

Waarnemings oor die infrarooi reflektansiespektra van Neutronbestraalde 3C-SiC

JAA Engelbrecht, ¹SG Le Roux, ²EG Minnaar, ¹WE Goosen ¹

¹ Sentrum vir HRTEM en Departement Fisika, Nelson Mandela-Universiteit, Suid-Afrika

² Departement Chemie en Polimeerwetenskap, Universiteit Stellenbosch, Suid-Afrika

Korresponderende outeur: Japie Engelbrecht **E-pos:** Japie.Engelbrecht@mandela.ac.za

Onlangse ontledings van neutronbestraalde kubiese silikonkarbid monsters (3C-SiC-monsters) met behulp van Fourier-transform-infrarooispektroskopie (FTIR-infrarooispektroskopie) het gerapporteer oor waargenome veranderinge van die reflektansie sowel as onttrekte diëlektriese parameters van die monsters. Die veranderinge hou vermoedelik verband met die oppervlakgrofheid van die monsters. Aangesien daar nie verwag word dat neutronbestraling die oppervlak van bestraalde monsters sal beskadig nie, is hierdie waarnemings herevalueer. Daar word voorgestel dat veranderinge meer waarskynlik toegeskryf kan word aan die korrelgroottes van die polikristallyne 3C-SiC-monsters wat bestraal is.

Sleutelwoorde: 3C-SiC, neutronbestraling, infrarooispektroskopie

Observations on the infrared reflectance spectra of Neutron-irradiated 3C-SiC: Recent analyses of neutron-irradiated cubic silicon carbide (3C-SiC) samples using Fourier-transform infrared spectroscopy (FTIR spectroscopy) reported on observed changes of the reflectance as well as extracted dielectric parameters of the samples. The changes were thought to be associated with sample surface roughness. Since neutron irradiation is not expected to damage the surface of irradiated samples, these observations were reassessed. It is suggested that changes could more likely be ascribed to the grain sizes of the polycrystalline 3C-SiC samples that were irradiated.

Keywords: 3C-SiC, neutron irradiation, infrared spectroscopy

Inleiding

Die gebruik van silikonkarbid (SiC) as 'n inperkingslaag in die drievoudig bedekte isotropiese ("TRISO"-) lae in die nuwe-generasie-kernreaktors is reeds in 1989 deur Wacholz (Wacholz, 1989) voorgestel. Tydens die werking van hierdie kernreaktors word verwag dat die SiC aan hoë fluensies van verskeie kernsplytingspartikels, sowel as aan wisselende temperature onderwerp sal word. Gevolglik is verskeie ondersoeke na die effek van bestraling op SiC reeds gerapporteer, met behulp van verskeie karakteriseringstegniese om inligting oor enige invloed van die bestraling op materiaaleienskappe te verkry (Snead et al., 1998a, 1998b, 1999; Dkaki et al., 2001; Ryazanov et al., 2002; Katoh et al., 2006; Newsome et al., 2007; Kondo et al., 2008a, 2008b; Katoh et al., 2008, 2011; Brink et al., 2009; Talwar et al., 2012; Dong et al., 2012; Malherbe, 2013; O'Connell & Neethling, 2014; Lillo & Van Rooyen, 2016).

Vorige ondersoeke het gerapporteer oor 3C-SiC-skywe wat bestraal is by (i) wisselende bestralingstemperature maar min of meer konstante neutronbestralingsfluensies (Engelbrecht et al., 2014) en (ii) by konstante bestralingstemperature maar wisselende neutronbestralingsfluensies (Engelbrecht et al., 2015). Fourier-transform-infrarooispektroskopie (FTIR-spektroskopie) en atoomkragmikroskopie (AKM) is gebruik om die bestraalde monsters te karakteriseer. Veranderinge is in die infrarooi reflektansie sowel as in die onttrekte diëlektriese parameters van die monsters waargeneem. Die veranderinge is toegeskryf

aan die oppervlakgrofheid van die monsters. Laasgenoemde voorstel het egter verdere ondersoek vereis, aangesien skade aan die oppervlak van monsters wat aan neutronbestraling onderwerp is, nie verwag word nie (O'Connell en Neethling, 2014).

Hierdie artikel rapporteer oor die herevaluering van dieselfde voorheen ontlede neutronbestraalde 3C-SiC-monsters.

Eksperiment

Twee stelle SiC-monsters in die vorm van skywe is ontleed by:

- 'n Konstante neutronbestralingstemperature van 800 °C, terwyl die neutronfluensies tussen 5×10^{19} en $7,7 \times 10^{21}$ n/cm² varieer is; en
- Bestralingstemperature van 200 °C, 300 °C en 400 °C, en by neutronfluensies wat van 5×10^{19} tot $4,8 \times 10^{20}$ n/cm² gewissel het.

Bestraling van monsters is by die Oak Ridge National Laboratory (ORNL), VSA, gedoen. Inligting wat verband hou met monsters wat in hierdie verslag ontleed is, word in Tabel I en II vervat.

'n Bruker 80V FTIR/Raman-spektrometer, toegerus met 'n Pike 10 Spec-spekulêre weerkaatsingseenheid wat nabynormale invalshoeke moontlik gemaak het, is gebruik om infrarooirefleksiespektrums van monsters te verkry, en 50 skanderings teen 'n resoluë van 8 cm⁻¹ is geneem. Oppervlakgrofheid van

die monsters is gemeet met behulp van 'n Nano-indenteerder van CSM Instruments, wat met 'n atoomkrugmikroskoop toegerus was. Monsteroppervlaktes van $25 \times 25 \mu\text{m}^2$ groot is deur atoomkrugmikroskopie (AKM) ontleed. Monsters is daarna met diamantsuspensie gepoleer, gevolg deur agtereenvolgens minder growwe diamantpasta en laastens met 50 nm-kolloïdale silika. Die IR-reflektansie van alle monsters is daarna weer gemeet. Gepoleerde monsters is vervolgens geïnspekteer met behulp van 'n JEOL JSM 7001F-skandeerelektronmikroskoop (SEM), terwyl die grootte van korrels in die monsters bepaal is deur elektron-terugverstrooiingsdiffraksie ("ESBD") met behulp van Aztecsagteware. Die gemiddelde korrelgroottes is bepaal uit drie SEM-mikrograwe wat vir elke monster verkry is.

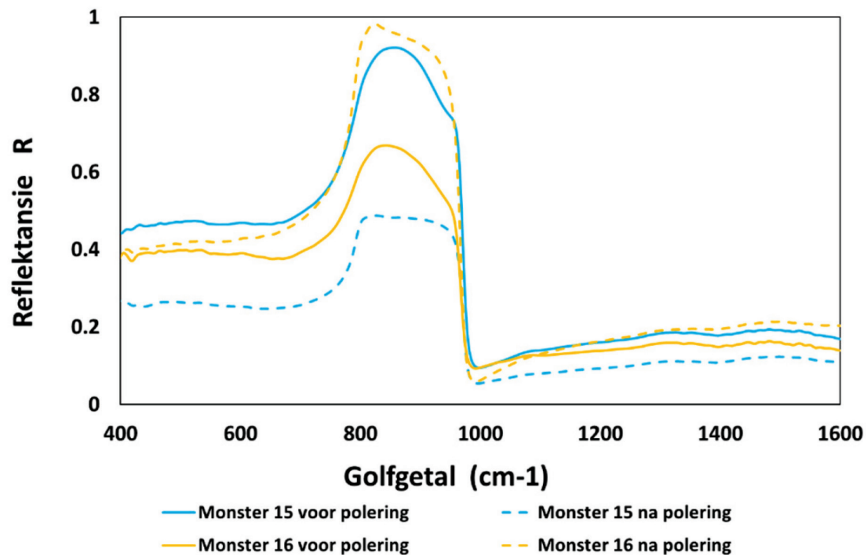
Resultate en bespreking

Konstante temperatuur, wisselende neutronfluensie

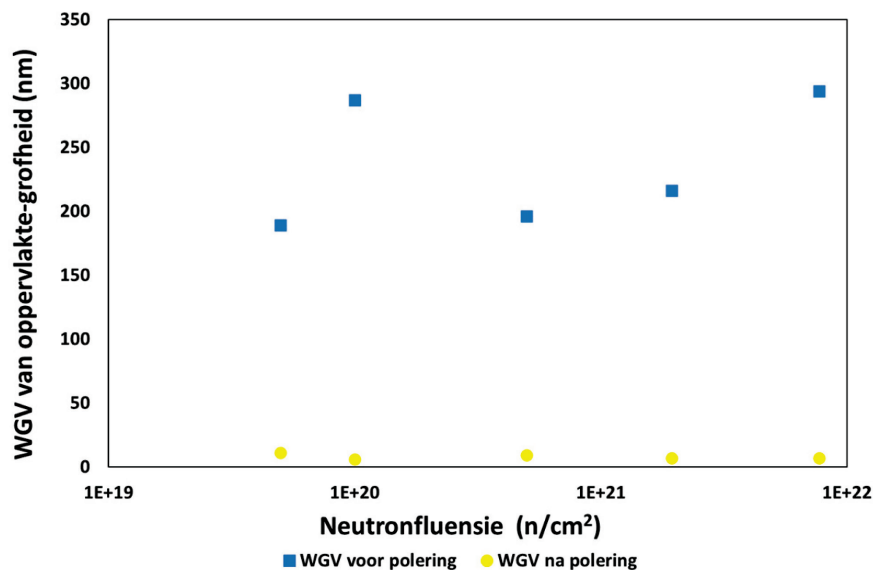
Figuur 1 beeld die verandering uit in die infrarooi reflektansie van twee monsters voor en ná polering. In een geval (nr 15)

word 'n afname in reflektansie waargeneem, terwyl in 'n ander geval (nr 16) die reflektansie ná polering toegeneem het. Hierdie waarnemings, veral dié vir monster 15, is alreeds 'n aanduiding dat die vorige vertolking van die rede vir veranderinge in reflektansie (Engelbrecht et al., 2014; Engelbrecht et al., 2015) dalk nie korrek is nie. Kroon het aangetoon dat oppervlaktgrofheid 'n beduidende effek op reflektansie het, en dat die reflektansie ook kan toeneem met oppervlaktgrofheid, na gelang van die gepaardgaande verandering in die diëlektriese konstante ϵ van die halfgeleidende materiaal (Kroon, 2007). Dit blyk duidelik in Figuur 1 vir monster 15.

Die wortel gemiddelde vierkant van die monsteroppervlaktgrofheid (WGV-grofheid), soos gemeet deur AKM, word in Figuur 2 weergegee vir alle monsters wat by $800 \text{ }^\circ\text{C}$ bestraal is. Dit is duidelik dat die oppervlaktgrofheid van alle monsters ná polering ongeveer gelyk is, aangesien die WGV-grofheid van die μm - tot die nm-bestek afgeneem het. Waardes is in Tabel 1 vervat.



Figuur 1: Infrarooi reflektansiespektra van twee monsters bestraal by $800 \text{ }^\circ\text{C}$, voor en ná polering



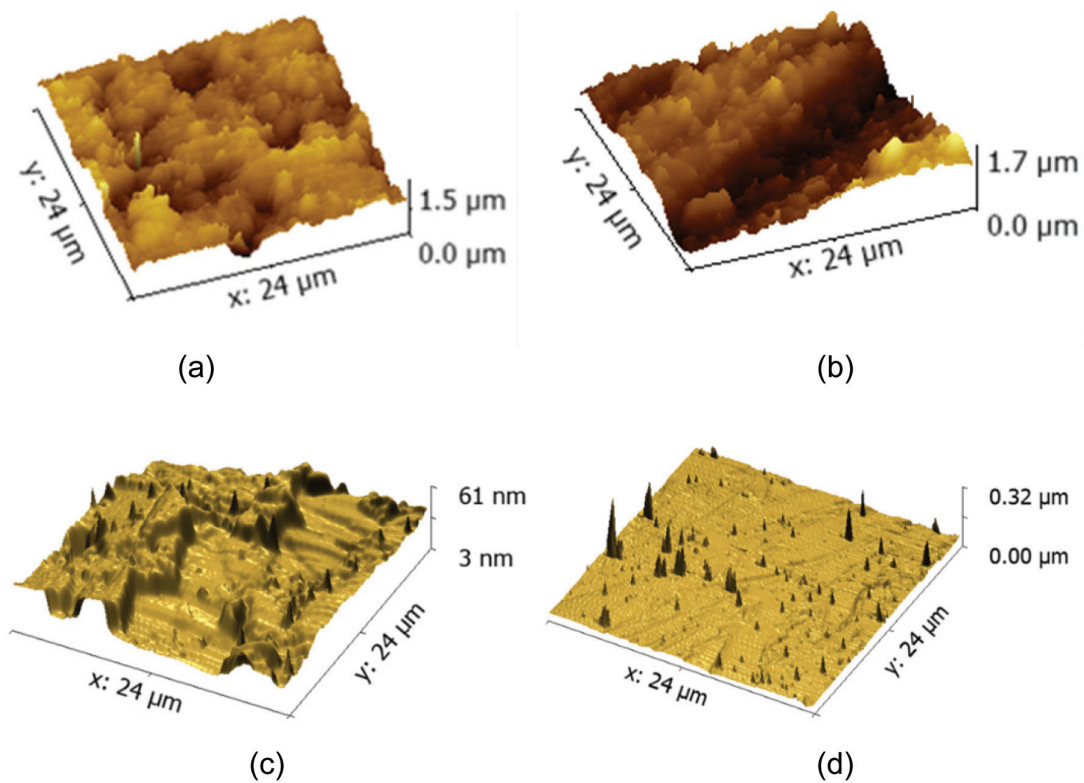
Figuur 2: WGV van oppervlakte-grofheid van alle monsters bestraal by $800 \text{ }^\circ\text{C}$, voor en ná polering

Tabel I: Monsterkenmerke voor en ná polering van monsters wat by konstante temperatuur maar teen wisselende neutronbestralingsfluensies bestraal is

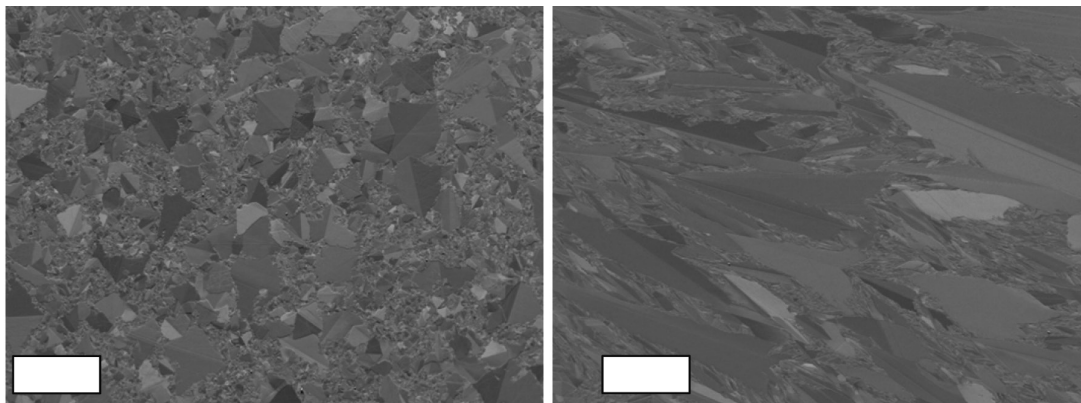
Monsternommer	Bestralingstemperatuur (°C)	Fluensie (n/cm ²)	Gemiddelde WGV-oppervlak-grofheid voor polering (nm)	Gemiddelde WGV-oppervlak-grofheid ná polering (nm)	Gemiddelde korrel-grootte ná polering (µm)	Rmaks
15	800	5,0 x 10 ¹⁹	189	11,1	8,6 ± 0,1	0,97
16	800	1,0 x 10 ²⁰	287	5,8	3,8 ± 0,1	0,77
18	800	5,0 x 10 ²⁰	196	9,2	3,7 ± 0,1	0,50
20	800	1,9 x 10 ²¹	216	6,7	8,8 ± 0,1	0,75
19	800	7,7 x 10 ²¹	294	6,6	3,7 ± 0,2	0,67

Die gemiddelde WGV-oppervlakgrofheid is gemeet deur gebruik te maak van AKM, en resultate vir monsters 15 en 16 (uit Figuur 1) word in Figuur 3 weergegee. Die gemiddelde korrel-

groottes wat vir monsters 15 en 16 waargeneem is, word in Figuur 4 weergegee. Waardes wat vir gemiddelde korrelgrootte en gemiddelde oppervlakgrofheid verkry is, is in Tabel II vervat.



Figuur 3: AKM-metings van die gemiddelde WGV van oppervlakgrofheid van monster 15 (a) en monster 16 (b) voor polering, en monster 15 (c) en monster 16 (d) ná polering.



Figuur 4: SEM-mikrograwe van die korrels in (a) monster 15 en (b) monster 16 (na polering) (die wit staaf verteenwoordig 100 mikron)

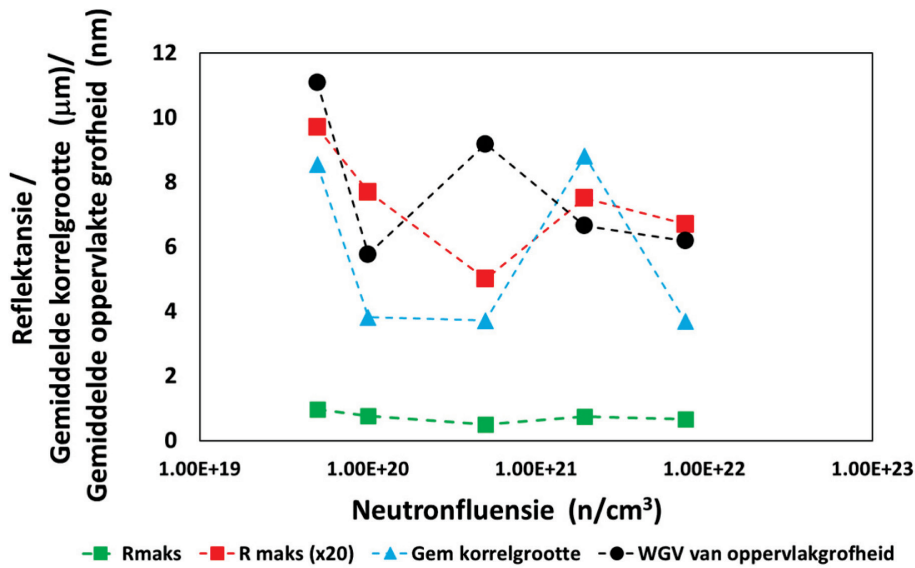
Deur die maksimum infrarooi reflektansie R , gemiddelde WGV-opervlakgrofheid en gemiddelde korrelgrootte vir al die monsters in hierdie stel (Figuur 4) te vergelyk, is dit duidelik dat (i) daar geen verband tussen die reflektansie en die oppervlakgrofheid is nadat die monsters gepoleer is nie, en (ii) daar 'n definitiewe verband tussen die reflektansie en die gemiddelde korrelgrootte is. (Foute in reflektansie is $\pm 10\%$).

Bogenoemde waarneming is vervolgens geverifieer deur die ondersoek te herhaal vir monsters wat by min of meer dieselfde neutronfluensies bestraal is, maar teen wisselende temperature.

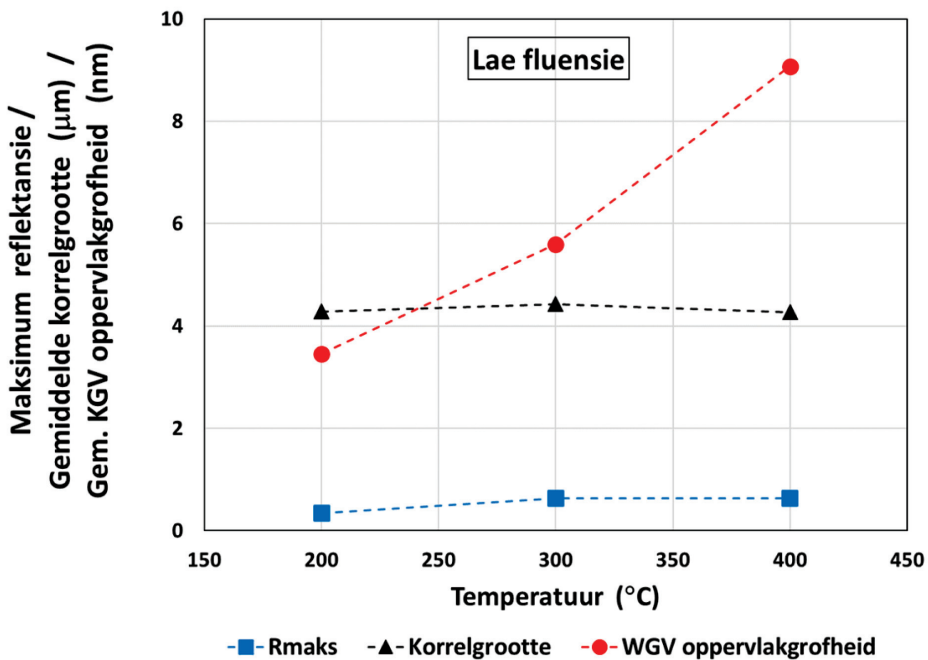
Dieselfde neutronfluensie, verskillende bestralingstemperature

Deur die ontledings soos in 3.1 te herhaal, is die resultate vir die gemiddelde oppervlakgrofheid voor en ná polering, en gemiddelde korrelgrootte ná polering verkry soos in Tabel II weergegee word.

Die maksimum infrarooi reflektansie vir elk van die monsters, tesame met die gemiddelde oppervlakgrofheid en gemiddelde korrelgrootte, word in Figuur 5 (lae fluensiebestek) en Figuur 6 (hoë fluensiebestek) weergegee – sien Tabel I vir neutronfluensies.



Figuur 5: Maksimum reflektansie, WGV oppervlakgrofheid en gemiddelde korrelgrootte vir alle monsters wat by 800 °C bestraal is (let daarop dat die stippellyne slegs 'n riglyn vir die oog is)



Figuur 6: Reflektansie, gemiddelde WGV-opervlakgrofheid en gemiddelde korrelgrootte vir lae neutronfluensie monsters bestraal by temperature soos aangedui op die x-as (stippellyne is slegs 'n riglyn vir die oog)

Tabel II: Eienskappe van neutronbestraalde monsters by wisselende temperature soos aangedui

Monster-nummer	Bestralings-temperatuur (°C)	Fluensie (n/cm ²)	Gemiddelde WGV-oppervlakgroftheid voor polering (nm)	Gemiddelde WGV-oppervlakgroftheid ná polering (nm)	Gemiddelde korrel-grootte ná polering (µm)	Rmaks Voor polering	Rmaks Na polering
2	200	5,6 × 10 ¹⁹	110	3,5	4,3 ± 0,03	0,97	0,34
3	200	9,7 × 10 ¹⁹	260	4,7	3,2 ± 0,03	0,41	0,37
4	300	6,0 × 10 ²⁰	100	5,6	4,4 ± 0,03	0,75	0,63
5	300	1,4 × 10 ²¹	190	4,2	2,2 ± 0,03	0,55	0,48
9	400	7,7 × 10 ²¹	160	9,1	4,3 ± 0,03	0,72	0,63
10	400	4,8 × 10 ²⁰	169	5,3	5,7 ± 0,08	0,63	0,33

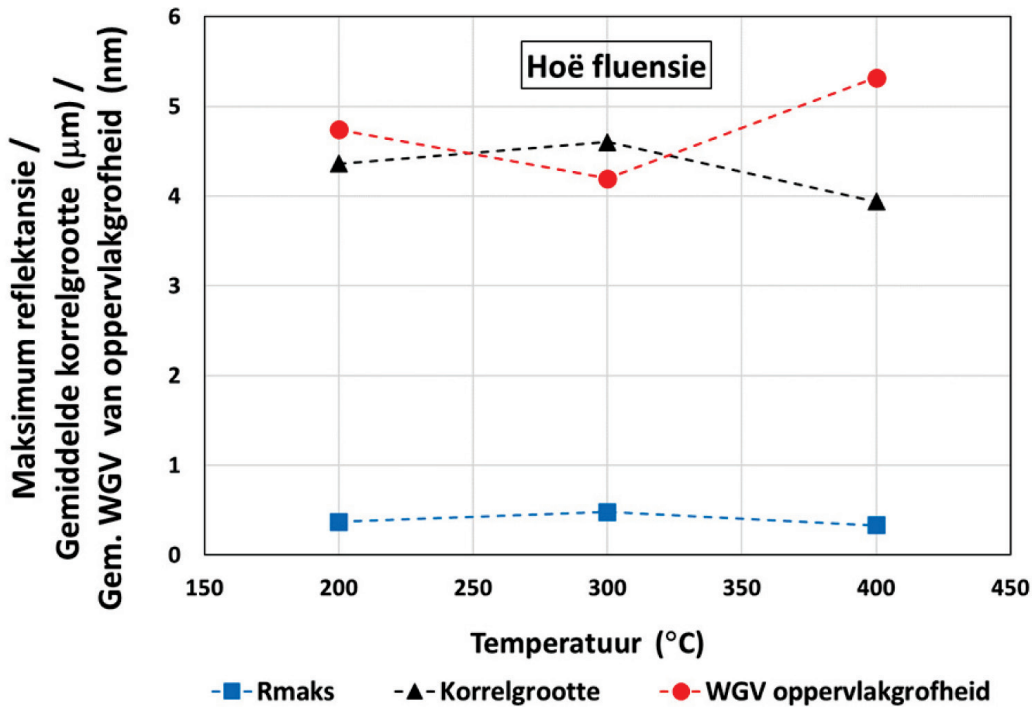
Dit is duidelik uit die tendense wat waargeneem is vir die variasie in reflektansie as funksie van gemiddelde oppervlakgroftheid en gemiddelde korrelgrootte dat hierdie variasies te wyte is aan die korrelgrootte, en nie die oppervlakgroftheid soos voorheen gerapporteer is nie (Engelbrecht et al., 2014; Engelbrecht et al. al., 2015). Dit is waarskynlik dat die tendense wat vroeër gerapporteer is, deels te wyte was aan die oppervlakskaad wat veroorsaak is toe die 3C-SiC stawe voor bestraling gesny is. Daar kon egter ook 'n bydrae van die korrelgroottes tydens IR-metings gewees het. Die penetrasiediepte van infrarooi straling in silikonkarbid word soos volg aangegee (Amirtharaj, PM & Seiler, DM, 1995):

$$d = \lambda / (2 \pi k) \tag{1}$$

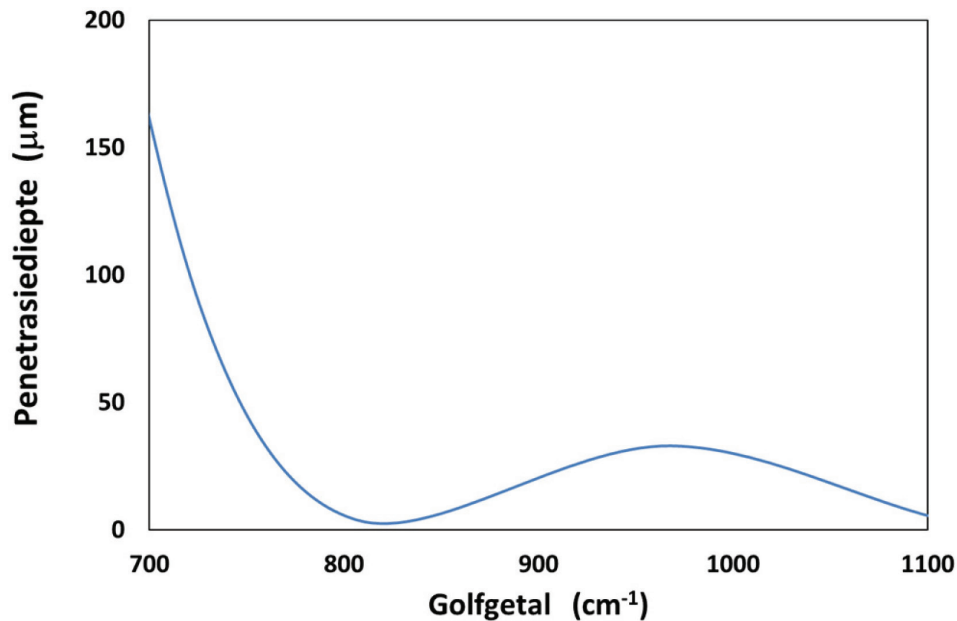
waar λ die golflengte en k die uitdowingskoëffisiënt van 3C-SiC is, met $k = k(\lambda)$ (Adachi, S., 2012).

Dit is duidelik uit Figuur 8, soos bereken en uitgestippel vanaf vergelyking (1), dat die penetrasiediepte vir sommige golflengtes in die Reststrahlen-gebied waar die maksimum reflektansie R gemeet is, $> 30 \mu\text{m}$ is. Hierdie waardes is groter as die oppervlakgroftheid wat gemeet is, en dit is dus waarskynlik dat daar 'n bydrae van die korrels in die 3C-SiC-monsters sou gewees het toe die reflektansie gemeet is.

Ten slotte moet daarop gelet word dat beide oppervlakgroftheid en korrelgrootte 'n rol kan speel in die reflektansie van die monsters. Aangesien daar egter gerapporteer is dat neutronbestraling nie die oppervlakgroftheid van bestraalde 3C-SiC-monsters beïnvloed nie, is dit heel waarskynlik dat die veranderinge in reflektansie wat in die huidige studie waargeneem is, te wyte is aan die korrelgrootte van die onderskeie monsters. Hierdie bevinding weerspreek dus die gevolgtrekking van die vroeëre publikasies rakende die oppervlakgroftheid van die monsters.



Figuur 7: Reflektansie, gemiddelde WGV-oppervlakgroftheid en gemiddelde korrelgrootte vir hoëneutronfluensie monsters bestraal by temperature soos aangedui op die x-as (stippellyne is slegs 'n riglyn vir die oog)



Figuur 8: Penetratediepte van infrarooi straling in die Reststrahlen-streek van 3C-SiC

Erkennings

Die skrywers bedank mnr Nkululeko Mfuma vir tegniese ondersteuning en is dankbaar vir finansiële ondersteuning van die Nasionale Navorsingstigting (NRF), Suid-Afrika (befondsingskode UID70724). Enige mening, bevindinge en gevolgtrekkings of aanbevelings wat in hierdie artikel uitgespreek word, is dié van die outeurs, en daarom aanvaar die NNS nie aanspreeklikheid ten opsigte daarvan nie.

Datums

Indiening: 02/06/2023
 Aanvaarding: 20/10/2023
 Publisering: 06/12/2023

Verwysings

- Adachi, S., 2012, Tabel 3.3 Optiese konstantes van 3C-SiC by 300 K, *Handbook of Optical Constants of Semiconductors*, World Scientific Publishing Co Pty Ltd, Singapore, p78.
- Amirtharaj, P.M., Seiler, D.G., 1995, Optiese eienskappe van halfgeleiers, *Handbook of Optics Vol. 2: Toestelle, Metings en Eienskappe (2de Uitgawe)*, M. Bass (Hoofredakteur), McGraw-Hill Inc, NY, Hoofstuk. 36.
- Brink, D.J., Malherbe, J.B., Camassel, J., 2009, Neutronbestralingseffekte in SiC, *Kerninstrumente en -metodes in Fisika Navorsing Afdeling B: Straalinteraksies met materiale en atome* 267, 2716-2718. <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2009.05.029>.
- Dkaki, M., Calcagno, L., Makthari, AM, et al., Infrarooispektroskopie en transmissie-elektronmikroskopie van polikristallyne silikonkarbid, *Materiaalwetenskap in Halfgeleierverwerking* 4, 201-204. [https://doi.org/10.1016/S1369-8001\(00\)00113-X](https://doi.org/10.1016/S1369-8001(00)00113-X).
- Dong, L., Sun, G., Zheng, L., et al., Infrarooi reflektansie studie van 3C-SiC epilae gegroei op silikon substrate, *Journal of Physics D: Applied Physics* 45, 245102 (7 bladsye). <https://doi.org/10.1088/0022-3727/45/24/245102>.
- Engelbrecht, J.A.A., Deyzel, G., Minnaar, E.G., et al., 2014, Die invloed van neutronbestraling by lae temperature op die diëlektriese parameters van 3C-SiC, *Physica B: Condensed Matter*, 439, 169-172. <https://doi.org/10.1016/j.physb.2013.10.059>.
- Engelbrecht, J.A.A., Deyzel, G., Minnaar, E.G., et al., 2015, Assessering van neutronbestraalde 3C-SiC ingeplant by 800 °C, *Journal of Applied Optics* 36, 937-941. <https://doi.org/10.5768/JAO201536.0604001>.
- Katoh, K., Hashimoto, N., Kondo, S., et al., 2006, Mikrostrukturele ontwikkeling in kubieke silikonkarbid tydens bestraling by verhoogde temperature, *Journal of Nuclear Materials* 351, 228-240. <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2006.02.007>.
- Katoh, Y., Kondo, S., Snead, L.L., 2008, Mikrostrukture van beta-silikonkarbid na bestraling kruip vervorming by verhoogde temperature, *Journal of Nuclear Materials* 382, 170-175. <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2008.08.012>.
- Katoh, Y., Nozawa, T., Snead, L.L., et al., 2011, Stabiliteit van SiC en sy samestellings by hoë neutronfluensie, *Journal of Nuclear Materials* 417, 400-405. <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2010.12.088>.
- Kondo, S., Katoh, Y., Snead, L.L., 2008, Mikrostrukturele defekte in SiC neutron wat by baie hoë temperature bestraal word, *Journal of Nuclear Materials* 382, 160-169. <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2008.08.013>.
- Kondo, S., Katoh, Y., Snead, L.L., 2008, Eenrigtingvorming van tetraëdriese leemtes in bestraalde silikonkarbid, *Applied Physics Letters* 93, 163110-1 - 163110-3. <https://doi.org/10.1063/1.3005650>.
- Kroon, R.E., 2007, Die klassieke ossillatormodel en diëlektriese konstantes wat uit infrarooirefleksiesmetings onttrek word. *Infrarooi Fisika en Tegnologie* 51, 31-43. <https://doi.org/10.1016/j.infrared.2007.02.002>.
- Lillo, T.M., Van Rooyen, I.J., 2016, Invloed van SiC- korrelgrenskarakter op splittingsprodukvervoer in bestraalde TRISCO-brandstof, *Journal of Nuclear Materials* 473, 83-92. <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2016.01.040>.
- Malherbe, J.B., 2013, Diffusie van splittingsprodukte en stralingskade in SiC, *Tydskrif vir Fisika D: Toegepaste Fisika* 46, 473001 (27 bladsye). <https://doi.org/10.1088/0022-3727/46/47/473001>.
- Newsome, G., Snead, L.L., Hinoki, T., et al., 2007, Evaluering van neutronbestraalde silikonkarbid en silikonkarbid-samestellings, *Journal of Nuclear Materials* 371, 76-89. <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2007.05.007>.
- O'Connell, J.H., Neethling, J.H., 2014, Ag vervoer in hoë temperatuur neutron bestraalde 3C-SiC, *Journal of Nuclear Materials* 445, 20-25. <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2013.10.050>.
- Ryazanov, A.I., Klaptsov, A.V., Kohyama, A., et al., 2002, Stralingsswelling van SiC onder neutronbestraling, *Journal of Nuclear Materials* 307- 311, 1107-1111. [https://doi.org/10.1016/S0022-3115\(02\)01114-5](https://doi.org/10.1016/S0022-3115(02)01114-5).
- Snead, L.L., Zinkle, S.J., Hay, J.C., et al., 1998, Amorfisering van SiC onder ion- en neutronbestraling, *Kerninstrumente en -metodes in fisika-navorsing Afdeling B: Interaksies met materiale en atome* 141, 123-132. [https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(98\)00085-8](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(98)00085-8).
- Snead, L.C., Osborne, M.C., Lowden, R.A., et al., 1998, Lae dosis bestraling prestasie van SiC interfasie SiC / SiC komposiete, *Journal of Nuclear Materials* 253, 20-30. [https://doi.org/10.1016/S0022-3115\(97\)00321-8](https://doi.org/10.1016/S0022-3115(97)00321-8).
- Snead, L.L., Hay, J.C., 1999, Neutronbestraling geïnduseerde amorfisering van silikonkarbid, *Journal of Nuclear Materials* 273, 213-220. [https://doi.org/10.1016/S0022-3115\(99\)00023-9](https://doi.org/10.1016/S0022-3115(99)00023-9).
- Talwar, D.N., Feng, Z.C., Liu, C.W., et al., 2012, Invloed van oppervlaktrofheid en grensvlaklaag op die infrarooi spektra van V-CVD-gegroeide 3C-SiC/Si(100) epilae, *Halfgeleierwetenskap en -tegnologie* 27, 115019 (13 bladsye). <https://doi.org/10.1088/0268-1242/27/11/115019>.
- Wacholz, W., 1989, Die huidige stand van die HTR-konsep gebaseer op ervaring opgedoen van AVR en THTR, *International Working Group on Gas-Cooled Reactors, IWGGCR--* 19, 61-70.