых приповерхностных слоях является одной из ключевых проблем в современном материаловедении, связанном с оценкой перспектив использования новых типов керамик в качестве материалов, подвергающихся воздействию высокодозного облучения. При этом в отличие от тяжелых высокоэнергетических ионов, а также нейтронов, обладающих достаточно большой глубиной пробега, воздействие низкоэнергетических ионов происходит на глубинах приповерхностного слоя порядка 300-500 нм, что не всегда поддается оценке традиционными методами исследования, включая рентгеновскую дифракцию или визуальные методы оценки. В данном случае основные структурные изменения, происходящие с материалами, достаточно плохо регистрируются стандартными методами, что приводит к необходимости поиска новых способов их регистрации и идентификации. Также следует отметить, что эффектов

полиморфных трансформаций при низкоэнергетическом облучении ионами He^{2+} в структуре поврежденного слоя не наблюдалось, что может быть объяснено тем, что для инициализации данных процессов, величины ионизационных потерь налетающих ионов должны быть более 20 кэВ/нм [11-13], что значительно выше величин ионизационных потерь низкоэнергетических ионов He^{2+} .

В свою очередь, изучение деградации приповерхностного слоя керамик может помочь в прогнозировании потенциальных условий использования данных материалов в ядерно-энергетических установках, а также определить кинетику изменений приповерхностного слоя, который наиболее часто контактирует с другими поверхностями, а также теплоносителем, что позволит установить критические режимы эксплуатации, исключая эффекты деструкции приповерхностного слоя за счет процессов набухания и охрупчивания. Наиболее перспективным методом для оценки кинетики структурных изменений на малых слоях является метод рамановской пьезоспектроскопии, использование которого позволяет определить тип структурных изменений, которые могут быть обусловлены накоплением структурных искажений в результате накопления деформационных напряжений или частичной аморфизацией, связанной с сильным разупорядочением кристаллической структуры, обусловленной различными факторами, в том числе и образованием газонаполненных включений.

На рисунке 2 приведены результаты оценки величины остаточных механических напряжений, полученные с применением метода рамановской пьезоспектроскопии, отражающие деформационное искажение структуры, а также его кинетику изменений в случае увеличения флюенса облучения и температуры. Данные представлены в виде зависимостей величины σ_r , рассчитанной с использованием формулы (1) на различной глубине образца (измерения проводились вдоль бокового скола с поверхности), отражающие накопление структурных искажений растягивающего типа.



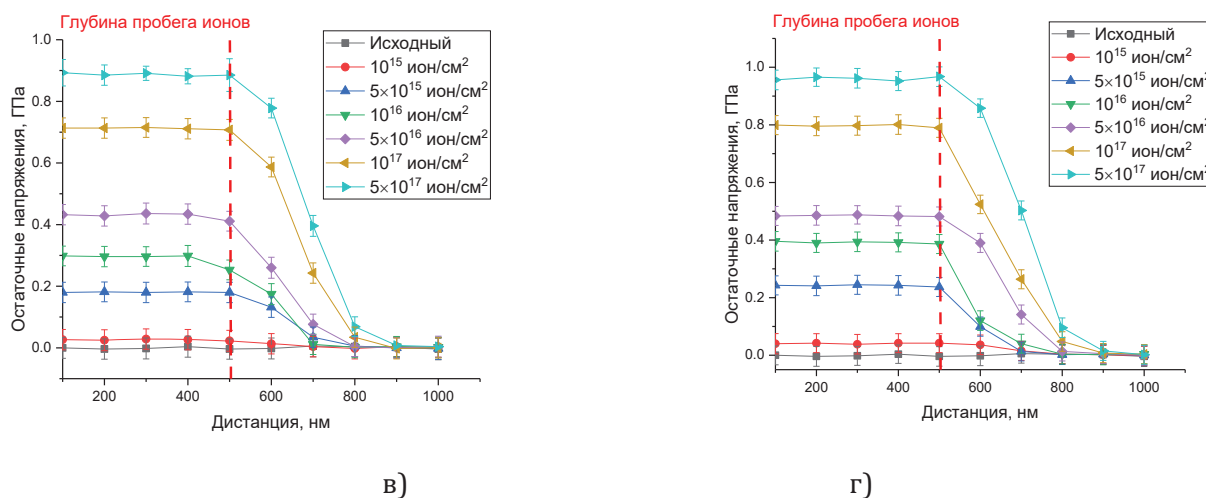


Рисунок 2. Динамика изменений величин остаточных механических напряжений вдоль траектории движения ионов He^{2+} в поврежденном слое на различной глубине, отражающей диффузионные процессы, связанные с проникновением ионов He^{2+} вглубь материала за счет совокупности различных факторов: а) данные при температуре 300 К; б) данные при температуре 500 К; в) данные при температуре 700 К; г) данные при температуре 1000 К (пунктирной красной линией на графиках отражена граница максимальной глубины пробега ионов He^{2+} в керамиках).

Анализ наблюдаемых изменений величины остаточных механических напряжений в зависимости от вариации условий облучения (в случае увеличения флюенса облучения и температуры) показал тренды на увеличение остаточных механических напряжений в структуре поврежденного слоя, а сам характер изменений данной величины свидетельствует о растягивающем характере данных напряжений, формирование которых обусловлено структурными искажениями, вызванными облучением. Наблюдаемые структурные изменения в данном случае обусловлены совокупностью ионизационных и атермических процессов, возникающих в результате взаимодействия налетающих ионов с кристаллической структурой керамики, а также трансформацией переданной кинетической энергии ионов в тепловую, что приводит к образованию структурно-деформированных включений, искажение которых приводит к деструкции поврежденного слоя. При рассмотрении представленных зависимостей изменения величины $\overline{\sigma}_u$ в случае увеличения флюенса облучения можно сделать вывод о том, что при малых флюенсах облучения (10^{15} - 10^{16} ион/см²) изменения величины $\overline{\sigma}_u$ минимальны, что свидетельствует о том, что при данных флюенсах облучения происходит накопление структурных повреждений, а сами керамики проявляют достаточно высокую сопротивляемость к деструкции, вызванной взаимодействием налетающих ионов с поврежденным слоем. При флюенсах облучения выше 5×10^{16} ион/см² наблюдается увеличение изменений величины $\overline{\sigma}_u$, свидетельствующее о более выраженных структурных деформациях в поврежденном слое, связанных с эффектами

формирования кластерных дефектов типа He-VO, наличие которых фиксируется изменениями спектральных линий (искажением их формы, а также увеличением фонового излучения, свидетельствующего о формировании кластерных дефектов и областей разупорядочения). Согласно полученным данным, формирование кластерных дефектов наблюдается при больших флюенсах облучения, при которых концентрация имплантированных ионов достаточно высока, а также накопленные структурные искажения приводят к формированию достаточного количества кислородных вакансий в структуре поврежденного слоя, что создает все условия для образования кластеров. В данном случае формирование кластерных дефектов приводит к росту механических напряжений в структуре, что приводит к более выраженной деформации кристаллической решетки, а также возможному разрыву кристаллических и химических связей.

Изменение температуры облучения, как видно из представленных данных, приводит к увеличению величины остаточных напряжений не только в сравнении значений при одном и том же флюенсе облучения (см. данные на рисунке 3а), но и увеличению толщины поврежденного слоя, в котором величина значений остаточных механических напряжений выше исходных значений (см. данные на рисунке 3б). Общий вид полученных зависимостей изменения величины $\overline{\sigma}_u$ от флюенса облучения при вариации температуры облучения свидетельствует о негативном воздействии температурного нагрева образцов в процессе облучения на разупорядочение приповерхностного слоя, а также его увеличения, обусловленного термическими эффектами, связанными со структурным разупорядочением за счет термического расширения и увеличения скорости подвижности точечных и вакансионных дефектов в структуре поврежденного слоя за счет тепловых воздействий. Согласно представленным данным, было установлено, что увеличение температуры облучения приводит к явно выраженному проявлению увеличения толщины поврежденного слоя, которое проявляется при флюенсах облучения 10^{16} - 10^{17} ион/см² и имеет несколько сдерживающий тренд при высокодозном облучении 5×10^{17} ион/см², изменение которого может быть объяснено факторами частичной аморфизации за счет образования кластерных дефектов типа He – VO в структуре поврежденного слоя при формировании большого количества кислородных вакансий, обусловленного термическим воздействием, а также накоплением деформационных искажений кристаллической структуры, приводящих к образованию свободных VO. В данном случае увеличение температуры облучения приводит к увеличению амплитуды колебаний кристаллической решетки, что увеличивает подвижность структурных дефектов, а также их диффузии вглубь образца и на поверхность, что приводит к увеличению толщины поврежденного слоя, изменение которого наглядно продемонстрированы на рисунке 3б. Следует отметить, что в случае облучения флюенсом 5×10^{17} ион/см² рост величины остаточных механических напряжений в структурах поврежденного слоя составляет более чем 1.5-2 кратное изменение в сравнении со значениями, полученными для температуры облучения 300 К. При этом толщина поврежденного слоя, на которой фиксируются значимые изменения величины $\overline{\sigma}_u$ при данном флюенсе, увеличивается с 680-700 нм до 800-850 нм с увеличением температуры, из чего можно сделать вывод о влиянии температурного воздействия на скорость диффузии дефектов вглубь образцов. Также следует отметить, что изменение величины толщины поврежденного слоя при

изменении флюенса облучения свидетельствует о накопительном эффекте структурных искажений, которые проявляются не только в разупорядочении поврежденного слоя, но и увеличении его толщины за счет диффузионных процессов.

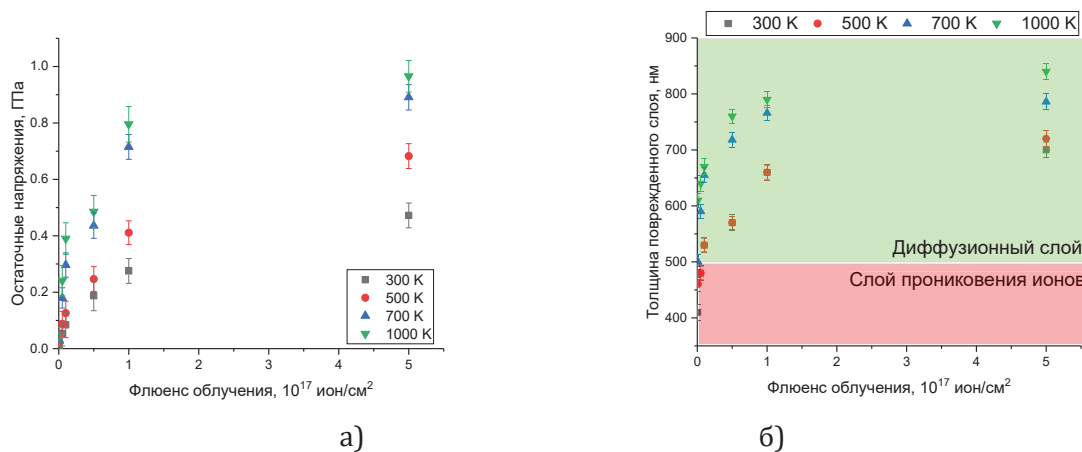
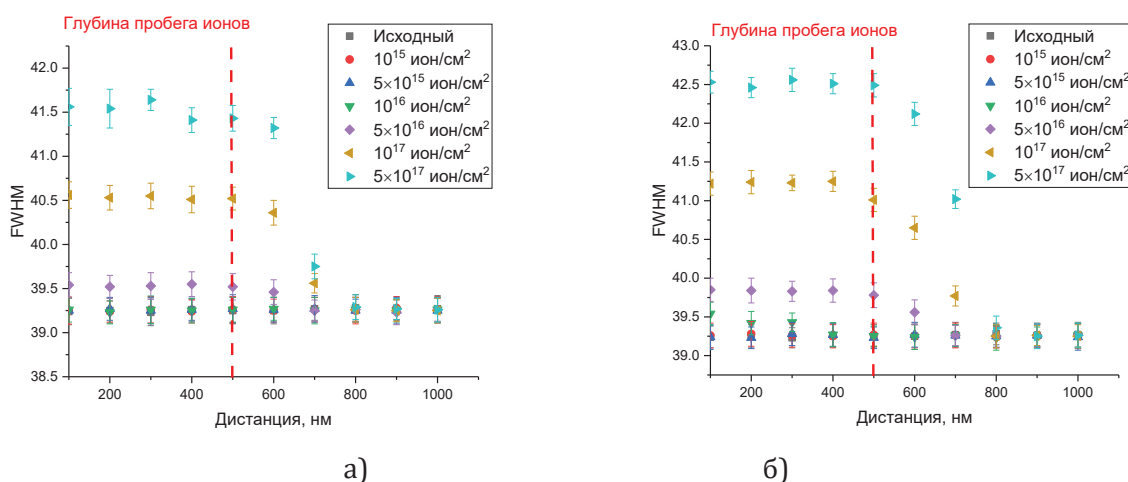


Рисунок 3. а) Результаты сравнительного анализа изменения величины остаточных механических напряжений в поврежденном слое в зависимости от флюенса и температуры облучения; б) Результаты оценки толщины поврежденного слоя в керамиках в зависимости от условий облучения (красной областью выделена область, характерная для максимальной глубины пробега ионов в керамиках, зеленая область отражает диффузионный слой в керамиках с зарегистрированными изменениями структурных повреждений)

На рисунке 4а-г приведены результаты изменения величины FWHM в зависимости от глубины образца при вариации флюенса облучения, а также температуры, при которой происходит облучение. Общий тренд изменений данной величины свидетельствует о формировании структурно-разупорядоченных областей, не имеющих ближнего порядка кристаллической решетки, наличие которых свидетельствует об инициализации процессов частичной аморфизации поврежденного слоя.



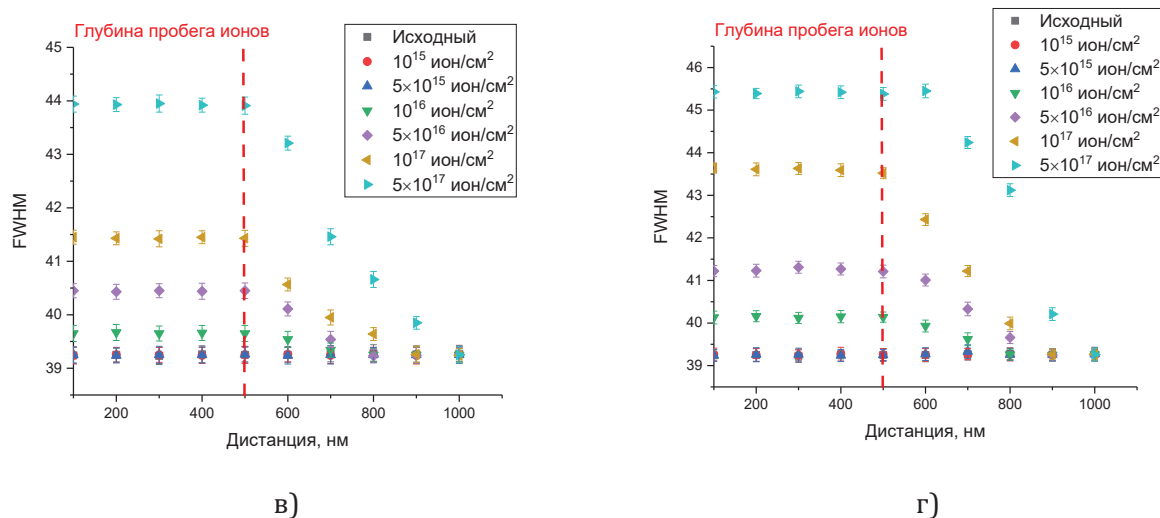


Рисунок 4. Результаты оценки изменения величины FWHM, отражающие эффект аморфизации приповерхностного слоя керамик при накоплении структурных искажений и деформаций: а) данные при температуре 300 К; б) данные при температуре 500 К; в) данные при температуре 700 К; г) данные при температуре 1000 К (пунктирной красной линией на графиках отражена граница максимальной глубины пробега ионов He^{2+} в керамиках)

Согласно представленным данным, наиболее значимые изменения величины FWHM происходят при флюенсах выше 5×10^{16} ион/см², при которых наблюдается увеличение FWHM, свидетельствующее о формировании областей разупорядочения, накопление которых приводит к частичной аморфизации поврежденного слоя [14]. При этом следует отметить, что увеличение температуры облучения приводит к росту величины FWHM, а также увеличению толщины поврежденного слоя, что свидетельствует о том, что процессы аморфизации имеют явно выраженную зависимость от температурных факторов, изменение которых приводит к более интенсивным процессам агломерации образования кластерных дефектов, оказывающих негативное воздействие на степень структурного упорядочения.

Таким образом, анализируя наблюдаемые изменения величины FWHM, можно сделать вывод о том, что процессы структурного разупорядочения имеют явно выраженную зависимость как от флюенса облучения, так и от температуры облучения. В случае малых флюенсов облучения основные изменения кристаллической структуры поврежденного слоя обусловлены эффектами накопления деформационных искажений за счет возникновения остаточных механических напряжений в результате взаимодействия налетающих ионов с кристаллической решеткой. При этом в случае высокодозного облучения происходит процесс формирования кластерных дефектов типа He – VO, увеличение концентрации которых приводит к частичной аморфизации кристаллической структуры. При этом увеличение температуры облучения в данном случае приводит к ускорению процессов аморфизации, а также увеличению толщины поврежденного слоя.

Заключение

Анализируя полученные зависимости изменений величин остаточных механических напряжений и FWHM, полученных на основе измеренных рамановских спектров, можно сделать вывод о достаточно хорошей перспективности использования данного метода для определения повреждений в малых приповерхностных слоях, вызванных ионным облучением. При этом характер наблюдаемых изменений позволил установить не только тип структурных искажений, но и кинетику изменений, связанных с накоплением структурных повреждений, их агломерацией и образованием кластерных дефектов в структуре, накопление которых приводит к частичной аморфизации поврежденного слоя.

В ходе проведенных измерений величин остаточных напряжений в поврежденном слое в зависимости от вариации условий облучения было установлено, что увеличение температуры облучения при одних и тех же значениях флюенса приводит к росту величины остаточных механических напряжений, изменение которых в данном случае обусловлено термическими эффектами, связанными с термическим расширением кристаллической структуры керамик. Оценивая наблюдаемые изменения толщины поврежденного слоя керамик при изменении условий облучения, можно сделать вывод о том, что в случае высокотемпературного облучения необходимо учитывать диффузионные эффекты, связанные с миграцией имплантированных ионов и связанных с ними кластеров на глубину гораздо большую, чем глубина пробега ионов в керамиках. Данные эффекты, имеющие явно выраженную зависимость от температуры, обусловлены эффектами термического расширения кристаллической структуры, которые возникают при высоких температурах облучения, а в случае высокодозного облучения приводят к ускорению процессов диффузии дефектов вглубь образца, тем самым увеличивая толщину деформированного приповерхностного слоя.

Полученные зависимости изменения структурных особенностей поврежденного слоя при вариации условий облучения (температуры облучения) и флюенса облучения в дальнейшем могут быть использованы при определении потенциала условий эксплуатации данных керамик в условиях повышенного радиационного фона. Основываясь на полученных результатах, можно сделать вывод о том, что данный тип керамик может рассматриваться в качестве материалов инертных матриц дисперсного ядерного топлива, ввиду высокой радиационной стойкости и низкого теплового расширения, что позволяет использовать их в экстремальных условиях.

Работа выполнена в рамках программно-целевого финансирования BR20280986 «Комплексные фундаментальные исследования по ядерной и радиационной физике, физике высоких энергий и космических лучей для атомной энергии» при поддержке Комитета науки Министерства науки и высшего образования Республики Казахстан.

Список литературы

1. Ye, F. J., Zhu, T., Song, Y. M., Wang, Q. Q., Zhang, P., Kuang, P., Cao, X. Z. Helium irradiation-induced swelling resistance of heterogeneous nanoparticles in an iron-based multi-principal element alloy. *Journal of Alloys and Compounds*, (2023). 939, 168643.
2. Li, C., Lei, G., Zhu, Z., & Huang, H. Effects of Y_2O_3 nanoparticles/Ni matrix interface on the mechanical properties and helium swelling resistance in NiMoCr- Y_2O_3 alloys. *Journal of Nuclear Materials*, (2024). 589, 154854.
3. Sugimoto, Y., Miyamoto, M., Kim, J. H., Hwang, T., & Nakamichi, M. Helium swelling behavior for neutron multipliers after irradiation with He ions at high temperatures. *Nuclear Materials and Energy*, (2024). 38, 101584.
4. Jin, H., Zhang, S., Zheng, J., Zhang, J., Miao, H., & Cao, L. Machine Learning-Based Prediction of Irradiation-Induced Swelling from Synergistic Effects of Helium and Hydrogen. *Fusion Science and Technology*, (2024). 80(5), 682-694.
5. Cao, Z., Ding, Y., Li, Y., Wu, L., Wu, X., & Ran, G. Helium bubble evolution in Zr alloys: Effects of sinks and temperature. *Journal of Nuclear Materials*, (2024). 600, 155270.
6. Sugimoto, Y., Hara, K., Haruta, M., Kurata, H., Kim, J. H., Hwang, T., Miyamoto, M. Effect of the internal pressure of helium bubbles on the morphology and mobility of beryllium. *Fusion Engineering and Design*, (2023). 191, 113720.
7. Ping-Ping, L., Qi-Cong, W., Yu-Mei, J., Han, W. T., Xiao-Ou, Y., Zhan, Q., & Wan, F. R. Blistering Behavior of Beryllium and Beryllium Alloy under High-Dose Helium Ion Irradiation. *Materials*, (2024). 17(16), 3997.
8. Su, R., Shi, L., Perepezko, J. H., & Zhang, H. Helium-driven element depletion and phase transformation in irradiated Ti_3SiC_2 at high temperature. *Journal of the European Ceramic Society*, (2023). 43(8), 3104-3111.
9. Liu, M., Yan, Y., Zhu, Z., Liu, R., Ye, L., Zhou, H., & Huang, H. Microstructural evolution, swelling and hardening of CVD-SiC induced by He ions irradiation at 650° C. *Ceramics International*, (2023). 49(2), 1880-1887.
10. Zhu, Y., Chai, J., Shen, T., Niu, L., Liu, Y., Jin, P., Wang, Z. Helium irradiation induced microstructural damages and mechanical response of Al_2O_3 - ZrO_2 -SiC composites. *Journal of the European Ceramic Society*, (2023). 43(8), 3475-3485.
11. Kozlovskiy, A. L., Konuhova, M., Borgekov, D. B., & Popov, A. I. Study of irradiation temperature effect on radiation-induced polymorphic transformation mechanisms in ZrO_2 ceramics. *Optical Materials*, (2024). 115994.
12. Ghyngazov, S. A., Boltueva, V. A., O'Connell, J. H., Vershinina, T. N., Kirilkin, N. S., Rymzhanov, R. A., Surzhikov, A. P. Swift heavy ion induced phase transformations in partially stabilized ZrO_2 . *Radiation Physics and Chemistry*, (2022). 192, 109917.
13. Balogh, A. G. Irradiation induced defect formation and phase transition in nanostructured ZrO_2 . *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, (2012). 282, 48-58.
14. Zhumazhanova, A., Mutali, A., Ibrayeva, A., Skuratov, V., Dauletbekova, A., Korneeva, E., Zdorovets, M. Raman study of polycrystalline Si_3N_4 irradiated with swift heavy ions. *Crystals*, (2021). 11(11), 1313.
15. van Vuuren, A. J., Ibrayeva, A. D., Skuratov, V. A., Zdorovets, M. V. Analysis of the microstructural evolution of silicon nitride irradiated with swift Xe ions. *Ceramics International*, (2020). 46(6), 7155-7160.
16. Uglov, V. V., Ivanov, I. A., Zlotski, S. V., Stepanjuk, N. A., Ryskulov, A. E., Jin, K. Composition and Structure of fcc-Structured High-Entropy Alloys Irradiated with Helium Ions. *Journal of Surface Investigation: X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques*, (2023). 17(2), 494-499.

17. Uglov, V. V., Abadias, G., Zlotski, S. V., Saladukhin, I. A., & Cherenda, N. N. Surface blistering in ZrSiN nanocomposite films irradiated with He ions. *Surface and coatings technology*, (2020). 394, 125654.

Kozlovskiy A.L.

Institute of Nuclear Physics of the Ministry of Energy of the Republic of Kazakhstan, Almaty, Kazakhstan

Study of the structural degradation kinetics of the near-surface layer of ZrO₂ ceramics exposed to low-energy He²⁺ ion irradiation

Abstract. This work considers the effects of radiation damage accumulation in the near-surface layer of ZrO₂ ceramics arising under high-dose irradiation with low-energy He²⁺ ions. Additionally, it determines the influence of irradiation temperature on the thickness of the damaged layer in ceramics, the change of which is caused by the effects of ion diffusion into the depth of the material. To determine the effects of radiation damage, and to determine the kinetics of changes depending on the variation of external factors, the method of Raman piezospectroscopy of lateral chips of ceramics was used. This enabled the acquisition of data pertaining to changes in the values of residual stresses and FWHM along the trajectory of ion movement in the material, as well as at a depth exceeding the depth of ion penetration into the material. According to the conducted studies, it was established that the main type of deformation distortions arising as a result of irradiation and, as a consequence, the accumulation of structural changes caused by irradiation, is associated with the formation of residual mechanical tensile stresses in the structure. Moreover, a change in the irradiation conditions, in particular, an increase in the irradiation temperature, leads to an increase in the values of residual mechanical stresses in the structure of the damaged layer, and an increase in the thickness of the damaged layer is also observed, the change of which is due to the effects of ion diffusion deep into the target material. Analysis of alterations in the FWHM value indicates that at low irradiation fluences (below 10¹⁷ ion/cm²), the main changes in the structural features of the damaged layer are due to the effects of accumulation of structural distortions as a result of deformation stresses, while at high-dose irradiation, the formation of amorphous-like inclusions, the presence of which is associated with helium agglomeration, as well as the formation of gas-filled inclusions in the damaged layer, contribute to the destructive disordering of the damaged layer.

Key words: radiation-resistant ceramics, structural distortions, residual stresses, deformation, disordering, gas-filled bubbles, swelling

Козловский А.Л.

ҚР ЭМ Ядролық физика институты, Алматы, Қазақстан

Төмен энергиялы He²⁺ ионды сәулелену геушыраған ZrO₂ керамикасының беткі қабатының құрылымдық деградация кинетикасын зерттеу

Аңдатпа. Жұмыста төмен энергиялы He²⁺ иондарымен жоғары дозалы сәулелену кезінде пайда болатын ZrO₂ керамикаларының беткі қабатында радиациялық зақымданулардың жинақталуының әсері, сондай-ақ сәулелену температурасының керамикадағы зақымдалған қабаттың қалыңдығына әсерін анықтау қарастырылады, оның өзгеруі материалға иондардың

диффузиялық әсеріне байланысты. Радиациялық зақымданудың әсерін және сыртқы факторлардың өзгеруіне байланысты өзгеру кинетикасын анықтау үшін керамиканың бүйірлік жарықшақтарын Раман пьезоспектроскопиясы әдісі қолданылды, бұл қалдық кернеулер мен FWHM шамаларының өзгеру деректерін материалдағы иондардың қозғалыс траекториясы бойымен, сондай-ақ материалға иондардың ену тереңдігінен асатын тереңдікте алуға мүмкіндік берді. Жүргізілген зерттеулерге сәйкес, сәулелену нәтижесінде пайда болатын деформациялық бұрмаланулардың негізгі түрі және нәтижесінде сәулеленуден туындаған құрылымдық өзгерістердің жинақталуы құрылымдағы созылу түріндегі қалдық механикалық кернеулердің пайда болуымен байланысты екендігі анықталды. Сонымен қатар, сәулелену жағдайларының өзгеруі, атап айтқанда, сәулелену температурасының жоғарылауы зақымдалған қабаттың құрылымындағы қалдық механикалық кернеулердің жоғарылауына әкеледі, сонымен қатар зақымдалған қабаттың қалыңдығының жоғарылауы байқалады, оның өзгеруі иондардың мақсатты материалға терең диффузиясының әсерінен болады. FWHM шамасының өзгеруін талдау көрсеткендей, төмен сәулелену флюенстерінде (10^{17} ион/см²-ден төмен) зақымдалған қабаттың құрылымдық ерекшеліктерінің негізгі өзгерістері деформациялық кернеулер нәтижесінде құрылымдық бұрмаланулардың жинақталуының әсерінен болады, ал жоғары дозалы сәулелену кезінде зақымдалған қабаттың деструктивті бұзылуына ықпал ететін аморфты қосындылардың пайда болуы, олардың болуы гелий агломерациясымен, сондай-ақ зақымдалған қабатта газ толтырылған қосындылардың пайда болуымен байланысты.

Түйін сөздер: радиацияға төзімді керамика, құрылымдық бұрмаланулар, қалдық кернеулер, деформация, тәртіпсіздік, газ толтырылған көпіршіктер, ісіну

Сведения об авторах:

Козловский Артем – автор для корреспонденции, доктор PhD, заведующий лабораторией физики твердого тела Астанинский филиал Института ядерной физики МЭ РК (Алматы, Казахстан). E-mail: kozlovskiy.a@inp.kz

Information about authors:

Kozlovskiy Artem – corresponding author, PhD, Head of the Laboratory of Solid State Physics, Astana Branch of the Institute of Nuclear Physics of the Ministry of Energy of the Republic of Kazakhstan (Almaty, Kazakhstan). E-mail: kozlovskiy.a@inp.kz

Авторлар туралы мәліметтер:

Козловский Артем – корреспондент-автор, PhD докторы, Қазақстан Республикасы Энергетика министрлігі Ядролық физика институтының Астана қаласындағы филиалық атты дене физикасы зертханасының меңгерушісі (Алматы, Қазақстан). E-mail: kozlovskiy.a@inp.kz



Copyright: © 2024 by the authors. Submitted for possible open access publication under the terms and conditions of the Creative Commons Attribution (CC BY NC) license (<https://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/>).