

## ЛАТЕНТНЫЕ ТРЕКИ БЫСТРЫХ ТЯЖЕЛЫХ ИОНОВ В НАНОКРИСТАЛЛИЧЕСКОМ $Y_4Al_2O_9$

А.К. Мутали<sup>1), 2), 3)</sup>, А.Д. Ибраева<sup>2), 3)</sup>, В.А. Скуратов<sup>3)</sup>, А.С. Сохацкий<sup>3)</sup>, Е. Корнеева<sup>3)</sup>,  
Р.А. Рымжанов<sup>2), 3)</sup>, А. Янсе ван Вуурен<sup>4)</sup>, Ж.Г. О'Коннелл<sup>4)</sup>, М.В. Здоровец<sup>1), 2)</sup>

<sup>1)</sup>Евразийский национальный университет им. Л.Н. Гумилева,  
010000 Нур-Султан, Казахстан, mutali@jinr.ru

<sup>2)</sup>Астанинский филиал Института ядерной физики, 010008 Нур-Султан, Казахстан,  
a.d.ibrayeva@gmail.com, rymzhanov@jinr.ru, mzdorovets@gmail.com

<sup>3)</sup>Лаборатория ядерных реакций им. Г.Н. Флерова Объединенного института ядерных  
исследований, 141980 Дубна, Россия, skuratov@jinr.ru, sohatsky@jinr.ru, ekorneeva@jinr.ru

<sup>4)</sup>Центр ВР ПЭМ, Университет Нельсона Манделы, Порт Элизабет, Южная Африка,  
arnojv@gmail.com, jacques.oconnell@gmail.com

В работе представлены результаты исследования структурных изменений алюмоиттриевого оксида  $Y_4Al_2O_9$  (YAM), облученного в режиме одиночных треков ионами Bi и Xe в широком диапазоне удельных ионизационных потерь энергии, полученные с помощью просвечивающей и сканирующей просвечивающей электронной микроскопии высокого разрешения (С/ПЭМ). Установлено, что результатом воздействия высокоэнергетических тяжелых ионов является образование аморфных латентных треков, диаметр которых увеличивается с ростом потерь энергии на электронное торможение. На основе анализа зависимости размера треков от уровня ионизационных потерь энергии определено пороговое значение для образования треков в нанокристаллическом YAM, составляющее  $S_{et} \sim 7-8$  кэВ/нм.

**Ключевые слова:**  $Y_4Al_2O_9$ ; YAM; ПЭМ; быстрые тяжелые ионы; латентные треки; нанокристаллический.

## SWIFT HEAVY ION IRRADIATION INDUCED LATENT TRACKS IN NANOCRYSTALLINE $Y_4Al_2O_9$

А.К. Mutali<sup>1), 2), 3)</sup>, A.D. Ibrayeva<sup>2), 3)</sup>, V.A. Skuratov<sup>3)</sup>, A.S. Sohatsky<sup>3)</sup>, E. Korneeva<sup>3)</sup>,  
R.A. Rymzhanov<sup>2), 3)</sup>, A. Janse van Vuuren<sup>4)</sup>, J.H. O'Connell<sup>4)</sup>, M.V. Zdorovets<sup>1), 2)</sup>

<sup>1)</sup>L.N. Gumilyov Eurasian National University, 010000 Nur-Sultan, Kazakhstan, mutali@jinr.ru

<sup>2)</sup>Astana branch of the Institute of Nuclear Physics, 010008 Nur-Sultan, Kazakhstan,  
a.d.ibrayeva@gmail.com, rymzhanov@jinr.ru, mzdorovets@gmail.com

<sup>3)</sup>G.N. Flerov Laboratory of Nuclear Reactions of Joint Institute for Nuclear Research,  
141980 Dubna, Russia, skuratov@jinr.ru, sohatsky@jinr.ru, ekorneeva@jinr.ru

<sup>4)</sup>Centre for HRTEM, Nelson Mandela Metropolitan University, 77000 Port Elizabeth,  
South Africa, arnojv@gmail.com, jacques.oconnell@gmail.com

This work is aimed to study the swift heavy ion induced structural changes in nanostructured monoclinic yttrium aluminum oxide  $Y_4Al_2O_9$  (YAM) using high-resolution scanning/transmission electron microscopy (S/TEM). YAM with monoclinic crystallographic structure and space group  $P2_1/c$  (No. 14) is one of three crystalline phases in the Y-Al-O system and has a unique combination of high melting point (2020 °C), low density (4.44 g/cm<sup>3</sup>), low high-temperature thermal conductivity (the minimum thermal conductivity is 1.13 W·m<sup>-1</sup>·K<sup>-1</sup>) and relative low Young's modulus (191 GPa), which endure it as a candidate material for an inert matrix fuel hosts. YAM samples were irradiated with Bi and Xe ions having energies ranging from 156 to 714 MeV and electronic stopping powers - from 5 to 35 keV/nm at the IC-100 and U-400 FLNR JINR cyclotrons and the DC-60 cyclotron at the IRC INP. The ion fluence corresponding to the "individual tracks" regime was  $5 \times 10^{11}$  cm<sup>-2</sup>. S/TEM structural examinations showed that swift heavy ion induced latent tracks in YAM particles are continuous and amorphous. Ion track sizes larger than expected at the smallest energy loss for Xe ions and smaller track diameters at the highest energy loss for Bi ions are associated with the so-called "velocity effect". It is suggested that the complexity of the crystal structure plays a significant role in formation of ion tracks in this material. The threshold value of electron stopping power for track formation in nanocrystalline YAM was found to be equal  $S_{et} \sim 7-8$  keV/nm.

**Keywords:**  $Y_4Al_2O_9$ ; YAM; TEM; swift heavy ions; latent tracks; nanocrystals; radiation defects.

## Введение

В последние годы, радиационная стойкость соединений Y-Al-O привлекает значительное внимание. В частности, это связано с тем, что эти материалы входят в состав наночастиц в некоторых дисперсно-упрочненных оксидами сплавах. Стабильность таких частиц к различным видам излучения, включая ионы высоких энергий, имеет большое практическое значение. Для данного вида радиационного воздействия характерно образование специфических радиационных повреждений - латентных треков, которые представляют собой протяженные разупорядоченные области вдоль ионной траектории с поперечным размером в несколько нанометров, способные существенным образом повлиять на характеристики материала и, следовательно, на условия его практического применения.

Алюмоиттриевый оксид  $Y_4Al_2O_9$  (YAM) с моноклинной кристаллической структурой и пространственной группой  $P2_1/c$  (№14) является одной из трех кристаллических фаз в системе Y-Al-O [1, 2]. Другие фазы в системе: иттриево-алюминиевый перовскит  $YAlO_3$  (YAP) существует в кубической форме со структурой граната [3], и иттриево-алюминиевый гранат  $Y_3Al_5O_{12}$  (YAG) имеет ромбическую структуру искаженного перовскита [4].

$Y_4Al_2O_9$  (YAM) по сравнению с YAG и YAP имеет более высокую температуру плавления,  $2020^\circ\text{C}$  против  $1940^\circ\text{C}$  и  $1950^\circ\text{C}$  соответственно [5-9] и меньшую плотность ( $4.44 \text{ г/см}^3$ ). Также он характеризуется достаточно низкой теплопроводностью ( $1.13 \text{ В}\cdot\text{м}^{-1}\text{К}^{-1}$ ), достаточно хорошими механическими свойствами (константа Юнга  $191 \text{ ГПа}$ ) [10]. В настоящее время практически нет данных о радиационно-стимулированных изменениях в YAM. Так, воздействие тяжелых ионов высоких энергий на структуру наночастиц YAM ранее не исследовалось, в отличие от кристаллов YAG и YAP [11-13].

Целью данной работы является анализ

микроструктуры наночастиц YAM, облученных быстрыми тяжелыми ионами методами высокоразрешающей просвечивающей электронной микроскопии.

## Материалы и методы исследования

В данной работе объектами исследования были нанокристаллические образцы  $Y_4Al_2O_9$ , синтезированные в Научно-исследовательском физико-техническом институте Нижегородского государственного университета. Наночастицы, осажденные на ПЭМ grids, облучались ионами  $^{132}\text{Xe}$  с энергиями 156 и 220 МэВ и ионами  $^{209}\text{Bi}$  с энергией 714 МэВ при комнатной температуре на циклотронах ИЦ-100, У-400 в ЛЯР ОИЯИ (Дубна, Россия) и ДЦ-60 в АФ ИЯФ (Нур-Султан, Казахстан). Для расширения диапазона удельных ионизационных потерь энергии облучение проводилось с использованием специальных поглощающих фильтров в виде алюминиевых фольг. Флюенс ионов для всех образцов составлял  $5 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ .

Структура облученных образцов исследовалась в ЛЯР ОИЯИ на сканирующем/просвечивающем электронном микроскопе Talos™ F200i S/TEM, работающем при напряжении 200 кВ. Соответствующий анализ С/ПЭМ изображений проводился с применением программного пакета Velox™.

## Результаты и их обсуждение

На рис. 1 приведены светлопольные и темнопольные ПЭМ снимки структуры нанокристаллического YAM, облученного ионами Bi с энергией 714 МэВ и Xe с энергиями 156 и 55 МэВ. Исследования структуры методами ПЭМ показали, что образованные треки представляют собой аморфные образования в частицах YAM, и диаметры треков увеличиваются с увеличением тормозной способности.

Экспериментальные данные по размерам треков в нанокристаллическом YAM в зависимости от уровня удельных ионизационных потерь энергии ионов висмута и ксенона,  $S_e$ , приведены в таблице 1

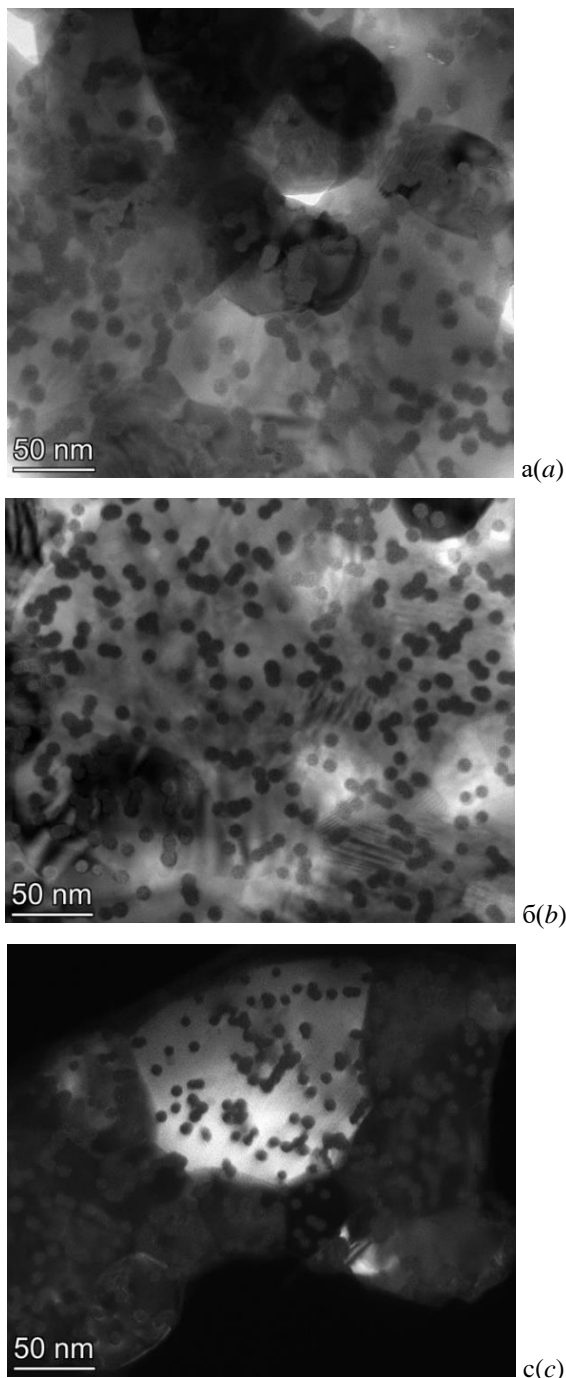


Рис. 1. Светлопольные и темнопольные ПЭМ снимки латентных треков в нанокристаллическом YAM, облученном ионами: а – Bi 714 МэВ; б – Xe 156 МэВ; с – Xe 55 МэВ

Fig. 1. Brightfield and darkfield TEM images of latent tracks in nanocrystalline YAM irradiated with: a - 714 MeV Bi; b - 156 MeV Xe; c - 55 MeV Xe

и рис. 2. Отметим, что подобные результаты получены впервые в мире.

Большие размеры треков при низких энергиях ионов Xe, и уменьшение треков

Таблица 1. Размеры треков в n-YAM, облученном ионами Bi и Xe до флюенса  $5 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$   
Table 1. Track measurements in n-YAM irradiated with Bi and Xe ions with fluence  $5 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$

| Ион               | Энергия, МэВ | $S_e$ , кэВ/нм | Радиус трека | Станд-е отклонение |
|-------------------|--------------|----------------|--------------|--------------------|
| $^{209}\text{Bi}$ | 714          | 35.27          | 4.83         | 0.65               |
|                   | 354          | 30.87          | 5.32         | 0.5                |
|                   | 287          | 28.64          | 5.22         | 0.5                |
|                   | 241          | 27.27          | 5.02         | 0.54               |
|                   | 164          | 23.54          | 4.46         | 0.52               |
|                   | 106          | 19.12          | 3.21         | 0.61               |
|                   | 83           | 16.68          | 2.54         | 0.58               |
| $^{132}\text{Xe}$ | 220          | 22.21          | 3.65         | 0.55               |
|                   | 156          | 20.4           | 3.60         | 0.6                |
|                   | 98           | 17.85          | 3.55         | 0.68               |
|                   | 79           | 16.52          | 3.58         | 0.57               |
|                   | 55           | 14.15          | 3.35         | 0.62               |
|                   | 53           | 13.81          | 3.30         | 0.57               |
|                   | 38           | 11.56          | 3.12         | 0.55               |
|                   | 34           | 10.8           | 2.86         | 0.58               |
|                   | 20           | 7.43           | 2.38         | 0.6                |

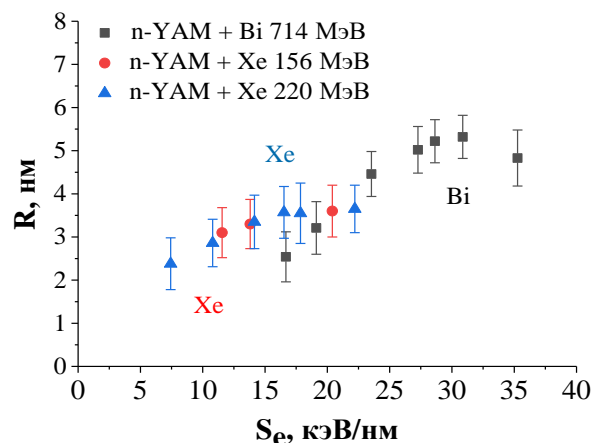


Рис. 2. Зависимость радиуса треков в YAM от уровня электронного торможения  
Fig. 2. Track radii in YAM as a function of electronic stopping power

при наибольшей энергии ионов Bi связывают с так называемым «эффектом скорости», в соответствии с которым при одинаковой величине  $S_e$ , больший радиус трека наблюдается для ионов с меньшей скоростью и меньшие радиусы для ионов с высокой скоростью. Особенно ярко этот эффект проявляется для энергий иона, находящихся симметрично относительно Брэгговского пика электронных потерь энергии иона [14, 15].

Диаметры треков в YAM, облученных ионами Xe, и в YAG, облученных ионами

Хе 167 МэВ [13], очень похожи, тогда как по сравнению с YAP, диаметры треков примерно в полтора раза больше. Результаты указывают на то, что тип кристаллической структуры, по-видимому, играет значительную роль в параметрах треков [16]. В YAM с более сложной элементарной ячейкой, содержащей 60 атомов, формируются треки большего размера, тогда как в YAP с намного более простой элементарной ячейкой, содержащей 20 атомов, радиус треков намного меньше.

В наших экспериментах треки не наблюдались после облучения ионами Вi с потерями энергии ~7 кэВ/нм и Хе (~5.2 кэВ/нм). Следовательно, можно предположить, что пороговое значение уровня электронного торможения, требуемое для образования треков в YAM, должно быть в интервале энергий 7-8 кэВ/нм.

### Заключение

Установлен размер латентных треков с помощью С/ПЭМ облученных высокоэнергетическими ионами висмута и ксенона. Впервые установлено, что облучение быстрыми тяжелыми ионами приводит к образованию аморфных латентных треков в нанокристаллическом YAM. Пороговое значение ионизационных потерь для образования треков находится в интервале 7-8 кэВ/нм.

Работа выполнена в рамках проекта ИРН (AP09058081) при поддержке Министерства образования и науки Республики Казахстан.

### Библиографические ссылки/ References

1. Wang Y., Hrubiak R., Turczynski S., Pawlak D.A., Malinowski M., Wlodarczyk D. et al. Spectroscopic properties and martensitic phase transition of  $Y_4Al_2O_9$ :Ce single crystals under high pressure. *Acta Materialia* 2019; 165: 346-361.
2. Girish H.N., Zhu C., Ma F.F., Shao G.Q. Synthesis of Cubic Yttrium Aluminum Garnet (YAG) Powders by Co-precipitation and Two-Step Calcinations. *AIP Conference Proceedings* 2017; 1829: 020019.
3. Yoder H.S., Keith M.L. Complete substitution of aluminum for silicon: The system  $3MnO \cdot Al_2O_3 \cdot 3SiO_2 \cdot 3Y_2O_3 \cdot 5Al_2O_3$ , *American Mineralogist* 1951; 36(7-8): 519-533.

4. Geller S., Wood E.A. Crystallographic studies of perovskite-like compounds. I. Rare earth orthoferrites and  $YFeO_3$ ,  $YCrO_3$ ,  $YAlO_3$ . *Acta Crystallographica* 1956; 9: 563-568.
5. Zhou Y., Xiang H., Lu X., Zhihai F., Zhongping L. Theoretical prediction on mechanical and thermal properties of a promising thermal barrier material:  $Y_4Al_2O_9$ . *Journal of Advanced Ceramics* 2015; 4(2): 83-93.
6. Zhan X., Li Z., Liu B., Jingyang W., Yanchun Z., Zijun H. Theoretical prediction of elastic stiffness and minimum lattice thermal conductivity of  $Y_3Al_5O_{12}$ ,  $YAlO_3$  and  $Y_4Al_2O_9$ . *Journal of the American Ceramic Society* 2012; 95(4): 1429-1434.
7. Li Z., Liu B., Wang J.M., Sun L.C., Wang J.Y., Zhou Y.C. et al. First-principle study of point defects in stoichiometric and nonstoichiometric  $Y_4Al_2O_9$ . *Journal of Materials Science & Technology* 2013; 29(12): 1161-1165.
8. Mah T., Petry M.D. Eutectic composition in the pseudobinary of  $Y_4Al_2O_9$  and  $Y_2O_3$ . *Journal of the American Ceramic Society* 1992; 75(7): 2006-2009.
9. Zhou X., Xu Z., Fan X., Sumei Zh., Xueqiang C., Limin H.  $Y_4Al_2O_9$  ceramics as a novel thermal barrier coating material for high temperature applications. *Materials Letters* 2014; 134: 146-148.
10. Yanchun Z., Xinpo L., Huimin X., Zhihai F. Preparation, mechanical, and thermal properties of a promising thermal barrier material:  $Y_4Al_2O_9$ . *Journal of Advanced Ceramics* 2015; 4(2): 94-102.
11. Izerrouken M., Meftah A., Nekkab M. Radiation damage induced by swift heavy ions and reactor neutrons in  $Y_3Al_5O_{12}$  single crystals. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B* 2007; 258(2): 395-402.
12. Rodriguez M.D., Li W.X., Chen F., Trautmann C., Bierschenk T., Afra B. SAXS and TEM investigation of ion tracks in neodymium-doped yttrium aluminum garnet. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B* 2014; 326: 150-153.
13. Janse van Vuuren A., Saifulin M.M., Skuratov V.A., O'Connell J.H., Aralbayeva G., Dauletbekova A. et al. The influence of stopping power and temperature on latent track formation in YAP and YAG. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B* 2019; 460: 67-73.
14. Chadderton L.T. Nuclear tracks in solids: registration physics and the compound spike. *Radiation Measurements* 2003; 36(1-6): 13-34.
15. Lang M., Hasenkamp W., Ishikawa N., Medvedev N., Neumann R., Papaleo R. et al. Influence of ion velocity on the track morphology in dark mica. *GSI Scientific Report* 2005; 3: 343.
16. Park S., Lang M., Tracy C.L., Zhang J., Zhang F., Trautmann C. et al. Response of  $Gd_2Ti_2O_7$  and  $La_2Ti_2O_7$  to swift-heavy ion irradiation and annealing. *Acta Materialia* 2015; 93: 1-11.